 <b>MLF Experimental Report</b>	提出日 Date of Report
課題番号 Project No. 2010AM0027 実験課題名 Title of experiment 高温その場観察による燃料電池用水素伝導材料中の水素分布の特定 実験責任者名 Name of principal investigator 井川直樹 所属 Affiliation 日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門	装置責任者 Name of responsible person 石垣 徹 装置名 Name of Instrument/(BL No.) 材料構造解析装置(BL20) 実施日 Date of Experiment 2010年12月1日

試料、実験方法、利用の結果得られた主なデータ、考察、結論等を、記述して下さい。(適宜、図表添付のこと)  
 Please report your samples, experimental method and results, discussion and conclusions. Please add figures and tables for better explanation.

1. 試料 Name of sample(s) and chemical formula, or compositions including physical form. 燃料電池用水素伝導固体電解質・ $\text{BaSn}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{O}_{2.75}$ および水素(H)もしくは重水素(D)含有する $\text{BaCe}_{0.4}\text{Zr}_{0.4}\text{Sc}_{0.2}\text{O}_3$ 化合物
--

2. 実験方法及び結果 (実験がうまくいかなかった場合、その理由を記述してください。) Experimental method and results. If you failed to conduct experiment as planned, please describe reasons. 試料を直径6mm×高さ40mmのバナジウム製試料キャピラリー中に密封後、高温装置にセットした。この高温装置を材料構造解析装置にセットし、室温から590 Kの温度範囲で高温粉末回折実験を行った。 中性子回折実験は、材料構造解析装置の背面バンク検出器を用いて実施し、 $0.18 \text{ \AA} \sim 5 \text{ \AA}$ の原子間距離 $d$ 範囲の回折データを取得した。得られた回折データについて、解析プログラム Z-Rietveld を用いてリートベルト法による結晶構造解析を行い、格子定数変化や原子変位パラメータ変化などの結晶構造情報を得た。 図1に解析の一例として、室温における $\text{BaSn}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{O}_{2.75}$ のリートベルト解析結果を示す。本解析の信頼度因子 $R_{\text{wp}}$ 、 $R_e$ 、 $R_B$ および $R_f$ は各々、3.9%、2.6%、5.7% および 4.4% であり、ほぼ満足できる結果と考えられる。本 $\text{BaSn}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{O}_{2.75}$ 試料は、空間群が $Pm\bar{3}m$ であり、室温における格子定数は、 $a = 4.16657(2) \text{ \AA}$ と求めることができた。Ba、Oの各元素は各々 $1a$ 、 $3c$ サイトを占有し、また、SnとInはランダムに $1b$ サイトを占める。Oの占有率および等方性原子変位パラメータは各々、 $g_0 = 0.905(3)$ 、 $B_0 = 1.12(4) \text{ \AA}^2$ であった。本試料の格子定数 $a$ および酸素の等方性原子変位パラメータ $B_0$ の温度依存性を図2に示す。 $a$ および $B_0$ ともに温度に対してほぼ一様に増加する。一方、 $g_0$ は温度に寄らずほぼ一定であることが判った。この大きな $B_0$ およびそれが
--

温度共に増大することから、本結晶中では酸素の状態が水素の取り込みやその伝導に参与していることが推定できた。

本課題で水素伝導体中の基礎的な結晶情報の温度依存性を得ることができた。今後は、水素ガスフロー型高温装置での実施が可能となり次第、これらの基礎情報を基に水素のサイト情報や伝導経路に関する基礎物性を明らかにしていく予定である。

表 1 リートベルト解析で求められた室温におけるBaSn<sub>0.5</sub>In<sub>0.5</sub>O<sub>2.75</sub>の結晶構造パラメータ値

Atom	Site	<i>g</i>	<i>x</i>	<i>y</i>	<i>z</i>	<i>B</i> (Å <sup>2</sup> )
Ba	1 <i>a</i>	1	0	0	0	0.39(4)
Sn/In	1 <i>b</i>	1	½	½	½	0.18(4)
O	3 <i>c</i>	0.905(3)	½	½	0	1.12(4)

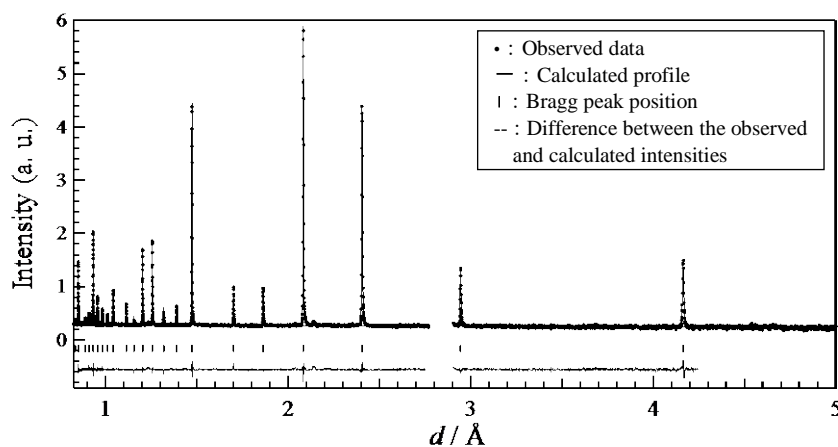


図 1 室温におけるBaSn<sub>0.5</sub>In<sub>0.5</sub>O<sub>2.75</sub>のリートベルト解析結果

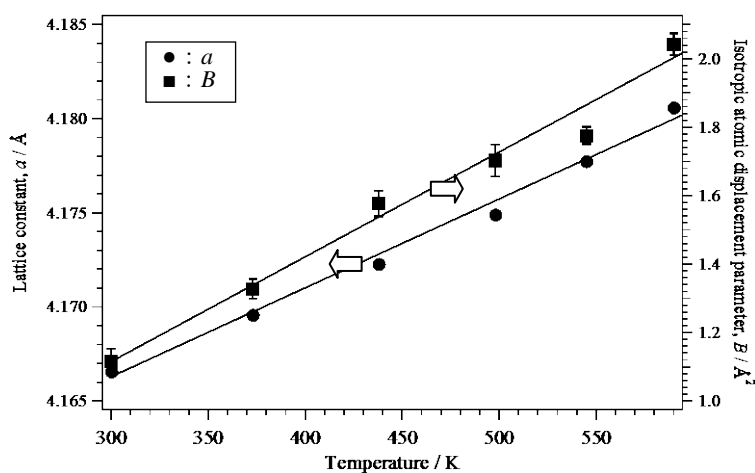


図 2 BaSn<sub>0.5</sub>In<sub>0.5</sub>O<sub>2.75</sub>における格子定数および酸素の等方性原子変位パラメータの温度依存性