

## O304

## LSM/ScSZ 二相系 SOFC 用複合空気極の微細構造と電気化学特性の関係

(東工大炭エネ研)○(学)島田 寛之\*・(東京電力) 瀧澤 孝一・萩原 明房  
(東工大炭エネ研)(正)伊原 学

【緒言】SOFC 用空気極の性能向上については、電極微細構造制御により、広い三相界面を保持することが有効である<sup>1,2</sup>。本研究では、LSM と ScSZ を用いた二相系複合電極の製造法として、多孔質電解質構造法を提案し、性能評価を行った。これは電解質表面に予め多孔質電解質の骨格構造を形成して、ここに LSM を含浸・塗布して電極とする方法である。さらに、電解質表面の凹凸構造が電極性能に与える影響を理解するために、電極微細構造と電気化学インピーダンス法 (EIS) により分離した各抵抗値との相関性について、検討を行った。

【実験】評価用試料として、10Sc1CeSZ (ScSZ、 $t=2.2\text{mm}$ ) を電解質としたハーフセルを用いた。多孔質電解質骨格構造は、ScSZ と造孔剤を混合したスラリーを ScSZ 基板上に塗布、 $1400^\circ\text{C}$  で焼成することで作製した。造孔剤としてカーボンとポリメチルメタクリレート (PMMA) を使用し、カーボンは混合比を、PMMA はその粒径を変化させた (Table 1)。その後、空気極スラリーを多孔質電解質構造への含浸を行い、 $1200^\circ\text{C}$  で焼成することで空気極を得た。空気極スラリーは  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$  (LSM、 $D_{50}=1.2\mu\text{m}$ ) と ScSZ を 80 : 20 の体積比にて混合したものである。膜厚は多孔質電解質層を約  $10\mu\text{m}$ 、空気極を  $20\mu\text{m}$  とした。

EIS は空気雰囲気下で OCV にて実施した。得られた Nyquist 線図を ZView による等価回路を用いて抵抗分離することで、面積抵抗値 (ASR) を求め、電極性能評価を行った。

【結果と考察】Fig. 1 に空気極材料含浸後の SEM-EDX 像を示す。ここでは C50(5) を代表として掲載した。EDX 観察は解像度の制約から、電極細部の微細構造を観察することは難しいが、電解質表面の巨視的な三次元的構造を把握するには有効である。C50(5) では骨格構造表面に比較的大きな凹凸構造が顕著に見られるようになり、触媒材料が適切に含浸されている。

Fig. 2 に各試料における ASR を示す。多孔質電解質構造を用いていない LSM/ScSZ 電極を、基準電極として比較のために記載した。 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$  はそれぞれ  $3\text{k}\sim 30\text{kHz}$ 、 $100\sim 3000\text{Hz}$ 、 $0.1\sim 100\text{Hz}$  に対応する ASR である。各抵抗値の酸素分圧依存性を測定した結果より、 $R_1$  は電極と電解質の接触部に関する抵抗、 $R_2$  は三相界面における酸素還元反応に関する抵抗、 $R_3$  はガス供給に起因する抵抗と考えた<sup>3</sup>。基準電極と比較すると含浸法で作製した空気極は  $R_1$ 、 $R_2$  ともに改善したが、特に  $R_2$  において著しい低減を示し、その値は基準電極の  $0.0457\Omega\text{cm}^2$  に対して  $0.0249\sim 0.0342\Omega\text{cm}^2$  であった。また、EDX 画像を解

析することにより、巨視的な電解質表面積の増加率を求めた結果、表面積が増加すると  $R_2$  が低減される傾向があることが分かった。

Table 1 Porous electrolyte layer samples list.

| Sample ID | Porous electrolyte layer |                                 |                              |            |  |
|-----------|--------------------------|---------------------------------|------------------------------|------------|--|
|           | P.F.                     | Particle diameter $\mu\text{m}$ | ScSZ: P.F. Composition ratio | Porosity % | Surface area $\text{m}^2\text{g}^{-1}$ |
| C30(5)    | Carbon                   | 5                               | 70:30                        | 31.4       | 0.532                                  |
| C40(5)    | Carbon                   | 5                               | 60:40                        | 42.2       | 0.611                                  |
| C50(5)    | Carbon                   | 5                               | 50:50                        | 53.9       | 0.901                                  |
| C60(5)    | Carbon                   | 5                               | 40:60                        | 58.9       | 0.915                                  |
| P50(1.8)  | PMMA                     | 1.8                             | 50:50                        | 48.8       | 0.466                                  |
| P50(3)    | PMMA                     | 3                               | 50:50                        | 50.3       | 0.499                                  |
| P50(5)    | PMMA                     | 5                               | 50:50                        | 52.5       | 0.409                                  |
| P50(10)   | PMMA                     | 10                              | 50:50                        | 51.0       | 0.478                                  |
| P50(20)   | PMMA                     | 20                              | 50:50                        | 49.7       | 0.645                                  |

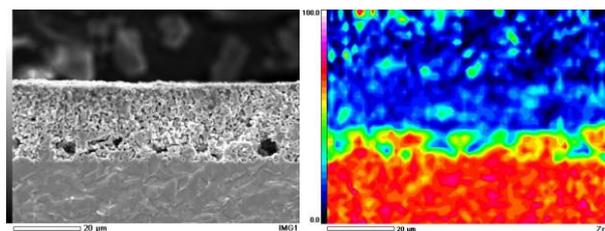


Fig. 1 SEM image and Zr color mapping by EDX for C50(5).

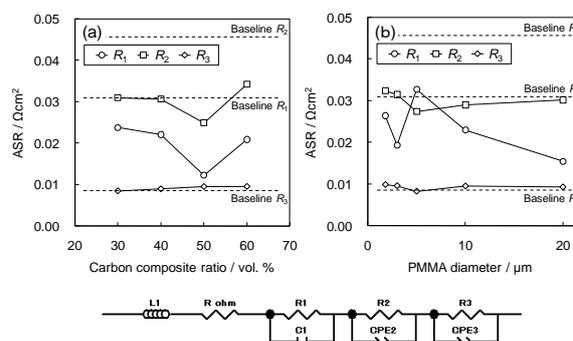


Fig. 2 Separated ASRs according to the equivalent circuit: (a) the effect of graphite carbon content and (b) the effect of PMMA particle diameter.

## 【参考文献】

- [1] H. Fukunaga et al., *Solid State Ionics*, 86-88, 1179 (1996).
- [2] A. Hagiwara et al., *Solid State Ionics*, 77, 2967 (2006).
- [3] J. Mizusaki et al., *J. Electrochem. Soc.*, 138, 1867 (1991).

Tel: 045-394-6127, FAX: 045-585-8647

E-mail: h.shimada@tepcoco.jp