

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2009-26659

(P2009-26659A)

(43) 公開日 平成21年2月5日(2009.2.5)

(51) Int.Cl.	F 1	テーマコード (参考)
HO 1M 4/88 (2006.01)	HO 1M 4/88 T	5HO18
HO 1M 8/12 (2006.01)	HO 1M 8/12	5HO26

審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全 13 頁)

(21) 出願番号 (22) 出願日 特許法第30条第1項適用申請有り 平成19年1月22日 日本セラミックス協会基礎科学部会発行の「第45回セラミックス基礎科学討論会講演要旨集」に発表	特願2007-189973 (P2007-189973) 平成19年7月20日 (2007.7.20)	(71) 出願人 504258527 国立大学法人 鹿児島大学 鹿児島県鹿児島市郡元一丁目21番24号 (74) 代理人 100090273 弁理士 園分 孝悦 (72) 発明者 平田 好洋 鹿児島県鹿児島市郡元一丁目21番24号 国立大学法人 鹿児島大学内 (72) 発明者 鮫島 宗一郎 鹿児島県鹿児島市郡元一丁目21番24号 国立大学法人 鹿児島大学内 (72) 発明者 松永 直樹 鹿児島県鹿児島市郡元一丁目21番24号 国立大学法人 鹿児島大学内
---	--	---

最終頁に続く

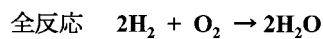
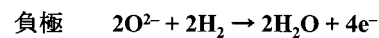
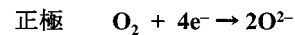
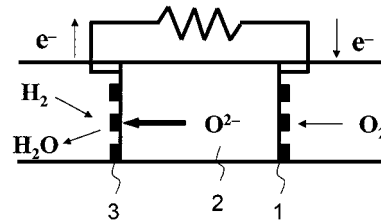
(54) 【発明の名称】 正極材料及び固体酸化物形燃料電池

(57) 【要約】

【課題】 希土類固溶セリアの電解質を用いた固体酸化物形燃料電池において、高性能の正極材料を提供する。

【解決手段】 希土類固溶セリアの電解質を用いた固体酸化物形燃料電池において、電解質と化学反応が起こりにくく、電子伝導性が高く、さらに酸素との反応性の高い SrRuO₃ を正極材料に含むようにし、従来よりも出力性能を向上させるとともに、正極の性能劣化を抑えることができるようにする。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

希土類固溶セリアを電解質とする固体酸化物形燃料電池に用いられる正極材料であって、
ルテニウム酸ストロンチウムを含むことを特徴とする正極材料。

【請求項 2】

請求項 1 に記載の正極材料を有することを特徴とする固体酸化物形燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

10

本発明は、希土類固溶セリアを電解質に用いた固体酸化物形燃料電池の正極材料、及びその正極材料を用いた固体酸化物形燃料電池に関する。

【背景技術】

【0002】

燃料電池は、化学反応のエネルギーを電気エネルギーへ直接変換することができるデバイスである。この燃料電池は、エネルギー変換効率が高く、水素を燃料に用いると排出ガスとして無害な水蒸気を排出する特徴を有している。そのため、次世代のエネルギーシステムとして活発な研究・開発が行われている。

【0003】

20

このような燃料電池の中でも、特に、固体酸化物形燃料電池 (Solid Oxide Fuel Cell、以下、SOFC と称す) と呼ばれているものは、他の燃料電池に比べてエネルギー変換効率が高く、水素以外の炭化水素、天然ガス、灯油等も燃料として利用できるという特徴を有している。さらに、電池の構成物質がすべて固体であり、電解液の漏れがなく、773 K 以上で作動させるため、排熱が利用できるなどの特徴も有している。

【0004】

30

従来、SOFC の電解質には、酸化物イオン導電体であるイットリア安定化ジルコニア ($Zr_{0.92}Y_{0.08}O_{1.96}$, Ytria-Stabilized Zirconia、以下、YSZ と称す) が用いられている。また、カソード (正極) には、ランタンストロンチウムマンガンナイト ($La_{1-x}Sr_xMnO_3$) が用いられ、アノード (負極) には、Ni-YSZ サーマット材料が用いられている。なお、高い酸化物イオン電導度を得るために、電池の作動温度は 1073 ~ 1273 K として

【0005】

2006 年度より、新エネルギー・産業技術総合開発機構において、実用化のための耐久試験が行われている。SOFC を普及させるためには、耐久性の向上及び材料コストの低減が要求されており、そのため、作動温度を約 873 ~ 1073 K に低温化させるための研究が精力的に行われている。その方策として、電解質の薄膜化による電気抵抗の低減、及び高イオン電導率を有する電解質材料の探索が検討されている。

【0006】

40

そこで、電解質においては、YSZ よりも酸化物イオン導電度の高い希土類固溶セリア (Rare earth-Doped Ceria、以下、RDC と称す) が注目されており、これまで、シュウ酸塩共沈法による粉体合成、粉体の焼結挙動、熱膨張および力学的特性、電気伝導度等についての検討が行われている (例えば、非特許文献 1 ~ 9 参照)。

【0007】

さらに、RDC を電解質に用いた単セルを作製して、いくつかの正極材料及び負極材料 (Ni-RDC サーマット) について、発電時のオーム抵抗及び過電圧による電圧降下の調査も行われており、全体の電圧降下に占める割合は、正極部で最も大きいことが知られている (例えば、非特許文献 10 ~ 12 参照)。そこで、RDC の電解質に適する正極材料を開発することが必要とされている。

【0008】

【非特許文献 1】K. Higashi, K. Sonoda, H. Ono, S. Sameshima and Y. Hirata, "Synt

50

thesis and Sintering of Rare Earth-doped Ceria Powder by Oxalate Coprecipitation Method", Journal of Materials Research, 14 (3), 957-967 (1999).

【非特許文献 2】Y. Hirata, H. Ono, K. Higashi, K. Sonoda, S. Sameshima and Y. Ikuma, "Microstructure and Electrical Conductivity of Rare Earth - doped Ceria", Ceramic Transactions, 92, 137-148(1999).

【非特許文献 3】S. Sameshima, K. Higashi and Y. Hirata, "Sintering and Grain Growth of Rare Earth - doped Ceria Particles", Journal of Ceramic Processing Research, 1 (1), 27-33 (2000).

【非特許文献 4】S. Sameshima, T. Ichikawa, M. Kawaminami and Y. Hirata, "Thermal and Mechanical Properties of Rare Earth - doped Ceria Ceramics", Materials Chemistry & Physics, 61, 31-35 (1999).

【非特許文献 5】S. Sameshima, H. Ono, K. Higashi, K. Sonoda and Y. Hirata, "Microstructure of Rare Earth - doped Ceria Prepared by Oxalate Coprecipitation Method", Journal of the Ceramic Society of Japan, 108 (11), 985-988 (2000)

【非特許文献 6】S. Sameshima, H. Ono, K. Higashi, K. Sonoda, Y. Hirata and Y. Ikuma, "Electrical Conductivity and Diffusion of Oxygen Ions in Rare Earth-doped Ceria", Journal of the Ceramic Society of Japan, 108 (12), 1060-1066 (2000).

【非特許文献 7】S. Sameshima, M. Kawaminami and Y. Hirata, "Thermal Expansion of Rare-Earth-Doped Ceria Ceramics", Journal of the Ceramic Society of Japan, 110(7), 597-600 (2002).

【非特許文献 8】T. Shimonosono, Y. Hirata, Y. Ehira, S. Sameshima and T. Horita, "Electronic Conductivity Measurement of Gd- and Sm-Doped Ceria Ceramics by Hebb-Wagner Method", Journal of the Ceramic Society of Japan, 112(5), Supplement Edition, S616-S621 (2004).

【非特許文献 9】T. Shimonosono, Y. Hirata, S. Sameshima and T. Horita, "Electronic Conductivity of La-doped Ceria Ceramics", Journal of the American Ceramic Society, 88(8), 2114-2120(2005).

【非特許文献 10】Y. Hirata, S. Yokomine, S. Sameshima, T. Shimonosono, S. Kishi and H. Fukudome, "Electrochemical Properties of Solid Oxide Fuel Cell with Sm-Doped Ceria Electrolyte and Cermet Electrodes", Journal of the Ceramic Society of Japan, 113(9), 597-604 (2005).

【非特許文献 11】Y. Hirata, S. Sameshima and G. Hiramatsu, "Dominant Factors Controlling Electric Power of Solid Oxide Fuel Cell with Rare Earth-Doped Ceria Electrolyte", Proceedings of the 23rd International Japan-Korea Seminar on Ceramics, 2006, pp.93-96.

【非特許文献 12】G. Hiramatsu, Y. Hirata, S. Sameshima, N. Matsunaga, Electrochemical Properties of Perovskite Cathode for Solid Oxide Fuel Cell, Materials Science Forum, 544-545, 985-988(2007).

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

YSZを電解質に用いる場合は、正極材料としてはランタン - マンガン系酸化物 (LaMnO_3) が適している。一方、RDCを電解質に用いる場合は、正極材料としては電解質と化学反応が起こりにくい $\text{Sm}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_3$ (SSC) や $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ (LSCF) がこれまで提案されている。ところが、これらの正極材料では、電子伝導性や酸素との反応性が不十分であり、出力性能が不十分である。

【0010】

本発明は前述の問題点に鑑み、希土類固溶セリアの電解質を用いた固体酸化物形燃料電池において、高性能の正極材料を提供することを目的としている。

【課題を解決するための手段】

10

20

30

40

50

【 0 0 1 1 】

本発明の正極材料は、希土類固溶セリアを電解質とする固体酸化物形燃料電池に用いられる正極材料であって、ルテニウム酸ストロンチウムを含むことを特徴とする。

【 0 0 1 2 】

本発明の固体酸化物形燃料電池は、前記正極材料を有することを特徴とする。

【 発明の効果 】

【 0 0 1 3 】

本発明によれば、ルテニウム酸ストロンチウムを正極材料に含まれており、従来よりも出力性能を向上させるとともに、正極の性能劣化を抑えることができる。また、ルテニウム酸ストロンチウムは、電解質と化学反応が起こりにくく、電子導電性が高く、さらに酸素との反応性が高い特性を有している。

10

【 発明を実施するための最良の形態 】

【 0 0 1 4 】

本発明者は、従来から正極材料として用いられていたSSC ($\text{Sm}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_3$) に電気導電性の高い酸化ルテニウム (RuO_2) を添加したものを正極材料として用いると、3 vol% の H_2O を含む水素を燃料とした場合、 RuO_2 の添加により 1073 K での出力密度は 112 mW/cm^2 から 170 mW/cm^2 に向上することを見いだした。この正極材料を用いると、オーム抵抗は電解質 > 負極 > 正極の順に低下する。また、過電圧による電圧降下はオーム抵抗による電圧降下よりも小さくなり、さらに、負極での過電圧による電圧降下より正極による過電圧による電圧降下の方が小さくなる。すなわち、 RuO_2 が優れた正極特性を有している

20

【 0 0 1 5 】

ところが、 RuO_2 は高温でSSCと反応して、ルテニウム酸ストロンチウム (SrRuO_3) とルテニウム酸コバルト (Co_2RuO_4) とに変化してしまい、長い期間にわたって優れた特性を得つづけることはできない。また、本発明者は、さらに鋭意検討した結果、 Co_2RuO_4 は、希土類固溶セリア (GDC) と高温 (約 1073 K) で化学反応を起こすため、正極材料に用いることはできないが、 SrRuO_3 を正極材料として用いると、高温状態でもGDCと化学反応が起こらないことがわかり、本発明を完成するに至った。

【 0 0 1 6 】

以下、本発明の実施形態について図面を参照しながら説明する。

30

図1は、本実施形態に係る固体酸化物形燃料電池 (SOFC) の構造例を示す概略図である。

このSOFCには、正極1、負極3、及びこれらの間に配置された電解質2が設けられている。正極1は、酸素ガス (O_2) と電流中の電子との反応を起こして酸化物イオン (O^{2-}) を生成する。また、正極1の材料は SrRuO_3 である。電解質2は酸化物イオン導電体からなり、酸化物イオン (O^{2-}) を正極1から負極3へ運搬する機能を有している。また、電解質2の材料はGDC ($\text{Ce}_{0.8}\text{Gd}_{0.2}\text{O}_{1.9}$) である。負極3は、電解質2から受け取った酸化物イオン (O^{2-}) と水素 (H_2) とを反応させて水蒸気 (H_2O) を生成する。また、負極3の材料はNi-GDCサーメット材料である。

【 0 0 1 7 】

40

図2は、正極1上における酸素の還元反応を示す図である。

図2に示すように、酸化物イオンが電解質2へ拡散するまでには異なる2つの過程が存在する。1つ目は、酸素分子が気相拡散で三相界面 (Triple Phase Boundary) に運ばれ、三相界面で酸化物イオンが生成されて電解質2へ拡散する過程である。もう一方の過程は、酸素分子が正極1上に解離吸着し、解離吸着した酸素原子 (O_{ad}) が三相界面に運ばれる。そして、三相界面に運ばれた酸素原子 (O_{ad} (TPB)) は、三相界面で酸化物イオンになり、電解質2へ拡散する過程である。この2つの過程により、酸化物イオンが生成される。

【 0 0 1 8 】

以上のような構造の固体酸化物形燃料電池において、正極材料として、ルテニウム酸ス

50

トロンチウム (SrRuO_3) を用いることにより、従来、正極材料として用いられていた $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ (L S C F) よりも出力性能を向上させることができる。また、 SrRuO_3 は、約 1 0 7 3 K の高温状態であっても G D C からなる電解質との化学反応性も小さいため、出力性能が劣化することを抑えることができる。なお、電解質 2 の厚さをさらに薄くすれば、出力性能はさらに向上する。

【実施例】

【0019】

以下、本発明の正極材料を用いた固体酸化物形燃料電池の製造方法、及び特性評価の実施例について説明する。

【0020】

(固体酸化物形燃料電池の製造方法)

図 3 は、本実施例における SrRuO_3 粉体の作製方法の流れを示す図である。

図 3 に示すように、まず、硝酸ストロンチウム水溶液 (0.2 mol/l) と三塩化ルテニウム水溶液 (0.2 mol/l) とを Sr と Ru とのモル比が 1 : 1 となるように混合した。そして、混合液をアンモニア水 (1 mol/l) に混ぜ、凍結乾燥させた。乾燥後、大気中、1 2 7 3 K で 2 時間仮焼させて、 SrRuO_3 粉体を作製した。

【0021】

図 4 は、本実施例における $\text{Ce}_{0.8}\text{Gd}_{0.2}\text{O}_{1.9}$ (G D C) 粉体の作製方法の流れを示す図である。

図 4 に示すように、硝酸セリウム溶液 (0.2 mol/l) と硝酸ガドリニウム溶液 (0.2 mol/l) とを Ce と Gd とのモル比が 4 : 1 となるように混合した。そして、混合物をシュウ酸溶液 (0.4 mol/l) に混ぜて共沈させた。なお、この時の pH は 0.9 ~ 1.2 であった。次に、共沈した溶液を 3 1 3 K で乾燥させた。乾燥後、大気中、8 7 3 K の温度で 1 時間仮焼させ、8 5 r p m の回転数で 2 4 時間、 - アルミナ製ボールを用いてボールミルで粉碎して $\text{Ce}_{0.8}\text{Gd}_{0.2}\text{O}_{1.9}$ (G D C) 粉体を作製した。

【0022】

図 5 は、本実施例における Ni-GDC 粉体の作製方法の流れを示す図である。

図 5 に示すように、まず、図 4 に示す手順で作製した G D C 粉体を、硝酸ニッケル溶液 (1.4 mol/l) に混合した。この時、G D C と Ni との比が体積比で 7 0 : 3 0 になるようにした。そして、混合液を凍結乾燥させた。乾燥後、大気中、8 7 3 K で 1 時間仮焼させて、Ni-GDC 粉体を作製した。

【0023】

図 6 は、比較例として用いる Co_2RuO_4 粉体の作製方法の流れを示す図である。

図 6 に示すように、まず、硝酸コバルト水溶液 (0.2 mol/l) と三塩化ルテニウム水溶液 (0.2 mol/l) とを Co と Ru とのモル比が 2 : 1 となるように混合した。そして、混合液をアンモニア水 (1 mol/l) に混ぜ、凍結乾燥させた。乾燥後、大気中、1 2 7 3 K で 1 時間仮焼させて、 Co_2RuO_4 粉体を作製した。

【0024】

図 7 は、比較例として用いる $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ (L S C F) 粉体の作製方法の流れを示す図である。

図 7 に示すように、硝酸ランタン水溶液 (0.2 mol/l) と、硝酸ストロンチウム水溶液 (0.2 mol/l) と、硝酸コバルト水溶液 (0.2 mol/l) と、硝酸鉄水溶液 (0.2 mol/l) とを La、Sr、Co、及び Fe のモル比が 6 : 4 : 2 : 8 になるように混合した。そして、混合液に炭酸アンモニウムを加え、凍結乾燥させた。乾燥後、大気中、1 2 7 3 K で 1 時間仮焼させて、L S C F 粉体を作製した。

【0025】

図 8 は、本実施例における固体酸化物形燃料電池に用いる電解質の作製手順を示す図である。

図 8 に示すように、まず、図 4 に示した手順で作製した G D C 粉体を一軸方向に 4 9 MPa の圧力で成形し、その後、2 9 4 MPa の圧力で等方加圧を行った。そして、大気中、1 7

10

20

30

40

50

733 Kの温度で4時間焼結を行った。次に、焼結したGDCを所定の形状に研磨して、固体酸化物形燃料電池に用いる電解質を作製した。

【0026】

図9は、固体酸化物形燃料電池に用いる電極の作製手順を示す図である。

図9に示すように、図3に示した手順で製造したSrRuO₃粉体を有機溶媒（体積比で、エタノール：エチレングリコール = 9：1）に加え、固体量が15 vol%のペーストを作製した。次に、固体酸化物形燃料電池の所定の位置に250 μmのメッシュを張り、その上に前記ペーストを塗布した。そして、塗布したペーストを、大気中、1273 Kで1時間加熱して、電極を作製した。

【0027】

また、同様の手順によって、図5～7に示したそれぞれの手順で製造したNi-GDC粉体、Co₂RuO₄粉体、及びLSCF粉体についても同様の手順で電極を作製した。この時、Ni-GDCについては、ペーストを、大気中、1473 Kで1時間加熱した。さらに、比較例として、ITO（Indium Tin Oxide）粉体（重量比はIn₂O₃：SnO₂ = 9：1）についても同様の手順で電極を作製した。なお、ITOの場合は、大気中、1423 Kで1時間加熱した。

【0028】

（性能評価）

以上のような手順で作製した電解質、及び電極を用いて電池試験を行った。測定方法としては、図10に示すように、正極（C）側及び負極（A）側にそれぞれ参照極（RC、RA）を設け、電極電位の相対値を測定して、出力密度、正極のオーム抵抗及び過電圧による電圧降下を算出した。この時、電解質には、前述した手順で作製したGDCを用い、負極にはNi-GDCを用いた。また、正極については、SrRuO₃、Co₂RuO₄、LSCF、及びITOの4種類について測定を行った。

【0029】

図11（a）は、873 K及び1073 Kにおける電流密度に対する端子電圧（出力電圧）の関係を示す図であり、図11（b）は、873 K及び1073 Kにおける電流密度に対する出力密度（出力電力）の関係を示す図である。

図11（a）に示すように、本実施例で作製したSrRuO₃を正極に用いた場合は、端子電圧が最も大きいことがわかる。

【0030】

また、図11（b）に示すように、本実施例で作製したSrRuO₃を正極に用いた場合は、1073 Kにおける最大出力密度は32.9 mW/cm²であり、873 Kにおける最大出力密度は3.6 mW/cm²であった。一方、LSCFを正極に用いた場合は、1073 Kにおける最大出力密度は11.3 mW/cm²であり、873 Kにおける最大出力密度は1.2 mW/cm²であった。すなわち、従来と比較して、本実施例のSrRuO₃を正極材料として用いると、出力性能が約3倍向上したことがわかる。

【0031】

図12及び図13は、それぞれ1073 K、873 Kにおける電流密度に対する電圧降下の関係を示す図である。図12及び図13において、「Ohmic（オーム抵抗）」は、オーム抵抗による電圧降下を示し、「Overpotencial（過電圧）」は、過電圧による電圧降下を示す。また、「Cathode - reference electrode（正極 - 参照極）」は、その合計値を示す。

図12に示すように、1073 Kでの正極のオーム抵抗（Ohmic）及び過電圧（Overpotential）による電圧降下は、ITO > LSCF > SrRuO₃ > Co₂RuO₄の順に小さくなることわかる。また、図13に示すように、873 Kでの正極のオーム抵抗（Ohmic）及び過電圧（Overpotential）による電圧降下は、ITO > LSCF > SrRuO₃ > Co₂RuO₄の順に小さくなることわかる。すなわち、従来と比較して、本実施例のSrRuO₃を正極材料として用いると、オーム抵抗及び過電圧による電圧降下が小さくなり、出力性能が向上したことがわかる。

10

20

30

40

50

【 0 0 3 2 】

(反 応 性 試 験)

次に、電解質であるGDCとの化学反応性についての実験を行った。

図14は、GDC粉体と正極材料の粉体とを混合した試料を作製する手順を示す図である。

図14に示すように、まず、図4に示した手順で作製したGDC粉体と、図3に示した手順で作製したSrRuO₃粉体とを体積比が1：1となるように混合した。そして、大気中、1073Kで10時間加熱を行って試料を作製した。同様に、比較例として図4に示した手順で作製したGDC粉体と、図6に示した手順で作製したCo₂RuO₄粉体との混合試料も同様の手順で作製した。

10

【 0 0 3 3 】

図15は、GDC粉体とSrRuO₃粉体とを混合した試料の加熱前及び加熱後のX線回折による定性分析の結果を示す図である。

図15に示すように、加熱前と加熱後とを比較して、GDC及びSrRuO₃粉体のピーク比に差はあるものの、新たな化合物の生成は確認できなかった。

【 0 0 3 4 】

図16は、GDC粉体とCo₂RuO₄粉体とを混合した試料の加熱前及び加熱後のX線回折による定性分析の結果を示す図である。

図16に示すように、加熱後においては、新たに酸化コバルト (Co₃O₄) 及びGd₂Ru₂O₇が生成されていることがわかる。これは、高温になると、Co₂RuO₄と酸素とが反応し、酸化ルテニウム (RuO₂) 及び酸化コバルト (Co₃O₄) に分解され、さらに、この分解によって生成された酸化ルテニウムがGDCと反応し、新たにGd₂Ru₂O₇が生成されるためである。

20

【 0 0 3 5 】

以上のように本実施例によれば、正極材料としてルテニウム酸ストロンチウム (SrRuO₃) を用いることにより、従来、正極材料として用いられていたLa_{0.6}Sr_{0.4}Co_{0.2}Fe_{0.8}O₃ (LSCF) よりも出力性能を約3倍向上させることができる。また、SrRuO₃は、約1073Kの高温状態であってもGDCからなる電解質との化学反応性も小さいため、出力性能が劣化することを抑えることができる。

【 図面の簡単な説明 】

30

【 0 0 3 6 】

【図1】本発明の実施形態に係る固体酸化物形燃料電池 (SOFC) の構造例を示す概略図である。

【図2】正極上における酸素の還元反応を示す図である。

【図3】本発明の実施例におけるSrRuO₃粉体の作製方法の流れを示す図である。

【図4】本発明の実施例におけるCe_{0.8}Gd_{0.2}O_{1.9} (GDC) 粉体の作製方法の流れを示す図である。

【図5】本発明の実施例におけるNi-GDC粉体の作製方法の流れを示す図である。

【図6】比較例として用いるCo₂RuO₄粉体の作製方法の流れを示す図である。

【図7】比較例として用いるLa_{0.6}Sr_{0.4}Co_{0.2}Fe_{0.8}O₃ (LSCF) 粉体の作製方法の流れを示す図である。

40

【図8】本発明の実施例における固体酸化物形燃料電池に用いる電解質の作製手順を示す図である。

【図9】固体酸化物形燃料電池に用いる電極の作製手順を示す図である。

【図10】本発明の実施例における電極電位の相対値の測定方法を示す図である。

【図11】873K及び1073Kにおける電流密度に対する端子電圧及び出力密度の関係を示す図である。

【図12】1073Kにおける電流密度に対する電圧降下の関係を示す図である。

【図13】873Kにおける電流密度に対する電圧降下の関係を示す図である。

【図14】GDC粉体と正極材料の粉体とを混合した試料を作製する手順を示す図である

50

。

【図15】GDC粉体とSrRuO₃粉体とを混合した試料の加熱前及び加熱後のX線回折による定性分析の結果を示す図である。

【図16】GDC粉体とCo₂RuO₄粉体とを混合した試料の加熱前及び加熱後のX線回折による定性分析の結果を示す図である。

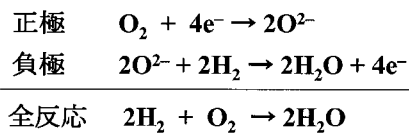
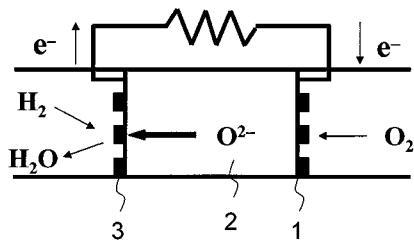
【符号の説明】

【0037】

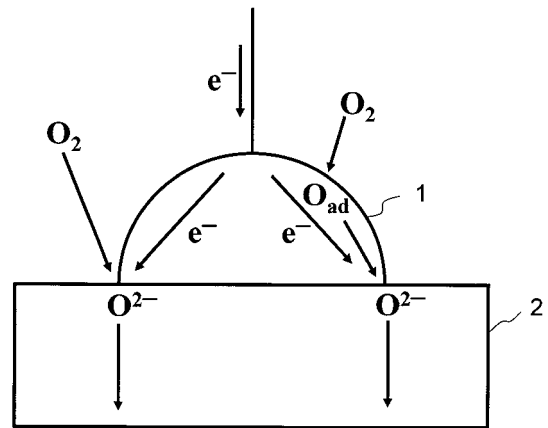
- 1 正極
- 2 電解質
- 3 負極

10

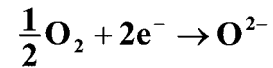
【図1】



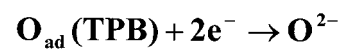
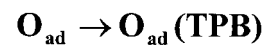
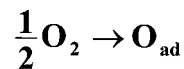
【図2】



気相拡散による酸素の供給

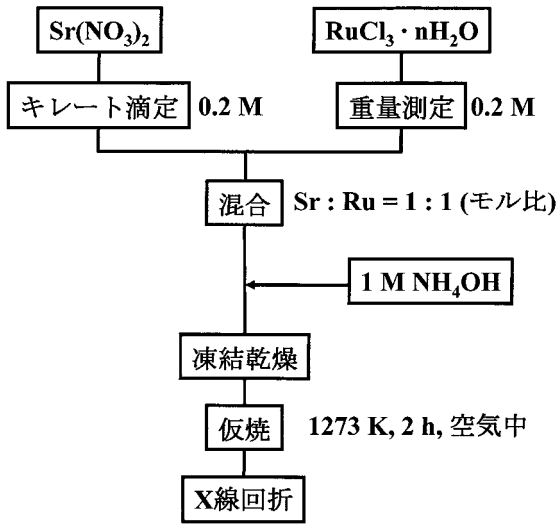


表面拡散による酸素の供給



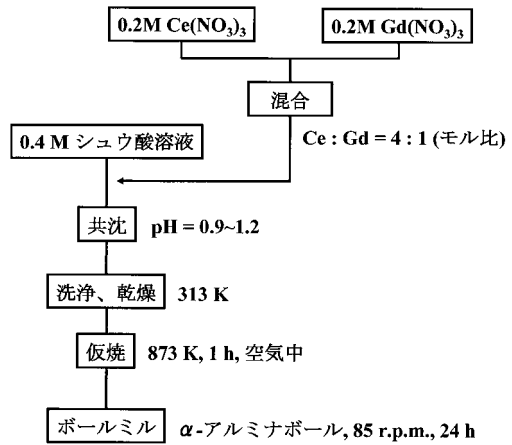
【 図 3 】

SrRuO₃粉体の調製



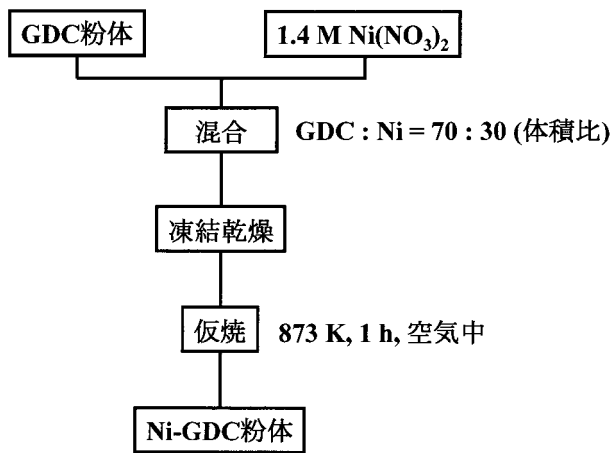
【 図 4 】

Ce_{0.8}Gd_{0.2}O_{1.9} (GDC)粉体の調製



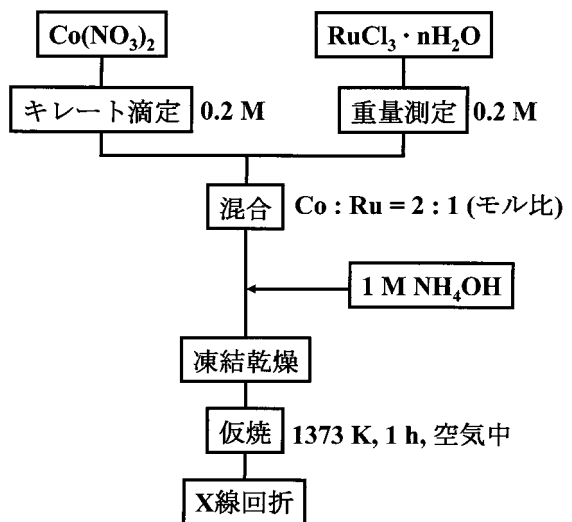
【 図 5 】

Ni-GDC粉体の調製

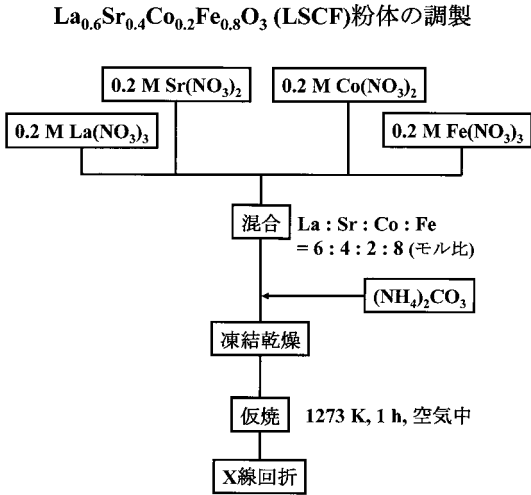


【 図 6 】

Co₂RuO₄粉体の調製

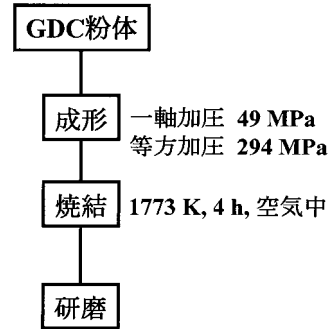


【 図 7 】



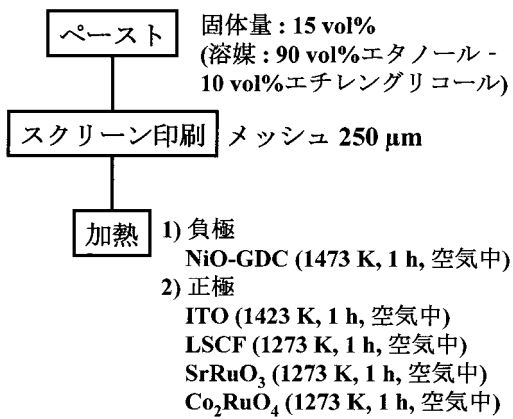
【 図 8 】

電解質作製

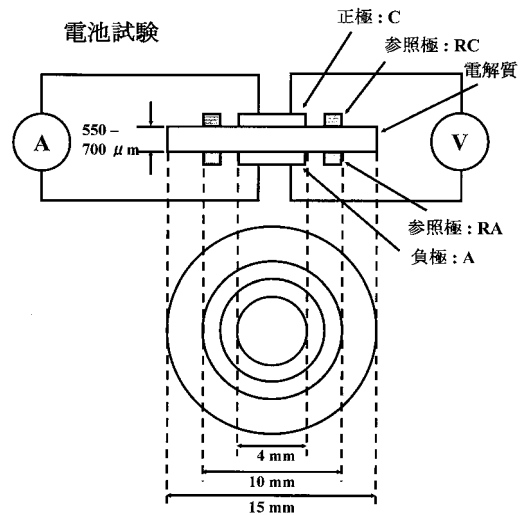


【 図 9 】

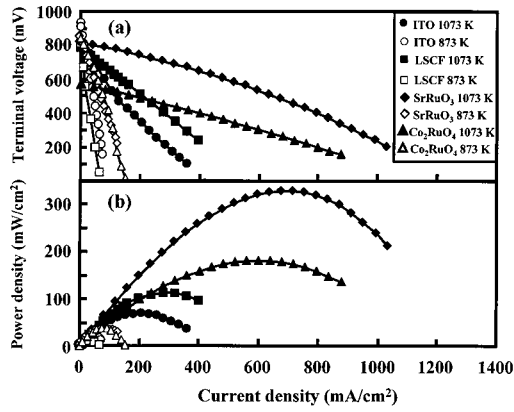
電極の形成



【 図 10 】

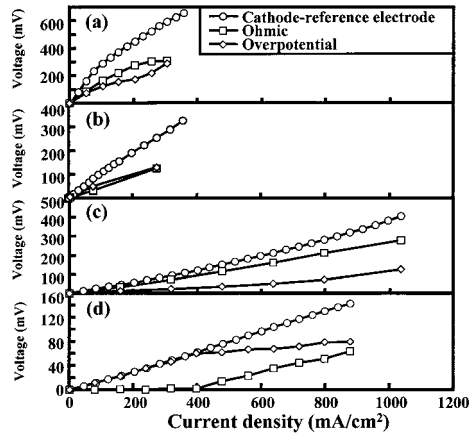


【 図 1 1 】



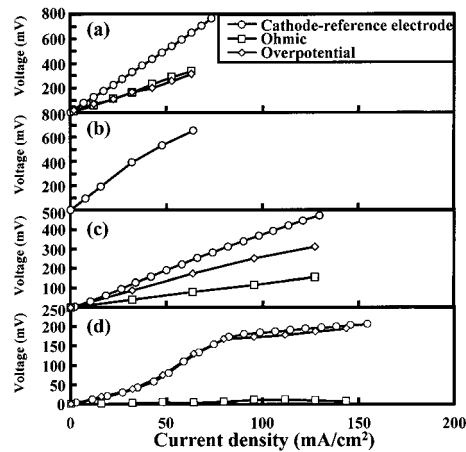
873及び1073 Kでの(a)端子電圧と(b)出力密度

【 図 1 2 】



(a) ITO / GDC / Ni-GDC, (b) LSCF / GDC / Ni-GDC, (c) SrRuO₃ / GDC / Ni-GDC, (d) Co₂RuO₄ / GDC / Ni-GDC系電池の正極(C) - 参照極(RC)間の1073 Kでの電圧降下

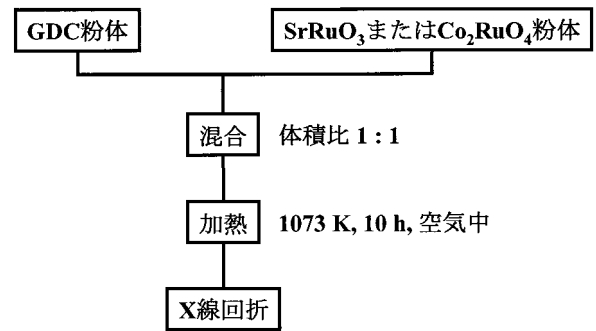
【 図 1 3 】



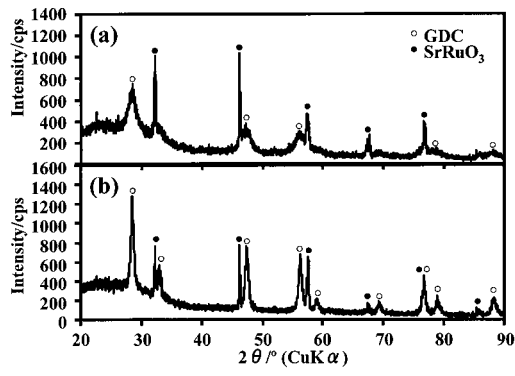
(a) ITO / GDC / Ni-GDC, (b) LSCF / GDC / Ni-GDC, (c) SrRuO₃ / GDC / Ni-GDC, (d) Co₂RuO₄ / GDC / Ni-GDC系電池の正極(C) - 参照極(RC)間の873 Kでの電圧降下

【 図 1 4 】

反応性試験

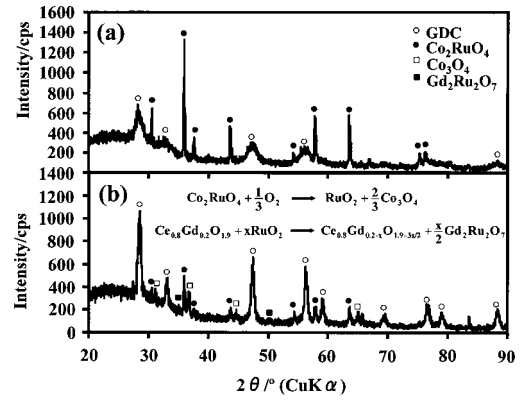


【 図 1 5 】



(a)加熱前と(b)10時間、1073 Kで加熱後のGDC / SrRuO₃混合粉体のX線回折パターン

【 図 1 6 】



(a)加熱前と(b)10時間、1073 Kでの加熱後のGDC / Co₂RuO₄混合粉体のX線回折パターン

フロントページの続き

(72)発明者 下之蘭 太郎

鹿児島県鹿児島市郡元一丁目2番24号 国立大学法人 鹿児島大学内

Fターム(参考) 5H018 AA06 AS03 BB01 BB08 BB11 BB12 BB16 EE11 EE13

5H026 AA06 EE13