

## 燃料電池用酸化物材料の製造技術

### 素材開発部

#### 1 はじめに

燃料電池は、燃料中の水素と空気中の酸素を化学反応させて電気を取り出す化学電池です。そのため、発生するのが電気と水、それに熱というクリーンな発電システムになります。この燃料電池は、イオン導電体である電解質材料の種類によって、いくつかに分類され、その中でも固体酸化物形(SOFC)は下記の特徴を有することから次世代の発電システムとして注目されています。

- ・発電効率が50~60%と高い。
- ・構成する材料が全て固体(セラミックス)からなるため、取り扱いが容易である。
- ・多くの種類の燃料(水素、天然ガス、灯油など)が使用できる。

現在、SOFCの実用的な開発が進む中、大型で緻密な構造を持つ電解質材料が求められています。そこで、本研究では出発原料と焼結特性を把握することで、大型の電解質材料の製造技術を開発しました。電解質材料としては、高い酸化物イオン導電性を有するサマリウム固溶セリア(SDC)を取り上げました。

#### 2 実験方法

電解質材料の出発原料として、シュウ酸塩共沈法(A)、酸化物混合法(B)による2種類の合成粉を用いて、 $Ce_{0.2}Sm_{0.2}O_{1.9}$ の組成を持つサマリウム固溶セリア(SDC)焼結体を作製しました。合成粉(A)は、硝酸セリウムと硝酸サマリウムの混合溶液をシュウ酸に滴下し共沈させ、この沈殿物を大気中で仮焼することで得ました。一方、合成粉(B)は、酸化セリウム( $CeO_2$ )と酸化サマリウム( $Sm_2O_3$ )をボールミルで混合しました。このように合成した(A)(B)を加圧成形し、1,300~1,550°Cで大気中にて焼結<sup>\*</sup>しました。また、作製したSDC焼結体について、密度、結晶相及び微構造観察の評価を行いました。

#### 3 結果

合成粉(A)を600~1,500°Cで焼結したときのX線回折パターンでは、焼結温度によらずSDCの単一相を示します。合成粉(B)を1,200~1,500°Cで焼結したときのX線回折パターンは、1,200~1,400°Cでは立方晶の $CeO_2$ と $Sm_2O_3$ が同定されたが、1,500°Cでは $CeO_2$ 固溶体みの回折パターンが得られました。これは、1,500°Cの焼結温度で合成粉(B)の $Sm_2O_3$ が $CeO_2$ 中に固溶したことを示しています。

図1に各焼結温度における合成粉(A, B)から作製した焼結体の相対密度を示します。(A)では1,400~1,550°Cで高い相対密度を示しました。(B)による成形体の焼結性は1,450°C以下では低かったが、1,500~1,550°Cでは向上しました。これは、 $Sm_2O_3$ が $CeO_2$ に固溶したことによりSDCの高密度化が促進されたためです。合成粉(A)(B)を用いて、割れや反りのない大型(直径150 mm)のSDC固体電解質を製造することができました。

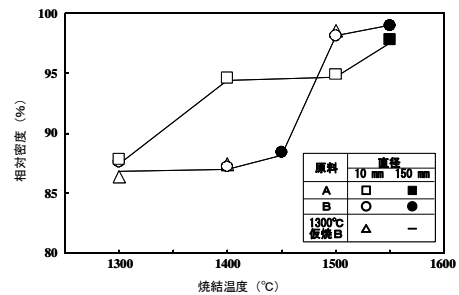


図1 焼結体の相対密度

次に、1,500°Cで焼結したSDC焼結体の微細構造において、1,300°Cで焼結した(A)と(B)では1 $\mu$ mより小さな粒子を持った多孔質構造でした。焼結温度を1,500°Cへ上昇させると、(A)では1~2 $\mu$ mのSDC結晶粒を持つ緻密な焼結体へ変化しました。(B)では幅広い結晶粒分布(0.1~2.5 $\mu$ m)が得られました。これより、(A)は(B)よりも均一な微細構造であることがわかりました。

#### 4 おわりに

$Ce_{0.2}Sm_{0.2}O_{1.9}$ の組成を持つ固体電解質を得るために、合成粉(A)と(B)の2種類を成形し、1,300~1,550°Cで焼結しました。その結果、合成粉(A)(B)のどちらにおいても、割れや反りがなく、大型(直径150mm)で緻密(相対密度>98%)な構造を持つ固体電解質を得ることができ、また、合成粉(A)の方が、均一(1~2 $\mu$ m)な結晶粒を持つ緻密な微細構造となることがわかりました。

<sup>\*</sup>焼結に用いた機器は、競輪補助(日本自転車振興会交付)により購入しました。