

## 論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 11599 号
------	---------------

氏名 鈴木 飛鳥

### 論文題目

水素透過金属膜における新しい学術体系の構築と低温作動型合金膜の最適設計への展開

(Establishment of new paradigm for hydrogen permeable metal membrane and its application to optimal design of alloy membrane for low operative temperature)

### 論文審査担当者

主査	名古屋大学	教授	村田 純教
委員	名古屋大学	教授	小山 敏幸
委員	名古屋大学	教授	小橋 真
委員	名古屋大学	教授	市野 良一
委員	名古屋大学	教授	齋藤 弥八

## 論文審査の結果の要旨

鈴木飛鳥君提出の論文「水素透過金属膜における新しい学術体系の構築と低温作動型合金膜の最適設計への展開」では、水素透過膜の特性をより良く理解できる水素透過能の新しい解析手法を提唱している。また、その解析手法に基づき、V系水素透過合金膜の水素の拡散性や水素溶解特性などの基礎的物性を調べることで、低温作動型合金膜設計のための指針を得ている。

各章の概要は以下の通りである。

第1章では、本論文の背景として、高純度水素を得るために水素透過金属膜の重要性、水素透過反応の機構、従来の水素透過能の表現とその問題点について述べ、水素透過金属膜の作動温度の低温化の必要性と課題を述べている。それらを踏まえて本研究の目的について述べている。

第2章では、水素の化学ポテンシャルの勾配を駆動力と考える拡散方程式をもとに、水素透過能の新しい表現を導き、水素透過流束が、材料のもつPCT曲線の形と負荷される圧力条件によって決まるPCT因子に比例することを示している。また、純ニオブを用いた水素透過試験によって、新しい式の妥当性を確認している。

第3章では、実用合金膜の1つであるPd-23mol%Ag合金膜の水素透過能を広い温度範囲にわたって調査し、特異的な温度依存性が存在することを見出している。この温度依存性を水素透過能の新しい表現の観点から解析し、その特異的な温度依存性がPCT因子の温度依存性から理解できることを明らかにしている。

第4章では、種々の合金元素を添加したV系合金のPCT曲線を測定し、各合金元素がPCT曲線に与える効果について系統的に調査している。その結果、Fe, Co, Ruなどの元素添加によりVの透過膜特性を向上させるようPCT曲線が適切に制御できることを示している。

第5章では、水素透過能の新しい表現をもとに、5族金属系水素透過合金膜の設計指針を導き、実際に高い水素透過能と優れた耐水素脆性の両立が可能であること示している。この設計指針では、膜を使用する温度・圧力条件に合わせて、PCT曲線を適切に制御することが重要となる。

第6章では、Vの水素溶解特性と水素の拡散性に及ぼす合金効果を評価している。水素溶解特性に関しては、水素溶解に伴う水素の部分モルエンタルピー変化とエントロピー変化の観点から調査している。その結果、合金元素によるPCT曲線の制御効果はエンタルピー変化に依ることを明らかにしている。水素の拡散性に関しては、水素原子の易動度の観点から、Fe, Ru, Cr, Coは低温域での水素の拡散性が向上させるが、Alは低下させるという知見を得ている。これらの評価から、低温における水素の拡散性を向上させる元素を用いて、エンタルピー変化の観点からPCT曲線を適切に制御することが低温作動型の水素透過合金膜の設計において重要であるという指針を得ている。

第7章では、Vの水素化物の形成温度を水素中その場XRD測定を用いて評価している。その結果、水素化物の形成温度はFeの添加により上昇し、AlやRuの添加により低下することを明らかにしている。

第8章では、各特性に及ぼす合金効果を第一原理計算から考察している。水素原子がAl原子の近接サイトを占有できないことが明らかにし、それがAlの添加により水素の拡散性を低下させる要因であるという考察を行っている。

第9章では、本研究の結論を与えている。

以上のように、本論文では水素透過金属膜の特性をより良く評価できる水素透過能の新しい解析手法を提案するとともに、水素の拡散性、水素溶解特性、水素化物の形成温度などの基礎的物性に及ぼす合金効果を定量的に評価している。その知見は低温作動型水素透過金属膜の設計において重要であり、工学の発展に寄与するところが大きいと判断できる。よって、本論文の提出者である鈴木飛鳥君は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格があると判断した。