

# 審査の結果の要旨

氏名 小城 元

本論文は、プロトン伝導性固体酸化物形燃料電池 (p-SOFC) の電解質材料の候補であるタングステン酸ランタン (LWO) を用い、高効率 p-SOFC の実現に向けた材料開発とセル設計、設計に基づく単セルの作製、及び発電特性の評価を目的としている。ホール伝導度に着目した材料開発やセル設計を行うと共に、電解質と電極の界面に挿入された反応抑制層が発電性能に与える影響について議論している。

本論文は 7 章からなる。第 1 章は緒言であり、研究背景と目的について述べている。燃料電池の構成要素や各部材の開発状況を論じ、燃料電池の高効率化に向けた開発動向と課題について述べている。400℃から 600℃の中温域で高いプロトン伝導度と化学的安定性を有する LWO に着目し、プロトン伝導だけでなくホール伝導を含めた輸送特性制御の重要性について述べ、本研究の新規性や目的について論じている。

第 2 章では実験方法について述べている。本研究で用いた電解質材料の合成方法、実験装置や使用した試薬、及び分析手法について詳述している。

第 3 章では、LWO を用いた材料開発の検討を行い、高温焼成により合成した高 La/W 比を有する LWO 試料 (La/W 比=6.7 ; LWO67) について、詳細な構造解析と低 La/W 比の LWO 試料とのプロトン伝導度やホール伝導度の比較を行っている。La/W 比の増加に伴うプロトン伝導度の向上とホール伝導度の抑制について、La/W 比を増加させた際の LWO 結晶の格子定数の挙動や結晶中への水の固容量の変化との相関を検討することで、水の固容量増加に伴うホール伝導抑制効果について論じている。

第 4 章では、電解質のプロトン伝導度とホール伝導度の測定値を用い、イオン・電子輸率や化学ポテンシャルを考慮した理論モデルに基づき、高効率 p-SOFC セルの設計を行っている。電解質の膜厚と外部取り出し電流に焦点を当て、既存の量産化技術で対応可能な膜厚と現行の燃料電池運転条件に即した外部取り出し電流を想定し、高効率 p-SOFC セルを作製するために電解質材料に求められる物性の評価を行っている。また、電解質膜厚を変えた際のプロトン伝導度やホール伝導度が発電効率に与える影響について、LWO67 電解質の薄膜化に対するホール伝導度を算出し、他の p-SOFC 用電解質候補材料に対する優位性について論じている。

第 5 章では、LWO67 を電解質に用いてセルを作製する際に必要となる反応抑制層について論じている。酸化物イオン・電子混合伝導性を有する  $\text{Ce}_{0.9}\text{Gd}_{0.1}\text{O}_{2-\delta}$  (GDC10) とプロトン伝導性を有する  $\text{La}_{2.6}\text{Ce}_{1.4}\text{O}_{7-\delta}$  (LCO26) をカソードと電解質界面の反応抑制層に用いた際の電極反応についてそれぞれ測定を行い、反応抑制層の輸送特性が電極反応に与える影響について検討している。GDC10 を反応抑制層に用いたセルでは、LWO67 から GDC10 にプロトンが移動する過程の抵抗が支配的であることを明らかにし、酸化物イオン・電子混合伝導性によって反応場が GDC10 層の内部にも拡大し、電極抵抗が低減される機構の提案を行っている。

第 6 章では、第 4 章と第 5 章の結果を踏まえ、LWO67 を薄膜電解質に用いたアノード支持型 p-SOFC セルを作製し発電試験を行うことで反応抑制層が発電試験に与える影響について検討している。起電力測定の結果から第 4 章の結果である LWO67 を薄膜電解質に用いた高効率 p-SOFC の実現可能性が示された一方で、電極抵抗の向上にはアノード電解質界面の反応抑制層に高プロトン伝導性が必要であることを明らかにしている。

第 7 章では、以上の結果を総括し、今後の展望を述べている。

なお、第 3 章から第 6 章の成果については、庄野洋平、月村玲菜、Wei, Xiaochu、松尾拓紀、松崎良雄、Hellgardt, Klaus、牛山浩、大島義人および大友順一郎との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験及び解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

以上要するに、本論文は、LWO を電解質に用いた高効率 p-SOFC の実現可能性を見いだした上で、その実現に向けて電極及び界面構造形成を含む要素技術の開発指針を提示している。本論文で得られた LWO 薄膜電解質における高い起電力は、今後主流になると考えられる電極支持型燃料電池の研究開発を促進し、p-SOFC 全体の高効率化に貢献する成果である。また、反応抑制層が発電性能に与える影響について解析した結果をセル設計に反映させることで、更なる高効率 p-SOFC の実現が期待される。このように、本論文は高効率 p-SOFC の研究開発を促進し、環境システム学の進展に大きく貢献するものである。

よって本論文は博士（環境学）の学位請求論文として合格と認められる。

以上 1983 字