

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Hydrogen Permeability in the Scales of Iron Oxide at 973 K under Constant Oxygen Activity
著者(和文)	テディ・クルニアワン
Author(English)	Tedi Kurniawan
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9274号, 授与年月日:2013年9月25日, 学位の種別:課程博士, 審査員:丸山 俊夫,河村 憲一,西方 篤,小林 能直,多田 英司
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9274号, Conferred date:2013/9/25, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

(博士課程)

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	Tedi Kurniawan	
論文審査 審査員		氏名	職名	氏名	職名
	主査	丸山 俊夫	教授	多田 英司	准教授
	審査員	河村 憲一	准教授		
		西方 篤	教授		
小林 能直		准教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、“Hydrogen Permeability in the Scales of Iron Oxide at 973 K under Constant Oxygen Activity”と題し、以下の5章から構成されている。

Chapter 1: “Introduction”では、火力発電プラントの熱交換器に使用されるボイラー配管の高温水蒸気酸化において、配管材料を通して水蒸気側から燃焼ガス側に透過した水素が、管外面の酸化挙動に影響を与えるが、この現象の解明には、配管を通した水素の輸送現象を明らかにする必要があり、配管表面に形成する酸化皮膜中の水素透過能の測定が不可欠であることを指摘し、本研究の意義と目的を述べている。

Chapter 2: “Phase stability of iron oxides in the Pd-Fe-O system by electro-motive force measurement”では、Pd-Fe 合金基板を高温酸化することで基板上に単相の Fe 系酸化皮膜を形成する条件を決定するため、Pd-Fe 合金/Fe 系酸化物の平衡酸素分圧を 973 K~1123 K において CaO 安定化 ZrO₂ 固体電解質を用いた酸素濃淡電池によって測定している。得られた平衡酸素分圧から Pd-Fe-O 系ポテンシャル状態図を作成すると共に、それを用いて Pd-Fe 合金上に形成する Fe 系酸化皮膜の厚さを合金組成と雰囲気酸素分圧の関数として決定している。

Chapter 3: “Formation of iron oxides on Pd-Fe alloy by high temperature oxidation”では、Chapter 2 で求めた Fe 系酸化皮膜の形成条件を、Pd-Fe 合金の高温酸化を行うことで実験的に検証している。すなわち、約 200 μm の厚さの Pd-64Fe (at.%)合金を 1273 K で 259.2 ks 酸化した場合、雰囲気酸素分圧が $(7.9 \pm 0.3) \times 10^{-10}$ Pa のときには約 30 μm の FeO が、酸素分圧が $(7.1 \pm 2.0) \times 10^{-8}$ Pa のときには約 70 μm の Fe₃O₄ が表面に連続層として形成することを示し、これらの結果は Chapter 2 で予測した Fe 系酸化皮膜の形成条件とよく一致することを明らかにし、Pd-Fe 合金を高温酸化することで水素透過実験に供する Fe 系酸化皮膜を作製できると述べている。

Chapter 4: “Hydrogen flux permeated through iron oxide at 973 K under constant oxygen activity”では、Fe 系酸化皮膜の水素透過能を一定酸素活量下で測定している。すなわち、Pd-Fe 基板の両側に異なる混合ガスを流せる装置を作製し、1273 K で Chapter 3 で実証した条件を基に酸素分圧を調整した同一の組成の Ar-H₂-H₂O 混合ガスを Pd-Fe 基板の両側に流し、Pd-Fe 基板の両側に FeO または Fe₃O₄ 膜を作製している。これを 973 K に降温後、Pd-Fe 基板を挟んだ水素供給側に Ar-H₂-H₂O 混合ガスを、検出側に供給側と同じ酸素分圧となる Ar-CO-CO₂ 混合ガスを流し、検出側に透過してきた水素を酸素を加えて完全燃焼させて水蒸気とし、その量を鏡面式露点計で測定し、透過水素量を求めている。その結果、FeO 中の水素透過能を $5.1 \times 10^{-11} \text{ mol m}^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1/2}$ 、Fe₃O₄ 中のそれを $8.1 \times 10^{-11} \text{ mol m}^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1/2}$ と求め、既報の酸素ポテンシャル勾配下で求められた値に対して約 0.5 桁大きく、鉄中の水素透過能の 1/10 程度であることを指摘するとともに、実機の配管の厚さが酸化皮膜の 100 倍以上である場合には、水素透過は酸化皮膜ではなく配管自体によって支配されると結論している。

Chapter 5: “Conclusion”では、本論文で得られた結果を総括している。

以上要するに、本論文は FeO あるいは Fe₃O₄ 単相の高温酸化皮膜を Pd-Fe 合金上に形成し、その水素透過能を酸素ポテンシャル勾配の無視できる状態で明らかにし、ボイラー配管用耐熱鋼の耐水蒸気酸化特性の向上に不可欠な基礎的知見を与えたものであり、工学上および工業上貢献するところが大きい。よって本論文は博士(工学)の学位論文として、十分な価値があるものと認められる。