

Institut für Physik

Fachgebiet: Angewandte Physik

Betreuer: Prof. Dr. Ronny Brandenburg

Jan Wallis

(e-mail: jan.wallis@inp-greifswald.de)

Structural and Electrochemical Investigation of BaZr_{0.7}Ce_{0.2}Y_{0.1}O_{3-δ} Proton Conducting Ceramics synthesized by Spark Plasma Sintering

Barium zirconate-based proton conducting materials are promising candidates for solid electrolytes in fuel cells, electrolyzers, hydrogen pumps and hydrogen sensors. As such, they could pave the way for the future hydrogen-based economy to reduce our dependence on fossil fuels and the associated environmental impact. In this thesis, BaZr_{0.7}Ce_{0.2}Y_{0.1}O_{3-δ} (BZCY72) was synthesized by spark plasma sintering (SPS). In an extensive study, SPS process parameters and their influence on the material properties were systematically investigated to provide a better understanding of the sintering mechanisms occurring during SPS. A total conductivity of 1.25 mS/cm was achieved at 600 °C. Additionally, the proton diffusion and their confinement within the crystal structure were investigated by neutron spectroscopy. The experiments extend the modern understanding of the protonic diffusion in perovskite ceramics. For the first time, a mass-selective neutron spectroscopy was used to determine the proton concentration within the crystal lattice. As an outlook, a proof of concept with an SPS process for co-sintering of membrane-electrode-assemblies with a possible application in protonic ceramic electrolyzers is given.

Protonenleitende Materialien auf der Basis von Bariumzirkonat sind vielversprechende Kandidaten für die Anwendung als Elektrolyt in Brennstoffzellen, Elektrolyseuren, Wasserstoffpumpen und Sensoren. Diese gelten als wesentliche Meilensteine einer zukünftigen umweltfreundlichen Wasserstoffwirtschaft. In dieser Arbeit wurde der Protonenleiter BaZr_{0.7}Ce_{0.2}Y_{0.1}O_{3-δ} (BZCY72) mittels des Spark Plasma Sinterns (SPS) hergestellt. In einer umfangreichen Studie wurden die SPS Prozessparameter und deren Auswirkungen auf die Materialeigenschaften systematisch untersucht um einen Beitrag zum besseren Verständnis der dem Sinterprozess zugrundeliegenden Mechanismen zu leisten. Die durch Optimierung der Prozessparameter erzielte Gesamtleitfähigkeit von BZCY72 betrug 1.25 · mS/cm bei 600 °C. Zusätzlich wurden die Diffusion und Einbindungen der Protonen im Kristallgitter durch Neutronen Spektroskopie untersucht. Die Ergebnisse erweitern das bestehende Modell zur Protonenleitung in Perowskitmaterialien. Eine massenselektive Neutronenspektroskopie wurde dabei erstmalig zur Bestimmung der Protonenkonzentration im Kristallgitter eingesetzt. Als Ausblick liegt ein erstes Proof-of-Concept für einen Co-Sinterprozess von Membran-Elektroden-Einheiten vor, z.B. für zukünftige Elektrolyseure auf der Basis von protonenleitenden Keramiken.