

O303

プロトン伝導体 SCYb を均一添加した SOFC 用燃料極における添加量依存性

(東工大・炭エネ研¹, 三菱化学 科学技術研究センター²)(学)沖 高次¹, (学)高見 英治¹, 藤本 泰弘², 大島 一典², ○(正)伊原 学^{1*}

【緒言】 固体酸化燃料電池(SOFC)は高温で作動するため、水素やドライ炭化水素を燃料として利用することができる。しかし、ドライ炭化水素を直接燃料として用いた場合、燃料極表面で生じる炭素の析出等により劣化し、発電特性が低下してしまう。

当研究室ではプロトン伝導体に注目し、一般的に用いられている Ni/YSZ サーマット燃料極にプロトン伝導体 SrZr_{0.95}Y_{0.05}O_{3-δ} (SZY)をインフィルトレーション法によって添加した Ni/YSZ-SZY 燃料極を作製してドライメタン中での劣化加速試験による劣化率を Ni/YSZ 燃料極と比較評価した。ドライメタン中で 20 回の劣化加速試験を行ったところ、Ni/YSZ 燃料極では最大電流密度が約 64% 低下したのに対し、Ni/YSZ-SZY 燃料極では約 25% の低下に制御できることを報告した¹⁾。また、ドライメタン燃料で安定発電が報告されている Ni/Gd₂O₃-doped-CeO₂ (GDC)燃料極にプロトン伝導体 SrCe_{0.95}Yb_{0.05}O_{3-δ} (SCYb)をインフィルトレーション法によって添加した Ni/GDC-SCYb 燃料極において、水素燃料中及びドライメタン燃料中で過電圧を低減できることを報告した²⁾。しかし、Ni/GDC 燃料極にピペットで SCYb を添加すると電極特性は向上するものの Ni/GDC 燃料極よりも劣化率が大きくなってしまふとの問題点があった。そこで、ピペット添加よりも液滴が小さく pl オーダーで添加できるインクジェットを用いて SCYb を Ni/GDC 燃料極に添加したところ、ピペット添加の Ni/GDC-SCYb 燃料極よりも劣化率が小さくなることを報告した³⁾。

本研究では、プロトン伝導体 SCYb を Ni/GDC 燃料極にインクジェット法で添加した Ni/GDC-SCYb 燃料極を作製し、SCYb の添加量と SOFC の発電特性の関係を調べた。

【実験方法】 燃料極には Ni/GDC(NiO:GDC=50:50 wt%)の混合サーマットを用い、空気極には La_{0.85}Sr_{0.15}MnO₃(LSM)/ScSZ の混合電極(LSM:ScSZ=80:20 wt%)を用いた。電解質には燃料極側に Sm_{0.2}Ce_{0.8}O_{2-δ} (SDC20)の膜をつけた直径 20 mm、厚さ 0.3 mm の 10 mol%Sc₂O₃-1 mol%CeO₂-89 mol%ZrO₂ (ScSZ)のディスクを用いた。燃料極用粉末を混合してペースト化した後、電解質上に塗布し乾燥後、1300°C で 4 時間焼成し、NiO/GDC 燃料極表面上にモル比を調整した Sr(NO₃)₂、Ce(NO₃)₃·6H₂O、Yb(NO₃)₃·5H₂O のイオン交換水溶液を NiO との重量比が所定の値となるようにインクジェットで滴下し乾燥後、空気極とともに 1200°C で 4 時間焼成した。重量比 (SCYb/NiO)が 10%の燃料極(Ni/GDC-SCYb10)と 5%の燃料極(Ni/GDC-SCYb5)を作製した。

SOFC の発電特性の評価には、作動温度 900°C、燃料極に 1%加湿水素及びドライメタン 200 ccm を、空気極に純酸素 60ccm を流して行った。劣化加速実験は、ドライメタン燃料中(50 ccm)で 10 分間開回路状態にすることで炭素析出による劣化を加速させた後、20 分間電流を流すことで発電を安定化させ、その後 I-V 特性を測定した。これを繰り返し Ni/GDC、Ni/GDC-SCYb 燃料極の劣化特性を調べた。

【結果と考察】 Fig.1 に Ni/GDC 燃料極、NiO に対して SCYb を 5wt% 添加した Ni/GDC-SCYb5 燃料極、10wt% 添加した Ni/GDC-SCYb10 燃料極における水素燃料での I-V 特性を示す。Ni/GDC-SCYb5 燃料極は出力密度が Ni/GDC 燃料極とほとんど変わらなかったが、Ni/GDC-SCYb10 燃料極は出力密度が Ni/GDC 燃料極と比べて約 40% 増大した。Fig.2 に Ni/GDC 燃料極、Ni/GDC-SCYb5 燃料極、Ni/GDC-SCYb10 燃料極におけるドライメタン燃料での I-V 特性を示す。Ni/GDC-SCYb5 燃料極は出力密度が Ni/GDC 燃料極とほとんど変わらなかったが、Ni/GDC-SCYb10 燃料極は出力密度が Ni/GDC 燃料極と比べて約 20% 増大した。

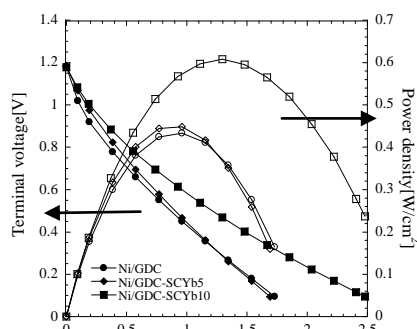


Fig.1 H₂ 燃料を用いた場合の Ni/GDC, Ni/GDC-SCYb5, Ni/GDC-SCYb10 燃料極を有する SOFC の I-V 特性 (900°C, 200 ccm 1%H₂O H₂)

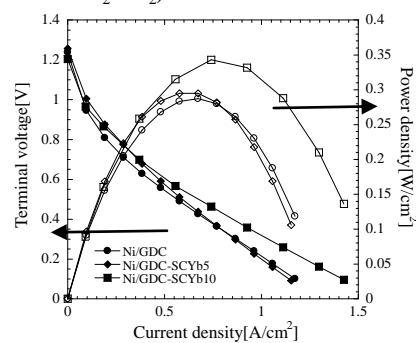


Fig.2 ドライメタン燃料を用いた場合の Ni/GDC, Ni/GDC-SCYb5, Ni/GDC-SCYb10 燃料極を有する SOFC の I-V 特性 (900°C, 200 ccm dry methane)

【謝辞】 本研究の一部は、独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)産業技術研究助成により行われました。関係各位に深く感謝いたします。

【参考文献】

- 1) Y. Jin et al, *Electrochemical and Solid-State Letters*, **12** (2) B8-B10 (2009)
- 2) H. Yasutake et al, *ECS Transactions*, **16** (51) 273-285 (2009)
- 3) 沖 他 2009 年化学工学会秋季大会講演要旨集 M226

*Tel&Fax : 03-5734-3337

E-mail : mihara@chem.titech.ac.jp