

審査結果の要旨

審査委員会

審査員主査

堀 美 知 郎

博士後期課程専攻長

水 澤 富 作

審 査 員

佐 藤 義 久

審 査 員

神 崎 義 久

審 査 員

宗 内 篤 夫

論文題目： Study on Cell Performance and Durability of High-Temperature Proton Exchange Membrane Fuel Cells

申請者：

大 野 由 佳

(論文博士)

審査要旨

本論文は、リン酸をドーピングした高分子膜を電解質層に用い、150°Cの温度域で作動する中温形 PEMFC に関して、延べ10年間におよぶ発電検証、ポスト解析、並びに、分子動力的シミュレーション解析を基に、世界に先駆け、実用化に必要とされるセルの耐久性(5年間)に対し解を与えた。中温形 PEMFC は、現行の低温形 PEMFC を用いた家庭用燃料電池システム(ENE-FARM)に比べて、システム発電効率が高く、低コスト化に優れているにも拘らず、これまで、国内外において、その難しさから耐久性に関してはほとんど報告がなされなかった。さらに、これまで、耐久性を支配する因子の同定やセルの劣化メカニズムを実験的にも解析的にも解明した報告はなかった。

本研究は、実験的および解析的に、中温形 PEMFC の耐久性に解を与え、家庭用燃料電池への新たな道を切り開いた。本論文は全7章で構成されている。

第1章では、中温形 PEMFC の特徴およびその課題、並びに、本研究の目的と本論文の構成について述べている。

第2章では、リン酸の PBI 膜へのドーピング率とセル電圧との関係を明らかにし、セルの高性能化のためのリン酸ドーピング方法を確立した。さらに、初期的に PBI 膜にドーピングしたリン酸が触媒層へ移動するメカニズム、すなわち、セル高性能化の方向性を明らかにした。

第3章では、リン酸をドーピングした PBI 膜を組み込んだセルにおいて、セル温度をパラメータにして、長期耐久試験、セル診断、およびポスト解析を実施した。その結果、セル運転温度を高くすると、セル電圧が向上する反面、耐久性は低下することを示した。また、セル温度に関係なく発電初期の電極触媒凝集によるセル電圧の低下が 20mV 程度であり、その後、寿命末期に一気にセル電圧の低下することを明らかにした。

第4章では、分子動力学などの解析的手法を用いて、電極触媒の凝集による電気化学的活性比表面積(ECSA)の減少、並びにリン酸の蒸発による ECSA とプロトン導電パスの減少に起因するセル電圧の低下を見積もった。また、解析結果と発電結果がよい一致を示すことを明らかにした。

第5章では、リン酸をドーピングした PBI 膜を組み込んだ5つのセルを用いて、2年間を超える発電試験を実施した。その結果、発電初期には触媒の凝集によって、また、その後約 14,000 時間まではリン酸の蒸発によってセル電圧が低下し、最終的に、電解質膜が分解してクロスリークが起これり、セル電圧が急激に低下することを明らかにした。

第6章では、PBI 膜に替えて架橋をした ABPBI 膜にリン酸をドーピングして単セルに組み込み、2年を超える発電試験、並びにポスト解析を実施し、ABPBI 膜を用いることで、第5章で寿命末期に観察された電解質膜の減肉が、2年間に亘って全く起こらないことを検証した。こうした結果を基に、開発目標である5年間の耐久性を達成しうることを示した。

第7章は結言であり、本研究の成果をまとめている。

以上のように本研究は、世界に先駆け、中温形 PEMFC を用いた家庭用燃料電池の実用化に必要とされるセルの耐久性に対して、実験的および解析的に解を与えた。こうした成果は世界において高い評価を受けており、世界から大野由佳に対する招待講演への依頼は後を絶たない。以上のように、実験的にのみならず、学術的にもその価値は高い。よって、申請者 大野 由佳は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと判断した。

申請者〔大野 由佳〕