

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	中温作動に向けた燃料極支持平板型固体酸化物形燃料電池の開発
Title(English)	Development of the anode supported planar type solid oxide fuel cell for intermediate temperature operation
著者(和文)	大類 姫子
Author(English)	Himeko Orui
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9303号, 授与年月日:2013年9月25日, 学位の種別:課程博士, 審査員:菅野 了次,大坂 武男,川路 均,中村 二郎,平山 雅章,荒井 創
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9303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

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		大類 姫子	
論文審査 審査員		氏 名	職 名		氏 名	職 名	
	主査	菅野 了次	教授	審査員	平山 雅章	講師	
	審査員	大坂 武男	教授		荒井 創	京都大学 特定教授	
		川路 均	教授				
		中村 二郎	連携教授				

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Development of the anode supported planar type solid oxide fuel cell for intermediate temperature operation」と題し、中温域で作動する実用サイズの固体酸化物形燃料電池を開発するため、 Sc_2O_3 、 Al_2O_3 安定化 ZrO_2 (SASZ)、 $\text{LaNi}(\text{Fe})\text{O}_3$ (LNF)といった高活性酸化物材料の燃料極支持型セルへの適用について検討を行った結果をまとめたものであり、英語で記述され七章から構成されている。

第一章「Introduction」では、現在のエネルギー供給の課題と将来展望から燃料電池の重要性を述べ、中温作動に向けた固体酸化物形燃料電池開発の課題を材料とセラミックス構造体の設計の観点から概説し、本研究の意義、目的について記述している。

第二章「Experimental techniques」では、セラミックスサンプル、セルの作製方法、サンプルを評価するための微細構造分析、X線回折測定、熱分析、電気的特性の評価方法、セルの発電特性や内部抵抗分析のための電気化学的測定を述べている。

第三章「Electrical properties of nickel - zirconia cermets using $\text{Sc}_2\text{O}_3 - \text{Al}_2\text{O}_3$ stabilized ZrO_2 (SASZ) for the anodes of SOFC」では、8YSZ, SASZ を Ni-ジルコニアサーメット燃料極に適用した際の NiO の粒子径および還元条件が電気的特性へおよびる影響について記述している。いずれの燃料極においても 800℃で還元した際は高い電子伝導性を示すが、800℃までの昇温過程において還元を行なった場合には導電率は低下し、特に Ni-SASZ ではイオン伝導性が支配的となることを見出した。燃料極還元反応の速度論的な解析から還元初期における速い、一定速度の核形成がサーメット中での安定した Ni-Ni 接合形成において重要であることを明らかにした。

第四章「High-temperature stability of alumina containing nickel-zirconia cermets for SOFC anodes」では Sc_2O_3 安定化 ZrO_2 (ScSZ)もしくは SASZ を適用した Ni-ジルコニアサーメット燃料極の導電率の経時変化を評価し燃料極中のアルミナの存在が長期安定性に及ぼす影響について記述している。800℃において Ni-ScSZ では時間とともに導電率が低下するのに対し、Ni-SASZ では安定した特性を示すことを見出した。測定後の微細構造観察から導電率の低下は燃料極中の Ni の凝集によるもので、燃料極へのアルミナの添加により運転雰囲気下での Ni の凝集が抑えられ長期特性が改善されることを明らかにした。XRD の結果からアルミナを添加した燃料極では焼成過程において NiAl_2O_4 のスピネル相が形成され、このスピネル相が 800℃においてゆっくりと還元され準安定相である $\text{NiAl}_{10}\text{O}_{16}$ となり、Ni の長期的な安定に寄与する可能性を見出した。

第五章「Application of $\text{LaNi}(\text{Fe})\text{O}_3$ as SOFC cathode」では LNF の SOFC の空気極への適用の可能性を調べるため、LNF の焼成温度と SASZ との反応性、電極特性への影響についてコインサイズの燃料極支持型セルを用いて評価した結果について記述している。XRD の結果から LNF 空気極を 1000℃以上の高温で形成すると電解質との界面に高抵抗な $\text{La}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ が形成されることを明らかにした。作製したセルで高電流密度での定電流通電処理を行うことにより LNF/SASZ 界面抵抗を通電前の 1/10 以下に減少することを見出した。その結果 LNF を 1000℃で形成したセルにおいて 800℃において 1.56W/cm² と最も高い発電特性を確認し、LNF は中温作動 SOFC の空気極として有望であることを見出した。

第六章「Development of practical size anode - supported solid oxide fuel cells with multilayer anode structures」では実用サイズの燃料極支持型セルの開発を目的とし、燃料極の材料や微細構造が気孔率、細孔径、燃料極支持型セルの平坦性、出力特性といったセル特性に及ぼす影響について評価した結果について述べている。粒子径の異なる NiO を用いて作製した微細構造の異なる 2 種類の燃料極を組み合わせて燃料極基板を構成することで、高い電極活性とガス拡散性を両立したセルが実現されることを明らかにした。さらにセル構成部材の厚みの調整によりセルの反りの抑制が可能であることを見出し、その結果金属セパレータを用いた際のセル/セパレータ間の接触抵抗が抑制されることを明らかにした。

第七章「Conclusions」では、本論分を総括している。

これらを要するに、本論文は SASZ と LNF といった高活性材料のセルへの適用を検討し、これらを適用した実用サイズの燃料極支持型セルの評価から 800℃の中温作動における発電効率および長期的安定性の観点から望ましい電極設計の指針を明らかにし、工学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と認められる。