 MLF Experimental Report	提出日 Date of Report 2010/2/10
課題番号 Project No. 2008P0003 実験課題名 Title of experiment 燃料電池用水素伝導固体電解質材料中の水素サイトの特定 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 09/10/13

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・ $\text{BaSn}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{O}_{2.75}$ および本材料に水素(H)もしくは重水素(D)を含有させた化合物

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容器中に密封後、材料構造解析装置にセットし、室温にて粉末回折実験を行った。実験は、材料構造解析装置の背面バンク検出器を利用し、 $0.18 \text{ \AA} \sim 2.5 \text{ \AA}$ の原子間距離 d 範囲のデータを取得した。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、リートベルト法にて結晶構造解析を行った。 図 1 に解析結果の例として、水素(H)を含有させた $\text{BaSn}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{O}_{2.75}$ のリートベルト解析結果を示す。本解析では、予め測定したX線回折などでは見られなかった微小な回折線が観測された。これらの回折線の同定は今後実施する予定である。水素含有試料における解析の信頼度因子 R_{wp} 、 R_e 、 R_B および R_F は各々、4.2 %、1.95 %、4.5 % および 1.0 % であり、多少高めである。これは上述の不純物相と低 d 範囲での回折強度の統計不足が原因と思われるが、十分な統計が得られるとさらに精密な解析が可能となるとの感触を得ている。 水素を含有させる前の $\text{BaSn}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{O}_{2.75}$ 試料は、空間群が $Pm-3m$ であり、室温における格子定数は、 $a = 4.1657 \text{ \AA}$ と求めることができた。また、Ba、Sn/In、O の各元素は各々 $1a$ 、 $1b$ 、 $3c$ サイトを占有する。一方、水素を含有させた試料の基本構造は水素未含有のそれと変わらないが、格子定数は $a = 4.1973 \text{ \AA}$ となり、水素を

2. 実験方法及び結果(つづき) Experimental method and results (continued)

取り込むことによって、凡そ0.8%、格子定数が増加することが明らかとなった。また、水素未含有試料では酸素のサイト占有率は $g = 0.95$ であるが、水素含有試料では、ほぼ1.0へと変化した。

水素を含有させる前の試料と含有させた試料との比較により、水素は本結晶中の $48n$ サイトを占有することが判った。また、水素のサイト占有率は0.0374(8)との結果を得た。なお、現在までに本試料中の水素の結晶情報の概略を得ることができたが、さらに詳細な結晶構造解析は今後検討する予定である。

本課題で水素伝導体中の室温における水素の基礎的な結晶情報を得ることができた。今後は、これらの基礎情報を基に、水素が活発に活動する高温での回折実験を行い、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。

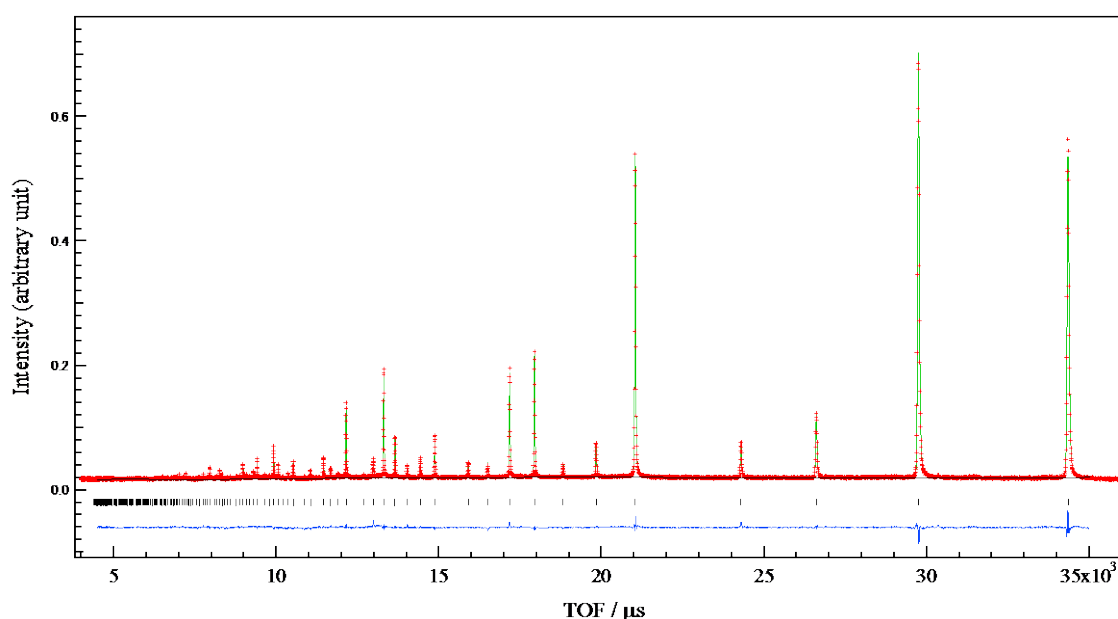


図 水素含有 $\text{BaSn}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{O}_{2.75}$ のリートベルト解析結果