#### 研究成果報告書 科学研究費助成事業



#### 令和 4 年 6月 1 日現在

機関番号: 13901
研究種目: 基盤研究(B)(一般)
研究期間: 2019 ~ 2021
課題番号: 19日02454
研究課題名(和文)B2型金属間化合物における水素固溶体の科学と低温作動型水素透過合金への展開
研充課題名(央文)Science of hydrogen solid solution state in B2 type intermetallic compound and its application to hydrogen permeable alloy for low operative temperature
研究代表者
湯川 宏(Yukawa, Hiroshi)
名古屋大学・工学研究科・助教
<b>亚尔老来号,50000676</b>
御九省宙号 - 5 0 2 9 5 0 / 0
交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文):本研究では、B2型金属間化合物の低温作動型水素透過膜としてのポテンシャルを明らかにし、得られた知見に基づいて低温作動型水素透過合金の開発指針を得ることを目的に研究を行なった。 PdCu合金の水素透過能に及ぼす過剰Cuの影響を調査し、200 程度の低温域で高い水素透過能を示す合金を見い だした。過剰Cuは水素の溶解と拡充に影響を取るはすものの、室温域では空孔など過剰Cu以外の水素トラップ作用 により水素透過能が大きく低下することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義 代表的な水素透過金属膜としてPd-Cu合金、Pd-Ag合金が知られているが、いずれも400 以上の高温で使用する ことを前提としていた。本研究では、Pd-Cu合金の組成を検討し、200 程度の低温域で従来のPd-Cu合金よりも 高い水素透過能を示す合金を見いだした。これにより、よりエネルギー効率の高い水素分離・精製を実現し、将 来の水素社会に大きく貢献すると考えられる。また、本研究では非Pd系のB2型金属間化合物について検討を行な った。これらの成果は、ロシアなど限られた産地に依存する希少で高価なPdからの脱却に向けた第1歩であると 言える。

研究成果の概要(英文):The purpose of this study was to clarify the potential of B2-type intermetallic compounds as low-temperature-operated hydrogen permeable membranes, and to obtain guidelines for the development of low-temperature-operated hydrogen permeable alloys based on the obtained knowledge.

We investigated the effect of excess Cu on the hydrogen permeability of PdCu alloys and found an alloy that exhibits high hydrogen permeability at low temperatures around 200 °C. Although excess Cu affects hydrogen dissolution and diffusion, the hydrogen permeability is greatly reduced at room temperature due to hydrogen trapping effects apart from the excess Cu atoms.

研究分野: 水素透過金属膜

キーワード: B2型金属間化合物 水素透過能 水素溶解特性 水素拡散性 水素占有状態

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

#### 1.研究開始当初の背景

金属系の水素透過膜は,水素の溶解・拡散機構により超高純度水素を一段階かつ連続プロセス で得ることができる.このため、最も有望な水素精製技術を支える重要な材料の一つである。近 年、バイオマスの水素発酵など、比較的低い温度で発生する水素を分離・精製したいという要望 が高まりつつある。しかし、473K以下の低温で使用するための水素透過膜の検討はほとんど行 なわれていない。

B2 型結晶構造を有する Pd-53mol%Cu 合金は、代表的な水素透過合金の一つである。Pd-Cu 合金は、水素透過の活性化エネルギーは Pd-Ag 合金と比較して極めて小さいことが知られている。 そのため,B2 構造の Pd-Cu 合金膜は水素透過能を大きく損なうことなく、低温域でも利用できる可能性がある。

一方、Pd-53Cu と同じく B2 構造を有す TiFe の PCT 曲線では、高水素圧領域において2 種類の水素化物に対応する2 段階のプラトーが存在し、これにより TiFe は水素吸蔵合金として検討されてきた。水素はこれらの水素化物中で Fe 近傍の8 面体空隙位置(Oサイト)を占有することが知られている。しかし、水素濃度が低い『水素固溶体』については、水素の占有位置すら不明な点が多く、水素溶解特性の詳細な検討も行われてきていない。

2.研究の目的

本研究では、B2型金属間化合物の水素透過膜としてのポテンシャルを明らかにするとともに、 得られた知見に基づいて、B2型金属間化合物による低温作動型水素透過合金の開発指針を得る ことを目的とする。

#### 3.研究の方法

PdCu 合金を中心に種々の B 2 型金属間化合物について、陽電子寿命測定、その場 XRD-PCT 測 定などの新しい解析技術を用いて、水素固溶領域における水素溶解特性、水素拡散性、水素透過

能、水素占有状態、機械的性質などの基礎的物性を定量 評価し体系化する。これにより、"B2構造"ならではの特 性を理解するとともに、Pd-Cu 合金の低温域における水 素透過能の特異な変化の発現機構を解明し、それを抑制 する方法を検討する。

4.研究成果

Pd-Cu 合金の水素透過能,水素溶解特性,水素拡散
 性に及ぼす過剰Cuの影響

膜厚 19µmの実用 Pd-53mol%Cu 合金膜について、 350 から 200 以下に急冷して水素透過流速の経時変化 を調べた。その結果を Fig.1 に示す。縦軸は膜厚で規格化 した水素透過流速である。Fig.1 に示すように、50 ~ 200 では水素透過能はほぼ一定で変化が見られないが、 室温に急冷後は時間と共に徐々に低下し、約5日間で約 1桁低下して定常になった。

急冷直後および定常状態の水素透過流速の温度依存性 を Fig.2 に示す。200 より高い温度域では、透過流速は 温度の逆数に対してほぼ直線的に変化しており、その値 も過去の報告[1] と一致した。しかしながら、150 以下 では水素透過流速は高温域での直線関係から下に外れ大 きく低下した。

続いて、Pd-53mol%Cu 合金の水素溶解特性の温度依存 性を調査した。ここで、Pd-Cu 合金は、水素の溶解度が極 めて小さいことが知られている。このような薄膜試料の 水素溶解特性を一般的なジーベルツ型の PCT 測定装置を 用いて測定することは困難である。本研究では XRD を用 いた手法によって PCT 曲線を作成した。この手法は,金 属中への水素固溶に伴う金属原子1個あたり体積膨張量 が,希土類を除く遷移金属・合金でほぼ一定となるとい う実験的事実[2] に基づいている。本研究では真空中での XRD 測定から特定の回折ピーク位置の原点を決定し,水



Fig.1 Time dependence of hydrogen flux after cooling down to the measuring temperature.



Fig.2 Arrhenius plot of hydrogen permeability.

素中その場 XRD 測定により水素圧力の増加に伴うピーク シフト量を測定した。XRD 測定の一例を Fig.3 に示す。さ らに, B2 構造を仮定してピークシフト量から体積膨張量 を見積もることで、固溶水素濃度を推定した。本研究で は,室温~350 の温度範囲, 10~600 kPa の水素圧力で PCT 測定を行った。

PCT 測定の結果を Fig.4 に示す。室温から昇温することで曲線が立ち上がっており、水素の溶解反応は発熱型であることがわかる。350 では水素圧力の平方根と固溶水素濃度はほぼ線形的に変化し、ジーベルツの法則に概ね従っている。一方、473 K 以下の温度では PCT 曲線の形状が曲線になり、ジーベルツの法則から逸脱していることが分かる.

水素透過流速と膜厚の逆数の関係を Fig.5 示す。室温から 350 の温度範囲では原点を通る直線関係にあることが分る。従って、Pd-53mol%Cu 合金の水素透過反応は、膜内のバルク拡散律速であることが示された。

そこで、Fig.2 に示した水素透過流速の結果を以下に示す「水素の化学ポテンシャルに基づく水素透過能の統一的表現 [3]」に基づいて解析した。

$$J = \frac{RTB}{2L} \int_{c_2}^{c_1} c \frac{d \ln (P/P_0)}{dc} dc = \frac{RTB}{2L} f_{PCT}$$
(1)

ここで、*c* は金属中の固溶水素濃度、*P*、*P*<sub>0</sub> は圧力および 標準圧力、*R* は気体定数、*T* は温度、*L* は膜厚を表す。*c*<sub>1</sub>、 *c*<sub>2</sub> はそれぞれ水素透過試験の圧力条件である *P*<sub>1</sub>、*P*<sub>2</sub> の水 素ガスと平衡する固溶水素濃度である。式中の積分項は, PCT 曲線の形状と水素透過の圧力条件によって決定され る項であり、水素の溶解特性を反映する項として PCT 因 子(*f*<sub>PCT</sub>)と定義されている。*B* は水素の易動度であり水 素の拡散性を反映している。

Fig.2 に示した水素透過流束の測定結果とPCT 因子の値 を用いて水素拡散の易動度 B を求めた。PCT 因子と易動 度の温度依存性を Fig.6 に示す。PCT 因子は温度の低下と 共に単調に増加している。一方、移動度は 350~200 の 範囲では直線的に変化するが、150 以下では直線関係か ら逸脱し急激に減少した。従って、低温域での水素透過能 の大幅な減少は、水素の拡散性の低下に依ることが明ら かになった。

B2 構造の Pd-53mol%Cu 合金の陽電子寿命を Table 1 に 示す。比較の為に焼鈍した純 Pd の結果およびシミュレー ション結果も併せて示した。陽電子寿命測定の結果、Pd-53mol%Cu 合金には欠陥密度が低いことが推測される。従 って、B2 構造の化学量論組成より 3%過剰に含まれる Cu 原子は Pd 副格子に置換固溶していると示唆される。この とき、Fig.7 に示すように Pd サイトを占有する Cu 原子を 中心に局所的な Cu の体心立方構造ユニットが形成され る。この局所構造が低温における水素拡散性の低下と関



Fig.3 XRD profiles measured at 473K in vacuum and hydrogen atmosphere.



Fig.4 PCT curves of Pd–53Cu alloy at 298~623K estimated by the XRD–PCT method.



Fig.5 Relationship between hydrogen flux and the inverse of membrane thickness.



Fig.6 Temperature dependence of (a) PCT factor and (b) mobility for hydrogen diffusion.

係している可能性も示唆されるが、その詳細は不明である。低温において Pd-53mol%Cu 合金の水素拡散性が低下する現象を解明するためには,過剰Cu による影響を明らかにすることが重要となる.

そこで、過剰 Cu の量が少ない Pd-51.5mol%Cu 合金に ついて同様の試験を行なった。水素透過流速の温度依存 性を Fig.8 に示す。この図に示すように,過剰 Cu が少な い Pd-51.5mol%Cu 合金においても 150 以下の低温では 水素拡散性が大きく低下し、一般的なアレニウス則から 逸脱した挙動が見られた。PCT 因子および移動度を解析 した結果、低温域での水素透過能の低下は水素拡散性の 低下に起因していた。低温域での水素拡散性は、過剰 Cu の量が異なる試料で有意な差は見られなかった。したが って、過剰 Cu の他にも水素の拡散を大きく阻害する別の 要因があることが示唆される.低温域における水素拡散 性低下の要因を明らかにするために,今後さらなる調査・ 検討が必要である。

過剰 Cu 原子が水素の溶解と拡散に及ぼす影響を調べる事を目的に電子状態の第 1 原理計算を行った。計算には、密度汎関数理論(DFT)に基づく平面波基底擬ポテンシャル法を用いた。計算モデル(Pd<sub>26</sub>Cu<sub>28</sub>H)を Fig. 9 に示す。いずれのモデルも,B2構造の化学量論組成の PdCuの単位格子を 3a×3a×3a(a は単位格子長)に拡張し,中心の Pd 原子を Cu 原子に置換することで過剰 Cu を含む構造を記述しており、Cu の組成は 51.9mol%Cu となっている。Fig.9(a)に示す Model 1 では過剰 Cu に対して第一近接の四面体格子間位置(T サイト)を水素が占有している。Fig.9(b)に示す Model 2 では過剰 Cu から最も離れた T サイトを水素が占有している。水素濃度は 0.019 (H/M)となり, Pd-53mol%Cu の水素溶解度と同等な値である。

各モデルについて構造緩和計算を行なった。Model 1 では過剰 Cu 原子の第一近接に配置した水素原子は第二 近接 T サイトへ移動した。従って,過剰 Cu 原子近傍は水 素原子が安定に存在できるサイトではないことがわか る。Model 2 では,水素原子は構造緩和によってわずかに 移動しているものの初期に配置した T サイト付近に留ま った。構造緩和後の構造を基に、以下の式に示す水素の溶 解エネルギーを求めた。結果を Table 2 に示す。

$$E_{\rm sol} = E_{\rm Pd26Cu28H} - E_{\rm Pd26Cu28} - \frac{1}{2}H_2$$
(2)

Model 1 では水素の溶解エネルギーが正の値をとることから,水素は過剰Cu付近には自発的に溶解しない。一方,Model 2 では水素溶解エネルギーは負の値となることから,過剰Cuから離れたTサイトには自発的に水素は溶解することができる.零点エネルギー(ZPE)補正を加え

Table 1 Positron lifetime for Pd–53Cu alloy foil with B2 structure and pure Pd sheet with FCC structure.

	Material	Positron lifetime (ps)
-	Pd-53Cu (as received)	120.4±0.1
Exp.	Pd (annealed)	114.8±0.1
Cal	PdCu (B2 structure)	106.3
cal.	Pd (FCC stricture)	101.7



Fig.7 Local structure around excess Cu atom occupying Pd sublattice in Pd–53Cu alloy



Fig.8 Arrhenius plot of hydrogen permeability.



Fig. 9 Supercell models used in the calculations.

Table 2 Calculated values of H solution energies of the two models.

	H solution energy, $E_{sol}$ / m eV	H solution energy with ZPE correction, $E_{sol}^{ZPE} / m eV$
Model 1	16	51
Model 2	-55	-37

た水素溶解エネルギーにも同様の傾向がある。この結果から,過剰 Cu により水素溶解特性が低下することが示唆される。

また,水素は過剰 Cu の第一近接 T サイトを占有できず,過剰 Cu は水素に対する反発子(リ ペラー)となっていることがわかる.そのため,第一近接まで考慮すれば過剰 Cu 原子の周りの 24 個,第二近接まで考慮すれば 48 個もの T サイトが水素拡散に関与できず,水素の拡散経路が 塞がれることになる。水素の長距離拡散のネットワークにおいて拡散の方向に制約が生じ,見か けの水素拡散性も低下すると考えられる。

## (2) 空孔欠陥による水素のトラップ作用

PdCu 合金について、Pd 空孔および Cu 空孔による水素 のトラップ作用について第一原理計算を行なっている。Pd 空孔よりも Cu 空孔の方が水素を強くトラップすることが 分った。また、Pd 空孔単体よりも、Pd 副格子に Cu 原子が 移動して形成される2重欠陥(Double Defect)を形成した 方が安定となることが明らかになった。Double Defect と水 素の結合エネルギーを Fig.11 に示す。

#### (3) TiFe 合金の水素固溶域における水素溶解特性

PdCu 合金と同じ B2 構造を有する TiFe は、代表的な水 素吸蔵合金として知られている。TiFe の PCT 曲線には、 高水素圧領域において2種類の水素化物に対応する2段階 のプラトーが存在し、これにより TiFe は水素吸蔵合金と して検討されてきた。水素はこれらの水素化物中で Fe 近 傍の8面体空隙位置(Oサイト)を占有することが知られ ているが、水素濃度が低い水素固溶域については、水素溶 解特性について不明な点が多く、水素透過合金としての検 討も行われてきていない。

本研究では、TiFe の水素固溶域の水素溶解特性に及ぼす 添加元素の影響を調べた。結果の一例として、TiFe および Ti<sub>0.5</sub>Fe<sub>0.4</sub>Mn<sub>0.1</sub>合金の300 における PCT 曲線を Fig.10 に示 す。TiFe は Pd-53mol%Cu 合金と同様に水素の溶解度が極 めて低く、極僅かに固溶する。また、高圧水素環境下でも 水素化物を形成しないことが分る。また、Mn 添加により 水素溶解度が増大しており、TiFe への Mn 添加は、水素透 過能の観点からは有利に作用しているといえる。

TiFe を含む種々の B2 化合物について、DFT 理論に基づ く第一原理計を行い、水素の占有サイトと溶解エンタルピ ーの調査を行なっている。PdCu と同様の4面体サイトが 安定となる化合物の候補もいくつか見いだされている。



Fig.10 Binding energy of H to Pd vacancy and double defect.



< 引用文献 >

- [1] A.G. Knapton, Platinum Metals Rev. 21 (1977) 44-50.
- [2] H. Peisl: Hydrogen in Metals I: Basic Properties, ed. by G. Alefeld and J. Völkl, (Springer, Berlin, 1978), 53-74.
- [1] A. Suzuki, H. Yukawa, T. Nambu, Y. Matsumoto and Y. Murata: Int. J. Hydrogen Energ. 39 (2014), 7919-7924.

## 5.主な発表論文等

## 〔雑誌論文〕 計8件(うち査読付論文 7件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件)

1.著者名	4.巻
Suzki Aguka Vukowa Hiraghi	11
	11
2.論文標題	5 . 発行年
Quantitative Evaluations of Hydrogen Diffusivity in V-X (X - Cr. Al. Pd) Alloy Membranes Based	2021年
an indexe of the second s	20214
on hydrogen chemical Potential	
3. 雑誌名	6.最初と最後の頁
Membranes	67
	01
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.3300/membranes11010067	右
10.3390/membranes1101000/	- FI
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスとしている(また、その予定である)	-
	A 344
1.者者名	4. 奁
Yukawa Hiroshi, Watanabe Shimoei, Suzuki Asuka, Matsumoto Yoshihisa, Araki Hideki, Mizuno	407
Masataka Sugita Kazuki Higemoto Wataru	
2.	5. 光行牛
Temperature Dependence of Hydrogen Solubility and Diffusivity in Hydrogen Permeable Membrane of	2021年
Pd-Cu Allov with B2-Type Crystal Structure	
	6 是初と是後の百
	0.取りて取扱の員
Defect and Diffusion Forum	31 ~ 40
掲載絵文のDOL(デジタルオブジェクト識別子)	本語の右無
	直视00°内無
10.4028/www.scientific.net/DDF.407.31	有
オープンアクセス	国際共著
オーノノアクセスとはない、又はオーノノアクセスが困難	-
1. 著者名	4 . 巻
	10
	10
2.論文標題	5 . 発行年
Analysis for Reverse Temperature Dependence of Hydrogen Permeability through Pd-Y (Y - Y Ho	2020年
$\Lambda$ intrastiction for hower to imperature dependence of injurity of industrially influded in $\Lambda$ ( $\Lambda = 1$ , intrastiction in $\Lambda$ ( $\Lambda = 1$ , intrastiction in $\Lambda$ ( $\Lambda = 1$ , intrastiction in $\Lambda$ ( $\Lambda = 1$ ).	20207

Analysis for Reverse Temperature Dependence of Hydrogen Permeability through Pd-X (X = Y, Ho, Ni) Alloy Membranes Based on Hydrogen Chemical Potential	2020年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Membranes	123
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	 査読の有無
10.3390/membranes10060123	有
	国际共者
オーノノアクセスとしている(また、その予定である)	-

1.著者名	4 . 巻
Yukawa Hiroshi, Nambu Tomonori, Matsumoto Yoshihisa	1016
2 . 論又標題	5 . 発行年
Thermal Degradation Behavior of Hydrogen Permeability of Pd-Coated V-Alloy Membrane for Hydrogen Separation and Purification	2021年
3. 雑誌名	6.最初と最後の頁
Materials Science Forum	1710 ~ 1714
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.4028/www.scientific.net/MSF.1016.1710	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	-

1.著者名 Suzuki Asuka、Yukawa Hiroshi	4.巻 10
2 . 論文標題 A Review for Consistent Analysis of Hydrogen Permeability through Dense Metallic Membranes	5 . 発行年 2020年
3.雑誌名 Membranes	6.最初と最後の頁 120
	 査読の有無
10.3390/membranes10060120	有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 
1	A <del>*</del>
1. 宿有石 Shirasu Yuya、Nambu Tomonori、Omata Kaori、Yukawa Hiroshi、Matsumoto Yoshihisa	4. 중 60
2 . 論文標題 Effects of Surface Vanadium Species on the Hydrogen Permeability through Vanadium Membrane without Palladium-Catalyst Overlayer	5 . 発行年 2019年
3.雑誌名 MATERIALS TRANSACTIONS	6 . 最初と最後の頁 2174~2178
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/matertrans.MT-MAW2019005	 査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著
1.著者名 木村浩隆、鈴木譲、湯川宏	4.巻 <sup>59</sup>
2.論文標題 過酷環境下で測定可能な水素センシング技術の開発	5 . 発行年 2020年
3.雑誌名 まてりあ	6.最初と最後の頁 99-101
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.2320/materia.59.99	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	
1.者者名 Omata Kaori、Sato Katsutoshi、Nagaoka Katsutoshi、Yukawa Hiroshi、Matsumoto Yoshihisa、Nambu Tomonori	4. 查 47
2.論文標題	5.発行年
Direct high-purity hydrogen production from ammonia by using a membrane reactor combining V- 10mol%Fe hydrogen permeable alloy membrane with Ru/Cs20/Pr6011 ammonia decomposition catalyst	2022年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
International Journal of Hydrogen Energy	8372 ~ 8381
	 査読の有無
10.1016/j.ijhydene.2021.12.191	有
│ オーブンアクセス │ オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 

#### 〔学会発表〕 計24件(うち招待講演 6件/うち国際学会 10件)

1.発表者名
 三津原晟弘、君塚肇、湯川宏

2.発表標題

Pd-Cu合金中の過剰Cu原子が水素透過能に及ぼす影響

3.学会等名日本金属学会 2022年春期

4 . 発表年

2022年

1.発表者名
 小俣香織、南部智憲、湯川宏、佐藤勝俊、永岡勝俊、松本佳久

2.発表標題

V-10mol%Fe水素分離合金膜とRu/Cs20/Pr6011アンモニア分解触媒とを組み合せたメンプレンリアクタによる高純度水素製造

3.学会等名日本金属学会 2022年春期

4 . 発表年 2022年

1.発表者名

南部智憲、小俣香織、湯川宏、佐藤勝俊、永岡勝俊、松本佳久

2 . 発表標題

Vアンモニアガスから直接水素を製造するメンプレンリアクタでのPdコーティングV-10mol%Fe合金膜の水素透過能

3 . 学会等名

日本金属学会 2022年春期

4 . 発表年 2022年

1.発表者名

三津原晟弘、君塚肇、湯川宏、渡邉晨平

2.発表標題

PdCu合金膜の低温における水素透過能の定量評価

3 . 学会等名

日本金属学会 2021年秋期

4.発表年 2021年

# 1.発表者名

H.Yukawa

## 2.発表標題

Analysis of Hydrogen Permeability, Solubility and Diffusivity in Pd-Cu Alloy with B2-type Crystal Structure Over a Wide Temperature Range

3 . 学会等名

17th International Conference on Diffusion In Solids and Liquids (DSL-2021)(招待講演)(国際学会)

4 . 発表年

2021年

1 . 発表者名

H.Yukawa, T.Nambu, Y.Matsumoto

2.発表標題

Degradation Behavior of Hydrogen Permeability of Pd-coated V-based Alloy Membrane for Hydrogen Separation and Purification

3 . 学会等名

International Conference on PROCESSING & MANUFACTURING OF ADVANCED MATERIALS (Thermec'2021)(招待講演)(国際学会)

4.発表年 2021年

1.発表者名

三津原晟弘、湯川宏、君塚肇

2.発表標題

実用PdCu合金の低温における水素溶解特性と水素拡散性と定量評価

3.学会等名

第31 回 材料フォーラムTOKAI

4.発表年 2021年

1.発表者名

H.Yukawa, T.Nambu, Y.Matsumoto

2.発表標題

Degradation Behavior of Hydrogen Permeability of Pd-coated V-based Alloy Membrane for Hydrogen Separation and Purification

3 . 学会等名

International Conference on PROCESSING & MANUFACTURING OF ADVANCED MATERIALS (Thermec'2021)(招待講演)(国際学会)

4 . 発表年 2021年

# 1.発表者名

H.Yukawa

## 2.発表標題

Analysis of Hydrogen Permeability, Solubility and Diffusivity in Pd-Cu Alloy with B2-type Crystal Structure Over a Wide Temperature Range

3 . 学会等名

17th International Conference on Diffusion In Solids and Liquids (DSL-2021)(招待講演)(国際学会)

4 . 発表年

2021年

1.発表者名 三津原晟弘、君塚肇、湯川宏、渡邉晨平

2.発表標題
 PdCu合金膜の低温における水素透過能の定量評価

3.学会等名日本金属学会2021年秋期講演大会

4.発表年 2021年

1.発表者名

南部智憲、小俣香織、湯川宏、佐藤勝俊、永岡勝俊、松本佳久

2.発表標題

Vアンモニアガスから直接水素を製造するメンプレンリアクタでのPdコーティングV-10mol%Fe合金膜の水素透過能

3.学会等名日本金属学会2022年春期講演大会

4 . 発表年

2021年

 1.発表者名 小俣香織、南部智憲、湯川宏、佐藤勝俊、永岡勝俊、松本佳久

2.発表標題

V-10mol%Fe水素分離合金膜とRu/Cs20/Pr6011アンモニア分解触媒とを組み合せたメンプレンリアクタによる高純度水素製造

3 . 学会等名

日本金属学会2022年春期講演大会

4 . 発表年 2021年

#### 1.発表者名 二津百晃引 尹塚肇 潟

三津原晟弘、君塚肇、湯川宏

## 2.発表標題

Pd-Cu合金中の過剰Cu原子が水素透過能に及ぼす影響

3.学会等名日本金属学会2022年春期講演大会

4 . 発表年 2021年

1.発表者名

H. Yukawa

2.発表標題

Temperature Dependence of Hydrogen Solubility and Diffusivity in Hydrogen Permeable Membrane of Pd-Cu Alloy with B2-Type Crystal Structure

3 . 学会等名

16th International Conference on Diffusion In Solids and Liquids (DSL–2020)(招待講演)(国際学会)

4.発表年 2020年

1 . 発表者名 木村浩隆、鈴木譲、湯川宏

 2.発表標題 過酷環境下で測定可能な水素センシング技術の開発

3.学会等名

日本金属学会

4.発表年 2020年

1.発表者名

髭本亘

2.発表標題

ミュオンによる強相関電子系の研究

3 . 学会等名

ミュオン科学研究会ソフトマター・ミュオニウム・強相関電子系におけるミュオ ンサイエンスの進展

4 . 発表年 2020年

#### .発表者名 髭本亘

1

## 2.発表標題

金属内の不純物や欠陥が誘発する物性と水素状態

3.学会等名 第11回Muon利益と加

第11回Muon科学と加速器研究

4.発表年 2021年

### 1.発表者名

C. Nishimura, H. Yoshinaga, H. Yukawa, Y. Matsumoto T. Nambu

## 2.発表標題

Development of innovative hydrogen separation device from energy carriers based on vanadium alloy membrane

3 . 学会等名

The 20th KIM-JIM Symposium, Energy Storage Materials(招待講演)(国際学会)

4.発表年 2019年

# 1. 発表者名

湯川 宏、余川 将道、南部 智憲

2.発表標題

表面Pd 被覆へのAg 添加によるバナジウム系水素透過合金膜の高温耐久性向上

3.学会等名

日本金属学会 2019年秋期

4.発表年 2019年

## 1.発表者名

Chikashi Nishimura, Hiroshi Nakagawa, Seiji Sakurai, Hideo Yoshinaga, Hiroshi Yukawa, Nobuki Yukawa, Yoshihisa Matsumoto, Tomonori Nambu

#### 2 . 発表標題

Vanadium Alloy Membranes for Extraction of Highly Pure Hydrogen from Ammonia and Methylcyclohexane

#### 3 . 学会等名

World Hydrogen Technology Convention 2019(国際学会) 4. 発表年 2019年

#### 1.発表者名 +++: 洗路 鈴士 諦

木村 浩隆,鈴木 譲,湯川 宏

## 2.発表標題

過酷環境下における水素センシング技術の開発

3.学会等名日本機械学会 2019年度年次大会

4.発表年 2019年

1.発表者名 H.Yukawa, A.Suzuki, T.Nambu

2.発表標題

Alloying Effects on Suppression of Hydride Formation in Binary Vanadium Alloy

3 . 学会等名

HYdrogen POwer – THeoretical and Engineering Solutions – International Symposium (Hypothesis XIV)(国際学会)

4.発表年 2019年

#### 1.発表者名

Hiroshi Nakagawa, Hideo Yoshinaga, Seiji Sakurai, Hiroshi Yukawa, Yoshihisa Matsumoto,Nobuki Yukawa, Tomonori Nambu, Chikashi Nishimura

2.発表標題

High-Capacity Hydrogen Separation Device with Flat Membranes of Vanadium Alloy

3 . 学会等名

World Hydrogen Technology Convention 2019(国際学会)

4 . 発表年

2019年

1. 発表者名 H. Yukawa, A. Suzuki, T. Nambu

2.発表標題

2-Step Degradation of Hydrogen Permeability through Pd-53mol%CuAlloy Membrane with B2 Crystal Structure at Low Temperature

3 . 学会等名

The 10th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM-10)(国際学会)

4 . 発表年 2019年

## 〔図書〕 計0件

〔出願〕 計3件		
産業財産権の名称	発明者	権利者
水素透過装置、水素透過金属膜、水素透過金属膜の製造方法、ガスケット、及びガスケッ	湯川宏、他6名	同左
トの製造方法		
産業財産権の種類、番号	出願年	国内・外国の別
特許、特願2020-026294	2020年	国内
産業財産権の名称	発明者	権利者
試料ホルダー、試料ホルダーの製造方法、及び中性子実験装置	湯川宏	同左
産業財産権の種類、番号	出願年	国内・外国の別
特許、特願2019-187590	2019年	国内
	•	

産業財産権の名称 水素センサ及び水素利用装置	発明者 湯川宏、他2名	権利者同左
産業財産権の種類、番号	出願年	国内・外国の別
特許、特願2020-026294	2020年	国内

## 〔取得〕 計0件

〔その他〕 研究者詳細ホーム https://profs.provost.nagoya-u.ac.jp/html/100001948\_ja.html?k=%E6%B0%B4%E7%B4%A0

6	. 研究組織		
	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
	南部 智憲	鈴鹿工業高等専門学校・その他部局等・教授	
研究分担者	(Nambu Tomonori)		
	(10270274)	(54101)	
	荒木 秀樹	大阪大学・工学研究科・教授	
研究分担者	(Araki Hideki)		
	(20202749)	(14401)	

6	. 研究組織(つづき)		
	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
	浅野 耕太	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エネルギー・環境領 域・主任研究員	
研究分担者	(Asano Kota)		
	(30415640)	(82626)	
	松本佳久	大分工業高等専門学校・機械工学科・教授	
研究分担者	(Matsumoto Yoshihisa)		
	(40219522)	(57501)	
	髭本 亘	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究 部門 原子力科学研究所 先端基礎研究センター・研究主幹	
研究分担者	(Higemoto Wataru)		
	(90291103)	(82110)	

## 7.科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

## 8.本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------