

京都大学	博士（工学）	氏名	山 崎 皓 平
論文題目	A Study on Gas Transport Phenomena in Solid Oxide Fuel Cell Anodes: Quantification of Bimodal Pore Structure and Its Effects on Gas Transport Properties（固体酸化物形燃料電池燃料極内のガス輸送現象に関する研究 ― 二峰性空隙構造の定量化とガス輸送特性に及ぼす影響 ―）		
（論文内容の要旨） 本論文は、固体酸化物形燃料電池（solid oxide fuel cell: 以下 SOFC）の多孔質燃料極におけるガス輸送を対象とし、造孔材の添加によって実現された複数の代表寸法を有する多孔質空隙構造について、その構造特徴量の定量化手法を確立し、ガス輸送実験および数値計算により、ガス輸送メカニズムの一端を解明している。本論文は5章から構成される。 第1章は序論であり、SOFC 燃料極におけるガス輸送特性の重要性を概説したうえで、複数の代表寸法を有する空隙構造の特徴について、均一空隙構造と比較しつつ、ガス輸送特性と電気化学反応特性の観点から説明している。さらに複数の代表寸法を有する空隙構造が良好なガス輸送特性を示す一方で、そのメカニズムは解明されていないことを指摘し、その空隙構造を定量的に評価することおよびガス輸送特性におよぼす影響を定量的に理解することの意義を明らかにしている。 第2章では、複数の代表寸法を有する空隙構造の作製手法として球状造孔材を添加する手法を採用し、造孔材の種類・添加量を調整することで作製した5種類の多孔質燃料極に対して、集束イオンビームを備えた走査型電子顕微鏡を用いた3次元微構造解析を実施している。これによって、造孔材添加により形成された空隙構造が、燃料極を構成する粒子の焼結・還元によって形成される空隙径 1 μm 以下の微細空隙と、造孔材によって導入される数 μm 程度の大型空隙とから構成される、二峰性空隙構造となることを示し、造孔材が空隙構造の複雑性や構造スケールに及ぼす影響を解明している。さらに造孔材添加により形成される二峰性空隙構造を定量化するための新たな定量化手法を提案している。 第3章では、二峰性空隙構造を有する多孔質燃料極において、全圧勾配を駆動力とする透過流れのメカニズムを、実験および数値計算を通じて明らかにしている。二峰性空隙構造を有する多孔質燃料極の透過率を、平均自由行程が異なる5種類のガス種を作動ガスとして測定することで、全圧勾配下での多孔質燃料極内ガス輸送現象に対する Knudsen 効果の影響を定量的に説明し、みかけの透過率が作動ガスの平均自由行程の増加とともに線形に増加することを明らかにしている。測定された透過率と、2章で定量化した大型空隙の微構造パラメータから推定される透過率との差異から、作動ガスは主に大型空隙を透過するが、一部では微細空隙も流路として機能していることを指摘している。さらに、Knudsen 効果を見逃せない多孔質燃料極内の透過流れに対応する数値モデルを構築している。数値解析結果と実験結果とを比較することで数値モデルの妥当性を確認したうえで、複数の作動ガスにおいて二峰性空隙構造内に生じる透過流束分布を詳細に調べることで、局所空隙構造における Knudsen 効果につい			

京都大学	博士（工学）	氏名	山 崎 皓 平
て説明している。この際、局所輸送現象の統計的な理解のため、空隙径分布を局所のモル流束で重み付けをする手法を新たに提案し、その有効性を示している。 第4章では、作動時の SOFC 燃料極内部に生じる分子量の異なる2成分系の対向ガス輸送を模擬した実験を実施し、燃料極内部にガス種の分子量の差に伴う全圧勾配が生じることを初めて実験的に示している。さらに、水素－水蒸気2成分系の対向輸送を模擬した3次元数値解析を実施し、空隙構造内のガス輸送流束分布を調べることで、局所の空隙構造とガス輸送現象の相関について詳細に検討している。その結果、水素は主に微細空隙を通じて輸送され、水蒸気は主に大型空隙を通じて輸送されていることを見出している。また、作動ガスの濃度勾配や温度を変化させた条件での数値解析結果から、濃度勾配が小さい条件や温度が比較的低い条件では、空隙径が大きい領域において巨視的な流れと逆向きの水素の輸送が生じることを見出し、そのような濃度勾配や温度が対向ガス輸送現象に影響をおよぼすメカニズムを、対向等モル輸送における拡散・対流モル流束および圧力勾配が決定される過程にそって定量的に説明している。 第5章は結論であり、本論文で得られた成果についてまとめるとともに、考えられる今後の課題に言及している。			

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、固体酸化物形燃料電池 (solid oxide fuel cell: 以下 SOFC) 燃料極における、複数の代表寸法を有する多孔質空隙構造の定量化手法を確立し、ガス輸送実験と数値解析により、空隙構造におけるガス輸送のメカニズムの一端を明らかにした成果についてまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

1. 複数の代表寸法を有する空隙構造の作製手法として球状造孔材を添加する手法を採用し、造孔材の種類・添加量を調整することで作製した5種類の多孔質燃料極に対して、3次元微構造解析を実施した。これによって、造孔材添加により形成された空隙構造が燃料極を構成する粒子の焼結・還元によって形成される微細空隙と造孔材によって導入される大型空隙から構成される二峰性空隙構造となることを示し、造孔材が空隙構造の複雑性や構造スケールに及ぼす影響を解明した。定量評価の際、造孔材添加により形成される二峰性空隙構造を定量化するための新たな定量化手法を提案した。
2. 二峰性空隙構造を有する多孔質燃料極の透過率を、5種類のガス種を作動ガスとして測定することで、全圧勾配下での多孔質燃料極内ガス輸送現象に対する Knudsen 効果の影響を定量的に説明した。さらに、作動ガスは主に大型空隙を透過するが、一部では微細空隙も流路として機能していることを指摘した。Knudsen 効果を考慮した透過流れに関する3次元数値計算を実施し、局所空隙構造における Knudsen 効果について説明した。この際、局所輸送現象の統計的な理解のため、空隙径分布を局所のモル流束で重み付けをする手法を新たに提案し、その有効性を示した。
3. 作動時の SOFC 燃料極内部に生じる分子量の異なる2成分系の対向ガス輸送を模擬した実験を実施し、燃料極内部にガス種の分子量の差に伴う全圧勾配が生じることを初めて実験的に示した。さらに、水素-水蒸気2成分系の対向輸送を模擬した3次元数値解析を実施し、局所の空隙構造とガス輸送現象の相関について検討した。作動時の SOFC 燃料極を再現した数値解析から、水素は主に微細空隙を通じて、水蒸気は主に大型空隙を通じて輸送されていることを見出した。作動ガスの濃度勾配や温度を変化させた数値解析を通じて、濃度勾配および温度が対向ガス輸送に影響を及ぼすメカニズムを定量的に説明した。

本論文は、以上のように、二峰性空隙構造の定量化手法を確立し、その構造内に生じるガス輸送メカニズムの一端を解明しており、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、令和6年10月29日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。

なお、本論文は、京都大学学位規程第14条第2項に該当するものと判断し、公表に際しては、当該論文の全文に代えてその内容を要約したものとすることを認める。