

## 審査の結果の要旨

氏名 ヌヌン ヌリヤンティ

燃料電池は化学エネルギーを電力に直接変換する装置であり、その中心部分はイオンのみを通す電解質膜である。申請者は、電極触媒を用いないという特徴を持つ陰イオン交換電解質膜 (AEM) の開発を行った。AEMのもっとも重要な特性はOH<sup>-</sup>イオン伝導度と水分量である。これら2つの特性のバランスが大変重要であり、OH<sup>-</sup>イオンの移動のためには十分な水分量が必要であるが、同時に、水分量には、電解質膜の物理的な性質を維持するための上限値がある。現在まで、いかなる電解質膜の調製法によってもこの要求は満足されていなかった。

申請者は、イオン飛跡グラフト重合法をAEMの開発に応用し、ビニルベンジルクロライド (VBC) のような機能性官能基を、イオン照射したエチレン・テトラフルオロエチレン・コポリマー (ETFE) のような塩基性ポリマーに付加した。イオン飛跡グラフト重合においては、その付加プロセスが、潜伏飛跡の内部で選択的に起こり、その結果、膜の内部にグラフト重合された部分とそうでない部分からなる不均一なグラフト重合構造が形成される。イオン飛跡グラフト重合による優れた特性を持つAEMの実現のためには、グラフト領域と非グラフト領域の割合に代表されるグラフト重合部分の制御が必要であるが、この割合はイオン飛跡サイズのようなイオン飛跡構造によってのみ制御される。本論文では異なった線エネルギー付与 (LET) を持つ複数のイオン照射を用いてイオン飛跡構造の制御を行い、理論と実験の両面から検討を行っており、全体は7章から構成されている。第1章は序論であり、以上のことが述べられている。

第2章ではフルオロポリマー中のイオン飛跡構造について述べている。2.2 GeVのAuイオンと450 MeVのXeイオンをポリビニリデンフルオライド (PVDF) に照射し、アルカリ溶液中で電解エッチングを行って選択的にイオン飛跡部分を溶出させることにより潜伏飛跡を穴構造に変化させ、それを電子顕微鏡で観察することにより、飛跡の構造を可視化することに成功している。その結果、異なったイオンを用いることにより、飛跡構造が制御可能であることを立証している。

第3章ではイオンフルエンスとその分布を評価する方法を開発した結果について述べている。前章で述べた結果を更に検討するためには、照射フルエンスの絶対値とその分布を評価するための簡単かつ再現性のある方法が必要である。ここでは、ガフクロミック (GAF) フィルムの吸光度測定とイオン飛跡膜の直接観察結果の比較から、GAFフィルムの吸光度測定結果から照射フルエンスの絶対値に換算するための校正曲線を得ており、この方法は、本研究領域にとどまらず、イオン飛跡エッチング可能なすべてのポリマー材料に適用可能であるとしている。

AEMの作製においては、ETFEにイオン照射を行うことにより潜伏飛程を生成し、そこにVBC

をグラフト重合させるが、第4章では、そのときの速度論機構について述べている。いかに少ない数の飛跡でグラフト率(DG)の向上が実現できるかということが重要であり、ここでは、その最適化についての検討を行っている。具体的には、560MeVのXeイオン照射を行い、水とイソプロパノールをグラフト時の媒質に用いた実験を行い、モノマーの濃度、グラフト時の温度、グラフト時の媒質組成をパラメータとする検討を行ったところ、グラフト時の溶媒に水のみを用いた不均質グラフト反応により最適条件が達成されることを確認している。

第5章では、イオン飛跡の構造がイオン飛跡グラフト重合の反応性に与える効果を調べている。飛跡構造制御のために、330MeVのArイオンと560MeVのXeイオンをETFEに照射した時のESRスペクトルを測定するとともに、グラフト反応を起こさせたときのDGの測定を行い、両者の比較から、飛跡の重なる効果について言及している。

第6章では、作製したAEMの物理化学的特性と燃料電池電解質膜としての特性評価を行った結果について述べている。本作製プロセスは、イオン照射による飛跡生成後のグラフト反応によるVBCの付加 $\rightarrow$ N(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>を用いた四級化 $\rightarrow$ KOHを用いたアルカリ化によって実現されるが、DGを変化させた時のイオン交換容量(IEC)、イオン伝導率、水分量を測定し、これらの関係を求めている。また、このようにして作製したAEMを膜電極集合体に調製し、異なったIEC時の燃料電池特性を測定している。その結果、IECが大きいほど高い水分量と高いOH<sup>-</sup>イオン伝導度を示すが、そのことは、必ずしも高い燃料電池特性を示すことと等価ではなく、最も重要なことは、水分量とOH<sup>-</sup>イオン伝導度のバランスを保つことであると結論している。いずれにせよ、本手法で作製されたAEMは他の方法で作製されたものと比べて、優れた燃料電池特性を持っていることを示している。

第7章は結論であり、以上で述べたことが要約されている。

以上を要約すれば、本論文は、燃料電池用アニオン交換膜の作成に向けて、イオン飛跡グラフト重合における反応のメカニズムの解明と実験条件の最適化を行うとともに、実際に膜電極複合体を作製して燃料電池特性の評価を行ったものであり、学術上及び応用上の重要な成果が得られており、原子力工学に貢献するところが少なくない。

よって本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。