The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Microstructure Control and Characterization of Porous Ceramic Materials Prepared by Powder Processing Methods
Author(s)	Xi, Xiuan
Citation	大阪大学, 2015, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/52120
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

Form 3

Abstract of Thesis

Name (Xiuan Xi)	
Title	Microstructure Control and Characterization of Porous Ceramic Materials Prepared by Powder Processing Methods (粉体プロセスにより作製された多孔質セラミックスの微細構造制御と特性評価に関する研究)

Abstract of Thesis

Porous ceramics offer nowadays many applications as end products in several technological processes. For each specific application, microstructure control of porous ceramics is very important. Especially, it is necessary to develop the economic and environmentally benign preparation methods which can efficiently produce porous ceramics with controllable microstructure properties. In this regard, porous ceramics for thermal insulation material and solid oxide fuel cell (SOFC) were selected in this study, and their promising production methods were developed. In chapter 1, the background of this study and its objectives were firstly explained. Two parts were included, in part 1, microstructure control of building thermal insulation materials from polishing porcelain tile residue (PPR) was studied, as this route allows us much easier fabrication by foaming during firing. And the properties of such porous ceramics have confirmed that this method is promising for achieving high-quality building thermal insulation materials. Therefore, in chapter 2 and 3, a fundamental research on the foaming mechanism of PPR and its influential factors during firing was carried out to better control the microstructure and properties of porous ceramics from PPR. In chapter 2, the foaming mechanism of PPR during firing was firstly clarified. It was found that the PPR foaming is caused by the corrosion and oxidation reaction of SiC particles in the porcelain matrix, and that this reaction is accelerated by the presence of magnesium oxychloride cement which serves as an alkaline molten salt at high temperature. In chapter 3, the effect of SiC particle size and phase composition on microstructure and foaming properties was further clarified. It was also found that the size of SiC particle has a significant influence on the number, size, and interconnectivity of the pores formed in the resulting product, and that this effect becomes more distinct when the SiC particle size is reduced. In addition, the microstructure of fired porcelain body was also significantly influenced by its phase compositions. Formation of crystalline silicates had a remarkable effect in terms of limiting the expansion of pores during firing. This is important information for the careful control of phase composition to achieve desirable microstructure properties for building ceramics with high thermal insulation performance.

In part 2, the microstructure control of SOFC anode from homogeneous NiO/YSZ nanocomposite particles was studied, as this method is better tool for making good porous microstructure for high performance SOFC. Therefore, in chapter 4, a novel co-precipitation method to synthesize homogeneous NiO/YSZ nanocomposite particles was proposed. The interaction of anionic Zr carbonate complex with cationic Ni and Y ions was applied to achieve its uniform sedimentation. It was found that homogeneous NiO/YSZ nanocomposite particles were successfully synthesized at a mild condition. Furthermore, the resultant anode had a uniform porous structure consisting of fine grains even after the sintering at 1350 ^{o}C, and consequently, the anode exhibited quite low polarization resistance. In chapter 5, to further improve its electrochemical performance by the novel co-precipitation method, the effect of NiO/YSZ nanocomposite particle composition on the microstructures and electrochemical performance of the resultant Ni/YSZ anodes was also investigated in detail. It was found that a Ni content of 40% by volume produces the finest and most uniformly porous anode structure with the lowest polarization resistance of 0.18 $\Omega\cdot cm^2$ at 800 ^{o}C in a 97% H_2 + 3% H_2O atmosphere. The properties of the anode made clear that this method is promising for synthesizing Ni-YSZ nanocomposite particles for better SOFC performance. Finally, in chapter 6, the conclusions obtained throughout this study were summarized.

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（ 奚 修安 ）			
論文審査担当者		(職)	氏　名
	主 査	教授	内藤　牧男
	副 査	教授	田中　敏宏
	副 査	教授	藤原　康文

論文審査の結果の要旨

多孔質セラミックスは、セラミックスの持つ多様な特性に加えてその気孔構造を制御することにより、軽量構造材料、断熱材料から各種フィルター、電極材料に至るまで幅広い分野に応用されている。本研究では、多孔質セラミックスの微細構造制御技術の開発を目的として、粉体を用いた気孔形成過程の異なる二つの製造方法を取り上げている。そして、多孔質セラミックスの微細構造に及ぼす諸因子の影響を検討するとともに、得られた材料の特性評価を行い、微細構造との関係を考察している。本研究により得られた主な成果は、次の通りである。

1) 陶磁器タイルの生産において廃棄される研磨残渣から多孔質セラミックス断熱材料を製造するリサイクルプロセスに着目し、研磨材に含まれる炭化ケイ素粉体とオキシ塩化マグネシウムセメント(MOC)粉体が、焼結体中の気孔形成に及ぼす影響を検討している。陶磁器タイル粉体と炭化ケイ素粉体、MOC粉体を混合後、成形、焼成するモデル実験により多孔質焼結体を作製し、その特性を評価した結果、炭化ケイ素粉体とMOC粉体を陶磁器タイル粉体に混合した場合には、それぞれ一種類のみを混合した場合に比べて、高気孔率の焼結体が得られることを見出している。さらに、MOC粉体の含有率が高いほど焼結体中の気孔径が大きくなることを見出している。
2) 上記のプロセスにおける気孔形成は、焼成時に炭化ケイ素粒子表面の酸化物被膜が溶融塩と反応後、露出した炭化ケイ素と酸素の反応により炭酸ガスが発生するためであると考察している。さらに、焼成過程でMOCの分解により得られる酸化マグネシウムが、生成する溶融塩の粘性を下げるために、MOC含有率の増加とともに気孔径も増大すると考察している。
3) 複合粒子を原料として用いる多孔質セラミックスの作製方法を検討している。固体酸化物形燃料電池の多孔質燃料極に着目し、酸化ニッケルとイットリア安定化ジルコニア（YSZ）から構成される均質構造の複合微粒子の作製を、ジルコニウム錯体陰イオンを利用する共沈法により試みている。その結果、ジルコニウム錯体陰イオンが、イットリウム陽イオン、並びにニッケル陽イオンと同時に沈殿するため、目的組成の複合粒子が収率ほぼ100％の状態で得られることを見出している。また、複合粒子をYSZの固体電解質上に成形、焼成することにより燃料極を作製し、水素還元後にその微細構造を観察している。その結果、YSZ粒子の酸化ニッケル粒子への複合化により焼成時の酸化ニッケルの粒成長が抑制され、かつ酸化ニッケルの水素によるニッケルへの還元により、YSZとニッケルが均質に分散した多孔質構造が形成されると考察している。
4) 上記のプロセスを用いることにより、燃料極中のニッケルの体積割合が30～70vol%の範囲で、均質な多孔質構造の燃料極が作製できることを示している。またこの燃料極を組み込んだ単セルを作製し発電試験を行ったところ、ニッケルの体積割合が40vol%において最大の発電性能が得られることを見出している。その原因は、燃料極中のニッケルとYSZの界面の面積が、ニッケルが40vol%の場合に最大になるためであると考察している。

以上のように、本論文では、粉体プロセスを用いた二つの多孔質セラミックス製造方法における微細構造制御の指針が見出されている。これらは、今後の多孔質セラミックスの開発に有望な知見を与えるものであり、材料工学の発展に寄与するところが大きい。よって本論文は、博士論文として価値あるものと認める。