

審査結果の要旨

論文提出者氏名 森 博

本論文は「SOFC アノード材料における Ni-導電性酸化物の構造及びその触媒活性」と題し、固体酸化物形燃料電池(SOFC)のアノード材料について、アノードを構成する Ni と導電性酸化物の複合化についての詳細とその複合化がアノードの性能、特に炭化水素改質触媒性能に与える影響に着目して検討を行ったものである。対象とする材料としては、アノードとして広く使用されている Ni/イットリア安定化ジルコニア ($(Y_2O_3)_{0.08}(ZrO_2)_{0.84}$, YSZ) 及び炭化水素燃料で長期発電の実績を持つことから近年注目されている Ni/スカンジウム安定化ジルコニア ($(Sc_2O_3)_{0.08}(ZrO_2)_{0.84}$, ScSZ) を選定している。論文は全 4 章で構成され、各章についての概略は以下の通りである。

第 1 章は序論であり、本研究の背景として SOFC の原理と特徴、主要構成物質、セル形態、作製法、開発の現状及び問題点などについて紹介し、研究の目的及び論文の構成について述べている。SOFC は排熱を利用することで高効率発電が可能であり、内部改質反応を利用することで燃料に水素だけでなく炭化水素を直接利用できることから次世代の燃料電池の本命としての期待が高まっている。しかし、現状では技術的成熟度が不十分であり、特に炭化水素燃料を用いた場合の信頼性などの面で問題点も多く、基礎レベルでの研究が必要である。その中でアノードの研究についての重要性について言及し、本研究の課題を明確化している。

第 2 章では Ni と YSZ 及び ScSZ の複合化により両者の間に生じる相互作用について評価を行い、得られた知見について述べている。一般的な SOFC アノードの作製方法として NiO と導電性酸化物の粉末を混合、焼成処理を行ったのちに SOFC 作動温度で還元する方法が取られる。Ni と YSZ 及び ScSZ の複合化はアノードを作製する際の焼成処理によって生じることが予測されることから、還元前の NiO/YSZ 及び NiO/ScSZ について NiO の還元挙動の温度依存性を評価し、その結果と電子顕微鏡 (SEM), X 線回折 (XRD) を用いて NiO/YSZ 及び NiO/ScSZ 中で NiO がどのような状態で存在するかについて評価した結果との比較から導電性酸化物の種類 (YSZ, ScSZ) 及び電極作製条件 (焼成温度, Ni 含有量など) が NiO の存在状態に与える影響について考察している。NiO と YSZ, ScSZ 間の複合化に伴う相互作用は電極作製条件のうち特に焼成温度に大きく依存し、NiO-ScSZ 間の相互作用は NiO-YSZ 間の相互作用より強いことを明らかにしている。また、SOFC の

作動温度で還元を行った Ni/YSZ, Ni/ScSZ についても評価を行い, ScSZ 上の Ni は YSZ 上の Ni と比べ凝集が抑制され高分散を保っていること, その一部は Ni²⁺で存在することを明らかにしている.

第 3 章では Ni/YSZ, Ni/ScSZ でメタンの分解活性を評価し, Ni と YSZ 及び ScSZ との間の複合化の程度がメタン改質触媒性能に与える影響について評価した結果について述べている. 特にアノード性能に大きく関与する析出炭素について重点的に評価を行っており, Ni/YSZ 及び Ni/ScSZ について焼成温度の違いにより析出炭素の量のみならず析出炭素の形状・結晶性が異なるという結果を得ている. メタン燃料で長期発電の実績を持つ 1450°C 焼成の Ni/ScSZ は他の試料が失活する条件下においてもメタン分解活性を保持することができ, 結晶性の高い炭素が析出しやすいことを明らかにしている. これらの実験結果は Ni/YSZ 及び Ni/ScSZ のメタン分解触媒活性の違いによって析出炭素の形状・結晶性が異なることが発電時の電極性能を左右するというを示唆している.

第 4 章では研究の総括と今後の展望について述べている.

以上を要するに, 本論文は SOFC アノード材料において電極作製条件が Ni と導電性酸化物の複合化に強く関連し, 複合化に伴う Ni の状態の違いがメタン分解触媒活性及び炭素析出挙動に極めて多大な影響を与えることを明らかにしたものである. これらの知見は SOFC アノード設計のみならずメタン分解触媒, 炭素製造触媒への幅広い可能性を提供しており, 工学的に高い価値を持ち, 化学システム工学への貢献は大きいものと考えられる.

よって, 本論文は博士 (工学) の学位請求論文として合格と認められる.