

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	吸着種領域モデル及び反応サイトイメージングによる固体酸化物型燃料電池多孔質電極における反応動力学に関する研究
Title(English)	Reaction Kinetics and Dynamics on Solid Oxide Fuel Cell Porous Electrodes through Species Territory Adsorption Model and Active Sites Imaging
著者(和文)	長澤剛
Author(English)	Tsuyoshi Nagasawa
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10789号, 授与年月日:2018年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:花村 克悟,佐藤 勲,平井 秀一郎,山中 一郎,伏信 一慶
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10789号, Conferred date:2018/3/26, 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	長澤 剛	
論文審査 審査員		氏名	職名	氏名	職名
	主査	花村 克悟	教授	伏信 一慶	准教授
	審査員	佐藤 勲	教授		
		平井 秀一郎	教授		
山中 一郎		教授			

## 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Reaction Kinetics and Dynamics on Solid Oxide Fuel Cell Porous Electrodes through Species Territory Adsorption Model and Active Sites Imaging (吸着種領域モデル及び反応サイトイメージングによる固体酸化物型燃料電池多孔質電極における反応動力学に関する研究)」と題し、全6章より構成されている。

第1章「Introduction (緒論)」では、高効率な発電システムの1つとして期待される、固体酸化物型燃料電池 (Solid Oxide Fuel Cell (SOFC)) において、その多孔質電極の性能や安定性の向上にはその内部における電子、イオン、気体分子の輸送を伴った電気化学反応を正確に理解し記述することが重要であることを指摘するとともに、本研究では、陽的な数式表現を可能とする新規な反応速度モデルの提案、および急冷法を用いた同位体酸素分布測定により、SOFC 多孔質電極における詳細な反応動力学の構築に向けて、反応サイトを特定することや従来の実験結果を統合的に説明できる反応モデルを構築することが目的であることを述べている。

第2章「Species territory adsorption model for hydrogen oxidation in SOFC anode (SOFC 燃料極における水素酸化反応の吸着種領域モデル)」では、Ni 粒子と酸化物イオン伝導体粒子と気相が介する三相界面 (Triple Phase Boundary (TPB)) 近傍において、Ni 表面任意領域に水素が、一方、イオン伝導体表面任意領域に酸素が、それぞれ気相水素分子または固体内酸素イオンとの化学平衡を保ちつつ吸着し、全体の反応速度がこの吸着水素と吸着酸素の反応に律速されると仮定する“吸着種領域モデル”を構築している。このモデルにより、燃料極過電圧が電流密度の陽的関数として表現できること、さらに低電流密度域から高電流密度域まで連続的に表現できる包括的な式となることを示し、その限界電流密度は、TPB 近傍の酸素被覆率が1に近づくことに対応することを明らかにしている。

第3章「Comprehensive analysis of Ni/YSZ anode using species territory adsorption model (吸着種領域モデルによる Ni/YSZ 燃料極の統合的解析)」では、第一原理計算データベースおよび実験結果とのフィッティングにより第2章の反応モデルパラメータを決定し、Ni/イットリア安定化ジルコニア (YSZ) 燃料極過電圧の実験値と解析値との比較から燃料極有効厚みを推定できることを示し、この有効厚みが温度とともに増加する傾向を、出典の異なる複数の実験結果から統合的に見出している。

第4章「Imaging of microstructure-scaled active sites in porous composite cathode (多孔質電極における微構造スケール反応サイトイメージング)」では、He ガス衝突噴流冷却装置を内蔵した発電装置を構築し、同位体酸素を供給直後に、ボタン型 SOFC の温度を1秒以内に 800°C から 300°C まで低下させ、ランタンストロンチウムマンガナイト (LSM)/スカンジウム安定化ジルコニア (ScSZ) 多孔質空気極断面に留められた同位体酸素の分布を、二次イオン質量分析計を用いて可視化している。これにより空気極/電解質近傍ほど LSM 粒子内部への同位体酸素拡散が顕著となり、これが過電圧増加に起因することから、それに接する ScSZ 粒子上領域が活性な反応サイトであることを明らかにしている。

第5章「Analysis method of oxide ion flux at cathode/electrolyte interface through oxygen isotope labeling (酸素同位体ラベリングによる空気極/電解質界面における酸化物イオン流束の解析手法)」では、第4章の装置を用いて SOFC 温度 700°C といった低温域の実験を行い、YSZ 電解質内部の同位体酸素分布から酸化物イオン流束を定量的に推定し、全酸化物イオン流量の7~8割が空気極から、2~3割が電解質との界面から流入していることを示している。

第6章「Conclusions (結論)」では、各章において得られた結論を総括している。

以上を要するに、本論文は SOFC 多孔質電極内における反応サイトの特定ならびに有効な電気化学反応領域を統合的に説明できる反応モデルを構築するなど、SOFC の詳細な反応動力学に向けた知見を得ており、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を有するものと認められる。