

## 2. 実用性向上のための技術開発

### 2. 1 運用性向上のための起動停止技術開発

#### 2. 1. 1 運用性向上のための起動停止技術開発（高温円筒縦縞型）

##### (1) 事業概要

SOFC は高い発電効率に加えシンプルな発電システムを構築することができ、高効率な分散型電源として期待されている。

これまで SOFC は、起動に大きなエネルギーが必要であることから起動停止や大きな負荷変動を伴わないベースロード負荷に対する運転に好適とされ、定負荷連続運転における性能評価を中心に開発を行ってきた。前事業において、発電効率 49%(HHV)、連続運転 5000 時間で電位低下率 1%/1000H 程度の耐久性能を実証した。実用化に際しては、夜間や週毎の定休日の低負荷運転やメンテナンスに伴う計画停止があり、耐起動停止特性が必要である。前事業で起動停止予備試験を行ったが、劣化が大きいことが確認され、起動停止特性の改善が必要と考えられた。

前事業での課題を解決するべく、本事業では実用上発生する起動停止モードとして冷起動停止（Cold Start-up and Stop ⇒CSS）および暖起動停止（Hot Stand-by and Start-up ⇒HSS）における熱サイクルの影響を評価し、熱衝撃の影響を受けにくい起動停止条件を確立する。同時に起動停止に伴う性能低下要因の検証・定量化を行い効率的かつ効果的な改良を行い、熱衝撃の影響を受けにくいスタック・モジュール構造を開発する。

##### (2) 目標

<中間目標>

CSS、HSS を含めた起動停止を合計 50 回程度実施し、起動停止 250 回でスタックの電位低下率が 10%以下を見通せるモジュール構造を開発する。

電位低下率が 10%以上と推定された場合、モジュールにおける技術課題を明確化し、最終目標を達成させるための対策を立案する。

<最終目標>

5~10kW 熱自立モジュールにおいて、3000H~10000H の運転を行い、起動停止回数 250 回の見通しを得るとともに耐久性 4 万時間（電圧低下率 0.25%/1000H）の見通しを得る。

##### (3) 事業成果

###### a. 開発の進め方

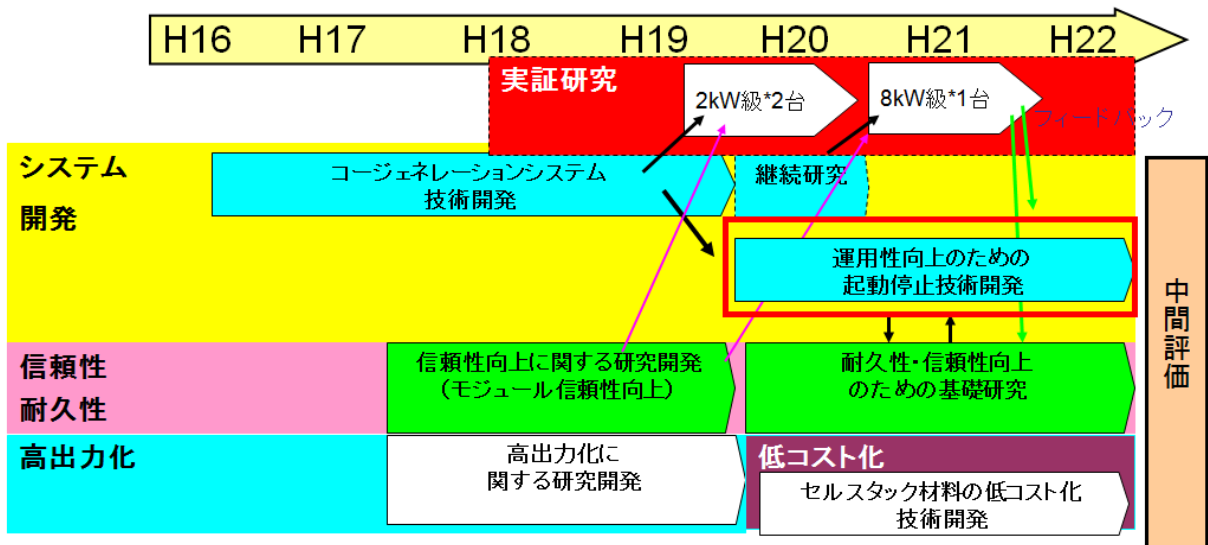
###### (a) 研究体制

本事業は、横川教授の下、NEDO から TOTO に委託された事業である。

###### (b) 委託事業の位置づけ

図Ⅲ-2.1.1-1 に委託事業の位置付けを示す。前事業（～H19 年）では、コージェネレーションシステム開発、信頼性・耐久性開発、高出力化に取り組み、H20 年からは前事業で明確になった技術課題に着手してきた。本事業は、システム開発で主要技術課題となった起動停止に関する技術開発を実施していく。また、前事業の成果を盛り込み、実証研究を通じてシ

システムの実証を H19、H20 年に行い、ここで得られた重要技術課題をフィードバックし、本事業の中で着手し、効率良い開発体制の中で実用化にむけた開発を推進した。



図Ⅲ-2.1.1-1 委託事業の位置づけ

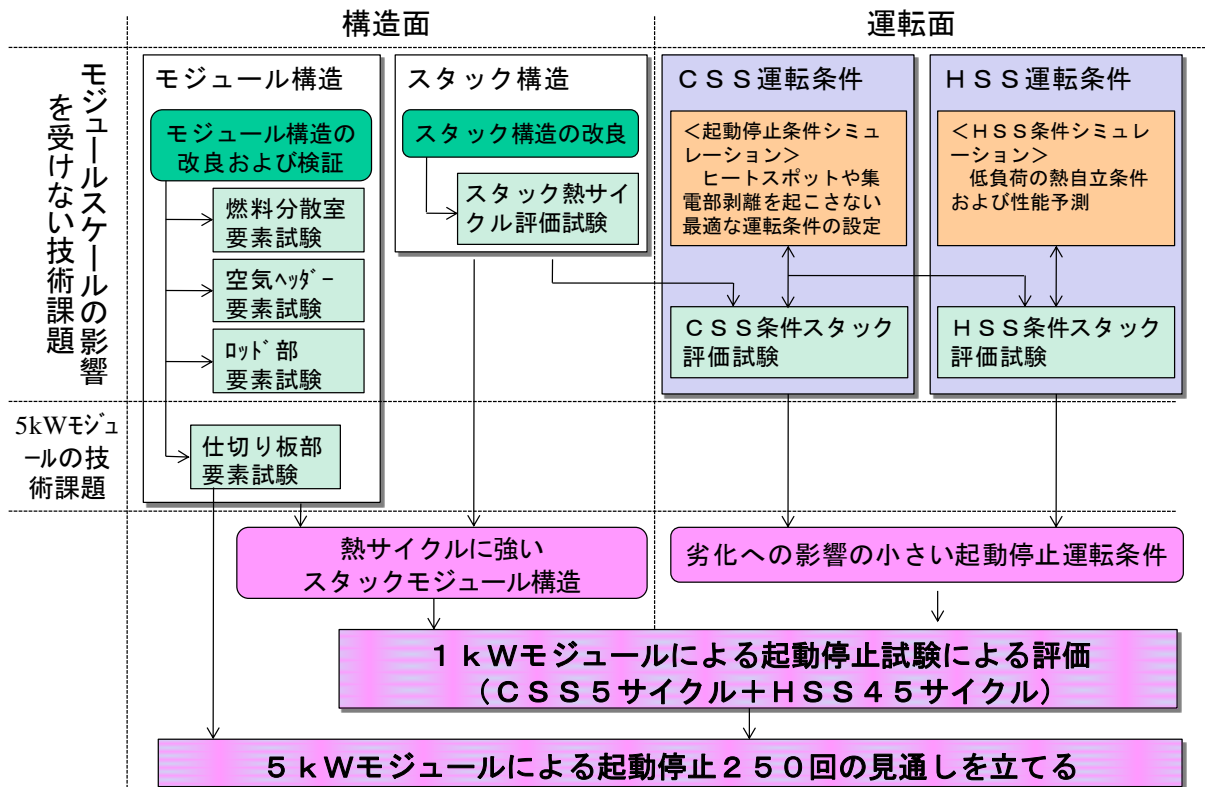
### (c) 本事業の進め方

図Ⅲ-2.1.1-2 に前事業を受けての開発の進め方を示す。セル、スタック、モジュールに分けて劣化要因の推定、切り分けを行った。その結果、長時間連続運転に伴う劣化の主要因はセル、起動停止に伴う劣化の主要因はスタック、モジュールであることが判明した。そこで、本事業では、スタック、モジュールの開発を推進することとした。なお、セル改善は耐久性・信頼性向上のための基礎研究で推進し、図Ⅲ-2.1.1-1 に示すように事業ごとに連携し効果的な開発を実施した。

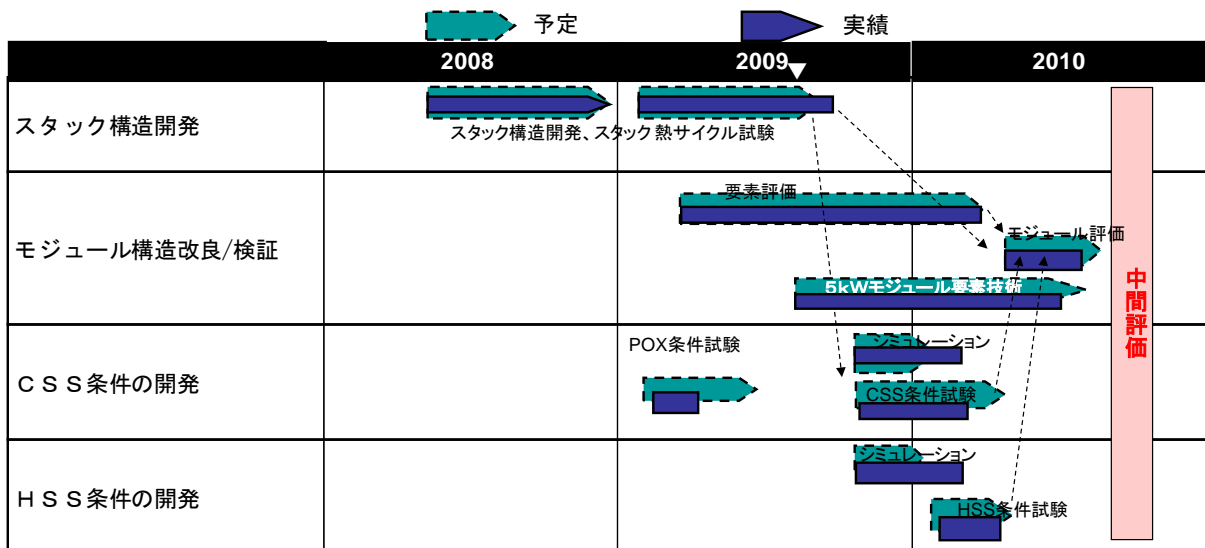
図Ⅲ-2.1.1-3 に本事業での課題解決の手順を示す。まず、基本構成単位となるスタック構造の改良を行い、改良したスタックを用いて CSS・HSS 運転条件の設定を行う。運転条件の設定にはシミュレーションを併用し最適な条件設定を行うこととする。また平行してモジュールの構成する各部位に対して、要素試験を実施し改善を図り、熱サイクルに強いモジュール構造を開発する。仕切り板部に関してはモジュールスケールの影響を受けやすい要素であるため、5kWスケールで検証を行う。これらのスタック・モジュール構造により 1kWモジュール(3スタックモジュール)を製作し、設定した最適な運転条件で CSS5 回+HSS45 回の起動停止試験により性能評価を行う。この結果と仕切り板の 5kWスケールの要素試験の結果から 5kWモジュールによる起動停止 250 回の見通しを立てる。本事業における中間評価までの研究スケジュールは図Ⅲ-2.1.1-4 に示すとおりである。予定に対して、概ね計画通りの実績となっている。



図III-2.1.1-2 前事業を受けての開発の進め方



図III-2.1.1-3 課題解決のアプローチ

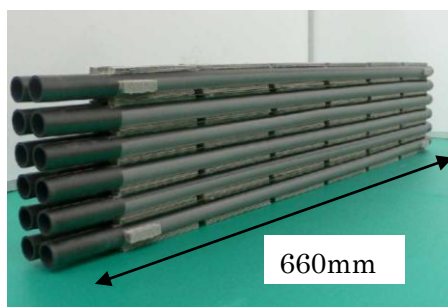


図Ⅲ-2.1.1-4 研究スケジュール

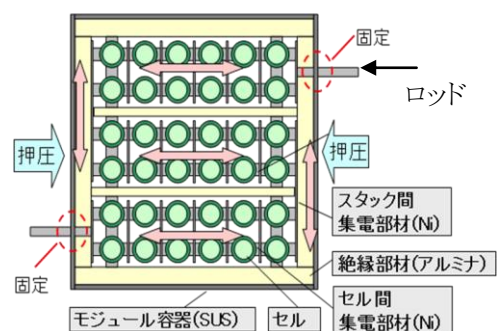
## b. スタック構造の開発

### (a) 従来のスタック構造の課題

図Ⅲ-2.1.1-5 に従来のスタック構造を示す。1 スタックは全長 660mm のセルが 12 本で 2 並列\*6 直列で構成され、セルは熱衝撃性に優れた円筒縦縞型デザインを採用している。複数のセルを集電部材で予め焼き付け接続し、このスタックをモジュール容器内に収納し、スタック間には集電材（主として Ni 板）を運転時の熱と押圧で焼き付け接続している。同構造では、起動停止に伴う熱サイクルにより部材間の熱膨張係数の違いにより、起動～運転～停止の過程でスタックの集電部材の接合部に引張り or せん断応力が発生し、焼き付けされた接合部分の強度を超えた場合集電不良による性能低下に至る（図Ⅲ-2.1.1-6）。さらに出力UPのためスタック数を増加させると部材間の熱膨張係数の違いによる変位量が大きくなり、スタックに加わる応力が増大し、スタック間またはセル間の接合部のダメージがより顕著となる。



図Ⅲ-2.1.1-5 従来のスタック構造



図Ⅲ-2.1.1-6 モジュール内の集電部材に発生する応力

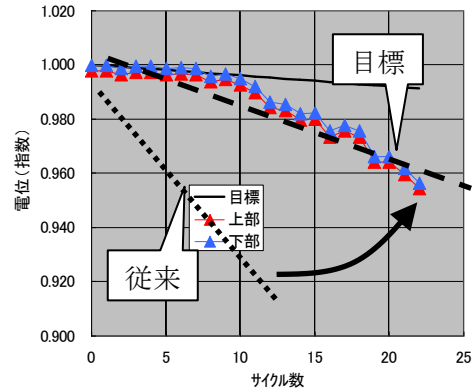
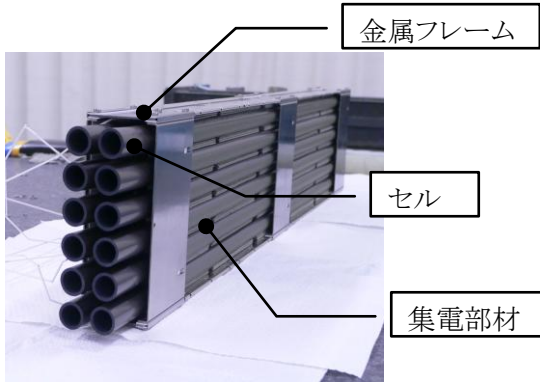
### (b) スタック構造の開発

従来のスタック構造の集電部の課題を解決するために、セルおよび集電部材を金属フレームで囲み固定化させたフレーム固定スタック構造を考案した。同構造では、以下のような機能を発揮する。

- ① 2 並列 6 直列の小規模範囲で集電に必要な応力を完結させるので、集電部材に発生

する応力を小さくかつ安定させることができる。

- ② ロッドやスタック間集電部材からスタックに伝わる応力を金属フレームで支持するため、出力アップのためモジュール内のスタック数を増加させても集電部材に伝わる応力は変わらない。また、セル集電部材の接合部に粘着Niペーストを使用することで、セルと集電部材間の接合強度を改善し、密着性を改善させた。



図III-2.1.1-7 フレーム固定スタック

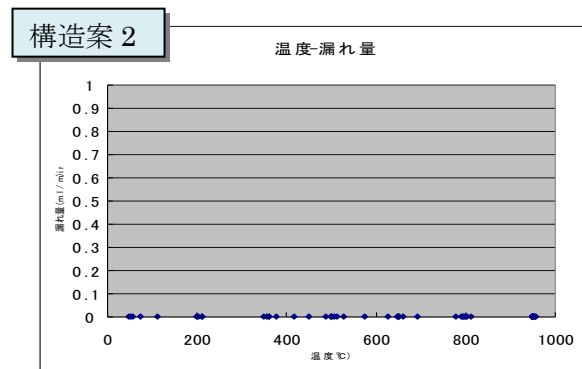
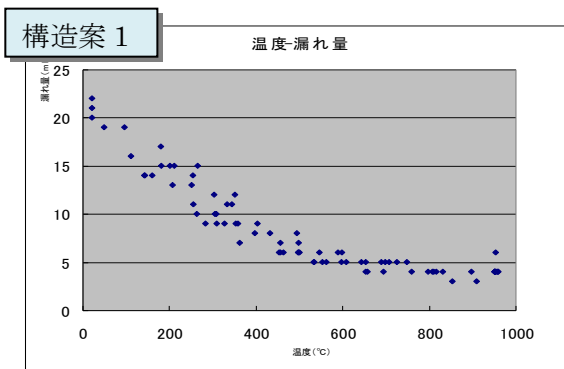
図III-2.1.1-8 フレーム固定スタック 熱サイクル試験結果

(c) スタック熱サイクル評価

フレーム固定スタックを電気炉で20サイクルの発電試験を行った。定格条件における電位の推移を図III-2.1.1-8に示す。従来のスタック構造と比較して、熱サイクルに伴う電位の低下は大幅に改善され、C S S目標の0.2%/cycleを達成する見通しが立った。

c. モジュール構造の開発

モジュールを構成する各部位について熱サイクル要素試験を行い、構造案1と構造案2を定量的に比較評価し、目標とする熱サイクル性能の見通しを立てることとした。3サイクル試験を行い、漏れ量をチェックした。図III-2.1.1-9、図III-2.1.1-10に示すように、構造案2とすることで漏れ量を大幅に低減させることができた。構造案1の漏れ量を算出したが性能への影響が出ないレベルのものであることが確認された。構造案2では絶縁耐久性、部品点数増に伴うコストアップの課題があったため、今回の1kWモジュール試験では、構造案1で試験を実施することとした。



図III-2.1.1-9 構造案1 温度と漏れ量の関係

図III-2.1.1-10 構造案2 温度と漏れ量の関係

#### (a) 仕切り板構造の開発 (5kW モジュール技術開発)

5kW サイズのモジュールを用いて 2008 年度に実証試験を行った。その結果、出力増加途中でセル損傷による性能低下が発生した。その原因を調査した結果、仕切り板の熱サイクルにおけるシール性能向上が、5kW サイズでの重要技術課題であることが明らかになった。そこで、仕切り板構造検討を 5kW サイズの模擬モジュール試験で行った。試験は、従来構造の仕切り板、改良構造 1、改良構造 2 および 1kW サイズの従来構造の 4 つを実施した。5kW モジュールおよび 1kW モジュールの同寸容器に SUS 管で構成した模擬セルスタックおよび仕切り板をセットし、電気炉内で室温⇄920℃の熱サイクルを与えた。燃料側に H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> を供給し、仕切り板上面の温度変化および発電室内の圧力変化を観測して仕切り板の劣化を評価した。その結果、改良構造 2 および 1kW サイズの従来構造では圧力および温度変化の観点で問題ないことを確認した。ただし、改良構造 2 は、複雑な構造のため、施工不良による機能低下が生じる可能性があることが示唆され、今後解決すべき課題があることも判明した。

#### d. CSS 運転条件の確立

本事業で開発したフレーム固定スタックを用いて、CSS 運転条件と性能低下の関連を評価した。評価は 1 スタックを用いて行った。実際のモジュールを模擬するべく、モジュールと同一構造を採用し、後述する 1kW モジュール試験と同等の温度分布や昇温速度が再現できるように試みた。

##### (a) アノードガス条件

アノード側は、都市ガス、H<sub>2</sub>、N<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>O、CO<sub>2</sub> の混合ガスを用いて、改質器で POX ガス（部分酸化ガス）を模擬したガスを生成した。

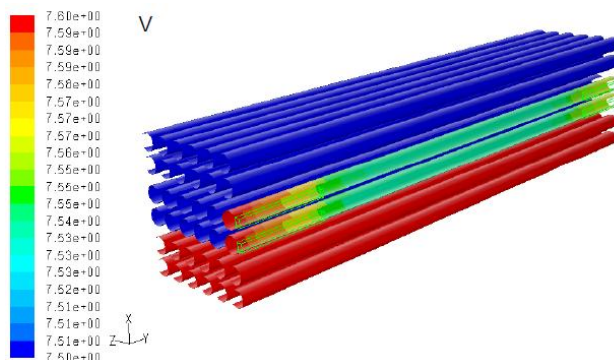
##### (b) CSS 試験条件および結果

フレーム固定スタックを搭載した 1 スタックモジュールにより、起動/停止における加熱/冷却の熱量を変化させ、目標を達成する条件の見極めを行った。起動条件、停止条件ともに 3 条件ずつ実施し、各条件とも 3 サイクル試験を行い、その平均電位低下率で評価した。その結果、起動/停止ともに加熱/冷却の熱量を増加させることで劣化速度が速まる傾向が見られたが、起動条件では一番条件の甘いもの、停止条件では 3 条件すべてで CSS 目標を達成できる見込みがあることがわかった。

##### (c) 性能低下の要因分析

起動条件試験では、厳しい条件の 2 つが性能低下していた。解体の結果、スタック端部の集電部材で剥離（全面積の 30%程度）が認められ、集電抵抗を高めていることが示唆された。そこで、スタック端部の 1/3 が集電不良した状況をシミュレーションした（図Ⅲ-2.1.1-11）。その結果、性能低下率とほぼ一致する結果が得られ、起動条件試験でのスタック性能低下は端部の集電抵抗増によるものと推測された。さらに、起動停止の際に集電部材の接触不良が発生するメカニズムを明らかにするために、起動および停止時のモジュールの昇温・降温過程をシミュレーションで評価した。その結果、スタックを構成する部材間で 100~130℃程度の温度差が生じ、高温強度を考慮した応力の値からセルと集電剤で剥離が生じる可能性があることがわかった。そこで、応力の発生を抑えるような運転条件を設定し再度シミュレーションで算出した。その結果、問題ないレベルの条件を設定することができ、本条件を CSS

運転条件に採用することとした。

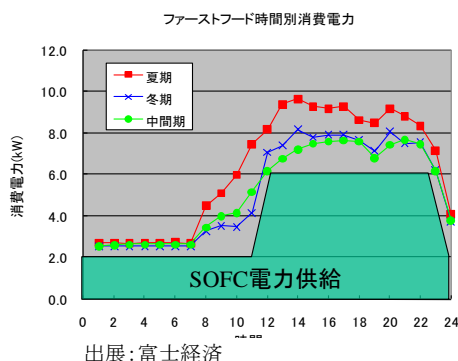


図Ⅲ-2.1.1-11  
スタック端部 1/3 接触不良時の電位分布

### e. HSS 運転条件の確立

#### (a) 経済的な運転条件の設定

HSS の条件を設定するために、小規模店舗などの業務用途で夜間および休日における電力需要を調査した。図Ⅲ-2.1.1-12 にファーストフード店における 1 日の時間別消費電力を示す。季節による差を考慮して昼間の需要のベース電力と夜間のベース電力を比較すると夜間は約 1/3 の電力需要となる。次に 1/3 負荷と 0 負荷のときの発電効率を算出した。定格でのシステムの発電効率 AC HHV40%として年間に CSS5 回、HSS45 回行われた場合、HSS で 1/3 負荷 (AC HHV35%) で運転と AC 0kW で運転したケースの年間平均発電効率を比較した。その結果、1/3 負荷運転の方が 2%程度経済的であることがわかり、本試験での HSS 運転条件を 1/3 負荷に設定することとした。



図Ⅲ-2.1.1-12  
ファーストフード時間別消費電力

#### (b) HSS 試験結果

設定した HSS (1/3 負荷) に至る運転条件が性能に及ぼす影響を、1 スタックモジュールにより評価した。試験の結果、負荷上昇時において、燃料を先に多く流すパターンでの負荷変動試験が望ましいと判断した。

### f. スタックモジュール試験

前記試験で設定した CSS、HSS 条件で 1 スタックモジュールでの起動停止試験を行った。CSS および HSS 試験結果を図Ⅲ-2.1.1-13、図Ⅲ-2.1.1-14 に示す。

#### ① CSS 運転

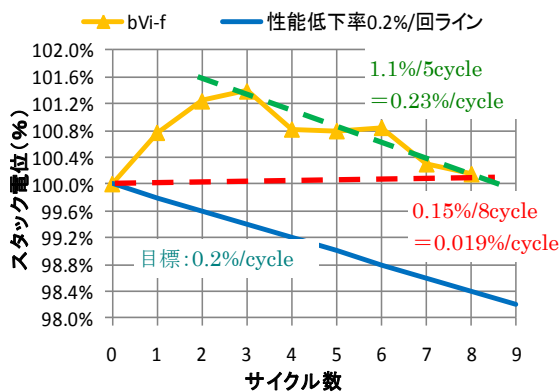
8cycle 実施し、初期に対して電位低下は認められなかった。3cycle 目で電位がピー

クとなっており、3cycle~8cycle で算出すると 0.23%/cycle であり、ほぼ目安としている目標どおりの結果であった。

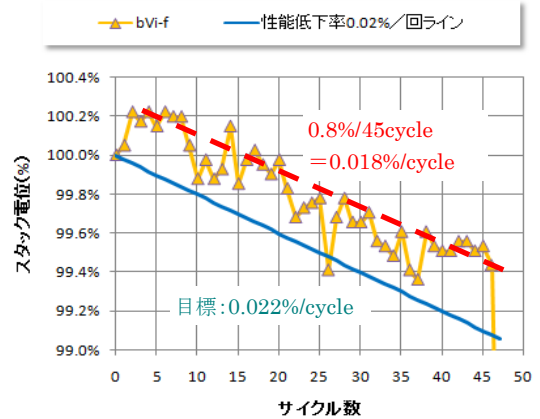
## ② HSS 運転

45cycle=416H での連続運転による性能低下:0.5% (1.3%/1000H) を差し引くと、HSS による性能低下は、 $0.3\%/45\text{cycle} = \triangle 0.007\%/cycle$  であり、目標値 0.02%/cycle を上回る結果が得られた。

以上のように 1 スタック試験で、設定した CSS、HSS 運転での電位低下の目標を達成できたので、1kW (3 スタック) モジュールで検証することとした。



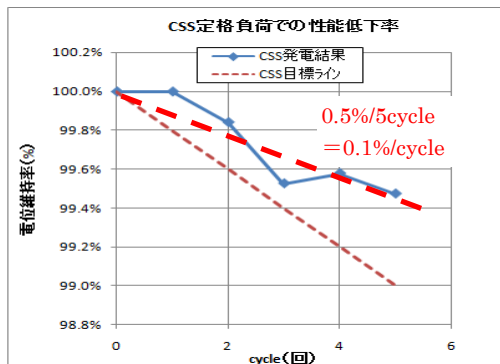
図Ⅲ-2.1.1-13 CSS 定格時の性能低下率



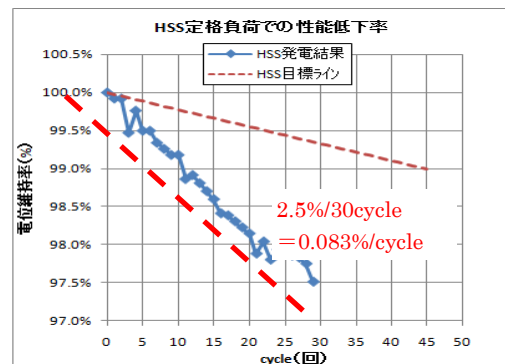
図Ⅲ-2.1.1-14 HSS 定格時の性能低下率

## g. 1kW モジュール試験

前述した改良スタックで 3 スタックを直列に並べ、上述した開発を施した 1kW モジュールを製作した。前記、1 スタックモジュール試験と同様の昇降温条件で CSS5 回、HSS45 回の試験を行った。図Ⅲ-2.1.1-15 に CSS、図Ⅲ-2.1.1-16 に HSS での電位低下率を示す。CSS 5cycle では、電位低下率が 0.1%/cycle であり、目標の性能低下率を達成した。一方、HSS では、電位低下率が 0.083%/cycle であり、目標とする低下率 0.02%/cycle を下回る結果が得られた。現在、解体し原因究明中である。



図Ⅲ-2.1.1-15 CSS 定格時の性能低下率



図Ⅲ-2.1.1-16 HSS 定格時の性能低下率

## h. 研究成果まとめと達成度

表Ⅲ-2.1.1-1 に研究成果のまとめと達成度を示す。スタックおよびモジュール構造の開発、CSS および HSS 運転条件を設定し 1 スタックモジュール試験では目標達成できたが、1kW モジュールで一部目標達成できていない状況である。総合評価を△としている。



表Ⅲ-2.1.1-1 研究成果のまとめと達成度

項目	成果のまとめ	達成度
スタック構造の開発	フレーム固定スタックを考案し、CSS 0.2%/cycle の見通しを得た。	○
モジュール構造の開発	モジュールの各構成要素の耐熱衝撃性を評価・改良し目標達成の見通しを得た。	○
5kW モジュール要素技術開発	熱サイクル下でもセル周りの気密を維持する仕切り板構造を検証した。	○
CSS 条件の設定	シミュレーションを併用し集電部の接触不良を回避する運転条件を設定した。	○
HSS 条件の設定	経済性の高い HSS 条件を設定し、0.022%/cycle の見通しを得た。	○
1 スタックモジュール評価	上記構造・運転条件において、CSS 9cycle+HSS 45cycle を実施。目標達成。	○
1kW モジュール評価	上記構造・運転条件において、CSS 5cycle の目標は達成したが、HSS 45cycle において目標を下回り、低負荷運転時の課題を抽出した。	△
総合評価	1 スタックモジュール試験で CSS・HSS を含めた起動停止 50 回を行い、電位低下率 10% 以下の達成見通しを得た。1kW モジュールにおいて HSS における課題抽出。	△

◎：大幅達成、○：達成、△：一部未達、×：未達

#### (4) 成果のまとめおよび意義

成果のまとめと意義は以下のとおりである。

- ① 定格の 1/3 負荷の HSS 状態においても発電効率 40%HHV の高効率を達成できる見通しが立ち、かつ性能低下率が低いことを示せた。この成果は、起動停止を伴う業務用途の施設において年間平均発電効率で競合技術に対して十分な優位性を確保することができる。
- ② 業務用タイプの SOFC では、従来、一定負荷のベースロードへの適用を想定していたが、今回の成果により、システムを昼夜・休日大きく負荷が変動する市場への拡張が可能となった。
- ③ 熱サイクルの影響を小さくする運転技術は、SOFC 起動停止における共通の課題であり、今回の成果は汎用性がある。

#### (5) 最終目標の達成までの課題と対策の方向性

最終目標を達成するための課題とその対策の方向性を以下に示す。最終目標は、5～10kW 熱自立モジュールにおいて、3,000～10,000 時間の運転を行い、起動停止回数 250 回の見通しを立てるとともに耐久性 4 万時間の見通しを得ることである。主要課題の電解質粉末化(耐久性、信頼性基礎で示した課題) 以外は現状の対策方向性で十分に達成できる見込みがあると考えている。

## 2. 1. 2 運用性向上のための起動停止技術開発（中温円形平板型）

### （1）研究開発概要

発電部門における省エネルギーおよび石油代替を促進するため、天然ガス、石炭ガス等を燃料とすることが可能であり、小規模分散型から大規模火力代替システムまで広い適用性を持つ、発電効率の高い固体酸化物形燃料電池（以下、SOFC という）は有効である。その SOFC を小・中規模分散型電源市場に投入できる SOFC コジュネレーションシステム（以下、システムという）として実用化するためには、これまでのプロジェクトにおいて実施してきた出力一定運転による耐久性の確認に加え、ホットスタンバイを含めた実用的な起動停止技術の向上が求められる。そのため、本研究では起動停止性能に優れたセルスタック、モジュール、システムの開発（設計・製作）及び緊急時の安全停止のための制御方法の開発を行う。

具体的にはスタックの構成を変えた数種の数 kW 級シングルスタックの発電試験を実施し、起動停止性能に優れたシングルスタックの仕様・構造を検討する。得られたシングルスタック構造を基に、マルチスタック発電モジュールの開発を行い、起動停止性能を確認する評価試験を実施する。更に、マルチスタック発電モジュールをシステムに組み込み、運用性の検証を実施する。

### （2）研究開発目標

#### a. 平成 22 年度中間目標

起動停止による熱サイクルの影響を評価し、熱衝撃緩和セルスタック構造を確立する。具体的にはシングルスタックモジュールでの起動停止試験を実施し、以下の見通しを得る。

電圧低下率 : 10%/250 回

また、成果の得られたセルスタック構造を基に、マルチスタックモジュールを設計、製作する。更に窒素水素レス運転における安全且つ安定した起動停止（昇温及び降温）方法を立案する。

#### b. 平成 24 年度達成目標

マルチスタック発電モジュールをシステムに組み込み、起動停止試験を実施し、以下の見通しを得る。なお、起動停止回数を決定するにあたり、週 1 回の待機運転（ホットスタンバイ運転または低負荷運転 40 回/年）、メンテナンスのための停止（1 回/2000 時間）、計画停電（3 回/年）、想定外停止（3 回/年）を想定し、4 万時間（約 5 年）で 250 回の起動停止回数を設定した。

耐久性 : 4 万時間（電圧低下率 0.25%/1000 時間）

起動停止回数 : 250 回（ホットスタンバイ運転を含む）

#### c. 開発体制及びスケジュール

図 III-2.1.2-1 に開発体制を、表 III-2.1.2-1 に開発スケジュールを示す。最終目標を達成するにあたり、スタック、モジュール、システムと段階を経て、開発を進める方針を取った。

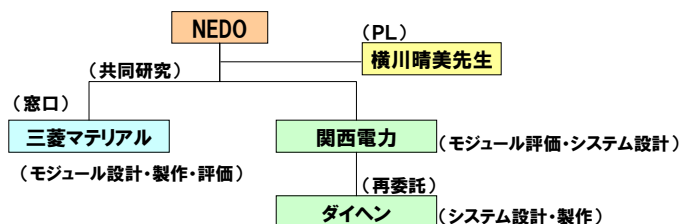


図 III-2.1.2-1 開発体制

表Ⅲ-2.1.2-1 開発スケジュール

開発項目	H20年度	H21年度	H22年度	H23年度	H24年度
シングルスタックの設計・製作及び評価試験※	▶				
マルチスタック発電モジュール設計・製作		▶			
マルチスタック発電モジュールの評価試験				▶	
システムの設計・製作				▶	
システムの運用性検証試験					▶

※：φ120mmセル（従来セル）・φ170mmセル（高出力セル）を用いたスタックにて開発を実施。

## (2) 研究開発成果

### a. 研究開発成果

#### (a) φ120mmセルを用いたスタック開発

耐久性・信頼性向上に関する基礎研究プロジェクトにおいて開発された「改良セル2」を用いたスタックにて起動停止試験及び出力変動試験を実施した。

改良セル2及びスタックの仕様を表Ⅲ-2.1.2-2に、試験結果を表Ⅲ-2.1.2-3及び表Ⅲ-2.1.2-4に示す。また、起動停止試験及び出力変動試験の運転条件を図Ⅲ-2.1.2-2及び図Ⅲ-2.1.2-3に示す。

40回の起動停止試験より求められる起動停止50回あたりの電圧低下率は5.0%と見込まれる。そのため、起動停止50回及び出力変動200回の電圧低下率は7.3%と見込まれ、中間目標に掲げている10%/250回を達成する見通しを得た。

なお、スタック構造に由来する電圧低下の要因としては、マニホールド部（シール部）の破損、垂直下や放熱板上下セルの電圧低下、セルの損傷、スタック構成部品内の電気抵抗の増大、スタック構成部品とセパレータ間の接触抵抗の増大などが分かった。

表Ⅲ-2.1.2-2 セル及びスタック仕様

セル種	セル外径	電流密度	セル積層枚数	出力
改良セル2	φ120mm	0.3A/cm <sup>2</sup>	46枚/スタック	DC1.2kW

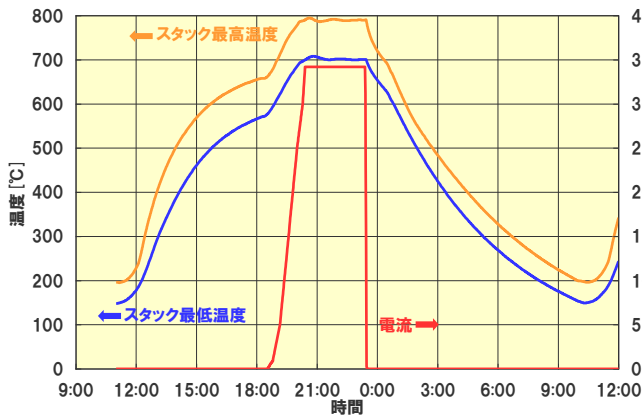
表Ⅲ-2.1.2-3 起動停止試験結果

電流密度	燃料利用率	スタック最高温度	電圧低下率	セル損傷枚数
0.3A/cm <sup>2</sup>	75%	780℃	4.0%/40回	0枚/46枚

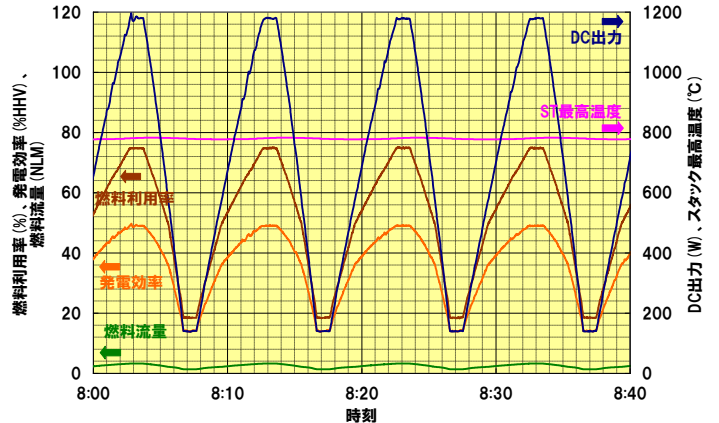
表Ⅲ-2.1.2-4 出力変動試験結果

電流密度※	燃料利用率	スタック最高温度	電圧低下率	セル損傷枚数
0.3A/cm <sup>2</sup>	75%	780℃	2.3%/200回	2枚/46枚

※：定格条件（100%電流時）における電流密度を示す。



図III-2.1.2-2 起動停止試験の運転条件  
(1日1サイクル)



図III-2.1.2-3 出力変動試験の運転条件  
(10分1サイクル)

### (b) 水素窒素レスでの起動停止方法

前プロジェクトまでは水素窒素を用いてモジュールの起動停止を実施してきたが、実用化を考慮した際、水素窒素が不要とするのは必要不可欠な技術であると考えられる。そのため、単セル試験にて、供給ガス流量（都市ガス、水、空気）、セル温度、改質器温度をパラメータに水素窒素レスで起動停止できる条件を抽出した。なお、(c) viii. 項に記載の起動停止及び出力変動試験は水素窒素レスにて試験を実施している。本起動停止による問題は発生しなかった。

また、緊急停止時の停止方法についても検討し、何れの事象においても水素窒素レスで停止する方法を立案した。想定するトラブルとその停止方法（供給ガス）の一例を表III-2.1.2-5に示す。なお、(c) 項に記載のφ170mmセルスタックの起動停止試験は全て水素窒素レスにて起動停止を実施している。

表III-2.1.2-5 想定トラブルと停止方法

想定する主なトラブル	燃料極側	空気極側	結果
インバータ異常	改質ガス	空気	○ (現行システムで対応可能)
都市ガスブロワ異常	水 (常時)	空気 (常時)	○ (現行システムで対応可能)
都市ガス及び純粋ポンプ異常	水 (一時)	空気 (常時)	○ (現行システムで対応可能)
	水 (一時)	空気 (一時)	○ (現行システムで対応可能)
都市ガス及び空気ブロワ異常	水 (常時)	無	△ 空気停止は不可のため、最小の流量及び供給時間を抽出。供給方法についてはシステム設計時に検討。
停電	水 (一時)	無	

### (c) φ170mmセルを用いたスタック開発

(a) 項に示す通り、φ120mmセルを用いたスタックにおいて中間目標の見通しを得たが、SOFCロードマップ2008に挙げられている普及期のコスト目標を見通すためには、セルの高出力化を図り、モジュールの部品点数を削減することが必須である。そのため、将来のコストダウンを目的に、セルの大口径化及び高出力密度化を図ったスタックの開発を実施した。

具体的にはセルの外径を  $\phi 120\text{mm}$  から  $\phi 170\text{mm}$  に大きくし、セル一枚あたりの出力を約 4 倍に高めたセルを用いたスタック開発を実施した。セル及びスタックの仕様を表 III-2.1.2-6 に示す。

スタック設計は、これまで  $\phi 120\text{mm}$  セルスタックで上がっていた問題点及び  $\phi 170\text{mm}$  セルスタックで起動停止試験を実施し発現した問題点についての対策を行った。

表 III-2.1.2-6 セル及びスタック仕様

セル種	セル外径	電流密度	セル積層枚数	出力
改良セル 2	$\phi 170\text{mm}$	$0.58\text{A}/\text{cm}^2$	32 枚/スタック	DC3.2kW

### i. マニホールド部（シール部）の破損

起動停止を行うことでマニホールド部のシールが破損する可能性があることが前プロジェクトにて分かっている。そのため、マニホールド部の構造の見直しを実施した。マニホールド部にはシールのためのコーティングを行っているが、そのコーティング厚さにバラつきが生じていることが判明した。このバラつきがシールの破損に影響している可能性があるため、専用の治具を用い、厚さのバラつきを 1/10 程度まで低減した。また、セパレータの製作工程において、セパレータのアーム部及びマニホールド部を変形させてしまう可能性のある工程が確認された。その工程自体は除外できないので、変形を防止するセパレータ構造に変更した。更にはマニホールド部の傾きを防止するために、マニホールド部を締め付けるボルトの配置についても見直しを行った。この結果、マニホールド部からのリークは発生しなくなった。

### ii. 錘直下セルの電圧低下

起動停止や連続運転を実施することで錘直下のセルの電圧低下を大きいことが分かっている。また、要素試験によりスタック上部セル電圧が低下する要因として、加重不足が判明した。そのため、単セル試験にて必要な加重条件を見出し、スタックの錘重量を決定した。この結果、スタック上部セルにおいても他のセルと遜色ないセル電圧となった。

### iii. スタック内の温度差

平板形セルを積層したスタック構造の場合、スタックの中段部ほど温度が高く、スタック内の高さ方向に温度差が生じる。この温度差は高出力化セルを用いるとより顕著になる。そのため、スタックの高さ方向の温度差を低減させるために、スタック内に放熱板を複数枚設置することとした。温度低減効果の高い放熱板形状、設置位置について、スタック内の高さ方向の温度分布を均一化するように、シミュレーションにて決定した。スタック

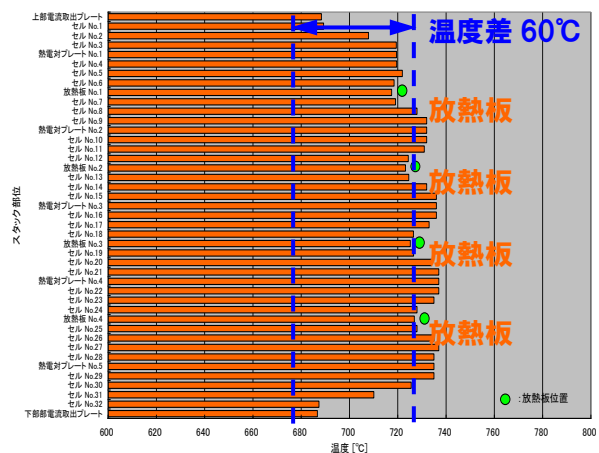
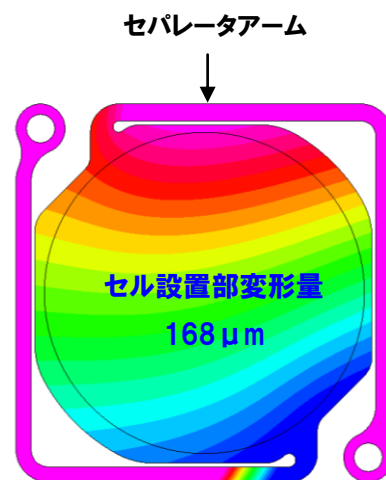


図 III-2.1.2-4 スタックの温度解析結果

クの温度解析結果を図Ⅲ-2.1.2-4に示す。この結果、スタック内の温度差は目標としていた60℃差（φ170mmセルにて仕様としている出力、効率を得るために必要な温度範囲）以内に収めた。

#### iv. セパレータ形状の見直し

セルの損傷や放熱板上下セル等の電圧低下の要因は、セパレータのセル設置部の不均一な変形が影響しているものと考えられ、当該部の変形量を小さくする（セパレータアームの剛性を小さくする）セパレータを開発することでφ120mmセルを用いたスタックでは一定の効果を得てきた。そのため、φ170mmセルを用いる本スタックにおいても、セパレータのセル設置部の変形量を小さくすることに主眼をおいて、セパレータの設計を行った。セパレータの変形解析結果の一例を図Ⅲ-2.1.2-5に示す。



図Ⅲ-2.1.2-5 セパレータの変形解析

しかしながら、現時点ではセルの損傷防止、放熱板上下セル等の電圧低下の防止に至っていない。

#### v. セルの損傷

iv. 項に記載のセパレータの形状変更に加え、セルの強度向上のために電解質スラリーの均質化や焼成条件の見直し、セルの欠陥をなくすための製造工程の改良やセルの全数検査等を実施した。それぞれに効果は確認できたものの、セルの損傷防止には至っていない。セル損傷の原因調査のために、セルの外径、電解質厚さ、電解質組成などをパラメータにして、東北大学殿にセルの応力解析を実施頂いた。結果、燃料極/電解質/空気極の還元膨張及び熱膨張の差がセルに大きな応力を与えていることが分かった。また、セル面内の温度分布もそれを強調する材料になっていることも分かった。今後は単セルでの予察試験を実施し、セル損傷を防止するスタック構成を検討する。

#### vi. スタック構成部品の電気抵抗の増加

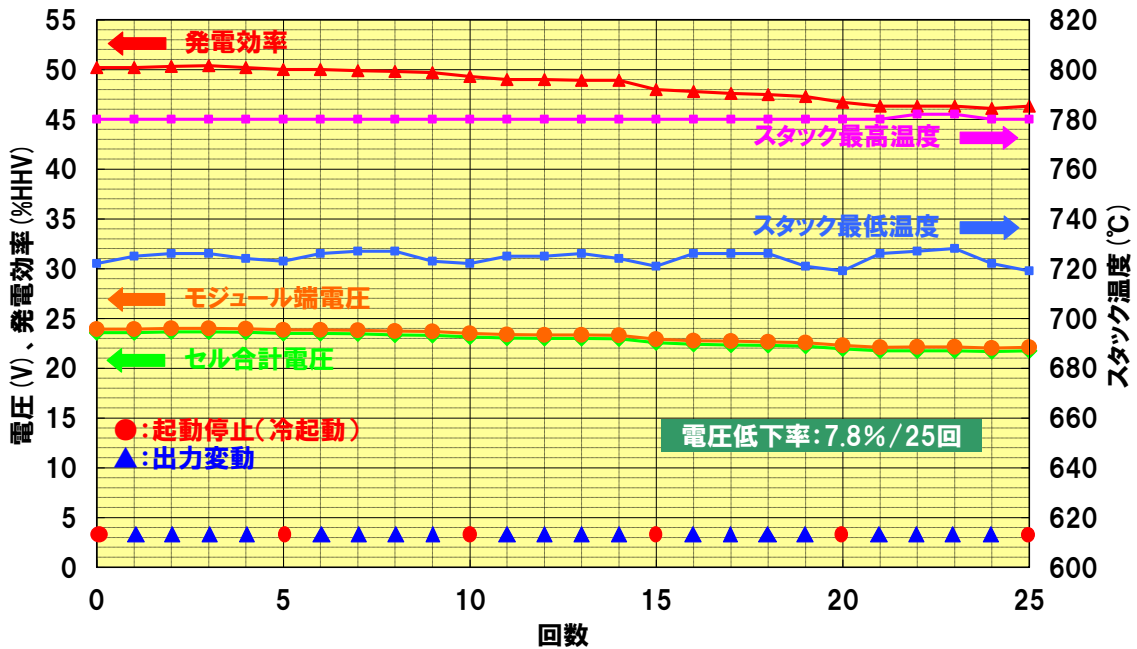
起動停止を実施することで、スタック構成部品内部及びスタック構成部品とセパレータ間の電気抵抗が増加することが分かった。そのため、スタック構成部品については可能な限り溶接を行わない構造を採用し、溶接構造を取らざる得ない部品については溶接脚長を増した。また、スタック構成部品とセパレータはスタック組立前に熱圧着し、密着性を高めた。結果、当該部の電気抵抗は大きく低減した。

#### vii. スタック内の温度差拡大

起動停止を実施することで、スタックの高さ方向の温度差が拡大することが分かった。これはスタックの低温部であるスタックの上下から空気を供給していることが原因と判明したため、空気の供給をスタックの高温部であるスタック中段部から供給する対策を行った。結果、温度差の拡大を防止した。

### viii. 起動停止及び出力変動試験結果

i～vii項に示す対策を施した φ170mm セルスタックにて起動停止 5 回と出力変動 20 回を組み合わせさせた試験を実施した。試験結果を図Ⅲ-2.1.2-6 及び表Ⅲ-2.1.2-7 に示す。起動停止 50 回及び出力変動 200 回の電圧低下率は 78%と見込まれた。中間目標を見通すためには、セル損傷や放熱板上下セルの電圧低下を改善する必要がある。また、本試験よりセル/集電体/セパレータ間の接触抵抗の増加も電圧低下の一要因と推測され、原因はスタック内に配置している放熱板とセパレータの変形能の不一致が問題と考えている。



図Ⅲ-2.1.2-6 起動停止・出力変動試験結果

表Ⅲ-2.1.2-7 起動停止及び出力変動試験結果

電流密度	燃料利用率	スタック最高温度	電圧低下率	セル損傷枚数
0.58A/cm <sup>2</sup>	78%	780°C	7.8%/25 回	2～6 枚/32 枚

#### (d) マルチスタックモジュールの設計・製作

(b) 項にて水素窒素レスで起動停止する条件を見出したが、その条件にはスタック温度と改質器温度の差を 100°C以内に保つことが含まれている。そのため、その温度条件を満たすことができるスタック及びモジュール内機器の配置を見出すために熱流体解析を実施し、マルチスタックモジュールを設計し、製作を実施した。

#### b. 達成度

φ120mm セルを用いたスタックにおいて、中間目標である電圧低下率 10%/250 回の見通しを得た。φ170mm セルを用いたスタックにおいては、中間目標である電圧低下率 10%/250 回の見通しを得るための問題点を抽出した。水素窒素レスで起動停止する方法を見出し、実モジュールでの試験も実施した。水素窒素レスでの起動停止が可能なマルチスタックモジュールの設計を熱流体解析コードを用いて行い、製作を実施した。達成度の一覧を表Ⅲ-2.1.2-8

に示す。

表Ⅲ-2.1.2-8 達成度一覧

項目	状況	達成度
起動停止試験を実施し電圧低下率 10%/250 回を見通す	φ 120mm セルスタック : 7.3%/250 回	○
	φ 170mm セルスタック : 7.8%/25 回 電圧低下の問題点の抽出を行った	△
水素窒素レスでの起動停止	方法の立案及び実モジュールでの試験実施	○
マルチスタックモジュールの設計・製作	水素窒素レス起動が可能なモジュール設計・製作を実施	○

### (3) 成果の意義

- ① 水素窒素レスでの起動停止（緊急停止を含む）が可能となり、簡素化及び低コスト化を図った SOFC システムを市場に供給が可能となった。
- ② 小・中規模の SOFC では、一定負荷のベースロードへの適用を想定していたが、今回の成果により、SOFC システムを大きく負荷が変動する市場への可能性が見出された。
- ③ 実際の運転において重要となる冷起動・熱サイクルにおける影響・課題の抽出を行うことができた。これらは、高温で作動する SOFC の実用化のための共通の課題として位置づけられる。

### (4) 成果の最終目標の達成可能性

φ 120mm セルを用いたスタックにおいては、起動停止 250 回での電圧低下率 10%以下の見通しを得ている。そのため、φ 120mm セルを用いた場合、最終目標は達成可能と考えている。

しかしながら、φ 120mm セルを用いた開発では、燃料電池・水素技術開発ロードマップ（2008）に記載のセルスタック化コストは 5 万円/kW（普及期）の見通しは困難である。このコスト目標を見通すためには、φ 170mm セルを用いたスタック開発が必須と考えられ、φ 170mm セルを用いたスタック開発を実施した。

現時点までに φ 170mm セルを用いたスタック構造における問題点として、セル損傷、放熱板上下セルの電圧低下、セパレータ/集電体/セル間の接触抵抗の増大が分かっている。セル損傷についてはセルの応力解析より、燃料極/電解質/空気極の熱膨張及び還元膨張の差が影響していると考えられる。またセル面内の温度差は、その影響を強調する材料となっている。また、放熱板上下セルの電圧低下や接触抵抗の増大はスタック内に配置している放熱板とセパレータの変形能の不一致が問題と考えている。そのため、これらの対策を検討し、要素試験にてその効果を検証する予定である。検証結果をスタック構造に反映することで、φ 170mm セルを用いたスタックにおいても起動停止による電圧低下率を 10%/250 回以下を見通すことが可能と考えている。

### (5) まとめ及び課題、事業化までのシナリオ

#### a. まとめ

φ 120mm セルを用いたスタックにおいて、起動停止及び出力変動 250 回において、中間



目標である電圧低下率 10%以下の見通しを得た。

φ170mm セルを用いたスタックにおいては、起動停止及び出力変動 250 回において、電圧低下率 10%以下の見通しを得るための課題を把握した。

水素窒素レスでの起動停止方法を立案し、実モジュールでの試験を実施した。また、緊急停止方法についても検討し、何れのケースにおいても通常の停止時と同様に水素窒素レスで停止する方法を立案した。

水素窒素レスで起動停止が可能なマルチスタックモジュールの設計・製作を実施した。

## b. 課題

φ170mm セルスタックにおいて、起動停止及び出力変動での電圧低下率 10%/250 回を見通すためには、セル損傷の防止、放熱板上下セルの電圧低下防止、接触抵抗の低減が課題として挙げられる。セル損傷の防止は燃料極/電解質/空気極の熱膨張及び還元膨張の差が影響していると考えられ、更にはセル面内の温度差がその影響を強調する材料となっていることが分かった。放熱板上下セルの電圧低下防止、接触抵抗の低減は放熱板とセパレータの変形能の不一致が問題と捉えている。

## c. 事業化までのシナリオ

φ120mm セルを用いたスタックの技術面においては SOFC ロードマップ 2008 に沿った開発が可能であるが、コスト面においてはさらにコスト低減を図る必要がある。

その手段として、φ170mm セル（高出力セル）を用いたスタックの開発は有効であるものの、本スタックにおいて技術的な課題（セル損傷、接触抵抗増大等）が判明している。

これらの課題を対策検討し、要素試験等にてその効果を検証することにより耐久性向上を見通し、併せてコスト低減との両立を図り、実用化・事業化を SOFC ロードマップ 2008 に沿った形で推進していく予定である。

## 2.2 超高効率運転のための高圧運転技術

### (1) 事業概要

固体酸化物形燃料電池(SOFC)はガスタービン複合発電と組み合わせることにより、極めて高い効率を実現することができる。数百 MW 級の火力発電用の天然ガス焼きガスタービン複合発電システムとの複合発電システムとして発電効率 70%(LHV)以上、数百から数千 kW 級の中小規模の SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムとして発電効率 55%(LHV)以上の発電システムが構成できる。当社では、平成 16～19 年度の委託研究「円筒形 SOFC コンバインドサイクルシステムの開発」にて、200kW 級の SOFC-マイクロガスタービンコンバインドサイクルの検証運転を実施し、200kW 以上にて発電効率 52%(LHV、送電端)を確認し、その後継続研究にて 3,000 時間の複合発電運転を実施し経時電圧低下がないことを確認したが、実用化に向けた信頼性向上等の課題も明らかになった。

本事業では、これまでの研究開発で明らかになった課題を解決し、更に高効率の SOFC 複合発電システムを実用化することを目的として、円筒形 SOFC セルスタック・モジュール・発電システムを対象とした、信頼性向上、高効率化・コンパクト化・簡素化及び高圧運転対応技術のための要素技術開発を実施する。

### (2) 目標

#### a. 「中間目標」(平成22年度)

◎マイクロガスタービンと組み合わせるための圧力範囲で、起動停止、緊急時の安全停止を可能とすることなどの高圧下での運転のためのシステム技術を確立する。

#### b. 「最終目標」(平成24年度)

◎耐久性 4 万時間(電圧低下率 0.25%/1000 時間)の見通しを得る。

◎超高効率運転のための高圧運転技術を確立する。

その確認のために、250kW 級の SOFC-マイクロガスタービン複合発電実証機を製作・運転し、出力 250kW 級、発電効率 55%以上(LHV 送電端)であることを確認する。

上記の目標を達成するために、下記の項目を実施する。

#### (a) セルスタック要素技術開発

- ・ 高圧運転環境下で想定される燃料-空気間高差圧運転状態・酸化還元サイクルに対して耐性の高いセルスタックを開発する。具体的には燃料極保護のための還元性ガスがシステム異常等により停止しても、セルスタックの損傷を回避できるように改良する。
- ・ 改良したセルスタックの発電特性を、高圧状態も含めて、試験・評価する。
- ・ 長時間耐久性については、「耐久性・信頼性向上のための基礎研究」に参画し、研究機関との連携で得られた成果を改善仕様に織り込み、最終目標を目指した電圧低下率の低減を図る。

#### (b) モジュール要素技術開発

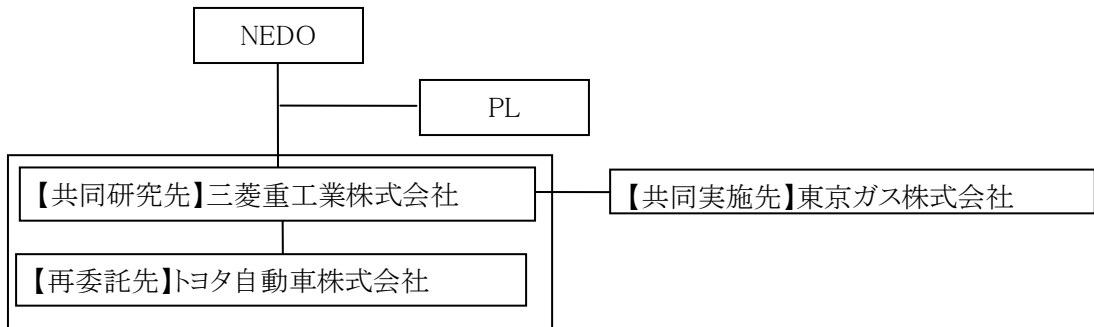
- ・ 高圧運転状態での熱交換を考慮し、コンパクト化を図った密充填構造のカートリッジ(スタック集合体)の計画・設計・製作・試験を実施し、構造健全性、発電特性、伝熱・冷却特性、耐差圧性等の改良を確認し、実用的なモジュール(カートリッジ集合体)の設計を行う。
- ・ 平成 23 年度以降に改良セルスタックを使用した密充填構造のモジュールを製作し、複合発電システムでの運転検証を実施する。

(c) 複合発電システム要素技術開発

- ・ 起動停止や緊急時の安全停止等の過渡状態を含めたセルスタック・モジュール・マイクロガスタービン(MGT)保護のための制御・インターロックシステムを前プロジェクトの試験機から改良し、さらに一部に損傷が発生した場合の損傷拡大を抑制するシステムを構築する。
- ・ その検証のため、平成 22 年度までに SOFC と MGT を組み合わせた状態でシステム要素試験を実施し、中間目標達成を確認する。
- ・ 密充填構造のモジュールを適用し、信頼性を確保した上でシステム全体のコンパクト化・簡素化を図った複合発電システムを平成 22 年度までに計画する。
- ・ 平成 23 年度以降に改良セルスタックを使用した密充填構造のモジュールにて複合発電システムを製作し、実用に向けた運転検証を実施する。

c. 研究体制とスケジュール

研究開発体制とスケジュールを図Ⅲ-2.2.1と表Ⅲ-2.2.1に示す。平成 23 年度から東京ガス株式会社が共同実施先として参画し、複合発電システムの運転検証を共同で実施する体制に変更した。



図Ⅲ-2.2.1 研究体制

表Ⅲ-2.2.1 研究開発スケジュール

項目	H20	H21	H22	H23	H24
<b>セルスタック</b> ・ 酸化還元サイクル耐性向上 ・ 耐差圧性向上  ・ 高圧下での発電特性評価  (耐久性・信頼性PJ)  (低コスト化PJ)		要素 スタック	要素・スタック	セルスタック製作	
		耐久試験・メカニズム考察		要素・スタック改良	
		要素			
<b>モジュール</b> ・ 耐差圧性向上 ・ 高圧運転対応・コンパクト化		要素・設計 カートリッジ		計画・設計 カートリッジ製作	
				モジュール製作	
<b>複合発電システム</b> ・ 信頼性向上  ・ コンパクト化・簡素化		設計・検討	試験	計画・設計 システム・BOP製作	
		設計・検討	試験		
	前PJ継続研究			CCシステム試験	

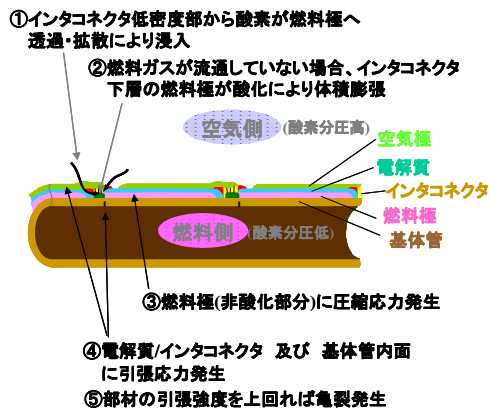
### (3) 事業成果

#### a. セルスタック要素技術開発

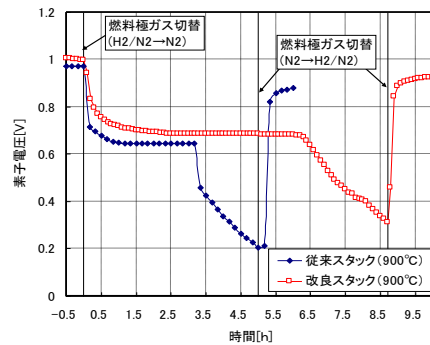
##### ①セルスタック酸化還元サイクル耐性向上

円筒横縞形セルスタックの断面構造とその損傷プロセスを図III-2.2.2に示す。円筒横縞形セルスタックでは、燃料を基体管の内側、空気を外側に流し、燃料と空気は緻密質の電解質膜とインタコネクタ膜でシールされる。従来のセルスタックでは、電解質にオーバーラップしたインタコネクタ膜の端部の緻密度が相対的に低かったため、燃料極側への酸素浸入経路となっていた。燃料極中のニッケルは酸素分圧により金属ニッケル(Ni)と酸化ニッケル(NiO)に可逆変化し、体積が変化するため、発電に供して以降は、燃料側の酸素分圧を抑えて燃料極を金属ニッケルの状態に保つようになっている。しかし、システム上の異常等により燃料ガスも置換ガスも供給できなくなった場合は、インタコネクタ膜端部の相対的に緻密度の低い部分から、燃料極側へ酸素が浸入し、セルスタックが損傷に至る可能性がある。

そのような異常状態でもセルスタックが損傷しないようにするために、インタコネクタ膜の強度・緻密度を改良し、強度を20%高めると共に低密度部の相対密度を99%以上に高めた。改良型インタコネクタを適用したセルスタックを試作し、セルスタックの燃料側に窒素を通気して、亀裂発生までの時間を計測した結果を図III-2.2.3に示す。700℃、800℃では従来セルスタック、改良セルスタック共に亀裂発生は観察されなかったが、900℃では、従来セルスタックは窒素通気開始3.2時間後、改良セルスタックでは窒素通気開始6.2時間後に著しい電圧低下を検出し、その後燃料ガスを置換ガスに戻しても、もとの電位に復さなかったことから、その時点でインタコネクタ等に亀裂が発生したと考えられる。拡散リークによる酸素浸入は温度低下とともに急激に減少するため、万一燃料極に還元性ガスが供給できない事態が生じて、6時間以内に温度を下げられれば、亀裂発生を抑制できると考えられる。



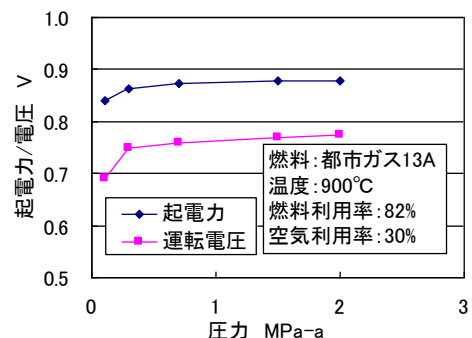
図III-2.2.2 燃料極還元性ガス停止時のセルスタック損傷プロセス



図III-2.2.3 酸化還元耐性試験における900℃での従来スタックと改良スタックの電圧経時変化

##### ②セルスタック高圧発電特性予測

高圧下では、セルの平衡起電力は上昇する。また、活性化過電圧も全圧の上昇に伴い低減し、セルの運転電圧は上昇する。各圧力の平衡組成から求めた平衡起電力、全圧0.7MPa-aまでの実験値から外挿して予測した運転電圧を図III-2.2.4に示す。圧力2MPa-aでは、常圧に対して12%程度の電圧上昇が見込まれる。数MPaでの運転については、「固体酸化物形燃

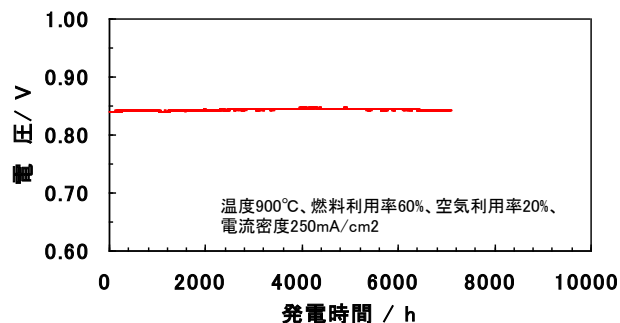


図III-2.2.4 高圧運転時の予測電圧

料電池を用いた事業用発電システム要素技術開発」プロジェクトにおいて実験的に検証していく。

### ③セルスタックの経時電圧低下率の改善

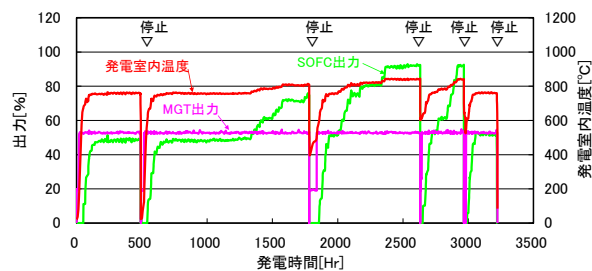
この項目は「基礎的・要素的技術開発」で取り組んでいる。前プロジェクトの耐久後セルスタックを、プロジェクト参加研究機関にて分析・考察した結果を反映し、空気極中間層部での陽イオン移動の抑制を図った複合発電システム検証用のセルスタックを試作し、耐久試験を継続中である。図III-2.2.5 に示す通り、約7000 時間経過し、最終目標である 0.25%/1000 時間以下であり、更に、モデル材により10,000 時間以上の耐久性を予測した結果、得られた劣化速度式にて 4 万時間の見通しを得た。



図III-2.2.5 改善セルスタックの耐久試験における性能推移

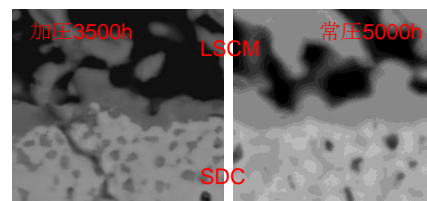
### ④複合発電システム試験後の解体分析

図III-2.2.6 に前プロジェクト・継続研究で実施した複合発電システムの耐久試験結果を示す。本プロジェクトにおいても系統改造後の試験を実施したため、累積3,500時間、停止再起動を6回実施したが、単セルスタック同様、性能低下は観測されなかった。このセルスタックを加圧耐久後のサンプルとして解体分析した。カソード／中間層近傍の微構造を常圧5000時間耐久後のサンプルと比較した結果を図III-2.2.7 に示す。

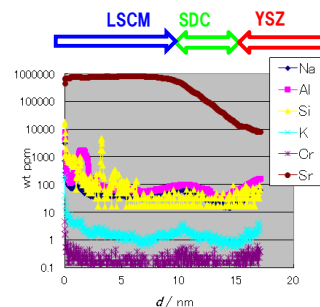


図III-2.2.6 複合発電システムの耐久試験結果

「基礎的・要素的技術開発」で常圧耐久試験を実施したセルスタックは、電圧低下が観察されなくても、カソード中のカチオンが拡散し、カソード／中間層界面に緻密層が生成すると共に中間層の緻密化が観察された。加圧下で実施した複合発電システム耐久試験後のセルスタックも微構造は同様であり、また元素分布も常圧との差異は認められなかった。更に、加圧耐久後の Cr 堆積量を SIMS により分析した結果を図III-2.2.8 に示す。カソードに蓄積した Cr は最大でも数 ppm 程度であり、単セルスタック試験と同様、極微量であり、実環境下において Cr 被毒が起る可能性は低いことが確認できた。



図III-2.2.7 カソード／中間層界面の微構造比較



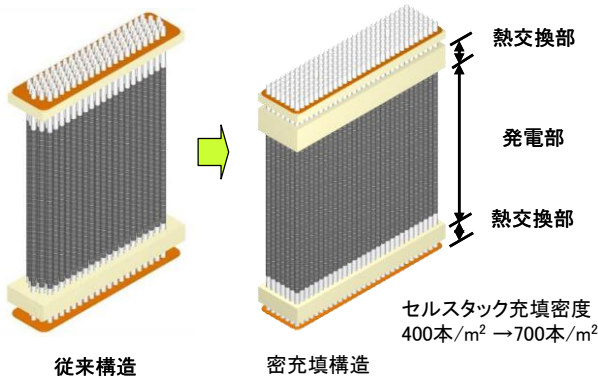
図III-2.2.8 複合発電システム耐久試験後の SIMS による微量成分分析結果

## b. モジュール要素技術開発

### ① 充填カートリッジの開発

モジュールをコンパクト化するため、図III-2.2.9 に示すようにセルスタック装填密度を 1.7 倍にした密充填カートリッジを設計した。セルスタックの高充填化により、発電室の容積当たりの発熱密度が増加するた

め、発電室温度の適正化を図ると共にセルスタックを両端で支持する金属製ヘッダの低温化が熱設計上の重要な課題である。このため、高充填化に対応した伝熱設計を行い、発電室内の温度分布を解析した。燃料ヘッダの金属製管板の応力解析も実施し、600℃で 4 万時間以上の寿命を持つ設計とした。表Ⅲ-2.2.2 に試作したカートリッジ仕様と適用したセルスタック仕様を示す。



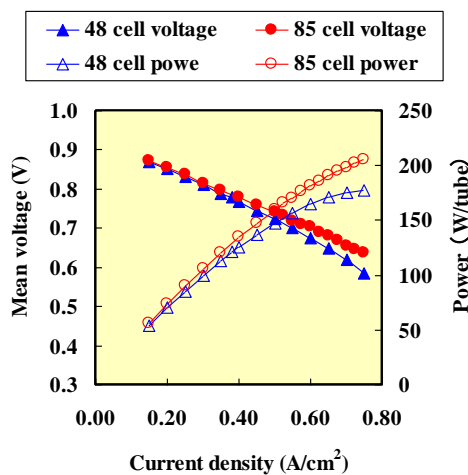
図Ⅲ-2.2.9 密充填カートリッジ構造

表Ⅲ-2.2.2 密充填カートリッジ仕様と適用したセルスタック

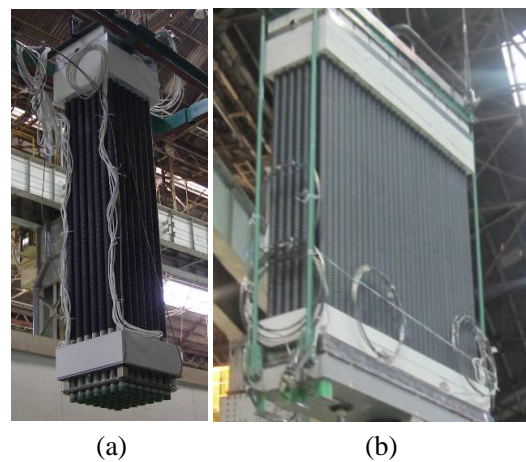
No.	カートリッジ仕様	セルスタック仕様
#1	カートリッジ要素	従来セルスタック
#2	カートリッジ要素	改良セルスタック
#3	カートリッジ要素	実証機用セルスタック
#4	実証機用カートリッジ	実証機用セルスタック

改良セルスタック：酸化還元耐性向上セルスタック  
 実証機用セルスタック：酸化還元耐性向上セルスタックを改良し出力向上

実証機用セルスタックは、直列セル数を 48 から 85 に増加すると共に電解質の膜厚を薄くし出力を向上した仕様である。従来セルスタックと実証機用セルスタックの I-V 特性を図Ⅲ-2.2.10 に示す。I-V 特性は 900℃、大気圧下で燃料に水素 ( $H_2/N_2 = 70/30$ )、酸化剤に空気を使用し、燃料利用率と空気利用率はそれぞれ 60%と 20%一定の条件で計測した。図Ⅲ-2.2.10 より、I-V 特性の傾きから得られる面積比抵抗(ASR: Area Specific Resistance)が  $0.5 \Omega \text{ cm}^2$  から  $0.39 \Omega \text{ cm}^2$  に低下し、性能が向上していることが分かる。



図Ⅲ-2.2.10 実証機用と従来形セルスタックのI-V特性比較



図Ⅲ-2.2.11 カートリッジ構造  
 (a)要素試験用、(b)実証機用

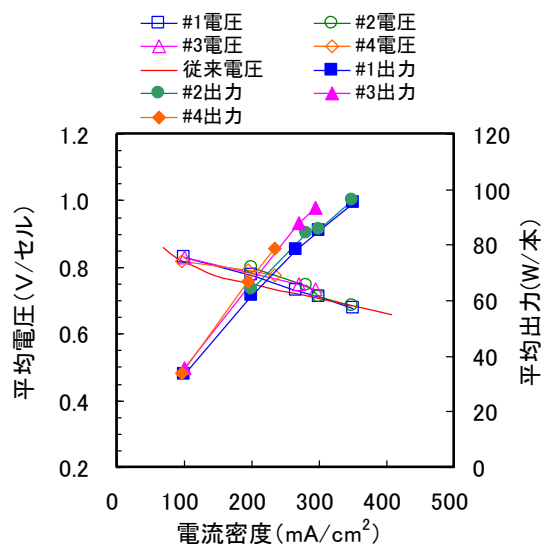
要素試験用と実証機用カートリッジを図Ⅲ-2.2.11 に示す。要素試験用カートリッジはセルスタック約 50 本、実証機用は約 200 本から構成されており、前 PJ と同一サイズで 2 倍のセルスタックを装填している。各カートリッジの I-V 特性を図Ⅲ-2.2.12 に示す。前 PJ の従来カートリッジ電圧≒#1 カートリッジ電圧のため密充填化が良好、#1 電圧≒#2 電圧のため酸化還元耐性を向上したセルスタックは単セルスタック試験同様に良好、#2 電圧<#3 電圧のため実証機用セルスタックの適用によりカートリッジ性能向上、#3 電圧≒#4 電圧のため実証機用カートリッジが良好であることが分かる。

また充填密度の向上と高出力化により容積あたりの発電室の発熱密度が向上するが、図Ⅲ-2.2.13 に示すとおり、No.1～No.4 カートリッジ何れも概ね同一の温度分布が得られ、計画通りの伝熱特性を有していることを確認した。

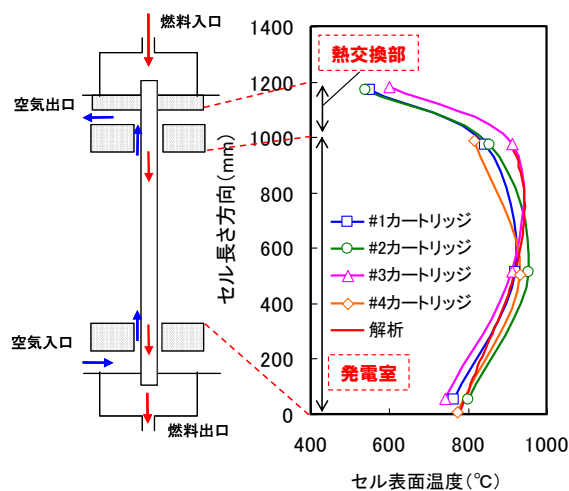
燃料と空気に差圧を印加すると、カートリッジではセルスタック両端のガスシール部から燃料が空気側に漏れこみ、燃焼により周囲の温度が上昇する。インターロック等の過渡応答時に過差圧が引加された時のセルスタックとカートリッジの健全性を確認した。燃料-空気間の差圧を定格の 0.5kPa から 3.0kPa まで逡増したときの発電室内温度の変化を図Ⅲ-2.2.14 に示す。各部とも差圧の増加に伴い温度が上昇し、燃料入口側の発電室上部温度の上昇が顕著であるが、差圧を元に戻すと発電室温度も元に戻り、セルスタック・ガスシール部等の損傷は検知されず、開放点検においても健全であることを確認した。

カートリッジを集合しモジュール化した際、各カートリッジへの空気供給のアンバランスが生じる。この空気供給アンバランスが発電室温度に及ぼす影響を評価するため、燃料利用率を 82% 一定に保持し、空気利用率を SOFC-MGT ハイブリッドシステムでの計画値 30% に対し、26～33% に変化させた結果を図Ⅲ-2.2.15 に示す。空気利用率を 26～33% に変化させても、発電室温度は 750～960℃ であり、セルスタック平均電圧も安定しており、更に金属性管板(燃料供給・排出ヘッダ)も 500℃ 以下に維持できており金属部品の耐久性も問題ないことを確認できた。

実証機用セルスタックと密充填カートリッジの酸化還元耐性および熱サイクル耐性を検証するため、緊急停止により停止するとともに熱サイクル試験を実施した結果を図Ⅲ-2.2.16 に示す。緊急停止信号入力後直ちに、SOFC の負荷は遮断され、SOFC 電圧は直ちに開回路電圧になった。負荷遮断と同時に SOFC のアノード側に窒素 9Nm<sup>3</sup>/h を 2 時間供給し封じ込め、空気は負荷遮断と同時にその圧力で封じ込めて降温した。降温開始後、最も温度の高い発電室中央が約 1.5 時間後に 800℃、約 4.5 時間後に 700℃ に低下した。発電室温度が 200～400℃ に低下後、再昇温し、発電特性が停止前後で同じであることを確認した。



図Ⅲ-2.2.12 カートリッジのI-V特性

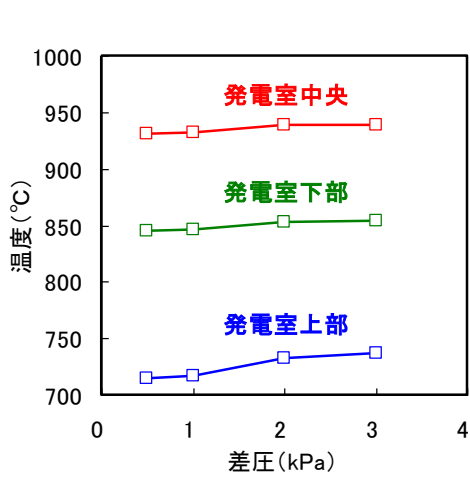


図Ⅲ-2.2.13 カートリッジの温度分布特性

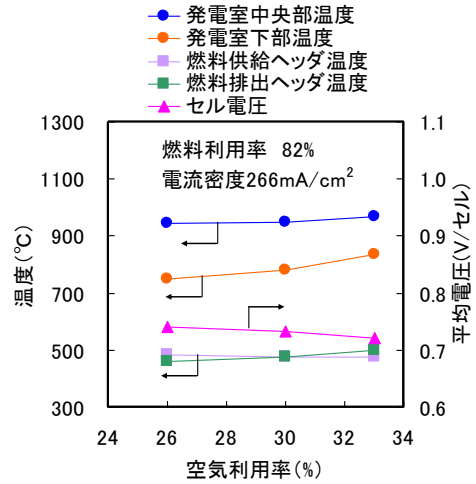
## ② カートリッジ高圧要素技術開発

SOFC-MGT ハイブリッドシステムでは、圧力 0.3MPa-a 程度で運転するが、事業用の大型 GT は MGT に比べ作動圧力が更に高くなる。このため、SOFC-MGT ハイブリッドシステムだけでなく、事業用 GT を適用したトリプルコンバインドシステムまでの、密充填カートリッジの適用可能性を検討した。熱流動解析に

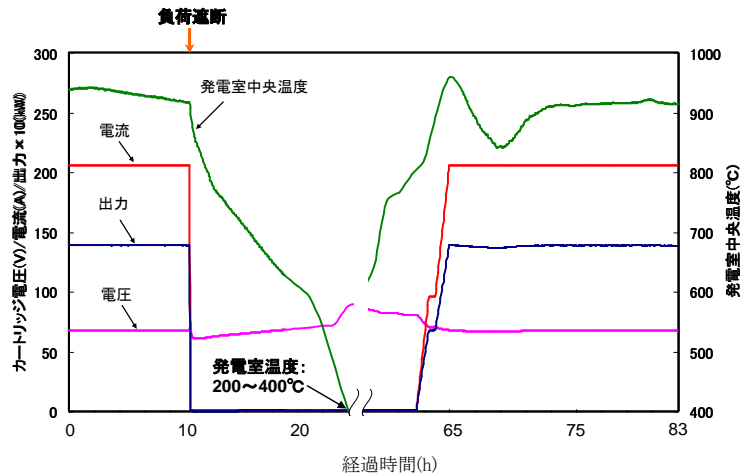
て求めた圧力 2MPa-a でのカートリッジの温度分布を図Ⅲ-2.2.17、酸素濃度分布を図Ⅲ-2.2.18 に示す。全圧に反比例して燃料-空気の流速は低くなるが、2MPa-a でも必要な伝熱量・発電に支障のない温度分布は確保されることを確認した。また発電室全体の酸素濃度分布も、発電に支障の無い範囲であることが分かり、SOFC-MGTハイブリッドシステムだけでなく、大型GTと組み合わせるトリプルコンバインドのような高圧下においても密充填カートリッジを適用できる見通しを得た。



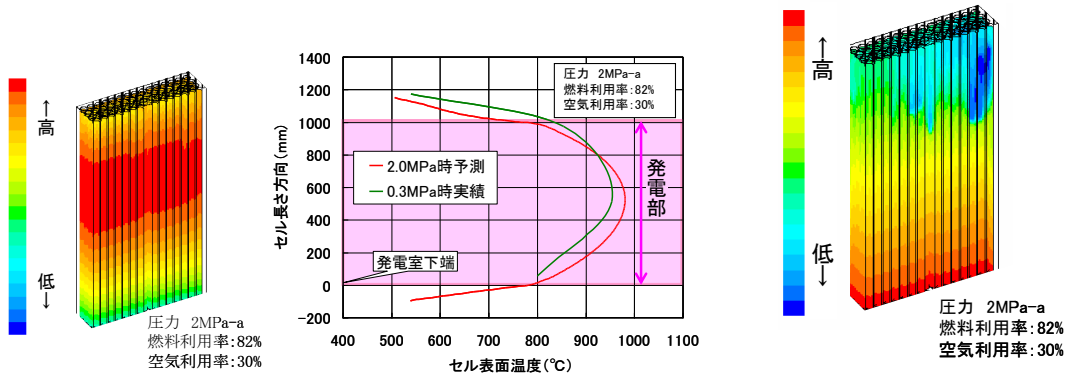
図Ⅲ-2.2.14 燃料-空気間の差圧印加時の発電室温度変化



図Ⅲ-2.2.15 空気利用率変化試験における発電室・燃料ヘッダ温度とセルスタック平均電圧の変化



図Ⅲ-2.2.16 カートリッジの緊急停止試験と熱サイクル試験結果



(a) 2MPa-aでのカートリッジ内温度分布

(b) 2MPa-aでのカートリッジ内軸方向温度分布

図Ⅲ-2.2.18 密充填カートリッジの2MPa-aでの発電室内酸素濃度分布

図Ⅲ-2.2.17 密重点カートリッジの2MPa-aでの発電室内温度分布



### c. 複合発電システム要素技術開発

#### ①複合発電システムの信頼性向上

前プロジェクト及びその継続研究で得られた知見に基づき、システム信頼性向上のための保護動作を検討した。SOFC 側の主な保護要件は、(i) 直流電路短絡の防止、(ii) 燃料-空気間の過大差圧印加の回避、(iii) 燃料欠乏状態の回避、(iv) 酸素欠乏運転の回避、MGT 側の主な保護要件は、(v) 燃焼器失火防止及び過大入熱回避、(vi) MGT 過回転の防止、(vii) 圧縮機サージングの回避が挙げられ、異常発生時にも保護要件が維持できるように保護動作ロジックを製作した。その保護動作を適用し、前プロジェクト及びその継続研究で製作・使用した従来構造の SOFC サブモジュールと図 III-2.2.19 に示すトヨタ自動車製の MGT を使用した試験装置で、複合発電システム試験運転を実施した結果を図 III-2.2.20 に示す。発電 65 時間のときに偶発的な緊急停止、285 時間にて意図的な緊急停止信号を入力したが、保護インターロックは正常に動作し、SOFC モジュール・MGT を損傷することなく安全に停止した。緊急停止時には、負荷遮断、燃料系ガス種の切替等が自動で行われるが、燃料-空気間の差圧は、一時的な変動はあるが規定値内であり、試験運転後も SOFC と MGT に損傷は観測されなかった。



図 III-2.2.19 マイクロガスタービン (トヨタ自動車製)

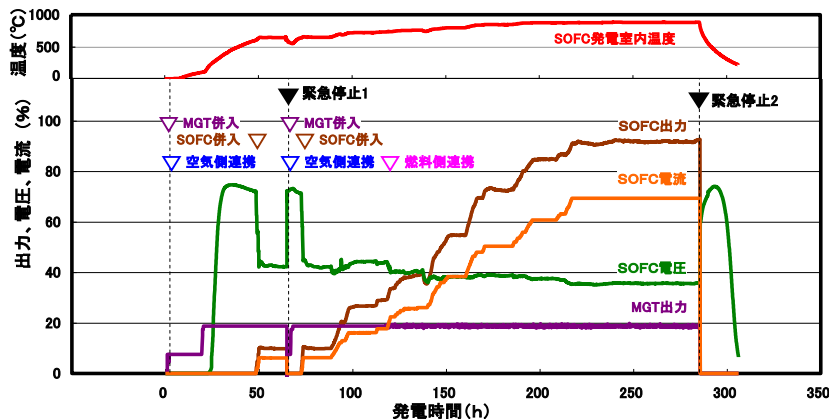


図 III-2.2.20 SOFC-MGT複合発電システム試験運転経過

#### ②複合発電システム起動手順の簡素化・迅速化

##### (i)起動手順の簡素化

従来の起動手順は、最初に MGT を単独で起動・併入し、MGT 圧縮機からの空気を SOFC に通気 (空気側連携)してモジュールを昇圧・昇温後、SOFC の負荷を上げて排燃料の発熱量・温度が上がったところで、SOFC の排燃料を MGT 燃焼器 (燃料/空気共に連携)に投入し、複合発電状態を確立していた。これは、発電前の SOFC 燃料排出ガスは可燃成分を含まず温度も低い置換ガスであるため、MGT 燃焼器の安定燃焼に支障をきたすおそれがあったためである。

本プロジェクトでは、起動手順を簡素化するため、起動時に MGT 圧縮機の空気で SOFC を昇圧し通気を開始した後、SOFC の燃料系置換ガスを MGT 燃焼器に供給することを検討した。トヨタ自動車にて MGT 単体で常温の窒素ガスを燃焼器に投入する試験を行い、安定運転ができることを確認した後、SOFC-MGT 複合発電試験装置にて SOFC からの常温の置換ガスを MGT 燃焼器に投入する試験を実施した。MGT への置換ガス投入時の経過を図 III-2.2.21 に示す。システムの空気側連携後に、SOFC 燃料系からの置換ガスを MGT に投入したとき、MGT は回転数・燃料流量を正常に制御し続け、起動時に燃料系も連携した運転に移行できることを確認した。

##### (ii)SOFC 昇圧の迅速化

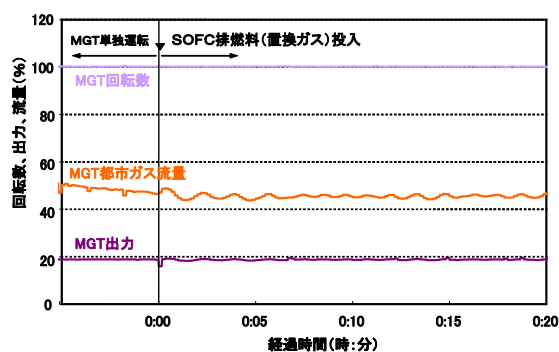
起動時間を短くするため、SOFC 昇圧時間の短縮について検討した。起動前の冷態では、SOFC 圧力容器内は常温・常圧の状態となっている。MGT を起動した後、MGT 圧縮機からの空気を SOFC 圧力容器に流通し、昇圧を行う。昇圧を迅速に行うには、SOFC 圧力容器への空気流入量を増加することが好ましいが、その分 MGT タービン側に流入する空気流量が減少し、MGT が発電出力を維持できなくなる。このため、本試験では MGT が発電出力下限を下回らないように SOFC の圧力容器昇圧時の空気流入量を調整した。試験結果を図Ⅲ-2.2.22 に示す。MGT の出力を変化させる運用にしたことで、図Ⅲ-2.2.20 の試験に比べ、昇圧に要する時間を約 1/2 に減少させることができた。

### (iii)SOFC 昇温・負荷上げの迅速化

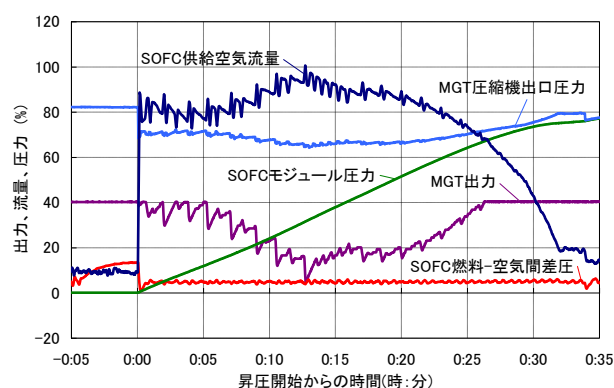
起動時の燃料連携と SOFC 昇圧法を変更し、冷態から昇温・発電試験を実施した結果を前プロジェクトの結果と比較して図Ⅲ-2.2.23(a)に示す。SOFC 圧力容器を昇圧した後、MGT 圧縮機出口の再生熱交換器を経た温空気を SOFC 空気系に流通し、SOFC 圧力容器内の配管・SOFC モジュールを昇温した。発電室内温度が 400℃程度になるまでは、MGT からの温空気で加熱し、その後は SOFC の空気系内で燃料を燃焼し発電室内を昇温した。この試験では燃料燃焼により発電室内を 850℃程度まで昇温した後 SOFC を併入した。従来のシステム(図Ⅲ-2.2.23 (b))では、MGT と SOFC の間に設けられた燃焼器で SOFC に供給する空気を加熱していたが、よりセルスタック近傍で燃焼させることにより、400℃以降の昇温速度が大幅に高められていることが分かる。また従来は発電室を 600℃程度まで昇温した後、SOFC の電流負荷を上げてセルスタック自体の発熱を利用して昇温していたが、発電室を 850℃程度まで昇温できているため、SOFC の内部抵抗が小さく、SOFC の電流上昇レートを大きく取ることができた。図Ⅲ-2.2.23(a)では、400℃到達前に、実証機を模擬するための温度調整に時間を要したが、昇圧と昇温方法を改善すると共に運転制御を自動化したことにより、冷態起動 24 時間を実現できる見通しを得た。

SOFC-MGT 複合発電システムの運用性向上を検討するため、併せてホットリスタート試験を実施した。これは、昇温に要する時間は 400℃以下の領域が大部分を占めており、運用方法によっては、発電システムを停止して数時間以内に再昇温し、発電システムを起動することも考えられるためである。本試験では発電室温度 600℃から再昇温した結果、温態起動は 8 時間で実施できる見通しを得た。

また前プロジェクトで開発した SOFC モジュールは、本プロジェクトにおいても使用を継続し累積 3500 時間以上の運転と 6 回の起動停止を実施したが、性能低下は観察されなかった。



図Ⅲ-2.2.21 起動時のMGTへの置換ガス投入試験結果



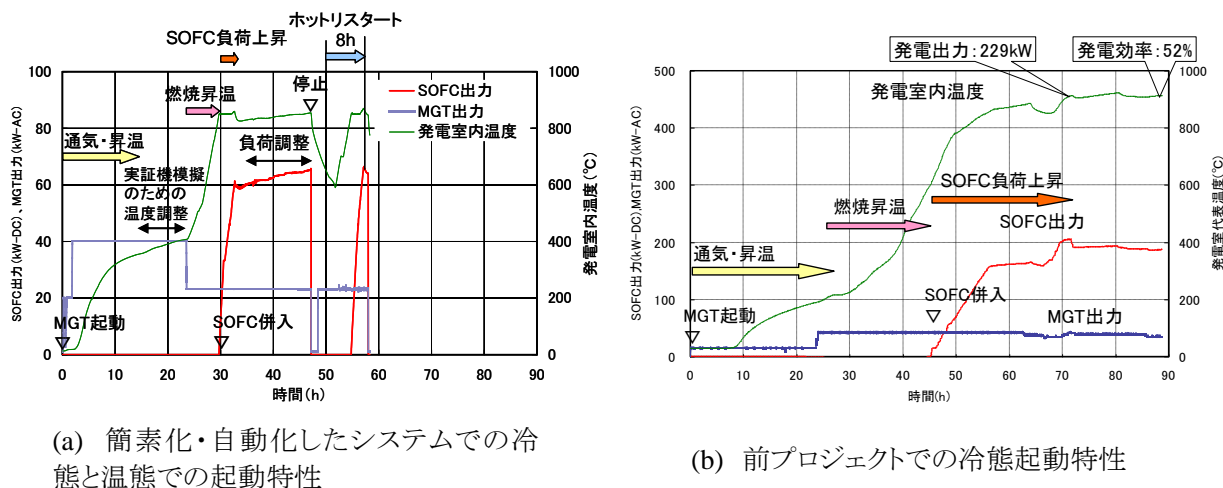
図Ⅲ-2.2.22 SOFC昇圧時間の短縮試験結果

### ③複合発電システムのコンパクト化・簡素化

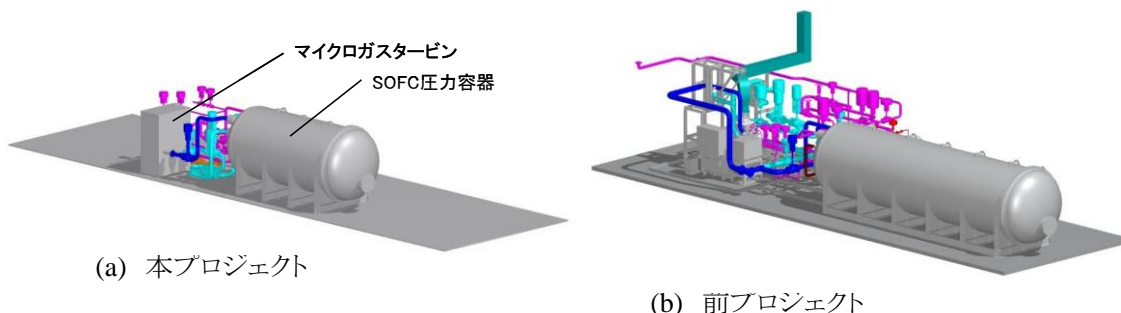
システム要素技術検証試験結果を基に、SOFC と MGT の保護要件を満たした上でシステム全体を簡

素化するための系統構成を検討した。

図III-2.2.11(b)と図III-2.2.19 に示した密充填カートリッジとトヨタ自動車製のマイクロガスタービンを適用した SOFC-MGT 複合発電システムの全体配置を検討した結果を図III-2.2.24(a)に示す。本研究で得られた成果を基に、信頼性を維持した上で高圧運転対応を考慮した制御・弁配置・配管経路等と密充填カートリッジを適用した SOFC モジュール構造を検討した結果、図III-2.2.24(b)に示す前プロジェクトで製作した 200kW 級 SOFC-MGT コンバインドサイクルシステムに比べ、1/2 程度の投影面積になることが見込まれる。



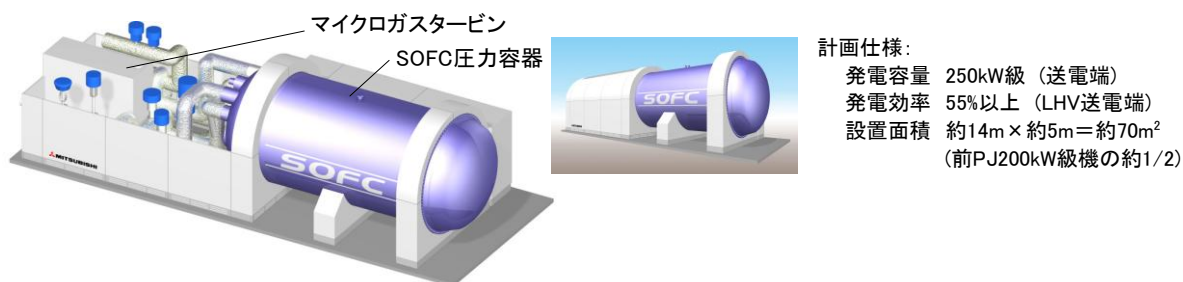
図III-2.2.23 SOFC-MGT複合発電システムの起動特性比較(前プロジェクトのSOFCモジュールを使用)



図III-2.2.24 200kW 級 SOFC-MGT コンバインドサイクルシステム全体配置図

#### d. 250kW 級 SOFC-MGT 複合発電システム実証機の開発

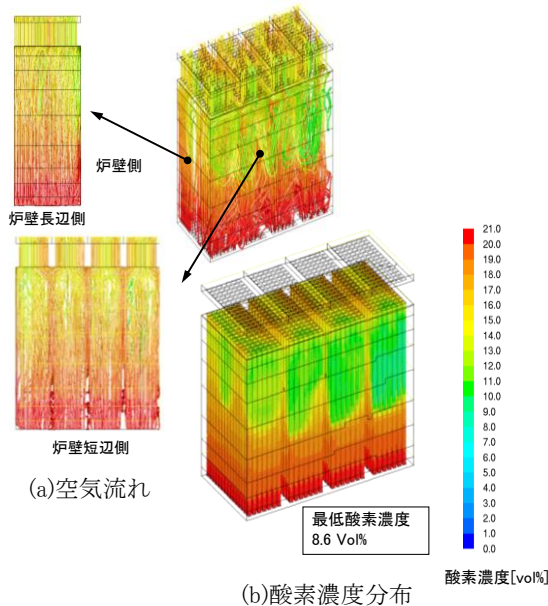
上記の成果を踏まえ、信頼性を向上した上でコンパクト化・簡素化を進めた 250kW 級 SOFC-MGT 複合発電システム実証機を図III-2.2.25 に示す。密充填カートリッジとトヨタ自動車製の 50kW 級マイクロガスタービンを適用した 250kW 級(送電端)のシステムであり、最大発電効率は 55% 以上(LHV 送電端)の計画である。設置面積は前プロジェクトの 200kW 級システムの約 1/2 である 70m<sup>2</sup>を計画している。



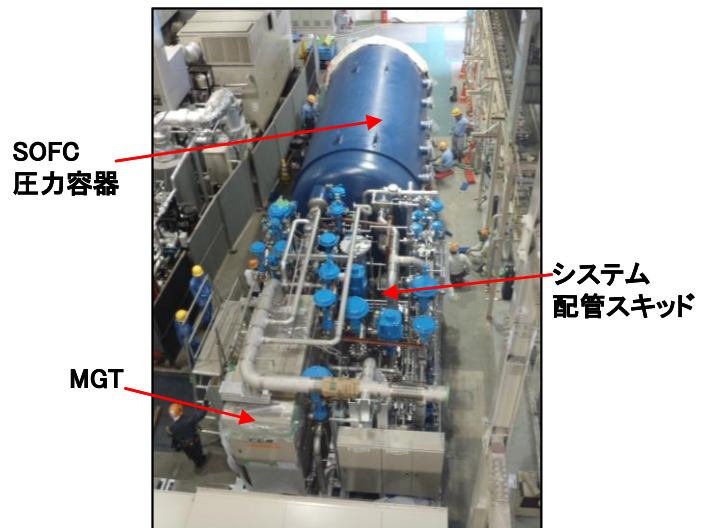
図III-2.2.25 250kW 級 SOFC-MGT 複合発電実証機

複数台のカートリッジを並べた場合、流路の広いカートリッジ間に空気がより多く流れ、セルスタック部の酸素濃度が低くなる可能性がある。このため、実証機でのカートリッジ配列を想定した場合の内部での空気流れと発電部での酸素濃度をシミュレーションした。計算はカートリッジ 4 台の 1/2 配列モデルで実施した。カートリッジ内部の空気流れ状況と酸素濃度分布を図Ⅲ-2.2.26 に示す。カートリッジ間での空気流れの入り乱れはないことを確認した。またセル温度が低くなる外周部で部分的に下降流(緑色の流線)が生じ、酸素濃度が低下する傾向が見られるが、最低酸素濃度は約 9%であり、発電性能に影響を及ぼす程の低酸素濃度領域は発生しないことを確認した

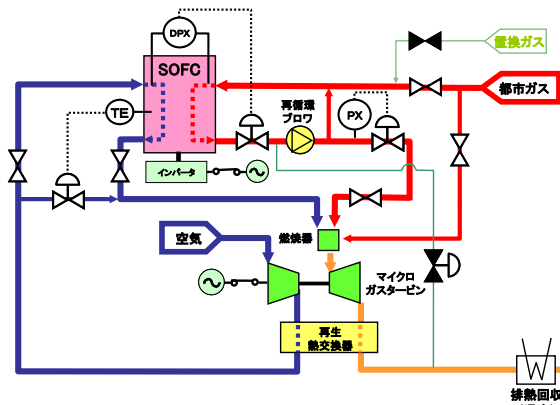
250kW 級 SOFC-MGT 複合発電システム実証機の主系統を図Ⅲ-2.2.27、性能計画を図Ⅲ-2.2.28 に示す。基本系統は前プロジェクトと同様であるが、温水による排熱回収装置も採用したコージェネレーションシステムであり、ベントスタックも 1 本に削減する等の改良を施している。補機動力は燃料再循環用のプロワ動力が主であり、補機動力を差し引き、送電端出力 250kW、送電端効率 55% (LHV)、総合効率 73% を実現する計画である。図Ⅲ-2.2.29 に 250kW 級実証機の据え付け状況を示す。工事を順調に進めており、機器単体試運転、システムの気密試験等の冷態での試運転を実施後、平成 24 年度下期より計画通り運転試験を開始する予定である。



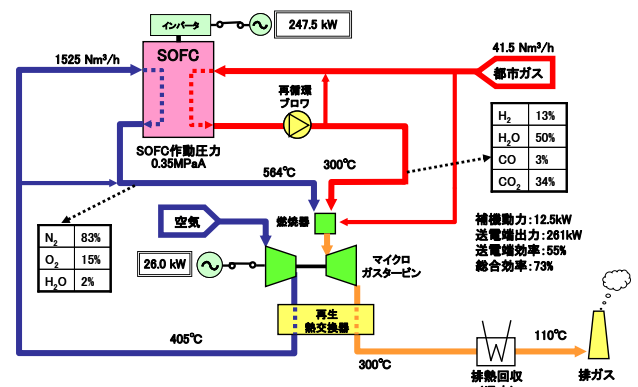
図Ⅲ-2.2.26 250kW 級 SOFC-MGT 複合発電実証機のモジュール内の空気流れと酸素濃度分布解析結果



図Ⅲ-2.2.29 250kW 級 SOFC-MGT 複合発電実証機の据付状況



図Ⅲ-2.2.27 250kW 級 SOFC-MGT 複合発電実証機の主系統図



図Ⅲ-2.2.28 250kW 級 SOFC-MGT 複合発電実証機の性能計画

#### (4)まとめ及び課題

##### a. まとめ及び成果

SOFC-ガスタービン複合発電システムの信頼性向上による高圧運転技術を確立するため、SOFC 特有の要素であるセルスタック・モジュール、複合発電システムとしての要素技術を開発した。セルスタックでは、インタコネクタ高密度化等の改良により、実運用で想定される酸化還元サイクルを受けても損傷しないセルスタックを開発した。また基礎的・要素的技術開発と連携し、耐久性 0.25%/1000 時間以下を実現すると共に、前プロジェクトで 3000 時間以上運転したセルスタックについて解体分析し、加圧下において微構造変化と元素拡散は常圧と同様であり、Cr 被毒も抑制できていることを確認した。

モジュールでは、密充填形カートリッジを設計・製作し発電特性・伝熱特性が計画通りであり金属製燃料ヘッダの耐久性も確保されていることを検証すると共に、実証機で想定される空気流量アンバランス、過差圧、インターロックが発生してもセルスタック・カートリッジが健全であることを確認した。更に、密充填カートリッジの事業用 GT でのトリプルコンバインドシステムへの適用可能性を検討した結果、発電に支障のない伝熱量、温度分布、酸素濃度分布が得られることを確認した。システムでは、3000 時間以上発電した SOFC モジュールとトヨタ自動車製 MGT を連携したシステムを使用し、インターロック時の保護動作を検証すると共に起動条件の簡素化、迅速化について検討し、冷態 24 時間、ホットリスタート 8 時間を実現できる目処を得た。

これらの成果を基に、温水回収のコージェネレーションを適用した 250kW 級 SOFC-MGT 複合発電システムを製作中であり、SOFC 圧力容器とシステム配管スキッドを共同実施先である東京ガス千住サイトに据付け、順調に工事を進めている。平成 24 年度下期より運転試験を行い、発電効率 55% (LHV 送電端) を達成する計画である。

##### b. 今後の課題

セルスタックについては、酸化還元耐性を改善したセルスタックの 250kW 級 SOFC-MGT ハイブリッドシステム実証機での検証を進めるとともに、事業用大型 GT との連携を実現するため、「固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システム要素技術開発」プロジェクトにおいて、2MPa-a レベルでの性能検証と経時電圧変化特性を検証し、高圧下での課題を明確にするると共に基礎的・要素的技術開発を継続し、改善を進めていく。

モジュールについては、密充填カートリッジをハイブリッド実証機に適用し、性能、耐久性、信頼性を検証すると共に、セルスタック同様、より高圧下での過酷試験・破壊試験を実施して課題を明確にし、トリプルコンバインドの実現に向けた設計に反映する。

信頼性・耐久性を高めたセルスタック・モジュールの運用限界に基づき、複合発電システム全体でのフェールセーフシステムを適用した実証運転にて、発電効率及びシステムの健全性と耐久性を検証するとともに、加圧形燃料電池システムに義務付けられている常時監視に関する規制緩和も実現する必要がある。また、SOFC-MGT 複合発電システムの実用化には、信頼性を維持した上で競合機種と伍するコスト競争力を実現するばかりでなく、ユーザーニーズに応じた商品性の向上を実現する必要がある。更には事業用 SOFC-GT-ST から構成されるトリプルコンバインドサイクルの実現に向けたシステム要素技術開発も行う必要がある。

#### (5) 成果の意義

前プロジェクトでは、200kW 級 SOFC-MGT 試験機を製作・運転し、発電効率 52% (LHV 送電端)以上、最大出力 229kW-AC(発電端)と目標を超える成果を得た。その後、3,000 時間の運転を実施し、経時

耐久性・熱サイクル耐性が目標値以上であることを確認した。

SOFC 複合発電については、米国 DOE プロジェクトで **Siemens-Westinghouse** 社(当時)が実施した例があるものの、前プロジェクトの成果は効率・出力規模とも世界最高レベルである。

現プロジェクトでは、実用を目指して信頼性向上・高圧運転技術開発に取り組み、セルスタック・モジュールの信頼性向上・高圧運転技術開発に関する要素的成果を得るとともに、複合発電システム要素試験では、「起動停止・緊急時の安全停止を可能とする」ことを実験的に確認した。現プロジェクトのこれらの成果を活用し、24 年度下期の実証機検証を経て、数百 kW 級 SOFC-MGT 複合発電を実用に供することを目指している。また本プロジェクトで得た成果より、今年度、「固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システム要素技術開発」プロジェクトを新たに受託し、発電効率 70%を達成するトリプルコンバインドサイクルシステムの実現に向けて新たな一歩を踏み出すことができた。

プロジェクト終了後の H25 年度から、SOFC-MGT 複合発電システムをユーザに提供する計画である。実用化により、数百 kW 級発電装置市場に極めて高効率で CO<sub>2</sub> 排出量の少ない新機種が投入され、特に熱電比の小さいユーザにとって新たな選択肢が創造されるとともに、国内の機器・補機メーカー、弁・計器類メーカー、材料メーカー、原材料メーカーや工事業者を含めた雇用の拡大が促進され、大きな市場創生効果が期待されると共に国内の産業振興へつながる。

## IV. 実用化、事業化の見通しについて

### 1. 実用化、事業化の見通し

本事業では、2004～2008年度に実施した「固体酸化物形燃料電池システム技術開発」において明らかになった実用化に向けた課題である「耐久性・信頼性向上」、「低コスト化」、「実用性の向上」を中心に研究開発を推進してきた。また、本事業と並行実施している「固体酸化物形燃料電池実証研究」において実証運転されているSOFCシステムの耐久性に係る課題についても本事業にフィードバックされ、早期解決に導いていく取り組みが為されている。

「耐久性・信頼性向上のための基礎研究」では、耐久試験後のセルスタックの劣化部位を集学的に解析・解明することにより、製造手順と劣化部位との相関を明らかにするなど、セルスタックの改善指針を得ることができた。また、不純物による劣化の一般的モデルを構築して、加速試験のベースとなる知見を得ることができた。さらに、熱膨張や還元膨張を定量的解析可能な機械的信頼性評価技術の構築が進んだ。この結果、参加企業のセルスタックの耐久性は大幅に向上し、最終目標である「劣化率0.25%/1000時間、250回の起動停止を見通す」ことができた。

本事業で得られた知見、例えば、LSC系空気極を用いるセルスタックにおいては空気極/電解質界面の中間層の改良が耐久性向上に重要なこと、合金インターコネクタを使用するセルスタックでは劣化率の電流密度依存性が大きいこと等は企業側に直ちにフィードバックされ、その効果は「固体酸化物形燃料電池実証研究」やセルスタック耐久試験において検証された。こうした取り組みにより、I章3節で述べたように、2011年11月にJX日鉱日石から、2012年4月に大阪ガス・トヨタ・アイシン精機から、SOFCエネファーム（商品名「エネファーム・タイプS」）としての商品化という形で結実した。小型SOFCの商品化は世界初であり、2011年度中に既に700台以上のシステムが出荷されていることは、本事業の成果として特筆される。また、今後の改良モデルに関しても、本事業の成果が活用されることが期待される。

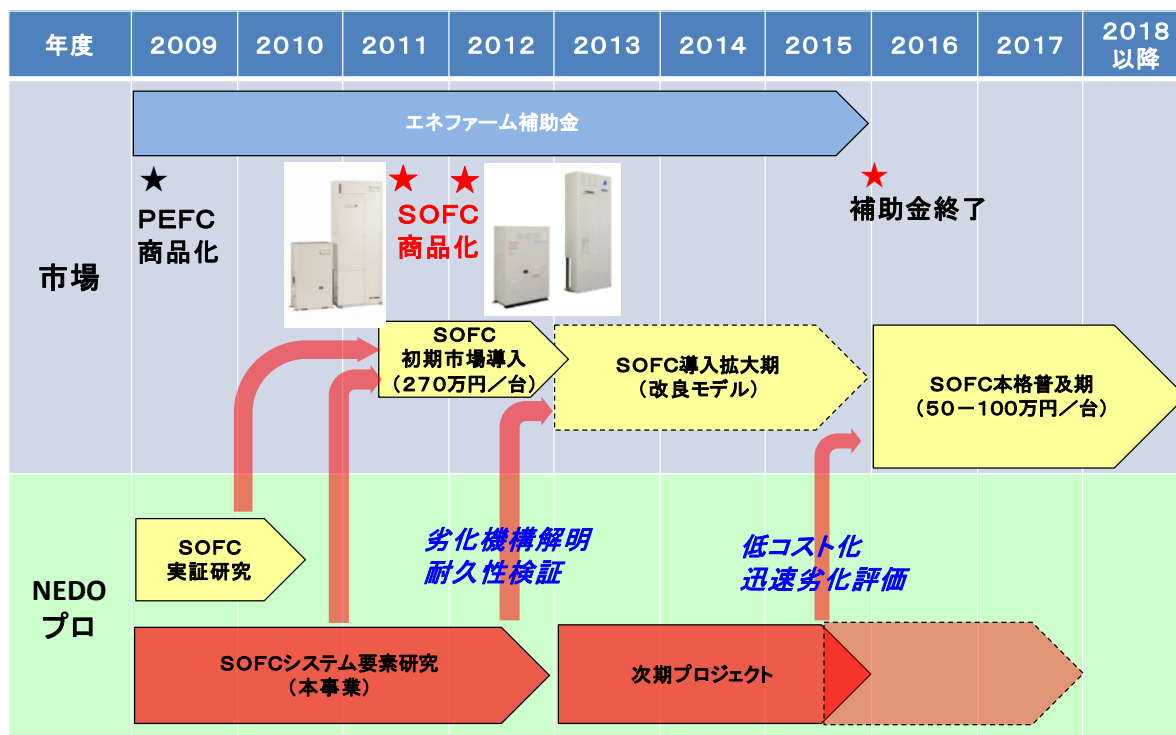
ただし、2015年度頃が想定されるSOFCエネファームの本格普及に向けては、より高いレベルでの耐久性・信頼性の向上と低コスト化の両立が必須であり、そのためには設計段階から低コスト化を目指したセルスタックの開発、およびその迅速な耐久性検証方法の開発が不可欠である。さらに中長期的な要素技術課題としては、SOFCセルスタックのロバスト性・対レドックス耐性の向上、発電出力密度の向上、作動温度低減、製造プロセスの簡略化などが重要と考えられる。

原料・部材の低コスト及び低コストセルスタック・モジュールの開発」では、金属インターコネクタの耐久性を大幅に向上することができ、合金設計の方針を確立することができた。また、セルスタックの低コスト化を実現し得る材料の開発方針を決定することができた。

さらに、「運用性向上のための起動停止技術開発」では起動停止250回の耐久性達成の見通しが得られつつあり、「超高効率運転のための高圧運転技術」では起動停止や緊急時における安全停止動作を確認することができた。

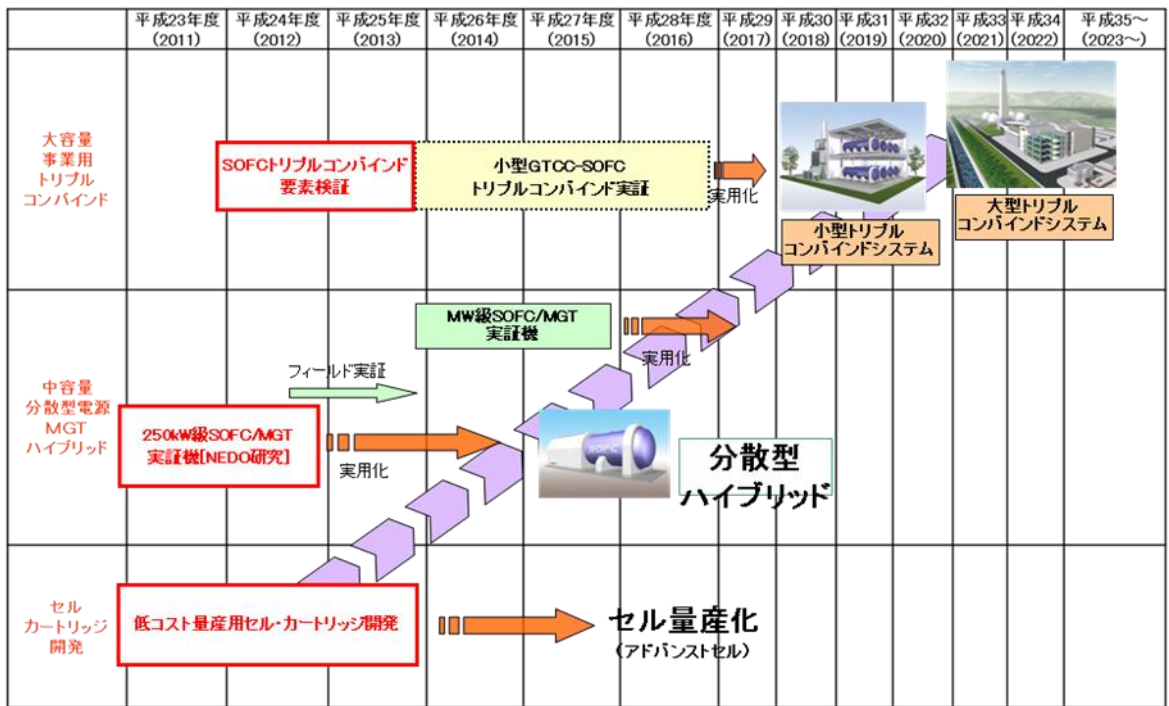
中容量定置用SOFC/GTハイブリッドシステム（250kW級）に関しては、本事業において2012年に実証機検証が計画されており、プロジェクト終了となる2013年度からユーザーに提供することが検討されている。この成果は、2012年度開始の事業「固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システム要素技術開発」において、MW級トリプルコンバインドシステムの開発にも適用されている。

以上のように、本事業の成果により、SOFCシステムはまず小型家庭用システム「エネファーム・タイプS」として商品化され、中規模～大規模システム開発も実証研究が開始された。今後は、2015年度以降に見込まれる本格普及機へ向けた、低コスト・高耐久セルスタックの開発、および劣化機構の迅速評価手法の開発が不可欠である。現在国内に主要なセルスタック供給者が不在である小中規模システム（2～100kW級）、及び2012年度より検討を開始している事業用大規模システムについても、それぞれに適用可能な低コスト・高耐久セルスタック開発と劣化迅速評価手法開発が、その成否を分ける必要不可欠な技術開発と考えられる。



図IV-1 事業化シナリオ（家庭用システム（エネファーム））





図IV-2 事業化シナリオ（産業用、事業用）

## 2. 波及効果

本事業は、S O F Cについて熱力学的・化学的・機械的解析および三相界面の微細構造解析による劣化機構の解明と加速劣化因子の抽出、劣化対策の立案・検証、余寿命評価式の確立等を産学が協調して進めており、燃料電池、電気化学、材料科学・技術の進歩に大きく貢献するものである。その波及効果として以下の①～④が挙げられる。

### ① 低温形電気化学デバイスへの応用

局所抵抗近似に準拠したモデルの適用性は広く、他の高温デバイスあるいは低温形の電気化学デバイスにも応用が可能である。シミュレーション技術においては、通常の高温システムに必要な要素に加え、電気化学的反応と機械的安定性の評価が不可欠である。このような複雑なシステムのシミュレーション技術は、低温形電気デバイスなどにも適用できる。

### ② 電極微構造の解析技術

本事業で確立した電極微構造の三次元像の構築と利用あるいはSIMSによる局所的な濃集の観察は、どの工学的な分野にも応用できるものである。

### ③ 高温不純物解析技術

従来、不純物濃度は0.1%程度のものしか議論されてこなかった。本事業で取り扱ったように1 ppmレベルで解析すると、大きな視野が開かれる。

### ④ プロジェクトマネジメントの他分野への適用

燃料電池のように競合技術が存在し、その技術に対向して導入メリットを勝ちとって行くためには、コスト低減とシステムの開発を同時並行的に行わなければ成らない。本事業では、本格的な産学の連携によって、先進的基盤技術を固めることで、このような技術の発展を促すことができている、他分野のプロジェクトにも応用できる。