

 MLF Experimental Report	提出日(Date of Report)
課題番号(Project No.) 2018PM0018 実験課題名(Title of experiment) 固体酸化物燃料電池セル劣化の位置分解評価 実験責任者名(Name of principal investigator) 高橋東之 所属(Affiliation) 茨城大学	装置責任者(Name of responsible person) 石垣徹 装置名(Name of Instrument : BL No.) iMATERIA BL20 実施日(Date of Experiment) 2018/5/14 2018/11/27-28

実験目的、試料、実験方法、利用の結果得られた主なデータ、考察、及び結論を記述して下さい。

実験結果などの内容をわかりやすくするため、適宜図表添付して下さい。

Please report experimental aim, samples, experimental method, results, discussion and conclusions. Please add figures and tables for better explanation.

1. 実験目的(Objectives of experiment)
固体酸化物燃料電池セルについて、新たに製作した吊り下げスリットを用いて小角から背面バンクまでのマルチスケール構造測定を検証する。また、XRD では識別困難な構造変化が中性子回折で可能か確認を行い、固体酸化物燃料電池セルへの iMATERIA の応用のための基礎的データを蓄積する。

2. 試料及び実験方法 Sample(s), chemical compositions and experimental procedure
2.1 試料 (sample(s)) Ni 添加イットリア安定化ジルコニア (Ni-YSZ) ニッケルサーメットアノードセル (アノードセル) 2.2 実験方法(Experimental procedure) Ni-YSZ は 30 交換機で測定 アノードセルは小角交換機に吊り下げセルを用いて測定

3. 実験結果及び考察（実験がうまくいかなかった場合、その理由を記述してください。）

Experimental results and discussion. If you failed to conduct experiment as planned, please describe reasons.

図1にNi-YSZの還元処理温度毎の中性子回折プロファイルを示す。未処理試料と750°C還元試料ではほぼプロファイルに差が見えず、900°C還元試料はやや半値幅が広い程度で、正方晶特有の回折ピークの分離は見られない。図中の $d=2.1\text{\AA}$ 付近に900°Cにのみピークが観測されているが、このピークは正方晶P42/nmcの(102)回折線に対応し、少なくとも900°C還元試料は一部、正方晶に相変態していることが判明した。

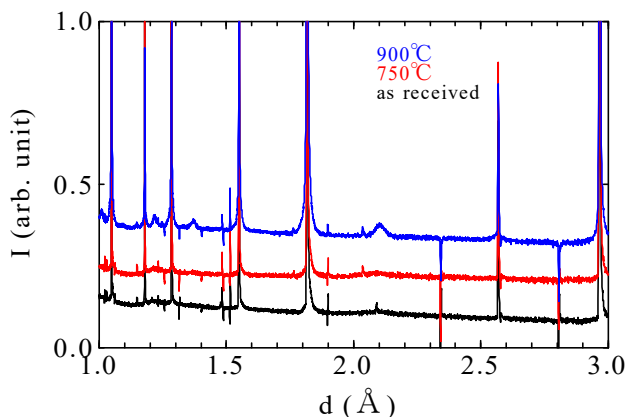


図1

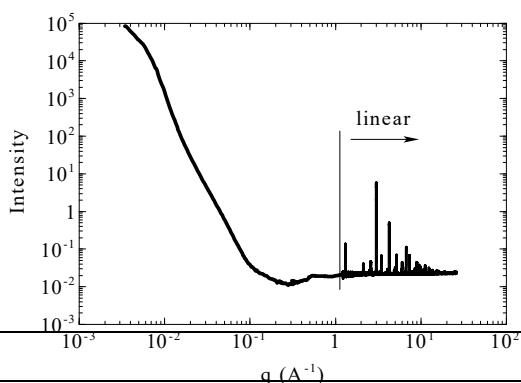
表1

さらに詳しく調べるためにZ-Rietveld解析を行った。

表1に示すように、750°Cは正方晶の質量比が0となり、中性子回折から正方晶の存在を確認することはできなかった。一方、900°Cでは正方晶の質量比は0.5となった。格子定数から明らかなように、正方晶の軸比 c/a がほぼ $\sqrt{2}$ で立方格子を形成し、さらに格子サイズは共存する立方晶の格子定数にきわめて近い値を取っている。正方晶では酸素が立方晶での $z=0.25$ から $z=0.2188$ とわずかに変位しているだけである。このような違いはXRDでは識別できないが、中性子では900°Cでの0.5程度の質量比で判別が可能であった。

S.G.		as received	750°C	900°C
Fm-3m	lattice const. a	5.1373	5.1367	5.1373
P42/nmc	lattice const. a			3.6275
	lattice const. c			5.1446
	$c/\sqrt{2}a$			1.0028
	O z			0.2188
	tetragonal ratio	0	0	0.5

図2に吊り下げスリットを用いたアノードセルのマルチスケール測定データを示す。小角散乱と背面の高分解能バンクからの同時測定データにより $0.003\text{-}25\text{\AA}^{-1}$ までのデータが得られることが示された。背面データは結晶構造解析が可能であり、小角散乱については、還元温度の異なるいくつかのアノードサーメットについて測定した結果、還元温度が低いほど小角散乱強度が増加することも明らかになった。



4. 結論(Conclusions)

中性子回折は酸化物の酸素の状態を敏感にとらえることがあらためて示された。さらに、小角交換機に吊り下げスリットを用いたマルチスケール測定は、電極を含む電池セルの構造を広い空間スケールで明らかにすることが可能であることがわかった。