

D09 鉄系層状ペロブスカイト $\text{Sr}_3\text{Fe}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ へのプロトン導入とその電気化学特性

(名工大院工) ○八木祐太郎・籠宮功・柿本健一

E-mail: kagomiya@nitech.ac.jp

【緒言】 近年のエネルギー問題からプロトン導電性セラミックスの応用が注目されている。熱効率の良い 100 - 600 °C の中温域で作動するプロトン導電体の報告例は少ないため、本研究ではこの中温域で高い性能を有する新規プロトン導電性セラミックスの開発することを目指す。我々は、これまでに、80 °C の低温域にて、層状ペロブスカイト $\text{Sr}_3\text{Fe}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ 内へプロトンが導入できることを見出している^[1]。このことから、この系が低温-中温域で高いプロトン導電性を示すことが期待できる。そこで、 $\text{Sr}_3\text{Fe}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ において、より多くのプロトンを導入できる条件を検討し、その電気化学特性への影響を評価した。

【実験方法】 有機錯体重合法 (Pechini 法) により、 $\text{Sr}_3\text{Fe}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ のか焼粉末を作製した。得られたか焼粉末にプロトン欠陥を導入するため、80 °C 多湿雰囲気下に 9 days 静置した。また、プロトン欠陥の導入されていない試料を作製するため、か焼粉末を窒素雰囲気下 1000 °C × 1 h の条件でアニールした。それぞれの粉末をパルス通電焼結法にて焼結した。得られた試料について赤外吸収分光法によりプロトン導入の有無を評価した。これらの試料について、電気化学交流インピーダンス測定を行い、プロトン導入が導電率に与える効果を評価した。

【結果と考察】 それぞれの試料の赤外吸収スペクトルを Fig. 1 に示した。多湿雰囲気下に静置した試料では 1400 cm^{-1} 付近に強い赤外吸収が見受けられる。他のペロブスカイト化合物によれば、1400 cm^{-1} 付近の吸収は O-H 結合の wagging 振動に起因すると報告されている^[2]。したがってプロトンが導入されたことで $\text{Sr}_3\text{Fe}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ でも O-H 結合の wagging 振動が生じたことを示唆する。それぞれの試料の窒素雰囲気下 150 °C にて測定したナイキストプロットを Fig. 2 に示す。多湿雰囲気下に静置した試料で抵抗値が小さい。これはプロトン欠陥が導入され、鉄の価数が 3+のみから 2+との混合原子価に変化したことで、導電性が向上したと考えている。

[1] Y. Yagi, I. Kagomiya, K. Kakimoto, "Intercalation of Proton Defects in Layered Perovskite $\text{Sr}_3\text{Fe}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ and its Effects on the Electrical Properties"; presented at 8th International Conference on Electroceramics (Nagoya, Japan, May 2017).

[2] M. Karlsson et al., *Solid State Ionics* (2005) **176** (39) 2971-2974.

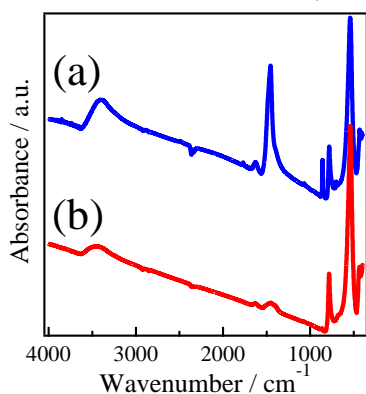


Fig. 1 Absorbance spectrum of the samples sintered from the calcination powders annealed (a) under moist atmosphere and (b) in flow of N_2 (g).

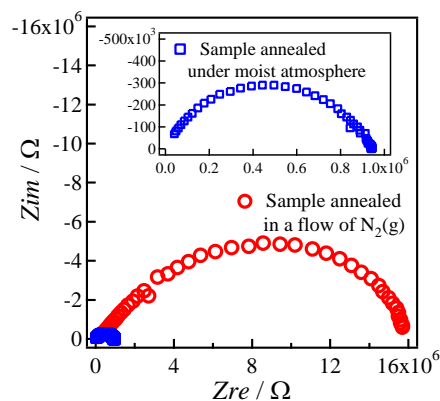


Fig. 2 Nyquist plots of each sample measured at 150 °C under N_2 atmosphere