

令和元年8月20日

豊橋技術科学大学長 殿

電気・電子情報工学専攻  
学位審査委員会  
委員長

櫻井 庸司



### 論文審査及び最終試験の結果報告

このことについて、博士学位論文審査を実施し、下記の結果を得ましたので報告いたします。

学位申請者	KYAW ZAY YA		学籍番号	第 169201 号
申請学位	博士（工学）	専攻名	大学院工学研究科博士後期課程 電気・電子情報工学専攻	
博士学位論文名	Effects of Inorganic Additives on Properties of Polybenzimidazole Electrolyte Membranes for Medium Temperature Fuel Cells（無機添加物が中温型燃料電池用ポリベンゾイミダゾール電解質膜の性質に及ぼす影響）			
論文審査の期間	令和元年7月18日～令和元年8月19日			
公開審査会の日	令和元年8月7日	最終試験の実施日	令和元年8月7日	
論文審査の結果※	合格		最終試験の結果※	合格
審査委員会(学位規程第6条)				
学位申請者にかかる博士学位論文について、論文審査、公開審査会及び最終試験を行い、別紙論文内容の要旨及び審査結果の要旨のとおり確認したので、学位審査委員会に報告します。				
委員長	武藤 浩行			
委員	水嶋 生智		服部 敏明	
	松田 厚範			

※論文審査の結果及び最終試験の結果は「合格」又は「不合格」の評語で記入すること。

## 論文内容の要旨

本論文は、100～200℃の中温領域で作動する中温型燃料電池の電解質として有望な耐熱性ポリベンゾイミダゾール (PBI) に、無機固体酸複合体や金属酸化物の微粒子を添加した場合の効果詳しく調べ、その性能向上を目指したものである。通常 PBI は、液体のリン酸をドーブすることによってプロトン伝導性が発現し、燃料電池用電解質として機能する。本研究では、湿式ミリング法を用いて種々の硫酸水素塩-ヘテロポリ酸複合体を調製し、これを PBI に添加することによって、得られる電解質膜としての均質性が改善され、低リン酸ドーブ量でもプロトン伝導性が向上し、燃料電池の出力密度が増大することを実証している。また、酸化チタン (TiO<sub>2</sub>) ナノ微粒子を添加した場合には、PBI 電解質膜のリン酸保持性能と耐久性が向上することを明らかにした。論文は全7章で構成され、研究成果がまとめられている。

第1章では、研究の背景、目的および本論文の概要をまとめている。第2章では、ジメチルアセトアミド (DMAc) を分散媒に用いた湿式ミリングが、硫酸水素セシウムとケイタングステン酸の複合体 (CHS-WSiA) 微粒子を合成する上で有用であることを示している。第3章では、硫酸水素カリウム、硫酸水素セシウムおよびリンタングステン酸の複合体 (K·CHS-WPA) を合成し、アルカリを混合することによって得られる複合体のプロトン伝導性が向上することを見出し、そのイオン伝導機構を考察している。第4章では、PBI 電解質膜に添加する CHS-WSiA 複合体の最適組成や添加量を検討し、150℃無加湿条件下における優れた燃料電池発電性能を達成している。第5章では、乾式および湿式ミリングで合成した CHS-WSiA 複合体を、それぞれ PBI に添加して電解質膜の特性比較評価を行い、湿式ミリングの優位性を確認している。さらに第6章では、PBI への TiO<sub>2</sub> ナノ微粒子の添加によって、リン酸および水分子の保持性能が向上し、電解質膜の耐久性が向上することを見出している。最後に第7章では、各章で得られた知見をまとめて全体を総括している。

## 審査結果の要旨

現在、自動車用および家庭用燃料電池には、主にフッ素系の高分子電解質膜が使用されているが、使用温度が100℃以下に限られている。100～200℃の中温領域で燃料電池の作動が可能になれば、排熱の利用、低純度改質水素燃料の利用、白金使用量の低減や加湿器・改質器の簡素化によるコストダウンが可能となるため、その開発が求められている。申請者は、無機固体酸複合体微粒子や金属酸化物ナノ粒子などの機能性無機物質をPBIに添加することによって中温型燃料電池用電解質膜を開発した。

従来の乾式ミリングに比べて、DMAcを分散媒に用いた湿式ミリングによってCHS-WSiA微粒子が得られ、これをPBIに添加することで電解質膜の均質性が改善し、中温型燃料電池の発電性能を向上させることに成功している。また、硫酸水素カリウム、硫酸水素セシウムおよびリンタングステン酸から合成されるK·CHS-WPA複合体に着目し、アルカリを混合することによって得られる複合体のプロトン伝導性が向上することを明らかにしている。分光法によって求められる複合体中の水素結合距離の変化からそのイオン伝導機構を考察し、高プロトン伝導性無機固体酸複合体を設計するための重要な指針を得ている。さらに、湿式ミリングで合成したCHS-WSiA微粒子をPBIに添加する際、プロトン伝導性と化学的安定性の観点から、微粒子の最適化学組成と最適添加量をそれぞれ決定し、150℃無加湿条件下において最大出力密度378 mWcm<sup>-2</sup>を達成している。また、金属酸化物としてTiO<sub>2</sub>ナノ微粒子をPBIに添加した場合には、膜中におけるリン酸および水分子の保持性能が向上し、中温無加湿条件下における発電特性が長時間安定することを実証した。

本研究によって得られた成果は、中温型燃料電池の電解質膜を設計する上で重要な指針を与え、燃料電池の開発と普及に貢献するものであり、学術的にも工学的にも価値の高いものである。以上により、本論文は博士(工学)の学位論文に相当するものと判断した。

(各要旨は1ページ以上可)