

「固体酸化物形燃料電池等実用化 推進技術研究開発」

事業原簿

担当部	国立研究開発法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構 次世代電池・水素部
-----	--

—目次—

概 要	2
プロジェクト用語集	20
1. 事業の位置付け・必要性について.....	26
1. 事業の背景・目的・位置づけ	26
2. NEDO の関与の必要性・制度への適合性	28
2.1 NEDO が関与することの意義	28
2.2 実施の効果（費用対効果）	28
2. 研究開発マネジメントについて	29
1. 事業の目標	29
2. 事業の計画内容	43
2.1 研究開発の内容	43
2.2 研究開発の実施体制	45
2.3 研究開発の運営管理	47
2.4 研究開発成果の実用化・事業化 [*] に向けたマネジメントの妥当性	50
3. 情勢変化への対応	51
4. 中間評価結果への対応	52
5. 評価に関する事項	54
3. 研究開発成果について	58
1. 事業全体の成果	58
2. 研究開発項目毎の成果	59
4. 成果の実用化・事業化に向けた取組及び見通しについて.....	86
1. 成果の実用化・事業化に向けた取組及び見通しについて	86
 (添付資料)	
• 添付-1 プロジェクト基本計画	
• 添付-2 技術戦略マップ（分野別技術ロードマップ）	
• 添付-3 プロジェクト開始時関連資料（事前評価結果、パブリックコメント募集の結果）	
• 添付-4 研究成果詳細	

概 要

		最終更新日	2019年8月30日
プロジェクト名	固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発事業	プロジェクト番号	P13001
担当推進部/ P Mまたは担当者	次世代電池・水素部 原大周（2017年4月～2019年7月現在） 新エネルギー部 大平英二（2013年4月～2017年3月）		
0. 事業の概要	<p>我が国におけるエネルギー供給の安定化・効率化、地球温暖化問題等の解決のためには、新エネルギー技術の開発・コスト削減及び利便性や性能の向上への取り組みが極めて重要である。固体酸化物形燃料電池（以下「SOFC」という）は、発電効率が高く、多様な燃料にも対応が可能であり、小型分散型から大規模火力代替システムまで広い適応性を持つことから、その実用化が強く望まれている。SOFC 型エネファームは 2011 年に実用化されたが、2016 年以降を見込む本格普及に向けて更なる大幅なコストダウンと耐久性の両立が必須であるとともに、業務用、発電事業用の SOFC システムは未だ研究開発段階であると言える。</p> <p>本事業は、SOFC システム等の本格普及へ向けて、低コストと高耐久性を両立したセルスタック開発に寄与する耐久性迅速評価技術を確認するものである。また、業務用中容量（数～数 100kW）から発電事業用大型システムの実用化へ向けた技術実証と要素技術開発を実施するとともに、SOFC の用途拡大を目指す。</p>		
1. 事業の位置付け・必要性について	<p>（1）政策上の位置付け</p> <p>燃料電池は、燃料が有する化学的エネルギーを直接電気エネルギーに変換する発電装置であるため、回転等の運動エネルギーを介す従来型の発電機関より本質的に高いエネルギー効率を発揮することが可能であるとともに、発電時に二酸化炭素を発生しない。そのため、我が国に課せられた地球温暖化ガス排出抑制目標の達成には燃料電池の大量普及が必要不可欠であり、運輸分野や電力・熱供給分野での応用に向けた研究開発を進めることが肝要である。</p> <p>このような状況を踏まえて、環境負荷低減、エネルギーセキュリティの確保、新規産業創出などの社会的課題の解決の方策として、「エネルギー基本計画」（経済産業省、2010年6月）では、エネルギー源のベストミックスを確保するためには燃料電池の技術開発の促進と内外への普及拡大によって天然ガスシフトを推進すべきであること、燃料電池の普及に向けた最大の課題であるコストの低減に向けて基礎的な部分も含めた技術開発を推進するとされた。さらに 2014 年 6 月に策定された第 4 次エネルギー基本計画では水素エネルギーを活用する社会（水素社会）への期待が謳われた。そしてこれを受けて経済産業省は「水素・燃料電池戦略ロードマップ」（2014年6月策定、2016年3月改訂、2019年3月改訂）を示し、水素社会の実現を目指して定置用燃料電池や燃料電池自動車（以下、「FCV」という。）、水素ステーション等の普及目標とともにそれらの実現に向けて取り組むべき具体的な行動を明確化して官民で共有するためのアクションプランを提示した。また、2018年7月に策定された第 5 次エネルギー基本計画では、我が国のエネルギー政策における水素エネルギーの位置づけが強調された。このように水素関連政策が重要視されつつある中、2017年12月には安倍首相のイニシアティブにより 2050 年を視野に将来目指すべきビジョンであると同時に、その実現に向けた 2030 年までの行動計画として、世界で初めての水素に関する国</p>		

	<p>家戦略である「水素基本戦略」が策定され、燃料電池の研究開発の更なる推進と多用途化が謳われた。</p> <p>(2) NEDO が関与する意義</p> <p>パリ協定の目標遵守やエネルギー源多様化のセキュリティ確保の観点等を踏まえて 2017 年末に水素基本戦略が策定されると共に 2018 年には水素閣僚会議が開催されるなど、安倍首相イニシアティブによって水素社会の実現が我が国政府の重要政策に位置付けられている。しかし、水素利用の飛躍的拡大に欠かすことのできない燃料電池には性能やコストの課題が多いため、大学研究機関等の知見を結集した複雑かつ高度な長期的研究が必要である。このため、燃料電池は未だ民間主体の自立的ビジネスの成立には至っておらず、NEDO による研究開発支援が必要である。</p> <p>さらに、本事業に係る知見は、長年燃料電池に係る研究開発マネジメントを実施してきた NEDO に最も集積されている。具体的には、「固体酸化物形燃料電池実証研究」(2007 年～2010 年)、及び「固体酸化物形燃料電池システム要素技術開発」(2008 年～2012 年) の成果等により、2011 年 11 月に SOFC を用いた家庭用コジェネレーションシステム「エネファーム・タイプ S」が世界で初めて実用化され、高い発電効率を実証した。しかし、その本格普及のためには低コスト化と高耐久化の両立が喫緊の課題となっている。一方、数～数 100kW の中容量システム、それ以上の大容量システムは、未だに技術開発の途上にある。</p> <p>こうした状況から、NEDO が適切な技術課題を設定するとともに多数の研究機関等による開発体制を構築して事業を実施することが最も効率的である。</p> <p>(3) 実施の効果</p> <p>SOFC システムの普及が進めば、市場創出効果と温室効果ガス排出削減効果は大きい。また、SOFC セルスタック及びシステム関連の技術はセラミクス材料、金属材料、電気化学、空力学、熱力学、燃焼、電機等の広範囲で高度な科学技術を必要とし、かつ高度な設計・製造技術も必要となることから、本事業を通じて当該分野の研究開発、並びに若手研究者・工学技術者の育成を促進できる。</p> <p>更に、本事業で開発対象とする燃料電池本体のみならず、その製造過程において様々な民間企業の当該分野へ参入することにより当該分野の裾野産業の強化と拡大を誘発し、電気化学分野のみならず燃料電池を構成する材料分野、システム分野や各アプリケーション分野等の関係者の育成が期待できる。</p>
<p>2. 研究開発マネジメントについて</p>	
<p>事業の目標</p>	<p>①アウトプット目標</p> <p>研究開発項目 (a) 固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究</p> <p>本項目では、2015 年度と 2017 年度にそれぞれ中間目標 1 と中間目標 2 を、最終年度である 2019 年度に最終妄評を設定した。具体的には以下のとおり。</p> <p>「中間目標 1」及び「中間目標 2」</p> <p>エネファームの本格普及期を想定し、その実現に必要な低コストと高耐久性を両立した SOFC セルスタック、SOFC システムの開発が民間企業において進められている。本研究開発項目 (a) では、この開発を加速するため、耐久性迅速評価方法を確立する。前プロジェクト</p>

トで開発した熱力学的解析、化学的解析、機械的解析、三相界面微細構造解析、耐久性評価方法等を高度化し、劣化要因に応じて有効な場合には加速劣化試験やシミュレーション技術等と複合させることにより、比較的短時間の耐久試験における SOFC の微小な劣化現象を的確に評価・解析し、実用レベルの耐久性を迅速かつ高精度に検証する。この耐久性迅速評価方法の確立により、セルスタック開発サイクルを短縮させて効率化する。

NEDO 技術開発ロードマップ（2010 年度策定）における小容量定置用システムの目標、2020 年度以降（普及～本格普及段階）「発電効率 55% LHV 以上、9 万時間以上の耐久性見通し、システム価格 40 万円/kW 以下」に照らし、本研究では、中間目標 1（2015 年度）として、「9 万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を開発する。また、この評価方法を耐久試験後の実セルスタックに適用し、その妥当性を検証すると共に課題を抽出する」とした。また、「9 万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を確立する」ことを中間目標 2（2017 年度）とする。

「最終目標」

新たな課題・ニーズとして業務用 SOFC の普及導入を図るためモノジェネレーションも視野に入れ、高効率化を目指した SOFC システム（発電効率 65%以上（LHV））が挙げられる。中間目標 1 および 2 により構築された評価・解析手法を適用して発電効率 65%以上（LHV））を目指すためのコンセプトを創出する。

なお、効率とコストに関しては、システム設計等による部分が大きいため本項目では特に目標値を設定しないが、産業界との継続的な意見交換により、上記ロードマップ目標値から逸脱しないよう適切にマネジメントする。

研究開発項目（b）固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証

本項目では、2017 年度と 2019 年度にそれぞれ中間目標と最終目標を設定した。具体的には以下のとおり。

家庭用 SOFC システムは 2011 年度に実用化されて技術が成熟されつつあるが、業務用 SOFC システムは引き続き鋭意基礎研究が継続されている。本研究開発項目（b）では、業務用 SOFC システムの実証試験を実施し、その導入効果の検証及び実用化へ向けた課題抽出を行うことにより、これらシステムの開発及び初期導入を加速させる。業務用として数～数 100kW の中容量 SOFC システムの実負荷条件下での実証試験等を対象とする。

本実証は、提案公募として実施するため、目標はテーマ毎に決定する。ただし、2018 年度より実施した実証事業においては発電効率 60%（LHV）以上の小型 SOFC システムを対象とすることとした。

NEDO 技術開発ロードマップ（2010 年度策定）における中容量（数～数 100kW）定置用システムの目標として、2020 年度頃まで（初期導入）「発電効率 45%LHV 以上、4 万時間以上の耐久性見通し、発電システム価格約 100 万円/kW」と設定されているものの、発電効率について家庭用システムでは既に 45%LHV が実現されていることから、本実証では「発電効率 50%LHV 以上、4 万時間以上の耐久性見通し、発電システム価格約 100 万円/kW 以下」の実現に貢献するものとする。加えて、本実証において「中容量（数～数 100kW）SOFC システムの導入効果検証及び課題抽出を行う」ことを中間目標

(2017 年度) とし、最終目標 (2019 年) を高効率の発電システム (発電効率 60% 以上 (LHV)) とする。

なお、本項目は前半 3 年間 (2013~2015 年度)、中盤 2 年間 (2016~2017 年度)、後半 2 年間 (2018~2019 年度) に分けて段階的に実施した。前半の成果を踏まえて中間評価を行い、中盤に継続するか否かを判断した。その後、改訂されたロードマップにおいて新たな目標が設定されたことから、事業期間を 2 年間延長して更に高効率の発電システム (発電効率 60%以上 (LHV)) の実証事業を行った。

研究開発項目 (c) 固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発

本項目では、2013 年度に最終目標を設定した。具体的には以下のとおり。

我が国が有する世界最高水準の火力発電技術*¹を更に革新する高効率化技術である SOFC、ガスタービン及び蒸気タービンを組み合わせたトリプルコンバインドサイクル発電システム*²の早期実用化を図るためには官民一体となった取り組みが必要である。そこで本研究開発項目 (c) では、当該システムに適用する SOFC セルスタック、SOFC とガスタービンとの連携技術等の要素技術開発を行った。

* 1 : 1500℃級ガスタービンと蒸気タービンを組み合わせた複合発電システムにおいて、天然ガス燃料で送電端効率 58%LHV が得られている。

* 2 : SOFC、ガスタービン、蒸気タービンの順に化石燃料の持つエネルギーをカスケード利用することにより、数 100MW 級規模のシステムにおいて天然ガス燃料で送電端効率 70%LHV 以上、石炭ガス化ガス燃料で送電端効率 60%LHV 以上が得られる。

NEDO 技術開発ロードマップ (2010 年度策定) における大容量コンバインドシステムの目標においては、2020 年度頃 (初期導入) に「発電効率 65%LHV 以上、4 万時間以上の耐久性見通し、発電システム価格数 10 万~約 100 万円/kW 以下」とされていることに照らし、また耐久性については前プロジェクトにおいて 4 万時間の耐久性をほぼ見通すことができたことから、本研究では初期導入への第 1 ステップとして、以下に示すトリプルコンバインドサイクル発電システムの実用化に資する要素技術としてこのシステムに必要な SOFC セルスタック及び SOFC とガスタービン連携技術を開発することを最終目標 (2013 年度) とした。なお、燃料は天然ガスとする。

研究開発項目 (d) 次世代技術開発

本項目は、提案公募として実施するため、目標はテーマ毎に決定した。

固体高分子形燃料電池 (PEFC) 又は固体酸化物形燃料電池 (SOFC) 等の従来型燃料電池と異なる次世代燃料電池の開発や SOFC の新たな用途の実用化、商品性の向上、低コスト化等に関する技術を開発する。

なお、本項目は、前半 3 年間 (2013~2015 年度)、後半 2 年間 (2016~2017 年度) に分けて段階的に実施した。前半の成果を踏まえて中間評価を行い、後半で継続するか否かを判断した。

以下に、各研究開発項目の最終目標、中間目標を記載する。

研究開発項目 (a) 固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究『最終目標』 (2019 年度)

高効率化 SOFC システム（発電効率 65%以上（LHV））のコンセプトを創出する。

『中間目標 2』（2017 年度）

9 万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を確立する。

『中間目標 1』（2015 年度）

9 万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を開発する。また、この評価方法を耐久試験後の実セルスタックに適用し、その妥当性の検証及び課題抽出を行う。

研究開発項目 (b) 固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証

『最終目標』（2019 年度）

小容量（数 kW）SOFC システムにより発電効率 60%以上（LHV）の実証評価を行い、高効率発電時の課題抽出を行う。

『中間目標』（2017 年度）

中容量（数～数 100kW）SOFC システムの導入効果検証及び課題抽出を行う。

研究開発項目 (c) 固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発

以下に示すトリプルコンバインドサイクル発電システムの SOFC セルスタック及び SOFC とガスタービン連携技術を開発する。

<トリプルコンバインドサイクル発電システム>

発電規模（送電端）：数 10MW 以上（100MW 未満）

発電効率（送電端）：60%LHV 以上

建設コスト：25 万円/kW 以下

<上記のうち SOFC システム>

発電規模：10～20MW

運転圧力範囲：大気圧～約 3MPa

耐久性：9 万時間（電圧低下率 0.1%/1,000 時間以下）

製造コスト：30 万円/kW 以下

研究開発項目 (d) 次世代技術開発

○可逆動作可能な固体酸化物型燃料電池(SORC)による低コスト水素製造及び高効率発電を利用した電力貯蔵

『最終目標』（2017 年度）

(1)セルの基本性能

・SORC 単セル発電性能：500℃において電流密度 200mA/cm²で 0.5V の端子電圧の達成

・SORC 単セル発電耐久性：500℃において電流密度 100mA/cm²で初期動作電圧の 2%以下の劣化率/1,000 時間

・SORC 単セル水蒸気電解性能：500℃において 1.3V の電解電圧において、電流密度 0.3A/cm²を達成。動作電圧の 3%劣化/1,000 時間

・SORC 単セル水蒸気電解耐久性：500℃において電流密度 $0.3A/cm^2$ で初期動作電圧の3%劣化/1,000 時間

(2)円筒セル

・湿式法を用いた SORC 作動が可能な円筒型セルの作成と動作確認
・理論起電力を示す LSGM 薄膜からなるセルの作成法、拡散抑制層の作成法の開発
・発電と電解の繰り返し 50 サイクル以上の安定性の達成、50 サイクル後、初期特性の80%の維持

(3)Fe 粉体

・400℃において初期の水素供給・吸蔵速度 $110mmol H_2/kg Fe/min$
・水素供給・吸蔵速度の耐久性：初期の水素供給・吸蔵速度に対して 100 サイクル 後の維持率を80%以上とする

『中間目標』（2015 年度）

・Fe 粉体を水素貯蔵・製造に用いる SORC の開発を行い、以下の項目の達成を目指した。

(1)セルの基本性能

・SORC 単セル発電性能：電流密度 $10mA/cm^2$ で 0.5V の端子電圧の達成
・SORC 単セル発電耐久性：電流密度 $10mA/cm^2$ で初期動作電圧の2%以下の劣化率/1,000 時間
・SORC 単セル水蒸気電解性能：1.3V の電解電圧において、電流密度 $0.2A/cm^2$ を達成
・SORC 単セル水蒸気電解耐久性：電流密度 $0.2A/cm^2$ で初期動作電圧の3%劣化/1,000 時間

(2)円筒セル

・湿式法を用いた SORC 作動が可能な円筒型セルの作成と動作確認
・理論起電力を示す LSGM 薄膜からなるセルの作成法、拡散抑制層の作成法の開発

(3)Fe 粉体

・初期の水素供給・吸蔵速度： $113.7 mmolH_2/kg Fe/min$
・水素供給・吸蔵速度の耐久性：初期の水素供給・吸蔵速度に対して 100 サイクル後の維持率を70%以上

○マイクロ SOFC 型小型発電機

『最終目標』（2014 年度）

カセットガスを燃料とする、マイクロチューブ SOFC を用いた小型発電システムの開発を行い、以下の項目の達成を目指す。

・定格電流値 ($0.2A/cm^2$) でのマイクロチューブセル初期電圧偏差が 10%以下となる、マイクロチューブ製造条件を確立する。
・数 10W 級マイクロチューブセルスタックを作製し、550℃ – 650℃で炭素析出なく動作し、かつ発電量の低下が初期の 100 時間で 10%以下を達成する。
・マイクロチューブセルで発電効率 40% (LHV) 以上での安定運転を可能とするカセットガスの改質条件を確立する。
・システム停止状態から定格 550℃~650℃まで 5 分以内に急速起動できる均一加熱条件を確立する。
・下記の項目を満たす DC200W 級システムを試作し、実用化への課題を抽出する。

- システム重量 5kg 以下。
- 発電端効率 40% (LHV) 以上。
- 発電量低下が 100 回コールドスタート条件で、初期の 10%以下。

○中温作動型酸化物プロトン SOFC の開発

『最終目標』(2015 年度)

600℃で $1 \times 10^{-2} \text{ s/cm}$ 程度の高イオン伝導度を有する混合イオン伝導体を開発し、それに適したアノード、カソード材料の選定・開発を行う。電解質厚さ 5 μm 以下の平板型薄膜単セルを試作して性能評価を実施し、分極の内訳等の評価結果を基に、出力密度 0.7W/cm²程度を見通すための対策を提示する。

②アウトカム目標

研究開発項目 (a) 耐久性迅速評価法方法に関する基盤研究

『中間目標 1』および『中間目標 2』

「発電効率 55%LHV 以上、9 万時間以上の耐久性見通し、システム価格 40 万円/kW 以下」の達成により、2020 年以降家庭用システムの本格普及を実現する。

『最終目標』

高効率固体酸化物形燃料電池 (発電効率 65% (LHV) 以上) のコンセプトを創出し、2025 年度以降の業務用システムの普及拡大を加速させる。

研究開発項目 (b) 業務用システム実証

『中間目標』

「発電効率 45%LHV 以上、4 万時間以上の耐久性見通し、発電システム価格約 100 万円/kW」の達成により、2020 年頃までに業務用 SOFC システムの初期導入を実現する。

『最終目標』

「発電効率 60%LHV 以上、4 万時間以上の耐久性見通し」の達成により、2025 年頃までに業務用 SOFC システムの初期普及導入を実現する。

(研究開発項目 (c) 事業用発電システム)

「発電効率 65%LHV 以上、4 万時間以上の耐久性見通し、発電システム価格数 10 万～約 100 万円/kW 以下」の達成により、2020 年頃までに発電事業用 SOFC システムの実用化を実現する。

(研究開発項目 (d) 次世代技術開発)

提案公募として実施するため、テーマ毎に検討する。

②アウトカム目標達成に向けての取り組み

(研究開発項目 (a) (b) (c))

本事業で抽出される課題を、産業界を中心に実施されるセルスタック、システム開発に反映させる。

(研究開発項目 (d))

	提案公募として実施するため、テーマ毎に検討する。							
事業の 計画内容	主な実施事項	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度	2017年度	2018年度	2019年度
	研究開発項目（a） 耐久性迅速評価方法に関する基盤研究	・9万時間以上の耐久性を見通すことができる評価方法の開発 （2013～2017年度）						
	研究開発項目（b） 業務用システム実証	・発電効率 45%LHV 以上、4万時間以上の耐久性見通し、発電システム 価格約 100万円/kW（2013～2017年度） ・発電効率 60%LHV 以上の課題抽出（2018～2019年度）						
	研究開発項目（c） 事業用発電システム	・発電効率 65%LHV 以上、4万時間以上の耐久性の見通し、発電システム 価格約 100万円/kW						
	研究開発項目（d） 次世代技術開発	・燃料電池技術の用途拡大を実現する。						

	会計・勘定	2013年度	2014年度	2015年度	2016年度	2017年度	2018年度	2019年度
事業費推移 (単位:百万円)	一般会計							
	特別会計(需給)	995	1,010	1,134	1,953	633	701	841
	開発成果促進財源							
	総 NEDO 負担額	995	1,010	1,134	1,953	633	701	841
	(委託)	267	642	803	673	483	446	415
	(助成) : 助成率 1/2	54	169	323	1,280	150	255	426
	(共同研究) : 負担率 1/2	674	199	8				
開発体制	経産省担当 原課	資源エネルギー庁 省エネルギー・新エネルギー部 燃料電池推進室						
	プロジェクト リーダー	「研究開発項目(a) 耐久性迅速評価法方法に関する基盤研究」のみプロジェクトリーダーを設置。 東京大学 横川 晴美(2013年4月~2017年3月) 産業技術総合研究所 堀田 昭久(2017年4月~2019年2月)						
	プロジェクト マネージャー	新エネルギー部 大平英二(2013年4月~2017年3月) 次世代電池・水素部 原大周(2017年4月~2019年2月)						
	委託先	国立研究開発法人産業技術総合研究所 / 一般財団法人電力中央研究所 / 国立大学法人東北大学 / 国立大学法人東京大学 / 国立大学法人京都大学 / 国立大学法人九州大学 / TOTO(株) / 日本特殊陶業(株) / 日本ガイシ(株) / (株)村田製作所 / 国立大学宮崎大学 / 国立大学法人横浜国立大学 / 東京ガス(株) / 大阪ガス(株) / 東邦ガス(株) / (株)デンソー / パナソニック(株) / 三菱日立パワーシステムズ(株)						
	助成先	(株)デンソー、三菱日立パワーシステムズ(株) / トヨタ自動車(株) / 日本特殊陶業(株)、三浦工業(株)、富士電機(株)、日立造船(株)						
	共同研究	三菱日立パワーシステムズ(株) / 国立大学法人九州大学 / 東北電力 / 三菱重工(株)、パナソニック(株)						
情勢変化への 対応	2013年5月 研究開発項目(b) 追加公募 2015年8月 研究開発項目(b) 追加公募 2018年4月 2年間の延長 2018年3月 研究開発項目(b) 追加公募							
中間評価結果 への対応	<ul style="list-style-type: none"> ・起動停止に対する耐久性評価については、実施方針に反映し、実用化技術実証において、更に実運用環境下での検証をおこなった。 ・実用化技術実証における知的財産に関する成果については、プロジェクトの運営に反映した。 ・業務用システム実用化技術実証の指摘事項については実施方針に反映し、事業者と連携強化を図った。 							

	<ul style="list-style-type: none"> ・次世代技術開発についての指摘事項は実施方針に反映し、基礎を重視し事業を進めた。 ・業務用・産業用燃料電池の経済性については実施計画に反映し、実証事業、調査事業で深掘した。 ・アウトカムについての認識についてはプロジェクト運営に反映し、技術委員会を開催し、事業に展開した。更に調査事業を行った。 	
評価に関する事項	事前評価	2013 年度実施 担当部 新エネルギー部
	中間評価	2015 年度 中間評価実施 担当部 新エネルギー部
	事後評価	2019 年度 前倒し事後評価実施 担当部 次世代電池・水素部
3. 研究開発成果について	<p>研究開発項目 (a) 耐久性迅速評価方法に関する基礎研究</p> <p>以下に①2015 年度中間評価までの研究開発成果、②2016 年度～2017 年度までの研究開発成果、③2018 年度～2019 年度までの研究開発成果を説明する。</p> <p>①2015 年度中間評価までの研究開発成果</p> <ol style="list-style-type: none"> 1) 6 スタック (三菱日立パワーシステムズ (以下 MHPS とする) 機製円筒横縞形、京セラ製筒状平板形、TOTO 製小型円筒形、日本特殊陶業製平板形、日本ガイシ製筒状横縞形、村田製作所製一括焼結形) の性能評価を行い、空気極過電圧、燃料極過電圧、オーム損などに分離してその時間変化を導出した。高耐久性を実現している MHPS 機、京セラ機を除いた 4 スタックで、改善すべき空気極過電圧の増加とオーム損の増加が観測された。 2) 6 スタック全てでオーム損と空気極過電圧の劣化に相関があることを見出し、その原因を考察するとともに、劣化機構解明、劣化要因特定に利用可能かの検討を行った。 3) MHPS 機は Cr 被毒を克服し、京セラ機では合金のコーティングで Cr 被毒を抑制することに成功していることが確認された。それ以外の劣化要因は見いだされていない。 4) TOTO 機と新規参画 3 スタックでは、空気極に硫黄が蓄積していることが判明し、劣化率が大いことの原因と想定されるが、明確な機構は未だ解明されていない。 5) 複雑な空気極挙動を把握するために、抵抗-過電圧相関、セリア中間層の微構造、不純物の複合効果などの新たな視点から考察して、原因究明に努めた。 6) 9 万時間耐久検証用のシミュレーション技術として、電解質の伝導度低下の予測法などを開発・検討するとともに、劣化機構解明にもシミュレーション技術の適用を試みる。 <p>②2016～2017 年度の研究開発成果</p> <ol style="list-style-type: none"> 1) 電中研の性能解析を全スタックに適用し、セルスタックの部位による劣化率の寄与度を算出した。不純物による劣化の防止法を解明するとともに電極劣化とオーム損増加との相関を見出し、劣化解析に有効であることを見出した。 2) セルスタック長期試験後の試料を集学的分析により、不純物濃度レベル、微構造、化学変化、形状変化などと性能劣化との相関を調べた。不純物 (硫黄など) 被毒、絶縁層生成、相変態などの劣化メカニズムを解明した。 3) 従来から抽出されていた劣化課題について、劣化機構の解明を進め、付随するデータの取得によりスタック性能変化を予測するシミュレーション技術の開発を行った。 <p>上記研究開発を総合的に複合化することで、9 万時間の耐久を見通すことができる耐久性迅速評価方法を確立した。</p>	

4) 京セラ製スタックでは、4 万時間超耐久を含む実証機の解体分析、および電中研での性能試験とその後の解体分析により、空気極の S および Cr 被毒、電解質の相変態など、これまでに明らかとなっている劣化挙動以外の新たな劣化要因が生じていないことを確認した。

5) MHPS 製スタックでは、Cr 供給源無しの 3 万時間の長期耐久試験より、電圧低下率 0.1%/1,000hr(3 万時間)を確認。また、Cr 供給源有 2 万時間程度の運転より、実機の 7.7 倍相当の Cr 蒸気量にも関わらず、ごくわずかの劣化で Cr 堆積が認められなかったこと、Mn の電解質への拡散等の新たな劣化要因が確認されなかったことから、9 万時間(電圧低下率 0.1%/1,000 時間)の耐久性見通しを得ることができた。

6) TOTO 製スタックでは、Cr 被毒や起動停止サイクルを模擬した迅速評価手法を確立し、スタックの改良を行った。その成果として、2016 年度改仕様(初期案)では、2013 年度仕様の劣化主要因であった空気極過電圧増大を抑制することで、9 万時間の連続耐久を見通した。また 2016 年度改仕様(最終案)の社内評価を行い、初期案よりも更に劣化が抑制される優れたスタックであることを実証した。

7) 日本特殊陶業製スタックでは、劣化改善スタックでの 9 万時間耐久の見直し検討については、劣化改善スタックの劣化率改善効果を確認するとともに、劣化挙動の外挿や各劣化要因のシミュレーションと基礎調査により、9 万時間の耐久目標に目処を得た。また、強制劣化手法による迅速評価にて、熱サイクルに対する健全性を確認した。さらに、構造劣化解析に有用な応力解析手法に対し社内導入の検討を進め、金属部材のクリープ特性データと共に今後の社内での応力解析に役立てていく目処を得た。

8) 日本ガイシ製スタックでは、セルスタック及びモジュールの耐久試験により空気極過電圧及び IR 損の増大が劣化主要因であることを解明し、その改善を行った。シミュレーション技術により、空気極の S 被毒及び電解質近傍の IR 損増大は 9 万時間経過後も限定的であるとの予測を得た。熱サイクル試験もを行い、サイクル耐性を確認し、9 万時間耐久の見直しを得た。

9) 村田製作所製スタックでは、一体共焼結形セルは初期劣化が大きいことが課題として残ったが、その要因は絞り込むことができ、早急に解決できる見込みを得ることができた。初期劣化が解決すれば、機械的な耐久性も含めて、10 年耐久の目処がたつ見込みである。種々の解析・評価法を適用して、耐久性の迅速評価技術を確立し性能予測式も検証した。また、種々の検討のなかで、性能向上の糸口や製造条件検討手法も得ることが出来たため、より商品力のある SOFC 開発が促進されると期待される。

10) デンソー製スタックでは、耐久性迅速評価技術の適用により、劣化課題として、1)Cr による空気極被毒、2)ガスクロスリークによる空気極被毒促進、3)発電中のセル変形による集電抵抗増大、が抽出された。このうち、1)については金属スタック表面のコーティングにより解決可能である事が確認・検証された。2)、3)に関しては、デンソーにて解決指針を導出し、9 万時間耐久を見通すためのセルスタック設計に反映させることができた。

11) 劣化機構解明において、「スタック耐久性評価」にて供されたセルスタックの劣化メカニズム解析を行うために、セル構成材料間および不純物元素との化学的・電気化学的反応を解明した。また、各スタックの劣化挙動を横断的に取り纏め、特定された劣化挙動の寄与、その劣化進展モデルを構築するために必要とされる基礎データの有無などを把握し、集学的対応の進捗を促した。

12) 劣化機構解明において、スタック側が行った長期試験後のセルの劣化要因、劣化機構、加速要因を明確化するため、初期および耐久試験後のサンプルを STEM 分析し化学的に解析した。微量不純物の影響を明らかにし、9 万時間の耐久性見通しに貢献した。

13) 劣化機構解明において、FIB-SEM による三次元再構築データから各社セルスタックの三相界面長の評価・解析を行い、劣化機構解明に寄与した。雰囲気や条件によって変化する電極微構造変化のパラメータのデータベースを構築し、長期運転の予測を可能とした。

14) 劣化機構解明において、電解質・電極・インターコネクトを基本とするセル構造体に生ずる応力や変形など、セルスタックの損傷や構造的な性能劣化に繋がるリスク要因の発生機構を解明し、起動・停止を含む様々な運転条件下での長期信頼性を評価する手法を開発した。

15) 耐久性迅速評価方法の開発において、参画したメーカー 7 社の SOFC について、初期の性能評価データ解析から、各過電圧を抵抗近似できることや、構成材料、中間層の多孔度、ガス流路の違いにより燃料極や空気極のガス分圧依存性係数に違いが現れることが分かった。この結果から各社毎に異なるガス分圧依存性係数を用いれば、各 SOFC の出力電圧を精度良く予測でき、各過電圧分離が可能であることを明らかにした。この手法を耐久性評価に適用し、各社セルスタックの抵抗成分毎の劣化率取得に成功し、各成分の解析法を確立した。また熱サイクル特性についても検討し、その影響は小さいことを解明した。

16) シミュレーション開発において、FIB-SEM3 次元再構築手法とフェーズフィールド法を用いた燃料電極中の Ni 焼結挙動、局所電流密度変化などをシミュレーションし、劣化挙動を解析することに成功した。空気極/中間層/電解質界面での絶縁層生成や被毒現象に対して、その現象を再現し、長期耐久性をシミュレーションする技術を開発した。

17) シミュレーション開発において、FIB-SEM で得られる微構造を反映する数値解析技術を電極・セル・スタックそれぞれのスケールで開発した。局所とマクロの劣化進展の相違を、シミュレーションで予測する技術を開発した。

18) シミュレーション開発において、セル構成材料内部の非定常酸素ポテンシャル分布から、化学歪を考慮して応力解析する方法に関して汎用ソフトへの展開を考慮したシミュレーション技術を開発した。

19) シミュレーション開発において、YSZ 電解質内の正方晶化に関する劣化進展モデルをシミュレーションし、長期耐久する技術を開発した。

20) 耐久性迅速評価方法の開発では、各寄与毎の劣化機構を定量的に検討する中で、多くの劣化現象が、単独の材料によるものではなく、空気極/電解質/燃料極間の複雑な相互作用によって生じていることが明らかになった。オーム損増大の中で原因究明に至らなかった事例が発生し、従来より更なる高度な解析の必要性が示唆された。

③2018～2019 年度の研究開発成果

1) スタック耐久性評価では、高効率運転を想定し、燃料利用率 80%以上での運転、及び負荷変動運転を行い、高効率運転の可能性を示した。高燃料利用率運転での劣化因子の解明を行い、検討範囲では通常運転での劣化と類似であることを解明した。

2) スタック耐久性評価では、実用システムでの燃料流量の変動現象を解析し、燃料利用率が 100%を超える状況もありうること、負荷変動の周期によっては現状でも対応できることを解明し、高効率・強靱化セルスタック実現のための評価条件を提示した。

3) スタック耐久性評価では、金属多孔質支持体上に SOFC セルを成膜するプロセス法を数種類検討し、単セルで数 W/cm² の発電出力を示す、単セル作成に成功した。電気化学特性や機械的特性についても検討し、強靱性セルの可能性を示すことができた。

4) スタック耐久性評価では、プロトン導電性セラミック燃料電池(PCFC)の材料組成最適化によりプロトン輸率の向上を図った。電極/電解質界面での抵抗を抑えるため、電極材料や界面構造の最適化を図り、性能を向上させることに成功した。

5) 劣化機構の解明では、燃料利用率 80%以上、負荷変動などの過酷試験を想定したセルスタックの劣化事象に対し、特に燃料極での酸化や微構造変化などの起こりうる劣化メカニズムを解明し、高効率・強靱化のための基礎データを集積した。さらに、高効率セルの劣化を検出する新規評価法も開発した。

6) 耐久性迅速評価方法の開発では、過酷条件において課題となる局所水蒸気分圧を高精度に予測するために、必要に応じてモデルの改良を行った。局所水蒸気分圧の下で過酷運転時の燃料極の Ni 形態変化を予測することができ、過酷条件における燃料極劣化のシミュレーション・予測手法を構築した。汎用ソフトによる流体解析と、還元歪みを考慮した構造解析とを連携させる手法を開発した。

研究開発項目 (b) 業務用システム実証

以下に本項目の研究開発成果を説明する。

MHPS : (SOFC+ガスタービンハイブリッド) (2013~2014 年度)

①技術基準との適合評価

・加圧特有 (0.1MPa 以上) に関する技術基準の項目を抽出し、SOFC-MGT 複合発電システムの設計との適合を評価した。いずれも、技術基準に適合しており問題ない事を確認している。

②リスク評価

・現状の電技解釈の【第 47 条 常時監視をしない発電所の施設】には、燃料・改質系統設備の圧力が 0.1MPa 未満であることと定義されている。

燃料・改質系統設備の圧力の基準を 0.1MPa 未満から 1MPa 未満へ変更することに対して問題ないことを確認した。

③システム長期耐久性検証

・SOFC-MGT 複合発電システムを起動後、定格負荷にて 4,100h の連続運転 (出力 (AC 発電端ベース) : 206kW(SOFC : 183kW/MGT : 23kW)を行った結果、定格負荷一定条件において経時劣化は見られず、圧力・温度共に安定した挙動を示しているとともに、電圧低下率 0%/1,000h で安定していることを確認した。

④システム安全性検証

・システムの異常時を想定した非常停止試験を実施し、温度、電圧や圧力の変化を確認した結果、異常は見られず、安全かつ確実に停止できることを確認した。

三浦工業 (2013~2016 年度)

・2013 年度に実証機 5 台を稼働させ運転を開始。2014 年度には入替等を行い、最新のモデルでの実証運転を実施、各種データを得ることができた。

・2014 年度には性能・品質向上評価機を計 8 台設置して要素試験を開始、実証機への反映データを取得した。

・2015 年度機はこれまでの運転データを元に効率、耐久性改善に加え、パージガスレス化などを実現したワンパッケージモデルを開発。また、試験フィールドを実際のユーザー先へ広げ、系統連系や既存設備との接続を行うことで、電気、熱を高効率に活用するための課題抽出を行った。運用した実機において、スタック効率、燃料利用率の向上、補機損失低減を目標達成するデータを取得した。

・2016 年度機は、前年度までの実証で抽出した開発課題を基に、より現場での取り扱い易さを追求した設計・開発を実施。市場導入を想定したコンパクトなモデルで、性能把握を行った。

富士電機（2014～2017 年度）

・常圧型モジュールの設計データ取得、常圧特性の把握、DC 発電効率 55%以上を確認した。

・常圧型システムの設計技術習得、安定運転方法の確立、常圧システムの発電実験を実施した。

（累積発電：600 時間以上）

・2016 年度に 40 kW 級実証機の設計/製作を行い、2017 年度から実証試験を開始した。実証機は当社千葉工場内に設置し、基本性能評価及び耐久性評価を実施した。基本性能として、計画通りの発電効率 50%以上及び排熱回収効率 30%以上が得られた。また、夏場の耐久性評価により外気温度が 40℃を超える真夏日でも安定運転可能なことが確認できた。

日立造船（2014～2017 年度）

・平板型家庭用セルスタック 12 基を搭載した 10kW 級ベンチ試験により、システム性能確認を実施した。

・安定した起動昇温から発電までの運転を実現するとともに、各スタック毎のガス流量分配や温度分布など、実証機および商品機の設計に資するデータを取得した。またスタック端で 9kW(55%相当)以上の性能を確認するとともに、送電ロスなどの課題抽出・対策検討を実施した。

・得られた知見を基に、20kW 級実証装置の設計を完了し、また 2016 年 2 月に実証機を製作完了した。なお実証および初期商品機の容量に関しては、研究開始時には 50kW 級とされていたが、市場性、事業採算性を考慮して 20kW 級に変更した。

・発電効率は LHV 基準で AC 端 50%以上とする(アノードガスリサイクル無し)。これを 20kW 級実証試験により立証した。技術的なハードルは非常に高くなるが、事業拡大においてはアノードガスリサイクルにより AC 端 55%も視野に入れる。

・家庭用においては、既に 9 万時間に向けた取組みが行われているが、大型化における影響(運転条件の不安定さなど)を考慮し、本助成事業終了時(事業参入時)には第一ステップとして 4 万時間を目標としたうえで、事業拡大の高度化において最終的に 9 万時間を目指すものとする。なお、事業期間内に 4 万時間の実証時間を確保することは不可能なので、2 千

時間以上の連続運転を実施することにより、単スタック発電における電圧低下傾向と比較することで、耐久性 4 万時間（電圧低下率 10%以内）の見通しを付けた。

- ・実証試験機的设计・製作・試験を通して、課題抽出・対策検討、コンパクト化およびコストダウンを加味した商品機的设计を行った。商品化時の装置サイズは他社製品機との比較上、 $0.2\text{m}^2/\text{kW}$ を目標とした。

デンソー（2015～2016 年度）

- ・業務用 SOFC 発電ユニットの実証試験を実施し、目標を満たす発電出力 AC4.54kW/発電効率 AC50%を確認し、技術成立性を検証した。

- ・連続運転劣化率目標 0.8%/1,000h に対し、1.5%/1,000h で劣化率目標には未達成。ただし、セルスタックの燃料極微構造の改良や空気極の被毒対策で、セルスタック自体の耐久性向上は確認できているため、次期モデルではシステムとして 0.5%/1,000h 程度の劣化率に抑えられると考えられる。

三菱日立パワーシステムズ、トヨタ自動車、日本特殊陶業（2015～2017 年度）

- ・4 サイトに実証機を設置し、出力・効率を確認。

- ・各サイトで市場投入に必要な技術検証項目を設定し、研究開発を実施。

- ・目標であった 2017 年度に市場投入を実現。

デンソー（2018～2019 年度）

- ・2018 年度目標である、DC 出力 5kW/DC 効率 65%に対して、DC 評価にて 5.02kW/67.4%を実測し、年度目標を達成した。

- ・2019 年度目標である、AC 出力 4.5kW/AC 効率 60%は、上記 DC 評価から変換損失を考慮し、4.52kW/60.7%となることから、年度目標を達成できる見込みである。

- ・実用化課題抽出及び基礎耐久課題抽出に供する試作機製作も現在計画通り進捗しており、各課題抽出に着手できる予定である。

研究開発項目 (c) 事業用発電システム

以下に本研究開発項目の研究開発成果を説明する。なお、本事業は 2014 年度に終了したため、2015 年度の評価を事後評価として位置付け、2019 年度の評価の対象とはしない。

MHPS（事業用発電システム）（2012～2014 年度）

（i）円筒形 SOFC セルスタック・カートリッジの製作及び検証

- ・SOFC の設計方針は、セルスタックは小径長尺化、カートリッジへのセルスタックの充填密度を向上させることとし、セルスタックの試作、密充填カートリッジの計画及び試作を実施し、当初計画のセルスタック・カートリッジが製造できた。

（ii）低コスト化量産化技術

- ・低コスト材料を組合せ適用したセルスタックにて発電試験を行い、初期特性及び耐久性に問題ない事を確認した。

・ガス焼成炉の要素技術を検証できる試験炉（ガス焼成検証装置）を導入し、セルスタックを試作した。製造状況、初期性能及び耐久性ともに問題なく、ガス焼成を適用した量産化の目処を得た。

（iii）SOFC セルスタック発電試験

・1.5MPaGにて発電を行った場合、0.45A/cm²の時の電圧は0.82Vとなり、常圧での電圧(0.72V)に比べ10%程度、電圧が向上した。また、電圧が0.85Vの時の電流密度は0.48A/cm²となり、常圧での電流密度0.25A/cm²に比べ2倍程度、発電性能が向上した。この結果から、高圧で発電することは、燃料電池の性能向上やシステムのコンパクト化や低コスト化に対して極めて有効であることを確認できた。

（iv）SOFC カートリッジ発電試験・ガスタービン連携模擬試験

・常圧からMGTの圧力レベル（0.3MPaG）を想定して開発された現状仕様のカートリッジを用いて、1.0MPaGでの発電試験を実施したところ、同一温度条件/同一カートリッジ電流にて5%性能が向上（セル電圧が上昇）し、予想どおりの性能を確認することができた。

（v）ガスタービン・燃焼器の開発

・2013年度は、要素試験結果、燃焼解析結果をもとに、実機実寸大の燃焼器を試作し、単缶での燃焼試験が可能な実寸単缶燃焼装置で燃焼特性を検討した。試作した2重巡回バーナ及び中カロリバーナは、高い燃焼効率を示し、cバーナも定格条件では、各燃料条件において燃焼効率99.9%以上であることを確認した。

・燃焼振動特性も試験で確認した範囲において、管理値に対し低いレベルであり、燃焼安定性も良好であることを確認した。

（vi）導入可能性の調査

・数十MW以上（百MW未満）のトリプルコンバインドシステムの仕様等について検討し、導入可能性（市場性）を把握する事を目的とし検討を行った。

研究開発項目（d）次世代技術開発

以下に本研究開発項目の成果を説明する。なお、本研究開発項目の全3件の実施テーマのうち、2015年度までに2件が終了していたため、それらについては2015年の評価を事後評価の扱いとしている。2019年の評価では、1.の九州大学のテーマのみを事後評価の対象とする。

1. 可逆動作可能な固体酸化物型燃料電池による低コスト水素製造および高効率発電を利用した電力貯蔵（九州大学）

2015年度中間評価までの研究開発成果

・MiFe-SDC、NiFe-CMF燃料極を用いるセルにおいて長期安定性を除いて、ほぼ目標を達成し、500℃において、SOFCモードでは0.5V、250mA/cm²、SOECモードで1.3V、175mA/cm²を達成した。

・CMFは還元状態では電子伝導が発現し、水蒸気電解のカソードに応用できることを見出した。

・500℃で125mW/cm²を示す小型円筒型セル(f10xL30mm)セルの作成に成功した。

・還元PrBaMn₂O₅で修飾することで、350℃でも90%の酸化・還元を繰り返し行えることが分かった。

- ・PrBaMn₂O₅で修飾したFe粉体は繰り返し酸化・還元特性はさらに大きく安定しており、酸化速度は350℃で765mmol/kg-Fe/minと見積もられ、目標を達成できた。
- ・LSGM電解質支持管を用いて、350℃で鉄-空気電池を試作して作動特性を検討した。放電電位1.05V、充電電位1.13Vを示し、充放電効率89%で、600mh/g-Feで充放電が繰り返し行えることを示した。

2016～2017年度の研究開発成果

1) セルの基本性能

- ・SORC単セル発電性能：500℃において電流密度200mA/cm²で0.5Vの端子電圧の達成。
- ・SORC単セル発電耐久性：500℃において電流密度100mA/cm²で初期動作電圧の2%以下の劣化率/1,000時間。
- ・SORC単セル水蒸気電解性能：500℃において1.3Vの電解電圧において、電流密度0.3A/cm²を達成。
- ・SORC単セル水蒸気電解耐久性：500℃において電流密度0.3A/cm²で初期動作電圧の3%劣化/1,000時間。
- ・電解と発電の電気エネルギー効率80%以上。

2) 円筒セル

- ・湿式法を用いたSORC作動が可能な円筒型セルの作成と動作確認。
- ・理論起電力を示すLSGM薄膜からなるセルの作成法、拡散抑制層の作成法の開発
- ・発電と電解の繰り返し50サイクル以上の安定性の達成、50サイクル後、初期特性の80%の維持

3) Fe粉体

- ・400℃において初期の水素供給・吸蔵速度110mmolH₂/KgFe/min
- ・水素供給・吸蔵速度の耐久性：初期の水素供給・吸蔵速度に対して100サイクル後の維持率を80%以上とする。

2. マイクロSOFC形小型発電機の開発（産業技術総合研究所・岩谷産業・岩尾磁器工業）

- ・産総研が開発した低温・急速起動型マイクロSOFCを不良率10%以内で1日に5,000本製造する量産技術を確立した。
- ・マイクロSOFC1本から0.59Wの電力が取り出せる機械的な量産製造が見通せる、材料構造、集電・結線方法を確立した。
- ・カートリッジガスから200W以上の出力が得られるセルスタック（発電ユニット）を構築した。
- ・200W以上の発電に必要な改質ガスを延べ100時間に渡り得られた
- ・着火から5分以内でセルスタックを平均600℃に昇温する加熱炉を製作した。
- ・脱硫、CO除去で延べ100時間の耐久性を確保した。また、カートリッジガスからACインバータまで全てを内蔵した検証機を製作した。

3. 中温作動型酸化プロトンSOFCの開発（パナソニック）

	<p>・BaZrO₃系材料およびBaZrCeO₃系材料候補の中から、燃料ガス耐久性、特にCO₂耐久性に着目し、目標作動温度の600℃での耐久性を確認。BaZr_{0.8}Y_{0.2}O₃、BaZr_{0.8}In_{0.2}O₃のCO₂耐久性がそれぞれ、12000時間で安定であることを確認。また、導電率評価においては、BaZr_{0.8}Y_{0.2}O₃が開発目標性能である600℃で1×10⁻²S/cmに到達した。</p> <p>・アノード及びカソードは、SOFCで一般的な電極材料のNi及びLSCFをBaZrO₃系材料と組合せ、実使用状況を想定した燃料電池雰囲気中で、開回路状態での1,000時間耐久試験を実施。電極並びに電解質材料に著しい劣化が見られなかったことから実使用環境下における初期耐久性を有することを確認した。また、カソードについてはさらに材料候補を絞込むため、開回路状態での抵抗測定を実施し、特にLSCが好適であることを確認した。</p>	
	投稿論文	154件
	特許	「出願済」63件（うち7件外国出願）
	その他の外部発表 （プレス発表等）	研究発表・講演(621件)／新聞・雑誌等への掲載(50件)／展示会へ出展(31件)
4. 成果の実用化・事業化に向けた取組及び見通しについて	<ul style="list-style-type: none"> ・基盤研究において9万時間運転の見通しを得る評価方法を確立。 ・基盤研究において発電効率65%以上のコンセプト創出とセルスタックの強靱化。 ・実証研究で得られた知見をベースに2017年市場に導入した。 ・発電効率60%以上の課題抽出。 	
5. 基本計画に関する事項	作成時期	2013年2月作成
	変更履歴	<ul style="list-style-type: none"> ・2013年12月改訂（研究開発項目（a）のプロジェクトリーダーの明記及び研究開発項目（c）の実施期間変更により改訂。） ・2018年2月改訂（研究開発項目（a）（b）の内容を追記及び事業期間の延長により改訂。） ・2018年4月改訂（担当部を新エネルギー部から次世代電池・水素部に変更。） ・2018年5月プロジェクトマネージャーの変更により改訂。

プロジェクト用語集

- ①「固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究（研究開発項目（a））」
 ②「固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証（研究開発項目（b））」
 ③「固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発（研究開発項目（c））」
 ④「次世代技術開発（研究開発項目（d））」

	用語	説明
英数		
B	Balance of Plant System (BoP システム)	発電システムにおける燃料電池モジュール以外の周辺機器。
C	Cell Stack (CS)	燃料電池の発電セルを大出力化のために複数積層したスタック。
D	DSS	Daily Startup and Shutdown。
E	EPMA	電子プローブマイクロアナライザ。
F	FIB-SEM	収束イオンビーム-電子顕微鏡の総称。イオンビームを収束して絞り、サンプルに照射して微細加工が可能。これらを電子顕微鏡で観測することで、3次元の微構造-元素分布解析が可能。
I	IR loss	セル内部の電気的な抵抗による電圧の低下のこと。
L	LHV	低位発熱量基準 Lower Heating Value。
	LSCF	(La,Sr)(Co,Fe)O ₃ 。ペロブスカイト型複合酸化物。
	LSCO	(La,Sr)CoO ₃ 。ペロブスカイト型複合酸化物。
	LSGM	La _{0.9} Sr _{0.1} Ga _{0.8} Mg _{0.2} O ₃ の組成のペロブスカイトであり、優れた酸素イオン伝導性と還元性を有する。
	LSM	(La,Sr)MnO ₃ 。ペロブスカイト型複合酸化物。
O	OCV	Open Circuit Voltage。開回路電圧の略。

S	SDC	(Sm,Ce)O ₂ 。サマリア添加セリア。 (サマリア：酸化サマリウム、セリア：酸化セリウム)
	SEM	走査型電子顕微鏡。
	SIMS	二次イオン質量分析計で、Cs や O ₂ などをイオン化させて 1 次イオンビームとし、試料に照射したのち、試料から出てくる 2 次イオンを質量分析する方法。すべての元素の微量分析、深さ方向分析が可能。
	SOEC	エントロピーが正であることを利用し、高温で、室温より、少ない電力で電解を行う固体酸化物セル。
	SOFC 発電室	SOFC 本体を収納するための容器。
	SORC	電解による水素などの燃料の合成と燃料を電気化学的に燃焼し、発電する燃料電池のいずれのモードでも作動可能な固体酸化物セル。
	STEM	収束イオンビーム(FIB)などで薄片化した試料に電子ビームを照射し、試料を透過してきた電子情報を捉え、原子・分子像を直接観察可能なレベルでの高倍率・高分解能観察が可能な装置。
Y	YSZ	Y ₂ O ₃ -ZrO ₂ 。イットリア安定化ジルコニア。 (イットリア：酸化イットリウム、ジルコニア：酸化ジルコニウム)
あ行	圧力容器	円筒形セルを加圧状態にする容器。
	アノード	燃料極ともいう。燃料電池では、水素やメタン(都市ガス)などの酸化反応が起こる電極のことで、電子を放出する反応がおこる。
	インバランス	発電事業者や小売事業者が実需給前に提出する計画と実際の発電・需要実績との差分。
	エジェクタ	高圧流体の噴流(速度エネルギー)で低圧流体を吸引して昇圧する(圧力エネルギーに変換する)簡素な流体ポンプ。
か行	改質器	燃料電池で都市ガスから水素に変換する装置。通常は都市ガスの 2 倍以上の水蒸気を導入し、水蒸気改質をして H ₂ に変換する。
	界面抵抗	燃料電池構成材料間で生じる抵抗。
	ガス焼成炉	高温の燃焼ガスを利用して電池材料を焼成するための設備。
	カソード	空気極ともいう。燃料電池では、酸素の還元反応がおこる電極のことで、電子を取り込む反応がおこる。アノードの逆。

	過電圧	電極の容量成分による電位低下のこと。反応は、急には止まらないので、反応抵抗は容量成分として検知され、過電圧を生じる。
	カートリッジ	円筒形セルを集合させて燃料／空気の供給／集電を行う最小ユニット。
	カレントインターラプター法	電池の発電状態から高速電流遮断器を用いて負荷を遮断し、測定電圧の時間応答特性により電気抵抗成分と物質移動抵抗成分に分離する方法。
	起動バーナ	モジュールの昇降温時に使用し、燃焼ガスを供給する燃焼器。
	凝縮器	発電運転中に発生する燃料ガス中の水分を除去し、燃料再循環ガス中の水分を調整するための熱交換器。
	共焼結	電極や電解質など構成部材の前駆体を同時に焼成（焼結）すること。
	金属管板	円筒形セルを吊り下げ支持する板材。
	金属支持形 SOFC	金属を基板として、その上に SOFC を成膜した形状の SOFC。金属に単セルが直接成膜され、可塑性などの強度が優れ、熱衝撃も強いと期待される。
	空気ブロワ	電池への空気および燃焼室への燃焼用空気を送風するためのブロワ。
	空気予熱器	電池に供給する空気を高温の排ガスとの熱交換により予熱するための熱交換器。
	グリーン	焼成前の構成材料の前駆体、造孔材、バインダーなどが混合された状態のもの。
	コジェネレーション	天然ガス、石油、LP ガス等を燃料として、エンジン、タービン、燃料電池等の方式により発電し、その際に生じる廃熱も同時に回収するシステムのこと。
	混合整数線形計画法	決定変数の一部が整数変数でなければならないという制約を持つ、線形計画問題。
さ行	作動電圧	燃料電池反応が起こっているときの電圧で、電流ゼロの開回路電圧から電流を取り出して、開回路電圧よりも通常は低くなる。
	支持膜式セル	電極または支持体の基板の上に電解質が薄膜状に構成されるセル。逆に電解質が厚膜で自ら構造体になるものを自立膜式セルと呼ぶ。

	周波数制御	電力系統の周波数を基準値に保持する制御。
	出力密度	単位面積辺りの出力。SOFC の性能を示すパラメータとして活用。
	純水気化器	純水を水蒸気に変える装置。
	焼成炉	電池材料の粉末または成形品を高温で焼成するための電池製造設備。
	シール性	電池性能に要求される緻密性を評価する指標。
	水蒸気/炭素比 (S/C 比)	反応ガス中の水蒸気と炭素のモル比。
	水蒸気電解	高温で行う水の電気分解のこと。室温での水分解に比べると、熱エネルギーを利用し、25%程度少ないエネルギーで電解し、水素を得ることが可能。
	スラリーコート	構成材料の前駆体スラリーを塗布すること。スラリーの溶液中に浸漬するディップコート法やスクリーン印刷法などが含まれる。
	接合強度	円筒形セルと異材を接合させた時の強度の指標。
	セル	燃料電池の最小単位。TOTO の湿式円筒形 SOFC の場合は空気極支持管、空気極、電解質、燃料極から構成される。
	セルサポートフォイル	合金薄板からなり、接合シール材により単セル単部と接合され、マニホールドに組み込まれる。単セルがマニホールド内に強固に固定されるのを防ぎ、合金と単セルの熱膨張率の違いに基づき発生する応力を（自身の変形により）緩和する。
	相変態	ジルコニアなどの対称性が変化して伝導度が低下する現象。8mol%-Y ₂ O ₃ ドープ ZrO ₂ は、立方晶系であるが、長期運転によって相変態で正方晶に変化する。
	卒 FIT	固定価格買取制度による発電電力の売電契約が終了した再生可能エネルギー発電設備。
た行	耐久性	燃料電池が安定して作動する状態を以下に保持できるかを一般に耐久性という。本プロジェクトでは、電池性能の初期からの出力低下 10%をめどとして耐久性と耐久時間の目安とした。
	脱硫器	燃料ガスとして使用する都市ガスに付臭材として含有している硫黄分は燃料電極の触媒毒となるため、硫黄分を除去する装置。

	炭素析出	反応ガス中の炭素化合物の分解によって固体の炭素が系統内に堆積する現象。
	ディップコート法	セラミックの粉末スラリーに多孔質基板をディップすることで行う成膜方法で、簡便で良好な膜を得ることができ、大型化も可能。
	電圧低下率	発電時間に対するセル電圧の低下の割合。
	電解質	本研究開発では、イオンを通す固体酸化物をいう。ZrO ₂ を主とした材料で、これにY ₂ O ₃ などをドーピングした材料、YSZを使用している。プロトンを伝導させる固体電解質もある。
	電気式燃料予熱器	モジュール入口の燃料ガスを補助的に電気ヒータで予熱するための熱交換器。
	電力卸取引市場	発電事業者、小売電気事業者、一般企業等が電力の売買を行える市場。電力量、希望価格、電力が必要な日時、送電系統などの条件がそろった場合に取引が成立する。
	ドレンポット	発電時に発生するドレンを回収する容器。
な行	内部改質	セルモジュール内で自己の発熱を利用して原燃料の改質を行うこと。
	二次イオン質量分析計 (SIMS)	二次イオン質量分析計で、Cs や O ₂ などをイオン化させて1次イオンビームとし、試料に照射したのち、試料から出てくる2次イオンを質量分析する方法。すべての元素の微量分析、深さ方向分析が可能。
	燃焼式燃料予熱器	電池入口温度を燃焼ガスにより調整するための熱交換器。
	燃料再循環ブロウ	燃料ガスを再循環し、電池に燃料ガスを供給するためのブロウ。
	燃料電池モジュール	CSが発電するために必要な空気（酸素）と、改質燃料（水素、一酸化炭素）を予熱・改質してCSに供給する空気予熱器・改質器、未使用のオフガスを燃焼し、予熱に必要な高温の燃焼ガスを生成する燃焼器等で構成されるモジュール。
	燃料利用率	供給燃料の内、燃料電池内で消費される燃料の割合。
	燃料予熱器	電池に供給する燃料ガスを電池からの燃料系排ガスとの熱交換により予熱するための熱交換器。
は行	パラメータ設計	複数のパラメータをもとにバラツキを低減させる条件を見出し、更に最適化を行う手法。

	パワーコンディショナー	発電された直流電力を交流電力（商用電力）に変換するインバータと、発電電力などの監視機能や系統連系保護リレーなどの保護機能が一体化された装置。
	バンドル	セルを数本から十数本を接続し一体化したものの。モジュールを構成するための基本単位となる。現状のT O T O製湿式円筒形SOFCの場合は2並列×6直列構造となっている。
	被毒	被毒現象は燃料電池の性能を劣化させる現象である。主として不純物のような外来からの反応種が電極活性サイトに沈積・反応し性能を低下させてしまう現象などをいう。
	負荷追従性	熱源機器を負荷の需要変動に合わせて運転すること。
	部分負荷特性	熱源機器に与えられた運転条件時の最大出力ではない状態で運転すること。
	プロトン導電性電解質	プロトンが伝導する電解質で、高温型はSrCeO ₃ やBaZrO ₃ のようなセラミックスが使われる。プロトンの輸率が高いエリアは限定されるので、それを広げる材料探索が行われている。
ま行	水自立機能	燃料電池内で使用する純水を外部から補強することなく、発電時に生じる排ガスより凝縮水として回収・再使用する機能。
	モジュール	発電システムにおける発電容量に合わせて複数のバンドルまたはセルスタックを接続したもの。
	モノジェネレーション	コジェネレーションに対し、発電のみを行うシステム。
ら行	劣化	電池性能の低下により起こる現象。セルレベルでの主な劣化要因として、電極の被毒による過電圧増大や、異種部材界面での元素拡散などでの組成変化などがある。
	連続焼成炉	搬出・搬入ラックと連続焼成炉から構成され、被熱物は搬出ラックから連続焼成炉へ自動で搬出され、さらに焼成された被熱物は自動で搬入ラックに保管される設備。

1. 事業の位置付け・必要性について

1. 事業の背景・目的・位置づけ

①政策的な重要性

燃料電池は、燃料が有する化学的エネルギーを直接電気エネルギーに変換する発電装置であるため、回転等の運動エネルギーを介す従来型の発電機関より本質的に高いエネルギー効率を発揮する可能性があるとともに、発電時に二酸化炭素を発生しない。そのため、我が国に課せられた地球温暖化ガス排出抑制目標の達成には燃料電池の大量普及が必要不可欠であり、運輸分野や電力・熱供給分野での応用に向けた研究開発を進めることが肝要である。特に複数種類存在する燃料電池の中でも固体酸化物形燃料電池（以下、SOFC）は発電効率が高く、天然ガスや石炭ガス等の多様な燃料にも対応が可能で、小型分散型から大規模火力代替システムまで広い適応性を持つことから、その実用化が強く望まれている。

このような状況を踏まえて、環境負荷低減、エネルギーセキュリティの確保、新規産業創出などの社会的課題の解決の方策として、「COOL Earth－エネルギー革新技术計画」（経済産業省、2008年3月）では、CO₂排出量の大幅削減を可能とする21の革新技术の一つとして、民生部門で定置用燃料電池が選定されている。加えて発電・送電部門においても、燃料電池-ガスタービンハイブリッド発電、石炭ガス化燃料電池複合発電が挙げられている。また、「エネルギー基本計画」（経済産業省、2010年6月）では、エネルギー源のベストミックスを確保するためには燃料電池の技術開発の促進と内外への普及拡大によって天然ガスシフトを推進すべきであること、燃料電池の普及に向けた最大の課題であるコストの低減に向けて基礎的な部分も含めた技術開発を推進するとされた。さらに2014年6月に策定された第4次エネルギー基本計画では水素エネルギーを利活用する社会（水素社会）への期待が謳われた。そしてこれを受けて経済産業省は「水素・燃料電池戦略ロードマップ」（2014年6月策定、2016年3月改訂、2019年3月改訂）を示し、水素社会の実現を目指して定置用燃料電池や燃料電池自動車（以下、「FCV」という。）、水素ステーション等の普及目標とともにそれらの実現に向けて取り組むべき具体的な行動を明確化して官民で共有するためのアクションプランを提示した。また、2018年7月に策定された第5次エネルギー基本計画では、我が国のエネルギー政策における水素エネルギーの位置づけが強調された。このように水素関連政策が重要視されつつある中、2017年12月には安倍首相のイニシアティブにより2050年を視野に将来目指すべきビジョンであると同時に、その実現に向けた2030年までの行動計画として、世界で初めての水素に関する国家戦略である「水素基本戦略」が策定され、燃料電池の研究開発の更なる推進と多用途化が謳われた。

②我が国の状況

上述の期待を背景に過去にNEDOが実施した「固体酸化物形燃料電池実証研究」（2007年度）～（2010年度）や「固体酸化物形燃料電池システム要素技術開発」（2008年度）～（2012年度）（以下、前プロジェクト）の成果等により、2011年11月に700Wの小型SOFCを用いた家庭用のコジェネレーションシステム「エネファーム・タイプS」が世界で初めて実用化さ

れ、その高い発電効率を証明した。現在は、その後の本格普及に向けて更なる低コスト化と高耐久化を両立させることが喫緊の課題となっている。

他方、数～数 100 kWの中～大容量 SOFC システムは、未だ取り組むべき研究課題が多い状況である。更に、SOFC 技術を応用した高温水電解水素製造技術や抜本的な低コスト化・高耐久化に有効な低温動作セル等は、基礎研究段階であると言えよう。

また、事業開始の翌年に「水素燃料電池ロードマップ」(2014 年 6 月)が策定され、その中で業務・産業用燃料電池においては 2017 年に市場投入というチャレンジングな目標が設定された。

さらに、「水素・燃料電池戦略ロードマップ」(2016 年 3 月改定 水素・燃料電池戦略協議会)において、「SOFC 型等の低コスト化・高耐久化等に向けた技術開発」として「経済性を向上させるため、発電効率の更なる向上や高電流密度化等に資する先端計測解析手法等の技術開発を行う。」と示された。これによりコジェネレーションシステムばかりだけではなくモノジェネレーションシステムも視野に入れた SOFC を開発することとした。

③世界の取り組み状況

高効率発電システムとして期待の高い SOFC は、世界中で精力的な研究開発が行われている。

米国では、石炭ガス化ガス発電を目標としたエネルギー省のプロジェクト「Solid State Energy Conversion alliance」が実施されている。また、Fuel Cell Energy 社、Versa Power Systems 社、Delphi 社、UTC 社、LG Fuel Cells 社等の企業が大規模システム開発とセルスタック開発を行っている。さらに、Bloom Energy 社は、100kW 級システムを用いたエネルギー供給サービスをカリフォルニア州で展開しており、2012 年にはソフトバンク社と合併会社を設立して日本にも進出した。近年は材料開発からセルスタックシステムの開発・実証までの取り組みを加速しており、定置用 FC として NETL (National Energy Technology Laboratory) が SOFC 開発を主導している。

欧州では、豪企業 CFCL 社や英 Ceres Power 社が、家庭用 SOFC システムの商用化を目指しており、独 Callux 実証プロジェクトでは、Vaillant 社、Hexis 社、Bosch 社等が家庭用 SOFC システムの実証試験を行っている。また、開発実証だけではなく診断技術の開発も進められている。さらに欧州では固体酸化物形水電解セル (SOEC) 開発が活発化しており、独 Sunfire 社、Siemens 社、米 Versa Power Systems 社等が開発を進めているほか、燃料電池技術を応用した水電解セルに関するプロジェクト (NEXPAL、EKOLYSER 等) が進行中である。

このように、米国・欧州において、家庭用から発電事業用まで様々な用途・規模の燃料電池について技術開発及び実証研究が進められている。我が国の燃料電池開発技術は、世界のトップの技術であり、我が国の国際競争力強化等の観点から、引き続き戦略的・重点的な取り組みが不可欠である。

韓国では発電用大型燃料電池の技術開発にも取り組むと共に RPS 法による燃料電池の普及拡大を進めている。2018 年度から政策支援を加速しており、独自の取り組みとしては燃料電池での大型発電を計画し、大型燃料電池を技術開発中である。

中国では車載用燃料電池に注力しており、定置向けでは普及拡大は進んでいない。ただし、技術導入による部材の基礎研究や製造技術の開発には注力している模様。

2. NEDO の関与の必要性・制度への適合性

2.1 NEDO が関与することの意義

SOFC 型エネファームでは、日本は世界に先駆けてシステムの商品化に成功したが、その本格普及のためには更なる低コスト化・高耐久化に向けた取組は必要不可欠である。更に、中～大容量システムの実用化や次世代燃料電池の開発には、極めて高いレベルかつ膨大な研究リソースを割くことが必要であろう。

さて、既に市場投入されている当該分野において、SOFC はセルスタックメーカー毎に材料やセルスタックの形状が異なるなど、統一的な評価が難しい。そのため公的機関である NEDO が共通領域として試験方法、評価方法を構築して各社に提供することは、材料・形状が異なるセルスタックを一元的に試験・評価して、我が国の産業界全体としてより効率的に研究開発を進めることに貢献する。

また、燃料電池の実用化を見据えた本事業は、水素社会の実現に向けた水素製造から利活用までの大きなサプライチェーンの一要素として、高温水蒸気水電解技術、固体酸化物形水電解技術、水素コスト低減技術等の NEDO が進める他の関連事業と適切に連携を図りつつ進めなければならない。さらに、数十年來にわたり燃料電池分野の研究開発事業を推進してきた NEDO には、本事業の推進に貢献する知見（関連研究内容、研究者、過去の経緯等）が最も集積されている。

また NEDO には、水素閣僚会議の運営、国際水素・燃料電池パートナーシップ（IPHE）や IEA 等の世界機関と密なネットワークを通じて、世界の関連情報が集中している。そのため、それらを迅速に関係研究者に展開するとともに、独立行政法人制度を活用して柔軟に研究計画に反映することを可能としている。

このように、家庭用燃料電池の更なる普及拡大、業務用・発電事業用燃料電池の実用化、燃料電池自動車の普及開始とその後の拡大に貢献するためには、技術開発、実証研究、基準・標準化等の取組を長期展望の下で総合的に推進することが必要であるが、そのような活動は企業単独では実施困難なため、NEDO の関与が必要不可欠である。

2.2 実施の効果（費用対効果）

当該事業を実施することにより、「水素・燃料電池戦略ロードマップ」等（経済産業省 2014 年 6 月図表、並びに富士経済 2018 参照）で試算される 2030 年の市場規模：日本 2,499 億円程度^{*1}、世界 7,345 億円程度^{*1}、更に 2050 年の市場規模：日本 8 兆円程度^{*2}、世界 160 兆円程度^{*2} の成長に寄与することができる。また、燃料電池分野の特許出願数は現在でも世界 1 位で 2 位以下の欧米の各国と比べ 5 倍以上となっており、本事業の推進が水素利活用分野での高い産業競争力を支えている。更には、前述の「Cool Earth – エネルギー革新技术計画」において、世界全体の温室効果ガスの排出量を現状に比して 2050 年までに半減するという長期目

標を達成するためのエネルギー分野における 21 の革新的技術開発の中に選定され、温室効果ガスの削減にも大きな貢献をもたらすことが期待されている。

しかし、2015 年のパリ協定を受けて、「我が国は、パリ協定を踏まえ、全ての主要国が参加する公平かつ実効性ある国際枠組みの下、主要排出国がその能力に応じた排出削減に取り組むよう国際社会を主導し、地球温暖化対策と経済成長を両立させながら、長期的目標として 2050 年までに 80%の温室効果ガスの排出削減を目指す。」とされた。その実現には、革新的技術の開発・普及などイノベーションによる解決を最大限に追求するとしている。

このような研究開発投資がもたらす効果として、水素エネルギーの社会への導入・普及は、省エネルギー効果、環境負荷低減効果、エネルギーの供給多様化、石油代替効果、分散型電源としての利用、産業競争力強化と新規産業・雇用の創出が期待される。

* 1 : 出典 2018 年版燃料電池関連技術・市場の将来展望

* 2 : 出典 経済産業省 2014 年 6 月図表

2. 研究開発マネジメントについて

1. 事業の目標

1.1 研究開発の目標

本事業では、大幅な CO₂ 削減を目的として、「Cool Earth – エネルギー革新技术計画」（経済産業省、2008 年 3 月）で革新技术として挙げられ、更に「エネルギー基本計画」（経済産業省、2010 年 6 月）においても取り上げられた燃料電池（SOFC）について、以下の研究開発を行った。

① 固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究（研究開発項目（a）） 2013～2017 年度の研究開発目標

エネファームの本格普及期を想定し、その実現に必要な低コストと高耐久性を両立した SOFC セルスタック、SOFC システムの開発が民間企業において進められている。本研究開発項目（a）では、この開発を加速するため、耐久性迅速評価方法の確立を行う。前プロジェクトで開発した熱力学的解析、化学的解析、機械的解析、三相界面微細構造解析、耐久性評価方法等を高度化し、劣化要因に応じて有効な場合には加速劣化試験やシミュレーション技術等と複合させることにより、比較的短時間の耐久試験における SOFC の微小な劣化現象を的確に評価・解析し、実用レベルの耐久性を迅速かつ高精度に検証する。この耐久性迅速評価方法の確立により、セルスタック開発サイクルの短縮と効率化を図る。

NEDO 技術開発ロードマップ（2010 年度策定）における小容量定置用システムの目標、2020 年度以降（普及～本格普及段階）「発電効率 55%LHV 以上、9 万時間以上の耐久性見通し、システム価格 40 万円 / kW 以下」に照らし、本研究では、「9 万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を確立する」ことを最終目標（2017 年度）とする。また、中間目標（2015 年度）は、「9 万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を開発する。また、この評価方法を耐久試験後の実セルスタックに適用し、その妥当性の検証及び課題抽出を行う。」こととする。

なお、効率とコストに関しては、システム設計等による部分が大きいために本項目では特に目標値を設定しないが、産業界との継続的な意見交換により、上記ロードマップ目標値から逸脱しないよう適切にマネジメントを行う。

2018～2019 年度の研究開発目標

さらに新たな課題・ニーズとして業務用 SOFC の普及拡大のためモノジェネレーションシステムも視野に入れ、高効率化を目指した SOFC システム（発電効率 65%以上（LHV））が挙げられる。この高効率 SOFC システムの製品化を目指し、本事業期間中において高効率 SOFC システムのコンセプトをこれまでに培われた知見を活かし創出する。

② 固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証（研究開発項目（b））

2013～2017 年度の研究開発目標

家庭用 SOFC システムが 2011 年度に実用化された一方、業務用 SOFC システムについては民間企業において開発が鋭意行われており、その実用化が期待されている。本研究開発項目（b）では、業務用 SOFC システムの実証試験を実施し、その導入効果の検証及び実用化へ向けた課題抽出を行うことにより、これらシステムの開発及び初期導入を加速させる。業務用として数～数 100kW の中容量 SOFC システムの実負荷条件下での実証試験等を対象とする。

本実証は、提案公募として実施するため、目標はテーマ毎に決定する。

2018～2019 年度の研究開発目標

2017 年度に引き続き、業務用として数 kW の小容量 SOFC システムの実負荷条件下での実証試験等を対象とする。システム発電効率 60%以上（LHV）の実証評価を行い、高効率発電時の課題抽出を行う。

③ 固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発（研究開発項目（c））

我が国が有する世界最高水準の火力発電技術 * 1 を更に革新する高効率化技術である SOFC、ガスタービン及び蒸気タービンを組み合わせたトリプルコンバインドサイクル発電システム * 2 の早期実用化を図るためには官民一体となった取り組みが必要である。そこで本研究開発項目（c）では、民間企業によるシステム開発を促すため、当該システムに適用する SOFC セルスタック、SOFC とガスタービンとの連携技術等の要素技術開発を行う。

* 1 : 1500℃級ガスタービンと蒸気タービンを組み合わせた複合発電システムにおいて、天然ガス燃料で送電端効率 58%LHV が得られている。

* 2 : SOFC、ガスタービン、蒸気タービンの順に化石燃料の持つエネルギーをカスケード利用することにより、数 100MW 級規模のシステムにおいて天然ガス燃料で送電端効率 70%LHV 以上、石炭ガス化ガス燃料で送電端効率 60%LHV 以上が得られる。

NEDO 技術開発ロードマップ（2010 年度策定）における大容量コンバインドシステムの目標、2020 年度頃（初期導入）

「発電効率 65%LHV 以上、4 万時間以上の耐久性見通し、発電システム価格数 10 万～約 100 万円/kW 以下」に照らし、また耐久性については前プロジェクトにおいて 4 万時間の耐久性をほぼ見通すことができたため、本研究では初期導入への第 1 ステップとして、以下に示すトリプルコンバインドサイクル発電システムの実用化に資する要素技術としてこのシステムに必要な SOFC セルスタック及び SOFC とガスタービン連携技術を開発することを最終目標（2013 年度）とする。なお、燃料は天然ガスとする。

④次世代技術開発（研究開発項目（d））

固体高分子形燃料電池（PEFC）、固体酸化物形燃料電池（SOFC）等の従来型燃料電池と異なる次世代燃料電池の開発及び SOFC の新たな用途の実用化、商品性の向上、低コスト化等に関する技術開発を行う。将来の性能向上に向けたシーズを発掘する必要性が顕在化したため実施した。

本項目は、提案公募として実施するため、目標はテーマ毎に決定する。

なお、本項目は、前半 3 年間（2013～2015 年度）、後半 2 年間（2016～2017 年度）に分けて段階的に実施する。前半の成果を踏まえて中間評価を行い、後半で継続するか否かを判断する。

以下に、各研究開発項目の最終目標、中間目標を記載する。

固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究（研究開発項目（a））

『最終目標』（2019 年度）

高効率化 SOFC システム（発電効率 65%以上（LHV））のコンセプトを創出する。

『中間目標 2』（2017 年度）

9 万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を確立する。

『中間目標 1』（2015 年度）

9 万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を開発する。また、この評価方法を耐久試験後の実セルスタックに適用し、その妥当性の検証及び課題抽出を行う。

固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証（研究開発項目（b））

『最終目標』（2019 年度）

小容量（数 kW） SOFC システムにより発電効率 60%以上（LHV）の実証評価を行い、高効率発電時の課題抽出を行う。

『中間目標』（2017 年度）

中容量（数～数 100kW） SOFC システムの導入効果検証及び課題抽出を行う。

固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発（研究開発項目（c））

『最終目標』（2013 年度）

以下に示すトリプルコンバインドサイクル発電システムの SOFC セルスタック及び SOFC とガスタービン連携技術を開発する。

<トリプルコンバインドサイクル発電システム>

発電規模（送電端）：数 10MW 以上（100MW 未満）

発電効率（送電端）：60%LHV 以上

建設コスト：25 万円/kW 以下

<上記のうち SOFC システム>

発電規模：10～20MW

運転圧力範囲：大気圧～約 3 MP a

耐久性：9 万時間（電圧低下率 0.1%/1,000 時間以下）

製造コスト：30 万円/kW 以下

次世代技術開発（研究開発項目（d））

提案公募として実施するため、目標はテーマ毎に決定する。

1.2 各研究開発項目の目標

各研究開発項目の目標は下記のとおり。

① 固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究（研究開発項目（a））

中間目標 1 (2015 年度)	中間目標 2 (2017 年度)	最終目標(2019 年度)
プロジェクト全体		
9 万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を開発する。また、この評価方法を耐久試験後の実セルスタックに適用し、その妥当性の検証及び課題抽出を行う。	9 万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を確立する。	高効率化 SOFC システム（発電効率 65%以上（LHV））のコンセプトを創出する。
スタック耐久性評価		
① 中温筒状平板形		
2009 年度機以降の 2 万時間以上運転した従来のセルスタック解体分析並びに性能変化の解析を行い、劣化要因毎の時間変化の予測と実機劣化挙動とが整合しているかを検討し、9 万時間耐久が見通せるかを判断する。新たな劣化要因が見つかるかあるいは既知劣化要因の時間変化が予想から外れる場合には、その原因を究明し、耐久性迅速評価技術の開発に資する。2015 年度より、低コスト検討用セルスタックについて、耐久性迅速評価へ向けた試験を開始する。	従来のセルスタックについて、9 万時間耐久の見通しが得られている場合には、更に長期間運転を行い、さらなる検証に勤める。見通しが得られない場合には改善点を提案するとともに、耐久性迅速評価技術の課題抽出に供する。低コスト検討用セルスタックについて、9 万時間耐久性を評価する。	—
② 高温円筒状横縞形		
累計 2 万時間程度の長期運転実績データを入手したセルスタックについて、物質の拡散状態、三相界面近傍の組織変化に及ぼす影響、欠陥化学的变化を解析し、1 万時間までの知見で得られた劣化要因と比較し、9 万時間耐久性の見通しについて検討する。	長期運転セルスタックについて、新たな劣化要因がある場合には、劣化機構解明を従来の知見を基にして行い、改善策を検討する。新たな劣化要因がない場合には、更に運転時間を延長して、その挙動が寿命予測と整合するかを検証することで 9 万時間（電圧低下率 0.1 % / 1,000 時間）の見通しを行うための耐久性迅速評価技術が適切であるかを判断する。	—
中間目標 1 (2015 年度)	中間目標 2 (2017 年度)	最終目標(2019 年度)

③低温小型円筒形		
<p>加速試験案の策定及び、数千時間の連続運転結果の分析解析から9万時間耐久性の見通しが得られるか検証し、耐久性迅速評価技術の開発に資する。</p>	<p>開発された耐久性迅速評価技術が適切であった場合には、1-2万時間の運転実証により9万時間耐久性の見通しが得られるか検証する。見通しが得られない場合には、改善点を明確にするとともに、評価技術の改良に資する。</p>	—
④中温平板形		
<p>初期劣化挙動の解析・分析から、主要な劣化機構を想定し、改善部位を明確化する。次に、数千時間の連続発電試験、及び熱サイクル試験を通じて詳細な劣化機構を解明する。さらに、初期劣化を改良したスタックにて、長期耐久性の見通しを検討する。また、この改良したスタックで性能表示式の構築を行う。</p>	<p>初期劣化の改良、長期耐久の見通しを得たのち、劣化機構解明とその改善策を適用したスタックにおいて耐久性迅速評価を適用し、9万時間耐久の見通しを検討する。</p>	—
⑤中温筒状横縞形		
<p>中温筒状横縞形セルスタック及びモジュールの5,000時間程度の発電耐久試験と熱サイクル及び負荷サイクル試験を行う。試験後サンプルの基盤グループでの劣化機構解析結果をもとに改良したセルスタック及びモジュールの耐久試験を実施し、劣化機構解析結果および改良結果を検証する。本作業を数回繰り返して、9万時間耐久が達成するための改良点を明確にする。</p>	<p>セルスタック及びモジュールの耐久試験と熱サイクル及び負荷サイクル試験を行なう。試験後サンプルの劣化機構解析結果をもとに改良したセルスタック及びモジュールの耐久試験を実施し、劣化機構解析結果および改良結果を検証する。本作業を数回繰り返して、9万時間耐久への見通しを検討する。</p>	—
⑥中温一体焼結形		
<p>初期および数千時間耐久試験後のセルの劣化機構を把握し、耐久性の改善策を抽出する。そして、耐久試験の結果より性能予測式を構築する。</p>	<p>耐久性改善後セルの耐久性能予測式を構築し、耐久性迅速評価技術を適用して、性能予測式を検証し、9万時間耐久を評価する。</p>	—
⑦業務用平板形		
—	<p>業務用中温平板形セルスタックに耐久性迅速評価技術を適用、9万時間耐久への見通しを検討する。</p>	—
中間目標1(2015年度)	中間目標2(2017年度)	最終目標(2019年度)
⑧スタック過酷試験		

	—	—	スタック開発企業の協力のもと、2017年度までの耐久性迅速評価プロジェクトで開発されたスタックを、運用限界近辺で稼働させ、試験後の解体分析を行う。高効率運転時の劣化因子・課題を抽出する
熱力学的解析			
	耐久試験したセルスタックにおいて、セル構成材料と不純物との反応性・材料間反応性を解析し、劣化要因分析・劣化メカニズム解明を行い、10% / 9万時間耐久のための見通しおよび劣化対策案を示す。さらに、加速劣化試験法を確立する。	劣化対策を施したセルスタックにおいて、セル構成材料と不純物との反応性・材料間反応性を解析し、劣化要因分析・劣化メカニズム解明を行い、10% / 9万時間耐久を評価する。	—
化学的解析			
	各スタックに対して、化学的解析により劣化要因、劣化機構を解明し、9万時間耐久見通しを目指した改善の指針を導くとともに、化学的解析に関わる加速要因分析を行い、耐久性迅速評価手法を開発に資する。	各スタックに対して、化学的解析により9万時間耐久の見通しに必要とされる劣化機構解明を行うとともに、化学的解析に係わる加速要因分析の高度化を図る。	—
三相界面微構造解析			
	各社のセルスタックについて、三相界面の微構造と電池性能との関連性を明確にし、より適した電池構成と運転条件を提言する。ボタンセルを用いて、様々な条件下における性能変化を観察し、微構造変化との相関を明らかとし、あらゆる劣化現象に対応可能なデータベースの構築を行う。	各社セルスタックについて、これまでのデータベースを活用して劣化要因・機構を解明し、適切な提案を行う。またボタンセルを用いた加速劣化手法を確立し、短時間の運転から長期運転時の性能を予測する。	—
	中間目標 1 (2015 年度)	中間目標 2 (2017 年度)	最終目標(2019 年度)
セル構造体解析			
	セル構造体の信頼性に影響する現	セル構造体の信頼性に影響する現	—

<p>象として、非対称セルについては単セルの変形挙動、対称セルについては運転条件下での特定部材の物理化学的・機械的挙動をとりあげ、酸素ポテンシャル分布を考慮した解析により、短期・長期信頼性に影響する要因を分析する。</p>	<p>象として、非対称セルについては単セルの変形挙動、対称セルについては運転条件下での特定部材の物理化学的・機械的挙動をとりあげ、酸素ポテンシャル分布を考慮した解析により、9万時間以上の運転後の信頼性に及ぼす影響を明らかにする。</p>	
<p>スタック性能劣化解析</p>		
<p>すでに4万時間耐久性の見通しを得ているスタックに対しては、一定条件における2万時間程度の耐久性評価試験を実施する。本プロジェクトの中で初めて集学的な検討を行うスタックについては、2,000～5,000時間程度の長期試験を複数回行うと共に、性能表示式を開発して劣化要因の特定を行う。また、小型円筒形セルスタックに対し、熱サイクル試験および負荷サイクル試験を実施する。各サイクル試験での劣化に対して詳細な電気化学的評価を試み、各サイクルが劣化に与える影響を見通すための性能劣化解析手法を開発する。開発した性能劣化解析手法を一体焼結形、平板形、筒状横縞形のセルスタックへと展開することにより性能劣化解析手法を高度化して、各サイクルが9万時間の期間で劣化に与える影響を見通すためのサイクル耐久に関する耐久性迅速評価技術を開発する。</p>	<p>劣化要因改善策が施された各セルスタックに対して、逐次長期耐久性試験と性能解析(抵抗分離)を行なうことにより、抵抗成分毎の劣化率を定量化し、9万時間耐久の達成度を各スタック毎に明確化する。 開発したサイクル耐久に関する耐久性迅速評価技術を適用し、9万時間の耐久性確保に向けて劣化要因改善策が施された各セルスタックに対して、逐次効果検証を行うことにより、熱サイクルおよび負荷サイクルによる耐久性が9万時間の期間で十分であるかどうかの見通しを行う。</p>	<p>—</p>
<p>中間目標1(2015年度)</p>	<p>中間目標2(2017年度)</p>	<p>最終目標(2019年度)</p>
<p>シミュレーション技術の開発</p>		
<p>FIB-SEM 再構築手法とフェーズフィールド法を用いた燃料極のNi焼結に伴</p>	<p>耐久試験結果から抽出される劣化要因をシミュレーションし、耐久性評</p>	<p>過酷条件において課題となる局所水蒸気分圧を高精度に予測するため</p>

<p>う形態変化の数値シミュレーションコードを開発し、有効三相界面密度や屈曲度ファクターの経時変化を予測する手法を構築する。また、得られた構造データを用いた分極シミュレーションを実施し、過電圧ならびに局所ポテンシャル分布や局所電流線等の3次元情報の予測手法を確立する。</p> <p>一方、空気極に関しては、LSCF 空気極の場合の過電圧の予測手法を構築した上で、LSCF 空気極中に銀相が堆積した場合の気相拡散と空気極表面反応が阻害される影響、および銀相による電極活性の向上効果について予測可能な数値シミュレーション手法を構築する。</p>	<p>価手法としての妥当性の検証などを行い、9万時間耐久性を確保するためのシミュレーション技術を構築する。</p>	<p>に、既存の高クヌッセン数での拡散モデルを検証し、必要に応じてモデルの改良を行う。予測した局所水蒸気分圧の下で過酷運転時の燃料極のNi形態変化を予測するフェーズフィールド法コードを開発し、過酷条件における燃料極劣化の予測手法を構築する。</p> <p>FIB-SEM構造再構築法、格子ボルツマン法、フェーズフィールド法、動的モンテカルロ法等、これまで開発を進めて来た実験解析手法を駆使し、実構造を基にしてその性能および信頼性をさらに向上させるための電極構造を提案する手法を開発する。</p>
<p>シミュレーション技術の開発（続き）</p>		
<p>LSM 電極と電解質界面近傍の酸素ポテンシャル分布の数値予測法を確立する。セルスタックシミュレーションプログラムの整備と局所劣化データの適用を行う。</p>	<p>LSM 緻密化の進展と酸素ポテンシャル分布の相関を明確化する。セルスタックシミュレーションでの局所劣化モデルの高度化を図る。</p>	<p>実験で取得するパラメータを適用し過酷条件における温度・電流密度・酸素ポテンシャル等の単セル内分布を予測する手法を確立する。擬3次元非定常セル・スタックシミュレータを開発する。</p>
<p>セル、セル部材、微細構造中の酸素ポテンシャル分布の計算を、高性能ワークステーションを用いて、実用的な計算時間で実行することのできる計算プログラムを開発する。</p>	<p>酸素ポテンシャルの計算ルーチンをANSYS、FLUENTなどの汎用構造解析、熱流体解析ソフトウェアと連携させ、酸素ポテンシャル計算を基礎とする応力計算、信頼性の評価を実施できるようにする。</p>	<p>時間的・空間的な温度分布および濃度分布が存在する状態で固体内の酸素ポテンシャル分布を考慮したセルの機械的挙動の解析が可能なシミュレーションツールを開発する。これにより、高効率・高出力密度・高速出力変動が可能なセルスタックの設計に資することを目指す。</p>
<p>中間目標 1 (2015 年度)</p>	<p>中間目標 2 (2017 年度)</p>	<p>最終目標(2019 年度)</p>
<p>電解質におけるオーム抵抗増大・劣化現象をシミュレーションできる技術を確立する。セリア中間層/電解質界面におけるSrZrO₃等反応生成物の</p>	<p>電解質、電極/電解質界面、電極における劣化現象をシミュレーションできる技術を確立し、9万時間耐久を確実にするための基盤データを提供</p>	<p>—</p>

生成、セリア中間層/LaMnO ₃ 系空気極界面における緻密化に関する基礎データを整理、提供を行う。空気極における被毒現象について、電極内への不純物投入量と性能劣化との関係を定式化する。	する。	
高効率システム用スタック過酷試験		
—	—	家庭用燃料電池システムなど小容量機のSOFCシステム構成を念頭に、実用システムの燃料流量変動等の実力見込みを解析した上、スタック評価条件を提案する。
強靱性セルの試作と可能性検討		
—	—	強靱性を有する金属等の支持体や耐熱性、材料両立性等を考慮した電解質・電極等の構成材料、および新規多孔質支持体の製法および低温でのセラミックス成膜・焼結技術等、製造プロセスを検討し、強靱性セルの試作を行う。
プロトン導電性デバイスの検討		
—	—	超高効率セルスタックの設計に向け、PCFCセルの電解質の輸率向上や電極界面設計、種々の作動環境での劣化機構解明、並びに利用率や熱機械的特性向上に向けた課題抽出を行う。
劣化機構の解明		
—	—	スタック耐久性評価で、過酷試験されたセルスタックの劣化事象を切り出して、高効率・強靱化のための要素解析・劣化機構解明を行う。また、高効率・強靱化に必要な新規な評価法の検討を進める。
中間目標1(2015年度)	中間目標1(2017年度)	最終目標(2019年度)
耐久性迅速評価方法の開発		
耐久性迅速評価方法がスタック耐久性の評価方法として開発されていることを確認する。	劣化要因改善策が施された各セルスタックに対して、逐次長期耐久性試験と性能解析(抵抗分離)を行なうことにより、抵抗成分毎の劣化率を定	高燃料利用率下での燃料極の微構造変化と性能、機械的な変形などの事象をシミュレーションできるようにする。

	<p>量化し、9万時間耐久の達成度を各スタック毎に明確化する。</p> <p>開発したサイクル耐久に関する耐久性迅速評価技術を適用し、9万時間の耐久性確保に向けて劣化要因改善策が施された各セルスタックに対して、逐次効果検証を行うことにより、熱サイクルおよび負荷サイクルによる耐久性が9万時間の期間で十分であるかどうかの見直しを行う。</p>	
--	--	--

② 固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証（研究開発項目（b））

	中間目標 1 (2015 年度)	中間目標 2 (2017 年度)	最終目標(2019 年度)
三浦工業			
		発電効率 ①スタック効率 57% ②燃料利用率 (Uf) 72% ③補機損失 400W ④PCS 効率 93% ⑤効率 50%の課題抽出	
		総合効率 90%	
		システム機での劣化率 0.25 % /1,000 h ①改質水供給圧力変動 ±1kPa ②スタック温度むら ±20℃ ③運転温度 760℃	
		システム機の確立 ワンパッケージ化 ①水自立機能 ②別置パージガス ③別置 PCS	
	中間目標 1 (2015 年度)	中間目標 2 (2017 年度)	最終目標(2019 年度)
三菱日立パワーシステムズ			
		システム安全性評価 ①「発電用火力設備」「電気設備」に関する技術基準に対する SOFC ハイブリッドシステムの設計への反映状況の再整理	

		②家庭用燃料電池（SOFC 型）を参考にしながらハザード分析、加圧特有のハザード分析	
		SOFC ハイブリッドシステム実証機の運転試験 ①システムの長期耐久性検証 ②システム安全性検証（システム異常模擬状態における安全性評価）	
		机上検討および試験結果解析に基づく規制緩和の妥当性評価 ①検討・試験に基づく、初期導入促進に向けた課題に抽出 ②「常時監視に義務化の見直し」を第一の目的とする。	
富士電機			
	常圧型モジュールの開発 常圧型モジュールの設計/製作/評価 DC 発電効率（定格）： 55%以上 （AC 発電効率：50%相当）	SOFC モジュールの開発 実規模（40kW 級）モジュールの設計/製作/評価	－
	常圧型高効率システムの開発 モジュール評価装置の設計/製作 常圧システムの運転技術の確立	常圧型高効率システムの開発 高効率システムの設計/製作/評価 及び制御ロジックの開発	－
	2016 年度以降実施予定 実証試験 実証機の設計/製作 実証機を通して、商品機の課題把握	実証機の開発 実証機（パッケージタイプ）の設計/製作/評価	－
	2016 年度以降実施予定 商品機の設計	商品機の基本設計 商品機の基本設計及びコスト試算を実施	－
	中間目標 1 (2015 年度)	中間目標 2 (2016 年度)	最終目標(2019 年度)
日立造船			
	10kW 級ベンチ試験による性能確認、課題抽出 i)安定運転 ii)発電端 50%達成 iii)送電端 50%見通し	10kW 級ベンチ試験による性能確認およびスケールアップ課題抽出	－
	20kW 級実証機の設計・製作	実負荷環境下 20kW 級実証によ	－

		る、AC 送電端効率 50%以上達成、耐久性 4 万時間以上の見通し	
	コンパクト化のための熱解析 i)モデル作成 ii)0.3m ² /kW 達成 iii)プロセス最適化	商品機設計の完了	-
	装置単価	装置単価 100 万円/kW の見通し	-
デンソー			
	基本設計仕様構築 ベンチテスト機を試作。初期性能及び基本作動を評価し 2016 年度実証機の改良設計仕様を明確にする。	基礎耐久課題抽出 基礎耐久課題抽出機を試作し連続運転を実施。基礎耐久課題を明確にする。	-
	-	実用化技術課題抽出 SOFC システムの模擬負荷実証試験を実施。導入効果の検証、性能変化等を調査し課題を抽出する。	-
デンソー			
	中間目標 1 (2015 年度)	中間目標 2 (2018 年度)	最終目標(2019 年度)
	-	・基本設計仕様構築 ベンチテストモジュールを試作。初期性能及び基本作動を評価し実証機の設計仕様を明確にすると同時に、2019 年度でのシステム評価に向けた基礎課題抽出機試作に着手する。	・実用化技術課題抽出 実用化課題抽出機による SOFC システムの模擬負荷実証試験を実施。導入効果の検証、性能変化等を調査し製品化課題を抽出する。
	-	-	・基礎耐久課題抽出 基礎課題抽出機を試作し連続/断続/負荷変動運転等を実施。基礎耐久課題を明確にする。

③ 固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発（研究開発項目

(c))

	中間目標(2015 年度)	最終目標(2017 年度)
		トリプルコンバインドシステムの要素技術の開発として、SOFC は高圧環境下での発電特性や耐久性の検証、SOFC とガスタービンの連携技術の開発、ガスタービンはガスタービン本体の構造検討や燃焼器の開発を行い実用化に向けた目処を得る。

④次世代技術開発（研究開発項目（d））

中間目標(2015 年度)	最終目標(2017 年度)
九州大学	
	セルの基本性能 ・SORC 単セル発電性能：電流密度 10mA/cm ² で 0.5V の端子電圧の達成 ・SORC 単セル発電耐久性：電流密度 10mA/cm ² で初期動作電圧の 2%以下の劣化率/1,000h ・SORC 単セル水蒸気電解性能：1.3V の電解電圧において、電流密度 0.2A/cm ² を達成。 ・SORC 単セル水蒸気電解耐久性：電流密度 0.2A/cm ² で初期動作電圧の 3%劣化/1,000h
	円筒セル ・湿式法を用いた SORC 作動が可能な円筒型セルの作成と動作確認。 ・理論起電力を示す LSGM 薄膜からなるセルの作成法、拡散抑制層の作成法の開発
	Fe 粉体 ・初期の水素供給・吸蔵速度：113.7 mmol H ₂ /kgFe/min ・水素供給・吸蔵速度の耐久性：初期の水素供給・吸蔵速度に対して 70%/100 サイクル
岩谷産業、産業技術総合研究所、岩尾磁器工業	
	マイクロ SOFC 量産化に向けた技術開発
	性能低下が少ない材料構造、集電・結線方法の開発
	セルスタック、発電ユニット設計・製作および最適化検討、燃料ガス組成によるセルスタックへの影響の調査
	カートリッジガスの前処理方法の最適化
	マイクロ SOFC のスタック加熱システムの開発
	ポータブル電源システム要素技術の開発および検証機の製作
パナソニック	
	開発した混合イオン伝導体電解質材料に適したアノード、カソード材料の選定・開発を行う。
	電解質厚さ 5μm 以下でガスリーク、電子的リークのない、電解質薄膜の合成プロセスを確立し、革新的低コストが可能な平板型薄膜単セルを試作する。
	平板型薄膜セルの性能評価を実施し、分極の内訳等の評価結果を基に、出力密度 0.7 W/cm ² 程度を見通すための対策を提示する。

2. 事業の計画内容

2.1 研究開発の内容

事業の目標を達成するために、以下の研究開発項目について、研究開発を実施する。

①〔研究開発項目 (a)「固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究」

2013年度～2017年度では下記 (i)～(iv)の研究開発を実施する。

(i) 材料評価・性能評価・解析技術の高度化と劣化機構解明の迅速化

長時間稼働あるいは頻繁に起動停止したセルスタックの材料変化・性能変化を集学的に解析する技術を、微小な材料変化・微構造変化でも検出し性能変化との相関を検出できるように更に高度化し、セルスタック性能劣化の要因分析と劣化機構解明の迅速化を行う。

(ii) 劣化進展モデルの検討

運転条件（温度、過電圧、電流密度等）と関連づけられる変数を変化させた加速劣化試験法の妥当性の検討を行うとともに稼働下での温度・酸素ポテンシャル分布などを考慮したシミュレーション技術の適用が劣化挙動の進展の把握にどのように寄与できるかを検討し、耐久性迅速評価に必要なセルスタックの長期的挙動把握を実験的・解析的に行う。

(iii) 耐久性迅速評価法の開発

比較的短期間（数千から数万時間）の劣化挙動の観察と微小な変化の検出から9万時間レベルの長期耐久性を評価する手法を開発する。

(iv) セルスタック耐久試験の実施

参加企業が開発したセルスタックの耐久試験を実施し、劣化挙動に関するデータを収集する。耐久試験後のセルスタックは上記 (i) から (iii) の各項目の検討に供し、そこで得られた知見は、参加企業のセルスタック開発に供し、耐久性9万時間以上のセルスタックの改良につなげる。

2018年度～2019年度においては、下記の内容を同一スキームで研究開発を実施する。

(i) 研究開発項目「スタック耐久性評価」

高効率を達成するために、燃料利用率を80%以上に設定した高燃料利用率下での耐久試験を実施するとともに、再生可能エネルギーの変動吸収を想定した高速負荷変動試験も実施する。スタック開発会社（京セラ、日本特殊陶業、デンソー、日本ガイシの4社）がスタックの提供を行い、電力中央研究所と協力して高燃料利用率運転を行う。また、高速負荷変動試験も実施し、適用性拡大のための基礎データを得る。その他、システムを考慮したスタック評価条件の提案を大阪ガス・産総研が行う。さらに、新たなセルスタック検討として、強靱性セル試作・可能性検討、プロトン導電性デバイスの検討などの研究開発項目を追加して、適用性拡大と次世代技術への基礎検討を実施する。

(ii) 研究開発項目「劣化機構解明」

耐久性迅速評価として確立された、基盤担当研究機関が得意とする分析・実験手法を、高効率運転後セルスタックに適用し、劣化メカニズムの解明を行う。セルスタックの劣化事象を切り出して、高効率・強靱化のための要素解析・劣化機構解明も行う。また、高効率・強靱化に必要な新規な評価法の検討も進める。

(iii) 研究開発項目「耐久性迅速評価方法の開発」

高燃料利用率下での燃料極の微構造変化と性能、機械的な変形などの事象をシミュレーションできるようにする。

②研究開発項目 (b) 「固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証」

2013 年度～2017 年度では数～数 100kW 級中容量 SOFC システムの実負荷条件下での実証試験を実施し、導入効果の検証及び技術課題の抽出を行い、中容量 SOFC システムの実用化に資する改良につなげる。

2018 年度～2019 年度では更に新たな課題・ニーズとして業務用 SOFC の普及拡大のためモノジェネレーションシステムも視野に入れ、高効率化を目指した SOFC システムに関して、小容量 (数 kW) SOFC システムにより発電効率 60%以上 (LHV) の実証評価を行い、高効率発電時の課題抽出を行う。

また、課題設定型産業技術開発費助成金交付規定に基づく助成事業として実施する。

③研究開発項目 (c) 「固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発」

下記 (i) ～ (iv) の研究開発を実施する。

(i) SOFC セルスタックの開発

ガスタービンとの連携運転が可能な SOFC セルスタックを開発する。大気圧～約 3MPa の圧力で燃料・空気を供給可能な試験設備を用い、数 10MW 級のガスタービンとの連携運転を模擬した条件で、セルスタックの電流-電圧特性、圧力依存性、伝熱特性等を検証するとともに、1 万時間レベルの長期耐久試験を実施し、9 万時間の耐久性を見通す。また、セルスタックの低コスト生産技術を開発する。

(ii) SOFC-ガスタービン連携技術の開発

上記①で開発したセルスタックを実際に数 10MW 級のガスタービンに接続またはこれを模擬し、電流-電圧特性、圧力依存性及び伝熱特性等を検証する。また、起動停止、緊急停止等、ガスタービンの連携運転時に想定される各運転モード及び過渡的状态に対するセルスタックの応答を確認する。

(iii) 導入可能性の調査

2012 年度において、数 10MW 以上 (100MW 未満) のトリプルコンバインドサイクル発電システムの最適仕様、経済性、環境性等について検討し、国内外での導入可能性 (市場性) を把握するとともに、実用化・事業化の道筋を整理する。

(iv) 実証システムの基本設計

上記（i）から（iii）で取得したデータに基づき、実証システムの基本設計を行う。
なお、本項目の実施期間は 2014 年度までの 2 年間（前事業からの通算で 3 年間）である。

④研究開発項目（d）「次世代技術開発」

提案公募により実施する。

原則として委託事業として実施する。ただし、民間企業単独、民間企業のみでの連携場合は、共同研究事業 [NEDO 負担率：1/2] として実施する。

2.2 研究開発の実施体制

（1）研究開発の実施体制

本研究開発は、本邦の企業、研究組合、公益法人、大学等の研究開発機関（原則、国内に研究開発拠点を有していること。ただし、国外企業等（大学、研究機関を含む）の特別な研究開発能力、研究施設等の活用あるいは国際標準獲得の観点からの国外企業との連携が必要な場合はこの限りではない。）から公募により実施者を選定して実施する。なお、研究開発項目（a）については、2013～2017 年度は東京大学生産技術研究所特任教授横川 晴美氏を、2018～2019 年度は産業技術総合研究所 堀田 照久氏をそれぞれプロジェクトリーダー（PL）とする。

実施体制全体

NEDO	<p>プロジェクトマネージャー 新エネルギー部 燃料電池・水素グループ 大平 英二(2013～2017年度) 次世代電池・水素部 燃料電池・水素グループ 原 大同(2018～2019年度)</p>
	<p>プロジェクトリーダー 東京大学 特任教授 横川 晴美 氏 産業技術総合研究所 堀田 照久 氏 (a) 固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究(委託) (国研)産業技術総合研究所、(一財)電力中央研究所、TOTO(株)、日本特殊陶業(株)、 日本ガイシ(株)、(株)村田製作所、九州大学、京都大学、東京大学、東北大学 (共同実施:京セラ(株)、三菱日立パワーシステムズ(株)、東京ガス(株)、大阪ガス(株)、 (株)デンソー) 「SOFCに関して用途の実用化、商品性向上に向けた調査事業」(委託) ・九州大学(2017年) ・東京大学、(株)イー・コンサル(2018～2019年度)</p>
	<p>(b)固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証(1/2助成)</p> <p>○固体酸化物形燃料電池を用いた5kW級業務用システムの実証評価 三浦工業(株)(2016年度まで)</p> <p>○円筒型SOFC-ガスタービンハイブリッドシステムの実用化に向けた運転技術実証 三菱日立パワーシステムズ(株)(2014年度まで)</p> <p>○中容量常圧型円筒形SOFCシステムの実用化技術実証 富士電機(株)(2017年度まで)</p> <p>○固体酸化物形燃料電池による業務用・産業用システム実証および事業化検討 日立造船(株)(2017年度まで)</p> <p>○固体酸化物形燃料電池(SOFC)を用いた業務用システムの技術実証 (株)デンソー(2016年度まで)</p> <p>○円筒形SOFCマイクロガスタービンマイクロガスタービンの市場投入に向けた技術実証 三菱日立パワーシステムズ(株)(2017年度6月まで)、 トヨタ自動車(株)、日本特殊陶業(株)(2016年度まで)</p> <p>○燃料リサイクル機構を用いた高効率固体酸化物形燃料電池実用化技術開発 (株)デンソー</p>
	<p>(c)固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発 (1/2共同研究)(2014年度まで) 三菱日立パワーシステムズ(株)(再委託:九州大学、東北電力(株)、三菱重工業(株))</p>
	<p>(d)次世代技術開発</p> <p>○可逆動作可能な固体酸化物型燃料電池による低コスト水素製造および高効率発電を利用した電力貯蔵(委託)(2017年度まで) 九州大学</p> <p>○マイクロSOFC型小型発電機(委託)(2014年度まで) 岩谷産業(株)、(国研)産業技術総合研究所、岩尾磁器工業(株)</p> <p>○中温作動型酸化物プロトンSOFCの開発(1/2共同研究)(2015年度まで) パナソニック(株)</p>

2.3 研究開発の運営管理

●研究開発の進捗管理の妥当性

研究開発全体の管理・執行に責任を有する NEDO は、経済産業省及び研究開発実施者と密接な関係を維持しつつ、事業の目的及び目標に照らし適切な運営管理を実施する。

具体的には、必要に応じて研究開発実施者が設置する WG 等における外部有識者の意見を実施計画に反映させると同時に、NEDO はオブザーバ出席を行い適切な助言を行う他、適時委託先から実施計画の進捗について報告を受ける等を行う。また、事業を効率的に推進するために、本事業の実施者間での報告会を開催し、実施者間及び関係産業界等との情報の共有と共通認識を図ることとする。

●NEDO と実施者との面談及び意見交換について

各委託事業実施者が設置する WG 等へのオブザーバ出席を通して、実施計画に基づく「進捗状況の報告、課題の抽出、今後の実用化に向けた見通し等」について聴取し状況把握と助言等を行った。また毎年の成果については、毎年度毎のマイルストーンを設け、毎 3 月に提出される中間年報により確認をしている。また予算執行状況については実施計画と乖離が認められる場合については事業者個別に適切な予算運営を指導した。以上により今後の各テーマの課題等を把握し適切な方向付けを実施した。

WG の開催については下記のとおり。

開催日時	スタック耐久性 WG	劣化機構解明 WG	評価方法の開発 WG	備考
2013年8月9日	○	○	○	キックオフミーティング
2013年11月25日	-	○	○	
2014年2月6日	○	-	○	
2014年4月17、18日	-	○	○	
2014年6月13日	○	-	○	
2014年9月2、3日	○	○	○	
2014年12月18日	○	-	○	
2015年1月7、8日	-	○	○	
2015年3月10日	○	-	○	
2015年4月15、16日	-	○	○	
2015年6月10日	○	-	○	
2015年7月8、9日	-	○	○	
2015年9月16日	○	-	○	
2016年1月8日	○	-	○	
2016年1月12、13日	-	○	○	
2016年4月13日	○	-	○	
2016年6月14、15日	-	○	○	
2016年7月28日	○	-	○	
2016年12月1日	○	-	○	
2016年12月19、20日	-	○	○	話題提供と討論
2017年1月25日	○	-	○	
2017年3月9日	○	-	○	
2017年4月24、25日	-	○	○	
2017年7月6日	○	-	○	

2017年10月12日	○	-	○	
2017年11月16、17日	-	○	○	
2017年2月19日	○	○	○	中間目標まとめ(9万時間耐久評価法)
高効率PJ	スタック耐久性WG	劣化機構解明WG	評価方法の開発WG	
2018年4月24日	○	○	-	
2018年7月17日	-	-	-	調査事業との連携WG
2018年9月12日	○	○	○	
2018年11月30日	○	○	○	強靱化WG
2019年1月29日	○	-	-	強靱化WG
2019年3月21、22日	○	○	○	調査事業との連携WG 強靱化WG
2019年5月7日	-	-	-	プロトンWG
2019年6月13、14日	○	-	○	強靱化WG
2019年7月29日	-	-	-	プロトンWG
合計	23回	17回	31回	

●他事業及び事業内の連携体制について

また事業内については NEDO または PL が WG 等へのオブザーバ参加や、実施者との打合せを通じ、必要な場合は他事業の成果の紹介や他 WG への参加等を助言することで、連携を行っている。

さらに助成事業者が使用するセルは委託事業者がセルスタックメーカーとして開発を進めているものをほぼ適用しているので、セルスタックに関する情報は間接的に委託事業者から助成事業者提供されている。

●NEDO 開催の技術委員会について

事業期間 7 年の間に下記のように 6 回の技術委員会を開催し、事業の進捗等を外部委員に確認頂いた。また、2017 年度から 2018 年度への延長については、NEDO 内で評価部、戦略センターにそれぞれ継続の内容を確認し、継続の目的が合致していることを確認頂くとともに第 5 回の技術委員会にて外部委員に延長に関する議事を図り、承認を頂いた。

第 1 回 技術委員会 2014 年 1 月 15 日(水) 13:30~17:30

委員名	ご所属	役職
神本 正行	国立大学法人弘前大学 北日本新エネルギー研究所	学長特別補佐
水谷 安伸	東邦ガス株式会社 技術研究所	主席
林 克也	日本電信電話株式会社 環境エネルギー研究所エネルギーシステムプロジェクト エネルギー供給方式グループ	主幹研究員
千葉 玲一	大学法人日本大学 工学部 電気電子工学科	教授
菊地 隆司	国立大学法人東京大学 大学院工学系研究科	准教授
尾石 直紀	株式会社 KRI 新エネルギーデバイス研究部	研究員

第 2 回 技術委員会 2014 年 8 月 7 日(木) 13:00~17:30

委員名	ご所属	役職
神本 正行	国立大学法人弘前大学 北日本新エネルギー研究所	学長特別補佐

水谷 安伸	東邦ガス株式会社 技術研究所	主席
林 克也	日本電信電話株式会社 環境エネルギー研究所エネルギーシステムプロジェクト エネルギー供給方式グループ	主幹研究員
千葉 玲一	大学法人日本大学 工学部 電気電子工学科	教授
菊地 隆司	国立大学法人東京大学 大学院工学系研究科	准教授
尾石 直紀	株式会社 KRI 新エネルギーデバイス研究部	研究員

第3回 技術委員会 2015年3月27日(金) 13:00~17:30

委員名	ご所属	役職
神本 正行	国立大学法人弘前大学 北日本新エネルギー研究所	学長特別補佐
水谷 安伸	東邦ガス株式会社 技術研究所	主席
林 克也	日本電信電話株式会社 環境エネルギー研究所エネルギーシステムプロジェクト エネルギー供給方式グループ	主幹研究員
千葉 玲一	大学法人日本大学 工学部 電気電子工学科	教授
菊地 隆司	国立大学法人東京大学 大学院工学系研究科	准教授
尾石 直紀	株式会社 KRI 新エネルギーデバイス研究部	研究員

第4回 技術委員会 2017年12月25日(月) 14:00~17:00

委員名	ご所属	役職
水谷 安伸	東邦ガス株式会社 技術研究所	主席
朝野 剛	JXTG エネルギー株式会社 中央技術研究所 技術戦略室	担当マネージャー
石田 文章	関西電力株式会社 関西電力株式会社 研究開発室 技術研究所 エネルギー利用技術研究室 (ホームエネルギー)	主幹
井関 孝弥	一般社団法人日本ガス協会 技術開発部	部長
酒井 良典	日立造船株式会社 環境事業本部 SOFC プロジェクトグループ	グループ長
鈴木 稔	大阪ガス株式会社 リビング業部 商品技術開発部	シニアリサーチャー
外内 裕子	東京電力ホールディングス株式会社 経営技術戦略研究所 技術開発部 需要家エリア	主任研究員
高木 義信	日立造船株式会社 環境事業本部 SOFC プロジェクトグループ	主管技師
仲川 彰一	京セラ株式会社 部品研究開発本部	総合研究所長
蓮池 宏	一般財団法人 エネルギー総合工学研究所	理事
波多江 徹	東京ガス株式会社 基盤技術部 エネルギーシステム研究所 超高効率 SOFC プロジェクトチーム	リーダー
麦倉 良啓	一般財団法人電力中央研究所 エネルギー技術研究所 エネルギープラットフォーム創生領域	研究参事
矢田部隆志	東京電力ホールディングス株式会社 技術・環境戦略ユニット 技術統括室	プロデューサー
八束 真一	株式会社デンソー研究開発2部 FC システム開発室	室長
山本 英貴	三浦工業株式会社 FC 開発統括部	部長
吉岡 浩	富士電機株式会社 発電事業本部 新エネプラント事業部 燃料電池技術部	主席

第5回 技術委員会 2018年3月13日(火) 10:00~12:00

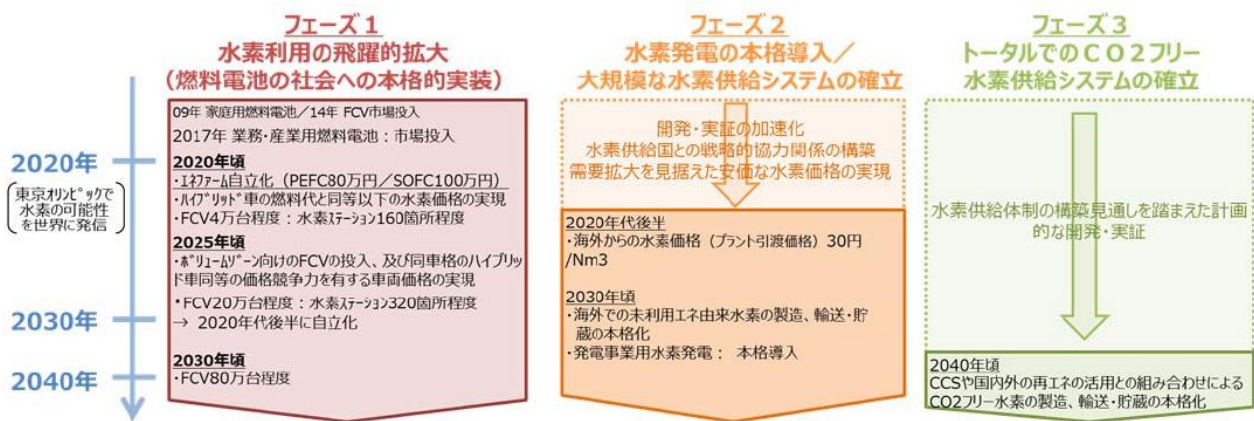
委員名	ご所属	役職
水谷 安伸	東邦ガス株式会社 技術研究所	主席
朝野 剛	JXTG エネルギー株式会社 中央技術研究所 技術戦略室 エネルギー技術グループ	担当マネージャー
石田 文章	関西電力株式会社 研究開発室 技術研究所 エネルギー利用技術研究室 (ホームエネルギー)	主幹
井関 孝弥	一般社団法人日本ガス協会 技術開発部	部長
里見 知英	燃料電池実用化推進協議会 企画部	部長
鈴木 稔	大阪ガス株式会社 リビング事業部 商品技術開発部	シニアリサーチャー
野田 英智	中部電力株式会社 技術開発本部 研究企画グループ 研究企画グループ	グループ長 (部長)
波多江 徹	東京ガス株式会社 基盤技術部 エネルギーシステム研究所 超高効率SOFC プロジェクトチーム	チームリーダー
麦倉 良啓	一般財団法人電力中央研究所 エネルギー技術研究所 エネルギープラットフォーム創生領域	研究参事
矢田部 隆志	東京電力ホールディングス株式会社 技術・環境戦略ユニット技術統括室	プロデューサー

第6回 技術委員会 2019年3月28日(木) 14:00~17:00

委員名	ご所属	役職
水谷 安伸	東邦ガス株式会社 技術研究所	主席
朝野 剛	JXTG エネルギー株式会社 中央技術研究所 技術戦略室 エネルギー技術グループ	担当マネージャー
石田 文章	関西電力株式会社 研究開発室 技術研究所 エネルギー利用技術研究室 (ホームエネルギー)	主幹
鈴木 稔	大阪ガス株式会社 リビング事業部 商品技術開発部	シニアリサーチャー
波多江 徹	東京ガス株式会社 基盤技術部 エネルギーシステム研究所 超高効率SOFC プロジェクトチーム	チームリーダー
麦倉 良啓	一般財団法人電力中央研究所 エネルギー技術研究所 エネルギープラットフォーム創生領域	研究参事
矢田部 隆志	東京電力ホールディングス株式会社 技術・環境戦略ユニット技術統括室	プロデューサー

2.4 研究開発成果の実用化・事業化^{*}に向けたマネジメントの妥当性

経済産業省の「水素・燃料電池戦略ロードマップ」フェーズ1では水素利用の飛躍拡大(燃料電池の社会への本格的実装)としており、2017年から業務・産業用燃料電池：市場投入と位置付けられている。



出典：資源エネルギー庁作成

2017年度には助成事業に参画していた2社並びに委託事業に参画していた1社合計3社がタイトなスケジュールにも関わらず、製品を上市するに至った。研究開発項目(a)で得られた知見が研究開発項目(b)でも活かされた結果と考えている。その他助成事業に参画したメーカーも上市に向け、助成事業終了後も自社にて取り組みを行っている。

3. 情勢変化への対応

SOFCシステムの早期市場導入に向けた課題抽出を実施するため、2013年6月に追加公募を実施した。更には「水素・燃料電池戦略ロードマップ」(2014年6月 水素・燃料電池戦略協議会)において、主な目標として「業務・産業用燃料電池については、2017年に発電効率が比較的高いSOFC(固体酸化物形燃料電池)型の市場投入を目指す。」と規定されたことを受け、SOFCシステムの早期市場導入に向けた課題抽出を実施するため、2015年8月に実証事業に関する追加公募を実施した。

また、「水素・燃料電池戦略ロードマップ」(2016年3月改定 水素・燃料電池戦略協議会)において、「SOFC型等の低コスト化・高耐久化等に向けた技術開発」として「経済性を向上させるため、発電効率の更なる向上や高電流密度化等に資する先端計測解析手法等の技術開発を行う。」と規定された。これに対応するために、これまでの事業で構築した「固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究」の評価・解析のスキームを利活用し、新たな目標として「発電効率65%以上(LHV)」を目指すためのコンセプトを創出」をテーマとして2017年度で事業を2年間延長した。これに伴い2018年3月に高効率発電実証事業に関して追加公募を実施した。

また、本事業の目標を達成するため調査事業を公募により実施した。燃料電池の価値を調査事業により明確化し、燃料電池の仕様にまで落とし込む事を目標としている。なお、調査事業の技術委員会にはシステムメーカーから委員若しくはオブザーバとして参画頂き、商品化に至るまでに必要な事項を調査事業者側に情報として提供し、調査事業を円滑に進捗させた。

さらに、2019年に国が改定した戦略ロードマップにおいて、各種目標達成のため、分野毎に目標と達成度の差分をチェックするための取組を開始することとなった。このため2019年6月に「水素・燃料

電池プロジェクト評価・課題共有ウィークを開催し、全テーマが約400人出席する公開の場で進捗状況を説明した。国の目標、研究の達成度、業界からのニーズの差分を議論する場とした。

4. 中間評価結果への対応

2015年11月6日に開催された中間評価にて、評価委員会から改善すべき点として指摘された事項とその対応方法は下記のとおり。

項目	評価委員会で指摘された改善すべき点	「指摘された改善すべき点」に対する対応方針	対応方針を踏まえた具体的な対応事項
事業の位置付け・必要性	—	—	
研究開発マネジメント	<p>目標として劣化率が何%/1,000hのみで表されており、商品化に近い段階のSOFC開発であることを考えると、起動停止に対する耐久性評価の充実も必要と思われる。</p>	<p>起動停止に対する耐久性評価については、SOFCの耐久性迅速評価方法に関する基礎研究及び業務用システムの実用化技術実証において、研究項目の一つとして取り組んでいる。今後実用化技術実証において、更に実運用環境下での検証を行うこととする（実施方針に反映）。</p>	<p>以下のとおり実施方針の記載を変更。</p> <p>対応前 「数～数100kW級中容量SOFCシステムの実負荷条件下での実証試験を実施し、導入効果の検証及び技術課題の抽出を行い、」</p> <p>対応後 「数～数100kW級中容量SOFCシステムの実負荷条件下での実証試験（連続運転及び起動停止）を実施し、導入効果の検証及び技術課題の抽出を行い、」</p>
	<p>実用化技術実証における知的財産に関する成果が希薄であるように感じた。出願に関しては開発者側に一任されているとのことであり、企業戦略上の理由があるであろうことが想定されるが、国際的な競争力の確保や国益の保護などを勘案して基本的な戦略などを再度検討し、その戦略に沿った対応を進めるべきと考える。</p>	<p>実用化技術実証の実施者が参画する基盤研究（コンソーシアム）における知財委員会等で、国際的な競争力の確保や国益の保護など基本的な戦略について関係者間にて共通認識を得、公開、秘匿の精査を行うとともに、製品化を進める各社において具体的な取り組みを進める（プロジェクトの運営に反映）。</p>	<p>メーカーのノウハウについては開示できないが、NEDO成果については学会等を通じて積極的に発表し、情報発信を行ってきた。その結果、本事業における基盤研究は世界中の業界から注視されており、海外メーカーからも参画したいと打診を受ける程になっている（現状の事業スキームでは対応不可）。</p>
研究開発成果	<p>業務用システム実用化技術実証では、本事業の対象外のセル・スタックベースの技術的課題で目標達成が遅れたものも</p>	<p>技術実証において、その進捗については差異があることを認識しつつ、先行して市場に製品を投入する企業（三浦工</p>	<p>実証事業参画メーカーが使用しているセルスタックはほぼ基盤研究に参画しているメーカーのもの。基盤研究で得られた知見</p>

	あり、結果として多数のシステム実証による成果の位置づけが曖昧となっている点が懸念される。要素技術の検証をしっかりと進めたのちにシステム実証に進められるよう、対応が望まれる。	業、MHPS) に引き続き市場投入を予定する企業 (富士電機、日立造船、デンソー) が遅滞なく市場投入できるよう、技術実証での課題を基盤研究における要素技術検証にフィードバックし解決を図るなど更なる連携を進める (実施計画に反映)。	は全てフィードバックがセルスタックメーカーを通じて、実証事業参画メーカーに情報は共有化されている。
	次世代 SOFC の開発事業については、中低温化、内部改質化や新しい SOFC 応用を拓くための機能探索など狙いを明確化して、課題抽出や開発目標の検討を行う必要があるように思う。	引き続き実施する次世代技術 (SOEC) については、将来の実用化を見据え、内部改質化など現段階で解決すべき基礎・基盤的な研究を重点におき、研究を推進する (実施方針に反映)。	対応前 2) 新規 SORC 用 LaGaO ₃ 電解質の湿式法による薄膜化と小型スタックの試作 3) 低温で酸化還元する Fe 粉体の合成 対応後 2) 新規 SORC 用 LaGaO ₃ 電解質の緻密性向上の方法の検討を行う。湿式法による薄膜化並びに小型スタックの試作及びシール材の検討を行う。 3) 低温で酸化還元する Fe 粉体の合成及び繰り返し酸化還元での劣化機構の解明及び抑制策を検討する。
成果の実用化に向けての取り組み及び見通し	業務用・産業用燃料電池のコスト目標については、機器本体の価格 100 万円/kW だけでなく、設置工事費、メンテナンス費も含めた総コストや、ランニングコストを考慮した投資回収年数などの経済性についても、本事業の実証研究を通して明らかにしていく必要がある。	設置工事費、メンテナンス費も含めた総コストや、ランニングコストを考慮した投資回収年数などの経済性について実証研究の中で明らかにしていく (実施計画に反映)。	実証事業者に左記の内容を周知し、実施計画中にどのように製品化を進めるかも検討頂いた。実証事業実施者数全 5 件の内、2 社が目標とおり 2017 年に初号機を上市した。 なお、経済性については「SOFC に関して用途の実用化、商品性向上に向けた調査事業」を実施し、どのような要求仕様であれば製品にメリットが出るかも検討した。
	開発期間の相異が原因と思われるが、プロジェクト成果あるいはアウトカムについての認識	将来取り組むべき新たな技術課題の設定も含め、実用化への道筋・ロードマップを、NEDO	「SOFC に関して用途の実用化、商品性向上に向けた調査事業」を公募により実施すると

	<p>が異なるように感じられるので、それぞれの実用化への道筋・ロードマップを、再度 NEDO と実施者間で共有して、着実に開発を進める努力が必要である。</p>	<p>と実施者間で共有するため、プロジェクト内に設置している技術委員会や必要に応じて NEDO 内に有識者にて検討する場（技術委員会（仮））を設置する（プロジェクト運営に反映）。</p>	<p>ともに、基盤研究をも含めて技術委員会を 3 回開催した。今後の SOFC 開発をどのようにすべきかをガス会社、電力会社、エネルギー会社、機器メーカー含め議論した。</p>
--	--	---	--

5. 評価に関する事項

事前評価については、2013 年 2 月に NEDO 新エネルギー部が事前評価書としてまとめ、公開されている。また NEDO は、技術的及び政策的観点から、研究開発の意義、目標達成度、成果の技術的意義並びに将来の産業への波及効果等について、外部有識者による中間評価を 2015 年度に、前倒し事後評価を 2019 年度に実施した。また、中間評価結果を踏まえ必要に応じプロジェクトの加速・縮小・中止等見直しを迅速に行った。なお、評価の時期については、当該研究開発に係る技術動向、政策動向や当該研究開発の進捗状況等に応じて前倒しする等、適宜見直すものとする。

なお、2 年の事業期間の延長については、NEDO 内で関連部門と調整・確認の上、中間評価を事後評価と併せて行うこととして、2017 年 12 月 25 日に開催した技術委員会にて出席頂いた委員に図り、研究開発項目 (a) と研究開発項目 (b) の 2 テーマについては 2 年の事業延長について承認頂いた。それぞれの事業は、2017 年度で 2013 年度に立てた計画を当初の予定通り終了し、2018 年度からは、研究開発項目 (a) は「高効率化 SOFC システム（発電効率 65%以上（LHV））のコンセプトを創出する。」、研究開発項目 (b) は「システム発電効率 60%以上（LHV）の実証評価を行い、高効率発電時の課題抽出を行う。」ことをそれぞれの最終目標とした。また、2018 年度に研究開発項目 (a) は体制を変更し、研究開発項目 (b) については追加公募を行った。また、2019 年度には研究開発項目 (a) について、体制変更によりそれまで「エネルギー・環境新技術先導研究プログラム」にて事業を実施していたプロトン形燃料電池についても本事業に取り込み、高効率化発電に関する研究開発の加速を図った。2019 年度のプロトン形燃料電池の事業への取り込みに関しては、2019 年 3 月 20 日に開催した技術委員会にて出席頂いた委員にはかり承認を頂いた。

中間評価については以下のとおり

①評価の実施時期：2015 年 11 月 6 日（金）

②評価手法：外部評価

③評価事務局：評価部、新エネルギー部

④評価項目・基準：

（1）事業の位置付け・必要性について

1）事業目的の妥当性

内外の技術動向、国際競争力の状況、エネルギー需給動向、市場動向、政策動向、国際貢献可能性等の観点から、事業の目的は妥当か。

2）NEDO の事業としての妥当性

民間活動のみでは改善できないものであること又は公共性が高いことにより、NEDO の関与が必要とされる事業か。

当該事業を実施することによりもたらされると期待される効果は、投じた研究開発費との比較において十分であるか。

(2) 研究開発マネジメントについて

1) 研究開発目標の妥当性

- ・内外の技術動向、市場動向等を踏まえて、戦略的な目標を設定しているか。
- ・達成度を判定できる明確な目標を設定しているか。

2) 研究開発計画の妥当性

- ・目標達成のために妥当なスケジュール及び研究開発費（研究開発項目の配分を含む）か。
- ・目標達成に必要な要素技術の開発は網羅されているか。
- ・計画における要素技術間の関係、順序は適切か。
- ・継続または長期の「プロジェクト」の場合、技術蓄積を、実用化の観点から絞り込んで活用を図っているか。

3) 研究開発の実施体制の妥当性

- ・技術力及び事業化能力を有する実施者を選定しているか。
- ・指揮命令系統及び責任体制は明確であり、かつ機能しているか。
- ・成果の実用化・事業化の戦略に基づき、実用化・事業化の担い手又はユーザーが関与する体制を構築しているか。
- ・目標達成及び効率的実施のために実施者間の連携が必要な場合、実施者間の連携関係は明確であり、かつ機能しているか。
- ・目標達成及び効率的実施のために実施者間の競争が必要な場合、競争の仕組みがあり、かつ機能しているか。
- ・大学または公的研究機関が企業の開発を支援する体制となっている場合、企業の取り組みに貢献しているか。

4) 研究開発の進捗管理の妥当性

- ・研究開発の進捗状況を常に把握し、遅れが生じた場合に適切に対応しているか。
- ・社会・経済の情勢変化、政策・技術の動向等を常に把握し、それらの影響を検討し、必要に応じて適切に対応しているか。

5) 知的財産等に関する戦略の妥当性

- ・知的財産に関する戦略は、明確かつ妥当か。
- ・知的財産に関する取扱（実施者間の情報管理、秘密保持及び出願・活用ルールを含む）を整備し、かつ適切に運用しているか。

(3) 研究開発成果について

1) 研究開発目標の達成度及び研究開発成果の意義

- ・成果は、中間目標を達成しているか。
- ・中間目標未達成の場合、達成できなかった原因を明らかにして、解決の方針を明確にしているか。
- ・成果は、競合技術と比較して優位性があるか。
- ・世界初、世界最高水準、新たな技術領域の開拓、汎用性等の顕著な成果がある場合、積極的に評価する。
- ・設定された目標以外の技術成果がある場合、積極的に評価する。

2) 成果の最終目標の達成可能性

- ・最終目標を達成できる見通しはあるか。
- ・最終目標に向けて、課題とその解決の道筋は明確かつ妥当か。

3) 成果の普及

- ・論文等の対外的な発表を、実用化・事業化の戦略に沿って適切に行っているか。
- ・成果の活用・実用化の担い手・ユーザーに向けて、成果を普及する取り組みを実用化・事業化の戦略に沿って適切に行っているか。
- ・一般に向けて、情報を発信しているか。

4) 知的財産権等の確保に向けた取り組み

- ・知的財産権の出願・審査請求・登録等を、実用化・事業化の戦略に沿って国内外に適切に行っているか。

(4) 成果の実用化・事業化に向けた取り組み及び見通しについて

「実用化・事業化」の考え方

当該研究開発に係る試作品、サービス等の社会的利用(顧客への提供等)が開始されることであり、さらに、当該研究開発に係る商品、製品、サービス等の販売や利用により、企業活動(売り上げ等)に貢献することをいう。

1) 成果の実用化・事業化に向けた戦略

- ・成果の実用化・事業化の戦略は、明確かつ妥当か。
- ・想定する市場の規模・成長性等から、経済効果等を期待できるか。

2) 成果の実用化・事業化に向けた具体的取り組み

- ・実用化・事業化に取り組む者の検討は進んでいるか。
- ・実用化・事業化の計画及びマイルストーンの検討は進んでいるか。

3) 成果の実用化・事業化の見通し

- ・実用化・事業化に向けての課題とその解決方針は明確か。
- ・想定する製品・サービス等は、市場ニーズ・ユーザーニーズに合致する見通しはあるか。
- ・競合する製品・サービス等と比較して性能面・コスト面等で優位を確保する見通しはあるか。
- ・顕著な波及効果(技術的・経済的・社会的効果、人材育成等)を期待できる場合、積極的に評価する。

⑤評価委員

	氏名	ご所属	役職
分科会長	山口 周	東京大学 大学院工学系研究科マテリアル工学専攻	教授
分科会長代理	安田 和明	産業技術総合研究所 ユビキタスエネルギー研究部門	副研究部門長
委員	伊藤 響	中部大学 工学部応用化学科	教授
委員	稲垣 亨	関西電力(株) エネルギー利用技術研究所	チーフリサーチ チャー
委員	里見 知英	燃料電池実用化推進協議会 企画部	部長
委員	須田 聖一	静岡大学 大学院工学研究科 材料エネルギー化学分野	教授
委員	水谷 安伸	東邦ガス(株) 技術研究所	主席

敬称略、2015年度の所属と役職にて記載

3. 研究開発成果について

1. 事業全体の成果

中間目標に対して概ね達成する見込みである。本事業の最終目標は SOFC システム等の本格普及へ向け、低コスト・高耐久性を両立したセルスタック開発に寄与する耐久性迅速評価技術確立とする。また、業務用中容量（数～数100kW）から発電事業用大型システムの実用化へ向けた技術実証と要素技術開発を実施するとともに、SOFC の用途拡大を目指すことである。世界的に見ても日本は先駆者であり、最終目標を達成すれば地球温暖化防止等の対応のため、この成果は日本国内のみならず世界市場の拡大が期待できる。

SOFC システムの導入が早期に開始されることで各機器の効率化、低コスト化等の技術開発の競争が促進されることが期待できる。

SOFC は発電効率 50%以上の効率であり分散電源として新たな市場を創成することが可能である。また、家庭用、産業用をはじめとする SOFC システムの導入により 2020 年の国内市場は 680 億円、2030 年には 3,331 億円と予想されている（*1）。

技術課題の解決、システムコスト低減が今後の SOFC 市場の重要なテーマであり、これらの課題が目標値に達することで本格的な市場拡大が期待される。

（*1：富士経済「2018 年版燃料関連技術・市場の将来展望」）

本事業の成果は、SOFC の評価手法、業務用システム等技術的には世界トップ水準である。また、特に評価手法においては固体酸化物型燃料電池の研究などで議論をリードしている。引き続き日本が議論をリードするためには、単に個別要素技術の成果（チャンピオンデータ）を求めるだけでなく、市場で受け入れられるシステムとしての完成度を高めていく必要がある。そのために情報収集を始め、国内関係者との連携などの仕組みの維持・継続が必要である。引き続き、要素開発と技術開発、規制見直しなどを並行して推進することが重要である。

SOFC 開発の基礎基盤技術で得られた成果は、燃料電池、電気化学、材料開発などの分野に活用できるものとする。特にシミュレーションによる劣化予測、劣化解析技術は、各企業におけるセルスタック開発に活用でき、各企業におけるセルスタックの開発が加速される。さらに、劣化予測、劣化解析技術は、セルスタックの劣化要因となる稼働条件などを予測することが可能となり、業務用システムなどの運転管理手法へ展開することができる。

燃料電池の中では、他の競合技術と比較しての優位性としては、発電効率が高く、熱需要の小さい事業者にも適用可能であること、排気ガス（NOx）が非常に少ないこと、静音性に優れていること等の優位性がある。エネルギーの多様化の面からも優位である。ただし現時点では普及規模が小さいため経済性が課題である。

1. 1 研究開発項目(a) 固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究

参画機関の連携により、「中間目標 1」と「中間目標 2」に対して十分な成果を挙げており、最終目標に向けて進捗中である。「中間目標 2」において 9 万時間を目標とする耐久性迅速評価方法を方

法を確立し、7社のセルスタックにおいて評価方法を適用し、目標を達成した。さらに、「最終目標」では既存の4社セルスタックを適用して、過酷試験での評価方法を確立するとともに、発電効率65%以上(LHV)を目指せるコンセプトを創出した。

1. 2 研究開発項目(b)固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証

各機関ともに課題解決の個別目標を明確にし、目標に対して十分な成果を挙げており、最終目標に向けて進捗中である。試作機から実証機へのステップも進み、システム全体としての課題も出てきている。商品機のコンセプトを検討する段階の機関もあり機関毎の多少差はあるが順調に進んでいる。

中間評価以降では本事業に参画している2社が経済産業省の立てたロードマップの予定とおり2017年度に業務・産業用産業燃料電池を上市した。さらに、「固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究」に参画していた1社も本ロードマップのとおり2017年度に製品として上市した。

1. 3 研究開発項目(c)固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発

トリプルコンバインドシステムに向けたSOFCの発電特性、ガスタービンとの連携技術、低コスト化の要素技術レベル確立に目処を得ることができた。

1. 4 研究開発項目(d)次世代技術開発

次世代技術に向けた取り組みであり、個別テーマとしては従来の目標設定のみではなく次世代に向けた課題も抽出されており、順調に進んでいる。

個別テーマではあるが、マイクロSOFC型小型発電機の開発については、新たな用途を目指した開発行ってきた。今後の課題抽出と要素技術開発、装置開発を並行して実施し成果を得られている。目標に対して十分な成果を達成しており、最終目標に向けて進捗中である。

2. 研究開発項目毎の成果

各テーマについての成果概要は以下のとおりである。

達成度 「◎：大幅達成、○：達成、△：一部達成、×：未達成」

なお、表の一部に「2015年度現状」や「2017年度達成見通し」と記載されているが、それらは2015年の中間評価時点における達成度と、2017年までの達成見通しを示す。

固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究(2013～2019年度)

(1) 耐久性迅速評価プロジェクトの達成度

2013～2015年度

開発項目	2015年度現状	最終目標(2017年度末)	2017年度達成見通し
固体酸化物形燃料電池の	1) スタック耐久性：第1グループの耐久性はほぼ確立された。第2グ	固体酸化物形燃料電池の9万時間以上の耐久性を見通	1) 試験サイトに起因すると思われる劣化要因の分

<p>耐久性迅速評価方法に関する基礎研究</p>	<p>ループについては空気極劣化を左右する因子を明確化する必要がある。第3グループについては初期劣化を決めている空気極劣化の要因を明確化する必要がある。</p> <p>2) 劣化機構解明では空気極 S 被毒の詳細を解明する必要がある。燃料極の劣化について、リンの影響を明らかにする必要がある。Ni の焼結の支配因子を明確にする必要がある。</p> <p>3) シミュレーション技術：ボタンセルレベルのシミュレーション技術を実機セルレベルで有効なものにする必要がある。</p>	<p>すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を確立する。</p>	<p>析・解析が成功すれば、9万時間耐久への見通しが得られるスタックが多い。個別なスタック課題については更に検討が必要となる。</p> <p>2) 本プロジェクト以外の基礎研究成果を広く取り入れることで劣化機構解明ができると思われる。</p> <p>3) 実験室レベルでも実機セルの劣化現象を再現出来るようになってきているので実機セルに役立つシミュレーション技術として確立できそうである。</p>
--------------------------	---	--	--

2013～2015 年度の成果

開発項目	中間目標(2015 年度)	2015 年までの成果	達成度
<p>固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究</p>	<p>9万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を開発する。また、この評価方法を耐久試験後の実セルスタックに適用し、その妥当性の検証及び課題抽出を行う。</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・電中研方式の性能解析を全スタックに適用し、各寄与毎の劣化率を算出した。特に、電極劣化とオーム損増加との相関を見出し劣化解析に有効であるとの認識を得た。 ・長期試験後の試料の集学的分析により、不純物レベル、微構造、化学変化などと性能劣化との相関を調べ、S 被毒において複雑な様相を示すことが明らかになった。 ・従来から抽出されている課題については、劣化機構解明とその付随するデータの取得により、スタック性能変化を予測するシミュレーション技術の開発に着手し、いくつかの課題については、大きな進展をみた。 	<p>△</p>

2016～2017 年度の成果

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
<p>固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究</p>	<p>9万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を確立する。</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・電中研の性能解析を全スタックに適用し、セルスタックの部位による劣化率の寄与度を算出した。不純物による劣化の防止法を解明するとともに電極劣化とオーム損増加との相関を見出し、劣化解析に有効であることを見出した。 	<p>○</p>

		<ul style="list-style-type: none"> ・セルスタック長期試験後の試料を集学的分析により、不純物濃度レベル、微構造、化学変化、形状変化などと性能劣化との相関を調べた。不純物（硫黄など）被毒、絶縁層生成、相変態などの劣化メカニズムを解明した。 ・従来から抽出されていた劣化課題について、劣化機構の解明を進め、付随するデータの取得によりスタック性能変化を予測するシミュレーション技術の開発を行った。 ・上記研究開発を総合的に複合化することで、9万時間の耐久を見通すことができる耐久性迅速評価方法を確立した。 	
--	--	---	--

2018～2019 年度の成果

開発項目	最終目標(2019 年度)	2019 年度までの成果	達成度
固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究	高効率化 SOFC システム（発電効率 65%以上（LHV））のコンセプトを創出する。	<ul style="list-style-type: none"> ・高効率運転(高燃料利用率 80%以上)及び負荷変動試験を複数企業のセルスタックに適用し、その健全性・強靱性を明らかにした。 ・高燃料利用率下での Ni-YSZ 燃料極での Ni 酸化などの劣化現象をボタンセルなどで解析・評価するとともに実セルスタックでの現象を解明した。 ・高効率運転時の劣化現象を早期に評価できるよう、シミュレーション技術を改良、複合化し、民間企業に提供した。 	○

(2) スタック耐久性評価 (2013 年度～2017 年度)

① 中温筒状平板形の達成度

2013～2015 年度中温筒状平板形の達成見通し

開発項目	2015 年度現状	最終目標(2017 年度末)	2017 年度達成見通し
1)-1「中温筒状平板形の耐久性評価」	前プロジェクトで 2 万時間電中研で運転した 2008 年度機を含め、2 万時間超運転した従来のセルスタック解体分析を実施した。大阪ガスおよび JX にて運転されたセルスタックの劣化挙動は電中研で運転された 2008 年度機	従来のセルスタックについて、9 万時間耐久の見通しが得られている場合には、更に長期間運転を行い、さらなる検証に勤める。見通しが得られない場合には改善点を提案するとともに	・従来のセルスタックについて、9 万時間耐久の見通しが得られつつあり、これまでの手法を踏襲し、さらなる検証に努めるとともに、寿命予測を行う。

	<p>と比較して小さく、長期運転による新たな劣化要因は生じていないことが明らかとなった。セルスタックの仕様が新しいものほど長期運転後の不純物および電解質相変態の影響が小さいこと、電中研サイトで運転したセルスタックの劣化挙動がやや大きいことが明らかとなった。</p> <p>低コスト検討セルスタックについては、2014 年度から、耐久性迅速評価へ向けた試験を電中研にて開始した。</p>	<p>に、耐久性迅速評価技術の課題抽出に供する。</p> <p>低コスト検討用セルスタックについて、9 万時間耐久性を評価する。</p>	<p>・低コスト検討用セルスタックについて、9 万時間耐久性を評価する。試験サイトに起因すると思われる劣化要因を明らかとすることが、9 万時間耐久への見通しを得るうえで重要となる。</p>
--	--	--	--

2013～2015 年度

開発項目	中間目標(2015 年度)	2015 年度までの成果	達成度
1)-1「中温筒状平板形の耐久性評価」	<p>2009 年度機以降の 2 万時間以上運転した従来のセルスタック解体分析並びに性能変化の解析を行い、劣化要因毎の時間変化の予測と実機劣化挙動とが整合しているかを検討し、9 万時間耐久が見通せるかを判断する。新たな劣化要因が見つかるかあるいは既知劣化要因の時間変化が予想から外れる場合には、その原因を究明し、耐久性迅速評価技術の開発に資する。2015 年度より、低コスト検討用セルスタックについて、耐久性迅速評価へ向けた試験を開始する。</p>	<p>・前プロジェクトで 2 万時間電中研で運転した 2008 年度機を含め、2 万時間超運転した従来のセルスタック解体分析を実施した。大阪ガスおよび JX にて運転されたセルスタックの劣化挙動は電中研で運転された 2008 年度機と比較して小さく、長期運転による新たな劣化要因は生じていないことが明らかとなった。</p> <p>・セルスタックの仕様が新しいものほど長期運転後の不純物および電解質相変態の影響が小さいこと、電中研サイトで運転したセルスタックの劣化挙動がやや大きいことが明らかとなった。</p> <p>・低コスト検討セルスタックについては、2014 年度から、耐久性迅速評価へ向けた試験を電中研にて開始した。</p>	○

2016～2017 年度

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
1)-1「中温筒状平板形の耐久性評価」	<p>従来のセルスタックについて、9 万時間耐久の見通しが得られている場合には、更に長期間運転を行い、更なる検証に努める。見通しが得られない場合には改善点を提案するとともに、耐久性迅速評価技術の課題抽出に供する。低コスト検討用セルスタックについて、9 万時間耐久性を評価する。</p>	<p>・4 万時間超耐久を含む実証機の解体分析、および電中研での性能試験とその後の解体分析により、空気極の S および Cr 被毒、電解質の相変態など、これまでに明らかとなっている劣化挙動以外の新たな劣化要因が生じていないことを確認した。</p>	○

②高温円筒横縞形の達成度

2013～2015 年度高温円筒横縞形の達成見通し

開発項目	2015 年度現状	最終目標(2017 年度末)	2017 年度達成見通し
1)-2 「高温円筒横縞形の耐久性評価」	累計 2 万時間以上の長期運転実績データを入手したセルスタックについて、物質の拡散状態、三相界面近傍の組織変化、欠陥化学的变化について解析を実施し、1 万時間までに得られた知見と概ね一致することを確認している。また、電力中央研究所での Cr 被毒量について、試験条件が実機換算で 9 万時間を超える加速条件であることから、当被毒種における耐久性の見通しは概ね達成している。 さらに 2 万時間以上運転実績データを更に取得中である。	長期運転セルスタックについて、新たな劣化要因がある場合には、劣化機構解明を従来の知見を基にして行い、改善策を検討する。新たな劣化要因がない場合には、更に運転時間を延長して、その挙動が寿命予測と整合するかを検証することで 9 万時間（電圧低下率 0.1 % / 1,000 h）の見通しを行うための耐久性迅速評価技術が適切であるかを判断する。	更に運転時間を延長したセルの評価を行い、挙動が寿命予測と整合するかを検証を実施することで、達成見込みは可能と判断している。

2013～2015 年度

開発項目	中間目標(2015 年度)	2015 年度までの成果	達成度
1)-2 「高温円筒横縞形の耐久性評価」	累計 2 万時間程度の長期運転実績データを入手したセルスタックについて、物質の拡散状態、三相界面近傍の組織変化に及ぼす影響、欠陥化学的变化を解析し、1 万時間までの知見で得られた劣化要因と比較し、9 万時間耐久性の見通しについて検討する。	・累計 2 万時間以上の長期運転実績データを入手したセルスタックについて、物質の拡散状態、三相界面近傍の組織変化、欠陥化学的变化について解析を実施し、1 万時間までに得られた知見と概ね一致することを確認している。 ・電力中央研究所での Cr 被毒量について、試験条件が実機換算で 9 万時間を超える加速条件であることから、当被毒種における耐久性の見通しは概ね達成している。	○

2016～2017 年度

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
1)-2 「高温円筒横縞形の耐久性評価」	長期運転セルスタックについて、新たな劣化要因がある場合には、劣化機構解明を従来の知見を基にして行い、改善策を検討する。新たな劣化要因がない場合には、更に運転時間を延長して、その挙動が寿命予測と整合するかを検証することで 9 万時間（電圧低下率 0.1 % / 1,000h）の見通しを行うための耐久性迅速評価技術が適切であるかを判断する。	・Cr 供給源無しでの 3 万時間の長期耐久試験より、電圧低下率 0.1 % / 1,000h(3 万時間)を確認。また、Cr 供給源有 2 万時間程度の運転より、実機の 7.7 倍相当の Cr 蒸気量にも関わらず、ごくわずかの劣化で Cr 堆積が認められなかったこと、Mn の電解質への拡散等の新たな劣化要因が確認されなかったことから、9 万時間（電圧低下率 0.1 % / 1,000h）の耐久性見通しを得ることができた。	○

③低温小型円筒形の達成度

2013～2015 年度低温小型円筒形の達成見通し

開発項目	2015 年度現状	最終目標(2017 年度末)	2017 年度達成見通し
1)-3「低温小型円筒形の耐久性評価」	劣化の主要因と認識された空気極の Cr 被毒の対策を実施した仕様のショートスタックについて、実機での運転を想定した環境下における耐久試験を行い、1 万時間を超えて目標とする劣化率の範囲内において、安定に推移することを確認した。耐久試験後セルの SIMS 分析結果などからも劣化メカニズム、対策の妥当性を確認した。Cr 析出を加速する評価方法を考案、実施し、実開発に資する手法を開発した。	開発された耐久性迅速評価技術が適切であった場合には、1-2 万時間の運転実証により 9 万時間耐久性の見通しが得られるか検証する。見通しが得られない場合には、改善点を明確にするとともに、評価技術の改良に資する。	懸念されている硫黄成分の影響度を明確にすることにより、9 万時間耐久性を実現できる見通しである。開発した劣化メカニズム、および加速試験方法を用いて、低コスト品の開発へ展開する。

2013～2015 年度

開発項目	中間目標(2015 年度)	2015 年度までの成果	達成度
1)-3「低温小型円筒形の耐久性評価」	加速試験案の策定及び、数千時間の連続運転結果の分析解析から 9 万時間耐久性の見通しが得られるか検証し、耐久性迅速評価技術の開発に資する。	<ul style="list-style-type: none"> ・前プロジェクトで劣化の主要因と認識された空気極の Cr 被毒の対策を実施した仕様のショートスタックについて、実機での運転を想定した環境下における耐久試験を行い、1 万時間を超えて目標とする劣化率の範囲内において、安定に推移することを確認できた。対策前には空気極／電解質三相界面近傍の Cr 濃集が見られていたが、対策後セルに対して SIMS 分析を行い、耐久試験後に Cr 濃集が見られないことから、対策効果を確認した。上記結果より 9 万時間耐久性の見通しが得られる可能性が高いことを確認した。 ・加速試験については、空気中の Cr 供給量を増やした単セル試験法を考案、実施し、活性化過電圧、Cr 析出量の変化から、妥当な手法であることを検証した。 	○

2016～2017 年度

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
1)-3「低温小型円筒形の耐久性評価」	開発された耐久性迅速評価技術が適切であった場合には、1-2 万時間	・Cr 被毒や起動停止サイクルを模擬した迅速評価手法を確立し、スタック	○

	<p>の運転実証により9万時間耐久性の見通しが得られるか検証する。見通しが得られない場合には、改善点を明確にするとともに、評価技術の改良に資する。</p>	<p>の改良を行った。その成果として、2016年度改仕様（初期案）では、2013年度仕様の劣化主要因であった空気極過電圧増大を抑制することで、9万時間の連続耐久を見通した。</p> <p>・2016年度改仕様（最終案）の社内評価を行い、初期案よりも更に劣化が抑制される優れたスタックであることを実証した。</p>	
--	---	--	--

④中温平板形の達成度

2013～2015年度中温平板形の達成見通し

開発項目	2015年度現状	最終目標(2017年度末)	2017年度達成見通し
1)-4「中温平板形の耐久性評価」	<ul style="list-style-type: none"> ・12年仕様の連続発電試験にて劣化の飽和傾向が見られたものの5,000時間以降で劣化が増大した。熱サイクル試験では初期劣化の他に大きな劣化は見られなかった。 ・初期劣化挙動の解析分析にて、初期劣化の主要因は内部抵抗および反応抵抗であった。解体分析にて、空気極でのKの増加、燃料極でのPの増加、燃料極の微構造変化が劣化因子として抽出された。 ・解析分析にて抽出された劣化因子に対する対策を一部盛り込んだ14年仕様スタックを耐久評価中。 	<p>劣化機構解明とその改善策を適用したスタックにおいて耐久性迅速評価を適用し、9万時間耐久の見通しを検討する。</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・長期耐久性への課題は初期劣化と5,000時間以降の劣化増大であり、課題を引き起こす劣化因子の特定と、劣化因子に対する対策改良スタックの評価にて9万時間耐久の見通しを立てる。 ・長期耐久性においては金属インターコネクターの酸化被膜増大で引き起こされる不具合が懸念されるため、金属インターコネクターを強制劣化させたスタックのサイクル耐性を実施し、長期劣化への影響を評価する。

2013～2015年度

開発項目	中間目標(2015年度)	2015年度までの成果	達成度
1)-4「中温平板形の耐久性評価」	<p>初期劣化挙動の解析・分析から、主要な劣化機構を想定し、改善部位を明確化する。次に、数千時間の連続発電試験、及び熱サイクル試験を通じて詳細な劣化機構を解明する。さらに、初期劣化を改良したスタックにて、長期耐久性の見通しを検討する。また、この改良したスタックで性能表示式の構築を行う。</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・連続発電試験及び熱サイクル試験を実施し、長期耐久性の見通しに対して初期劣化と5,000時間以降の劣化増大が課題であることが分かった。 ・上記課題を引き起こす劣化因子として、空気極でのKの増加、燃料極でのPの増加、燃料極の微構造変化が抽出された。 	△

2016～2017 年度

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
1)-4「中温平板形の耐久性評価」	初期劣化の改良、長期耐久の見通しを得たのち、劣化機構解明とその改善策を適用したスタックにおいて耐久性迅速評価を適用し、9 万時間耐久の見通しを検討する。	<p>・劣化改善スタックでの9万時間耐久の見通し検討については、劣化改善スタックの劣化率改善効果を確認するとともに、劣化挙動の外挿や各劣化要因のシミュレーションと基礎調査により、9万時間の耐久目標に目処を得た。</p> <p>・強制劣化手法による迅速評価にて、熱サイクルに対する健全性を確認した。更に、構造劣化解析に有用な応力解析手法に対し社内導入の検討を進め、金属部材のクリープ特性データとともに今後の社内での応力解析に役立てていく目途を得た。</p>	○

⑤中温筒状横縞形の達成度

2013～2015 年度中温筒状横縞形の達成見通し

開発項目	2015 年度現状	最終目標(2017 年度末)	2017 年度達成見通し
1)-5「中温筒状横縞形の耐久性評価」	<p>「2014 年度仕様」の 1 万時間の発電耐久試験から、劣化因子は初期の空気極過電圧増加と IR 損増加であることを明らかにした。</p> <p>IR 損増大は、YSZ 電解質の相変態が要因と推定したが、その経時変化を明確にする必要がある。</p> <p>空気極過電圧増加は要因解明が必要であり、さらにその経時変化を明確にする必要がある。</p> <p>強制劣化後のサイクル耐性試験を実施中であり、今後解析が必要である。</p>	中温筒状横縞セルスタックを使用したモジュールの9万時間耐久への見通しを検討する。	<p>IR 損増大は、酸素ポテンシャル分布解析を用いた経時変化をシミュレーション解析することにより9万時間耐久への寄与が見通せられる。</p> <p>空気極過電圧増大は、1万時間の発電耐久試験品の解析を進めることで要因を明らかにし、経時変化をシミュレーション解析することで9万時間耐久への寄与が見通せられる。</p> <p>サイクル耐性は、試験品の解析を進めることで9万時間耐久への寄与が見通せられる。</p> <p>以上から、9万時間耐久への見通しが得られ、その改良点が明確になると思われる。</p>

2013～2015 年度

開発項目	中間目標(2015 年度)	2015 年度までの成果	達成度
1)-5「中温筒状横縞形の耐久性評価」	中温筒状横縞形セルスタック及びモジュールの 5,000 時間程度の発電耐久試験と熱サイクル及び負荷サイクル試験を行う。試験後サンプルの基盤グループでの劣化機構解析結果をもとに改良したセルスタック及びモジュールの耐久試験を実施し、劣化機構解析結果および改良結果を検証する。本作業を数回繰り返して、9 万時間耐久が達成するための改良点を明確にする。	・「2013 年度仕様」の耐久試験を実施し、ガスリーク対策が急務であることを明らかにした。この対策を施した「2014 年度仕様」の 1 万時間の発電耐久試験では、初期に急激な電圧低下が起こった後、電圧は緩やかに低下した。初期の変化は IR 損と空気極過電圧の増加であり、その後は IR 損の微増であった。解析結果から、YSZ 電解質の相変態を確認し IR 損増加要因と推定した。空気極過電圧増加要因は S 被毒、微構造変化と推定し解析中である。	○

2016～2017 年度

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
1)-5「中温筒状横縞形の耐久性評価」	セルスタック及びモジュールの耐久試験と熱サイクル及び負荷サイクル試験を行なう。試験後サンプルの劣化機構解析結果をもとに改良したセルスタック及びモジュールの耐久試験を実施し、劣化機構解析結果および改良結果を検証する。本作業を数回繰り返して、9 万時間耐久への見通しを検討する。	・セルスタック及びモジュールの耐久試験により空気極過電圧及び IR 損の増大が劣化主要因であることを解明し、その改善を行った。 ・シミュレーション技術により、空気極の S 被毒及び電解質近傍の IR 損増大は 9 万時間経過後も限定的であるとの予測を得た。熱サイクル試験も行い、サイクル耐性を確認し、9 万時間耐久の見通しを得た。	○

⑥中温一体焼結形の達成度

2013～2015 年度中温一体焼結形の達成見通し

開発項目	2015 年度現状	最終目標(2017 年度末)	2017 年度達成見通し
1)-6 「中温一体焼結形の耐久性評価」	1) 初期劣化が比較的大きく対策が急務である。一方、経時劣化は比較的良好な結果が得られており、その要因としては、空気極の S 被毒を挙げしており、その機構解明に取り組み中である。	耐久性迅速評価技術を適用して、性能予測式を検証し、9 万時間耐久を評価する。	1) 評価に時間を要する経時劣化要因を空気極の S 被毒と推定できており、機構解明にも着手している。また、課題である初期劣化は評価・対策のサイクルが比較的短いため、9 万時間耐久の評価・見積が可能である。

2013～2015 年度

開発項目	中間目標(2015 年度)	2015 年度までの成果	達成度
------	---------------	--------------	-----

1)-6「中温一体焼結形の耐久性評価」	初期および数千時間耐久試験後のセルの劣化機構を把握し、耐久性の改善策を抽出する。そして、耐久試験の結果より性能予測式を構築する。	<ul style="list-style-type: none"> ・性能表示式を決定し、性能分離が可能となった。 ・各試験サイトにおける特性ばらつきの要因が外部集電にあることを発見し、改良品では各試験サイト間の特性ばらつきを大幅に低減した。 ・電力中央研究所における供給空気に硫黄成分が多く含まれることを明らかにした。 ・経時劣化要因として、空気極の S 被毒であることを明らかにした。また、種々の条件で S 被毒試験を実施し、機構解明の知見を得た。 ・FIB-SEM による解析により、SrZrO₃ などの生成は抑制されていることが分かった。 ・強制劣化要因を空気極の S 被毒として、強制劣化試験+熱サイクル試験を開始した。 	○
---------------------	--	---	---

2016～2017 年度

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
1)-6「中温一体焼結形の耐久性評価」	耐久性改善後セルの耐久性能予測式を構築し、耐久性迅速評価技術を適用して、性能予測式を検証し、9 万時間耐久を評価する。	<ul style="list-style-type: none"> ・一体共焼結形セルは初期劣化が大きいことが課題として残ったが、その要因は絞り込むことができ、早急に解決できる見込みを得ることができた。初期劣化が解決すれば、機械的な耐久性も含めて、10 年耐久の目処がたつ見込みである。 ・種々の解析・評価法を適用して、耐久性の迅速評価技術を確立し性能予測式も検証した。また、種々の検討のなかで、性能向上の糸口や製造条件検討手法も得ることが出来たため、より商品力のある SOFC 開発が促進されると期待される。 	○

⑦業務用平板形の達成度

2015～2017 年度 (2015 年度より参画)

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
1)-7「業務用平板形の耐久性評価」	業務用中温平板形セルスタックに耐久性迅速評価技術を適用、9 万時間耐久への見通しを検討する。	<ul style="list-style-type: none"> ・耐久性迅速評価技術の適用により、劣化課題として、1)Cr による空気極被毒、2)ガスクロスリークによる空気極被毒促進、3)発電中のセル変 	○

		形による集電抵抗増大、が抽出された。このうち、1)については金属スタック表面のコーティングにより解決可能である事が確認・検証された。2)、3)に関しては、デンソーにて解決指針を導出し、9 万時間耐久を見通すためのセルスタック設計に反映させることができた。	
--	--	---	--

(3) 劣化機構の解明 (2013 年度～2017 年度)

①熱力学的解析による劣化機構解明、加速要因分析の中間目標と達成度 (産業技術総合研究所)

2013～2015 年度達成見通し

開発項目	2015 年度現状	最終目標(2017 年度末)	2017 年度達成見通し
2)-1「熱力学的解析による劣化機構解明、加速要因分析」	<ul style="list-style-type: none"> セルスタックの劣化挙動解析において、Cr 被毒についてはほぼ解決、S 被毒については新規セルスタックを中心に劣化要因として確認、電解質相変態もセルスタックにより進行を確認。 劣化基礎データの収集において、電解質相変態については追加データを収集、SrZrO₃ 生成については通電時の影響を確認。 加速試験について、Cr 被毒については実験手法はほぼ確立、現在データ取得中。S 被毒についてはメカニズム解明に向け、温度など条件を変えて試験を実施。 	劣化対策を施したセルスタックにおいて、セル構成材料と不純物との反応性・材料間反応性を解析し、劣化要因分析・劣化メカニズム解明を行い、10 % / 9 万時間耐久を評価する。	<ul style="list-style-type: none"> 第 1 グループについては数万時間の運転後も劣化対策が効果的であることを確認、試験サイトによる影響を評価、10 % / 9 万時間耐久を評価する。 第 2・第 3 グループについては順次見つかった劣化機構に対応した改良セルスタックの長期運転、解体分析を実施することで、10 % / 9 万時間耐久を評価する。 劣化基礎データの収集、加速試験については、電解質相変態と Cr 被毒については見通しが立つ一方、空気極 S 被毒メカニズムの解明や新たな課題への取り組みに注力する必要がある。

2016～2017 年度

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
熱力学的解析による劣化機構解明、加速要因分析	劣化対策を施したセルスタックにおいて、セル構成材料と不純物との反応性・材料間反応性を解析し、劣化要因分析・劣化メカニズム解明を行い、	・「スタック耐久性評価」にて供されたセルスタックの劣化メカニズム解析を行うために、セル構成材料間および不純物元素との化学的・電気化学的	○

	10 % / 9 万時間耐久を評価する。	応を解明した。 ・各スタックの劣化挙動を横断的に取り纏め、特定された劣化挙動の寄与、その劣化進展モデルを構築するために必要とされる基礎データの有無などを把握し、集学的対応の進捗を促した。	
--	----------------------	--	--

②化学的解析による劣化機構解明、加速要因分析の中間目標と達成度(九州大学)

2013～2015 年度達成見通し

開発項目	2015 年度現状	最終目標(2017 年度末)	2017 年度達成見通し
2)-2「化学的解析による劣化機構解明、加速要因分析」	<ul style="list-style-type: none"> ・各スタックを STEM 分析し劣化要因として Cr 等の被毒種の影響を明確化し改善につなげた。 ・共通の課題である SrZrO₃ について、セル作製時の熱処理条件が生成状態に及ぼす影響を明確化した。セル発電による成長を確認した。電子線回折を用いて生成・成長メカニズムを解析した。 	各スタックに対して、化学的解析により 9 万時間耐久の見通しに必要とされる劣化機構解明を行うとともに、化学的解析に係わる加速要因分析の高度化を図る。	<ul style="list-style-type: none"> ・各スタックに対して、Cr 以外にも S などの劣化要因の影響を STEM 分析により明確化し、9 万時間の耐久性実現に貢献する。 ・STEM 分析・解析の高度化により、SrZrO₃ 生成開始場所、Sr 拡散経路、発電反応に伴う SrZrO₃ 成長メカニズム、運転条件・時間の影響を明らかにし、耐久性迅速評価を可能にする。

2016～2017 年度

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
化学的解析による劣化機構解明、加速要因分析	各スタックに対して、化学的解析により 9 万時間耐久の見通しに必要とされる劣化機構解明を行うとともに、化学的解析に係わる加速要因分析の高度化を図る。	・スタック側が行った長期試験後のセルの劣化要因、劣化機構、加速要因を明確化するため、初期および耐久試験後のサンプルを STEM 分析し化学的に解析した。微量不純物の影響を明らかにし、9 万時間の耐久性見通しに貢献した。	○

③三相界面微細構造解析による劣化機構解明、加速要因分析の中間目標と達成度(京都大学・東京大学)

2013～2015 年度達成見通し

開発項目	2015 年度現状	最終目標(2017 年度末)	2017 年度達成見通し
2)-3 「三相界面微細構造解析による	1) 長期耐久試験に供した各社セルスタックの電極微構造変化を FIB-SEM を用いて定量的に解析し、劣化	各社セルスタックについて、これまでのデータベースを活用して劣化要因・機構を解明し、適切	1)各社セルの電極微構造変化を定量的に解析することにより、劣化部位

劣化機構解明、加速要因分析」	<p>部位や因子の特定を継続的に実施している。また一部のセルでは、実電極微構造を用いた性能シミュレーションに取り組んでいる。</p> <p>2) 実機でも想定される条件でボタンセルやスタックを運転し、微構造変化と性能変化の相関に関する様々なデータを収集している。</p>	<p>な提案を行う。またボタンセルを用いた加速劣化手法を確立し、短時間の運転から長期運転時の性能を予測する。</p>	<p>や因子を特定することが可能であるため、機構解明に留まらず、各社セルのウィークポイント改善に大きく寄与できそうである。</p> <p>2) 様々な劣化現象の解析例を増やすことで、実機セルで起こる現象の理解や改善への提言が可能である。</p>
----------------	---	--	--

2016～2017 年度

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度成果	達成度
三相界面微細構造解析による劣化機構解明、加速要因分析	各社セルスタックについて、これまでのデータベースを活用して劣化要因・機構を解明し、適切な提案を行う。またボタンセルを用いた加速劣化手法を確立し、短時間の運転から長期運転時の性能を予測する。	・FIB-SEM による三次元再構築データから各社セルスタックの三相界面長の評価・解析を行い、劣化機構解明に寄与した。雰囲気や条件によって変化しうる電極微構造変化のパラメータのデータベースを構築し、長期運転の予測を可能とした。	○

④ セル構造体解析による劣化機構解明、加速要因分析の中間目標と達成度（東北大学）

2013～2015 年度達成見通し

開発項目	2015 年度現状	最終目標(2017 年度末)	2017 年度達成見通し
2)-4 「セル構造体解析による劣化機構解明、加速要因分析」	<p>各種セル・スタック毎に、その特徴に応じて、必要なデータの取得・セル挙動の検証を行った。取得したデータと開発したシミュレーションツールを実セルの応力解析に適用する段階にある。</p> <p>また、研究を進める過程で新たにいくつかの課題が抽出されており、長期信頼性への影響を見極める必要がある。</p>	<p>長期耐久性評価試験に供されたスタックの熱力学的・化学的および三相界面微細構造の各解析の結果を取り入れて、これらが9万時間以上の運転後の信頼性に及ぼす影響を明らかにする。</p>	<p>開発した手法を長期の信頼性の評価に生かすためには、長時間運転後の各部材の組成・結晶相・微構造を明らかにし、これらの情報を組み込む必要がある。これらの情報は、本プロジェクトで実施している熱力学的・化学的および三相界面微細構造の各解析で行う、長期試験後のセルの解析結果から得ることができる。必要に応じて、長期使用を模擬した材料の物理化学的・機械的特性の測定・シミュレーションを行うことで、これらを物性定数として持つセルの解析が可能となり、これにより、セルの長期</p>

			信頼性を予測することができる。研究途上で見出される課題についても短期長期信頼性への影響度を評価し、総合的な検討に加える。
--	--	--	--

2016～2017 年度

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
セル構造体解析による劣化機構解明、加速要因分析	セル構造体の信頼性に影響する現象として、非対称セルについては単セルの変形挙動、対称セルについては運転条件下での特定部材の物理化学的・機械的挙動をとりあげ、酸素ポテンシャル分布を考慮した解析により、9 万時間以上の運転後の信頼性に及ぼす影響を明らかにする。	・電解質・電極・インターコネクトを基本とするセル構造体に生ずる応力や変形など、セルスタックの損傷や構造的な性能劣化に繋がるリスク要因の発生機構を解明し、起動・停止を含む様々な運転条件下での長期信頼性を評価する手法を開発した。	○

(4) 耐久性迅速評価方法の開発 (2013 年度～2017 年度)

① スタック性能劣化解析とその高度化 (電力中央研究所、共同実施先：東京ガス株式会社)

2013～2015 年度達成見通し

開発項目	2015 年度現状	最終目標(2017 年度末)	2017 年度達成見通し
3)-1 スタック性能劣化解析とその高度化	<p>第 1 グループについては、新たな劣化要因は抽出されなかったため、さらに運転時間を延長して長期データの蓄積を図る。</p> <p>第 2 グループについては、空気極劣化挙動が試験サイトにより異なっていることが新たな課題として挙げられた。</p> <p>第 3 グループについては、初期劣化に対する対策や外部由来の不純物として S 被毒による空気極過電圧の増加とそれに伴う IR 損の増加が新たな課題として挙げられた。</p> <p>強制劣化を用いたサイクル耐性の迅速評価手法のスキームを提案し、スキームに基づき、劣化前のスタック評価及び劣化要因の抽出、強制劣化サンプルの試作に成功した。</p>	<p>劣化要因改善策が施された各セルスタックに対して、逐次長期耐久性試験と性能解析(抵抗分離)を行なうことにより、抵抗成分毎の劣化率を定量化し、9 万時間耐久の達成度を各スタック毎に明確化する。</p> <p>開発したサイクル耐久に関する耐久性迅速評価技術を適用し、9 万時間の耐久性確保に向けて劣化要因改善策が施された各セルスタックに対して、逐次効果検証を行うことにより、熱サイクルおよび負荷サイクルによる耐久性が 9 万時間の期間で十分であるかどうかの見直しを行う。</p>	<p>筒状平板形、円筒横縞形のように劣化が少なくスタックの耐久性が高いスタックについては、2 万時間程度の耐久試験データを蓄積し、9 万時間耐久への達成度を明確化できるであろう。</p> <p>比較的劣化が大きいスタックについては、逐次改良されたスタックの抵抗成分毎の劣化率を定量化し、対策効果の検証と、9 万時間耐久へ向けての課題抽出を行う。</p> <p>強制劣化後のサンプルについて、サイクル試験を実施し、強制劣化前後のサイクル耐性を比較することで、各スタックが、9 万時間の期間においてサイクル</p>

			に対する耐性を有するかを見通す。
--	--	--	------------------

2016～2017 年度

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
スタック性能劣化解析とその高度化	劣化要因改善策が施された各セルスタックに対して、逐次長期耐久性試験と性能解析(抵抗分離)を行なうことにより、抵抗成分毎の劣化率を定量化し、9万時間耐久の達成度を各スタック毎に明確化する。 開発したサイクル耐久に関する耐久性迅速評価技術を適用し、9万時間の耐久性確保に向けて劣化要因改善策が施された各セルスタックに対して、逐次効果検証を行うことにより、熱サイクルおよび負荷サイクルによる耐久性が9万時間の期間で十分であるかどうかの見直しを行う。	<ul style="list-style-type: none"> ・参画したメーカ7社のSOFCについて、初期の性能評価データ解析から、各過電圧を抵抗近似できることや、構成材料、中間層の多孔度、ガス流路の違いにより燃料極や空気極のガス分圧依存性係수에違いが現れることが分かった。この結果から各社毎に異なるガス分圧依存性係数を用いれば、各SOFCの出力電圧を精度良く予測でき、各過電圧分離が可能であることを明らかにした。 ・この手法を耐久性評価に適用し、各社セルスタックの抵抗成分毎の劣化率取得に成功し、各成分の解析法を確立した。 ・熱サイクル特性についても検討し、その影響は小さいことを解明した。 	○

② シミュレーション技術の開発(京都大学、東京大学、東北大学、産業技術総合研究所)

2013～2015 年度達成見直し

開発項目	2015 年度現状	最終目標(2017 年度末)	2017 年度達成見直し
3)-2 シミュレーション技術の開発			
①東京大学	Ni 焼結シミュレーション技術に関しては、計算負荷が大きいが、GPU を用いることで計算が高速化され、数万時間に相当する計算ができる見通しが得られた。 空気極反応防止層に生成する SrZrO ₃ 層の影響に関しては SrZrO ₃ 層を絶縁と仮定した電解質-反応防止セリア層-LSCF 空気極を練成させた計算コードを開発した。こちらも計算負荷が大きく、構造によっては計算時間が非常にかかる場合がある。	燃料極 Ni 焼結の数値シミュレーション手法を数万時間以上の劣化予測まで適用可能なレベルに高度化する。また、LSCF 空気極と電解質間の反応防止層中に生成する SrZrO ₃ 絶縁相が、中間層有効イオン導電率や空気極過電圧に及ぼす影響を評価可能な数値シミュレーション手法を構築する。	Ni 焼結シミュレーション技術に関して、解像度が不足することによる小径の粒子が拡散してしまう影響を補正するアルゴリズムを開発しており、実用上に耐えうるコードとして完成できる見直しである。 空気極反応防止層に生成する SrZrO ₃ 層の影響に関しても、メッシュ数を減らすなどより計算負荷を減らすアルゴリズムを工夫することで、実用評価に耐えうるコードを開発できる予

			定である。
②京都大学	Ni-YSZ 燃料極や LSM 空気極あるいは Ni-YSZ 燃料極/電解質/LSM 空気極の三層を含めた電極過電圧解析が可能である。さらに LSCF 空気極の解析に対応するようプログラムの開発を進めている。また電極微構造を考慮できる単セルやショートスタック解析プログラムの開発が概ね完了している。これらの解析プログラムに適用するべく、反応サイトにおける活性の低下として局所劣化をモデル化しつつある。	LSM 緻密化の進展と酸素ポテンシャル分布の相関を明確化する。セルスタックシミュレーションでの局所劣化モデルの高度化を図る。	1) LSM 電極の数値解析結果から酸素ポテンシャル分布を取得し、LSM 緻密層が形成した実験結果と比較することで、両者の相関の明確化が見込める。 2) 微構造に基づく局所劣化モデルを適用することで、各スケールにおける劣化進行の数値予測が可能となるのみならず、さらにそれらと比較することで、局所劣化とそれが及ぼすセル・スタック劣化挙動の関係について推察することが可能となる。
③東北大学	非定常酸素ポテンシャル分布の影響を考慮した応力解析を Abaqus/Abaqus CAE と連携して実施する事が可能となった。 産総研と共同で、YSZ の正方晶への相転移と酸素ポテンシャル分布の相関をシミュレーションするプログラムを開発した。	酸素ポテンシャルの計算ルーチンを ANSYS、FLUENT などの汎用構造解析、熱流体解析ソフトウェアと連携させ、酸素ポテンシャル計算を基礎とする応力計算、信頼性の評価を実施できるようにする。	東京ガスなど、すでに Abaqus/AbaqusCAE を用いた構造解析を実施しているプロジェクト参加企業と協力することでプログラム動作の検証と改良を行う。入出力の形式の対応により ANSYS への対応も比較的早期に実現できる見込みである。その後、MARC/MENTAT との連携を進める。各企業・機関での使用により、信頼性評価に必要な物性値テーブルの整備を進める。
④産業技術研究所	・東北大との連携の下、酸素ポテンシャル分布のソフトの開発の中で、YSZ の相変態と伝導度低下現象への適用に関する成果をあげることができた。 ・S 被毒について、オーム損と空気極過電圧劣化の相関によって解析することによってその様相を明らかにした。	電解質、電極/電解質界面、電極における劣化現象をシミュレーションできる技術確立し、9万時間耐久を確実にするための基盤データを提供する。	・ジルコニア系電解質の相変態による伝導度低下のシミュレーションは期待以上に進展している。 ・S r ZrO ₃ 生成に伴う伝導度低下については YSZ との界面での現象の理解が必要と判断、同位体交換による試験など

			追加実施。 ・空気極 Cr 被毒は堆積状態と劣化率との相関として定式化する。 ・空気極 S 被毒は定式化に向け更に物理化学的な理解を目指す。
--	--	--	--

2016～2017 年度

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
シミュレーション技術の開発			
① 東京大学	耐久試験結果から抽出される劣化要因をシミュレーションし、耐久性評価手法としての妥当性の検証などを行い、9 万時間耐久性を確保するためのシミュレーション技術を構築する。	・FIB-SEM3 次元再構築手法とフェーズフィールド法を用いた燃料電極中の Ni 焼結挙動、局所電流密度変化などをシミュレーションし、劣化挙動を解析することに成功した。 ・空気極/中間層/電解質界面での絶縁層生成や被毒現象に対して、その現象を再現し、長期耐久性をシミュレーションする技術を開発した。	○
② 京都大学	LSM 緻密化の進展と酸素ポテンシャル分布の相関を明確化する。セルスタックシミュレーションでの局所劣化モデルの高度化を図る。	・FIB-SEM で得られる微構造を反映する数値解析技術を電極・セル・スタックそれぞれのスケールで開発した。 ・局所とマクロの劣化進展の相違を、シミュレーションで予測する技術を開発した。	○
② 東北大学	酸素ポテンシャルの計算ルーチンを ANSYS、FLUENT などの汎用構造解析、熱流体解析ソフトウェアと連携させ、酸素ポテンシャル計算を基礎とする応力計算、信頼性の評価を実施できるようにする。	・セル構成材料内部の非定常酸素ポテンシャル分布から、化学歪を考慮して応力解析する方法に関して汎用ソフトへの展開を考慮したシミュレーション技術を開発した。	○
④ 産業技術研究所	電解質、電極/電解質界面、電極における劣化現象をシミュレーションできる技術を確立し、9 万時間耐久を確実にするための基盤データを提供する。	・YSZ 電解質内の正方晶化に関する劣化進展モデルをシミュレーションし、長期耐久する技術を開発した。	○

③ 耐久性迅速評価方法の開発（電力中央研究所、東京大学、京都大学、東北大学、産業技術総合研究所）

2013～2015 年度達成見通し

開発項目	2015 年度現状	最終目標(2017 年度末)	2017 年度達成見通し
3)-3 「耐久」	1) スタック性能評価とシミュレーション	開発された耐久性迅速評価方	1) オーム損と電極過電

<p>性迅速評価方法の開発」</p>	<p>技術を同じ開発項目の中で行ったが予想以上に有効な成果を次のように得た。</p> <p>i) セルのシミュレーションではいち早く、性能評価解析で導出されたオーム損と空気極過電圧劣化の相関に対し、3D 再構築した系でその電気化学的妥当性を示した。</p> <p>ii) 同じく S 被毒の複雑さを前出相関によって解析することによってその様相を明らかにした。</p> <p>iii) 酸素ポテンシャル分布のソフトの開発は YSZ の相変態と伝導度低下現象への適用は大きな成果をあげ、今後の様々シミュレーションの展開を期待される。</p>	<p>法が十分にスタック耐久性評価方法として機能しうることを、スタックメーカーと連携して検証し、改善点の抽出を行い、評価方法としての確立を図る。</p>	<p>圧との相関によってスタックの性能変化をより物理化学的に把握できる基盤が得られた。</p> <p>2) ジルコニア系電解質の相変態による伝導度低下は各スタックに対して予測できるレベルに達すると思われる。</p> <p>3) SrZrO₃ 生成に伴う伝導度低下の理解は進みが、スタック毎の違いの検討の余地は残ろう。</p> <p>4) 空気極 Cr 被毒はほぼ予想できる。S 被毒は更に物理化学的な理解の進展が必要であるが、その全体像は明らかになり、材料・セル/スタック、システムのどのレベルが対処すべきか各スタック毎に明らかにできると思われる。</p> <p>5) 燃料極の劣化現象(数例)についても対策がとれると思われる。</p>
--------------------	--	--	---

2016～2017 年度

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
<p>3)-3 「耐久性迅速評価方法の開発」</p>	<p>開発された耐久性迅速評価方法が十分にスタック耐久性評価方法として機能しうることを、スタックメーカーと連携して検証し、改善点の抽出を行い、評価方法としての確立を図る。</p>	<p>・各寄与毎の劣化機構を定量的に検討する中で、多くの劣化現象が、単独の材料によるものではなく、空気極/電解質/燃料極間の複雑な相互作用によって生じていることが明らかになった。</p> <p>・オーム損増大の中で原因究明に至らなかった事例が発生し、従来より更なる高度な解析の必要性が示唆された。</p>	<p>○</p>

(5) スタック耐久性評価 (2018 年度～2019 年度)

①スタック過酷試験 (電力中央研究所、産業技術総合研究所、共同実施：京セラ株式会社、日本特殊陶業株式会社、日本ガイシ株式会社、株式会社デンソー、東京ガス株式会社、東邦ガス株式会社)

開発項目	最終目標(2019年度)	2019年度までの成果	達成度
スタック過酷試験による電池性能の解明	スタック開発企業の協力のもと、2017年度までの耐久性迅速評価プロジェクトで開発されたスタックを、運用限界近辺で稼働させ、試験後の解体分析を行う。高効率運転時の劣化因子・課題を抽出する。	・高効率運転を想定し、燃料利用率80%以上での運転、及び負荷変動運転を行い、高効率運転の可能性を示した。 ・高燃料利用率運転での劣化因子の解明を行い、検討範囲では通常運転での劣化と類似であることを解明した。	○

②高効率システム用スタック過酷試験（産業技術総合研究所、大阪ガス株式会社との共同実施）

開発項目	最終目標(2019年度)	2019年度までの成果	達成度
高効率システム用スタック過酷試験	家庭用燃料電池システムなど小容量機のSOFCシステム構成を念頭に実用システムの燃料流量変動等の実力見込みを解析した上、スタック評価条件を提案する。	・実用システムでの燃料流量の変動現象を解析し、燃料利用率が100%を超える状況もありうること、負荷変動の周期によっては現状でも対応できることを解明し、高効率・強強化セルスタック実現のための評価条件を提示した。	○

③強靱性セルの試作と可能性検討（京都大学、東北大学、九州大学、産業技術総合研究所）

開発項目	最終目標(2019年度)	2019年度までの成果	達成度
強靱性セルの試作と可能性検討	強靱性を有する金属等の支持体や耐熱性、材料両立性等を考慮した電解質・電極等の構成材料、および新規多孔質支持体の製法および低温でのセラミックス成膜・焼結技術等、製造プロセスを検討し、強靱性セルの試作を行う。	・金属多孔質支持体上にSOFCセルを成膜するプロセス法を数種類検討し、単セルで数 W/cm ² の発電出力を示す、単セル作成に成功した。 ・電気化学特性や機械的特性についても検討し、強靱性セルの可能性を示すことができた。	○

④プロトン導電性デバイスの検討（産業技術総合研究所、東北大学、パナソニック株式会社との共同実施、宮崎大学(再委託)、横浜国立大学(再委託))

開発項目	最終目標(2019年度)	2019年度までの成果	達成度
プロトン導電性デバイスの検討	超高効率セルスタックの設計に向け、PCFCセルの電解質の輸率向上や電極界面設計、種々の作動環境での劣化機構解明、並びに利用率や熱機械的特性向上に向けた課題抽出を行う。	・プロトン導電性セラミック燃料電池(PCFC)の材料組成最適化によりプロトン輸率の向上を図った。電極/電解質界面での抵抗を抑えるため、電極材料や界面構造の最適化を図り、性能を向上させることに成功した。	○

(6) 劣化機構の解明 (産業技術総合研究所、東北大学、東京大学、京都大学、九州大学)(2018年度～2019年度)

小項目全体

開発項目	最終目標(2019年度)	2019年度までの成果	達成度
劣化機構の解明	スタック耐久性評価で、過酷試験されたセルスタックの劣化事象を切り出して、高効率・強靱化のための要素解析・劣化機構解明を行う。また、高効率・強靱化に必要な新規な評価法の検討も進める。	燃料利用率 80%以上、負荷変動などの過酷試験を想定したセルスタックの劣化事象に対し、特に燃料極での酸化や微構造変化などの起こりうる劣化メカニズムを解明し、高効率・強靱化のための基礎データを集積した。さらに、高効率セルの劣化を検出する新規評価法も開発した。	○

(7) 耐久性迅速評価方法の開発 (東京大学、京都大学、東北大学) (2018年度～2019年度)

小項目全体

開発項目	最終目標(2019年度)	2019年度までの成果	達成度
耐久性迅速評価方法の開発	高燃料利用率下での燃料極の微構造変化と性能、機械的な変形などの事象をシミュレーションできるようにする。	・過酷条件において課題となる局所水蒸気分圧を高精度に予測するために、必要に応じてモデルの改良を行った。局所水蒸気分圧の下で過酷運転時の燃料極の Ni 形態変化を予測することができ、過酷条件における燃料極劣化のシミュレーション・予測手法を構築した。汎用ソフトによる流体解析と、還元歪みを考慮した構造解析とを連携させる手法を開発した。	○

固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証

MHPS(2013～2014年度)

開発項目	最終目標	2014年度までの成果	達成度
システム安全性評価	①「発電用火力設備」「電気設備」に関する技術基準に対する SOFC ハイブリッドシステムの設計への反映状況の再整理 ② 家庭用燃料電池 (SOFC 型) を参考にしながらハザード分析、加圧特有のハザード分析	・SOFC ハイブリッドシステムの設計が、火技や電技の基準に適合していることを確認した。 ・また、加圧特有の異常事態、幅広い異常事態 (火災、感電、酸欠、損壊、転倒等) を想定したハザード分析を実施し、本システムの安全対策を確認した。	○

		<ul style="list-style-type: none"> ・なお、ハザード分析は今後開発され得る加圧型燃料電池システムも想定した汎用性の高いものとしている。 	
SOFC ハイブリッドシステム 実証機の運転試験	<ul style="list-style-type: none"> ①システムの長期耐久性検証 ②システム安全性検証（システム異常模擬状態における安全性評価） 	<ul style="list-style-type: none"> ・定格負荷にて、連続発電時間 4,100h、累積運転時間 5,067h を達成 ・定格負荷でのユニット運転状態出力 (AC 発電端ベース) : 206kW(SOFC : 183kW/MGT : 23kW) 発電効率 (AC 発電端 LHV ベース) : 50.2%、総合効率 : 75% ・定格負荷一定条件において経時劣化は見られず、電圧低下率 0%/1,000h で安定していることを確認 ・起動及び負荷上昇において良好に自動制御できていることを確認 ・長時間の運転においても、圧力・温度共に安定した挙動を示している。 	○
机上検討および試験結果 解析に基づく規制緩和の妥当性評価	<ul style="list-style-type: none"> ① 検討・試験に基づく、初期導入促進に向けた課題に抽出 ②「常時監視に義務化の見直し」を第一の目的とする 	<ul style="list-style-type: none"> ・日本ガス協会 (JGA)、日本電機工業会 (JEMA)、燃料電池実用化推進協議会 (FCCJ) に評価頂き、常時監視しない発電設備の対象を圧力 0.1MPa から 1.0MPa に拡大しても、電技第 46 条【常時監視をしない発電所等の施設】で定める「異常が生じた場合に安全かつ確実に停止することができる」ことを確認した。 	○

三浦工業 (2013~2016 年度)

開発項目	最終目標(2016 年度)	2016 年度までの成果	達成度
発電効率	48% ①スタック効率 57% ②燃料利用率 (U f) 72% ③補機損失 400W ④ P C S 効率 93% ⑤効率 50%の課題抽出	達成 (48%) ①達成 (≥57%確認) ②達成 (≥72%確認) ③達成 (≤400W 確認) ④達成 (94.1%) ⑤達成 (見直しを取得済)	○
総合効率	90%	達成 (> 90%)	○
システム機検証	劣化率 0.25%/kh ①改質水供給圧力変動 ±1kPa ②スタック温度むら ±20℃	一部達成 (0.24 (~4.9) %) ①達成 (±0.58kPa) ②達成 (±20℃)	△

	③運転温度 760℃	③達成 (730℃)	
システム機の確立	①水自立機能 ②別置パーガス ③別置き PCS	①達成 (ワンパッケージ化) ②達成 (パーガスレス化) ③達成 (ワンパッケージ化)	○

富士電機(2014～2017 年度)

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
常圧型モジュールの開発	実規模 (40kW 級) モジュールの設計/製作/評価	実規模モジュールの設計/製作/評価を行い、DC 発電効率 55% (AC50%相当) を確認。	○
常圧型高効率システムの開発	高効率システムの設計/製作/評価及び制御ロジックの開発	高効率システムの設計技術及び制御ロジックを確立。実規模システム評価にて、排熱回収効率 30%以上を確認。	○
実証試験	実証機 (パッケージタイプ) の設計/製作/評価	初期性能 (発電効率 50%以上、総合効率 80%以上) を確認し、耐久性評価にて 4 万時間以上の見通しを得た。	○
商品機の設計	商品機の基本設計及びコスト試算を実施	商品機の基本設計を実施し、コスト試算したが目標価格は未達成。	×

日立造船(2014～2017 年度)

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
10kW 級ベンチ試験による性能確認、課題抽出	10kW 級ベンチ試験による性能確認およびスケールアップ課題抽出	<ul style="list-style-type: none"> ・10kW ベンチ試験により、セルスタック端 50%を達成、安定運転を確認した。 ・また技術的課題を抽出し、AC 送電端 50%の見通しを得るとともに、20kW 機実証機の設計製作を完了した。 ・熱流体解析により 0.3m²/kW の見通しが得られた。 	○
20kW 級実証機の設計・製作	実負荷環境下 20kW 級実証による、AC 送電端効率 50%以上達成、耐久性 4 万時間以上の見通し	・4,000h 定格運転実施。AC 送電端平均 50%以上達成、電圧低下率を確認し 4 万時間耐久の見通しが得られた。	○
コンパクト化のための熱解析	商品機設計の完了	・設計完了。実証機に対して設置面積 30%サイズダウン。	○
装置単価 100 万円/kW	装置単価 100 万円/kW の見通し	・積算により上市初期の達成が困難であることを確認。検討継続。	×

デンソー(2015～2016 年度)

開発項目	最終目標(2016 年度)	2016 年度までの成果	達成度
基本設計仕様構築	<ul style="list-style-type: none"> ・出力 AC4.5kW 以上 (DC5.0kW) ・効率 AC50%以上 (DC55%) ・劣化率 0.8%/1,000h 以下 	<ul style="list-style-type: none"> ・出力 AC4.54kW/効率 AC50%を取得し、輻射熱マネ技術を織り込んだシステムの成立性を実証した。 ・劣化率 1.5%/1,000h と目標未達成であったが、CS 単体の劣化率と同等の結果を得たことから、システム起因の劣化は影響少であることを確認した。 ・業務ユーザ毎の熱/電力需要を踏まえた CO₂削減率を試算し、給湯需要大の宿泊施設、サービス施設での導入効果が大きいことを確認できたが、給湯需要小の事務所、小売店での効果は限定的となり、市場拡大には高効率化の必要性が明らかとなった。 	△
実用化課題抽出			
基礎耐久課題抽出			

MHPS、トヨタ、日本特殊陶業(2015～2017 年度)

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
コンパクト化	設置面積の削減	設置面積の削減した	○
セル製造	コスト低減	日本特殊陶業製セルの使用	○
起動・負荷変化	Cold 起動:20h、Hot 起動:4h、 負荷変化率:5%/min	左記内容をデータで確認	○
自立運転	自立運転の基礎技術を確立する	自立運転の基礎技術を確立した	○

デンソー(2018～2019 年度)

開発項目	最終目標(2019 年度)	2019 年度までの成果	達成度
基本設計仕様構築	<ul style="list-style-type: none"> ・出力 AC4.5kW 以上 (DC5.0kW) ・効率 AC60%以上 (DC57%) ・劣化率 0.5%/1,000h 以下 	<ul style="list-style-type: none"> ・DC 発電評価を実施し、AC 効率換算で前 NEDO 事業での発電効率を 10pt 上回る発電効率 AC60.2%相当 (DC67.4%) の優れた性能を取得した。 ・連続/断続/負荷変動評価による劣化率測定は 2019 年度に予定しており、システム実証機の設計を完了した。 	△
実用化課題抽出			
基礎耐久課題抽出			

固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発

MHPS(2012～2013 年度)

開発項目	最終目標	2013 年度までの成果	達成度
	トリプルコンバインドシステムの要素技	・高効率化に必要な SOFC 高圧運	○

	術の開発として、SOFC は高圧環境下での発電特性や耐久性の検証、SOFC とガスタービンの連携技術の開発、ガスタービンはガスタービン本体の構造検討や燃焼器の開発を行い実用化に向けた目処を得る。	<p>転に関する要素試験を行い、電圧の向上及び数千時間の耐久性を確認した。</p> <p>・また、低カロリーな SOFC 排燃料の燃焼性の確認、SOFC-ガスタービンの連携模擬試験を行い、制御等問題ない事を確認した。</p>	
--	---	--	--

次世代技術開発

2013～2015 年度達成見通し

開発項目	2015 年度現状	最終目標(2017 年度末)	2017 年度達成見通し
① セルの基本性能	500℃において SOFC モードで 0.5V、250mA/cm ² 、SOEC モードで 1.3V、175mA/cm ² を達成 0.1A/cm ² で 30 サイクルの劣化率 2.5%	<ul style="list-style-type: none"> ・SORC 単セル 10mA/cm²、0.5V・SORC 単セル 10mA/cm²、2%以下の劣化率/1,000h ・SORC 単セル水蒸気電解性能：1.3V、0.2A/cm² ・SORC 単セル水蒸気電解耐久性 0.2A/cm² で 3%劣化/1,000h 	—
②円筒セル	500℃で 125mW/cm ² を示す小型円筒型セル(f10xL30mm)セルの作成に成功	<ul style="list-style-type: none"> ・湿式法を用いた SORC 作動が可能な円筒型セルの作成と動作確認。 ・理論起電力を示す LSGM 薄膜からなるセルの作成法、拡散抑制層の作成法の開発 	—
③鉄粉体	PrBaMn2O5 で修飾した Fe 粉体で 350℃で 765mmol/kg-Fe/min の達成	<ul style="list-style-type: none"> 初期の水素供給・吸蔵速度 113.7 mmol H₂/kg Fe/min ・水素供給・吸蔵速度の耐久性：初期の水素供給・吸蔵速度に対し 70%/100cycle 	さらにサイクル数の多い、繰り返し酸化還元特性を評価する。現状で、課題が見いだされないの、達成見込み。

九州大学(2013～2017 年度)

開発項目	最終目標(2017 年度)	2017 年度までの成果	達成度
① セルの基本性能	・SORC 単セル発電性能：500℃において電流密度 200mA/cm ² で 0.5V の端子電圧の達成	・SORC 単セル発電性能：500℃において電流密度 200mA/cm ² で 0.6V の端子電圧の達成（目標達	○

	<ul style="list-style-type: none"> ・SORC 単セル発電耐久性：500℃において電流密度 100 mA/cm² で初期動作電圧の 2% 以下の劣化率/1,000 時間 ・SORC 単セル水蒸気電解性能：500℃において 1.3V の電解電圧において、電流密度 0.3A/cm² を達成。 ・SORC 単セル水蒸気電解耐久性：500℃において電流密度 0.3A/cm² で初期動作電圧の 3%劣化/1,000 時間 ・電解と発電の電気エネルギー効率 80%以上 	<ul style="list-style-type: none"> 成) ・SORC 単セル発電耐久性：500℃において電流密度 100mA/cm² で初期動作電圧の達成（長期評価は 24 時間程度では劣化なしを達成。）（目標達成率 80%） ・SORC 単セル水蒸気電解性能：500℃において 1.3V の電解電圧において、電流密度 0.32A/cm² を達成。(目標達成) ・SORC 単セル水蒸気電解耐久性：800℃で 100 時間の劣化率ほぼ 0%。(目標達成率 50%) ・電解と発電の電気エネルギー効率 78%(目標達成率 90%) 	
② 円筒セル	<ul style="list-style-type: none"> ・湿式法を用いた SORC 作動が可能な円筒型セルの作成と動作確認。 ・理論起電力を示す LSGM 薄膜からなるセルの作成法、拡散抑制層の作成法の開発 ・発電と電解の繰り返し 50 サイクル以上の安定性の達成、50 サイクル後、初期特性の 80%の維持 	<ul style="list-style-type: none"> ・湿式法を用いた SORC 作動が可能な円筒型セルの作成と動作確認。(目標達成) ・ほぼ理論起電力を示す LSGM 薄膜からなるセルの作成法、拡散抑制層の作成法の開発（目標達成） ・発電と電解の繰り返し 100 サイクル以上の安定性の達成、100 サイクル後、初期特性の 95%の維持（目標達成） ・当初計画していた組セルについては、ガスシールが不十分で実施できなかったが、現在が Ag 系のシール材の開発により、補完研究で検討中（目標達成率 80%） 	○
③鉄粉体	<ul style="list-style-type: none"> ・400℃において初期の水素供給・吸蔵速度 110mmolH₂/kg Fe/min ・水素供給・吸蔵速度の耐久性：初期の水素供給・吸蔵速度に対して 100 サイクル後の維持率を 80%以上とする。 	<ul style="list-style-type: none"> ・400℃において初期の水素供給・吸蔵速度 358 mmolH₂/kg Fe/min（目標達成） ・水素供給・吸蔵速度の耐久性：初期の水素供給・吸蔵速度に対して 30 サイクル後の維持率ほぼ 100%。(目標達成率 90%) 	○

岩谷産業、産業技術総合研究所、岩尾磁器工業(2013～2014 年度)

開発項目	最終目標	2014 年度までの成果	達成度
マイクロ SOFC 量産化に向けた技術開発	1 本あたりの発電量が 0.59W 以上であるマイクロ SOFC チューブの不良率を 10%以内に抑える量産製法を	・燃料極チューブ (Ni-GDC) の成形条件、各種スラリーの塗布条件の最適化を行い、独自開発の検査方	○

	構築する。	法で不良品製造率が 10%以内であることを確認した。	
性能低下が少ない材料構造、集電・結線方法の開発	さらなる発電性能の向上と製造の機械化が見通せるマイクロ SOFC の製造方法を確立し、1 本当たり 0.59W 以上の電力が取り出せる技術を開発する。	・中間層およびインターコネクターの膜厚最適化、均一な膜厚を得る塗布方法を開発するとともに、空気極への集電用 Ag ペーストの塗布と特殊な金属部材による結線方法を確立し、マイクロ SOFC1 本あたりから 0.59W の電力を取り出せることを確認した。	○
セルスタック、発電ユニット設計・製作および最適化検討、燃料ガス組成によるセルスタックへの影響の調査	200W 以上の出力が見込めるマイクロ SOFC スタック、発電ユニットを製作する。また単セル発電試験で 100 時間の発電でも燃料極表面に炭素が析出しない燃料ガス条件を確立する。	・8×8 セルスタックを製作し、水素燃料で 600℃において 16W（計画では 37.8W）の出力を確認した。 ・燃料ガスはカートリッジガスの改質ガスであれば 100 時間の耐久性があることを確認した。	△
カートリッジガスの前処理方法の最適化	マイクロ SOFC スタックで 200W 以上の安定した発電に必要なカートリッジガスの改質ガスを C ₂ 以上の HC を除去した状態で延べ 100 時間得る。	・カートリッジガス（ブタン）の改質条件の最適化検討を行い、200W 以上の安定した発電に必要な燃料ガス（ガス量：420L/h、H ₂ =17%、CO=15%、≥ C ₂ =0%）を延べ 100 時間（25 回起動）得られることを確認した。	○
マイクロ SOFC のスタック加熱システムの開発	マイクロ SOFC スタックを 5 分以内に 550℃以上に加熱するとともに、発電用ガスと合わせてカートリッジガス 1 本で 2 時間以上発電できるよう保温させる。	・燃焼開始から 5 分でセルスタックを平均 600℃に昇温し、43.5g/h のカートリッジガスで保温できることを確認した。	○
ポータブル電源システム要素技術の開発および検証機の製作	脱硫、CO 除去等で 100 時間の耐久性の確保、商品化に対する課題抽出のための発電試験、検証機の製作。	・脱硫、CO 除去で延べ 100 時間の耐久性を確認した。発電試験では 3 分で開回路電圧が起つことを確認した。 ・カートリッジガス、ガス供給部、加熱炉、電力変換システムを一体化した検証機を製作した。	○

パナソニック(2013～2015 年度)

開発項目	最終目標	2015 年度までの成果	達成度
A 混合イオン伝導体(電解質)の材料開発	600℃で $1 \times 10^{-2} \text{S/cm}$ 程度の混合イオン伝導体（電解質）の開発	・CO ₂ 耐久性を有する混合イオン伝導体として、BaZr _{0.8} In _{0.2} O ₃ を開発。	○
B 電極材料開発	開発した混合イオン伝導体電解質材料に適したアノード、カソード材料の選	・実使用環境下での 1,000 時間耐久を確認。電極材料候補の提示。	○

	定・開発		
C 混合イオン伝導体の薄膜化、基板材への接合	ガスリーク、電子的リークのない、電解質薄膜の合成プロセスを確立し、革新的低コストが可能な平板型薄膜単セルを試作	・薄膜セルを作製。	○
D 薄膜セル評価	出力 0.7 W/cm^2 を見通すための対策の提示	・電解質抵抗の低減と電極抵抗の低減が必要であることを提示。	○

4. 成果の実用化・事業化に向けた取組及び見通しについて

1. 成果の実用化・事業化に向けた取組及び見通しについて

平成 22 年(2010 年)に策定した NEDO 燃料電池・水素技術開発ロードマップ 2010 では、2015 年頃、2020 年頃、2030 年頃それぞれについて燃料電池実用化に向けた開発課題とシステムの導入目標を明確化した。SOFC 実用化については、小容量定置用、中容量定置用、中容量ハイブリッド、大容量コンバインドシステムの 4 つに分類している。家庭用燃料電池（エネファーム SOFC）は 2011 年に販売が開始された。中容量定置用も耐久性向上に向けた課題解決のため現在実証事業で取り組んできている。

SOFC システムの実用化を実現するために基礎研究における耐久性評価と実証研究が連携し検証中である。初期導入時には 4 万時間耐久の装置としての完成を目指している。さらに本格普及には量産化技術の構築、セルスタックの耐久性、出力向上などが必要である。

プロジェクトの「中間目標 2」到達時期となる 2017 年度からユーザーへの提供を予定している。今後は燃料電池市場の有るべき姿について議論し、必要な技術開発について追加公募を行い、2019 年度末まで事業を継続する予定である。SOFC システムの実用化にはまだ課題が残されている。2019 年での最終目標が達成されることで、コジェネレーションシステム用途ばかりではなくモノジェネレーションシステム用途への実用化・普及に向け大きく前進するものとする。

各研究開発項目での実用化、事業化の見通しについて以下に詳述する。

1.1 研究開発項目 (a) : 「固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究」の実用化、事業化の見通しについて

2013～2017 年度の成果の実用化、事業化の見通し

耐久性迅速評価法本評価手法を有効活用し、SOFC システムでの耐久性評価に利用されることで、企業のシステム開発の加速となることが期待される。企業でのセルスタック開発→研究機関での評価・解析と連携が進むことで開発もスムーズに進むことが可能となる。SOFC システムが市場への導入が始まれば、参画機関個別のセルスタック研究開発の内容は知財関連においても重要な戦略となる。

2018～2019 年度の成果の実用化、事業化の見通し

2013 年度の事業開始以降、経済産業省のロードマップも 2 度改定を経てきた。2017 年度からは新たな市場として業務・産業用燃料電池も上市されてきた。さらに近年では再生可能エネルギーの普及・導入も進み、市場はさらに新たな様相を呈していくことも十分に推定される。2018～2019 年度で実施して来た高効率・強靱化のためのコンセプト創出も新たなシステムに寄与できると考えている。

本格的な普及・導入に向けては、国内市場だけではなく、今後の海外市場への展開も見据えて開発を進めていくことが必要である。また、SOFC の低コスト化については高性能化も含めて更に検討を進める事が重要と考えられる。

1.2 研究開発項目 (b) : 「固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証」の実用化、事業化の見通しについて

2013～2017 年度の成果の実用化、事業化の見通し

他のシステムと比較しても高効率である SOFC の市場導入は期待されている。4 万時間耐久性を達成により、初期の目標はクリアされる。より信頼性を高めていく必要がある。本格普及の段階ではコストも重要な要素となるので、現状 100 万円/kW から更なるコストダウンが求められてくる。材料開発、システム開発の循環によって商品機としての価値を上げていかなければならない。そのためには、耐久性迅速評価手法との密な連携が必要である。市場で受け入れられるシステムとなるために、実証事業の完遂が求められるところ。なお経済産業省のロードマップに指定された通り、2017 年度には本事業に参画したメーカ 3 社が業務・産業用として上市した。

2018～2019 年度

2017 年に改訂された戦略ロードマップにおいて業務用 SOFC は 2025 年度以降では「発電効率 65%以上 (LHV)」という新たな開発目標が示された。研究開発項目 (b) についても発電効率向上を目標として 2 年間の延長を行った。目標値としては発電効率 60% (LHV) として 2 年間でその実証と課題抽出を実施した。今後のモノジェネレーション関連技術開発に向けて用途拡大を目指すとともに普及拡大につなげていく。

1.3 研究開発項目 (c) : 「固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発」の実用化の見通し等について

トリプルコンバインドシステムの前に、250kW システムの導入を目指している。

1.4 研究開発項目 (d) : 「次世代技術開発」の実用化、事業化の見通しについて

本項目は、実用化・事業化を目的としたものでないが、更なる研究開発を進めることで事業化への道筋が見えることを期待する。

マイクロ SOFC 型小型発電機器の開発：ポータブル発電機としてのコンセプトは明確に示されている。同様な他システムの市場を見ても市場性が高いと思われる。商品機の完成度、コストが市場への戦略のひとつとなると考えられる。

プロトン伝導 SOFC：次世代セルコンセプトであり、今後作動温度、効率、耐久性を向上させていく必要がある。実用まではセル開発からスタック開発へステップアップさせ、さらにシステム開発への展開となる。実用化までは多くのハードルがあり 2025 年頃をひとつのターゲットとしている。

本事業については 2017 年度に NEDO イノベーション推進部事業 / エネ環先導にて採択され、2018 年度まで事業を実施し、2019 年度に研究開発項目 (a) の高効率発電の事業としてコンセプトの 1 つとして合流させた。更なる高効率発電に向け、コンセプトを創出中である。

添付資料

(添付－１)

プロジェクト基本計画

「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発」基本計画

次世代電池・水素部

1. 研究開発の目的・目標・内容

(1) 研究開発の目的

①政策的な重要性

我が国におけるエネルギー供給の安定化・効率化、地球温暖化問題、交通量の多い都市部等における地域環境問題（NO_x、PM等）の解決のためには、国全体として省エネルギーを推進するとともに、新エネルギー技術の開発・コスト削減及び利便性や性能の向上に積極的に取り組むことが極めて重要である。

燃料電池は、上記の課題解決に向けたキーテクノロジーとして、その実用化が強く期待されている。「Cool Earth-エネルギー革新技術計画」（経済産業省、平成20年（2008年）3月）では、CO₂排出量の大幅削減を可能とする21の革新技術の一つとして、民生部門で定置用燃料電池が選定されている。加えて発電・送電部門においても、燃料電池-ガスタービンハイブリッド発電、石炭ガス化燃料電池複合発電が挙げられている。また、「エネルギー基本計画」（経済産業省、平成22年（2010年）6月）では、エネルギー源のベストミックスを確保するためには燃料電池の技術開発の促進と内外への普及拡大によって天然ガスシフトを推進すべきであること、燃料電池の普及に向けた最大の課題であるコストの低減に向けて基礎的な部分も含めた技術開発を推進している。数種類ある燃料電池の中でも固体酸化物形燃料電池は、発電効率が高く、天然ガスや石炭ガス等の多様な燃料にも対応が可能で、小型分散型から大規模火力代替システムまで広い適応性を持つことから、その実用化が強く望まれている。

②我が国の状況

上述の期待を背景に実施した「固体酸化物形燃料電池実証研究」（平成19年度（2007年度）～22年度（2010年度））及び「固体酸化物形燃料電池システム要素技術開発」（平成20年度（2008年度）～24年度（2012年度））（以下、前プロジェクト）の成果等により、平成23年（2011年）11月に固体酸化物形燃料電池（以下、SOFC）を用いた家庭用コージェネレーションシステム「エネファーム・タイプS」が世界で初めて実用化され、高い発電効率を実証した。しかし、その本格普及のためには低コスト化と高耐久化の両立が喫緊の課題となっている。一方、数～数100kWの中容量システム、それ以上の大容量システムは、未だに技術開発の途上にある。また、燃料電池技術の応用である水電解水素製造技術、抜本的な低コスト化・高耐久化に有効な低温動作セル等は、現在も基礎研究段階である。

また、業務・産業用燃料電池においては平成29年（2017年）に市場投入が開始された。

③世界の取り組み状況

高効率発電システムとして期待の高い SOFC は、世界中で精力的な研究開発が行われている。米国では、石炭ガス化ガス発電を目標としたエネルギー省のプロジェクト「Solid State Energy Conversion alliance」が実施されている。また、Fuel Cell Energy 社、Versa Power Systems 社、Delphi 社、UTC 社、LG Fuel Cells 社等の企業が大規模システム開発とセルスタック開発を行っている。更に、Bloom Energy 社は、100kW級システムを用いたエネルギー供給サービスをカリフォルニア州で展開しており、平成24年（2012年）にはソフトバンク社と合弁会社を設立して日本にも進出した。欧州では、豪企業 CFCL 社や英 Ceres Power 社が、家庭用 SOFC システムの商用化を目指しており、独 Callux 実証プロジェクトでは、Vaillant 社、Hexis 社、Bosch 社等が家庭用 SOFC システムの実証試験を行っている。また、特に欧州では固体酸化物形水電解セル（SOEC）開発が活発化しており、独 Sunfire 社、Siemens 社、米 Versa Power Systems 社等が開発を進めているほか、燃料電池技術を応用した水電解セルに関するプロジェクト（NEXPAL、EKOLYSER 等）が進行中である。

このように、米国・欧州において、家庭用から発電事業用まで様々な用途・規模の燃料電池について技術開発及び実証研究が進められており、我が国の国際競争力強化等の観点から、引き続き戦略的・重点的な取り組みが不可欠である。

(2) 研究開発の目標

①固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究（研究開発項目（a））

1) アウトプット目標

エネファームの本格普及期を想定し、その実現に必要な低コストと高耐久性を両立した SOFC セルスタック、SOFC システムの開発が民間企業において進められている。本研究開発項目（a）では、この開発を加速するため、耐久性迅速評価方法の確立を行う。前プロジェクトで開発した熱力学的解析、化学的解析、機械的解析、三相界面微細構造解析、耐久性評価方法等を高度化し、劣化要因に応じて有効な場合には加速劣化試験やシミュレーション技術等と複合させることにより、比較的短時間の耐久試験における SOFC の微小な劣化現象を的確に評価・解析し、実用レベルの耐久性を迅速かつ高精度に検証する。この耐久性迅速評価方法の確立により、セルスタック開発サイクルの短縮と効率化を図る。さらに、新たな課題・ニーズとして業務用 SOFC の普及導入を図るためモノジェネレーションも視野に入れ、高効率化を目指した SOFC システム（発電効率65%以上（LHV））が挙げられる。

平成29年（2017年）までの耐久性迅速評価方法確立では以下に示す NEDO 技術開発ロードマップ（平成22年度（2010年度）策定）における小容量定置用システムの目標、

平成32年度（2020年度）以降（普及～本格普及段階）

「発電効率55%LHV以上、9万時間以上の耐久性見通し、システム価格40万円/kW以下」

としてきた。平成29年度（2017年度）中間目標である「9万時間以上の耐久性を見通す評価方法の確立」は予定通り、当初の目標を達成する見通しとなった。平成29年（2017年）に改訂されたロードマップにおいて業務用SOFCは平成37年度（2025年度）以降では「発電効率65%以上

（LHV）」という新たな開発目標が示されたことから、本研究では新たに「発電効率65%以上（LHV）の業務用高効率燃料電池のコンセプト創出」を行うことを最終目標（平成31年度（2019年度））に設定する。これまでの最終目標であった「9万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を確立する」ことは中間目標（平成29年度（2017年度））とする。また、中間目標（平成27年度（2015年度））は、「9万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を開発する。また、この評価方法を耐久試験後の実セルスタックに適用し、その妥当性の検証及び課題抽出を行う。」こととする。

なお、平成29年度（2017年度）までの事業については、効率とコストに関しては、システム設計等による部分が大きいため本項目では特に目標値を設定しないが、産業界との継続的な意見交換により、上記ロードマップ目標値から逸脱しないよう適切にマネジメントを行う。

[最終目標（平成31年度（2019年度））]

発電効率65%LHV以上の業務用固体酸化物セルスタックのコンセプト創出を行う。

[中間目標（平成29年度（2017年度））]

9万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を確立する。

[中間目標（平成27年度（2015年度））]

9万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を開発する。また、この評価方法を耐久試験後の実セルスタックに適用し、その妥当性の検証及び課題抽出を行う。

2) アウトカム目標

平成29年度（2017年度）までに「発電効率55%LHV以上、9万時間以上の耐久性見通し、システム価格40万円/kW以下」の達成により、平成32年（2020年）以降家庭用システムの本格普及を実現する。さらに平成31年度（2019年度）までに高効率固体酸化物形燃料電池（発電効率65%（LHV）以上）のコンセプトを創出し、平成37年度（2025年度）以降の業務用システムの普及拡大を加速させる。

3) アウトカム目標達成に向けての取り組み

固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を、産業界を中心に実施されるセルスタック、システム開発等に積極的に適用する。高効率固体酸化物形燃料電池（発電効率65%（LHV）以上）のコンセプトを創出する際に、平成29年度（2017年度）までに培われた技術を適用して開発を進める。業務用SOFCの全世界市場規模は平成32年（2020年）で622億円、平成42年（2030年）で3,171億円と予測され、シェア10%を目指す。

②固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証（研究開発項目（b））

1）アウトプット目標

家庭用SOFCシステムが平成23年度（2011年度）に実用化された一方、業務用SOFCシステムについては民間企業において開発が鋭意行われており、その実用化が期待されている。本研究開発項目（b）では、業務用SOFCシステムの実証試験を実施し、その導入効果の検証及び実用化へ向けた課題抽出を行うことにより、これらシステムの開発及び初期導入を加速させる。業務用として数～数100kWの中容量SOFCシステムの実負荷条件下での実証試験等を対象とする。

本実証は、提案公募として実施するため、目標はテーマ毎に決定する。ただし、平成30年度（2018年度）より実施する実証事業においては発電効率60%（LHV）以上の小型SOFCシステムを対象とする。

NEDO技術開発ロードマップ（平成29年度（2017年度策定））における中容量（数～数100kW）定置用システムの目標、

平成32年度（2020年度）頃まで（初期導入）

「発電効率45%LHV以上、4万時間以上の耐久性見通し、発電システム価格約100万円/kW」

に照らし、発電効率について家庭用システムでは45%LHVが実現されていることから、「発電効率50%LHV以上、4万時間以上の耐久性見通し、発電システム価格約100万円/kW以下」の実現に貢献するものである。本実用化技術実証において、「中容量（数～数100kW）SOFCシステムの導入効果検証及び課題抽出を行う」ことを本研究開発項目（b）の中間目標（平成29年（2017年）度）とし、最終目標（平成31年（2019年））を以下のとおり定める。

なお、本項目は前半3年間（平成25～27年度（2013～2015年度））、中盤2年間（平成28～29年度（2016～2017年度））、後半2年間（2018～2019年度）に分けて段階的に実施する。前半の成果を踏まえて中間評価を行い、中盤に継続するか否かを判断した。その後、改訂されたロードマップにおいて新たな目標が設定されたことから、事業期間を2年間延長して更に高効率の発電システム（発電効率60%以上（LHV））の実証事業を行う。

[最終目標（平成31年度（2019年度））]

業務用として数kWの小容量SOFCシステムにより発電効率60%以上(LHV)の実証評価を実施すると共に高発電効率で運転した場合の課題抽出を行う。

[中間目標(平成29年度(2017年度))]

中容量(数~数100kW)SOFCシステムの導入効果検証及び課題抽出を行う。

2) アウトカム目標

「発電効率60%LHV以上、4万時間以上の耐久性見通し」の達成により、平成37年(2025年)頃までに業務用SOFCシステムの初期普及導入を実現する。なお、平成37年(2025年)の全世界の業務用SOFCの市場規模は1,829億円と予測され、シェア10%を目指す。

3) アウトカム目標達成に向けての取り組み

本事業を「固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究」(研究開発項目(a))と連携させ、委託事業の成果を適用し、課題を効率的に抽出する。抽出した課題を、事業者がセルスタック、システムの商品化開発に反映する。

③固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発(研究開発項目(c))

1) アウトプット目標

我が国が有する世界最高水準の火力発電技術*1を更に革新する高効率化技術であるSOFC、ガスタービン及び蒸気タービンを組み合わせたトリプルコンバインドサイクル発電システム*2の早期実用化を図るためには官民一体となった取り組みが必要である。そこで本研究開発項目(c)では、民間企業によるシステム開発を促すため、当該システムに適用するSOFCセルスタック、SOFCとガスタービンとの連携技術等の要素技術開発を行う。

*1: 1500℃級ガスタービンと蒸気タービンを組み合わせた複合発電システムにおいて、天然ガス燃料で送電端効率58%LHV(低位発熱量基準: Lower Heating Value)が得られている。

*2: SOFC、ガスタービン、蒸気タービンの順に化石燃料の持つエネルギーをカスケード利用することにより、数百MW級規模のシステムにおいて天然ガス燃料で送電端効率70%LHV以上、石炭ガス化ガス燃料で送電端効率60%LHV以上が得られる。

NEDO 技術開発ロードマップ(平成22年度(2010年度策定))における大容量コンバインドシステムの目標、

平成32年度(2020年度)頃(初期導入)

「発電効率65%LHV以上、4万時間以上の耐久性見通し、発電システム価格数10万~約100万円/kW以下」

に照らし、また耐久性については前プロジェクトにおいて4万時間の耐久性をほぼ見通すことができたため、本研究では初期導入への第1ステップとして、以下に示すトリプルコンバインドサイクル発電システムの実用化に資する要素技術としてこのシステムに必要なSOFCセルスタック及びSOFCとガスタービン連携技術を開発することを最終目標（平成26年度（2014年度））とする。また、燃料は天然ガスとする。

[最終目標（平成26年度（2014年度））]

以下に示すトリプルコンバインドサイクル発電システムのSOFCセルスタック及びSOFCとガスタービン連携技術を開発する。

<トリプルコンバインドサイクル発電システム>

発電規模（送電端）：数10MW以上（100MW未満）
発電効率（送電端）：60%LHV以上
建設コスト：25万円/kW以下

<上記のうちSOFCシステム>

発電規模：10～20MW
運転圧力範囲：大気圧～約3MPa
耐久性：9万時間（電圧低下率0.1%/1,000時間以下）
製造コスト：30万円/kW以下

2) アウトカム目標達成に向けての取り組み

本事業で得られる成果を、産業界を中心に実施されるシステム開発等に反映させる。

3) アウトカム目標

「発電効率65%LHV以上、4万時間以上の耐久性見通し、発電システム価格数10万～約100万円/kW以下」の達成により、平成32年度（2020年度）頃までに発電事業用SOFCシステムの実用化を実現する。

④次世代技術開発（研究開発項目（d））

1) アウトプット目標

固体高分子形燃料電池（PEFC）、固体酸化物形燃料電池（SOFC）等の従来型燃料電池と異なる次世代燃料電池の開発及びSOFCの新たな用途の実用化、商品性の向上、低コスト化等に関する技術開発を行う。

本項目は、提案公募として実施するため、目標はテーマ毎に決定する。なお、本項目は、前半3年間（平成25～27年度（2013～2015年度））、後半2年間（平成28～29年度（2016～2017年度））に分けて段階的に実施する。前半の成果を踏まえて中間評価を行い、後半で継続するか否かを判断する。

2) アウトカム目標達成に向けての取り組み
提案公募として実施するため、テーマ毎に検討する。

3) アウトカム目標
燃料電池技術の用途拡大を実現する。

(3) 研究開発内容

前記目標を達成するために、各研究開発項目について以下のとおり実施する。

①〔委託事業（NEDO 負担率：1／1）または共同研究事業（NEDO 負担率：1／2）〕
研究開発項目（a）「固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究」

下記（i）～（iv）の研究開発を実施する。

本研究開発項目は、（1）実用化まで長期間を要するハイリスクな「基盤的技術」に対して、産学官の複数事業者が互いのノウハウ等を持ちより協調して実施する事業、又は（2）試験・評価方法、基準・プラットフォームの提案等、国民経済的には大きな便益がありながらも、民間企業の研究開発投資に見合うものが見込めない「公共財の研究開発」事業であり、原則、委託事業として実施する。ただし、（1）については、民間企業単独、民間企業のみでの連携の場合は、共同研究事業（NEDO 負担率：1／2）として実施する。

新たなニーズ・課題として SOFC システムの高効率化が求められている。このニーズに対応するためこれまでに培われた耐久性評価技術を適用してセルスタックの燃料高利用率時の特性の取得及び負荷変動時の特性を確認する。併せて、セルスタックを解体分析し、高効率運用時に特有な劣化の有無を確認する。また、数千時間の運転により平成29年度（2017年度）までに得られた劣化メカニズムとの比較を行うと共にシミュレーションによる評価を行う。これらの結果からメカニズムを推定する。このため以下の取り組みを行う。

(i) 材料評価・性能評価・解析技術の高度化と劣化機構解明の迅速化

長時間稼働あるいは頻繁に起動停止したセルスタックの材料変化・性能変化を集学的に解析する技術を、微小な材料変化・微構造変化でも検出し性能変化との相関を検出できるように更に高度化し、セルスタック性能劣化の要因分析と劣化機構解明の迅速化を行う。

高効率化、負荷変動によりどのような劣化するかを集学的に解明する。また、平成29年度（2017年度）までに得られた劣化挙動との差異を検証し、新たな劣化挙動が無いか検証する。劣化が残る場合は、改良に必要な情報を提供する。

(ii) 劣化進展モデルの検討

運転条件（温度、過電圧、電流密度等）と関連づけられる変数を変化させた加速劣化試験法の妥当性の検討を行うとともに稼働下での温度・酸素ポテンシャル分布などを考慮したシミュレーション技術の適用が劣化挙動の進展の把握にどのように

寄与できるかを検討し、耐久性迅速評価に必要なセルスタックの長期的挙動把握を実験的・解析的に行う。

平成29年度（2017年度）までに得られたシミュレーションに関する成果を活かし、高効率・負荷変動時のセルスタックのシミュレーションを行う。

(iii) 耐久性迅速評価法の開発

比較的短期間（数千から数万時間）の劣化挙動の観察と微小な変化の検出から9万時間レベルの長期耐久性を評価する手法を開発する。

高効率化、負荷変動により材料劣化がどのように進行するかを運転状況の変化と相関付け、性能低下の原因を究明する。また、性能低下原因を明確化し、改良に必要な情報を提供するとともに防止方法のコンセプトを導出する。（セル・スタックレベル）

(iv) セルスタック耐久試験の実施

参加企業が開発したセルスタックの耐久試験を実施し、劣化挙動に関するデータを収集する。耐久試験後のセルスタックは上記(i)から(iii)の各項目の検討に供し、そこで得られた知見は、参加企業のセルスタック開発に供し、耐久性9万時間以上のセルスタックの改良につなげる。高効率・負荷変動対応の固体酸化物形燃料電池（発電効率65%（LHV）以上）のコンセプト創出に資する開発を行う。

②〔助成事業（助成率：1／2）〕

研究開発項目（b）「固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証」

数～数100kW級中容量SOFCシステムの実負荷条件下での実証試験を実施し、導入効果の検証及び技術課題の抽出を行い、中容量SOFCシステムの実用化に資する改良につなげる。

課題設定型産業技術開発費助成金交付規定に基づく助成事業として実施する。

③〔共同研究事業（NEDO負担率：1／2）〕

研究開発項目（c）「固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発」

下記(i)～(iv)の研究開発を実施する。

(i) SOFCセルスタックの開発

ガスタービンとの連携運転が可能なSOFCセルスタックを開発する。大気圧～約3MPaの圧力で燃料・空気を供給可能な試験設備を用い、数10MW級のガスタービンとの連携運転を模擬した条件で、セルスタックの電流-電圧特性、圧力依存性、伝熱特性等を検証するとともに、1万時間レベルの長期耐久試験を実施し、9万時間の耐久性を見通す。また、セルスタックの低コスト生産技術を開発する。

(ii) SOFC-ガスタービン連携技術の開発

上記①で開発したセルスタックを実際に数10MW級のガスタービンに接続またはこれを模擬し、電流-電圧特性、圧力依存性及び伝熱特性等を検証する。また、起動停止、緊急停止等、ガスタービンの連携運転時に想定される各運転モード及び過渡的状态に対するセルスタックの応答を確認する。

(iii) 導入可能性の調査

平成24年度(2012年度)において、数10MW以上(100MW未満)のトリプルコンバインドサイクル発電システムの最適仕様、経済性、環境性等について検討し、国内外での導入可能性(市場性)を把握するとともに、実用化・事業化の道筋を整理する。

(iv) 実証システムの基本設計

上記(i)から(iii)で取得したデータに基づき、実証システムの基本設計を行う。

なお、本項目の実施期間は平成26年度(2014年度)までの2年間(前事業からの通算で3年間)である。

④〔委託事業(NEDO負担率:1/1)または共同研究事業(NEDO負担率:1/2)〕

研究開発項目(d)「次世代技術開発」

提案公募により実施する。

原則として委託事業として実施する。ただし、民間企業単独、民間企業のみでの連携場合は、共同研究事業[NEDO負担率:1/2]として実施する。

2. 研究開発の実施方式

(1) 研究開発の実施体制

プロジェクトマネージャーにNEDO次世代電池・水素部原大周を任命して、プロジェクトの進行全体を企画・管理し、そのプロジェクトに求められる技術的成果及び政策的効果を最大化させる。

本研究開発は、本邦の企業、研究組合、公益法人、大学等の研究開発機関(原則、国内に研究開発拠点を有していること。ただし、国外企業等(大学、研究機関を含む)の特別な研究開発能力、研究施設等の活用あるいは国際標準獲得の観点からの国外企業との連携が必要な場合はこの限りではない。)から公募により実施者を選定して実施する。なお、研究開発項目(a)については、別途プロジェクトリーダー(PL)を選任することとする。

(2) 研究開発の運営管理

経済産業省、PL、研究開発実施者(委託事業者、助成事業者)等と緊密に連携し、適切な運営管理を実施する。また、外部有識者や産業界の意見等を踏まえ、研究進捗把握等のマネジメントを行う。なお、必要に応じてSOFCに関して用途の実用化、商品性の向上に向けた調査事業を実施する。

3. 研究開発の実施期間

本事業の期間は、平成25年度(2013年度)から平成31年度(2019年度)までの7年間とする。

4. 評価に関する事項

NEDO は、技術的及び政策的観点から、研究開発の意義、目標達成度、成果の技術的意義並びに将来の産業への波及効果等について、外部有識者による研究開発の中間評価を平成27年度（2015年度）、前倒し事後評価を平成31年度（2019年度）に実施する。ただし研究開発項目（c）「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」のみ、平成27年度（2015年度）に事後評価を実施する。また、中間評価結果を踏まえ必要に応じプロジェクトの加速・縮小・中止等見直しを迅速に行う。なお、評価の時期については、当該研究開発に係る技術動向、政策動向や当該研究開発の進捗状況等に応じて前倒しする等、適宜見直すものとする。

5. その他重要事項

（1）研究開発成果の取扱い

①成果の普及

得られた研究開発の成果については、機構及び実施者ともに普及に努める。

②知的基盤整備事業または標準化等との連携

得られた研究開発の成果については、知的基盤整備または標準化等との連携を図るため、データベースへのデータの提供、市場導入を見据えた国内外の標準化活動や規制見直し活動への情報提供等を積極的に行う。

③知的財産権の帰属

委託研究開発の成果に係る知的財産権については、「国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構新エネルギー業務方法書」第25条の規定等に基づき、原則として、すべて事業者に帰属させる。

なお、開発したシステムの事業化を見据えた知財戦略を構築し、適切な知財管理を実施する。

④知財マネジメントに係る運用

本プロジェクトのうち研究開発項目（a）は、「NEDO プロジェクトにおける知財マネジメント基本方針」を適用する。

（2）基本計画の変更

研究開発内容の妥当性を確保するため、社会・経済的状況、内外の研究開発動向、エネルギー政策動向、第三者の視点からの評価結果、研究開発費の確保状況、当該研究開発の進捗状況等を総合的に勘案し、達成目標や契約等の方式をはじめ基本計画の見直しを弾力的に行う。

（3）根拠法

本事業は、「国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構法」第15条第1号二、第3号に基づき実施する。

6. 基本計画の改訂履歴

（1）平成25年（2013年） 2月 制定

- (2) 平成25年(2013年) 12月 研究開発項目(a)のプロジェクトリーダー(PL)の明記及び研究開発項目(c)の実施期間変更により改訂。
- (3) 平成30年(2018年) 2月 研究開発項目(a)(b)の内容を追記及び事業期間の延長により改訂。
- (4) 平成30年(2018年) 4月 担当部を新エネルギー部から次世代電池・水素部に変更。
- (5) 平成30年(2018年) 5月 プロジェクトマネージャーの変更により改訂。

以上

事業線表

平成25年度～31年度(7年間) 総事業費:約70億円(需給、推定)、 H30年度:7.5億円(予定)							
	H25 2013	H26 2014	H27 2015	H28 2016	H29 2017	H30 2018	H31 2019
(a)SOFCの耐久性迅速評価方法に関する基礎研究	耐久性迅速評価方法の妥当性検証及び課題抽出			耐久性迅速評価方法確立		耐久性迅速評価方法確立	
(b)SOFCを用いた業務用システムの実用化技術実証	提案公募にて実施					高効率化実証試験	
(c)SOFCを用いた事業用発電システムの要素技術開発	要素技術確立			▲中間評価			前倒し事後評価△
(d)次世代技術開発	複数テーマ			有望テーマ継続			

(添付－2)

技術戦略マップ
(分野別技術ロードマップ)

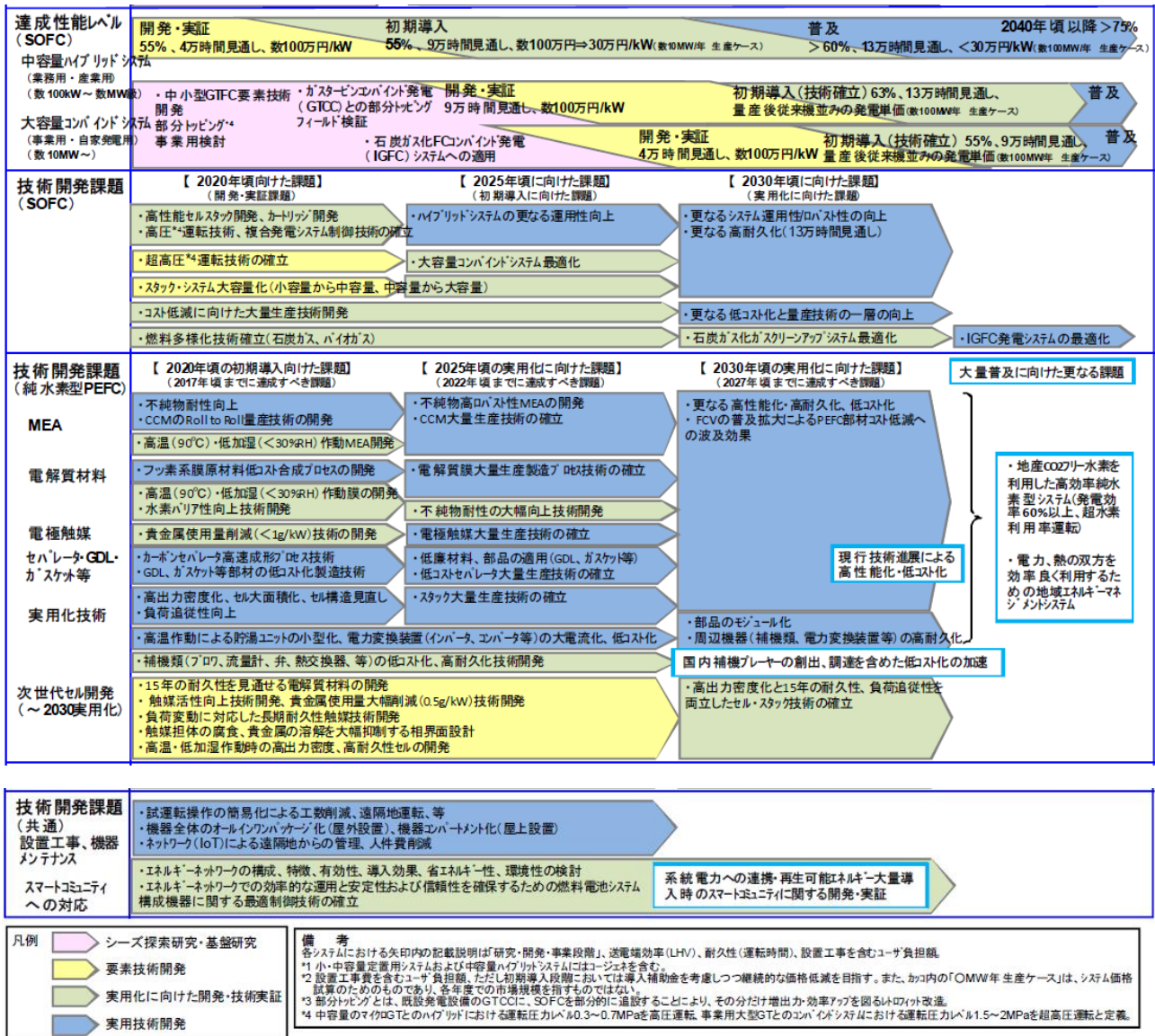
NEDO 燃料電池・水素技術開発ロードマップ (2017年12月)

「業務・産業用燃料電池」技術開発ロードマップ

	現在	2020年頃	2025年頃	2030年頃	2040年頃	
普及目標		<ul style="list-style-type: none"> 業務用5kW級SOFC市場初期導入(2017年) 実用化に向けた実証・規制見直し 業務用数10kW級SOFC市場初期導入(2017~2018年) 業務用250kW級SCFハイブリッドシステム市場初期導入(2017年) CO2フリー水素を用いた自立分散型エネルギーシステム導入(純水素型PEFC:数kW~100kW) PAFC 100kW級導入継続【システムコスト低減(低白金化、等)、メンテナンス低減(耐久性向上、等)の継続】 	<ul style="list-style-type: none"> 市場ターゲットとなる需要家(高熱熱比、BCP対応、等)への活用 	<ul style="list-style-type: none"> 業務・産業用燃料電池の自立的な普及拡大 分散型電源(モジュール、コージェネレーションシステム)として普及 	<ul style="list-style-type: none"> 再生可能エネルギー、蓄電、高温蓄熱システム等を組み合わせて電力・熱供給を最適に制御するスマートコミュニティの実現 CO2フリー水素を用いた自立分散型エネルギーシステムの普及 超高効率発電システムの実現 	
達成性能レベル(SOFC)		実証機より低価格帯で導入開始、導入メリットが高い潜在的ユーザを拡大しつつ継続的に価格を低減				
小容量定置用(業務用)(数kW級)	開発・実証	初期導入	普及	2040年頃以降>60%		
中容量定置用(業務用)(数10~数100kW)	開発・実証	初期導入	普及	2040年頃以降>70%		
技術開発課題(SOFC)		【2020年頃の初期導入に向けた課題】(2017年頃までに達成すべき課題)	【2025年頃の実用化に向けた課題】(2022年頃までに達成すべき課題)	【2030年頃の実用化に向けた課題】(2027年頃までに達成すべき課題)	大量普及に向けた更なる課題	
セル・スタック・モジュール		<ul style="list-style-type: none"> 耐久性・信頼性の向上 セルスタック・モジュールの高性能化(高出力密度化、部分負荷効率向上、等) 発電効率の向上 	<ul style="list-style-type: none"> セルデザイン改善による発電効率向上、スタッキング改善 プロリ動力を抑制する冷却技術(直接冷却等) セルスタックの高耐久化、起動、停止時劣化抑制 セルスタック・モジュールの更なる低コスト化 	<ul style="list-style-type: none"> セルスタック構造(薄膜化、金属サポート、マイクロチャネル等)の高度化 	<ul style="list-style-type: none"> 燃料多様化への適応性、耐久性の更なる向上 	<ul style="list-style-type: none"> 現行技術進展による高性能化・低コスト化
材料(電解質・電極・インターコネクト)		<ul style="list-style-type: none"> 金属系インターコネクト耐久性向上 セルスタック原料・部材の低コスト化(耐熱材料、等) 	<ul style="list-style-type: none"> 電極の高耐久化(アノード: Nニッケル抑制、炭素析出抑制、耐硫黄被毒、等) カソード: 構造破壊抑制、耐CO・硫黄被毒、等 	<ul style="list-style-type: none"> 燃料多様化への適応性、耐久性の更なる向上 	<ul style="list-style-type: none"> 国内補機プレーヤーの創出、調達を含めた低コスト化の加速 	<ul style="list-style-type: none"> 更なる超高発電効率SOFCの達成(80%以上)
製造プロセス		<ul style="list-style-type: none"> 製造プロセス(造粒、焼成、押し出し成形、スクリーン印刷、スタッキング、等)の低コスト化 	<ul style="list-style-type: none"> 量産技術確立による更なる低コスト化 	<ul style="list-style-type: none"> 新規材料、セルスタックの製造プロセス確立 	<ul style="list-style-type: none"> 国内補機プレーヤーの創出、調達を含めた低コスト化の加速 	<ul style="list-style-type: none"> 電力、熱の双方を効率良く利用するための地域エネルギーマネージメントシステム
実用化技術		<ul style="list-style-type: none"> 運用性向上(起動停止、負荷追従性、等) 燃料多様化(国内天然ガス) 歩留まり率の改善 高温断熱材の技術開発(熱伝導率・厚み低減) 貯湯ユニットの小型化、電力変換装置(インバータ、コンバータ等)の低コスト化 補機類(プロパ、流量計、弁、熱交換器、等)の低コスト化、高耐久化技術開発 	<ul style="list-style-type: none"> 燃料多様化(海外天然ガス) システム簡素化、低コスト化・廃棄、リサイクル等への対応 	<ul style="list-style-type: none"> 燃料多様化技術の更なる向上(低炭素化ガス対応) 部品のモジュール化 	<ul style="list-style-type: none"> 国内補機プレーヤーの創出、調達を含めた低コスト化の加速 	<ul style="list-style-type: none"> 水素以外の炭化水素燃料供給による直接内部改質型燃料電池 幅広いアプリケーションへの適用(移動体用補助電源、等)
次世代セル開発(~2030実用化)		<ul style="list-style-type: none"> 高燃料利用率対応技術の開発(酸化物質アノードによる希薄燃料下への対応、高燃料利用率達成に向けた電極構造の開発) 	<ul style="list-style-type: none"> 高燃料利用率達成に向けた電極構造の開発 	<ul style="list-style-type: none"> 高発電効率化、金属サポート、低温度作動、直接燃料導入、耐化学被毒対応、等のセルスタックの耐久性実証、技術の確立 	<ul style="list-style-type: none"> 高発電効率化、金属サポート、低温度作動、直接燃料導入、耐化学被毒対応、等のセルスタックの耐久性実証、技術の確立 	<ul style="list-style-type: none"> モジュール、低炭素化ガス等への燃料多様化、小型化による幅広い市場ニーズへの対応
高発電効率型(モジュールへの適用)		<ul style="list-style-type: none"> 排熱の化学的回収法の基礎検討(吸熱反応と組み合わせた化学ポッピングサイクル、金属酸化物の酸化還元反応に等による新しい排熱回収、等) 	<ul style="list-style-type: none"> 排熱の化学的回収、蓄熱と熱交換器の高効率化による熱利用の最適化 蒸気回収時の総合効率向上 	<ul style="list-style-type: none"> モジュール、低炭素化ガス等への燃料多様化、小型化による幅広い市場ニーズへの対応 	<ul style="list-style-type: none"> 可逆SOFC(低コスト水素製造および高効率発電を利用した電力貯蔵)等、次世代燃料電池、新たな用途の実用化 	
金属基板型		<ul style="list-style-type: none"> 金属基板セルの開発(金属基板上への製膜技術、構造制御金属基板の作成法の開発、界面相の検討) 	<ul style="list-style-type: none"> 新規電解質、高活性電極材料の開発 積層型電池構造確立、薄膜電極の概念実証による超小型化 	<ul style="list-style-type: none"> 大規模蓄エネルギーを実現する可逆SOFCの開発(電極・シール材料、蓄熱機能を有するセル、水素を蓄積するための化学的プロセスの開発) 化学-電気-熱を同時に生成するSOFCの開発 	<ul style="list-style-type: none"> 高温蓄熱システムとの融合 化学・電気・熱を同時供給するトリジェネレーションシステム カーボンニュートラル・ゾーンの活用 	
低温度作動型(300-500℃作動)		<ul style="list-style-type: none"> シール材料の開発(電極の被毒を生じないシール材の開発) 新規電解質の探索(プロトン伝導性酸化物、欠陥ペロブスカイト等の新規材料) 低温高活性アノード、カソード電極材料の探索 	<ul style="list-style-type: none"> 積層型電池構造確立、薄膜電極の概念実証による超小型化 	<ul style="list-style-type: none"> 大規模蓄エネルギーを実現する可逆SOFCの開発(電極・シール材料、蓄熱機能を有するセル、水素を蓄積するための化学的プロセスの開発) 化学-電気-熱を同時に生成するSOFCの開発 	<ul style="list-style-type: none"> 高温蓄熱システムとの融合 化学・電気・熱を同時供給するトリジェネレーションシステム カーボンニュートラル・ゾーンの活用 	
直接炭化水素型		<ul style="list-style-type: none"> 無加湿炭化水素からの直接発電可能なセルの開発 直接改質可能な酸化物質アノードや新しい金属サポート材料の探索 	<ul style="list-style-type: none"> 無加湿炭化水素からの直接発電可能なセルの開発 	<ul style="list-style-type: none"> 大規模蓄エネルギーを実現する可逆SOFCの開発(電極・シール材料、蓄熱機能を有するセル、水素を蓄積するための化学的プロセスの開発) 化学-電気-熱を同時に生成するSOFCの開発 	<ul style="list-style-type: none"> 高温蓄熱システムとの融合 化学・電気・熱を同時供給するトリジェネレーションシステム カーボンニュートラル・ゾーンの活用 	
耐化学被毒型		<ul style="list-style-type: none"> 耐化学被毒の高いセルの開発(石炭ガス化ガスへの応用) 耐硫黄、リン等への化学的耐久性のある新規アノード材料の探索 酸化物質アノード、希土類、アルカリ土類元素を含まないカソード材料の探索 	<ul style="list-style-type: none"> 耐化学被毒の高いセルの開発(石炭ガス化ガスへの応用) 	<ul style="list-style-type: none"> 大規模蓄エネルギーを実現する可逆SOFCの開発(電極・シール材料、蓄熱機能を有するセル、水素を蓄積するための化学的プロセスの開発) 化学-電気-熱を同時に生成するSOFCの開発 	<ul style="list-style-type: none"> 高温蓄熱システムとの融合 化学・電気・熱を同時供給するトリジェネレーションシステム カーボンニュートラル・ゾーンの活用 	
次々世代技術開発(2030以降実用化)		<ul style="list-style-type: none"> 可逆動作(発電・水電解)に適したアノード/カソード材料、シール材料の探索 トリジェネレーションシステムに向けた反応系(シメレート、メタの部分酸化)探索と最適化、燃料極触媒材料の探索 	<ul style="list-style-type: none"> 可逆動作(発電・水電解)に適したアノード/カソード材料、シール材料の探索 	<ul style="list-style-type: none"> 大規模蓄エネルギーを実現する可逆SOFCの開発(電極・シール材料、蓄熱機能を有するセル、水素を蓄積するための化学的プロセスの開発) 化学-電気-熱を同時に生成するSOFCの開発 	<ul style="list-style-type: none"> 可逆SOFC(低コスト水素製造および高効率発電を利用した電力貯蔵)等、次世代燃料電池、新たな用途の実用化 高温蓄熱システムとの融合 化学・電気・熱を同時供給するトリジェネレーションシステム カーボンニュートラル・ゾーンの活用 	
基盤技術開発(継続的な研究課題)		<ul style="list-style-type: none"> 計測・解析技術の開発 耐久性迅速評価法の確立 劣化機構解明(熱力学的・化学的・機械的課題三界面) 界面制御に関する反応・輸送現象の解明 不純物、燃料種影響対策、等 	<ul style="list-style-type: none"> 計測・解析技術の産業界への展開(耐久性評価の活用による開発期間の短縮、等) 稼働時の監視、診断、寿命ツールの開発 計測技術(時間、空間分解能)、計算科学技術(スケール、精度)の更なる向上 	<ul style="list-style-type: none"> 計測・解析技術を活用した燃料電池スタック・モジュールの性能、耐久性評価の大幅短縮の達成 システム診断技術の確立 	<ul style="list-style-type: none"> 可逆SOFC(低コスト水素製造および高効率発電を利用した電力貯蔵)等、次世代燃料電池、新たな用途の実用化 高温蓄熱システムとの融合 化学・電気・熱を同時供給するトリジェネレーションシステム カーボンニュートラル・ゾーンの活用 	

NEDO 燃料電池・水素技術開発ロードマップ (2017年12月)

「業務・産業用燃料電池」技術開発ロードマップ (続き)



(添付ー3)

プロジェクト開始時関連資料

: 事前評価結果、パブリックコメント募集の結果を添付する

事前評価書

	作成日	2013年2月6日
1. プロジェクト名	固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発	
2. 推進部署名	新エネルギー部	
3. プロジェクト概要（予定）		
<p>(1) 概要</p> <p>1) 背景</p> <p>我が国におけるエネルギー供給の安定化・効率化、地球温暖化問題等の解決のためには、新エネルギー技術の開発・コスト削減及び利便性や性能の向上への取り組みが極めて重要である。固体酸化物形燃料電池（以下、SOFC）は、発電効率が高く、多様な燃料にも対応が可能であり、小型分散型から大規模火力代替システムまで広い適応性を持つことから、その実用化が強く望まれている。SOFC型エネファームは2011年に実用化されたが、2016年以降を見込む本格普及に向けては大幅なコストダウンと耐久性の両立が必須である。また、業務用、発電事業用のSOFCシステムは研究開発段階である。</p> <p>2) 目的</p> <p>SOFCシステム等の本格普及へ向け、低コスト・高耐久性を両立したセルスタック開発に寄与する耐久性迅速評価技術を確立する。また、業務用中容量（数～数100kW）から発電事業用大型システムの実用化へ向けた技術実証と要素技術開発を実施するとともに、SOFCの用途拡大を目指す。</p> <p>3) 実施内容</p> <p>本事業では、以下（a）～（d）の4項目を実施する。</p> <p>（a）固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究</p> <p>エネファームの本格普及期を想定し、その実現に必要な低コストと高耐久性を両立したSOFCの開発を加速するために、耐久性迅速評価方法の確立を行う。前プロジェクトで開発した、熱力学的解析、化学的解析、機械的解析、三相界面微細構造解析、耐久性評価方法等を高度化し、さらに劣化要因に応じて有効な場合には、加速劣化試験やシミュレーション技術等と複合させることにより、比較的短時間の耐久試験におけるSOFCの微小な劣化現象を的確に評価・解析し、実用レベルの耐久性を迅速かつ高精度に検証する。</p> <p>[中間目標（平成27年度（2015年度））]</p> <p>9万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を開発する。また、この評価方法を耐久試験後の実セルスタックに適用し、その妥当性の検証及び課題抽出を行う。</p> <p>[最終目標（平成29年度（2017年度））]</p> <p>9万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を確立する。</p> <p>（b）固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証</p> <p>燃料電池の用途・市場拡大を目的として、業務用の燃料電池システムの実証試</p>		

験を実施し、その導入効果の検証及び実用化へ向けた課題抽出を行う。数～数100kW級中容量SOFCシステム（コジェネレーションシステムを含む）の実負荷条件下での実証試験を主要な対象とする。

本項目は前半3年間（平成25～27年度（2013～2015年度））、後半2年間（平成28～29年度（2016～2017年度））に分けて段階的に実施する。前半の成果を踏まえて中間評価を行い、後半で継続するか否かを判断する。

[最終目標（平成29年度（2017年度））]

中容量（数～数100kW）SOFCシステムの導入効果検証及び課題抽出を行う。

(c) 固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発

トリプルコンバインドサイクル発電システムは、SOFCにガスタービン及び蒸気タービンを組み合わせた、超高効率事業用発電システムである。平成25年度（2013年度）末において、以下に示すトリプルコンバインドサイクル発電システムのSOFCセルスタック及びSOFCとガスタービンの連携技術を開発する。なお、燃料は天然ガスとする。

○トリプルコンバインドサイクル発電システム

発電規模（送電端）：数10MW以上（100MW未満）
発電効率（送電端）：60%LHV以上
建設コスト：25万円/kW以下

○上記のうち、SOFC： 発電規模：10～20MW
運転圧力範囲：大気圧～約3MPa
耐久性：9万時間
（電圧低下率0.1%/1,000時間以下）
製造コスト：30万円/kW以下

[最終目標（平成25年度（2013年度））]

以下に示すトリプルコンバインドサイクル発電システムのSOFCセルスタック及びSOFCとガスタービン連携技術を開発する。

(d) 次世代技術開発

固体高分子形燃料電池、固体酸化物形燃料電池等の従来型燃料電池と異なる次世代燃料電池に関する技術開発を行う。ただし研究項目（a）（b）（c）とは重複しない内容とする。

本項目は提案公募として実施するため、目標はテーマ毎に、NEDOロードマップ等と照らし合わせて適宜決定する。

なお、本項目は前半3年間（平成25～27年度（2013～2015年度））、後半2年間（平成28～29年度（2016～2017年度））に分けて段階的に実施する。前半の成果を踏まえて中間評価を行い、後半で継続するか否かを判断する。

(2) 規模 事業費 12.35億円（平成25年度想定）

(a) 委託事業または1/2共同研究

(b) 1/2助成

- (c) 1 / 2 共同研究
- (d) 委託事業または1 / 2 共同研究

(3) 期間 平成25～29年度（5年間）

4. 評価内容

(1) プロジェクトの位置付け・必要性について

1) NEDO プロジェクトとしての妥当性

我が国におけるエネルギー供給の安定化・効率化、地球温暖化問題（CO₂）・交通量の多い都市部等における地域環境問題（NO_x、PM等）の解決のためには、国全体として省エネルギーを推進するとともに、新エネルギー技術の開発、コスト削減及び利便性や性能の向上に積極的に取り組むことが極めて重要である。燃料電池は、上記の目的達成に向けたキーテクノロジーとして、その実用化が強く期待されている。

家庭用燃料電池の更なる普及拡大、業務用・発電事業用燃料電池の実用化、燃料電池自動車の2015年の普及開始とその後の拡大に貢献するためには、技術開発、実証研究、基準・標準化の取り組みを長期展望の下、総合的に推進することが必要であるが、このような長期展望に基づいた総合的な取組は企業単独では実施困難なため、NEDOの関与が必要不可欠である。

SOFC型エネファームにより、日本は世界に先駆けてSOFCシステムの商品化に成功したが、その本格普及のためには更なる低コスト化・高耐久化が必要不可欠である。一方、中～大容量システムの実用化、あるいは次世代燃料電池の開発には、極めて高い技術レベルと多大な開発ソースが必要となる。本プロジェクトによるSOFCや次世代燃料電池の研究開発に対する支援を継続しない場合、その実用化・本格普及が大幅に遅れるリスクが大きい。)*****

2) 目的の妥当性

2011年3月の東日本大震災の影響により、今後の電力供給体制が見直されることが予測される中で、分散電源の有用性、新設及び既設の発電機器の高効率化、燃料多様化等に資するSOFCの早期実用化と本格普及が強く望まれている。

SOFCエネファームは2011年に実用化されたが、2016年以降の本格普及に向けては大幅なコストダウンと耐久性の両立が必須であり、業務用から発電事業用のSOFCシステムやSOECは研究開発段階である。本プロジェクトの目標は世界最先端レベルであると同時に、「NEDO燃料電池技術開発ロードマップ2010」における2020年目標とも整合しており、適正である。

(2) プロジェクトの位置付け・必要性についての総合的評価

本事業は国の政策等を踏まえた世界最先端の取り組みであり、本技術が実用化されれば、我が国のエネルギーセキュリティ向上、CO₂排出量削減、国際競争力の強化等に

大きく寄与することになり、位置付け・必要性は妥当である。

(3) プロジェクトの運営マネジメントについて

1) 成果目標の妥当性

(a) 固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究

「9万時間以上の耐久性見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を確立する」という最終目標値は、ユーザー企業ヒアリング、意見交換会等を通じ、SOFC エネファーム等が商品として要求される10年以上の耐久性を実現するために必要な手法として、産業界と合意している。

また、前プロジェクトで達成された世界最高水準の「4万時間耐久見通し（劣化率0.25%/1,000時間）」を上回り、「NEDO 燃料電池技術開発ロードマップ2010」における2020年度以降（普及～本格普及段階）の目標値と合致しており、戦略的な目標設定と判断している。

(b) 固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証

産業界との合意の基に策定された「NEDO 燃料電池技術開発ロードマップ2010」における中容量（数～数100kW）定置用SOFCの目標は、2020年頃（初期導入）において「発電効率45%LHV以上、4万時間の耐久性見通し、発電システム価格100万円/kW」となっている。本項目では、家庭用システムで発電効率45%LHVが実現されていることから、これを上回る戦略的な目標「発電効率50%LHV以上、4万時間の耐久性見通し、発電システム価格100万円/kW」の実現に資するべく、「中容量（数～数100kW）SOFCシステムの導入効果検証及び課題抽出を行う」ことを最終目標（2017年度）としている。

これまでに国内外で行われた数～数100kW級SOFCシステムの実証試験は、数1,000時間レベルの耐久性に留まっている。項目（a）で述べたように本格普及には9万時間の耐久性が必要とされるが、そこに至るマイルストーンとして4万時間耐久性見通しという目標は十分な意義を有する。

なお、本項目は前半3年間（平成25～27年度（2013～2015年度））、後半2年間（平成28～29年度（2016～2017年度））に分けて段階的に実施する。前半の成果を踏まえて中間評価を行い、後半で継続するか否かを判断する。

(c) 固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発

トリプルコンバインドサイクル発電システムに関して掲げた性能、耐久性、コストの設定値は、ガスタービン-蒸気タービン複合発電等、既に実用化されている競合技術に対して優位性を確保できる値となっている。

システムの発電効率の設定値（60%LHV以上）は、最新鋭の1500℃級ガスタービンと蒸気タービンの複合発電システムで得られている効率（58%LHV）を超えることを目標としている。また、SOFCの耐久性（9万時間）及び製造コスト（30万円/kW以下）についても、「NEDO 燃料電池技術開発ロードマップ2010」に記載されている2020年頃（初期導入）の開発目標は「耐久性で4万時間見通し、コストで数10万～約100万円/kW」と比較して、戦略的な設定がなされている。

項目（c）ではこのシステムの実用化に資する要素技術としてSOFCセルスタック及びSOFCとガスタービン連携技術を開発する。

（d）次世代技術開発

提案公募として実施するため、目標はテーマ毎に、NEDO ロードマップ等と照らし合わせて適宜決定する。

なお、本項目は前半3年間（平成25～27年度（2013～2015年度））、後半2年間（平成28～29年度（2016～2017年度））に分けて段階的に実施する。前半の成果を踏まえて中間評価を行い、後半で継続するか否かを判断する。

2)実施計画の想定と妥当性

（a）固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究

前半3年間でSOFCセルスタックの主要劣化要因内訳を解明し、9万時間以上の耐久性を見通すことができる耐久性迅速評価方法を開発し、この評価方法を耐久試験後の実セルスタックに適用し、その妥当性の検証及び課題抽出を行う。後半2年間で、この耐久性迅速評価方法を確立する。

SOFCの耐久性迅速評価技術は、前プロジェクトで開発した各種解析評価方法を高度化し、さらに劣化要因に応じて有効な場合には加速劣化試験やシミュレーション技術等と複合させて確立を目指すものである。同種の試みはEUプロジェクト（SOFC-LIFE）等で始まっているが、その耐久性レベルは1%/1,000時間程度であるのに対し、本項目ではその1/10という高い目標値であり、単なる改良や外部調達では達成し得ない世界最先端の取り組みである。また、本項目で要素技術として想定している熱力学的解析、化学的解析、機械的解析、三相界面微細構造解析、耐久性評価方法は、前プロジェクトにおいてその有効性が実証され、かつ継続して重要と判断できる項目を網羅している。これらを並行的に検討し、総合的に開発を進めることは、本項目の目標達成に不可欠である。

前事業「固体酸化物形燃料電池システム要素技術開発」（平成20～24年度）で開発した、熱力学的解析、化学的解析、機械的解析、三相界面微細構造解析、耐久性評価方法等を高度化し、さらに加速劣化試験やシミュレーション技術等と複合させることにより、耐久性迅速評価方法の確立を目指す。開発セルスタックの耐久性向上のためには、これら評価分析技術を総合的に適用することが極めて有効であるため、最大限の活用を図る。

（b）固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証

採択テーマ毎に、前半3年間では中容量システムの試作品を作製し、実負荷環境下での実証試験を行う。ここで有望な結果を得たテーマを絞り込んで後半2年間も継続し、さらに実用化への段階を進めたシステム実証試験（実証システム数増、または発電容量増等）を行う。

これまで中容量SOFCシステムの性能や耐久性は十分に検証されていないため、その実証試験評価は重要である。実負荷環境下における技術的課題を抽出し、改善策を検討することは実用化のために不可欠だが、その技術的難易度は高い。従って本事業での取り組みが必須である。

（c）固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発

トリプルコンバインドサイクル発電システムの要素技術開発を前事業（平成24年度（2012年度）開始）から継続し、本事業の初年度である平成25年度（2013年度）に加速的に開発を実施して完了する。トリプルコンバインドサイクル発電システムのうち、ガスタービン及び蒸気タービンの技術は既存のものが適用可能である。当該システムの実用化に向けた課題は大容量SOFCの開発であり、そのうち最も重要度の高い要素技術であるSOFCセルスタックとSOFC-ガスタービン連携技術の開発を本事業で行うこととしている。

また、平成24年度（2012年度）にラボ試験で高圧条件下におけるSOFCセルスタックの特性を的確に把握した上で、平成25年度（2013年度）よりSOFC-ガスタービン連携模擬試験を行うこととしており、開発の進め方は妥当である。

(d) 次世代技術開発

有望な次世代技術を継続的に支援し、シーズの発掘に努めるために一定額を確保している。提案公募であり、実施計画は提案毎に適切に判断する。

なお、家庭用SOFCシステムの法規制等の問題に関しては、2010年度に一通り対応が完了している。中・大容量システムに関しては、対応の必要性が明確になった時点で実施者と協議する予定である。

3) 評価実施の想定と妥当性

(a) 固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究

研究開発の意義、目標達成度、成果の技術的意義、実用化の可能性、産業への波及効果等について随時確認を行い、必要に応じて研究開発内容の見直し等を行う。また、外部有識者による中間評価を平成27年度（2015年度）に、事後評価を平成30年度（2018年度）に実施する。

(b) 固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証

前半3年間（平成25～27年度（2013～2015年度））、後半2年間（平成28～29年度（2016～2017年度））に分けて段階的に実施する。平成27年度（2015年度）に採用テーマ毎の中間評価をスクリーニング的に行い、後半も継続するか否かを判断する。後半に進んだテーマに関しては、外部有識者による事後評価を平成30年度（2018年度）に実施する。

(c) 固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発

研究開発の意義、目標達成度、成果の技術的意義、実用化の可能性、産業への波及効果等について随時確認を行い、必要に応じて研究開発内容の見直し等を行う。また、外部有識者による事後評価を平成26年度（2014年度）に実施する。

(d) 次世代技術開発

前半3年間（平成25～27年度（2013～2015年度））、後半2年間（平成28～29年度（2016～2017年度））に分けて段階的に実施する。平成27年度（2015年度）に採用テーマ毎の中間評価をスクリーニング

的に行い、後半も継続するか否かを判断する。後半に進んだテーマに関しては、外部有識者による事後評価を平成30年度（2018年度）に実施する。

4) 実施体制の想定と妥当性

(a) 固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究

前プロジェクトから継続して強固な産学連携による実施体制を構築する。セルスタック開発メーカー、システムメーカー、ユーザー企業、研究機関等の参画を見込んでいる。

(b) 固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証

提案公募による。業務用ボイラー、発電システム等の有力企業がインフラ企業、スタックメーカー等と連携して参画すると予測している。

(c) 固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発

継続プロジェクトであり、三菱重工業（株）、（株）日立製作所、東北電力（株）、九州大学が引き続き参画する。三菱重工業（株）におけるセルスタック開発は、項目（a）と密接な連携の下に推進する。

(d) 次世代技術開発

提案公募による。

5) 実用化・事業化戦略の想定と妥当性

(1) 2)、(2) 1) に記載の通り、マーケット規模、ユーザーニーズを的確に把握した上で、ユーザー企業も含めた体制を構築し、実用化・事業化につなげる戦略を想定している。

6) 知財戦略の想定と妥当性

項目（a）（b）（c）はいずれも事業化を企図する企業が主体で進める事業であるため、SOFC セルスタック及びシステム設計技術を中心に適切な知財化を促進する。全体として、将来の海外展開を見据え、大市場が見込まれる北米、欧州等の先進国での海外出願を促進するとともに、必要に応じてBRICS等の振興国への海外出願を検討する。

なお、項目（a）は耐久性迅速評価方法の確立及びそのためのセルスタック耐久試験が本事業範囲であり、その知見に基づいた各企業でのセルスタック改良・開発は範囲外としている。従ってセルスタックの材料・構造・製法等に関する出願は本事業の枠外だが、その技術的な重要性に鑑みて、各企業からの国際出願を積極的に促進する。

7) 標準化戦略の想定と妥当性

SOFCを含む定置用燃料電池の国際標準化は、一般社団法人日本電機工業会が主体となって進めている。NEDOはその各WGにオブザーバとして参加してデータ取得等の

ニーズに対応するとともに、水素技術を含めた全体マネジメントを行う戦略会議での事務局を務めている。本事業では、その期間中に得られた成果の国際標準化の可能性に関して改めて検討を行う予定である。

(4) プロジェクトの運営マネジメントについての総合的評価

本事業の目的、実施計画、予算等は、SOFCシステムの早期本格普及または実用化を図る取り組みとして適切である。

(5) 成果の実用化・事業化の見通しについて

1) プロジェクト終了後における成果の実用化・事業化可能性

下記のように項目毎に具体的な製品想定があり、成果の実用化・事業化可能性は明確である。

- (a) 固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究
主として家庭用 SOFC システム (エネファーム)
- (b) 固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証
業務用 SOFC システム (数~数100 kW) (設置先としては、工場、コンビニエンスストア、病院、ビル、集合住宅等)
- (c) 固体酸化物形燃料電池を用いた事業用発電システムの要素技術開発
トリプルコンバインドサイクル発電システム
- (d) 次世代技術開発
提案公募であり、提案毎に異なる

2) 成果の波及効果

SOFC セルスタック及びシステム関連の技術は、セラミクス材料、金属材料、電気化学、空力学、熱力学、燃焼、電機等の広範囲で高度な科学技術の裾野を必要とし、かつ高度な設計・製造技術も必要となることから、本事業を通じて当該分野の研究開発、並びに若手研究者・工学技術者の育成を促進できる。

SOFC システムの普及が進めば、市場創出効果と温室効果ガス排出削減効果は大きい。セラミクス、金属、電子、発電等と当該分野に関連する業種は多岐にわたり、新たな産業・雇用を創出できる。世界に先駆けて実用化を進めることで、当該分野の国際競争力を強化できる。

(6) 成果の実用化・事業化の見通しについての総合的評価

アウトプット (製品等) 想定は具体的であり、具体的な技術課題とその解決方針、事業化へのマイルストーン等も明確なことから、本事業成果の実用化・事業化の見通しは十分高い

(添付一4)

研究成果詳細

研究成果詳細目次

固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発

研究開発項目（a）固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究

固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究	1
------------------------------------	---

研究開発項目（b）固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証

(イ) 固体酸化物形燃料電池を用いた 5 k W 級業務用システムの実証評価	306
(ロ) 中容量常圧型円筒形 SOFC システムの実用化技術実証	313
(ハ) 固体酸化物形燃料電池(SOFC)による業務用・産業用システム実証および事業化検討	319
(ニ) 固体酸化物形燃料電池 (SOFC) を用いた業務用システムの技術実証	338
(ホ) 円筒形 SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムの市場投入に向けた技術実証	349
(ヘ) 燃料リサイクル機構を用いた高効率固体酸化物形燃料電池実用化技術開発	361

研究開発項目（d）次世代技術開発

可逆動作可能な固体酸化物型燃料電池による低コスト水素製造 および高効率発電を利用した電力貯蔵	371
---	-----

調査事業

(イ) 強靱性を有する高効率燃料電池の普及促進に向けた事前調査	385
(ロ) SOFC に関して用途の実用化、商品性向上に向けた調査事業 －シミュレーション解析によるエネルギーインフラ評価・解析－	484

(6. 1) 「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発／ 固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究」

(国)産業技術総合研究所/(一財)電力中央研究所
 TOTO株式会社/日本特殊陶業株式会社/
 日本ガイシ株式会社/株式会社村田製作所/九州大学/京都大学/
 東北大学/東京大学

●成果サリ (実施期間：平成25年度(2013年度)～令和元年度(2019年度) 終了予定)

- ・固体酸化物形燃料電池(SOFC)の9万時間の耐久性を見通すための耐久性迅速評価法を確立した
- ・劣化解析法を集学的に組み合わせ、企業でのセルスタックの劣化機構解明をおこない、企業が耐久性を改良し、開発サイクルを回して10年耐久の見通しを得た
- ・同様の開発サイクルを高効率・強朝化への課題に展開し、高耐久かつ高効率 (LHV65%)なセルスタックへのコンセプト創出をした

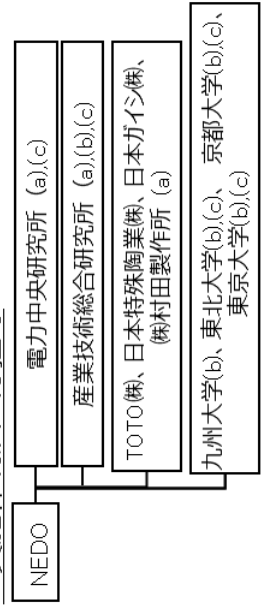
●背景/研究内容・目的

「固体酸化物形燃料電池システム要素技術開発(2008年度-2012年度)」では、4万時間のスタック耐久性の見通しを得た。これを受け本プロジェクトでは、9万時間のスタック耐久を見通す、耐久性迅速評価方法の開発を中心課題に設定した。9万時間という長い耐久時間を迅速に評価するため、1)スタック耐久性評価、2)劣化機構解明、3)耐久性迅速評価方法の開発、の開発項目を実施し、数千～数万時間のスタック耐久試験とその性能評価、セルスタック部材の劣化メカニズム解明、シミュレーション技術を取り込んだ耐久性迅速評価方法の開発をおこない、高耐久化、高効率化の開発サイクルも回した。後半には高効率・強朝化へのコンセプト提案・創出を行った。

●研究目標

実施項目	目標
(a)スタック耐久性評価	長期耐久試験及び過酷試験により、性能劣化挙動の解明を行うとともに試験後のスタック解体分析から劣化要因を解明する
(b)劣化機構解明	想定される劣化に対して劣化進展モデル分析、駆動力解析をおこない、耐久性評価に必要なメカニズム解明をする
(c)耐久性迅速評価方法の開発	劣化事象に対する耐久性迅速評価技術を開発しそれをスタックに適用し、9万時間の耐久性評価を検証する

●実施体制及び分担等



●これまでの実施内容/研究成果

(1) 9万時間耐久を見通す耐久性迅速評価の確立と開発セルスタックの耐久性向上：

2013年度～2017年度の取り組みで、9万時間耐久を見通す耐久性迅速評価方法を確立した。開発企業スタック(三菱日立パワーシステムズ、京セラ、TOTO、日本特殊陶業、日本ガイシ、村田製作所、デンソーの7社)の数千～数万時間にわたる長期耐久試験を実施し、性能表示式が9万時間のスタック劣化率や抵抗増大要因は、通常運転時との部材反応や界面での絶縁層生成、電解質相変態など、いくつかの劣化要因について、大学・研究機関の先端分析技術を高度化・複合化することで、詳細な劣化メカニズム解明に成功し、9万時間耐久性を評価するための基礎データを提供した。劣化メカニズム解明により、耐久性予測のためのシミュレーションによる検証・課題抽出も可能となった。スタックの耐久性も向上し、耐久試験による劣化評価・劣化要因抽出→劣化機構解明→劣化改善→耐久性・信頼性の向上、という開発サイクルを回すことができた。これらの取り組みにより、セルスタックの耐久性は9万時間(10年)で電圧低下率10%以下を見通すレベルに達した。

(2) 高効率・強朝化セルスタックのための課題抽出・設計指針の提示：

2018年度～2019年度の期間で、SOFCシステム効率65%LHVを達成し、強朝化を達成するための、スタック効率向上・負荷変動の可能性について検討をおこなった。過酷試験として、燃料利用率80%以上の長期耐久やミリ秒～数秒周期の負荷変動によるスタック耐久性評価を実施した。過酷試験時のスタック劣化率や抵抗増大要因は、通常運転と類似であることを見出した。一方で、部材・材料の構造劣化が顕著され、高効率・負荷変動運転中のセルスタックでは、特異な劣化が生じることが解明された。このような、高効率・負荷変動運転時に起こりうる材料劣化現象を大学・研究機関で検討し、通常は現出しない今後起こりうる劣化メカニズムを解明し、高効率・強朝化への開発コンセプトを創出した。

●今後の課題

- 1 3万時間耐久への耐久性向上；9万時間の見通しをさらに伸ばすための、高性能評価技術、高性能部材などの革新技術開発
- 高効率・強朝化スタックの実現；コンセプト創出を行ったセルスタックの検討と改善策提示、更なる性能向上のためのプロトタイプ・金属支持型セルスタック開発への展開と課題抽出、リバーシブル運転、燃料多様化などへの対応

●実用化・事業化の見通し

- 家庭用エネファームの本格普及への貢献
- 業務・産業用燃料電池普及のための技術展開(高効率化、モノエネ化)
- 再エネ導入に伴う電力グリッド安定化への寄与、新しい燃料電池の使われ方への進展

実施項目	成果内容	自己評価
(a)スタック耐久性評価	数種類のスタックの数千～数万時間試験に性能表示式を適用、劣化予測可能に	○
(b)劣化機構解明	劣化評価プラットフォームを構築し劣化要因解明、モデル化、駆動力解析を行い、耐久性評価への劣化機構を解明	○
(c)耐久性迅速評価方法の開発	一定負荷・熱サイクル試験、高効率試験とシミュレーション技術から、9万時間耐久の評価法を開発	○

●研究成果まとめ

特許出願	論文発表	外部発表	受賞等
1	144	544	9

課題番号：6. 1

研究開発名 「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発／固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究」

1. 研究開発概要

本研究開発は、固体酸化物形燃料電池(SOFC)におけるセルスタック耐久性 9 万時間(電圧劣化率 0.1%/1000 時間)の見通しを得るために、耐久性を迅速に解析できる評価法確立のための基礎研究を推進するものである。スタックの性能評価・解析を行い、主要な部位毎の劣化率を算出するとともに、各部位の試験後試料を基盤側に提供し、詳細な材料化学的・機械的解析・分析を行い、劣化課題を抽出、劣化機構解明を行うとともに、寿命予測を目指したシミュレーション技術を確立する。2013 年度～2017 年度までの前半 5 カ年では、耐久性迅速評価方法の確立をおこない、2018 年度～2019 年度の後半 2 年間では迅速評価方法を高効率・負荷変動運転セルスタックの耐久性評価に適用し、高効率 (LHV65%) へのコンセプト創出をおこなう。後半 2 年間では、多少の体制変更や研究開発項目の内容変更を行っており、本書類では 2013 年度～2017 年度と 2018 年度～2019 年度、それぞれを分けて記述することとする。

1. 1 2013 年度～2017 年度の研究開発概要

下記の 3 研究開発項目を実施する。項目ごとに概要を紹介する。

(1) 研究開発項目「スタック耐久性評価」では、スタックメーカーが必要に応じて産業技術総合研究所、電力中央研究所と連携して、セルスタックの耐久試験を実施し、それぞれの個別スタックの劣化挙動を把握するとともに、耐久試験後セルスタックの基盤担当機関への提供をおこない、基盤担当機関による劣化機構解明の全般的な進捗を把握し、改良への指針を得る。また改良がおこなわれている場合には、その効果の検証を行う。本研究開発では、2008 年度～2012 年度の「固体酸化物形燃料電池システム要素技術開発事業/耐久性・信頼性向上に関する基礎研究」(前プロジェクトという) 課題に参画していた 3 スタック(三菱日立パワーシステムズ、京セラ、TOTO)に加え、日本特殊陶業、日本ガイシ、村田製作所が参画し、更にデンソーが 2015 年度から実証研究に参画したために、本耐久性プロジェクトにも参画した。

(2) 「劣化機構の解明」では、前プロジェクトに参画していた基盤担当研究機関がスタック側から提供される試験前後の試料を分析・解析し、従来から蓄積されてきた劣化機構解明の知見を基にして、個別スタックの劣化機構解明に資する。必要があれば、加速試験などの適否に関する考察を行う。また、劣化機構解明に必要な実験技法の高度化に務め、早期の機構解明に資する。さらに劣化機構解明によって明らかにされた支配因子に関連する諸特性の収集に努め、劣化挙動の予測性を高める。

(3) 「耐久性迅速評価方法の開発」では、前プロジェクトでスタック性能評価を担った電力中央研究所がさらに継続して現行セルスタックあるいは改良セルスタックの耐久性を各部位ごとに評価する。また研究開発項目 2 で解明された劣化機構解明に基づき性能予測を行うシミュレーション技術を確立するとともに、両者を統合的に取り扱うことによって、長期耐久性を迅速に評価する技術を確立し、それをスタックメーカーと連携して個々のセルスタックへ適用し、その妥当性を検証し、評価技術の高度化を目指すものである。

これらの研究開発課題の相互連携性を図示すると図 1 のようになる。本プロジェクトの基本計画(2013 年度～2017 年度)では、次の 4 項目について研究開発を進めることが求められた。

- (i) 材料評価・性能評価・解析技術の高度化と劣化機構解明の迅速化
長時間稼働あるいは頻繁に起動停止したセルスタックの材料変化・性能変化を集学的に解析する技術を、微小な材料変化・微構造変化でも検出し性能変化との相関を検出できるようにさらに高度化し、セルスタック性能劣化の要因分析と劣化機構解明の迅速化を行う。
- (ii) 劣化進展モデルの検討
運転条件(温度、過電圧、電流密度等)と関連付けられる変数を変化させた加速劣化試験法の妥当性の検討を行うとともに稼働下での温度・酸素ポテンシャル分布などを考慮したシミュレーション技術の適用が劣化挙動進展の把握にどのように寄与できるかを検討し、耐久性迅速評価に必要なセルスタックの長期的挙動把握を実験的・解析的に行う。
- (iii) 耐久性迅速評価法の開発

比較的短時間(数千時間～数万時間)の劣化挙動の観察と微小な変化の検出から 9 万時間レベルの長期耐久性を評価する手法を開発する

(iv) セルスタック耐久試験の実施

参画企業が開発したセルスタックの耐久試験を実施し、劣化挙動に関するデータを収集する。耐久試験後のセルスタックは上記(i) (ii) (iii)各項目の検討に供し、そこで得られた知見を基に改良をおこなう。こうした開発サイクルを通じて、セルスタックの9万時間耐久性の見通しを得る。

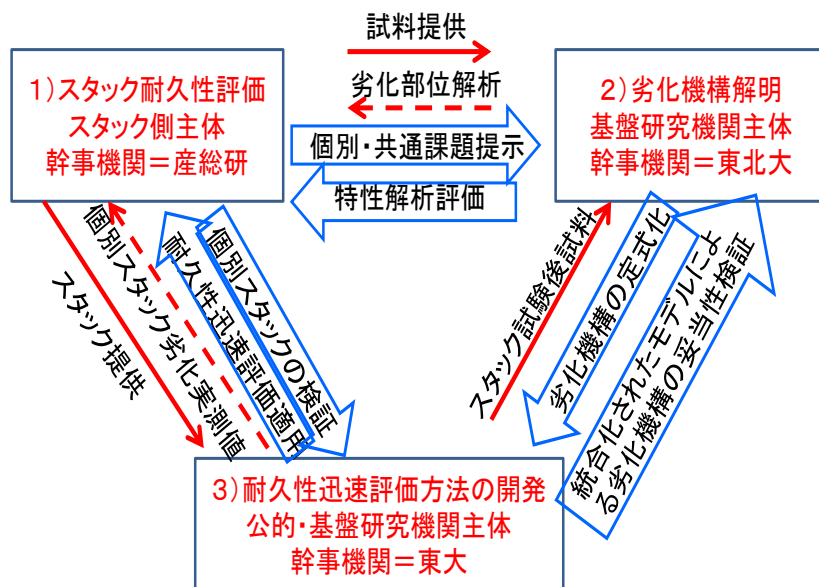


図1 研究開発項目の相互連携とスタックメーカー、基盤研究機関などの役割 (2013-2017年度)

1. 2 2018年度～2019年度の研究開発概要

2018年度～2019年度の研究開発は、上記構造は基本変えずに、内容を多少変更して研究開発を実施する。

(1) 研究開発項目「スタック耐久性評価」では、高効率を達成するために、燃料利用率を80%以上に設定した高燃料利用率下での耐久試験を実施するとともに、再生可能エネルギーの変動吸収を想定した高速負荷変動試験も実施する。スタック開発会社(京セラ、日本特殊陶業、デンソー、日本ガイシの4社)がスタックの提供を行い、電力中央研究所と協力して高燃料利用率運転をおこなう。また、高速負荷変動試験も実施し、適用性拡大のための基礎データを得る。その他、システムを考慮したスタック評価条件の提案を大阪ガス・産総研がおこなう。さらに、新たなセルスタック検討として、強靱性セル試作・可能性検討、プロトン導電性デバイスの検討などの研究開発項目を追加して、適用性拡大と次世代技術への基礎検討を実施する。

(2) 「劣化機構解明」では、耐久性迅速評価として確立された、基盤担当研究機関が得意とする分析・実験手法を、高効率運転後セルスタックに適用し、劣化メカニズムの解明をおこなう。セルスタックの劣化事象を切り出して、高効率・強靱化のための要素解析・劣化機構解明もおこなう。また、高効率・強靱化に必要な新規な評価法の検討も進める。

(3) 「耐久性迅速評価方法の開発」では、高燃料利用率下での燃料極の微構造変化と性能、機械的な変形などの事象をシミュレーションできるようにする。

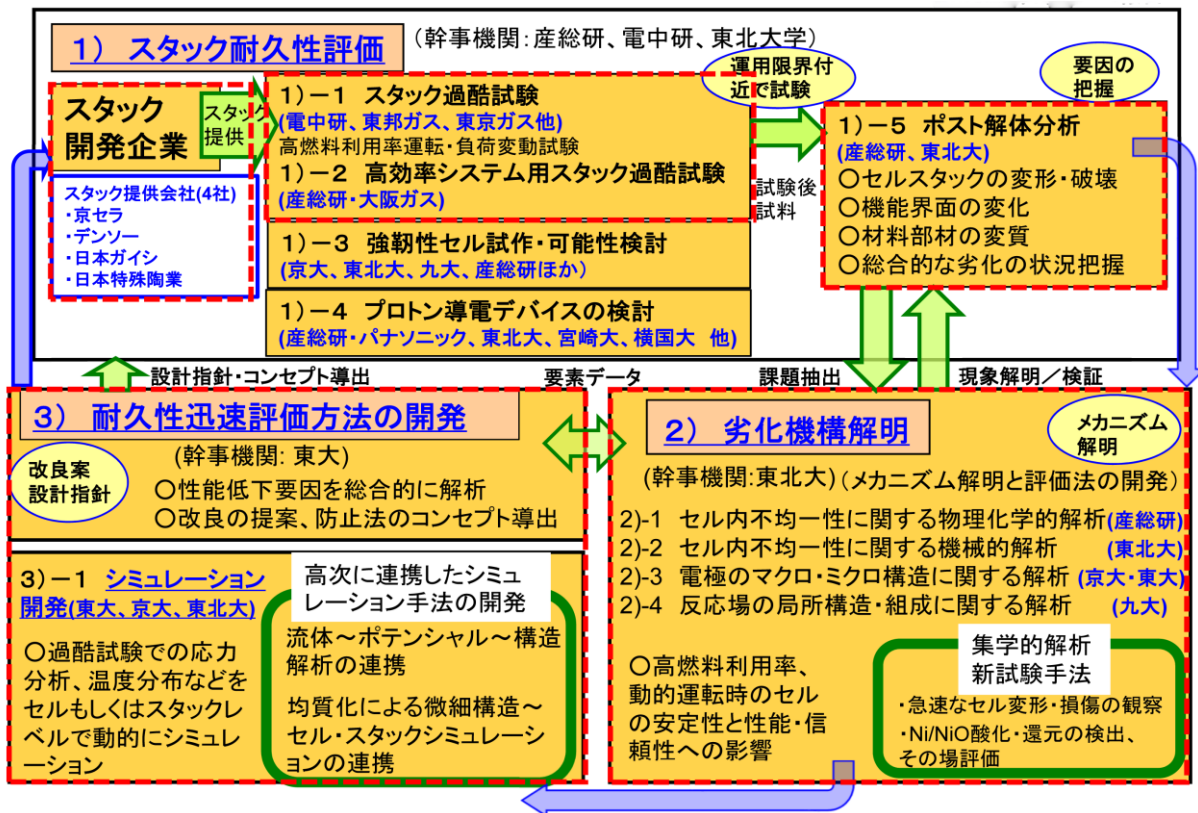


図 1.2 研究開発項目の相互連携とスタックメーカー、基盤研究機関などの役割 (2018-2019 年度)

2. 研究開発目標 (設定の理由も含め)

2.1 目標

本研究開発の基本計画で設定されている目標は下記の通りである:

中間目標 (2015 年度)

9 万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を開発する。また、この評価方法を耐久試験後の実セルスタックに適用し、その妥当性の検証及び課題抽出をおこなう。

中間目標 (2017 年度)

9 万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を確立する。

最終目標 (2019 年度)

高効率化 SOFC システム (発電効率 65%以上 (LHV)) のコンセプトを創出する。

(1) 2013 年度～2017 年度における各項目の目標とその概要

以下に標記期間での目標を項目ごとに示す。なお、スタックによって過去の NEDO プロジェクトにおける耐久性向上の検討期間が異なり、その達成度が違うことから、以下のように第 1 グループ、第 2 グループ、第 3 グループとして記述する。

① スタック耐久性評価

第 1 グループの目標は以下の通りである。

(2017 年度目標) 2 万時間以上の耐久試験 (運転) 実績より、劣化挙動分析を行い、新たな劣化要因がある場合には、従来知見を参考にして劣化機構説明を行い、改善策を提案する。提案・確立された耐久性迅速評価技術を適用し、9 万時間耐久性があるかを検証するとともに、評価技術としての妥当性を検証する。改良セルスタックが提供される場合には、耐久性迅速評価手法を適用し、どの程度の短期間で長期耐久性を判断できるかを検証する。

第 2 グループの目標は次の通りである。

(2017 年度目標) 9 万時間耐久が短時間の運転実績より見通せた場合は更に運転時間を延長し、

寿命予測と整合するか検証する。見通しが得られなかった場合には、さらに加速試験などを行い劣化支配要因の抽出に取り組み、改善策を得るとともに耐久性迅速評価技術の改良に資する。

第3グループの目標は次の通りである。

(2017年度目標) 改善策を施されたスタックなどの長期耐久性試験を更に行い、劣化機構解明を深化させることにより、9万時間耐久の見通しを検討する。耐久性迅速評価技術の適用において、短期間での検討で9万時間耐久性があるかを判断できるかの検証を行う。

(2017年度までの内容) 以下では全体として内容を示す。

- a. 個別スタックの耐久試験関連試料を基盤研究機関へ提供し、個別部位での劣化挙動の分析を行い、電力中央研究所に提供したスタックで行ったスタック劣化挙動解析と総合して、当該スタックの劣化要因分析を行い、その時間変化を考察する。劣化要因が特定されたものについては、その改善策を得る。
- b. 耐久性迅速評価技術を適用した結果と蓄積された知見とを比較検討し、9万時間耐久が見通せるかを判断するとともに、評価技術の適否を判断する。

② 劣化機構の解明

劣化機構解明が進んでいる現象に対しては、劣化進展モデルを構築し、駆動力の解析とともに劣化挙動を支配している物性値などの基礎データの収集につとめ、耐久性迅速評価技術の基礎を作る。9万時間耐久見通しのように微小な性能変化の機構解明を行うために、微小な変化を検出する測定手段・解析技術の高度化を図るとともに、複数の要因が関連する場合には集学的な解析を高度化する。

(2017年度目標) スタックのグループ毎に検討対象となっている劣化(予想)部位の解析を集学的に行う。主要な劣化要因に関連する各部材の特性値(拡散係数、機械的性質関連、微構造、化学状態など)の蓄積を行う。電気化学的性能変化(あるいは機械的応力変化)と部材特性値の変化を関連づける劣化モデル更にはその時間的変化をも考慮した劣化進展モデルを構築し、9万時間耐久の見通しに必要とされる劣化機構解明を更に深化させて行う。

③ 耐久性迅速評価方法の開発

劣化機構解明された劣化に対する耐久性迅速評価技術を開発し、スタックに適用し改良・確立する。

(2017年度目標) 耐久性試験結果とシミュレーション技術とを総合化した耐久性迅速評価技術を開発し、耐久性迅速評価技術を各スタックへ適用することにより、9万時間耐久を見通す判断を行い、評価手法としての妥当性を検証する。見通しが得られなかった場合には、当該スタックに起因する問題であるかを判断する。評価手法を改善する必要があるれば改善策を検討しその検証を行う。

④ 総括とまとめ

本研究開発推進のために、スタック高耐久化技術WG(産総研、電中研、参画企業9社)、基盤技術コンソーシアム(東北大学他3大学、産総研、電中研、オブザーバーとして参画企業9社)並びにシミュレーション技術適用検討グループ(東大他2大学、産総研、電中研、オブザーバーとして企業9社)を適宜開催するとともに、研究分担者(およびメンバー)の全体会議をおこない、全体的な進捗状況を共通認識化する。このようなスタック開発者と公的・基盤研究機関との連携を効果的・協力的に推進するために、研究開発項目1) 2) 3)に対応するスタック高耐久化技術WG、基盤技術コンソーシアム、シミュレーション技術検討グループの幹事機関として、産業技術総合研究所、東北大学、東京大学がそれぞれとりまとめ役を担い、各項目内での進捗状況を把握するとともに他の研究項目との適切な連携を推進する。

(2) 2018年度～2019年度における各項目の目標とその概要

以下に後半2年間の目標を項目ごとに示す。

① スタック耐久性評価

スタック開発企業の協力のもと、2017年度までの耐久性迅速評価プロジェクトで開発されたスタックを、高効率(高燃料利用率)の運用限界近辺で稼働させ、試験後の解体分析をおこなう。高効率運転時の劣化因子・課題を抽出する。

- a. (2019年度目標) スタック過酷試験による電池性能の解明: 再生可能エネルギーの需給調整(高速負荷変動対応)を想定したSOFCシステム開発に必要な高効率・強靱化セルスタックのための課題抽出を行うためのスタック過酷試験プロトコルを立案する。立案したプロトコルを各社のセルスタックに適用し過酷試験を行うことにより、短時間での高速負荷変動の許容範囲や負荷応答特性を明確化する。さらに、得られた高速負荷変動の許容範囲において、長期的なセルスタック性能への影響を検証するため、1,000時間以上の連続過酷試験を行い、劣化要因分析により

劣化部位を抽出する。対象とするセルスタックは、共同実施で研究開発を推進する企業4社(京セラ、デンソー、日本特殊陶業、日本ガイシ)からの提供による。

- b. (2019年度目標) 高効率システム用スタック過酷試験： 家庭用燃料電池システムなど小容量機のSOFCシステム構成を念頭に実用システムの燃料流量変動等の実力見込みを解析した上、スタック評価条件を提案する。
- c. (2019年度目標) 強靱性セルの試作と可能性検討： 強靱性を有する金属等の支持体や耐熱性、材料両立性等を考慮した電解質・電極等の構成材料、及び新規多孔質支持体の製法及び低温でのセラミックス成膜・焼結技術等、製造プロセスを検討し、強靱性セルの試作をおこなう。また新規電解質支持体の弾性・塑性挙動やその上に成膜した電解質膜の残留応力等の機械特性、及び試作セルの起動停止特性等の評価し、高い機械的信頼性および電気化学特性を有する強靱性セルの実現可能性を検討する
- d. (2019年度目標) プロトン導電性デバイスの検討： 超高効率セルスタックの設計に向け、PCFCセルの電解質の輸率向上や電極界面設計、種々の作動環境での劣化機構解明、並びに利用率や熱機械的特性向上に向けた課題抽出をおこなう。

② 劣化機構の解明

スタック耐久性評価で、過酷試験されたセルスタックの劣化事象を切り出して、高効率・強靱化のための要素解析・劣化機構解明をおこなう。また、高効率・強靱化に必要な新規な評価法の検討も進める。

③ 耐久性迅速評価方法の開発

高燃料利用率下での燃料極の微構造変化と性能、機械的な変形などの事象をシミュレーションできるようにする。

(2019年度目標)

過酷条件において課題となる局所水蒸気分圧を高精度に予測するために、既存の高クヌッセン数での拡散モデルを検証し、必要に応じてモデルの改良を行う。予測した局所水蒸気分圧の下で過酷運転時の燃料極のNi形態変化を予測するフェーズフィールド法コードを開発し、過酷条件における燃料極劣化の予測手法を構築する。

FIB-SEM 構造再構築法、格子ボルツマン法、フェーズフィールド法、動的モンテカルロ法等、これまで開発を進めて来た実験解析手法を駆使し、実構造を基にしてその性能および信頼性をさらに向上させるための電極構造を提案する手法を開発する。

④ 総括とまとめ

プロジェクト推進のために、スタック高耐久化技術WG(産総研、電中研、参画企業)、基盤技術コンソーシアム(東北大学他3大学、産総研、電中研、オブザーバーとして参画企業)、シミュレーション技術適用検討グループ(東大他2大学、オブザーバーとして九大、産総研、電中研、参画企業)、強靱性セル可能性検討グループ(京大他2大学、産総研)、プロトン導電デバイス検討グループ(産総研 他)を適宜開催するとともに、研究分担者(およびメンバー)の全体会議を行い、全体的な進捗状況を共通認識化する。このようなスタック開発者と公的・基盤研究機関との連携を効果的・強力に推進するために、研究開発項目1) 2) 3) に対応するスタック高耐久化技術WG、強靱性セル可能性検討グループ、プロトン導電デバイス検討グループ、基盤技術コンソーシアム、シミュレーション技術適用検討グループの幹事機関として、電力中央研究所、産業技術総合研究所、京都大学、東北大学、東京大学がまとめ役を担い、主査(責任者)において、各項目内での進捗状況を把握するとともに他の研究項目との適切な連携を促進する。

2. 2 目標設定の経緯

図 2.1 に、NEDO 事業でおこなわれた固体酸化物形燃料電池の耐久性・信頼性向上に関するプロジェクトの年表とセルスタックの劣化率低減（耐久性向上）の推移を示す。さらに、実証研究及び関連する補助金の導入についても示す。2008 年度から 2012 年度までに行われた「固体酸化物形燃料電池システム要素技術開発事業/耐久性・信頼性向上に関する基礎研究」（前プロジェクト）では、耐久時間として 4 万時間を耐久目標として設定するとともに起動停止（サイクル）についても目標が設定された。終了時において参画したスタックはおおむね目標（0.25%/1000 時間、5 年で 10%劣化の耐久性能）をクリアした。特に、MHPS 製円筒横縞形は劣化率ほぼゼロを実現した。また京セラ機では前プロジェクトで対象としたスタックで目標を達成した。TOTO 製小型円筒形セルスタックでは、主な劣化要因が空気極のクロム被毒であることが特定されてから、その対策を施すことにより、終了時には目標をほぼクリアしていた。このように前プロジェクトの成果を受け、本プロジェクト（2013 年度～2017 年度）では、9 万時間耐久を目標としている。目標設定の背景には、2011-2012 年から販売開始が行われたエネファーム（Type-S）の本格普及を促進する必要があったためである。本格普及のためには、耐久性・信頼性のほかに、低コストセル、高効率の実現が必要となる。本プロジェクトでは、耐久性迅速評価方法を確立することで、9 万時間のセルスタック耐久性を迅速に見極める手法を確立する。その方法を、スタック開発企業が開発する普及用低コストセルスタックに適用し、耐久性を見極めることによって、本格普及に資することを目指している。

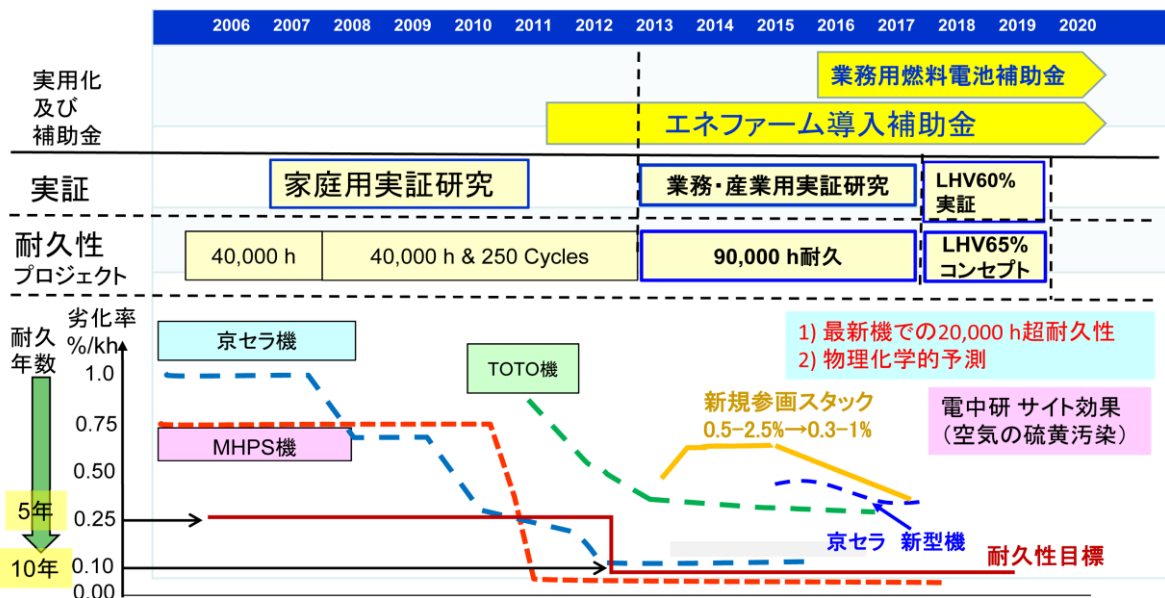


図 2.1 NEDO プロジェクトの経緯：目標と実績、関連事項

SOFC の更なる普及拡大に向けては、高耐久化のほかに、高効率化、強靱化・運用性向上、低コスト化、などの技術課題を解決すべきである。民間企業での低コスト化等の技術開発に加えて、難易度が高く共通課題である高効率化や強靱化・運用性向上については、国プロなどで取り組むべき重要課題である。2017 年 12 月 26 日に開催された「第 2 回再生可能エネルギー・水素等関係会議」の「水素基本戦略」においても、超高効率発電の必要性や運用性能向上が記載されており、NEDO プロジェクトにおいて取り組む必要性がでてきた。SOFC の高効率化や強靱化・運用性に関する現状レベルは、下記に示すとおりである。

(i) SOFC の高効率化：商用化しているエネファーム Type-S において、2016 年 4 月に LHV52% を達成する高効率システム機が販売され、導入期のエネファーム販売数を増大させている。一方海外では、ここ数年程の間に、高効率・強靱化システムの開発が著しく進展している。例えば、米国 Bloom Energy では、200kW 超システムで初期効率が LHV63% を超え、その耐久性も次第に向上してきている。欧州では、SOLID Power が 1.5kW システムで初期 LHV60% を超えるようなシステムを実現しており、耐久性も数年を実現できるレベルに達してきている。

(ii) SOFC の強靱化・運用性向上：SOFC の想定される適用先としては、家庭用・業務用コジェネレ

ーションシステムのほかに、高効率モノジェネレーションシステム、移動体用、今後導入量が飛躍的に増大する再生可能エネルギーに対するバックアップ電源、出力平準化システムなどが挙げられる。これら想定される様々な適用先での運用に柔軟に対応できるセルスタックの実現に向けては、セルスタックの高効率化と強靱化を両立することが必要不可欠である。2015年7月に出された資源エネルギー庁の長期需給見通しでは、2030年の電源構成として再生可能エネルギーで22%-24%をまかなうという構想が示され、今後着実に再生可能エネルギーの割合が伸びるものと予想される。大量の再生可能エネルギー由来電力が送配電網に入った際には、送電系統への容量制限の問題や変動する電力出力の安定化・平準化などの課題がある。現状は、火力発電によって再生可能エネルギーの変動を吸収し、送配電の安定化を図っているが、これを燃料電池で補完するようなコンセプトも将来検討されているところであり、関連する調査研究も現在進められている。調査研究の予備結果では、2030年頃に一定のCO₂排出制約を達成するためには、再生可能エネルギーの変動吸収に対して大量のSOFCシステムを年間30~200回もの頻度で起動停止させるような高靱性が要求される。SOFC型のエネファームでは負荷変動対応システムが実現しているが、業務・産業用燃料電池などでは、負荷変動及び頻繁な起動停止には対応できておらず、再生可能エネルギー電力の大量導入時における出力変動に対して高速負荷追従、将来的には急速起動停止に対応する強靱なシステムへの技術開発が必要とされている。

上記の背景に示す通り、高効率で運用性の高い強靱な燃料電池システムを実現するための高効率・強靱化SOFCセルスタックを開発するための課題抽出や設計指針を出す必要性が高まっている。そこで、2018年度~2019年度までの2年間で、高効率・強靱化SOFCセルスタック実現のための課題抽出・設計指針提示(コンセプト創出)を行う。

2.3 研究体制

(1) 2013年~2017年度の研究体制

図2.2に、当該期間の研究実施体制を示す。スタックメーカーを中心としたスタック高耐久化技術WGには幹事機関として産総研が、スタック性能評価を受け持つ電中研・東京ガスが参画する。基盤コンソーシアムでは、各種耐久性評価技術を発展させてきた基盤機関が参画し、9万時間耐久評価を行うための高度化を検討・議論する。シミュレーション技術適用性検討グループを立ち上げ、9万時間の寿命予測のためのシミュレーション技術を進化させる。

(2) 2018年~2019年度の研究体制

図2.3に当該期間の研究実施体制を示す。基本構造は2013年~2017年度の体制と同じであるが、(1)スタック耐久性評価では、スタック開発企業4社は共同実施として参画し、高効率(高燃料利用率)運転・高負荷変動試験を電中研で一括して行なう。高効率システム用スタック過酷試験は大阪ガスが共同実施で行なう。また、強靱性セルの試作と可能性検討、プロトン導電デバイスの検討は、新規なSOFC部材開発なども含まれており、スタック化までの見通しを得る段階であるので、別会議体として技術検討会議をおこなった。(2)劣化機構解明では、2013年~2017年度までで確立した、9万時間耐久を見通すための分析法・評価手法を適用し、高効率(高燃料利用率)運転でおこる課題の先回り、スタック耐久性評価で試験された企業セルの分析を進め、高効率運転時における劣化メカニズム解明と高耐久性へのコンセプト提示につなげる。(3)耐久性迅速評価方法の開発では、これまで蓄積してきたシミュレーション技法を、高効率運転にも適用し、9万時間の耐久性に適用する。このような高効率・強靱化セルスタック実現への開発サイクルを回すことで、課題の抽出と設計指針の提示などが可能となり、高効率・強靱化セルへのコンセプト創出を促進させる。

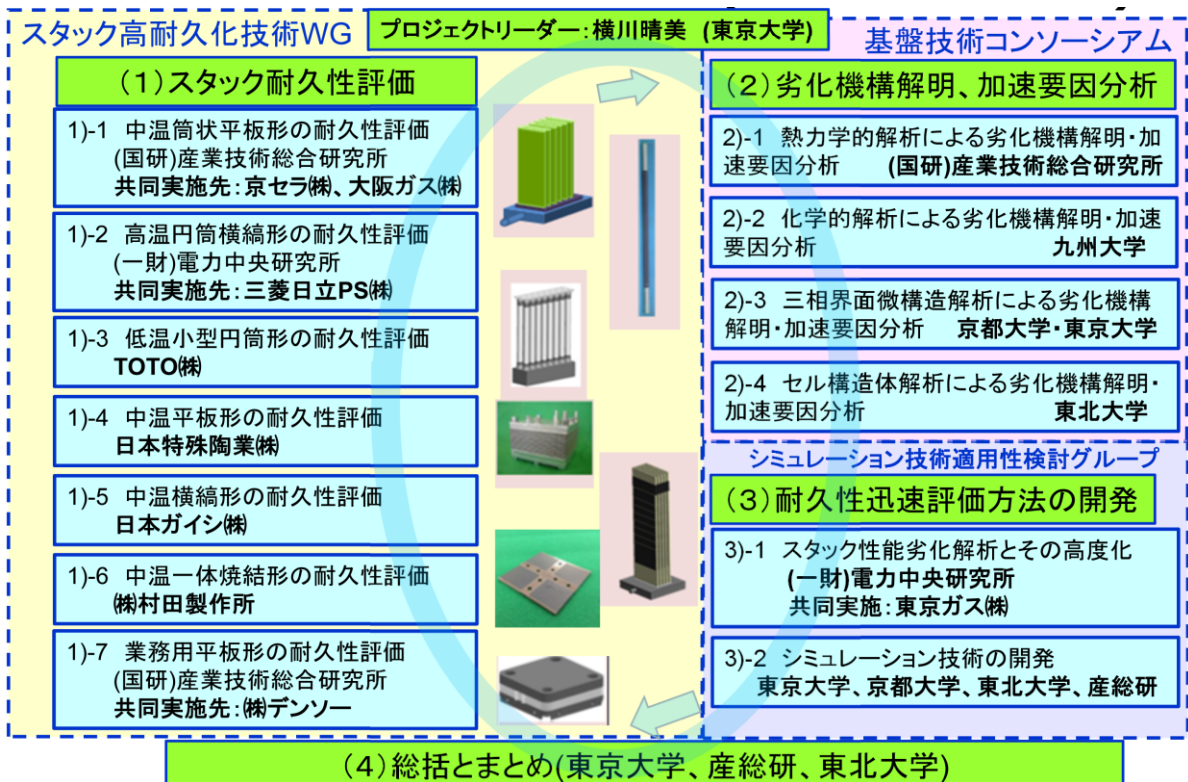


図 2.2 2013-2017 年度の研究実施体制図と担当する研究項目、委託先・共同実施先



図 2.3 2018-2019 年度の研究実施体制図と担当する研究項目、委託先・共同実施先

3. 研究開発成果

3. 1 研究開発成果、達成度

最初にプロジェクト全体の成果を前期（2013年度～2017年度）と後期（2018年度～2019年度）に分けて示し、その後で研究開発項目ごとの成果を示す。

（1）前期プロジェクト全体の総括成果（2013年度～2017年度）

9万時間耐久を目指すために電力中央研究所で行なったスタック性能評価の結果を表3.1に示す。電中研における空気中の硫黄汚染を除くために設置した化学フィルター（CF）を用いた結果を主に示す。PFと表示してあるものは物理フィルターのみのもので、CFと表示してあるものは物理フィルターと化学フィルターを併置した結果を示す。劣化率データを示したスタックは赤字で示す。空気極・抵抗値・燃料極に起因する電圧降下の変化幅をmV単位で示すとともに1000時間当たりの電圧変化率（劣化の場合マイナス）を示す。-0.1%程度を実現しているものは9万時間耐久性達成とし、-0.2～-0.3%程度は4万時間耐久性達成とし、それ以上の劣化では改善が必要としてそれぞれ背景を濃淡で区別した。

第1グループは高い耐久性を再確認した。劣化機構解明も順調に進んでいる。京セラ機の2016年度機では、従来機（2012年度機など）に比べ、空気極劣化速度が速かったが、CF下では、劣化率は減少した。但し、従来機（2008年機、2012年機）と比較するとやや劣化率が大きい。さらにオーム損増加率も従来機よりも大きい傾向を示す。三菱日立パワーシステム機では新たな劣化要因は見いだされなかった。クロム被毒効果は小さく、生じた微構造変化も9万時間以上の耐久を示した。また、示唆されたマンガンの移動による電解質劣化もマンガンの固溶がYSZにまで達していないことが解り、劣化要因とはならないことが明示された。

表 3-1.1 電中研によるスタック性能評価結果

2018年2月現在							
	円筒横縞形 (MHP)	筒状平板形 (京セラ)	筒状横縞形 (日本ガイシ)	一体焼結形 (村田製作所)	平板形（日本 特殊陶業）	業務用平板形 (デンソー)	小型円筒形 (TOTÔ)
運転温度	900°C	750°C	750°C	750°C	700°C	700°C	700/630°C
電流密度	0.15 A/cm	0.30	0.20	0.25	0.52(0.25)	0.53	0.21
空気極構成							
空気極・劣化率	4-13 mV -0.04 %	15-41 mV -0.22%	25-39mV -0.10%	39-50 mV -0.30 %	22-40 mV -0.13%	35-71 mV -0.88%	38-45mV -0.11%
抵抗値・劣化率	46-60mV -0.06%	79-91 mV -0.12 %	115-143mV -0.19%	82-103 mV -0.60%	41-53mV -0.09 %	89-103mV -0.21%	122-131mV -0.18%
燃料極・劣化率	11-15mV 0.00 %	6-10mV 0.02%	8-11 mV 0.01%	28-33 mV -0.10%	13-25 mV -0.11 %	43-51 mV -0.0%	27-32 mV -0.07%
全劣化率 稼働時間	-0.10% 30000 h	-0.33% 14000 h	-0.29 % 16000 h	-1.01 % 5000 h	-0.33 % 14000 h	-1.09% 2~5000 h	-0.36% 6000 h
対象スタック	10号機 11号機	2012機 2016機	2014機 2015機	2015機 2016機	2013機 2014機	2015機 2016機	2016仕様； 700°C、630°C
フィルタ；劣化機構解明予測	PF Cr被毒抑制に成功	CF； Cr被毒抑制 S；感受性有り	CF； Cr被毒無し S；感受性大 オーム損増	CF； S；感受性大 空気利用率な どに依存 オーム損増	CF CA,AN；不純物（K,P）； オーム損増	CF クロム被毒 AN；製造上不具合クロ スリーク	CF モジュール性能大幅改善

90k耐久達成
40k耐久性達成
要改善

他方、第2グループならびに第3グループではそれぞれ初期劣化の解析が進んだ。特に、TOTÔ小型円筒形セルは化学フィルターを設置した場合に空気極劣化が小さくなることが確認された。第3グループの中では、日本特殊陶業機においては、空気極劣化・燃料極劣化ともに他のスタックとは異なる機構で進むことが明らかとなり、空気極では改良によってその程度が半減したが依然として残存していること、燃料極ではリン（P）による被毒再現試験に成功し、その原因が特定された。日本ガイシ機で

は、改良後の空気極劣化は-0.3%/khよりも小さくなり大幅に改善された。他方、オーム損増加の原因究明はいくつかの仮説の下で検証が行われたが、兆候を示す例も見いだされたが確定するに至らなかった。村田製作所機においても大きなオーム損増が観測されたが、LSM系空気極を用いて成膜したセルでも現出することが確認されたため、インターコネクト部に起因することが強く示唆され、種々の解析・検討が試みられた。デンスラー機では、見いだされた劣化要因に対する改良が施され、性能評価がよりの確に行われるようになった。クロスリークのある場合には空気極の大きな劣化が観測された。また、劣化の多くの部分が機械的な歪み等による電氣的接触の低下によるものと推測し、歪み・変形解析を進め確認した。

2017年度までに、9万時間耐久を見通すための耐久性迅速表方法の基盤技術の確立をした。その総括的なまとめを以下に示す。

i) 電中研で採用している性能表示式の確立からオーム損、空気極過電圧、燃料極過電圧、ネルンスト損などの解析手法は強力であることが再確認された。今後の発展方向としてシミュレーション技術と連動させ、平均情報だけでなく局所的な情報の精度を上げていくことも考えられる。

ii) 劣化機構解明においては、FIB-SEMを用いた微構造変化の検出、SIMSを用いた不純物の電気化学的活性域での検出、STEMを用いた組成分析を総合的に展開することによって的確な電極劣化機構を導出することができることを実証した。但し、空気極の硫黄被毒が関与する場合には、表面近傍の組成変化が重要であるとの考察を得たが、実際に組成変化を観測することは容易ではなく、不十分さが認められた。

iii) YSZ電解質の相変態による伝導度低下に関しては、ボタンセルによる劣化機構の解明、モデル化、シミュレーションによる検証・課題抽出、更なるモデル化、スタックへの適用が順調に進み、オーム損の主たる原因が相変態ではないことを明確化した。今後更にスタックの局所的な相変態の様相を再現するシミュレーションを行うことにより、従来ではほとんど情報を得ることができなかった電流密度分布などの情報を系統的に得る可能性を高めることができた

iv) 前プロジェクトより系統的に進めてきた変形・応力解析では、種々の機械的性質データの収集、実機セルレベルでの適用、典型的な課題についての検証などを行い、更に変形・応力解析をする上で最重要となる酸化物の酸化還元起因する体積変化を算出するために不可欠となる酸素ポテンシャル分布の解析ソフトのユニット化・商用解析ソフトとの共用化などが実現することができた。その結果、実機レベルでの変形・応力解析が可能となり、特に平板形セルでの評価に威力を発揮できるようになった。

(2) 前期プロジェクト目標に対する達成度(2013年度～2017年度)

標記期間における目標に対する達成度を下記の表で総括として示した後に、内容を記述する。

表 3-1.2 耐久性迅速評価プロジェクト(2013-2017年度)目標に対する達成度

項目名称	最終目標 (2017年度末)	成果	達成度	今後の課題
固体酸化燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究	9万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化燃料電池スタックの耐久性迅速評価方法を確立する	1) 電中研の性能解析を全スタックに適用し、セルスタックの部位による劣化率の寄与度を算出した。不純物による劣化の防止法を解明するとともに電極劣化とオーム損増加との相関を見出し、劣化解析に有効であることを見出した。 2) セルスタック長期	○	・多くの主要な劣化事象の劣化メカニズム解明は進み、耐久性評価法の確立ができたが、更なる耐久時間延長に向けて一部の劣化メカニズムは不明なところもある。 ・また劣化・耐久性をシミュレーション

		<p>試験後の試料を集学的分析により、不純物濃度レベル、微構造、化学変化などと性能劣化との相関を調べた。不純物（硫黄など）被毒、絶縁層生成、相変態などの劣化メカニズムを解明した。</p> <p>3) 従来から抽出されていた劣化課題について、劣化機構の解明を進め、付随するデータの取得によりスタック性能変化を予測するシミュレーション技術の開発を行った。</p> <p>4) 上記研究開発を総合的に複合化することで、9万時間の耐久を見通すことができる耐久性迅速評価方法を確立した。</p>	<p>ンするための一部の基礎データ取得が必要である。</p>
--	--	--	--------------------------------

① スタック長期耐久性評価(2013年度～2017年度)

電中研・東京ガスにおける空气中硫黄濃度の測定を行い、低硫黄濃度でのスタック性能を評価し、空気極、燃料極、オーム損毎に劣化率を算定した。9万時間の寿命・耐久性予測は初期劣化が収まった中期の挙動も考慮して行った。それぞれの劣化の時間変化が得られているものは、数値的に解析を行った。

a. **第1グループ**：MHPS機では、長期運転後に形成される空気極/中間層間の緻密層、Cr堆積のメカニズムについて各基盤機関の解体分析によって得られた成果からメカニズムを推定した。また、物質反応速度の推定から耐久性の迅速評価を実施した。京セラ機では、空気極の被毒現象を中心に、詳細に40,000時間超運転の2010年度仕様実証機の解体分析を実施した。空気極中のSやCrの分布について想定した結果を裏付けるデータを取得することができた。

b. **第2グループ**：TOTO機では、電中研にて低コスト化を狙った16年度改仕様セルスタック（初期案）の耐久試験を行い、課題であった初期の空気極過電圧の増大抑制を確認し、社内評価結果と合わせて9万時間連続耐久の見通しを得た。また、東北大学と連携し、セル外径評価によって起動停止時の耐久信頼性を有することを確認した。

c. **第3グループ**：それぞれ初期劣化挙動の解析から特に空気極劣化機構を明らかにし、改良することによって、空気極劣化を抑えることに成功した。セリア中間層が緻密なスタックではオーム損増加を予想よりも大きくその物理化学的究明を行った。

2015年度までに明らかになった空気極劣化とオーム損増との相関については、多くのスタックで別個に変化することが確認されたが、京セラ2016年機のように僅かな量ではあるものの明らかに空気極過電圧の増加とオーム損増加とが相関している例が認められた。今後、劣化挙動と電流密度分布の変化などを詳細に検討すべきとの認識に至った。

②劣化機構解明、加速要因分析(2013年度～2017年度)

スタックの性能評価の結果および試験後の解体調査によって検討すべき課題を抽出する方法は、初期の段階では単独原因でおこる劣化課題が抽出される場合が多いため、現象の特定、再現、機構解明などが比較的スムーズに進み、課題の克服まで至るのに多くの時間は要しなかった。他方で、課題自身の認識は早くからもっていたものの機構解明には時間を要する場合も出てきた。これは多くの要因が関与している場合に認められた。課題克服にまで至る道筋の違いによって整理すると次

のようにまとめることができる。

(a) ボタンセルでの劣化挙動より軽度な場合：

燃料極として用いられる Ni-YSZ サーマット電極の焼結挙動は、ボタンセルで観測すると比較的大きな変化を示すのに対し、スタックではほとんどの場合、全く焼結をしないあるいは焼結してもほんの僅かであり、その結果燃料極の劣化率も小さかった。典型的なボタンセルとスタックとでのギャップが現れる場合に相当する。不純物、製造過程の違いなどに起因するものを解釈される。空気極の硫黄被毒においても同様なギャップが存在する。ボタンセルでおこなうと被毒現象が大きく現れるが、スタックでの被毒はそれほど大きくは現れない。この場合は、電解質の厚さなどが関与していることが推測される。

(b) 一つの劣化要因の解決策が他の劣化要因を促進する場合：

熱力学的に中温用の LSCF、LSC は YSZ と反応し SrZrO₃ が生成することが予想される。そのために GDC などのセリア中間層を空気極と YSZ 電解質に挿入する。但しセリア層は緻密に成膜することが難しいため多くの場合多孔性となり、Sr の拡散を促す。SrZrO₃ 生成による伝導度低下を抑えるためには、Sr の拡散を抑える必要がある。本プロジェクトに参画しているスタックでは多孔性膜での拡散を抑える手法と緻密膜を作成し拡散を抑える手法とに 2 分される。日本ガイシ機、村田製作所機、デンソー機が後者に該当するが、日本ガイシ機、村田製作所機ともに初期の空気極劣化が大きく、オーム損増大も大きいという別の劣化現象を生じることとなった。空気極劣化は両スタックともに克服することができたが、オーム損増については依然として未解決である。

(c) 複雑な要因でおこる劣化現象：

YSZ 電解質の相変態に伴う伝導度低下は、Thermal Barrier Coating(TBC)用の YSZ の相変態と非常によく似た現象であったために、TBC 分野での劣化解析成果に準拠してモデルをたてることができ、比較的早期に良好なモデルを構築できた。この場合でも、相変態の進行は NiO の還元の影響をうける領域と受けない領域に 2 分されるため、その境界を把握する必要がでてきた。この境界は電解質中の伝導特性ばかりでなく、電解質両端での酸素分圧、電流密度などが影響するため時間とともにゆっくりと変化する特性を示す。従って、物理化学的機構解明とともに、モデル化と付随するデータを用いたシミュレーションが重要となる。このような解析は、セルの変形・応力解析と同等のソフトを用いることで実現できた。

また複雑な様相で劣化が起こる例として空気極の劣化をあげることができる。現在の理解では、LSCF などの空気極機能を実現する Sr サイト、Co サイトあるいは酸素空孔などの表面濃度の変化が劣化に大きく関わってくると認識しているが、このような特性は単に空気極の反応性ばかりでなく、空気極中のプロトンの状態、内部から拡散してくる Sr/Co の速度などが重要な因子となり、複雑な様相を示すことを認識するに至った。

このような進展は、各部位の機能が連動して一つの性能に結びつくという燃料電池の本来の特徴を反映した劣化が目に見えるようになったためと思われる。このため劣化解析においても総合的なアプローチが必要とされ、本プロジェクトで採用した方法論が優れていることを示した。

このことより、耐久性の解析ばかりでなく、今後の SOFC の発展のためには、材料分析・解析の総合化・統合化の実現と将来課題の抽出がより重要になるとの見解をもつに至った。そのために基盤的な知見として本プロジェクトの成果を活用できるものと思われる。

③ 耐久性迅速評価方法の開発(2013 年度～2017 年度)

本プロジェクトでは、スタック性能解析から各部位の電圧降下を算定し、各部位毎の劣化率を稼働時間の関数として導出することと、劣化が確認された部位の詳細な材料化学的分析 (SIMS による不純物濃度分布、FIB-SEM による微構造再構築、ラマン分光による局所イオン配位の観測、STEM による局所化学状態の解析) とを連動させることで、劣化機構解明の有力な情報を得るとともに、シミュレーション技術の適切な適用によって複雑な現象の可視化、時間変化などの情報を抽出することができ、寿命予測につなげることができた。前プロジェクトから 10 年にわたる連携によって定置用セルスタック評価技術としての成熟度は高いと評価できる。

(3) 後期プロジェクト全体の総括成果(2018 年度～2019 年度)

新たな技術課題として、高効率・強靱化に注目し、高性能セルスタックへの課題抽出、対策の提示を行ない、高効率・強靱化への開発コンセプト創出を検討した。電力中央研究所でのセルスタック過酷試験において、燃料利用率を 80% 以上に高めるとともに、ミ

リ秒から数十秒周期での負荷変動試験をおこない、セルスタックの強靭性を検討した。表3-1.3に、高燃料利用率（ $U_f=80\%$ もしくは 75% ）及び負荷変動試験でのスタック劣化率を示す（マイナス表示ではないが、初期電圧に対して劣化した割合で、表3-1.1と同じ）。筒状平板形や中温平板形では連続耐久での劣化率がそれぞれ $0.25\%/1000$ 時間、 $0.34\%/1000$ 時間であった。これは、燃料利用率を 70% 以下で運転した、これまでの通常耐久試験での劣化率（表3-1.1 筒状平板形： $0.33\%/1000$ 時間、中温平板形： $0.33\%/1000$ 時間）と同等の値を示し、高燃料利用率での耐久性が示された。さらに、負荷変動時での劣化率も筒状平板形で $0.28\%/1000$ 時間、中温平板形で $0.61\%/1000$ 時間であり、負荷変動の影響も少ないことが分かった。高燃料利用率・負荷変動試験においても、その抵抗増大要因は通常運転と類似であった。すなわち、筒状平板形や中温平板形での抵抗増大の主要因は、オーム損と空気極過電圧抵抗増大であり、通常運転と同じ劣化主要因を示した。残り2つのスタックでは多少大きめの劣化率を示したが、高燃料利用率及び負荷変動時でもある程度の耐久性・健全性があることが示された。このことから、燃料利用率を 80% 程度まで高め、負荷変動をさせてもある程度の耐久性を保持できる可能性があることが分かった。

高燃料利用率・負荷変動スタックに対し、各種解析・評価法を適用し、新たな劣化メカニズム出現などが無いことを確認した。耐久試験後分析は検討中であるが、例えば、筒状平板形セルスタックの燃料ガス出口で、微構造変化や応力変化が確認された。高燃料利用率や負荷変動試験によって、燃料枯れなどのためにNi-YSZ燃料極のNiが酸化し、微構造変化が起こったものと推定された。今後詳細な解析・評価により高効率・強靭化への課題抽出をおこない、対策の提示、高効率へのコンセプト創出を行う。

表 3-1.3 高燃料利用率及び負荷変動試験における劣化率、抵抗増大要因（電中研測定）

スタック形式	筒状平板 (京セラ)	筒状横縞 (日本ガイシ)	中温平板 (日本特殊陶業)	業務用平板 (デンソー)
連続高燃料利用率・ 負荷変動試験	$U_f=80\%$, 設定 U_f の $\pm 15\%$ の 振幅 周期: 10s (0.02-20s)	$U_f=80\%$ 設定 U_f の $\pm 15\%$ の 振幅 周期: 10s (0.02-20s)	$U_f=80\%$, 設定 U_f の $\pm 15\%$ の振 幅 周期: 10s (0.02-20s)	$U_f=75\%$ 設定 U_f の $\pm 15\%$ の振幅 周期: 2s (0.02-2s)
連続高燃料利用率 耐久劣化率	0.25%/kh	0.75%/kh	0.34%/kh	2.85%/kh
負荷変動劣化率	0.28%/kh	2.10%/kh	0.61%/kh	2.49%/kh
負荷変動での抵抗 増大要因	影響なし	オーム損、空気極過 電圧	影響なし	オーム損
主な抵抗増大要因 (連続運転時)	オーム損、空気極 過電圧	オーム損	オーム損、空気極過 電圧	オーム損、空気極過電 圧
高燃料利用率運転 主な課題	筒状平板セル燃料 出口上部でのNiO 酸化(ガスの逆拡散)	高効率・負荷変動で IR損と空気極過電 圧増大	負荷変動による過電 圧への影響は小さい	高水蒸気圧で燃料極過 電圧、IR損が増大。通常 はオーム損増大
効率65%達成への 暫定対策コンセプト	ガス逆拡散対策: 高 U_f 時の燃料ガス	微構造観察中	微構造変化観察中	微構造観察中

2019年2月28日現在

(4) 後期プロジェクト目標に対する達成度(2018年度～2019年度)

標記期間において、目標に対する達成度を下記の表で総括として示し、内容について記述する。

表 3-1.4 耐久性迅速評価プロジェクト(2018-2019 年度)目標に対する達成度

項目名称	最終目標 (2019 年度末)	成果	達成度	今後の課題
固体酸化物 形燃料電池 の耐久性迅 速評価方法 に関する基 礎研究	高効率化 SOFC シス テム(発電効率 6 5%以上(LHV))の コンセプトを創出 する	1) 高効率運転(高燃料 利用率 80%以上)及び負 荷変動試験を複数企業 のセルスタックに適用 し、その健全性・強靱性 を明らかにした。 2) 高燃料利用率下で の Ni-YSZ 燃料極での Ni 酸化などの劣化現象を ボタンセルなどで解析・ 評価するとともに実セル スタックでの現象を 解明した。 3) 高効率運転時の劣 化現象を早期に評価で きるよう、シミュレーシ ョン技術を改良、複合化 し、民間企業に提供し た。	○	<ul style="list-style-type: none"> セルスタックによ って個別事象で 起こる高効率運転 時の劣化現象・メ カニズムの高精度 化を進める。 コンセプト創出 したスタック高効 率運転を実証す る必要がある。

高効率 65%LHV をセルスタックにおいてワンパスで達成するためには、燃料利用率を 80%以上に高める必要がある。本プロジェクト期間では、そのような高燃料利用率運転及び負荷変動時における SOFC システムの開発コンセプトを創出するために、通常運転である程度の耐久性が確認されたセルスタックの高効率運転を実施し、その後の解体分析、劣化メカニズム解析やシミュレーション解析など、これまで耐久性迅速評価方法として確立した解析手法・評価方法を適用した。セルスタックの高効率運転の可能性を明らかにするとともに高燃料利用率下でのセルスタックの劣化事象・メカニズムを解明した。さらに高燃料利用率下でのシミュレーション技術も開発した。以上により、高効率セルスタックの開発コンセプトが提案でき、LHV65%以上の SOFC システムへのコンセプト創出ができ、目標を達成した。

(5) スタック耐久性評価 (2013年度～2017年度)

参画したスタックの劣化解析・改良の程度の違いにより3グループに分けられる。それぞれのグループの成果と達成度などを以下に示す。

第1グループ： 以下に目標や成果、達成度などの一覧表を示し、その後内容などを記述することとする。このグループのセルスタックは、前プロジェクト(2008年～2012年)で1.5～2万時間程度の耐久試験をおこない、その詳細な解析から主な劣化機構が明らかになっているので、さらに耐久試験(運転)機関が累計2万時間以上となるセルスタックを解体し、従来までの知見で得られた劣化要因との比較を行い、新たな劣化要因があるかを検証する。また、既知の劣化要因については、時間変化の予測が妥当かを検証する。

① 中温筒状平板形の耐久性評価(産業技術総合研究所、共同実施：大阪ガス株式会社、JX 日鉱日石エネルギー株式会社、京セラ株式会社)

本テーマの目標と成果、達成度を示し、その後で内容を記述する。

表 3-5-1.1 中温筒状平板形の耐久性評価における成果と達成度(2013-2017年度)

項目名称	最終目標 (2017年度末)	成果	達成度	今後の課題
中温筒状平板形の耐久性評価	従来のセルスタックについて、9万時間耐久の見通しが得られている場合には、更に長期間運転を行い、さらなる検証に勤める。見通しが得られない場合には改善点を提案するとともに、耐久性迅速評価技術の課題抽出に供する。低コスト検討用セルスタックについて、9万時間耐久性を評価する。	4万時間超耐久を含む実証機の解体分析、および電中研での性能試験とその後の解体分析により、空気極のSおよびCr被毒、電解質の相変態など、これまでに明らかとなっている劣化挙動以外の新たな劣化要因が生じていないことを確認した。	○	更なる耐久時間への延長

a. 都市ガス燃料用セルスタック(大阪ガス、京セラとの共同実施)の耐久性評価

大阪ガスがSOFC実証研究事業(2009年度～2012年度)において設置し都市ガスを燃料として運転した家庭用燃料電池システムについて、長期劣化挙動を把握するため、2万時間超の長期運転を行ったセルスタックについて解体分析を2013年度-2015年度に実施した。

2016年度-2017年度は、4万時間超の長期運転を行ったセルスタック1機(10-33機(2010年度機)、約4.1万時間運転)について解体分析を実施した。二次イオン質量分析計(SIMS)により空気極中のCr濃度の分析を行った結果セル上部においてCrの濃集傾向を確認した。セル上部と中央部、下部とで三相界面(TPB)近傍のCr濃度を比較した結果、セル上部ほどCr濃集の程度が大きい一方、セル下部ではほとんどCrの濃集は確認されなかった。(図3-5-1.1参照) SIMおよびSEM/EDS-WDS分析により空気極中S濃度の分析を行った結果、セル下部の空気導入部近傍で集電部やTPB近傍含めSの濃集が確認された。

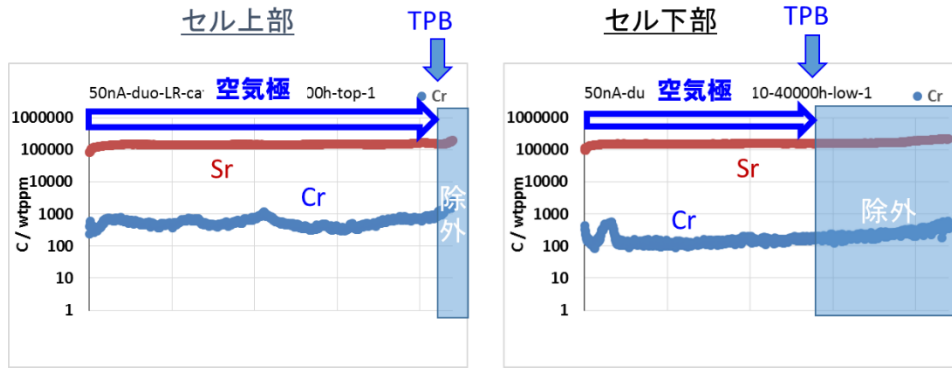


図3-5-1.1 空気極TPB近傍におけるCr濃度測定結果（10-33機）

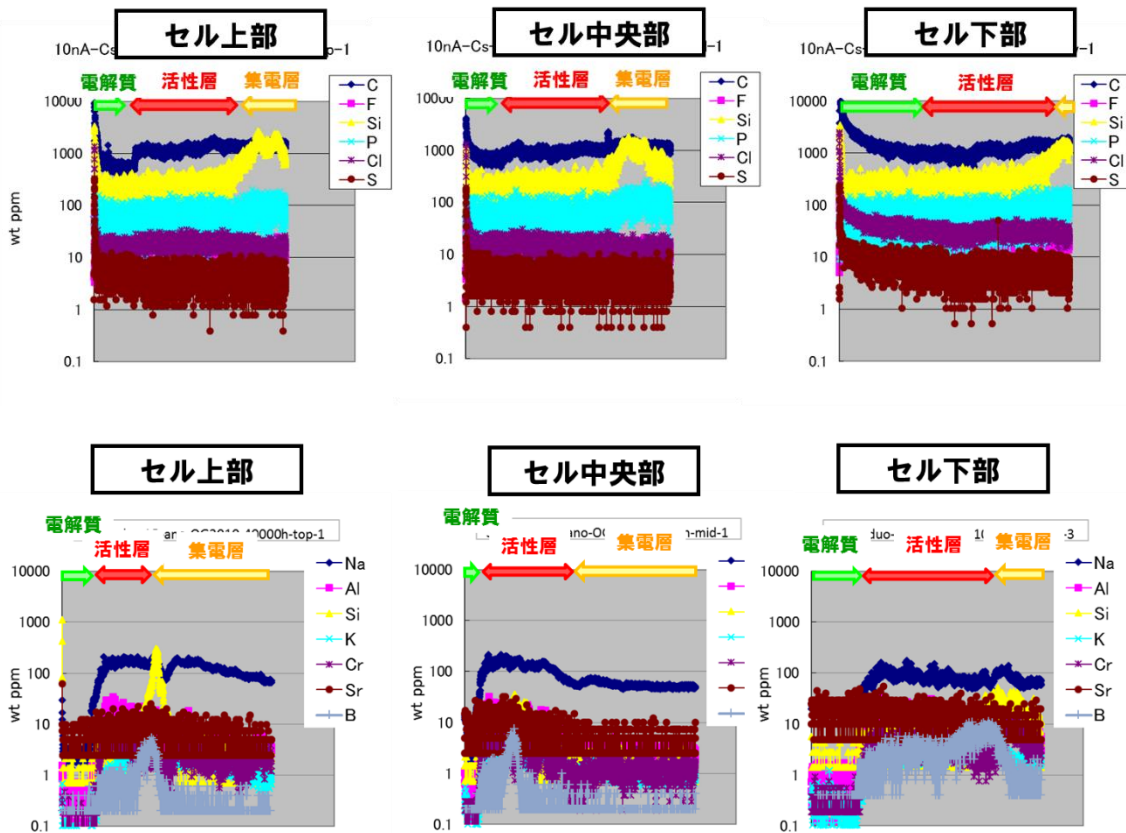


図3-5-1.2 燃料極TPB近傍におけるCr濃度測定結果（10-33機）

燃料極について、SEM/EDS-WDSおよびSIMSによる分析を実施した。燃料極界面近傍のSIMS不純物分析結果を図3-5-1.2に示す。図中、上の3つは一次イオンにCs⁺を用いマイナスのイオン（不純物でC、F、Si、P、Cl、S）を測定したものの、下の3つは一次イオンにO₂⁺を用いプラスの2次イオン（不純物でNa、Al、Si、K、Cr、B）を測定した結果を示している。SIMS不純物分析の結果から、燃料極活性層と集電層の間にSiが濃集していることが確認された。また、濃度は非常に低いですが、Bも若干濃集していることも確認できた。その他の不純物に関しては、SIMS分析においては確認されなかったが、SEM/WDS分析においては、Siの濃集部位にPの濃集も確認された。Si、Pの燃料極活性層と集電層界面への濃集傾向は、これまでも観測されているもので、4万時間の運転による著しい濃度の増大は認められなかった。また、微構造についても、これまでとの比較で大きな変化は認められなかった。

b. LPガス燃料用セルスタック（JX日鉱日石エネルギー、京セラとの共同実施）

2013 年度-2015 年度の 3 カ年の間に 2 万時間を超える耐久サンプルを分析した。LP ガス燃料と都市ガス燃料で燃料極の耐久性に違いがみられないこと、並びに燃料によらず 2010 年度機以降の空気極のクロム被毒耐性が向上していることを確認できたことから、初期の目的が達成できたとして LP ガス燃料用セルスタックの評価は本年度で終了することとした。LP ガス燃料用セルスタックの評価は昨年度で終了した。

c. 低コストセルスタック（2016 年度機）の検討（大阪ガス、JX 日鉱日石エネルギー、京セラとの共同実施）

電中研で長期耐久試験を開始した 2016 年度機について、社内結果を再現しない電圧低下を確認したため 2016 年度末に 7,000 時間で運転を停止、解体分析を実施することとした。電中研での性能評価においては空気極過電圧と IR 損の上昇が確認されたことに注目し解体分析を実施した。2015 年度末から 2016 年度にかけて解体分析を実施した結果、高濃度の S が空気極中 TPB 近傍に濃集していることを確認した（図 3-5-1.3）。他方、空気極の Cr 被毒、Zr 系電解質の相変態はほぼ確認されず、劣化の主要因は S 被毒によるものと推測した。

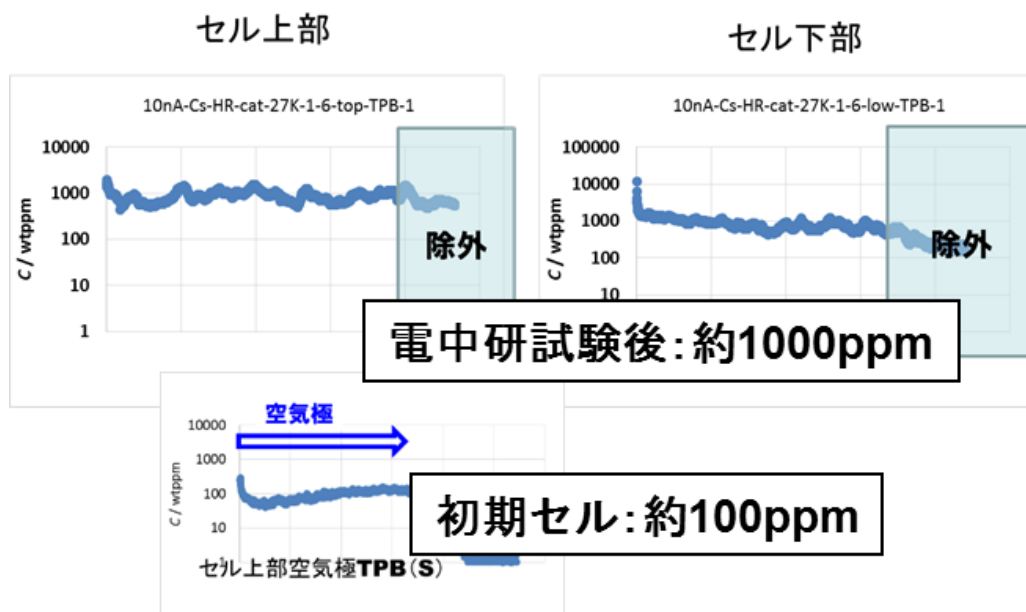


図3-5-1.3 空気極TPB近傍におけるS濃度測定結果（2016年度機）

改めてケミカルフィルターを設置した条件下で改めて長期耐久試験を実施、特異的な劣化傾向は現れず、2018 年 2 月に長期耐久試験を終了した。

d. その他

i) ICP 発光分析を用いた空気極中 Cr 濃度および S 濃度の評価

長期運転後の空気極中の Cr 濃度および S 濃度の変化について、ICP 発光分析法を用いた定量分析を実施した。セル試験後に空気極をはぎ取り、酸に全量を溶解して ICP 分析にかけるという手法で、初期セルとの比較で S 濃度、Cr 濃度を測定した結果を図 3-5-1.4 に示す。Cr 被毒については、2008 年度から 2009 年度機、2010 年度機と機体が改良されるごとに Cr 被毒量が低減（金属部材からの Cr の蒸発が低減）されていることがわかり、これまでの SIMS 分析の結果と同様、Cr 被毒防止にかかる対策が進んでいることを確認できる。他方、S 被毒については、年度によらず 20,000 時間超の運転後に 2 倍未満の濃度上昇を示すものの、Cr との比較では変化が小さい。他方、7,000 時間と最も運転時間の短い LC 仕様セルスタックにおいては初期の 6 倍と桁違いの濃度上昇を見せており、特異的に S に被毒する環境下で運転されたことが明らかとなった。

試料	S濃度	Cr濃度
①	1(基準)	1(基準)
②	1.5	8
③	1.8	4
④	1.5	7
⑤	6	0.6
⑥	1.9	3

- ①09年仕様単セル初期
- ②08年仕様**20000h**電中研試験
- ③09年仕様**19067h**大阪ガス試験
- ④08年仕様**20000h**電中研試験
- ⑤15年**LC**仕様**7000h**電中研試験
- ⑥10年仕様**40,733h**大阪ガス試験

図 3-5-1.4 ICP 発光分析を用いた空気極中 Cr 濃度および S 濃度の評価結果

ii) 電解質の相変態と電導度低下について

前プロジェクトからの継続で、2015 年度までに電中研において 20,000 時間運転した 2008 年度機、および本プロジェクトで 10,000 時間運転した 2012 年度機についても解体分析を実施し、いずれも広範囲に電解質の正方晶化(テトラ化)が進行していることを確認している。本年度はこれら 2 機と本年度解体分析を実施した大阪ガス 10-33 機 (2010 年度機、40,000 時間運転) について、セル上部から下部にかけて流路に沿って連続的にジルコニアの正方晶化領域を決定、正方晶化がオーミック抵抗増加に占める割合を見積もった。図 3-5-1.5 に示されるように、2008 年度機に比較して、2012 年度機、OG 運転 2010 年度機では正方晶化の進行が抑制されていること、それによって IR 損の増大分も小さく抑えられていることを確認した。今後、精度向上に向け、電流密度分布や温度分布、正方晶化領域の設定や正方晶(テトラ)化率などを考慮することで精度が上がると想定している。

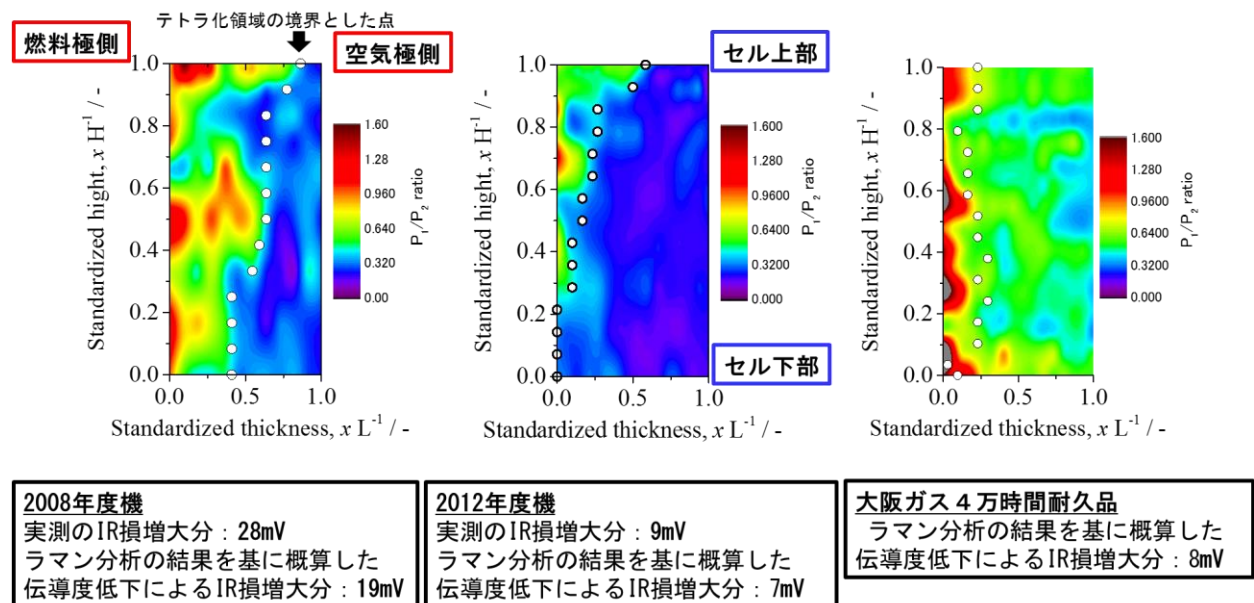


図 3-5-1.5 ラマン分光法による正方晶化領域の評価とオーム損の見積もり

iii) SIMS ラインスキャン分析による空気極不純物被毒の迅速評価手法の検討

空気極のSおよびCr被毒については、これまで、SIMSの深さ方向分析結果(デプスプロファイル)を用いて、長期運転後の不純物濃度の初期状態からの変化を評価してきた。これまで深さ方向分析を不純物分析に採択した主な理由は、樹脂埋めせずに試料を直接測定できるため、SIMS分析サンプル調整時の不純物のコンタミを避けることができるという利点によるものであった。他方、表面から深さ方向に試料を削りながら分析するため、測定に時間がかかり、例えば三相界面(TPB)近傍を分析する場合に1分析箇所につき1日から数日必要であることや位置決めなどの分析箇所の調整が難しいこと、また集電層表面から空気極三相界面までなど広い範囲を一度に測定することが困難であることなどの欠点があった。そこで、SEM/EDS-WDS分

析やラマン分光分析で用いている樹脂埋めし断面研磨した試料に対し、その表面のライン分析をSIMSにより行うことで、位置決めも容易で、より広範囲のSおよびCr分布を迅速に行う手法の適用可能性について改めて検討を行った。

断面分析試料を評価するにあたり、空気流れの影響などを考慮して、集電金属をセルから剥離することなく、集電金属を接着した状態で2セルをまとめて解体、断面を作成し分析することも試みた。これにより、集電金属近傍と離れた部位でのCr被毒およびS被毒兆候を見積もることができる。

はじめに、樹脂による不純物のコンタミの影響であるが、Cr分析においてはほとんど問題なかったがその一方で、Sについては酸素イオンを使って規格化する部分に問題があること、前処理（樹脂埋め研磨）の影響を受ける可能性があることなど明らかになった。

SIMS分析においてラインスキャンを用いることで、SEM/EDS-WDS分析結果との比較をすることが容易となり、かつ分析箇所を増やすことも比較的容易になる。4万時間超の4万時間超の長期運転を行ったセルスタック1機（10-33機（2010年度機）、約4.1万時間運転）について改めて分析を行った結果、Cr被毒についてはセルの中央部から上部にかけて、集電金属の直下で濃集傾向にあることが改めて明らかとなった。これは、2010年度機における主なCr被毒源が集電金属であることを示している。集電金属がない部分では、特に表面近傍でCrの濃集が目立っていた。Sについては空気導入部に近いセル下部や、空気極の縁の部位で濃集傾向が認められる。また、集電層金属直下ではSの濃集傾向はほとんど認められなかった。これらの結果は空気流れの大小が不純物元素の供給に強く影響していることを示す結果であった。

iv) 本サブテーマのまとめ

4万時間超耐久を含む実証機の解体分析、および電中研での性能試験とその後の解体分析により、空気極のSおよびCr被毒、電解質の相変態など、これまでに明らかとなっている劣化挙動以外の新たな劣化要因が生じていないことを確認した。

② 高温円筒横縞形の耐久性評価（電力中央研究所、共同実施：三菱日立パワーシステムズ株式会社）

本テーマの目標と成果、達成度を一覧表で示し、その後で内容を記述する。

表 3-5-2.1 高温円筒横縞形の耐久性評価における成果と達成度(2013-2017 年度)

項目名称	最終目標 (2017 年度末)	成果	達成度	今後の課題
高温筒状横縞形の耐久性評価	長期運転セルスタックについて、新たな劣化要因がある場合には、劣化機構解明を従来の知見を基にして行い、改善策を検討する。新たな劣化要因がない場合には、更に運転時間を延長して、その挙動が寿命予測と整合するかを検証することで9万時間（電圧低下率0.1% / 1000時間）の見通しを行うための耐久性迅速評価技術が適切であるかを判断する。	Cr 供給源無しの3万時間の長期耐久試験より、電圧低下率0.1%/1000hr(3万時間)を確認。また、Cr 供給源有2万時間程度の運転より、実機の7.7倍相当のCr 蒸気量にも関わらず、ごくわずかの劣化でCr 堆積が認められなかったこと、Mn の電解質への拡散等の新たな劣化要因が確認されなかったことから、9万時間（電圧低下率0.1%/1000時間）の耐久性見通しを得ることができた。	○	更なる耐久時間への延長

本研究項目は、三菱日立パワーシステムズとの共同実施で行った。2014 年度以降は、Cr 供給源の有無による劣化要因対策の効果を検証するため、電力中央研究所サイトにおいて、2万時間以上の高温円筒横縞形スタックの長期耐久性試験を継続して実施した。長期耐久性試験では、電力中央研究所に設置した耐久性評価試験装置を使用して(図 3-5-2.1)、以下に示す a、b の耐久試験を実施した。また、性能表示式による抵抗分離評価を行うことで Cr 供給源の有無による劣化要因対策の効果を逐次検証するとともに、累計 2~3 万時間程度の長期運転実績データを取得し、これらの性能解析結果から劣化要因との比較検討を実施した。

図 3-5-2.1 セルスタックの設置概要

表 3-5-2.2 セルスタックの仕様

	Type I	Type II	Type III	Type IV	Type V	Type VI
燃料極導電層	NiO-YSZ-Al ₂ O ₃			NiO-YSZ	NiO-YSZ-Al ₂ O ₃	
空気極中間層	(La,SR)MnO ₃ -YSZ			(Ce,Sm)O ₂		
X/L	2	1				
直列セル数	34	48			85	
備考	前信頼性	構造変更	空気極中間層の影響評価	燃料極中間層の影響評価	電解質ラップ部IC密度向上 電解質の薄膜化	250kWSOFC MGTC用

a. クロム供給源がある条件下での高温円筒横縞形セルスタック長期耐久試験 (Type-VI、11号機)

セルスタック 11 号機 (Type-VI、表 3-5-2.1) は、前プロジェクトの 8 号機と同様に、空気導入配管にステンレス管を用いた Cr 供給源がある条件下において、2.3 万時間までの長期耐久性試験を実施した。発電初期から 2.3 万時間までの電圧変化率は $-0.20\%/1,000\text{hr}$ であり、Cr 供給源がある場合には、電圧低下が加速される傾向あることがわかった (図 3-5-2.2、図 3-5-2.3)。また、電圧低下率に占める IR 損と空気極過電圧の相当分は、それぞれ性能解析の結果から $0.07\%/1,000\text{hr}$ と $0.13\%/1,000\text{hr}$ であり、Cr 供給源がある場合には、IR 損に比べて空気極過電圧の増加による寄与が大きいことが明らかになった。

b. クロム供給源がない条件下での高温円筒横縞形セルスタック長期耐久試験 (Type-VI、10 号機)

セルスタック 10 号機 (Type-VI、図 3-5-2.2) は、空気導入配管に磁性 (セラミックス) 管を用いた実機模擬条件 (以後 Cr 供給源がない条件下) において、3 万時間までの長期耐久性試験を実施した。発電初期から 3 万時間までの電圧変化率は、セルスタック中心素子で $-0.10\%/1,000\text{hr}$ であった (図 3-5-2.3)。また、電圧低下率に占める IR 損と空気極過電圧の相当分は、それぞれ $0.04\%/1,000\text{hr}$ と $0.06\%/1,000\text{hr}$ であることが明らかになった。

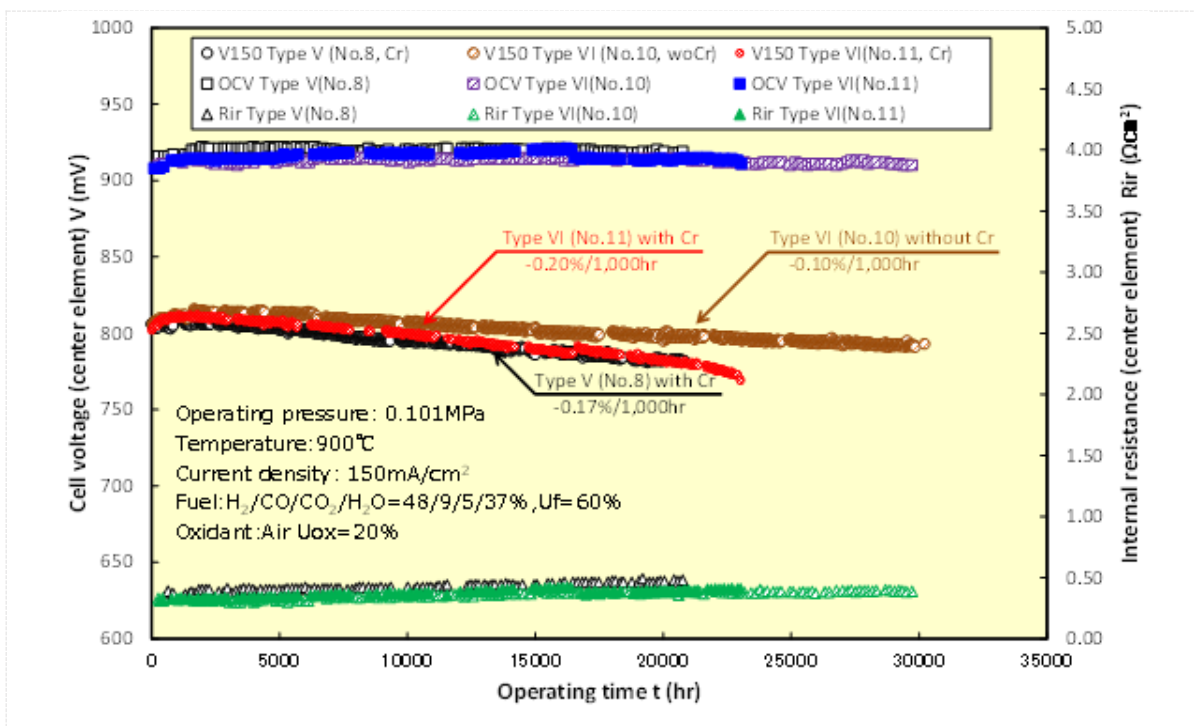


図 3-5-2.2 高温円筒横縞形セルスタックの長期耐久試験結果

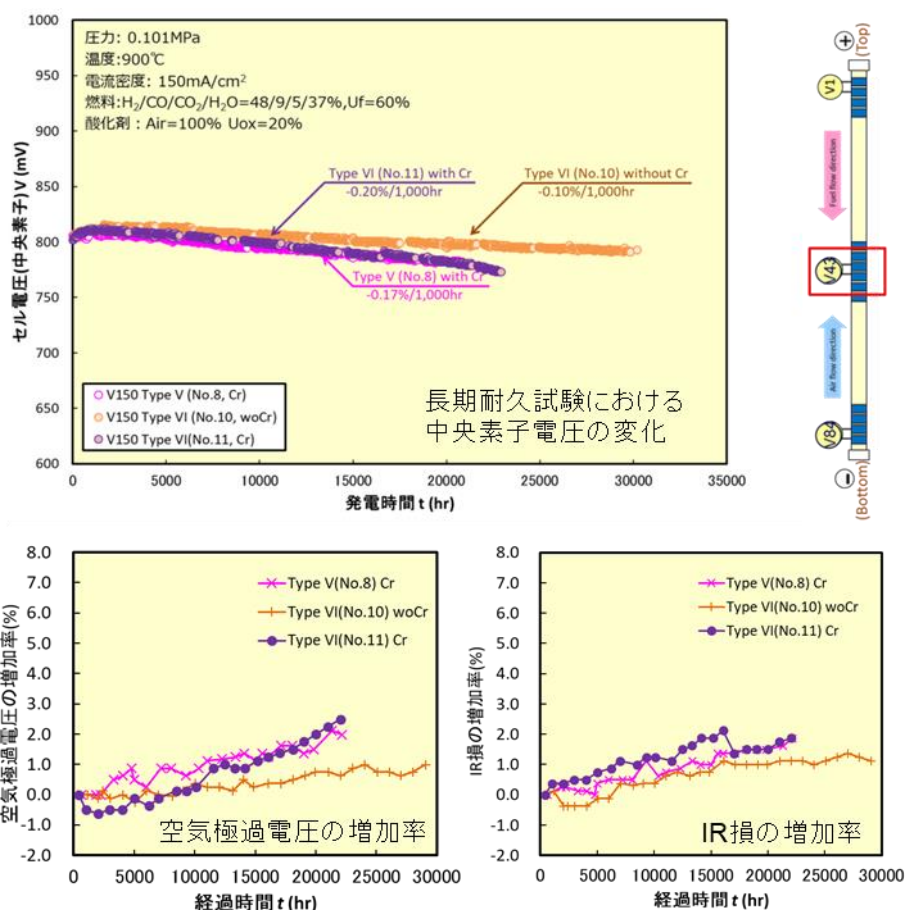


図 3-5-2.3 セルスタック (Type-VI) での電圧変化、過電圧、IR 増大傾向

c. 「長期耐久性試験後の分析評価」(三菱日立パワーシステムズとの共同実施)

2014 年度以降は、累計 2 万時間程度の長期耐久性試験を終了したセルスタック (Type V、8 号機、Cr 供給源有および Type VI、11 号機、Cr 供給源有) (図 3-5-2.2、図 3-5-2.4 参照) をベースに、基盤側と連携して解体分析を実施した。解体分析部位は前信頼性 PJ での結果と比較検討のため空気極中間層/空気極界面近傍とし、産業技術総合研究所に熱力学的解析を、東京大学・京都大学に三相界面の解析、九州大学にて化学的解析を実施頂き、9 万時間耐久の見通しを得るための検討を行った。

i) 熱力学的解析

Type V、8 号機、Cr 供給源有の 2.2 万時間運転後セルの空気極中間層/空気極の界面近辺の不純物分析を実施した(図 3-5-2.5)。上/中/下部それぞれの部位にて、初期に対して 100 倍程度の Cr 濃度の上昇が確認された。一方、2.2 万時間の長期運転にも関わらず空気極中間層内での Cr 堆積は確認されておらず(図 3-5-2.5、図 3-5-2.6)、性能に対しての影響は小さいとの見解を得た。また、空気極導電層のバルク部分にて Cr 濃度が高い箇所が確認された。当部分にて Cr が捕集されることで、空気極三相界面への Cr の堆積が抑制されたものと示唆された。

電力中央研究所での Cr 供給源有の試験条件を模擬した試験環境下で Cr 蒸気量を測定し、Cr 被毒に関する実機換算時間を推定した(図 3-5-2.7)。温度の逆数と Cr 蒸気圧との関係から、本試験での Cr 蒸気量は実機条件に対して約 7.7 倍であることを確認し、本試験は 17 万時間相当の加速条件であることが明らかとなった。この結果から Cr 被毒への影響はごく僅かであり、円筒横縞形セルスタックは Cr 耐性に優れていると推定された。

Cr 耐性を確認すべく、Type-VI、11 号機、Cr 供給源有についても同様の分析を行った(図 3-5-2.8、図 3-5-2.9)。初期に対して、Cr 濃度が 100~1000 倍程度、Cr の堆積している様子は観察されず、8 号機の分析結果を再現することができた。本結果より、円筒横縞形セルスタックは Cr 耐性に優れているが明らかになった。

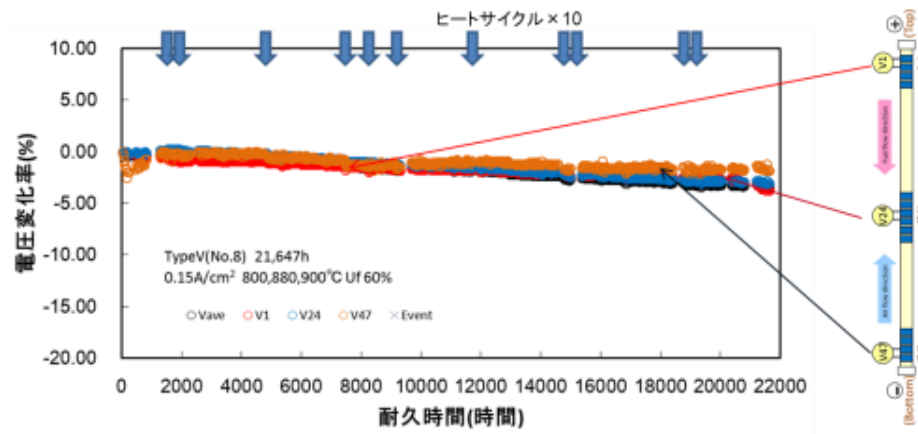


図 3-5-2.4 円筒横縞形セルの長期耐久試験 (Type V、8 号機、Cr 供給源有)

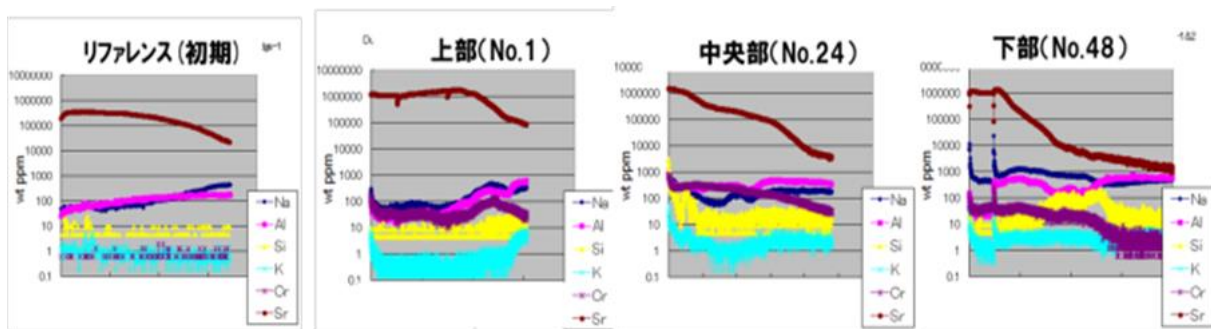


図 3-5-2.5 セルスタック (Type-V) の SIMS 分析：深さ方向分析

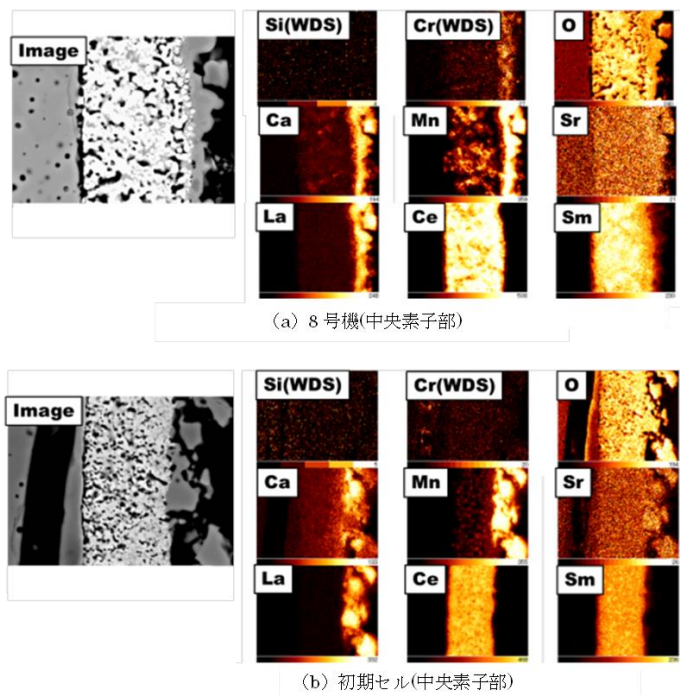
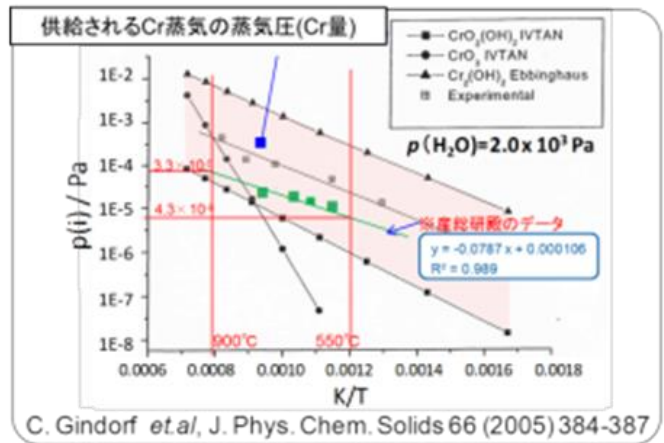


図 3-5-2.6 セルスタック (Type-V) の空気極/電解質界面での組成分布 (SEM-WDS)



	550°C (実機メタル部分温度)	900°C (グラフ読取値)	$p(900^\circ\text{C})/p(550^\circ\text{C})$
$p(\text{CrO}_2(\text{OH})_2)$	$4.3 \times 10^{-6} \text{ Pa}$	$3.3 \times 10^{-5} \text{ Pa}$	7.7倍

図 3-5-2.7 試験温度と Cr 蒸発量から推算される実機換算時間

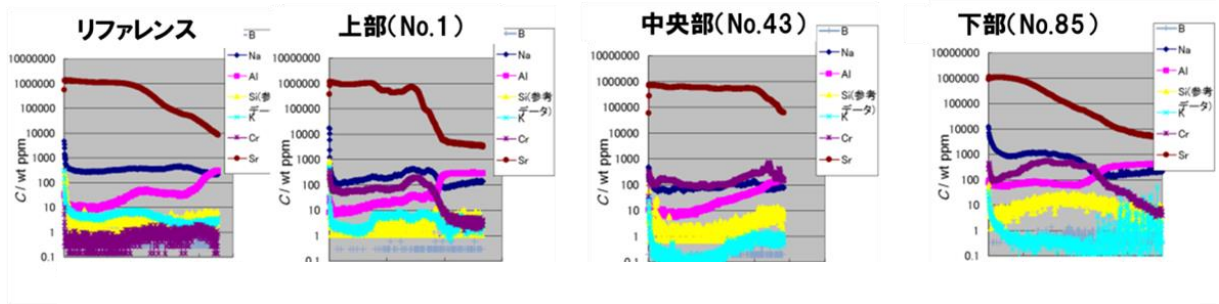


図3-5-2.8 円筒横縞形セル空気極中間層/空気極の不純物分析結果 (Type-VI)

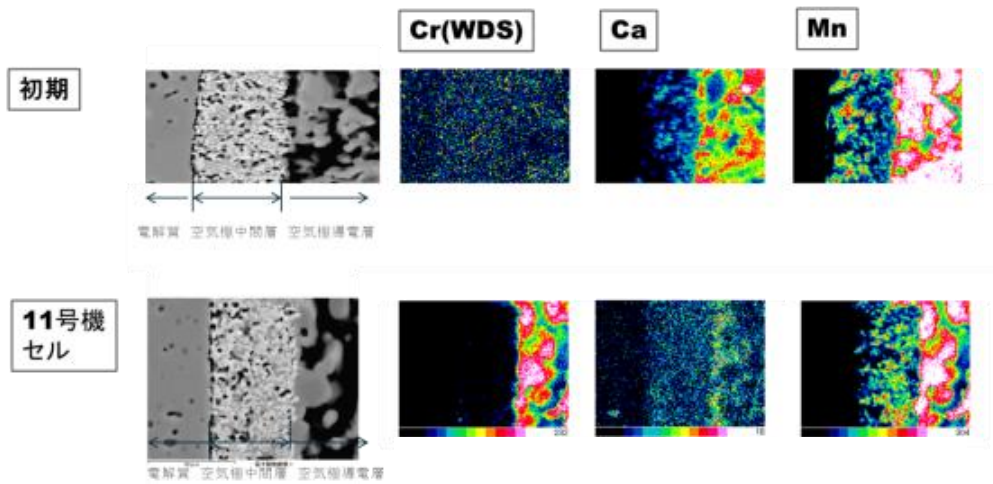


図3-5-2.9 円筒横縞形セル空気極中間層/空気極のSEM-EDS分析結果 (Type-VI)

ii) 三相界面の解析

2.2万時間運転後の空気極中間層/空気極三相界面近傍の解析を行った(図3-5-2.10)。空気極の粒成長とSDC相内にMn含有相が多く出現し、そのほとんどが連結していることが確認された。また、空気極中間層/電解質界面近傍3D画像の結果、初期セルに比べ、2.2万時間運転セルでは三相界面(反応場)が中間層に移動していることが確認され、Mn拡散による反応場の2極化が進んでいることが示唆された(図3-5-2.11)。

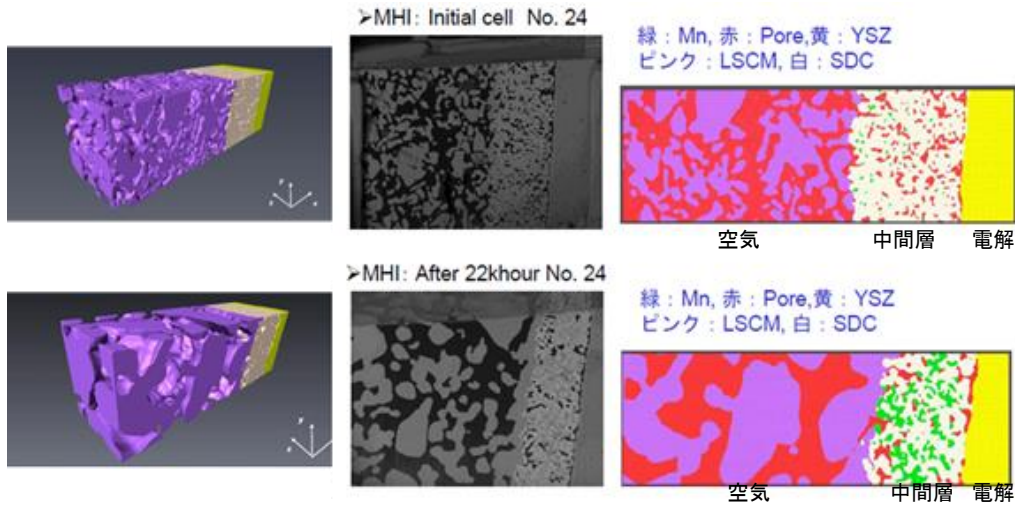


図3-5-2.10 円筒横縞形セル空気極中間層/空気極三相界面近傍微構造

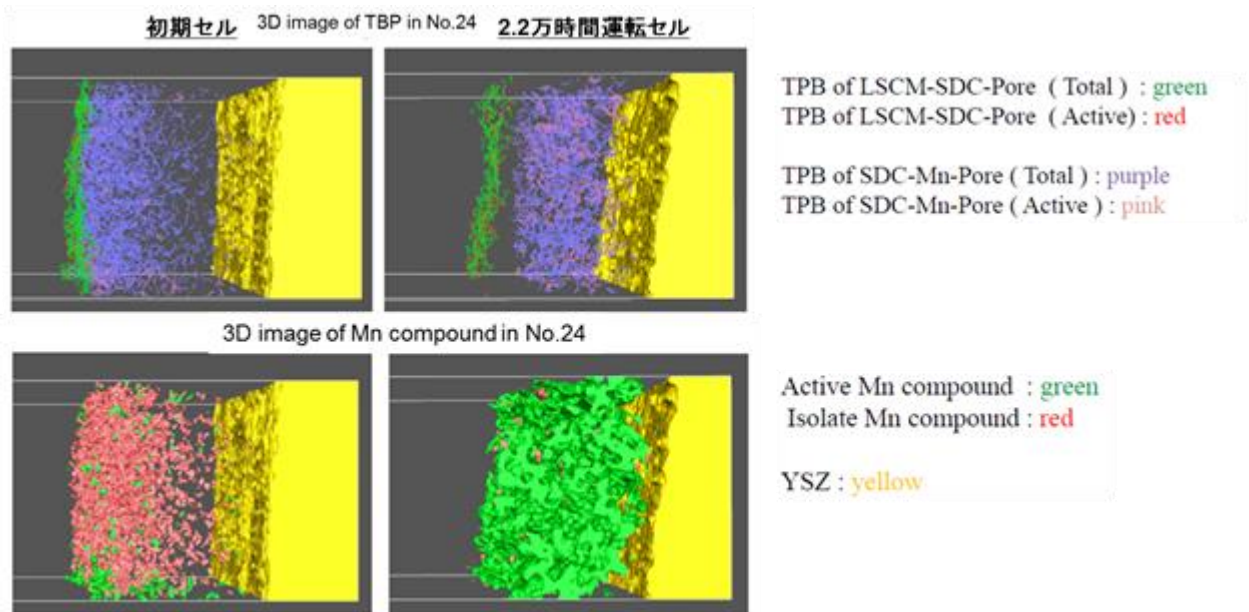


図3-5-2.11 円筒横縞形セル空気極中間層/空気極三相界面3D画像

iii) 化学的解析

2.2万時間運転後に形成された空気極中間層/空気極界面の緻密層の組成について、STEM-EDXにて微構造および物質移動を調査した(図3-5-2.12)。分析の結果、LSCM/SDC界面の一部には前PJと同様にLa、Sr、Ca、Mn、Smが確認された。一方、電解質(YSZ)への拡散はほとんど認められなかった。MnがYSZに拡散すると新たな劣化をもたらす可能性があり、PJの後半ではYSZとSDC界面近傍の調査に注力することとなった。

空気極中間層/電解質の詳細分析をSTEMにて実施し、YSZへのMn拡散有無を調査した(図3-5-2.12、図3-5-2.13)。2.2万時間運転後においていずれの部位からもYSZへのMn拡散は認められ

なかった。これは SDC/YSZ 界面に生成する固溶相が、YSZ への Mn 拡散防止相として機能しているためと推定された。以上の結果より、9 万時間運転において従来より確認されていた空気極中間層/空気極界面の緻密層生成以外の劣化要因は発生しないものと考えられた。

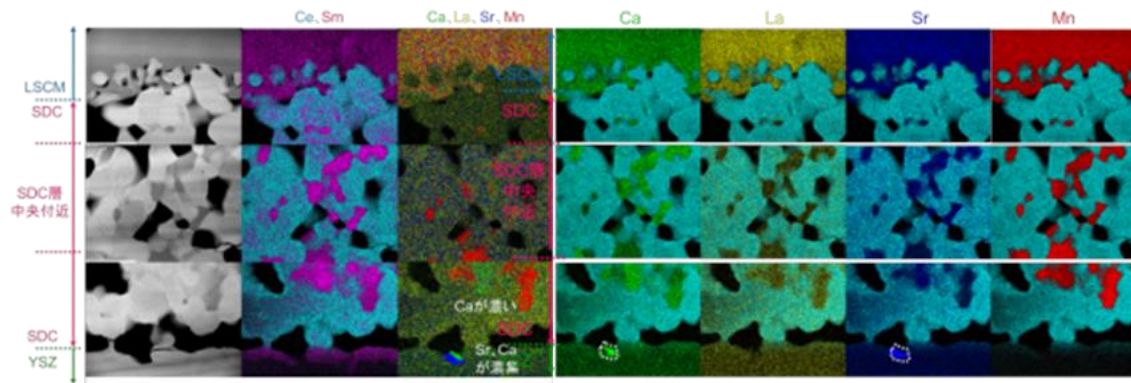
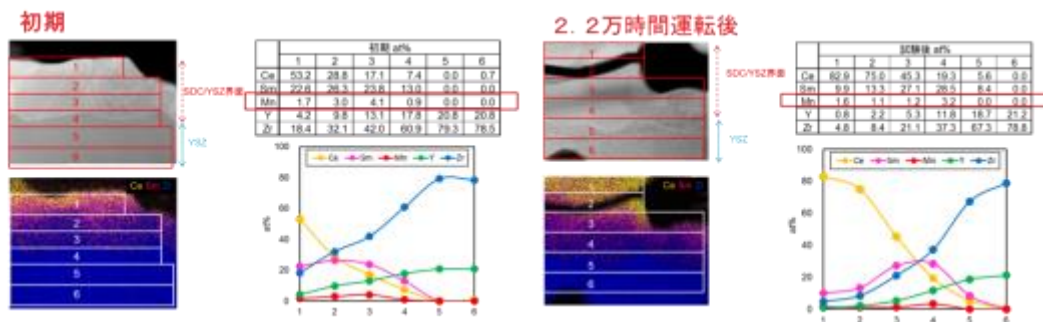
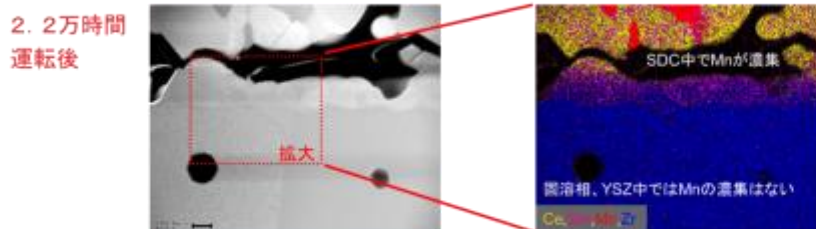


図 3-5-2.12 中間層/空気極近傍の STEM-EDX 観察結果(中央素子部)



初期、2. 2万時間運転後のいずれにおいてもYSZへのMn拡散は確認されない。



YSZ中にMn濃集は認められず、固溶相が、Mn拡散防止相として機能

図 3-5-2.13 空気極中間層/電解質近傍の STEM-EDX 観察結果(中央素子部)

第2グループの耐久性評価

第2グループでは、劣化要因が特定されてその改良が施された最新セルスタックに対し、温度、電流密度などの加速要因を変化させて劣化挙動を把握するとともに、劣化機構解明を多方面からおこない、その改良作を導出し、9万時間耐久性が見通せる9万時間耐久が見通せる耐久性迅速評価技術となっているかを判断する。

③ 低温小型円筒形の耐久性評価（TOTO 株式会社）

本テーマの目標と成果、達成度を一覧表で示し、その後で内容を記述する。

表 3-5-3.1 低温小型円筒形耐久性評価における成果と達成度(2013-2017 年度)

項目名称	最終目標 (2017 年度末)	成果	達成度	今後の課題
低温小型円筒形の耐久性評価	開発された耐久性迅速評価技術が適切であった場合には、1-2万時間の運転実証により9万時間耐久性の見通しが得られるか検証する。見通しが得られない場合には、改善点を明確にするとともに、評価技術の改良に資する。	クロム被毒や起動停止サイクルを模擬した迅速評価手法を確立し、スタックの改良を行った。その成果として、2016年度改仕様（初期案）では、2013年度仕様の劣化主要因であった空気極過電圧増大を抑制することで、9万時間の連続耐久を見通した。また2016年度改仕様（最終案）の社内評価を行い、初期案よりも更に劣化が抑制される優れたスタックであることを実証した。	○	低コストセルの耐久性向上とその迅速評価

a. セル構成と研究開発の経緯

TOTOでは、ランタンガレート系固体電解質を採用した低温小型円筒形セルスタックの開発を行っている。燃料極支持型である小型円筒形セルの材料構成について図3-5-3.1に示す。一般に広く用いられるジルコニア系と比較し、低温でより高い導電性を示すランタンガレート系材料を固体電解質に用いているため、600℃～700℃といった低温運転でも高い発電性能が得られる特長がある。

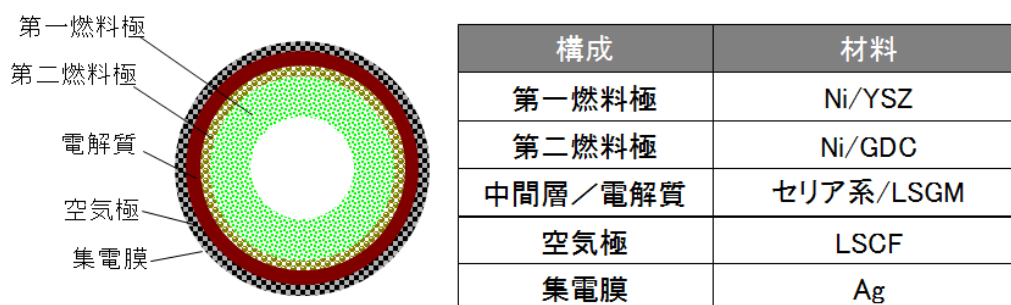


図 3-5-3.1 小型円筒形セル構成

前プロジェクト「固体酸化物形燃料電池システム要素開発/耐久性・信頼性向上に関する基礎研究(2008 年度～2012 年度)」では、各関係機関との連携の結果、セルスタックの主たる劣化要因がクロム被毒による空気極の過電圧増大であることを明らかにし、対策・改良により当時目標とした0.25%/khの劣化率を達成することが出来た。本プロジェクト「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発/固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究」では、各機関との更なる連携を通じて迅速耐久評価手法を獲得し、1-2万時間の耐久評価結果から9万時間の連続耐久見

通しを得る。

b. 迅速耐久評価手法の確立状況

上述したとおり、前プロジェクトにてクロム被毒対策により一定の改善効果を確認したが、目標となる9万時間の連続耐久見通しを得るためには、更なるクロム被毒の抑制が必要と判断した。そこで、九州大学／東京ガス株式会社と連携し、クロム被毒を短期間で再現し劣化影響度・メカニズムを把握するための加速評価手法を検討した。

図3-5-3.2に、加速評価装置系の概要を示す。通常時は石英管中で単セル連続耐久試験を行うところ、SUS管を採用しクロム蒸気を過剰供給することで、クロム被毒を加速させた。連続発電試験の結果を図3-5-3.3に示す。2,738hまで通常条件で運転を実施した後、クロム加速条件に切り替え、9万時間を見込んだ耐久試験を5,150hまで実施した。

電力中央研究所による抵抗分離の結果、電圧低下のほとんどが空気極過電圧の増大によるものと解析された。また、九州大学でのSTEM（走査透過型電子顕微鏡）観察から、過去にクロム被毒を経験した実機同様の空気極微構造変化が起こっていることを確かめた。また、図3-5-3.4に示す通り、産業技術総合研究所におけるSIMS（二次イオン質量）分析では、実機と同様に電解質／空気極界面付近にてクロム濃集傾向が見られた。これらの結果を総合し、本加速評価手法の妥当性を確認した。

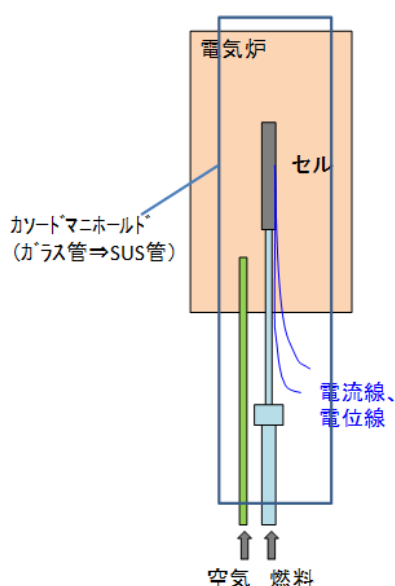


図 3-5-3.2 加速評価装置系

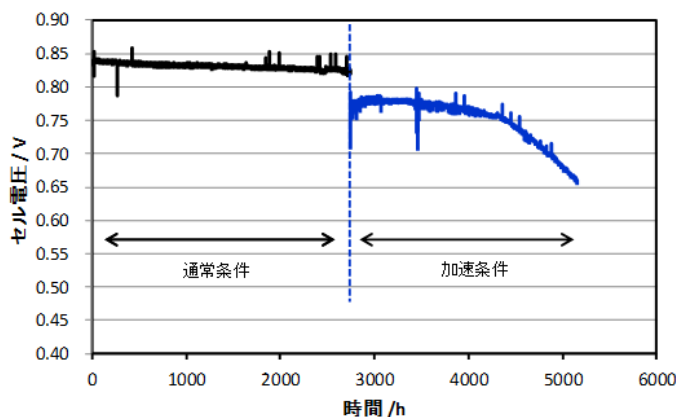


図 3-5-3.3 耐久試験時の単セル電圧推移

・分析場所:セル下部(空気上流部)

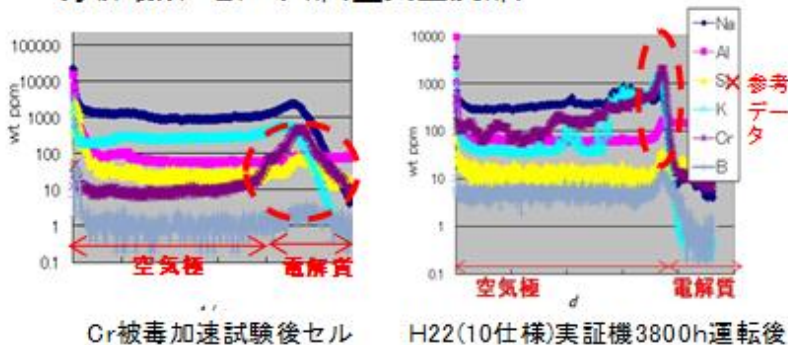


図 3-5-3.4 SIMS による電解質／空気極界面付近の不純物濃度測定結果

更に、東京ガス株式会社と連携し、本強制劣化試験適用後の熱サイクル特性を評価した。本試験

の目的は、9万時間の劣化後を模擬したセルにおいて、起動停止サイクルの影響を迅速評価することである。電力中央研究所の解析により、抵抗分離を実施した結果を図3-5-3.5に示す。

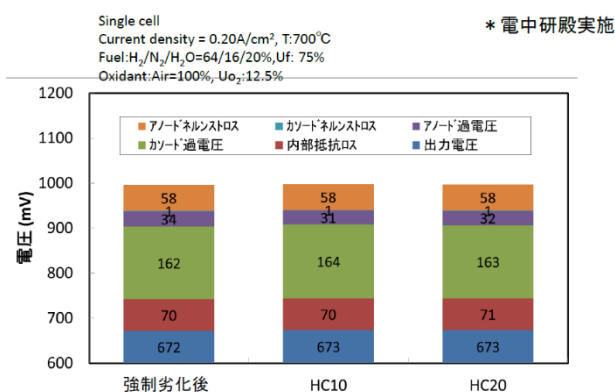


図3-5-3.5 熱サイクル試験におけるセルスタックの抵抗成分解析

熱サイクルを通じて性能内訳に変化が見られず、劣化後のヒートサイクルによる影響が極めて限定的であることを確認した。

c. セルスタックの連続耐久評価結果

i) 2013年度仕様セルスタック耐久試験

本プロジェクト当初より、電力中央研究所において、2013年度仕様セルスタックの耐久試験を実施してきたが、TOTOサイトよりも電圧低下率が大きい結果を得ており、その劣化主要因は空気極の過電圧増大であると解析された。また、耐久後セルの解体分析を実施したところ、産業技術総合研究所におけるSIMS（二次イオン質量分析計）分析では、TOTOサイトで耐久試験を行った場合と比べて多くの硫黄成分が空気極中で検出された。また、九州大学でのSTEM（走査透過型電子顕微鏡）による観察では、硫酸塩の生成を伴いつつ空気極組織が初期から変質していることを明らかにした。これらをまとめた結果を表3-5-3に示す。

表3-5-3.2 耐久サイト間の比較

	電中研サイト(No. 25TT-6)	TOTOサイト(No. 62-02)
電圧低下率	-0.53%/kh(0-10000h)	-0.13%/kh(0-10000h)
空気極中硫黄濃度(SIMS)	10 ³ ppm	10 ²⁵ ppm(初期品同等)
空気極組織変化(STEM)	有	無

そのため、電力中央研究所において、空気側に酸性ガスを除去する化学フィルターを導入し、2013年度仕様セルスタックの耐久再試験を行った。劣化主要因である空気極過電圧の増大率（初期のセル電圧に対する増加割合）を、図3-5-3.6に示す。化学フィルターの導入により、約2000h以降の過電圧増大が抑制されることを確認した。しかしながら、初期劣化が残存しており、これを2016年度改仕様セルスタックでの改善課題とした。なお、産業技術総合研究所におけるSIMS分析から、化学フィルターの導入により、耐久試験を通じて空気極中に硫黄成分が蓄積しないことを確認した。

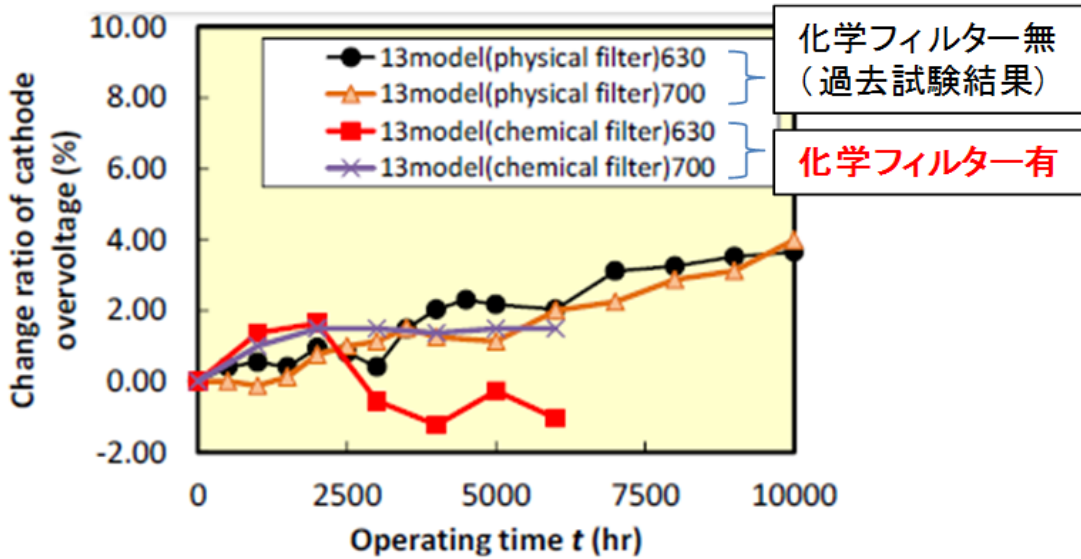


図 3-5-3.6 2013 年度仕様セルスタックにおける空気極過電圧の増大率

ii) 2016 年度改仕様のセルスタック耐久試験

電力中央研究所にて、2016 年度改仕様セルスタック（初期案）の耐久試験を、化学フィルター搭載／未搭載各 1 台ずつ行った。なお、本仕様は集電部が作りこみ途中であり、初期性能および IR 損部の耐久性に課題を残した仕様ではあるが、プロジェクト終了時点で 5000h を超える耐久評価時間を確保する目的で、初期案として耐久試験を行ったものである。セル電圧の経時変化を図 3-5-3.7 に、IR 損および空気極過電圧の増大率を図 3-5-3.8 に示す。低コスト化仕様、L.C. model と示されたものが 2016 年度改仕様セルスタック（初期案）に該当する。

2013 年度仕様と同様に、化学フィルターの導入により電圧低下率が小さくなることを確認した。集電部に関連する IR 損は、2013 年度仕様よりも加速的に増大する結果を得た。また、改善課題と設定した空気極過電圧の低下率が 0.11%/kh にまで抑えこまれた（化学フィルター搭載品）。IR 損の増大について、2013 年度仕様同等レベルへの改良が見込まれるため、2016 年度改仕様（初期案）では概ね 9 万時間連続耐久の見通しを得たと言える。

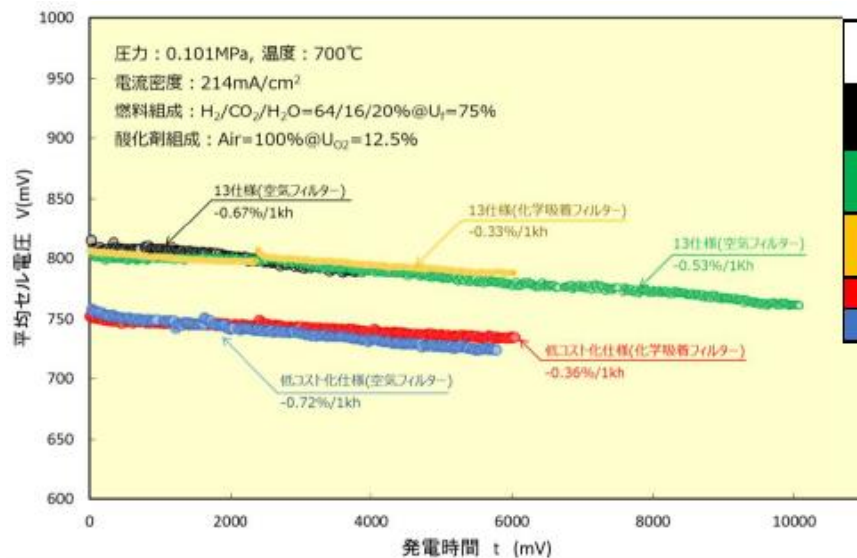


図 3-5-3.7 各仕様セルスタックにおける平均セル電圧の経時変化

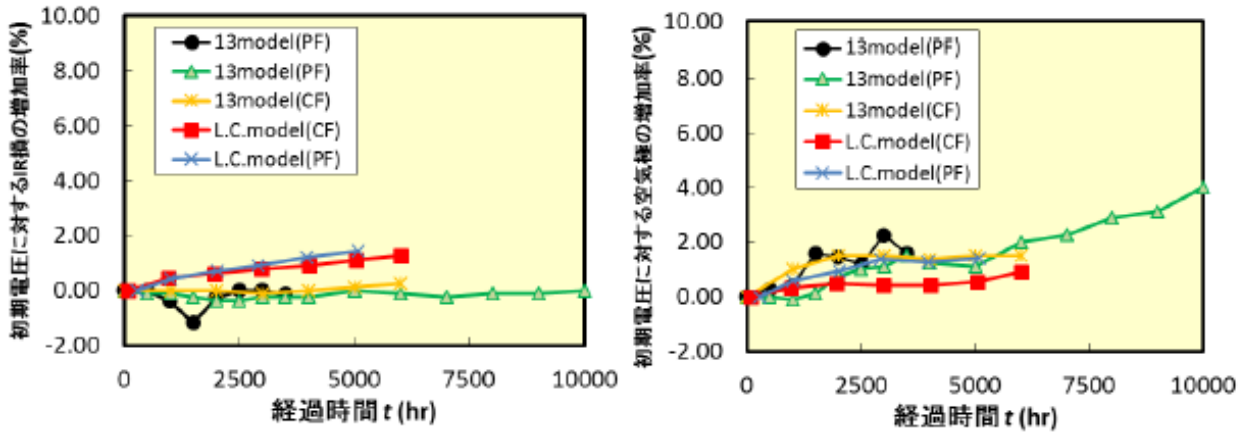


図 3-5-3.8 各仕様セルスタックにおける IR 損および空気極過電圧の増大率

また、TOTO サイトにて 2016 年度改仕様セルスタック（初期案・最終案各 1 台、いずれも化学フィルター搭載）の耐久試験を実施した結果を図 3-5-3.9 に示す。初期案について、電力中央研究所サイトとほぼ同等の電圧推移が得られた。最終案では、集電部の改良に伴い初期案と比較して更に電圧変化率が小さい結果を得た。

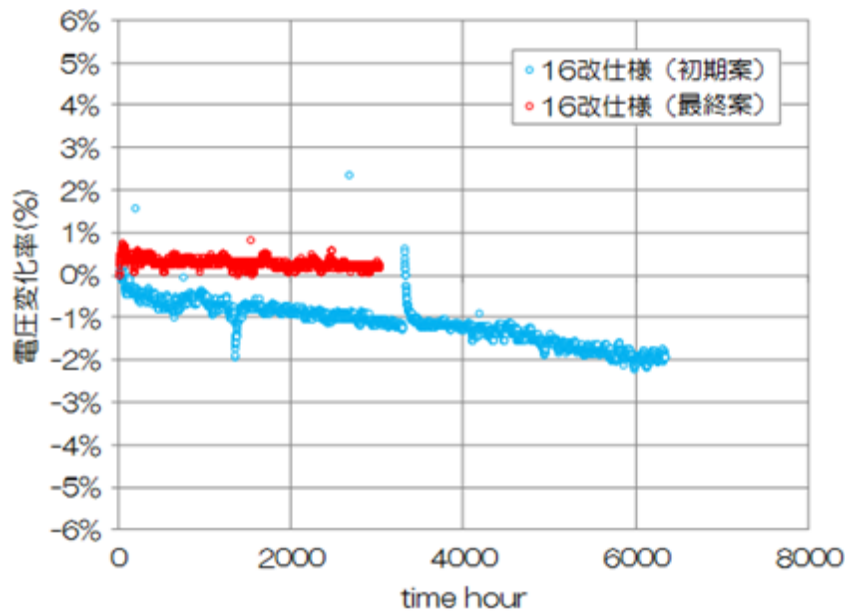


図 3-5-3.9 2016 年度仕様セルスタックの電圧変化率（社内評価結果）

（注）本報告書中に掲載された耐久試験条件は、下記の通りである。
 温度：700 ℃； 電流密度：0.214 A/cm²； 燃料：H₂/N₂/H₂O = 64.0/16.0/20.0%； Uf:75.0 %

d. 各機関との連携結果

本プロジェクトにおける関係機関との連携内容を表 3-5-3.3 に示す。基盤機関が有している分析・解析手法を最大限有効活用し、劣化要因の特定、劣化メカニズムの解明に成功した。各機関の解析法を融合させて耐久性迅速評価法を進展させ、9万時間の耐久性見通しを得ることができた。

表 3-5-3.3 関係機関との連携内容

連携機関	連携内容
産総研	・耐久前後セル分析 (SIMS/SEM-WDS/Raman)
九州大学	・耐久前後セル分析 (STEM-EDX)
九州大学／東京ガス	・Cr被毒加速試験系の構築 ・強制劣化前後の熱サイクル試験
京都大学	・耐久前後セル分析 (FIB-SEM)
東京大学	・空気極銀析出シミュレーション
東北大学	・各種材料物性の取得 ・セル外径測定試験
電中研	・スタック連続耐久および抵抗分離試験

e. まとめ

関係機関との連携の成果として、クロム被毒や起動停止サイクルを模擬した迅速評価手法を確立し、スタックの改良を行った。その成果として、2016年度改仕様（初期案）では、2013年度仕様の劣化主要因であった空気極過電圧増大を抑制することで、9万時間の連続耐久を見通した。また2016年度改仕様（最終案）の社内評価を行い、初期案よりも更に劣化が抑制される優れたスタックであることを実証した。

第3グループの耐久性評価

第3グループは、本プロジェクト開始から参画したセルスタックである。前プロジェクトで共有課題的に蓄積されている知見などを参考にして、各セルスタックの劣化要因分析を短時間で行うこと、特に初期劣化挙動の解析・分析を行うことで、主要な劣化の改善策の指針を得る。さらに、5000時間程度スタック耐久試験によって、詳細な劣化挙動解析を行い、劣化機構の解明を行い、改善策を得る。

④ 中温平板形の耐久性評価(日本特殊陶業株式会社)

本テーマの目標と成果、達成度を一覧表で示し、その後で内容を記述する。

表 3-5-4.1 中温平板形耐久性評価における成果と達成度(2013-2017年度)

項目名称	最終目標 (2017年度末)	成果	達成度	今後の課題
中温平板形の耐久性評価	初期劣化の改良、長期耐久の見通しを得たのち、劣化機構解明とその改善策を適用したスタックにおいて耐久性迅速評価を適用し、9万時間耐久の見通しを検討する。	劣化改善スタックでの9万時間耐久の見通し検討については、劣化改善スタックの劣化率改善効果を確認するとともに、劣化挙動の外挿や各劣化要因のシミュレーションと基礎調査により、9万時間の耐久目標に目処を得た。また、強制劣化手法による迅速評価にて、熱サイクルに対する健全性を確認した。更に、構造劣化解析に有用な応力解析手法に対し社内導入の検討を進め、金属部材のクリープ特性データと共に今後の社内での応力解析に役立てていく目途を得た。	○	低コストセルの耐久性向上とその迅速評価

a. 目的と実施計画

低コスト化に有利な平板形セルで、高電流密度作動(0.5A/cm²以上)の特徴を有し、「固体酸化物形燃料電池実証研究」に参画してきた中温平板形スタックの耐久性を見通すため、産官学連携のもとで劣化挙動の把握と劣化機構解明を迅速に行う。

図 3-5-4.1 に実施計画を示す。中間目標は、初期劣化挙動の解析・分析から、主要な劣化機構を想定し、改善部位を明確化すること、数1000時間の連続発電試験、及び熱サイクル試験を通じて詳細な劣化機構を解明すること。さらに、初期劣化を改良したスタックにて、長期耐久性の見通しを検討することである。最終目標は劣化機構解明とその改善策を適用したスタックにおいて耐久性迅速評価を適用し、9万時間耐久の見通しを検討することである。

開発項目	平成25年度				平成26年度				平成27年度				平成28年度				平成29年度			
	第1 四半 期	第2 四半 期	第3 四半 期	第4 四半 期	第1 四半 期	第2 四半 期	第3 四半 期	第4 四半 期	第1 四半 期	第2 四半 期	第3 四半 期	第4 四半 期	第1 四半 期	第2 四半 期	第3 四半 期	第4 四半 期	第1 四半 期	第2 四半 期	第3 四半 期	第4 四半 期
1.平板形スタックの性能解析と耐久性試験	試作/性能表示式導出				試作/耐久評価(5,000h)				試作/耐久評価(10,000h)				試作/耐久評価(長期耐久)							
2.平板形スタックのサイクル耐久性試験					サイクル試験/解析 (劣化前)				サイクル試験/解析 (劣化後)											
3.劣化機構解明	初期劣化品解析				サイクル試験品解析				サイクル/長期耐久品解析				サイクル/長期耐久品解析							
4.耐久性向上品の試作と評価					初期劣化対策品の 試作・評価				サイクル/長期耐久劣化 対策品の試作評価				長期劣化対策品の 試作・評価							
5.強制劣化手法の検討									強制劣化手法の検討				強制劣化手法の妥当性検証							
													シミュレーションによる 長期耐久性極めの検討							
													強制劣化対策品の 試作評価							
													強制劣化手法による 長期耐久性見極め							

図 3-5-4.1 「中温平板形の耐久性評価」の実実施計画

b. 各耐久試験による劣化要因の把握

i) 連続発電試験

初期劣化機構解明のために、東京ガスにて 2000 時間程度の連続発電試験を「2012 年仕様」6 段ショートスタックで実施した。試験条件はスタック温度 700℃、空気極側大気雰囲気、燃料極側 20% 加湿水素雰囲気、燃料利用率 80%、電流密度 0.52A/cm² である。図 3-5-4.2 に連続発電試験における電圧挙動と劣化解析結果を示す。耐久挙動から初期 1000 時間までに 1.83%/kh の初期劣化が観察された。また、2000 時間までの劣化率は 0.97%/kh であった。電流遮断法による劣化解析結果では、内部抵抗の上昇が支配的であった。

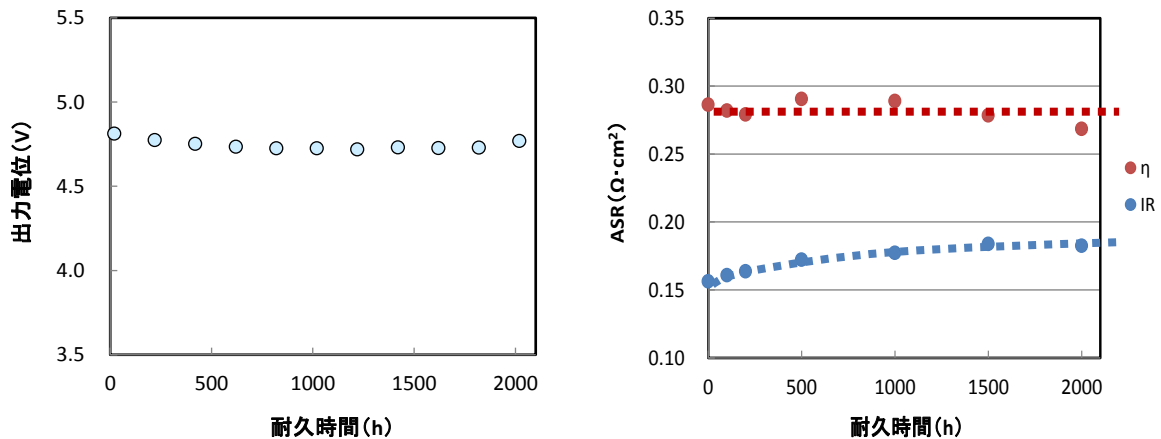


図 3-5-4.2 2000 時間連続発電試験の耐久挙動と劣化解析 (東京ガス実施)

また、数 1000 時間の劣化機構解明のために、電力中央研究所にて 10000 時間程度の連続発電試験を「2012 年仕様」6 段ショートスタックで実施した。図 3-5-4.3 (a)と(b)に耐久試験結果を示す。同スタックの耐久挙動は 1000 時間までの初期劣化が大きく、その後は劣化の飽和傾向を示したが、5000 時間以降で再び劣化が増加し、10000 時間までの劣化率は 0.6%/kh であった。性能表示式による抵抗分離評価の結果、1000 時間までは内部抵抗と空気極過電圧との抵抗変化が大きく、その後は内部抵抗と空気極過電圧が継続的に増加する傾向を示し、5000 時間以降で燃料極過電圧の増加傾向が見られた。

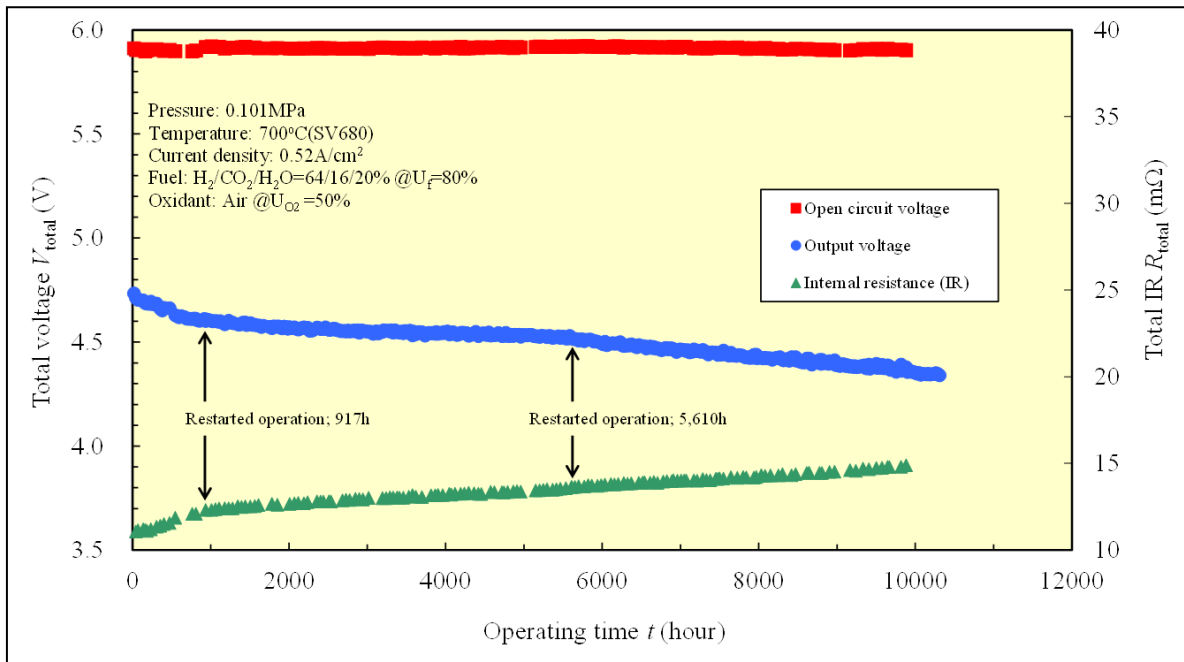


図 3-5-4.3(a) 「2012 年仕様」 6 段スタックの耐久挙動 (電力中央研究所実施)

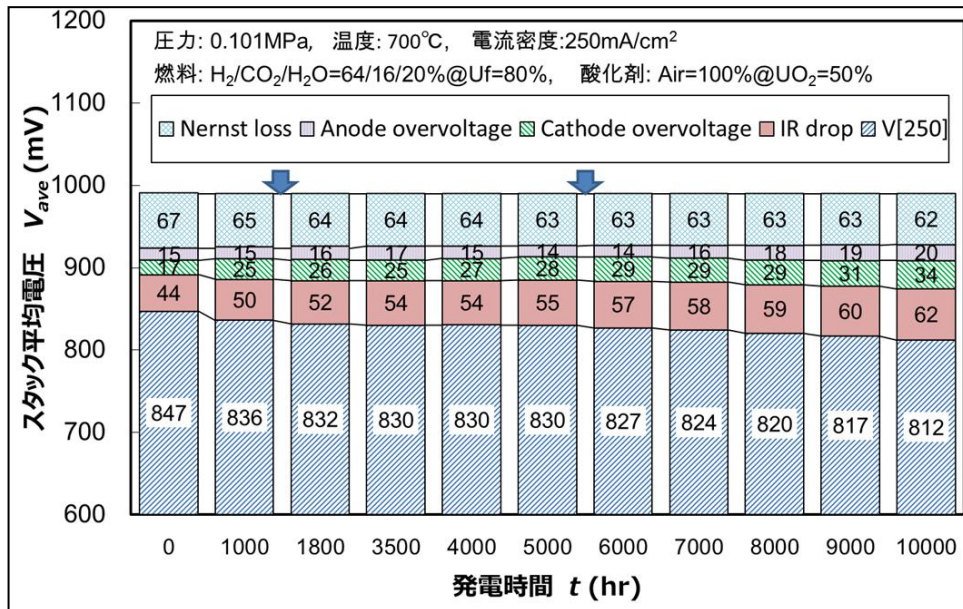


図 3-5-4.3 (b) 抵抗分離評価結果 (電力中央研究所実施)

ii) 熱サイクル試験

サイクル耐性試験は、東京ガスにて 6 段ショートスタックで実施した。耐久処理として 1000 時間の連続発電試験を行い、その後 700°C⇔100°Cを 1 回とする熱サイクル試験を 100 回まで実施した。図 3-5-4.4 に試験結果を示す。初期から 1000 時間までの劣化率は 1.41%/kh、1000 時間後から熱サイクル 100 回の劣化率は 0.0142%/回であった。電流遮断法による劣化解析結果では、初期 1000 時間連続発電後の熱サイクルでは分極抵抗が微増し、内部抵抗の上昇はほぼ見られなかった。

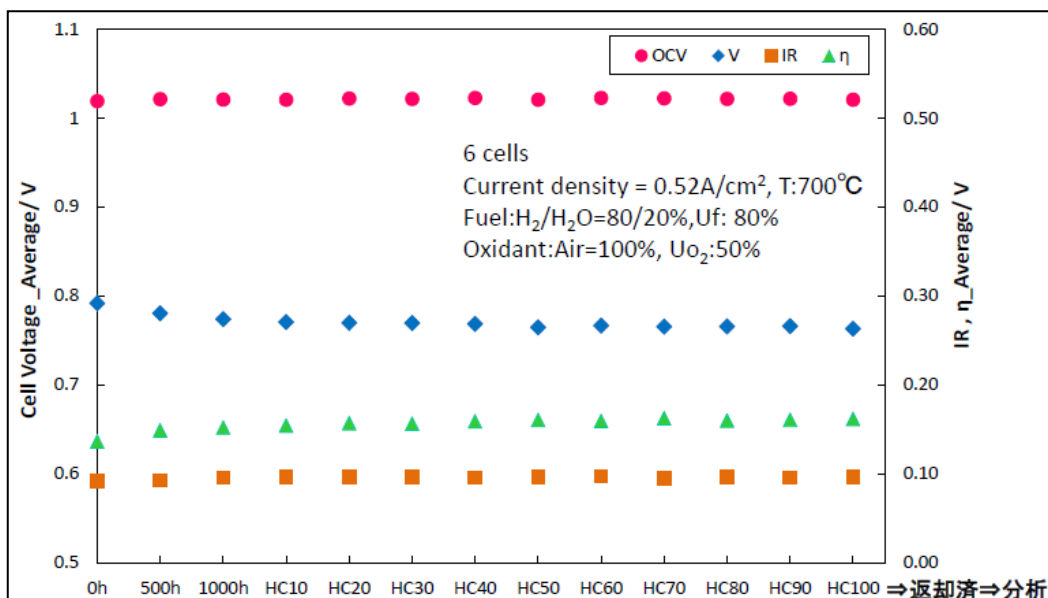


図 3-5-4.4 初期 1000h 連続発電と熱サイクルの耐久挙動 (東京ガス実施)

c. 劣化要因の明確化

i) 解体調査による劣化要因の把握

「2012 年仕様」スタックの初期および数 1000 時間の劣化要因を解体調査にて把握するため、電力中央研究所にて実施した温度測定用スタックの 700 時間耐久品、東京ガスにて実施した 2000 時間耐久品、及び電力中央研究所にて実施した 10000 時間耐久品の解体を行い、各研究機関に解析を依頼した。

産業技術総合研究所にては微量不純物蓄積量の確認、電解質相変態の確認を実施した。図 3-5-4.5 と図 3-5-4.6 に SIMS による微量不純物分析結果を示す。温度測定用スタック 700 時間耐久品の空気極の分析にて K の増加が見られた。また 10000 時間耐久品の燃料極の分析にて、燃料極三相界面近傍で P および Cr の濃集が見られた。電解質の相変態はいずれのスタックでも確認されなかった。

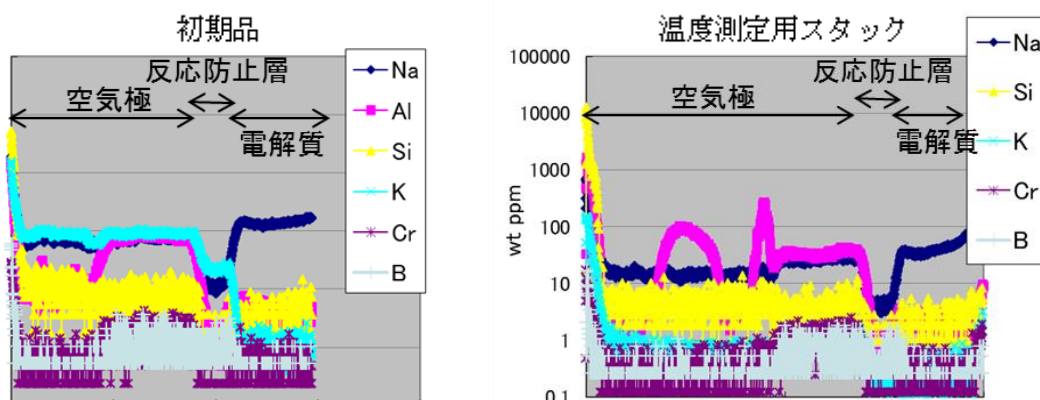


図 3-5-4.5 空気極側の微量不純物分析結果 (産業技術総合研究所実施)

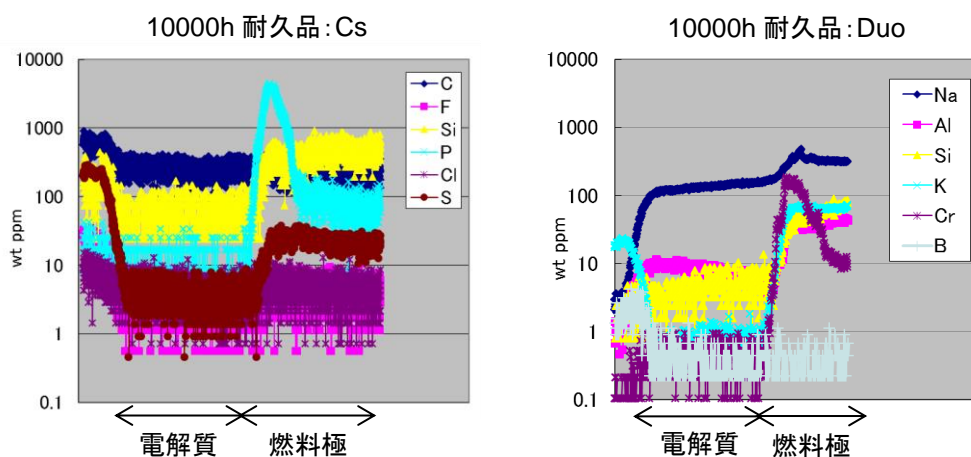


図 3-5-4.6 燃料極側の微量不純物分析結果（産業技術総合研究所実施）

京都大学にては電極微構造、特に三相界面近傍組織の変化についての知見を得るため、FIB-SEMを使用した3D像の構築と物性値解析を実施した。図 3-5-4.7 に燃料極の Ni 相分布と三相界面長さ分布を示す。燃料極において耐久品で電解質近傍の Ni が減少しており、三相界面長さ分布は耐久時間が長くなるに従い減少していた。また、空気極の電極微構造解析では、耐久時間経過とともに SZO 生成量の増加傾向、空気極と反応防止層との接触率の低下傾向、空気極粒径の増大傾向が見られた。

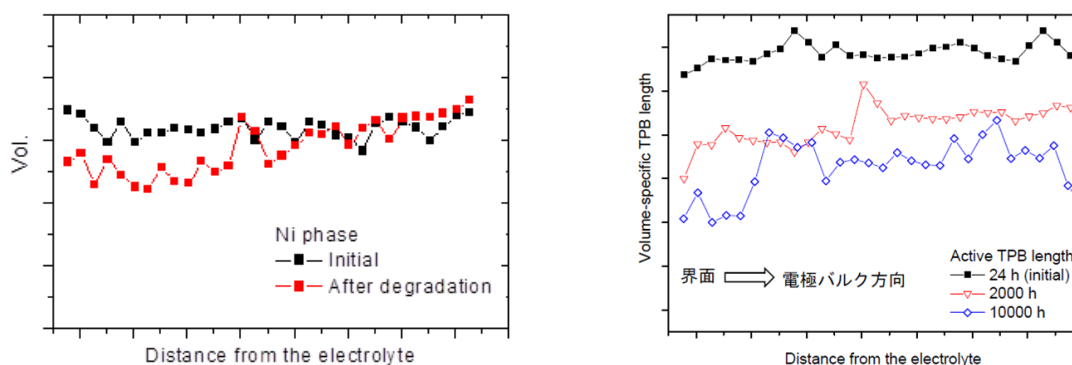


図 3-5-4.7 燃料極の Ni 相分布と活性な三相界面長さ分布（京都大学実施）

九州大学にては 2000 時間耐久品の Ni 微構造観察を実施した。STEM 分析にて被毒元素の偏析などは確認できなかった。

ii) シミュレーションによる劣化要因の確認

「2012 年仕様」の解体調査にて判明した電極微構造変化に対し、発電性能への影響を確認するため各研究機関にシミュレーション解析を依頼した。

京都大学にては燃料極性能シミュレーションを実施した。図 3-5-4.8 に燃料極の微構造解析結果を用いての燃料極性能シミュレーション結果を示す。耐久時間経過とともに、オーム損ならびに反応損失が増大していた。

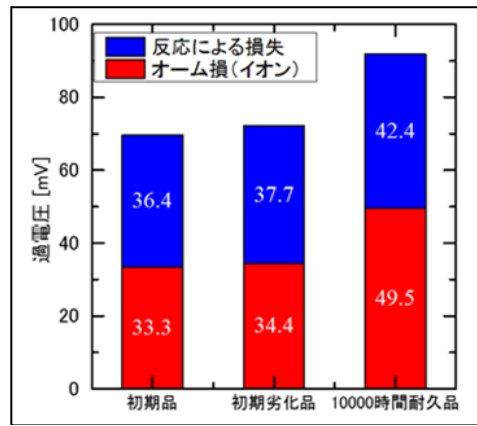


図 3-5-4.8 燃料極性能シミュレーション結果 (京都大学実施)

東京大学にては京都大学にて実施した空気極の微構造解析結果を用いての空気極性能シミュレーションを実施した。図 I-1-4.9 に空気極性能の解析結果を示す。耐久時間経過とともにイオン導電過電圧の上昇が見られた。また、イオン過電圧の上昇は空気極と反応防止層との界面近傍で起こっていることから、空気極性能低下の原因は、空気極と反応防止層との接触率の低下に起因している可能性が示唆された。

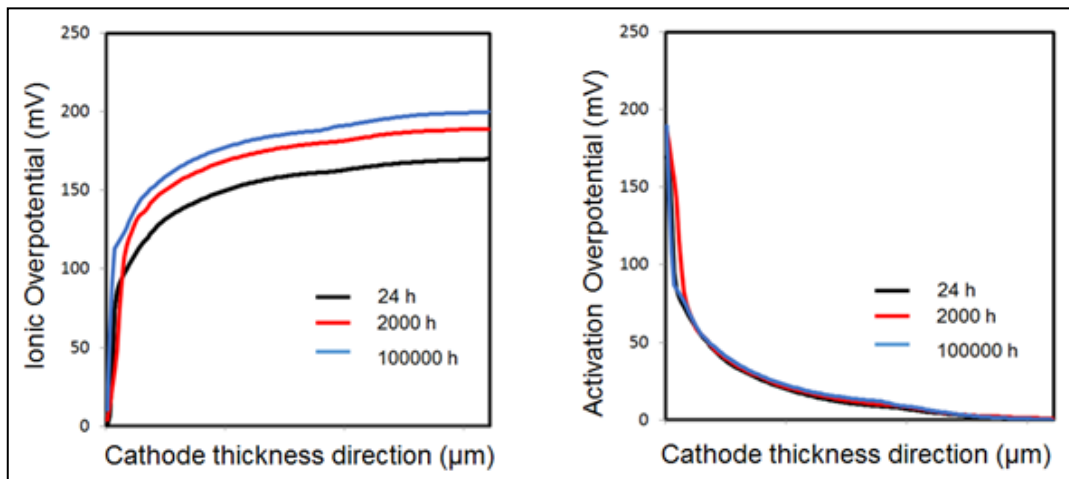


図 3-5-4.9 空気極性能のシミュレーション解析結果 (東京大学実施)

d. 劣化改良スタックの評価

i) 連続発電試験

本プロジェクトで抽出された劣化要因に対する改良を盛り込んだ「2014年改1仕様」および「2014年改2仕様」スタックを試作し連続発電試験を実施した。

図 3-5-4.10 および図 3-5-4.11 に、電力中央研究所および東京ガスにて実施した耐久試験結果を示す。電力中央研究所にての耐久試験は、空気ラインに化学吸着フィルターを導入して実施した。電力中央研究所にて実施した「2014年改1仕様」の耐久試験では、初期劣化に対する改良効果は認められなかったものの、3000時間以降で電圧低下の飽和傾向を確認した。本仕様は14,000時間で耐久試験を終了し、劣化率は0.33%/khであった。

「2014年改2仕様」は、電力中央研究所と東京ガスとで耐久試験を行い、双方で初期劣化の低減が認められた。電力中央研究所にては3000時間で耐久試験を終了し、劣化率は0.67%/khであった。東京ガスにては5000時間で耐久試験を終了し、劣化率は0.84%/khであった。

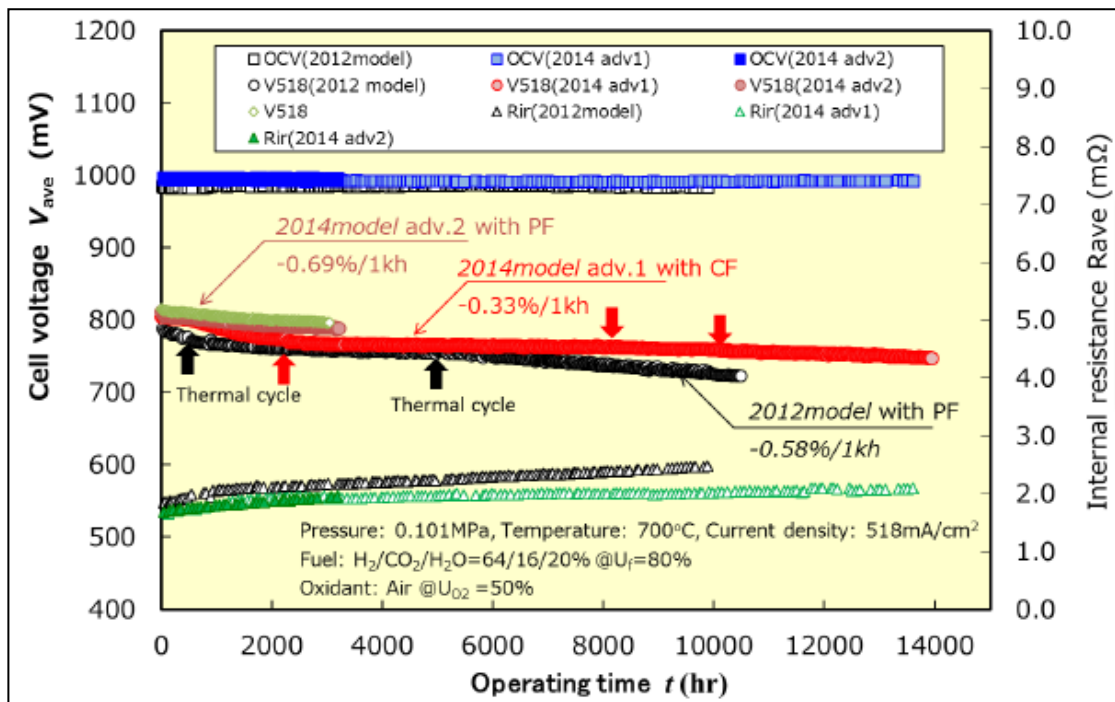


図 3-5-4.10 各スタックの耐久挙動（電力中央研究所実施）

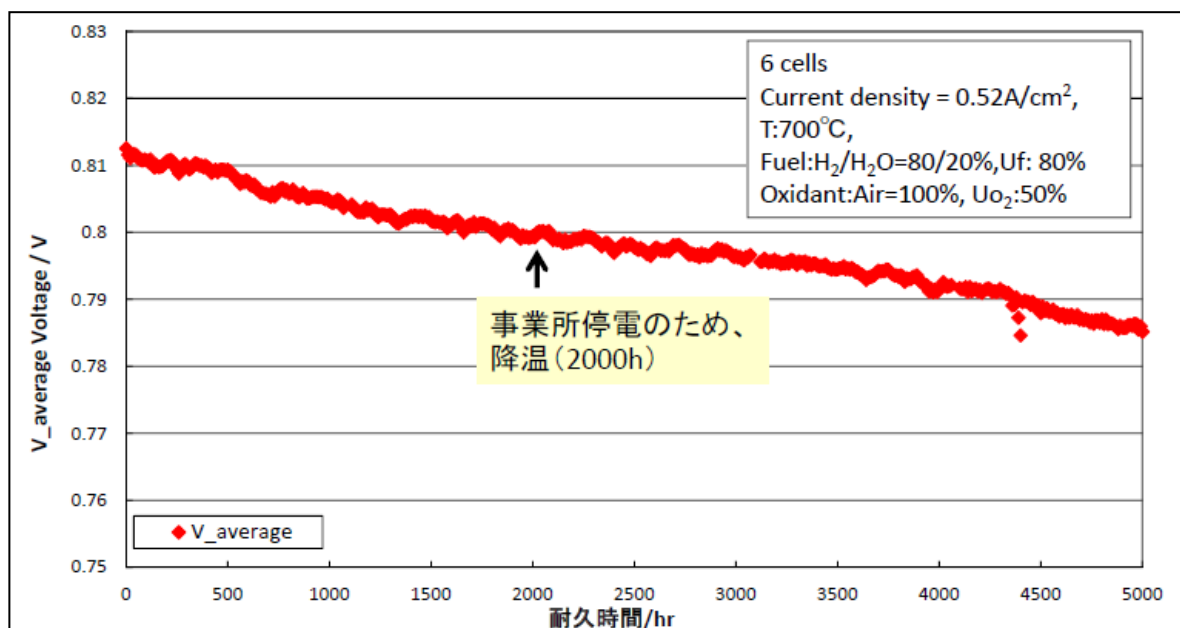


図 3-5-4.11 2014年改2仕様スタックの耐久挙動（東京ガス実施）

また、電力中央研究所にての化学吸着フィルターの劣化影響を調査するため、「2014年改2仕様」の化学吸着フィルター無しでの耐久試験を電力中央研究所にて行った。本試験は3000時間で耐久試験を終了し、劣化率は0.69%/khであった。

ii) 解体調査による効果確認

初期劣化改善効果が見られた「2014年改2仕様」の解体調査による解析を各研究機関に依頼し、解体調査からの劣化改善効果の裏取りを行った。

産業技術総合研究所にては微量不純物蓄積量と電解質相変態の確認を行った。分析の結果、微量不純物蓄積量の明確な低減効果を確認するには至らなかった。電解質ならびに燃料極での相変態は確認されなかった。

京都大学にてはFIB-SEMによる空気極微構造解析を実施した。図3-5-4.12に各スタックの空気極と反応防止層との接触率を示す。「2014年改2仕様」は「2012年仕様」よりも空気極と反応防止層との界面接触率が大きいことが確認された。

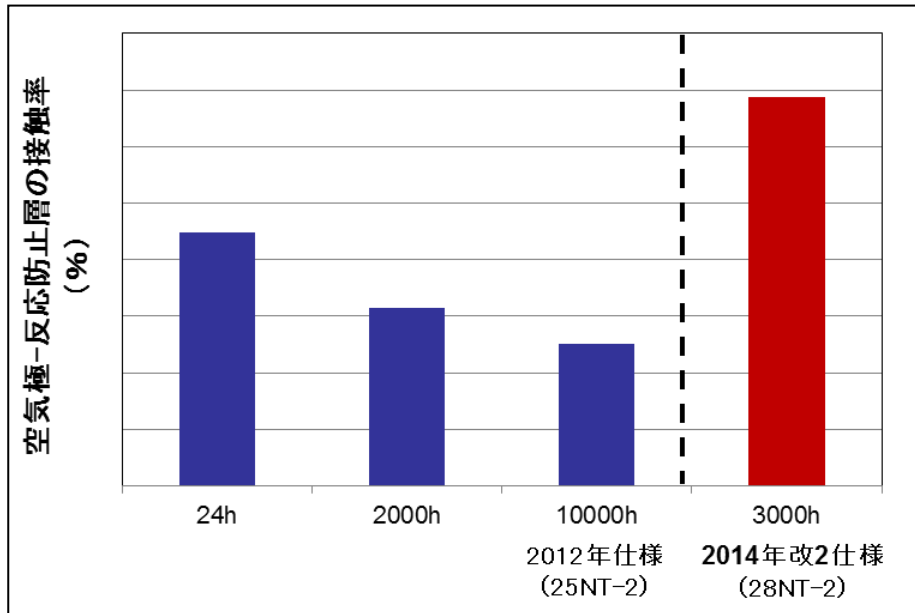


図 3-5-4.12 各スタックの空気極と反応防止層との接触率 (京都大学実施)

e. 9万時間耐久見通しの検討

i) 迅速評価法による長期耐久性見極め

中温平板形スタックは金属インターコネクターを使用しているため、長期耐久においては金属インターコネクターの酸化被膜増大で引き起こされる不具合が懸念される。よって、この不具合の影響を評価するために、金属インターコネクターを熱酸化にて強制劣化させたスタックを試作し、サイクル耐性への影響評価を試みた。図 3-5-4.13 に金属インターコネクターを熱酸化にて強制劣化させた6段ショートスタックの初期性能評価結果を示す。強制劣化スタックは通常品に比べ性能低下した。これは金属インターコネクターの酸化被膜増大による抵抗増の為と考えられる。

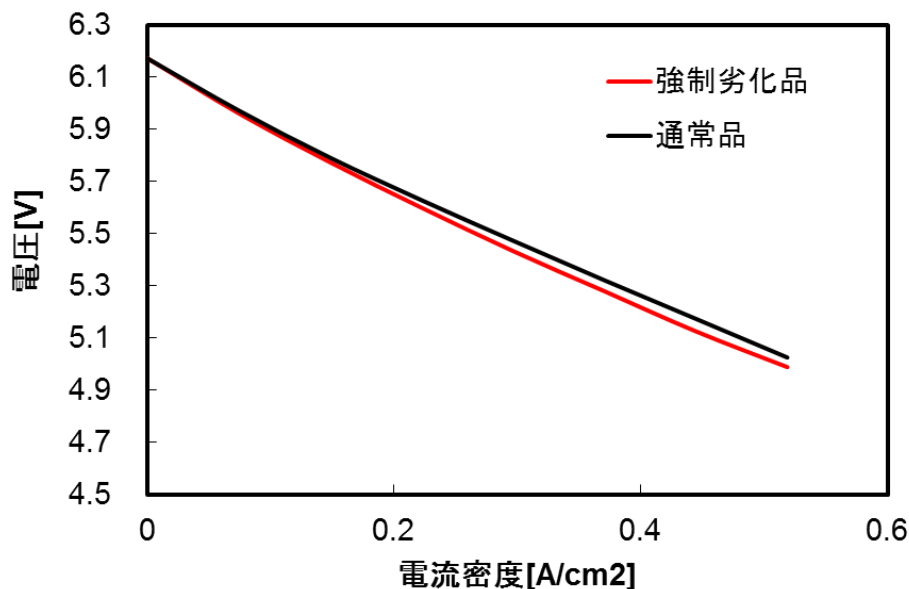


図 3-5-4.13 強制劣化スタックの初期性能評価結果

図 3-5-4.14 に東京ガスにて実施した強制劣化スタックの試験結果を示す。試験は連続発電試験を1000時間行った後に20回の熱サイクル試験を行った。通常スタックの試験結果と比較し、強制劣化スタック特有の顕著な劣化は発生しなかった。また、試験後の解体調査でも、耐久評価後においても酸化被膜の異常成長などの酸化皮膜の異常は見られなかった。

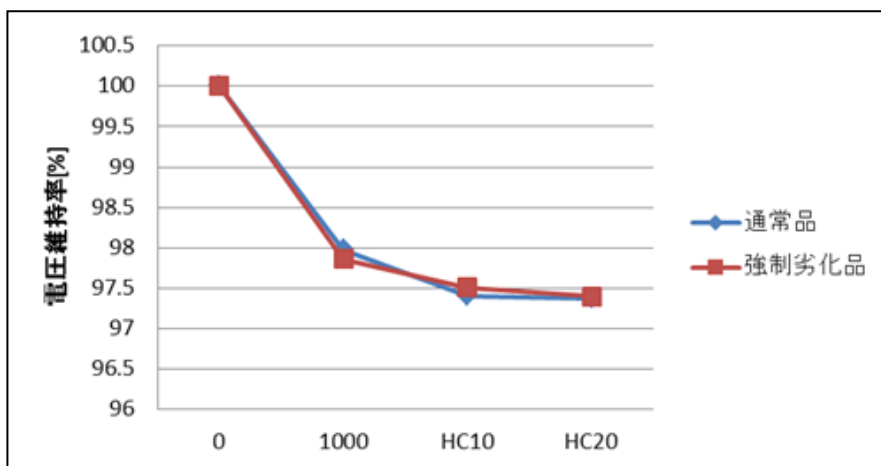
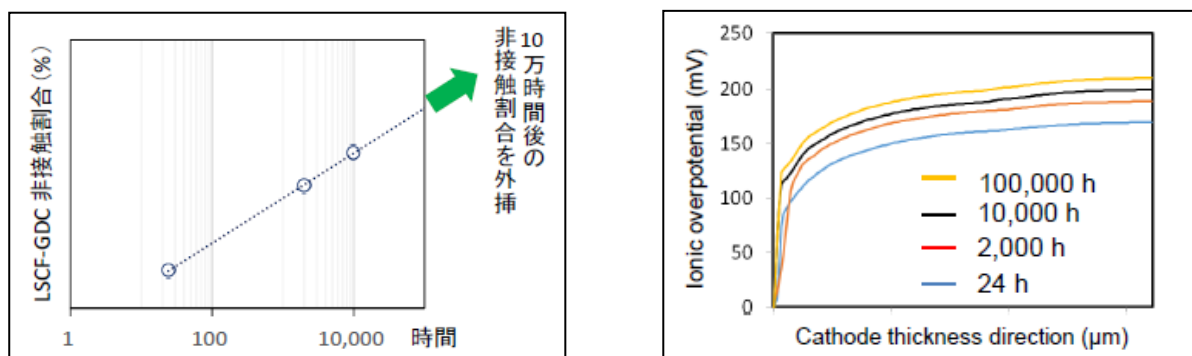


図 3-5-4.14 強制劣化スタックの熱サイクル試験結果（東京ガス実施）

ii) シミュレーション等による長期耐久性見極め

東京大学にては、空気極と反応防止層との界面接触率低下に対する長期耐久性への影響をシミュレーションにて調査した。図 3-5-4.15 (a) (b) に空気極と反応防止層との接触率低下による過電圧予測を示す。100,000 時間後の空気極と反応防止層との界面状態を予測し、それに基づく電圧降下は約 10mV と小さかった。



(a) 外挿による 100,000 時間後の接触率予測

(b) 空気極の過電圧シミュレーション

図 3-5-4.15 空気極と反応防止層との接触率低下による過電圧予測（東京大学実施）

九州大学にては、燃料極の P 被毒による劣化挙動を把握するために、燃料極の P 被毒試験を実施した。図 3-5-4.16 に燃料極を P 被毒させてのボタンセル耐久試験結果を示す。試験条件は、耐久温度 700°C、電流密度 0.55A/cm²、被毒種 Ni₃P、被毒種温度 400°C から 600°C である。耐久時間に伴い過電圧が上昇するが、やがて飽和することを確認した。

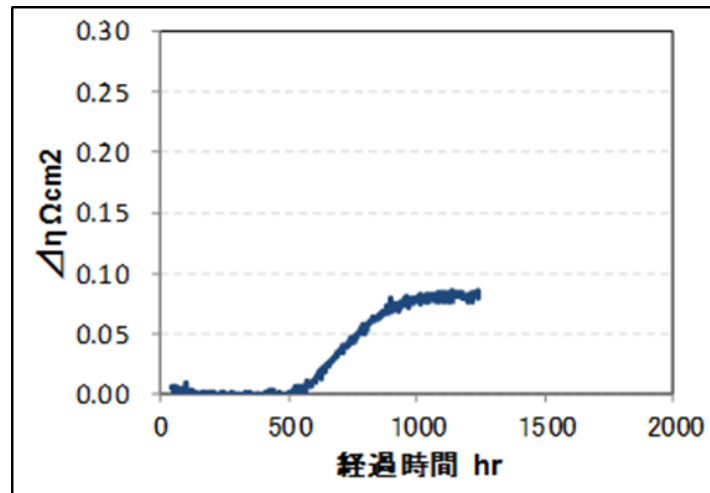


図 3-5-4.16 燃料極を P 被毒させてのボタンセル耐久試験結果（九州大学実施）

東北大学にては、酸素ポテンシャルを加味した応力解析の社内導入検討を継続実施し、導入の目処を得た。また、構造シミュレーションに必要な金属部材のクリープ特性データの取得を実施した。

f. まとめ

中温平板形スタックの耐久性を見通すため、産官学連携のもとで劣化挙動の把握と劣化機構解明を行った。

中間目標である、連続発電試験及び熱サイクル試験を通じての劣化機構の解明と改善部位の明確化については、「2012 年仕様」の各種耐久試験と性能解析、更にはその解体調査と解析により、初期および数 1000 時間耐久における劣化部位および劣化要因を、空気極の K 被毒、燃料極の P, Cr 被毒、電極の微構造変化に絞り込んだ。また、初期劣化を改良したスタックにての長期耐久性の見通し検討については、上記絞り込んだ劣化要因の対策を盛り込んだ改良スタックの試作を進めた。

最終目標である、劣化改善スタックでの 9 万時間耐久の見通し検討については、劣化改善スタックの劣化率改善効果を確認するとともに、劣化挙動の外挿や各劣化要因のシミュレーションと基礎調査により、9 万時間の耐久目標に目処を得た。また、強制劣化手法による迅速評価にて、熱サイクルに対する健全性を確認した。更に、構造劣化解析に有用な応力解析手法に対し社内導入の検討を進め、金属部材のクリープ特性データと共に今後の社内での応力解析に役立てていく目途を得た。

⑤ 中温筒状横縞形の耐久性評価(日本ガイシ株式会社)

本テーマの目標と成果、達成度を一覧表で示し、その後で内容を記述する。

表 3-5-5.1 中温筒状横縞形耐久性評価における成果と達成度(2013-2017年度)

項目名称	最終目標 (2017年度末)	成果	達成度	今後の課題
中温筒状横縞形の耐久性評価	セルスタック及びモジュールの耐久試験と熱サイクル及び負荷サイクル試験を行なう。試験後サンプルの劣化機構解析結果をもとに改良したセルスタック及びモジュールの耐久試験を実施し、劣化機構解析結果および改良結果を検証する。本作業を数回繰り返して、9万時間耐久への見通しを検討する。	セルスタック及びモジュールの耐久試験により空気極過電圧及び IR 損の増大が劣化主要因であることを解明し、その改善を行った。シミュレーション技術により、空気極の硫黄被毒及び電解質近傍の IR 損増大は9万時間経過後も限定的であるとの予測を得た。熱サイクル試験もを行い、サイクル耐性を確認し、9万時間耐久の見通しを得た。	○	低コストセルの耐久性向上とその迅速評価

日本ガイシでは、低コスト化が期待できる絶縁基板上に薄膜セルを複数集積した構造を持つ中温筒状横縞形セルスタック及び本セルスタックを複数実装したモジュールについて、できるだけ短時間でその耐久性を評価して劣化挙動を把握し、劣化機構解明から改良を行いその効果を検証することに取り組んだ。

電力中央研究所にて耐久試験を実施し、性能表示式による抵抗分離評価によって、劣化要因を明確化し、基盤グループの保有する美構造解析技術及びシミュレーション技術を活用してその劣化要因に対する考察を行った。また、東京ガスと連携したサイクル耐性試験では、強制劣化試験・熱サイクル試験を実施し、それに続く耐久試験を実施した。

a. 中温筒状横縞形の耐久性評価・セルスタック性能評価とモジュール耐久試験

「2013年度仕様」の耐久試験では、OCV低下が確認され、リーク箇所を特定し対策した「2014年度仕様」でその改善効果を確認した。図 3-5-5.1 に改善効果の確認結果を示す。

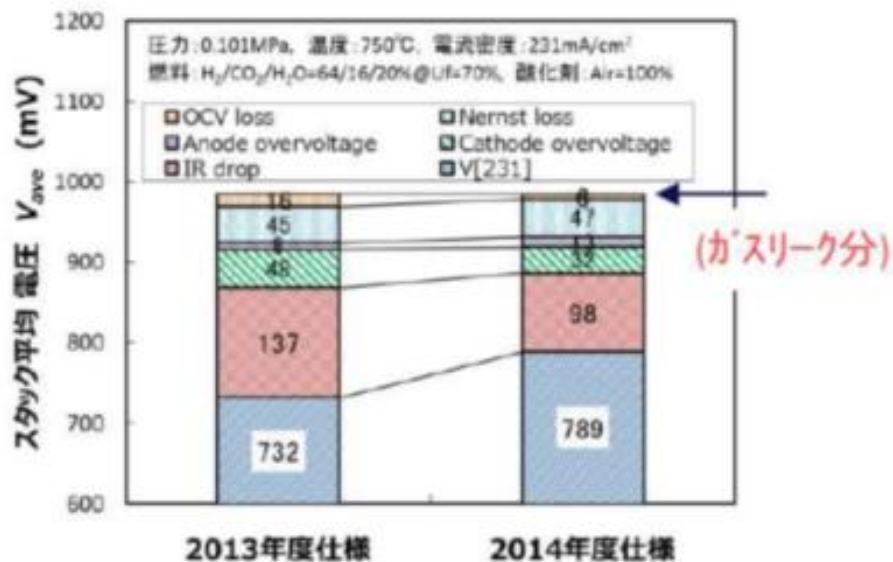


図 3-5-5.1 「2014 年度仕様」での改善効果確認結果（電力中央研究所）

電力中央研究所で「2014 年度仕様」を耐久試験したところ、耐久試験開始直後に空気極過電圧が急激に上昇する異常劣化が上流側セルから下流側セルへ順次発生する特異な挙動を確認した。図 3-5-2 に異常劣化したセルスタックの電圧挙動を示す。

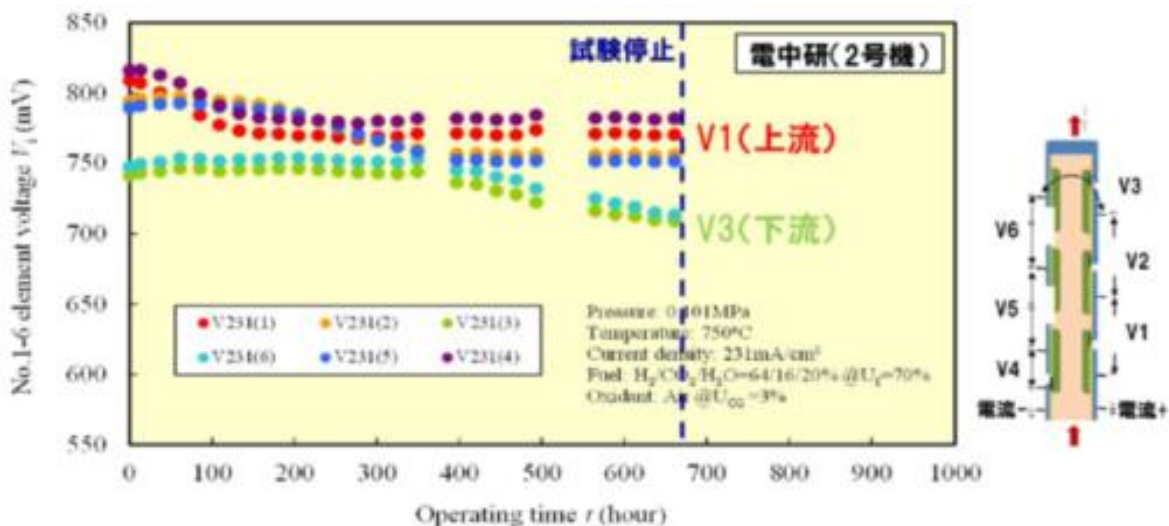


図 3-5-2 「2014 年度仕様」での異常劣化挙動（電力中央研究所）

基盤グループでの解析により、劣化要因は SO_2 被毒と判断し、電力中央研究所サイトに化学吸着フィルターを設置する対策を実施した。合わせて日本ガイシにおいて空気極を改良した「2015 年度仕様」（10W セル×5 本：50W スタック）を作製し、耐久試験を行った。「2015 年度仕様」では、空気極過電圧増大の抑制に成功。劣化主要因である IR 損増大は、増大速度が時間とともに低下し、1 万時間超で増大が停止する傾向を確認した。図 3-5-5.3 に IR 損と空気極過電圧の経時変化を、図 3-5-5.4 に耐久試験状況を示す。発電時間 16,000 時間での平均セル電圧変化率は $-0.29\%/kh$ であり、電力中央研究所・産業技術総合研究所・東京ガスと連携し、本耐久試験データと劣化予測式から寿命予測を行い、9 万時間相当の耐久性を有する見込みを得た。

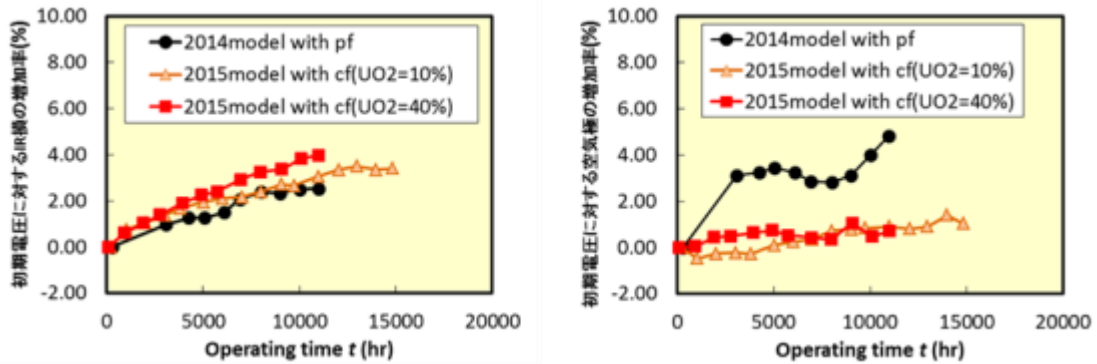


図 3-5-5.3 IR 損と空気極過電圧の経時変化 (電力中央研究所)

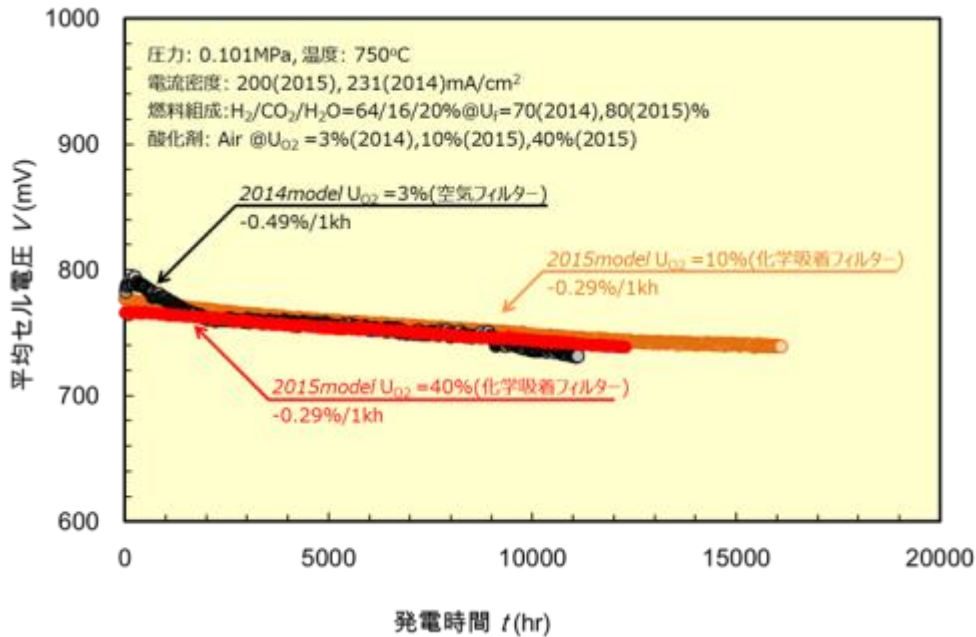


図 3-5-5.4 耐久試験状況 (電力中央研究所)

b. 耐久試験後の構造解析

空気極過電圧増大メカニズム解析では、産業技術総合研究所にて SEM-EDS 解析、D-SIMS 分析を実施し、空気極に硫黄が堆積していることを確認し、SO₂ 被毒が空気極過電圧増大の劣化要因と判断した。この結果を受けて、東京ガスにおいて SO₂ 被毒による強制劣化試験を実施することとした。

空気極の微構造変化に着目し、京都大学の FIB-SEM にて耐久試験後の空気極 3 次元微構造データを取得し、微構造と過電圧の関係について東京大学と連携してシミュレーションを実施、空気極過電圧変化を予測した結果は、9 万時間後においても 4mV 程度と小さいことを確認した。図 3-5-5.5 に空気極 3 次元微構造データを、図 3-5-5.6 に 9 万時間後の微構造を元に格子ボルツマン法にて過電圧を計算した結果を示す。

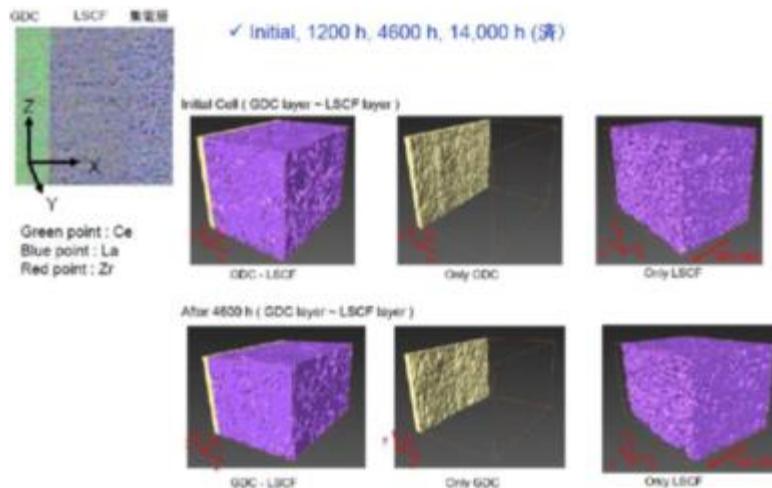


図 3-5-5.5 空気極 3次元微構造データ (京都大学)

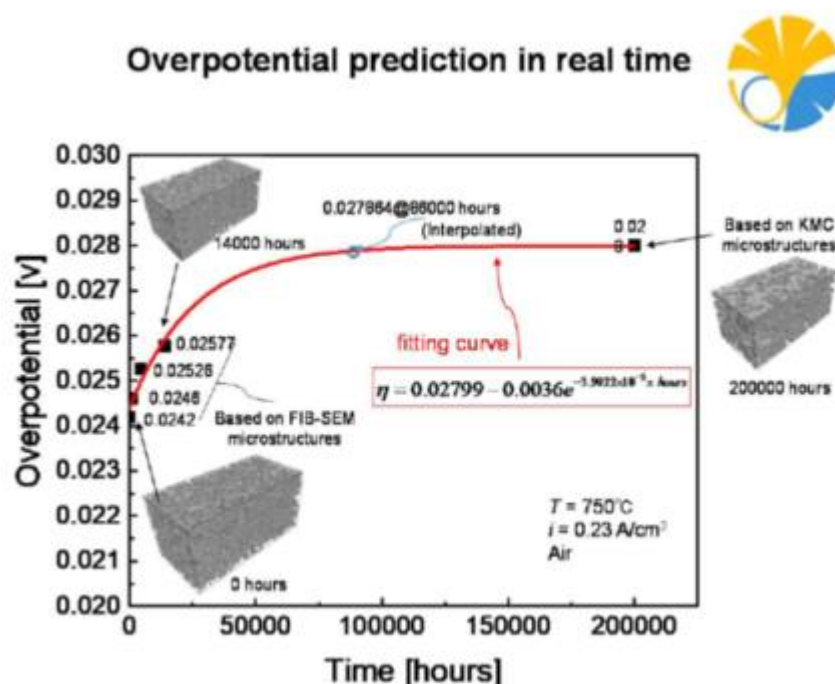


図 3-5-5.6 空気極過電圧変化予測 (東京大学)

IR 損増大メカニズム解析では、IR 損増大要因となる SrZrO_3 生成の有無を九州大学の STEM にて観察し、LSCF-GDC 界面及び GDC-YSZ 界面に SrZrO_3 が生成していないことを確認した。

YSZ 相変態、GDC-YSZ 固溶相の状態を産業技術総合研究所と協力しながらラマン分光測定にて観察し、YSZ 相変態は耐久初期から 4,600hr で進行することを明らかにした。このことから、YSZ 相変態以外に GDC-YSZ 固溶相の分相、カチオン拡散等の熱活性化過程が IR 損増大に関与していると推定した。

c. 家庭用セルスタックのサイクル耐性試験

東京ガスにて「2015 年度仕様」(10W セル×5 本 : 50W スタック)を用いた熱サイクル試験を実施し、熱サイクル 100 回後の劣化率は 0.26%と極めて小さいことを確認した。図 3-5-5.7 に熱サイクル試験結果を示す。

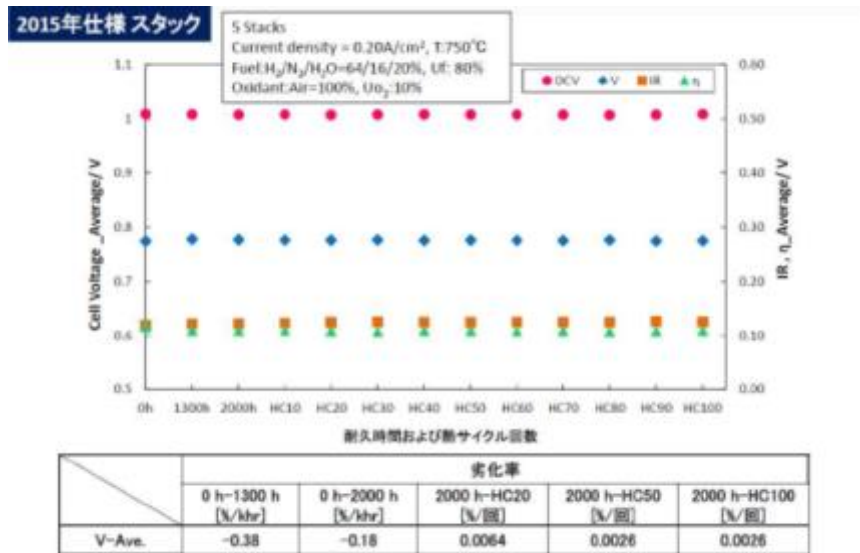


図 3-5-5.7 熱サイクル試験結果

また、空気極反応過電圧の劣化要因である SO_2 被毒による強制劣化試験を実施した。図 3-5-5.8 に強制劣化試験とその後の熱サイクル試験結果を示す。 SO_2 濃度 0.2ppm (大気中濃度の 100 倍) \times 3,000 時間で 9 万時間相当の劣化を再現、強制劣化後の熱サイクル 20 回でも性能低下なく、9 万時間相当の連続運転劣化が熱サイクル耐性を与える影響は限定的であることを確認した。

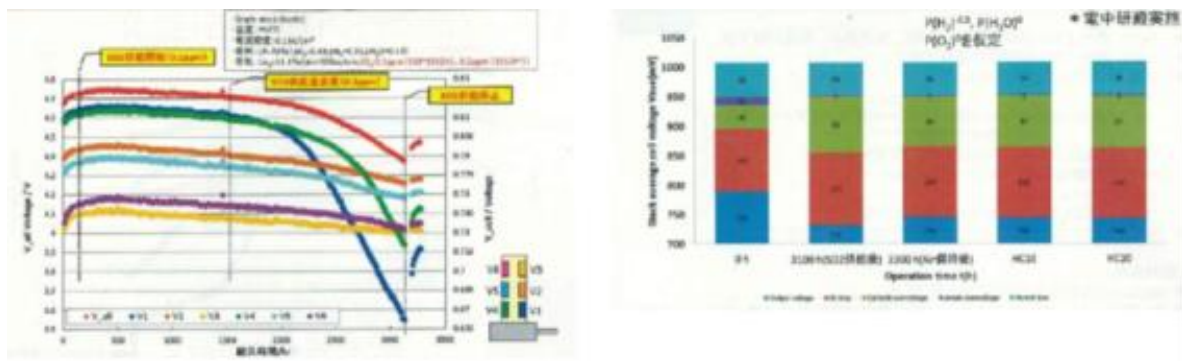


図 3-5-5.8 強制劣化試験とその後の熱サイクル試験結果

⑥ 中温一体焼結形の耐久性評価(株式会社村田製作所)

本テーマの目標と成果、達成度を一覧表で示し、その後で内容を記述する。

表 3-5-6.1 中温一体焼結形耐久性評価における成果と達成度(2013-2017年度)

項目名称	最終目標 (2017年度末)	成果	達成度	今後の課題
中温一体焼結形の耐久性評価	耐久性改善後セルの耐久性能予測式を構築し、耐久性迅速評価技術を適用して、性能予測式を検証し、9万時間耐久を評価する。	一体共焼結形セルは初期劣化が大きいことが課題として残ったが、その要因は絞り込むことができ、早急に解決できる見込みを得ることができた。初期劣化が解決すれば、機械的な耐久性も含めて、10年耐久の目処がたつ見込みである。 種々の解析・評価法を適用して、耐久性の迅速評価技術を確立し性能予測式も検証した。また、種々の検討のなかで、性能向上の糸口や製造条件検討手法も得ることが出来たため、より商品力のあるSOFC開発が促進されると期待される。	○	初期劣化の改善、低コストセルの耐久性向上とその迅速評価

a. 中温一体共焼結形セルの特徴

固体酸化物形燃料電池(以下SOFC)は高い効率の発電を実現できる特徴を有するが、採用するSOFCの構造および作製方法により、その耐久性が異なることが報告されている。村田製作所においては低コストと長期耐久性が期待できる中温一体焼結形セルを採用し開発を行っている。本研究では、この独自の製法によって作製される一体焼結形構造を有するSOFCの劣化機構の把握および劣化予測を目的としている。

図3-5-6.1に中温一体焼結形SOFCの外観写真を、図3-5-6.2には断面写真を、表3-5-6.2に使用している材料系を示す。電解質・空気極・燃料極・セパレーターがそれぞれ積層され、これを一括共焼結したものであり、燃料・空気のマニホールドがセル内に形成された内部マニホールド方式を採用している。一体焼結形セルは電解質・空気極・燃料極・セパレーター材が固相反応焼結しているため、発電膜-セパレーター間のガスシールは焼結時に完成しており、信頼性の高いシールを実現できる。図3-5-6.3にはスタック化プロセスの概略を示す。焼成された単セル同士をガラスセラミックスのシール材と導電材料を用いて、熱処理をして接合した。このセル間接合部も含んだ3段スタックを提供し、評価を開始した。Cr発生源やガラスを極力減らすことにより高耐久性が期待できるコンセプトである。

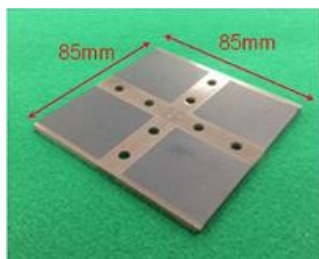


図 3-5-6.1 セル外観写真

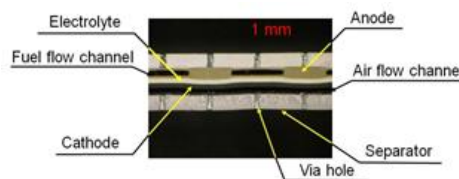


図 3-5-6.2 セル断面写真

表 3-5-6.2 使用される材料系

	Materials
Electrolyte	ScSZ
Barrier layer	GDC
Cathode	LSCF
Anode	Ni / ScSZ
Gas separator	Zirconia based material

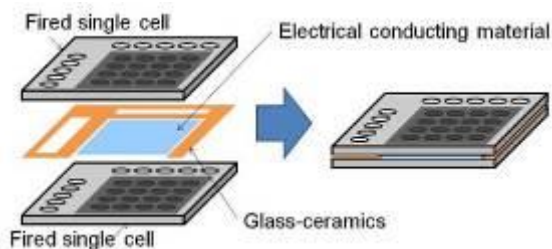


図 3-5-6.3 スタック化プロセスの概略

b. 耐久試験

図3-5-6.4には、電力中央研究所（以下、電中研）における耐久試験結果を示す。表3-5-6.2に各試験のセル・スタックの仕様を示す。試験は27MS-2を除いて、750℃、0.25A/cm²、燃料利用率U_f=75%、空気利用率U_{ox}=60%で実施した（27MS-2のみU_{ox}=40%）。空気利用率40%で試験した27MS-2は他の試験と比較して、試験初期の電圧低下が大きくなった。27MS-4と28MS-2、28MS-3と29MS-2は、それぞれスタックの仕様は同じで、空気供給系の不純物（特に硫黄）の影響を除去する目的で設置した化学吸着フィルターの効果を確認したものであるが、その劣化傾向に大差は無かった。また、2017年度仕様では、後述するLSM集電体の還元抑制を実施した仕様であるが、こちらも劣化挙動に顕著な変化は無かった。

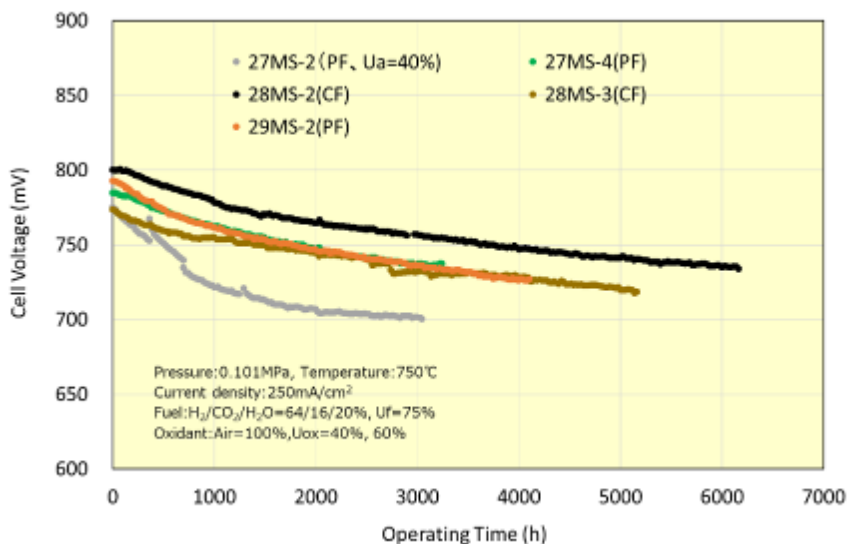


図3-5-6.4 耐久試験結果

表 3-5-6.2 セル・スタック仕様一覧

試験ID	仕様	燃料極	空気極	フィルター	空気利用率 (%)
27MS-2	2015年度	B	X	物理 (PF)	40
27MS-4	2016年度	A	↑	物理 (PF)	60
28MS-2	2016年度	↑	↑	化学 (CF)	↑
28MS-3	2017年度	↑	Y	化学 (CF)	↑
29MS-2	2017年度	↑	↑	物理 (PF)	↑

図 3-5-6.5 には、電中研で開発された性能表示式を用いて求めたオーム損、空気極過電圧、燃料極過電圧の初期セル電圧に対する上昇率の経時変化を示す。オーム損は、何れの試験においても同

様の上昇傾向であった。空気極過電圧は、 $U_{ox}=40\%$ の27MS-2では、試験初期に大きな上昇があったが、 $U_{ox}=60\%$ の条件においては、空気極やフィルターの種類に寄らずその上昇傾向は同様であった。 $U_{ox}=40\%$ と60%では、空気流量が異なるため、空気中に含まれる被毒物質の影響が示唆される結果となった。しかしながら、 $U_{ox}=60\%$ まで高めると、フィルター種による差異がないことから、被毒物質の影響は小さくなったと考えている。また、燃料極過電圧の上昇は軽微であった。

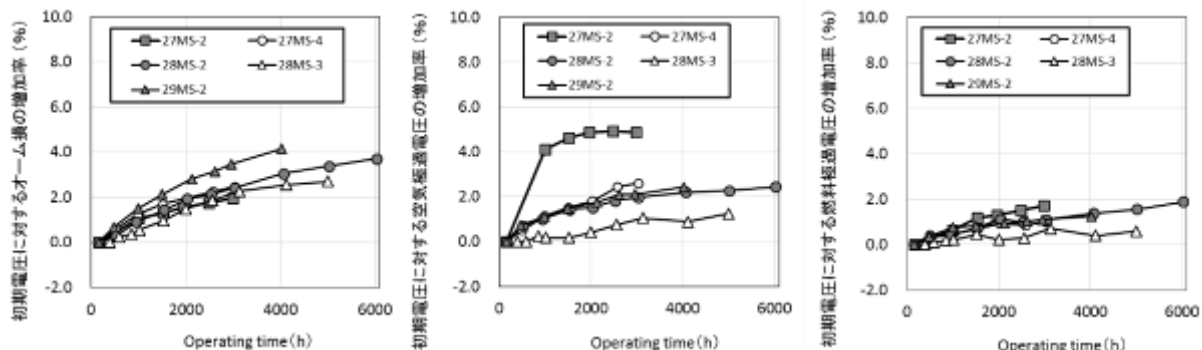


図3-5-6.5 各仕様におけるオーム損、電極過電圧の初期セル電圧に対する時間変化

c. 劣化機構把握

上述したように、初期劣化では、オーム損と空気極過電圧が上昇していた。そこで、以下のふたつの劣化モードを想定し、分析・解析を進めた。

- i) オーム損が上昇することが主要因で、オーム損がセル面内で分布を持って増加した場合、電流密度分布の変化とともに、有効反応場が減少し、反応過電圧が上昇する。
- ii) オーム損低下を伴う空気極過電圧の増加（劣化）が発生する。

空気極劣化としては、Cr 被毒が広く知られているが、一体共焼結セルはCr 源を含まない構成でもあるため、詳細の分析結果は割愛するが、試験後に空気極中にCr 濃集は見られなかった。他の被毒劣化としては、硫黄被毒が挙げられる。図3-5-6.6に産業技術総合研究所（以下、産総研）実施の空気極のSIMS分析の結果を示す。左図が27MS-4の結果であり、空気供給系に物理フィルターのみを設置したものである。右図は28MS-2の結果であり、化学吸着フィルターを追加した系での結果である。グラフ左側が空気流路側であり、グラフ右側がGDCとの界面側になる。セルが共焼結で作製されるため、解体の難易度が高く、また、樹脂の影響を排除するために樹脂埋めを行わず、解体を実施し、SIMS分析を実施しているため、解体中に空気極の一部が脱離することがあり、分析対象の空気極厚みが一定とならないことがある。図中①が空気最上流であり、⑦が最下流位置の分析結果である。27MS-4では、空気最上流側では、LSCF全体に硫黄が濃集しているが、下流に行くに連れて、濃集が顕著な箇所はLSCFの中央部になり、GDC界面近傍や空気流路との界面側の硫黄量は減少した。最下流(⑦)となると、初期の硫黄量とほぼ同等であった。一方、化学吸着フィルターを使用した28MS-2においては、空気最上流においても、硫黄レベルの上昇はほとんど無かった。化学吸着フィルターによって、硫黄成分が除去されたと考えられるが、図3-5-6.5に示すように、27MS-4と28MS-2の空気極過電圧の上昇挙動は同様であるため、硫黄被毒による空気極劣化がオーム損ともなっていて進行しているものではないと推定され、初期劣化の主要因はオーム損の上昇によるものと判断している。

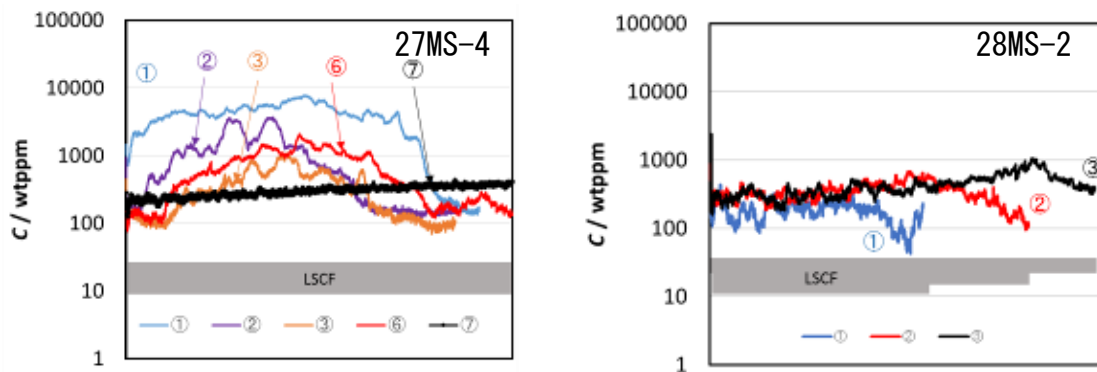


図3-5-6.6 SIMSによる空気極中の硫黄分析結果 (Cs⁺)

オーム損上昇の要因として、次の4つを想定し、解析を進めた。

- i) 電解質の相変態
- ii) 電解質／バリア層間の相互拡散層
- iii) LSM集電体の還元
- iv) その他集電要因

i)の電解質の相変態に関して、図3-5-6.7に産総研によるラマン分光法を用いた電解質の相変態の経時変化を示す。燃料極側の電解質において、若干の正方晶の増加は確認されたが、オーム損への大きな影響がないことを確認している。

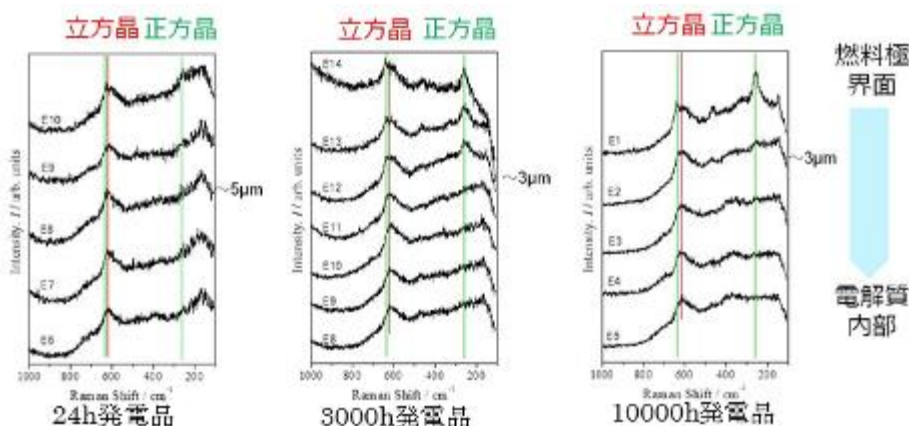


図3-5-6.7 電解質の相変態

ii)の電解質／バリア層間の相互拡散層に関して、京都大学のアドバイスを受けて、社内検討したところ、電解質材料であるScSZへ、バリア層材料のGDCからGd、Ceの拡散があることが分かった。この拡散相は、ScSZにGd、Ceを固溶させた個別実験から、750℃では2桁程度の導電率低下があると推測される。しかし、Ce、Gdの拡散量は初期から多く、3000時間までは大きな変化は無く、6000時間までは、若干のCe、Gd拡散量の増加が確認されたものの、図3-5-6.5に示すオーム損上昇挙動等は一致しないため、これも初期劣化の主要因ではないと判断している。今回、初期状態から、Ce、Gdの拡散量が多いことが確認できたため、拡散量を減少できれば、初期のオーム損の低減が可能であり、初期性能向上の可能性のあることを把握することができた。

iii)のLSM集電体の還元に関しては、図3-5-6.1に示すセル外観写真で黒く見える部分がLSMからなる集電部であるが、試験後のXRD分析により、還元による変質の可能性を示唆する結果が得られたことから、さらに詳細に調査した。セル内部の一部のピア集電体にもLSMを用いているので、合わせて調査した。調査は試験後のセルの

LSM集電部の還元状態把握を、東北大学に協力のもとに、マイクロXAFS分析を用いて実施した。XASスペクトルの分析結果の一例を図3-5-6.8に示す。還元状態のスペクトルのシフト量から還元状態(Mn価数)を見積もった。試験後のセルにおいて、一部のLSMの還元によるMn価数減少が確認できたが、その還元状態から推定されるオーム損の上昇は小さいものであったため、これも初期劣化の主要因ではないと判断している。

iv)に挙げたその他集電に関しては、図3-5-6.9に示した社内の800W級スタック試験と電中研におけるショートスタックの劣化率の比較から考察した。ショートスタックの劣化挙動と800W級スタック最上部の劣化挙動が一致していることから、端部集電の影響が示唆される。一方、スタック中央部の劣化は小さく、0.36%/khと比較的良好な値を得ている。これらより、課題としている初期劣化中のオーム損上昇は、セル集電要因が大きいと推定している。ただし、ショートスタックの劣化挙動の再現性が高いことから、物理的な接触以外のオーム損上昇要因も想定しておく必要があると考え、検討を継続している。

これまでの検討において、初期劣化の大幅な改良は達成できなかったが、種々の分析・解析により、要因を絞り混むことができたため、今後は迅速な改良が期待される。

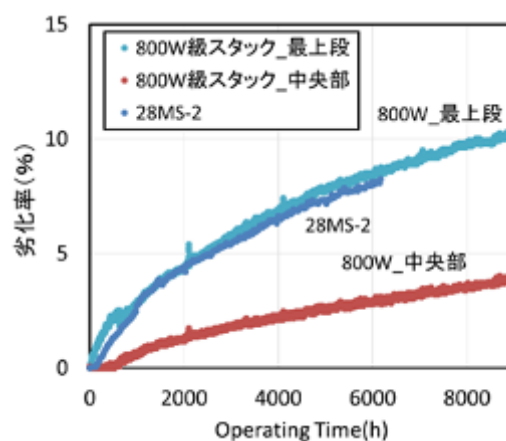
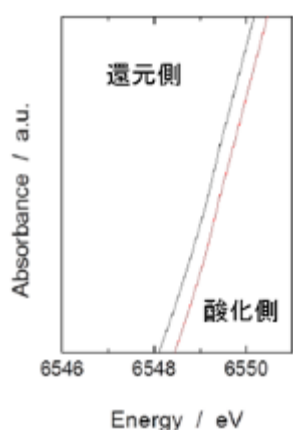


図3-5-6.8 LSMのXASスペクトルの一例 図3-5-6.9 800W級スタックとの劣化率比較

経時劣化機構解明に関しては、空気極の硫黄被毒を主要因と推定し、検討を行った。硫黄被毒の対策として、化学吸着フィルターが提案されているため、その効果を調査した。図3-5-6.10に物理フィルターのみ(27MS-4)と化学吸着フィルター有(28MS-2)の空気上流のLSCFのSEM写真(産総研撮影)を示す。27MS-4においては、異相が散見され、EDSで組成を分析したところ、LaやSrが、CoやFeに対して多い組成であった。化学吸着フィルターを用いた28MS-2では、このような異相が確認されなかった。同様の結果が、京都大学のFIB-SEM観察、九州大学のSTEMでも確認された。

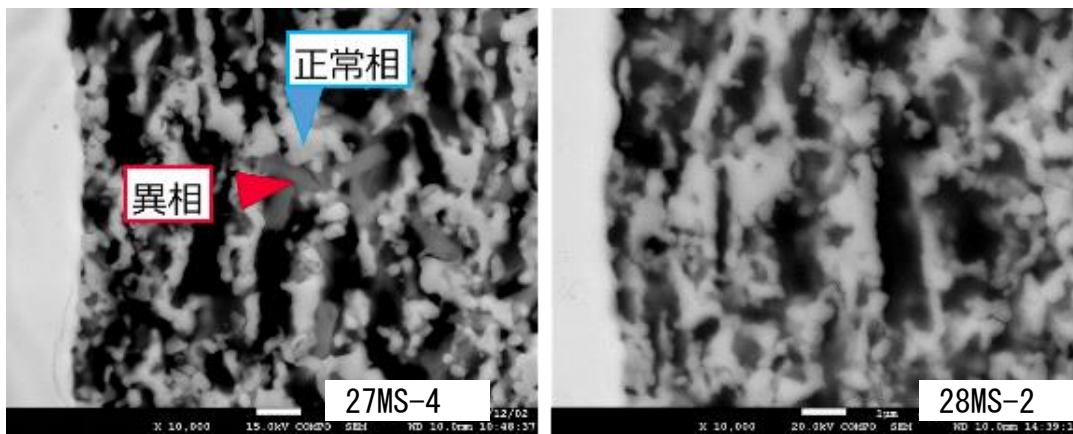


図 3-5-6.10 耐久試験後の空気極 (LSCF) の SEM 像

九州大学における要素サンプル (コインセル) の検討で、空気極材料の LSCF に組成変化があることが明確になったため、実セルにおいても、LSCF 組成を分析した。分析には WDS を使用した。図 3-5-6.11 には、27MS-4 と 28MS-2 の空気極中の Sr 含有量の電極内の位置依存性を示す。コインセルと同様に Sr は GDC 界面近傍で減少していた。空気流れ方向では、空気上流の GDC 界面近傍の Sr の減少が顕著であった。一方、28MS-2 では、GDC 界面の Sr 減少も、大幅に低減されていた。したがって、化学吸着フィルターにより、LSCF の変質を大幅に抑制できることが分かった。

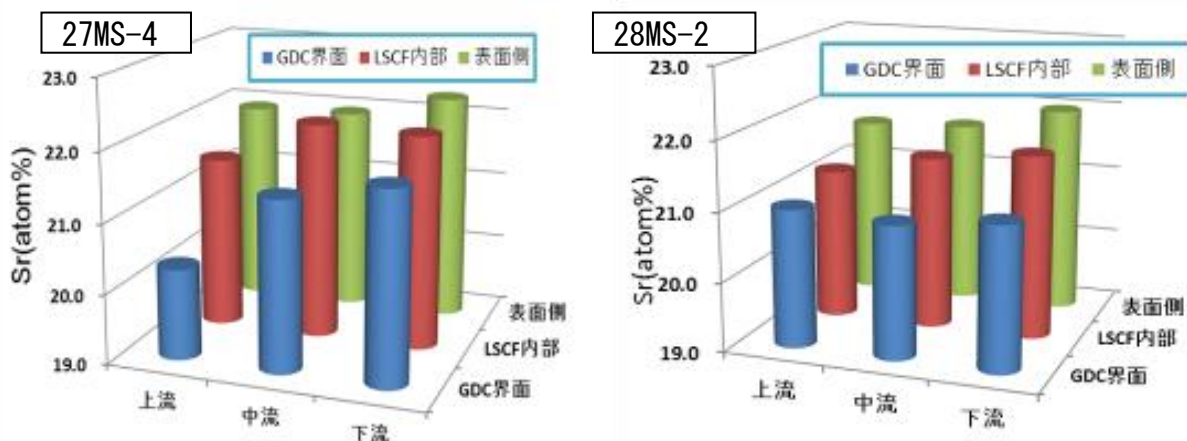


図 3-5-6.11 耐久試験後の空気極 (LSCF) の Sr 含有量

化学吸着フィルターにより、LSCF の変質を抑制できることは分かったが、硫黄被毒機構の更なる詳細を検討するために、九州大学にて、LSCF 粒子の STEM 分析を実施した。図 3-5-6.12 に 27MS-4 と 28MS-2 の空気極の LSCF 粒子の STEM 分析結果を示す。LSCF 粒子表面近傍では Sr や Co の顕著な変化が予想されたが、変質があった 27MS-4 と 28MS-2 は同様であり、実際の多孔質電極においては、粒子表面近傍と粒子内での顕著な組成の差異は確認できなかった。

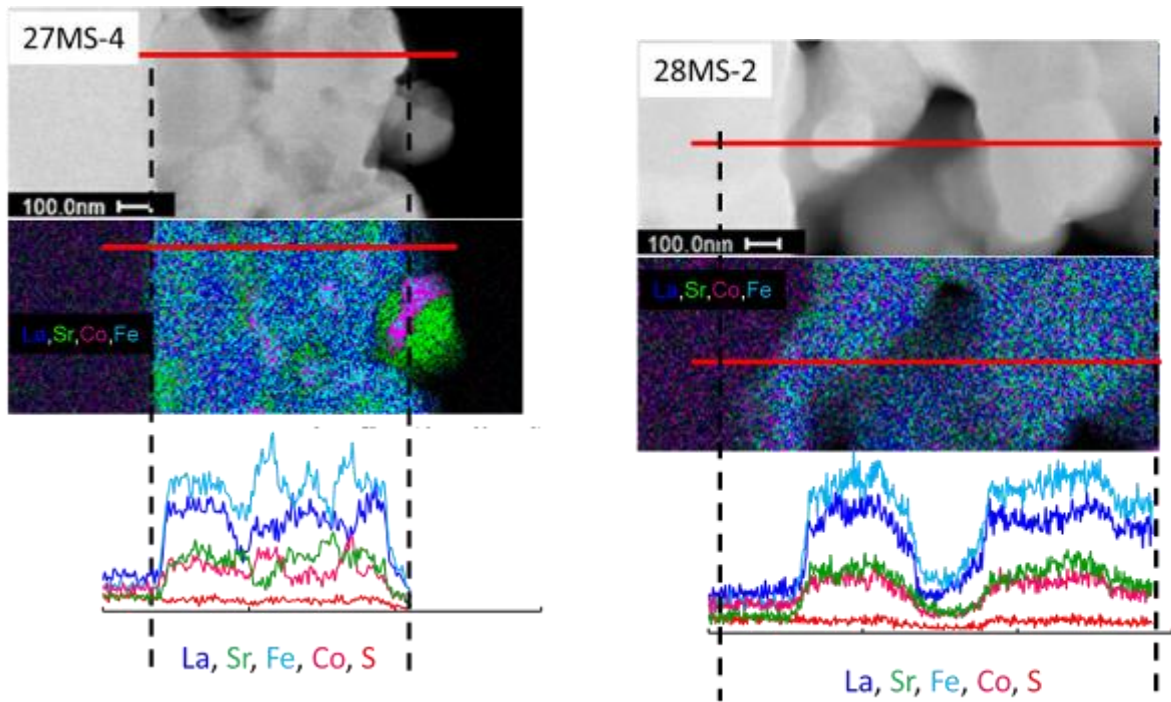


図 3-5-6.12 耐久試験後の空気極 LSCF 粒子の STEM 分析

図3-5-6.13には京都大学のFIB-SEMによる電極微構造解析の一例を示す。一般的な劣化要因の一つとしては、ジルコニア系電解質とセリア系バリア層界面にSrZrO₃が生成されることが想定されるが、GDCバリア層が緻密に形成できており、10000hの耐久試験後においても、SrZrO₃の生成がほとんど見られないことを確認した。図3-5-6.14には、空気極のLSCFの粒径、LSCFとGDCの接触面積(Contact area)、三相界面(TPB)などの構造パラメータの経時変化を示す。解析は、空気上流と空気下流の2箇所を実施しており、値はこれらの平均値で示している。粒径や三相界面(TPB)に顕著な変化は無く、LSCF/GDCの接触面積に若干の減少は確認されているが、これらの電極過電圧上昇への影響は限定的と考えている。

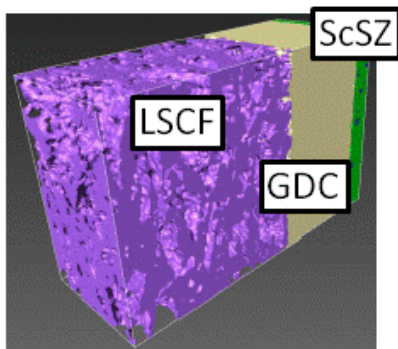


図 3-5-6.13 空気極微細構造解析結果

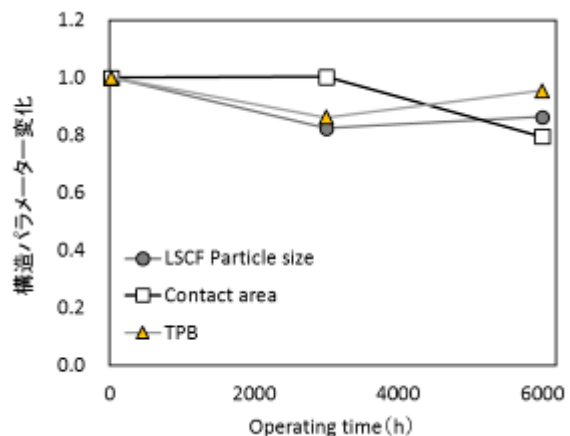


図 1-6.14 空気極構造パラメータの経時変化

初期劣化に関しては、解決に至ることはできなかったが、種々の分析・解析により、劣化要因の絞り込みを行うことができたため、今後は迅速な解決が期待できる。経時劣化に関しては、空気極の硫黄被毒を主要因と想定し、種々の分析・解析を実施した。成果としては、化学吸着フィルター

の設置により、空気極材料である LSCF の変質は大幅に低減できることが見いだされた。現状は、初期劣化の影響もあり、具体的な経時劣化率を得ることができていないが、初期劣化が解決されれば、10 年耐久に資する劣化率が得られるものと推定している。

機械的劣化の検討として、東北大の協力のもとに、レーザー変位計を用いて、セルの還元及び発電時の変形の様子を観察を実施した。測定系の外観を図 3-5-6.15 に、セルの変形計測位置を図 3-5-6.16 に示す。セル上面からレーザーを照射し、セル端部をスキャンし、その変形挙動を観察した。図 3-5-6.17 に還元時の変形量を、図 3-5-6.18 には発電時の変形挙動を示す。

動作温度である 750°C において、還元時にセルが 100 μm 程度変形することが観察された。また、この変形は 1 時間程度で完了することが分かった。これは、還元処理を施したセルを室温で計測した際の値とほぼ一致していた。還元変形後に発電特性を評価していることになり、発電特性上の問題はないため、還元変形の発電特性への影響は小さいと判断している。発電の変形への影響を調べた結果を図 3-5-6.18 に示す。定格の 0.25A/cm²、電流を増やした 0.35A/cm² において、どちらも、更なる変形は確認されず、発電による変形は殆ど発生しないと考えられる。

機械的変化のその場観察手法として、アコースティックエミッション法 (AE 法) も提案されており、還元変形や発電時に信号が発生するか検討したが、セルスタックの破壊に相当するような信号は検知されなかった。しかしながら、AE 法は、製造条件の検討に有効活用できることを見出し、活用している。



図 3-5-6.15 レーザー変位計の外観

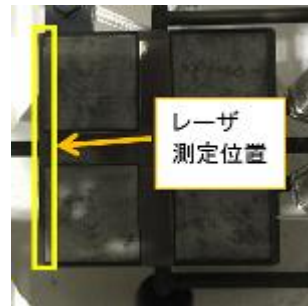


図 3-5-6.16 レーザー計測位置

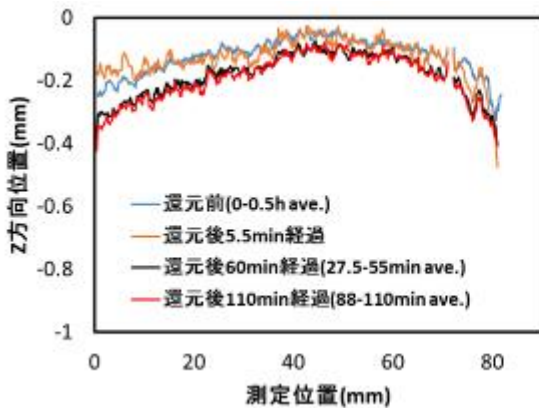


図 3-5-6.17 還元時のセル変形量

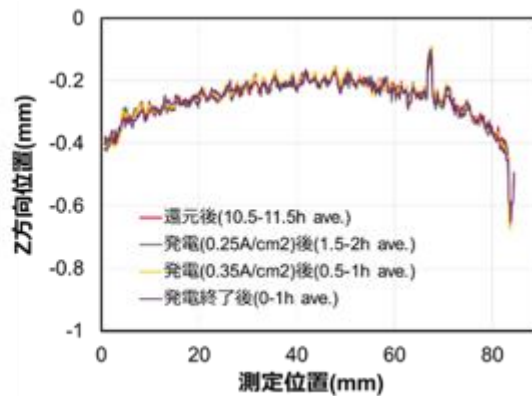


図 1-6.18 発電時のセル変形量

図 3-5-6.19 には、東北大が開発している SIMUDEL を使用する際の一体共焼結セルの解析モデルを示す。一体共焼結形セルの特徴であるピア集電や流路を再現したモデルになっている。このモデルを用いて、ポテンシャル計算を実施している。SIMUDEL と ANSYS-Workbench との連携機能を活用して、ポテンシャル分布→セルの還元変形の計算結果の一例を図 3-5-6.20 に示す。この結果は、図 3-5-6.19 のモデルを 3 個連結して解析した結果である。連結を増やせば、実セルスケールの計算も可能となる見込みである。計算より得られた変形量は、上記の実測の変形量と同等であることを確認しており、本計算技術の有効性を確認できた。

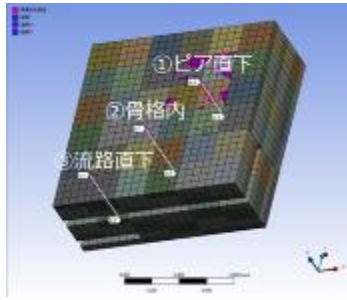


図 3-5-6.19 解析モデル

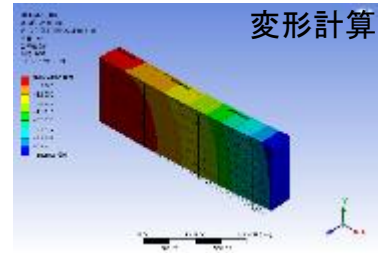
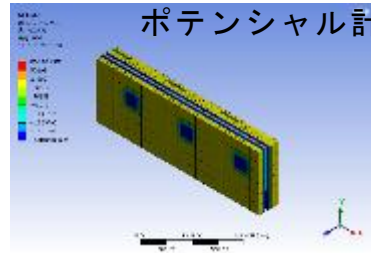


図 3-5-6.20 SIMUDEL/ANSYS-Workbench 計算結果

SOFC の機械的ストレスとしては、起動停止の熱サイクルが挙げられる。今回の研究では、初期状態の熱サイクル耐性のみでなく、10 年相当の劣化後の熱サイクル耐性を確認するために、東京ガスにおいて熱サイクル試験と強制劣化+熱サイクル試験を実施した。強制劣化手法開発は、劣化要因として空気極の硫黄被毒を選択し、東京ガス、九州大学にて試験を行った。図 3-5-6.21 に強制劣化試験時の電圧トレンドを示す。東京ガスと九州大学の両試験サイトで同様の結果を得られており、再現性の高い強制劣化手法が確立できたと考えている。これは、一体焼結形セルが高空気利用率で安定的に運転できる空気流路構造を有することに由来すると考えている。図 3-5-6.22 には強制劣化後の熱サイクル試験の結果を示す。強制劣化後の熱サイクル試験では 0.033%/回 (20 回) の劣化率を得ており、強制劣化なしの 0.052%/回 (100 回) と比較して、顕著な変化はなかったことを確認した。これらの劣化率には、初期劣化が一部含まれていると考えられ、初期劣化が改善すれば、熱サイクルによる劣化率の値も 10 年耐久に資するものになると推定している。

これらの結果より、セルの物理的な変化や物理的なストレスによる特性劣化への影響は、非常に小さいと考え、セルの物理的な耐久性に関しては、一定の見通しが得られたと考えている。

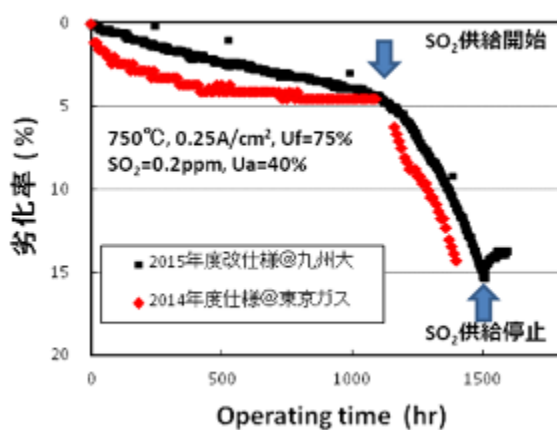


図 3-5-6.21 強制劣化試験結果

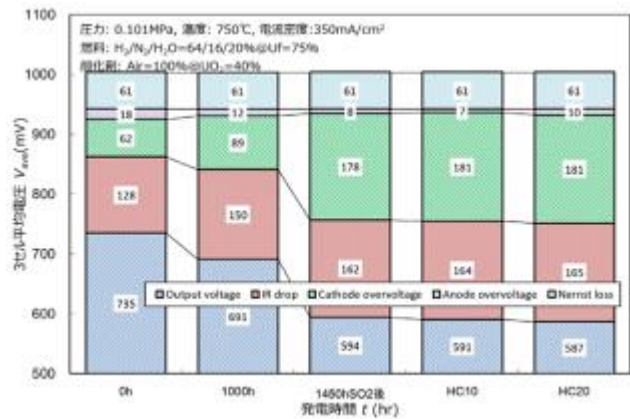


図 3-5-6.22 強制劣化後の熱サイクル試験結果

d. まとめ

一体共焼結形セルは初期劣化が大きいことが課題として残ったが、その要因は絞り込むことができたので、早急に解決できる見込みを得ることができた。初期劣化が解決すれば、機械的な耐久性も含めて、10 年耐久の目処がたつ見込みである。

また、種々の検討のなかで、性能向上の糸口や製造条件検討手法も得ることが出来たため、より商品力のある SOFC 開発が促進されると期待している。

⑦業務用平板形の耐久性評価

本テーマの目標と成果、達成度を一覧表で示し、その後で内容を記述する。

表 3-5-7.1 業務用平板形耐久性評価における成果と達成度(2016-2017 年度)

項目名称	最終目標 (2017 年度末)	成果	達成度	今後の課題
業務用平板形の耐久性評価	業務用中温平板形セルスタックに耐久性迅速評価技術を適用、9 万時間耐久への見通しを検討する。	耐久性迅速評価技術の適用により、劣化課題として、1)Cr による空気極被毒、2)ガスクロスリークによる空気極被毒促進、3)発電中のセル変形による集電抵抗増大、が抽出された。このうち、1)については金属スタック表面のコーティングにより解決可能である事が確認・検証された。2)、3)に関しては、デンソーにて解決指針を導出し、9 万時間耐久を見通すためのセルスタック設計に反映させることができた。	○	普及機に搭載する低コストセルの耐久性向上とその迅速評価

a. 業務用平板形セルスタック仕様

業務用平板形セルスタックの仕様を図 3-5-7.1、3-5-7.2 に示す。セルはアノードサポート構成であり、燃料極に Ni-YSZ(イットリウム安定化ジルコニア)、電解質に YSZ、中間層に GDC(Gd 部分添加 CeO₂)、空気極に (La, Sr)CoO₃ を用いる。スタックは平板型構成であり、燃料・空気ガスは各々直交するように導入されるクロスフロー構成をとる。

表 3-5-7.2 に本プロジェクトにおけるセルスタック仕様の遍歴を示す。2016 年度(H28 年度)モデルでは、空気極側の Cr 被毒抑制を狙いスタック金属表面のコーティング処理を実施、2017 年度(H29 年度)モデルでは、空気極側の B 被毒抑制を狙い B 発生源と予想されるシール用ガラスの組成変更を行うと共に、燃料ガスの拡散がスムーズとなるよう燃料極気孔率の再調整を行っている。

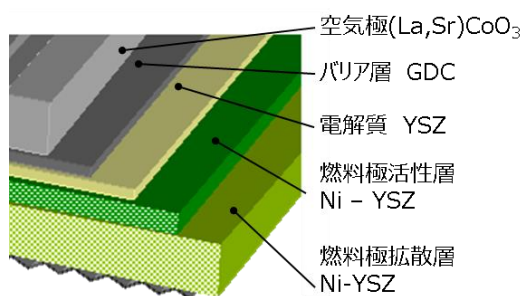


図 3-5-7.1 業務用平板形セルスタックにおけるセル構成

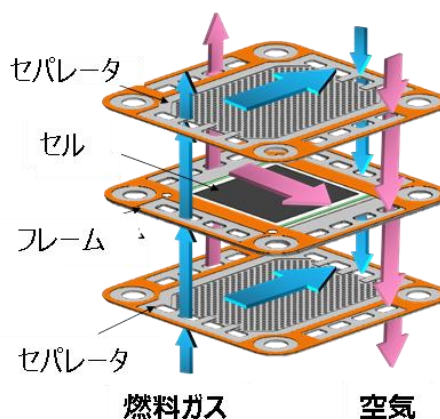


図 3-5-7.2 業務用平板形セルスタックにおけるセル構成

表 3-5-7.2 本プロジェクトで使用したセルスタックの仕様

		H27年度モデル	H28年度モデル	H29年度モデル
仕様	セル			・燃料極気孔率調整
	スタック		・金属表面コーティング	・ガラス組成変更(低ボロン仕様)
定格条件	電流密度	0.531A/cm ²	←	←
	作動温度	700°C	←	←
	燃料利用率(Uf)	75%	←	←

b. 耐久性試験結果、解体分析結果

試作セルスタックに対し、電力中央研究所での耐久試験、性能表示式解析による主要劣化箇所の特定を行った。結果を表 3-5-7.3 に示す。また、耐久試験後のセルに対して SEM-EDS, SIMS 分析を行い、不純物被毒及び構造変化の両面からの解析を行った結果の一部を図 3-5-7.3 に示す。SIMS 分析から、H28 年度モデルから導入した金属表面コーティングの効果により、空気極上の Cr 被毒が大幅に低減される事が確認された。これに伴い、デンソー社内評価での劣化率も $\Delta 0.9\%/kh$ から $\Delta 0.5\%/kh$ に改善された。ただし、空気極における S, Cr の濃度は依然として高く、また高濃度のボロン(B)も確認された為(図 3-5-7.3 中には示されず)、追加での対策が必要であると考えられた。

性能表示式解析から、H28 年度仕様の主要劣化要因として燃料極が抽出されたが、これはセル製造工程上の問題により燃料極 Ni-YSZ の気孔率が設計値より低下していたため、燃料ガス拡散性に問題が生じていた為であると推測された。H29 年度仕様では、燃料極気孔率の再調整を行うと共に、B 被毒抑制の為に B 蒸散源と考えられるガスシール用ガラスの組成見直しを行った。この結果、社内評価での劣化率は $\Delta 0.5\%/kh$ から $\Delta 0.3\%/kh$ まで改善された。

電力中央研究所で測定された劣化率と、社内評価での劣化率の傾向が合致しない原因を調査する為、電中研で試験を行ったセルスタックを詳細に調査したところ、燃料極-空気極間のガスクロスリークの発生が認められた。ガスクロスリークは、デンソー社内での耐久後セルスタックでは確認されなかった事から、電力中央研究所までのセルスタック運搬時の振動等により、燃料極-空気極間のガスシール部材が破損した可能性が予想された。ガスクロスリークの発生箇所では、局所的に空気極側での高濃度不純物被毒が発生し、劣化が促進されている事が分かった。これは、スタック部材である高耐熱ステンレス材が、ガスクロスリーク時に発生する水蒸気により部分的に腐食され、内部の S, Cr 等の元素蒸散が促進された結果であると考えられた。このことから、ガスシール構造の見直しが必要であると考えられた。

表 3-5-7.3 業務用平板形セルスタックの耐久試験(電力中央研究所、社内)、主要劣化箇所分析結果

ロット名	仕様	劣化率 (%/kh)	耐久時間 (hr)	主要劣化箇所	同仕様セルスタックの社内評価劣化率 (%/kh)
27DS-1	H27年度	$\Delta 0.51$	~1000	IR損	$\Delta 0.9$
28DS-3	H28年度	$\Delta 0.83$	~3000	IR損、燃料極	$\Delta 0.5$
29DS-1	H29年度	$\Delta 1.09$	~6000	IR損、空気極	$\Delta 0.3$

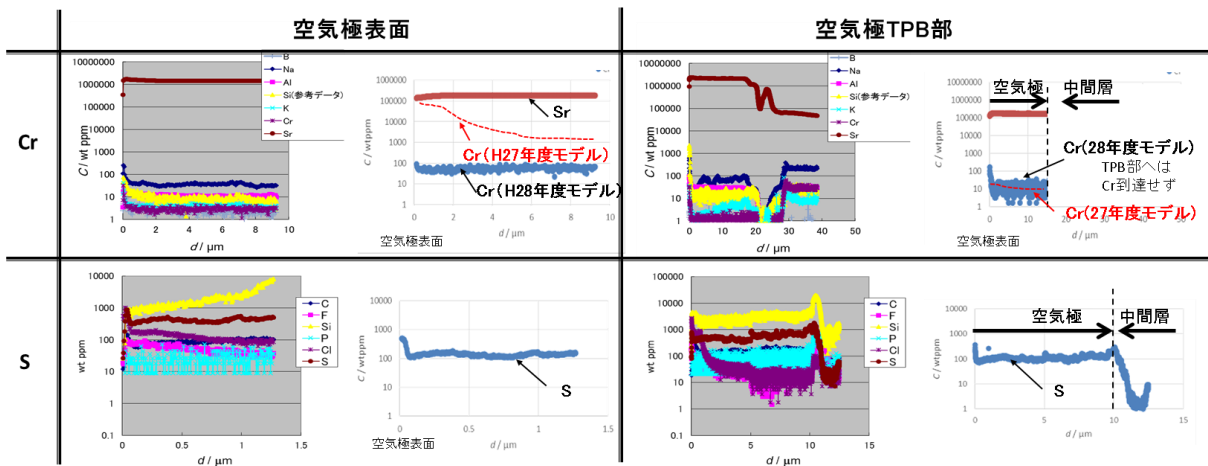


図 3-5-7.3 H27 年度(2015 年度)、H28 年度(2016 年度) モデルの空気極 SIMS 分析結果

c. IR 損増大

電力中央研究所の性能表示式から、全仕様にて IR 損増大が共通課題となった。IR 損増大の原因を調査する為、京都大学での FIB-SEM による燃料極・空気極の微細構造 (TPB) 変化、九州大学での STEM-EDS による燃料極の異相形成有無確認、産業技術総合研究所での SEM-EDS, SIMS による不純物分析、RAMAN による YSZ 電解質の相変態確認を行い、セルスタックに関する劣化要因を総合的に調査した。燃料極、空気極に関しては TPB 含め有意な構造変化は確認されず、また、電解質の相変態も確認されなかった。また、界面部の部分的剥離も確認されなかった。このことから、IR 損増大はセル内部抵抗の増大ではなく、セルスタック界面 (集電部等) での接触抵抗変化によるものと予想された。

この為、東北大との連携により、セル還元歪みを考慮できるセルスタック変形シミュレーション (SIMUDEL-TU) での計算実施、及び発電中のセル変形の直接評価を行った (図 3-5-7.4)。シミュレーション結果は測定結果と矛盾せず、発電によりセルが最大で数十 μm 変形する事が確認された。このような発電中のセル変形により、空気極または燃料極側の集電抵抗が増大し、IR 損が増大する事が予想された。

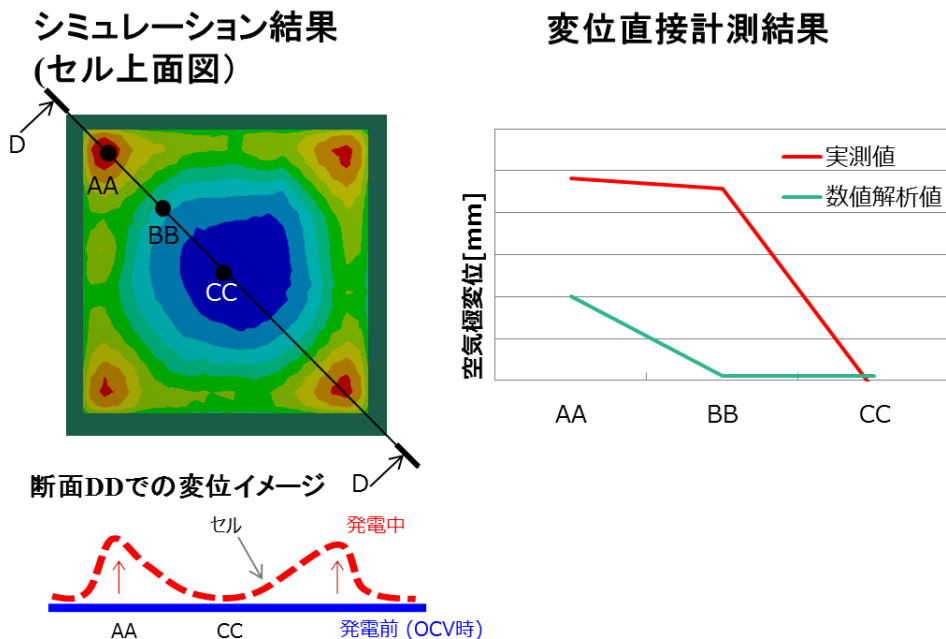


図 3-5-7.4 発電時のセル変形シミュレーション、実測結果

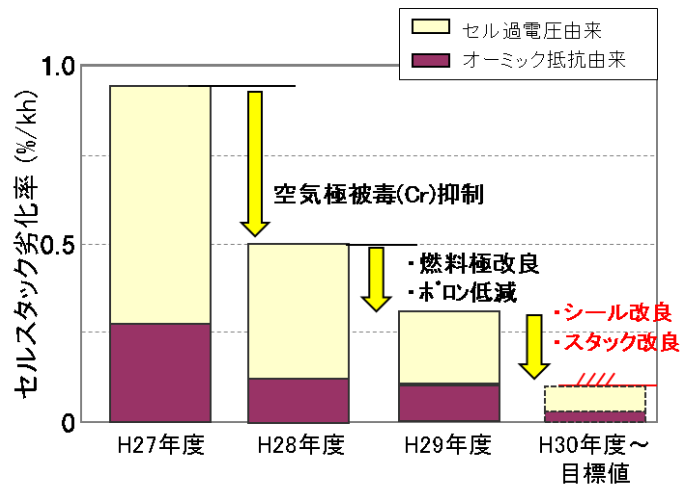


図 3-5-7.5 本プロジェクトにおける耐久性改善結果

d. まとめ

本プロジェクトにおける耐久性改善結果を図 3-5-7.5 に示した。基盤機関も含めた多方面からの評価・解析結果より、デンソー製業務用平板形セルスタックの劣化課題として、1)Cr による空気極被毒、2)ガスクロスリークによる空気極被毒促進、3)発電中のセル変形による集電抵抗増大、が抽出された。このうち、1)については金属スタック表面のコーティングにより解決可能である事が確認・検証された。2), 3)に関しては、デンソーにて解決指針を導出し、9万時間耐久を見通すためのセルスタック設計に反映させることができた。

(6) 劣化機構の解明 (2013年度～2017年度)

①熱力学的解析による劣化機構解明、加速要因分析 (産業技術総合研究所)

表 3-6-1.1 に本テーマの目標、成果と達成度を示し、そのあとに内容を記述する。

表 3-6-1.1 熱力学的解析の成果と達成度 (2016-2017 年度)

項目名称	最終目標 (2017 年度末)	成果	達成度	今後の課題
熱力学的解析による劣化機構解明、加速要因分析	劣化対策を施したセルスタックにおいて、セル構成材料と不純物との反応性・材料間反応性を解析し、劣化要因分析・劣化メカニズム解明をおこない、10 % / 9 万時間耐久を評価する。	「スタック耐久性評価」にて供されたセルスタックの劣化メカニズム解析を行うために、セル構成材料間および不純物元素との化学的・電気化学的反応を解明した。また、各スタックの劣化挙動を横断的に取り纏め、特定された劣化挙動の寄与、その劣化進展モデルを構築するために必要とされる基礎データの有無などを把握し、集学的対応の進捗を促した。	○	更なる耐久性評価に対応する高度な分析・解析技術の開発

本研究項目では、研究開発項目「スタック耐久性評価」にて供されたセルスタックの劣化メカニズム解析を行うために、セル構成材料間および不純物元素との化学的・電気化学的反応を解明する。また、各スタックの劣化挙動を横断的に取り纏め、特定された劣化挙動の寄与、その劣化進展モデルを構築するために必要とされる基礎データの有無などを把握し、集学的対応の進捗を促す。

反応駆動力の検討(熱力学平衡計算)と物質輸送速度、反応速度の解析を行う。SOFC 材料と劣化原因となる化学物質との反応を詳細に解析するとともに、異種機能材料界面での元素拡散、微構造変化現象を詳細に解析する。そのために、微量不純物元素の濃度、分布を二次イオン質量分析法(SIMS)などで解明するとともに、劣化要因の一つである ZrO_2 系電解質の相変態現象をラマン分光法にて解明する。また、劣化機構・劣化加速要因分析のために、セルスタック構成材料の界面微構造変化、界面物質輸送を解明し、9 万時間の長期運転時に起こりうる反応を予測するための基礎データを取得する。以下項目ごとに説明する。

a. セルスタックの劣化挙動解析とまとめ

スタック開発6社から提供されるセルスタックについて、耐久試験前後に解体調査を行い、劣化挙動の評価を進めた。評価にあたり、セルスタック構成材料そのものの安定性、セル構成材料間(異種材料界面)での反応性物質移動、気相等を經由して輸送される不純物元素とセル構成材料との反応性を注視した。スタック解体後は、SEM/EDS-WDS 分析によりセル全体の劣化挙動を大まかに見積もったうえで、より詳細な分析を実施している。例えば、空気極のCr被毒に代表される微量不純物元素のセル構成材料への濃集現象については二次イオン質量分析法(SIMS)による分析で、また ZrO_2 系電解質の相変態現象をラマン分光法による分析で解明を進めている。各社開発セルスタック分析の2013年度～2015年度の主な成果について表3-6-1.2にまとめて示す。

表 3-6-1.2 開発スタックに対する対応・取り組みと成果（2013年度～2015年度）

開発スタック	依頼事項	取り組みと成果
筒状平板形	長期試験前後のセルスタックの解体分析 (SEM/EDS・WDS、SIMS、ラマン分光分析)	・2008年度機など古い機体ではCrおよびSの被毒、電解質の相変態が劣化要因として確認されたが、年度を追うごとに改善、2011年度機ではこれらは確認されない。
円筒横縞形	長期試験前後のセルスタックの解体分析 (SEM/EDS・WDS、SIMS)	・TPB近傍にCr濃度の上昇を確認したが顕著な堆積は見られない。
小型円筒形	試験前後のセルスタックの解体分析 (SEM/EDS・WDS、SIMS、ラマン分光分析)	・Cr被毒対策の進展により、空気極中のクロム濃度が長期運転後も低いレベルにあることを確認。
筒状横縞形	試験前後のセルスタックの解体分析 (SEM/EDS・WDS、SIMS、ラマン分光分析)	・空気極のCr被毒は確認されない。他方、電中研運転スタックなどでS被毒の兆候を確認した。 ・ラマン分光分析で電解質の相変態を確認した。
平板形	試験前後のセルスタックの解体分析 (SEM/EDS・WDS、SIMS、ラマン分光分析)	・空気極のCr被毒、S被毒の兆候は確認されない。 ・ラマン分光分析で電解質の相変態は確認されなかった。
一体焼結形	試験前後のセルスタックの解体分析 (SEM/EDS・WDS、SIMS、ラマン分光分析)	・SIMS不純物分析により、空気極のCr被毒は問題ないレベルであること、S被毒が進行していることを確認した。 ・ラマン分光分析でScSZの相変態は初期で落ち着くことを確認した。

2016年度からは、業務用平板形を加え7社となったスタック開発会社から提供される改良後のセルスタックについて、耐久試験前後に解体調査を行い、劣化挙動の評価を実施した。

空気極の被毒およびオーム抵抗増大の原因解明（電解質の相変態現象など）を中心に劣化挙動解析を実施した。新規参画の3スタックおよび筒状平板形において電中研での試験時に社内試験と異なる特異的な劣化挙動が表れていた（2016年度まで）。各社共通的に、物理フィルターのみで試験した機体と化学フィルターを設置した機体を比較検討、さらに筒状平板型など全プロジェクトからの履歴を精査した。その結果、特異的な劣化を示す機体の空気極ではSの濃集傾向がはっきりと確認されたこと、以前の筒状平板形ではこのような特異的な劣化がみられていなかったことから、この特異的な劣化現象の主要因が空気極のS被毒であること、またある時期からS被毒が生じるようになったことが明らかとなった。LaMnO₃系の電極を使用し比較的高温で運転される高温円筒横縞形については、これまでの熱力学計算により解析した結果と変わらず、運転時期によらず空気極へのSの濃集傾向は確認されなかった。

空気極の被毒およびオーム抵抗増大の原因解明（電解質の相変態現象など）を中心とする劣化挙動に関する各社セルスタック分析の主な成果について、表3-6-1.3にまとめて示す。

表 3-6-1.3 開発スタックに対する対応・取り組みと成果（2016年度～2017年度）

開発スタック	依頼事項	主な取り組みと成果
筒状平板形	長期試験前後のセルスタックの解体分析(SEM/EDS・WDS、SIMS、ラマン分光分析)	<ul style="list-style-type: none"> ・大阪ガスにて40000時間超運転の実証機(2010年度機)の解体分析を実施、従来通り燃料極側での電解質の相変態、空気極のCrおよびS被毒など確認されるが、燃料極も含め、新たな劣化要因は生じていないことを確認。 ・樹脂埋め研磨試料で空気極の不純物分析を新たに実施、汚染源の位置と空気流れが被毒に与える影響について考察した。
円筒横縞形	長期試験前後のセルスタックの解体分析(SEM/EDS・WDS、SIMS)	<ul style="list-style-type: none"> ・電中研試験機(S被毒対策前)でもSの被毒がないことを確認。 ・23,000時間運転Cr被毒源有の解体分析を実施、空気極および集電層中へのCrの濃集は確認されるが、Cr被毒の兆候は確認されない。
小型円筒形	試験前後のセルスタックの解体分析(SEM/EDS・WDS、SIMS、ラマン分光分析)	<ul style="list-style-type: none"> ・空気極のCr被毒およびS被毒に関する分析を中心に実施。 ・電中研試験機(S被毒対策前)でSの濃集を確認。 ・空気極のCr被毒およびS被毒に関する分析を中心に実施。化学フィルターの導入によるS被毒の低減効果を確認した。
筒状横縞形	試験前後のセルスタックの解体分析(SEM/EDS・WDS、SIMS、ラマン分光分析)、電解質オーム損増大にかかる連携	<ul style="list-style-type: none"> ・東北大とも連携し、シミュレーションの精密化に向け、電解質の相変態現象へのNi固溶状態、運転温度の影響についてのデータ取得と解析を中心に取り組みを実施。 ・オーム損増大のその他要因について検討、評価した。
平板形	試験前後のセルスタックの解体分析(SEM/EDS・WDS、SIMS、ラマン分光分析)	<ul style="list-style-type: none"> ・電中研試験機で空気極のSi被毒とそれにとも会うCr被毒、S被毒の兆候を確認(→現在は対策済み。) ・燃料極におけるPの影響に注目。 ・電中研試験機で化学フィルター有りで試験を実施したショートスタックの解体分析を実施。化学フィルター設置による不純物被毒の低減については明確な効果は認められない。電解質及びアノード中ジルコニアの相変態は認められなかった。
一体焼結形	試験前後のセルスタックの解体分析(SEM/EDS・WDS、SIMS、ラマン分光分析)	<ul style="list-style-type: none"> ・電中研試験機(S被毒対策前)でSの濃集を確認。 ・電中研で化学フィルター有りで試験した3セルスタックの解体分析において、空気入口付近でのS濃集は無く、運転中にS被毒が生じていないことが示された。
業務用平板形	試験前後のセルスタックの解体分析(SEM/EDS・WDS、SIMS、ラマン分光分析)	<ul style="list-style-type: none"> ・初期劣化後の解体分析において、2016年度機においてCr被毒対策の効果を確認、2015年度機に比較して大幅に被毒が抑制。 ・社内での長期運転試験後の解体分析を実施した結果、空気入り口付近での不純物の濃集傾向を確認。2017年度機で対策を実施。 ・初期劣化後の解体分析において、空気極被毒対策を施した2017年度機において、被毒の抑制は明確には確認されなかった。セルと接続金属のシールが破損していたことが要因として考えられた。

b. 劣化機構解明

本プロジェクトにおける電中研での試験から、実セルスタックにおける劣化において大きな割合を占めているのはオーム抵抗成分および空気極反応抵抗成分の増加分であった。ここでは主にオーム抵抗成分の増大要因について、本プロジェクトでの成果を示す。

本研究項目ではオーム抵抗増大要因として、YSZ 電解質の相変態、YSZ/GDC 界面近傍に生成する SrZrO₃ 相、および YSZ/GDC 界面における Gd₂Zr₂O₇ 相、について検討を行った。なお、YSZ 電解質の相変態についてはシミュレーション技術開発の項目にて詳細に述べる。

i) SrZrO₃(SZO) 相の生成とその影響

i)-1 SZO 生成機構

前プロジェクトにおける、パルスレーザー堆積法(PLD)で作製した GDC 中間層を持つ、モデル試料における SZO 生成試験において、GDC 中間層に存在するクラックや粒界が Sr や Zr の拡散の高速パスとなっていることを明らかにした。本プロジェクトでは、単結晶基板の活用や PLD 成膜技術のさらなる活用により、より詳細に拡散パスを検証した。

まず、YSZ 多結晶基板上に GDC 緻密層を PLD で作製し、さらに緻密または多孔質の LSCF 層を重ねたモデル試料を用い、空気極の構造が SZO 生成に及ぼす影響を検証した。図 3-6-1.1 に 800°C-1000°C でアニールしたそれぞれのモデル試料の表面および断面の SEM 分析結果を示す。アニール温度の増加に伴って、SZO の生成量が増加するとともに、GDC 層の微構造変化、LSCF の微細構造変化、が見られた。SZO の生成は LSCF が多孔質の場合により顕著であった。この結果は、LSCF が多孔質である場合に LSCF からの Sr の供給がより促進されたことを表している。LSCF 粒子表面における表面拡散、または Sr のガス相への揮発を伴うガス相経由の物質移動が Sr の反応場への供給促進に関与していることが示唆される。

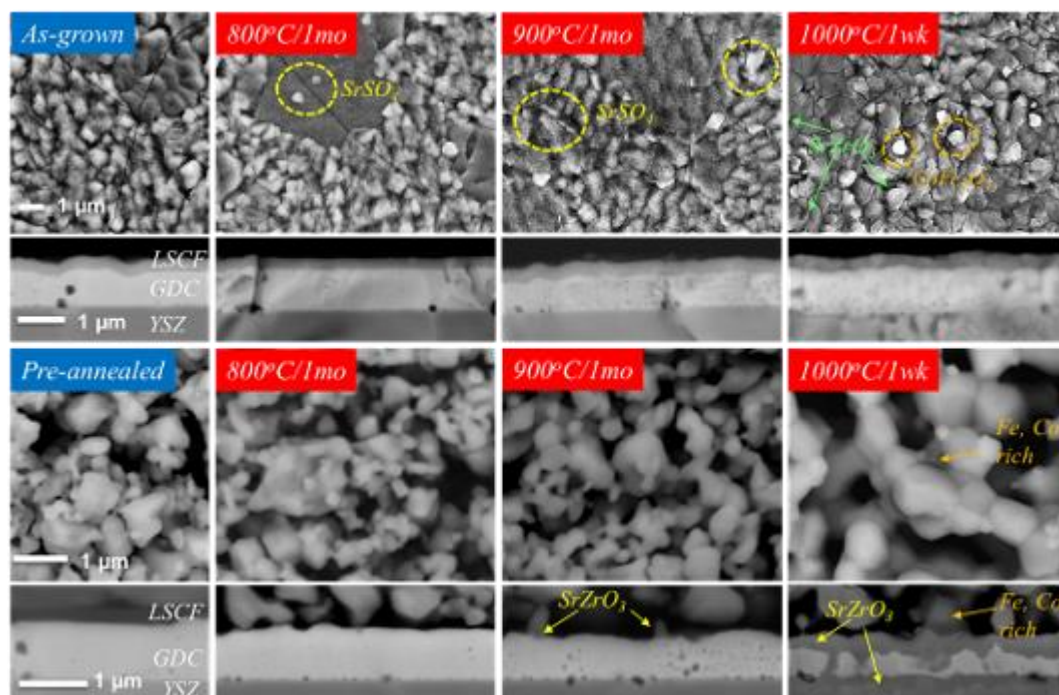


図 3-6-1.1 (上段) 緻密な LSCF/GDC/YSZ の表面と断面観察。(下段) 多孔質な LSCF/GDC/YSZ の表面と断面観察

電解質側からの Zr の供給について検討するため、電解質として粒界を有する多結晶 YSZ とほとんど粒界がない (100) 面の YSZ 単結晶基板を使用したモデル試料を作製し、SZO 生成状態を比較した。それぞれの YSZ 基板上に PLD 法による約 2.5 μm 厚みの緻密な GDC 中間層を作製し、その上にスクリーンプリント法により LSCF 電極を作製した。作製したモデル試料について、800°C における OCV 条件及び一定電流印加条件 (-0.3 A) での性能評価試験を行った。

図 3-6-1.2 に、多結晶 YSZ を用いた試料の OCV、通電後の代表的な断面 SEM 観察結果及び

EDX元素マッピングを示す。OCV試験ではGDC/YSZ界面近傍のGDC側に閉気孔の形成が見られた。OCV、一定電流下のどちらでもSrZrO₃(SZO)の生成はGDCの粒界部分で顕著であるが、OCVではGDC粒界上のLSCF/GDC界面近傍に粒子状に生成しているのに対し、一定電流下ではGDC層中に縦にはっきりとSZOの生成が確認できた。図3-6-1.3には、YSZ単結晶基板を用いた際の結果を示す。多結晶YSZの結果とは異なり、OCV条件においてもGDC中間層の変化が見られず、またSrZrO₃も生成せず、安定な界面が保たれていた。電流印加下ではわずかに縦方向のSZO生成が見られたが、多結晶YSZと比較して顕著に減少した。これらの結果から、YSZからのZrの供給にはYSZにおける粒界の有無が影響しており、YSZ粒界におけるZrの拡散が主な供給パスとなっていることが示唆された。

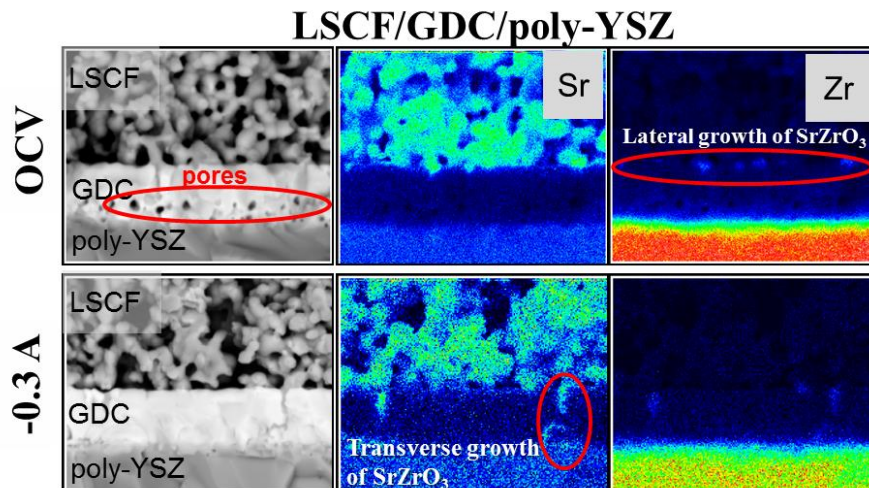


図3-6-1.2 LSCF/GDC/多結晶YSZの断面SEM/EDX分析結果。

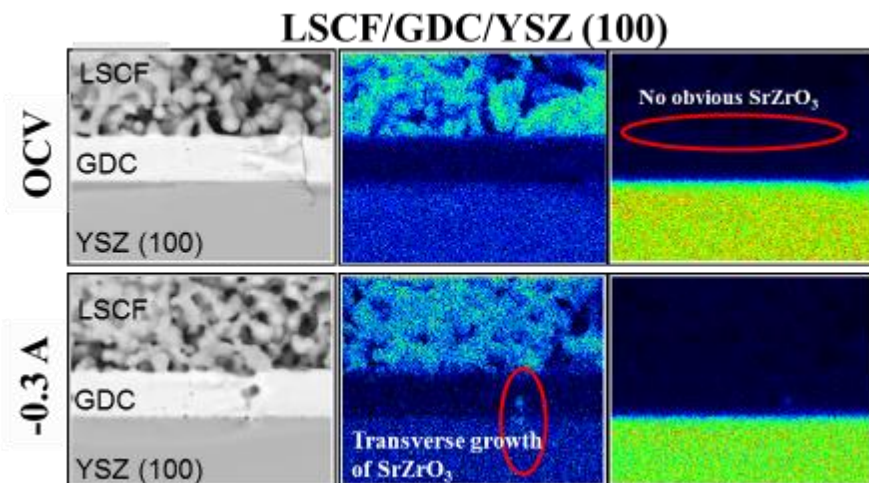


図 3-6-1.3 LSCF/GDC/(100) YSZ 単結晶基板の断面 SEM/EDX 分析結果。

図3-6-1.4にインピーダンス解析から抽出した分極抵抗(R_p)成分の経時変化を表す。多結晶YSZを用いた場合、OCV下では R_p が大きく上昇したが、多結晶での一定電流下、(100)YSZ単結晶基板を用いた試料では R_p の上昇は顕著に低減した。これらの結果は、SZOの生成量だけでなく、生成する場所により電極性能の低下傾向が異なることが示唆された。OCV下ではLSCF/GDC界面にSZOが生成するため、反応抵抗の増大が大きくなり、多結晶YSZの場合にはSZOの生成量も多くなるため、さらに顕著な反応抵抗の増大につながった。

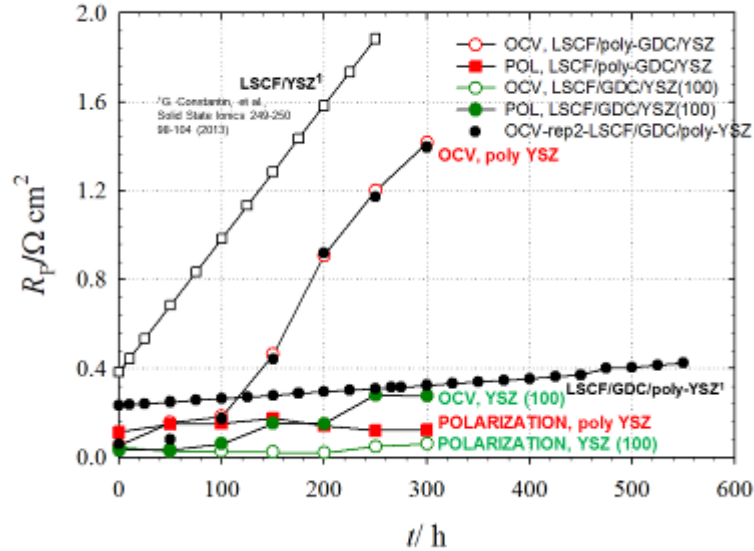


図 3-6-1.4 800° C における OCV 条件及び一定電流印加下 (-0.3 A) に測定したインピーダンス解析による抽出した分極抵抗 (R_p) の経時変化。

i)-2 SrZrO₃ (SZO) 生成防止方法

上記に述べたLSCF/GDC/YSZ界面近傍におけるSrZrO₃ (SZO) 生成挙動に関する知見から、界面でのSZO抑制方法を見出し、特許を出願した(特願2017-092313、長寿命固体酸化物形燃料電池セル)。SZOの生成には、LSCF電極表面や粒界におけるSrの速い拡散が重要であることがわかったので、これら高速拡散パスをふさぐことを目的に、多孔質LSCFとGDCの界面にLSCFの緻密薄膜層を挿入した。図3-6-1.5に作製した試料の断面SEM像を示す。約300nmの緻密LSCF層が多孔質LSCF電極と緻密GDC層の間に挿入されていることがわかる。この電極における界面抵抗の時間変化を、緻密層を挿入していない試料と比較した結果を図3-6-1.6に示す。緻密層を入れたことで、性能低下速度が約1/80となったことがわかる。SIMS分析からは、狙い通りLSCFからのSr、Co、Fe成分のGDC/YSZ界面への拡散が1/2~1/4に抑えられていることが分かった。

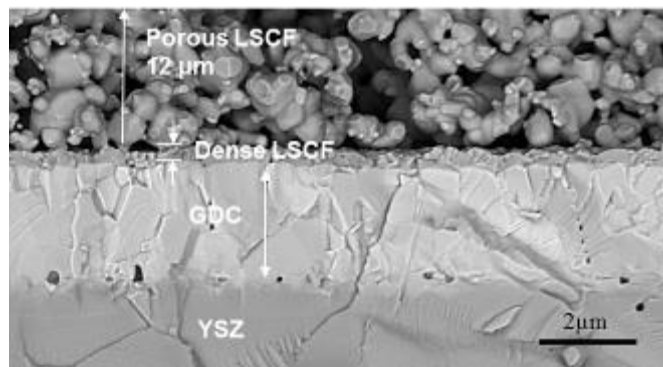
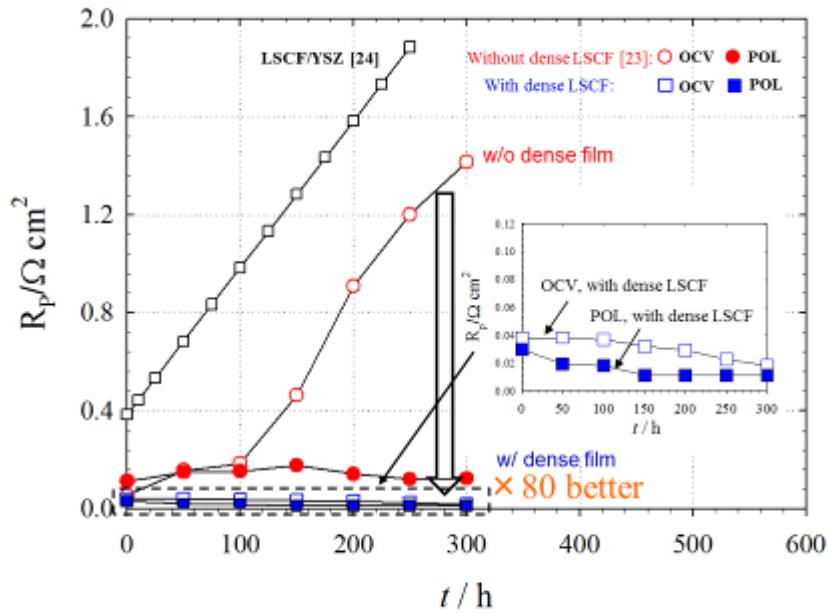


図3-6-1.5 多孔質LSCFとGDC層の間に緻密LSCF層を挿入した試料のSEM像



Ref. [23] J. De Vries, et al., *Journal of The Electrochemical Society*, 164(4) F259-F269 (2017)
 Ref. [24] G. Constantin, et al., *Solid State Ionics*, 248-250, 98 (2013).

図3-6-1.6 緻密LSCF層挿入効果

i)-3) SZO/YSZ 界面による酸化物イオン拡散のブロッキング効果

SZOの生成による性能低下メカニズムを検証するため、緻密なモデル界面を有するGDC/SZ/YSZ多層構造をPLD法により作製し、酸素同位体交換及びSIMS分析による検討を行った。また、SZOの Y 成分が固溶した際の効果を評価するため、5mol% Y をドーブした $(\text{Sr}, \text{Y})\text{ZrO}_3$ (SZYO)を用いた同様の試験も行った。

図3-6-1.7に、各試料の断面SEM観察結果及びSIMS分析結果を示す。GDC層とSZO層、SZYO層はすべてナノ柱状粒子により構成され、かつ、緻密な界面になっていることが確認された。酸素同位体交換は 600°C 、20kPa、5分間で行い、SIMS分析により試料に導入された ^{18}O 濃度を評価した。GDC層内、SZO層内、SZYO層内ではそれぞれほぼ一定の ^{18}O 濃度プロファイルが得られた。これらの層内では酸化物イオンの移動が十分に速いことがわかる。一方、GDC/SZO界面やSZO/YSZ界面、SZYO/YSZ界面においては ^{18}O 濃度の急峻な低下が見られた。特にSZO, SZYOとYSZからなる界面では、濃度低下が著しい。これは、酸化物イオン拡散に対して障壁効果(ブロッキング効果)が現れたと推測できる。

ブロッキング効果が顕著に表れたSZO(SZYO)/YSZ界面における微構造の特徴及びより詳細な元素分布を調べるため、STEM/EDX分析および空間分解能なEELS(電子エネルギー損失分光法)分析を行った。STEM観察結果を図3-6-1.8に示す。SZOおよびSZYO薄膜は柱状ナノ粒子により構成されており、かつ、YSZとの界面においては二次相が存在しないことが確認された。但し、界面近傍で結晶歪による欠陥が多く存在することが分かった。更に、図3-6-1.9に示すように、界面近傍のYSZ側での酸素 K エッジのスペクトルの変化が見られた。SZO(SZYO)とYSZの界面に生じる酸素の電子状態の変化(disorder)が起きていることが示唆される。これらの要因が酸化物イオンの移動をブロックしていると思われる。

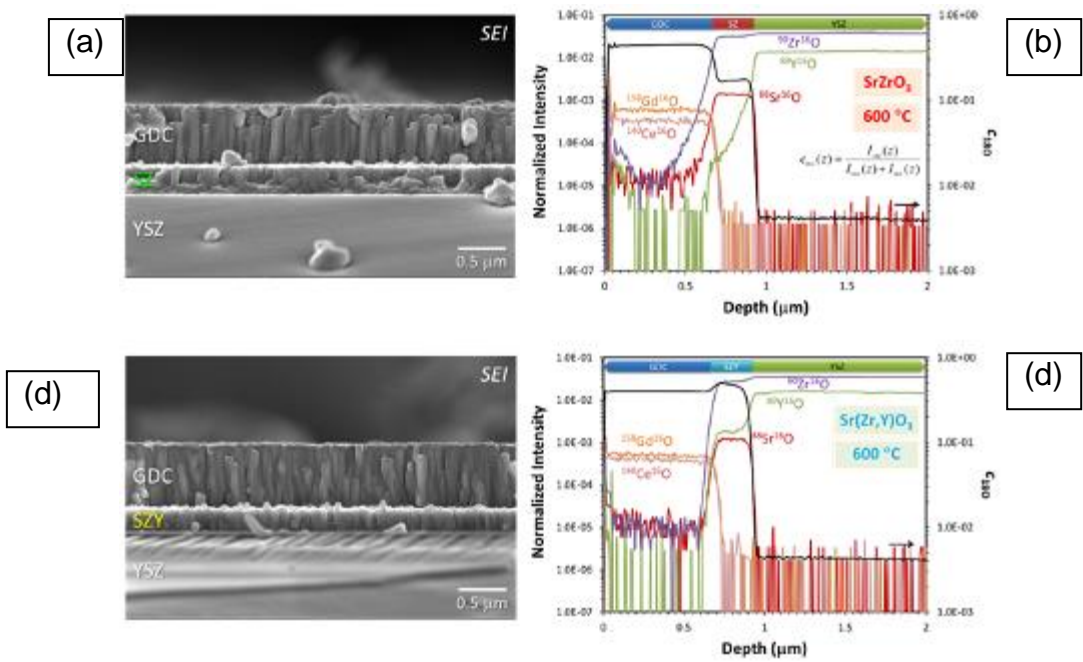


図 3-6-1.7 (a) GDC/SZ/YSZ の断面 SE 像、(b) SIMS 深さ方向プロファイル
(c) GDC/SSZ/YSZ の断面 SE 像、(d) SIMS 深さ方向プロファイル

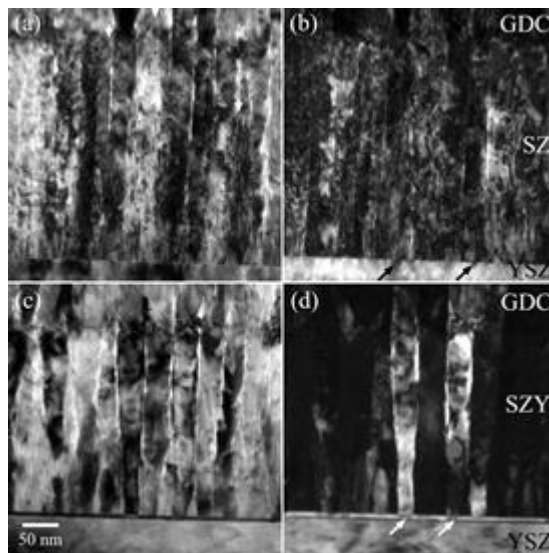


図3-6-1.8 (a)-(b) GDC/SZ/YSZ と (c)-(d) GDC/SZY/YSZの断面TEM観察結果
(左：明視野、右：暗視野)

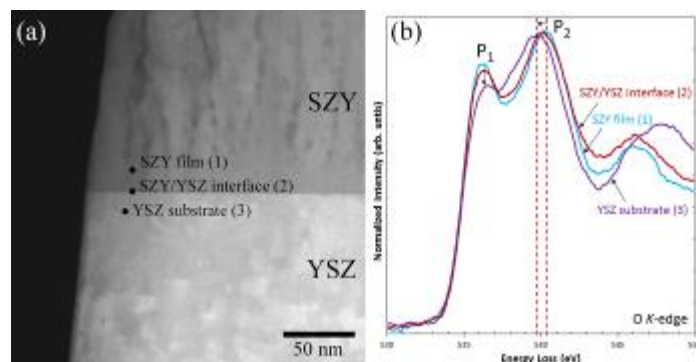


図3-6-1.9 (a)GDC/SZY/YSZの断面TEM像 と (b) EELS分析結果。

ii) $Gd_2Zr_2O_7$ (GZO) 相生成による影響

ii)-1) GZO/YSZ 界面における酸化物イオン拡散挙動

GDC/YSZ界面においては、SZOのほかに相互固溶により $Gd_2Zr_2O_7$ (GZO)が形成されることが熱力学平衡計算および京都大学におけるモデル試験結果から示唆されている。GZO/YSZ界面において、SZO/YSZ界面でみられたような、酸化物イオン拡散へのブロック効果が見られるかどうかを検証した。図3-6-1.10に実験に使用したモデル試料の模式図を示す。(100)配向したYSZまたは13YSZ単結晶基板の上に、PLD法により厚さ約200nmのGZO薄膜を作製した。このこの試料を600°Cで酸素同位体交換処理を行い、二次イオン質量分析計(SIMS)により界面における酸化物イオン拡散の挙動を評価した。図3-6-1.11にSIMS分析結果を示す。GZO内の $c(^{18}O)$ プロファイルはほぼフラットであり、GZO内における酸化物イオン拡散は遅くないことがわかる。また、GZO/YSZ界面においても $c(^{18}O)$ 濃度の急激な低下などは見られなかった。SZO/YSZ界面で見られたような酸化物イオン拡散のブロック効果は、GZO/YSZ界面では見られないことが分かった。GZO生成のオーム抵抗増大への影響は大きくないことが示唆された。

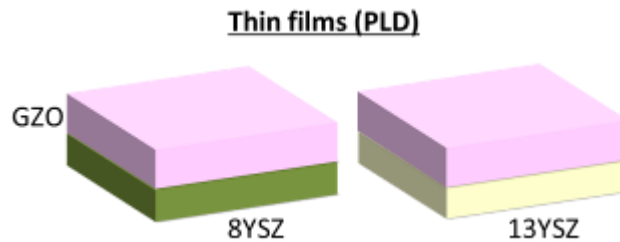


図3-6-1.10 $Gd_2Zr_2O_7$ (GZO) /YSZ理想界面モデル試料の模式図

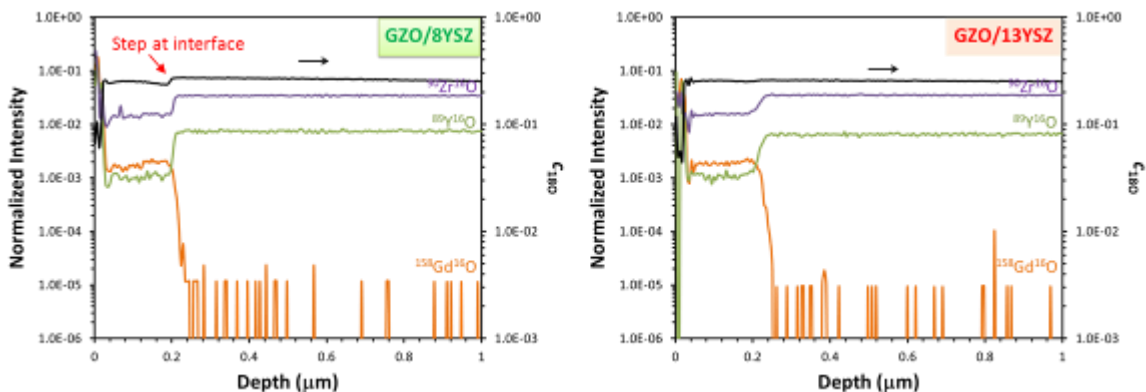


図3-6-1.11 GZO/YSZ界面近傍における酸化物イオン拡散プロファイル

c. 加速要因分析

本プロジェクトにおける電中研での試験から、実セルスタックにおける劣化において大きな割合を占めているのはオーム抵抗成分および空気極反応抵抗成分の増加分であった。ここでは主に空気極反応抵抗成分の増大要因について、本プロジェクトでの成果を示す。

本研究項目ではLSCF空気極における反応抵抗の増大要因として、i) Cr被毒、ii) SO_2 被毒について加速的な劣化試験を行い、そのメカニズムについて検討した。これらの結果から、不純物被毒に対する総括を行った。

i) Cr被毒に対する迅速劣化評価

i)-1) 多孔質電極におけるCr被毒機構の検討

本プロジェクトでは、前プロジェクトで行ってきた高濃度Cr蒸気におけるから引き続き、LSCF空気極におけるCr被毒のメカニズムに関する検証を進めている。Cr減として酸化処理をしたCr金属を用い、セル試験における電極性能低下を評価するとともに、試験後空気極中のCr蓄積をSEM/EDX等を用いて評価した。本プロジェクトでは、より詳細にCr被毒メカニズムを明らかにし、性能低下要因を明らかにした。

Cr被毒において、Adler-Lane-Steele(ALS)モデルを用い空気極劣化の要因解析を行った。図3-6-1.12に973K、75時間、開回路下でCr被毒試験を行った際のインピーダンス

スペクトル変化およびそのALSモデル解析結果を示す。時間とともに低周波側の円弧が大きくなった。ALSモデルで解析を行うと、その要因が電極の表面反応に関連する表面酸素交換反応係数 k^* の低下であり、LSCF内の酸素拡散に関連する拡散係数 D^* はほぼ変化がないという結果が得られた。これは多孔質電極を構成するLSCFのバルク部分はCr被毒の影響をあまり受けていないが、LSCF空気極表面が大きく影響を受けていることを示唆する結果である。

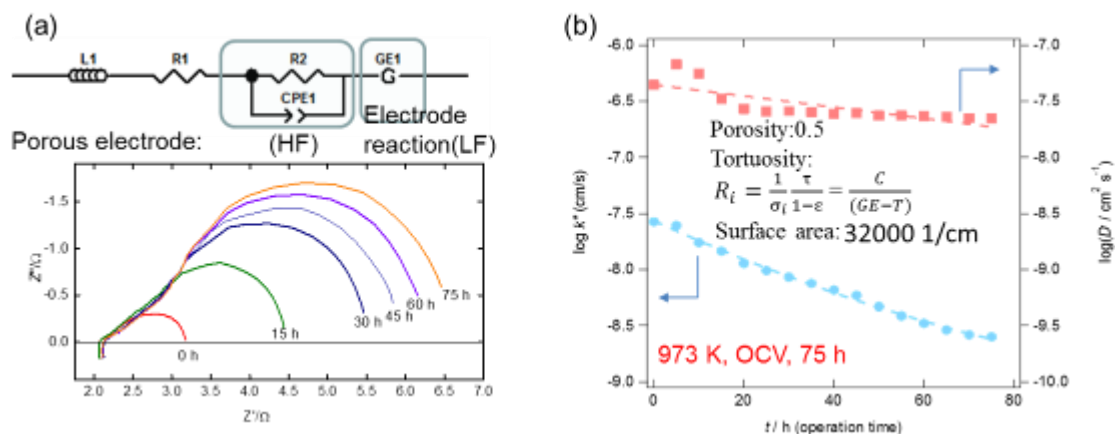


図3-6-1.12 973K、75時間、開回路下でCr被毒試験を行った際の (a)インピーダンススペクトル変化、および(b)ALSモデル解析結果

i)-2) LSCF 焼結体を用いた Cr 被毒機構の検討

多孔質LSCF空気極におけるCr被毒現象を理解するため、LSCF焼結体をモデル試料としてCr被毒試験を行い、被毒過程における k^* および D^* の変化を酸素同位体交換とSIMS分析により評価した。図3-6-1.13に被毒時間に対する k^* および D^* の変化を示す。Cr被毒時間とともに k^* は低下するが、 D^* はほぼ変化しなかった。この変化は多孔質電極のCr被毒における変化と一致した。被毒試験後のLSCF焼結体表面について、断面をSTEM/EDSで分析した(図3-6-1.14)。 SrCrO_4 粒子がLSCF表面に析出し、LSCF焼結体表面近傍においてSrとCo濃度の低下がみられた。SrやCoの欠乏している領域は表面から50nm程度の範囲であった。多孔質LSCF空気極表面においても、同様の表面組成変化が起きていたことが示唆される。

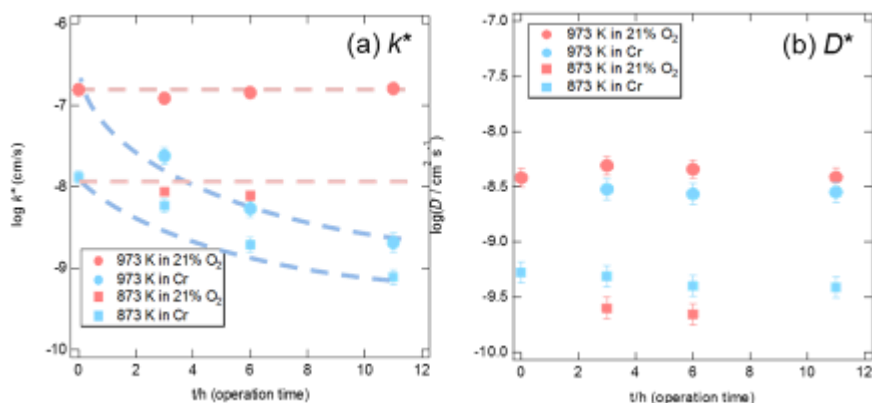


図3-6-1.13 LSCF焼結体におけるCr被毒時間に対する(a) k^* 、(b) D^* の変化

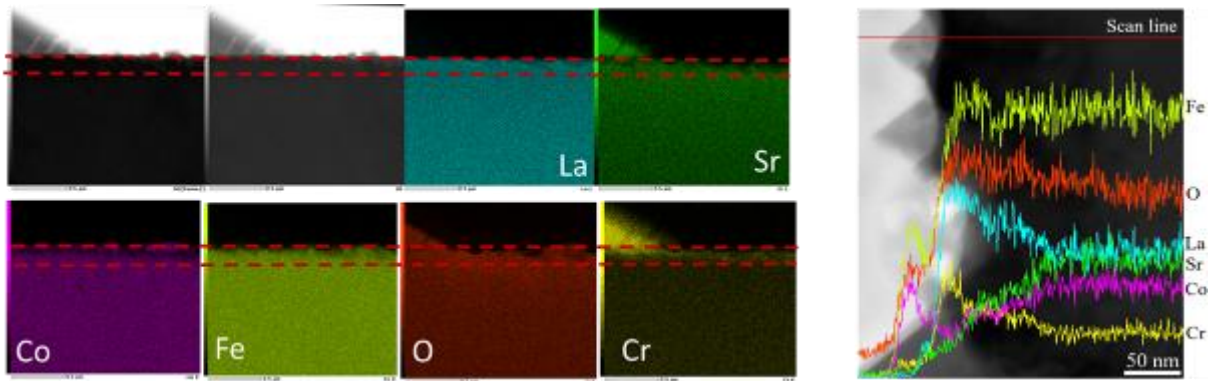


図3-6-1.14 Cr被毒試験を行ったLSCF焼結体表面の断面STEM/EDS分析結果

i)-3) Cr 被毒機構に関する考察

高濃度Cr蒸気を用いたLSCF空気極のCr被毒加速試験においては、多孔質LSCF空気極においても、LSCF焼結体を用いたモデル試験においても、電極表面反応に関連する k^* が低下し、電極内における酸化物イオンの拡散に関連する D^* はほぼ変化がなかった。Cr被毒に対する熱力学計算結果を図*15に示す。Crとの反応の最初の段階(Region I)では、 SrCrO_4 の生成量の増加とともに、LSCF中のB-site元素であるCoとFeが CoFe_2O_4 を生成する。この時、母相であるLSCF中のSr濃度、Co濃度が低下し、酸素不定比量 δ も低下する。LSCF焼結体の表面数十nmの領域においてSr濃度、Co濃度が低下し、酸素不定比量 δ も低下することで、表面交換反応係数 k^* の低下が起こったと結論できる。

Thermodynamics calculation results on reaction of LSCF with Cr-containing oxygen at 0.21 atm

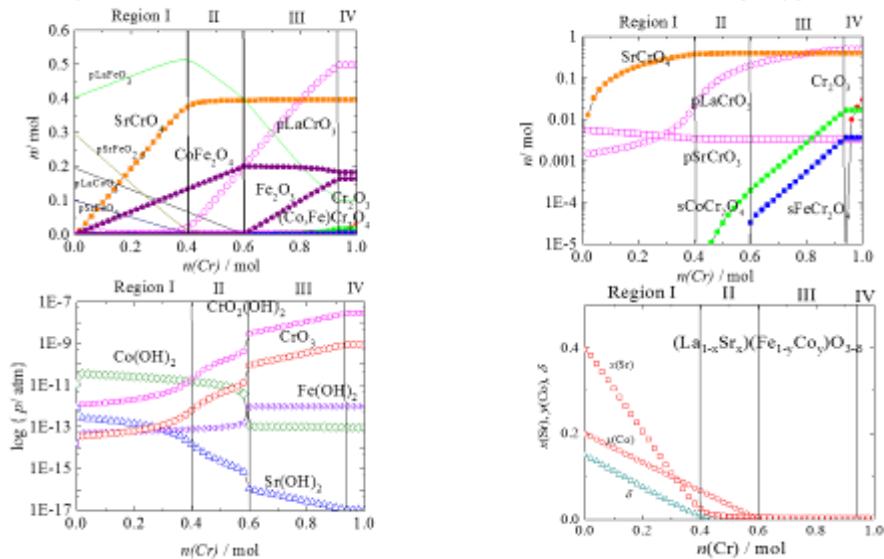


図3-6-1.15 LSCFにおけるCr被毒に対する熱力学計算結果

電極表面に生成する SrCrO_4 は、被毒時間とともに粒子の粗大化が進むとともに、小さな粒子が消失する、オストワルド成長のような現象が見られた。また、20時間程度のCr被毒処理で粗大化した SrCrO_4 粒子は数 μm の間隔で存在していた(図3-6-1.15)。これらのことから、LSCF表面におけるSr成分(+Cr成分、または SrCrO_4)の移動(拡散)速度は非常に速いことが示唆される。

一方、断面分析結果(図3-6-1.16)から、LSCF表面から10~50nm程度の領域でのみ組成が変化していることがわかる。表面での SrCrO_4 生成のためにSrがLSCF内、表面から数十nmの領域から供給されているとして計算したLSCF中のSrの拡散係数を図*17に示す。空気極材料やYSZにおける陽イオン拡散係数と比較しても、ほぼ同程度の値であることがわかる。これはLSCF内部から表面へのSr供給の主たる経路がバルク拡散であることを示している。

LSCF表面におけるSrの拡散距離(数 μm オーダー)はLSCFにおけるバルク拡散距離(数十nm)の100~1000倍であり、Srの供給速度(拡散係数)も同程度の倍率で異なること示唆される。 D_{Sr} (表面

近傍)>> D_{Sr} (バルク) の関係であることで、加速的な Cr 被毒試験では k のみが低下する空気極性能低下が起きた要因と結論された。LSCF 表面近傍での速い物質移動は、表面拡散のほかに、ガス相經由による物質移動も考慮する必要がある。

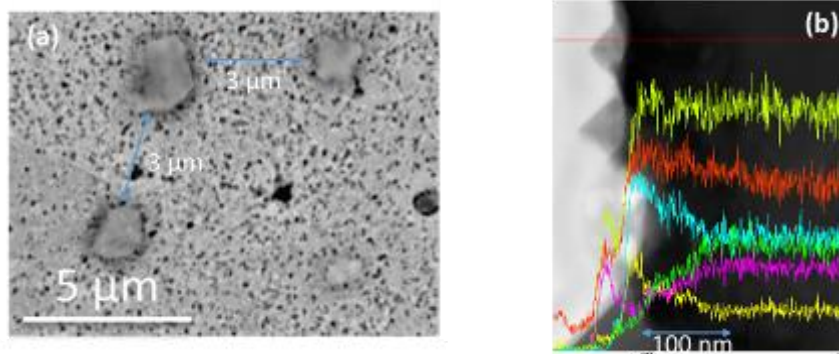


図 3-6-1.16 LSCF 焼結体モデル試料における Cr 被毒試験後試料の分析結果。
(a) 表面 SEM 像、(b) 断面 STM/EDX 分析結果

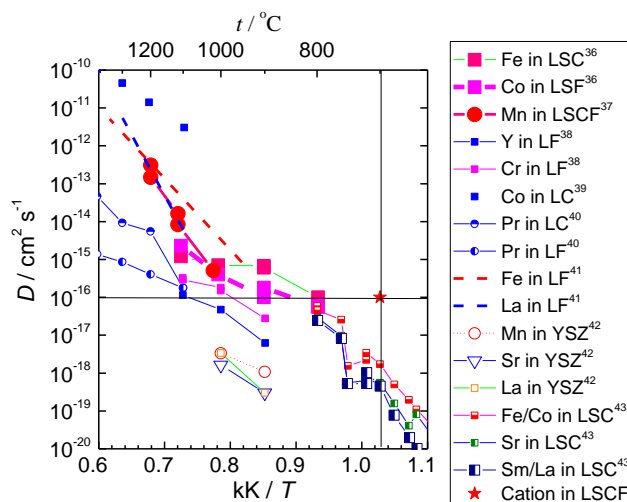


図 3-6-1.17 LSCF 焼結体モデル試料における Cr 被毒試験後試料の分析結果

ii) SO₂ 被毒に対する迅速劣化評価

ii)-1) 多孔質空気極による低濃度 SO₂ 被毒試験

前プロジェクトでは、比較的高い SO₂ 濃度による加速的な SO₂ 被毒試験を行っていたが、SO₂ 濃度により被毒機構が異なること、突然死のような性能低下がみられ、実セルスタックにおける SO₂ 被毒現象に対応する情報取得が難しい、ということから、本プロジェクトでは SO₂ 濃度を 0.1ppm、0.01ppm と低くして加速的な被毒試験を行った。

LSCF 多孔質空気極における SO₂ 被毒に対して、電流密度の影響を評価した。図 3-6-1.18 に 700°C における SO₂ 被毒試験結果を示す。各電流密度 (0.1A, 0.2A, 0.3A) 下において空気極性能安定後に 0.1ppm SO₂ を含む空気を導入した。0.1A の試験では、100 時間の運転で空気極-参照極間の電圧が 13mV 程度上昇したが、0.2A、0.3A の試験では約 30mV 上昇した。電流密度が大きいほど電圧低下が顕著である傾向が示された。図 3-6-1.19 に SO₂ 被毒試験後の LSCF 空気極断面の SEM 像と硫黄の EDX 分析結果を示す。硫黄は LSCF 空気極/電解質界面の近傍に蓄積しやすいことが示された。この傾向はこれまでの 800°C における 1ppm 試験の結果と同様であった。また検出される硫黄の強度は、電流密度の上昇とともに上昇した。電流密度が高いほど LSCF/GDC 界面近傍での硫黄蓄積量は増大することが分かった。空気極過電圧の増大が SrSO₄ 生成を促進したことが示唆される。

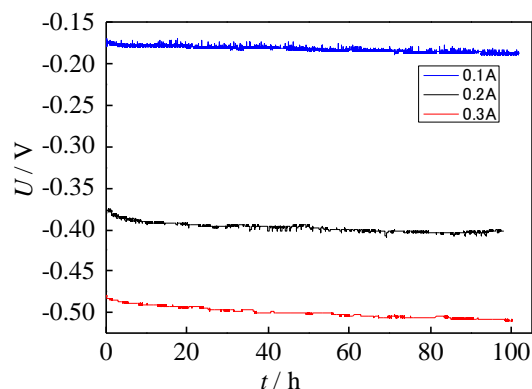


図 3-6-1.18 一定電流印加下における空気極-参照極間電圧の時間変化。運転温度は 700°C。0.1ppm SO₂を導入した時点が 0h に対応。

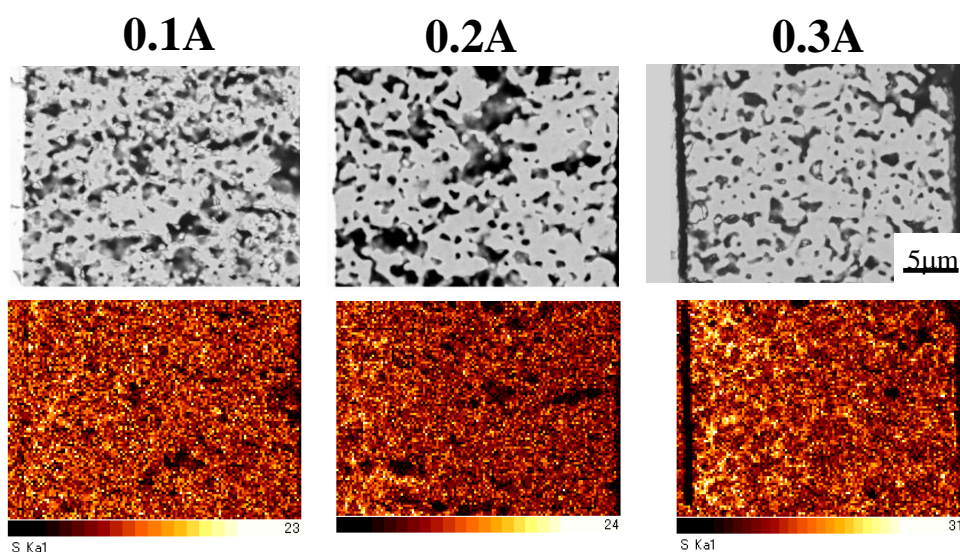


図 3-6-1.19 SO₂ 被毒試験後 LSCF 空気極内部の SEM/EDX 分析結果

さらに、SO₂ 被毒について 0.01ppm(10ppb) という低濃度での LSCF 空気極被毒試験を行い、温度の影響について検討した。図 3-6-1.20 に、650°C~800°Cにおける SO₂ 被毒試験結果を示す。各温度(650°C、700°C、800°C)において空気極性能安定後に 0.01ppm SO₂を含む空気を導入した。約 300 時間の運転で、空気極-参照極間の電圧は 650°Cで約 38mV、700°Cで約 34mV、800°Cで約 6mV 低下し、運転温度が低いほど性能低下が大きい傾向がみられた。インピーダンススペクトルから求めた反応抵抗成分、オーム抵抗成分も図 3-6-1.20 に合わせて示した。650°Cおよび 800°Cでは反応抵抗のみが増加したのに対して、750°Cでは反応抵抗とオーム抵抗の両方が増加していた。試験後のセルの外観では、800°Cでは空気導入部分でのみ空気極の変色(黒色化)が確認された。運転温度の低下とともに変色部の領域は広がっていた。図 3-6-1.21 に LSCF 空気極中心部付近の断面 SEM 像と硫黄の EDX 分析結果を示す。800°Cでは LSCF 空気極表面近傍から LSCF 粒界付近で優先的に SrSO₄ 粒子が生成したことがわかる。一方で、TPB における明確な硫黄の濃集は確認されなかった。700°Cでは LSCF 空気極/電解質界面の近傍に硫黄が蓄積していた。この位置に硫黄分が濃集するのは、前プロジェクトで見られた 700°Cにおける 0.1ppm 試験結果、800°Cにおける 1ppm 試験結果と同様であった。650°Cでは顕著な硫黄の濃集箇所は EDX では検出できなかった。これらの結果から、①800°Cでは空気極導入部分で SrSO₄ を生成することで硫黄をトラップしており、電極の劣化が少ない、②運転温度が低下するにしたがって空気極導入部における硫黄トラップ効果は低下する、③TPB 近傍では SrSO₄ 生成量が増加し、電極性能の大きな低下を引き起こす、④さらに低温では TPB での S との反応も減少するが、影響を受ける領域の拡大を伴うことで大きな性能低下を引き起こす、ことが明らかとなった。

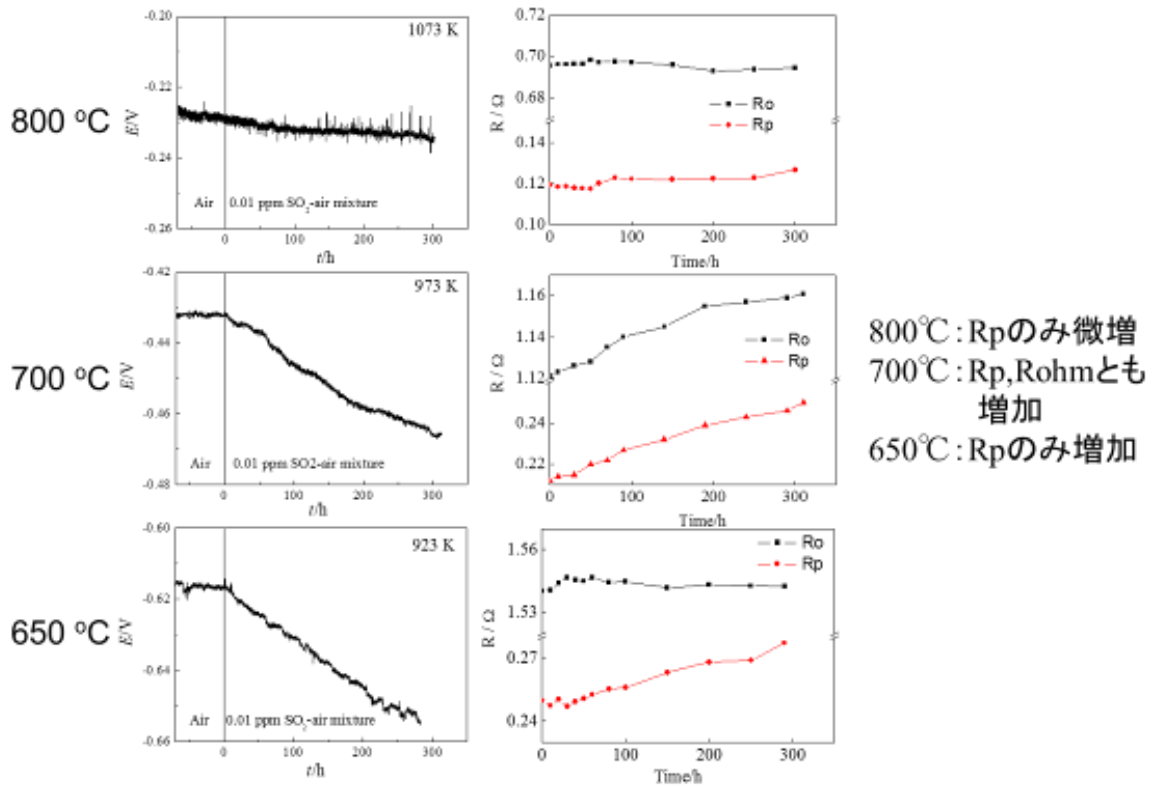


図 3-6-1.20 一定電流印加(300mA)下における空気極-参照極間電圧の時間変化。運転温度は 650～800°C。0.01ppm SO_2 を導入した時点が 0h に対応。

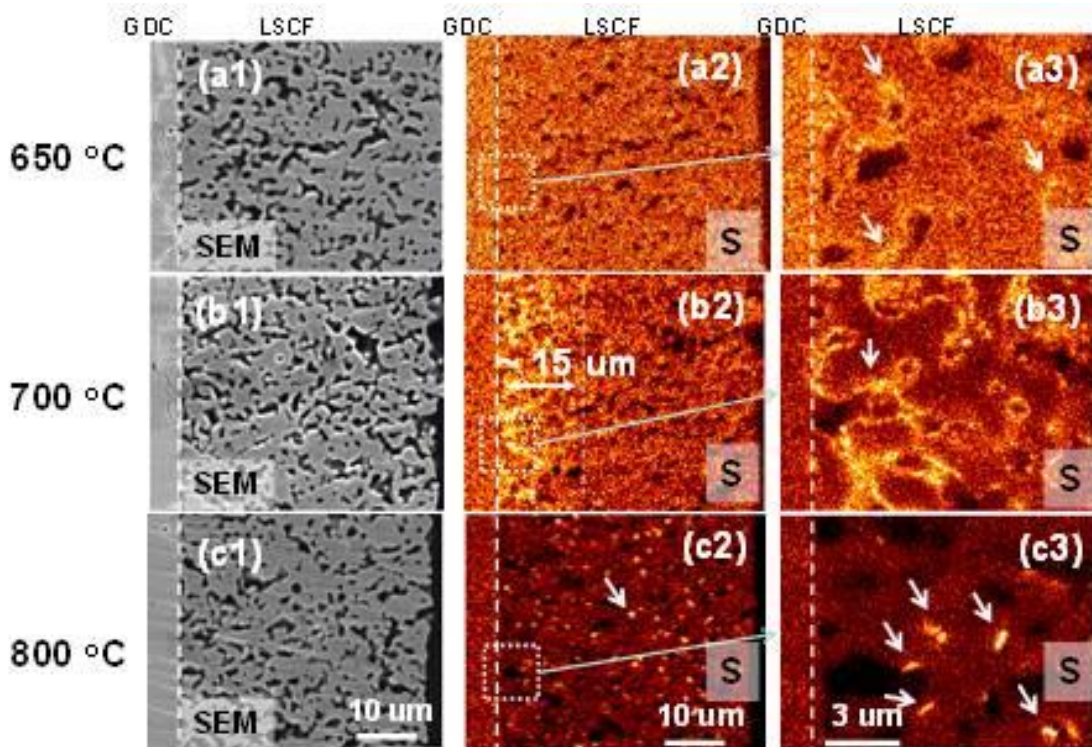


図 3-6-1.21 0.01ppm SO_2 被毒試験後 LSCF 空気極内部の SEM/EDX 分析結果

より詳細に $SrSO_4$ 生成機構を明らかにするため、700°Cおよび650°C、0.01ppm SO_2 被毒試験を行った電極について、STEM/EDX 分析を行った。図 3-6-1.22、図 3-6-1.23 に 700°C、650°Cの試験後の電極の分析結果をそれぞれ示す。700°C試験後の電極では、電極表面、TPB 近傍のどちらにおい

でも SrSO₄ 粒子と Co-rich 粒子の生成が確認できた。TPB 近傍では表面と比較して SrSO₄ の析出量が多く、析出粒子の大きさも大きい。650℃試験後の電極においても、EDX では検出できなかったが、表面、TPB 近傍のどちらにおいても微細な SrSO₄ 粒子、Co-rich 粒子の生成が確認できた。650℃においても、TPB 近傍より多量の SrSO₄ 粒子が析出していた。STEM/EDX 分析を行うことで、700℃だけでなく 650℃でも、電極の表面、TPB 近傍のどちらにおいても SrSO₄ の析出(SrSO₄ の核生成)が起きていることが明らかとなった。

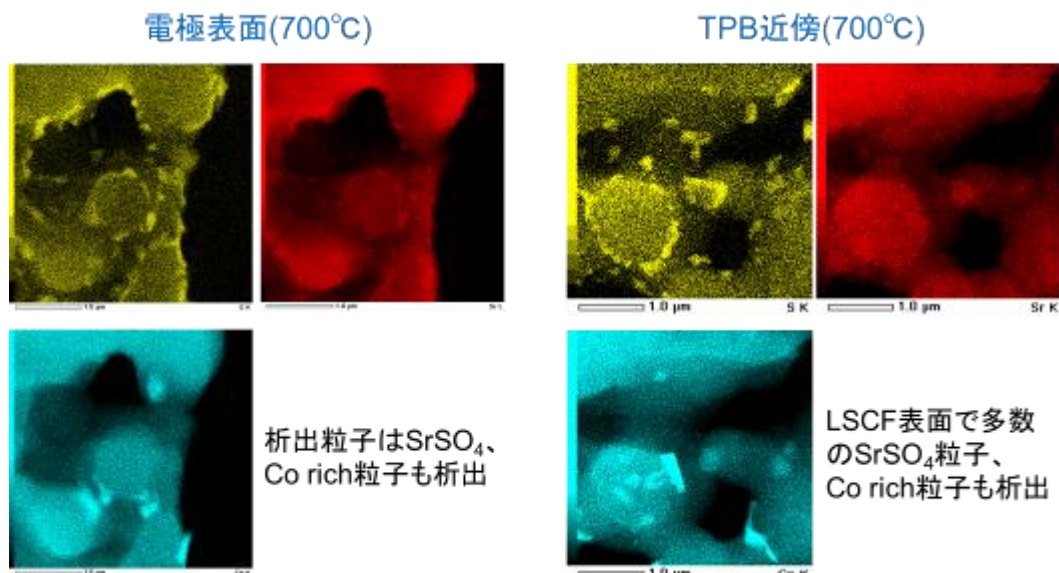


図 3-6-1.22 700℃、0.01ppm SO₂ 被毒試験後 LSCF 空気極の STEM/EDS 分析結果

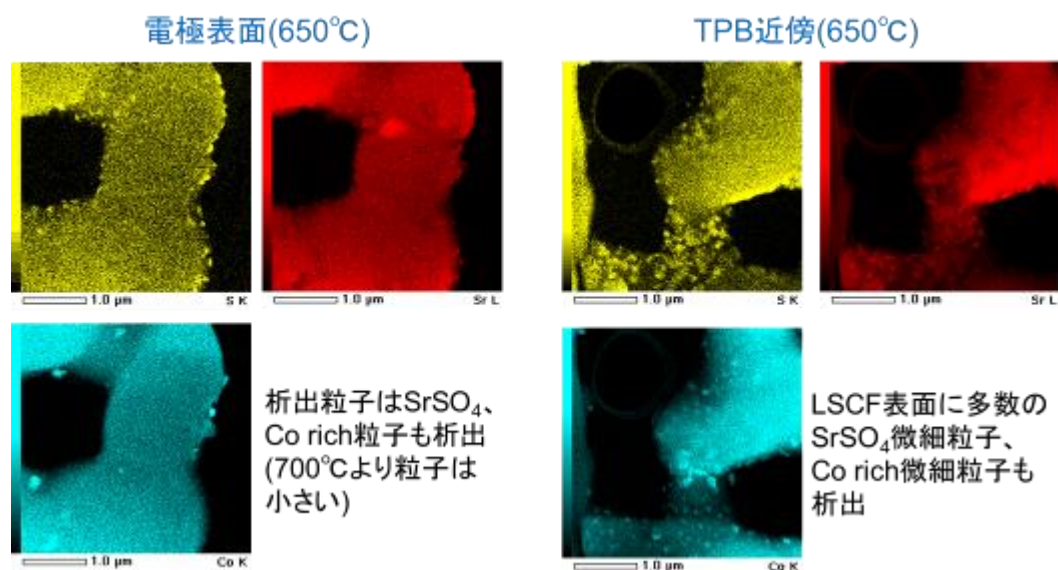


図 3-6-1.23 650℃、0.01ppm SO₂ 被毒試験後 LSCF 空気極の STEM/EDS 分析結果

ii)-2) LSCF 焼結体を用いた SO₂ 被毒機構の検討

Cr 被毒の場合と同様、多孔質 LSCF 空気極における SO₂ 被毒現象を理解するため、LSCF 焼結体をモデル試料として SO₂ 被毒試験を行い、被毒過程における k および D の変化を酸素同位体交換と SIMS 分析により評価した。SO₂ 被毒試験では、酸素分圧や水蒸気の有無をパラメーターとして試験できることから、これらパラメーターの被毒挙動への影響も評価した。被毒試験は 700℃、0.01ppm SO₂ の条件で行った。加湿は $p(\text{H}_2\text{O}) = 1.2 \times 10^3 \text{ Pa}$ の条件で行った。

図 3-6-1.24 に 0.01ppm SO₂ 被毒試験を行った LSCF 焼結体の表面 SEM 分析結果を示す。酸素分圧は 0.21 bar である。Dry(加湿無)の条件では、5h では SrSO₄ の生成ははっきりと確認できないが、時間の経過とともに生成した SrSO₄ 粒子の数が増加した。一方、wet(加湿有)の条件では、5h の時

点で、dry 20h の結果と比べてもより大きな SrSO₄ 粒子が生成しており、20h 経過時点では数・m サイズの SrSO₄ 粒子へと成長しているとともに、小さな粒子が見られなくなった。これは、表面に生成した SrSO₄ 粒子がオストワルド成長と同様の気候で粒成長したことを示唆している。この結果から、空気に含まれる水分が SrSO₄ の生成を促進することが示唆される。これは、前プロジェクトで行った 1ppm SO₂ 試験で、水蒸気の影響により劣化速度が増大し、SrSO₄ の生成も促進された結果とよく一致している。図 3-6-1.24 には、酸素分圧が異なる SO₂ 被毒試験の結果を示す。Wet と dry の違いは見られるが、酸素分圧の影響ははっきりとは見られなかった。

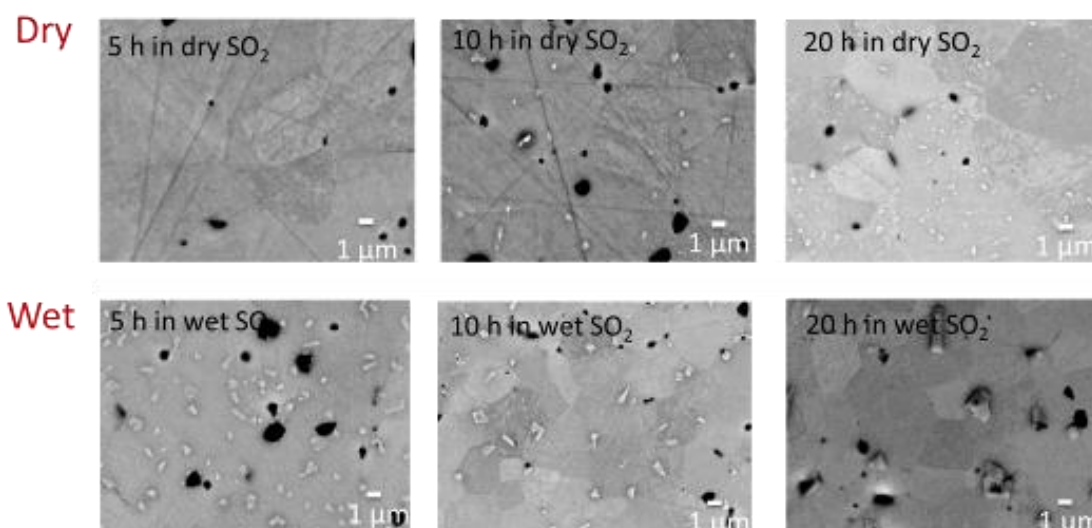


図 3-6-1.24 0.01ppmSO₂ 被毒試験を行った LSCF 焼結体の表面 SEM 分析結果。
加湿の有無の影響の時間変化。

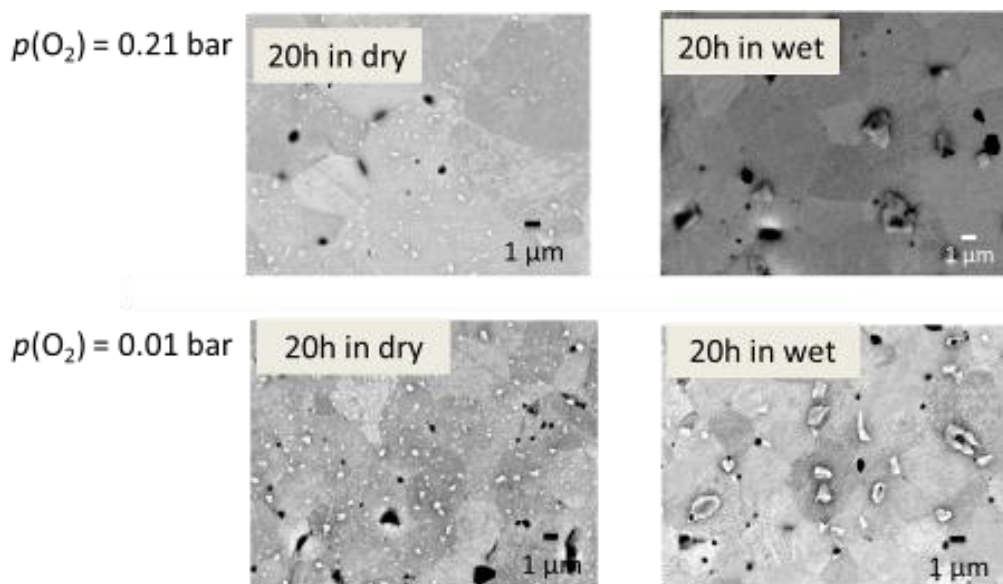


図 3-6-1.25 0.01ppmSO₂ 被毒試験を行った LSCF 焼結体の表面 SEM 分析結果。
酸素分圧の影響。

図 3-6-1.26 に、wet 空気 0.01ppm SO₂ 中で 20h 被毒試験した LSCF 焼結体の断面 STEM/EDS 分析結果を示す。表面近傍で Sr 濃度が低下しており、その範囲は表面から約 30nm であった。表面で SrSO₄ が生成するため、LSCF バルク内から Sr が表面に向かって拡散したことを示している。

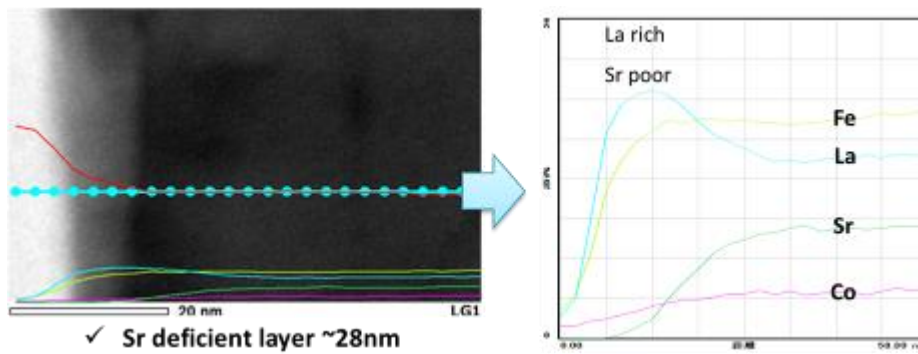


図 I-2-1. 26 0.01ppmSO₂ 被毒試験を行った LSCF 焼結体の断面 STEM/EDS 分析結果

図 3-6-1. 27 には、SO₂ 被毒試験を行った LSCF 焼結体に対して、同位体交換処理を行い、SIMS 分析から k^* および D^* を評価した結果を示す。SO₂ 被毒試験を行った試料においては、表面交換反応係数 k^* の低下がみられたが、酸化物イオン拡散係数 D^* には変化が見られなかった。 k^* の低下率は wet で試験したものの方が dry で試験したものより大きかった。これは SrSO₄ の生成量の違い、つまり LSCF 焼結体表面近傍からの Sr の拡散量の違い、とよく対応していた。

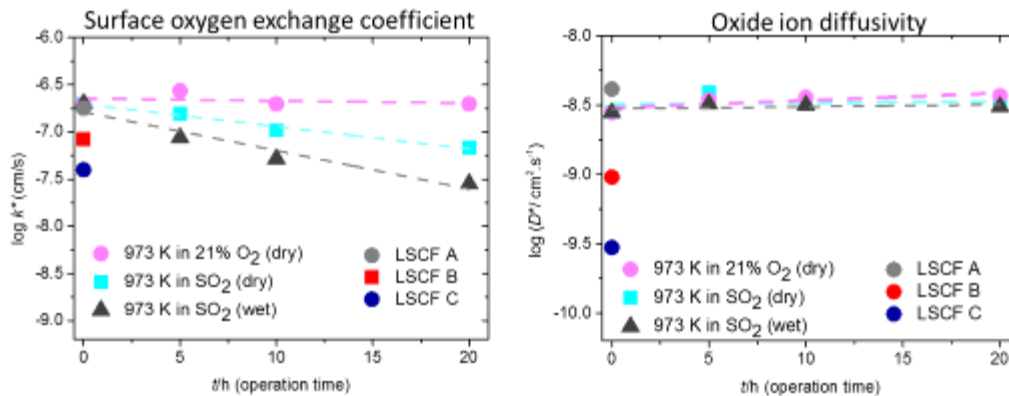


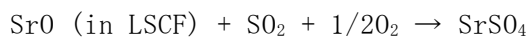
図 3-6-1. 27 LSCF 焼結体における Cr 被毒時間に対する k^* 、 D^* の変化。

比較試料の組成・・・LSCF A : (La_{0.6}Sr_{0.4})_{0.99}(Co_{0.2}Fe_{0.8})O_{3-δ},
 LSCF B : (La_{0.6}Sr_{0.3})_{0.99}(Co_{0.1}Fe_{0.8})O_{3-δ},
 LSCF C : (La_{0.6}Sr_{0.2})_{0.99}(Fe_{0.8})O_{3-δ}

ii)-3) SO₂ 被毒機構に関する考察

LSCF 空気極の SO₂ 被毒に対する熱力学計算結果を図 3-6-1. 28 に示す。SO₂ 被毒のステップとして Region I~IV まであり、温度が変わっても被毒プロセス（化学反応）は変わらないが、低温ほどより低濃度の SO₂ でステージが進む、つまり被毒に対する熱力学的な駆動力が大きくなることがわかる。また、SrSO₄ の生成とともに CoFe₂O₄ が生成し、ペロブスカイト母相中の Sr、Co 濃度が低下していくことが示唆される。多孔質 LSCF 空気極の被毒試験試料の STEM/EDS 分析結果から、650℃でも SrSO₄ の核生成は十分に起きているが、温度低下とともに SrSO₄ 粒子の大きさが小さくなるのは、温度低下に伴う Sr の拡散速度の低下の影響と思われる。

0.1ppm の試験では、過電圧が大きくなるほど TPB 近傍での SrSO₄ 生成が顕著になり、0.01ppm 試験でも 700℃、650℃の試験では TPB 近傍の方が SrSO₄ 生成量や生成する粒子の数が増加した。LSCF 多孔質空気極中で、過電圧のかかる TPB 近傍で SrSO₄ の生成が促進されたことがわかる。SrSO₄ の生成反応は次式で表される。



この反応式からわかるように、SrSO₄ の生成には酸素が必要である。一方、LSCF 空気極における過電圧は、電極反応の律速過程である電極表面反応が起きている部分における酸素ポテンシャルの低下とみなすことができる。例えば、0.01ppm 被毒試験における空気極反応過電圧の変化を図 3-6-1. 29 に示す。電極反応活性な TPB 近傍の電極表面における酸素ポテンシヤ

ルを計算すると、 $10^{-2} \sim 10^{-3} \text{atm}$ となる。このように、酸素ポテンシャルが低下するはずの TPB 近傍において、酸化反応である SrSO_4 生成反応が促進されたことになる。酸素ポテンシャルの変化が SrSO_4 生成にほとんど影響していないことは、LSCF 焼結体を用いた SO_2 被毒試験の結果と矛盾しない。

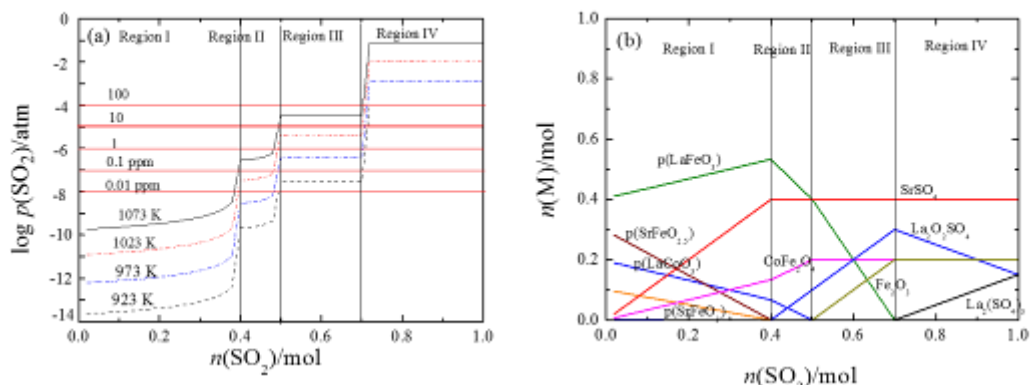


図 3-6-1.28 LSCF における SO_2 被毒に対する熱力学計算結果

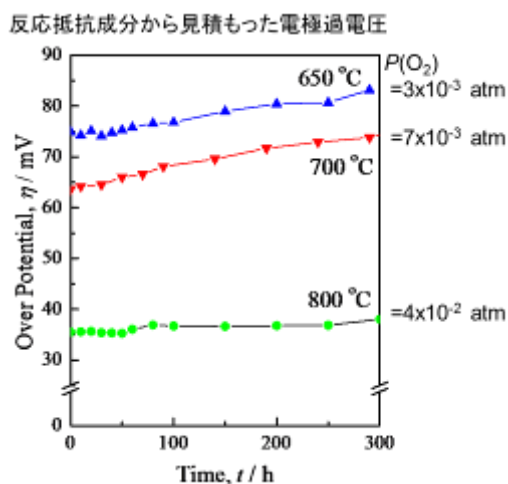


図 3-6-1.29 一定電流印加(300mA)下での 0.01ppm SO_2 被毒試験における空気極過電圧の変化

図 3-6-1.30 に、熱力学平衡計算から求めた 800°C における LSCF の SO_2 との反応の酸素分圧依存性を示す。 800°C において、1ppb 程度の低濃度 SO_2 雰囲気下でも、 $P(\text{O}_2)=10^{-2} \text{atm}$ までは SrSO_4 の生成が熱力学的に安定であり、100mV 程度の過電圧のかかる電極反応活性場でも SrSO_4 生成が安定であることがわかる。電極反応活性場での SrSO_4 生成の促進効果は、熱力学的は反応駆動力ではなく、①核形成の促進(SO_2 の吸着促進)、②粒成長の促進(Sr 拡散の促進)、といった速度論的なパラメーターに起因することが示唆される。

SO_2 被毒においては、空気中の水蒸気、過電圧、により SrSO_4 の生成が促進された。また、LSCF 焼結体による試験から、 SrSO_4 生成のため表面近傍の Sr 欠乏が起こり k^* が低下することが示唆された。これらのことから、水蒸気や過電圧は Sr の移動(拡散)を促進しており、 SrSO_4 の生成に伴う LSCF 表面での Sr の欠乏とそれに伴う k^* の低下を促進していることが示唆された。

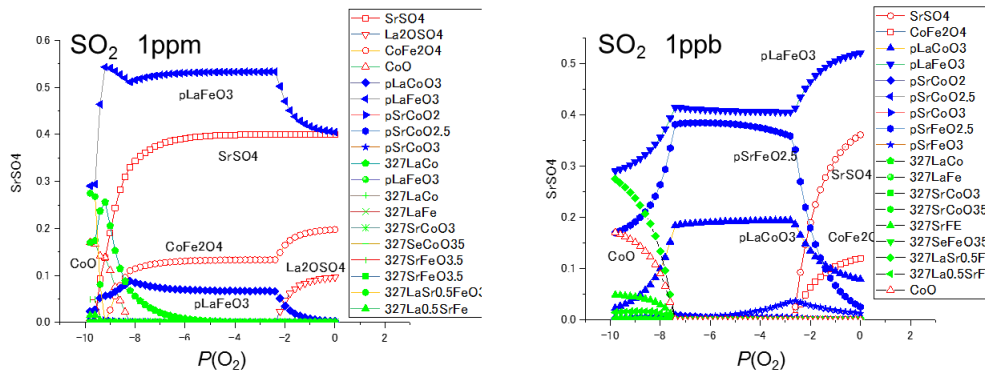


図 3-6-1.30 800°Cにおける LSCF の SO₂ との反応の酸素分圧依存性

iii) 不純物劣化の加速的試験から見る劣化機構について

LSCF 空気極の Cr 被毒、SO₂ 被毒について、通常より高濃度の不純物を空气中に導入することで加速的な劣化試験を行ってきた。加速的な Cr 被毒と SO₂ 被毒には、いくつか共通点が見られた。

- LSCF 中の Sr と反応し、SrCrO₄、SrSO₄をそれぞれ生成する。
- SrCrO₄、SrSO₄の生成に伴い、CoFe₂O₄が生成し、LSCF 中の Sr, Co 濃度が低下する。
- Sr, Co 濃度の低下により LSCF 中の酸素不定比量 δ も減少する。これらの組成変化に伴い k^* が低下する。
- SrCrO₄、SrSO₄生成のための Sr の供給は LSCF 表面から数十 nm の領域に限定されており、LSCF 内部の組成は変化しない。結果として、 D^* は変化しない。

これらのことから、Cr 被毒と SO₂ 被毒どちらにおいても、劣化の主要因は LSCF 表面近傍での Sr の減少であり、Sr の移動、拡散が劣化速度を決める重要な因子となっていることが示唆される。

LSCF 焼結体を用いたモデル試験から、LSCF 内部から表面への Sr の供給速度は、およそ LSCF 中の Sr のバルク拡散係数からの見積りと一致していた。一方、表面における SrCrO₄、SrSO₄の、オストワルド成長のような粒子成長過程を考えると、LSCF 表面近傍ではバルク拡散とはけた違い(おそらく 100~1000 倍程度)に速い物質移動が起こっていることが示唆された。析出した SrCrO₄、SrSO₄粒子ではかなりファセットが見られたことから、表面近傍における Sr の移動経路として、表面拡散のほかに、以下のような気相種を経由したガス拡散も考慮に入れるべきである。



このことは、水蒸気を含んだ雰囲気下で SrCrO₄、SrSO₄粒子の生成がより顕著になることと矛盾しない。これまでの様々な実験の結果から考えると、水蒸気の効果は Sr の拡散をさらに 1桁程度上昇させていると推測される。また、過電圧によっても SrCrO₄、SrSO₄粒子の生成がより顕著となった。過電圧がかかった際の SrCrO₄粒子、SrSO₄粒子の析出位置はそれぞれ電極表面と TPB 近傍と異なる。一方で、インピーダンススペクトルから見積もられる電極劣化要因は同様である。このことは、劣化メカニズムは同様の機構、LSCF 中の Sr, Co, 酸素空孔の減少に伴う k^* の低下、であり、過電圧の影響で Sr の拡散が促進され LSCF の組成が変化することが重要で、どこで SrCrO₄粒子、SrSO₄粒子が析出するかはそれほど重要ではないことを示唆している。

本プロジェクトにおける熱力学的解析で取り組んだ Cr 被毒試験、SO₂ 被毒試験においては、 D_{Sr} (表面近傍) \gg D_{Sr} (バルク)の条件で試験を行っており、LSCF 表面近傍の LSCF 組成が急激に変化することで k^* が急激に低下し、より急峻な性能低下がみられる試験条件であったことがわかる。 D_{Sr} (表面近傍)が 100 倍~1000 倍 D_{Sr} (バルク)より大きいという示唆に加え、供給された Cr や SO₂がほぼ試験に用いた空気極材料と反応したと仮定すると、不純物濃度が試験の 1/100~1/1000 程度まで減少すれば、 D_{Sr} (バルク)に見合った速度で SrCrO₄ や SrSO₄ 粒子が析出する状況となると予想される。このような状況では、LSCF バルク内からの Sr 供給が表面組成の変化に追いつけるので、空気極性能の急峻な低下は起こりづらくなると予想する。

② 化学的解析による劣化機構解明、加速要因分析(九州大学)

表 3-6-2.1 に本テーマの目標、成果と達成度を示し、そのあとに内容を記述する。

表 3-6-2.1 化学的解析の成果と達成度(2016-2017 年度)

項目名称	最終目標 (2017 年度末)	成果	達成度	今後の課題
化学的解析による劣化機構解明、加速要因分析	各スタックに対して、化学的解析により 9 万時間耐久の見通しに必要とされる劣化機構解明を行うとともに、化学的解析に係わる加速要因分析の高度化を図る。	スタック側が行った長期試験後のセルの劣化要因、劣化機構、加速要因を明確化するため、初期および耐久試験後のサンプルを STEM 分析し化学的に解析した。微量不純物の影響を明らかにし、9 万時間の耐久性見通しに貢献した。	○	更なる耐久性評価に対応する高度な分析・解析技術の開発

スタック側が行った長期試験後のセルの劣化要因、劣化機構、加速要因を明確化するため、初期および耐久試験後のサンプルを STEM 分析し化学的に解析した。セル構成材料界面の元素拡散性と安定性、異相の生成、電極組成の変化、微量不純物(S, P, Cr 等)による電極微構造の変化など、耐久性への影響を明らかにした。微量不純物の影響については、セルやスタックの被毒耐久試験も実施し、セル劣化挙動に及ぼす影響を明らかにした。「長期運転済み状態でのサイクル耐性予測」のために、スタック側で作製された単セル、ショートスタックの被毒耐久試験も実施した。これらにより、9 万時間の耐久性見通しに貢献するとともに、STEM による化学的解析手法、微量不純物を用いた被毒耐久評価手法を高度化した。共通の課題として、カソード側の抵抗増加要因となり得る SrZrO₃ 生成のメカニズム評価を行った。粉末成型、焼結からなる一般的な製造法でセルを作製し、STEM 高分解能観察と電子線回折を活用して、セル作製工程およびセル発電中における SrZrO₃ 生成・成長過程を詳細に解析した。セル作製条件が SrZrO₃ 生成量に及ぼす影響を明らかにし、生成量低減の指針を得るとともに、SrZrO₃ 生成位置・分布、結晶構造の変化、セル発電初期における SrZrO₃ 生成量の増加、形状変化を明らかにし、長期耐久後の分布状態の予測につながる生成・成長メカニズムを明確化した。

a. 「高温円筒横縞形」の長期試験後の劣化機構究明

電中研で実施された 22,000 h 試験後のサンプルを STEM 分析し、カソード(LSCM)/中間層 (SDC) 界面、中間層内部、中間層/電解質(YSZ) 界面の状態を調べた。LSCM/SDC 界面には、La, Sr, Ca, Mn, Sm からなる緻密層が生成しており、運転時間による厚さの増加が見られた。物質移動速度推定のため緻密層生成の割合や厚さを定量化し解析を行った。SDC 層内部には、初期から Mn, Ca が入り込み Sm との化合物を生成していたが、22,000 h 試験後は生成量がやや増加していた。初期と比べて中間層 (SDC) 内の Mn 量は増加していたが、SDC/YSZ 界面近傍においては Mn の濃集が見られず、YSZ 側には Mn は拡散していないことを確認した。カソード材料に含まれる Mn の SDC/YSZ 界面への拡散状態を高分解能 STEM で分析し、初期と 22,000 h 後に違いが見られず、SDC/YSZ 界面に生成する固溶層が、Mn 拡散障壁として有効であり長期的に安定であることを確認した。STEM-EDS では Cr によるカソードの被毒は確認されず、それ以外の目立った組織変化も確認されなかった。

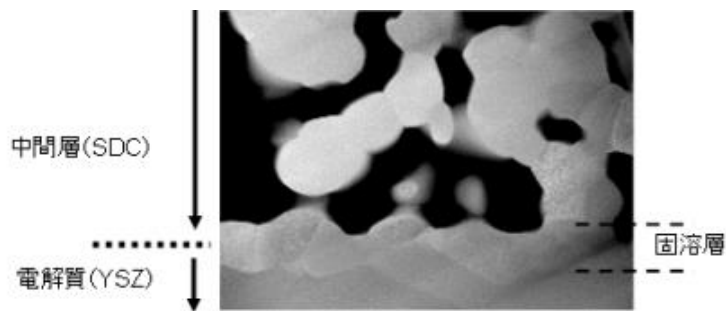


図 3-6-2.1 「高温円筒横縞形」22,000 時間運転後
カソード(LSCM)/中間層 (SDC) 界面の STEM 像

b. 「低温小型円筒形」の劣化加速因子の定量化

種々運転条件で耐久試験を行ったセルサンプルを STEM 分析し、劣化要因、劣化加速因子を検討した。カソードの仕様変更によって構成元素の偏析や欠乏が改善されたこと、シャットダウン試験後においても、カソードに顕著な微構造変化、組成変化が見られないことなどを確認した。Cr 被毒がカソード材料の組成変化、形態変化を引き起こす劣化の主要因であることを明確化した。これらの分析結果がスタック側の改良に生かされ、1 万時間運転後においてもカソードの組成変化、形態変化などの劣化が抑制され、耐久性向上につながった。「長期運転済み状態でのサイクル耐性予測」のために、東京ガス、TOTO と連携して、単セルの強制劣化試験を実施した。劣化の主要因としてカソードの Cr 被毒を想定し、Cr 被毒状態で数千時間運転することにより強制的に 10%程度劣化させた熱サイクル耐性評価用のサンプルを作製した。強制劣化後のセルを STEM 分析し、電極微構造が Cr 対策前の 11 仕様の FT 運転後の状態に近いことを確認し、加速試験としての妥当性を確認した。さらに、STEM 分析を活用して、耐久試験サイトの試験環境の違いによるカソード側 S 被毒状態、カソード材料組成変化、微構造変化の違い、およびケミカルフィルターの効果を明確化し、耐久性向上の指針を明確化した。

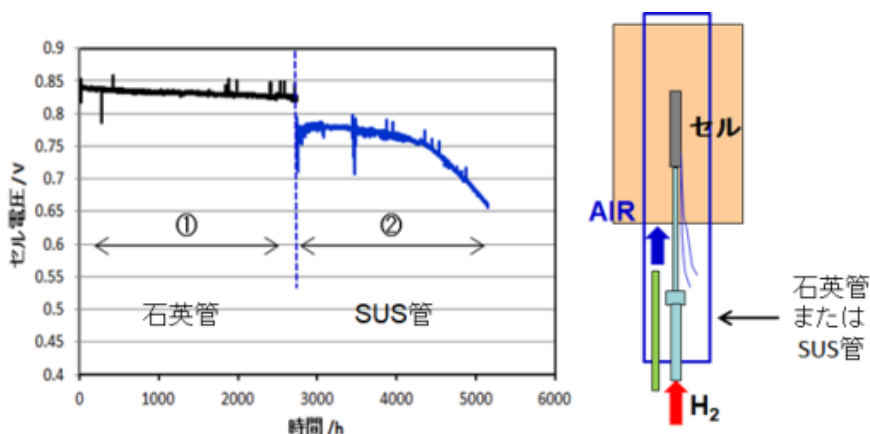


図 3-6-2.2 「低温小型円筒形」の単セルの強制劣化試験
(カソード Cr 被毒) の方法および耐久試験結果

c. 「中温平板形」の劣化機構解明、改善策導出

スタック耐久試験後のセル構成層の微細構造変化や物質の拡散などに着目して STEM 分析し、カソード側、アノード側に混入し得る微量不純物による被毒の有無や、カソード材料に含まれ

る不純物が材料組成や物性変化に及ぼす影響等を明らかにした。スタック 10,000 h 耐久試験後のサンプルでは、EELS マッピングによりアノード三相界面での P の濃集状態を明らかにした。微量の P が燃料中に混入することによる電極微構造への影響、セル性能への影響を明らかにするため、ボタンセルを用いてアノードの P 被毒試験を実施した。被毒源となる P 化合物の種類、加熱温度、燃料加湿条件を変えた各種実験を行い、スタックでの P 被毒・劣化を再現できる有効な方法を明確化するとともに、電極微構造への影響、セル性能への影響を明らかにした。

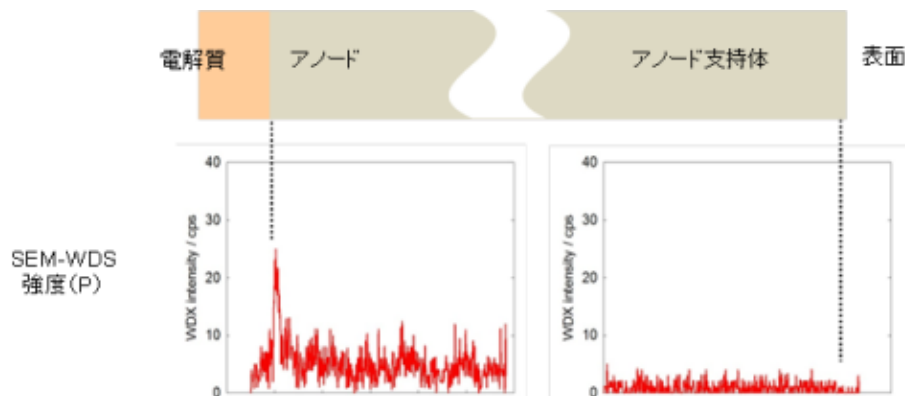


図 3-6-2.3 「中温平板形」ボタンセルの Ni_3P を被毒源に用いたアノード P 被毒試験後の P の分布 (SEM-WDS ライン分析結果)

d. 「中温筒状横縞形」の劣化機構解明、改善策導出

スタック耐久試験後のカソードの微細構造・組成変化、カソード中間層近傍における SrZrO_3 の生成有無、ジルコニア電解質の相変態などに着目して STEM 分析し劣化要因を検討した。14,000 h 後もカソード側では特異な偏析は見られず、 SrZrO_3 は生成していないこと、カソード／中間層 (GDC)／電解質 (YSZ) 界面において、劣化が見られないことを確認した。耐久試験サイトの試験環境の違いによる性能低下要因を明らかにするため、カソード側の S の影響に着目し STEM 分析を実施した。「長期運転済み状態でのサイクル耐性予測」のために、東京ガス、日本ガイシと連携して、カソード S 被毒による強制劣化試験 (7,100 h) を実施し、スタックの性能低下挙動、空気流れの違いによる被毒劣化挙動の差を明らかにした。

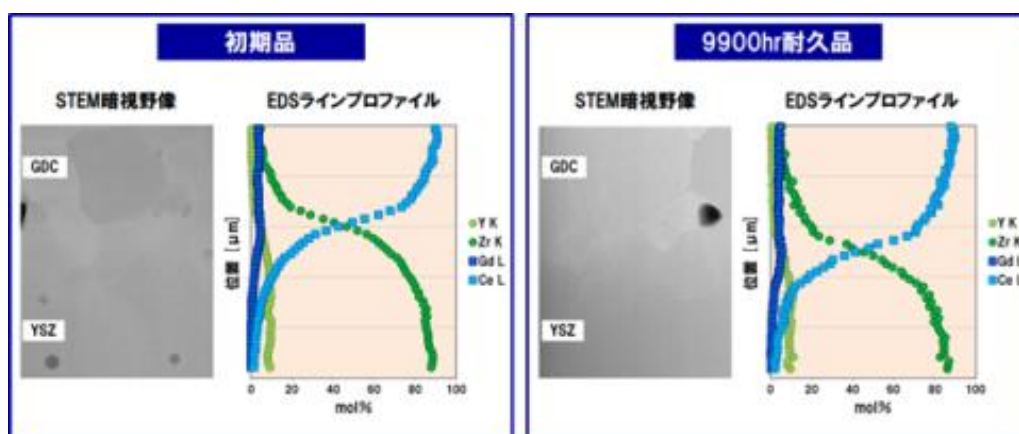


図 3-6-2.4 「中温筒状横縞形」スタック 9,900 時間耐久試験後のカソード側中間層/電解質界面の STEM-EDS 分析結果

e. 「中温一体焼結形」の劣化機構解明、改善策導出

セルスタックの実用上の耐久性を評価するため、スタックと同一の材料、焼成条件で作製された要素セルを用いて、空気中に不純物として含まれる硫黄成分 (SO_2) に対する電極材料の化学的安定性、およびセル性能への影響を調べた。運転温度 $800\text{ }^\circ\text{C}$ 、電流密度 0.2 A/cm^2 において SO_2 濃度の影響を検討し、1 ppm SO_2 では、空気へ混合した直後に急激なセル電圧低下が起り、そ

の後わずかに性能回復すること、0.1 ppm SO₂ では混合直後に大きな電圧変化は見られないが、時間経過とともにセル電圧が徐々に低下することを明らかにした。いずれの場合も試験後、電解質近傍において Sr が欠乏しており S 析出は見られなかった。運転温度 800 °C、SO₂ 濃度 0.1 ppm において、電流密度 (0.05~0.4 A/cm²) の影響、SO₂ 被毒時間の影響も検討し、電圧低下挙動および試験後に蓄積された S の量や位置を比較することにより、S 被毒現象を解析した。電流密度 (過電圧) によりカソード中の S 析出分布が異なることを明確化した。「長期運転済み状態でのサイクル耐性予測」のために、東京ガス、村田製作所と連携して、S 被毒によるショートスタックの強制劣化試験を実施し、S 被毒による電圧低下挙動を明らかにした。電中研で実施された耐久試験後のカソード側を STEM 分析し、ケミカルフィルターの効果、および S 被毒が主要な経時劣化要因であったことを明確化した。

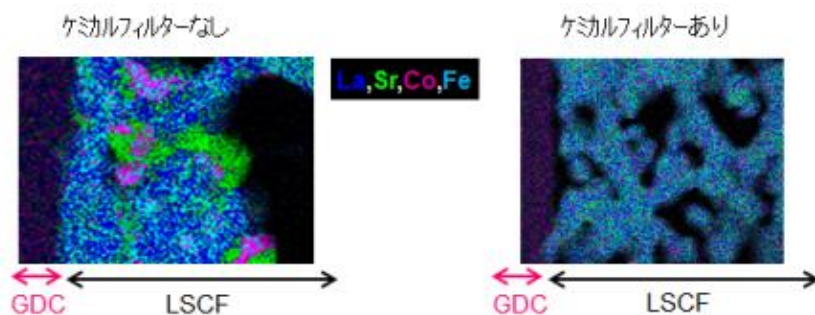


図 3-6-2.5 「中温一体焼結形」スタック 3,000 時間耐久試験後の中間層/カソード界面の STEM-EDS 分析結果

f. 「業務用中温平板形」の劣化機構解明、改善策導出

1,000 時間および 6,000 時間耐久試験後スタックのアノード、カソード中の微量不純物およびその影響に着目して STEM-EDS-EELS 分析を実施した。6,000h 試験後のセルについて、電解質/アノード界面の一部で Cr 酸化物が析出していることを明確化した。また、その他の不純物の影響を調べ、EDS, EELS 検出下限以下であることを確認した。

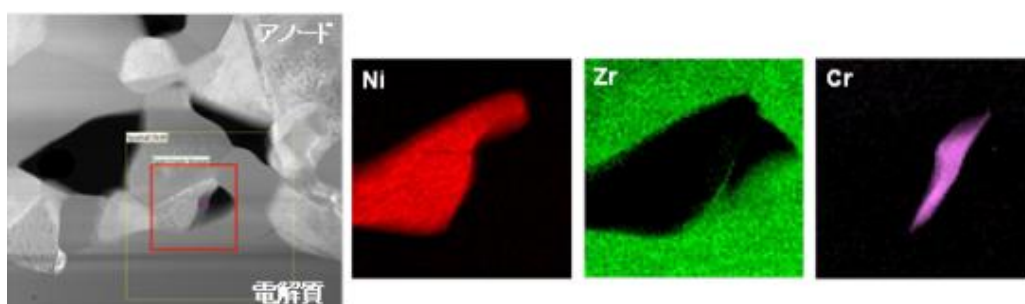


図 3-6-2.6 「業務用中温平板形」6,000 時間耐久試験後スタックの電解質/アノード界面 STEM-EELS 分析結果

表 3-6-2.2 化学的解析におけるスタックメーカーとの連携

セルタイプ (メーカー)	九大への依頼事項	成果
高温円筒横縞形 (三菱日立パワーシステムズ)	2 万時間以上の耐久試験後のセルを STEM 分析し、カソード側を中心に劣化機構を究明し、物質移動速度を推定	<ul style="list-style-type: none"> ・2.2 万時間耐久試験後の STEM 分析を行い、カソード中間層 (SDC 層) 表面における緻密層増加以外に新たな劣化因子がないことを確認 ・SDC/YSZ 界面に生成する固溶層が、Mn 拡散障壁としても有効であり長期的に安定であることを確認
低温小型円筒形 (TOTO)	種々条件での耐久試験後のセルスタックを STEM 分析し、劣化要因を解明し、劣化加速因子を抽出	<ul style="list-style-type: none"> ・単セルのカソード Cr 被毒による強制劣化試験を実施し、STEM 分析により加速試験としての妥当性を検証 ・各種耐久試験後の STEM 分析を実施し、特にカソードの S 被毒による微構造変化、ケミカルフィルターの効果を明確化
中温平板形 (日本特殊陶業)	耐久試験後のセルスタックを STEM 分析し、劣化機構解明、改善策導出	<ul style="list-style-type: none"> ・スタック 1 万時間耐久後の STEM 分析を実施し、アノード側劣化要因と推定される P, Cr の状態を明確化 ・ボタンセルでアノード P 被毒試験を実施し、スタック実運転での P 被毒・劣化を再現できる有効な方法を明確化
中温筒状横縞形 (日本ガイシ)	耐久試験後のセルスタックを STEM 分析、劣化機構解明、改善策導出	<ul style="list-style-type: none"> ・スタック耐久試験後 (1.4 万時間まで) の STEM 分析を実施し、カソード/中間層 (GDC)/電解質 (YSZ) 界面において、劣化が見られないことを確認 ・スタックの強制劣化試験を実施し、S 被毒による性能低下挙動と空気流れの影響を明確化
中温一体焼結形 (村田製作所)	要素セルで被毒物質 (硫黄) に対する安定性確認、劣化機構解明、改善策導出	<ul style="list-style-type: none"> ・スタックの強制劣化試験、要素セルのカソード S 被毒試験、電中研での耐久試験後の STEM 分析を実施し、S 被毒が主要な経時劣化要因であることを明確化 ・S 被毒によるセル電圧低下挙動や試験後カソードの微構造、元素分布を明確化し、経時劣化原因を推定可能にした
業務用中温 平板形 (デンソー)	耐久試験後のセルを STEM 分析、劣化機構解明、改善策導出	<ul style="list-style-type: none"> ・スタック 6,000 時間耐久試験後の STEM 分析を実施し、電解質/アノード界面の一部で Cr 酸化物の析出を明確化 ・その他不純物の影響を調べ、EDS, EELS 検出下限以下であることを確認

g. 耐久性迅速評価に資する化学劣化の基礎データ取得

共通課題として、カソード／電解質界面における高抵抗酸化物 SrZrO_3 の生成を取り上げ、生成量低減、成長抑制、長期運転後の生成状態の予測を目的とした生成メカニズム評価を行った。電解質に 8 mol% Y_2O_3 -92 mol% ZrO_2 (YSZ)、カソード中間層に $\text{Ce}_{0.9}\text{Gd}_{0.1}\text{O}_2$ (GDC)、カソードに $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ (LSCF) を用い、粉末の成型、焼結による一般的な方法で分析対象となるセルを作製した。まず、セル作製時における YSZ、GDC、LSCF の各焼結温度が SrZrO_3 生成量に及ぼす影響を調べた。その結果を表 3-6-2.2 に示す。YSZ、GDC の焼結温度により、YSZ/GDC 界面の微構造や、結晶の状態が異なり、 SrZrO_3 生成量に差が生じることが分かった。特に GDC の焼結温度が高いほど、 SrZrO_3 生成量が少なくなることを明らかにした。

表 3-6-2.3 YSZ、GDC、LSCF の焼結温度が SrZrO_3 生成量に及ぼす影響

焼結温度				SrZrO ₃ 生成
電解質 YSZ	中間層 GDC	カソード LSCF		
1300℃	1200℃	1100℃	4 h	■■■■■
1400℃				■■■■
1300℃	1300℃	1100℃	4 h	■■■
1400℃				■■
1500℃		1000℃	2 h	×
1300℃	1400℃	1100℃	4 h	■
1400℃		1000℃	4 h	×
1500℃		1000℃	2 h	×

次に、 SrZrO_3 生成時の微構造変化を調べた。図 3-6-2.7 および 8 には、YSZ を 1400 °C、GDC を 1300 °C で焼結させたサンプルで、LSCF を 1100°C で焼結させる前後の YSZ/GDC 界面の STEM-EDS マッピングを示す。これらの比較により、Sr が YSZ/GDC 界面に拡散し SrZrO_3 が生成するときの元素拡散、結晶成長の様子を明らかにした。

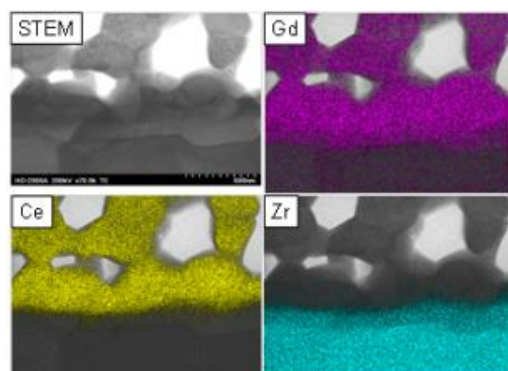


図 3-6-2.7 カソード (LSCF) 形成前のカソード中間層 (GDC) /電解質 (YSZ) 界面 STEM-EDS マッピング (YSZ: 1400 °C, GDC: 1300 °C)

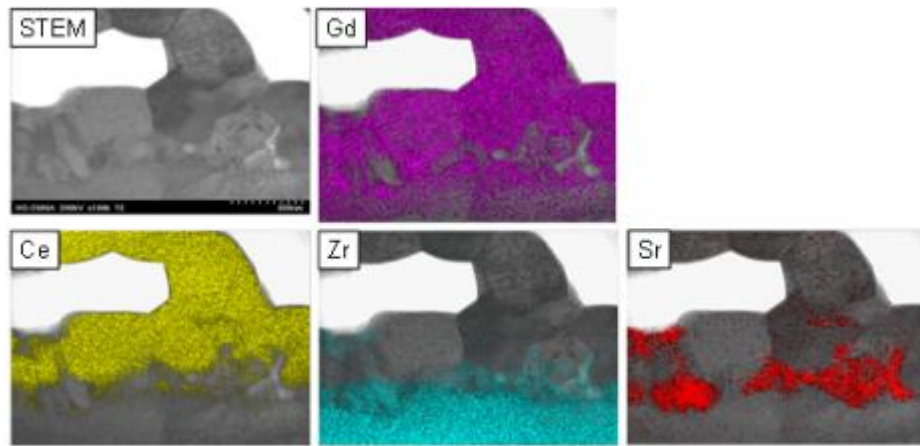


図 3-6-2.8 カソード (LSCF) 形成後のカソード中間層 (GDC) /電解質 (YSZ) 界面
STEM-EDS マッピング (YSZ: 1400 °C, GDC: 1300 °C, LSCF: 1100 °C)

図 3-6-2.9 に、GDC/YSZ 界面近傍の各部位について電子線回折で得られた格子定数を示す。GDC 粒子の格子定数は LSCF 塗布 (SrZrO_3 生成) の有無による違いは見られず、YSZ 界面に近づくにつれて僅かに格子定数が減少し、GDC 中の Ce、Gd と YSZ 中の Zr、Y の相互拡散の影響が示唆された。LSCF 塗布ありの場合、 SrZrO_3 生成部近傍の GDC の格子定数低下が顕著であった。図 3-6-2.10、表 3-6-2.4 には EDS 定量結果を示す。YSZ 表面の GDC 緻密層 (LSCF 塗布なし 6~9) では 20 at%以上の Zr (Y) が存在し、YSZ から離れた位置の GDC (LSCF 塗布なし 10~18) 粒子についても数 at%の Zr (Y) が存在した。YSZ 側にも Ce・Gd が拡散しており GDC 緻密層と密接する YSZ (LSCF 塗布なし 1~3) では数 at%の Ce・Gd が存在した。LSCF 塗布ありの場合、 SrZrO_3 と隣り合う GDC 粒子 (LSCF 塗布あり 3, 7, 8, 23) の Zr 濃度が低く、GDC 粒子内の Zr を消費して SrZrO_3 が生成したものと考えられる。

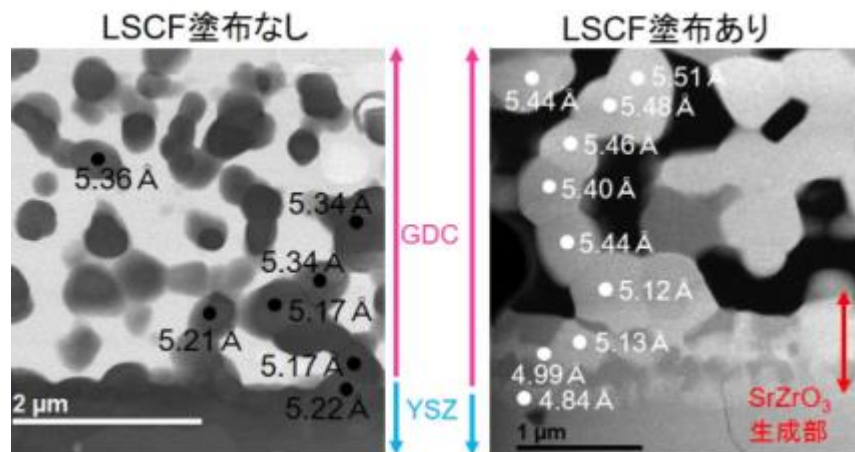


図 3-6-2.9 GDC/YSZ 界面の GDC 粒子の格子定数

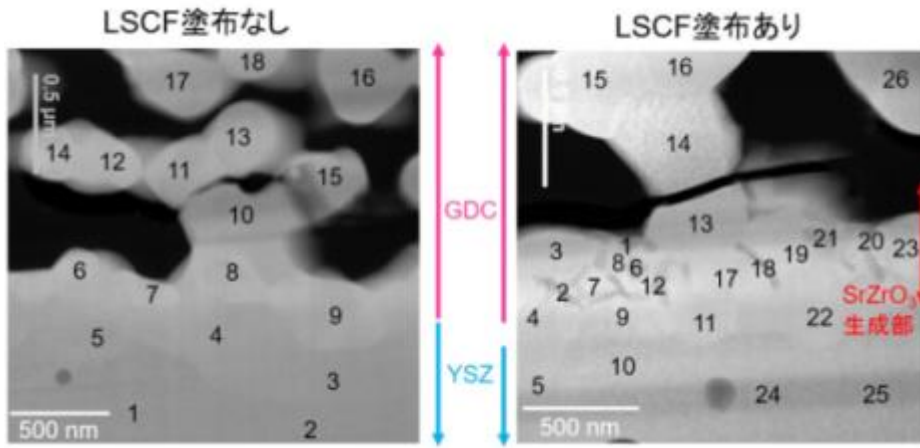


図3-6-2.10 GDC/YSZ界面

表3-6-2.4 GDC/YSZ界面の組成

LSCF塗布なし(at%)					LSCF塗布あり(at%)										
	Zr	Y	Ce	Gd		Zr	Y	Ce	Gd	La	Sr	Co	Fe		
1	75.9	23.5	0.1	0.5	YSZ	1	29.1	1.6	9.5	1.1	4.5	48.2	1.2	5.0	SrZrO3
2	76.3	23.7	0.0	0.0	YSZ	2	32.4	1.0	17.9	4.0	3.4	37.4	2.1	1.7	SrZrO3
3	66.4	21.3	4.9	4.3	YSZ+Ce,Gd	3	11.1	4.4	67.5	8.2	3.6	0.0	3.1	2.2	GDC+Zr
4	70.8	21.5	3.9	3.9	YSZ+Ce,Gd	4	45.0	11.3	29.0	9.6	1.1	0.7	2.0	1.3	YSZ+Ce,Gd
5	61.6	17.9	13.7	6.9	YSZ+Ce,Gd	5	71.2	23.6	1.1	1.5	0.0	0.8	0.9	0.8	YSZ
6	21.7	7.7	63.0	7.6	GDC+Zr	6	22.5	0.5	40.6	6.5	3.4	21.6	3.4	1.5	SrZrO3
7	21.2	5.3	66.1	7.5	GDC+Zr	7	13.4	5.9	58.6	11.9	3.5	4.2	2.2	0.3	GDC+Zr
8	22.5	6.6	63.4	7.5	GDC+Zr	8	13.9	3.7	63.7	7.9	3.0	1.3	4.2	2.3	GDC+Zr
9	42.0	10.5	38.2	9.3	GDC+Zr	9	52.4	17.2	16.2	9.9	1.0	0.8	1.7	0.8	YSZ+Ce,Gd
10	8.9	2.7	80.6	7.8	GDC	10	71.6	23.0	1.1	1.6	0.0	1.0	0.9	0.9	YSZ
11	4.4	2.1	86.9	6.6	GDC	11	57.3	16.6	12.8	9.1	0.7	1.1	1.1	1.3	YSZ+Ce,Gd
12	6.1	1.2	85.4	7.3	GDC	12	32.1	0.0	19.0	7.6	1.7	35.4	2.1	2.1	SrZrO3
13	4.1	1.5	86.8	7.6	GDC	13	8.8	2.5	72.6	8.2	3.5	0.0	2.6	1.8	GDC
14	5.1	1.1	86.0	7.7	GDC	14	4.1	0.0	79.2	8.5	3.7	0.0	2.5	2.1	GDC
15	6.3	2.4	84.4	6.9	GDC	15	2.3	0.9	81.7	7.4	3.2	0.0	2.8	1.7	GDC
16	2.6	1.3	89.2	6.9	GDC	16	3.5	1.5	79.7	7.1	4.1	0.0	2.0	2.0	GDC
17	2.2	0.1	89.8	7.9	GDC	17	27.8	7.6	47.0	11.0	2.9	0.3	2.2	1.2	GDC+Zr
18	2.1	0.0	90.1	7.8	GDC	18	29.1	6.5	19.3	5.1	6.7	30.1	1.0	2.2	SrZrO3
						19	24.8	7.1	49.1	11.1	2.8	1.0	2.4	1.8	GDC+Zr
						20	28.6	6.9	14.0	1.7	3.4	40.0	1.2	4.1	SrZrO3
						21	24.6	6.9	29.4	4.0	2.9	27.6	2.1	2.5	SrZrO3
						22	58.8	18.2	10.3	9.0	0.6	0.6	1.6	1.1	YSZ+Ce,Gd
						23	18.9	2.0	62.1	9.6	3.8	0.0	1.5	2.2	GDC+Zr
						24	72.4	23.6	0.5	0.9	0.0	0.8	0.8	0.9	YSZ
						25	72.9	24.1	0.1	0.2	0.0	1.1	0.8	0.9	YSZ
						26	4.4	0.0	80.0	7.4	7.4	0.0	2.0	2.2	GDC

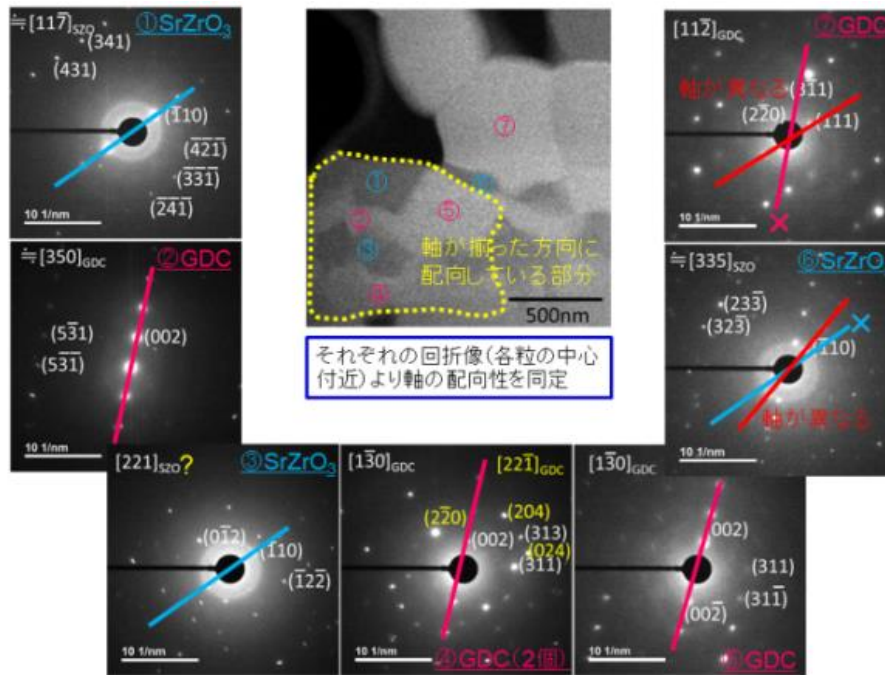


図 3-6-2. 11 STEM-電子線回折を用いた結晶方位解析による SrZrO₃ 生成メカニズム解析

図 3-6-2. 11 に示すように、生成した SrZrO₃ 粒および隣接する GDC 粒 (Zr 固溶) の結晶方位を STEM-電子線回折で解析することによって、SrZrO₃ 生成場所とメカニズムを解析した。図中の SrZrO₃ ③については、両側の GDC 粒②④の結晶方位が同じであるため、元々は 1 つの結晶粒であったと推測される。よって、SrZrO₃③は GDC 粒内に成長したものと考えられる。一方、SrZrO₃⑥については、両側の GDC 粒⑤⑦の結晶方位が異なるため、SrZrO₃⑥は粒界に成長したものと考えられる。このように、GDC 粒 (Zr 固溶) の粒内に生成するもの、粒界に生成するものの 2 種類あることが明らかになった。

セル発電による SrZrO₃ 生成状態の変化を調べた。LSCF の熱処理温度が 1100°C の場合、SrZrO₃ 生成量が多く、発電に伴う変化が分かりにくかったため、LSCF の熱処理温度を下げ、SrZrO₃ 生成量を減らしたサンプルを作製した。図 3-6-2. 12 に LSCF 熱処理温度が SrZrO₃ 生成量に及ぼす影響を示す。LSCF 熱処理温度が 1050°C 以上において SrZrO₃ の生成が見られたため、1050°C、1075°C の 2 条件を選択した。図 3-6-2. 13 に、LSCF:1050°C、LSCF:1075°C で作製したセルの GDC/YSZ 界面における SrZrO₃ 生成状態を示す。YSZ 電解質の上に ZrO₂/CeO₂ 固溶層が形成されており、元素マッピングで赤色 (Sr) が濃くなっている部分に SrZrO₃ が生成している。LSCF:1050°C では、固溶相表面で SrZrO₃ が生成しており、固溶相内部では SrZrO₃ 生成は見られなかった。LSCF:1100°C では、固溶相表面だけでなく、固溶相内部でも粒界・粒内で細く入り込んだ状態で SrZrO₃ が生成していた。これらの条件でセルを作製し、温度 800°C、電流密度 0.2 A/cm² で発電試験を実施した。図 3-6-2. 14 に、発電前、発電 5 h 後、発電 100 h 後の GDC/YSZ 界面の微構造を示す。LSCF:1050°C では、発電前に固溶相内部に SrZrO₃ の生成が見られなかったが、発電によって固溶相内部に SrZrO₃ が現れた。LSCF:1075°C では、発電前に固溶相内部に少量の SrZrO₃ が生成していたが、発電によって SrZrO₃ の生成量が増え、形状も変化した。このように、セル発電 (800°C, 0.2 A/cm²) 初期において、SrZrO₃ 生成量が増加し形状も変化する事が分かった。SrZrO₃ 生成は、LSCF 側から拡散した Sr が、固溶層内の Ce/Zr=1/1 界面よりも GDC 側において、GDC 粒内に固溶した Zr と反応して、GDC 粒内や粒界で起こることが分かっている。発電初期における生成量や形状の変化は、電極反応によって GDC 粒から SrZrO₃ 粒への Zr の拡散や、GDC/SrZrO₃ 結晶界面の再配置が促進されることを示唆している。

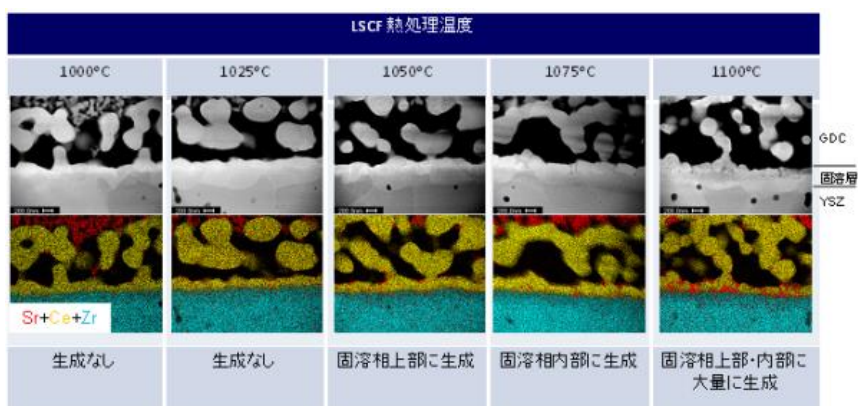


図 3-6-2.12 LSCF (カソード材料) の熱処理温度が SrZrO_3 生成量に及ぼす影響 (YSZ:1400°C 2 h, GDC: 1300°C 4 h, LSCF:1000~1100 °C 4 h)

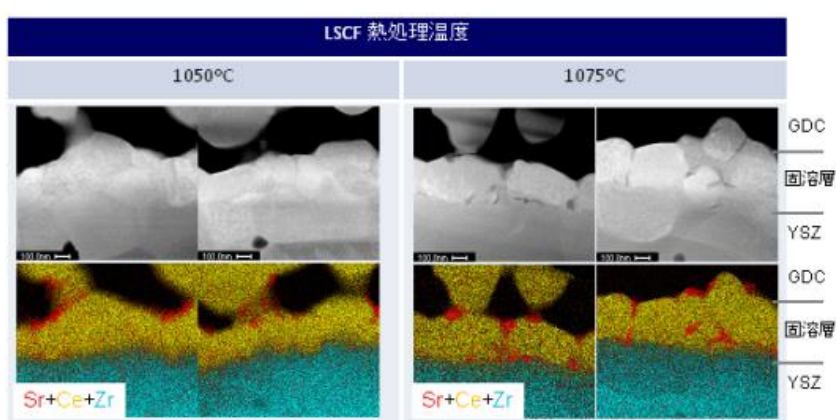


図 3-6-2.13 LSCF:1050°C、LSCF:1075°Cで作製したセルの GDC/YSZ 界面での SrZrO_3 生成状態 (元素マッピングで赤色部が SrZrO_3)

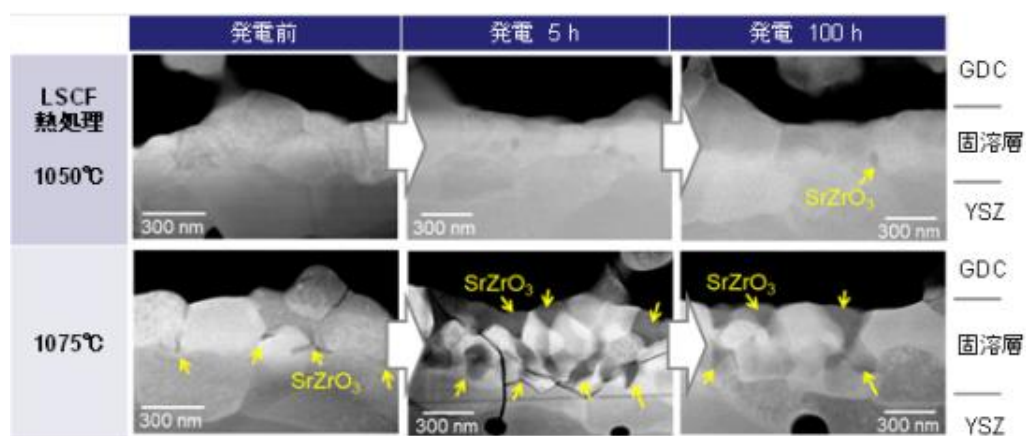


図3-6-2.14 発電 (800°C、0.2 A/cm²)に伴う GDC/YSZ界面の微構造変化 (SrZrO_3 生成量、形状の変化)

③ 三相界面微構造解析による劣化機構説明、加速要因分析（京都大学・東京大学）

表 3-6-3.1 に本テーマの目標、成果と達成度を示し、そのあとに内容を記述する。

表 3-6-3.1 三相界面微構造解析による成果と達成度(2013-2017 年度)

項目名称	最終目標 (2017 年度末)	成果	達成度	今後の課題
三相界面微構造解析による劣化機構説明、加速要因分析	各社セルスタックについて、これまでのデータベースを活用して劣化要因・機構を解明し、適切な提案を行う。またボタンセルを用いた加速劣化手法を確立し、短時間の運転から長期運転時の性能を予測する	FIB-SEM による三次元再構築データから各社セルスタックの三相界面長の評価・解析をおこない、劣化機構説明に寄与した。雰囲気や条件によって変化する電極微構造変化のパラメータのデータベースを構築し、長期運転の予測を可能とした。	○	更なる耐久性評価に対応する高度な分析・解析技術の開発

a. セルスタックの評価・診断と劣化要因の抽出

各社から提供された運転前後のセルの電極/電解質界面近傍の微構造を集束イオンビーム-走査型電子顕微鏡複合装置 (FIB-SEM) を用いて観察し、3次元微構造データを取得・解析した。

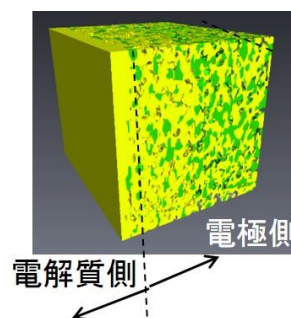


図 3-6-3.1 燃料極の 3 次元再構築画像。(右側：燃料極活性層、左側：電解質、黄色：YSZ、緑色：Ni)

i) 中温平板形セル

Ni-YSZ アノードを解析した結果について記載する。図 3-6-3.1 にアノード/YSZ 電解質界面近傍の構造を 3 次元再構築した結果を示す。図中の黄色は YSZ 相、緑色は Ni 相に対応している。運転前後のセルについて同様の微構造データを取得し、各種パラメータを数値化して劣化要因を検討した。図 3-6-3.2 にアノード/電解質界面からアノードバルク方向に向かって、Ni/YSZ/気相の三相界面長さの分布を解析した結果を示す。運転前のアノードでは、三相界面長さの分布は一様であることが分かる。一方、運転後 (2000 h および 10000 h) には、全体の三相界面量が大幅に減少し、特にアノード/電解質界面近傍でその傾向が大きいことが明らかとなった。Ni の焼結や凝集が時間の経過とともに進行したことが原因だと考えられる。この実電極構造を用いて、性能シミュレーションを実施した結果を図 3-6-3.3 に示す。運転後の微構造変化により、アノード過電圧の上昇と有効反応厚さの拡大が起きることが明らかとなった。

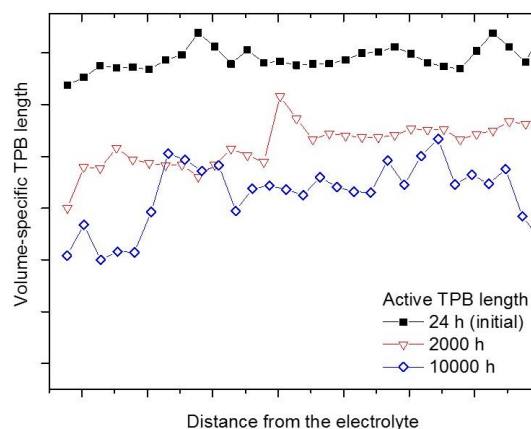


図 3-6-3.2 運転前後におけるアノード内の活性な三相界面長さの分布(アノード/電解質界面からアノードバルク方向)。活性な三相界面は、電気化学的に活性な反応場として定義。

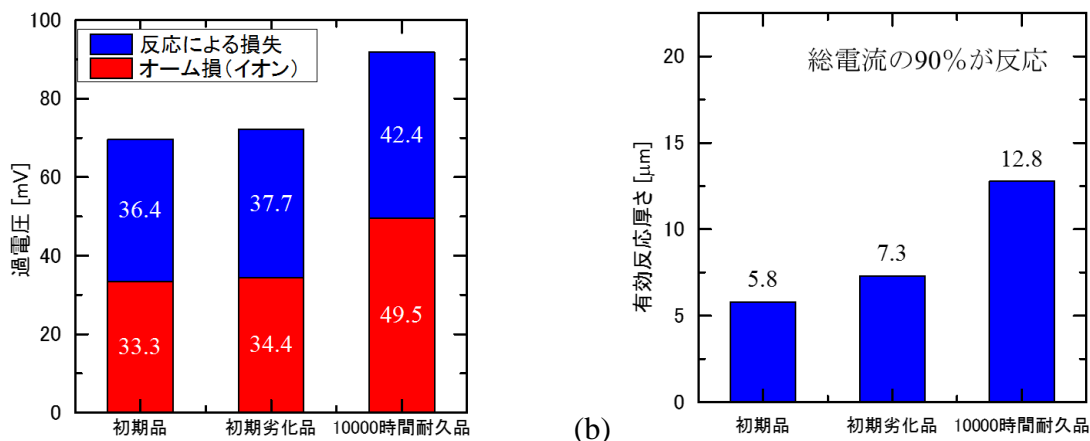


図 3-6-3.3(a)アノード過電圧および(b)有効反応厚さ（総電流の90%が反応）のシミュレーション結果（700°C, 50%H₂-50%H₂O）

また、空気極側の解析を行ったところ、運転時間の経過に伴って空気極-反応防止層の接触率が低下する傾向を示した（図3-6-3.4）。そこで、再構築した空気極の三次元再構築構造を用いて、格子ボルツマン法によりポテンシャル分布を計算した。その結果を図3-6-3.5(a)に示す梯子モデルに適用し、各断面位置におけるイオン伝導損失の分布を求めた。図3-6-3.5(b)に示すように、運転時間の経過とともにカソード/反応防止層界面近傍においてイオン伝導損失が増加していることが過電圧増加の主要因であることがわかった。カソード/反応防止層の接触率が低下したことに起因して電極性能が劣化した可能性が示唆された。これをもとにセルの改良が行われた。

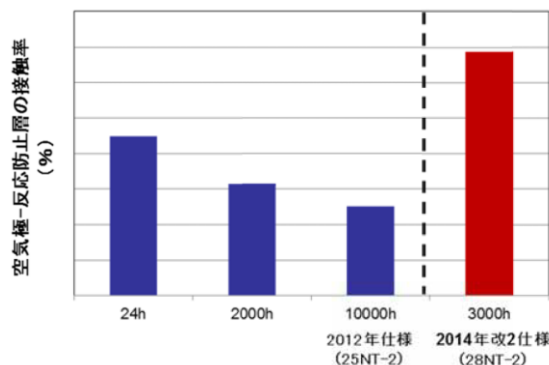


図 3-6-3.4 各セルの空気極-反応防止層の接触率

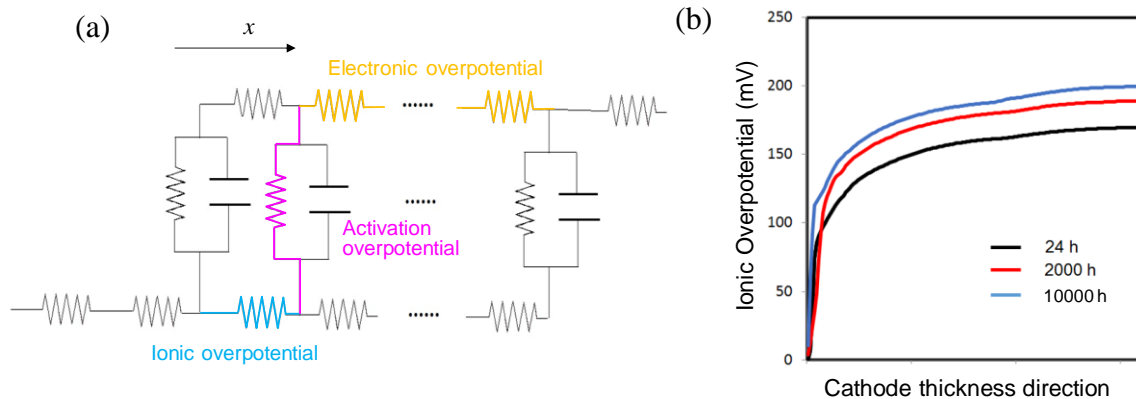


図 3-6-3.5 (a)梯子モデル、および(b)中温平板形セルのカソード内各断面位置におけるイオン伝導損失の分布（カソード/反応防止層界面からカソードバルク方向）

ii) 筒状横縞形セル

カソード側の解析結果について記載する。図 3-6-3.6 に(a)GDC 中間層/LSCF カソード/集電層の EDS マッピング像と (b) GDC 中間層/LSCF カソードの再構築画像を示す。解析の結果、14000 時間運転後においても GDC 中間層/YSZ 電解質界面に高抵抗相である SZO が生成していないことを明らかにした。また、LSCF/GDC の接触領域に顕著な構造変化は観察されなかった。運転初期から 4600 時間運転後までは LSCF カソードの凝集に伴う表面積の減少が観察されていたが、それ以降は変化しない傾向にあることが示唆され、反応場の減少が抑えられていることが明らかとなった。

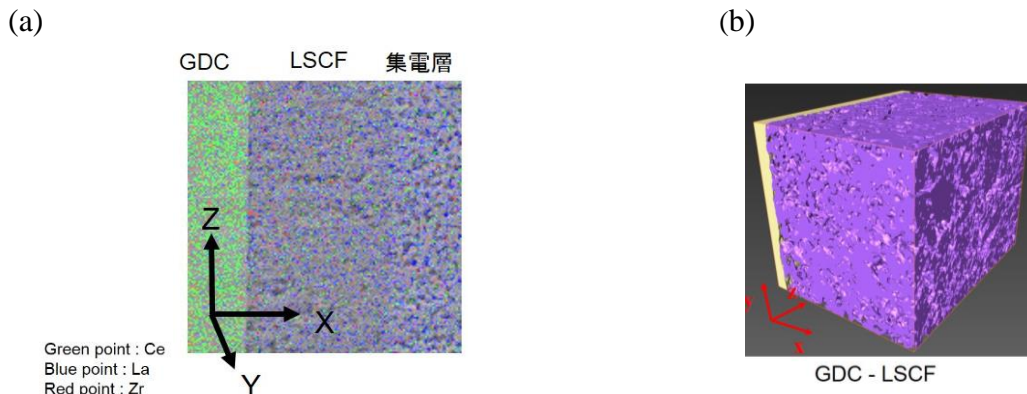


図 3-6-3.6 筒状横縞形セルの(a)GDC 中間層/LSCF カソード/集電層の EDS マッピング像と (b) GDC 中間層 (黄色) /LSCF カソード (紫色) の再構築画像。

図3-6-3.7に後述する動的モンテカルロ法により予測された空気極の相対密度および比表面積を示す。数値シミュレーションによっても、相対密度と比表面積ともに2~3万時間程度で変化がほぼ飽和することが予測された。

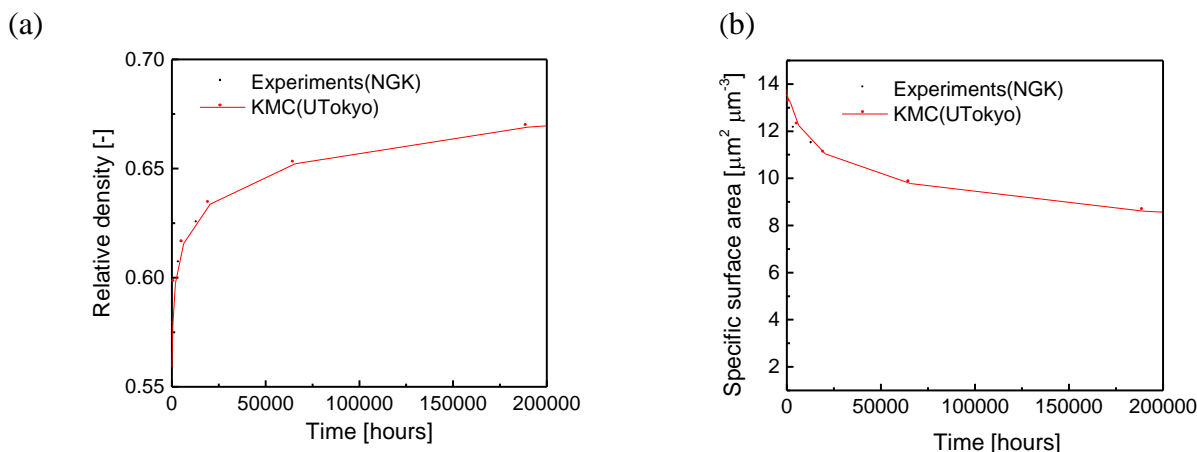


図 3-6-3.7 動的モンテカルロ法で予測された筒状横縞形セル空気極の(a)相対密度と (b) 比表面積。

iii) 円筒横縞形セル

カソード近傍の解析結果について記載する。図 3-6-3.8 に 22000 時間運転前後における LSCM カソード/SDC 中間層/YSZ 電解質近傍の SEM 像、三次元再構築画像、および代表的な相識別画像を示す。22000 時間運転後のセルでは、LSCM カソードの体積比に大きな変化は認められなかったが、粒子径が増大する様子が観察された。さらに、LSCM 粒子は SDC 中間層との接合界面に張り付いたように分布していた。ただし、このような状態でも、気孔は確保されていた。SDC 中間層の緻密化も進行しており、この相内に多量の Mn 含有相が出現した。また、これらの Mn 含有相のほとんどは、連結している状態であることが確認された。長時間運転後も電池性能は低下しないことから、三相界面 (LSCM/SDC/Pore) 以外でも酸素還元反応場が存在することが示唆された。

そこで、LSCM/SDC/Pore および SDC/Mn 相/Pore 三相界面を可視化した (図 3-6-3.9)。初期セルに比べて、耐久試験後セルでは三相界面 (反応場) が SDC 中間層側に移動していることが確認された。Mn の拡散による反応場の 2 極化が進行することを示唆しており、耐久試験時に性能低下が起こらな

い原因であると考えられる。

iv) 業務用中温平板形セル

アノード側の解析結果について記載する。運転時間の異なるセルを解体し、アノード/電解質界面からアノードバルク方向に向かって、Ni/YSZ/気相の三相界面長さの分布を解析した結果を図3-6-3.10に示す。運転前から6000時間経過時点において、三相界面長さの分布に目立った変化は見られず、Niの焼結や凝集が進展することなく、安定したアノード構造を維持していることが明らかとなった。運転時間の異なる電極をこのように解析することで、劣化部位の早期発見に繋げることが可能となる。また、カソード構造にも顕著な構造変化は見られなかった。

v) その他セル

微構造変化の観点から各社のセル解析を継続して実施したが、新しい要因に基づく新たな劣化事象は見出されなかった。(筒状平板形セル、低温小型円筒型セル、一体共焼結セル)

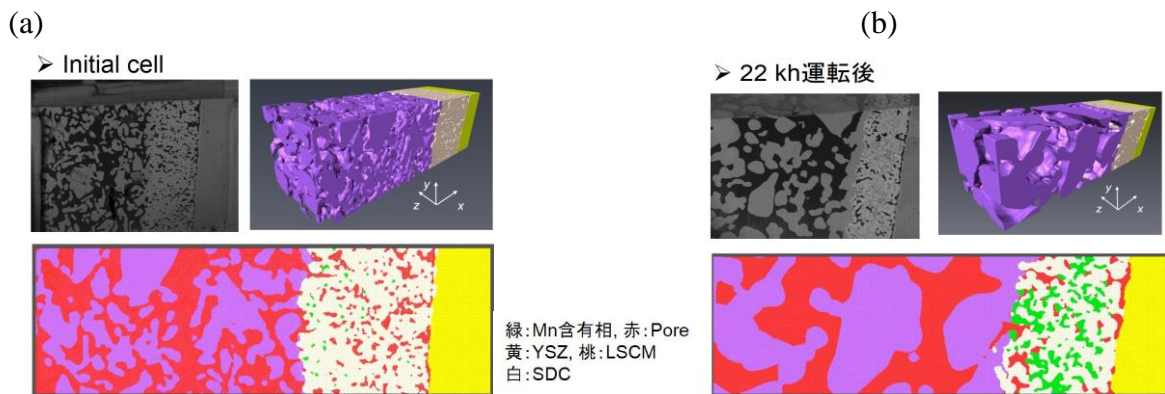


図 3-6-3.8 3次元再構築画像、および代表的な相識別画像。

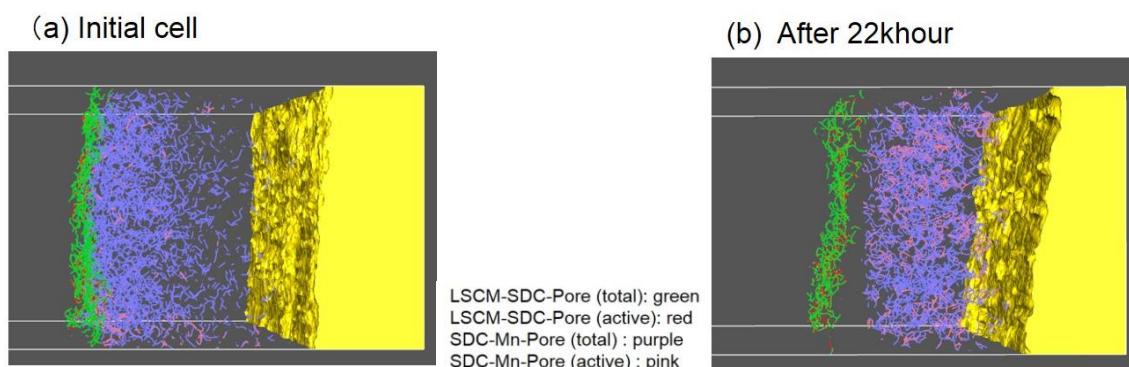


図 3-6-3.9 円筒横縞形セルの 22000 時間運転前後における三相界面線図

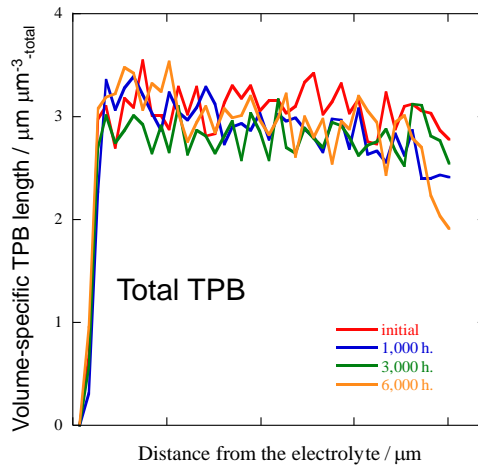


図 3-6-3.10 業務用中温平板形セルの各運転時間経過時におけるアノード内の三相界面長さの分布 (アノード/電解質界面からアノードバルク方向)

b. 電池性能と微構造変化の基礎データベースの構築

SOFC システムの緊急停止を想定して、Ni-YSZ アノードに様々な条件下で酸化還元を伴う昇降温処理を施し、電極微構造変化と性能変化の相関について検討した。Ni-YSZ (50:50 vol%) | YSZ | LSM から成る電解質支持型セルを用いて、システムの再起動時を模擬した実験を行った。酸化雰囲気中で降温したアノードを再還元する際の昇温速度と還元開始温度の影響を評価した。降温速度を $7.5 \text{ }^\circ\text{C min}^{-1}$ 、還元開始温度を $500 \text{ }^\circ\text{C}$ と固定し、昇温速度を $10 \text{ }^\circ\text{C min}^{-1}$ または $2.5 \text{ }^\circ\text{C min}^{-1}$ とした 5 サイクルの熱処理を施したところ、いずれの場合も燃料極の分極抵抗が増大した。この熱処理前後において、昇温速度が $10 \text{ }^\circ\text{C min}^{-1}$ の場合は分極抵抗が約 2.5 倍に、 $2.5 \text{ }^\circ\text{C min}^{-1}$ の場合は約 4.9 倍に増大した。昇温速度が遅いほど分極抵抗が増加した理由は、NiO が還元される温度が低く、その後の昇温過程で Ni 粒子の凝集が進行しやすいためと考えられる。

次に昇温速度 ($2.5 \text{ }^\circ\text{C min}^{-1}$) と降温速度 ($7.5 \text{ }^\circ\text{C min}^{-1}$) を固定し、還元開始温度のみを変えて 20 サイクルの熱処理を施した際の燃料極分極抵抗の推移を図 3-6-3.11 に示す。 $500 \text{ }^\circ\text{C}$ から還元処理を開始すると分極抵抗が顕著に増大したのに対し、 $900 \text{ }^\circ\text{C}$ から還元を開始した場合は抵抗増大を大幅に抑制することができた。20 サイクル処理後における燃料極/電解質界面近傍の SEM 像を図 3-6-3.12 に示す。還元開始温度が $500 \text{ }^\circ\text{C}$ の場合、Ni 粒子の凝集が著しく進行した様子が観察された。低温で還元されて生成した Ni 粒子がその後の昇温還元過程で凝集したことに起因すると思われる。このような Ni 粒子の凝集は Ni 表面積の減少につながり、電気化学反応場である三相界面を減少させるため、分極抵抗が著しく増大したと考えられる。

次に還元時におけるアノード微構造変化の過程を明らかにすることを目的として、樹脂包埋したアノード断面を FIB 加工して観察した。図 3-6-3.13 にその結果を示す(黒色が気孔、淡灰色が NiO または Ni、濃灰色が YSZ)。 $1000 \text{ }^\circ\text{C}$ で還元処理した後に、酸化雰囲気中で降温したアノードでは NiO 粒子内部に空孔が生成した(図 3-6-3.13(b))。これは Ni の酸化が Ni^{2+} と O_2/O^{2-} の相互拡散で進行し、Ni 種の拡散が支配的な過程であることに起因する。図 3-6-3.13(c)~(d)は、 $500 \text{ }^\circ\text{C}$ から水素流通を開始し、昇温中に各温度で試料を取り出して観察した像である。熱履歴に応じて微構造が顕著に

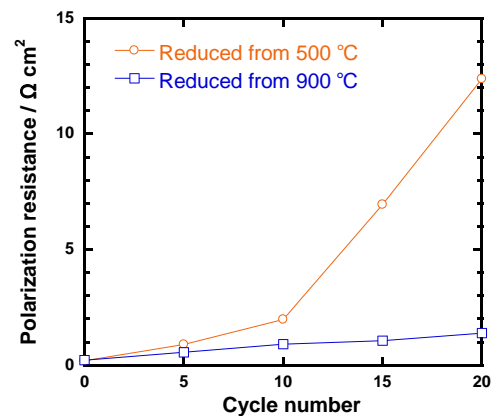


図 3-6-3.11 20 回の酸化還元サイクル処理前後における Ni-YSZ の分極抵抗。還元開始温度； 900 または $500 \text{ }^\circ\text{C}$ ，測定条件； $1000 \text{ }^\circ\text{C}$ ，開回路電圧， $97\% \text{ H}_2\text{-}3\% \text{ H}_2\text{O}$ 雰囲気下

変化した。600 °C ではスポンジ状の Ni 種が生成し、800 °C では徐々に凝集が進行する様子が見られた。1000 °C では内部空孔を有さない細長い Ni 粒子の形成が確認された。また、その分布は不均一であることがわかる。一連の微構造変化が生じた原因は、低温下で生成したスポンジ状の Ni 種にある。これらの粒子は高表面積を有しているため、Ni 種の再配列や凝集の駆動力となると考えられる。一方、還元開始温度が 900 °C の場合には、NiO 粒子が高温下で素早く還元されるため構造変化が小さかったと考えられる。以上の結果より、還元開始温度は電極の劣化因子の一つであり、システムの運転条件を検討するために重要な要素であることが明らかとなった。

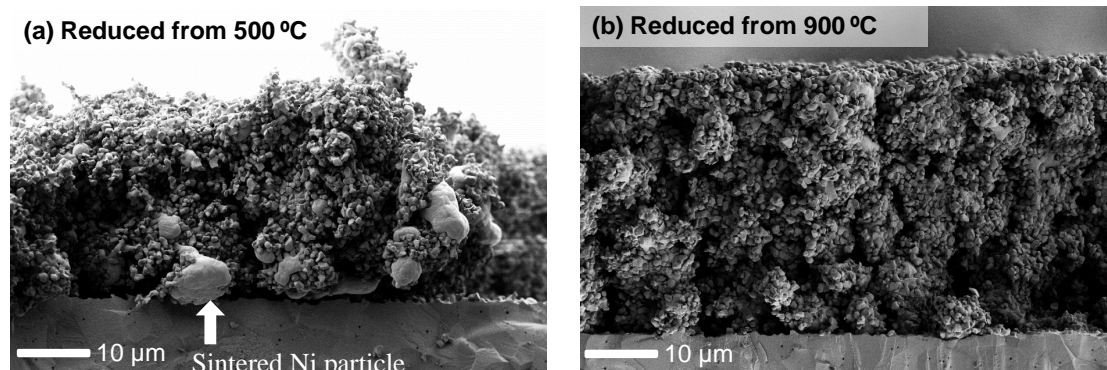


図 3-6-3. 12 20 サイクルの熱処理前後における Ni-YSZ アノード/電解質近傍の断面 SEM 画像。還元開始温度；(a) 500 °C and (b) 900 °C.

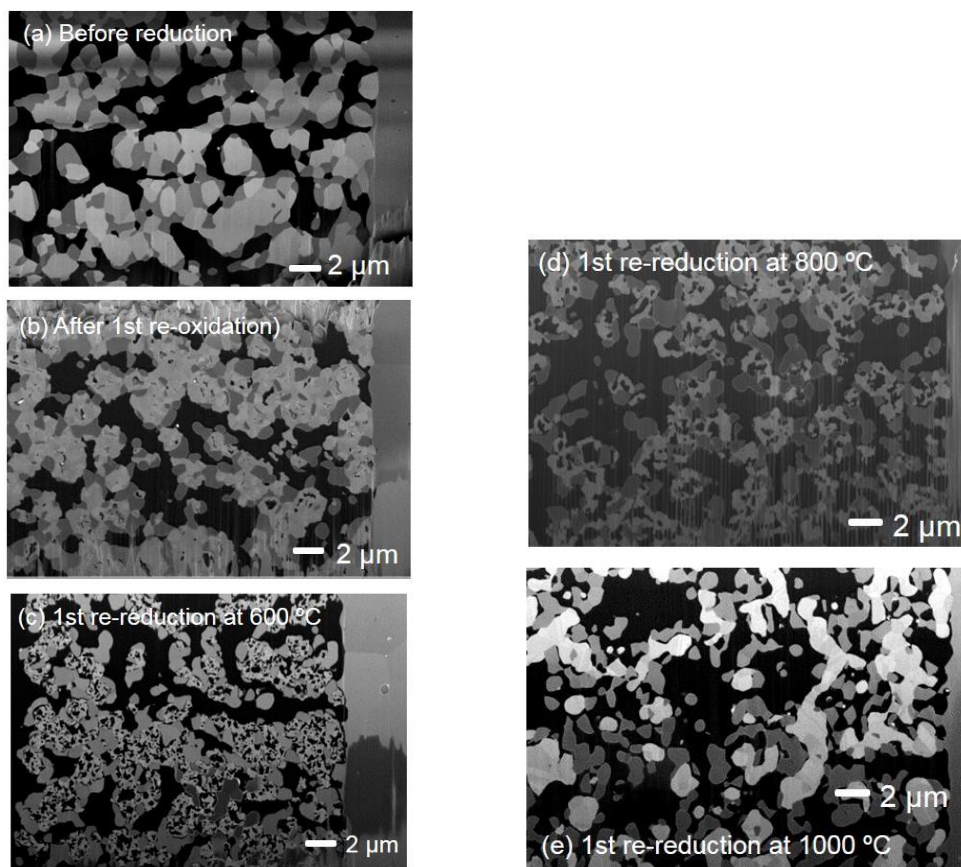


図 3-6-3. 13 熱履歴の異なるアノード断面 SEM 像 (a) 試験前 NiO-YSZ、(b) 再酸化後 NiO-YSZ、(c)~(e) 昇温還元過程の各温度におけるアノード。図中の黒が気孔、淡灰色が NiO または Ni、濃灰色が YSZ に対応

次に、カソード側の劣化要因に着目した。LSCF カソード/SDC 中間層/YSZ 電解質界面を有する電池系では、 SrZrO_3 のような高抵抗層の形成が劣化要因と考えられているが、その影響は完全には把握されていない。そこで、上述の界面を有する単セルを作製し、通電前後における界面近傍の微構造を詳細に観察した。図 3-6-3. 14(a) に 100 時間運転後 (1000 °C、 0.3 A cm^{-2}) の SDC/YSZ 界面近傍の HAADF-STEM 像を示す。図中の右側が SDC、左側が YSZ である。また、図中に示した番号位置での元素組成比を表 3-6-3. 2 に示す。解析結果より、 SrZrO_3 の形成が確認されると共に、SDC と YSZ の固溶が相当進行している様子が観察された(分析点 3, 4)。また、分析点 7, 8, 12-14 に見られるように、YSZ 相への Sm の固溶 (Sm-rich YSZ-SDC) も確認された。このような固溶相の形成は、導電率の低下を引き起こすことが知られており、SDC/YSZ 界面近傍ではある程度の厚みの抵抗相が形成されていることが示唆され、性能低下の要因になっていると考えられる。

そこで Point 7, 8, 12-14 に代表される組成の化合物を抽出して S-1, S-2, S-3 の三種類の固溶体を作製し、酸化物イオン伝導度の温度依存性を評価した(図 3-6-3. 14(b))。なお、いずれも Cubic-Tetragonal ZrO_2 相と $\text{Sm}_2(\text{Zr}_{1-x}\text{Ce}_x)_2\text{O}_7$ Pyrochlore 相から成る固溶体であることを確認している。得られた固溶体の酸化物イオン伝導度は、YSZ と比較して一桁以上低下することが明らかとなった。また、活性化エネルギーも増加した。その後、様々な組成の固溶体を作製して導電率を

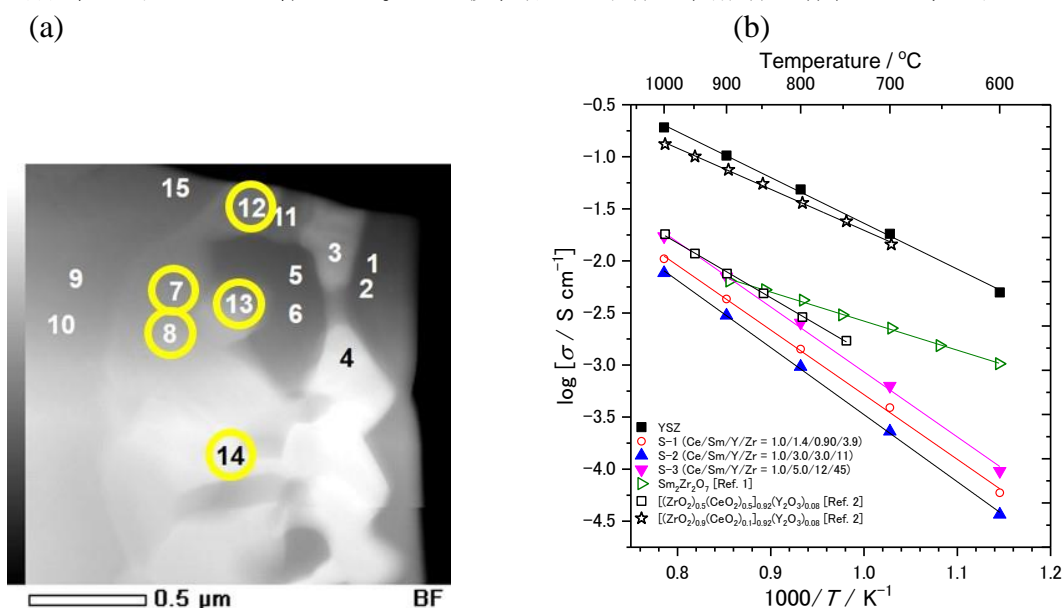


図 3-6-3. 14(a) 100 時間運転後の SDC/YSZ 界面近傍の HAADF-STEM 像。左側 : YSZ, 右側 : SDC. 数字は表 I-2-3.1 に対応。(b) 作製した固溶体 S-1~S-3 の酸化物イオン伝導度の温度依存性 (Ref. 1: Solid State Ionics 158 (2003) 359、Ref. 2: Solid State Ionics, 135 (2000) 653-661)

表 3-6-3.2 図 3-6-3. 14(a)中の数字に対応した分析点での元素組成比

No.	La	Ce	Sm	Sr	Y	Zr	Fe	Co	O	Main phase
1	0.16	0.19	1.07	24.60	1.28	29.83	1.75	0.19	40.93	SrZrO ₃
2	0.11	0.23	1.20	25.20	1.32	31.17	1.76	0.14	38.88	SrZrO ₃
3	0.00	24.60	7.08	0.10	2.62	15.11	0.26	0.05	50.19	SDC-YSZ
4	0.00	28.93	7.60	0.16	3.41	14.68	0.17	0.17	44.88	SDC-YSZ
5	0.13	0.14	0.93	25.59	1.50	31.09	1.33	0.13	39.15	SrZrO ₃
6	0.18	0.08	0.97	27.94	1.42	32.05	1.37	0.27	35.72	SrZrO ₃
7	0.04	1.44	5.16	0.09	11.95	42.39	0.38	0.29	38.27	Sm-rich YSZ-SDC
8	0.05	1.32	5.17	0.07	12.11	44.81	0.40	0.31	35.76	Sm-rich YSZ-SDC
9	0.00	0.02	0.02	0.00	10.19	52.16	0.29	0.19	37.11	YSZ
10	0.03	0.07	0.01	0.00	10.02	55.01	0.23	0.21	34.41	YSZ
11	0.22	4.62	5.17	13.46	3.08	27.56	1.26	0.21	44.42	SrZrO ₃ , YSZ- SDC
12	0.07	3.25	9.43	0.02	9.28	31.76	0.38	0.17	45.65	Sm-rich YSZ-SDC
13	0.05	7.64	11.10	1.51	8.71	32.80	0.62	0.20	37.73	Sm-rich YSZ-SDC
14	0.00	7.93	11.48	0.61	7.47	31.22	0.38	0.05	40.85	Sm-rich YSZ-SDC
15	0.04	0.04	0.07	0.00	8.14	45.44	0.20	0.10	45.97	YSZ

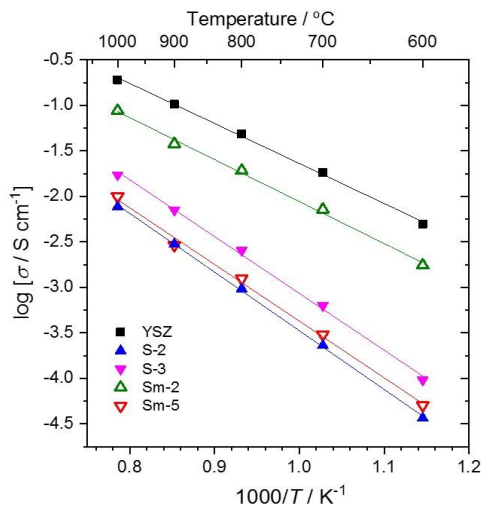


図 3-6-3.15 Sm-2 (2 mol% Sm₂O₃-8 mol% Y₂O₃-90 mol% ZrO₂), Sm-5 (5 mol% Sm₂O₃-8 mol% Y₂O₃-87 mol% ZrO₂), および固溶体 S-2, S-3 の酸化物イオン伝導度の温度

評価したところ、固溶体 $\text{Sm}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$ の生成が大幅なイオン伝導度低下の主要因であることが明らかとなった (図 3-6-3.15)。劣化後のセルでは、このような低イオン伝導性の固溶体がある程度の厚みを持って生成しており、カソード側の劣化要因として新たに考慮しなければならない因子であることを明確にした。

引き続き中間層成分の影響評価を兼ねて、GDC ($\text{Ce}_{0.9}\text{Gd}_{0.1}\text{O}_{2-\delta}$) を中間層とするセルを作製して同様の実験を行った (Ni-YSZ|YSZ|GDC|LSCF)。なお、GDC は 1250°C で 10 h の条件で YSZ 電解質に焼き付けた。図 3-6-3.16 に本セルを用いて 1000°C 、 0.3 A cm^{-2} で定電流通電試験を 400 h 行った際のカソード電位、オーム抵抗および分極抵抗の経時変化を示す。両抵抗成分は通電開始から約 280 時間後までは減少傾向を示したが、その後増加に転じ、カソード性能の低下が観察された。

この理由を明らかにする目的で上記の通電前後のセルに対して、FIB-SEM による 3 次元微構造解析を行った結果を表 3-6-3.2 に示す (図 3-6-3.17 : 3 次元再構築画像の例)。通電後に電極反応場であると考えられる三相界面 (TPB : 気相・GDC・LSCF が接触する領域) 長さ、および二相界面 (DPB : 気相・LSCF が接触する領域) 面積が減少しており、カソードの微構造変化を確認した。LSCF 粒子の凝集が反応場減少の主な原因であると考えられる。また、GDC/YSZ 界面近傍における SrZrO_3 の体積は、通電後に約 3.5 倍に増加しており、通電後に生成量が増加することが明らかとなった。さらに、LSCF 電極内には Co_3O_4 相および CoFe_2O_4 相の生成が確認され、通電後にそれらの量は増加した。 SrZrO_3 だけでなく、 Co_3O_4 および CoFe_2O_4 の生成量も通電後に増加する傾向にあったことから、LSCF の A サイトカチオンである Sr^{2+} が欠損し、その結果、過剰となった B サイトカチオンを主成分とした Co_3O_4 や CoFe_2O_4 が生成したと考えられる。

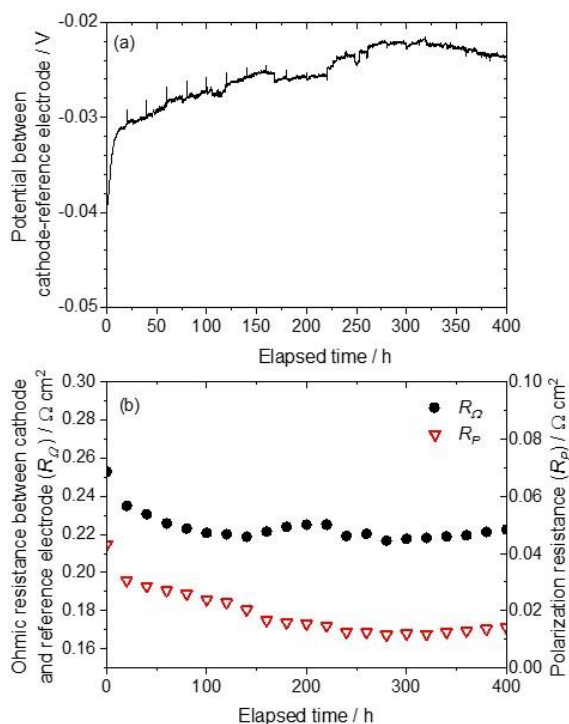


図 3-6-3.16 (a)カソードー参照極間電位の経時変化、(b) カソードー参照極間のオーム抵抗および分極抵抗の経時変化。運転条件 : 1000°C 、 0.3 A cm^{-2} 、400 h、100% O_2 、3% H_2O -97% H_2

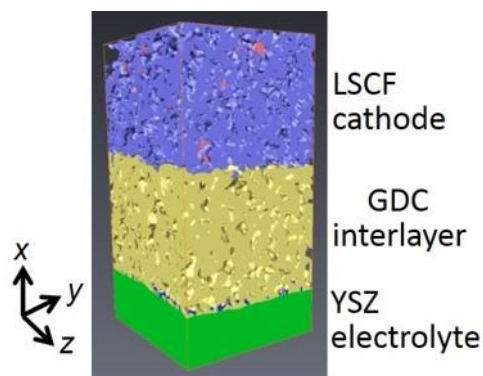


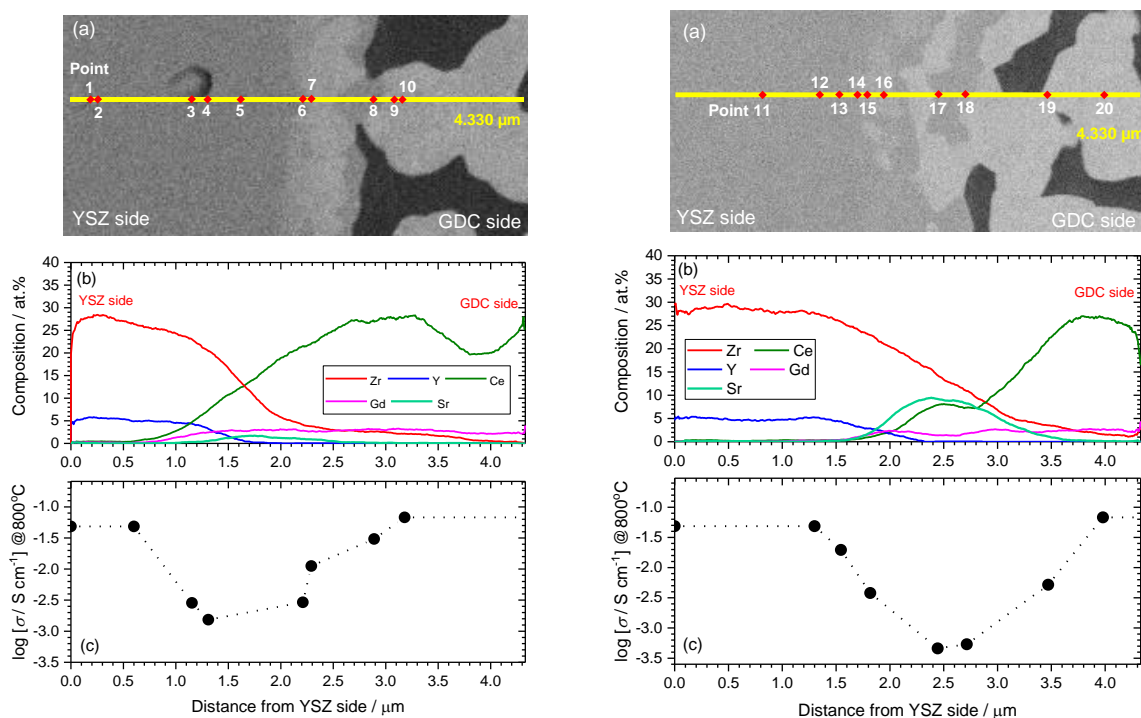
図 3-6-3.17 通電前の LSCF/GDC/YSZ の 3 次元再構築画像。紫 : LSCF, 黄 : GDC, 緑 : YSZ, 桃 : Co_3O_4 または CoFe_2O_4 , 青 : SrZrO_3

表 3-6-3.3 通電前後 (400 h) の微構造パラメータ

	Total TPB length / y - z area ($\mu\text{m}/\mu\text{m}^2$)	DPB area / LSCF volume ($\mu\text{m}^2/\mu\text{m}^3$)	SrZrO_3 volume / y - z area ($\mu\text{m}^3/\mu\text{m}^2$)	Co_3O_4 , CoFe_2O_4 volume / LSCF phase volume ($\mu\text{m}^3/\mu\text{m}^3$)
Before discharge	3.52	2.92	0.0611	0.0151
After discharge for 400h	1.63	1.60	0.212	0.0279

* y - z area: area of parallel plane to LSCF/GDC/YSZ interface

続いて、電池性能の低下を引き起こす可能性のあるセリアージルコニア固溶体について検討した。図 3-6-3. 18 (a) に通電前セルの YSZ/GDC 界面の SEM 像を示す。また、図 3-6-3. 18 (a) 中のラインに沿って EDS 線分析をした際に得られた元素比のプロファイルを図 3-6-3. 18 (b) に示す。400 h 通電後のセルについても同様に分析した結果を図 3-6-3. 19 (a) および (b) に示す。SEM 像において YSZ/GDC 界面近傍に見られる比較的暗いコントラストの相は、 SrZrO_3 に対応する。通電後の SEM 像ではこの相がより大きく広がっており、元素比プロファイルで Sr 量も増加していることから、通電によって SrZrO_3 の生成量が増加していることを示している。この結果は、表 3-6-3. 3 に示した FIB-SEM の定量分析結果と一致する。また、元素比プロファイルから、通電の有無によらず YSZ/GDC 界面では Ce, Gd, Zr, Y が相互拡散している様子が確認された。しかし、その厚みは運転前後で大きく変化しておらず、界面における元素の相互拡散は運転操作よりもセル作製時の焼成処理の際に大きく促進されたと考えられる。また、400 h 通電後には、 ZrO_2 系酸化物側において Ce よりも Gd の比率の方が大きい箇所が存在することが確認できる。このことから、Ce よりも Gd の方が速く拡散すること、運転中にもこれらの元素の拡散が進行していることが示唆された。



左図 3-6-3. 18 (a) 通電前の YSZ/GDC 界面の反射電子像，(b) 対応する EDS ラインプロファイル，(c) 800 °C におけるイオン伝導度プロファイル

右図 3-6-3. 19 (a) 400 h 通電後の YSZ/GDC 界面の反射電子像，(b) 対応する EDS ラインプロファイル，(c) 800 °C におけるイオン伝導度プロファイル

次に、各 SEM 像のライン上で EDS 点分析を行い、カチオン組成比を導出した。これを基に各点の組成を有する固溶体をいくつか作製し、導電率の温度依存性を測定した。得られたデータから 800 °C のイオン伝導度を抜き出し、ラインに沿ってプロットした結果を図 3-6-3. 18(c) および図 3-6-3. 19 (c) に示す。400 h 通電後の SrZrO_3 を多く含む相(図 3-6-3. 19(a) Point 17, 18)において、YSZ 電解質よりも 2 オーダー程度イオン伝導度が低下したことが確認された。また、通電の有無によらず、図 3-6-3. 18(a) Point 3, 4, 図 3-6-3. 19(a) Point 15 のような、 SrZrO_3 が生成していない相においても 1 オーダー以上のイオン伝導度の低下が確認され、固溶体の生成により厚み 2-3 μm 程度の高抵抗層が形成されたことが明らかとなった。このように広い範囲で生成した高抵抗層が、セルのオーム抵抗を大きく増加させると考えられる。通電前は、Point 3-7 のような緻密層でのみ高抵抗固溶体を確認され、Point 9, 10 のような多孔質層では GDC のみが観察された。一方、400 h 通電後は、Point 13-17 のような緻密層だけでなく、Point 19 のような多孔質層においても固溶体生

成に伴うイオン伝導度の低下が確認された。

そこで、YSZ 電解質側のイオン伝導度低下の要因を解明する目的で、 Gd_2O_3 - Y_2O_3 - ZrO_2 を調製し、イオン伝導度の温度依存性を調べた(図 3-6-3. 20(a))。 Y_2O_3 量を 8mol% に固定して Gd_2O_3 量を変えた場合、 Gd_2O_3 量が多い方が低いイオン伝導度を示した。 また、 Gd_2O_3 量を 10mol% に固定して Y_2O_3 量を増やした場合は、イオン伝導度はほとんど変化しなかった。 これらの結果から、YSZ 側への Gd 成分の拡散・固溶が低イオン伝導相生成の主因であることが示唆された。 先程の SDC 中間層と同様の結果となっており、ドーパント種に依存しない現象であることが明らかとなった。 続いて、GDC 中間層側のイオン伝導度低下 (Point19 近傍) の要因解明を目的として、 $(CeO_2)_{0.8}(Gd_2O_3)_{0.1}(ZrO_2)_{0.1}$ のイオン伝導度の温度依存性を調べた(図 3-6-3. 20(b))。 その結果、電解質側からの Zr 成分の拡散・固溶により中間層のイオン伝導度が大幅に減少することが明らかとなった。 このような界面における元素の相互拡散は、長期運転時には顕著になると予想されるため注意が必要である。

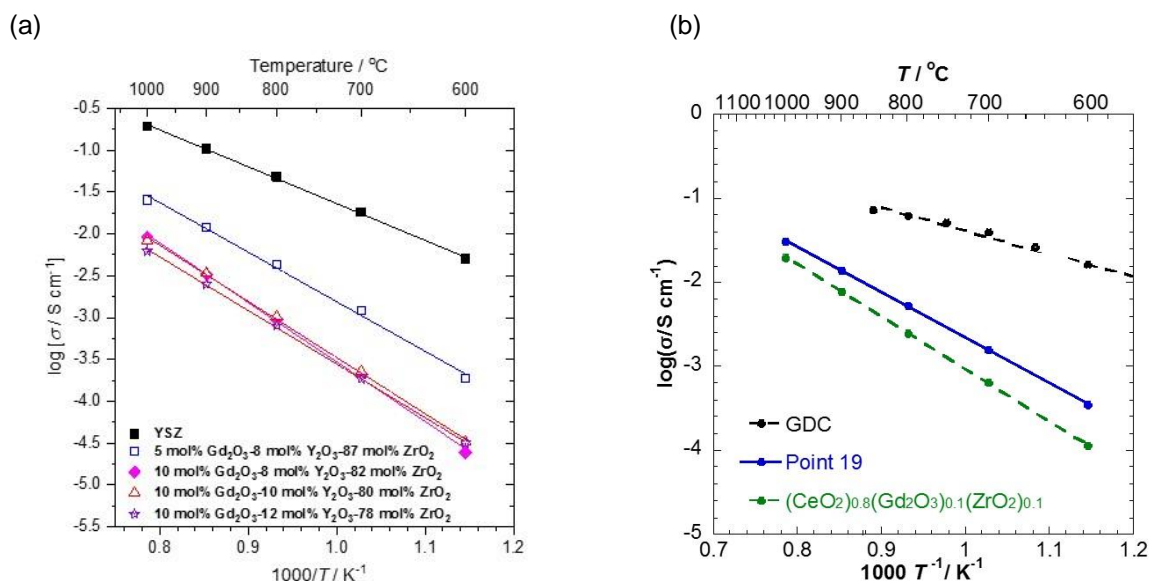


図 3-6-3. 20 (a) $(Gd_2O_3)_{0.05}(Y_2O_3)_{0.08}(ZrO_2)_{0.87}$, $(Gd_2O_3)_{0.10}(Y_2O_3)_{0.08}(ZrO_2)_{0.82}$, $(Gd_2O_3)_{0.10}(Y_2O_3)_{0.10}(ZrO_2)_{0.80}$, $(Gd_2O_3)_{0.10}(Y_2O_3)_{0.12}(ZrO_2)_{0.78}$ の導電率の温度依存性, (b) $(CeO_2)_{0.8}(Gd_2O_3)_{0.1}(ZrO_2)_{0.1}$ の導電率の温度依存性

次に、LSCF 空気極の劣化要因に着目した。LSCF 空気極は、供給する空気中の不純物ガスと反応して新しい相を生成し、電極性能が低下することが知られている。このような不純物ガスの中で、水蒸気による LSCF の性能低下が報告されているが、劣化メカニズムなどの詳細に関しては不明な点が多い。そこで以下では、LSCF に加湿酸素ガスを供給しながら通電試験を行うことで、水蒸気による電極性能変化を検討した。また、水蒸気による空気極の微構造変化を FIB-SEM を用いて定量的に解析し、空気極の微構造変化が電極性能に与える影響を評価した。

図 3-6-3. 21 に作動温度 $1000^{\circ}C$ 、 0.3 A cm^{-2} で定電流通電試験を 100 時間行った際の LSCF-参照極間の (a) 電位変化、(b) オーム抵抗および分極抵抗の経時変化を示す。純酸素 (dry) や 10% 加湿酸素 (10% humidified) を用いた場合、オーム抵抗と分極抵抗は共に 100 時間にわたって減少する傾向を示し、特に通電開始後 20 時間までに大幅に減少した。これは通電効果と呼ばれ、LSCF を空気極として用いた場合、通電によって初期の電極性能が大幅に向上することが知られている。しかし、20% 加湿酸素 (20% humidified) を用いた場合では、両抵抗成分とも増加し、電極の劣化が示唆された。

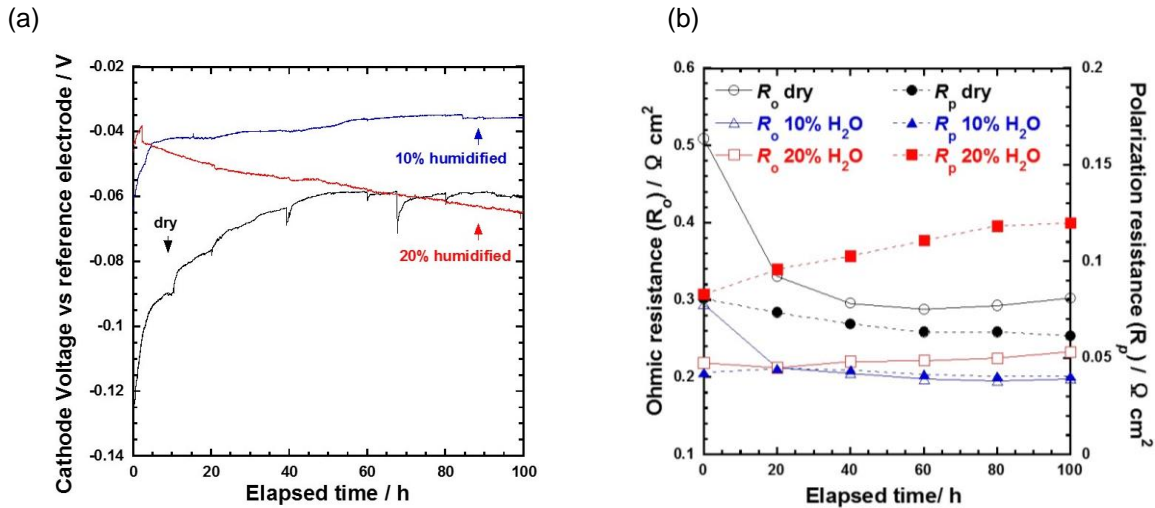


図 3-6-3.21 LSCF—参照極間の(a)電位変化、(b)オーム抵抗および分極抵抗の経時変化。運転条件：1000 °C，0.3 A cm⁻²，100 h。空気極ガス：dry (100% O₂)；10% humidified (10% H₂O–90% O₂)；20% humidified (20% H₂O–80% O₂)。燃料極ガス：100% H₂。

LSCF 粒子表面の微構造変化は二相界面で起こる酸素還元反応速度に影響を与え、電極の性能低下を引き起こす可能性がある。そこで、通電前後の空気極表面をSEMにより観察した(図 3-6-3.22)。図 3-6-3.22 (a) は通電前の空気極表面であり、1 μm 以下の丸みを帯びた LSCF 粒子が観察できた。空気極に酸素のみを供給しながら 100 時間通電した後の図 3-6-3.22 (b) は通電前とほぼ同様であり、微構造の変化は認められなかった。しかし、空気極に 10%加湿酸素を供給した図 3-6-3.22 (c) では LSCF 粒子上に結晶性の高い粒子が観察された。さらに、20%加湿酸素を供給した後の図 3-6-3.22 (d) ではこのような粒子がより成長して互いに繋がっているような様子が観察され、劇的な表面構造の変化が確認された。

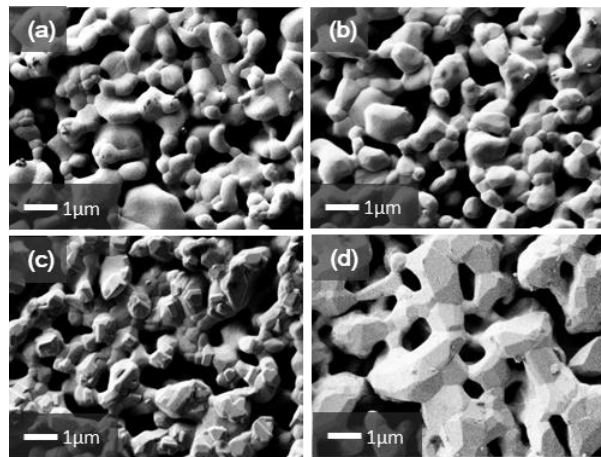


図 3-6-3.22 試験後の LSCF 表面の SEM 像。(a)試験前、(b) dry 条件、(c)10% humidified 条件、(d) 20% humidified 条件。

次に、図 3-6-3.23 に 20%加湿酸素ガスを供給した場合 (図 3-6-3.22 (d)に相当)の通電後の空気極断面 SEM 像を示す。SEM 像から異なるコントラストを示すいくつかの相が確認されたので、各相に対して Point-EDX 分析を行った。結果を表 3-6-3.4 に示す。最も明るい灰色の Point 1 は LSCF 粒子に相当し、LSCF より暗い相の Point 2 は不純物相の CoFe_2O_4 に相当する。このような LSCF 相中の不純物相の生成は、電極の調製や通電の際に、A サイトの Sr 拡散によって起こることが知られている。また Point 4 では、別のコントラストを示す新たな相が空気極の最表面で LSCF 粒子を覆い、層を形成している様子が確認された。この層からは Sr と O が主に検出されており、SrO であると考えられる。LSCF のような A サイトに Sr を含むペロブスカイト型酸化物では、Sr の表面偏析によって SrO や SrCO_3 などの Sr リッチな相が生成することが多くのグループから報告されており、空気極劣化の主な原因の一つとして考えられている。一方、LSCF と SrO の間にある Point 3 でも不純物相の CoFe_2O_4 が生成していることが確認された。このようなコバルト酸化物の生成は、SrO 生成によって過剰になったペロブスカイト構造中の B サイトカチオンに由来すると考えられる。

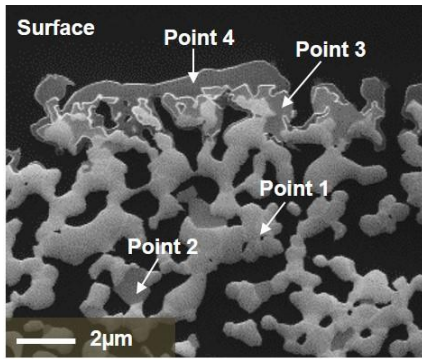


図 3-6-3.23 20%加湿酸素ガスを供給して通電した後の空気極断面 SEM 像。(図 3-6-3.22 (d)に相当)

表 3-6-3.4

図 3-6-3.23 中の Point 1-4 の元素組成比

	Composition (at. %)					Main Phase
	La	Sr	Co	Fe	O	
Point 1	16	8.1	3.5	20	53	LSCF
Point 2	0.7	0.0	19	26	54	CoFe ₂ O ₄
Point 3	2.2	6.0	13	24	55	CoFe ₂ O ₄
Point 4	3.6	26	0.0	0.0	71	SrO

続いて、酸素および 20%加湿酸素を供給しながら定電流通電試験を 100 時間施した後の各サンプルに対して、FIB-SEM 解析を行った。図 3-6-3.24 に 3 次元再構築した空気極中の (a), (b) SrO および (c), (d) CoFe₂O₄ の分布を示す ((a), (c) は純酸素、(b), (d) は 20%加湿酸素を供給した場合)。図 3-6-3.24 によると、加湿によって SrO や CoFe₂O₄ の生成が促進されることは明らかであり、特に電極の最表面で不純物相の生成が顕著であることが確認できた。生成した SrO と CoFe₂O₄ の電子導電率は 1000 °C 付近でそれぞれ、 $\sim 10^{-4} \text{ S cm}^{-1}$ と $\sim 10^{-2} \text{ S cm}^{-1}$ の値であると知られており、これは LSCF の電子導電率 ($\sim 10^2 \text{ S cm}^{-1}$) と比べてはるかに小さい値である。したがって、このような電極中の不純物相の生成によって、空気極のオーム抵抗が増加したと考えられる。しかし、多孔質空気極において、実際の酸素還元反応は電解質との界面から約 10 μm 以内の領域で起こることが知られている。今回作製した LSCF 空気極の厚みは約 25 μm であり、このような電極最表面での不純物相の生成が空気極の分極抵抗に与える直接的な影響は大きくないと考えられる。

表 3-6-3.5 に 3 次元再構築より得られた種々の電極微構造パラメータを示す。加湿によって空気極の三相界面長さや二相界面面積が減少したことが確認できた。したがって、このような反応場の減少は、空気極で起こる酸素還元反応へ直接影響を与え、空気極の分極抵抗の増加に寄与した一因と考えられる。また、水蒸気による激しい Sr 偏析は、LSCF の組成変化を引き起こし、空気極の劣化に寄与したと推測さ

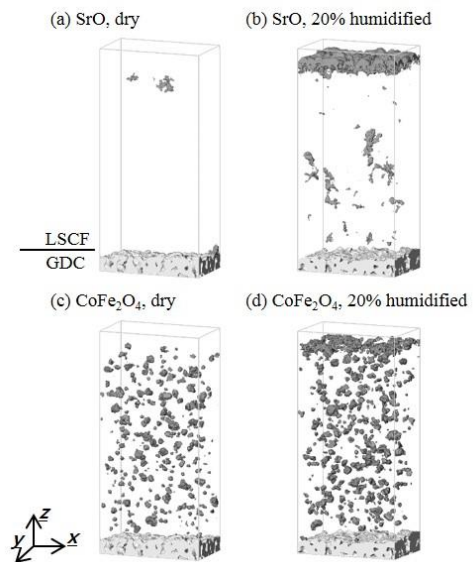


図 3-6-3.24 通電後(1000 °C, 0.3 A cm⁻², 100 h)の LSCF 電極内における SrO と CoFe₂O₄ の分布。(a)(c) dry 条件, (b)(d) 20% humidified 条件

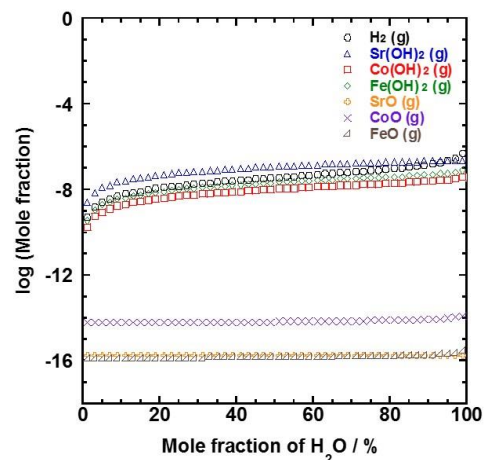


図 3-6-3.25 1000 °C, O₂-H₂O 雰囲気下における Sr, Co, Fe 成分を含む揮発性化学

れる。

図 3-6-3.24 より、SrO の生成はほぼ電極の最表面に限られているのに対して、CoFe₂O₄ の生成は電極の全体で起こることが確認された。このような SrO と CoFe₂O₄ の生成分布の違いを調べるため、1000 °C、O₂-H₂O 雰囲気下で存在し得る揮発性化学種のモル分率を熱力学平衡計算により算出した。その結果を図 3-6-3.25 に示す。計算結果より、系内で一番存在し得る揮発種は SrO 由来の Sr(OH)₂ であった。このことは Sr 偏析によって生成した SrO が水蒸気との反応により Sr(OH)₂ として蒸発し、その蒸気が拡散して電極最表面で新たに SrO 層を生成したことを示唆する。それに対して、Co や Fe 由来の揮発種のモル分率は Sr(OH)₂ よりも小さい値を示した。CoFe₂O₄ が固体状態で存在しやすいことを意味しており、CoFe₂O₄ が電極全体に分布した一因と考えられる。

表 3-6-3.5 電極微構造パラメータ (図 3-6-3.24 から解析)

Sample	Dry	20% humidified
TPB length ^a / x-y area ^b (μm/μm ²)	2.59	2.24
DPB area ^c / LSCF phase volume (μm ² /μm ³)	4.70	4.18
SrO volume / LSCF phase volume (μm ³ /μm ³)	1.00 × 10 ⁻⁴	0.0474
CoFe ₂ O ₄ volume / LSCF phase volume (μm ³ /μm ³)	0.0235	0.0502

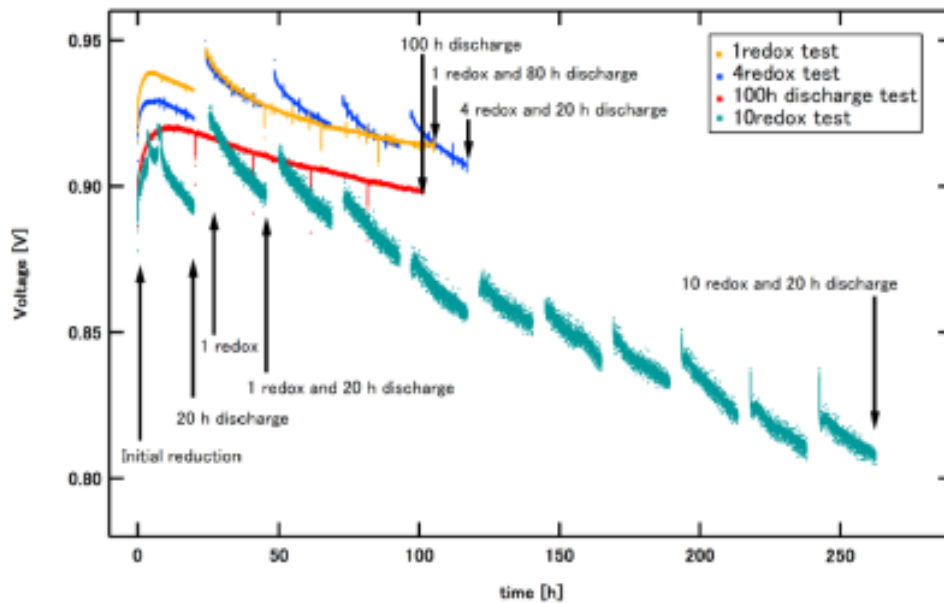


図 3-6-3.26 酸化還元サイクル実験における起電力の変化。
赤線：100 時間発電，黄色線：酸化還元 1 サイクル，
青線：酸化還元 4 サイクル，深緑線：酸化還元 10 サイクル

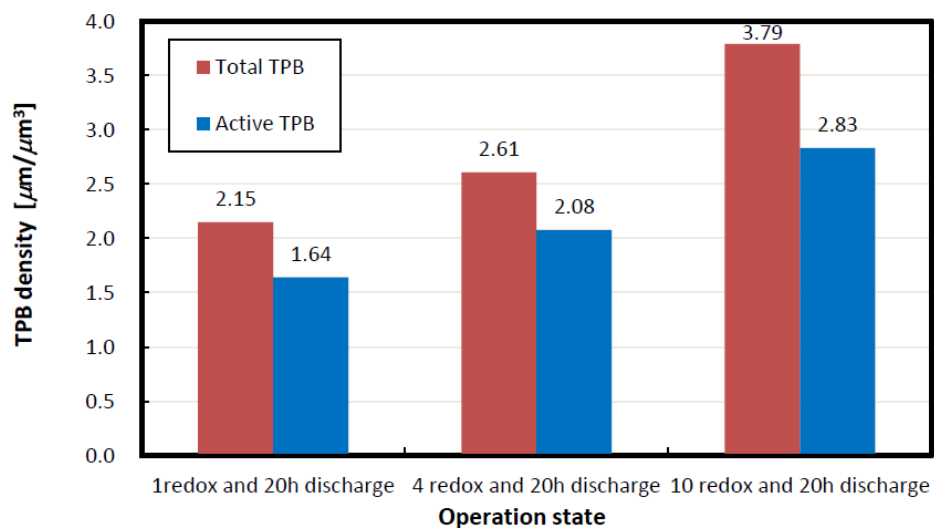


図 3-6-3.27 酸化還元サイクルにおける三相界面長さの変化。
左：酸化還元 1 サイクル，中：酸化還元 4 サイクル，右：酸化還元 10 サイクル

続いて、酸化還元サイクルと 20 時間発電のサイクルを複数回繰り返したときの分極抵抗と微細構造パラメータの変化を FIB-SEM を用いて定量的に評価した。図 3-6-3.26 に起電力の時間変化を示す。赤線が 100 時間発電結果、黄色線が 100 時間発電中に酸化還元を 1 サイクル実施した結果、青線が 100 時間発電中に酸化還元を 4 サイクル実施した結果、深緑線が 220 時間発電中に酸化還元を 10 サイクル実施した結果である。酸化還元サイクルを繰り返すほど、性能低下が観察される。図 3-6-3.27 に、酸化還元サイクル後の三相界面長さの変化を示す。三相界面長さは酸化還元サイクルを繰り返すと増加する。これは、ニッケルの微細化が進むためであるが、図 3-6-3.26 に示した性能低下とは逆の景況である。YSZ 中の有効イオン伝導率が低下したか、あるいは不純物等の影響で三相界面における局所活性が低下した可能性が考えられる。

次に、再構築した燃料極 3 次元構造および格子ボルツマン法を用いて、酸化還元サイクル時の性能変化を、交換電流密度と YSZ の酸化物イオン伝導率の観点から評価した。計算には格子ボルツマン法を用い、酸化還元サイクルの各過程での FIB-SEM 再構築構造における過電圧を予測した。交換電流密度には A. Bieberle, et al., J. Electrochem. Soc. 148, A646 (2001) の値を、YSZ イオン伝導率には U. Anselmi-Tamburini, et al., Solid State Ionics 110, 35043 (1998) の値を与えた。その結果を図 3-6-3.28 に示す。実験の過電圧は 1 サイクル+20 時間発電後から 10 サイクル+20 時間発電後にかけて増加するのに対し、計算の過電圧は実験とは逆に減少した。表 3-6-3.6 に示すように、有効三相界面長さは酸化還元サイクルを繰り返すことで増加するため、通常運転時のパラメータでは、実験結果を再現できないことがわかった。三相界面における交換電流密度、あるいは YSZ イオン伝導率が劣化要因として考えられる。この結果を受け、数値シミュレーションにおいて交換電流密度または YSZ イオン伝導率のどちらか一方を固定し、他方を実験結果を再現するようにフィッティングした結果を同じく表 3-6-3.6 に示す。実験の傾向を再現するためには、交換電流密度または YSZ イオン伝導率の値を、酸化還元サイクルを繰り返すにつれて大きく低下させなければ説明できないという結果になった。以上のことから、酸化還元サイクルにおいては、微細構造の変化だけではなく、三相界面での局所活性またはイオン伝導率も変化する可能性が示唆された。

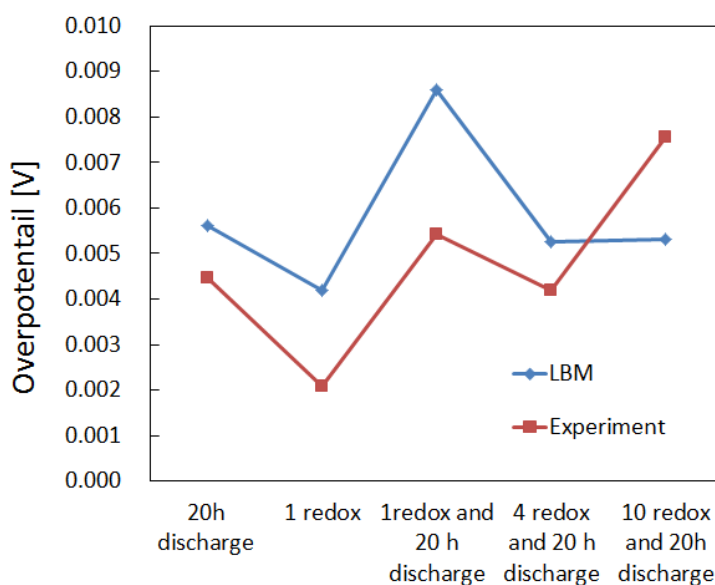


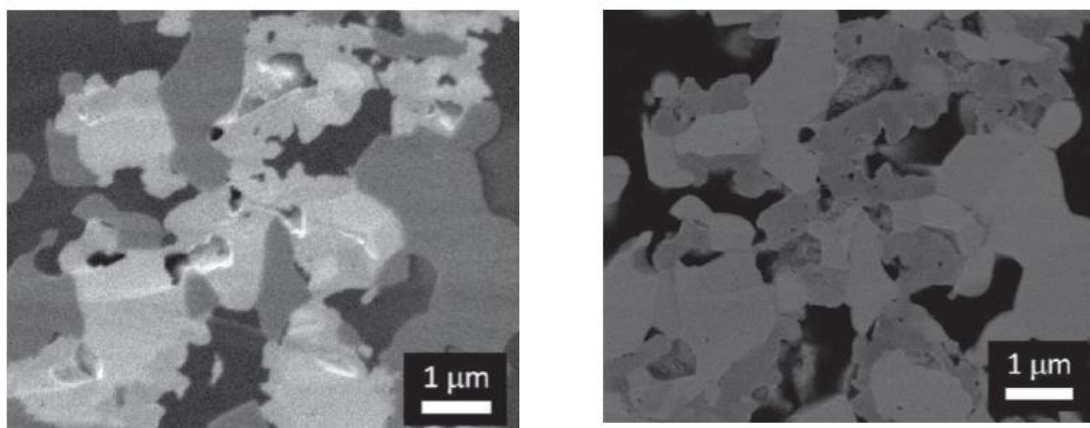
図 3-6-3.28 実験と数値シミュレーションによる過電圧値の比較。

表 3-6-3.6 微細構造パラメータとパラメータフィッティング結果

	1 Redox and 20 h Discharge	4 Redox and 20 h Discharge	10 Redox and 20 h Discharge
Measured active TPB [$\mu\text{m}/\mu\text{m}^3$]	1.64	2.08	2.83
Measured Ni tortuosity factor	8.99	4.90	3.17
Measured YSZ tortuosity factor	8.33	7.04	9.75
Measured overpotential [mV]	5.42	4.18	7.56
Fitted exchange current density [A/m]	2.23×10^{-4}	1.56×10^{-4}	5.49×10^{-5}
Fitted relative YSZ conductivity	2.687	1.678	0.357

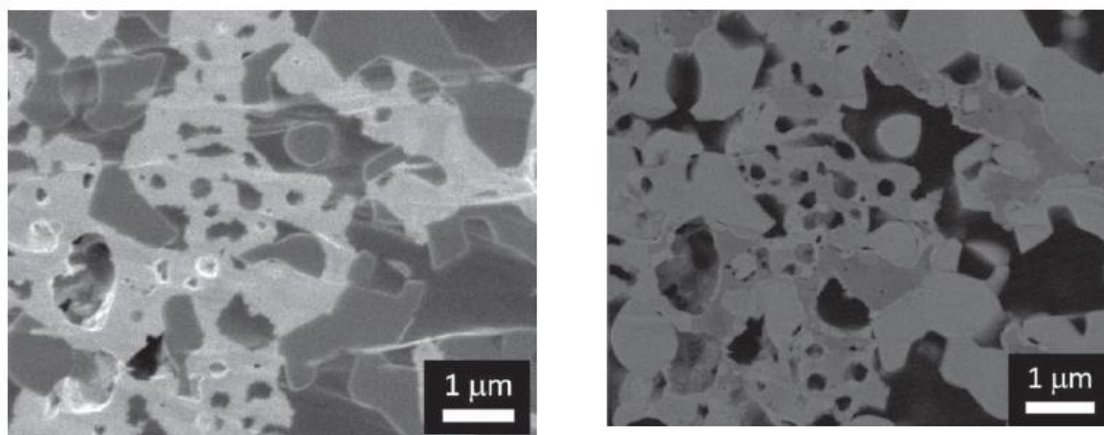
Ni-YSZ 電極の酸化還元プロセス中における微細構造変化を観察した。酸化および還元は、800°Cで行った。酸化には純酸素を 2 時間、還元には純水素を 1 時間供給した。図 3-6-3.29 に 30 秒酸化

させた後に降温したサンプルの断面 SEM 像を示す。2 次電子像と反射電子像の対応から、粒子表面から酸化が進行し、内部に空隙が生成している様子が観察された。これは、一般に報告されているニッケルの酸化の様子とよく一致するものであり、カチオン拡散に伴う酸化の進行と内部空隙の生成によるものと考えられる。図 3-6-3. 30 に、15 秒還元した後に降温したサンプルの断面 SEM 像を示す。細かい内部空隙がニッケル内に分布しており、還元プロセスにおいても Ni 内部に空隙が発生することが観察された。空隙の生成とともに、高温下での焼結も同時に進行し、細かい空隙は時間とともに徐々に減少した。一方、細長く細かな形状のニッケル相が形成された。FIB-SEM を用いて微細構造の三次元再構築を行った。図 3-6-3. 31 に示すように、酸化時のニッケル相の体積膨張に伴って連結度が增大することが確認された。高い連結度は、還元後も維持されることが分かり、微細なニッケル構造とともに、三相界面の増大に寄与することが確認された。また、酸化時に YSZ の体積分率の増加が見られ、還元後の構造も、酸化前よりも大きな YSZ 体積分率および低い空隙率を示した。このことから、酸化時に電極の緻密化が進行していると考えられ、レドックスサイクル後に電極が緻密化することの原因の一つだと考えられる。



(a) 二次電子像. 明 : Ni または NiO、灰 : YSZ (b) 反射電子像. 明 : YSZ または Ni、灰 : NiO

図 3-6-3. 29 30 秒酸化させた後に降温したサンプルの SEM 画像。



(a) 二次電子像. 明 : Ni または NiO、灰 : YSZ (b) 反射電子像. 明 : YSZ または Ni、灰 : NiO

図 3-6-3. 30 15 秒還元した後に降温したサンプルの SEM 画像。

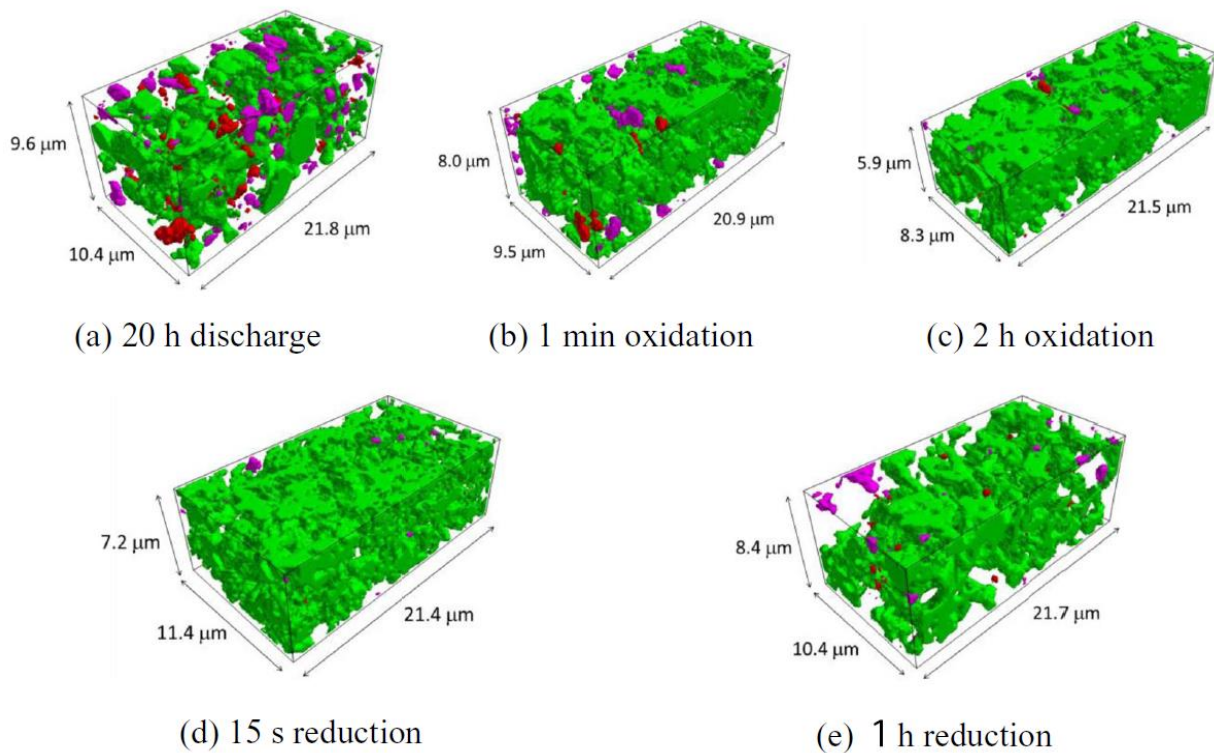


図3-6-3.31 酸化・還元プロセスにおけるニッケル相の三次元再構築構造. (a)20時間通電後、(b)1分酸化後、(c)2時間酸化後、(d)15秒還元後、(e)1時間還元後. 緑、赤、ピンクの部分が、それぞれ連結相、孤立相、不明相に対応

④ セル構造体解析による劣化機構解明、加速要因分析（東北大学）

表 3-6-4.1 に本テーマの目標、成果と達成度を示し、そのあとに内容を記述する。

表 3-6-4.1 セル構造体解析による劣化機構解明、加速要因分析 成果と達成度(2013-2017 年度)

項目名称	最終目標 (2017 年度末)	成果	達成度	今後の課題
セル構造体解析による劣化機構解明、加速要因分析	セル構造体の信頼性に影響する現象として、非対称セルについては単セルの変形挙動、対称セルについては運転条件下での特定部材の物理化学的・機械的挙動をとりあげ、酸素ポテンシャル分布を考慮した解析により、9 万時間以上の運転後の信頼性に及ぼす影響を明らかにする。	電解質・電極・インターコネクトを基本とするセル構造体に生ずる応力や変形など、セルスタックの損傷や構造的性能劣化に繋がるリスク要因の発生機構を解明し、起動・停止を含む様々な運転条件下での長期信頼性を評価する手法を開発した。	○	更なる耐久性評価に対応する高度な分析・解析技術の開発

a. 研究開発テーマの概要

本研究項目は、電解質・電極・インターコネクトを基本とするセル構造体に生ずる応力や変形など、セル・スタックの損傷や構造的性能劣化に繋がるリスク要因の発生機構を解明し、起動・停止を含む様々な運転条件下での長期信頼性を評価する手法を開発することを目的とした。

そのために、前プロジェクト（「固体酸化燃料電池システム要素技術開発事業／耐久性・信頼性向上に関する基礎研究」）で整備した機械的解析の評価体系と基礎データを拡充し新たな課題の解析に当たった。特に、前プロジェクト後期以降に参画した TOTO 製小型円筒形、日本特殊陶業製平板形、日本ガイシ製筒状横縞形、村田製作所製一括焼結形、およびデンスー製平板形のセルについては、各社と共同で、運転時のセルの挙動の評価手法（アコースティックエミッション、セル変形、温度分布のうち必要な測定）を開発・改良し、それぞれのセル構造体の機械的な特徴を明らかにした。また、後述する「シミュレーション技術の開発」で開発した固体内酸素ポテンシャル解析ソフト“SIMUDEL”および汎用構造解析ソフトへのインターフェースツールを必要に応じて各社に配布し、固体内酸素ポテンシャル変化に起因する化学歪みを考慮したシミュレーションを各社と共同で実施した。

さらに、各社セルで用いられる材料の機械的特性のうち、特に非弾性変形に関する詳細なデータを取得・整備した。電解質材料については、弾性率の減少と内部摩擦の増大が見られる中温領域での挙動に着目して、破壊強度の統計的なパラメータを取得した。燃料極支持体であるニッケルサーメットについては、遷移クリープ領域での挙動について定式化するとともに、中温度域での再酸化で見られる異常収縮現象に着目し、その挙動とクリープとの相関を明らかにした。金属インターコネクトの候補材料のうち代表的な複数の合金についてクリープ試験を実施し、その挙動を定式化した。これらの結果に加え、長期使用後を想定したセル材料の挙動について基盤コンソーシアム内で連携して解析し、9 万時間後のセル構造体の信頼性に影響する要因を分析した。

以下では、信頼性に関する課題の抽出と対策に関して各社セルごとに対する取り組みの結果について述べ、シミュレーションとの連携についてモデルセルを用いて検証した結果を報告する。また、材料特性の測定について重要な結果を抽出して報告する。

b. 各種スタックの課題の抽出と対策

i) 小型円筒形セルへの対応

TOTO製の小型円筒セルは、軸方向には拘束が小さく自由に膨張・収縮が可能であり、また直径が小さいため半径方向・円周方向には温度分布がつきにくい。このことから、熱歪みの影響が出にくく、比較的急速な昇降温に対してもロバストな構造であることが推察される。一方、一般にセルは多種材料の積層体であり、各層の熱・化学歪みを完全に一致させることはできないため、層間で応力の発生が予想される。このため、信頼性を担保するための材料・構造の設計がなされてきた。しかし、運転時の酸素ポテンシャル勾配下での各材料の挙動は複雑であり、実際のセルで設計通りの応力状態が実現されていることを確認することは極めて重要である。そこで本研究では、運転時のセル形状変化を測定することで応力の発生状況を推定する方法をとっている。小型円筒セルでは撓みなどの非対称な変形は考えにくいいため、セルの寸法を測定することで運転時の状況を評価することを提案した。

図3-6-4.1に運転時セル寸法測定装置の概略図(a)と外観の写真(b)を示す。円筒状のセルは、上下移動および回転が可能なステージに固定され、電気炉の中央部分に配置する。セル周囲は角柱型の石英製容器で覆われており、セル内外のガス雰囲気制御が可能となっている。セル外部のガス（この場合は酸素系ガス）は石英容器の下部から入り、上部に排出される。セル内部のガス（この場合は燃料）はセル下部から導入しセル上部に排出される。セル上部に排出用のガス配管を施さない場合には容器内で燃焼することになる。

セル寸法の計測にはキーエンス社製レーザー透過型寸法測定器を用いた。この装置は、計測対象物をラインレーザー投光器/受光器で挟み、一定の幅で照射したレーザー光に対し、試料が作る影の部分の長さを測定する仕組みとなっている。レーザーの照射と検出は、電気炉に設けた覗き窓を通して行うことで運転状況下での測定を可能とした。また、セル固定ステージを上下移動させることでセルの様々な部位の測長を可能とし、また、セルを回転させることで異なる角度から投影されたセル形状を把握できるようにした。

当初、セル部分の温度分布は±40 mm程度であったが、電気炉と石英ケースとの間には断熱材を施すことで電気炉内の均熱範囲を広げた。セル温度800°Cでの温度分布は中心部から±80 mmの範囲で約10°C程度に抑えられていることを確認した。(図3-6-4.2) この装置を用いてAl₂O₃円筒の直径を測定し(図3-6-4.3)、報告されている熱膨張率とほぼ一致する値を得た。この装置によって十分な精度でセル外径の温度変化を捉え得る事がわかった。

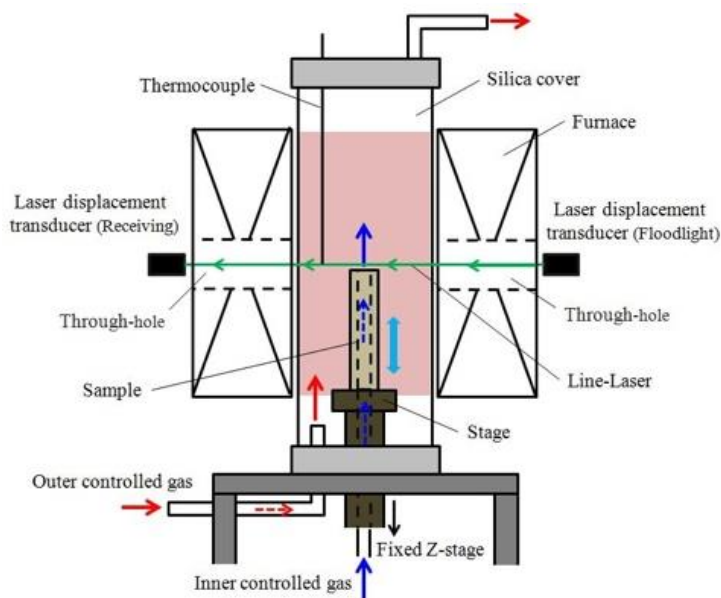


図3-6-4.1(a)円筒セル用寸法測定装置の概略図

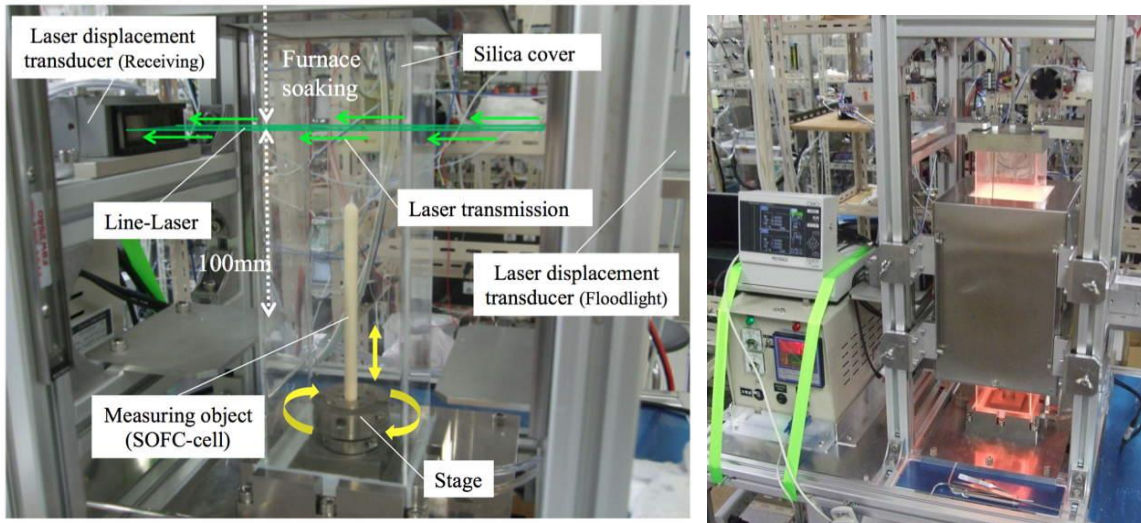


図 3-6-4. 1 (b) 円筒セル用寸法測定装置の試料保持部の構成と運転時の外観

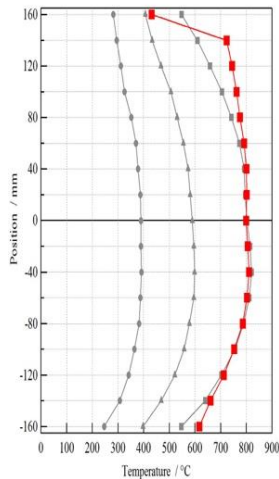


図 3-6-4. 2 直径測定装置の温度分布

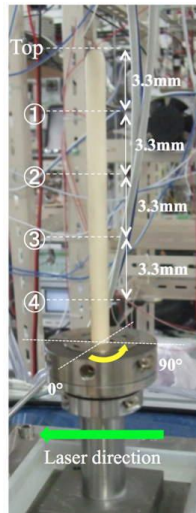


図 3-6-4. 3 直径測定装置によるアルミナチューブの測定例

-The result of Al_2O_3 tube diameter measurement-

	R.T.		400 °C		800 °C	
	0°	90°	0°	90°	0°	90°
①	9.8184	9.8428	9.8397	9.8706	9.8905	9.9020
②	9.8678	9.8989	9.8946	9.9278	9.9236	9.9638
③	9.8592	9.8797	9.8827	9.9057	9.9126	9.9436
④	9.8409	9.8688	9.8614	9.8818	9.9031	9.9243

(mm)

-Thermal expansion of Al_2O_3 tube-

vs R.T.	400 °C		800 °C	
	0°	90°	0°	90°
①	0.0213	0.0278	0.0721	0.0592
②	0.0269	0.0290	0.0558	0.0649
③	0.0235	0.0259	0.0534	0.0639
④	0.0205	0.0130	0.0622	0.0556

(mm)

-T.E.C-

$$\text{RT} \sim 400^\circ\text{C} \quad \frac{0.025}{9.8 \times 375} = 6.8 \times 10^{-6}$$

$$\text{RT} \sim 800^\circ\text{C} \quad \frac{0.06}{9.8 \times 775} = 7.8 \times 10^{-6}$$

$$\text{Al}_2\text{O}_3 \quad 7.1 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$$

次に、この装置を用いて小型円筒セルの寸法の経時変化を測定した例を、図 3-6-4. 3 に示す。一般的にニッケルサーメットを支持体とするセルでは、高温焼結後の冷却過程で支持体よりも熱膨張係数の小さな電解質内に面方向の圧縮応力が発生する。これを再度運転温度に戻した状態でも若干の圧縮応力が残ると考えられるが、このセルに燃料を導入すると還元によってサーメット支持体が収縮し、電解質により強い圧縮応力が発生する。一方で還元によってサーメットのクリープ変形が容易になるために、経時的に応力が開放されるように変形すると考えられる。図 3-6-4. 4 に示したデータは、セルの寸法を測定したものであるが、還元を開始し、セル電圧の急激な上昇がみられると同時にセルの収縮が見られ、その後、ニッケルの還元がさらに進むとともにセル寸法が初期状態に近い値まで回復することが見られており、上記のような応力の経時変化が生じていたことが推察される。これらのデータの解析により設計通りの応力状態が実現できていることが示唆された。

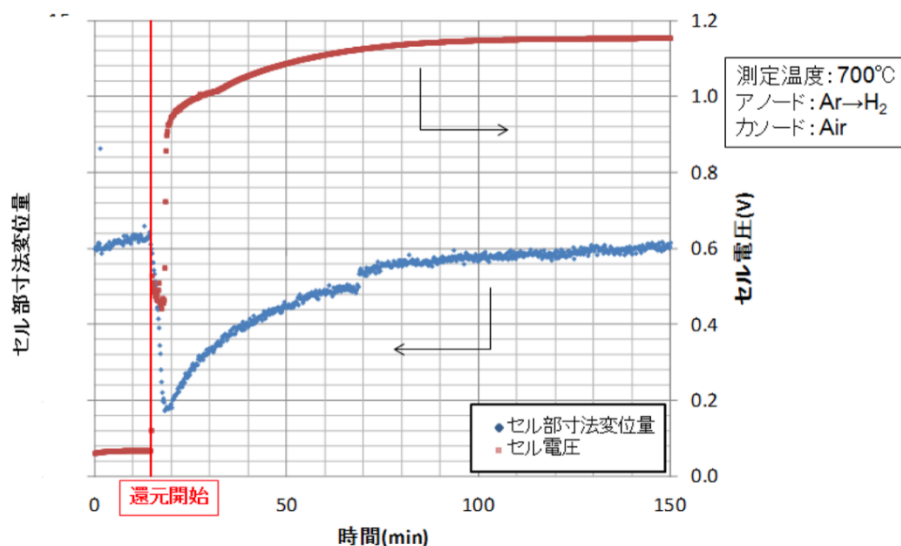


図 3-6-4.4 セル寸法変位変化

ii) 筒状横縞形セルへの対応

日本ガイシ製の筒状横縞形セルに関しては、運転時のセルの健全性を検証する手法を中心に検討した。このために、従来から使用しているアコースティックエミッション(AE)法に加え、セルの温度分布の測定を実施した。セルに亀裂などの大きな欠陥があれば、局所的な温度の上昇が観察されることが予想される。そこで前プロジェクトで筒状縦縞セル用に開発したセル形状・温度測定法と同じ装置を利用してセル表面温度のその場測定を実施した(図 3-6-4.5)。セルは箱型電気炉中に設置し、下部に開けた穴から配管を通して燃料ガスを供給した。電気炉内部には、ヒーターからの直接の放射の影響を避けるためにセルの周囲に断熱材を配した。温度分布は、二波長方式のカメラでセル全体の温度イメージ像を得た。

図 3-6-4.6 に温度測定の結果の一例を示す。図では右側がセル下部のガスシール部分、左側がセル上部(先端部)に相当する。シール部分では測定温度が高くなっているように見えるがこれは材質の違いによる誤差と考えられる。このタイプのセルでは、残存燃料をセル先端で燃焼させるため先端部の温度は上昇している。セルスタックの中心部ではインターコネクト部を含めて異常な温度分布は見られなかった。この実験では電気炉加熱で温度を制御しているため温度分布は実際のスタックとは異なる。また、材質の違う部分での温度の絶対値の正確な比較は困難である。しかし、同一材質部分の相対的な温度変化は評価できると考えられる。そこで、セル温度分布を測定しながら通電を行い、通電の有無に伴う温度の変化を測定した。

このセルに 0.23Acm^{-2} で通電した状態でのセル温度と通電前のセル温度とを比較した結果を、図 3-6-4.6 に示す。同図の下段には通電の有無の状態での温度分布の差分を示す。通電によってセル中央部の温度がわずかに上昇しているように見えるが、温度分布に大きな変化はなく、またリークの発生などの異常も見られなかった。比較的均質に安定な発電が進行していることがわかった。

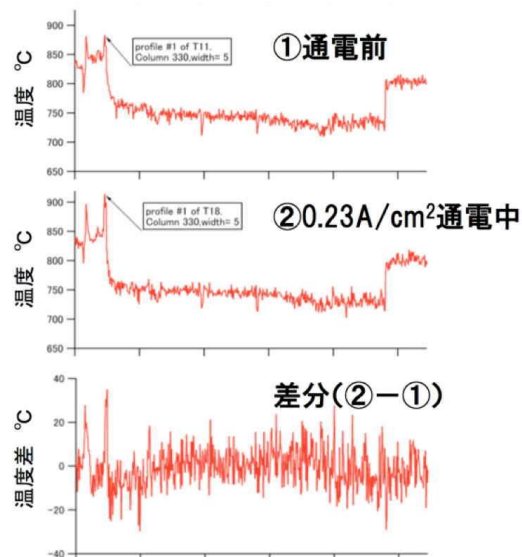
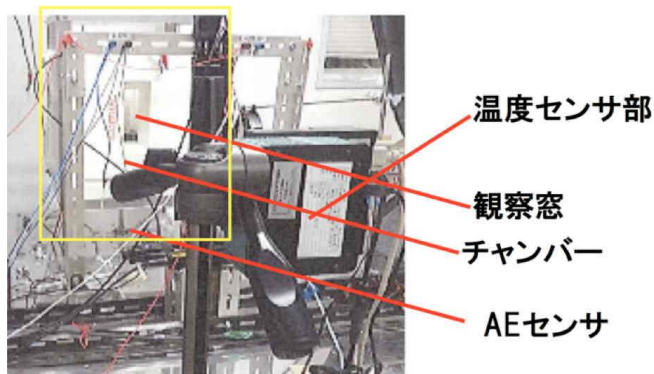


図 3-6-4.5 温度・AE・形状モニタシステム 図 3-6-4.6 通電による温度分布の変化



図 3-6-4.7 模擬単セル試験用電気炉下部のガス導入管に設置した AE センサ

(参考)対策前後のノイズ

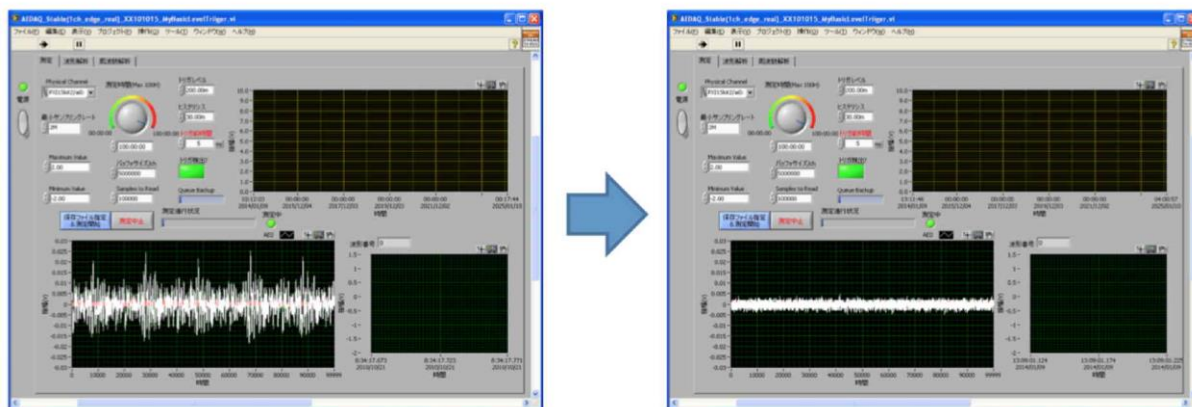


図 3-6-4.8 AE 収録時のノイズ対策の効果

また、上記と同じ実験装置で、アコースティックエミッション（AE）の同時測定を試みた。AE センサは電気炉下部のガス導入管に押し付けるようにネジ止め固定した。この試験では、変形や損傷に伴う大きな信号の発生は認められなかった。このため、従来以上にノイズの影響を排除する対策を施して、図 3-6-4.8 に示す例のように大幅なノイズ低減を達成した。ノイズを改善した測定においても異常な信号は観察されなかったことから、運転時のセルの健全性を確認することができた。

iii)一括焼結セル／平板セルへの対応

前プロジェクトから取り組んで来た運転時のセル形状測定を、各種平板セルに対して適用するために、図 3-6-4.9 に示すような平板セル形状・温度・AE 同時測定装置を作製した。電気炉内中央部付近にセルを設置し、電気炉上部に設けた石英窓を通してセル表面を見通す構造としている。この観察窓上方に二色式温度計カメラを設置し温度分布の測定を行うとともに、レーザー変位計を x-y 自動ステージを介して設置し、セル形状の 3 次元測定を可能にした。レーザー変位計はキーエンス社製の長焦点の拡散反射型の距離計を用いた。さらに、セルへのガス配管を導波管として利用し、電気炉からの出口付近でこれに密着させるように AE センサを設置した。これらを用いて、苛酷条件での単セル試験を実施し、AE 信号とセル形状変化または温度分布を同時測定することが可能となった。

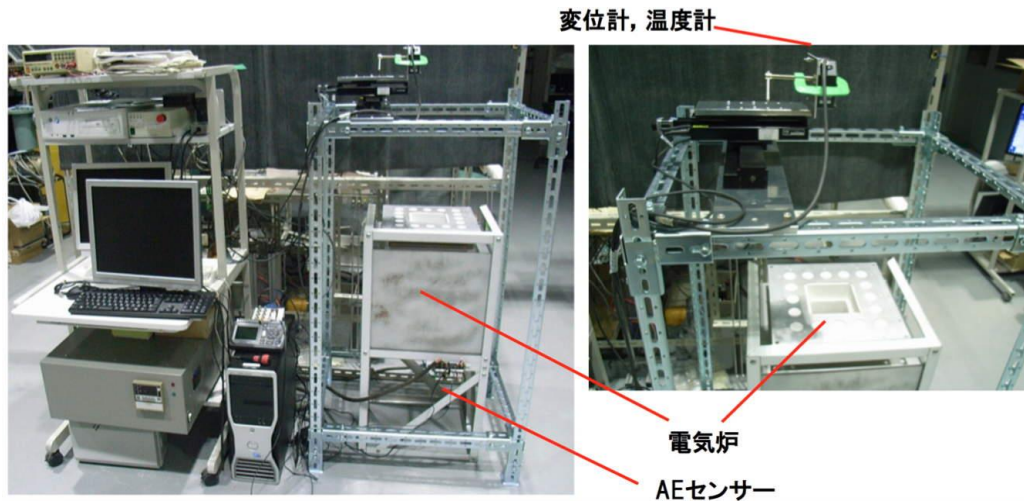
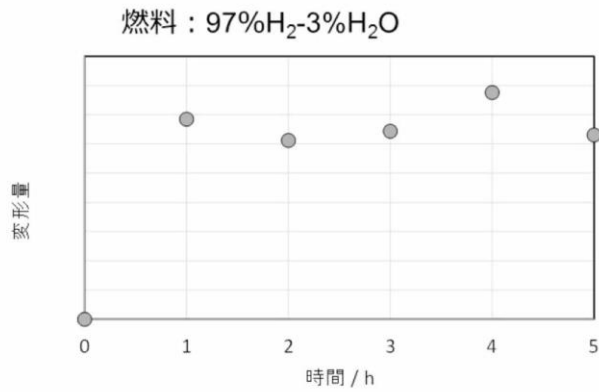
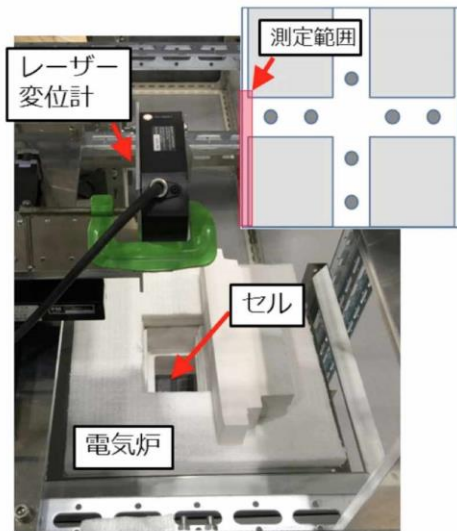


図 3-6-4.9 平板セル形状・温度・AE 同時測定装置の外観写真

村田製作所製の一括焼結形セルの形状・温度・AE 同時測定を実施した際の外観写真を図 3-6-4.10a に示す。一括焼結形セルは中央部に十字型にガス導入孔をもつ構造であるが、変形量が最も大きくなるのがエッジ部であることからこの部分の昇温に伴う変形ならびに還元処理中の変化を温度・AE ともに測定した。AE 測定に関しては、前述のようにノイズ対策を行った上で適用したが、問題となるような損傷は観測されなかった。一方、図 3-6-4.10b は、還元ガスをセルに流入してからのセル変形の時間変化の例を示している。これによると、セルは 1 時間後までの間に大きく変形し、それ以降はほとんど変化がないことが明らかとなった。測定結果は SIMDEL による数値解析結果と良い一致を示し、アノードの還元による変形が主要因であることがわかった。セルやスタックを設計する際 SIMUDEL を用いた数値解析である程度変形や損傷度合いを予測できることがわかった。

また還元ガス導入によるセル部材の還元状態を明らかにするために、一括焼結セルの運転後のセル部材について、放射光マイクロビームを用いた X 線吸収分光によって局所的な酸化還元状態を評価した。測定は Spring8 のビームライン BL-05 で実施した。始めに、含まれる遷移金属の種々酸素分圧のガス中での X 線の吸収端微細構造 (XANES) を測定して吸収端位置のシフト量と酸素ポテンシャルとの対応を明らかにし、これを参照して、実試料中における局所酸素ポテンシャルを決定した。この結果、予め想定された以上の異常な変化は見られず、運転時のセル内部の酸素ポテンシャルの変化が信頼性・耐久性に及ぼす影響は限定的であることがわかった。



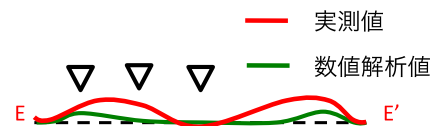
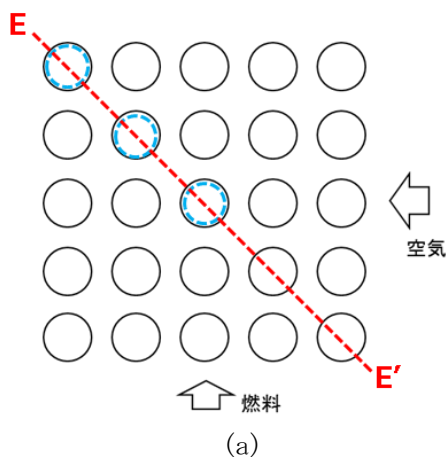
変形の大部分が還元後1h以内に生じている。

(a)

(b)

図 3-6-4.10 (a)還元中のセル形状・温度・AE 同時測定装置の外観写真 (中温一体焼結形平板セル)
(b)還元時間に対するセルの変形量の概略図

デンスー製中温平板型セルについては、スタック上下端に相当する金属部材にセルが挟まれ、実際のセル変形が見えないため、図 1.1b(k). 2.3-11a に概略を示すように、金属部材に複数の穴を開け、その穴を通してセル表面の位置を測定することで運転時のセル変形を測定した。この場合セルは集電部材により柔らかく拘束されていることから実際の変形量は小さく、変形測定には高い感度と繰り返し精度が要求される。そこで、レーザー変位計の周辺でのガスの流れを制御するための改造を行い熱による測定値のゆらぎに起因する誤差を大幅に低減することに成功した。これにより、これまで測定できなかった微小な変形も測定できるようになった。実測した変形挙動の測定例と、本プロジェクトで開発した固体内酸素ポテンシャル計算ソフト“SIMUDEL”を用いて得られたセル形状の計算結果の比較を図 1.1b(k). 2.3-11b に示す。両者でセル変形の傾向はほぼ一致しており、計算によってセル変形挙動を模擬することに成功したと考えている。これにより変形のメカニズムを得ることができ、昇温・発電・降温過程のセル変形を予測することが可能となった。



(a)

(b)

図 3-6-4.11 (a) ガスフローならびに観測部を併記したセルスタック上面概略図 (中温平板セル)
(b)セル形状実測値ならびに SIMUDEL を用いた数値解析値の比較概略図

c. モデルセルによる検証

部材の熱機械特性または熱-(電気)化学-機械特性が積層構造体としてのセル/スタックの信頼性に大きな影響を及ぼすことは SOFC の特徴の一つである。本研究では、既に記したようにセルの変形挙動に着目して各社と共同で実験を行ってきた。ここで構築した評価手法やその結果は各社での開発に生かされているが、より一般化した対象に対して同様の実験を実施し、部材の特性と信頼性を結ぶメカニズムを明らかにし、シミュレーションによる信頼性評価の精度を向上させることは、今後の開発にとって有益な情報となる。そこでボタンセルの形状変化を起動/停止を含む運転条件下で測定し、シミュレーションとの比較を試みた。

ボタンセル用の運転時セル形状測定装置の外観写真と概略図を図 3-6-4.12 に示す。セルホルダ部は、一端封じの石英管中に 2 室構造のガス導入路を形成し、ボタンセル周辺でガスシールする構造とした。外部の石英管の上部は平滑な面として、ここを通してレーザー変位計で表面の形状を測定する構造とした。変位測定には、ライン状のレーザー源をもつ拡散反射型のヘッドを用いた。これによりセル表面の撓みの測定がセンサヘッドのスキアンなしに可能となった。電気炉上部は空気の流れによる冷却や測定への影響を避けるため石英ガラスで覆っている。測定を行っていない時には電気炉上部に断熱板で蓋をして熱の散逸を防いだ。

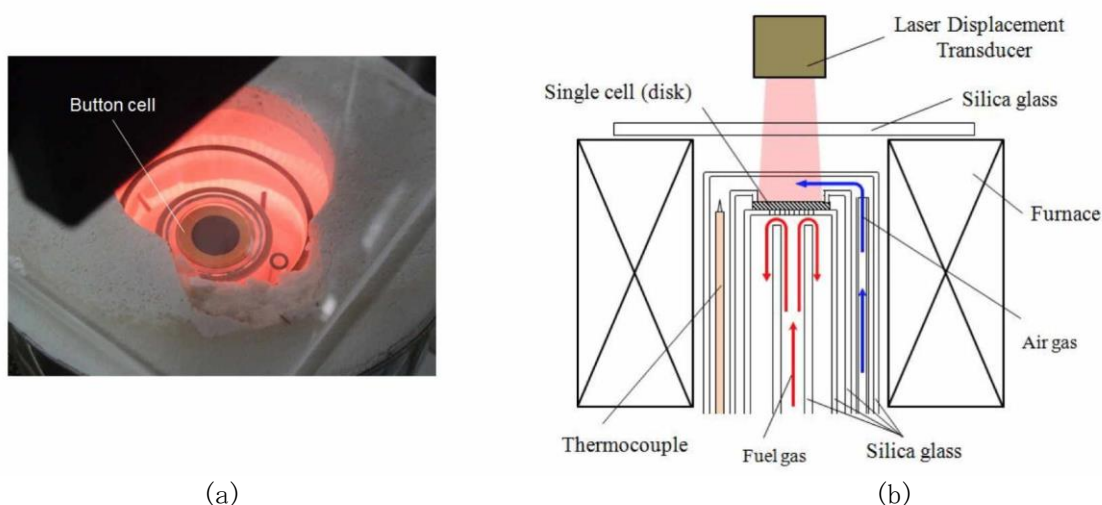


図 3-6-4.12 (a) ボタンセル用形状測定装置のセルホルダ部写真
(b) ボタンセル用形状測定装置の構成概略図

測定用のセルは、プレス成型した NiO-8YSZ のペレット上に電解質の 8YSZ およびカソードの LSCF6428 ($\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$) を順にスクリーン印刷/焼結して作製した。支持体の Ni:YSZ 比は 50:50 とし、増孔材 (グラファイト) の有無によって還元前の気孔率を 0% と 27% の二種類の試料を作製した。支持体の直径は焼結後に約 20 mm となるように、30 mm のダイスを用いて成型した。電解質は焼結後の厚さが $10\ \mu\text{m}$ となるようにスクリーン印刷した後 1350°C で焼結した。焼結直後の試料にはソリが生じたため、これをアルミナ板に挟んで 1300°C でソリ取りをした。カソードは厚さが $20\ \mu\text{m}$ となるようにスクリーン印刷して 950°C で焼成した。簡単のためにカソード中間層は設けていない。また、比較のために、カソード層をつけていないセルも準備した。

図 3-6-4.13 は実験の際の温度および燃料ガス雰囲気のプロトコルの一例である。不活性ガス中で 800°C まで昇温した後に $1\%\text{H}_2$ を導入し 3 時間保持して降温した。2 回目以降の昇降温では燃料ガス側には常に $1\%\text{H}_2$ を流通させた。

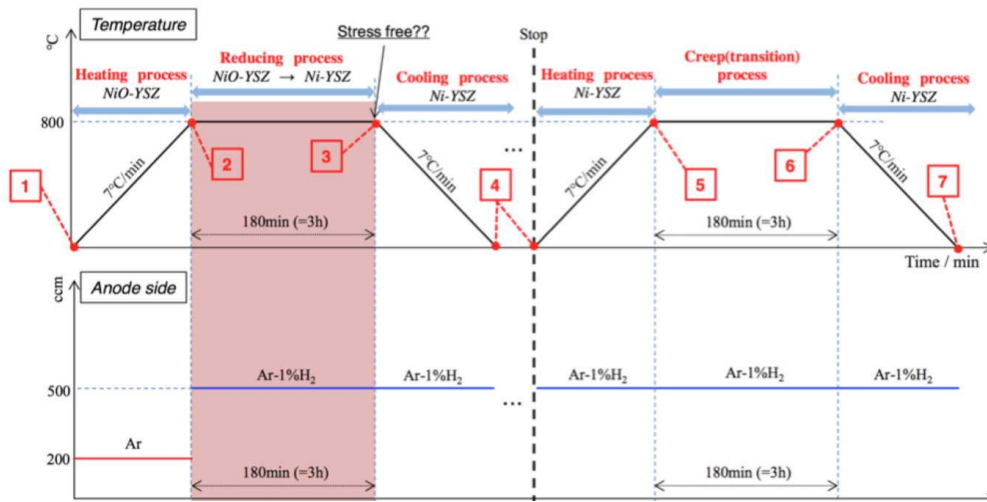


図 3-6-4.13 モデルセル変形測定における温度変化スキームの一例

このような昇降温プロセスにおける初期のセル形状変化を追った結果を、図 3-6-4.14 に示す。図では、カソード層を持つ場合と持たない場合の結果を比較している。カソード層を持たないセルでは焼結後の収縮によって室温で上が凸になるように（アノードが凹となるように）たわんでいる。これは、NiO-YSZ の熱膨張率が YSZ より大きいいため、焼結およびフラット化の高温過程で応力フリーの状態となったセルを再度降温する際に生じたものと考えられる。800°C までの昇温過程ではこのたわみが若干回復したが、その後 1%H₂ で還元するとセルのたわみが増大した。これは、NiO が Ni になることによる体積減少のためたわみが増大したとみることができる。さらにこれを室温に戻した後の測定では、たわみが減少していた。この課程の解釈は単純ではないが、クリープによるたわみの減少と熱膨張差によるたわみの増大とが相殺しながら推移して室温での形状が決まったものと考えられる。再度 800°C への昇降温を繰り返した際には 800°C 保持時に Ni の還元がさらに進み、たわみが若干増大した。最終的には室温で大きなたわみが残る結果となった。

一方、カソード層を持つセルは、カソード層を持たないセルに比べて昇降温時ならびに還元時のたわみが小さかった。昇降温に関しては、アノードとカソードの熱膨張率が共に電解質より大きいために、カソード層の付与によって両面で釣り合いの状況が生じているものと考えられる。その場合でも還元時にはたわみが生じることが期待されるが、実験では還元時の変化は限定的であった。カソード層は多孔質層であるが、セル変形と応力の発生にとってはその影響が無視できないことが明らかとなった。

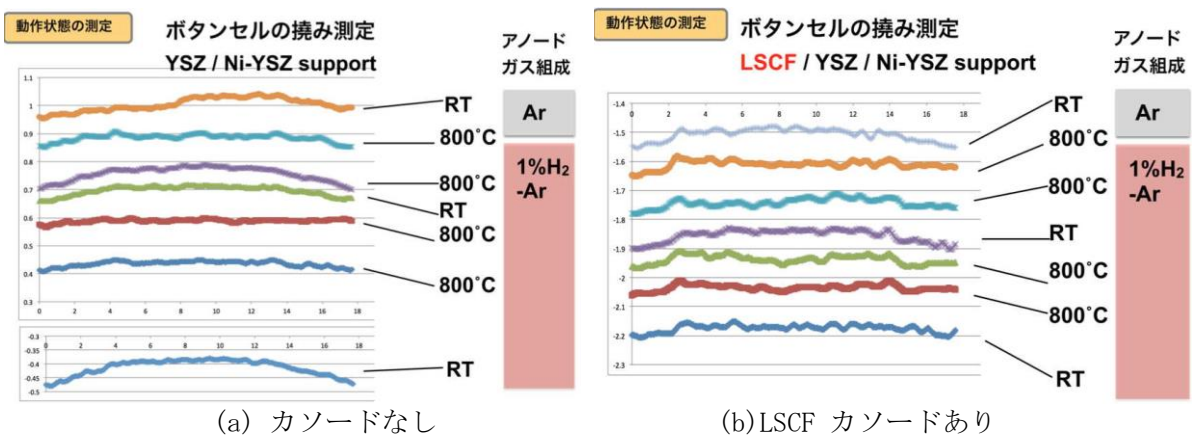


図 3-6-4.14 アノード支持形のボタンセルの形状（撓み）の測定

ボタンセルの運転時セル変形測定の結果に対し、この挙動をシミュレーションによって再現する

試みを行なった。図 3-6-4. 15 は、初期の昇温課程(1)→(2)においてセルに生じる歪みを有限要素法による構造解析ソフトウェア (ANSYS) を用いて計算した結果を示す。ここでは弾性変形のみを考慮し、応力は室温での状態を基準として (応力ゼロとして) 計算を行なった。温度の上昇に伴って支持体側の熱膨張によりセルの周辺部がカソード側に向かって反り返る状況が再現されている。この状態でのミゼス相当応力の分布を同図(b)に示している。特に電解質部に大きな応力が生じていることがわかる。面内の主応力としては、350MPa 程度の二軸引張応力が生じており、後に述べる YSZ の破壊強度を考慮すれば、危険な状態ということになる。ただし、実際にはクリープ変形が生じるため応力が緩和することが予想され、また、室温で電解質に残留応力としての圧縮応力が生じているため、上記の引っ張り応力を相殺してセルの健全性が維持されているものと考えられる。

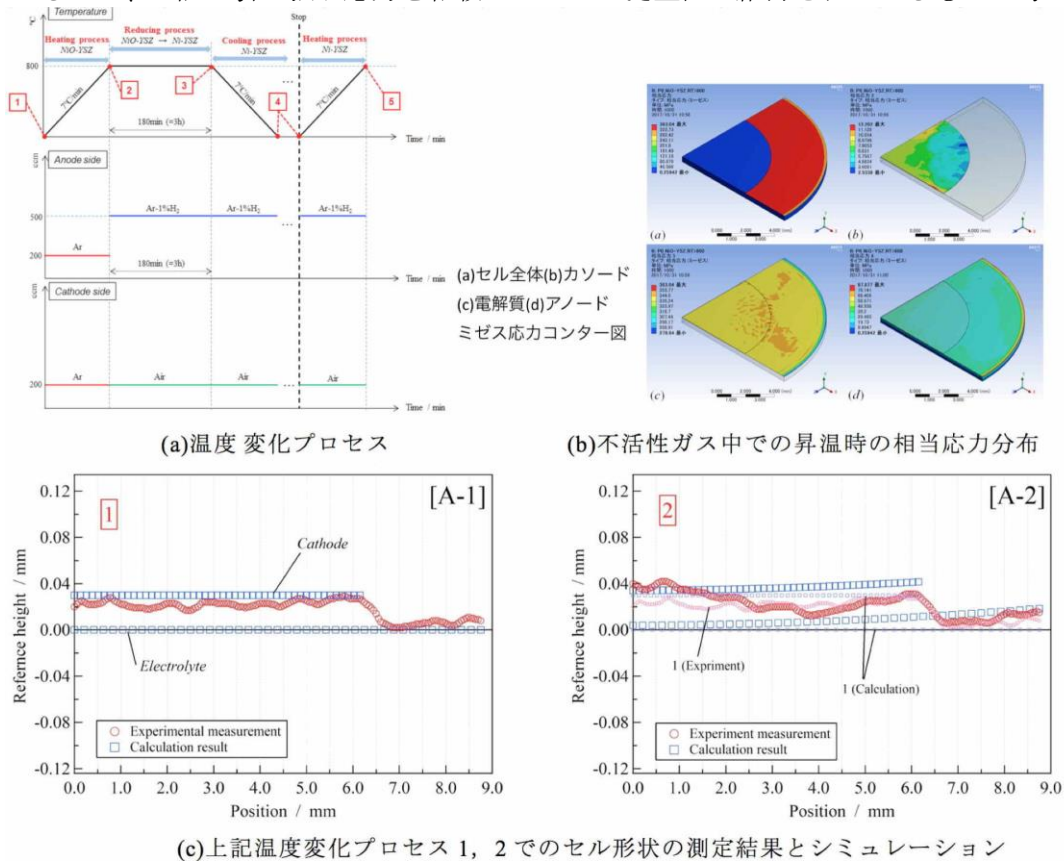


図 3-6-4. 15 アノード支持形のボタンセルの形状測定とシミュレーションの比較

上述の計算では塑性変形を考慮しておらず、カソードの還元歪みも考慮していなかった。そこで、化学ポテンシャルを考慮して還元歪みの影響を導入するために、本研究で開発した“SIMUDEL”を用いた計算を行った。この結果の一例を図 3-6-4. 16 に示す。図は前述の実験のスキームに従って温度・雰囲気を変化させた後のセルの形状をシミュレーションしたもので、図の左側がカソードを持たないセルの場合、右側は LSCF のカソードを有するセルの場合を表している。図の最上段は解析に用いたモデル、中段は酸素ポテンシャル、下段はセルの変形と半径方向の応力を表している。カソードを持たないセルではセル全体が電解質側を凸にして変形していることがわかる。これは実験の結果とよく一致する。このとき、電解質側には圧縮応力が、アノード支持体側には引っ張り応力が生じている。カソードを有するセルでは酸素ポテンシャルがカソード内で高い値を示している。これは空気との相互作用は電極層のみで生じる設定としているためである。セルの変形はやや複雑な形状となっており、カソードのない外周部では電解質側 (上側) に凸、カソード部では平坦か上に凹となるように変形している。これも実験の結果とよく一致した。これらから、セル変形へのカソード多孔質層の影響が大きいことが改めて明らかになった。

図 3-6-4. 16 は、計算において LSCF の還元膨張の影響の程度を評価したものである。図中の赤い実線は LSCF に関して熱膨張のみを考慮した計算、黄色い実線は還元膨張も考慮した計算の結果を表している。両者にはカソード部分に関してセルたわみに明らかな差が見られる。ただし、実験値との比較では、これらの差を議論できるほどの精度は得られておらず、計算の結果は還元膨張によ

るリスクの増大を示唆するのみに止まった。

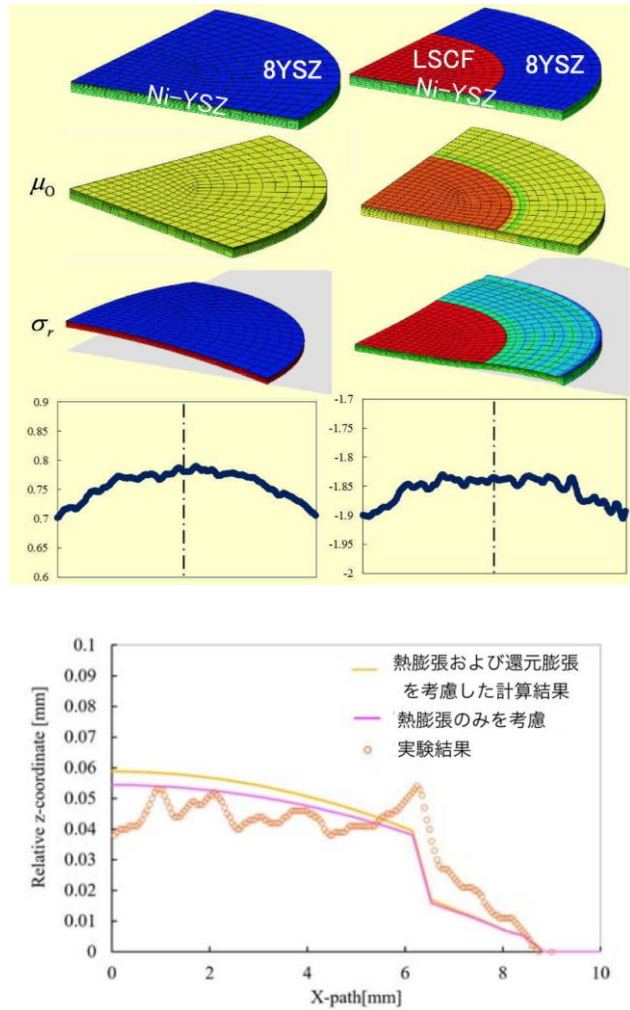


図 3-6-4.16 アノード支持形のボタンセルの形状測定とシミュレーションの比較

d. 材料特性の測定

i) 電解質材料の機械的特性

i)-1) セラミックスのクリープ試験のための装置開発

上述した変形解析や応力解析を行うにあたり、構成材の縦弾性係数、ポアソン比の他、非線形クリープ特性、あるいは破壊強度や破壊様式などの情報が必要となる。本研究では、これらの機械的特性の測定に、試料サイズが小さくて簡便なスモールパンチ試験を用いてきたが、クリープ試験については長期試験での安定性を考慮して4点曲げ方式を採用した。温度・ガス環境制御槽内で試験を実施するための治具はアタッチメント式で作製した。電解質材料である8YSZのクリープ試験の結果を図3-6-4.17に示す。図に示すようにクロスヘッドの押込変位において、試験中に不規則な挙動を示しておりその挙動が一部レーザー変位計(試料撓み量)のデータにも影響を及ぼしていることが解った。この原因としては、①4点曲げ用治具における上部支点用の治具-試料で固定が不安定で、それがクロスヘッド押込変位の誤差要因となっている。②測定試料が非常に薄く、規定の曲げ応力を発生させるための負荷荷重が低くなるため、各支点に生じる力が低下し、外乱の影響を受けやすくなることが考えられる。

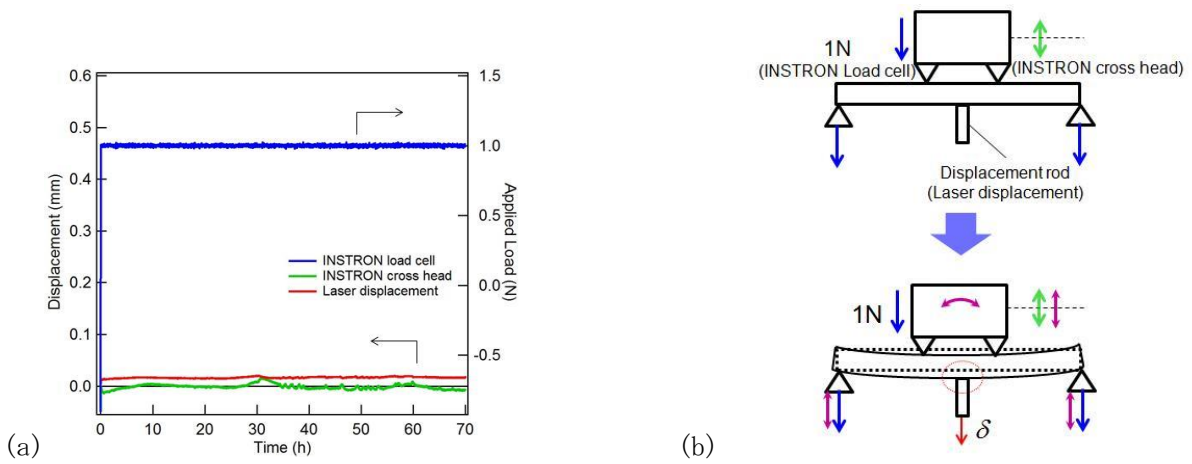


図 3-6-4.17 (a) 8YSZ クリープ試験中のロードセル負荷荷重およびクロスヘッド押込変位、レーザー変位計で測定される試料撓み量の時間経過 (b) クリープ試験中に予想される状況変化

試料の撓み量はクリープひずみを算出するにあたって非常に重要であり、その測定精度および再現性確保は試験の良し悪しを決める肝となるため、以下の対策を講じた。

a. 上部支点用治具-試料で振れ回り生じないようにガイド部分を増設。(図 3-6-4.18 赤矢印) 実際の試験部の写真を図 I-2-4.5 に示す。

b. 試験片サイズを 26mm×4mm×0.5mm → 26mm×4mm×2mm を変更。
これにより、図 3-6-4.19 に示したように、懸念されたクロスヘッドの押込変位の挙動について明らかな改善がみられる。クロスヘッドの押込変位平均値に対する標準偏差は 2.7 時間の段階ではあるが約 53%改善した。

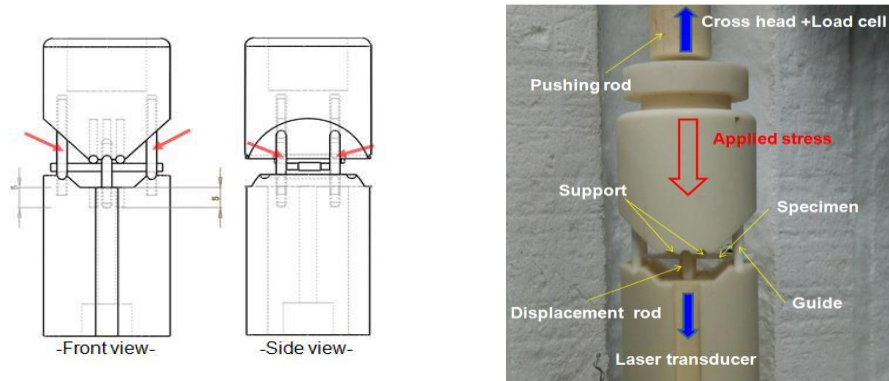


図 3-6-4.18 改良後クリープ試験用治具の概念図(a)と写真(b)

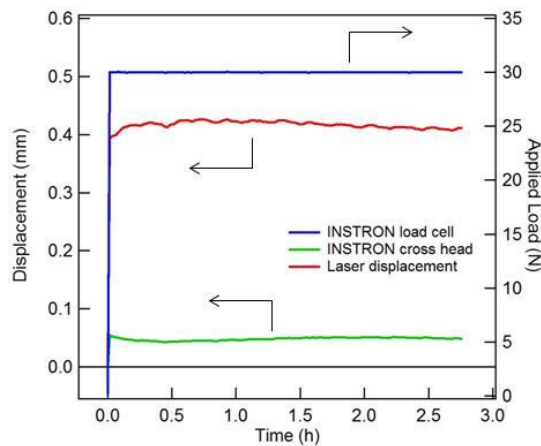


図 3-6-4.19 対策実施後のロードセル負荷荷重およびクロスヘッド押込変位、レーザー変位計で測定される試料撓み量の時間経過

i)-2) YSZ の高温クリープと遅れ破壊

図 3-6-4. 20 に、前述の四点曲げによるクリープ試験装置を用いて YSZ (8mo1%Y₂O₃) のクリープ特性を、850°C、空気中で測定した結果の一例を示す。クリープ挙動は初期から時間に対し線形に歪みが増大する定常クリープの挙動を示していた。クリープ構成則として Norton 則を用いてこの温度での挙動を定式化すると、応力 σ への依存性は $4.69 \times 10^{-10} \sigma^{0.1}$ で表すことができた。

この実験はすべて破壊強度以下の荷重で実施したが、一部の試料で、80 時間程度で破壊にいたるケースが見られた。これは初期に内包されていたなんらかの欠陥に基づく遅れ破壊と考えられる。これに関しては、実験に長時間が必要であることから、再現性のある結果は得られておらずこの場合の遅れ破壊のメカニズムは不明である。ただし、破壊強度の信頼性をより明確にするために、破壊靱性値の測定および破壊の統計的な取り扱いを試みた。この結果を次節以降に示す。

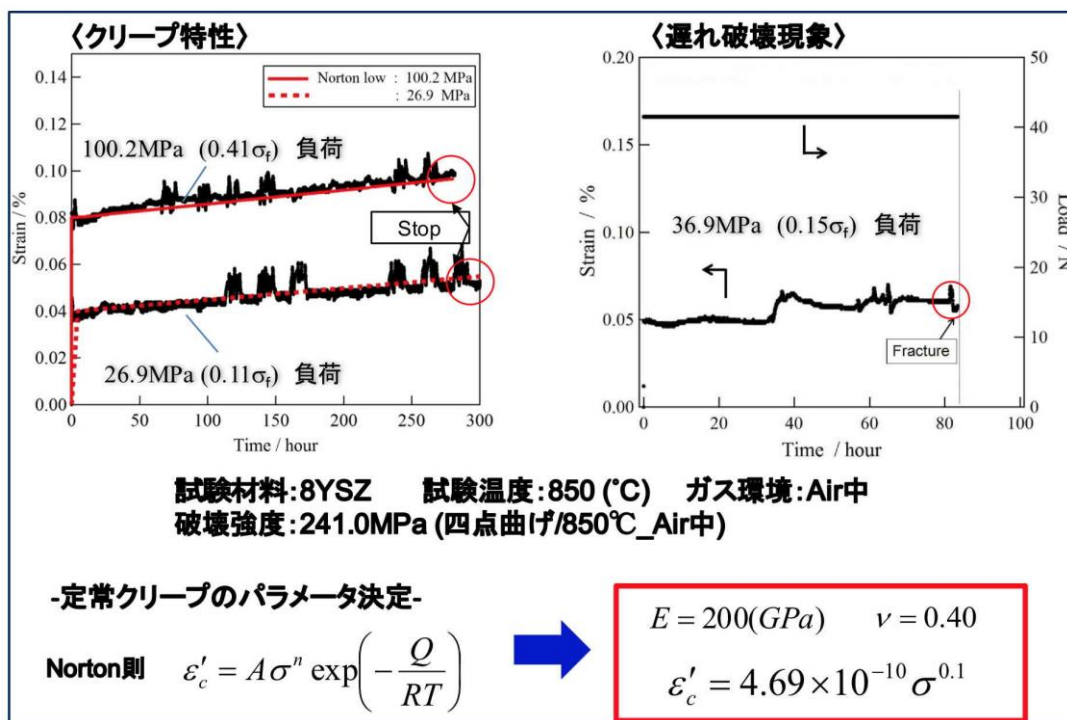


図 3-6-4. 20 8 mo1% Y₂O₃ 添加 ZrO₂ (YSZ) の 850°C でのクリープ特性と遅れ破壊

i)-3) YSZ の高温強度

ジルコニア系電解質の機械的特性について詳細な検討を加えた。図 3-6-4. 21 は、ノッチを導入した試料を使った曲げ試験によって破壊靱性値を高温下で測定し、これを共振法で得たヤング率と比較したものである。破壊靱性値の温度依存性はヤング率のそれとよく一致しており、破壊の進行は歪み量と相関していると見ることができる。これは全プロジェクトで測定した破壊応力に関しても同様であった。ただし、ヤング率が極小となる 650 ~ 700 K の付近では、測定値にばらつきが見られ、破壊靱性値が小さい方向に振れる傾向も見られた。

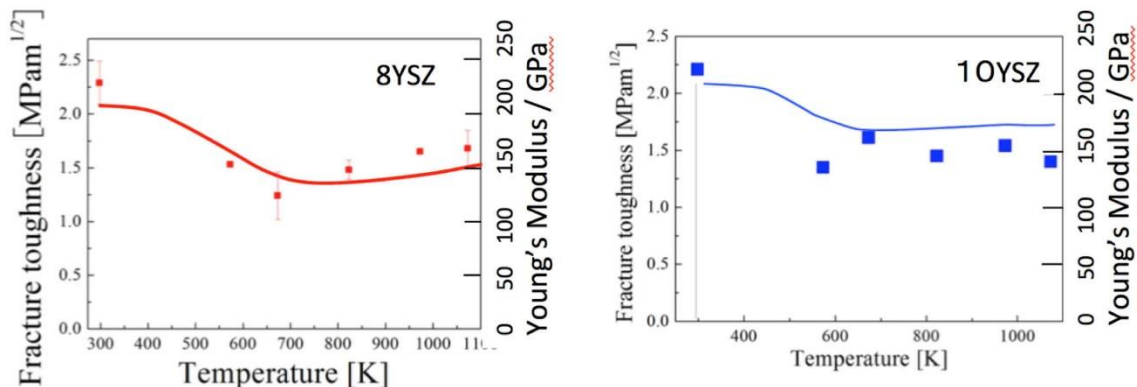


図 3-6-4. 21 YSZ の破壊靱性値 (シンボル) および共振法によるヤング率の温度依存性

上記の議論はYSZの破壊が歪みの大きさに支配されていることを示唆するものであった。しかし実際にYSZの破壊歪みを測定すると図3-6-4.22に示すように、必ずしも一定の歪みの値で破壊しているわけではないことがわかる。図は、破壊歪みについて8YSZと10GDC、LSC6428を比較している。10GDCについては、温度の上昇と共に弾性率が単調に減少することがわかっているから室温での値を除くと破壊歪みの大きさと弾性率の低下に相関があるように見える。LSC6428では強弾性変形が最大となる400°C付近で破壊歪みがピークをとる。これらは、温度によらず破壊に至る一定の応力限界が存在することを示している。一方、8YSZについては、破壊歪みの温度依存性はヤング率のそれが類似しておりヤング率の減少する温度領域では破壊歪みも減少した。特に、ヤング率が一旦減少する400°Cでこの挙動が顕著である。この温度領域では内部摩擦がピークを示すことがわかっている。この温度域は、酸素空孔のホッピングが活発になる温度範囲であること、また、8YSZは立方晶が局所的には安定な配置でないことから、弾性挙動の変化は酸素空孔の再配置を伴って弾性双極子の方向が変化し、応力を緩和する機構が存在するためと解釈できる。この非弾性歪みの生じる位置は不均一に分布していると考えられるが、応力の緩和が不可能な部分では結合に応力が集中し、破壊されやすくなると考えると、400°C付近で破壊応力と破壊歪みが同時に減少することが理解できる。

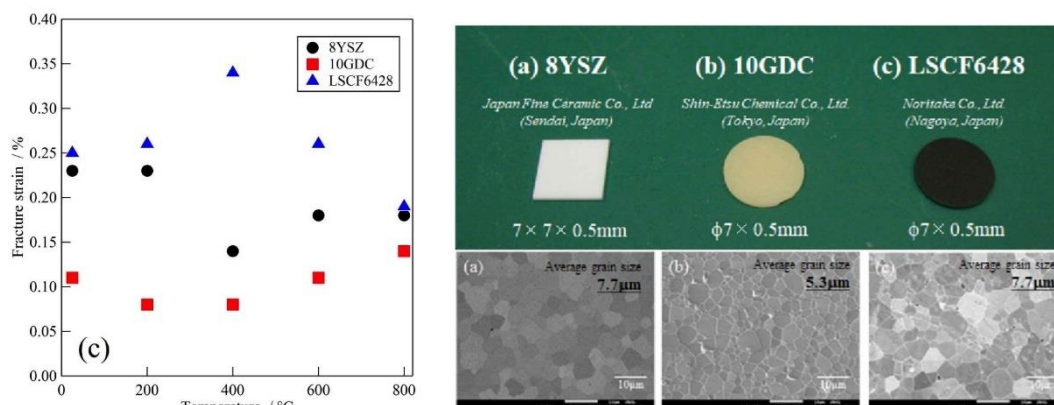


図3-6-4.22 YSZ, GDC, LSCFの破壊歪みと試料の微細構造

電解質の破壊挙動は信頼性にとって非常に重要なパラメータであることから、8YSZについて各温度でのワイブル解析を行った。図3-6-4.23にその結果を示す。上記のように、8YSZの破壊靱性値と破壊応力は400°C付近で極小値を示すが、この温度ではワイブル係数も極小となり、信頼性が低下していることが明らかとなった。これは、前述のように不均質な非弾性変形が関連する現象であることを示唆している。

電解質の機械的信頼性を考慮すると、SOFCの運転では特に400°C付近でYSZに過大な引張応力が生じないようにすることが特に重要であることが明らかとなった。

8YSZ@air 各温度での破壊特性

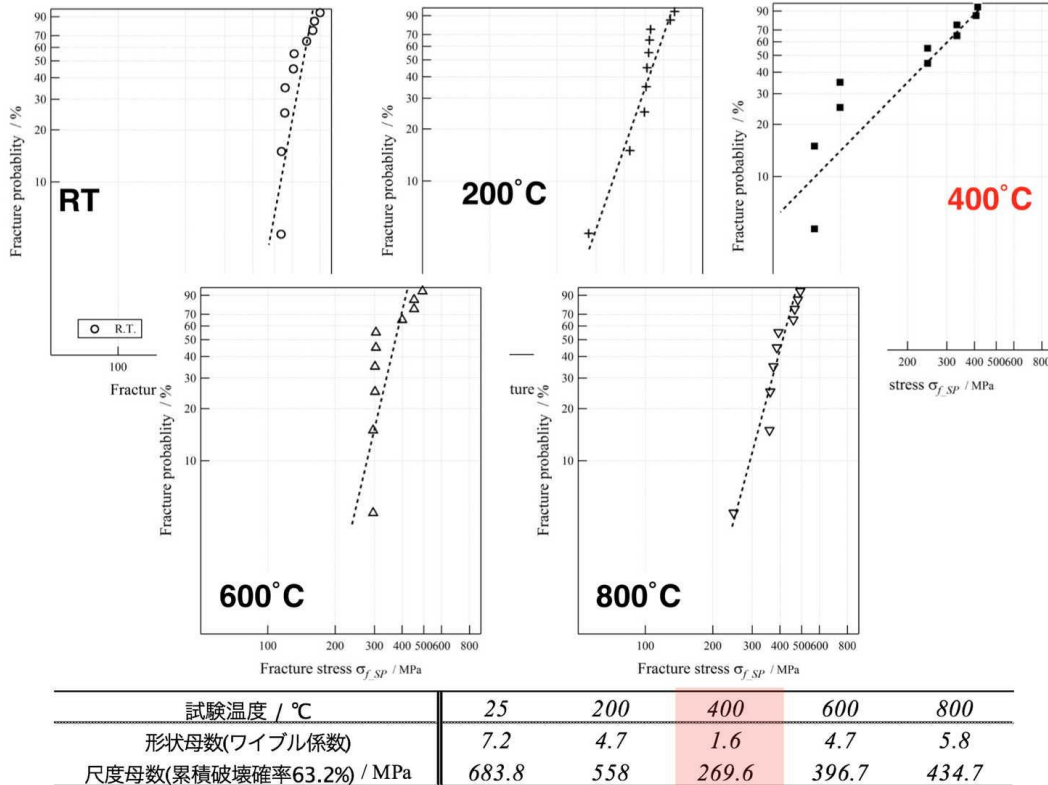


図 3-6-4.23 8YSZ の破壊強度のワイブルプロットと、得られたワイブル係数

i)-4) Sc 添加 ZrO₂ の高温機械的特性

電解質の候補材料としては、YSZ より高い酸化物イオン導電率を示す Sc 添加 ZrO₂ (ScSZ) が使われることがある。ScSZ あるいはこれに Ce を 1%程度添加した ScCSZ では、中温域でヤング率の減少が見られ、同時に内部摩擦がピークを示すこと、このピークの大きさは YSZ に比較して大きいことがすでにわかっている。そこで、ScSZ の変形挙動について、そのメカニズムを探るために一軸圧縮試験を実施した。

図 3-6-4.24 に Zr_{0.9}Sc_{0.1}O_{1.95} の歪み-応力特性の測定結果の例を示す。室温での測定では歪み-応力特性はほぼ直線であり、理想的な弾性体として振舞っていることがわかる。ところが、高温での測定を実施したところ、印加応力 200 MPa までの間で明らかな残留歪みが見られた。図 3-6-4.24 (b) に示すように、この状態で歪み-応力曲線の測定を繰り返すと、2 回目以降は明確な残留歪みは現れず、通常の弾性体としての挙動に戻った。しかし、この試料を一旦 600°C 以上で保持した後に再びより低い温度で測定を行うと再度非弾性歪みが現れた。非弾性歪みが生じはじめる応力の閾値は 300°C では 50 MPa 付近であったが、温度の上昇と共に減少した。

この試料の表面を SEM で観察すると、図 3-6-4.24 (c) のように結晶粒の内部にドメイン構造を示すパターンが見られた。このパターンが見えた同じ場所を試験後に観察すると、パターンの並びに変化がみられた。これらの現象は ScSZ の強弾性変形に起因するものとして説明できる。次に、この試料について貯蔵粘弾性測定を実施した(図 3-6-4.25)。低周波数で測定した貯蔵弾性率には荷重依存性がみられた。これは上記の歪み-応力特性と同様に強弾性変形の影響であると考えられる。一方で、高周波数域での貯蔵弾性率の測定では荷重依存性が消失した。これは、200°C から 600°C にかけて生じる強弾性変形は 50 Hz よりも遅いことと考えられる。600°C 以上での強弾性変形の消失は、相転移による結晶の対称性の増大によるものと考えられる。

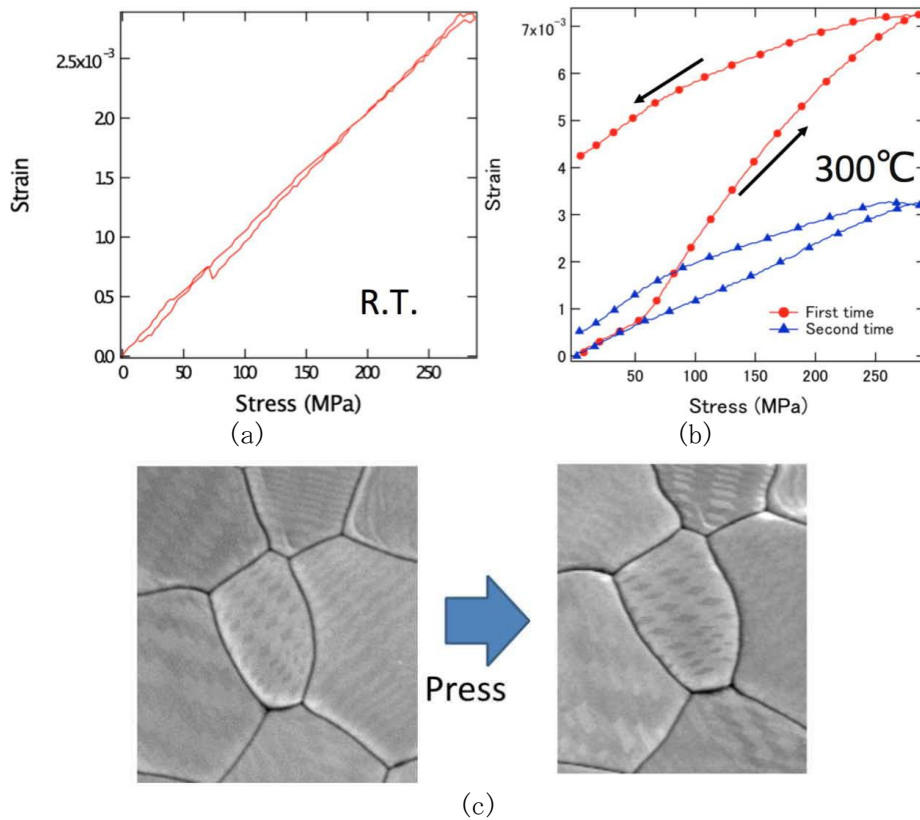


図 3-6-4.24 $Zr_{0.9}Sc_{0.1}O_{1.95}$ の一軸圧縮試験による室温 (a) および 300°C (b) における歪み-応力曲線と試験前後の試料の SEM 像 (c)

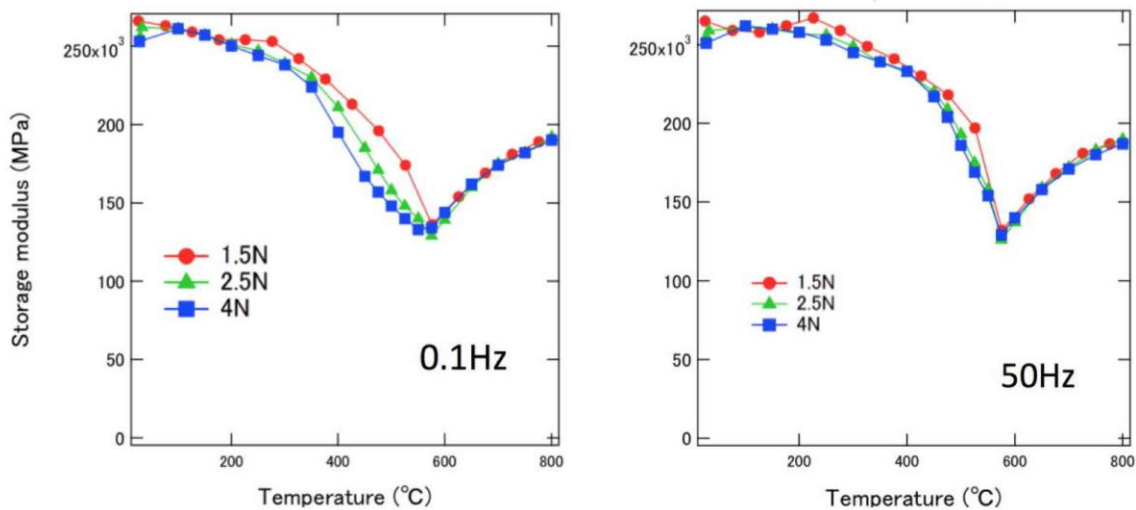


図 3-6-4.25 $Zr_{0.9}Sc_{0.1}O_{1.95}$ の貯蔵弾性率の荷重および周波数依存性

i)-5) YSZ の弾性率への NiO の固溶と正方晶化の影響

SOFC の長期信頼性を見通す手法としては、長期運転後のセル部材の組成・組織の変化を予測し、劣化後の各種物性を考慮した解析を行うことが有効である。基盤コンソーシアム内での情報交換により、長期運転による部材の変化が種々報告されてきたが、本研究では、これらのうちセル積層体の機械的な挙動に影響する可能性の高いものとして電解質の変質をとりあげた。電解質に用いられる YSZ は立方晶をとるが、これは安定相でなく、固溶した遷移金属の還元などによってカチオンの輸送が容易になると正方晶への相転移が促進されることを、産総研グループが明らかにした。東北大グループとしては、後に述べる研究項目の中で、産総研と協力して Ni が固溶した YSZ 内部の酸

素ポテンシャル分布の時間変化のシミュレーションを行った。ここでは、このような形で正方晶化したYSZについて機械的特性の測定を行った結果について述べる。

図3-6-4.26は、NiOを1%固溶させたYSZの作製プロセスと、還元による相の変化をX線回折およびラマン分光によって確認した結果を示している。XRDからはNiOの還元による格子の膨張が見られるが、X線の回折線からは正方晶の生成は見られていない。一方、ラマン分光では50時間以上還元処理をした試料で正方晶の振動に起因するラマンシフトが明らかに見られておりこれは産総研からの報告と同様である。

このようにして処理した後の試料について、還元雰囲気下で共振法による動的な弾性率ならびに、SP試験法による静的な弾性率の測定を行った。これらの結果を図3-6-4.27に示す。共振法による動的なヤング率の温度依存性は、NiOを固溶したAs-sinteredの試料は通常の8mol%Y₂O₃添加YSZと同様に、700K付近で極小を示した。この温度では同時に大きな内部摩擦のピークを示しており、この擬弾性的な挙動も通常の8YSZと同様である。一方、還元後の試料では、4mol%Y₂O₃部分安定化ジルコニアでみられたと同様の弾性率および内部摩擦を示しており、これは正方晶YSZの特徴とみることができる。SP法による静的な弾性率でも同様の結果であった。この結果から、Ni-YSZの試料では、還元による機械的な特徴の変化は、ラマン分光でみられると同様に、立方晶から正方晶への相転移に伴うものと考えられる。ただし、破壊強度のWeibull解析においては、尺度パラメータはヤング率と同様の温度依存性を示したものの、8YSZに特徴的な400°CでのWeibull係数の低下の挙動はAs-sinteredの試料ではみられず、むしろ、還元後の試料がそれに近い特徴を示した。破壊においては、固溶Ni²⁺の周囲の格子ひずみやNi粒子の析出などが複雑に影響すると考えられる。YSZの400°C付近の機械的挙動は、SOFCの起動停止において重要な要素であるから、特に、長期間耐久後の信頼性の確保のためには、より基礎的な観点からの理解を進める必要がある。

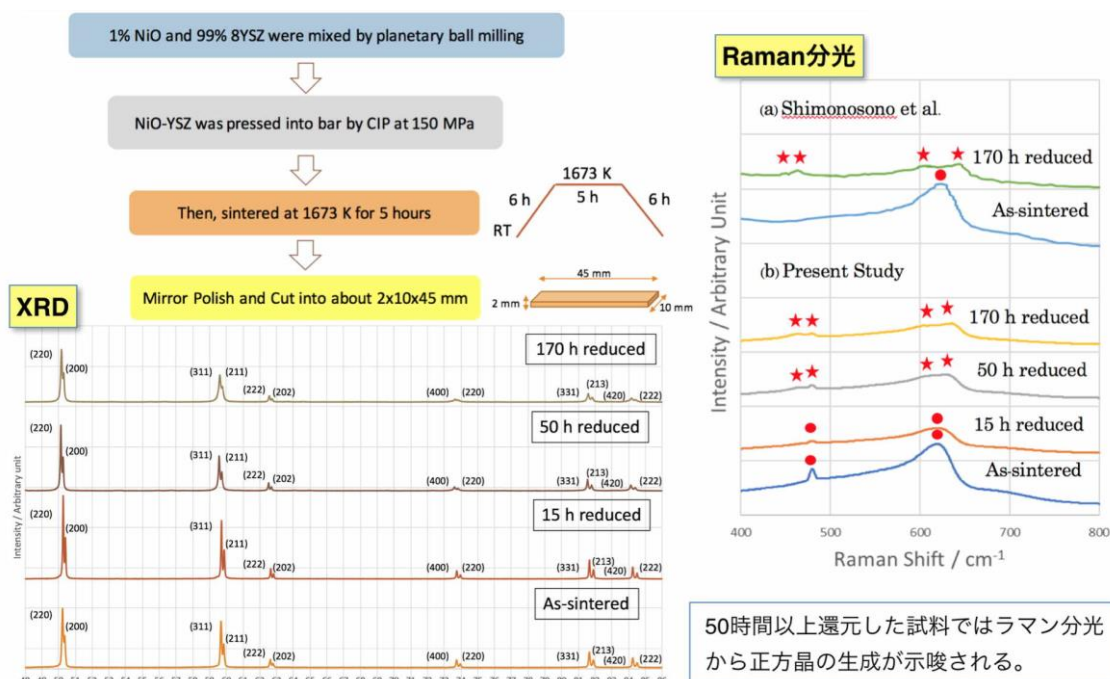


図3-6-4.26 NiO 固溶 YSZ の作製と X 線回折およびラマン分光

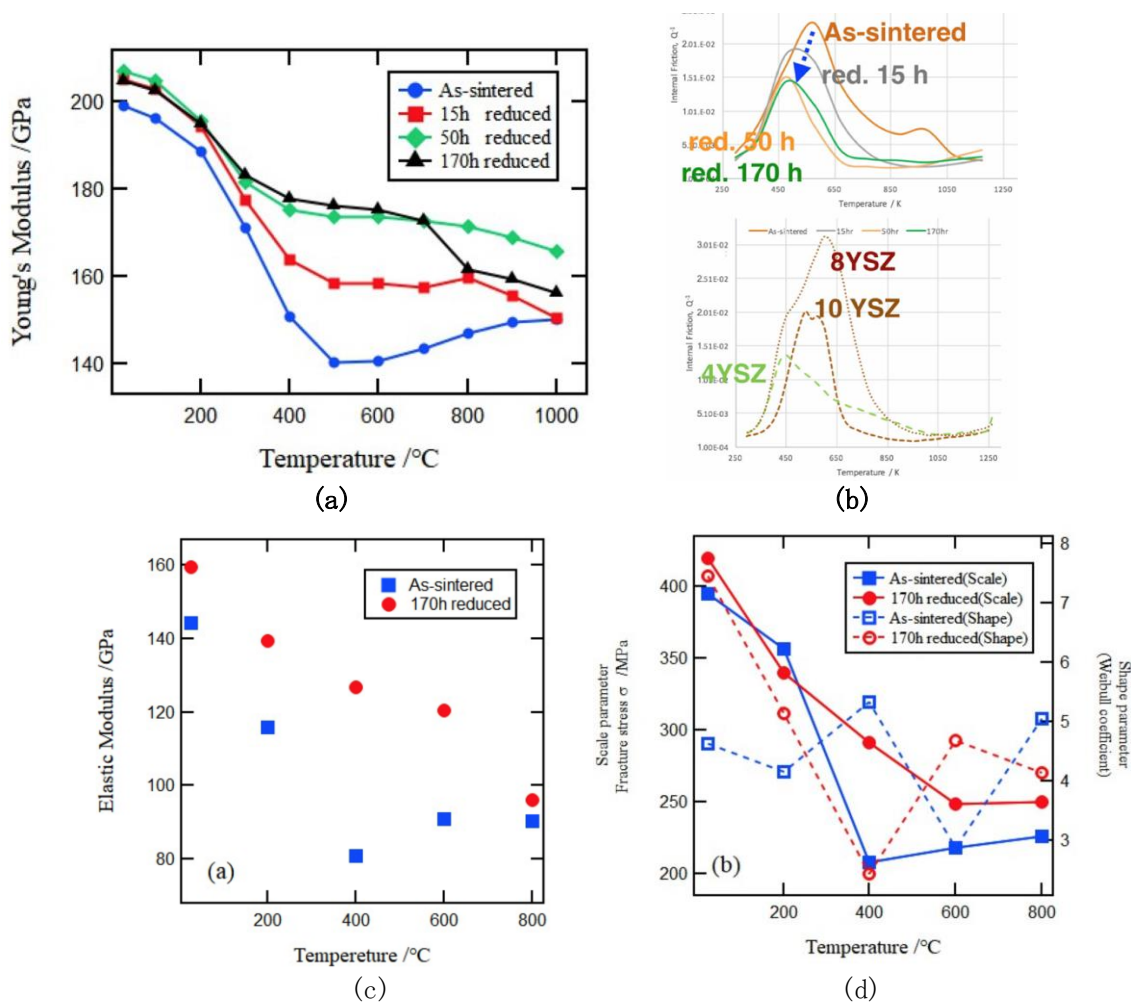


図 3-6-4.27 Ni01%固溶 YSZ およびその還元後の試料について、(a)共振法によって得られたヤング率、(b)内部摩擦の各種 Y₂O₃ 濃度の YSZ との比較、(c)SP 試験によって得られたヤング率、(d)破壊応力の尺度パラメータおよび Weibull 係数。

ii) 電極材料の機械的特性

ii)-1) カソード材料の強弾性とその影響

空気極や一部のセルに用いられているペロブスカイト型酸化物で一定の温度・酸素分圧領域で菱面体晶をとるものは、この領域で強弾性変形を示すことが前プロジェクトで明らかとなった。強弾性による変形は応力の緩和に寄与すると考えられるが、菱面体晶から立方相への相変態を生じる状況では予期せぬ応力が発生する可能性もある。このため、シミュレーションでその影響について検証することが必要となる。シミュレーションにおいては、強弾性変形の進行する速度を数式として与える必要がある。そこで動的粘弾性測定装置を用いて繰り返し曲げ特性の周波数依存性を測定した。(図 3-6-4.28)

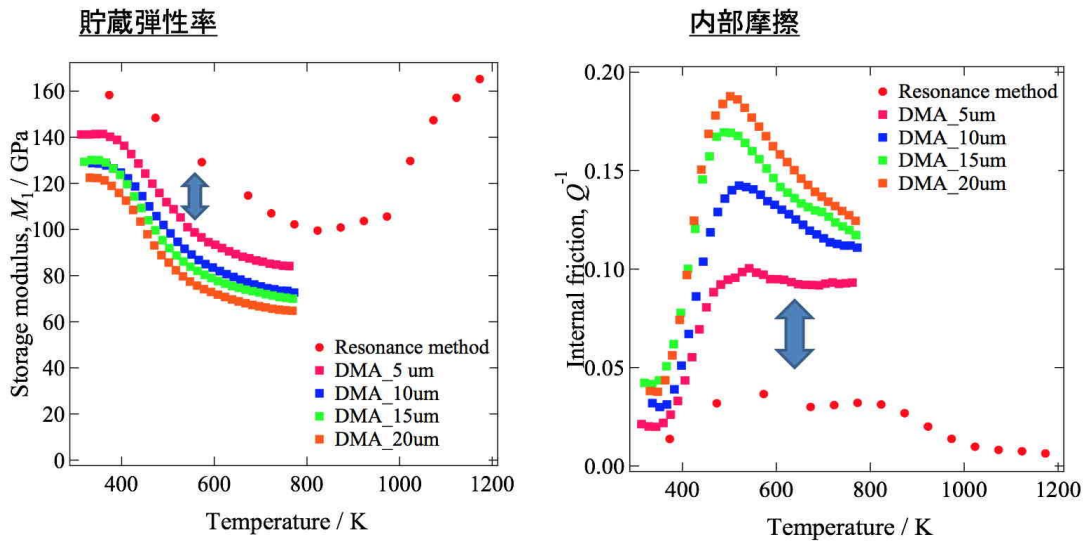


図3-6-4.28 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-d}$ の内部摩擦と貯蔵弾性率

応力解析では、カソード層を弾性体として扱う場合と強弾性を考慮する場合で結果が異なる。アノード支持型で LSCF6428 カソードを有する平板セルを仮定してモデル計算を行った。計算に用いたモデルの寸法と得られた結果を図 3-6-4.29 に示す。600°C でストレスが解放された状態を仮定し、ここから温度を下げた際の平板中心部のカソード内の応力を計算した結果を温度の関数として示している。Case1 の強弾性を考慮した計算では、弾性体を仮定した Case2 に比べて引張り応力が 25%程度減少している。強弾性によって損傷の危険性は減少すると考えられる。一方で、セルの歪みは 25%程度増大する結果となった。セルの変形は、セルを集電体で柔らかく保持するスタックにおいては、集電層と電極との間の剥離を招く可能性を増大させるため注意が必要である。

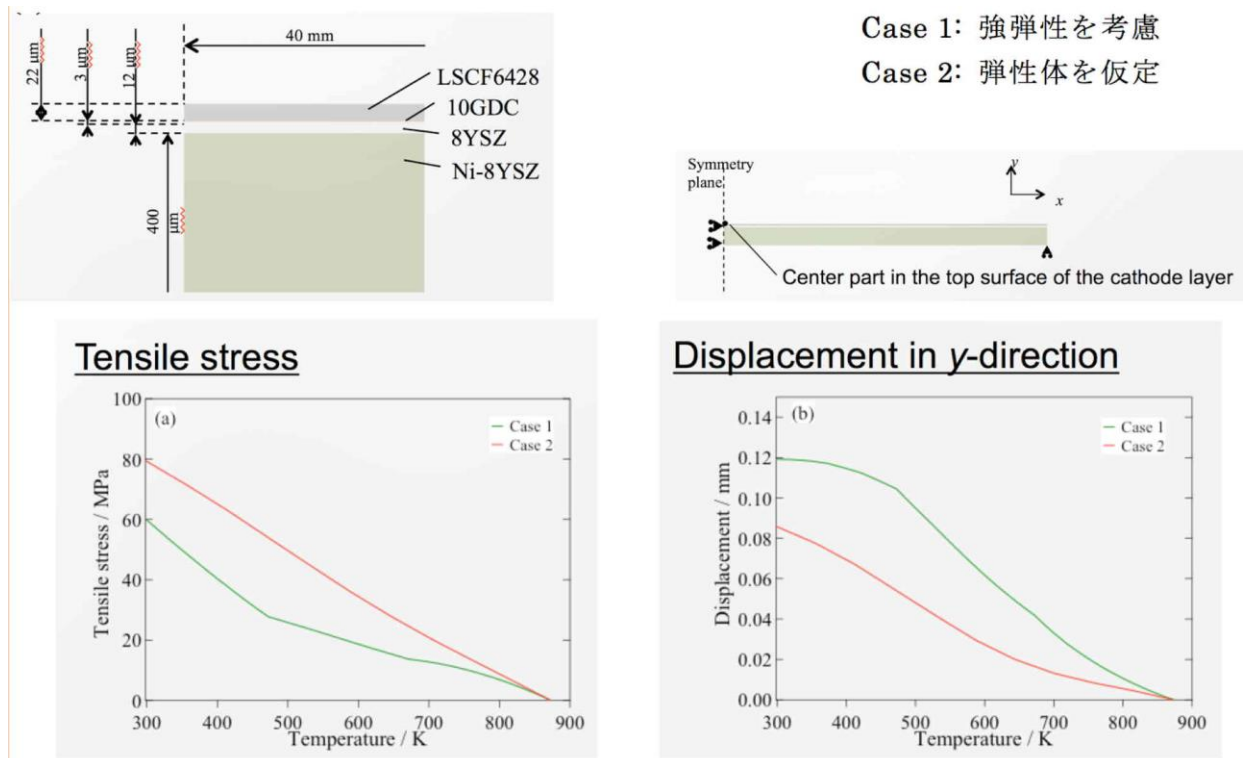
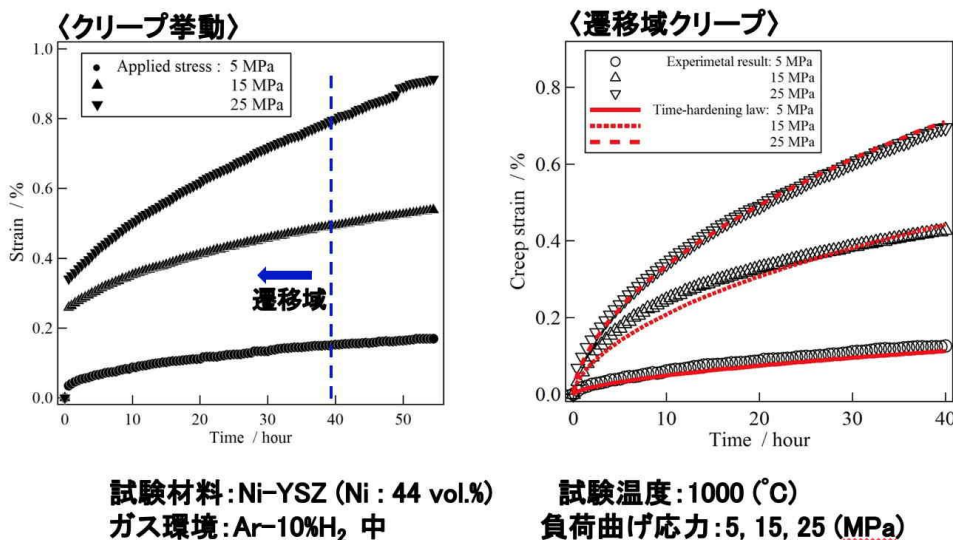


図 3-6-4.29 平板セルの応力・変形シミュレーションにおけるカソードの強弾性の影響

ii)-2) ニッケルサーメットの遷移クリープの定式化

燃料極あるいは支持体として用いられるニッケルサーメットは、複雑な機械的特性を示すことが前プロジェクトで明らかになった。例えばNi-YSZサーメットの場合、セル作製時にはNiO-YSZの混合物の多孔質焼結体として焼成されるが、この状態では通常の多孔質セラミックスと同様に脆性材料として振る舞う。しかし、セルの運転に際してはニッケルが還元されてサーメットとなるため、条件によっては延性材料の特徴を見せる。サーメットとなった状態で延性を示すのはニッケルが一定以上の体積割合をもつ場合であって、この閾値は導電率の大きくかわる閾値に近くまた、その場合でも室温付近では脆性的であり、400°C程度以上の温度で延性が生じる。これらの知見のもと、本研究ではNi-YSZサーメットの非弾性的な変形挙動の定式化を行った。

図3-6-4.30に、4点曲げ試験において5 MPaから25 MPaまでの応力のもとでのクリープ歪みを測定した結果を示す。荷重印加時の歪みの飛びは装置の試料ジグのあそびによるものであるが、その直後から大きなクリープが生じ、およそ40時間程度移行に定常クリープに移行していくように見える。SOFCの起動停止を含む運転においては遷移域のクリープ挙動が重要になることから、この領域について定式化を行った。このために、変位硬化則、速度硬化則、時間硬化則について種々にパラメータを変化させながら最適な構成則を探った。この結果、図に示すように時間硬化則が実験結果を最もよく再現した。1000°Cにおけるクリープ歪みの時間変化は応力に関して4.19乗、時間に対して-0.4乗の依存性で表現できた。遷移クリープが時間硬化則となったことの物理的な理由については明らかではないが、経験式として利用できるものと考えられる。



-遷移クリープのパラメータの決定-

時間硬化則 $\varepsilon'_c = A\sigma^n t^\alpha \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right)$

$$E = 0.18(\text{GPa}) \quad \nu = 0.29$$

$$\varepsilon'_c = 1.14 \times 10^{-35} \sigma^{4.19} t^{-0.4}$$

図 3-6-4.30 Ni-YSZ サーメットのクリープ挙動と遷移クリープパラメータ

ii-3) ニッケルサーメットの酸化還元挙動

一般に、アノードまたはアノード支持体中のNiが酸化されてNiOに変化する場合には、格子体積の違いから粒子の体積が膨張し、これが構造体としてのアノード(支持体)層の膨張につながり、電解質またはセルの破損の原因となる。ところが、各種試料の酸化還元実験の結果から、酸化の状況によっては、ニッケルサーメット層が収縮する場合があることがわかってきた。この現象は、特にアノード支持形の構造をとるセルスタックでは重要な影響を及ぼすと考えられるため、詳細な検討を行った。

現象を単純化するために、ニッケルサーメットではなく、ニッケル金属の多孔質試料を作製しその挙動を、熱膨張率計を用いて測定した。熱膨張率計には酸素とアルゴンの混合ガスまたは水素-水蒸気混合ガスを導入し、酸素分圧の制御を可能とした。

図 3-6-4.31 に、異なる昇温速度、異なる酸素分圧条件で昇温させたときのニッケル単体の多孔質試料の収縮挙動を示す。室温から昇温を開始すると熱膨張に伴う膨張が見られたが、400°C 付近の温度範囲で試料が急に収縮した。一定量収縮した後はこの挙動は止まり、通常の熱膨張に戻った。降温時には熱膨張率に相当する収縮のみがみられた。20%O₂ 中の収縮量を昇温速度について比べると、昇温速度が小さい方が収縮量は大きいことがわかる。一方、同一昇温速度では酸素分圧が高い場合に収縮量が大きい。これらから、ニッケルサーメットで観測された酸化収縮はニッケルそのものの挙動によること、収縮量は酸化速度に依存すること、また、この現象は特定の温度域のみで生じることが明らかとなった。

さらに、酸化収縮の機構を明らかにするために多孔質ニッケルの微細構造を詳細に観察した。図 3-6-4.32 は酸化収縮の前後で試料表面の同一箇所を観察した SEM 像である。酸化後の試料の表面は島状に酸化スケールが生じているように見えるが、大きく粒径が変化するほどには酸化が進行してはいない。一方で、粒子間のギャップを詳細に測定すると、いくつかの場所でその幅が減少していることがわかった。その付近の粒子間の接合部に着目すると、酸化によってネックの幅が増大しているように見える。これらのことから、酸化によって粒子接合部が成長し粒子の結合角度が変化し、空隙を減らすことで、全体として体積が収縮したとみることができる。

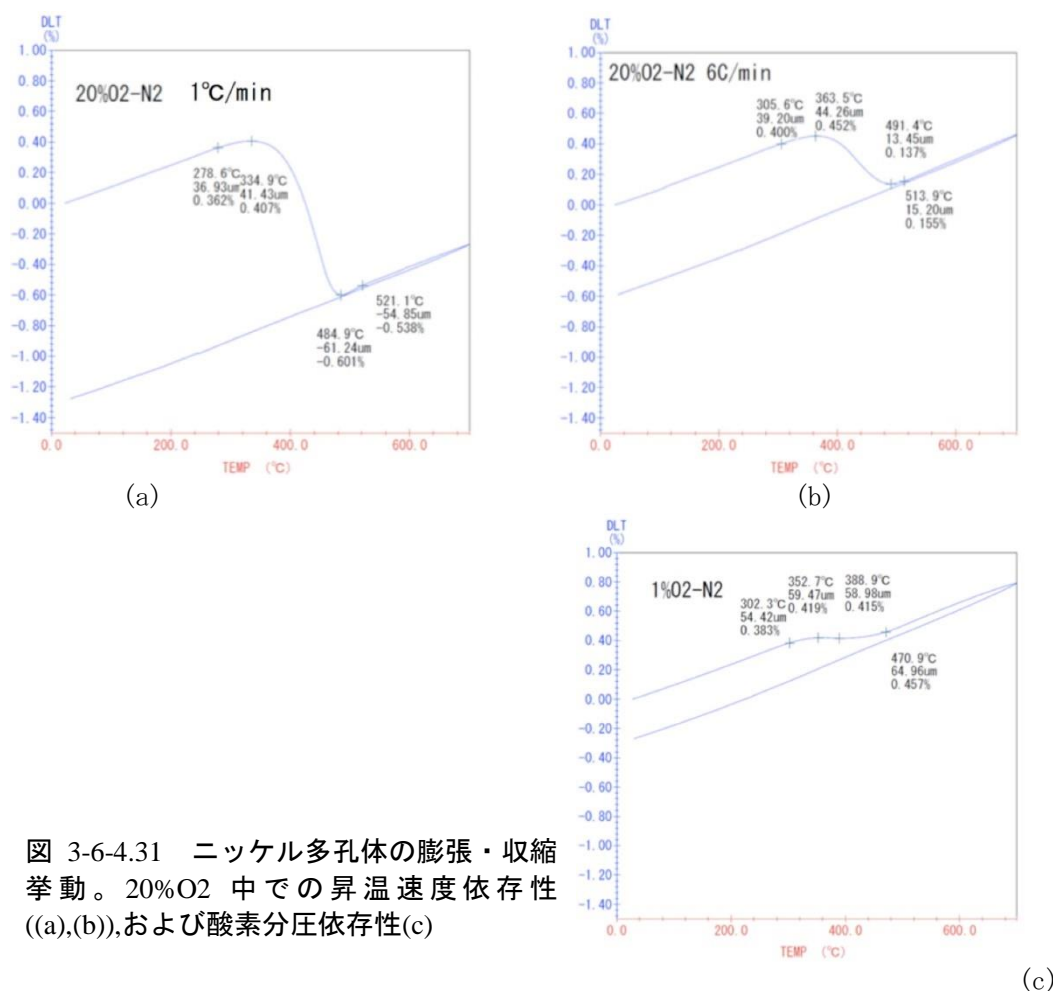
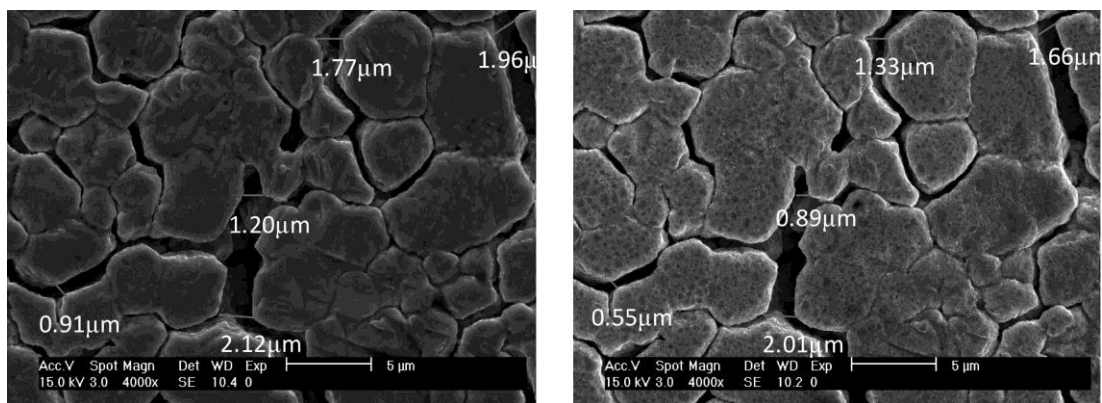


図 3-6-4.31 ニッケル多孔体の膨張・収縮挙動。20%O₂ 中での昇温速度依存性 ((a),(b)),および酸素分圧依存性(c)



(a) 酸化収縮前

(b) 酸化収縮後

図 3-6-4. 32 酸化収縮前後の Ni 多孔体の同一視野の SEM 像

また、これとは別に、各種の気孔率を有するニッケル多孔質体を作製した。気孔率は、造孔剤の量を変化させることで調整した。これらの試料の気孔率、および 400°C・20%酸素中で 10 時間酸化した際の酸化率、およびそのときの膨張・収縮挙動を図 3-6-4. 33 に示す。グラフに示した領域のうち、1 時間以下、および 11 時間以上の部分は、それぞれ試料を 400°C に加熱、室温に冷却するときの熱膨張による変化である。400°C に保持した状態でみられた収縮は、上述の実験と同様の酸化収縮である。造孔剤を含まない（気孔率 0.3%）の試料では収縮が見られていないことから、酸化収縮は多孔質でのみ見られることがわかる。図 3-6-4. 34 は同様の試料を 400°C で酸化した際の重量変化を示している。収縮が問題となる 10 時間程度の範囲では、重量変化は放物線則から外れており、酸化収縮は初期酸化に相当する状況で生じている現象とみることができる。一方、Ni-YSZ のクリープ試験中に雰囲気を変化させたところ、クリープ速度が増大することを見出した。

Pore former content	Dense	10vol%(*)	20vol%	30vol%	40vol%	50vol%
Porosity	0.3%	36.6%	33.2%	37.5%	39.2%	41.2%
Contraction ratio	0.02%	0.97%	0.50%	0.87%	1.15%	0.95%
Oxidation degree		4.8%	3.6%	5.0%	6.0%	5.4%
NiO peaks detection		Yes	No	Yes	Yes	Yes

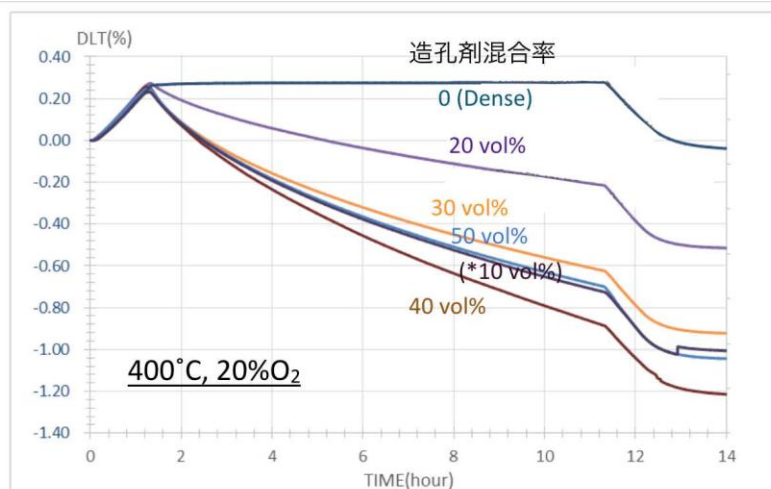


図 3-6-4. 33 多孔質 Ni の酸化収縮への気孔率の影響

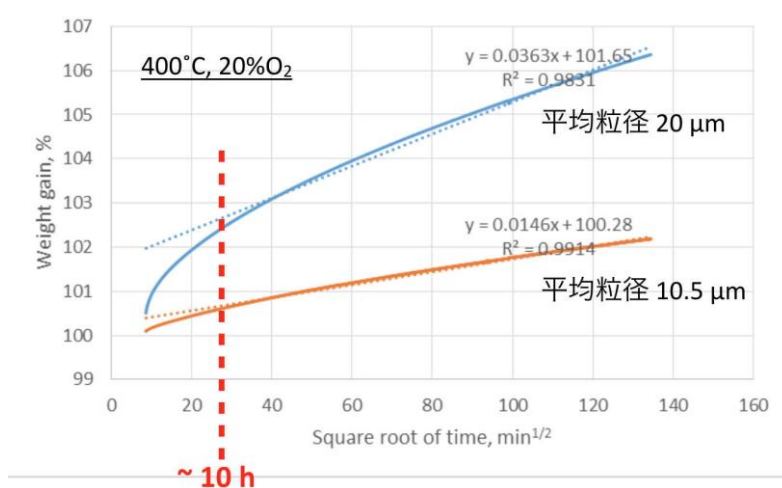


図 3-6-4.34 多孔質 Ni の酸化による重量の変化

図 3-6-4.35 に実験手順とその時の酸素分圧、及び、荷重 200 N を加えた時の歪み量を示す。試料は 400 °C に保持したまま、Ar-1%H₂ 雰囲気から Ar へ、さらに Ar-10%O₂ へとガスを切り替えている。クリープ速度は還元性および不活性ガス雰囲気では小さかったが、酸素を含むガスを導入した瞬間から急に増大した。このクリープ速度の増大は酸素分圧が高い程顕著であった。これは、400 °C 近傍での初期酸化過程で誘起された物質輸送が、応力下での歪み速度の増大を促したものと見られる。酸化収縮もこれと同じ原因によるものと考えることができる。つまり、酸化の駆動力に誘起されて物質輸送が活発となり外部応力や表面エネルギーのように比較的小さい駆動力が重畳することにより、これらが減少する方向に歪みが生じたと考えることができよう。

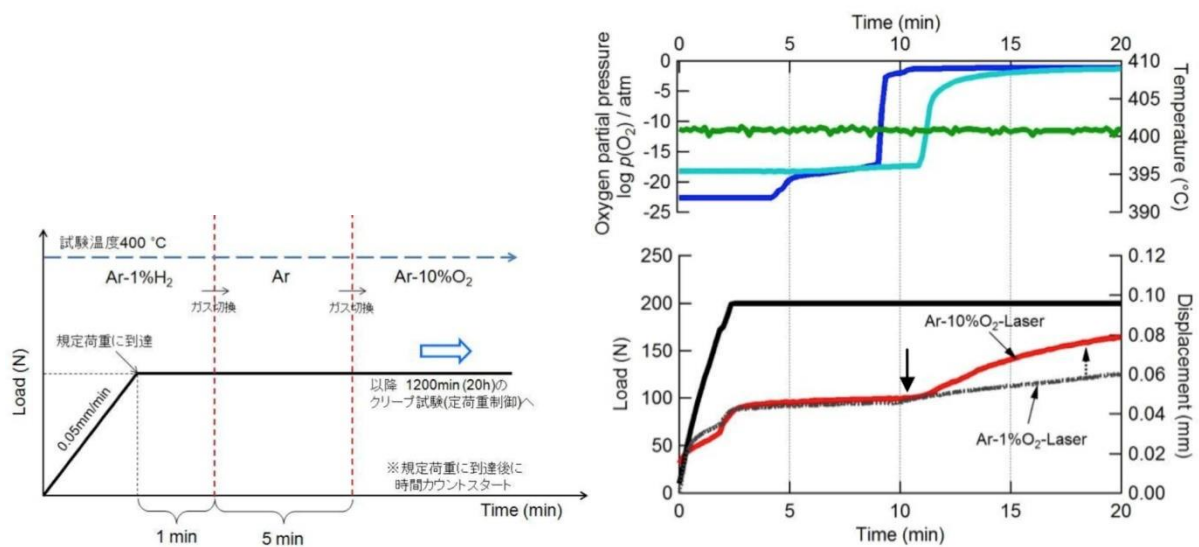


図 3-6-4.35 400 °C における Ni-YSZ サーメットのクリープ速度への雰囲気ガスの影響

iii) インターコネクットの機械的特性

iii)-1) セラミックインターコネクットの機械的特性

図 3-6-4.36 は LaCrO₃ 系セラミックインターコネクット材料の弾性率の測定例である。LaCrO₃ 系材料は京セラ製筒状縦縞セルに用いられているが、図に示した材料も類似材料と同様に結晶構造の変化に伴って弾性率が大きく変化する事が明らかとなった。一般に、菱面体晶をとるペロブスカイト型酸化物では、内部摩擦を伴う弾性率の低下が見られる場合が多い。これは試料の強弾性変形に由来するものと考えられ、非線形な応力-変位挙動を示すことが予想される。図では 700K 付近から内部摩擦の立ち上がりとともにヤング率が低下していることがわかる。セル内応力分布の見積もりには強弾性変形の数値論的なパラメータを知る必要がある。

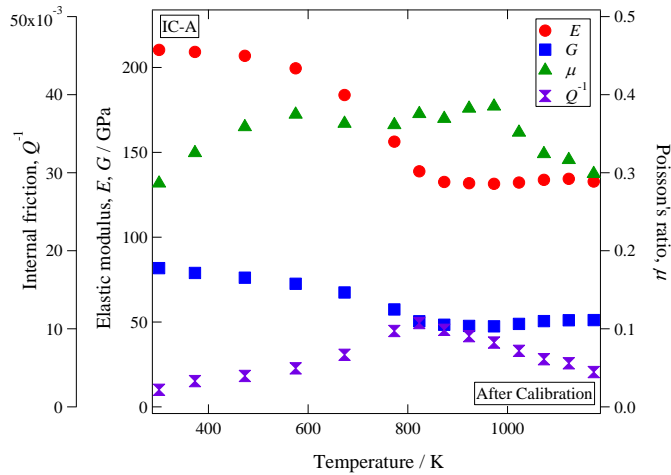


図 3-6-4.36 LaCrO₃ インターコネクットの機械的特性

iii)-2) 金属材料のクリープ特性試験装置の整備

日本特殊陶業製およびデンソー製の平板形セルスタックでは、金属インターコネクトを介してセルを積層する。スタックとしての強度や各単セルの平面拘束性に対してはこのインターコネクト材料が重要な役割を果たす。平板以外の形状のスタックにおいても、セル間接続やガスマニホールドには金属材料が使われることが多い。金属材料の機械的な挙動は酸化物材料に比べると比較的情報が豊富であるが、高温での、特に長期運転におけるクリープのデータについては十分に揃っていない。インターコネクトのための候補材料として提案されている様々な合金を同一条件で測定して比較したデータがあれば、最適な材料の選定に有用であり、本委託事業の目標である 90,000 時間の長期信頼性の評価に資するものとなると考えられる。そこで本研究では、複数の代表的なインターコネクト材料について長期試験を実施することとし、そのために同一のクリープ特性測定装置 3 台を整備した。図 3-6-4.37 に装置および測定部の写真を示す。当初は雰囲気制御下での測定を可能にすることを考えたが、合金のバルクのクリープ特性には表面の酸化スケールの影響は小さいと判断し、空気雰囲気中での測定とした。

iii)-3) 合金材料の高温クリープ測定

インターコネクト候補材料として複数の合金試料を日本特殊陶業より提供いただき、これらの高温クリープ挙動の測定を実施した。セルの長期安定性・信頼性確保のために、数千時間に亘る実験を実施した。結果の一例を図 3-6-4.38 に示す。

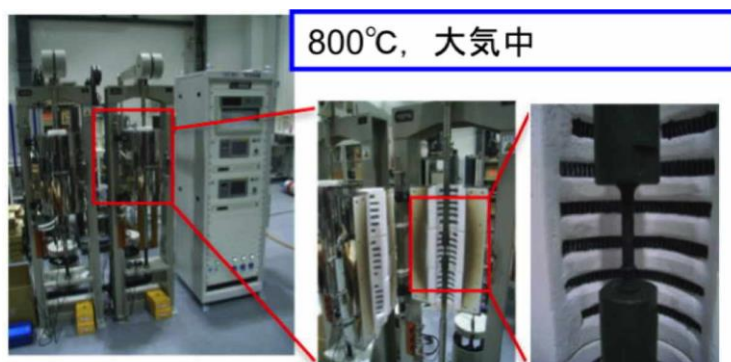


図 3-6-4.37 インターコネクト候補合金材料の高温クリープ試験概略図

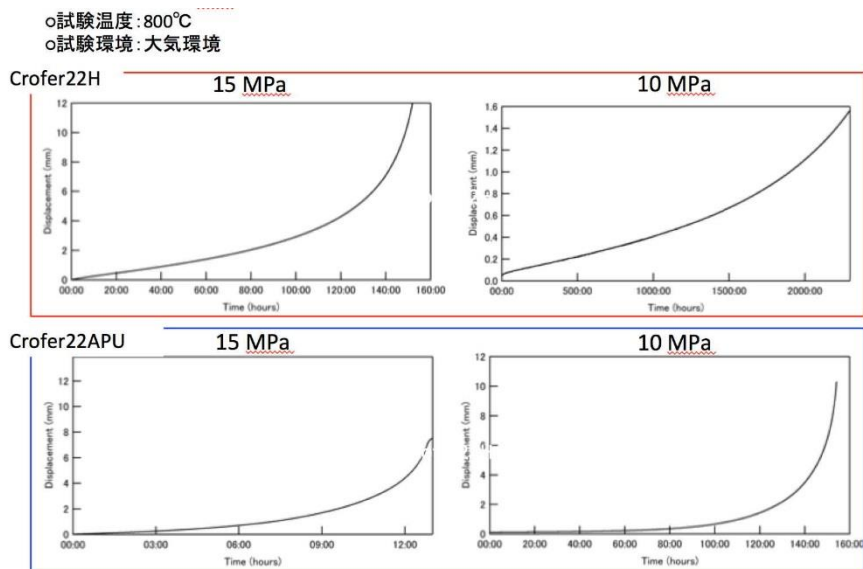


図 3-6-4. 38 Crofer22H と Crofer22APU の高温クリープ試験の結果 (800°C)

Crofer22H では、Crofer22APU に比べてクリープ破断に至る時間が長く、公表されているデータシートと同様に高い耐クリープ特性を有することがわかる。図 3-6-4. 39 には、クリープ試験後の破面を示す。Crofer22H と Crofer22APU はともに、延性的な破壊を示す破断形状を示した。そこで、複数の荷重条件でのデータの取得を進め、結果を応力-ひずみ速度線図として図 3-6-4. 40 にまとめ、このデータからノートン則に基づいた応力指数ならびに係数 A を算出した。その結果の一部を表 3-6-4. に示す。Crofer22H と Crofer22APU では、指数は等しいが係数は前者が後者のおよそ 1/4 となった。

データをより幅広い条件で活用するためには同様の試験を複数の温度で実施し、活性化エネルギーを求めることが有用である。これらのクリープパラメータは、各種運転条件での挙動のシミュレーションに不可欠であり、また、今後様々な形態のセルにも有用であることから、本試験は来年度以降も延長して実施する。

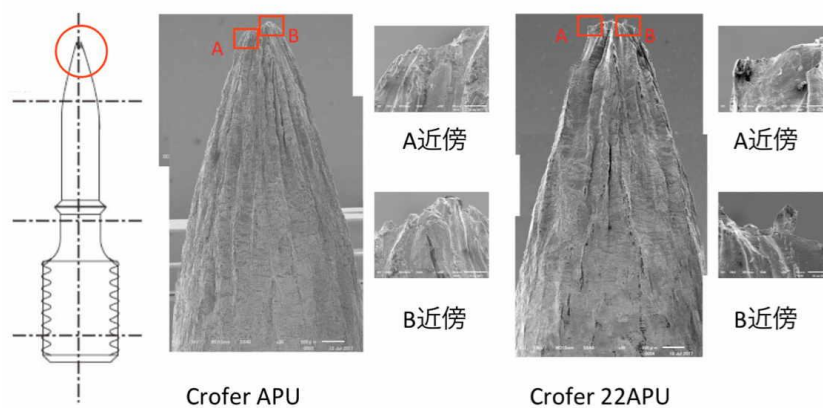


図 3-6-4. 39 高温クリープ試験後の破面近傍の様子

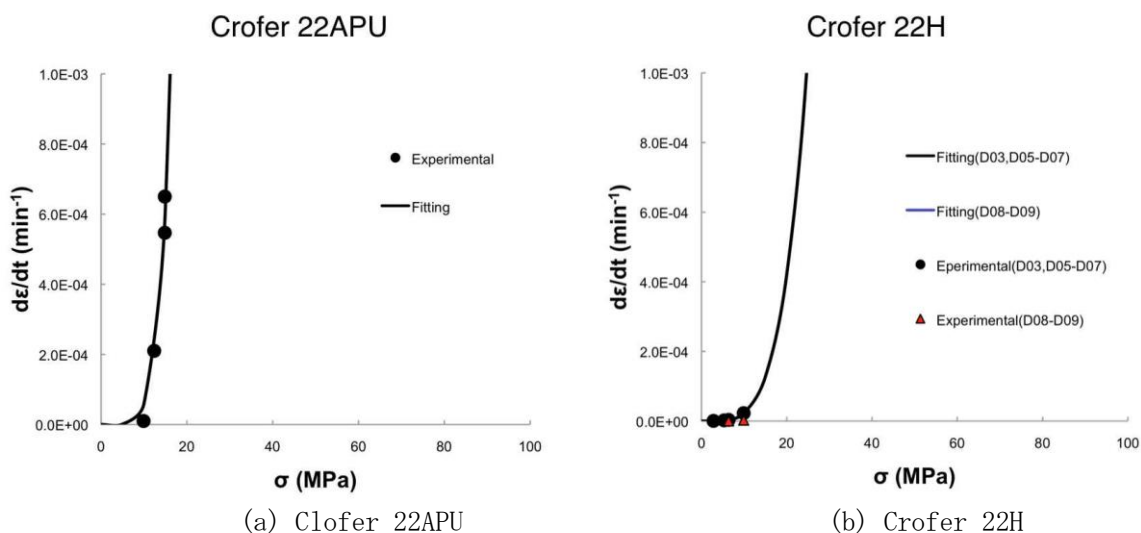


図 3-6-4.40 インターコネク候補合金材料の高温クリープ試験の応力-ひずみ速度線図

表 3-6-4.2 インターコネク候補合金材料の高温クリープ試験の応力指数 n ならびに係数 A

	A	n
22H	4.3×10^{-13}	6.3
22APU	1.6×10^{-12}	6.3

iv) その他の共通的課題への取り組み

iv)-1) 相間接合強度測定を試み

電極と電解質、またはインターコネクトとの接合界面は、運転中に引張りもしくは剪断応力による剥離（それぞれ K_1 モード、 K_2 モード）のリスクを有している。これらの応力場での界面の接合強度を知ることはセルの設計を行う上で重要である。ただし、界面強度の測定法は確立されておらず、特に SOFC のような複雑な系でこれをどのように評価するかは残された課題の一つとなっている。電極/電解質界面の評価には、テープによる剥離試験、引っ掻き試験のような方法も考えられるが、いずれも、セルの信頼性の推定に用いるほどの定量性が得られるとは考えにくい。そこで、応用範囲は限られるが定量的な解釈が可能な方法として、平板もしくは円筒形状の多孔質支持セルについて、表面から、剥離を評価したい界面に達するノッチを導入し、その場所を中心に曲げ試験、圧縮試験に供することによって接合強度を評価する手法を提案した。円筒形状セルについては、全セルもしくはC型に加工したセルを用いることで K_1 、 K_2 の破壊モードの寄与度を変化させることが原理的には可能である。そこで本研究では、図 3-6-4.41 に示す円筒試料に対し、界面近傍をデジタルマイクロスコープで観察しつつ、AE 信号を補助的に取得しながら圧縮試験を実施し、剥離の進行を詳細に観察した。

0 型試料での圧縮試験では、圧縮部の内側からの破壊が剥離に先行してしまい、評価ができなかったが、C 型試料での試験では、剥離の進行が観察された。さらに、有限要素法を用いたシミュレーション（図 3-6-4.42）を併用することで実験結果を再現し、剥離強度を評価することに成功した。

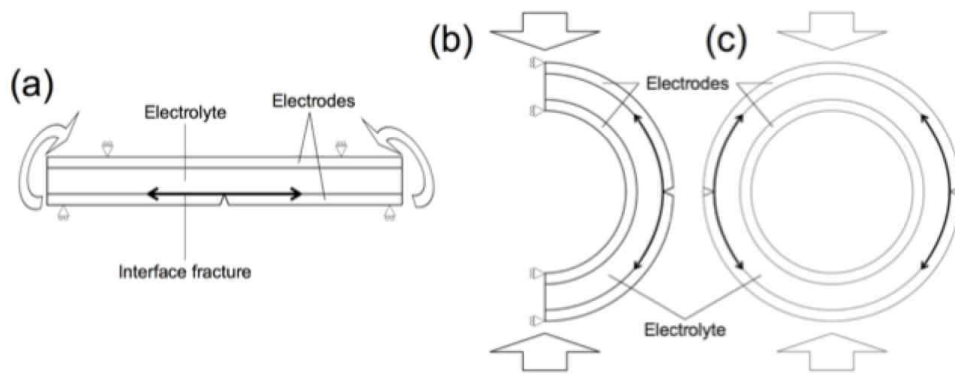


図 3-6-4. 41 平板形および円筒形セルに対する界面強度の評価方法の概念図

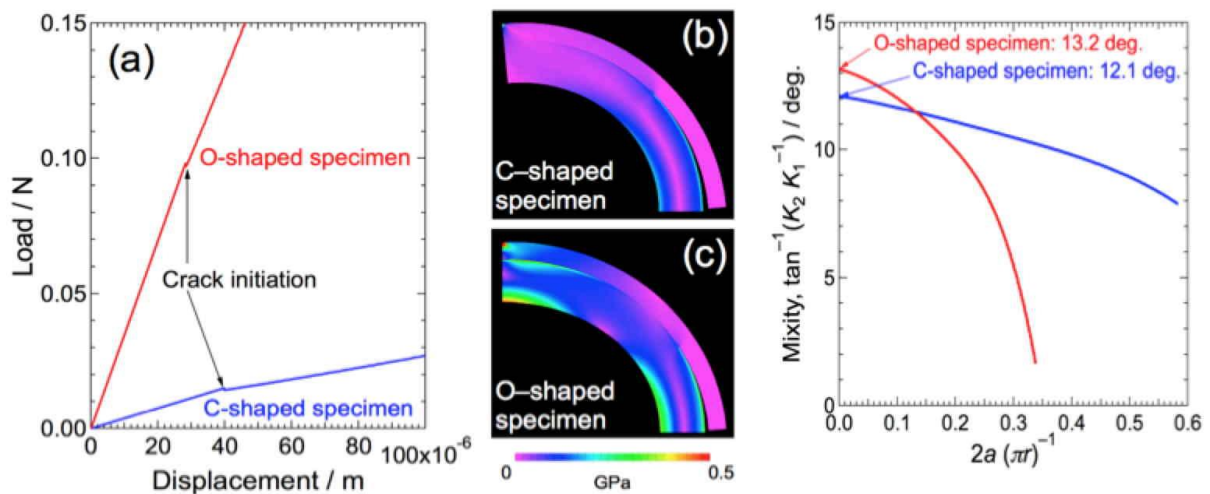


図 3-6-4. 42 円筒セルに対する C 型および O 型試料での圧縮試験による K1, K2 モードの剥離の進行のシミュレーション

iv)-2) セルの電流分布測定を試み

セル内の電流分布をその場評価する手法として、集電体上に発生する僅かな電位分布を測定しその二回微分から局所的なセル電流を得る方法を提案し、実現可能性を検証した。通常、終電体はセル内の輸送・反応抵抗や電極内の面方向の抵抗に比べて小さい抵抗を持ち、電極面上の電位が均一になるようにする働きを有する。しかし、集電体上にも僅かながら電位分布が発生しその分布はセル内を流れる反応電流の分布を反映するはずである。平板セル上の点 (x, y) における局所的な反応電流を $i(x, y)$ とすれば、集電体上の電位 ϕ との間には

$$i(x, y) = \frac{1}{rL} \nabla^2 \phi$$

の関係がある。ここで ρ は集電体の抵抗率、 L は集電体の厚さである (図 3-6-4. 43)。実際には図 3-6-4. 44 に示すように、集電体上に複数の電位プローブを配置し、この電位の二回差分をとることで局所電流を評価した。(端部は間隔の違いを考慮して補正した。)

実験に使用した単セルは市販のアノード支持型平板セルで、そのカソード側に銀メッシュの集電体を銀ペーストを使って接続し、メッシュ上に 32 本の電位プローブを配置して電位分布を測定した。このセルの燃料極側にガスシールシートを挟んで図 3-6-4. 45 に示すようにセルホルダに固定し、燃料ガスを流した。カソード側は大気開放とした。

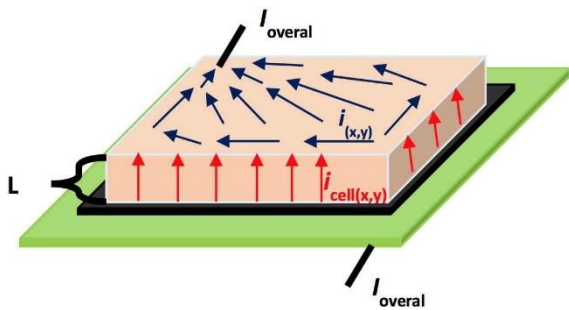


図 3-6-4. 43 集電体(橙色)上の電流

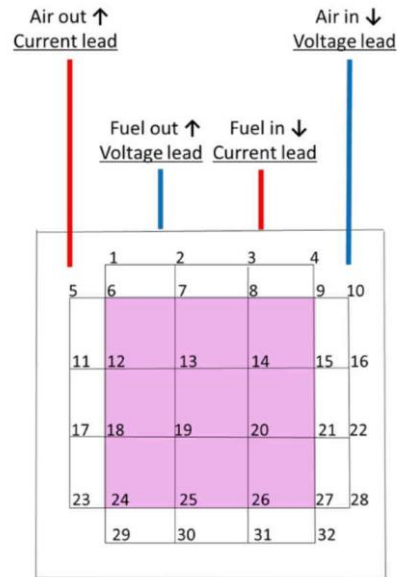


図 3-6-4. 44 電位測定端子の配置例

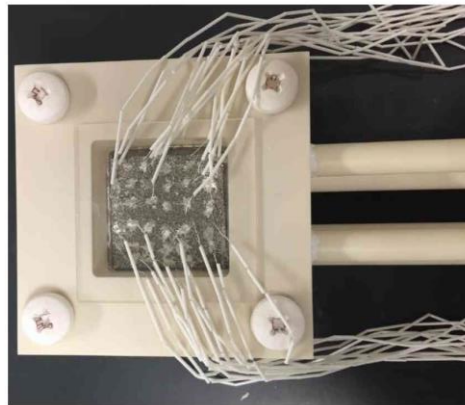


図 3-6-4. 45 電位測定端子を接続した集電体を有するアノード支持セル

得られた電位分布の一例を図 3-6-4. 46(a)に、そこから二回差分によって得られた電流値の分布を図 3-6-4. 46(b)に示す。セルには、図中の右下角部にアノード側の電流端子を、左上部にカソード側電流端子をそれぞれ接続しており、数字の描かれている点には電圧リード線を接続している。実際の電位はこの数字上点で取得しており、図は各位置での電位を内挿によって等高線で(色で)表している。電流分布の見積もりには上下左右の点での電位の情報が必要であるため、(b)の電流分布の図は実際のセルの最外部を除外した部分に限られている。

測定値から直接的に計算される電流分布は、一部で異常な挙動(逆方向電流など)を示している。プローブ位置は離散的であり、電位の二回差分で正確な判定をするのは困難であることを示している。この測定情報を生かすためには電流分布を仮定して逆問題的にこれを検証するなどの手法の工夫が必要となろう。一方で、およその電流分布としては、本手法で得られたい値は意味を持つ可能性がある。図 3-6-4. 46(b)では、図左上の電流プローブに近い位置で電流が極端に集中しているように見える。これに対し、図 3-6-4. 47 に二色式温度カメラによって得たこのセルの表面の温度分布でも左上部分の温度が高く、特に電流を増加すると加速度的に温度分布が激しくなる傾向が見られる。これは、両電極面が集電体によってそれぞれ等電位を構成するセルにおいて、何らかの原因でセルの一部に温度が高い部分が生じたことで、高温部に大きな電流が流れ、これがまたその部分の温度上昇をもたらす、といった加速度的劣化が生じていることを示唆している。

正確な電流密度分布の測定法は、今後、より大きな出力密度を達成しようとする場合、または燃

料利用率などがより厳しい条件で用いる場合には必要になると考えられる。本研究で得た知見はそのための基礎となるものである。

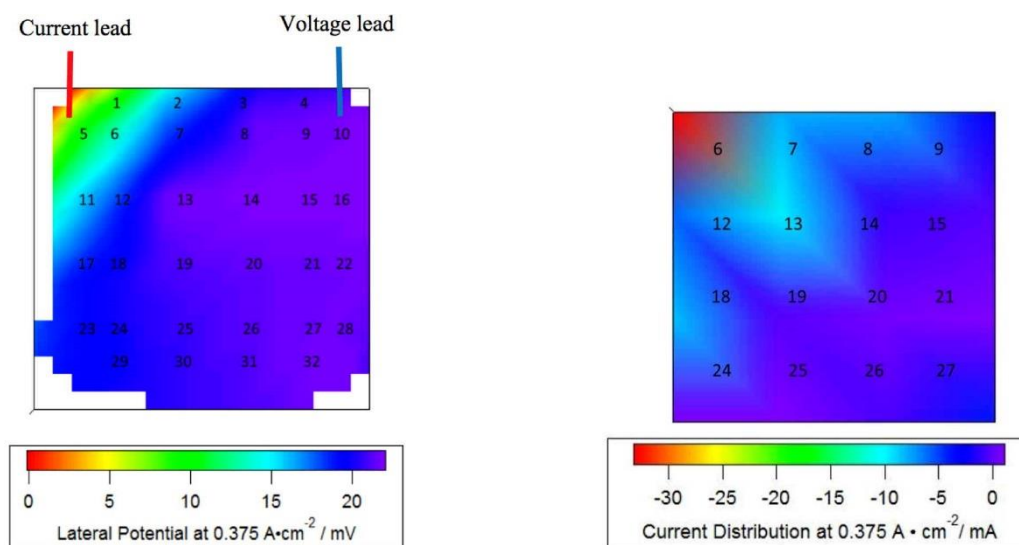


図 3-6-4. 46 (a) カソード集電体上の電位分布

図 3-6-4. 46 (b) 反応電流の分布

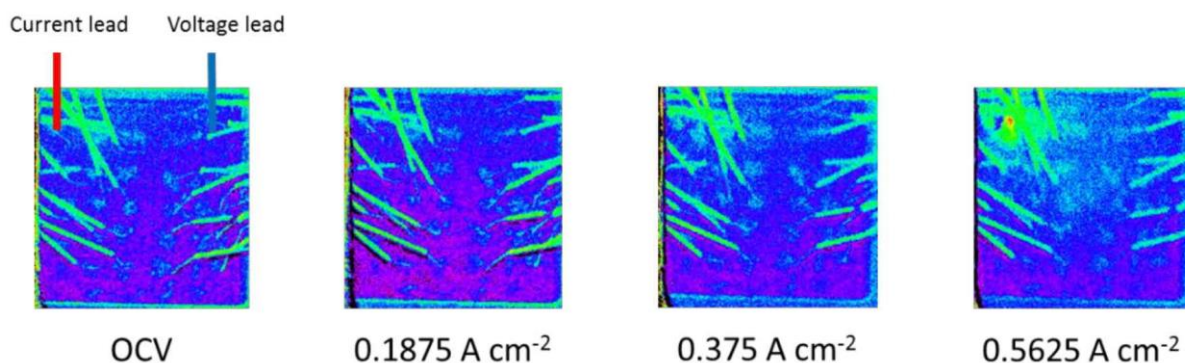


図 3-6-4. 47 二色式温度カメラによる運転時温度分布の測定結果

e. セル構造数値解析による劣化機構解明に関する総括

本項目では、本研究の概要を述べた後、ii 各種スタックの課題の抽出と対策、iii. 材料特性の測定および iv その他の共通の課題への取り組みについて、研究の成果をまとめた。

各種スタックの課題としては、セル形状測定を中心とした運転時のセルの状況の把握に注力した。セルの形態ごとにその特徴に応じたアプローチを行なった。小型円筒形セルではセル寸法の測定が応力状態の把握に有効であることを示し、これを精度良く測定可能な実験手法を提案・実証した。筒状横縞形セルについては、AE 法、および温度分布測定を行い、セルの健全性を確認した。一括焼結セルおよび平板セルへの対応では、セル形状測定手法を改良し、平板系のセルに特有のセルの撓みの測定を十分な精度で測定することに成功した。これらの実験は本プロジェクトにおける第 2、第 3 グループのスタックメーカーと共同で実施し、必要に応じて SIMUDEL を用いた解析と合わせ、各社での信頼性の検証に貢献した。

また、解析を支える基礎知見として材料特性の取得にも力を入れた。特に、各材料の非弾性変形の挙動に着目し、クリープや強弾性変形の定式化、電解質材料の高温強度および相転移の影響の把握、ニッケルの再酸化時の挙動などについて、いくつかの重要な知見を得ることができた。さらに、その他の共通基盤の内容として界面接合強度の測定や電流分布の測定など、新しい手法の開発にも取り組んだ。これらの成果と、後の節に述べるシミュレーション手法との統合によって、SOFC の長期信頼性評価手法のフレームワークが完成したと考えている。

(7) 耐久性迅速評価方法の開発 (2013年度～2017年度)

① スタック性能劣化解析とその高度化 (電力中央研究所、共同実施先：東京ガス株式会社)

表 3-7-1.1 にスタック性能劣化解析とその高度化の目標、成果と達成度を示し、その後で内容を記述する。

表 3-7-1.1 スタック性能劣化解析とその高度化 (2013-2017 年度)

項目名称	最終目標 (2017 年度末)	成果	達成度	今後の課題
スタック性能劣化解析とその高度化	劣化要因改善策が施された各セルスタックに対して、逐次長期耐久性試験と性能解析(抵抗分離)を行なうことにより、抵抗成分毎の劣化率を定量化し、9万時間耐久の達成度を各スタック毎に明確化する。 開発したサイクル耐久に関する耐久性迅速評価技術を適用し、9万時間の耐久性確保に向けて劣化要因改善策が施された各セルスタックに対して、逐次効果検証を行うことにより、熱サイクルおよび負荷サイクルによる耐久性が9万時間の期間で十分であるかどうかの見通しを行う。	参画したメーカー7社のSOFCについて、初期の性能評価データ解析から、各過電圧を抵抗近似できることや、構成材料、中間層の多孔度、ガス流路の違いにより燃料極や空気極のガス分圧依存性係数に違いが現れることが分かった。この結果から各社毎に異なるガス分圧依存性係数を用いれば、各SOFCの出力電圧を精度良く予測でき、各過電圧分離が可能であることを明らかにした。この手法を耐久性評価に適用し、各社セルスタックの抵抗成分ごとの劣化率取得に成功し、各成分の解析法を確立した。 熱サイクル特性についても検討し、その影響は小さいことを解明した。	○	更なる耐久性評価に対応する高度な分析・解析技術の開発

a. 「スタック耐久性試験とセル性能評価」(電力中央研究所)

i) 電中研試験サイトにおける硫黄濃度測定

2013年度～2015年度で実施した電中研試験サイトにおける各社SOFCの耐久試験の一部において、性能評価開始直後から、各社独自の耐久試験から予想された電圧変化率よりも悪い結果を観測することが続いた。このため、当初は個別課題として捉えていたが、プロジェクトの中で様相が掴めてくると、共通した課題として供給空気中の不純物に由来する影響として硫黄被毒が意識されるようになった。そこで、プロジェクト後半では、以下の測定箇所について種々の測定法を適用し、当所試験サイトにおける硫黄濃度を詳細に測定し、各社SOFCに供給される硫黄濃度を明らかにすることに務めた。

硫黄濃度測定場所は空気供給系統の上流から順に、大気(原料空気)、コンプレッサー出口(圧縮後、エアフィルター(以下、物理フィルター)後、化学吸着フィルター後)とした。

測定法は、水溶性/非水溶性(粒子状、ガス状)の区別ができること、常時監視できることを考慮して、以下の3種の測定法を適用した。

- ・無機硫黄化合物(水溶性)を対象としたイオンクロマトグラフを用いる方法(1回測定限り)
- ・紫外線蛍光法によるSO₂計を用いる方法(常時測定)
- ・有機硫黄化合物としてジメチルスルフィド(非水溶性)を対象としたガスクロマトグラフを用いる方法(1回測定限り)

なお、当所の試験サイトは海洋に近接(約600m)していることから磯の香りの主成分であるジメチルスルフィド(非水溶性)を測定対象とした。

硫黄成分の測定結果全体概要を表3-7-1.2に示す。インピンジャー液に溶解した硫黄(水溶性)濃度は、大気中(原料空気)夏季におけるSO₂濃度は2.8ppbであったのに対し、化学吸着フィルター後には検出限界以下となっており、化学吸着フィルターを通した空気中には硫黄成分はほぼ含まれな

いことを確認した。一方、非水溶性であるジメチルスルフィドは大気中に 1.4ppb 程度含まれているのに対し、物理フィルター通過後も 0.8ppb 検出されていることが判明し、ジメチルスルフィドに関しては、物理フィルターをほぼ全量が通過していることが明らかになった。

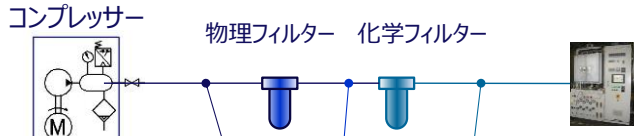
紫外線蛍光法を用いた SO₂ 濃度計(サーモフィッシャー社: Model143i-TLE)を導入し、1年間の供給空気中の全硫黄濃度の常時監視測定を行った。常温 Air とは、常温の空気を分析装置に取り込み測定したものであり、800°C Air とは、前処理として分析対象空気を 800°C に加熱して、硫黄成分を SO₂ へと熱分解させた空気を測定したものである(以下、全硫黄測定と記す)

図 3-7-1.1(a)に物理フィルター後の空気中における年間を通じた全硫黄測定結果を示す。概ね、気温の変化に関わらず、物理フィルター後の硫黄濃度は一定傾向であるが、試験サイト近傍をディーゼル車等の硫黄排出源が通過すると、急激に硫黄濃度が上昇することなど、周囲の状況次第で常に硫黄濃度は変化することが分かった。また、図 3-7-1(b)に示すように原料空気中の硫黄濃度は、物理フィルター後よりも高いことを確認した。一方、1年間以上使用した物理フィルターに付着した不純物の解析を実施したところ、新品の物理フィルターから検出される不純物成分と優位な差異は認められなかった。従って、空気中の硫黄成分は空気コンプレッサーの圧縮過程において生成されるドレン水に溶解し、ドレン水として排出されているものと推察している。

以上のことから、電中研サイトにおける1年間(2017年度)の常時観測を実施した結果、大気及び物理フィルター後の、平均 SO₂ 濃度はそれぞれ、1.04ppb, 0.52ppb であり、物理フィルター後で半分程度に減少していること、また、表 3-7-1.2 に示す神奈川県の実験局が公表している硫黄濃度値と比較しても大きな差異は認められないことから、電中研試験サイトが特別な試験環境ではないものと考えている。

ただし、2015年度における電中研試験サイト付近の環境は、近隣施設や所内において大規模な土壌工事や建設工事などが行われ、頻繁にトラック等の車両が出入りをしてきたこともあり硫黄排出源となっていた可能性がある。また、空気コンプレッサーと配管の接続部に振動防止のためのゴムチューブを一部使用していた(現在はゴム以外のフレキシブルチューブに変更)こともあり、硫黄源となっていた可能性もある。これらの状況を考慮すると、ある一定期間これらの要因が同時期に実施したセルスタックへ悪影響を及ぼした可能性が高いと推察された。

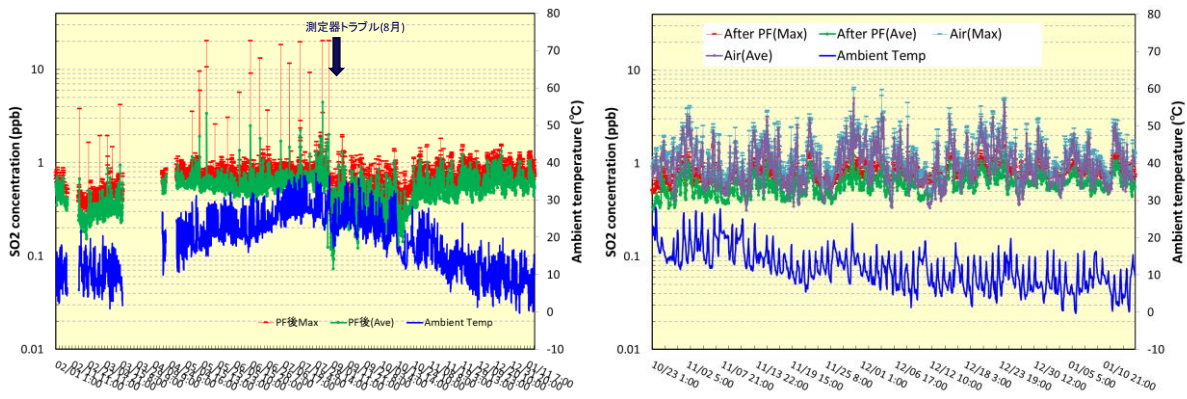
表 3-7-1.2 電中研試験サイトにおける SO₂ 測定結果



測定対象硫黄成分 捕集方法	コンプレッサー室内	圧縮後	物理フィルター後	化学フィルター後	備考
空气中硫黄成分 インピンジャー液溶解	2.8ppb	0.01-0.13ppb	0.007-0.020ppb	<3.0ppt	・夏季測定(7月)
ジメチルスルフィド ガスサンプリングバッグ	1.4ppb (1月)	-	0.8ppb (1月)	<0.1ppb (1月)	・冬季測定
SO ₂ (常温Air) 連続ガスサンプリング	0.5ppb (12月)	-	-	-	・気中のSO ₂ のみ測定
SO ₂ (800°C Air※) 連続ガスサンプリング	1.1ppb (10月-1月)	-	0.5ppb (年間平均)	0.1ppb (1-2月)	・全硫黄測定

※前処理として800°Cに加熱して、硫黄成分をSO₂へと熱分解させた空気

空气中硫黄成分分析 : 捕集したインピンジャー内液をイオンクロマトグラフを用いて分析(SO₄²⁻として測定)
 ジメチルスルフィド分析 : 吸引ポンプを用いて空気を樹脂製バッグに捕集し、一定量を低温濃縮後、ガスクロマトグラフを用いて分析(環境省告示 特定悪臭物質の測定の方法 別表第2硫化メチルに準拠)
 SO₂分析 : Thermo Fisher Scientific社製 Model143i-TLEを用いて連続測定 紫外線パルス蛍光法(UVF法)



(a) 物理フィルター後(年間) (b) 空气中、物理フィルター後(10月～1月)

図 3-7-1.1 電中研試験サイトの SO₂ 濃度の推移

表 3-7-1.3 神奈川県環境測定値

測定局 横須賀市追浜行政センター 測定月 2015年4月

単位:ppbv

日時	1時	2時	3時	4時	5時	6時	7時	8時	9時	10時	11時	12時	13時	14時	15時	16時	17時	18時	19時	20時	21時	22時	23時	24時
最高値	47	39	33	15	21	36	41	20	26	30	23	31	14	28	18	18	7	9	13	14	13	28	32	31
最低値	0	0	0	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
平均値	4	4	4	3	3	4	5	4	5	6	5	5	4	4	4	4	2	3	3	3	3	5	5	4

測定局 横須賀市久里浜行政センター測定月 2015年4月

最高値	4	5	4	5	7	6	7	9	12	14	10	8	6	7	6	5	5	6	5	5	7	3	4	3
最低値	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
平均値	1	1	1	1	1	2	2	4	4	5	4	3	3	3	2	2	2	2	2	2	2	1	1	1

ii) 2万時間耐久性試験(第1グループ)

円筒横縞形セルスタック(三菱日立パワーシステムズ)を対象に、Cr 被毒条件下において8号機(Type V, 累計2.2万時間)、11号機(Type VI, 23,000時間)と、Cr 被毒無し条件下において10号機(Type VI, 3万時間)について図3-7-1.2に示すように長期耐久性試験と性能解析を実施した。前プロジェクトから継続して実施した8号機におけるスタック中心素子における電圧変化率は、発電初期から2.2万時間までの期間において-0.17%/1,000hであった。また、本プロジェクトから新たに開始した10号機におけるスタック中心素子における電圧変化率は、発電初期から3万時間までの期間において-0.10%/1,000hr、11号機におけるスタック中心素子における電圧変化率は、2.3万時間までの期間において-0.20%/1,000hrであり、Type VIにおけるCr 供給源有無により徐々にCr 被毒有りの場合には電圧低下が加速した。性能表示式による抵抗分離評価の結果、図3-7-1.3、図3-7-1.4、図3-7-1.5に示すようにいずれもIR 損および空気極過電圧の微増によるものであり、新たな電圧低下要因は抽出されなかった。Cr 供給源無しの10号機の場合、IR 損と空気極過電圧の増大寄与分はそれぞれ0.04%/1,000hr、0.06%/1,000hrであり電圧低下要因はIR 損と空気極が同程度で微増することによるものであるのに対し、Cr 供給源有の場合は、IR 損と空気極過電圧の増加寄与分はそれぞれ0.07%/1,000hr、0.13%/1,000hrとなり、この電圧変化率の違いは主に空気極過電圧の増加速度の違いにより引き起こされていることは明らかである。また、8号機(Cr 供給源有)との比較においても、図3-7-1.6に示すように、IR 損および空気極過電圧は11号機とほぼ同一の挙動であったことから、Cr 被毒が発生した場合には空気極過電圧はいずれも加速して増大することが明らかになった。

Cr 被毒の加速効果について、MHPSでは産総研が測定したCr 蒸発量基礎データから今回の試験温度900℃では7.7倍の加速倍率と推定している。このため、2.3万時間の加速試験は通常運転条件換算では18万時間に相当する。このため、Cr 被毒条件下においても十分な耐久性を有していると考えられる。

以上、高温円筒横縞形ではCr 供給源有無の違いによる新たな劣化要因は見られず、最長3万時間の長期耐久データを蓄積できた。

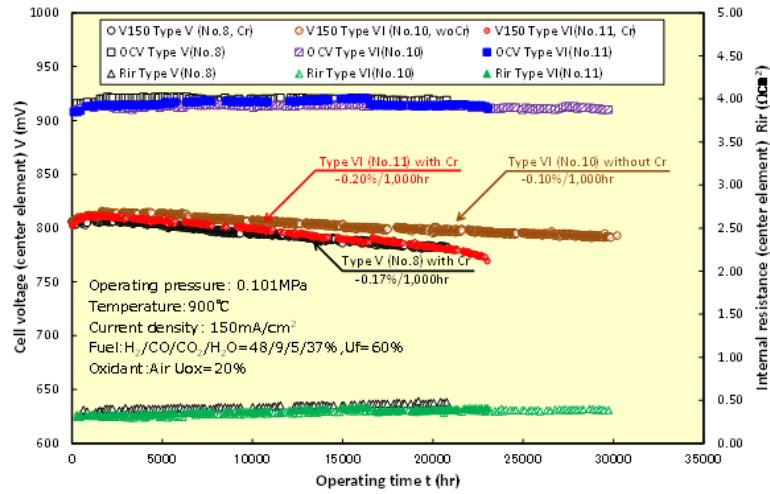


図 3-7-1.2 高温円筒横縞形セルスタックの長期耐久性試験結果

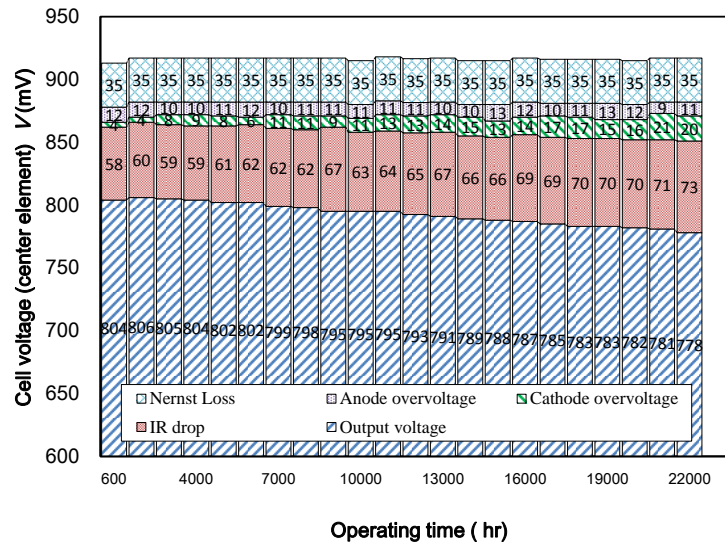


図 3-7-1.3 性能解析結果(8号機, Type V, Cr被毒有)

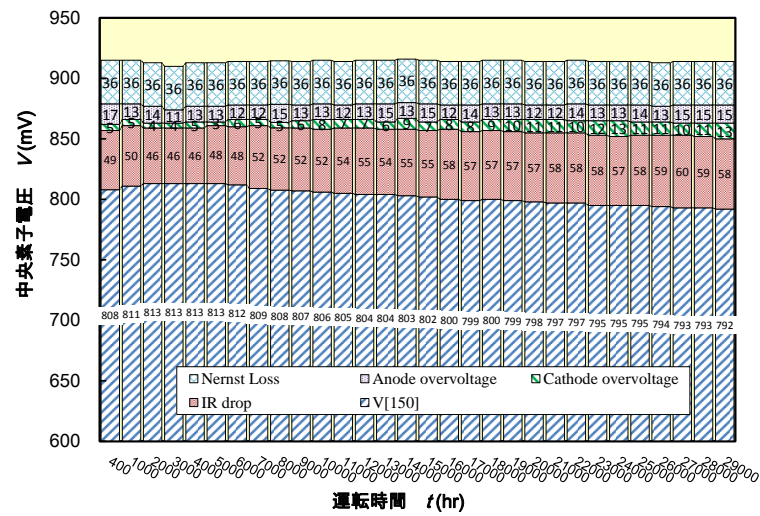


図 3-7-1.4 性能解析結果(10号機, Type VI, Cr被毒無)

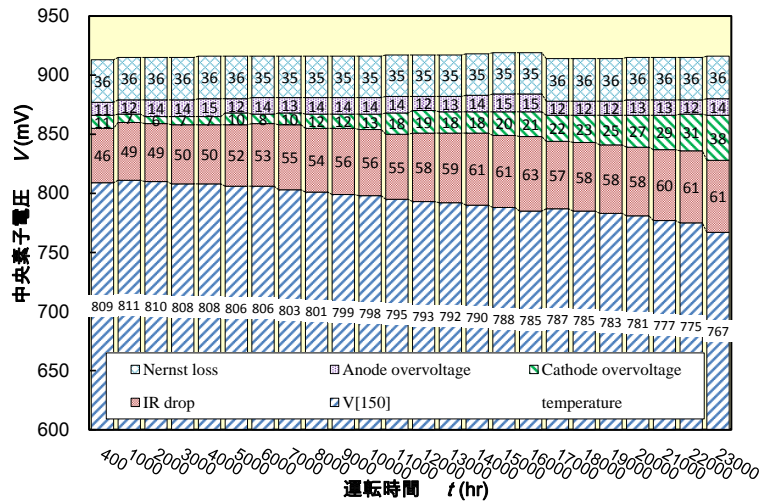
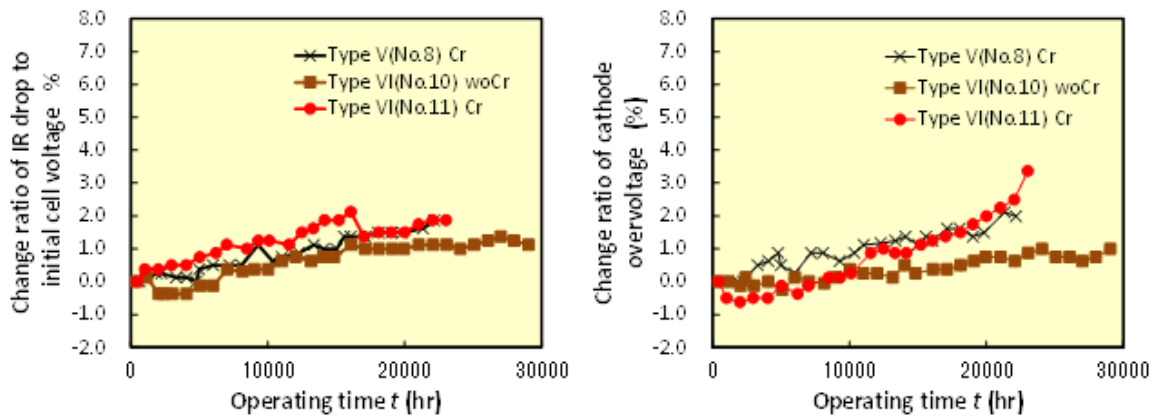


図 3-7-1.5 性能解析結果(11号機, Type VI, Cr 被毒有)



(a) IR 損の時間変化

(b) 空気極の時間変化

図 3-7-1.6 IR 損、空気極過電圧の時間変化(高温円筒横縞形)

筒状平板形セルスタック(京セラ製)では、プロジェクト前期において、図 3-7-1.7 に示すように「2012 年度スタック」を用いた 1 万時間までの長期耐久性試験を実施した。「2012 年度スタック」では、1 万時間までの電圧変化率は-0.2%/1,000hr となり、前プロジェクトで実施した「2008 年度スタック」(電圧変化率-0.3%/1,000hr)と比較し耐久性が向上していることを確認した。

性能表示式による抵抗分離評価の結果、図 3-7-1.8 に示すように継時的な電圧低下は、空気極過電圧と IR 損の増加によるものであった。この結果は「2008 年度スタック」と同じ電圧低下要因であることから、「2012 年度スタック」では、新たな劣化要因は認められなかった。

プロジェクト後期では、新たに低コスト化を図った「2016 年度スタック」を対象に耐久試験を実施した。「2016 年度スタック」では、電解質の薄膜化を図り、高電圧化を実現したものである。このため、定格電流密度をこれまでの 0.2A/cm²から 0.3A/cm²へと変更している。

図 3-7-1.9 に示すように発電初期に実施した性能解析により、IR 損の大幅な低減を確認し、1.5 倍高電流密度化しても従来仕様よりも高いセル電圧を示すことを確認した。一方、従来の試験環境と同様に、通常の空気フィルター(以下、物理フィルター)を通した空気を供給して耐久試験を実施したところ、図 3-7-1.10 に示すように電圧変化率は-0.79%/1,000hr となり、京セラ自社内試験結果を再現せず、高電流密度化(従来電流密度の 1.5 倍)以上の高い電圧変化率で推移した。性能表示式による抵抗分離評価の結果、IR 損と空気極過電圧の増大が著しいことを明らかできたため、この原因を明らかにするため耐久試験は約 8,000 時間で中止し、プロジェクトに参画する大学や研究機関での解体分析を行うこととした。

産総研では、本セルスタックについて特にセルスタック中の硫黄濃度に着目して分析した結果、セルスタック内なら、通常の 6 倍の硫黄が検出された。このため、空気中の不純物の一つと

して、硫黄被毒の可能性が疑われた。そこで、当所では、SO₂測定装置を導入し、環境空気中や供給空気中の濃度の常時監視を行った上、SO₂を対象とした化学吸着フィルターも導入し、1.4万時間の再試験を実施した。その結果、1.4万時間までの電圧変化率は-0.33%/1,000hrとなり、物理フィルターのみで実施した「2016年度スタック」(電圧変化率：-0.79%/1,000hr)と比較し電圧変化率は大幅に改善され、フィルターの導入効果が認められた。

再試験したセルスタックについて抵抗分離評価の結果、図3-7-1.11に示す通り、化学吸着フィルターを導入した場合には、空気極過電圧とIR損の増大抑制により、電圧変化率が改善されることを明らかにした。

一方で、プロジェクト後期において実施した電中研サイトにおける空気中の硫黄成分測定から推定される硫黄量とセルスタック中で検出された硫黄濃度を比較したところ、供給空気中から観測された硫黄濃度に対し、セルスタックから検出された硫黄量は大幅に少なかったことも判明している。この理由として考えられる要因としては、「2016年度スタック」(物理フィルターのみ)の耐久試験を実施していた2015年度は、当所試験サイト近傍で大規模な工事に伴う大型車の頻繁な出入りがあったことや、空気圧縮機と供給配管の接続部に振動伝達防止を目的としたゴムチューブ(通常のコンプレッサー接続用)を使用していた点である。これらが環境空気中のSO₂以外の硫黄供給源として存在していたものと考えられ、今回大きな劣化現象を引き起こしたものと推察された。

以上から、「2016年度スタック」では電解質の薄膜化に起因し、硫黄被毒に対して敏感傾向となることが明らかになったが、化学吸着フィルターを導入することで従来仕様と変わらない耐久性を実現できることも明らかにできた。

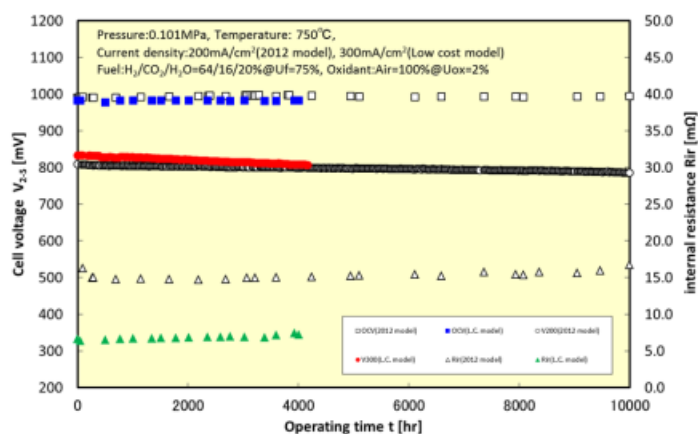


図 3-7-1.7 中温筒状平板形セルスタック (2012 年仕様) の耐久試験結果

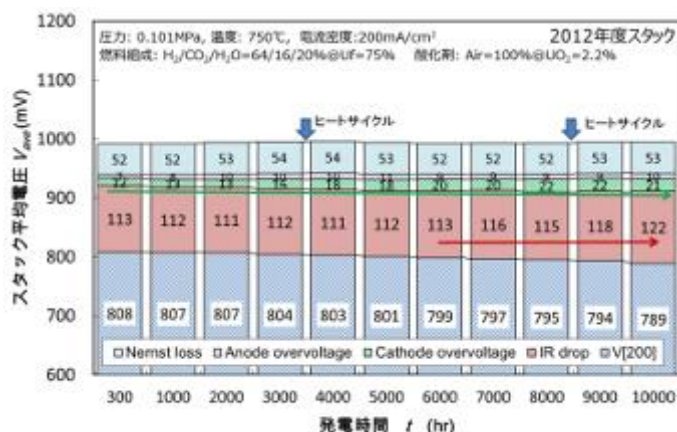


図 3-7-1.8 2012 年仕様の性能解析結果(物理フィルターのみ)

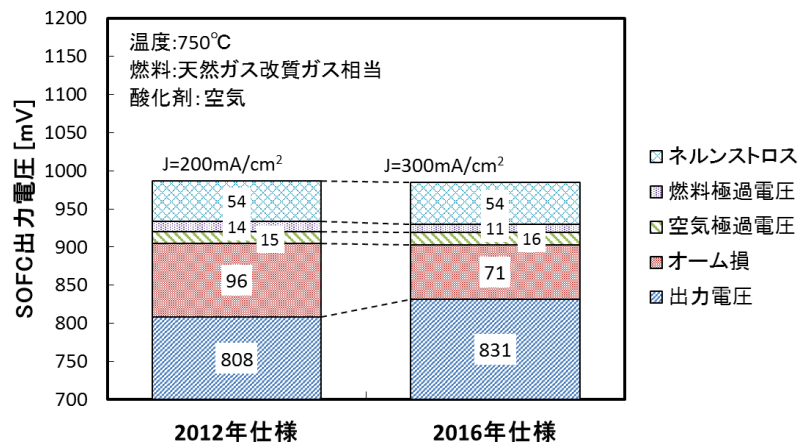


図 3-7-1.9 2016 年仕様の初期性能解析結果

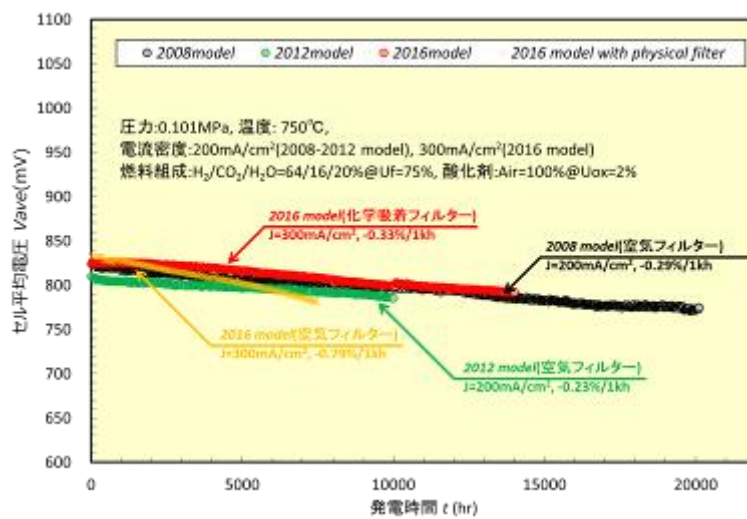
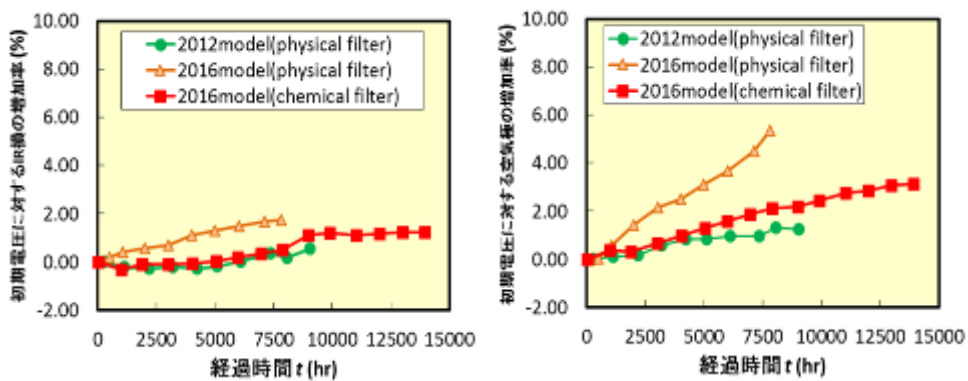


図 3-7-1.10 中温筒状平板形セルスタック (2016 年仕様) の耐久性試験結果



(a) IR 損の時間変化

(b) 空気極の時間変化

図 3-7-1.11 IR 損、空気極過電圧の時間変化 (中温筒状平板形)

iii) 1万時間耐久性試験(第2グループ)

プロジェクト前期では、小型円筒形セルスタック(TOTO製)「13仕様」を対象に、運転温度630℃および700℃における10,000時間までの耐久性試験を実施した。図3-7-1.12に示す通り、630℃セルスタックでは2回、700℃セルスタックでは1回のヒートサイクルを経ているが、10,000時間までの電圧変化率は、 $-0.61\%/1,000\text{hr}$ (630℃)、 $-0.53\%/1,000\text{hr}$ (700℃)であった。この電圧変化率はTOTO自社内における長期発電試験結果を再現しない非常に大きな劣化であったことから、本セルについても電中研サイトでは、何等かの劣化加速要因があるものと推定された。性能表示式による抵抗分離評価の結果、図3-7-1.13および図3-7-1.14に示す通り、両セルスタック共に継続的な空気極過電圧の増大が認められ、運転温度630℃ではさらにIR損の増大も認められ、劣化の主要因となっていることが判明した。従って、他のセルスタックでも見られたように、空気中の不純物が空気極に影響を与えていると推定された。解体分析結果によると、SIMS分析(産総研実施)では、空気極中の硫黄濃度は 10^3ppm 程度とTOTOサイトで実施した同仕様のセルスタックよりも多く検出されたこと、STEM分析(九州大学実施)では、空気極組成変化も認められたことから、電中研サイトで実施したセルスタックでは硫黄被毒が発生し、加速的な劣化が生じたものと判断されている。

一方、「13仕様」では電解質にイオン伝導性と電子伝導性のあるLSGMを採用しているため、実測される開回路電圧は理論値よりも低くなること(以下、 ΔOCV)が明らかになっているが、本耐久試験では、その挙動に注視していた。この理由は、 ΔOCV が時間と共に増大する場合、発電以外に燃料を消費することや、セルスタックの温度上昇も懸念されることから、システムを想定した場合には安全性の確保の懸念と、システム効率の低下の懸念があるためである。しかしながら、1万時間の耐久試験結果とその性能解析から630℃セルスタック、700℃セルスタック共に ΔOCV の増大は認められず、解決すべき重要な問題とはならないことも明らかになった。

プロジェクト後期ではTOTOからの情報提供を受け、TOTO社内と同仕様の硫黄除去フィルターとして化学吸着フィルターを導入し、「13仕様」の再試験を実施すると共に、「13仕様」の課題であった初期の空気極過電圧増大に関する抑制策を施した「低コスト化仕様」について長期耐久試験を実施した。

図3-7-1.15は「13仕様」における化学吸着フィルター有無の違いを630℃、700℃のそれぞれについて比較したものである。化学吸着フィルター導入により、電圧変化率は630℃、700℃のそれぞれにおいて、 $-0.36\%/1,000\text{hr}$ 、 $-0.33\%/1,000\text{hr}$ となり、いずれの温度においても劣化改善傾向が見られ、フィルターの導入効果が見られた。しかしながら、後述するように「13仕様」では、初期の電圧低下(空気極過電圧増大)が残存することも同時に明らかになった。

このため、2017年度は、「低コスト化仕様」(700℃運転)を対象に化学吸着フィルターの導入効果と、仕様改良効果を検証するため耐久性試験と性能解析を実施した。

まず、初期性能に関しては、図3-7-1.16に示すように発電初期の ΔOCV は11mVまで減少し、リーク電流を抑制できていること確認した。

次に、図3-7-1.17に示した「低コスト化仕様」を対象に、化学吸着フィルター有/無の条件下で実施した6,000時間までの耐久試験の結果、電圧変化率はそれぞれ $-0.36\%/1,000\text{hr}$ 、 $-0.72\%/1,000\text{hr}$ となり、優位な差異が生じることが明らかになった。抵抗分離評価結果から、化学吸着フィルターを導入した場合は、空気極過電圧の増大はみられず、表3-7-1.4に示すように約 $0.2\%/1,000\text{hr}$ の電圧変化率の改善効果があると試算された。なお、「低コスト化仕様」では図3-7-1.18に示すようにIR損の増大も見られているが、これは開発途中の仕様であることから事前に予想されていたものであり、自社内で実施中の「低コスト化最終仕様」では解決の見込みを得ている。

空気極過改良効果については、図3-7-1.18に示すように「13仕様」の解決すべき課題であった発電初期の空気極過電圧増大を抑制できていることも検証できた。

以上の結果から、化学吸着フィルター導入効果として電圧低下率を約 $0.2\%/1,000\text{hr}$ 改善が見込めること、「低コスト化仕様」では、初期の空気極過電圧増大を抑制できたことを検証した。

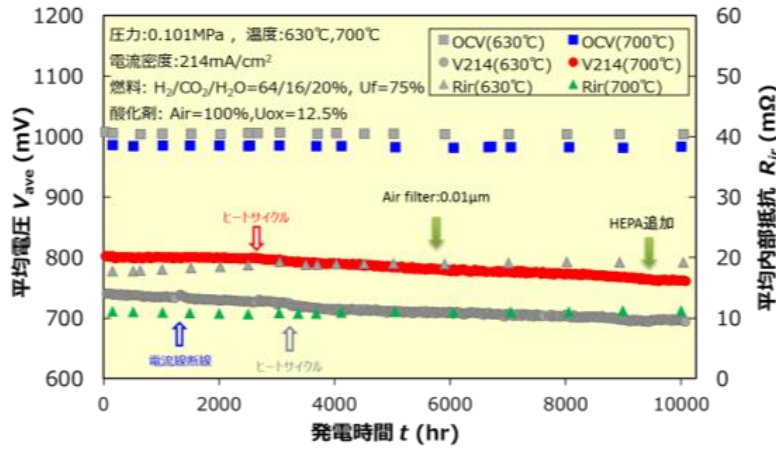


図 3-7-1.12 小型円筒形セルスタック (13 仕様) の耐久性試験結果 (物理フィルターののみ)

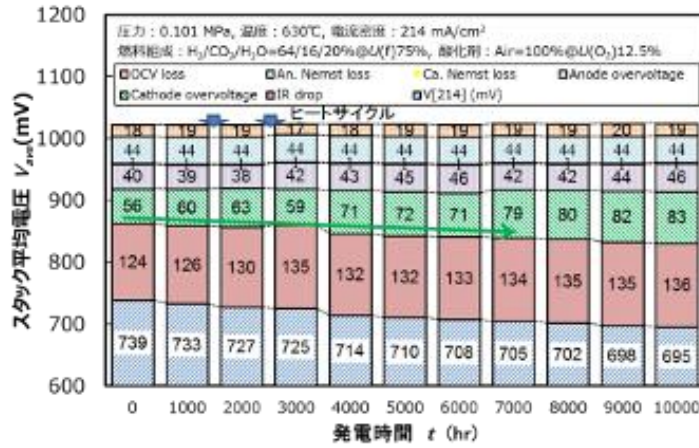


図 3-7-1.13 13 仕様 (630°C) の性能解析結果 (物理フィルターののみ)

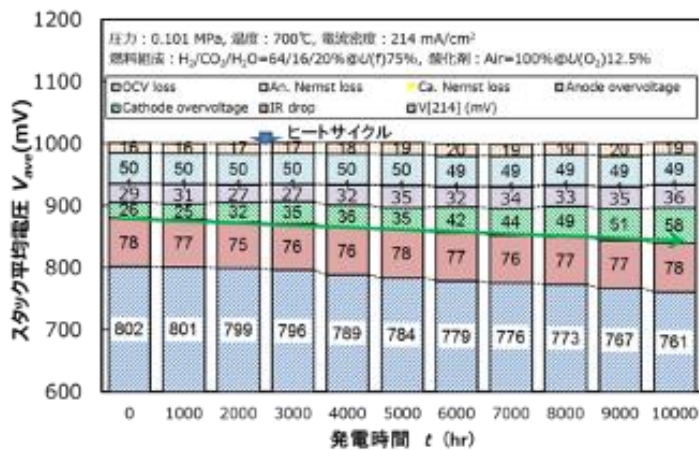


図 3-7-1.14 13 仕様 (700°C) の性能解析結果 (物理フィルターののみ)

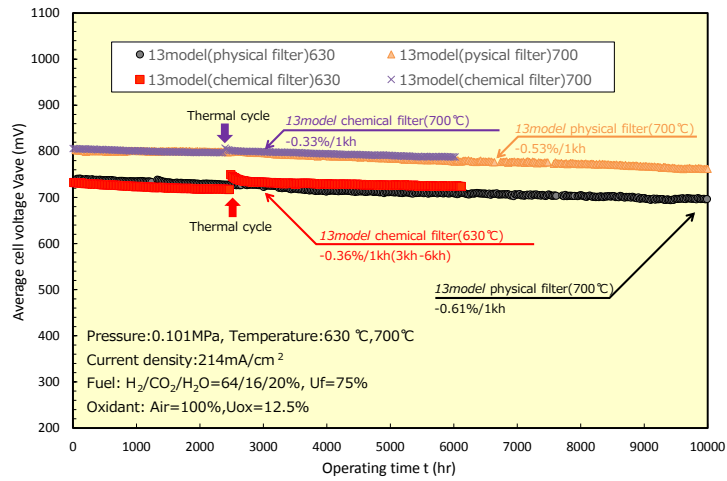


図 3-7-1.15 小型円筒形セルスタック (13 仕様) の耐久性試験結果 (化学吸着フィルター導入)

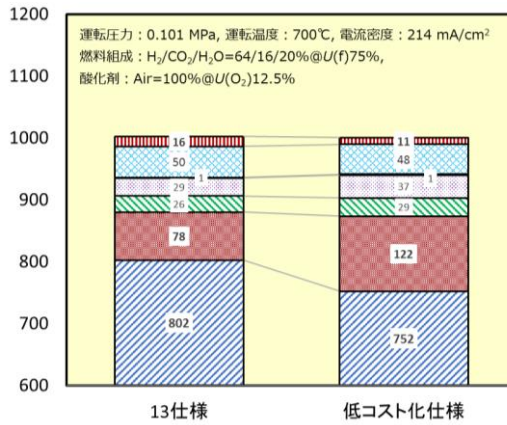


図 3-7-1.16 低コスト化仕様の初期性能解析結果

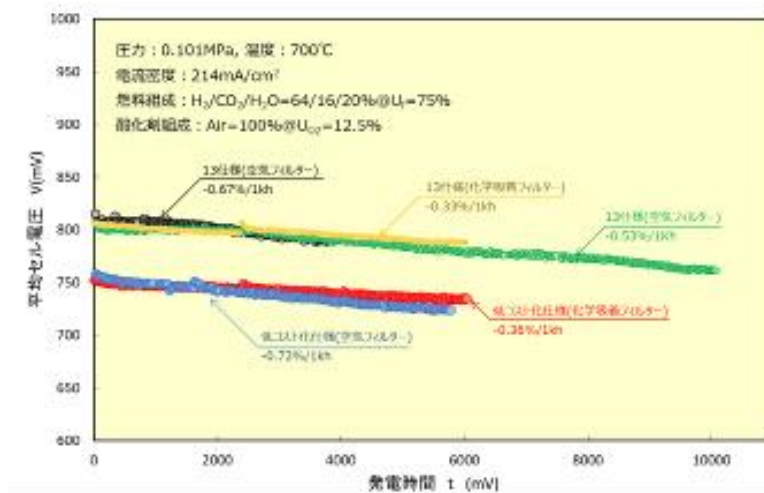


図 3-7-1.17 小型円筒形セルスタック (低コスト化仕様) の耐久性試験結果

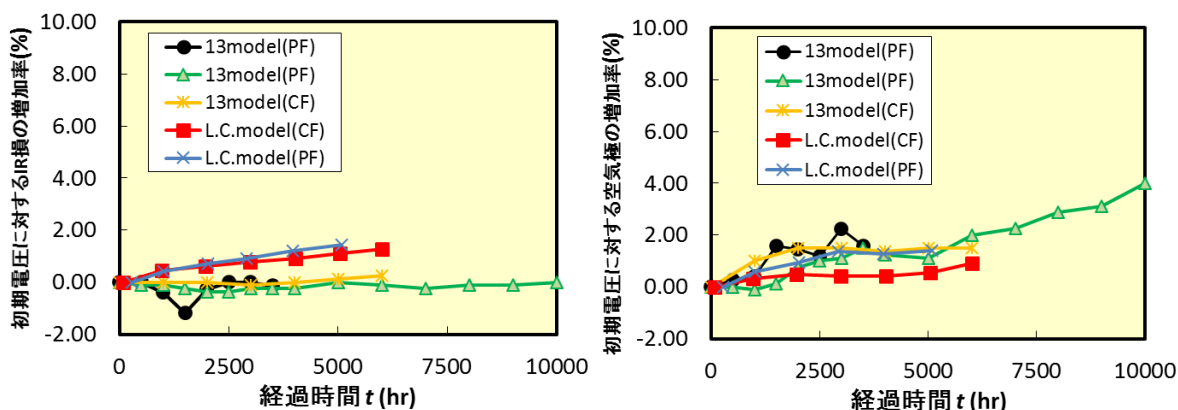


図 3-7-1. 18 小型円筒形における IR 損、空気極過電圧の時間変化

表 3-7-1. 4 化学吸着フィルターの導入効果と最終仕様案での電圧変化率推定(小型円筒形)

	A 化学吸着 フィルター	B 物理 フィルター	化学フィルター 導入効果(B-A)
電圧変化率(%/1,000hr)	-0.36	-0.72	-0.36
①IR 損分	-0.18	-0.29	-
②空気極分	-0.11	-0.28	<u>-0.17</u>
③燃料極分	-0.07	-0.15	-
IR 損一定の場合(②+③)	<u>-0.18</u>	-0.43	-

iv) 0.5 万時間耐久性試験(第 3 グループ)

本プロジェクトから参画した中温平板形(日本特殊陶業製)、中温筒状横縞形(日本ガイシ製)、および一体共焼結形(村田製作所製)では、プロジェクト前期では、各社試験評価手法の確立と抵抗分離評価に必要な性能表示式の導出を行なうと共に、3,000~10,000 時間程度の耐久性試験と抵抗分離評価を実施した。

中温平板形セルスタック(日本特殊陶業製)では、「2012 年仕様」を用いた 1 万時間までの長期耐久性試験を実施した。本セルスタックでは、図 3-7-1. 19 に示す通り、発電初期から 1,000 時間までの期間において初期劣化現象が見られた。本セルスタックにおける 2 回のヒートサイクルを含む 1 万時間までの電圧変化率は-0.6%/1,000hr であった。性能表示式による抵抗分離評価の結果、図 3-7-1. 20 に示す通り、1,000 時間までの初期劣化は空気極過電圧と IR 損の増加によるものであること、また、IR 損の継時的な増加が見られること、2 回目のヒートサイクル以降に燃料極の増加傾向も見られることを明らかにした。このため、「2012 年仕様」では、長期耐久性に対して、1000 時間までの初期劣化および、5,000 時間以降で見られた燃料極過電圧の増加に対する対策が課題であった。

平成 26 年度からは、「2014 年仕様」の耐久性試験を開始した。本セルスタックは、平成 25 年度に東京ガス殿で実施された 2,000 時間程度耐久試験後の解体分析により抽出された劣化因子に対する対策を一部盛り込んだ仕様であり、その対策効果の検証を目的とした。この「2014 年仕様」セルスタックを用いて 1,000 時間程度の試験を電中研で実施したところ、性能解析の結果から燃料極過電圧と IR 損が減少したことにより初期のセル電圧が向上することを明らかにしたが、その後は図 3-7-1. 21 に示す通り、空気極過電圧と IR 損の微増が認められ、初期劣化対策の効果は認められなかった。このため、プロジェクト後期ではさらに改良を進めた「2014 年改 1 仕様」および「2014 年改 2 仕様」を対象に化学吸着フィルターの導入効果と発電初期の電圧低下抑制効果を明らかにするための耐久試験を実施した。

図 3-7-1. 22 に示した「2014 年改 1 仕様」では 2,500 時間以降から安定した出力電圧を示し、1.4 万時間までの電圧変化率は-0.33%/1,000hr となった。抵抗分離評価の結果、2,500 時間以降は図 3-7-1. 23 に示すように空気極過電圧、IR 損、および燃料極過電圧のいずれもが増大しなくなったためであった。

「2014年改2仕様」では、化学吸着フィルター有/無の条件下でそれぞれ2,500時間程の試験を行った。抵抗分離評価の結果、両者に明確な差異は認められず0.5ppb程度の硫黄に対しては、十分な耐性を有しているものと推察された。また、本セルスタックの課題であった発電初期の電圧低下現象に対して、化学吸着フィルターの有無に関わらず発現せず、狙い通りの改良効果が認められ、その改善要因が、空気極過電圧の増大抑制であることを明らかにできた。なお、発電初期の急激な電圧低下の要因については図3-7-1.24に示したように、改良如何に関わらずIR損の増大速度はほぼ一定であり、過電圧の変加速度に違いが生じていることも明らかにしている。従って、「2014年改2仕様」における初期電圧低下改善要因は、既に示した図3-7-1.23から明らかのように、空気極過電圧の増大抑制であったことが分かる。

以上の結果、同社セルスタックでは硫黄被毒の影響は受けないこと、「2014年改2仕様」では、解決すべき課題であった初期の電圧低下を抑制できることを検証した。

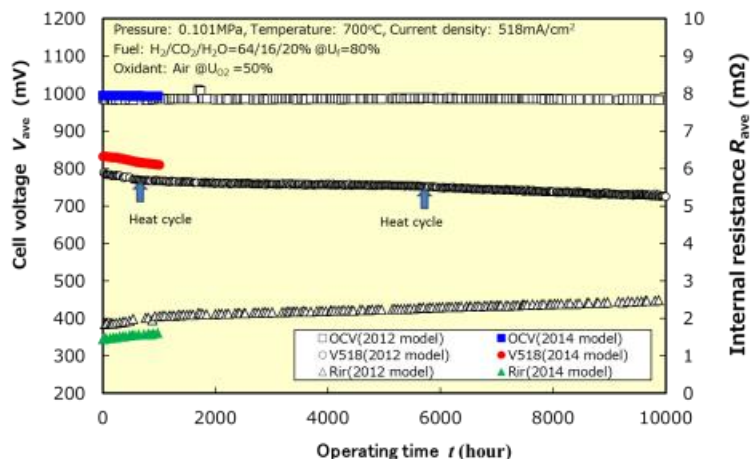


図 3-7-1.19 中温平板形セルスタック (2012 年仕様) の耐久性試験結果

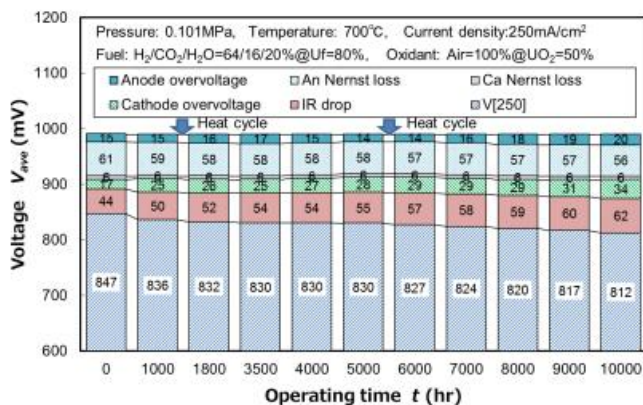


図 3-7-1.20 中温平板形セルスタック (2012 年仕様) の性能解析結果

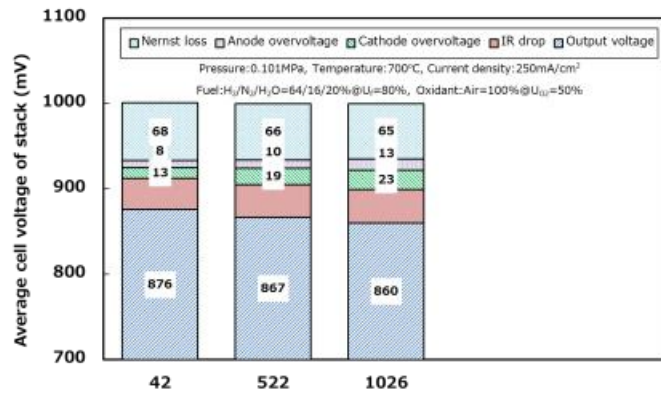


図 3-7-1.21 中温平板形セルスタック (2014 年仕様) の性能解析結果

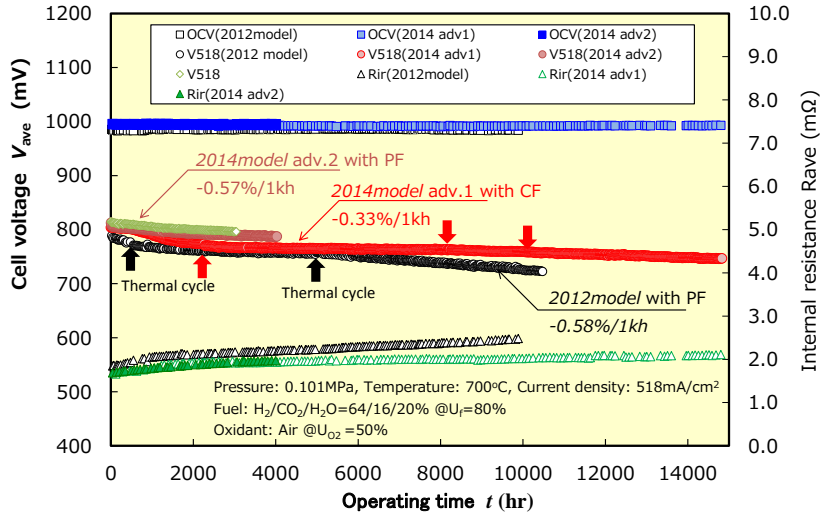


図 3-7-1.22 中温平板形セルスタック (2014 年改良仕様) における長期耐久試験結果

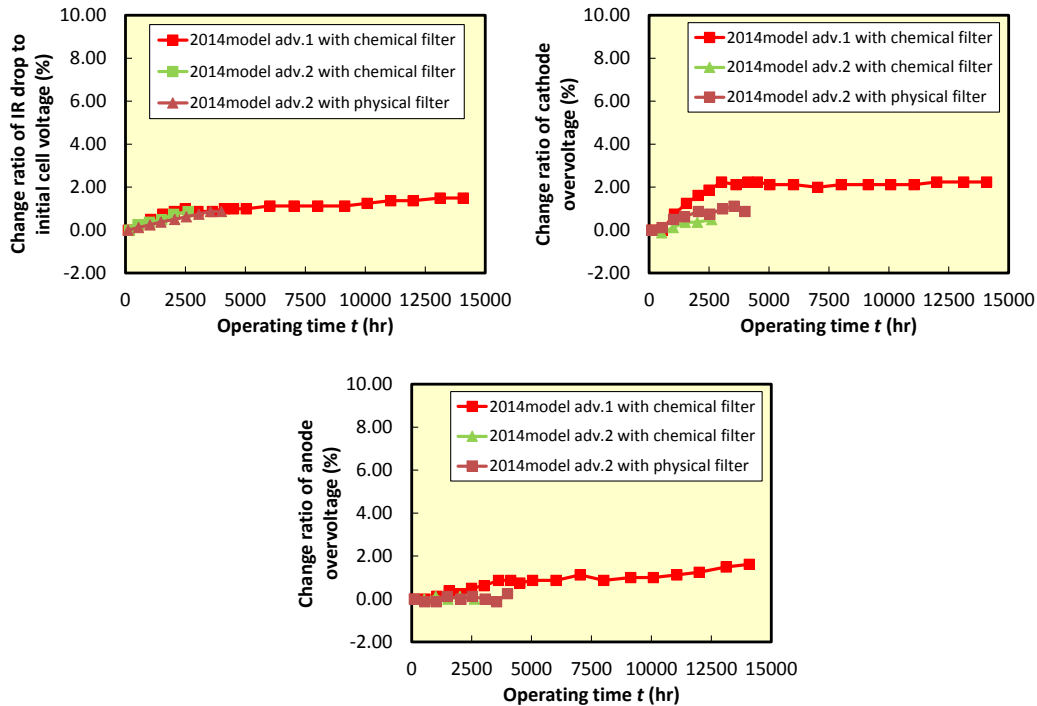


図 3-7-1.23 中温平板形セルスタックにおける IR 損、空気極過電圧、燃料極過電圧の時間変化

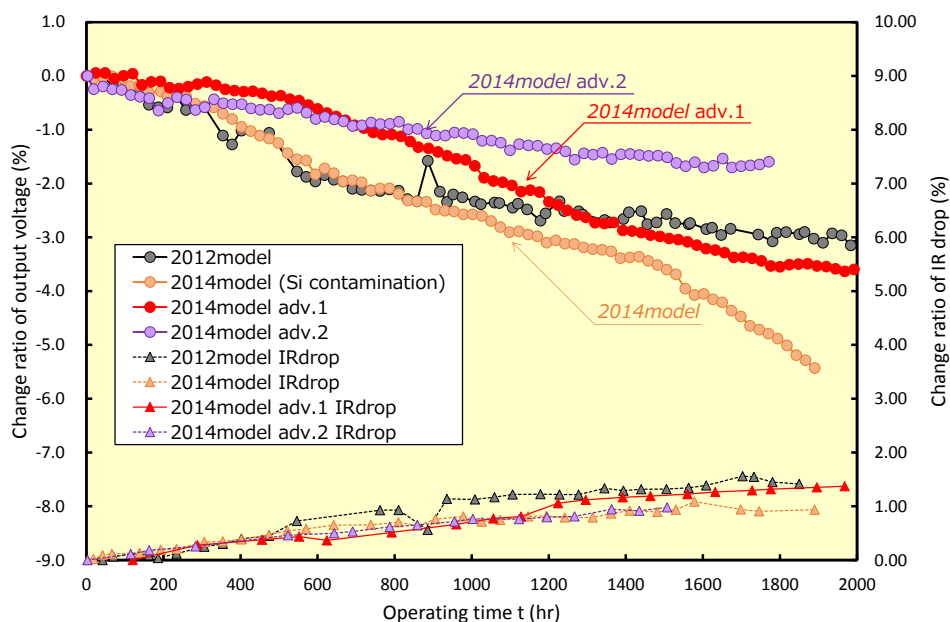


図 3-7-1.24 中温平板形セルスタックにおける初期の電圧低下要因

筒状横縞形セルスタック(日本ガイシ製)では、プロジェクト前期において、6 素子で構成される「2013 年度仕様」、「2014 年度仕様」および「10W 級仕様」を用いた試験を実施した。

「2013 年度仕様」では、理論開路電圧と実測値には差異が見られたこと、日本ガイシの社内調査から素子間でガスリークが発生していることが明らかになった。このため、「2013 年度仕様」では、まずガスリーク対策が急務であることを明らかにした。この対策を施した「2014 年度仕様」では図 3-7-1.25 に示すように理論値との差異が減少したことや、その他の改良効果により、空気極過電圧と IR 損が減少し、セル電圧が向上したことを明らかにした。一方、新たな問題として、当所において実施した「2014 年度仕様」および「10W 級仕様」の耐久性試験では、合計 6 機のセルスタックにおいていずれも発電初期に、空気供給上流側から下流側へと順次出力電圧が急激に低下する現象が見られた。一例として、1 万時間の長期耐久性試験を実施中の「2014 年度仕様」の初期電圧低下例を図 3-7-1.26 に示す。これらセルスタックを性能表示式により評価した結果、図 3-7-1.27 に示す通り、空気極過電圧が急激に増加していることが分かった。しかしながら、初期の急激な電圧低下以降の出力電圧は、図 3-7-1.28 に示す通り安定に推移し、2,000~9,000 時間までの電圧変化率は $-0.3\%/1,000\text{hr}$ (初期~9,000 時間では $-0.5\%/1,000\text{hr}$) となり、日本ガイシ社内や東京ガスサイトで実施した耐久性試験結果とほぼ同程度の電圧変化率となることが分かった。この発電初期における電圧低下現象は他の試験サイトでは見られず、再現性良く発現することから、当所試験サイトの環境に依存している。そこで、電気炉材(新材)や空気供給源からの硫黄成分混入を考慮し、空気用ダストフィルター仕様の変更や追設の他、電気炉の空焼きを実施し、電圧低下現象への影響について調査をした結果、徐々にその急激な電圧低下現象は収まりつつあることが明らかになったものの解決には至らなかった。急激な電圧低下を示したセルスタックについては、日本ガイシを中心に解体分析を各機関に依頼し劣化現象の解明に取り組んだ結果、最終的に硫黄被毒による空気極の汚染と断定された。以上のことから、プロジェクト前期で明らかになった課題としては、硫黄被毒への対応であった。

プロジェクト後期では、SOFC 発電システムを想定したセルスタック構成や試験条件として、素子面積を大きくした 16 素子で構成される「10W 級仕様」セルや 10W 級仕様×5 本で構成する「50W 級仕様」スタックを対象とすることとし、空気利用率も 40%まで高めた試験条件へと見直しすることとした。長期耐久試験では、硫黄被毒対策として空気極を改良した「2015 年度仕様」(50W 級)を対象とし、化学吸着フィルターを導入した上で、空気利用率の違いによる耐久性への影響評価を目的とした。

図 3-7-1.29 には、長期耐久試験結果を、図 3-7-1.30 には性能解析結果を示す。耐久試験の結果、空気利用率 10% (1.6 万時間) 及び 40% (1.2 万時間) とした場合の電圧変化率は共に $-0.29\%/1,000\text{hr}$ であったことから、空気利用率の違いによる耐久性への影響には優位な差異は認められないことが明らかになった。また、図 3-7-1.30 に示す抵抗分離解析結果から、燃料極過電圧や空気

極過電圧は発電初期からほとんど変化しないか微増傾向であり、劣化の主要因は IR 損の増大であることを明らかにした。

一方、東京ガス試験サイトでは物理フィルターのみ(酸素利用率：40%、SO₂ 濃度：0.75ppb)で7,000hr 耐久試験を実施したが、抵抗分離解析結果から空気極過電圧の経時変化は当所で実施したものとはほぼ同一の挙動を示していることも明らかになっている。従って、当所の試験結果と併せると空気極改良により、耐硫黄被毒性が向上したものと推察された。

以上の結果から、「2015 年度仕様」セルスタックでは空気極改良により、耐硫黄被毒性が向上したと推察され、空気利用率の違いによる耐久性への影響も認められなかった。

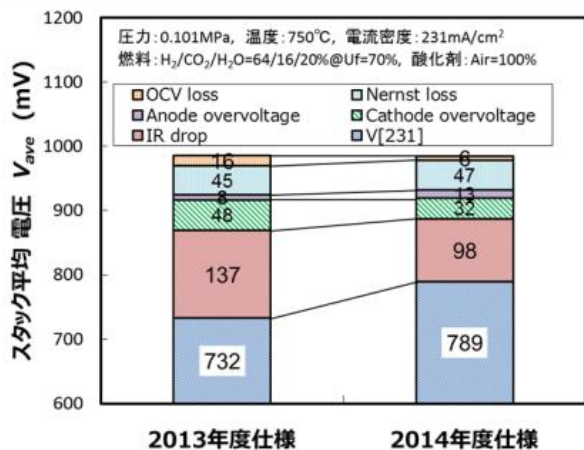


図 3-7-1.25 中温筒状横縞形セルスタックのガスリーク対策効果

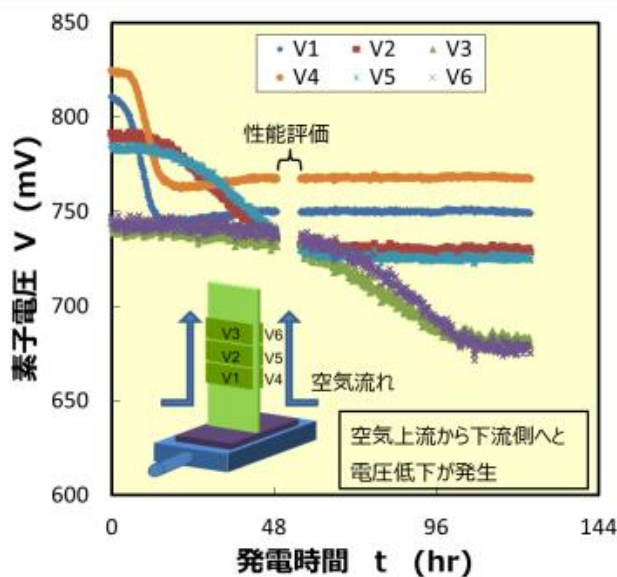


図 3-7-1.26 中温筒状横縞形セルスタックの初期電圧異常低下現象例

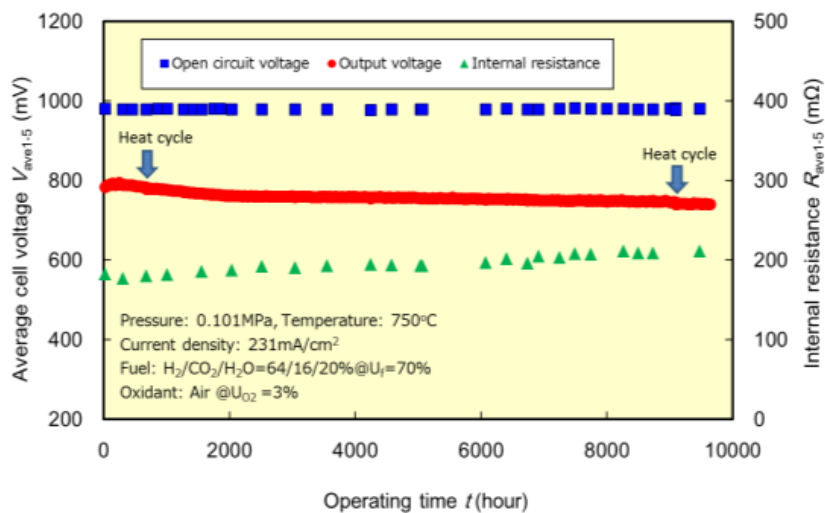


図 3-1-1.27 中温筒状横縞形セルスタック (2014 年度仕様) の長期耐久性試験結果

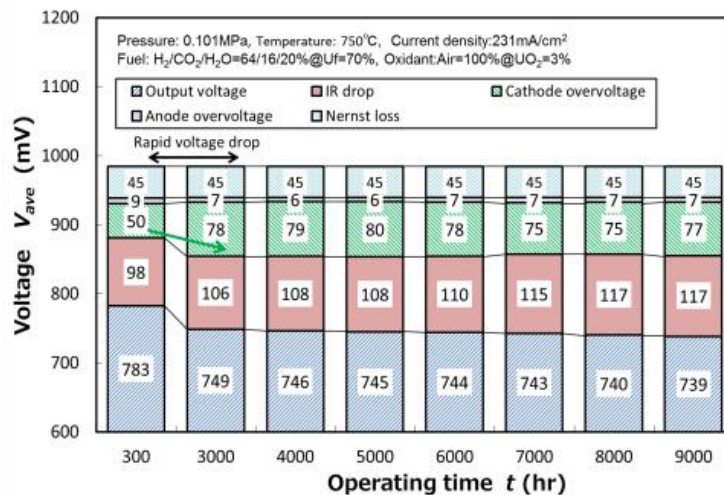


図 3-1-1.28 中温筒状横縞形セルスタック (2014 年度仕様) の性能解析結果

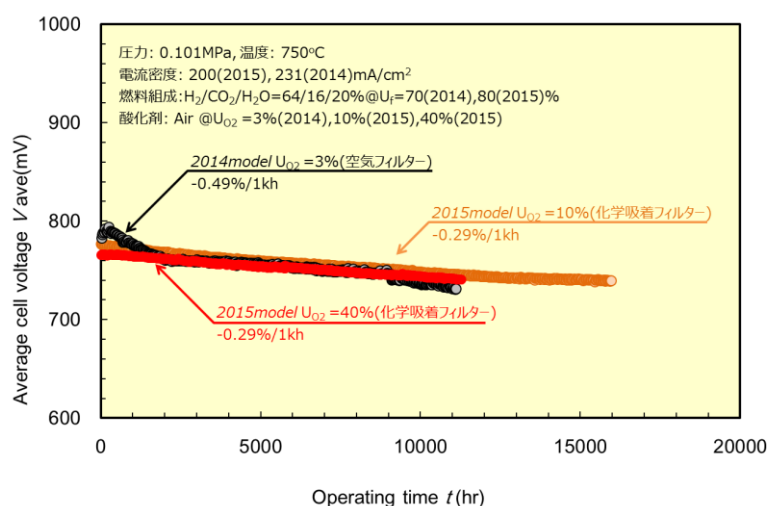


図 3-1-1.29 中温筒状横縞形セルスタック (2015 年度仕様) の長期耐久性試験結果

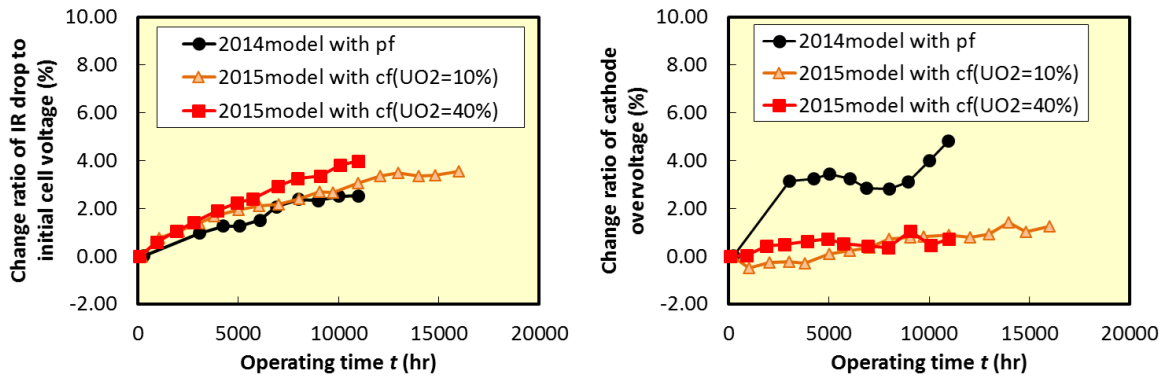


図 3-1-1. 30 筒状横縞形セルスタック (2015 年度仕様) における IR 損、空気極過電圧の時間変化

一体共焼結形セルスタック (村田製作所製) では、プロジェクト前期において「2013 年度仕様」および「2014 年度仕様」を用いた 3,000 時間の試験を実施した。図 3-7-1. 31 に耐久性試験結果を示す。本セルスタックにおける 3,000 時間 (2013 年度仕様は耐久試験終了間際にトラブルが生じたため 2,800 時間まで) までの電圧変化率はそれぞれ $-2.8\%/1,000\text{hr}$ 、 $-2.6\%/1,000\text{h}$ であった。1,000 時間までの初期劣化については「2013 年度仕様」では $-4.6\%/1,000\text{h}$ 、「2014 年度仕様」では $-8.3\%/1,000\text{hr}$ と大きいものの、その後は IR 損の増加が抑制されたことにより、電圧変化率が小さくなった。一方、村田製作所自社内で実施されている長期耐久試験では、電中研サイトと同様に初期劣化はあるものの、2,000 時間以降の電圧変化率は $-0.2\%/1,000\text{hr}$ を実現しており、試験サイト間の耐久性に差異が生じることも判明した。

性能表示式による抵抗分離評価の結果、図 3-7-1. 32 に示すように、「2014 年度仕様」の電圧低下の主要因はいずれも空気極過電圧や IR 損の増加であったことや、解体分析の結果から空気極において多量の硫黄が観測され、硫黄被毒が発生していたことが明らかになった。

そこで、硫黄汚染への対応策としてまず初めに空気フィルターのフィルター孔径をより細かい、 $0.1\mu\text{m}$ に変更した上で、この硫黄被毒の影響評価を行うこととした。

硫黄被毒の影響評価には「2014 年度仕様」を用いて、空気フィルター仕様変更の効果とさらに電流密度の違いによる硫黄汚染の影響評価を目的とした試験を実施すると共に、自社内や電中研サイトで見られた初期劣化対策を施した「2015 年度仕様」についても耐久性試験を実施した。その結果、図 3-7-1. 33 に示すように電流密度を $0.35\text{A}/\text{cm}^2$ から $0.25\text{A}/\text{cm}^2$ へ低電流密度を図ることで供給する空気量を 3 割減らした結果、空気極過電圧の増大を抑制できること、酸素利用率を 40% から 60% まで高めることで、さらに空気極過電圧の増大を抑制できることが分かり、硫黄被毒への対策として、空気供給流量 (総量) を減少させることが効果的であることを明らかにできた。

以上の結果から、プロジェクト前期では、空気極の硫黄被毒が劣化要因のひとつであることを明らかにし、その対策として低電流密度化と空気利用率を 60% まで高めることで効果的に硫黄被毒を回避できることを明らかにした。

プロジェクト後期では、硫黄被毒以外の電圧低下要因の解明を主目的とし、プロジェクト前期で得た硫黄被毒対策を講じた上で耐久試験に取り組んだ。

まず、更なる改良を施した「2016 年度仕様」を用い、化学吸着フィルター導入かつ空気利用率 60% として、6,000hr までの耐久試験を実施した。図 3-7-1. 34 に示すように、本セルスタックの電圧変化率は $-1.25\%/1,000\text{hr}$ (5,000 時間) であり、昨年度までに実施した空気利用率 40% 時の電圧変化率 $-2.9\%/1,000\text{hr}$ と比較し大幅な電圧変化率の改善を確認した。また、図 3-7-1. 35 で示した抵抗分離評価の結果から、硫黄被毒以外の電圧低下要因は、IR 損>空気極過電圧>燃料極過電圧の順で時間と共に増加することを明らかにした。空気極過電圧については、5,000hr 以降は飽和傾向であるが、特に電圧低下主要因である IR 損については 5000hr 以降も増加傾向を示しており、IR 損増加の原因の特定と対策が必要であることが明らかになった。本結果は、当所サイトのみならず、村田製作所自社内で実施した耐久試験結果と整合するものであった。

一方、同社では自社内で実施している 80 段スタックから得られた知見として、運転温度が比較的高温となるスタック部分では初期の IR 損が急激には増大しない結果を得ている。

そこで、最終年度は「28MS 改 2 仕様」(化学吸着フィルター有り)を対象とした長期耐久性試験

と、「2017年仕様」を対象とし、運転温度の高温化による初期 IR 損増大抑制効果の検証を目的とした試験を実施した。

図 3-7-1.36 に示す「28MS 改 2 仕様」では発電初期の電圧低下現象は発現するものの、その電圧変化率(5,000 時間)は、 $-1.01\%/1,000\text{hr}$ であったことから、「28MS 改 1 仕様」(電圧変化率： $-1.25\%/1,000\text{hr}$)と比較し、 $0.24\%/1,000\text{hr}$ 程度の改善が認められた。これは、抵抗分離解析結果から、各抵抗成分の増大を抑制できたことによるものであることが明らかになった。

一方、「2017年仕様」では、 800°C 運転(化学吸着フィルター)と「28MS 改 2 仕様」 750°C (化学吸着フィルター)を比較すると、発電初期の電圧低下挙動に差異が見られ、 800°C 運転の場合には初期の電圧低下を抑制する結果を得ることができた。しかしながら、図 3-7-1.37 に示す抵抗分離解析結果より、初期から 1,000hr までの電圧低下抑制効果は IR 損の増大抑制ではなく、空気極過電圧増大抑制によるものであった。また、 800°C 運転の場合には、1000hr 以降から空気極過電圧の増大が加速されている傾向も見られたことから、「運転温度の高温化」は長期耐久性向上策として有効な手段とはならないものと推察された。

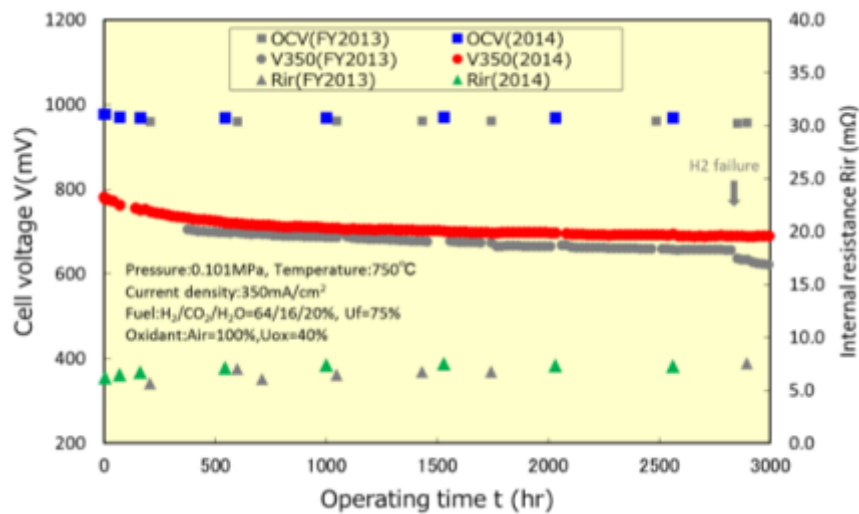


図3-7-1.31 一体共焼結形セルスタック(2014年度仕様)の耐久性試験結果

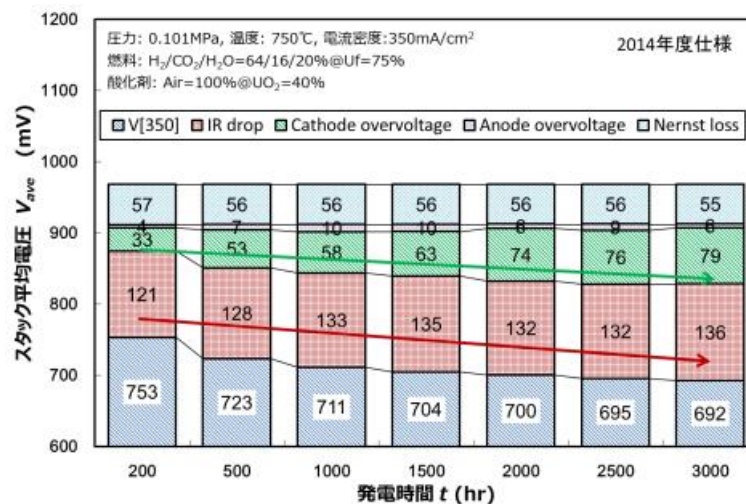


図3-7-1.32 一体共焼結形セルスタック(2014年度仕様)の性能解析結果

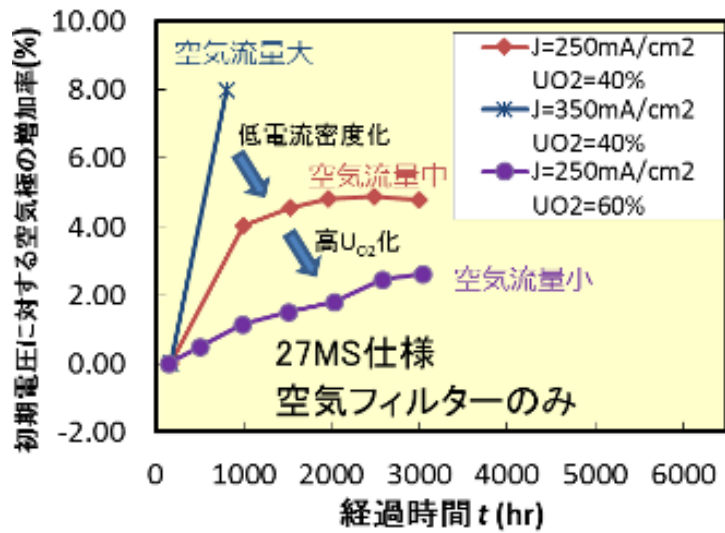


図3-7-1.33 空気極過電圧増大の低減効果(電流密度、酸素利用率)

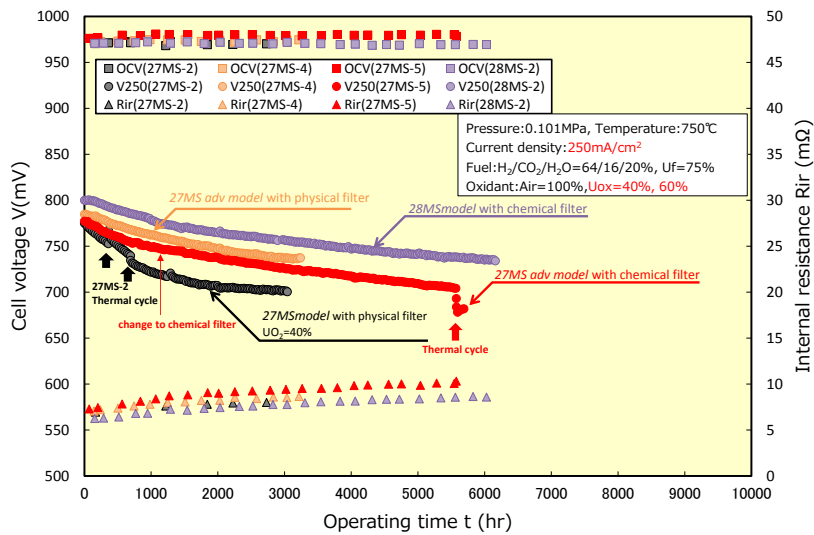
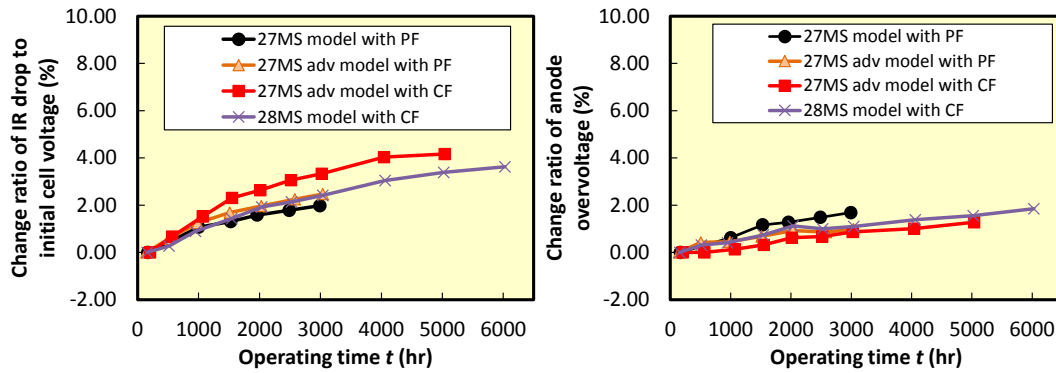
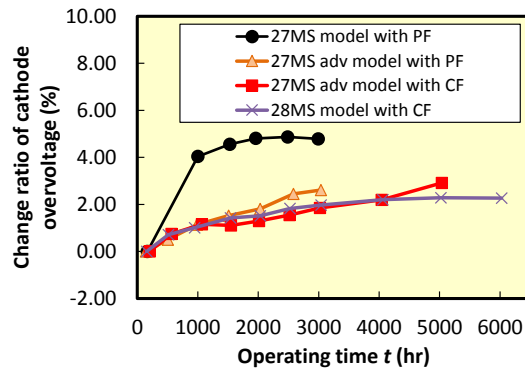


図3-7-1.34 一体共焼結形セルスタック(2016年度仕様)の耐久性試験結果



(a) IR損の時間変化(2016年度仕様) (b) 燃料極過電圧の時間変化(2016年度仕様)



(c) 空気極過電圧の時間変化(2016年度仕様)

図3-7-1.35 一体共焼結形セルスタック(2016年度仕様)の各抵抗成分

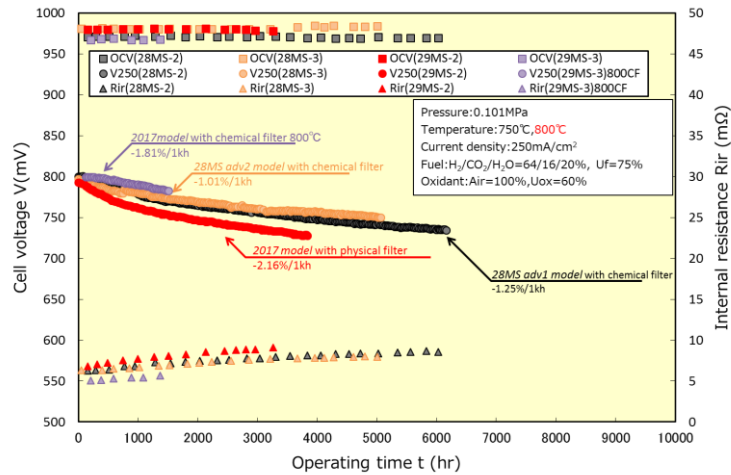


図3-7-1.36 一体共焼結形セルスタックの耐久性改良変遷

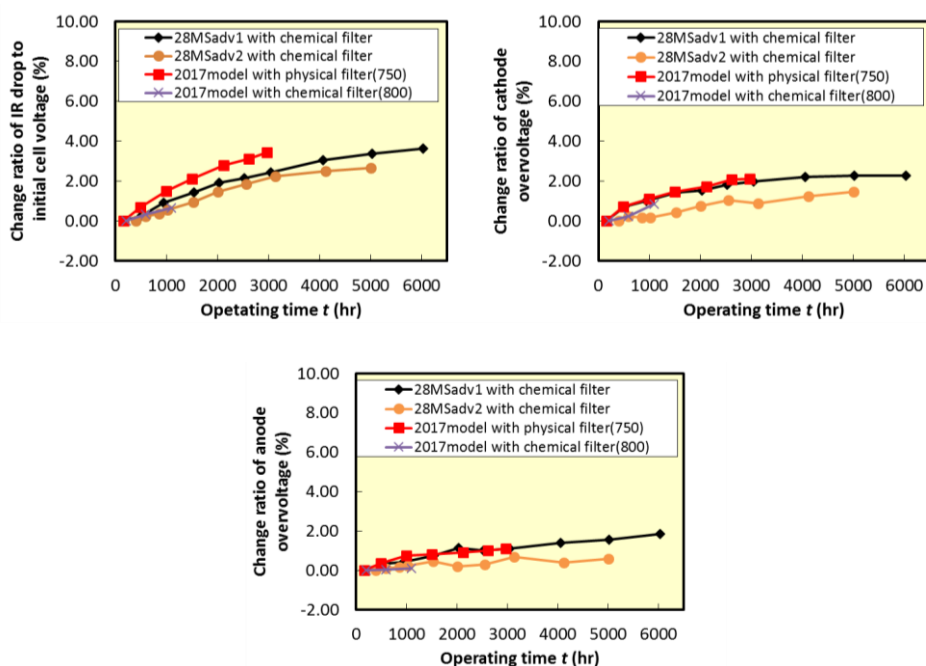


図3-7-1.37 一体共焼結形における各抵抗成分の改良変遷

業務用平板形セルスタック(デンソー)では、「2016年度仕様」5セルスタックを対象に、劣化主要因の導出を目的とした耐久性試験(5号機)と、物理フィルターでの耐久性試験(6号機)を実施した。図3-7-1.38に示す1号機では試運転用として1,000hrの連続発電試験を実施し、電圧変化率は $-0.52\%/1,000\text{hr}$ となり、同社の報告値とほぼ同値であることを確認した。また、図3-7-1.39に示す簡易性能解析から電圧低下の主要因はIR損の微増であった。一方、性能評価は実施せず、耐久のみで試験した3号機の3,000hrまでの電圧変化率は $-0.95\%/1,000\text{hr}$ 、同一仕様で性能評価を実施した4号の機電圧変化率は $-1.02\%/1,000\text{hr}$ となり、性能評価の有無で差異が生じることも明らかになった。図3-7-1.40に示す4号機の抵抗分離評価の結果から、本セルスタックでは燃料極過電圧の増大がその主要因であったため、デンソー社内でその原因究明を実施した。その結果、燃料極過電圧が増大した要因についてはセルスタック製造時に燃料極側に不具合があったことが確認された。このため、社内での製造見直しを行い、5号機以降では対策済み仕様へと改良されている。

性能評価の有無により電圧変化率に差異が見られる現象については、複数のセルスタックにおいて確認されており、いずれもデータを取得した直後に数mVの電圧低下が発生する。このため、2号機ではその要因把握を目的に負荷サイクル試験を追加で実施した。その結果、図3-7-1.41に示すように急激な負荷変化を繰り返すことでセルスタック内部において温度分布に変化が生じているものと考えられ、機械的な変形を伴ってIR損が微増するものと推察された。従って以降の試験では、性能評価データ取得時のIR損やOCV等の測定項目を減らすことで、極力耐久性評価に影響を与えない耐久試験法へと見直しを行った。

2017年度は、上述の燃料極製造時の不具合を排除した劣化主要因の導出を目的とした耐久性試験(5号機)と、物理フィルターでの耐久性試験(6号機)を実施した。図3-7-1.42で示した化学吸着フィルターを導入した3号機の電圧変化率は、 $-0.95\%/1,000\text{hr}$ (性能評価無)であったのに対し、5号機では $-1.51\%/1,000\text{hr}$ (性能評価有)と大きな差異が生じた。5号機では試験期間中のサーマルサイクルや構内停電の影響を受け、一部のセルにおいて大きな電圧低下を示したためである。抵抗分離解析結果から、図3-7-1.43に示す5号機では5号機では空気極過電圧の増大が劣化主要因であることが明らかになった。

一方、図3-7-1.44に示す物理フィルターのみで実施した6号機の電圧変化率は、 $-1.27\%/1,000\text{hr}$ (3,000時間)となり、化学吸着フィルターを導入して実施した4,5号機よりも大きな電圧低下を示した。しかしながら、6号機の電圧低下主要因は、燃料

極過電圧の増大であることが判明し、セル毎に劣化主要因が異なる結果を得た。デンソー社内の調査により、サーマルサイクルや輸送時の機械的な振動により、微小ガスクロスリークが発生することが明らかになっている。このため、今回5号機の試験ではサーマルサイクルにより一部セルにクロスリークが発生し、劣化部位に変化が生じている可能性が挙げられた。今回の結果から、IR損は微増傾向であり、劣化主要因ではないと考えられるが、「2016年度仕様」の劣化主要因を特定するには至らなかった。

以上のことから、「2016年度仕様」では、クロスリークの発生状況により劣化部位が変化すると推察されたため、より再現性のある性能評価を実施するためには、内部クロスリーク抑制対策を施すことが必要であり、早急に解決すべき課題である。

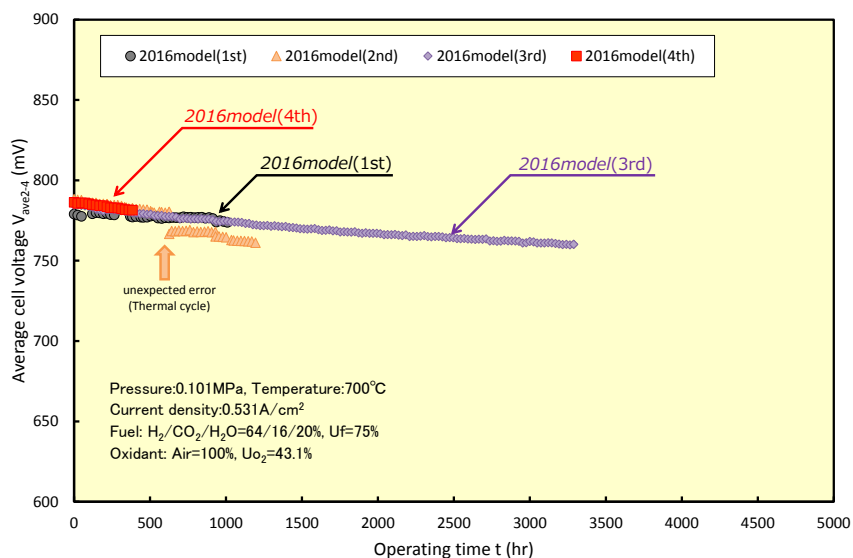


図 3-7-1.38 業務用平板形セルスタック(1-4号機)の耐久性試験結果

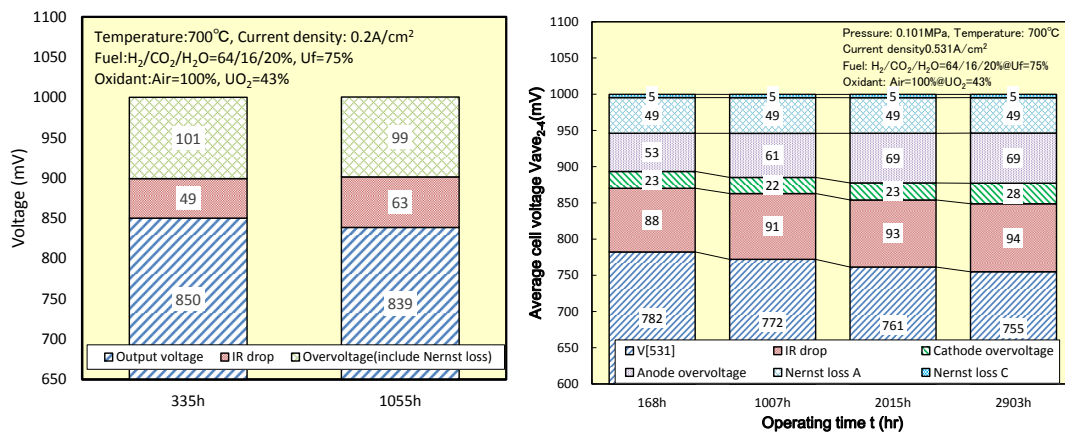


図 3-7-1.39 1号機における簡易性の解析結果

図 3-7-1.40

4号機における性能解析結果

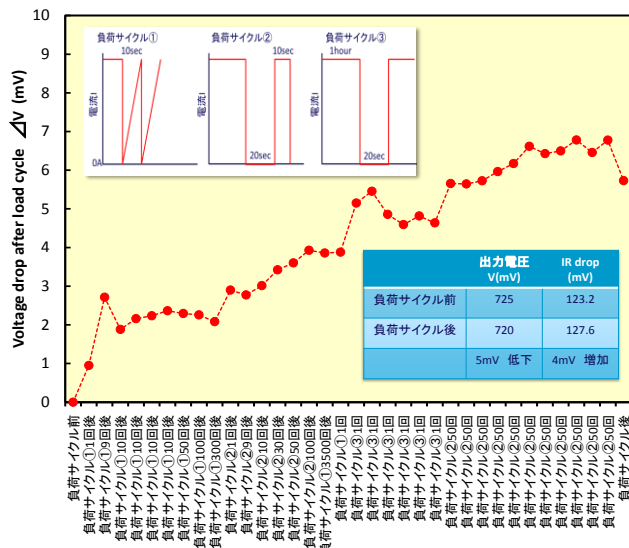


図 3-7-1.41 負荷サイクル時の電圧低下(2号機)

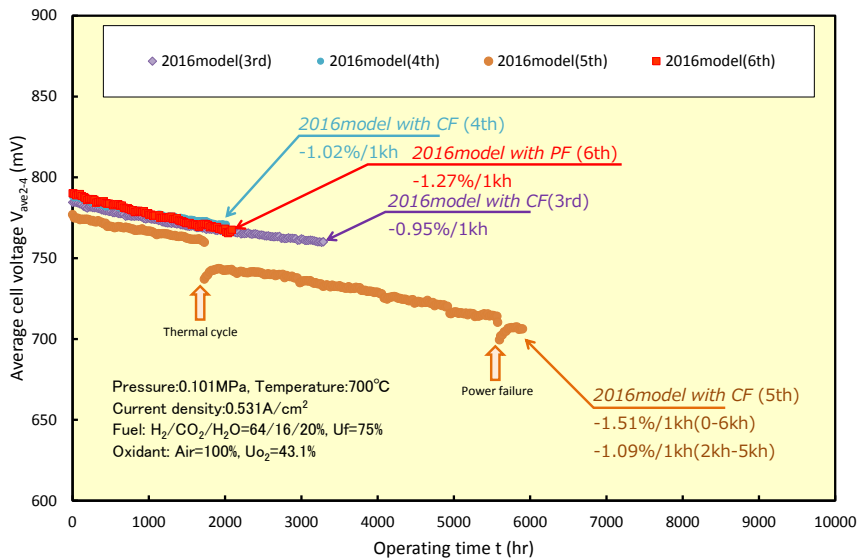


図 3-7-1.42 業務用平板形セルスタック(3~6号機)の耐久性試験結果

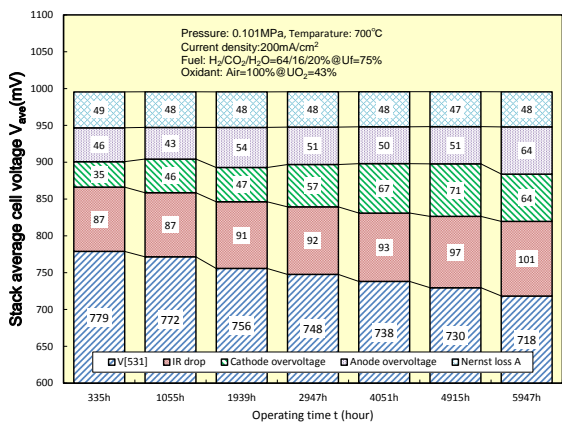


図 3-7-1.43 5号機における性能解析結果

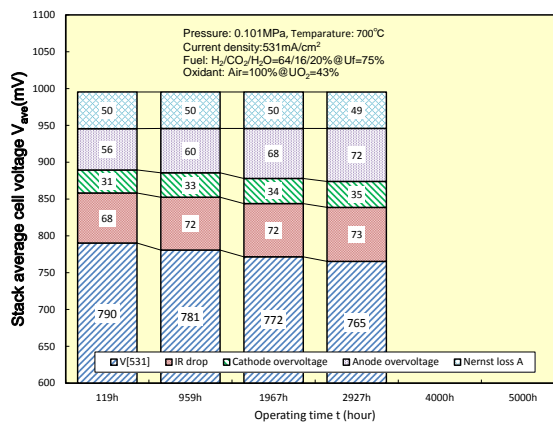


図 3-7-1.44 6号機における性能解析結果

v) まとめ

v)-1) 電中研試験サイトにおける硫黄濃度測定について

無機硫黄化合物(水溶性)を対象としたイオンクロマトグラフを用いる方法、紫外線蛍光法によるSO₂計を用いる方法、有機硫黄化合物としてジメチルスルフィド(非水溶性)を対象としたガスクロマトグラフを用いる方法にて測定した結果、電中研試験サイトにおける大気中のSO₂濃度は平均1ppb程度であるのに対し、物理フィルター後においては0.5ppb程度であり、化学吸着フィルター後には検出限界以下まで硫黄成分は捕集されていることを明らかにした。このうち、空気中の硫黄成分は物理フィルターで捕集されるのではなく、圧縮機中のドレン水に溶存し、ドレンとして排出されるためであると推察された。さらに有機硫黄成分であるジメチルスルフィドは物理フィルターをほぼ全量が通過していることも明らかになった。プロジェクト最終年度には、年間を通じた電中研サイトにおける硫黄濃度を常時測定し、大気中や供給空気中のSO₂濃度を明らかにでき、不純物としての硫黄がSOFCの耐久性に与える影響評価のための基礎データを蓄積することができた。

v)-2) SOFC性能評価手法の確立について

本プロジェクトに参画したメーカー7社のSOFCについて、種々初期の性能評価データ(燃料利用率特性、酸素利用率特性、水素分圧依存性、水蒸気分圧依存性、酸素分圧依存性、温度依存性)を取得し、電流-電圧特性の直線を評価した。その結果、電流-電圧特性は動作温度や仕様の違い(構成部材の材質等)に関わらず、天然ガス改質ガス相当のガス条件ではいずれも直線近似できることから、各過電圧を抵抗近似できることや、構成材料、中間層の多孔度、ガス流路の違いにより燃料極や空気極のガス分圧依存性係数に違いが現れることが分かった。この結果から各社毎に異なるガス分圧依存性係数を用いれば、各SOFCの出力電圧を精度良く予測でき、各過電圧分離が可能であることを明らかにした。最終的に仕様や形状の異なるSOFCにおいても電圧低下要因である空気極過電圧、燃料極過電圧、電解質等のオーム損をそれぞれ分離評価する技術を確立した。

v)-3) 各社SOFCの9万時間への達成度について

本プロジェクト5ヵ年の中で、最長3万時間に及ぶ耐久試験を電中研試験サイトで実施し、開発したSOFC性能評価手法を適用することにより、表3-7-1.5に示す通り、メーカー毎に異なる劣化要因を定量的に抽出することができた。抽出した7社SOFCの劣化要因の多くは空気極過電圧やIR損の増大であること、空気極過電圧増大はクロム被毒や硫黄被毒であることを見出すことができた。

第1グループ：

高温円筒横縞形では、最長3万時間の長期耐久データを取得した結果、新たな劣化要因は見られず、9万時間耐久を見通すことのできるデータを蓄積できた。
筒状平板形では最新仕様において、化学フィルター導入により従来仕様と同等の耐久性を有することを示すことが分かった。

第2グループ：

小型円筒形では、「低コスト化仕様」において、発電初期の空気極過電圧の増大を抑制できること、化学吸着フィルターの導入効果があることを検証した。

第3グループ：

平板形では、硫黄被毒の影響はほとんどないこと明らかにでき、「2014年改2仕様」では発電初期の電圧低下を克服できることを検証した。
筒状横縞形では、空気極の改良と化学吸着フィルター導入により硫黄被毒を克服できること、IR損増大が劣化主要因であることを明確化できた。
一体共焼結形では、種々の改良により耐久性は飛躍的に向上したが、早急に克服すべき課題としてIR損増大抑制が必要であることを明確化した。
業務用平板形では、「2016年度仕様」において、クロスリークの発生状況により劣化部位が変化していることが推定されたため、内部クロスリーク抑制対策が取り組むべき課題であることを明確にした。

表 3-7-1.5 各社 SOFC の電圧変化率とその内訳

2018年2月現在

	第1グループ		第2グループ	第3グループ			
	円筒横断形 (MHPS)	筒状平板形 (京セラ)	小型円筒形 (TOYO)	平板形 (日本特殊陶業)	筒状横断形 (日本ガイシ)	一体焼結形 (村田製作所)	薬物用平板形 (デンソー)
運転温度	900℃	750℃	700℃	700℃	750℃	750℃	700℃
電流密度	※1 0.15A/cm ²	0.30A/cm ²	0.21A/cm ²	※3 0.52A/cm ²	0.20A/cm ²	0.25A/cm ²	0.53A/cm ²
平均セル電圧 変化率	-0.10	-0.33	-0.36	-0.33	-0.29	-1.01	-1.09
空気量(%)	-0.04	-0.22	-0.11	-0.13	-0.10	-0.30	-1.00
IR損(%)	4-13mV	15-41mV	38-45mV	※4 22-40mV	25-39mV	39-50mV	35-71mV
	-0.06	-0.12	-0.18	-0.09	-0.19	-0.60	-0.23
燃料量(%)	46-60mV	79-91mV	122-131mV	※4 41-53mV	115-143mV	82-103mV	87-101mV
	0.00	0.02	-0.07	-0.11	0.01	-0.10	0.15
備考	11-15mV	6-10mV	27-32mV	※4 13-25mV	8-11mV	28-33mV	43-51mV
	Type VI without Cr	2016model	2016 model	2014model adv1	2015model	2016model	2016model ※5
空気フィルター	物理フィルター	化学フィルター	化学フィルター	化学フィルター	化学フィルター	化学フィルター	化学フィルター
試験時間	30,000hr	14,000hr	6,000hr	14,000hr	16,000hr	5,000hr	2,000-5,000hr

緑字 9万時間レベル

黒字 4万時間レベル

赤字 改良課題

※1 当所で耐久試験を開始したType 1からのデータと比較検討するため、本電流密度で実施

※3 定格連続条件

※4 性能解析(抵抗分離)は0.25A/cm²時の値。電圧変化率は定格時の値

※5 性能解析を実施したこと起因する電圧低下分を含む。サマライウムによる一部セル電圧低下含む

b. 家庭用セル・スタックのサイクル特性（東京ガスとの共同実施）

i) 研究開発の概要

SOFCシステムを家庭用用途として使用する場合には、多数の起動・停止を伴う運転が想定されるため、セルスタックの熱サイクル耐性に着目した。特に、長期間の運転による劣化要因を含むセルスタックについて、熱サイクルが与える影響が十分に明らかになっておらず、また評価に時間を要することが大きな課題である。本取り組みは、各社セルスタックの劣化前および劣化後のサイクル耐性を明らかにすると共に、サイクル耐性を迅速に見通すための評価技術を開発することを目的として実施した。

熱サイクルに伴う劣化の評価を図3-7-1.45の「強制劣化を用いたサイクル耐性の迅速評価法のスキーム」に示す。

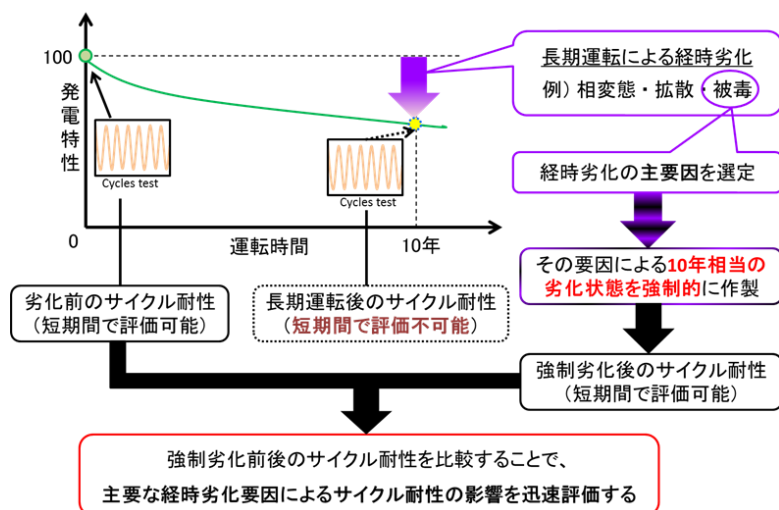


図3-7-1.45 強制劣化を用いたサイクル耐性の迅速評価スキーム

図3-7-1.45に示す様に、まず、各社セルスタックの初期状態の熱サイクル試験を実施し初期状態における熱サイクル耐性を把握する。次に、長期運転後の熱サイクル耐性を模擬するために、劣化の主要因を抽出し、強制劣化試験により長期運転済み状態を模擬したセルスタックを作製する。この長期運転済み状態を模擬したセルスタックに対し、熱サイクル試験を実施し、初期状態のサイクル耐性と比較・検討することで、長期劣化後のセルスタック熱サイクル耐性を評価する。これら一連の評価を通じて熱サイクルが9万時間の期間で劣化に与える影響を見通すための評価技術（サイクル耐久）を開発する。

図3-7-1.46に、熱サイクル試験条件を示す。

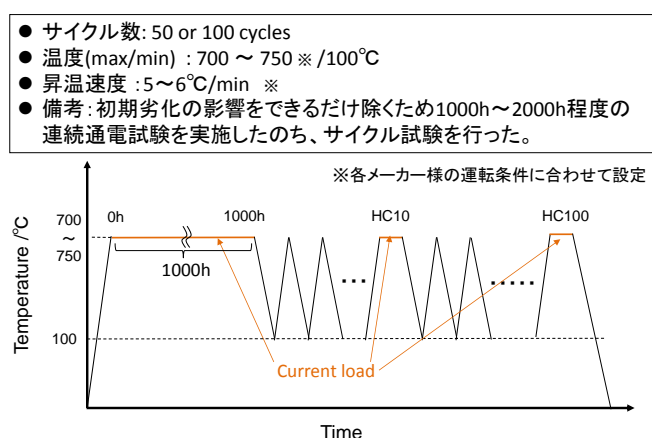


図3-7-1.46 セルスタック熱サイクル試験条件

図3-7-1.46に示すとおり、熱サイクル試験においては初期劣化の影響を除去するために、1,000~2,000時間の連続通電試験を実施後に熱サイクル試験を実施した。熱サイ

クル試験は10回の熱サイクル毎に通電を行うことで性能を評価した。温度等の運転条件は各セル・スタックメーカー殿と協議の上設定した。

表3-7-1.6に、長期運転後のサンプルの分析結果から抽出・選定した各社セルスタックの劣化主要因および強制劣化方法を示す。

表3-7-1.6 各社スタック劣化主要因と強制劣化方法

スタック	小型円筒形 (TOTO)	平板形 (NTK)	筒状横縞形 (NGK)	一体焼結形 (村田製作所)
経時劣化要因	カソードのCr被毒	コート合金ICの熱酸化	カソードのS被毒	カソードのS被毒
選定理由 (他は対策予定か優先度低)	Cr被毒はコート対策後も長期運転で残存	コート合金ICの酸化は長期運転で残存	外部由来のS被毒は長期運転で残存	同左
強制劣化方法	SUS管でセルを覆いCr供給	コート合金ICの高温酸化	SO ₂ 含有空気を供給	同左

以降、初期のサイクル試験結果、強制劣化、劣化後のサイクル試験結果を順に示す。

ii) 評価結果

ii)-1) 初期サイクル試験結果

図3-7-1.47 (a)～(d)に各セルスタックの初期のサイクル試験結果を示す。

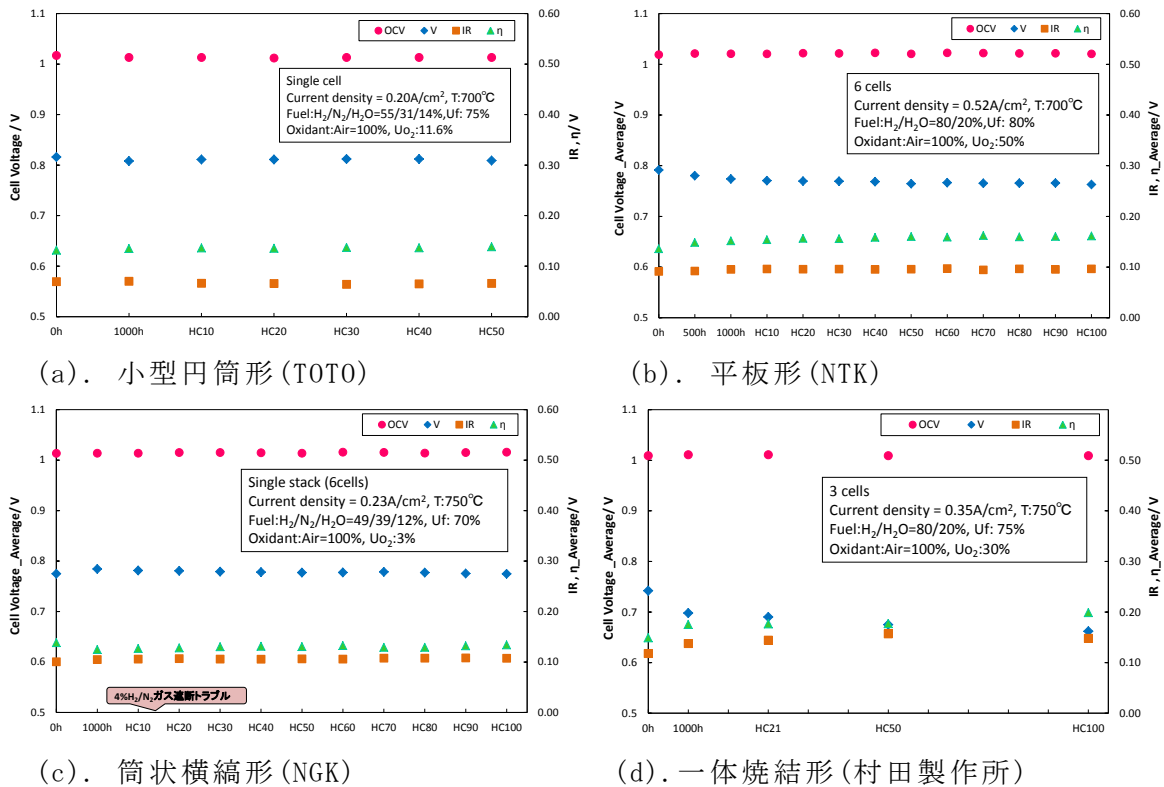


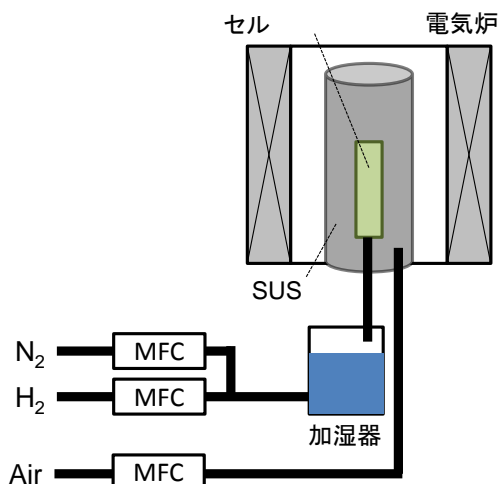
図3-7-1.47 各セル・スタックの初期サイクル試験結果

上記結果より、(a)小型円筒形(TOTO)では、0～1,000時間における通電時の劣化率は0.98%/kh、50回のサイクル時の劣化率は-0.002%/回であった。(b)平板形(NTK)では、0～1,000時間における通電時の劣化率は2.23%/kh、100回のサイクル時の劣化率は0.0142%/回であった。(c)筒状横縞形(NGK)では、0～1,000時間における通電時の劣化率は-1.20%/kh、100回のサイクル時の劣化率は0.0096%/回であった。(d)一体焼結形(村田製作所)では、0～1,000時間における通電時の劣化率は5.93%/kh、100回のサイクル時の劣化率は0.052%/回であった。

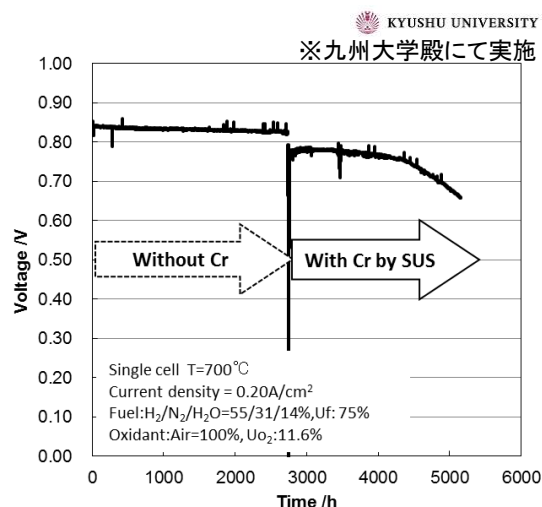
ii)-2) 強制劣化試験

ii)-2)-1 小型円筒形 (TOT0)

図3-7-1.48 (a)に強制劣化試験方法及び(b)に強制劣化手法を実施した際の小型円筒形セルの電圧推移を示す。



(a). 強制劣化試験方法



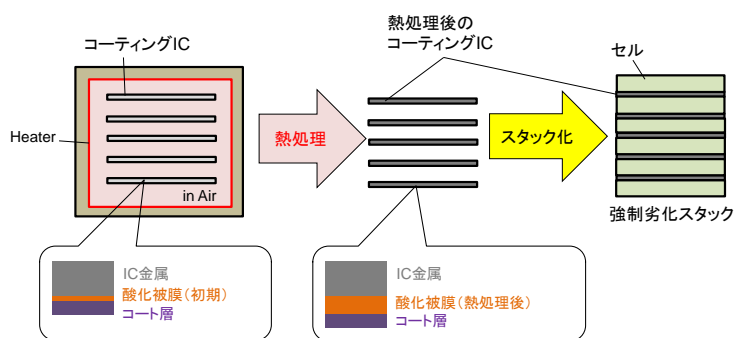
(b). 強制劣化時の電圧推移

図3-7-1.48 小型円筒形セルの強制劣化手法及び強制劣化時の電圧推移

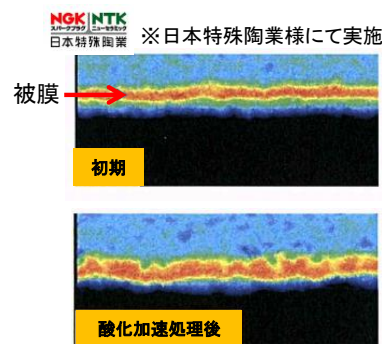
小型円筒形については、経時劣化の主要因としてCrを選定した。図3-7-1.48 (a)に示すように、Cr供給源としてSUS304パイプを用いて、SUS304パイプ中にセルを設置することで強制的にCrが小型円筒セルに供給される環境を模擬した。アノード側のガス組成を $H_2 : N_2 : H_2O = 55 : 31 : 14$ とし、カソード側に空気をそれぞれ供給し、雰囲気温度 $700^\circ C$ 、電流密度 $0.2 A/cm^2$ の環境で保持させた結果、(b)に示す通り、90,000時間相当の劣化をおよそ1,500時間程度の短期間で模擬することに成功した。

ii)-2)-2 平板形 (NTK)

図3-7-1.49 (a)に強制劣化試験方法及び(b)に強制劣化後の合金ICの断面分析結果を示す。



(a). 強制劣化試験方法



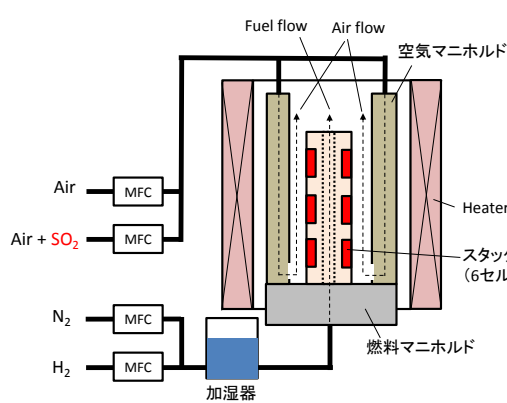
(b). 強制劣化後断面分析結果

図3-7-1.49 平板形セルスタックの強制劣化手法及び劣化後の断面分析結果

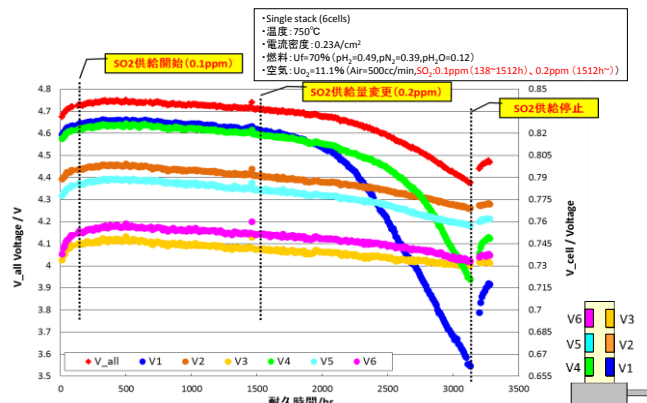
平板形については、経時劣化の主要因として合金ICの酸化を選定した。図3-7-1.49 (a)に示すように、コーティング後の合金ICを空気中にて熱処理をすることで、強制的に合金IC酸化皮膜の成長を促進させた。図(b)に示すとおり、確かに酸化皮膜が増大していることを確認し、熱処理により酸化皮膜を増大させた合金ICを用いてスタックを構成することで、劣化を模擬したセルスタックを作製した。

ii)-2)-3 筒状横縞形 (NGK)

図3-7-1.50 (a)に強制劣化試験方法及び(b)に強制劣化手法を実施した際の筒状横縞形セルスタックの電圧推移を示す。



(a). 強制劣化試験方法



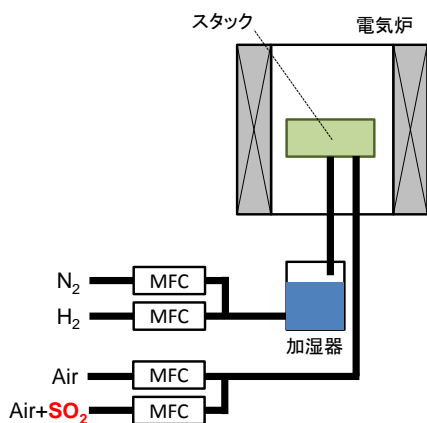
(b). 強制劣化時の電圧推移

図3-7-1.50 筒状横縞形セルスタックの強制劣化手法及び強制劣化時の電圧推移

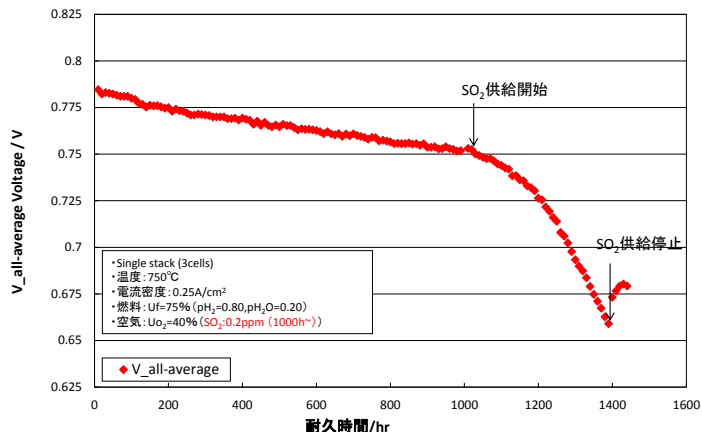
筒状横縞形については、経時劣化の主要因としてカソードのS被毒を選定した。図3-7-1.50 (a)に示す通り、SO₂を含有するガスボンベを準備し、カソード側に0.1~0.2ppmのSO₂濃度の空気を供給することで、強制的にSが横縞形セルスタックの空気極側に供給される環境を模擬した。アノード側のガス組成はH₂:N₂:H₂O=49:39:12とし、雰囲気温度750°C、電流密度0.23 A/cm²の環境で保持させた結果、(b)に示す通り、90,000時間相当の劣化をおよそ1,400時間程度の短期間で模擬することに成功した。

ii)-2)-4 一体焼結形(村田製作所)

図3-7-1.51 (a)に強制劣化試験方法及び(b)に強制劣化手法を実施した際の一体焼結形セルスタックの電圧推移を示す。



(a). 強制劣化試験方法



(b). 強制劣化時の電圧推移

図3-7-1.51 一体焼結形セルスタックの強制劣化手法及び強制劣化時の電圧推移

一体焼結形については、経時劣化の主要因としてカソードのS被毒を選定した。図※7 (a)に示す通り、SO₂を含有するガスボンベを準備し、カソード側に0.2ppmのSO₂濃度の空気を供給することで、強制的にSが一体焼結形セルスタックの空気極側に供給される環境を模擬した。アノード側のガス組成はH₂:H₂O=80:20とし、雰囲気温度750°C、電流密度0.3 A/cm²の環境で保持させた結果、(b)に示す通り、90,000時間相当の劣化をおよそ400時間程度の短期間で模擬することに成功した。

ii)-3) 劣化後のサイクル試験結果

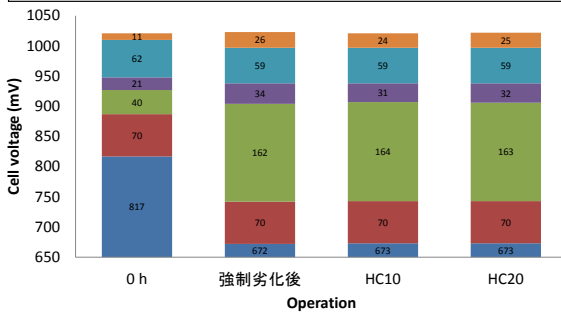
表3-7-1.7に劣化前・後のサイクル試験による劣化率、また図3-7-1.52 (a)~(d)に各セルスタックの劣化後のサイクル試験結果(性能分離結果:電中研殿実施)を示す。

表3-7-1.7 劣化前・後のサイクル試験による劣化率

スタック メーカー	小型円筒形 TOTO	平板形 NTK	筒状横縞形 NGK	一体焼結形 村田製作所
--------------	---------------	------------	--------------	----------------

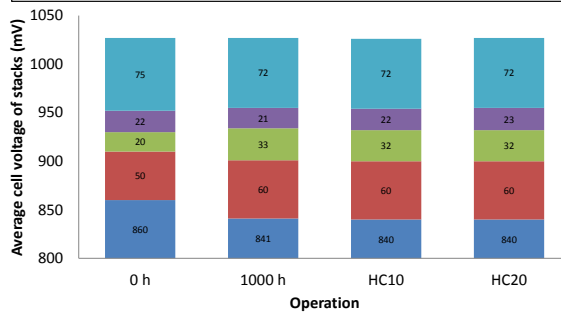
仕様	13仕様	2012仕様	2014年仕様	27MS仕様
初期HC劣化率 (HC回数)	-0.002%/回 (50回)	0.014%/回 (100回)	0.0096%/回 (100回)	0.052%/回 (100回)
強制劣化後HC 劣化率 (HC回数)	-0.007%/回 (20回)	0.022%/回 (20回)	0.028%/回 (20回)	0.033%/回 (20回)

Single cell, Current density = 0.20A/cm², T:700°C, Fuel:H₂/N₂/H₂O=64/16/20%,
Uf: 75%, Oxidant:Air=100%, Uo₂:12.5%



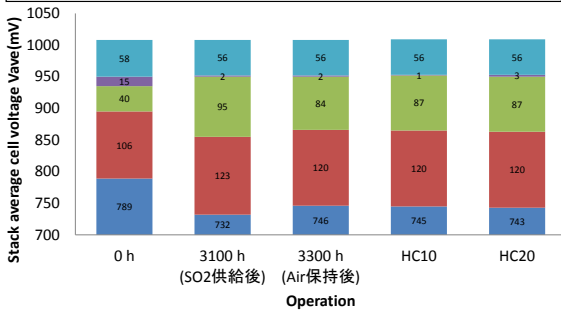
(a). 小型円筒形 (TOTO)

6 cells, Current density = 0.25 A/cm², T:680°C, Fuel:H₂/N₂/H₂O=64/16/20%,
Uf: 80%, Oxidant:Air=100%, Uo₂:50%



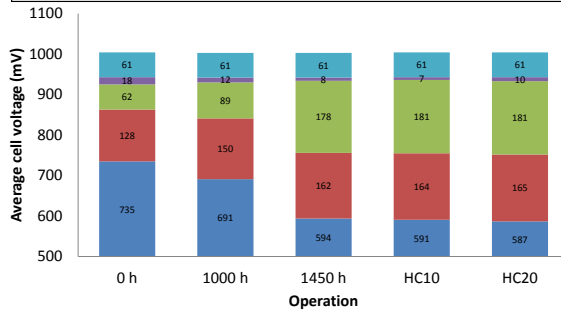
(b). 平板形 (NTK)

Single stack(6 cells), Current density = 0.23A/cm², T:750°C,
Fuel:H₂/N₂/H₂O=64/16/20%, Uf: 70%, Oxidant:Air=100%, Uo₂:3%



(c). 筒状横縞形 (NGK)

3 cells, Current density = 0.35A/cm², T:750°C, Fuel:H₂/N₂/H₂O=64/16/20%,
Uf: 75%, Oxidant:Air=100%, Uo₂:40%



(d). 一体焼結形 (村田製作所)

図3-7-1.52 各セルスタックの劣化後のサイクル試験結果

表3-7-1.7及び図3-7-1.52より、劣化前後に顕著な劣化率の変化が無いこと及び強制劣化後の熱サイクル試験によって、劣化の内訳に大きな変化が無いことを確認した。また、強制劣化の後熱サイクル試験を実施したサンプルを各スタックメーカーにおいて分析した結果、特異的な破損が無いことを確認した。

以上の結果より、今回選定した劣化要因が熱サイクルに与える影響は、各セルスタックいずれにおいても限定的であることを確認した。

iii) まとめ

本取組では、家庭用 SOFC システムにおけるセルスタックの熱サイクル耐性に着目し、サイクル耐性を迅速に見通すための評価技術を開発することを目的として検討を実施した。長期運転後のサイクル耐性を短期間で評価する方法のスキームを考案し、スキームに基づいて各社スタックの継時劣化主要因をそれぞれ選定し、長期劣化を模擬する手法（強制劣化手法）を考案した。考案した強制劣化手法を用いて長期劣化を短期間で模擬することに成功した。また、強制劣化前後のサイクル耐性を評価し、いずれのスタックにおいても強制劣化によるサイクル耐性への影響が限定的であることを確認した。以上の結果から、熱サイクル耐性の迅速評価手法を確立した。

② シミュレーション技術の開発（京都大学、東京大学、東北大学、産業技術総合研究所）

表 3-7-2.1 シミュレーション技術の開発 (2013-2017 年度)

項目名称	最終目標 (2017 年度末)	成果	達成度	今後の課題
シミュレーション技術の開発	耐久試験結果から抽出される劣化要因をシミュレーションし、耐久性評価手法としての妥当性の検証などをおこない、9 万時間耐久性を確保するためのシミュレーション技術を構築する。	<ul style="list-style-type: none"> ・FIB-SEM で得られる微構造を反映する数値解析技術を電極・セル・スタックそれぞれのスケールで開発した。局所とマクロの劣化進展の相違を、シミュレーションで予測する技術を開発した。 ・FIB-SEM3 次元再構築手法とフェーズフィールド法を用いた燃料電極中の Ni 焼結挙動、局所電流密度変化などをシミュレーションし、劣化挙動を解析することに成功した。空気極/中間層/電解質界面での絶縁層生成や被毒現象に対して、その現象を再現し、長期耐久性をシミュレーションする技術を開発した。 ・セル構成材料内部の非定常酸素ポテンシャル分布から、化学歪を考慮して応力解析する方法に関して汎用ソフトへの展開を考慮したシミュレーション技術を開発した。 ・YSZ 電解質内の正方晶化に関する劣化進展モデルをシミュレーションし、長期耐久する技術を開発した。 	○	更なる長期耐久性や過渡現象評価に対応する高度な分析・解析技術の開発

a. 京都大学

多孔質電極の性能およびその変化はその多孔質微構造と密接な関係がある。FIB-SEMを活用して得られたSOFC多孔質電極の3次元微構造データを用いた電極過電圧数値解析は現象の解明・予測に有効であると考えられる。詳細かつ信頼性の高い検討を行うためには空間解像度を高くすることが望まれるが、いっぽうで電極を代表する微構造データを得るためには検査体積を大きく取ることも必要である。高解像度と大検査体積の追及は計算量の増大につながるため、FIB-SEMデータをリサンプルし、空間解像度がオリジナルデータよりも相対的に低い計算格子を使用することが現状では多い。前プロジェクトでは、リサンプルを行う場合でも計算精度が保たれること、あるいは計算精度を損なわない範囲で計算負荷を低減する目的で、設定した計算格子より小さいスケールの多孔質微構造をモデル化して組み込むSGS (Sub-grid-scale) モデルを提案しその有効性を示した。

本プロジェクトではまずSGSモデルの精度向上をめざした検討を行った。図3-7-2.1は三値化を施したNi-YSZ多孔質のSEM画像と、それを3つの異なる空間スケール（計算格子のスケール）でリサンプルした画像である。平均粒子径の計算格子スケールに対する比 (L_l/L_{grid}) が小さいほど、微構造の情報がより多く失われることが明らかである。さまざまなスケール比でリサンプルした

微構造データを作製し、それらに各相の有効拡散係数を見積もる種々のSGSモデルを適用した結果を、オリジナル微構造データから得られる値と比較することで、各種SGSモデルの有効性検討した。その結果、有効拡散係数のモデルとしてしばしば使用されるPower law型の表現において、通常は一定値として扱われるBruggeman factorをスケール比、 L_i/L_{grid} 、の関数として表す方法（SGS4）が良好な結果を示すことがわかった。

図I-3-2. 2はこれまでに報告したSGS1、SGS2と新たに開発したSGS4の結果の比較である。縦軸はそれぞれのSGSモデルを用いて評価した屈曲度ファクターである。ただしオリジナルのFIB-SEMデータに対するランダム・ウォークに基づく拡散シミュレーションにより求めた屈曲度ファクターの値で規格化している。値が1に近いほどSGSモデルの精度が高いことを表す。いずれのSGSモデルでもスケール比が大きければ十分な精度が期待できるが、スケール比が小さくなるにつれて誤差が大きくなる。十分な精度を得るために、前プロジェクトで開発したSGS1、SGS2ではスケール比20程度が必要であるが、新たに開発したSGS4では10程度でよいことがわかる。この違いが計算時間に与える影響を図3-7-2. 3に示す。スケール比20と10を比較すると計算時間がおおよそ10分の1になっており、大幅な計算負荷の低減を達成できた。

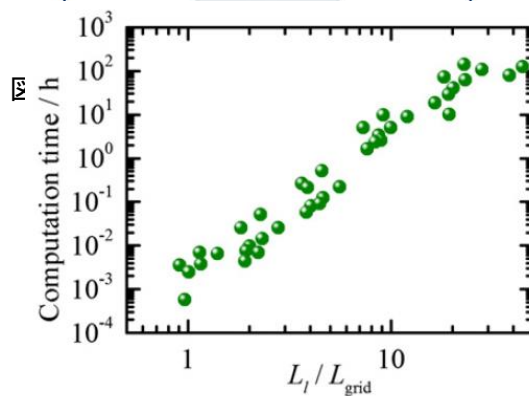
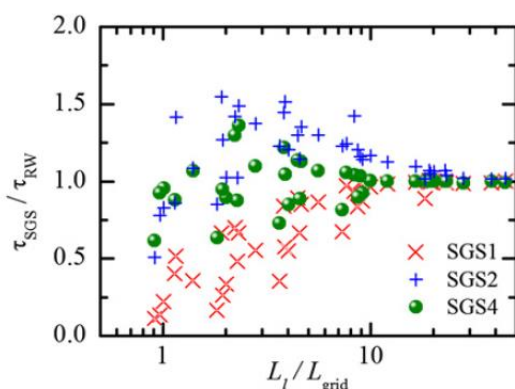
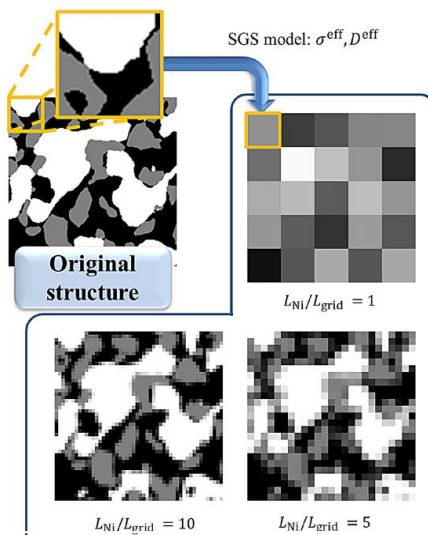


図 3-7-2.2 屈曲度ファクター評価へのスケール比の影響 図 3-7-2.3 計算時間とスケール比の関係

また微構造データに基づく電極過電圧解析のLSM空気極への適用へ向けて、焼成温度を変えることで微構造が異なるように自作したLSM電極による発電実験と、その電極性能の実験的評価、さらにFIB-SEMを用いて実験後の電極3次元微構造データの取得と定量化を行った。定量化した微構造パラメータを1次元電極解析に適用し分極特性を実験結果と比較したところ、1次元解析であっても定性的に実験を再現できることを確認した。

FIB-SEMで取得したNi-YSZ燃料極とLSM空気極の微構造の間にYSZ電解質層を挟み、計算空間内に図3-7-2. 4で示すような仮想的なセルを構築した。両電極と電解質の三層を含むセル解析プログラムを開発した。電解質と燃料極中のYSZ、および空気極のLSMは混合電導体として扱っている。空気極の微構造が異なる場合の影響を検討した例を示す。燃料極と電解質の構造は一定として、FIB-SEMで得られた実LSM電極微構造を適用した(a)と、それを人工的に2.5倍拡大して適用した(b)の解析を行った。解析結果の一例として、電子およびイオンによる電流線を図I-3-2. 4に示す。LSMの構造が粗く三相界面も少ない(b)では電解質-空気極界面で電流が集中していることがわかる。このときの各層の過電圧を図I-3-2. 5に示す。電流集中により、(b)の場合に空気極過電圧が大きくなることがわかる。また(b)の場合の電解質におけるオーム損失は、(a)の場合の2倍を超えている。図I-3-2. 4には電解質中のイオン電流線が描かれているが、(b)の場合には(a)に比して明らかにイオンの

移動パスが長くなっている。電極微楮の粗大化は三相界面の減少につながり性能の低下に直結するのみならず、電解質中のイオン電流の集中を招き、IR損失の増大ももたらす可能性が示された。

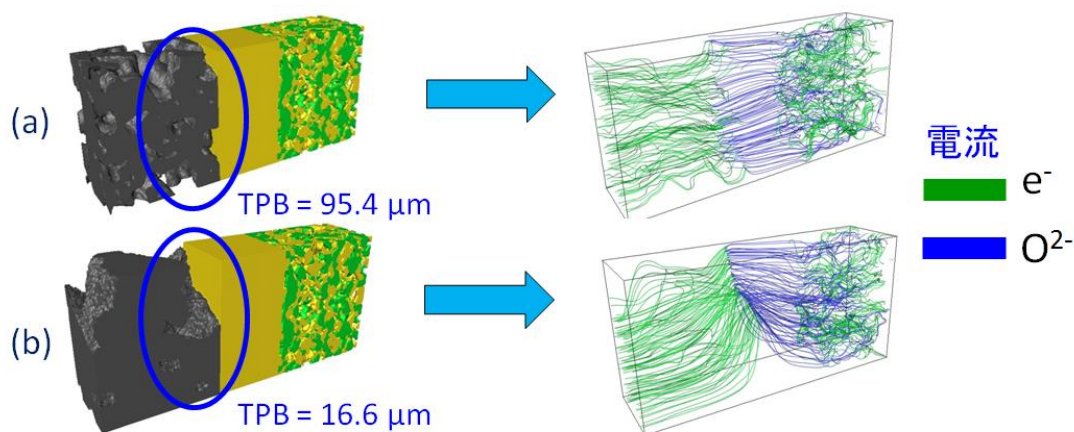


図3-7-2.4 両電極微構造を考慮したNi-YSZ燃料極/YSZ電解質/LSM空気極セルの数値解析：
空気極微構造の違いの影響（燃料極と電解質は共通）
左：解析したセル構造，右：電子およびイオンによる電流線

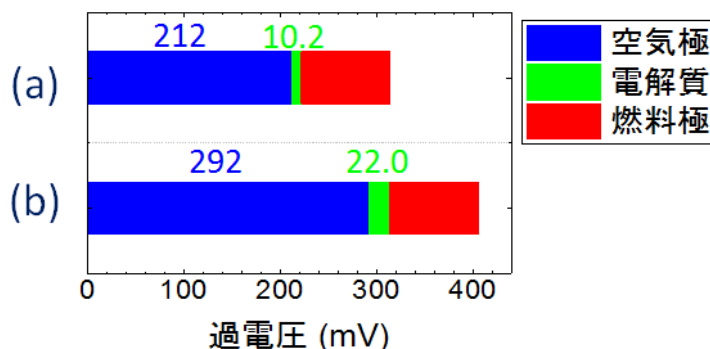
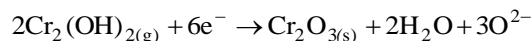


図3-7-2.5 図I-3-2.4に対応する過電圧の比較.

電極の局所劣化の進展を温度や電流密度等の局所情報と時間の関数としてモデル化し、上記の電極微構造に基づく単セル3次元解析に適用することで、劣化進展解析を行った。劣化現象としてはLSM-YSZ空気極におけるクロム被毒をみつかったA. Nakajo, et al., *J. Electrochem. Soc.* 158, B1102-B1118, (2011) のモデルを採用した。これは、気相中のCrO₂(OH)₂が次の電気化学反応によってCr₂O₃として三相界面に堆積し、酸素の電気化学反応を阻害するというものである。



単位三相界面あたりの電流密度 i_D が局所の活性化過電圧と温度に依存するとして

$$i_D = i_{0D} x_{\text{CrO}_2(\text{OH})_2}^{0.5} x_{\text{H}_2\text{O}}^{0.5} 2 \sinh\left(\frac{F\eta_{\text{act,cat}}}{2RT}\right)$$

とモデル化し、三相界面の活性の低下を有効三相界面密度の減少として記述する。図 I-3-2.6 に示す Ni-YSZ/YSZ/LSM-YSZ からなるセルモデルについて、空気極がクロムにより被毒する場合の数値予測を行った。解析結果の一例を図 I-3-2.7 に示す。時間経過とともに空気極における活性化過電圧とイオン伝導抵抗がともに上昇し、空気極の性能が低下していることがわかる。初期状態と 500 時間経過後の空気極内三相界面を図 I-3-2.8 に示す。クロム被毒に影響を受けていない活性な三相界面を青色で示し、劣化が進展するほど赤くなるように描いた。初期状態では空気極内の三相界面は当然ながらすべて活性である。500 時間後には一部が赤色に転じており、劣化の進展がうかがえる。特に空気極-電解質界面近傍の三相界面の劣化進展が早い。この領域は発電反応が活発で活性化過電圧が比較的高く、上記のクロム被毒の電気化学反応も進む。これにより有効な三相界面が減少するため活性化過電圧が増大する。またこれに伴い活発な発電領域が電極表面側へと移動するため、電極内の IR 損失も増大する。

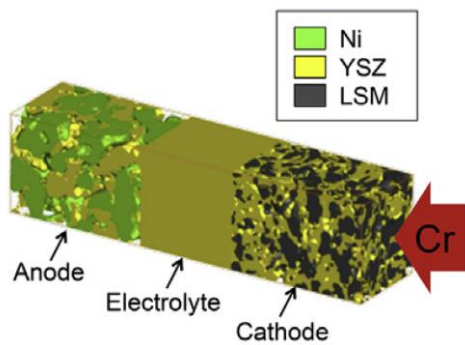


図 3-7-2.6 電極微構造に基づく単セルモデル

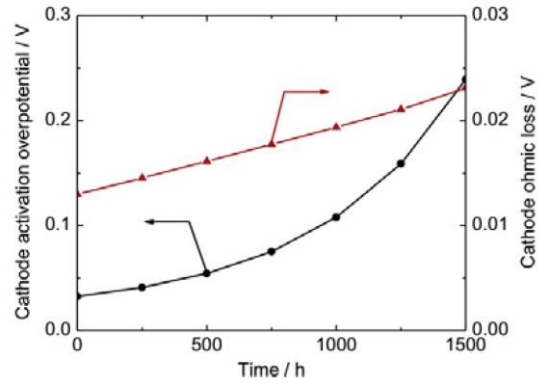


図 I-3-2.7 空気極クロム被毒時の損失増大

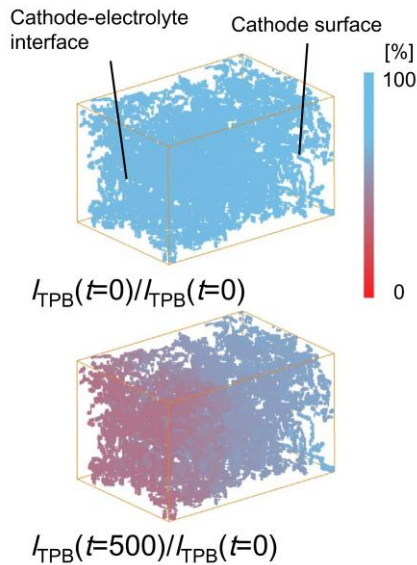


図 3-7-2.8 LSM-YSZ 電極内の TPB の劣化進展

電極微構造に基づく 3 次元解析は、電極内の詳細な解析が可能である一方で、計算領域がセル内の微小部分に限定されるため、実際のセルで重要と考えられる電流密度や温度の分布を考慮することが困難である。そこで電極を均質な多孔質とみなす 2 次元単セルの 2 次元 CFD 解析モデルを構築した。多孔質電極を特徴づける体積分率、各相屈曲度ファクター、三相界面密度などの微構造パラメータは、FIB-SEM を用いて定量化した実電極の値を適用する。熱流動解析と連成してセル内の電気化学ポテンシャル場を解くことで電子とイオンの輸送の計算を行った。セル内に温度や電流密度の分布が存在する系での酸素ポテンシャル分布の数値予測が可能となった。

Ni-YSZ/YSZ/LSM-YSZ を仮定した流れ方向長さ 80mm の単セルを対象として 2 次元解析を行った。LSM-YSZ 空気極には、上述のクロム被毒モデルを適用し、温度分布・電流密度分布を考量した劣化シミュレーションを実施した。図 3-7-2.9 は厚さ $50\mu\text{m}$ の LSM-YSZ 空気極部の、クロム被毒による局所劣化率の時間進展を示す例である。図の上側が電解質側、下側が空気流路側である。発電反応が活発で過電圧が大きい電極-電解質界面近傍から劣化が進行し、時間とともに劣化領域が徐々に電極表面側へと広がっていく様子がわかる。また温度分布に起因して、比較的低温な上流（左側）で劣化の進展が早いこともわかる。このように、電極微構造パラメータと関連付けた局所劣化モデルを適用することで、局所劣化現象がセルレベルでの性能低下に与える影響について数値予測を得ることが可能となった。

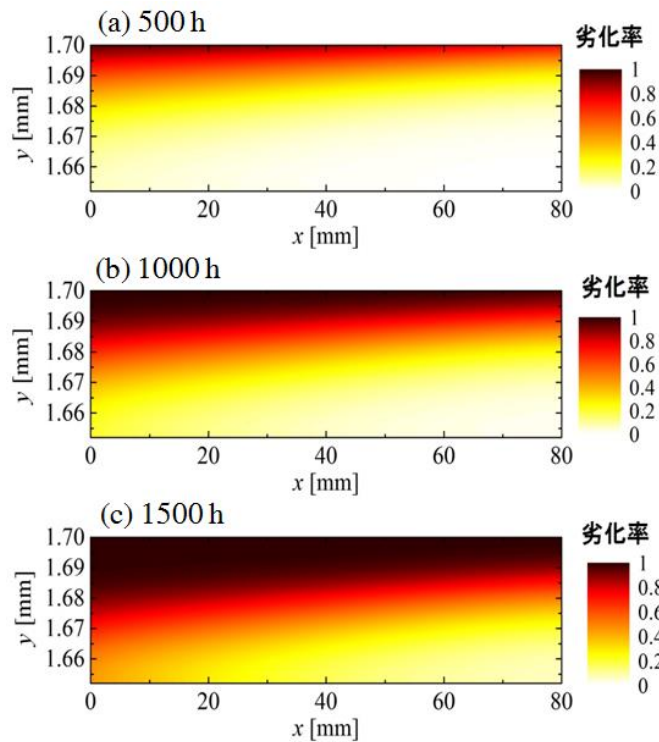


図3-7-2.9 LSM-YSZ空気極におけるクロム被毒進展の解析例

セルを多数連結したスタック内では、すべてのセルが均一な状態であることが理想ではあるが、そのような状態を達成しかつ保持することは一般的に困難である。そのため例えば非均一な温度分布に応じて、セルの劣化の進展も非均一である可能性は高い。電極を多孔質として扱う上記のような数値解析を多数のセルからなるスタック解析に使用することは、計算負荷が非常に高くなる。平板型 SOFC を想定し、ひとつの繰り返しユニットをセル厚さ方向に、セル（両電極と電解質を一体の固体とみなす）、両流路、セパレータなど 7 層に分割し、それぞれの 2 次元解析を生成項を通じて連成させる擬 3 次元数値解析モデルを構築した。セルを一体の固体として扱うことで計算負荷を低減しているが、その結果、FIB-SEM によって得られた電極微構造の情報を直接的に考慮することは困難となる。そこでこのようなマクロレベルの数値解析において、電極微構造の影響を反映する数値解析モデルを開発した。

従来のマクロレベルの数値解析では、電極見かけ電極面積当たりで評価した過電圧モデルを採用する手法が一般的である。計算負荷の増大を抑えつつ電極微構造情報をマクロレベルの数値解析に反映させることを目的に、電極内で厚み方向の現象を解析的にモデル化した。電極電解質界面から厚さ方向にとった軸を ξ とし、局所電荷移動電流密度次式で近似する。

$$i_{ct}(\xi) = \lambda I e^{-\lambda \xi}$$

λ は減衰率である。このとき活性化過電圧は

$$\eta_{act} = \int_0^L \eta_{act,local}(\xi) i_{ct}(\xi) d\xi / \int_0^L i_{ct}(\xi) d\xi$$

と表される。以下、燃料極を例にとる。Butler-Volmer 式を双曲正弦関数で近似すると

$$i_{ct,ano} = 2i_{0,ano} \sinh\left(\frac{\alpha F}{RT} \eta_{act,local}\right)$$

となる。交換電流密度は FIB-SEM 解析から得られる局所三相界面密度の実測値と、単位三相界面当たりの反応速度の実験式で評価する。以上より次式が得られる。

$$\eta_{act,ano} = \frac{RT}{\alpha F} \left(\sinh^{-1} \frac{\lambda I}{2i_{0,ano}} + \frac{2i_{0,ano}}{\lambda I} \left(1 - \sqrt{\left(\frac{\lambda I}{2i_{0,ano}}\right)^2 + 1} \right) \right)$$

また電極内のイオン伝導によるオーム損失は、局所電荷移動電流密度の厚さ方向分布を考慮して

$$\eta_{ohm} = \int_0^L \left\{ \int_0^\xi \frac{i_{io}}{\sigma_{io}^{eff}} d\xi' \right\} i(\xi) d\xi / \int_0^L i(\xi) d\xi = \frac{I}{2\lambda\sigma_{io}^{eff}}$$

と表される。ただし有効伝導率はFIB-SEM解析から得られる伝導相の体積分率と屈曲度ファクターを用いて決定する。電荷の移動は過電圧の総和が最小となるパスを選択するとすれば、減衰率は解析的に次式に定まる。

$$\lambda_{ano} = \frac{2i_{0,ano}}{I} \sqrt{\left(1 + \frac{\alpha FI^2}{4RT\sigma_{io}^{eff}i_{0,ano}}\right)^2 - 1}$$

図 3-7-2. 10 は燃料極支持型セル 6 枚によるショートスタック実験の結果と、それを模した数値解析結果の比較である。数値解析は現象の電極内厚さ方向分布を微構造データに基づき考慮する本提案モデル(model A)と、従来モデル(model B)の 2 モデルを用いて実施した。図より、提案モデルの採用により性能予測結果が改善していることがわかる。また、提案モデルは電極内の微構造パラメータの空間分布を反映することが可能である。局所三相界面密度の現象や活性の低下、あるいは有効伝導率の変化を定式化して組み込むことで、スタックレベルでの劣化シミュレーションへと繋がる。

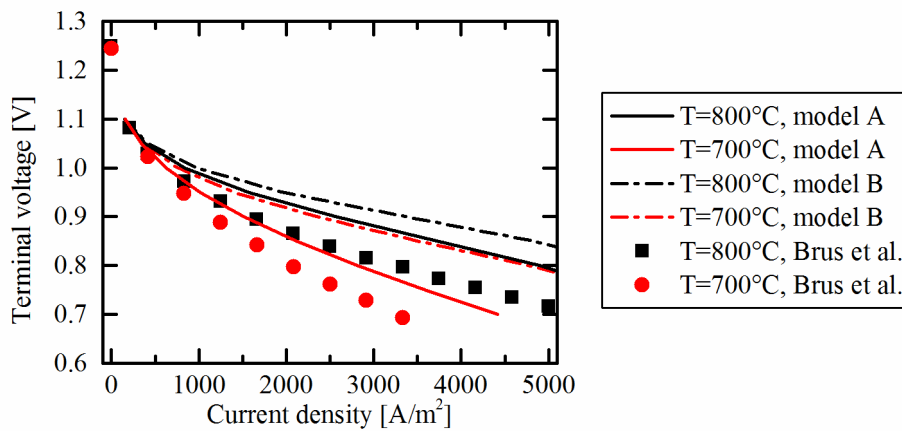


図 3-7-2. 10 提案モデル(model A)と従来モデル(model B)による性能予測結果の比較例

そこで LSM-YSZ 空気極のクロム被毒モデルを、擬 3 次元数値解析に適用する手法を開発した。採用した被毒モデルは上述の 3 次元解析や 2 次元 CFD 解析で採用したものと同一である。解析対象は Ni-YSZ/YSZ/LSM-YSZ のアノード支持型平板セルである。セルの寸法、電極微構造、作動条件等については、比較対象の 2 次元 CFD 解析と同一とした。セル内局所の温度、ガス組成、電流密度等が擬 3 次元数値解析の結果として得られる。さらに電極内厚さ方向の分布モデルを考慮することで、クロム被毒による局所劣化が、活性な TPB の減少として予測される。ただし電極内厚み方向の解析的モデルでは、反応電流の分布形状を仮定しているため、その仮定の範囲内で TPB 失活の影響を組み込む必要がある。そこで図 3-7-2. 11 左図に示すように失活 TPB が全て電解質との界面に集中するモデル 1 と、電極内に一様に分布するモデル 2 を提案した。図 3-7-2. 11 右図は、提案した 2 つのモデルによる解析結果と、2 次元 CFD 解析結果の比較である。端子電圧一定での解析であり、クロム被毒による空気極劣化により平均電流密度が徐々に低下する予測が得られている。モデル 1 の結果は、2 次元 CFD 解析の結果と定性的に合致する。局所活性化過電圧が高い領域で劣化進展が進む劣化モデルであるため、2 次元解析では電極-電解質界面近傍で TPB の失活が始まり、劣化領域が電極厚さ方向に徐々に厚くなる。一様に劣化が進むモデル 2 よりもモデル 1 の方がこの現象に近いことが、モデル 1 と 2 次元解析結果の比較的良好な一致の要因と考えられる。改良の余地はあるが、電極内の劣化進展モデルをマクロレベルのセル・スタック数値解析へ適用することが可能となった。

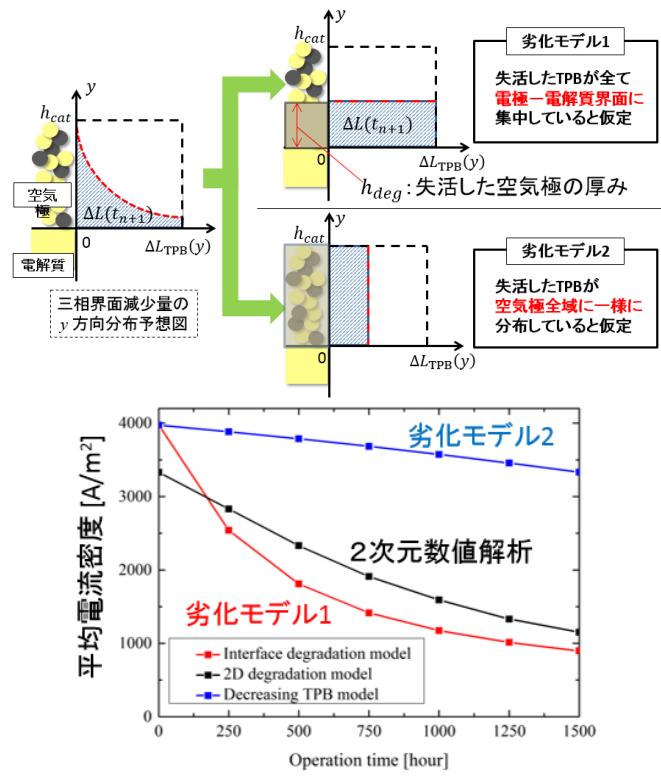


図 3-7-2. 11 擬三次元解析における LSM-YSZ 空気極クロム被毒の考慮：
(左) 劣化モデル、(右) 2次元 CFD 解析との比較

b. 東京大学

i) 燃料極のNi焼結に関する数値シミュレーション

燃料極のニッケル焼結による形態変化に伴う有効三相界面や、屈曲度ファクター等の経時劣化についての予測を行った。ニッケルとYSZの結晶構造を考慮することが可能な新しい秩序変数を導入したフェーズフィールド法コードを開発した。フェーズフィールド法とは、材料組織の全自由エネルギーが最も効率的に減少するように、組織形成過程を時間発展方程式に基づき算出する手法である。コンポジット材料の支配方程式として、ニッケルやYSZ相といった体積保存量にはCahn-Hilliard方程式を、それぞれの相の粒界といった非保存量にはAllen-Cahn方程式を用いた。シミュレーション結果を検証するために、還元直後、100時間運転後、650時間運転後の三つの時刻におけるサンプルの微細構造を、走査型電子顕微鏡複合装置(FIB-SEM)を用いて観察し、微細構造データを取得した。計算においては、還元直後の微細構造を初期条件として、数値シミュレーションにより時間発展させた結果から微細構造パラメータを算出し、FIB-SEMで測定された結果と比較した。図3-7-2.12に、予測された三次元構造と断面の時間変化を示す。焼結によって、粒成長が見られるとともに、Ni相が丸く粗大化する様子が再現されている。

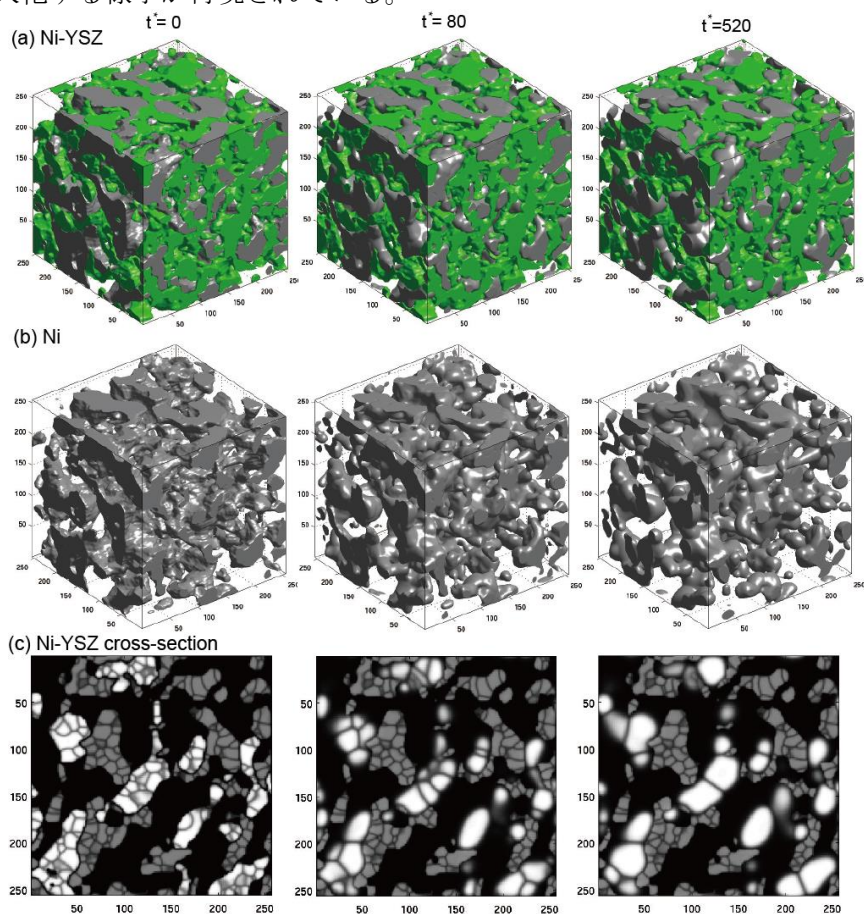


図3-7-2.12 結晶粒界を考慮したNi/YSZ複合材料の共焼結シミュレーションの三次元構造と断面の時間変化. (a)Ni-YSZ燃料極 (灰色: Ni, 緑: YSZ), (b)ニッケル, (c)結晶粒界 (白: Ni, 灰色: YSZ, 黒: 空隙).

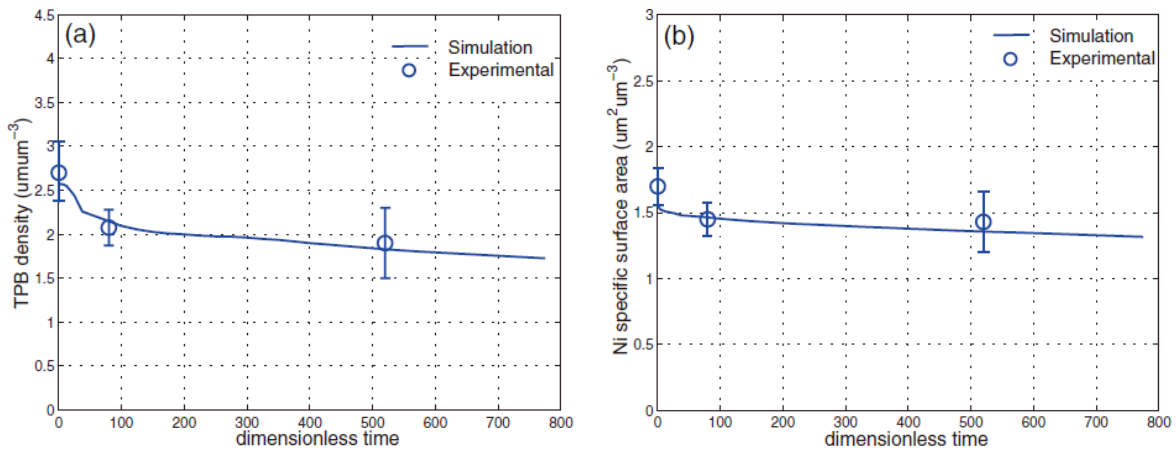


図3-7-2.13 三相界面密度およびニッケル比表面積の時間変化

図3-7-2.13に、予測された三相界面密度とニッケル比表面積の時間変化を実時間データと比較した結果を示す。計算パラメータであるニッケル相モビリティを $M_{Ni-GB} \approx 3.8 \times 10^{-19} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ 、ニッケル粒界モビリティを $L_i^{Ni} \approx 2.2 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ とすると実験結果を良く再現できることがわかった。

一方で、フェーズフィールド法では解像度が不足している場合に、ニッケルの秩序変数が0.5となる領域の体積が減少することが分かった。具体的には、界面内に4格子程度以下となる小径のニッケル粒子において、秩序変数が0.5となる領域が減少し、最終的には消滅するという現象が発生した。そこで、新たに局所自由エネルギー密度の関数形を改良することで、図3-7-2.14に示すようにニッケルの体積保存を3%以内に抑えることが可能となった。

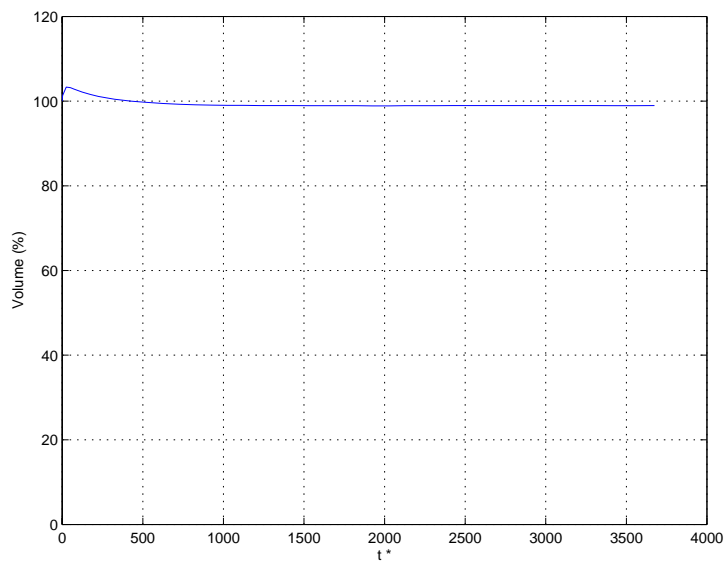


図3-7-2.14 ニッケルの体積変化の予測結果

続いて、様々な条件の実験における三相界面密度およびニッケル比表面積の変化を再現するために、Ni-YSZ 界面エネルギーを調整することができる新たなパラメータ W を局所自由エネルギー密度の関数に導入した。例えば、還元温度の異なる Ni-YSZ 燃料極は、長期運転中に異なる焼結挙動を示すことが知られているが、本コードによりそのような変化を再現できるようになることが期待される。図 3-7-2.15 に示すように、パラメータ W を調整することで実験と同様な三相界面密度とニッケル比表面積の変化を再現することが可能となった。

また、フェーズフィールドシミュレーションを用いてニッケル焼結の3次元構造変化を予測した後、その構造に基づいて格子ボルツマン法で燃料極内の分極特性を予測した結果を図3-7-2.16に示す。ニッケル焼結に伴って三相界面が減少するため、有効反応域が時間とともに拡大する様子が再

現されている。このように、変化した構造内の過電圧、電子とイオンの拡散、および電気化学反応を予測するツールを開発できた。

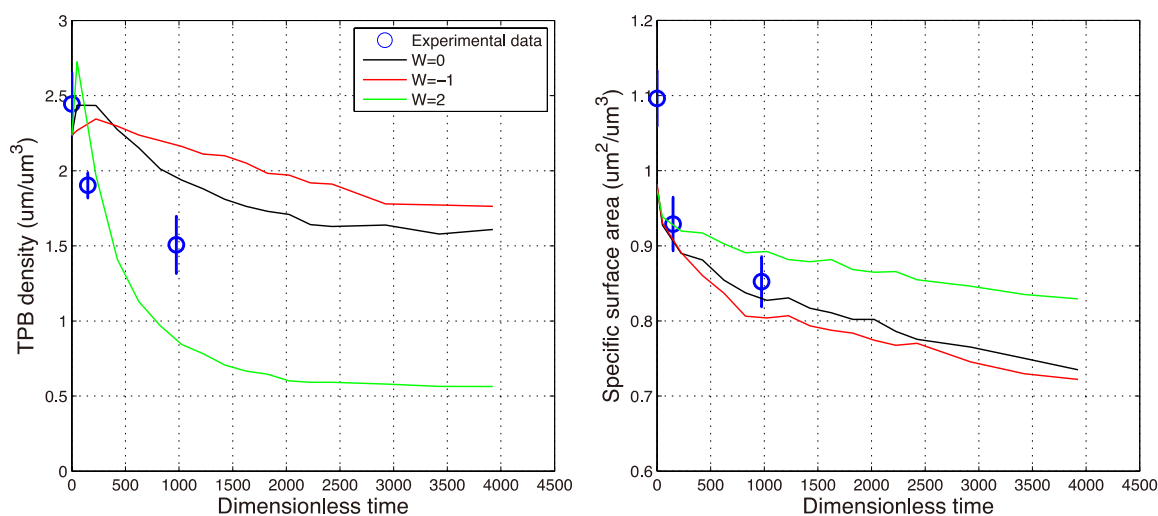


図 3-7-2. 15 三相界面密度とニッケル比表面積の変化の予測結果

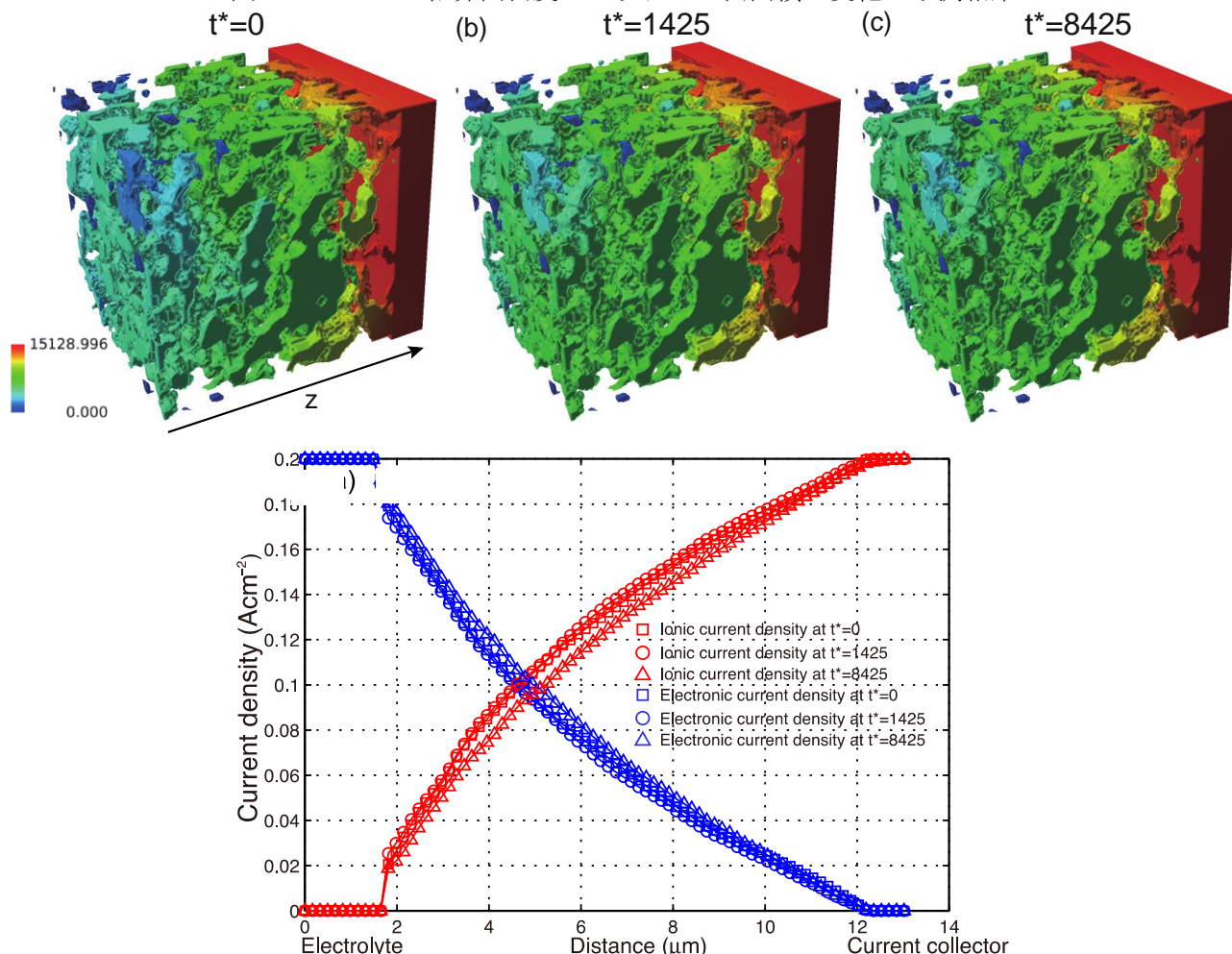


図 3-7-2. 16 フェーズフィールドシミュレーションによる 3 次元構造変化に基づいて格子ボルツマン法で予測された電子（青）およびイオン（赤）電流分布

ii) 空気極シミュレーション

フェーズフィールド法は、相間の界面に最低でも 4 格子ほど配置する必要があり、非常に高い空間解像度が求められる。SOFC の空気極は燃料極よりも低温で焼成される場合が多く、その構造は燃

料極のそれよりも一般に細かいことが多い。そこで、原理的にフェーズフィールド法よりも少ない格子数で計算が可能な Kinetic Monte Carlo (KMC) Potts 法による LSCF 空気極焼結予測手法を開発した。KMC Potts 法では、①表面拡散による空孔移動(pore migration; pm)、②粒界拡散による粒成長(grain growth; gg)、③空隙発生&消滅(vacancy formation; vf)の3つの焼結機構を考慮するが、それぞれの機構に対して、頻度因子 f およびシミュレーション温度 $k_B T$ の2つの未定パラメータが存在することから、これら合計6つの計算パラメータを与える必要がある。計算パラメータの特定のために、LSCF ペレットの焼成実験を行い、FIB-SEM を用いて3次元微細構造を再構築した。ここで、KMC 計算パラメータの組み合わせは膨大な数になるので、無数の組み合わせの KMC 計算を実施して、その中から適したパラメータを選定することは、計算負荷を考えると現実的ではない。そこで、KMC シミュレーションを模擬する人工ニューラルネットワーク(Artificial Neural Network, ANN)を構築し、ANN 予測結果と FIB-SEM 構造とを比較することで、広範囲のパラメータ範囲から効率的に適切な KMC 計算パラメータを選定する手法を構築した。図 3-7-2.17 に、計算フローを示す。本実験で用いた LSCF ペレットに対しては、 $k_B T_{gg}=1.16$ 、 $f_{gg}=0.68$ 、 $k_B T_{pm}=1.48$ 、 $f_{pm}=0.20$ 、 $k_B T_{vf}=37.0$ 、 $f_{vf}=0.52$ というパラメータの組み合わせが最も実験結果を再現することを確認した。

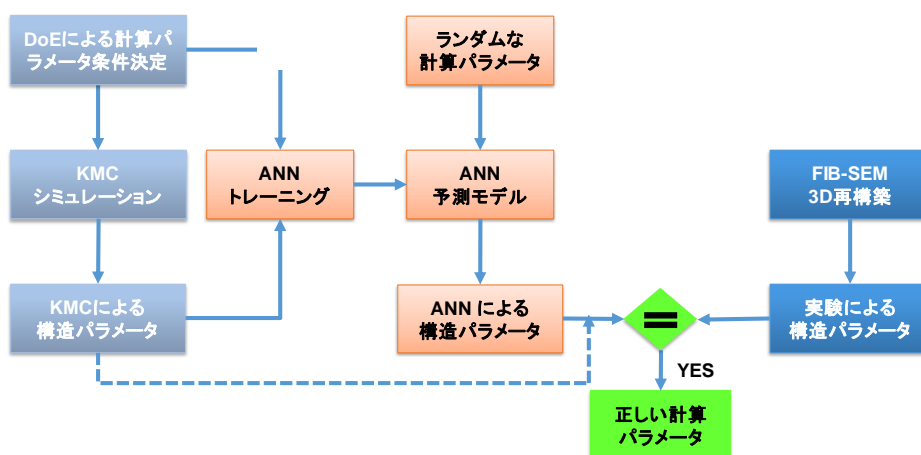


図 3-7-2.17 ニューラルネットワークを用いた Kinetic Monte Carlo Potts 法計算パラメータの決定

図 3-7-2.18 に、上記手法で得られたパラメータを用いて KMC 計算を行った結果を示す。図中 S_0 が初期構造、 S_1 および S_2 はそれぞれ焼結途中、焼結後の構造であることを表す。密度、比表面積、各相の寸法、各相の屈曲度ファクターが高精度に予測できることを確認した。本手法を筒状横溝形セル空気極の焼結による劣化予測に適用し、長期運転後の電極構造を予測した。

焼結に加えて反応防止層を含む空気極の過電圧予測手法を開発した。YSZ 電解質上に GDC 反応防止層を 1300°C で焼成し、その上に LSCF 空気極を 1150°C で焼成した。このサンプルの運転開始時および 100 時間発電後の 3 次元構造を FIB-SEM で再構築した。図 3-7-2.19 (a) および (b) 中の薄黄色が YSZ 電解質、赤色が Ce-Zr 相互拡散層、濃灰色が $SrZrO_3$ 、濃い黄色が GDC 反応防止層、薄灰色が LSCF 空気極である。格子ボルツマン法により、再構築した YSZ 電解質/Ce-Zr 相互拡散層/ $SrZrO_3$ /GDC 反応防止層/LSCF 空気極を一体化して過電圧を予測した。断面ごとの酸素ポテンシャルを算出し、集電層から積算したカソード内局所過電圧分布を求めた結果を図 I-3-2.19 (c) に示す。LSCF 空気極内で過電圧が徐々に上昇するが、GDC 反応防止層内では GDC の高いイオン伝導率のためにほぼ過電圧や一定である。GDC 反応防止層と電解質の界面において過電圧が急激に増加するが、これは $SrZrO_3$ のイオン伝導率が非常に低いため、この相を避けるようにイオン電流の流線が集中し、かつ Ce-Zr 拡散層においてもイオン伝導が低下していることで、これら二重の効果により過電圧が増加するためである。図 I-3-2.19 (d) および (e) に示すように、100 時間通電後は $SrZrO_3$ 相が増加し、電流集が一層進むため、電解質/反応防止層界面での過電圧が大幅に増加することがわかる。

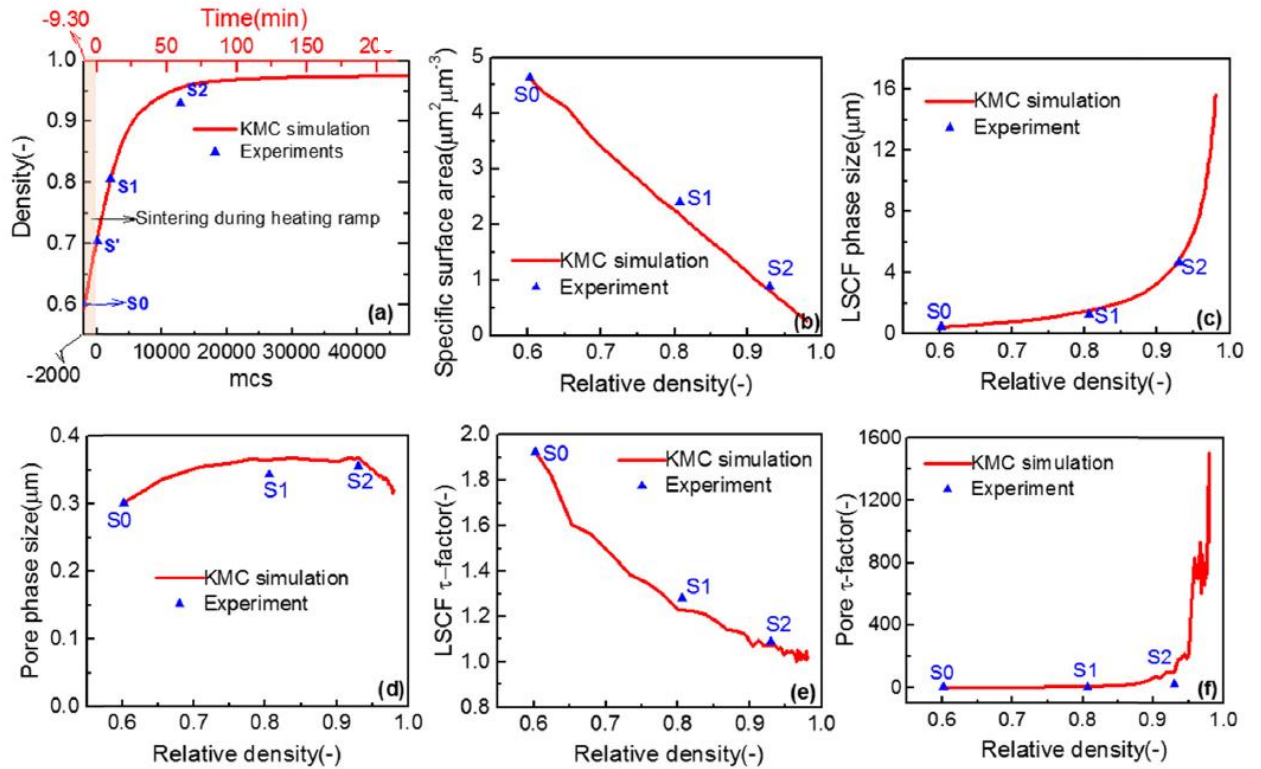
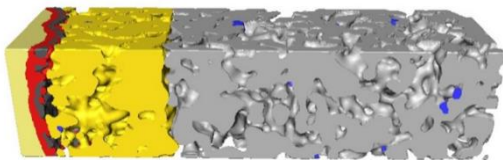
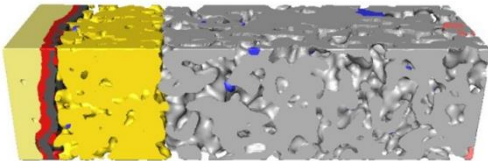


図 3-7-2.18 Kinetic Monte Carlo Potts 法による LSCF ペレットの焼結過程の予測結果

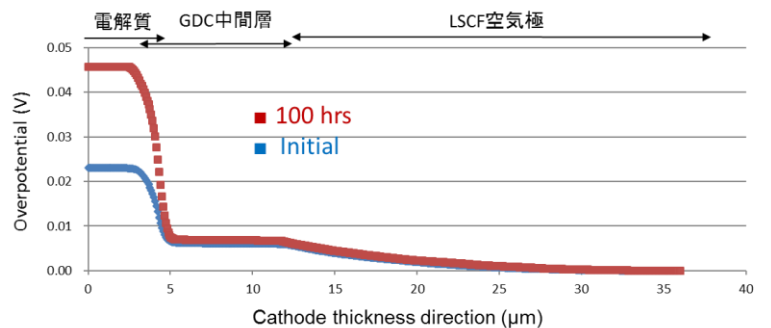
(a) 初期構造



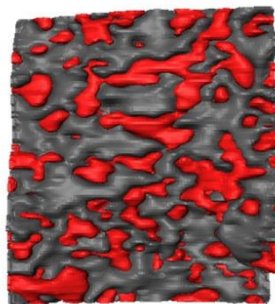
(b) 100 時間運転後構造



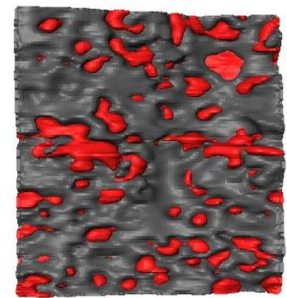
(c) 局所過電圧分布



(d) 電解質/反応防止層断面 (初期)



(e) 電解質/反応防止層断面 (100 時間後)



薄黄色 : YSZ 電解質
 赤色 : Ce-Zr 相互拡散層
 濃灰色 : SrZrO_3
 濃黄色 : GDC 反応防止層
 薄灰色 : LSCF 空気極

図 3-7-2.19 反応防止層を含む空気極の過電圧予測結果

c. 東北大学

i) 酸素ポテンシャル-応力シミュレーション汎用ツールの構築

i)-1) 概要

SOFC 運転時のセルのマクロな変形や応力の発生、あるいは材料の組成・微細構造の変化には、セル内部での酸素ポテンシャルの分布が深く関与している。東北大学では、セル構成材料内部の各場所での酸素ポテンシャルの変化を物質輸送と酸素不定比性から計算し、ここから得られる化学歪みとその経時変化を構造解析に用いる手法を開発した。本プロジェクトでは、このルーチンをより汎用化・ロバスト化し、一般的な汎用 FEM ソフトウェアと連携した汎用解析ツールへと拡張した。

具体的には、東北大学で独自に開発してきたインハウスプログラムを、一部のルーチンに改良を加え、汎用ソフトウェアAbaqus、MarcおよびANSYSのGUIを用いた汎用ポテンシャル解析ツールSIMUDEL.TUのAbaqus版、Marc版、ANSYS版を作成した。各スタックメーカと情報交換を行いながらプログラムの仕様を策定し拡張部分のコードを業者に委託して作成した。作成したソフトウェアは、本学および複数のスタック開発メーカにて検証を行った。

i)-2) 酸素ポテンシャル-応力計算の原理

固体中の酸素ポテンシャルの分布は酸化物イオンと電子の輸送特性によって決まる。電子および酸素イオンによる電流密度の支配方程式は、それぞれ次式で表される。

$$\frac{c^i}{-2F} \dot{\mu}_0 = -\nabla \cdot i_{O_2} + j_{O_2} \quad (1)$$

$$\frac{c^i}{-2F} (-\dot{\mu}_0) = -\nabla \cdot i_e + j_e \quad (2)$$

ここで i_{O_2} 、 i_e は酸化物イオン電流、電子電流、 j_{O_2} 、 j_e は気固相反応による湧き出し電流、 μ_0 は酸素ポテンシャル、 c_i はキャパシタンス（酸素空孔生成による）、 F はファラデー定数である。酸化物イオン電流、電子電流はそれぞれの電気化学ポテンシャル、 η_{O_2} 、 η_e を用いて

$$i_{O_2} = - \left(\frac{S_{O_2}^i}{-2F} \right) \nabla h_{O_2} \quad (3)$$

$$i_e = - \left(\frac{S_{O_2}^i}{-2F} \right) \nabla (2h_e) \quad (4)$$

で表せる。 σ はそれぞれのキャリアの導電率である。また、反応電流の間には

$$j_e - j_{O_2} = 0 \quad (5)$$

ポテンシャルの間には局所平衡によって

$$m_0 + 2h_e = h_{O_2} \quad (6)$$

が成り立つ。さらに反応電流は多孔質電極相において固体内と気相中の酸素ポテンシャルの差によって $\Delta E = \Delta \mu_0 / 2F$ で表される分極を用いてButler-Volmer型の速度式で表されると仮定した。同様に、電解質やインターコネクトなどの緻密材の表面と気相との間の酸素交換は、同様のButler-Volmer式に基づく伝達境界条件を設定できるようにした。

一方SOFCに発生する全ひずみテンソルは次式のように加算分解できるものとした。

$$e = e^c + e^t + e^r \quad (7)$$

このうち、上付きのeは弾性ひずみ、cはクリープひずみ、tは熱膨張ひずみ、rは還元ひずみ（化学ひずみ）を表している。また、熱膨張ひずみと還元膨張ひずみはそれぞれ次式のように温度T、酸素空孔濃度 δ への線形関数として表されるものとした。

$$e^t = aDT \quad (8)$$

$$e^r = bDd \quad (9)$$

この計算で用いるイオン、電子輸送などの物性値は既出の研究項目で整備した基礎物性値をライブラリとして提供するものとした。

iii)-3) 開発したプログラムおよびソフトウェアの特徴

本研究で開発したプログラムおよびソフトウェアは以下の特徴をもつ。

1. 非構造要素を用いた任意形状モデルでの計算

AbaqusCAE, MENTAT, もしくは ANSYS を用いて作成した四面体および六面体等の非構造格子のデータを東北大にて開発中のインハウスプログラムへ読み込み可能なデータへ変換するとともに、非構造メッシュを用いて酸素ポテンシャル解析を行うことが可能である。

2. 初期条件・境界条件・出力ファイルの設定の簡略化

計算対象となる全領域について、温度履歴の入力機能を有する。また、アノードの燃料流路内での濃度履歴の入力機能を有する。このソフト専用の入力フォーマット（メッシュ、境界条件等）を作成するために必要な情報を AbaqusCAE、MENTAT、ANSYS のインターフェースを利用する形式で GUI 機能を付与している（図 I. 3. 2-20）。プログラムの出力はシミュレートした各時刻の温度および酸素ポテンシャル分布であり、その他の物理量も可視化可能な機能を付与している。AbaqusCAE は運転条件の入力データ作成について時刻歴の可視化機能を有していないため、別途用意してある Excel シートを利用することとした。ANSYS 版では運転条件の設定から解析まで統一的に実施可能である。

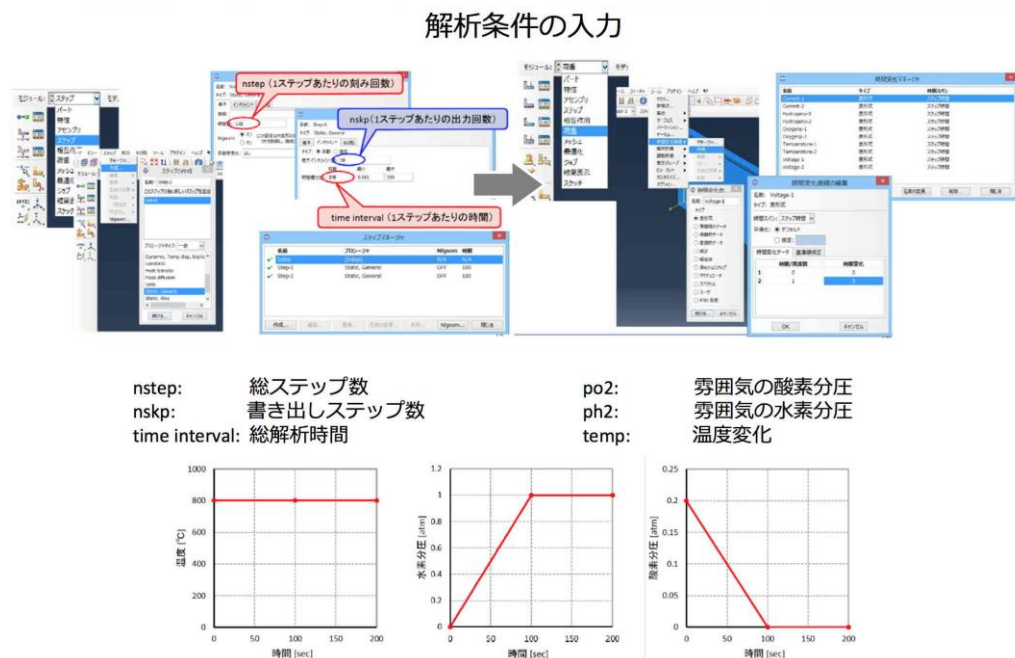


図 3-7-2.20 解析条件の入力画面の例（Abaqus 版）

境界条件の設定方法は電解質、インターコネクトなどの緻密体と多孔質電極では異なる。これらが気相と接触している場合と金属集電体などと接触している場合について、それぞれ電子、氧化物イオンのポテンシャルもしくは電流値の設定方法を定めている。図 I. 3. 2-21 のように定めている。

表 3-7-2.2 各種材料への境界条件の設定方法

集電体との接触領域				
		アノード 【多孔体】	カソード 【多孔体】	インターコネクト/ 電解質 【緻密体】
電子 η_{e^-}	電圧制御	Dirichlet 条件 $\eta_{e^-} = \hat{\eta}_{e^-}$	Dirichlet 条件 $\eta_{e^-} = 0$	Dirichlet 条件 $\eta_{e^-} = \hat{\eta}_{e^-}$
	電流制御	Neumann 条件 $i_{e^-} = \hat{i}_{e^-}$	Neumann 条件 $i_{e^-} = \hat{i}_{e^-}$	Neumann 条件 $i_{e^-} = \hat{i}_{e^-}$
酸素イオン $\eta_{O^{2-}}$		零 Neumann 条件 $i_{O^{2-}} = 0$	零 Neumann 条件 $i_{O^{2-}} = 0$	零 Neumann 条件 $i_{O^{2-}} = 0$
気相との接触領域				
		アノード 【多孔体】	カソード 【多孔体】	インターコネクト/ 電解質 【緻密体】
電子 η_{e^-}		零 Neumann 条件 $i_{e^-} = 0$	零 Neumann 条件 $i_{e^-} = 0$	Robin 条件 (OCV 状態) $i_{e^-} = -J_{Tran}$
酸素イオン $\eta_{O^{2-}}$		零 Neumann 条件 $i_{O^{2-}} = 0$	零 Neumann 条件 $i_{O^{2-}} = 0$	Robin 条件 (OCV 状態) $i_{O^{2-}} = J_{Tran}$

材料ライブラリを用いた物性値の呼び出し

温度, 酸素分圧を独立変数としたチャート

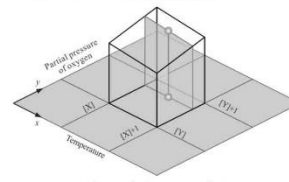
		Log(酸素分圧 [atm])						
		-50	-49	-48	...	-1	0	1
温度 [°C]	0	$\delta_{1,1}$	$\delta_{1,2}$	$\delta_{1,3}$...	$\delta_{1,50}$	$\delta_{1,51}$	$\delta_{1,52}$
	1	$\delta_{2,1}$						
	2	$\delta_{3,1}$						
	⋮	⋮						
	998	$\delta_{998,1}$						
	999	$\delta_{999,1}$						
	1000	$\delta_{1000,1}$						$\delta_{1000,52}$

求める条件に近い値を使い, 2変数の線形補完から物性値を算定.

物性値リストの読み込み機能
算定した物性値の読み込み機能

➡ 新たな材料のポテンシャル分布を計算する際はこれらのリスト(csvファイル)を用意する.
例: SrZrO₃など.

1. δ : 空孔量
2. $\sigma_{O^{2-}}$: 酸化物イオン導電率
3. σ_{e^-} : 電子導電率
4. c : 電気容量



- ① 温度, 酸素分圧が決まる.
- ② 周りを囲む4点を検索する.
- ③ 各点での物性値を参照する.
- ④ 線形補完して物性値を求める.

* 交換電流密度, 伝達電流密度は気相の雰囲気にも依存するためButler-Volmer関数を採用. 材料ごとにパラメータを設定する.

Ex. $J_{O^{2-}} = C_1 p_{O_2}^{C_2} \exp(-C_2 / \theta) \left(\exp\left(\frac{2(1-C_1)FAE}{RO}\right) - \exp\left(-\frac{2C_1FAE}{RO}\right) \right)$

図 3-7-2.21 材料ライブラリの読み込み機能の概念図

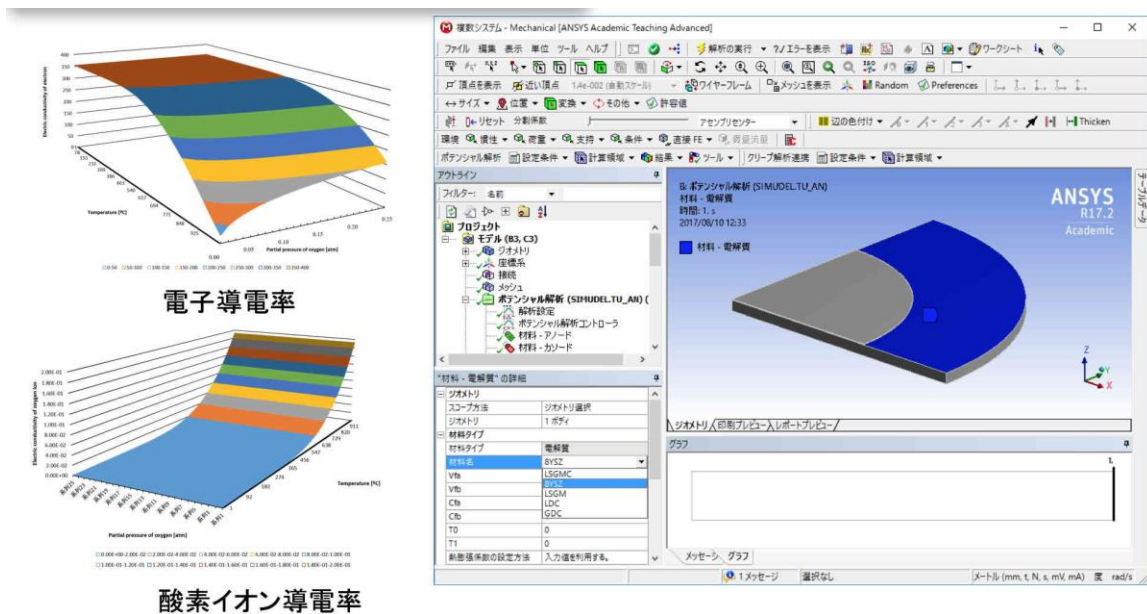


図 3-7-2.22 材料ライブラリの読み込み機能の概念図 (ANSYS 版)

表 3-7-2.2 ポテンシャル計算結果の時刻ごとの出力ファイルの内容

メッシュデータ					
順番	名前	情報		名前	情報
1	POINTS	節点情報	3	CELL_TYPES	要素形状
2	CELLS	要素情報			
節点データ					
4	potential_oxygen_ion float	酸素イオンポテンシャル	8	pressure_o2_gas float	酸素分圧
5	potential_electron float	電子ポテンシャル	9	pressure_h2_gas float	水素分圧
6	temperature float	温度	10	pressure_h2o_gas float	水蒸気分圧
7	potential_oxygen float	酸素ポテンシャル			
要素データ					
11	material_number float	要素の材料	17	oxygen_vacancy float	酸素空孔
12	reaction_current float	反応電流	18	thermal_strain float	熱ひずみ
13	delta_E float	過電圧	19	reduction_strain float	還元膨張ひずみ
14	pressure_o2_solid float	要素における酸素分圧	20	current_oxygen_ion float	酸素イオン電流 (ベクトル)
15	conductivity_oxygen_ion float	酸素イオン導電率	21	current_electron float	電子電流 (ベクトル)
16	conductivity_electron float	電子導電率	22	current_total float	トータル電流 (ベクトル)

また、前述のように導電率等の材料の物性値は材料ライブラリを用意している (図 I.3.2-21 参照)。これらの物性値の呼び出しについても GUI で呼び出す機能を有しており、呼び出し

た物性値を温度、酸素分圧の関数として可視化し確認することができる。(図 I. 3. 2-22) また、材料物性値についてはユーザーがカスタマイズできるようにした。

3. 解析の安定性 (ロバスト化) の向上

電解質の温度が低すぎる場合に電子導電率が極端に小さくなるなど、一部の計算条件で不具合が発生していた。これに関するエラー処理を行った。

4. 変形シミュレーションのカスタマイズ

Abaqus、Marc、ANSYS を用いてクリープ変形の計算を実施するため、還元ひずみと熱膨張ひずみの値を和として温度変化に与え、熱膨張係数を 1.0 としたうえで応力積分を実施する仕様とした。材料の機械特性として弾性変形およびクリープ変形を考慮するが、Abaqus および ANSYS はデフォルトで装備されているクリープサブルーチンおよび UDF を、Marc は UDF を使用可能な仕様とした。

筒状縦縞の構造を想定した仮想のセルについてポテンシャル解析から変形・応力解析までを行なった例を図 3-7-2. 24, 図 3-7-2. 25 に示す。



図 I. 3. 2-23 変形・応力解析の実施画面の例 (ANSYS 版)

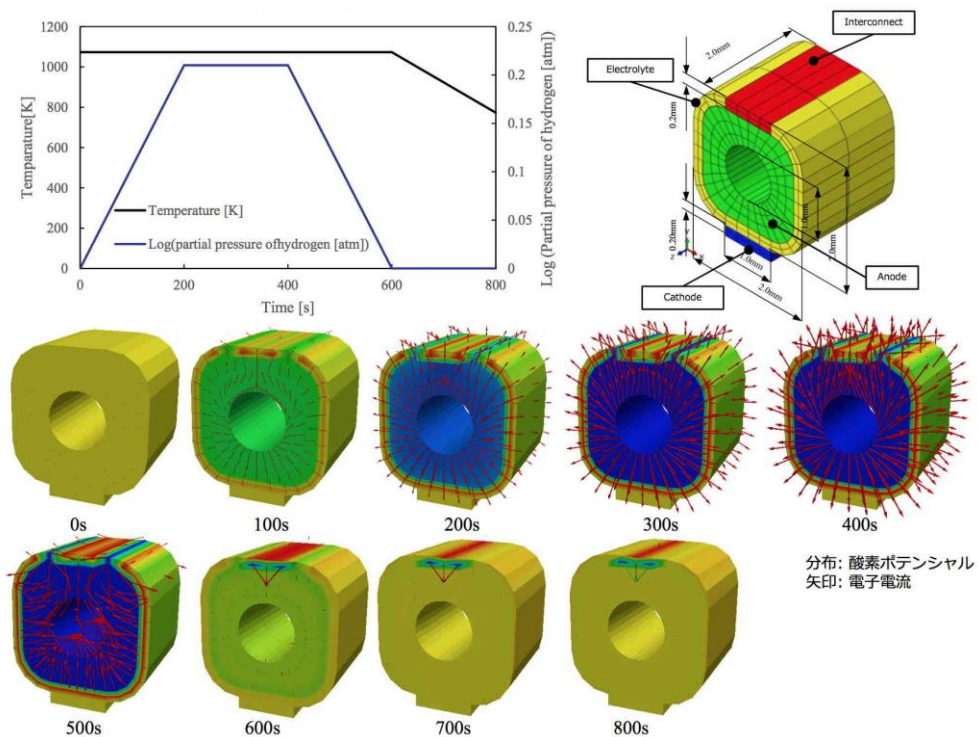


図 3-7-2. 24 筒状縦縞仮想セルの酸素ポテンシャル解析例

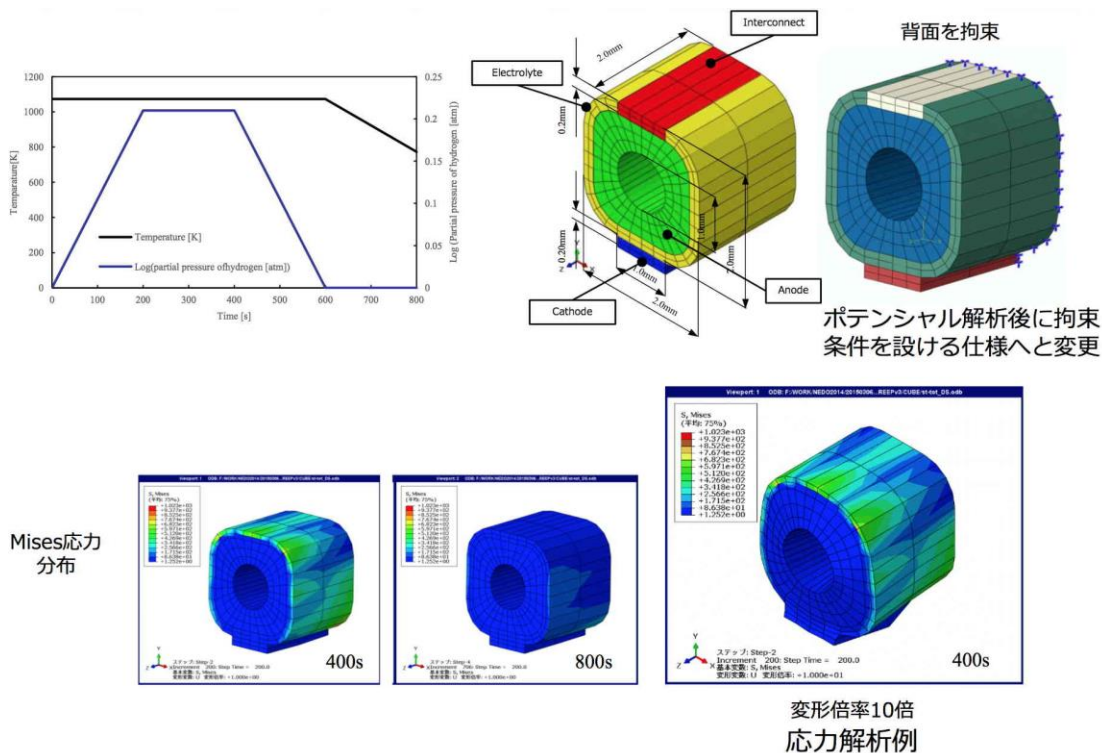


図 3-7-2.25 筒状縦縞仮想セルの応力解析例

5. その他

使用するプログラム言語は Fortran90/95 とし、空間方向の離散化には有限要素法、時間方向の離散化には有限差分法を使用した。計算結果は ANSYS などの汎用ソフトにて可視化可能である。導電率、空孔量、キャパシタンス（酸素不定比）などの物性値はチャート化してライブラリに格納する形式のため、各企業にて特殊な材料を用いている場合も、当該チャートを実験的に取得すれば計算可能となる。また、そのような新規材料の還元膨張率および熱膨張率を外部入力する機能を付与した。

ii) 燃料分布解析汎用ツールとの連携

ii)-1) 概要

SOFCの電気化学反応を含む熱流体解析ソフトウェアとしてはANSYS-FluentのSOFC解析モジュールが市販されている。スタック開発メーカーでもこのソフトウェアを利用しているケースが多い。ただしFluent SOFCモジュールでは電極内での反応場の分布や固体内の輸送現象については扱うことができない。このため、化学歪みを有する材質や酸素ポテンシャル分布が問題となるケースではSIMUDELによる解析が必要となる。一方で、SIMUDELは気相の組成や温度は境界条件等として与えることを想定しており、流体や温度分布の解析はできない。そこで、①で構築した汎用ツールSIMUDEL.TUのANSYSバージョンとANSYS構造解析連携シミュレーションにFluent SOFCモジュール解析結果を導入した連携解析ツールの構築を試み、プロトタイプを作成した。

ii)-2) 拡張したプログラムおよびソフトウェアの特徴

1. ANSYS Workbench のカスタマイズ

Fluent SOFC モジュールでは、解析モデルのうち流路と電極及び流路と電極表面における計算を想定する。SIMUDEL.TU_AN 及び ANSYS Mechanical での変形解析では、解析モデルのうち流路を除いた固体領域の計算が可能である。

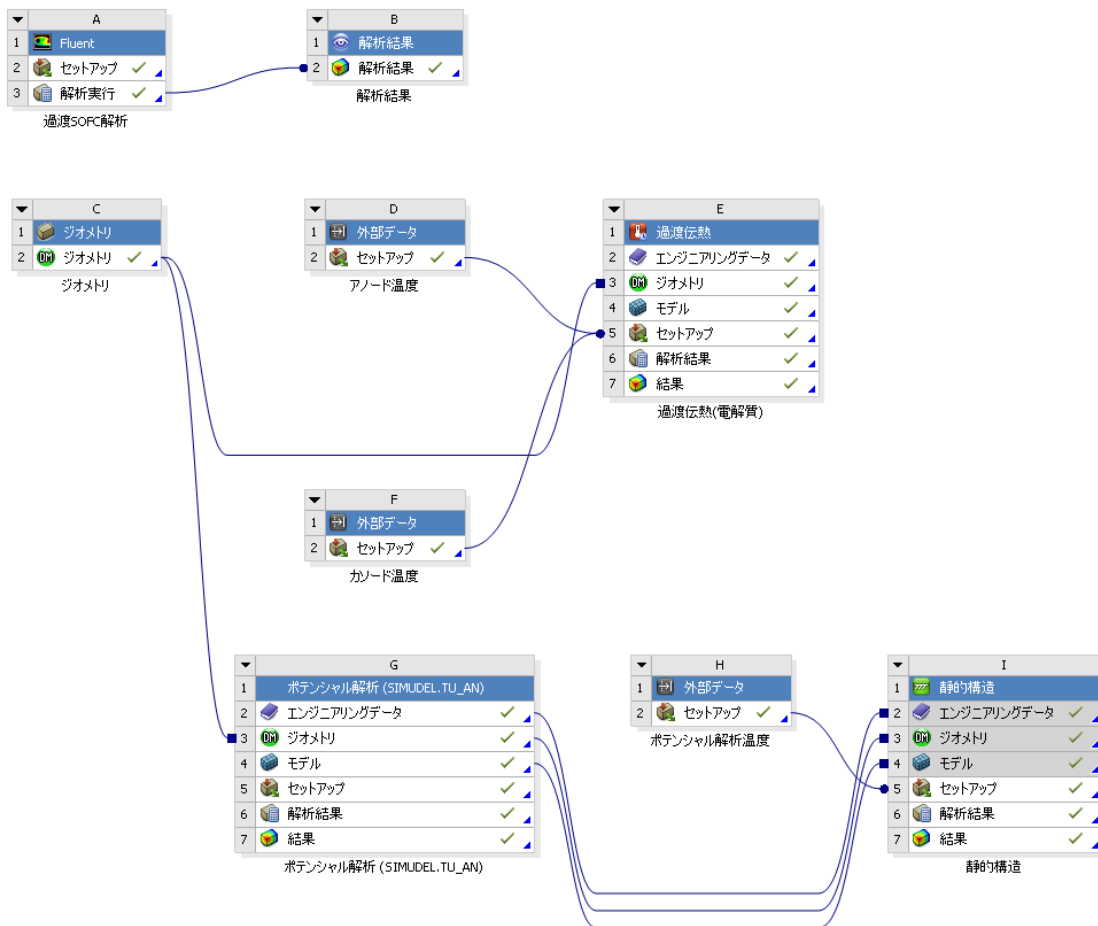


図 3-7-2.26 カスタマイズした ANSYS ワークベンチでのプロジェクトの構成

2. Fluent SOFC モジュールデータを SIMUDEL の入力データに変換するためのプログラム開発
 Fluent SOFC モジュールの結果は、温度(領域全体)、酸素(カソード)、水素(アノード)及び水蒸気(アノード)の時刻歴(時間間隔はユーザーが指定)である。電極内部の酸素、水素及び水蒸気の時刻歴データを SIMUDEL.TU_AN の仕様に合わせて各時刻で領域的に与える。温度履歴を電解質内部にコピーして与える。
3. ANSYS Mechanical を用いた SIMUDEL.TU_AN 用条件設定及び可視化のための機能
 ANSYS Mechanical で作成した SIMUDEL.TU_AN 用データ(節点情報・要素情報・運転条件・境界条件・初期条件を含む)及び Fluent SOFC モジュールシミュレーション結果から作成したデータ(温度、分圧などの運転履歴)より SIMUDEL.TU_AN の入力データを生成する。SIMUDEL.TU_AN のための有限要素モデルと Fluent SOFC モジュールのための有限要素メッシュは同一でなくてもデータのマッピング等を通して SIMUDEL.TU_AN による解析が可能である。運転履歴条件・境界条件・初期条件の取り扱いについては i) のみのバージョンの仕様も残してある。
4. ANSYS Mechanical の変形シミュレーション機能
 汎用 FEM プログラム ANSYS Mechanical での変形シミュレーションが可能となるよう、以下の要件・機能を開発すること。i) のバージョンに基づき 2. で生成した温度データを入力し、実際の温度として計算に反映する。変形解析における有限要素メッシュと Fluent SOFC モジュール解析及び SIMUDEL.TU_AN 解析に用いる有限要素メッシュは同一でなくてもデータのマッピング等を通して解析が可能である。
5. 課題
 Fluent SOFC モジュールとの連携ツールは枠組みの構築に成功したが、さらなるブラッシュアップが必要である。

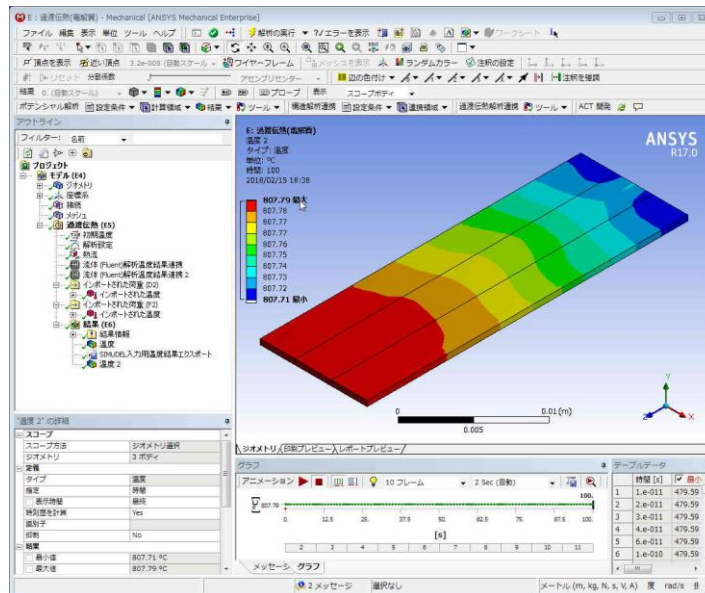


図 3-7-2.27 Fluent との連携：過渡電熱解析画面

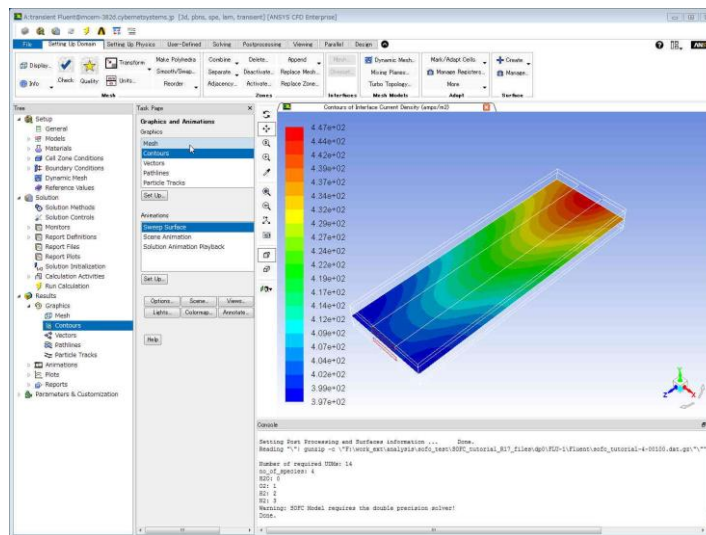


図 3-7-2.28 Fluent との連携：過渡 SOFC 解析画面

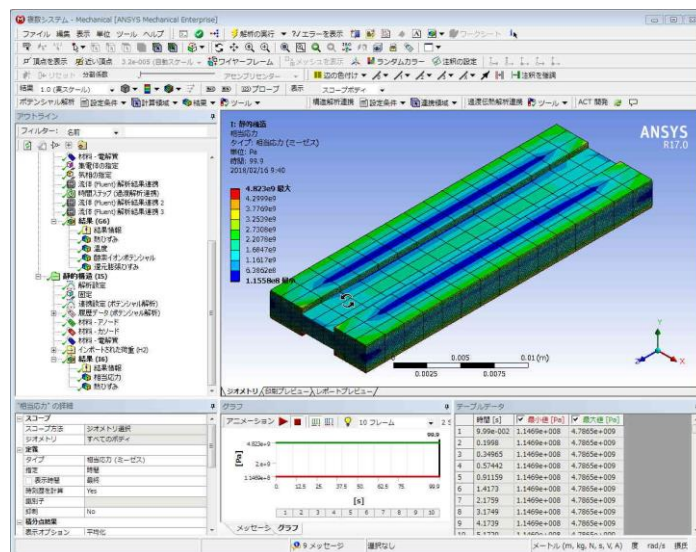


図 3-7-2.29 Fluent との連携：構造解析画面

iii) 相変態による材料定数の経時変化を考慮した数値解析

YSZの正方晶への相転移が低酸素ポテンシャル下で促進される現象について、産総研と共同で、動作状況下のセルの相変態領域の時間発展を再現するシミュレーションプログラムを作成した。上記 i) の汎用ポテンシャル解析ツールでは、物性定数の時間変化を扱う事ができないため、この解析のための専用プログラムを作成した。相のテトラ化によってポテンシャルの酸化還元境界が電解質中央から徐々にアノード側にシフトする様子など、昇温～燃料投入～定常に至るまでの初期挙動を再現することが可能となった。また、境界条件の異なるセルモデルに対して同様の解析を実施し、発電時の電氣的劣化挙動など、実験時と類似の傾向が再現可能となった。

d. 産業技術総合研究所

i) 電解質におけるオーム抵抗増大現象について

電解質におけるオーム抵抗増大現象について、電極材料元素の電解質材料への固溶(Mn 固溶およびNi 固溶など)を考慮して、電解質中の酸素ポテンシャル分布を酸素分圧、温度、過電圧などの関数として計算し、不純物析出、正方晶化などの劣化現象をシミュレーションする。東北大学と連携し、前期でシミュレーションした結果の検証を行うとともに、本検討の緻密化、高精度化を図る。Ni が固溶したジルコニア系電解質の正方晶化に伴う伝導度低下現象をジルコニア系電解質を用いている各スタックの稼働条件に応じて評価する手法を確立する。

ジルコニア系電解質の相変態による伝導度低下は固溶したNiOの還元析出が関連して促進されることが報告されている。そのため相変態による伝導度低下の時間変化シミュレーションにあたっては電解質中での酸素ポテンシャル分布を計算し、相変態が促進される領域、その進行速度、進行による伝導度の低下量を把握することが必要であり、図 3-7-2. 30 に示すスキームに従い開発を進めた。

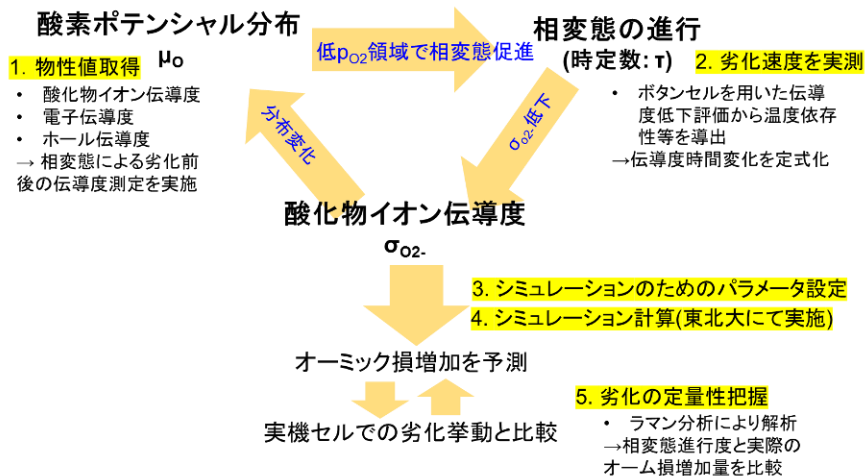


図 3-7-2. 30 相変態による伝導度低下現象シミュレーション構築に向けたスキーム

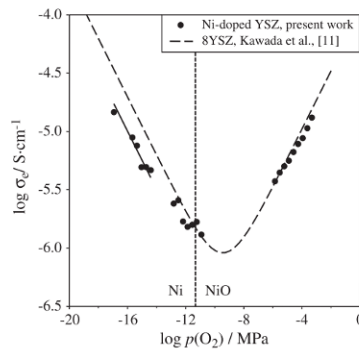
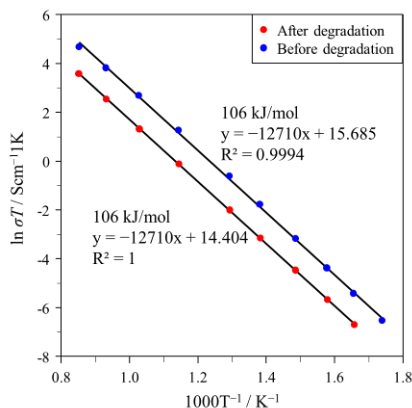


Fig. 3. Dependence of the electronic conductivity of Ni-doped YSZ on the oxygen partial pressure at 1273 K.

図 3-7-2. 31 相変態進行前後の酸化物イオン、電子、ホール伝導度 (右: T. Shimonosono *et. al.*, *Solid State Ionics*, 2012, **225**, 61-64)

i)-1) 物性値の取得

物性値については文献値などを含め相変態前後の電解質について酸化物イオン伝導度および電子伝導度、ホール伝導度の変化について整理を行った。また、YSZ 電解質において正方晶化の進行へのイットリア濃度およびNi 固溶量の影響についても確認を進めた。図 3-7-2. 31 に劣化前後の酸化物イオン伝導度(左図)および電子伝導度(右図)を示す。相変態の進行により酸化物イオン伝導度は、初期のおよそ 3 分の 1 の値に低下するが、伝導の活性化エネルギーは変化しない。また、電子伝導度についても劣化により伝導度は低下するが、その温度依存性は変わらないと仮定してシミュレーションへのパラメータとして利用した。

図 3-7-2. 32 には、より立方晶相が安定な 10YSZ に Ni が固溶した試料と比較した結果を示す。Ni-8YSZ においては水素導入後から伝導度の低下が促進されたのに対し、Ni-10YSZ においては、僅かな伝導度低下のみが観測された。またラマン分析によっても、正方晶相はほとんど生成していないことからイットリア濃度の増加によって伝導度の経時変化が低下することがわかった。8YSZ への Ni 固溶の影響として、0.1, 0.5, 1.0mol% の Ni 固溶量の試料について比較した結果を図 I-3-2. 33 に示す。0.1%と僅かでも Ni が固溶している場合に還元雰囲気において相変態の促進効果が生じることを明らかにした。

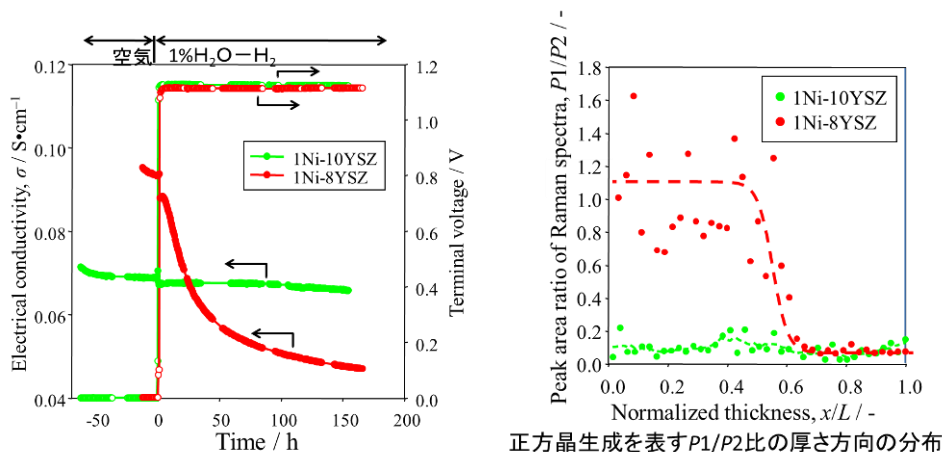


図 3-7-2.32 イットリア添加濃度による相変態進行挙動の違い
(左：900°Cの air vs. H₂ 雰囲気における Ni 固溶 10YSZ と 8YSZ の伝導度経時変化、
右：測定後試料の断面ラマン分析によるテトラ化進行度の解析結果)

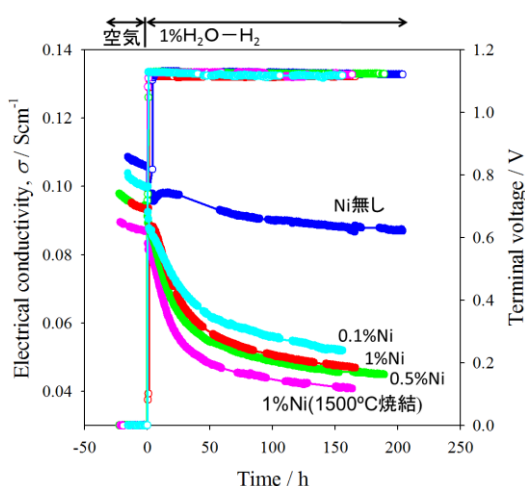


図 3-7-2.33 8YSZ への Ni 固溶による伝導度低下の促進効果

i)-2) 劣化速度の実測

異なる作動温度におけるシミュレーションへ利用可能な劣化パラメータ取得を目的として、1000°C~700°Cにて、相変態進行による伝導度低下速度の調査を行った。図 3-7-2. 34 に水素導入直後からの伝導度の経時変化を各温度で測定した結果を示す。高温域においては急速な劣化が生

じたことに対し、温度の低下に従い劣化速度が緩やかになることが確認された。温度によって異なる劣化速度をシミュレーションへ導入するために劣化時定数(τ)としてパラメータ化を検討した。

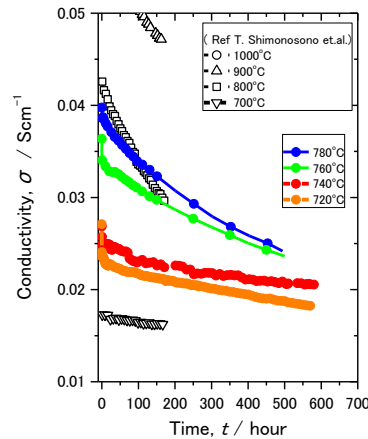
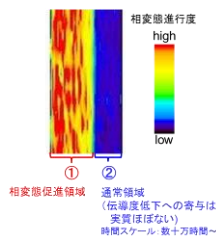


図 3-7-2.34 1000～700°Cにおける Ni-YSZ の air vs H₂ 雰囲気での伝導度低下



伝導度低下の時定数算出に用いたフィッティング式

$$R_{\text{tot}} = L * \frac{1}{(\sigma_1 - \sigma_d) * \exp(-t/\tau_1) + \sigma_d} + (1-L) * \frac{1}{(\sigma_1 - \sigma_d) * \exp(-t/\tau_2) + \sigma_d}$$

- L: 相変態促進領域の割合 (実験後の相変態領域割合) 固定値(実測値)
- σ_1 : 初期伝導度 変数
- σ_d : 劣化進行後の伝導度 変数
- τ_1, τ_2 : 相変態促進領域および通常領域における劣化の時定数 変数
- t: 時間 x軸

図 3-7-2.35

得られた伝導度の経時変化および測定後試料のラマン分析より相変態の進行した領域を把握し、相変態の進行していない領域と区別した伝導度変化に対して、図 I-3-2.35 に示すフィッティング式を作成し時定数を決定した。図 3-7-2.36 に各温度の測定値から算出した時定数を示す。赤色で示すプロットは相変態が促進された場合における時定数であり、実機セルの作動温度を含む 1000°C から 700°C の範囲においてアレニウス型の温度依存性を示すことが明らかとなった。

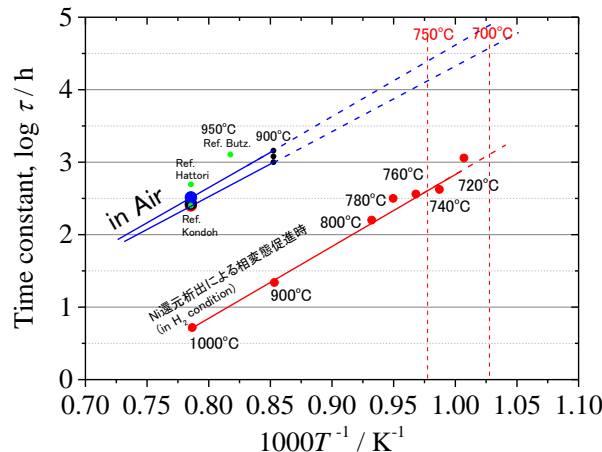


図 3-7-2.36 相変態進行による伝導度低下の時定数

i)-3) パラメータ構築

上述の通り収集した各種物性について、図 I-3-2.37 のように定式化した。温度と酸素分圧の関数とした酸化物イオン伝導度および電子伝導度は劣化後の値へと収束させるため自然対数項により時定数を用いて設定した。また劣化時定数に関しては相変態の促進効果の有無によって異なる値を用いるために電解質中の酸素ポテンシャル分布に対して Ni +1/2O₂ ⇌ NiO の平衡酸素分圧を基準に

場合分けが可能となるよう設定した。

導電率:

$$\sigma_{O_2}^{sYSZ} = (\sigma_{O_2}^j - \sigma_{O_2}^d) \exp(-t/\tau) + \sigma_{O_2}^d \dots (1)$$

$$\sigma_e^{sYSZ} = (\sigma_e^j - \sigma_e^d) \exp(-t/\tau) + \sigma_e^d + \sigma_n \dots (2)$$

σ^j : 初期導電率
 σ^d : 劣化進行後の導電率
 t : 時間
 τ : 劣化の時定数
 θ : 温度

$$\sigma_{O_2}^j = 2.88 \times 10^3 \exp(-11904/\theta) \quad \sigma_e^j = 7.82 \times 10^6 \exp(-44984/\theta) p_{O_2}^{-1/4} \quad \sigma_n = 2.25 \times 10^3 \exp(-19362/\theta) p_{O_2}^{1/4}$$

$$\sigma_{O_2}^d = 7.94 \times 10^2 \exp(-11881/\theta) \quad \sigma_e^d = 4.07 \times 10^6 \exp(-44984/\theta) p_{O_2}^{-1/4}$$

Ni-NiO平衡分圧 $p_{O_2}^{Ni-NiO}$ に基づいて時定数を分岐

還元雰囲気 ($p_{O_2} \leq p_{O_2}^{Ni-NiO}$) での時定数: $\tau = \tau_1 = 5.407 \times 10^{-8} \exp(23400/\theta)$

酸化雰囲気 ($p_{O_2} > p_{O_2}^{Ni-NiO}$) での時定数: $\tau = \tau_2 = 6.237 \times 10^{-6} \exp(23400/\theta)$

t は τ_1 もしくは τ_2 に依存して時間の原点が異なる。

$$p_{O_2}^{Ni-NiO} = 8.0 \times 10^8 \exp(-56362/\theta)$$

図 3-7-2. 37 経時変化パラメータの定式化

i)-4) シミュレーション計算結果

図 3-7-2. 38 に 1 次元モデルにおけるシミュレーション結果と実験結果との比較を示す。酸素ポテンシャルのシミュレーションによって得られた還元領域の境界とボタンセル試験で観測された相変態進行領域との境界線が完全に一致する結果を得た。また相変態進行領域において僅かな正方晶化度の勾配が境界付近で観測されていたが、シミュレーションの結果から相変態の進行による伝導度低下によって還元領域境界がアノード側へ後退したことが原因であることを明らかにした。

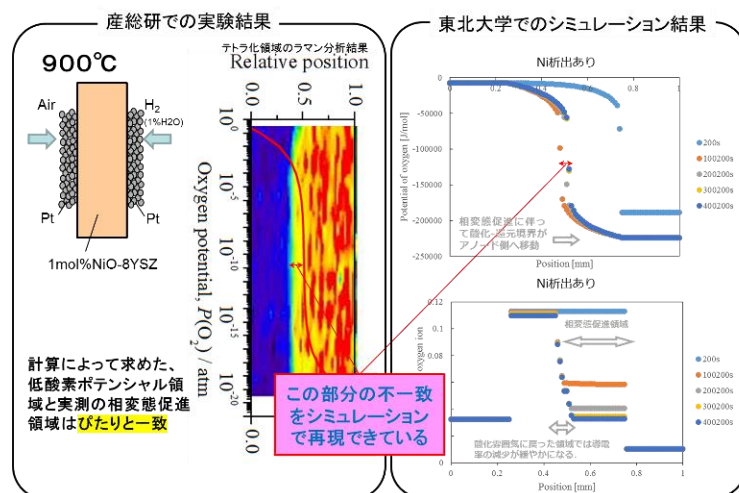


図 3-7-2. 38 1 次元モデルシミュレーションの実験値との比較

次に 2 次元モデルへ拡張したシミュレーション解析を行った。ボタンセル試験結果を模擬することを念頭に図 3-7-2. 39 に示す試料サイズ、電極配置、及び電圧印加の有無による変化を取り入れた条件にてシミュレーションを実施した。図 3-7-2. 40 に実験後試料の分析結果とシミュレーション結果の比較を示す。1 次元モデルでも確認されていた OCV 条件下において還元領域の境界がアノード側へシフトする様子を 2 次元モデルにおいても確認することができた。また、通電時の過電圧の影響を考慮することでアノード側へ還元領域がさらにシフトする様子や電極外周部への還元領域の広がりを確認でき、実測のボタンセル試験で観察された現象を明瞭にシミュレーションすることに成功した。

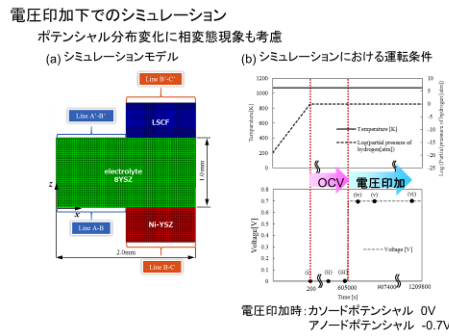


図 3-7-2. 39 2次元モデルシミュレーション計算条件

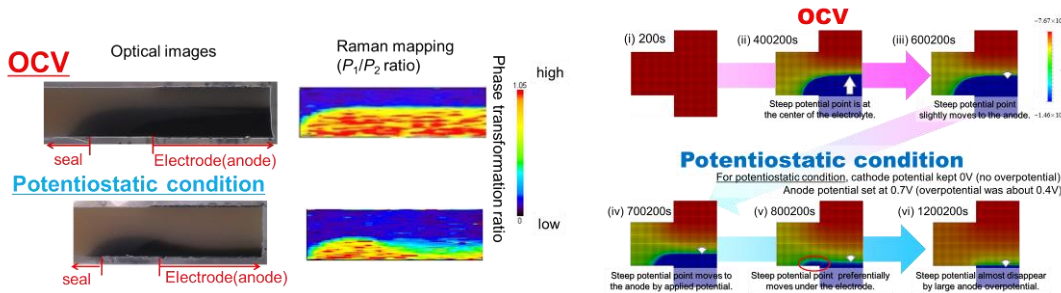


図 3-7-2. 40 シミュレーション結果と実験結果の比較

酸素ポテンシャル分布計算を基にした相変態進行による伝導度低下および酸素ポテンシャル分布の経時変化についてシミュレーション可能なツールを完成した。相変態現象は進行速度が温度依存性の強い現象であることや電極/電解質界面における過電圧が電解質内部の酸素ポテンシャル分布を決定することから、正確な温度分布や電極過電圧の把握およびネルンストロスの考慮などにより実機セルへの解析においても利用可能である。

ii) セリア中間層/電解質界面における SrZrO₃ 相の生成に伴う高抵抗層の発現について

拡散係数や表面（界面）反応交換定数などシミュレーションに必要な基礎データを収集・整理した。成果として得た基礎データについては、劣化機構解明の項においてその劣化メカニズムの考察と合わせて述べているため、そちらを参照されたい。

iii) 空気極における Cr 被毒、S 被毒現象について

反応生成物の分布および空気極材料の組成変化を考慮して、電極内への不純物投入量だけでなく堆積量や堆積の様相などを含めた性能劣化との関係を定式化し、各スタックの不純物堆積状況に応じた劣化挙動解析の基礎を試みる事が当初の目的であった。前期 3 年間の成果から、これまで想定していた表面への反応相などの堆積自体が劣化の主要因でなく、Sr や Co の欠乏による電極表面の組成変化が電極性能の重要な劣化因子であると示唆されたことから、後期 2 年間に於いては、メカニズムの解明を進めるために必要な物性値を取得する方向にシフトした。

③ 耐久性迅速評価技術の開発（電力中央研究所、東京大学、京都大学、東北大学、産業技術総合研究所）

表 3-7-3.1 耐久性迅速評価技術の開発（2013-2017 年度）

項目名称	最終目標 (2017 年度末)	成果	達成度	今後の課題
耐久性迅速評価技術の開発	開発された耐久性迅速評価方法が十分にスタック耐久性評価方法として機能しうること、スタックメーカーと連携して検証し、改善点の抽出を行い、評価方法としての確立を図る。	各寄与毎の劣化機構を定量的に検討する中で、多くの劣化現象が、単独の材料によるものではなく、空気極/電解質/燃料極間の複雑な相互作用によって生じていることが明らかになった。 オーム損増大の中で原因究明に至らなかった事例が発生し、従来より更なる高度な解析の必要性が示唆された。	○	今後の高性能化、強靱化に伴い電解質の薄膜化が進展することが予想され、燃料極から空気極へのプロトンの移動、陽イオンの粒界経由での輸送などを検討することが必要であろう。

2013 年度から 2017 年度までの成果を以下にまとめて示す。

a 共通課題としての劣化機構解明のモデル化と寿命予測技術

プロジェクトから続けられてきた劣化要因の抽出並びに劣化機構解明の進捗状況をまとめたものを図 3.7.3-1 に示す。

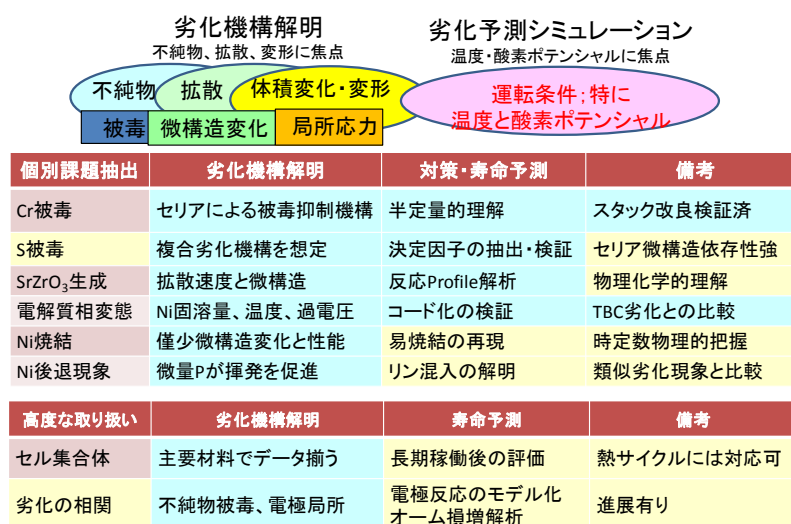


図 3.7.3-1 劣化機構解明とシミュレーション技術の適用。

空気極の硫黄被毒が最後までその機構についての考察が続けられた。結論的には空気極単独の劣

化ではなく、セリア系中間層の微構造（緻密か多孔か）・YSZ 電解質の厚さなども関与することが示唆され、空気極から燃料極まで含めた系で考察する必要性が認められた。このような高度な観点から解析すべき劣化のあたらな様相が明らかになった。空気極とオーム損増との相関も同じ様相を持った現象と見なせる。また、最も理論的解析の進んだ YSZ 系電解質の相変態による伝導度低下現象も、空気極・燃料極劣化と合わせて考察すべき対象であることが再確認された。

相変態による伝導度低下の理論的理解が進むにつれ、観測されたオーム損増（特にセリア中間層が緻密な系での）の原因究明が重要な課題となった。発電部+インターコネクト部に起因することが確認されているので、主に緻密 GDC-YSZ に起因するものとして解析・考察・再現実験などを行ったが、決定的な確証を得るには至らなかった。今後の課題である。空気極劣化との関連で言えば、プロトンなどの影響が想定されるが、プロトンの影響を調べるためには分析方法に限界があり、情報の収集が満足にできていない。また、バルクではなく、異相界面あるいは 2 相分離面でのイオンブロック効果も想定されるが、抵抗を増加させている部位の特定には至らなかった。

b. 部位毎の劣化機構解明とモデル化

次に部位毎に前プロジェクトからの成果も含めて、現状の認識を示す。

i) 電解質の耐久性・信頼性（伝導度低下など）

長期稼働中の電解質の耐久性・信頼性を決める要因として重要なものは、単に温度と稼働時間のみならず次のような諸点についても考慮しなければならない。

(a) 空気極・燃料極の過電圧の変化に連動する電解質内酸素ポテンシャル分布とその変化

電解質中の酸素ポテンシャル分布は伝導特性の他、固溶遷移金属酸化物の Redox に影響を与えるため、これらの物性が劣化に関与している場合には、酸素ポテンシャル分布がどのように展開しているかが重要となる。見落としがちなのは、空気極あるいは燃料極の劣化によって過電圧が変化すると、電解質内部の酸素ポテンシャル分布が変化することである。特に、電子伝導度が最小になる領域では酸素ポテンシャル勾配が急峻になるため、分布がシフトすると、特定の領域で酸化側であったものが還元側に変化することが起こりえる。

(b) 特に還元域における固溶遷移金属 (Ni, Mn) 酸化物の還元に関連する速度論的效果

固体電解質中で固溶している主たる構成成分以外酸化物成分が酸化・還元される場合、内部酸化・還元として整理され酸素が出入りするために、酸化物イオンと電子（ホール）の拡散が速度論的因子となる。更に、第 2 相析出、ポア生成などを伴うときには核形成の速度論的な因子も関与することとなる。

(c) 陽イオン空孔濃度に依存する拡散過程

電解質中のなかでは、電場に起因する駆動力も拡散に関与するため、陽イオンはカソード方向へ、陰イオンはアノード方向へ移動する駆動力が通常の濃度拡散の駆動力に加えて関与する。

以下では具体的な劣化現象においてこれらの要因を考察する。

a) 相変態による伝導度低下

高温で熱力学的に安定な立方晶 YSZ は温度の低下に伴って次のように正方晶へと相変態する。

(I) 立方晶 (c) => (II) 正方晶 (t') => (III) (正方晶 (t'') + 立方晶 (c))

状態 (I) の立方晶の安定域は Y2O3 の組成に依存するが、Y2O3 濃度が高いほど低い温度まで安定である。温度 (T0) と表現される温度以下では立方晶はもはや安定ではなく、同じ Y 濃度の正方晶 (t') に相変態する。この変態は陽イオンの無拡散で起こり、陽イオンと酸化物イオンとの相対的な位置が変移する。この正方晶を t' 相と表現する（状態 (II) に対応）。この無拡散転移は Y 濃度に依存せず起こる。即ち、8YSZ でも 10YSZ でも生じる。この段階での相転移ではイオン伝導度の低下は起こらない。次に Y 濃度に依存して、状態 (III) に移行する。即ち、結晶整合性をもった（正方晶 (t'') 相と組成は出発組成と異なる立方晶 (c)）の混合体の核が形成し、成長する過程が続く。このとき t'' 相から Y が拡散して C 相の Y 濃度が増加する。このように Y の拡散を伴うので、陽イオン配置が変化することによって酸化物イオン伝導度が低下する現象が Y の拡散によって記述することができる。拡散が律速である相変態の進行度は、拡散係数とその活性化エネルギーで定量的に評価できる。

NiO 還元の促進効果は、NiO が Ni に還元する過程が YSZ 電解質の内部で起こるために、電解質内部に一時的に陽イオン空孔が生成し、陽イオン拡散が促進されるという機構で半定量的に説明できる。即ち、NiO が Ni に還元される領域では、時定数が約 2 桁早い値がボタンセルから得られた。これは、NiO の還元によって陽イオン拡散係数が 2 桁大きくなることに対応している。このような考

察から、還元領域と酸化領域では相変態による伝導度低下が異なる時定数で進行するというモデルを提案し、900°Cでのボタンセルの実験結果と比較するために、シミュレーションしたところ、良い一致が得られ、相変態後の電子伝導度が低下するために酸素ポテンシャル分布がよりアノード側へシフトすることおよびその程度がモデルによって良く再現できることが明らかになった。他方、このシミュレーション結果から類推される800°C以下の挙動が、必ずしも実験結果と一致しないことから、さらに800°C以下での実験した結果より、いくつかの特徴ある傾向が認められた。NiO還元促進効果が小さくなる傾向が低温ほどでてくること、さらには還元初期で黒化が広くカソード近くまで進行すること等である。これらは、いずれもNiO還元速度論的効果が現れたためと思われる。即ち、二時定数モデルで想定したNiO還元域での相変態の速度が、予想よりも大きく、さらには還元途中で電子伝導度が一時的に増加する効果が現れると想定された。

以上のようなボタンセル試験で求められた結果とスタックの分析結果とを比較検討すると次のような留意事項が認められた。

(a) 750°Cで稼働させた場合、還元域と酸化域では相変態速度が異なることが観測されモデルとよく整合する。また、ラマンの強度比から推算される伝導度低下値は電中研で観測されたオーム損増加とよく定量的な一致を示す。

(b) 他方、時定数は、ボタンセルでのNiO還元域で評価された値よりも遅く、ボタンセルのNiO非還元領域の値と良く合う傾向が認められた。これより、出発時点（製造後）での陽イオン空孔濃度に差があると解釈するのが最も合理的であろう。

(c) 700°Cで稼働させたスタックでは、いずれもラマンによる観測では相変態の存在がみとめられなかった。最も妥当な解釈は、これらのスタックではNiOの還元が起こらず、従って促進効果もなかった。さらには酸化領域でも全く相変態が進行していなかった。核形成の問題か拡散速度の問題かは、更に長い稼働実験を行わないと見定めができない。

結論的には、相変態による伝導度低下の影響は、ボタンセル実験から予想されるよりも遙かに小さい効果しか生じないことが明らかになった。

b) 固溶遷移金属酸化物 (MnO) に起因する電解質劣化 (前プロ成果)

前プロジェクトにおいて、円筒縦縞形セルのYSZ電解質の白化現象が電解質のアノード雰囲気露出している部分で生じることが認められ、その再現実験・機構解明が行われた。前項で述べたように、YSZ電解質中の混入金属酸化物の酸化・還元は、750-800°Cで多くの速度論的効果を伴うことが強く示唆された。

前プロジェクトではアノード側表面近傍での急峻な酸素ポテンシャル勾配が電解質白化の要因の一つで他の要因はMn3O4相が析出のための核形成がこの急峻なポテンシャル勾配の還元側で起こることを示唆した。近年、Julich研究所で2例報告されている薄膜YSZ電解質中にマンガン酸化物が析出してクラックが生じる現象は、同様な機構で説明できることを示した。

マンガン酸化物成分は、カソード側より固溶するが、カソード側の酸素ポテンシャル域ではマンガンの拡散は早く、他方で、マンガンの固容量が固溶限以上でもMn3O4相が析出しないことが知られている。従ってMn3O4相の析出と成長は、急峻な酸素ポテンシャル勾配のアノード側で進行する。このとき、酸化領域側からMn成分が拡散で供給され、Mn3O4の成長がYSZ側の拡散（場所を空けるため）を伴って進行する。いずれの過程も陽イオンの拡散が律速であるため、ゆっくりと進行する。他方、稼働中に空気極劣化が進行すると、過電圧が大きくなり、これに伴った、急峻な酸素ポテンシャル域が酸化側にシフトする。すると、Mn3O4相として存在していた粒が還元してMnOになる可能性が大きくなる。この還元は体積膨張を引き起こる。YSZ電解質内部での還元反応なので、酸化物イオンと電子との拡散が律速するが、電子の方が遅い。一方、電子と陽イオンの拡散を比べると電子の方が早いので、還元に伴う体積変化を緩和することができない。このため、クラックが生じることになる。

表 3. 7. 3-1 空気極・電解質複合体の微構造変化と空気極劣化・オーム損増加要因

Stacks4 kh,	Ca	El	Interlayer		SrZrO ₃		Cr	S	$\mu(\text{CA})$ /mV	RI/ mV	Remark	
MHPS	LSCM	YSZ	SDC	porous	No	no	no	*1	no	11-14	46-61	23kh, Stable
京セラ	LSF-based	YSZ	DC	porous	no	little	no	*2	little	12-21	113-122	10kh, 2012
									appear	15-60	71-86	7.8kh, 2016
									disappear	15-38	81-91	12kh, 2016 CF
日本特殊陶業	LSCF	YSZ	GDC	porous	little	some	no	*2	Little	17-34	44-62	K contamination
日本ガイシ	LSCF	YSZ	GDC	dense	no	no	No	*3	appear	45-82	98-118	11kh, S
									disappear	25-28	123-151	10kh, CF
村田製作所	LSCF	ScSZ	GDC	dense	no	no	No	*3	appear	33-51	97-128	Sulfur
									disappear	39-48	82-102	4kh,CF
デンソー	LSC	YSZ	GDC	dense	No	No			Appear(?)	35-71	89-97	Due to cross leak
TOTO	LSCF	LSGM	no	no	-	-	*4	*2	appear	26-58	78-78	10kh, 700 Cr,S
									appear	40-83	124-136	10kh, 630
									Little	38-41	112-128	4kh, 700 CF

ii) 空気極劣化理解の進展（硫黄/クロム被毒、水蒸気効果）

数千時間以上の長期間にわたる空気極劣化挙動をより深く理解するために、従来の劣化モデルを拡張し、セリア中間層の寄与・電解質の厚さの効果などプロトンの寄与に関する効果、空気極が関与する（化学）変化が酸素還元反応・拡散に及ぼす効果、表面組成変化を回復する過程（空気極内陽イオン拡散など）も取り入れて考察した。

各スタックでの空気極関連劣化挙動を比較するために、表 3. 7. 3-1 を作成した。各スタックで複数のデータを示しているのは、電中研サイトでの硫黄汚染が明確化した前後の状態、特に、化学フィルターの有無による違いを明示するためである。スタックによって硫黄被毒に対する感受性が異なることが示すために、色の濃淡等を用いて差別化してある。化学フィルターの設置後、空気極劣化は大きく改善したものの、オーム損増は依然として GDC 微構造（緻密度）と強い相関を示すことが明らかになった。

以下では、各劣化要因毎にその現状を述べていく。

a) マンガン系空気極の安定性・信頼性の確認

マンガン系空気極の最大の課題はクロム被毒の克服である。多くのマンガン系空気極を用いているスタックでは、クロム被毒を効果的に避けるために、クロムゲッターをセル内に設置し、クロム被毒が空気極活性域に達しないようにしている。他方、本プロジェクトに参画している MHPS 機においては、SDC 中間層をマンガン系空気極と YSZ 電解質との界面に挿入することにより、効果的にクロム被毒を克服することに成功している。その機構は次のように略記することができる。

- (a) 多孔質な SDC 層を挿入することによりある程度の空気極から拡散してくる Ca、Mn 成分を受け止め空気極とは別組成のペロブスカイト相を SDC 多孔体中に形成することにより、3 相界面長の大きな電極活性域を稼働中も確保し過電圧の低下に成功した。
- (b) 空気極、SDC 中間層域で、気相中のクロム含有気相種（CrO₂(OH)₂ 等）と反応し、一部の Cr 成分が固相にトラップされるが、空気極劣化に至るほどの大きな変化を及ぼさない。空気極最下部（SDC 層に近いところ）ではクロムの固溶により、焼結が進むが気相経路は確保されているので性能低下には至らない。
- (c) クロムのトラップによりペロブスカイト相の A-サイト欠損などが想定されるが、SDC 層からの水蒸気発生によって、三相界面近傍でクロムの再揮発、過剰な Mn の揮発が進行し、第 2 相析出を防いでいる。
- (d) マンガンの YSZ 電解質方面への移動は SDC 中間層内でストップしており、YSZ 電解質中には拡散していない。

この機構の中で重要な点は、過電圧が小さいことによってクロム成分の凝縮速度が遅くなったことで凝縮したクロムを再移動させる機構との釣り合うようになったことである。表面に吸着（化学あるいは物理）したクロム成分がペロブスカイト相内に拡散する過程がひとつであ

る。他の空気極材料の劣化現象においてもセリア系中間層中のプロトンが電気化学的に水蒸気発生する過程が想定されるが、マンガン系空気極の場合は水蒸気発生箇所として最も有力なのが三相界面であるため、三相界面近傍を水蒸気によって再揮発させる過程も存在する。これらの効果とクロムトラップ速度とが同程度であれば、比較的大きなクロム含有気相種の分圧が存在する中でもクロム被毒を受けないことになる。

b) 活性空気極のクロム被毒の克服（クロム蒸発の低減化）

マンガン系以外の中低温型活性空気極（LSF-基、LSCF、LSC等）は、SrO成分の安定化が弱く、クロム含有化学種と反応し、SrCrO₄を生成する傾向が著しい。この傾向を改善することは、SrO成分含有量を極端に小さくする以外には、SrOと安定に複合酸化物を生成するBサイトイオンを導入するしかない。ただし、活性は低下することは免れない。

従ってこのような活性空気極を用いたスタックでは、クロムが揮発しない措置が採用される。多くの場合クロム発生源である金属材料をコーティングするのが一般的な対策となる。またクロムゲッターを用いることもある。本プロジェクトに参画しているスタックでどの程度クロム対策が成功しているかを、空気極活性域にどれだけクロムが堆積しているかで判断した。表3.7.3-1に示されているように、ほとんどのスタックで空気極・電解質領域でクロムの堆積は観測されなかった。TOT0 小型円筒形セルにおいては、前プロジェクト後半において空気極・電解質界面近傍でクロムの堆積が認められたので、クロム揮発対策が施された。その結果、クロムの堆積量は激減している。

但し、注意すべき点として、SrCrO₄粒は水蒸気と反応して、再揮発し、揮発・再凝縮機構によって場所を移動することが考えられるので、今後の対処法としては、後述するようにクロムの堆積がないことと同時に SrO成分が活性域から移動し Sr組成の低下を生じていないかも確認することが必要となろう。

c) 活性空気極の硫黄被毒に対する鋭敏性が種々の状態に依存。

本プロジェクトにおいて現出したのは、電中研での空気の硫黄汚染による空気極の劣化が顕著になったことであるが、最も重要な発見は、その程度がスタック毎によって大きく変化したことである。様々な振る舞いを相互比較することによって次の要因が抽出された。

- (a) セリア中間層の微構造：最も大きな要因として抽出されたのはセリア中間層の微構造の違いである。活性空気極を用いる場合には、セリア中間層は反応防止層として機能しなければならないため、セリア中の Sr 拡散を止めることが技術的課題となる。京セラ機、NTK機などでは多孔質ながら製造時、稼働時での Sr 拡散量を抑制することに成功している。他方、日ガイ機、村田機ではセリア層を緻密に成膜することによって Sr 拡散を防止している。この多孔性と緻密性の違いが硫黄被毒には大きく影響すると示唆される。
- (b) 空気極過電圧の大きさ：日ガイ機では、空気極性能を改良することによって、異常な空気極劣化の出現を防止することができたので、空気極過電圧の大きさが劣化挙動に影響を与えていることが理解できる。
- (c) 電解質の厚さ：京セラ機は既に多くの稼働実績を有しており、通常空気中では空気極が大きく劣化しないことは実績値からも判断できるし、本プロジェクトにおいても長時間稼働後の実証機の不純物分析でも確認されてきた。2016年度機では性能向上のため、電解質を薄くしたが、そのことが原因で硫黄被毒に対してより敏感であるような振る舞いを示した。また、日ガイ機では、空気極の改良とともに、電解質の厚さを大きくしたことによって空気極の異常劣化を克服している。このことから、電解質がある厚さ以下になると、空気極劣化への影響が生じ始めることが示唆される。
- (d) 燃料極室の水蒸気分圧：TOT0機では、同じスタックを電中研サイトとTOT0サイトの両方で評価した場合に、空気極劣化挙動が大きく異なる結果を得た。電中研では加湿水素を用い、TOT0では窒素希薄水素を用いていたため、稼働中のセル内平均水蒸気分圧が影響を与えることが示唆される。このことは、燃料極内の水蒸気分圧の情報が空気極側まで輸送される機構が存在するというを示しており、プロトンの挙動がクローズアップされる。このことは、燃料極における水素分圧から電解質中のプロトンに移行する電気化学的な過程、電解質中のプロトンの拡散に関する駆動力の大きさと厚さおよび電解質中のプロトン伝導度、さらには空気極におけるプロトンの水蒸気としての放出に対応する電気化学的過程がともに関与することを示唆しており、上述の電解質厚さの効果、空気極過電

圧の効果が認められたこととよく整合する。空気極に直接影響を与える過程としては、SrO 成分の $\text{Sr}(\text{OH})_2(\text{g})$ としての電気化学的揮発反応を想定することができる。この揮発反応はクロム被毒、硫黄被毒との類似性として、LSCF 等の空気極表面域での Sr 成分の減少、 CoFe_2O_4 相析出などが想定される。

- (e) 空気極内拡散による回復：空気極の劣化の直接的な主要因として Sr 濃度の減少と関連する Co 濃度、酸化物イオン空孔濃度の減少を想定したとき、劣化の回復過程として Sr, Co の内部から表面への拡散による表面濃度の復帰が想定される。従って、劣化速度は、揮発・クロム/硫黄との反応による Sr 濃度の低下速度と拡散による回復速度のバランスによって決まる。低温ほどクロム・硫黄被毒が顕著なのは、後者の回復速度が遅く、表面の極薄い層で反応が進行し、表面状態の変化が急激になることが、表面反応の活性化エネルギーによる低温化による反応速度の低下を上回るためと理解される。

以上のように硫黄被毒が単なる空気中の硫黄濃度のみで規定されるのではなく、セリア中間層、電解質、燃料極の状態にも依存することの理解を得ることができた。

他方、クロム被毒も硫黄被毒と非常によく似た現象であるにも関わらず、上記の電解質の厚さの効果、セリア中間層の微構造の違いを示さない。これは硫黄とクロムとでは水蒸気の役割が異なるためと思われる。クロム被毒の場合、クロムを輸送する気相種は、 $\text{CrO}_2(\text{OH})_2$ であるため、常に空気中には一定の水蒸気圧があることを前提にしている。従って、 SrCrO_4 が生成・移動・堆積しやすい場所は、空気極層表面の水蒸気が逃げやすいところである。他方、クロムと反応すべき Sr 成分は、空気極のほぼ全域から水蒸気と反応して $\text{Sr}(\text{OH})_2$ となって表層に移動することになるので、Sr 濃度の減少は全域にわたる。他方、硫黄被毒の場合は、水蒸気の存在は促進効果として働くものの、 SrSO_4 が生成する場所は電気化学的に活性な領域であることが多い。このことは、活性な領域ほど、Sr 濃度の低下が激しいことになる。また、 SrSO_4 の生成反応は水蒸気の影響を大きく受けるので、上述のようなセリア中間層、電解質、燃料極などの他の構成材料の状態にも影響されるとと思われる。

d) 活性空気極の微構造変化は僅少

長期運転後の空気極微構造は FIB-SEM 分析により詳細に検討され、何らかの変化が認められたのは、日本ガイシ製筒状横縞形セルで認められた空気極全域での焼結による粗大化と日本特殊陶業製平板形セルで認められた空気極/中間層界面における微構造変化(焼結)である。前者の場合、焼結の駆動力には硫黄の影響が想定される。後者の場合には、産総研の SIMS 測定で K の存在が認められているので、K と S の混合効果によって界面にやや顕著に微構造変化が現れたものと想定される。この混合効果は空気極全域には及んでいないので、セリア系中間層、LSCF 空気極と気相の 3 相界面で選択的に化学的な効果が現れたものと推定されるので、特に GDC 中の Gd_2O_3 の安定度あるいは塩基度と K とが関与していることもあり得る。

iii) 燃料極耐久性の理解(微構造変化)

本プロジェクトに参画しているスタックにおいては、燃料極性能低下はほとんど観測されていない。他方、ヨーロッパ・米国のスタックでは燃料極の劣化が他の部位の劣化よりも大きいと報告されている例が多いので、劣化挙動の把握に大きなギャップが存在している。

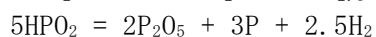
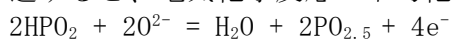
a) Ni-YSZ サーメット電極の微構造変化：スタックでは僅少

燃料極特にニッケル金属と YSZ とのサーメット燃料極の微構造変化は前プロジェクトから継続的に FIB-SEM 分析・3D 微構造再構築の手法で検討し続けてきた。他方で、電中研による性能評価解析においても空気極と燃料極過電圧の分離を行い、それぞれの劣化率を算出してきたが、総じてサーメット電極の劣化率は極めて小さい結果が出てきた。この二つの結果は非常によく整合すると判定できる。他方で、同じ手法を適用したボタンセルのサーメット電極では、劣化速度が速く、数万時間稼働させなくても検出可能な微構造変化を得ることができる。これらの微構造変化は酸化物と Ni の界面エネルギーなどによって左右されると考えるのがボタンセル解析の結果である。したがって実機セルとボタンセルとの違いは酸化物と Ni の界面状態が製造過程などによって大きく異なると仮定するのが最も合理的である。ただし、どのように界面エネルギーの違いを評価するかなどは、未だ明らかにできていない。日本国内でのサーメット電極の安定さからみると、海外スタックでは燃料極の劣化率が大きいとの報告もあるので、用いている材料(YSZ, Ni)中の不純物、製法などの違いを検討する必要があるのかもしれない。

b) 不純物リンの効果

本プロジェクトで確認できた燃料極劣化過程は、リンによるものである。前プロジェクト前期では TOT0 製円筒縦縞形セルにおける燃料極劣化が観測され、産総研の SIMS 分析でリンの蓄積が確認され、京大・東大の FIB-SEM 分析での微構造変化領域とリン堆積領域とが良い一致を示すことから、リンの影響と想定された。本プロジェクトでリンが検出されたのは、日本特殊陶業製平板形セルであり、異なる 2 スタックの長期稼働後の分析で、両スタックともにリンの堆積が認められた。京大による FIB-SEM 分析で観測された微構造変化が良く SIMS の濃度分布とよく一致した。第 1 例目では、燃料極・電解質界面から始まり、少量ではあるが緩やかに濃度が減少するプロファイルであったが、その領域で、Ni の後退現象が同程度のプロファイルで観測され、良い整合性を示した。2 例目でも同様な相関・整合性を示したが、そのプロファイルは一例目と異なり、やや大量に濃集していた。TOT0 製の場合に、リンの供給源として金属材料の異常腐食を想定した。異常腐食と定義しているのは、表面近傍で形成される酸化物スケールを破るような腐食が進行して合金の主成分である鉄が酸化される状態をさしている。このような鉄成分が酸化されるような状態では、鉄中に固溶していたリンが硫黄、シリコンとともに合金から排出されるも、酸化物中には移行せずに、水蒸気などと反応して水酸化物蒸気として気相に放出される機構を想定している。

リンが燃料極にまで到達するのは、還元雰囲気であることから $\text{HP0}_2(\text{g})$ となる。燃料極/電解質界面に達すると、電気化学反応・不均化反応が次のように起こりえる。



生成したリンは Ni に固溶して、Ni-P 合金となり、 P205 は最も塩基性の強い YSZ 中の Y_2O_3 と反応して YPO_4 が生成されることになる。Ni 中に固溶したリンの効果によって Ni の拡散がおおきくなることが Ni-S との類推から推定される。また YPO_4 が生成される場合には、Ni と YSZ との界面に生成するが、界面エネルギーが変化することによって、Ni の焼結性が変化することが、リンの蓄積量と微構造の変化量とが強く相関する特徴が現れると思われる。

i v) セル集合体の信頼性評価

前プロジェクトから継続的に取り組んできたため、基礎データの蓄積、組成変形の取り込み、電解質中、インターコネクタ中の物質移動の取り扱いなどを含めた解析が可能となった。

a) 前プロジェクト成果：円形平板形の限界試験との比較

円形平板形は円の中央から気体が入り、端部に向かって流れ、端部において残燃料と残空気が合流して燃焼する。酸素ポテンシャル分布からすると発電部位では平板の上下で勾配がつくのに対し、端部は非発電部位であり且つ燃焼域であるため、燃料側であっても酸素分圧が高い。そのため酸素ポテンシャル分布は燃料極端部に集中的に急峻な変化する。さらに電解質として用いた LSGMC 中の Co の価数が酸素ポテンシャルによって大きく変化し、結果として酸化還元による体積変化が生じ、応力集中の原因となる。応力・変形解析結果と限界試験によるクラック生成とは良く整合した。

b) 筒状形セルの変形解析

筒状平板形を模擬セルとし、現在入手可能な各部材の物性値をデータベース化して、変形・応力解析を前プロジェクトに続行した。実機セルで用いられている材料の物性値が必ずしもすべて利用ではないので、シミュレーション技術が的確に適用できるかの検証となる。製造後 (NiO 含有) セルの昇温過程から、高温での水素を燃料極室に導入し NiO を Ni に還元する過程、降温過程の各過程で生じる変形・応力集中を解析し、他方で実機の筒状平板形セルの同様な過程での変形挙動を観測し、比較検証を行った。NiO の還元に伴う変形、酸化物セパレータの還元膨張の効果をも的確にセルの変形挙動に反映させていることがわかり、方法的な有効性が確認された。また、Ni の非弾性挙動も考慮に入れられ、応力値の妥当性が向上した。

c) 平板形セルの変形解析

本プロジェクトでは、平板形セルにおける変形・応力解析を行い、特に OCV から通電における電極端部近傍での応力・変形を解析した。

d) 酸素ポテンシャル解析ソフトを商用ソフトと連結可能にした

熱膨張による変形・応力発生のみならず、酸化還元にもなる体積変化に起因する効果を取り入れるために、セルを構成する部材を酸化物イオンと電子の混合伝導体と見なして、それぞれの部材が置かれた環境下でどのような特性を示すか（体積変化、伝導度変化）を計算するコードをユニット化し、商用ソフトとのインターフェイスを提供することにより、各スタック側での自社スタックの基本データに基づいた解析ができるようにした。

他方で、実機セルでの種々の状態の変形を直接観察することを行い、変形・応力解析結果と実機セルの変形挙動とを直接比較検討できるようになった。

実際に、デンソーでは、業務用平板形セルの変形・応力計算を1セル規模でシミュレーションし、変形観測結果、性能劣化挙動などの照合し、その効果を検討した。

村田製作所でも、変形観測を行った。

日本特殊陶業では、シミュレーションを行うとともに、解析に必要な金属部材の機械的性質の評価も合わせて行った。

(f) シミュレーション技術の進展

本プロジェクトで取得できた知見の一つとして、劣化機構解明段階においてもシミュレーション技術が重要となってきたことを挙げるができる。単純な原因による劣化現象は、劣化の観測、その原因の把握、対策法の検証などが比較的スムーズに進行し、その劣化問題の克服にはあまり大きな困難がないのに対し、残された劣化問題を解決するには、セル・スタック全体の挙動の把握が重要となり、そのためには、セル・スタック各部位で起こっている現象と、他の部位で起こっている他の現象とを、整合的に把握する必要がある。このためには、適切なシミュレーション技術が不可欠になるであろう。

a) 電極性能の長期予測

長期運転後の実機セルの微構造の変化がFIB-SEM解析、3D再構築技術によって、精密に把握されるようになったため、微構造変化に起因する変化の予測確度は飛躍的に向上した。他方で、微構造変化を物理化学的に駆動する機構の解明（例えば関与する表面/界面エネルギーの変化）が必要となろう。

また、微構造の大きな変化を伴わない場合、あるいは逆に第2相が反応の結果析出するような場合には、残された電極構成主成分の表面濃度の把握が重要となろう。表面近傍、例えば数10nm程度の表面層の組成が電気化学反応には極めて重要となるにも関わらず、現在実機セルレベルの電極表面濃度を測定する技術がない。このため、ハード面での進展も含めて、より緻密な理論構築が行われることが望まれる。

b) 電解質伝導度低下の予測

ジルコニア系電解質の相変態に伴う伝導度低下については、ボタンセルの相変態による伝導度低下の実験結果を、相変態がYの拡散に支配される（時定数が拡散係数で規定される）、NiOが還元する領域では時定数が加速される（NiO還元時に生じる陽イオン空孔がYの拡散を促進させる）というモデルによって、シミュレーションを行い良好な結果を得た。この解析において電解質各点において相変態の到達度を変数として記憶することを取り入れれば、シミュレーションが有効に行えることが判明した。OCV下ばかりでなく、通電下における酸素ポテンシャル分布の変化も実験結果（黒化）と良く整合した。

800℃以下のボタンセルでは、このモデルから外れる現象も観測されたので、NiOの還元過程に焦点をあてたモデルの拡張を図り、その有効性の検証を行った。

他方でスタックの長期試験後の相変態の観測結果と伝導度低下を検討してみると、どのスタックでも稼働中に進行する相変態の度合いが大きくなく、したがって、伝導度低下も低いこと、かつ、相変態による伝導度低下がある場合にはラマン分光による相変態の観測結果と良く整合することから、上記モデルが基礎にしているNiOの還元領域で変態速度が促進されるという現象はよく認められたものの、その速度（時定数）はモデルよりも遅く、スタック材料ではYの拡散がボタンセルよりも遅いことを示唆している。また、相変態そのものが観測されないこともあり、NiOの還元効果についても、速度論的なバリアが大きいことを示唆している。

空気極/DC/YSZの複層構造下でSrの拡散を加速させSrZrO₃（SZ）生成効果の加速試験を行った京セラ機の解析では、FIB-SEM解析結果をSZを考慮にいれた3D再構築を行い、微構造変化とともに化合物生成も考慮にいれたシミュレーション技術の適用を図った。生成SZ相に

挟まれたセリア層内を酸化物イオンが偏在して通過する様子がシミュレーションでき、その有力性を確認できた。

伝導度低下現象としては、緻密に成膜された GDC/YSZ 複合膜で稼働下でのオーム損増の物理化学的理解が残された課題となっている。測定された組成深さ分布解析結果を既知の熱力学的モデルと照合し、低温では $Gd_2Zr_2O_7$ 相の析出の可能性、セリア近傍での二相分離などが示唆されたが、このことが伝導度低下と関連するかはまだ確認が取れなかった。実験的に得られた結果を、妥当と思われるモデルを用いて、予測を行い、その予測が妥当かどうかを検証するという方法論自身は今後も検討されるべき特徴を示している。今後はさらに実験的に得られた結果のみならず、それを既知のモデルを用いて高度化し、その妥当性を検証することが多くなるだろう。

c) 空気極・電解質劣化相関の解析

本プロジェクトで得られた成果のひとつとして、電流集中の寄与の解明にあろう。現象的に顕著に認められた空気極の劣化と伝導度低下との強い相関から、種々の考察を行い、最も妥当と思われる効果として電流集中がクローズアップされた。電流集中の効果としては次のように各レベルでの考察が必要とされた。

(a) 電極微構造に関連する電流集中

LSM、Ni のように電子伝導性、電極触媒能は高いもののイオン伝導性がほとんどない電極では、三相界面で電極反応が進行するため、電子電流もイオン電流も三相界面に集中する。空気極と燃料極での活性域分布が異なると、電解質内のイオン流が平行ではなく一部横方向への速度成分が加わるため、オーム損が増加する。この効果は、LSM の粒の粗大化という手法で検証された。

(b) セル内電流密度分布

通常空気、燃料がセルの一端から他端へと流れる場合、気体中の不純物で被毒を受けると、セル内での電流密度が変化し、それに応じてオーム損も増加する。クロム被毒での確認が行われた。

(c) スタック内電流密度、温度分布と電流集中

スタック内では電流密度分布とともに温度分布が重要となる。特に燃料導入部での起電力の高さを打ち消すために、オーム損・電極過電圧がより高くなる低温にシフトさせることで極端な電流集中を和らげることができる。このため、電流集中の効果は、スタック内の解析と連動させる必要があるとの考察を行った。

これらの解析・考察から、セル電極特性の均質化、電流密度の平坦化などが技術的課題として浮かび上がった。

他方、本プロジェクト当初では相関がかなり強いとの感触をもったが、その後硫黄汚染に対する実験的対策が進むにつれ、実際に強い相関を示すとして挙げた例は、別の異なる理由による個別的な事象が重なったことと再認識された。ただし、依然として京セラ 2016 年機のように、硫黄被毒を受ける時に、余分なオーム損増加を示していることがあり、被毒による何らかの非均質化が生じているものと想定している。今後のシミュレーションの課題となろう。

また関連する事象として、燃料極の水蒸気圧の大小が、空気極劣化の過敏性に影響を与えているのではないかという認識を得るに至った。この点は、今後のスタックの性能評価においてより詳しく解析すべき内容をもっている。即ち、スタック性能評価、特に空気極と燃料極過電圧の分離を行う時の大前提として、燃料側の気体の組成を変化させても空気極特性は変化しないと想定しているからである。何らかの影響があるとすると、より正確な分離を行う必要があり、分離操作の煩雑さが増加する。煩雑さに見合うより豊富な情報が得られるかが焦点となろう。

(8) 総括とまとめ (2013年-2017年度) (東京大学、産業技術総合研究所)

① 成果のまとめ

2017年度は、高耐久性技術 WG を年3回開催するとともに、基盤コンソーシアムとシミュレーション技術検討委員会の同時開催を1回行い、さらに9万時間耐久を目標とした課題の最終年度にあたるため成果の取り纏めのための全体会議を年度末の2月に行った。

9万時間耐久を目指すために電力中央研究所で行ったスタック性能評価の結果を表3.7.4-1示す。電中研における空気中の硫黄汚染を除くために設置した化学フィルター (CF) を用いた結果を主にしめす。PF と表示してあるものは物理フィルターのみのもので、CF と表示してあるものは物理フィルターと化学フィルターを併置した結果をしめす。劣化率データを示したスタックは「対象セル」行の中で下線によって示した。空気極・抵抗値・燃料極に起因する電圧降下の変化幅を mV 単位で示すとともに1000時間当たりの電圧変化率 (劣化の場合マイナス) を示す。-0.1% 程度を実現しているものは9万時間耐久性達成とし、-0.2~-0.3% 程度は4万時間耐久性達成とし、それ以上の劣化では改善が必要としてそれぞれ背景を濃淡で区別した。

第1グループは高い耐久性を再確認した。劣化機構解明も順調に進んでいる。京セラ機の2016年度機では、従来機 (2012年度機など) に比べ、空気極劣化速度が速かったが、CF 下では、劣化率は減少した。但し、従来機 (2008年機、2012年機) と比較するとやや劣化率が大い。さらにオーム損増加率も従来機よりも大きい傾向を示す。三菱日立パワーシステム機では新たな劣化要因は見いだされなかった。クロム被毒効果は小さく、生じた微構造変化も9万時間以上の耐久を示した。また、他機の解析より示唆されたマンガンの移動による電解質劣化もマンガンの固溶がYSZにまで達していないことが解り、劣化要因とはならないことが明示された。

表 3.7.4-1 電中研によるスタック性能評価結果

2018年2月現在							
	円筒横縞形 (MHPS)	筒状平板形 (京セラ)	筒状横縞形 (日本ガイシ)	一体焼結形 (村田製作所)	平板形 (日本特殊陶業)	業務用平板形 (デンソー)	小型円筒形 (TOTO)
運転温度	900°C	750°C	750°C	750°C	700°C	700°C	700/630°C
電流密度	0.15 A/cm ²	0.30	0.20	0.25	0.52(0.25)	0.53	0.21
空気極構成							
空気極・劣化率	4-13 mV -0.04%	15-41 mV -0.22%	25-39mV -0.10%	39-50 mV -0.30%	22-40 mV -0.13%	35-71 mV -0.88%	38-45mV -0.11%
抵抗値・劣化率	46-60mV -0.06%	79-91 mV -0.12%	115-143mV -0.19%	82-103 mV -0.60%	41-53mV -0.09%	89-103mV -0.21%	122-131mV -0.18%
燃料極・劣化率	11-15mV 0.00%	6-10mV 0.02%	8-11 mV 0.01%	28-33 mV -0.10%	13-25 mV -0.11%	43-51 mV -0.0%	27-32 mV -0.07%
全劣化率稼働時間	-0.10% 30000 h	-0.33% 14000 h	-0.29% 16000 h	-1.01% 5000 h	-0.33% 14000 h	-1.09% 2~5000 h	-0.36% 6000 h
対象スタック	10号機 11号機	2012機 2016機	2014機 2015機	2015機 2016機	2013機 2014機	2015機 2016機	2016仕様; 700°C、630°C
フィルタ;劣化機構解明予測	PF Cr被毒抑制に成功	CF: Cr被毒抑制 S:感受性有り	CF: Cr被毒無し S:感受性大 オーム損増	CF: S:感受性大 空気利用率などに依存 オーム損増	CF CA,AN:不純物(K,P); オーム損増	CF クロム被毒 AN:製造上不具合;クロスリーク	CF モジュール性能大幅改善

90kh耐久達成
40kh耐久性達成
要改善

他方、第2グループならびに第3グループではそれぞれ初期劣化の解析が進んだ。特に、TOTO 小型円筒形セルは化学フィルター設置した場合に空気極劣化が小さくなることが確認さ

れた。第3グループの中では、日本特殊陶業機においては、空気極劣化・燃料極劣化ともに他のスタックとは異なる機構で進むことが明らかとなり、空気極では改良によってその程度が半減したが依然として残存していること、燃料極ではリン(P)による被毒再現試験に成功し、その原因が特定された。日本ガイシ機では、改良後の空気極劣化は $-0.3\%/kh$ よりも小さくなり大幅に改善された。他方、オーム損増加の原因究明はいくつかの仮説の下で検証が行われたが、兆候を示す例も見いだされたが確定するに至らなかった。村田製作所機においても大きなオーム損増が観測されたが、LSM系空気極を用いて成膜したセルでも現出することが確認されたため、インターコネクト部に起因することが強く示唆され、種々の解析・検討が試みられた。デンソー機では、見いだされた劣化要因に対する改良が施され、性能評価がよりの確に行われるようになった。クロスリークのある場合には空気極の大きな劣化が観測された。また、劣化の多くの部分が機械的な歪み等による電氣的接触の低下によるものと推測し、歪み・変形解析を進め確認した。

2017年度で9万時間耐久を見通すための基盤技術確立のための基礎研究が終わった。当時の総括的なまとめを示す。

- 1) 電中研で採用している性能表示式の確立からオーム損、空気極過電圧、燃料極過電圧、ネルンスト損などの解析手法は強力であることが再確認された。今後の発展方向としてシミュレーション技術と連動させ、平均情報だけでなく局所的な情報の精度を上げていくことも考えられる。
- 2) 劣化機構解明においては、FIB-SEMを用いた微構造変化の検出、SIMSを用いた不純物の電気化学的活性域での検出、S-TEMを用いた組成分析を総合的に展開することによって的確な電極劣化機構を導出することができることを実証した。但し、空気極の硫黄被毒が関与する場合には、表面近傍の組成変化が重要であるとの考察を得たが、実際に組成変化を観測することは容易ではなく、不十分さが認められた。
- 3) YSZ電解質の相変態による伝導度低下に関しては、ボタンセルによる劣化機構の解明、モデル化、シミュレーションによる検証・課題抽出、更なるモデル化、スタックへの適用が順調に進み、オーム損の主たる原因が相変態ではないことを明確化した。今後更にスタックの局所的な相変態の様相を再現するシミュレーションを行うことにより、従来ではほとんど情報を得ることができなかった電流密度分布などの情報を系統的に得る可能性を高めることができた。
- 4) 前プロジェクトより系統的に進めてきた変形・応力解析では、種々の機械的性質データの収集、実機セルレベルでの適用、典型的な課題についての検証などを行い、更に変形・応力解析をする上で最重要となる酸化物の酸化還元起因する体積変化を算出するために不可欠となる酸素ポテンシャル分布の解析ソフトのユニット化・商用解析ソフトとの共用化などが実現することができた。その結果、実機レベルでの変形・応力解析が可能となり、特に平板形セルでの評価に威力を発揮できるようになった。

また、今後の発展を図る上で重要となると思われる成果・残された課題などを次に示す。

- 1) 劣化挙動の温度依存性が大きいことが判明したのが大きな成果である。特に低温で劣化が抑制される熱活性型（オーム損増など）と低温で劣化が促進・先鋭化される電極反応由来型とがある。このことより、将来的には、SOFCの適用性の拡大を図る上で温度変動にともなう劣化の進展と回復過程の把握・検証が重要となるであろう。
- 2) 空気極劣化におけるプロトンの影響が示唆されたが、次世代セルとして注目をあつめるプロトン伝導型セルでは、最も警戒すべき劣化モードとなる。他方、プロトン伝導型セルでの空気極挙動がよりよく理解されれば、YSZ型セルにおける空気極劣化がより深く理解できるようになると予想される。
- 3) 変形・応力解析シミュレーション技術が大きく進展したが、より強靱なセルの開発が必要となるときには、威力を発揮するものと期待される。
- 4) SZ相生成抑制のために取ったセリア中間層緻密化が他の劣化要因となった可能性が示唆された。一つの事象を解決するために取った施策が、他の悪影響を生じさせたことになる。このような現象は、低コスト化と高耐久性・高効率化の同時達成を図る上では乗り越えなければならない障壁の構造を示唆している。
- 5) 空気極の熱力学的な安定性と耐久性との相関が明確になってきた。即ちマンガン系のペロブスカイト電極は安定性はよいものの、クロム被毒に対する耐性が問題視されてきたが、本プロジェクトに参画しているMHPS機では、既に空気極の過電圧が小さくかつSDC

の中間層を挿入することによってクロム被毒を克服することができた。このことは空気極と熱力学安定性が耐久性に直接関与することを強く示唆している。即ち、LSF, LSCF, LSC を比較するとこの順番で SrO の熱力学的活量が高くなることから、クロム被毒、硫黄被毒も著しくなる傾向を強く示す。今後、LSC などの活性空気極を用いて性能向上を図る場合に、耐久性の維持がトレードオフ的に困難になることが予想され、このトレードオフ関係の克服が重要となろう。

- 6) スタック技術と耐久性との関連で言えば、本プロジェクトで明確になったこととしてシール剤の耐久性への影響が無視できないことをあげることができる。空気極なり燃料極中に良く見いだされる不純物としてボロン、シリコンなどは早期から認識されてきた。特にボロンは空気極中でも燃料極中でも揮発傾向が強いため、電極中で不純物としてボロンが観測されることは即ボロン成分と電極成分とが強い化学的相互作用をした後に、部分的にボロンが化合物として残存したためであることを示している。この強い化学的相互作用が、運転初期に集中して現れるのか、継続して出現しているのかを見極めることは難しいが、電極性能に必要な組成が維持されているか（空気極の場合）、微構造変化が生じていないかなどを確認することが必要とされる。通常、ボロンは SEM-EDX では検出されにくいいため、その対策が遅れがちである。SIMS を用いることのメリットはこの点にある。ボロンは多くの場合、平板形のシール用ガラスより放出される。このため、セルと同じ温度に曝されるシール剤を用いたセル・スタックでは、シール剤と金属材料との反応による二次的な不純物の放出（リンなど）に起因する劣化、ボロンの揮発による劣化を克服するのに、他のスタック方法と採用しているところに比べるとより多くの年月を必要としているようである。本プロジェクトでは、平板形、業務用平板形がこれに対応する。他の手法（例えば、レーザー溶接、コンプレッションシール）との耐久性にたいする比較検討が望まれる。
- 7) 平板形では、高電流密度で稼働させることがメリットの一つとして認識されているので、高電流密度下での性能評価が重要となる。他方、電流密度が大きいということは、単位面積当たりの発熱も大きくなるため、セル内での熱の流れ、温度勾配などが重要となる。他方で、セル内での電流密度分布、温度分布の測定は困難を伴う。他方で、セル内にどのように温度分布を作るかは、電流密度分布を平坦化する場合にも重要なポイントになる。従って、スタックの性能評価としての実験・解析技術として、一定温度に制御された電気炉の中での測定・解析ばかりでなく、ある程度実機稼働状態に近い温度分布の下での測定・解析が必要となろう。実験的には、如何に少ない測定点で全体をカバーするかという視点が重要であるとともに、測定とシミュレーションとの連動という視点も今後さらに重要になると思われる。

② 関連する課題との比較

1) 他国の SOFC スタックの劣化挙動との比較

米国ならびに EU 内でも SOFC スタックの開発と耐久性の検討が行われている。一般的な傾向として、燃料極の方が空気極よりも劣化率が高い値が報告されている。本プロジェクトでは燃料極劣化の方が小さく空気極劣化が主たる劣化要因となっていることから、大きな相違が認められる。あえてその原因を考えてみると、欧米のほとんどのスタックは平板形であるため、どのようなシール方式（シール剤）を採用しているかがポイントなろう。本プロジェクトの中では、平板形、業務用平板形が欧米セルとの共通性がより高いと考えられるが、同じように燃料極においても若干の劣化が認められるので、SOFC スタックの構造、材料、製法に依存する特徴が現れている可能性がある。本プロジェクトでは、特に留意していたのが金属材料（インターコネクト材など）とシール剤との反応による異常酸化が引き起こす二次的な汚染（P, S, Si など）である。ある程度異常酸化が制御できれば劣化率も低く抑えられると認識している。

また、DTU（デンマーク工科大学）では、DTU で今まで行ってきたセル評価試験の作動条件と劣化率との相関を検討した結果、最も大きな劣化促進要因として燃料極雰囲気における平均水蒸気分圧を抽出している。彼らの解析では、劣化が起こっているのは燃料極であるとしている。この結果は本プロジェクトで同様に抽出されたアノード雰囲気中の水蒸気圧が空気極劣化に影響を及ぼすという傾向と良く一致するが、劣化が起こっている場所の特定は、DTU ではアノードとしているものの、本プロジェクトでは空気極としている。

2) SOEC における劣化挙動との比較

ヨーロッパでは、SOEC 稼働下での劣化現象の解明が進んでいる。本プロジェクトで整理・深化させた SOFC 稼働下での劣化機構解明との比較検討を行うことは有益であろう。ここでは特に本プロジェクトにおいて焦点となったドーブセリア中のプロトンの挙動に関する SOFC 側（本プロジェクト結果）と SOEC 側（文献情報）とを比較する。

SOFC 稼働下では水蒸気圧は燃料極側が高く、空気極側が低いいため、水素（プロトン）は、常に燃料側から空気極側へ流れる。この流れがあることが本プロジェクトでのプロトン効果の特徴づけている。他方、SOEC 稼働下では、酸化物イオン流が逆方向になるため、水蒸気圧差が燃料極と空気極側とで生じていても、ある電流密度値（酸化物イオンの電気化学的ポテンシャル勾配の閾値）を超えると、プロトンは逆向きに流れを変える。従って、ドーブセリア中のプロトンをポンプアップするような駆動力が与えられ。その結果、セリア中のプロトン濃度は減少すると思われる。その程度は、空気極過電圧が大きいほどより多く減少すると予想される。したがって、SOEC 稼働下で頻出するセリア層中のクラック形成を引き起こしているのは、プロトン濃度減少による体積変化であることが示唆される。Julich 研究所では空気極の性能を向上させることによって、クラック生成を防いでいるので、本プロジェクトで提案している機構との整合性はよい。また、Sunfire セルの解析では、YSZ と接している緻密 GDC 層中にポアが生成している。前プロジェクトで確認されたセリア/YSZ 界面でのポア生成は SOFC 稼働下では、セリア中と YSZ 中の陽イオン拡散係数の違いによって解釈されるが、SOEC 稼働下では、セリアが YSZ 中へ拡散する Kirkendal Pore か、前述のプロトン濃度減少によるポア生成かが有力な候補となろう。どちらの場合でも、高電流密度下での陽イオン（あるいはプロトン）の燃料側への拡散の駆動力が生じることに原因を求めることができる。同様な駆動力の方向の違いはセリア-YSZ 中間域における SrZrO_3 生成動向にも現れる。

(9) スタック耐久性評価 (2018年度～2019年度)

① スタック過酷試験 (電力中央研究所、産業技術総合研究所、共同実施：京セラ株式会社、日本特殊陶業株式会社、日本ガイシ株式会社、株式会社デンソー、東京ガス株式会社、東邦ガス株式会社)

スタック過酷試験での目標と達成度について以下の表に示し、その概要を報告する。

表 3-8-1.1 スタック過酷試験による電池性能の解明 (2018-2019年度)

項目名称	最終目標 (2019年度末)	成果	達成度	今後の課題
スタック過酷試験による電池性能の解明	・スタック開発企業の協力のもと、平成29年度までの耐久性迅速評価プロジェクトで開発されたスタックを、運用限界近辺で稼働させ、試験後の解体分析をおこなう。高効率運転時の劣化因子・課題を抽出する。	高効率運転を想定し、燃料利用率80%以上での運転、及び負荷変動運転をおこない、高効率運転の可能性を示した。高燃料利用率運転での劣化因子の解明をおこない、検討範囲では通常運転での劣化と類似であることを解明した。	○	更なる耐久性評価に対応する高度な分析・解析技術の開発

a. スタック過酷試験による電池性能の解明 (電力中央研究所)

i) 研究開発の内容

自然変動型再生可能エネルギーに対応可能な需給調整型(高速負荷変動対応:10秒以内の変動に応答可能な予備力)SOFCシステムに必要な高効率・強靱化セルスタック開発のための課題抽出を目的としている。SOFCの高速負荷変動対応性を評価するために、これまでの運用燃料利用率を超える運用限界近傍での過酷試験プロトコルを立案し、立案したプロトコルを各社のセルスタックに適用し過酷試験を行うことにより、短時間での高速負荷変動の許容範囲や負荷応答特性を明確化する。さらに、得られた高速負荷変動の許容範囲において、長期的なセルスタック性能への影響を検証するため、1,000時間以上の連続過酷試験を行い、劣化挙動に関するデータを収集する。連続試験中は、定期的に性能評価を実施し、各過電圧の経時的な変化を抽出すると共に、過去明らかになっている劣化現象との比較を行う。

ii) 2018-2019年度の成果

ii)-1) 過酷試験方法

瞬時的な負荷変動に対するSOFCの負荷変動応答を評価するために、負荷波形(矩形波、三角波、鋸波)、変動周期(ミリ秒～数十秒)、燃料利用率(Uf)等の過酷試験パラメータを参画機関およびSOFC開発メーカー4社(表3-8-1.2)と共に協議し、最終的に負荷波形(三角波)、変動周期(ミリ秒～数十秒)、燃料利用率(Uf)等の過酷試験パラメータについて、燃料流量は設定Ufで固定とし、負荷変動として設定Ufに対し±15%となる電流制御の負荷変動による過酷試験プロトコルを構築した(表3-8-1.3)。また、過酷試験を効率的に行うため、既存の試験装置2台を改造、試験装置1台を新設した。

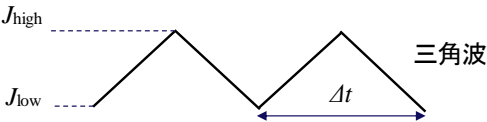
Uf=80%、85%とした場合、瞬時的にはUf=95%、100%となる過酷試験である。構築したプロトコルによる過酷試験では、まず、設定Ufを80%として変動周期を0.02～20秒と変えた短期的な負荷変動を実施した。また、長期的な影響を評価するために、連続過酷試験として変動周期を10秒、試験期間を2,000時間と定め、長期負荷変動を実施した。更に、連続過酷試験の性能変化のリファレンスとして、5,000時間超の一定負荷試験も並行して実施した。連続試験中の負荷変動条件では試験の前後に、一定負荷条件では1,000時間毎に性能低下要因解析による性能評価を実施し、各過電圧の経時的な変化を抽出した。瞬時負荷応答とは、SOFCシステムにおけるインバータからなるパワー

コンディショナが独立して電流変動制御を行う時間領域におけるセル電圧の応答をいう。その場合、燃料の流量制御は電流制御に追従できず、流量制御は一定となる。

表 3-8-1.2 2018-2019 年度に試験を実施した各社 SOFC の仕様と概観

筒状平板形	中温筒状横縞形	中温平板形	業務用平板形
Kyocera	NGK	NTK	DENSO
2018年度仕様 6セルスタック	2018年度仕様	2014年改2仕様 6セルスタック	2018年度仕様 5セルスタック
			
<p>注: 各メーカー負荷変動に対する特別仕様ではなく、これまでの耐久性試験の中で開発したセルスタック仕様で、高速負荷変動試験を実施。 → 高速負荷変動に対する技術課題を抽出</p>			

表 3-8-1.3 過酷試験プロトコル(負荷変動*)

スタック形式	筒状平板形 (京セラ)	中温筒状横縞形 (日本ガイシ)	中温平板形 (日本特殊陶業)	業務用平板形 (デンソー)
圧力 P	0.101MPa			
各社設定温度 T	750°C	750°C	700°C	700°C
燃料組成 酸化剤組成	$H_2/CO_2/H_2O = 64/16/20\%$ Air			
設定燃料利用率 U_f 下限/上限 $U_{f, low} / U_{f, high}$	$U_f=80\% : 65/95\%$ $U_f=85\% : 70/100\%$			$U_f=75\% : 60/90\%$ $U_f=85\% : 70/100\%$
各社設定電流密度 J 下限/上限 J_{low} / J_{high}	0.36 A/cm ² $U_f=80\% : 0.29/0.43$ A/cm ² $U_f=85\% : 0.30/0.42$ A/cm ²	0.20 A/cm ² $U_f=80\% : 0.16/0.24$ A/cm ² $U_f=85\% : 0.16/0.24$ A/cm ²	0.52 A/cm ² $U_f=80\% : 0.42/0.62$ A/cm ² $U_f=85\% : 0.43/0.61$ A/cm ²	0.53 A/cm ² $U_f=75\% : 0.42/0.64$ A/cm ² $U_f=85\% : 0.44/0.62$ A/cm ²
変動周期 Δt	0.02, 0.2, 2, 10, 20sec			0.02, 0.2, 2sec
変動波形				

*負荷変動では、燃料流量一定下において燃料電池から取り出す電流のみを変動させる。この時、電流と燃料利用率は比例関係にある。

ii)-2) 短時間での高速負荷変動の許容範囲や負荷応答特性の検討

SOFC開発メーカー4社のSOFCセルスタックの高速負荷変動試験（設定値： $U_f=80\%$ 、三角波）を変動周期（0.02、0.2、2、10、20秒）としてそれぞれ60分間実施した（図3-8-1.1）。出力密度 $W(t)$ は、 $W(t < 0)$ （変動試験前の15分間の一定負荷における平均出力密度）によって正規化され、5サイクルが示されている。京セラと日本ガイシの2018年モデルのセルスタックと日本特殊陶業の2014年モデル改2のセルスタックは、それぞれ変動周期0.02、0.2、2秒では、出力密度の応答は変動電流に対して直線性を示した。図3-8-1.1に示すように、変動幅は出力密度 $W(t < 0, 100\%$ 相当）に対して約83~116%であり、電流変動と同期している。一方、変動周期が10秒以上になると、その応答の線形性が高電流密度側で徐々に崩れる傾向にあった。これはより高電流密度で運転する日本特殊陶業製の結果に顕著に表れている。デンソーの2018年モデルのセルスタックでは、変動幅は電力密度 $W(t < 0)$ に対して86~113%（100%に相当）であり、電流変動と同期している。変動周期が0.02~0.2秒の間では、電力密度の応答は変動電流に対し

て線形性を示した。一方、変動周期が2秒の場合、その応答の線形性は高電流密度側で徐々に崩れる傾向にあった。

更に燃料利用率が高い条件で高速負荷変動試験（設定値：Uf=85%、三角波）を変動周期（0.02、0.2、2、10、20秒）として京セラと日本特殊陶業のセルスタックにおいて、それぞれ60分間実施した（図3-8-1.2）。京セラの2018年モデルのセルスタックと日本特殊陶業の2014年モデル改2のセルスタックは、それぞれ変動周期0.02、0.2、2秒では、出力密度の応答は変動電流に対して直線性を示し、電流変動と同期している。一方、変動周期が10秒以上になると、その応答の線形性は、京セラのセルスタックでも高電流密度側での線形性が崩れる傾向を示した。また、日本特殊陶業のセルスタックでは、高電流密度側で線形性が顕著に崩れる結果となった。

ガス流量一定条件下での瞬時負荷変動試験では、高燃料利用率側、すなわち高電流密度側で瞬間的に燃料利用率が95%および100%まで変化するため、アノードで燃料ガスが瞬時に著しく消費される。アノードへの燃料ガスの供給が不足するにつれて、濃度過電圧が支配的になると考えられる。各セルスタックにおける0.02~2秒（デンソーセルでは0.02~0.2秒）という比較的変動周期が短い負荷変動では、アノード内の燃料ガスが消費される前に電流が変動するため、電力応答の良好な線形性が得られると考えられる。一方、負荷変動周期が10秒以上であると、アノード内の燃料ガスが高電流密度側で消費されるため、濃度過電圧が顕在化する。このため、高電流密度側での応答は線形性が徐々に崩れる傾向となったと考えられる。

現行のセルスタックモデルを用いたSOFCシステムとして高速負荷変動に追従する場合、各SOFCセルスタックにおいて、瞬時負荷変動に同期することができる変動周期0.02~2秒（50~0.5Hz）の範囲では、インバータで電流を制御することで瞬時に電力を制御することが可能であると考えられる。一方、変動周期10秒以上の負荷変動にインバータ単体の電流制御によってSOFCシステムは特に高電流密度側で追従することが難しいと考えられるため、SOFCシステム側の燃料制御を変動周期に追従させる必要があると考えられる。

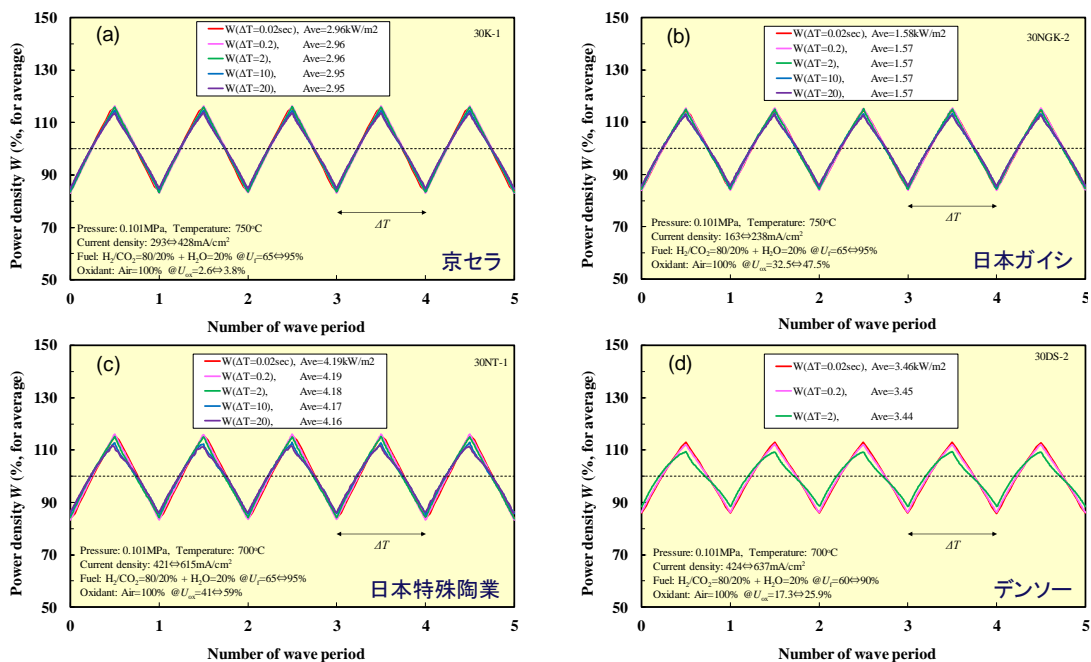


図3-8-1.1 高速負荷変動 (Uf=80%±15%) に対する各社セルスタックの応答特性
 (a)筒状平板形（京セラ製）、(b)筒状横縞形（日本ガイシ製）、
 (c)中温平板形（日本特殊陶業製）、(d)業務用平板形（デンソー製）

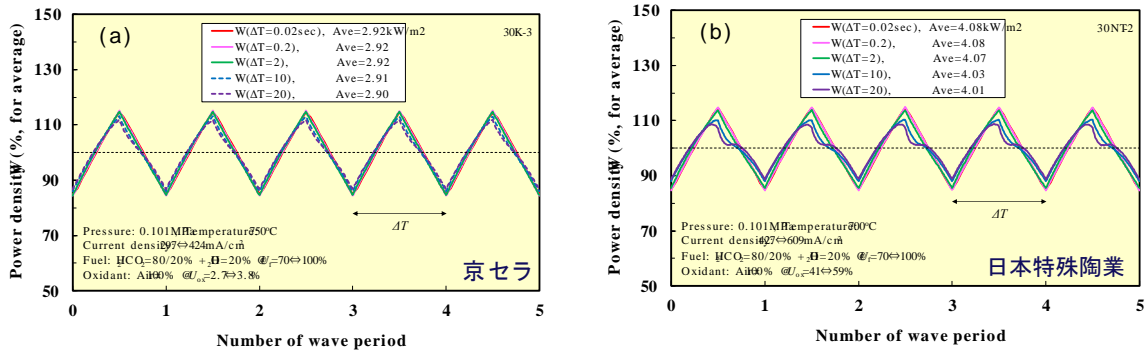


図3-8-1.2 高速負荷変動 ($U_f=85\pm 15\%$) に対する各社セルスタックの応答特性
 (a)筒状平板形 (京セラ製)、(b)中温平板形 (日本特殊陶業製)

ii)-3) 長期的なセルスタック性能への影響の検証

各社スタックに対して $U_f=80$ および 85% (一部スタック) の条件で負荷変動周期を10秒と定め、負荷変動を伴う連続過酷試験を2,000時間実施した。並行して、負荷変動の性能への影響を比較するため、各社スタックに対して5,000時間を越える通常一定負荷 ($U_f=80\%$) および高効率一定負荷 ($U_f=85\%$) 条件での連続一定負荷試験を実施した。

筒状平板形セルスタック (京セラ製) では、高効率スタックへ向けて従来の $U_f=75\%$ から $U_f=80\%$ へ燃料利用率を高めた「2018年度仕様」のセルスタックを対象に一定負荷連続試験を実施した (図3-8-1.3)。本セルスタックは、従来の「2016年度仕様」 ($300\text{mA}/\text{cm}^2$) よりも高電流密度化 ($360\text{mA}/\text{cm}^2$) も図られている。約5,500時間の連続一定負荷運転を実施し、約1.4万時間運転した「2016年度仕様」 (電圧変化率: $-0.33\%/1,000\text{hr}$) に対し、高燃料利用率かつ電流密度1.2倍であるが、ほぼ同程度のセル出力電圧を維持し、且つ電圧変化率は $-0.31\%/1,000\text{hr}$ である。本事業終了時まで1.0万時間時間を超える運転を継続し、電圧変化率の推移を観察する予定である。

性能表示式により性能低下要因として1,000時間毎の抵抗分離評価の結果を図3-8-1.4に示す。2016年度仕様よりも高燃料利用率での試験であるが、IR損、カソード過電圧、およびアノード過電圧の変化率は、共に2016年度仕様と同レベルで推移した。

前述の「2018年度仕様」と同仕様のセルスタックを用いて、2,000時間の連続負荷変動試験を実施した。図3-8-1.5には、三角波での負荷変動試験 (設定: $U_f=80\%$ 、 $J=0.36\text{A}/\text{cm}^2$ 、変動周期: 10秒) 中の瞬時毎に測定されたセル電圧 V 、電流密度 I および出力密度 W の5周期分の波形の経時変化を示す。セル電圧の変動波形から判断する限り、2,000時間の負荷変動試験において大きな波形の変動は認められなかった。図3-8-1.6には、連続負荷変動に供したセルスタックの平均セル電圧の経時変化を一定負荷ベース試験のセルスタックの平均セル電圧と比較した。図中の連続負荷変動試験2,000時間と同じ期間での2つのセルスタックの平均セル電圧変化率は、負荷変動試験では $-0.28\%/1,000$ 時間であり、一定負荷試験では $-0.26\%/1,000$ 時間であり、本セルスタックにおいては、2,000時間の連続負荷変動による電池性能への影響はほぼなかったと考えられる。連続試験前後に性能表示式により性能低下要因として抵抗分離した結果を図3-8-1.7に示す。一定負荷試験における抵抗分離結果と比較したところ、各抵抗成分共に一定負荷試験と同様の経時変化を示し、連続負荷変動による影響はなかったことがわかった。

図3-8-1.8には、三角波での負荷変動試験 (設定: $U_f=85\%$ 、 $J=0.36\text{A}/\text{cm}^2$ 、変動周期: 10秒) 中の瞬時毎に測定されたセル電圧 V 、電流密度 I および出力密度 W の5周期分の波形の経時変化を示す。セル電圧の変動波形から判断する限り、2,000時間の負荷変動試験において大きな波形の変動は認められない。図3-8-1.9には、連続負荷変動に供したセルスタックの平均セル電圧の経時変化を一定負荷ベース試験のセルスタックの平均セル電圧と比較した。一定負荷ベース試験は、試験開始から経過時間が約1,200時間であり、図中の連続負荷変動試験2,000時間と同じ期間での2つのセルスタックの平均セル電圧変化率を比較した場合、負荷変動試験では $-0.27\%/1,000$ 時間であり、一定負荷試験では2,000時間の内、約600時間が経過して $-0.24\%/1,000$ 時間である。本セルスタックにおいては、一定負荷試験2,000時間を試験した後、最終的にはセル電圧変化率を

比較するが、既に終了している負荷変動 $U_f=80$, 85%の試験結果同士を比較しても、それぞれ $-0.28\%/1,000$ 時間と $-0.27\%/1,000$ 時間であり、さほど電圧変化率には変化がなく、 $U_f=85\%$ においても連続負荷変動による電池性能への影響はないことが推察される。連続試験前後に性能表示式により性能低下要因として抵抗分離した結果を図3-8-1.10に示す。一定負荷試験が約1,200時間の運転であり、今後約2,000時間運転経過時により、連続負荷変動試験の影響評価を行う予定である。

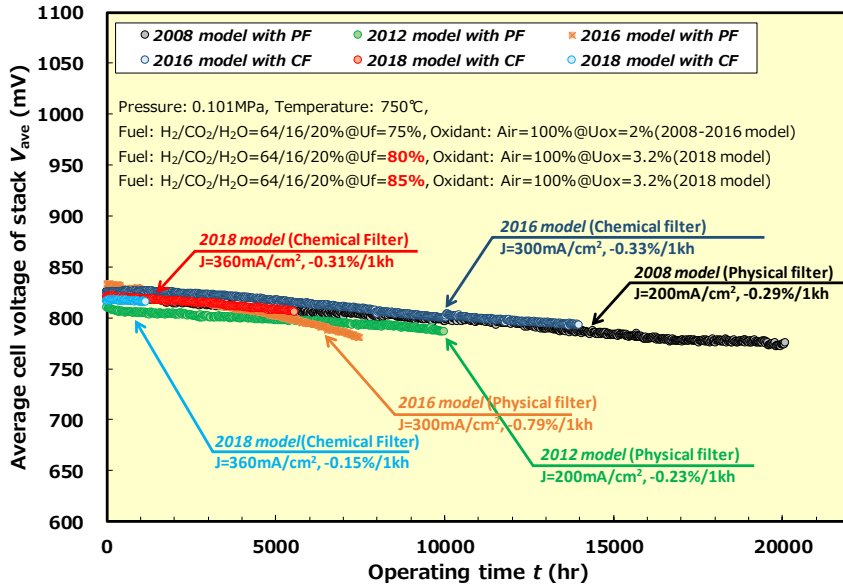
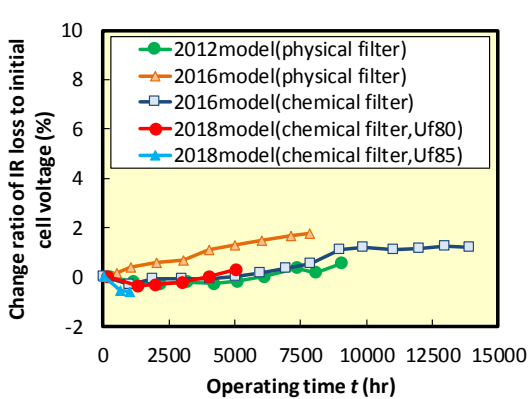
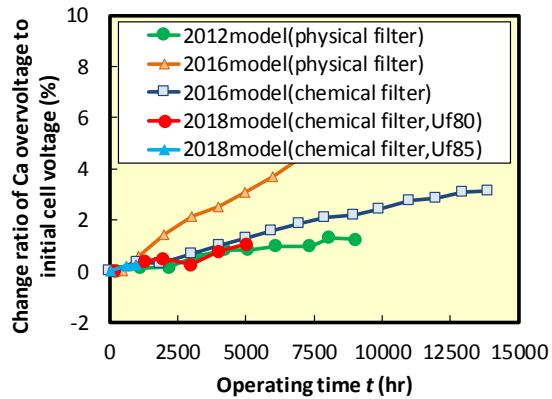


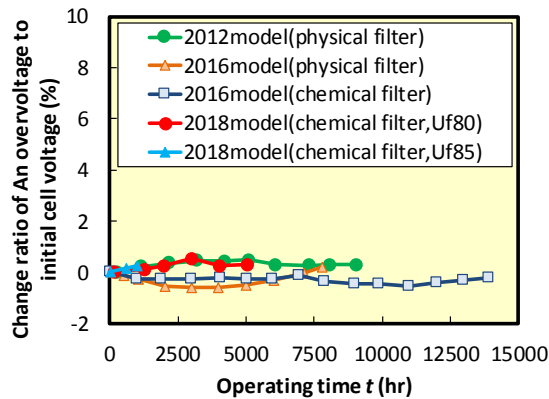
図3-8-1.3 筒状平板形セルスタックの耐久性試験結果



(a) IR損の時間変化



(b) 空気極過電圧の時間変化



(c) 燃料極過電圧の時間変化

図3-8-1.4 筒状平板形セルスタックの各抵抗成分

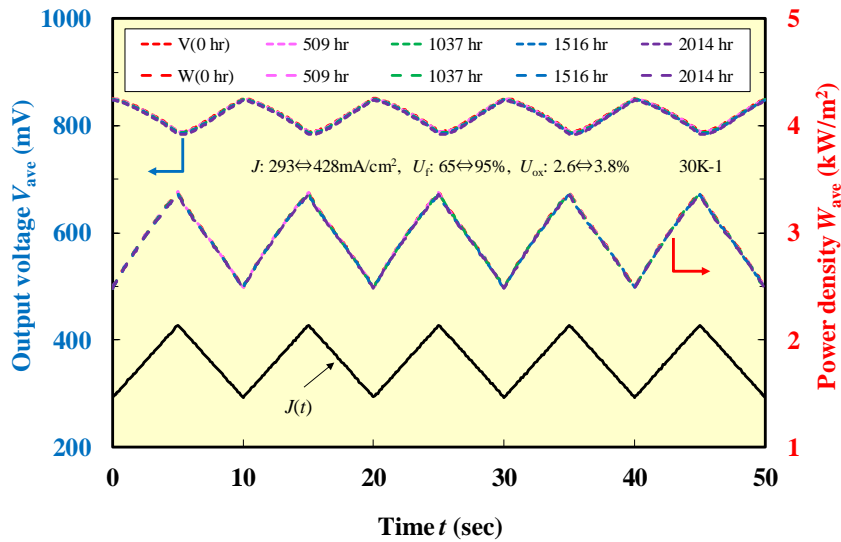


図3-8-1.5 負荷変動試験中の応答波形の経時変化

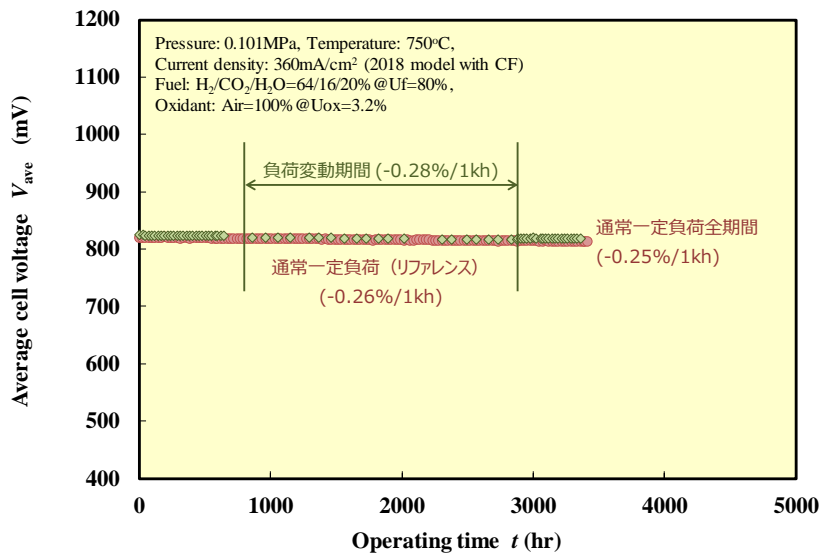
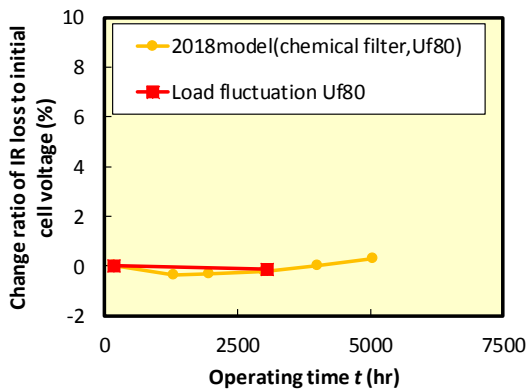
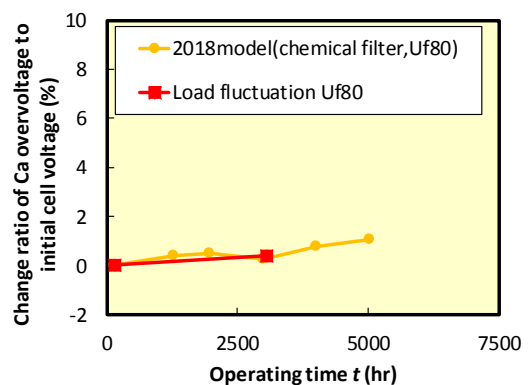


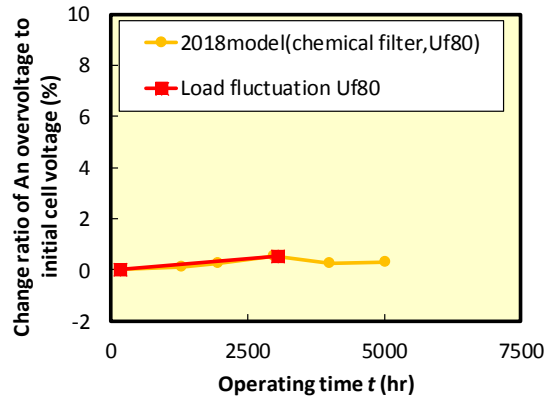
図3-8-1.6 連続負荷変動時の平均セル電圧の経時変化



(a) IR損の時間変化



(b) 空気極過電圧の時間変化



(c) 燃料極過電圧の時間変化

図3-8-1.7 負荷変動試験と一定負荷試験との各抵抗成分の比較

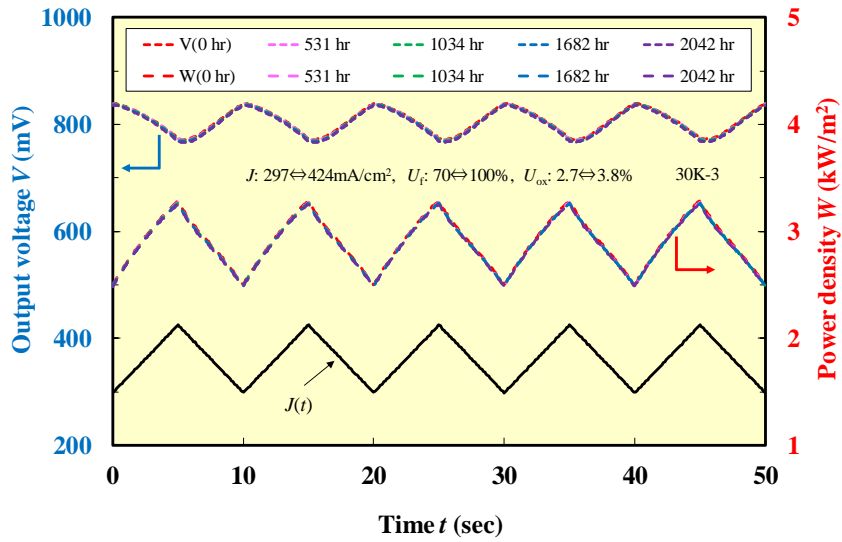


図3-8-1.8 負荷変動試験中の応答波形の経時変化

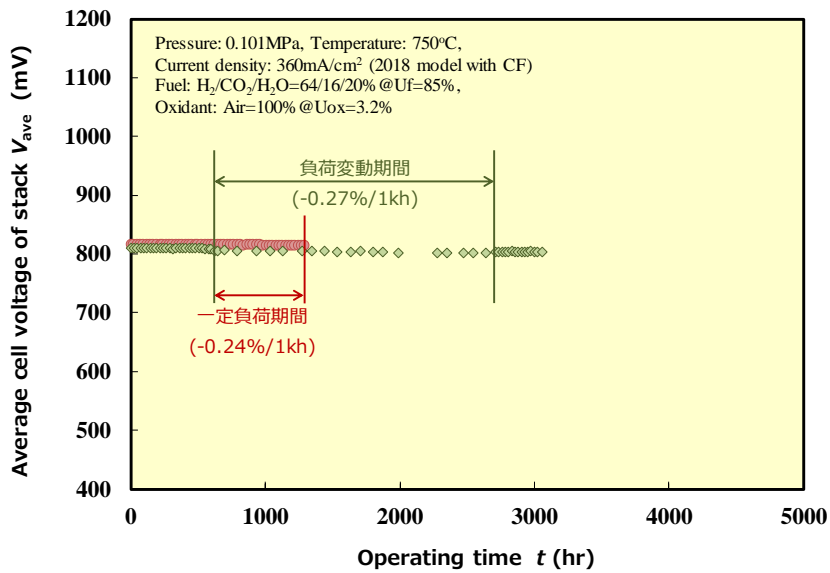


図3-8-1.9 連続負荷変動時の平均セル電圧の経時変化

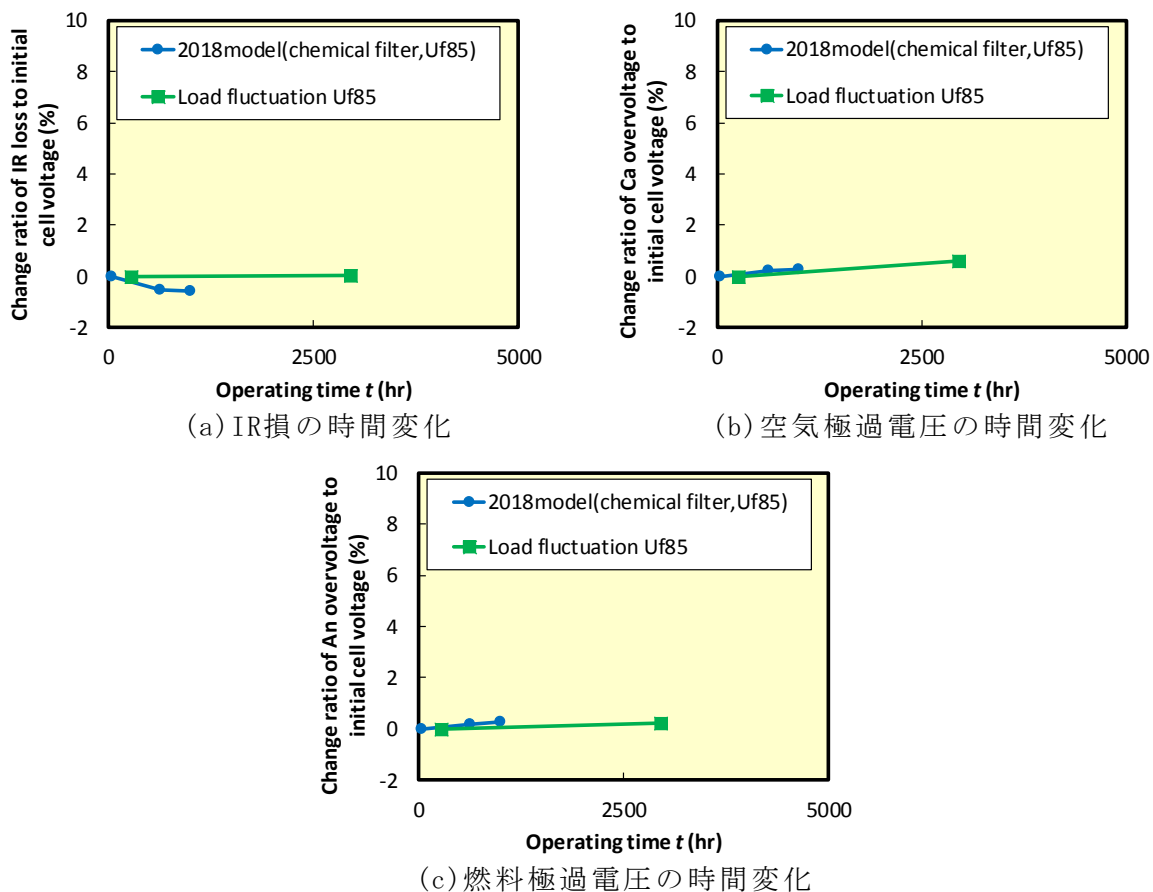


図3-8-1.10 負荷変動試験と一定負荷試験との各抵抗成分の比較

中温筒状横縞形セルスタック(日本ガイシ製)では、新たに導入した「2018年度仕様」セルスタックを対象に、一定負荷連続試験を実施した(図3-8-1.11)。約5,000時間の連続一定負荷運転を実施し、約12,000時間運転した「2015年度仕様」(電圧変化率： $-0.29\%/1,000\text{hr}$)に対し、全体的にセル電圧が高くなり性能は向上しているが、初期の電圧低下があるため、電圧変化率は $-0.61\%/1,000\text{hr}$ となった。

性能表示式により性能低下要因として1,000時間毎の抵抗分離評価の結果を図3-8-1.12に示す。約5,000時間までの抵抗分離解析結果から、燃料極過電圧や空気極過電圧は発電初期からほとんど変化しないか微増傾向であり、初期の電圧低下の主要因はIR損の増大であった。

前述の「2018年度仕様」と同仕様のセルスタックを用いて、2,000時間の連続負荷変動試験を実施した。三角波での負荷変動(設定： $U_f = 80\%$ 、 $J = 0.20\text{A}/\text{cm}^2$ 、変動周期：10秒)中の瞬時毎に測定されたセル電圧Vおよび出力密度Wの変動波形からわかるように、1,191時間から、それまでの電圧低下挙動とは異なり、明らかにセル電圧が急激に低下した。その後、2,000時間を待たずにスタックメーカーと相談し1,529時間で試験を終了した(図3-8-1.13)。連続負荷変動のセルスタックの平均セル電圧の経時変化を一定負荷ベース試験のセルスタックの平均セル電圧の経時変化と比較したところ、連続負荷変動・約1,500時間と同じ期間の2つのセルスタックの平均セル電圧変化率は、負荷変動が $-2.10\%/1,000$ 時間であり、一定負荷が $-0.87\%/1,000$ 時間であった(図3-8-1.14)。本セルスタックにおいては、明らかに連続負荷変動による電池性能への影響が出る結果となった。連続試験前後に性能表示式により性能低下要因として抵抗分離した結果を図3-8-1.15に示す。明らかに内部抵抗による電圧降下(IR損)およびカソード過電圧が増大していた。試験前後のみの評価となるため、内部抵抗の増大が先かカソード過電圧が先に増大して電圧の急激な低下に至ったのかは不明である。

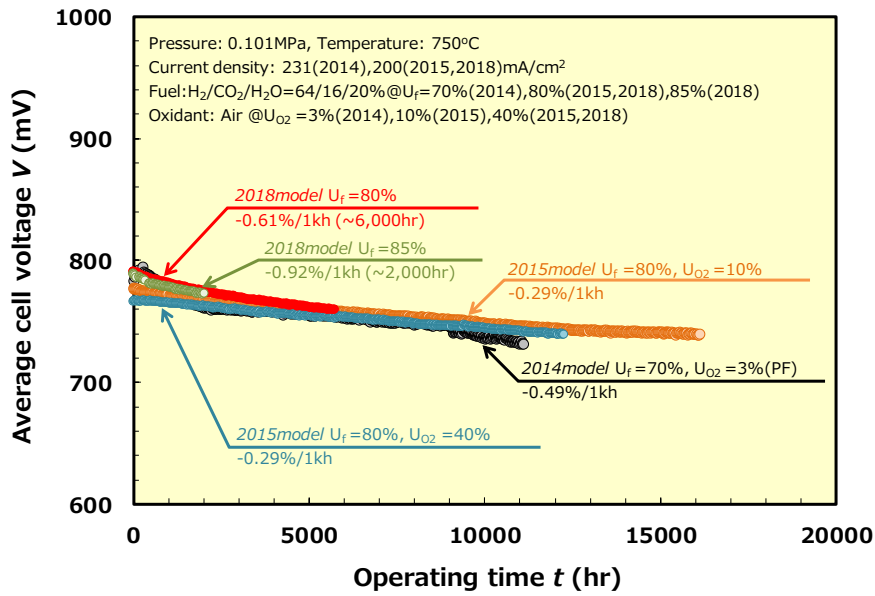
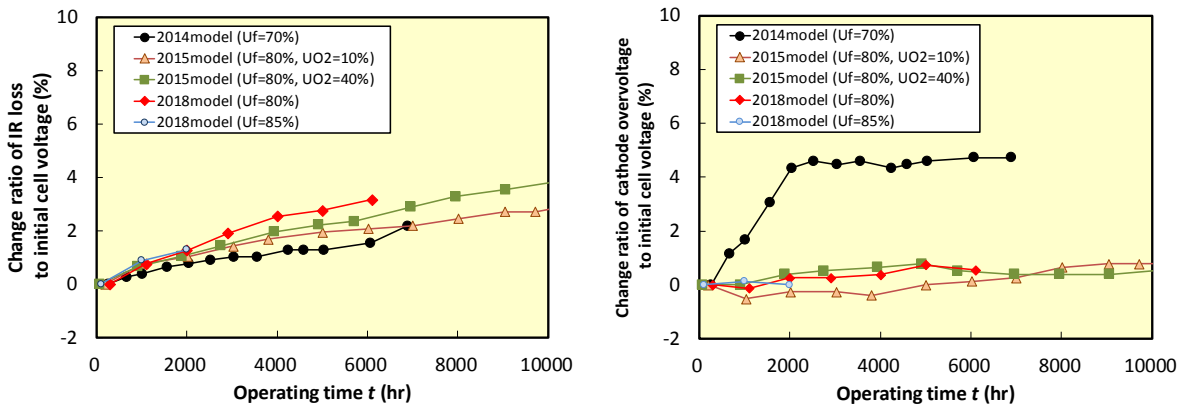
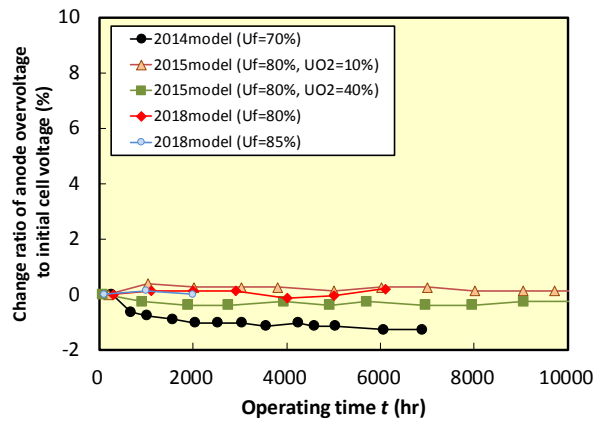


図3-8-1.11 筒状横縞形セルスタック (2018年度仕様) の耐久性試験結果



(a) IR損の時間変化

(b) 空気極過電圧の時間変化



(c) 燃料極過電圧の時間変化

図3-8-1.12 中温筒状横縞形セルスタックの各抵抗成分

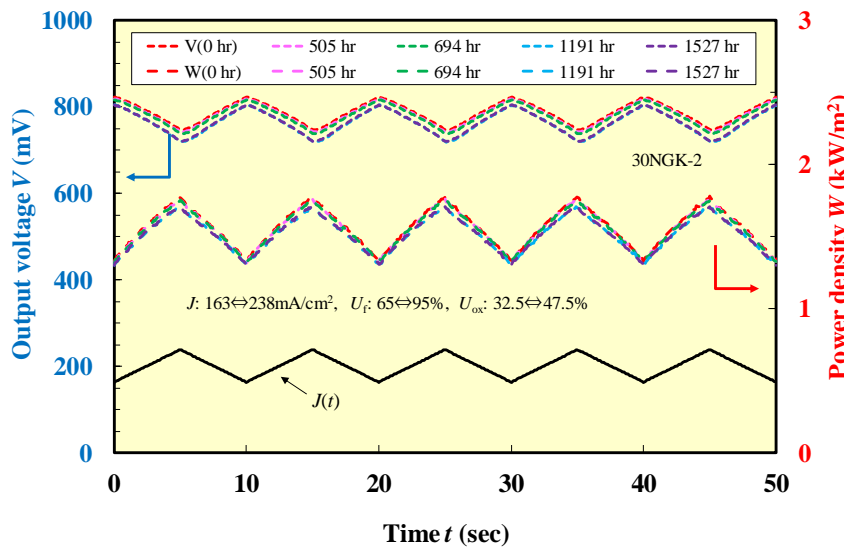


図3-8-1.13 負荷変動試験中の応答波形の経時変化

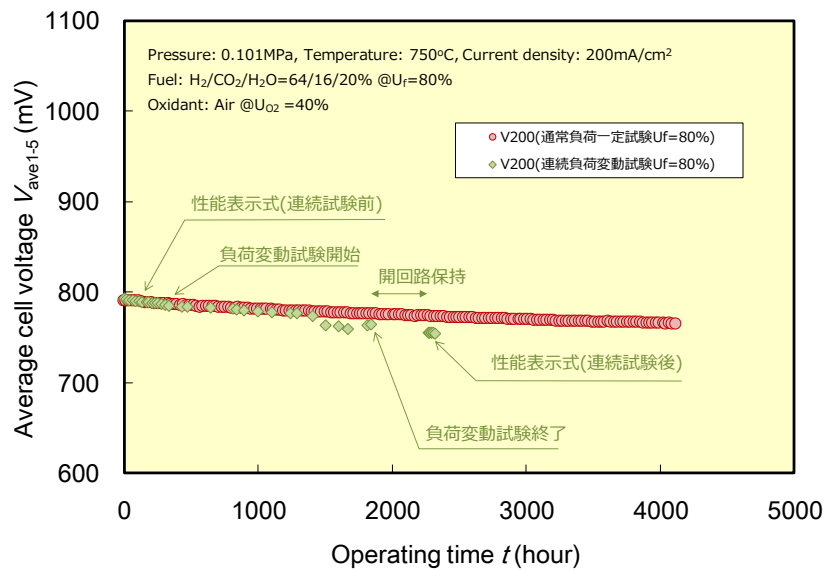
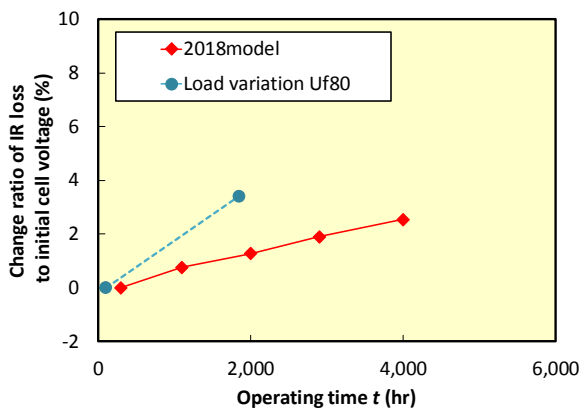
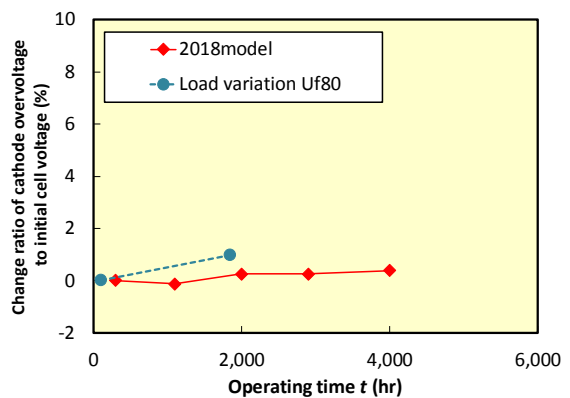


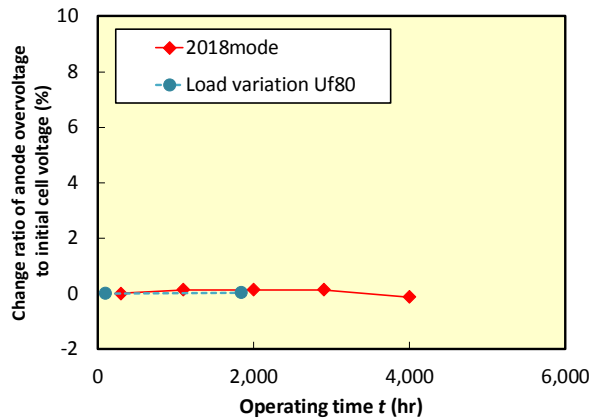
図3-8-1.14 連続負荷変動時の平均セル電圧の経時変化



(a) IR損の時間変化



(b) 空気極過電圧の時間変化



(c) 燃料極過電圧の時間変化

図3-8-1.15 負荷変動試験と一定負荷試験との各抵抗成分の比較

中温平板形セルスタック(日本特殊陶業製)では、初期の電圧低下を抑制できた2017年度約5,000時間運転した「2014年改2仕様」での耐久性評価を継続し10,000時間を超える長期耐久性を検証した(図3-8-1.16)。また、本セルスタックは、燃料利用率設定が従来より $U_f=80\%$ であり、連続負荷変動試験と対比する一定負荷ベース試験としても実施した。約1.3万時間の連続一定負荷運転を実施し、1.5万時間を運転した「2014年度改1仕様」(電圧変化率： $-0.33\%/1,000\text{hr}$)に対し、初期から高い電圧を維持したまま平均セル電圧変化率は $-0.33\%/1,000\text{hr}$ と、平均セル電圧変化率はほぼ同一水準となっていることを確認した。引き続き約6,000時間程度の長期耐久性の試験を継続して行う予定である。

性能表示式により性能低下要因として1,000時間毎の抵抗分離評価の結果を図3-8-1.17に示す。抵抗分離評価の結果、5,000時間以降、IR損、カソード過電圧およびアノード過電圧は、カソード過電圧>IR損の順で微増し、アノードはほぼ変化はなかった。

前述の「2014年改2仕様」と同仕様のセルスタックを用いて、2,000時間の連続負荷変動試験を実施した。図3-8-1.18には、三角波での負荷変動(設定： $U_f=80\%$ 、 $J=0.52\text{A}/\text{cm}^2$ 、変動周期：10秒)中の瞬時毎に測定されたセル電圧Vおよび出力密度Wの変動波形から、2,000時間の負荷変動試験において試験初期から大きな波形の変動は認められなかった。図3-8-1.19には、連続負荷変動に供したセルスタックの平均セル電圧の経時変化を一定負荷ベース試験のセルスタックの平均セル電圧の経時変化を比較した。図中の連続負荷変動試験2,000時間と同じ期間における2つのセルスタックの平均セル電圧変化率は、負荷変動試験では $-0.61\%/1,000$ 時間であり、一定負荷試験では $-0.45\%/1,000$ 時間であった。連続試験前後に性能表示式により性能低下要因として抵抗分離した結果を図3-8-1.20に示す。一定負荷試験における抵抗分離結果と比較したところ、各抵抗成分共に一定負荷試験と同様の経時変化を示し、本セルスタックにおいては、2,000時間の連続負荷変動による電池性能への影響はほぼなかったと考えられる。

図3-8-1.21には、三角波での負荷変動試験(設定： $U_f=85\%$ 、 $J=0.36\text{A}/\text{cm}^2$ 、変動周期：10秒)中の瞬時毎に測定されたセル電圧V、電流密度Iおよび出力密度Wの5周期分の波形の経時変化を示す。セル電圧の変動波形から判断する限り、2,000時間の負荷変動試験を通して平均セル電圧の低下は大きい傾向にあった。図3-8-1.22には、連続負荷変動に供したセルスタックの平均セル電圧の経時変化を一定負荷ベース試験のセルスタックの平均セル電圧と比較した。図中の連続負荷変動試験2,000時間の期間のセルスタックの平均セル電圧変化率は、 $-1.10\%/1,000$ 時間であった。一定負荷試験の平均セル電圧変化率は $-0.36\%/1,000$ 時間であり、大きく平均セル電圧変化率が増大したことがわかった。連続試験前後に性能表示式により性能低下要因として抵抗分離した結果を図3-8-1.23に示す。一定負荷試験における抵抗分離結果と比較したところ、内部抵抗による電圧降下(IR損)およびカソード過電圧が増大していた。

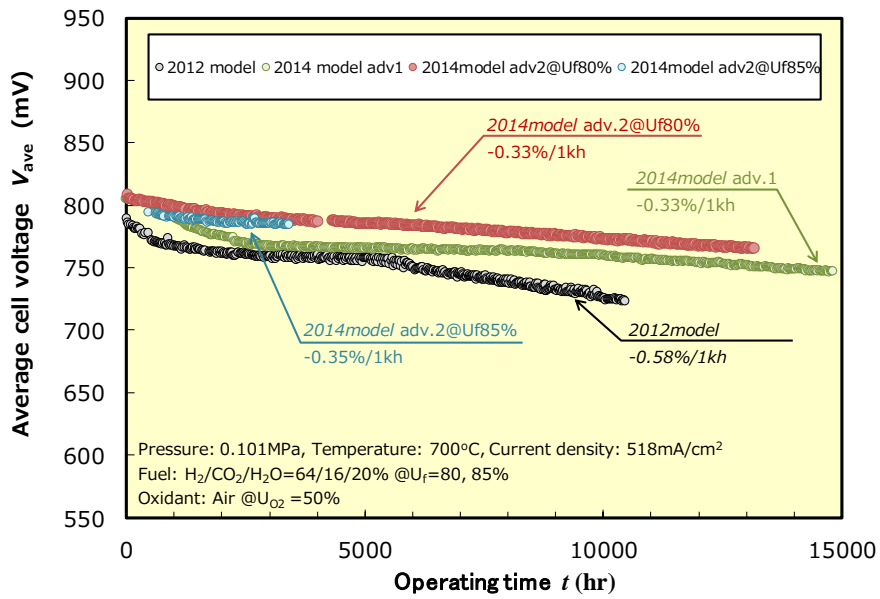
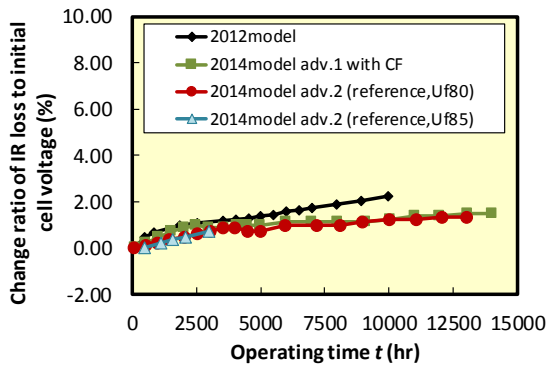
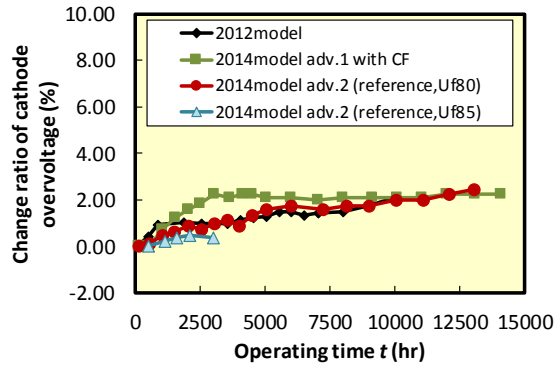


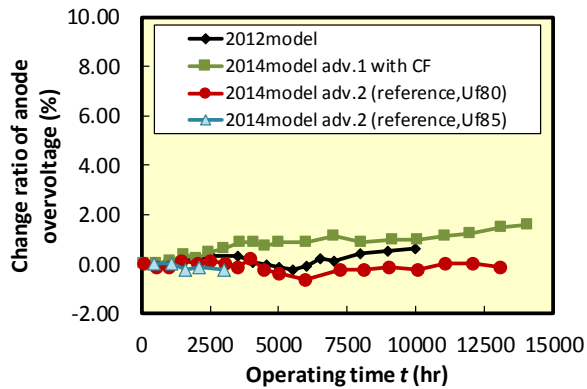
図3-8-1.16 中温平板形セルスタック(2014年度改2仕様)の耐久性試験結果



(a) IR損の時間変化



(b) 空気極過電圧の時間変化



(c) 燃料極過電圧の時間変化

図3-8-1.17 中温平板形セルスタック(2014年度改2仕様)の各抵抗成分

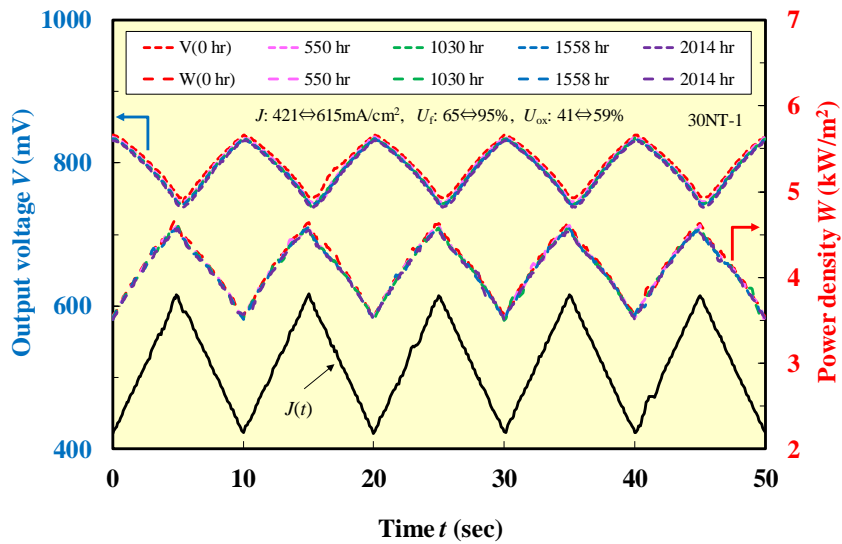


図3-8-1.18 負荷変動試験中の応答波形の経時変化

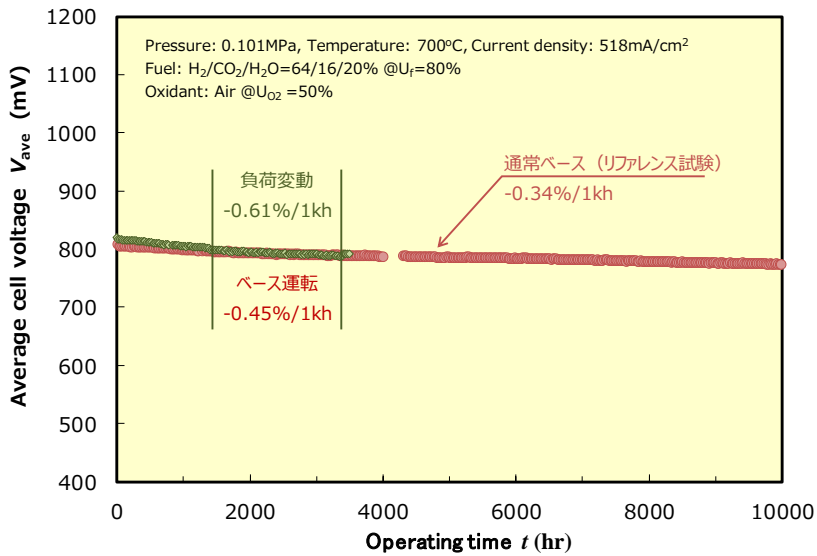
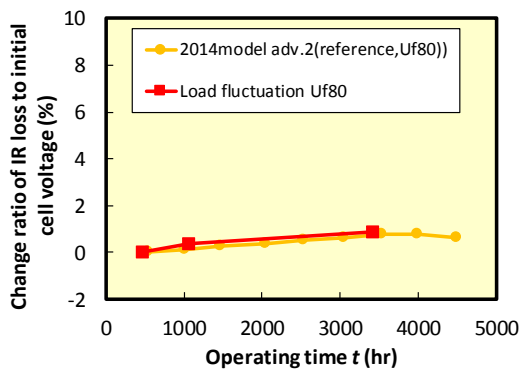
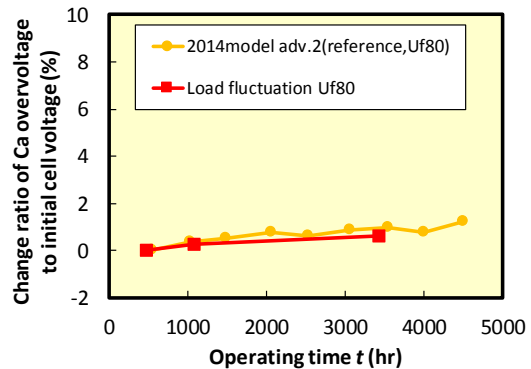


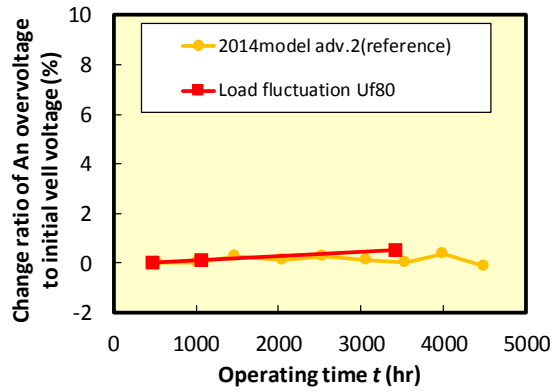
図3-8-1.19 連続負荷変動時の平均セル電圧の経時変化



(a) IR損の時間変化



(b) 空気極過電圧の時間変化



(c) 燃料極過電圧の時間変化

図3-8-1.20 負荷変動試験と一定負荷試験との各抵抗成分の比較

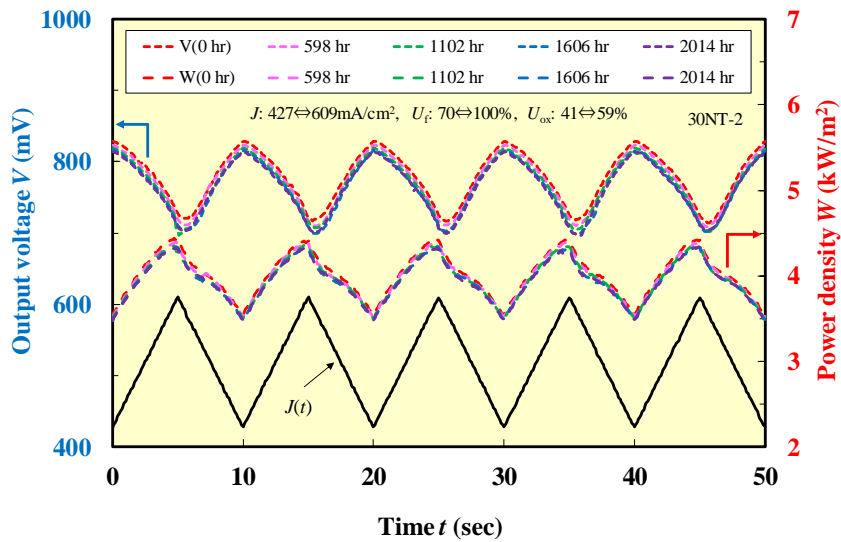


図3-8-1.21 負荷変動試験中の応答波形の経時変化

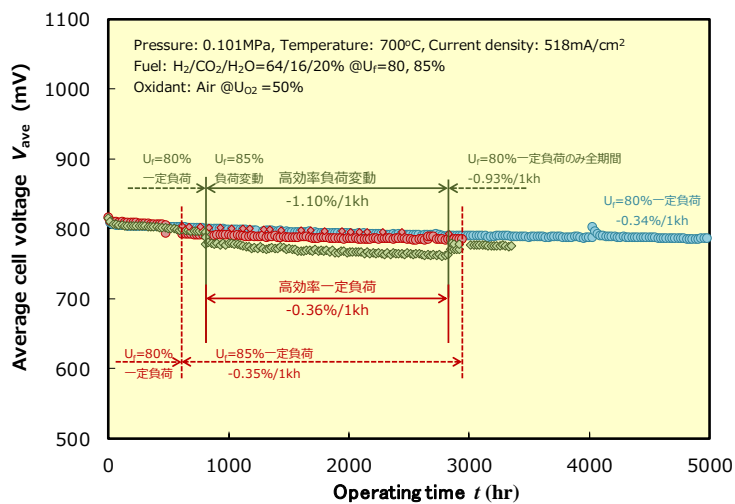


図3-8-1.22 連続負荷変動時の平均セル電圧の経時変化

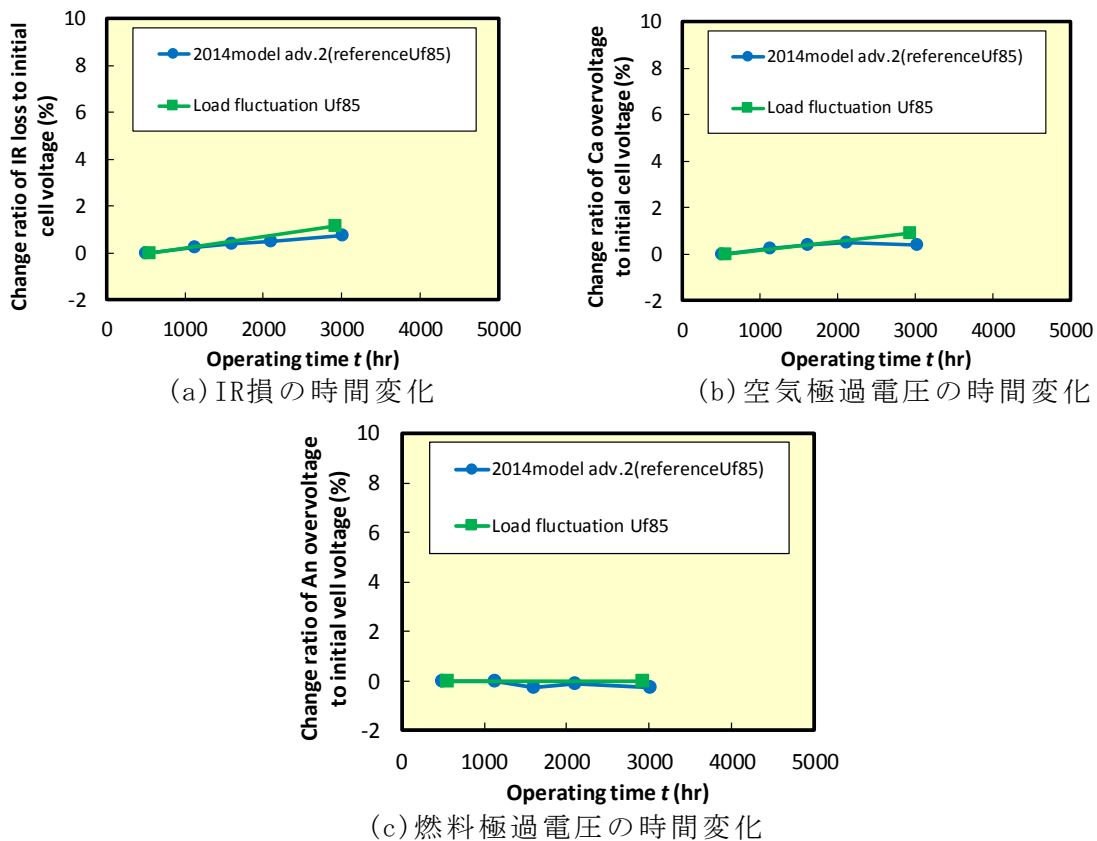


図3-8-1.23 負荷変動試験と一定負荷試験との各抵抗成分の比較

業務用平板形セルスタック(デンソー製)では、2016年度仕様から新たにスタック構造を一新した「2018年度仕様」セルスタックを対象に、燃料利用率 $U_f=75\%$ での一定負荷連続試験を実施した(図3-8-1.24)。本セルスタックは、初期の電圧安定に2,000時間から3,000時間を要し、前2016年度仕様と同様に試験期間中のサーマルサイクルや性能評価試験の条件変更の影響を受け、電圧が低下した。本セルスタックとは別に同一仕様による試験を東邦ガスサイトで実施し、電中研で性能解析を行った(東邦ガス(THG)担当参照)。電中研サイトでの試験結果と同様に初期から3,000時間まで平均セル電圧は低下した。性能表示式により性能低下要因として1,000時間毎の抵抗分離評価の結果を図3-8-1.25に示す。なお、電中研サイト試験でも3,600時間までは一定負荷試験を実施した。図3-8-1.25より2018年度仕様のセルスタックは、IR損およびアノード過電圧が従来仕様と比較して、従来仕様よりもカソード過電圧が非常に大きいことが原因であることがわかる。初期からの性能低下要因もほぼカソード過電圧の抵抗増大が支配的であると考えられる。

3,600時間以降に平均セル電圧変化率が $-0.97\%/1,000$ 時間となって安定したため、その後、2,000時間の連続負荷変動試験を実施した。本セルスタックでは、メーカーとの協議により設定燃料利用率を $U_f=75\%$ とした。三角波での負荷変動(設定: $U_f=75\%$ 、 $J=0.53A/cm^2$ 、変動周期:2秒)中の瞬時毎に測定されたセル電圧 V および出力密度 W の変動波形からは判別し難いが、696時間から、それまでの電圧低下挙動とは異なり、明らかにセル電圧の低下率が大きくなり、その後、2,000時間を待たずに892時間で試験を終了した(図3-8-1.26)。比較対象となる一定負荷試験については、東邦ガスサイトにおいて試験を行い、電中研で性能解析を行った。連続負荷変動のセルスタックの平均セル電圧の経時変化を一定負荷ベース試験のセルスタックの平均セル電圧の経時変化と比較したところ、連続負荷変動・約900時間と同じ期間の2つのセルスタックの平均セル電圧変化率は、負荷変動試験では $-2.49\%/1,000$ 時間であり、一定負荷試験では $-0.94\%/1,000$ 時間(本一定負荷試験は東邦ガスで実施)であった。本セルスタックにおいては、明らかに連続負荷変動によって電池性能低下に影響が出る結果となった。試験前後に性能低下要因を評価したところ、内部抵抗による電圧低下

(IR損)とカソード過電圧が増大していた(図3-8-1.25)。

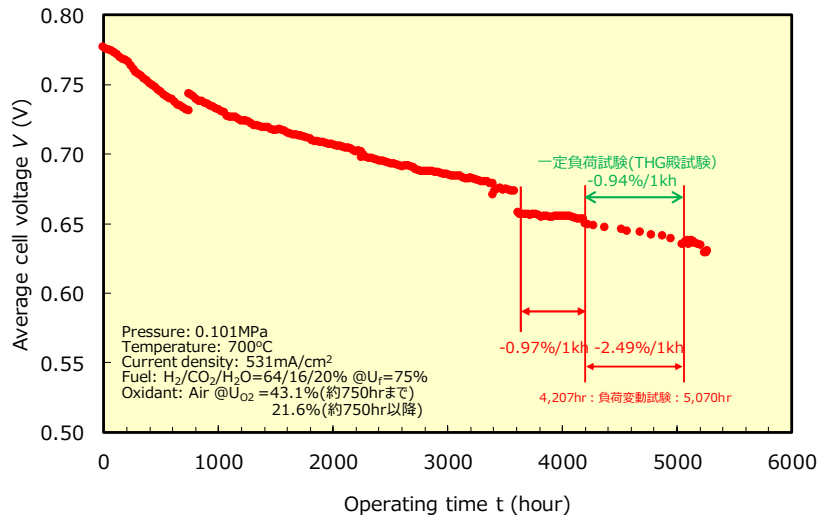
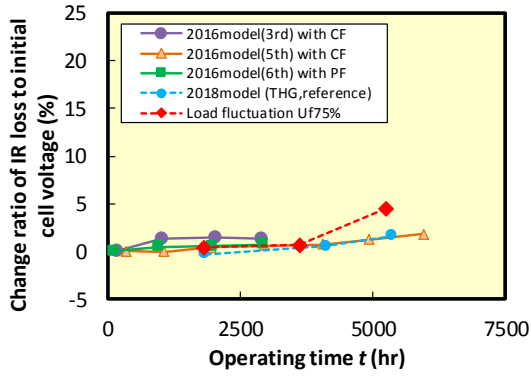
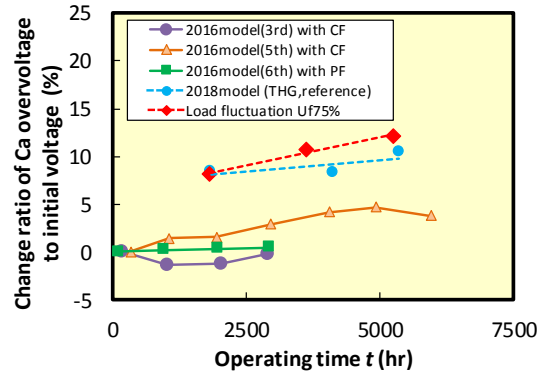


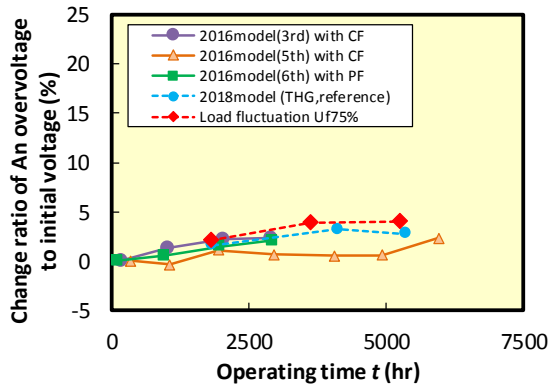
図3-8-1.24 業務用平板形セルスタックの耐久性試験結果



(a) IR損の時間変化



(b) 空気極過電圧の時間変化



(c) 燃料極過電圧の時間変化

図3-8-1.25 業務用平板形セルスタックの各抵抗成分

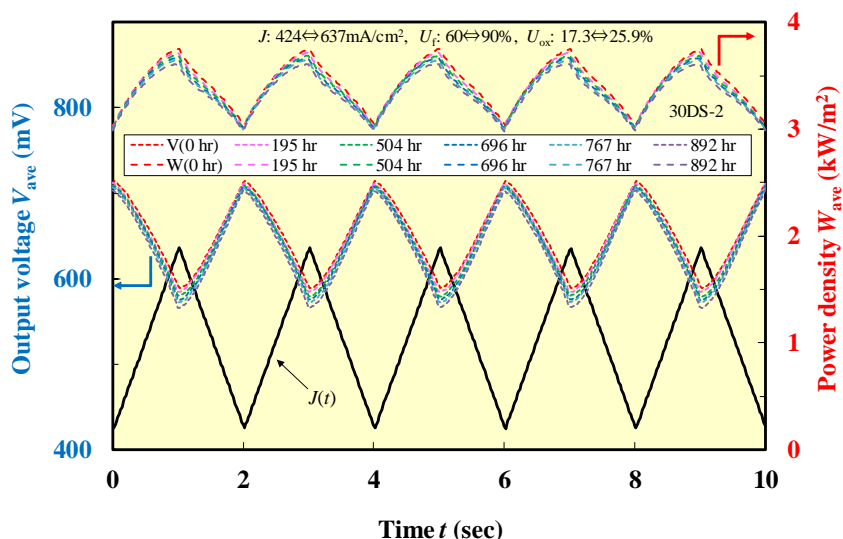


図3-8-1.26 負荷変動試験中の応答波形の経時変化

変動周期10秒において2,000時間の連続負荷変動試験 ($U_f=80, 85\%$) の連続過酷試験および $U_f=80, 85\%$ の連続一定負荷試験の結果をもとに、負荷変動および一定負荷による性能低下要因を抽出した。連続負荷変動試験および連続一定負荷試験の実施状況、各試験での平均セル電圧変化率および性能低下要因の解析結果を表3-8-1.3, 4に併せて取り纏めた。

$U_f=80, 85\%$ の連続一定負荷試験において、負荷変動試験のリファレンス試験としての試験時間（運転初期）の範囲では、各社セルスタック共に従来仕様よりも電圧が高く高効率を指向したセルスタック仕様となっている。今後、平均セル電圧低下率および性能表示式による性能低下要因分析において、従来仕様との比較を行うため、事業期間を利用して5,000時間～1万時間の運転を行う予定である。一方、連続負荷変動試験では、4種類のSOFCセルスタックのモデルの内、3つのセルスタック負荷変動の影響で平均セル電圧変化率が増加し、性能が低下した。しかしながら、性能低下挙動は大きく2種類に分かれ、異なる劣化モードが示唆された。また、燃料利用率が瞬時に $U_f = 95\%$ または 100% に達する厳しい試験条件であったが、性能低下の支配的要因はアノード過電圧の増加ではなく、IR損またはカソード過電圧の増大であった。これは、過去明らかになっている通常運転での性能低下要因と類似している結果となった。

変動周期が10秒となり高電流密度側では濃度過電圧が支配的になる領域では、電極内のガス拡散性およびセル構造などのセル設計によって大きく影響される。また、セルスタックでは、ガス流配性能が各セルに供給される燃料ガスの実際の燃料利用率にも影響を与えるため、濃度過電圧もガスマニホールド構造などのスタック設計に大きく影響される。現在のところ、各セルスタックは瞬間的な負荷変動に対して最適化されるようには設計されていない。これは、影響が出ていない京セラセルスタックにおいても、今回の試験時間範囲において、セルにはダメージが蓄積されていることが示唆され、更に過酷な試験（例えば、5,000～10,000時間の長時間または瞬時的に 100% を超える燃料利用率条件）を実施することで性能低下が顕在化する可能性がある。

表3-8-1.3 連続過酷試験結果

スタック形式	筒状平板形 (京セラ)	中温筒状横縞形 (日本ガイシ)	中温平板形 (日本特殊陶業)	業務用平板形 (デンソー)
通常負荷変動 ($U_f=80\%$ 基準 $\pm 15\%$, $\Delta t=10$ 秒, 2,000時間)	実施済	実施済	実施済	実施済*1
平均セル電圧変化率	-0.28%/1kh	-2.10%/1kh	-0.61%/1kh	-2.49%/1kh
負荷変動による電圧変化分*2	-0.02%/1kh (-0.26%/1kh)*3	-1.23%/1kh (-0.87%/1kh)*3	-0.16%/1kh (-0.45%/1kh)*3	-1.55%/1kh (-0.94%/1kh)*3
負荷変動による 性能低下要因	影響なし	IR損、カソード過電圧	影響なし	IR損
高効率負荷変動 ($U_f=85\%$ 基準 $\pm 15\%$, $\Delta t=10$ 秒, 2,000時間)	実施済	2019年度実施 予定	実施済	2019年度実施 予定
平均セル電圧変化率	-0.27%/1kh	—	-1.10%/1kh	—
負荷変動による電圧変化分*2	(一定負荷試験中)*3	—	-0.74%/1kh (-0.36%/1kh)*3	—
負荷変動による 性能低下要因	(一定負荷試験中)	—	IR損、カソード過電圧	—
備考	2018 model	2018 model	2014 model adv.2	2018 model

*1: 業務用平板形では、通常負荷変動($U_f=75\%$ 基準 $\pm 15\%$, $\Delta t=2$ 秒, 2,000時間)を行った

2019年5月31日時点

*2: 負荷変動による電圧低下分を(負荷変動による平均セル電圧変化率) - (一定負荷による平均セル電圧変化率)と定義

*3: ()内は、一定負荷において、負荷変動開始時と始点を合わせた場合の負荷変動と同じ区間のセル電圧変化率を示す

表3-8-1.4 連続一定負荷試験結果

スタック形式	筒状平板形 (京セラ)	中温筒状横縞形 (日本ガイシ)	中温平板形 (日本特殊陶業)	業務用平板形 (デンソー)
通常一定負荷 ($U_f=80\%$)試験時間	5,619時間経過*1	6,374時間経過*1	13,087時間経過*1,2	実施済*3 5,477時間*4
平均セル電圧変化率	-0.32%/1kh*1	-0.61%/1kh*1	-0.33%/1kh*1	-2.85%/1kh*4
経時的な性能低下要因	IR損、 カソード過電圧*1	IR損*1	IR損、 カソード過電圧*1	カソード過電圧*4
高効率一定負荷 ($U_f=85\%$)試験時間	1,219時間経過*1	2,033時間経過*1	3,352時間経過*1	2019.9開始*5
平均セル電圧変化率	-0.17%/1kh*1	-0.92%/1kh*1	-0.35%/1kh*1	—
経時的な性能低下要因	—	IR損*1	IR損、 カソード過電圧*1	—
備考	2018 model	2018 model	2014 model adv.2	2018 model

*1: 2019年5月31日時点での経過時間、電圧変化率、性能低下要因を示す

2019年5月31日時点

*2: 2017年度まで5,000時間運転したセルスタックを本年度継続して運転

*3: 業務用平板形では、通常負荷変動は、燃料利用率 U_f は75%で実施

*4: 試験は東邦ガス殿で実施し、性能解析を電中研で実施

*5: 通常一定負荷試験との比較は次年度計画

iii) まとめ

再生可能エネルギーの需給調整(高速負荷変動対応)を想定した SOFC システム開発に必要な高効率・強靱化セルスタックのための課題抽出を行うため、SOFC の高速負荷変動応答性を評価するために、これまでの運用燃料利用率を超える運用限界近傍(瞬時的に $U_f=95, 100\%$)での過酷試験プロトコルを立案した。

立案したプロトコルを各社のセルスタックに適用し過酷試験を行うことにより、短時間での高速負荷変動の許容範囲や負荷応答特性の明確化を行った。さらに、高速負荷変動の長期的なセルスタック性能への影響を検証するため、1,000時間以上(2,000時間)の連続過酷試験を行い、劣化挙動

に関するデータを収集した。連続試験前後に、各過電圧の経時的な変化を抽出すると共に、過去明らかになっている IR 損やカソード過電圧の増大という通常運転での性能低下要因と類似していることを明らかとした。

電力系統における実際の高速負荷変動では、今回プロトコルで使用した三角波よりも更に条件が厳しくなる矩形波、鋸形波などの成分が存在し、また、より周期の長い分レベルの変動も考えられるため、今後の SOFC 強靱化を検討する上で、三角波での劣化現象を解明する等、高効率・負荷変動対応への基盤技術の開発が重要と考えられる。

b. 新型セルスタックのサイクル試験（電力中央研究所、東京ガス株式会社との共同実施）

新型スタックのサイクル試験については、今期内での新型セルスタックの製作がなく実施しなかったものの、新型セルであるプロトン導電性 SOFC (p-SOFC) 単セルでの電気化学評価をスタック試験の予備試験として実施した。スタックについても評価装置は整っているため、今後メタルサポートや p-SOFC 等、未検討仕様の新型スタック評価の必要が生じた場合には速やかにサイクル試験を実施する。

c. 筒状平板形セルスタック過酷試験（産業技術総合研究所、京セラ株式会社との共同実施）

i) 研究開発の内容

筒状平板形セルスタックを、過酷試験を行う電力中央研究所に提供し高効率・強靱セルスタックの開発課題を抽出する。具体的には、平成 29 年度までに開発した筒状平板形セルスタックを過酷試験を行う電力中央研究所に提供し、電気化学的性能解析を討論するほか、ポスト解体分析にも協力し、課題の抽出をおこなう。「劣化機構解明」、「耐久性迅速評価方法の開発」での課題抽出にも協力し、高効率・強靱性セルスタックの開発指針提示に貢献する。

ii) 2018 年度-2019 年度の成果

2017 年度までのプロジェクトで S 被毒対策（化学フィルター有り）後に 14,000 時間運転した京セラショートスタック 2016 年度機について、電中研にて過酷試験（連続試験：Uf=85±15%、10 秒周期、1779 時間含む）の事前テストを実施した。連続試験の前後で、過酷試験に由来する加速的な劣化は確認されなかった。

試験終了後、京セラにて、産総研および東北大の関係者立会いの下、解体分析を実施した。目視検査の後、評価セルを決定しセルを切り出し、切り出したセルをさらに目視で確認した。その後切り出したセルを産総研および東北大に渡し、産総研にて断面 SEM/EDS-WDS 分析、SIMS 不純物分析を、東北大にてセルの残留応力測定を実施した。外観検査において、下部先端部（燃料入口側）から発電部全域においては、通常の試験時と外観に変化は見られなかった。他方、上部先端部、特にエッジ部で支持体が緑色化、支持体表面の電解質膜にクラック、剥離などを確認した。SEM/EDS-WDS 分析の結果、空気極の端部から燃料出口にかけての部位で燃料極が redox により損傷を受けていること、また空気極端部近傍の一部で電解質にクラックが生成、燃料極界面近傍が激しく損傷していることを確認した。ただ、損傷は端部近傍のみで、損傷部から若干離れた部位では健全な状態を維持していた。SEM/EDS-WDS 分析、および SIMS 不純物分析の結果、化学フィルターの使用により S の濃集が大幅に低減していることを確認した。東北大において、 $\cos \alpha$ 法により YSZ 電解質の残留応力の測定を実施した。試験に供したセルの同等品（未使用、燃料極還元前）に比較して、今回の試験後のセルにおいて、上部の電解質表面における残留応力が減少、およそ半分の値に低下していることを確認した。

電中研にて、過酷試験を実施した 2018 年度機 2 台（通常負荷変動試験（Uf=80±15%）および高効率負荷変動試験（Uf=85±15%））についても解体分析を開始した。過酷試験を実施した。目視による外観検査においては、いずれのスタックも目立った損傷は認められなかった。SEM/EDS-WDS 分析の結果、セル先端部（燃料排出部）において燃料枯れの影響とみられる微構造の変化を確認したが、電解質等に割れやクラックは確認されなかった。また、事前テストで見られた燃料極の微構造変化も認められず、負荷変動試験によるセルの劣化が生じていないことを確認した。

d. 業務用平板形セルスタック過酷試験（産業技術総合研究所、株式会社デンソー及び東邦ガス株式会社との共同実施）

i) 研究開発の内容

本研究項目は、「固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証」プロジェクトに参画する株式会社デンソー（以下デンソー）、及び東邦ガス株式会社（以下東邦ガス）

との共同実施で行う。SOFCの市場拡大に必要な高効率セルスタック（以下 CS）の劣化課題を早期抽出する為、デンソーの開発する業務用中温平板形 CS について、過酷耐久試験（発電負荷変動条件下での耐久試験）を実施し、耐久試験後 CS の解体分析を産業技術総合研究所にて実施する。また、高効率運転時に問題となる燃料極側ガス中の水蒸気濃度増加によるセル劣化課題抽出の為に、東邦ガスにて高加湿ガス条件での耐久試験を実施、産業技術総合研究所にて解体分析を行う計画である。

デンソー製 CS は、定格電流密度が $0.53\text{A}/\text{cm}^2$ と高く、過酷耐久試験時の想定課題である燃料極 Redox による Ni 凝集、及び電解質中への Ni 固溶による YSZ 相変態が現れる可能性がある為、基盤機関(大学)での詳細分析・解析も含めた評価が必要である。また、平板型特有の、金属インターコネクタに由来する劣化挙動（酸化被膜の成長、空気極の Cr 被毒など）の評価、ガスシール性に起因する劣化挙動の評価もポイントとなる。

ii) 2018-2019 年度の成果

スタック構造を一新した'18年度仕様 CS に対して、定格条件、及び過酷条件（発電負荷変動：周期 2 秒で燃料利用率 $60\% \leftrightarrow 90\%$ ）での耐久試験を実施した。定格条件耐久時の劣化率- $0.94\%/kh$ 、過酷条件耐久時の劣化率- $2.49\%/kh$ であり、発電負荷変動により劣化が加速される事が確認された。性能表示式解析から、負荷変動時の主要劣化加速要因として IR 損増大が抽出された。

産総研での解体分析の結果から、'18年度仕様 CS では、17年度仕様 CS の課題であった、カソード空気入り口側の Cr、B 濃縮、及び、CS ガスシール不良による燃料ガスクロスリークが抑制できていることが確認された。一方、負荷変動運転後 CS では、セル内部の電解質/燃料極での部分的な界面剥離が確認された。この要因として、負荷変動運転による部分的な水蒸気分圧・燃料利用率上昇により、Ni-Redox が発生し、電解質/燃料極界面の微細構造が変化したと為と予想された。劣化メカニズム解明のために、電解質/燃料極界面の微細構造を中心とした詳細分析を19年度進める。

東邦ガスでは、高加湿ガス条件での耐久試験実施に向けた評価ベンチ整備、および性能表示式解析条件の検討を実施。18年度仕様 CS による耐久性評価・性能表示式測定の結果、電中研と同等の結果が得られ、評価設備をはじめとする評価条件の妥当性を確認できた。これを受け、2019年度から高加湿ガス条件での耐久性評価に着手する計画である。

e. 中温平板形セルスタック過酷試験（産業技術総合研究所、日本特殊陶業株式会社との共同実施）

i) 研究開発の内容

研究開発の目標は、中温平板形セルスタックを、過酷試験を行う電力中央研究所に提供し、高効率・強靱性セルスタックの開発課題を抽出することである。そのため、2017年度までに開発した中温平板形セルスタックを、過酷試験を行う電力中央研究所に提供し、電気化学的的性能解析を討論するほか、ポスト解体分析にも協力し、課題の抽出をおこなう。また、「劣化機構解明」「耐久性迅速評価方法の開発」での課題抽出にも協力し、高効率・強靱性セルスタックの開発指針提示に貢献する。

ii) 2018年度-2019年度の成果

2017年度までの耐久性迅速評価にて耐久性向上が確認できた2014年改2仕様を試作し、過酷試験用スタックとして電力中央研究所に提供した。

電力中央研究所にて通常負荷変動運転 ($U_f=80 \pm 15\%$, $\Delta T=10\text{s}$, 2,000hrs) を実施したところ電圧維持率は- $0.61\%/kh$ であり、通常ベース運転 ($U_f=80\%$) の電圧維持率- $0.45\%/kh$ と大きな違いが見られないことを確認した。同スタックは解体し、産業技術総合研究所にて SEM-EDS 分析、RAMAN 分析、SIMS 分析を、京都大学にて FIB-SEM による燃料極微構造解析を行ったところ、燃料出口部における燃料極の電解質近傍にて、Ni 体積分率の減少と活性な三相界面長の減少が見られた。

また、電力中央研究所にて高効率負荷変動運転 ($U_f=85 \pm 15\%$, $\Delta T=10\text{s}$, 2,000hrs) を実施したところ電圧維持率は- $1.10\%/kh$ であり、高効率ベース運転 ($U_f=85\%$) の電圧維持率- $0.36\%/kh$ より劣化が大きいことを確認した。同スタックは解体し、産業技術総合研究所にて SEM-EDS 分析、RAMAN 分析、SIMS 分析を行ったところ、燃料出口部における燃料極で微構造変化が見られた。燃料極微構造の詳細解析は継続予定である。

尚、通常ベース運転、高効率ベース運転の耐久評価は電力中央研究所にて継続しており、耐

久データの蓄積を図っている。

f. 中温筒状横縞形セルスタック過酷試験（産業技術総合研究所、日本ガイシ株式会社との共同実施）

低コスト化が期待できる絶縁基板上に薄膜セルを複数集積した構造を持つ筒状横縞形セルスタック及び本セルスタックを複数実装したモジュールについて、高効率化への課題抽出を目的とした連続過酷試験(燃料利用率 80%、85%)と、高速負荷変動対応性への課題抽出を目的とした連続過酷試験(10 秒周期の負荷変動を 2,000 時間)を電力中央研究所サイトにて実施中である。なお、平成 30 年度から、出力特性を改善した「2018 年度仕様」セルスタックに変更し、セルスタック 5 本で構成されるショートモジュールにて試験を開始した。

高効率化への課題抽出を目的とした連続過酷試験は、今年度、リファレンスとなる燃料利用率 80%での通常一定負荷試験を開始し、約 4,000 時間が経過した。平均セル電圧の変化率は-0.75%/1khr で、性能表示式による内部抵抗分離の結果、主要な劣化要因はオーム損の増大であり、前モデル(2015 年度モデル)のセルスタック/モジュールと同様の傾向を示した。また、燃料利用率 85%の高効率一定負荷試験については、2019 年 3 月より試験を開始した。高速負荷変動対応性への課題抽出を目的とした連続過酷試験は、燃料利用率 80%で燃料一定流量運転時に電流負荷を 10 秒周期で変動させ、燃料利用率を 65%~95%に変化させる「通常負荷変動試験」を 2,000 時間実施した。約 1,000 時間経過した時点で電圧の不連続な変化がみられ、約 1,500hr 時間に到達するまでに、複数回の不連続な電圧変動が発生したため、試験を停止してサンプルを回収した。性能表示式による内部抵抗分離の結果、5 本のセルスタックのうち、2 本のセルスタックでオーム損の増大が発生していた。また、5 本のセルスタック全てにおいて、空気極過電圧の増大が確認された。今後、セルスタックの解体を実施し、基盤コンソ側の機関と連携して微構造解析を実施する予定である。

② 高効率システム用スタック過酷試験（産業技術総合研究所、大阪ガス株式会社との共同実施）

表 3-8-2.1 高効率システム用スタック過酷試験（2018-2019 年度）

項目名称	最終目標 (2019 年度末)	成果	達成度	今後の課題
高効率システム用スタック過酷試験	家庭用燃料電池システムなど小容量機の SOFC システム構成を念頭に実用システムの燃料流量変動等の実力見込みを解析した上、スタック評価条件を提案する。	実用システムでの燃料流量の変動現象を解析し、燃料利用率が 100%を超える状況もありうることを、負荷変動の周期によっては現状でも対応できることを解明し、高効率・強靱化セルスタック実現のための評価条件を提示した。	○	<ul style="list-style-type: none"> ・ 想定される高効率・負荷変動システムに実際に対応する際の評価項目の高精度化 ・ 熱ストレスに対応する評価の精密化

a. 実機の燃料変動影響の考慮についての検討

高発電効率化を進めるためには実機（発電システム）での燃料利用率を向上させなければならない。実機での燃料利用率設定を決める主な要件としては、SOFC スタックの高燃料利用率での実力、システムでの動作時の温度分布、燃料ガス供給の条件の変動（気化、補機、制御）がある。

小発電容量の SOFC システムは一般的に低圧の供給ガスを設定流量になるようにポンプ駆動し、絞りやバッファ一部で脈動を抑制しており、かつ水蒸気発生器という圧力変動要素が含まれている。そのため、スタック単体での評価条件より実機の燃料変動の方が明らかに厳しい条件となっている。そこで、小型 SOFC システムの代表として、家庭用 SOFC 商品機（一部改造）の燃料ガスの流量変動・ゆらぎを計測し、スタックが定格発電時に実際に受ける燃料変動の程度を解析してみた。商品機に熱式燃料流量計、圧力センサ、高温露点センサ計測を追加した。計測間隔 0.1 秒において定常発電安定時、±1%以内の安定した燃料ガス流量が得られていた。ただし、時折、燃料流量が制御目標値の 40~50%まで瞬時低下してその後、120%まで増加する挙動がみられた。露点センサ計測の結果から 1 回につき、水 30mg 分の突沸が発生しており、その影響であると解釈できた。なお、こうした“ミニ突沸”（30mg /回）は完全になくすことは難しいと考えている。瞬時流量と電流から単純に（燃料利用率の定義通りに）計算すると、瞬間的に 150%以上の燃料利用率となる。ただし、非定常のプロセス計算を行い過渡的なセル出口のガス組成を求めると、燃料ガスは燃料利用率はそこまで不足しておらず、瞬間的な燃料利用率は 100%程度であった。解析面ではここまでの計算に加えてセル燃料側のバッファ効果（多孔質部に燃料ガスが存在しており、ガス流路よりもガス組成変化が遅い）を考慮すれば、セルでの燃料枯れが起こる条件に至っているか把握できるであろう。一方、スタック単体の高燃料利用率の実力評価においては、適用を想定する実機の実際の燃料流量変動を考慮した実力評価を行い、その条件でも設計耐久が損なわれない強靱さを確認すべきであろう。

b. 高出力変化速度が必要になるケースの検討

高出力変化速度が必要なケースとして、2021 年創設予定の需給調整力市場の要件案（電力広域的運営推進機構の調整力及び需給バランス評価等に関する委員会で議論中）を参考にし、この要件が求める変動速度に小型 SOFC（現行の家庭用 SOFC 商品機ベース）が技術的に対応できるかという観点でレビューしてみた。二次調整力としては 5 分以内、一次調整力としては 10 秒以内に応じた発電容量を 100%出力することが求められている。検討の仮定として、応札量は定格出力の 1/2 相当分とした。二次調整力（5 分以内）対応については問題ないものと判断できる出力変動データ・耐久データを確認することができた。一次調整力（10 秒以内）に関しては、パワコン、燃

料ガス流量・組成（気化器）、スタックの応答特性のうち、気化器が最も遅れが生じやすいのだが、高速変化に対応できる気化器も可能であることを要素試験で確認している。スタックについては、現行の商品機スタック（京セラ）はガス不足さえ起こさなければスタックの急速電流増（1秒以内に $0.3\text{A}/\text{cm}^2$ ）には繰り返し試験の実績があり、耐久性に問題は生じていない。出力上昇時の燃料欠乏リスクは合理的に回避できるので、現行の家庭用 SOFC 商品機ベースで一次調整力にも対応できる見込みがあると考えている。なお、ここでは検討できなかったが、出力の急な変化に伴う熱的なストレスへの耐性が課題として残る。

③ 強靱性セルの試作と可能性検討（京都大学、東北大学、九州大学、産業技術総合研究所）

表 3-8-3.1 強靱性セルの試作と可能性検討（2018-2019 年度）

項目名称	最終目標 (2019 年度末)	成果	達成度	今後の課題
強靱性セルの試作と可能性検討	強靱性を有する金属等の支持体や耐熱性、材料両立性等を考慮した電解質・電極等の構成材料、および新規多孔質支持体の製法および低温でのセラミックス成膜・焼結技術等、製造プロセスを検討し、強靱性セルの試作を行う。	金属多孔質支持体上に SOFC セルを成膜するプロセス法を数種類検討し、単セルで数 W/cm ² の発電出力を示す、単セル作成に成功した。電気化学特性や機械的特性についても検討し、強靱性セルの可能性を示すことができた。	○	<ul style="list-style-type: none"> 最適プロセスによる強靱性セルの開発、最適化 耐久性や性能の向上

固体酸化物形燃料電池の適用性拡大のためには、起動停止時間の大幅な低減や負荷変動時の熱バランス、温度分布・電流分布などに対して強靱なセルスタックを開発する必要がある。強靱性セルスタックの一つの候補として、金属支持体を使ったセルがある。本研究開発では、金属支持体セルの試作とその可能性検討を開始した。本年度は、金属支持体上に緻密な電解質を成膜することを目標として、いくつかの成膜法を独自の製法で検討するとともに、膜製造企業への外注を行い、製作の可能性を検討した。以下に概要を報告する。

a. 強靱性セルの構成材料・製造プロセスの検討および試作（産業技術総合研究所、九州大学）

（産業技術総合研究所）

産業技術総合研究所無機機能材料研究部門では、フェライト系ステンレス多孔質基板上への湿式および乾式成膜法を用いた、金属支持型セルの開発を行った。ジルコニア系電解質膜の乾式成膜法として、ラジカル反応性スパッタリング(RAS)法、サスペンション溶射法など複数の手法を検討した。これらの乾式法を用いた成膜法では、金属多孔質基板の細孔径が大きい場合は緻密化が困難であることが判明し、緻密化には2.5ミクロン程度の膜厚が必要となることがわかった。一方、図3-8-3.1に示すように湿式法による成膜では、酸化ニッケル-ジルコニア電解質コンポジットスラリーを用いて、アノード層を多孔質金属基板上に印刷し、所定の熱処理を行ったのち、電解質層を同様の手法にて電解質にて成膜した。最終的に還元雰囲気中で1150℃から1300℃の温度範囲で焼成し、金属支持型セルを作製した（図3-8-3.1）。

同様の金属多孔質基板に緻密な電解質薄膜を10ミクロン程度の膜厚で成膜可能であった（図3-8-3.2）。

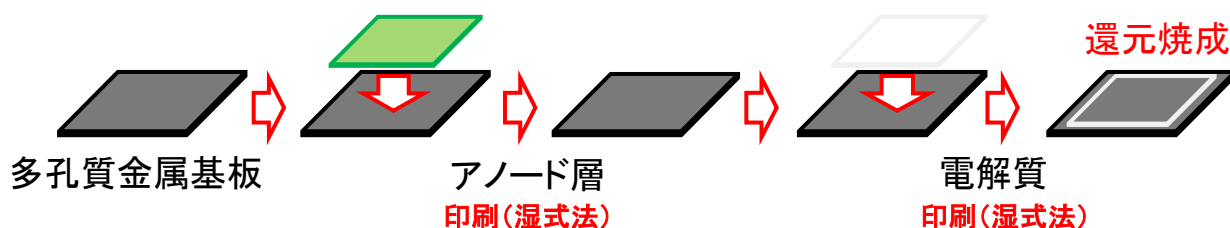


図 3-8-3.1 湿式法による金属支持型固体酸化物形燃料電池の作製手順

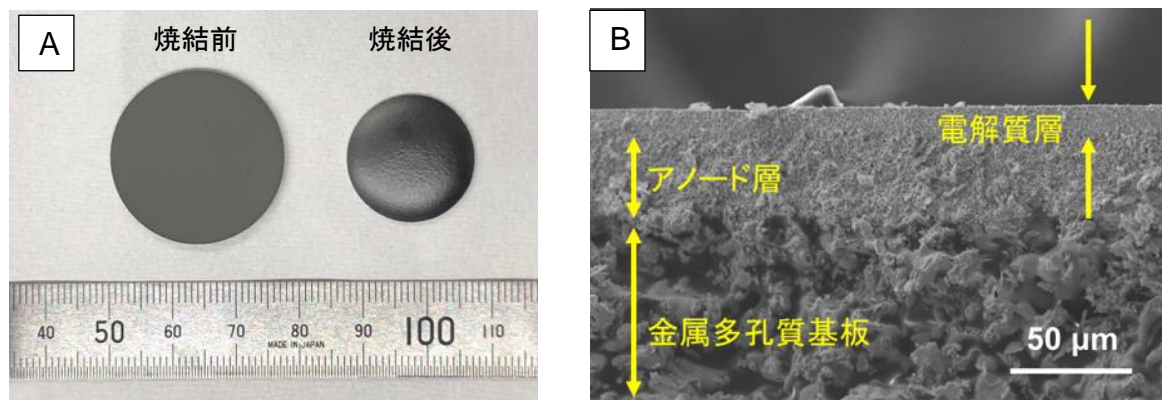


図 3-8-3.2 湿式法で作製した金属支持型セルの外観
A:焼成前後の外観、B:断面の電子顕微鏡写真

図 3-8-3.3 に各種還元雰囲気中で作製した金属支持型セルの 750°Cでの発電試験結果を示す。それぞれのセルにおいて開回路電圧が 1.0 V を超える値を示しており、緻密な電解質を持つセルが作製できたと考えられる。また、セル作製時に含まれる希釈ガスの種類によって発電性能に差がでることが明らかとなった。アルゴン希釈水素で作製したセルの方が、窒素希釈水素中で作製したセルと比較して高い発電性能を示し、750°Cで最大出力 1.2 W cm^{-2} を示した。図(1)-3-①-5 に示すように、焼成雰囲気中のガス種によって、得られた金属支持型セル電解質の色やセル形状に変化があったことから、還元ガス中の希釈ガスの種類が大きな影響を与えることが示唆された。

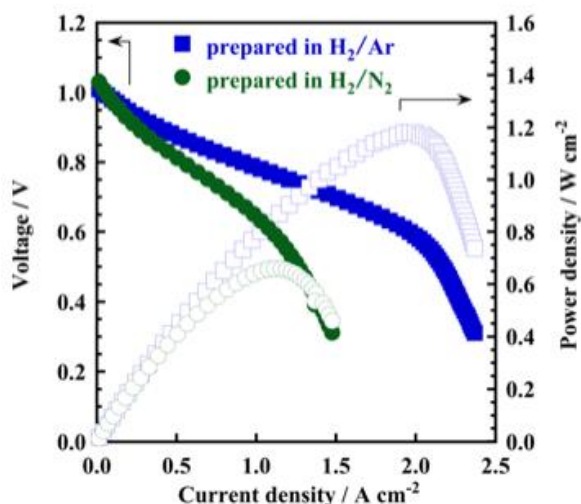


図 3-8-3.3 アルゴン及び窒素希釈水素ガス、1250°C で作成した金属支持型セルの発電結果

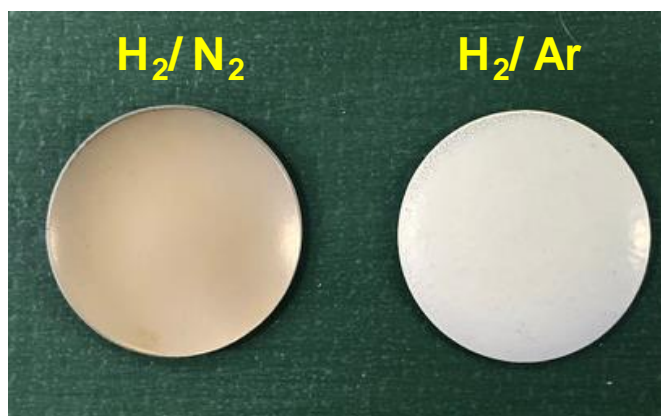


図 3-8-3.4 アルゴン及び窒素希釈水素ガス、1250°C で作成した金属支持型セルの外観写真

産業技術総合研究所省エネルギー研究部門では、金属系多孔質基板上に MOCVD 法による電解質の低温高速成膜の可能性を検討した。平成 30 年度は、酸化物イオン伝導性電解質 (YSZ) に対し、レーザーアシスト MOCVD 法により原料である有機物錯体塩の昇華温度等が膜組成に与える影響などを把握しながら Ni/YSZ 金属サーメット多孔質負極上への成膜を行った。

図 3-8-1.3 および 3-8-1.4 に 800°C 程度で約 20 分間成膜した時の試作薄膜の表面および断面の SEM 画像を示す。これらの図が示すように MOCVD 法では柱状構造を有する緻密膜 (図では $25 \mu\text{m}$) を $1 \mu\text{m}/\text{min}$ 程度の高速で製膜できることが判明した。また、原料の昇華時の重量減少等からそれぞれの原料の適切な昇華温度を把握するとともに膜中の Y 濃度が成膜温度の上昇につれ減少傾向を示すことを見出し、図 3-8-1.5 に示すような結晶構造解析や蛍光 X 線分析により、Y 濃度が 7.95~16.2 mol% ($4.1 \sim 8.8 \text{ Y}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$) の YSZ 膜を成膜することができた。さらに得られた膜上に $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ 正極などを形成しボタンセルの試作を行った。得られたセルの起電力は 800mV

程度（700℃）であるので、電解質膜の更なる緻密化、正極形成法の改善等を検討している。

以上により MOCVD 法によって Ni/YSZ 金属系負極多孔質基板上に YSZ 緻密膜を低温（基板温度 800℃程度）で高速成膜（1 μm/min）できることを明らかにするとともに、得られた膜を用いてボタンセルの試作を行った。

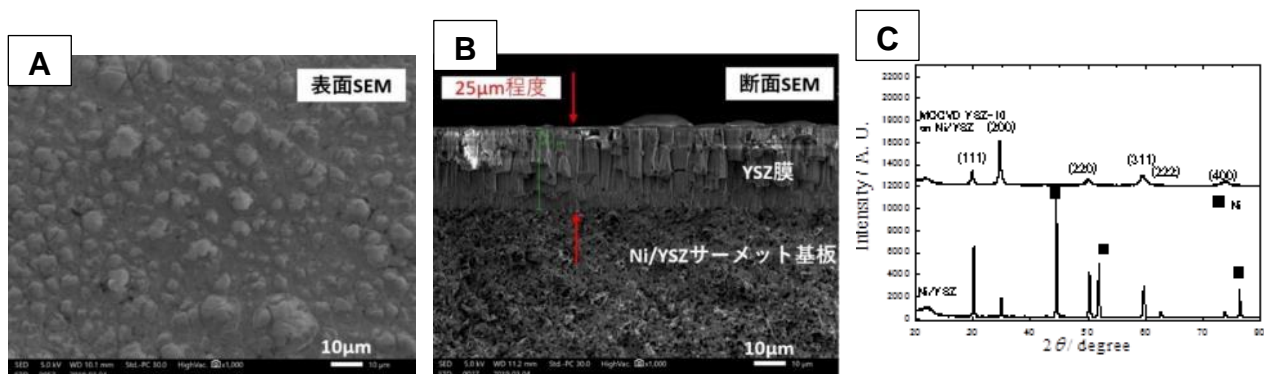


図 3-8-3.5 レーザーアシスト CVD による YSZ 薄膜 A: 表面の電子顕微鏡像、B: 断面の電子顕微鏡像、C: YSZ 薄膜の XRD パターン

(九州大学)

金属基板への YSZ 薄膜の作成のための反応抑止層について検討を行った。現在、製膜を検討している SUS-430 上への YSZ の製膜に生じる反応をまず検討した。1250℃、Ar 中で焼成を行うと、YSZ は黒色に変色し、Fe および Cr の拡散が観測された。Cr の拡散は比較的、界面近傍に偏析していたが、Fe の拡散は広範囲にわたっており、拡散の抑止は Fe と Cr であり、とくに Fe の拡散の抑止が強く求められることが分かった。

そこで、Fe と Cr の拡散の防止を目的に、CaTiO₃、NiMn₂O₄、Sm_{0.2}Ce_{0.8}O₂ の界面バッファー相としての反応抑止を検討した。その結果、CaTiO₃ では Fe の拡散は抑止できたが、Cr の拡散は抑止できず、Ca および Ti が一部、YSZ 内へ拡散することが分かった。そこで、拡散抑止層として CaTiO₃ は適していなかった。NiMn₂O₄ では Fe および Cr の抑制はほとんど抑止できず、NiMn₂O₄ 自体は熱分解し、MnO₂ の拡散も生じるとともに Y の拡散が観測された。そこで、NiMn₂O₄ のスピネルは SUS430 と YSZ の反応抑止には適さないことが分かった。

Sm 添加 CeO₂ は比較的、優れた反応抑止が可能であり、Fe および Cr の拡散は完全に抑止することが可能であり、Ce 自身の拡散も無かった。一方、Y および Zr の Sm 添加 CeO₂ 層内への拡散は確認されたが、顕著ではなく、SDC が比較的、良好な反応抑止層になる可能性が示された。(図 3-8-1.6) 今後、さらに、探索の範囲を広げて、反応防止層について検討を行うが、現在までの検討では SDC が最も良好な反応抑止の性能を有することがわかった。

次に新しい概念の金属基板セルの作製法について検討するために、Ni-Fe 系基板について検討した。この基板では、NiO の周りに Fe₂O₃ を含浸して作成した粉体からなる粒子を用いて焼結体を作成する。得られた緻密な焼結体上に、スクリーンプリント法などの方法を用いて、電解質の製膜の作成を行う。その後、使用前に H₂ 還元して酸化物の緻密な基板を多孔質電極基板へと還元して強靱化セルの作製を行うものである。湿式法による金属基板セル作成での最大の課題は、製膜後の焼結時の雰囲気制御によるコストの増加が挙げられるが、この方法では、酸化物基板上に製膜後、焼結を行うので、雰囲気制御を行う必要が無いことが特徴である。しかしこの方法では還元時に製膜した基板にクラックが入らないように、還元時の収縮率を合わせる必要がある。今年度、基板の作成条

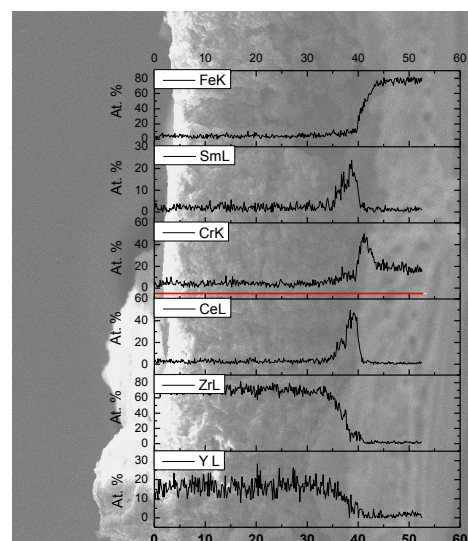


図 3-8-3.6 SUS-430 上に製膜した YSZ/SDC の焼結後の EDX 分析結果 図中実線部分を線分析

件を種々、検討したところ、300-400kg/cm²でCIPをかけて作成した酸化物基板を還元すると、気孔率30%程度で、横方向の収縮率が5-8%程度の基板になることが分かった。作成した基板上ではYSZ内へのFeの拡散がわずかに認められるものの、他の元素の拡散は無く、基板との反応は比較的、少ないことが分かった。次年度以降で、YSZの焼結時の基板との収縮率を合わせることで、緻密なYSZ膜を得ることができ、金属基板に持たされたYSZ膜を作製できると考えている。以上よりNi-Fe系酸化物基板を用いることで、優れた機械強度のSOFCセルの作製が行なえると考えている。

そこで、このNi-Fe系基板上に、スクリーンプリント法でYSZの厚膜を作製したところ、還元時のクラックが入ったので、低いながら起電力を観測することが可能であった。一方、レーザーアブレーション法でYSZを析出させたところ、発電が可能で、700°Cで400mW/cm²の最大出力をしめす金属基板を用いたセルの作製が行えることが分かった。次年度以降で、YSZの焼結時の基板との収縮率を合わせることで、緻密なYSZ膜を、スクリーンプリント法で得ることができ、金属基板に持たされたYSZ膜を用いるSOFCを作製できると考えている。以上よりNi-Fe系酸化物基板を用いることで、優れた機械強度のSOFCセルの作製が行なえると考えている。

b. 強靱性セルの機械特性・電気化学特性評価（東北大学、京都大学） (東北大学)

強靱性セルの作製法として、多孔質金属基材の上への溶射によってアノード、電解質、カソード各層を順次形成する方法をとりあげ、その可能性を検討した。

多孔質金属基材は、本プロジェクトで共通に使用しているポーライト(株)製のSUS430(気孔率40%)を用い、溶射膜の試作をトーカロ(株)に外注し、その燃料電池としての諸特性を評価した。電解質(8mol%Y₂O₃-ZrO₂)およびLSCFカソード(La_{0.6}Sr_{0.4}Co_{0.2}Fe_{0.8}O_{3-d})の溶射皮膜のX線回折の測定結果を図3-8-1.7に示す。すべての構成層について所望の相が形成されていることが確認できた。また、多孔質基板上に直接成膜した際の断面および表面のSEM像を図3-8-1.8に示す。多少の気孔は見られるものの、溶射法・溶射条件を最適化した電解質皮膜では、マイクロメートルスケールでほぼ緻密にYSZが堆積したものが得られた。

この手法を用いてポーライト(株)製SUS430多孔質基板(気効率40%)上に、Ni-YSZアノード層、YSZ電解質層、LSCF空気極層をこの順に製膜し、単セルを作製した。断面のSEM像を図3.8.1-9に示す。両電極層は比較的緻密に見えるが、多くのクラックが入っている様子が見られ、ガスが透過することが期待できる。

試作した単セル試料について、燃料電池条件でのガス透過試験、ならびに650°C~700°Cでの起電力測定、インピーダンス測定、直流電流-電圧測定を実施した。図3.8.1-10に直流測定の結果を示す。燃料ガスとして25%H₂-Arを用いた場合には0.9V程度の起電力が得られ、得られた最大出力は約0.1Wcm⁻²であった。電流に対する電圧の降下は直線的であった。図3.8.1-11はインピーダンス測定の結果である。水素濃度を変えた測定で低周波数側の円弧の大きさが変化しているが、この周波数領域はガスの拡散に起因するものであると考えられ、電極の気孔率が小さいことが原因であると予想される。100%水素の雰囲気ではこの抵抗成分の寄与は小さい。このときのセル全抵抗は約2Ωcm²、そのうち電解質に起因するとみられる抵抗は約1.6Ωcm²であった。

これらの結果から、溶射法で作製したセルにおいて、電極については、微細構造の最適化がなされていないにもかかわらず比較的良好な性能が得られることがわかった。増孔材の添加などで空孔率を最適化することでさらに構成能の電極を作製できる可能性がある。この成果は、溶射法で電極・電解質積層体を一連のプロセスで作製し得ることを示唆しており、量産化において大きなメリットになると考えられる。

一方、セル抵抗の主要因は電解質抵抗によると考えられ、電解質の薄膜化が求められる。さらに、燃料ガスの水素を1%程度まで希釈したところ起電力が大幅に減少する現象がみられており、現状の厚さでも電解質を介してのガス透過が生じていることがわかった。今後、緻密化と薄膜化とを同時にすすめることが必要となる。また、溶射法では原理的に電解質膜に平面方向の引っ張り応力が発生しやすいため、マクロ・ミクロなクラックが発生する可能性がある。実際に、作製したセルの電解質には数十MPaレベルの引っ張り応力が生じており、初期特性測定後に再度昇温すると起電力の低下がみられた。試験後のセルには、クラックが発生していたことから、上記の残留応力の影響によるものである可能性が高い。

今後、電解質へのクラックの発生を回避する方法、薄膜化、ならびに電極構造の最適化について検討を進める予定である。

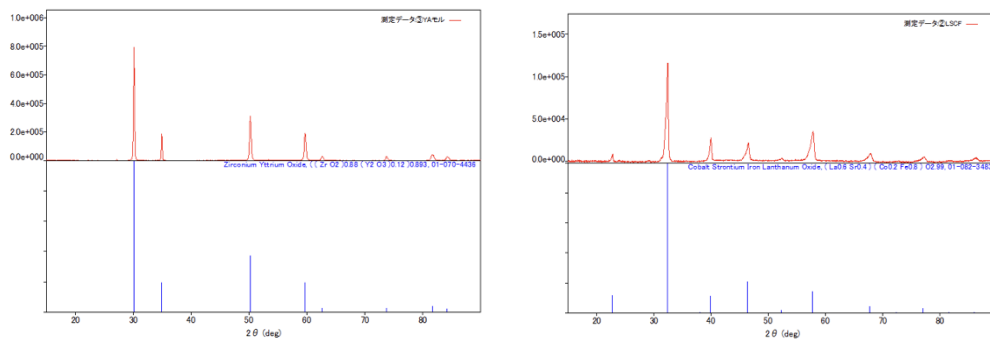


図 3-8-3.7 溶射法によって成膜した YSZ (左図) および LSCF (右図) の X 線回折

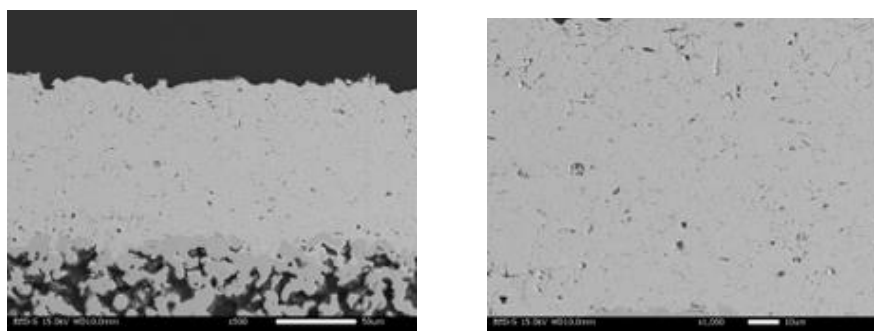


図 3-8-3.8 溶射法によって成膜した YSZ 層の断面および表面 SEM 像

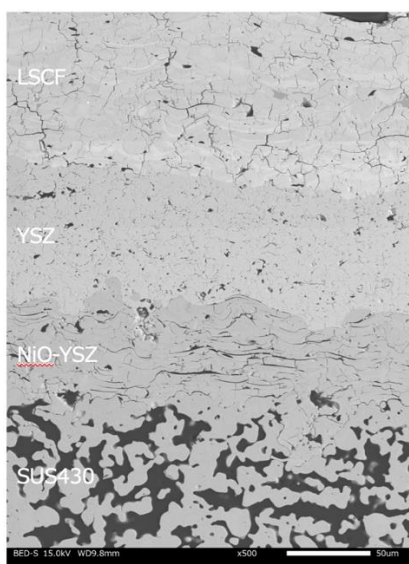


図 3-8-3.9 溶射法によって作製した NiO-YSZ アノード/YSZ 電解質/LSCF カソードの積層膜 (単セル) の断面 SEM 像

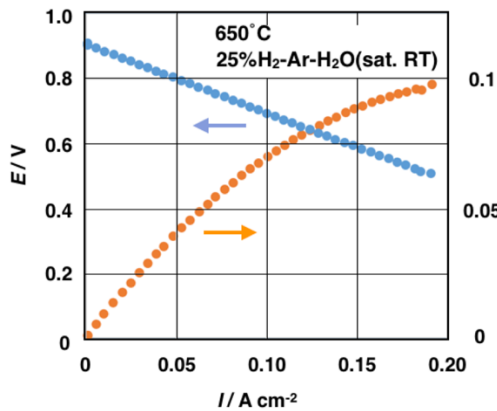


図 3-8-3.10 溶射セルの I-V 特性

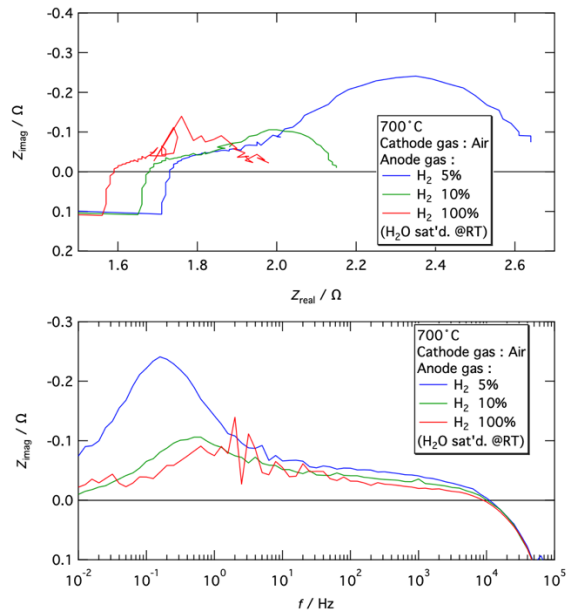


図 3-8-3.11 溶射セルのインピーダンス

(京都大学)

本研究開発内容：新規多孔質支持体の弾性・塑性挙動やその上に成膜した電解質薄膜の残留応力等の機械特性、および試作セルの起動停止特性等を評価し、高い機械的信頼性および電気化学特性を有する強靱性セルの実現可能性を検討する。

強靱性セル作製に使用する SUS430 相当の多孔質金属支持体の微構造分析を実施した。EDS 分析より、金属支持体には多量の炭素成分が存在していることが明らかとなった。粉末冶金により作製した試料であるため、造孔剤の影響や焼成時のコンタミネーションが原因と考えられる。また、窒化物成分の存在も明らかとなった。そこで、XPS 測定により詳細に分析したところ、 Cr_2N or Fe_4N (398.0 eV)、 CrN or Fe_2N (396.6 eV) に帰属される束縛エネルギー位置にピークが観察された(図 3-8-1.12 黒線)。高温焼成時に $\text{H}_2\text{-N}_2$ 混合ガスを使用しており、これが原因と考えられる。以上より、残存する窒化物成分や炭素成分がセルの電気化学特性に影響を及ぼす可能性が示唆されたそこで、これらの試料を水素雰囲気下で熱処理し、表面観察を行った。その結果、窒素成分は消失したが、金属表面に Cr 成分が濃集することが明らかとなった。セル作製過程において、焼成雰囲気や温度などの因子が金属表面種に影響し、Cr 成分の構成部材側への拡散などを引き起こす可能性が示唆された。このような変化は、電池性能へ影響する可能性があるため注意が必要である。

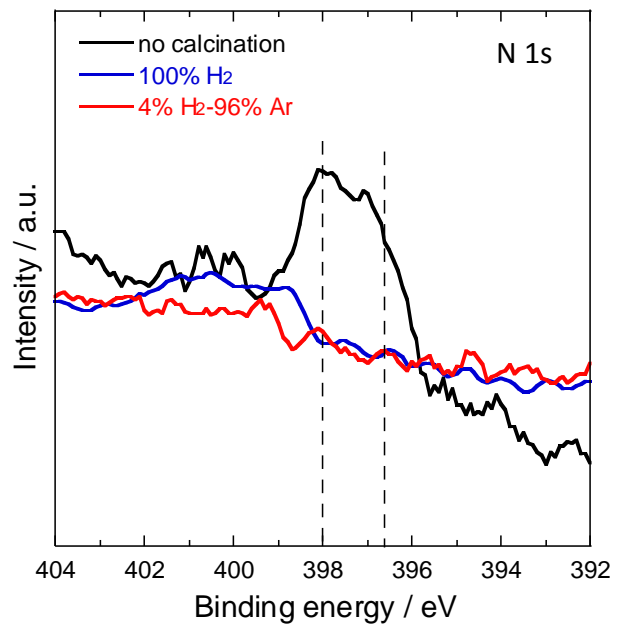


図 3-8-1.12 XPS による多孔質金属支持体表面の N1s スペクトル (Ar エッチング処理後)

c. マルチレベル数値解析による SOFC 負荷追従性の評価 (九州大学)

本研究では、SOFC システムレベルの集中要素の熱・物質計算、およびスタックレベルでの熱・物質・運動量・電荷の保存式を考慮した場の計算を連成し、SOFC の負荷追従運転による効率低下や、劣化加速の有無を検討するとともに、効率低下や劣化加速を抑制するセル流路構造を提案することを最

終目標（2019年度末）とする。来る再エネの電力グリッドへの大量導入にともなう各発電機所（装置）への出力増・減の要請、あるいは起動・停止の要請に備え、このような負荷追従時の問題検証は重要である。2018年度はシステムとスタックレベルでの連成手法を確立し、定常状態での定格、および部分負荷、過負荷での計算と、流量一定条件下での電圧ステップ変化に対する過渡応答の計算を実施し、以下のような成果を得たので報告する。

各レベルの計算、および連成の手法は次のとおり。システムレベルでは図 3-8-3.13 に示すように、5kW 規模、メタン供給の SOFC システムを想定した。システムレベルでは各要素での熱・物質輸送、及び反応などを計算する。図中の緑ハッチング部分がスタックで、スタックレベルは電極面積 11cm×11cm の並行流路セルが 150 段スタックされたものを想定し、実際には単セル、さらに一流路分だけの各保存式を数値計算した。両レベルのインターフェース、すなわち流路入口でのガス組成、温度、流量、およびセル壁面熱流の授受を連成した。なお、システム、スタックの各レベルの計算においては、アスペン、コムソルのソフトを一部改良して利用した。

図 3-8-3.14 及び図 3-8-3.15 は定格 5kW 時の連成計算結果であり、システムレベルの熱、電気、物質のフローを示す。左側からメタン、空気、および改質用の水が供給され、設定した電気出力 5.0 kW に対し、熱が 2.4 kW 発生した。図 3-8-1.14 は 60、80、100（定格）、120%出力時のシステム効率である。この時、60 から 100%の各出力においてセル燃料利用率は一定としたが、熱自立のためにシステム燃料供給を調整した。120%時では排熱を成り行きにした。コンプレッサーの断熱圧縮効率、パワコンの効率は出力によらず一定にした。図 3-8-3.14 に示すように 100%時が効率最大となった。これは熱自立のための 60、80%時の燃料調整と 120%時の排熱増によるものだと考えられる。今後の断熱技術の向上にともない、低負荷での断熱性は今後向上すると考えられるが、補機の部分負荷効率がこれを相殺するとも考えられる。この点が今後の課題である。

図 3-8-1.15 は、出力 100%時のスタックレベルの結果、すなわち単セル、一流路分の温度、電流、ガス濃度の分布である。温度は過電圧発熱により下流ほど高温となった。電流もこの温度分布、ガス濃度分布に左右され、電流密度は中流で最大となった。このようにスタック内部状況が詳細に可視化できるようになったので、今後は過渡応答時に想定される急激な温度分布や、燃料枯れ等々、劣化要因に注意しながら解析を進める。

図 3-8-3.16 は、過渡応答計算結果である。燃料流量は一定条件下で出力 100%から 120%相当にセル電圧が時刻 0 でステップ変化した場合の電流、温度の応答である。いわゆる Exp 状の時間応答であるが、ステップ直後に電流、それに引きずられた温度のサージも見られる。サージの理由は考察中であるが、このようなサージは、局所、かつ一時的な燃料枯れ等も引き起こして劣化要因となる。以上 2018 年度は、連成計算の土台を構築し、定常、部分負荷、過負荷の特性を明らかにするとともに、一例であるが過渡計算にも成功した。今後はより多くの運転想定にたいして、計算を実行し、最終的には、負荷追従時の劣化を抑制する流路設計指針を構築する。

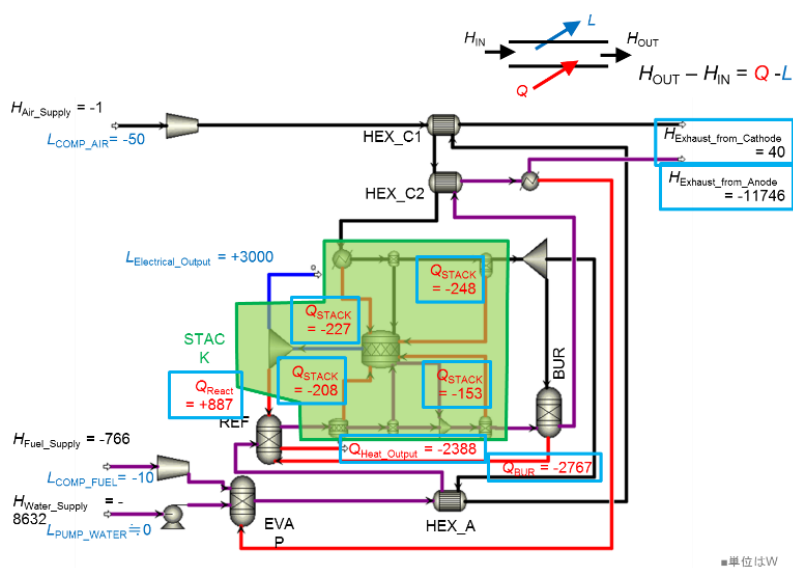


図 3-8-3.13 定格（100%時）の熱・電気の収支、および物質のフロー

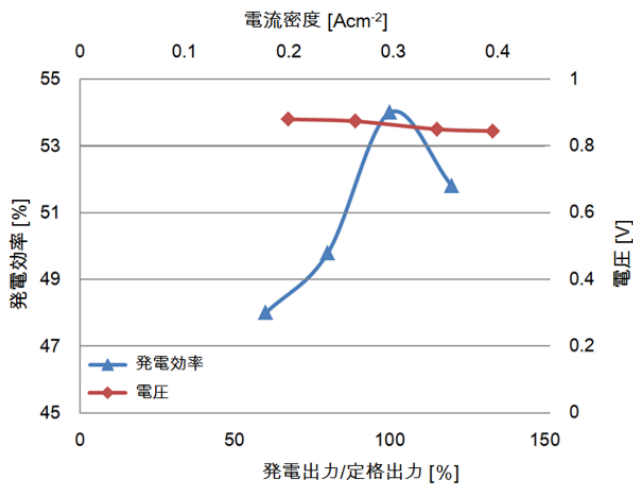


図 3-8-3.14 各出力に対する電気効率と IV 特性

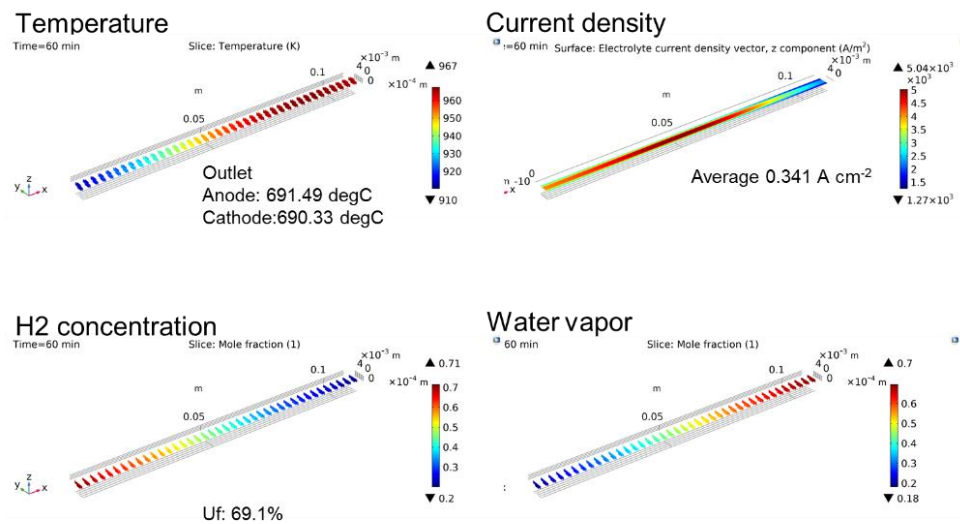


図 3-8-3.15 定格（100%時）の温度、電流密度、温度分布（セル入口温度 640°C）

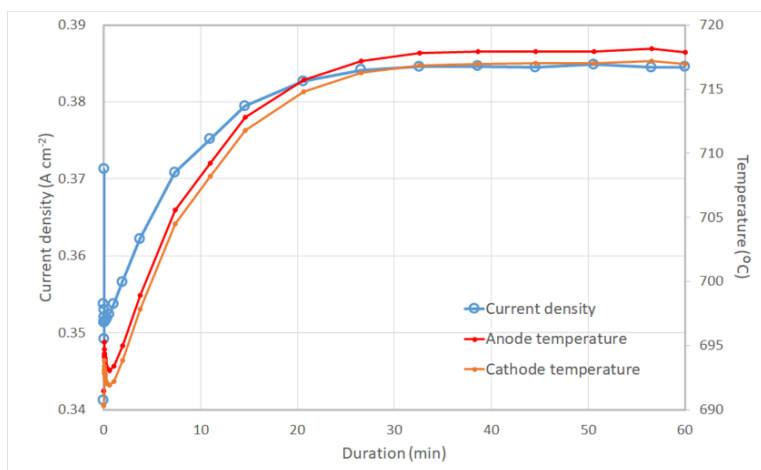


図 3-8-3.16 供給流量を一定に定格（100%時）からセル電圧を出力 120%時相当にステップ増加させた場合の応答

④ プロトン導電性デバイスの検討（産業技術総合研究所、パナソニック株式会社との共同実施、宮崎大学への再委託、横浜国立大学への再委託）

表 3-8-4.1 プロトン導電性デバイスの検討（2018-2019 年度）

項目名称	最終目標 (2019 年度末)	成果	達成度	今後の課題
プロトン導電性デバイスの検討	超高効率セルスタックの設計に向け、PCFCセルの電解質の輸率向上や電極界面設計、種々の作動環境での劣化機構解明、並びに利用率や熱機械的特性向上に向けた課題抽出をおこなう。	プロトン導電性セラミック燃料電池(PCFC)の材料組成最適化によりプロトン輸率の向上を図った。電極/電解質界面での抵抗を抑えるため、電極材料や界面構造の最適化を図り、性能を向上させることに成功した。	○	<ul style="list-style-type: none"> ・プロトン伝導輸率のさらなる向上 ・電極/電解質界面の最適化 ・スタック作成技術の向上

超高効率を目指すためには、燃料利用率を極限まで高めることが必要であり、燃料側での水蒸気が発生しないプロトン伝導性セラミックスを使ったプロトン導電セラミック燃料電池(PCFC)が注目されている。本研究開発では、PCFCのセル・スタック化及び実用化に向け、PCFCセルの試作を進め、PCFCセルの電解質の輸率向上や電極界面設計、種々の作動環境での劣化機構解明、並びに利用率や熱機械的特性向上に向けた課題抽出を行った。以下に概要を報告する。

a. PCFC 作製、輸率向上検討、高効率セルスタック・システム設計（産業技術総合研究所、パナソニックとの共同実施、横浜国立大学、宮崎大学への再委託）

超高効率セル・スタックの設計に向け、産業技術総合研究所とパナソニックにおいてPCFCの試作、宮崎大学において電解質の輸率向上に向けた課題抽出、横浜国立大学において超高効率セル・スタックの設計に向けた課題の抽出を行った。共同している東北大学の正極設計検討により得られた、PCFCにおいても三相界面が主要な反応場になっているという知見を基に、コンポジット電極を正極材料として選択し、試作したPCFC（電解質：BaZr_{0.8}Yb_{0.2}O₃（BZYb）、負極：Ni-BZYb）に搭載した。SOFCで主流材料となっているLSCFとBa(Zr,Ce,Y,Yb)O₃のコンポジット電極と、産総研で合成した(La,Ba)CoO₃(LBC)-BZYbナノコンポジット電極の発電特性を図(1)-4-①-1に示す。LSCFよりも高活性であるLBCの使用、および電極のナノ化により発電特性を大きく向上することに成功した。これは、高出力化はセルコストへ直結するだけでなく、PCFCにおいては電流密度が輸率に影響を与えることから、高効率達成にも資する結果であった。初期耐久評価として10%CO₂を添加した燃料ガス供給下において100時間の連続運転を実施した結果、著しい特性低下は観測されなかったが、100時間で約10mVの電圧低下が起きた。引き続き、より長期的な劣化挙動観測とデータ蓄積を行い、耐久性における課題の抽出を行う予定である。加えて、産総研において作成・試験されたLBC-BZYbナノカソードセルの発電特性を用いて、システムフローの概念設計を行い、熱損失や効率を計算した。

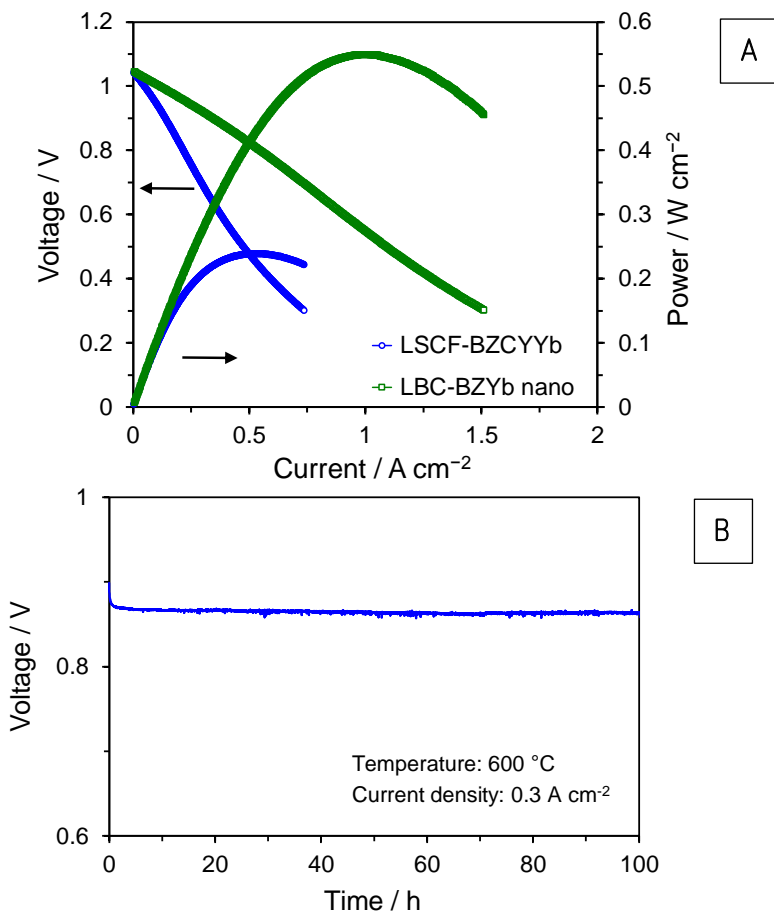


図 3-8-4.1 600°Cにおける PCFC の電気化学特性

(A : 加湿水素と加湿合成空気を供給、B : 加湿 90%水素-10%CO₂ と加湿合成空気を供給)

輸率向上検討として中間層材料についての検討を行った。PCFC の電解質候補材料である BaZr_{0.8}Yb_{0.2}O_{3-δ} (BZYb) の Ba サイトへ Sr もしくは Ca を部分置換した際の導電率への影響を調べた。Ba_{0.9}Sr_{0.1}Zr_{0.8}Yb_{0.2}O_{3-δ} (BSZYb) は単相の立方晶ペロブスカイト構造であることが XRD 測定より明らかになった。さらにプロトン伝導度は 0.01 Scm⁻¹ (800°C)、0.011 Scm⁻¹ (600°C) と燃料電池の電解質に適応可能な導電率を示した。更に正孔伝導度は 0.06 Scm⁻¹ (800°C)、0.004 Scm⁻¹ (600°C) であった。得られた BSZYb のプロトン伝導度及び正孔伝導度は BZYb の値と一致した。このことから Sr 系の材料を中間層にした際に BZYb に Sr が拡散した場合でも性能を低下させることはないことが予想される。一方で Ba_{0.9}Ca_{0.1}Zr_{0.8}Yb_{0.2}O_{3-δ} (BCZYb) は XRD 測定の結果、Ba-Ca-Yb-O 系の複合酸化物を形成することが明らかになった。すなわち Ca 系の中間層で BZYb と反応し複合酸化物を形成する可能性があることが分かった。

b. 正極の設計、機械特性/セルの変形挙動評価 (東北大学)

これまで SOFC セルの変形挙動評価に使用していたレーザー変位計を活用した評価装置一式を PCFC 評価用に改造し、実作動条件下における PCFC セルの変形挙動の予備検討を実施した。これにより、上記評価装置を使って PCFC セルの変形挙動が評価できることを確認し、更なる改良点を洗い出した。また運転条件における各部材の機械特性 (ヤング率、ポアソン比、水和による変形挙動など) を評価するための測定系構築およびサンプル作製を進め、PCFC セルおよび関連材料の評価体制を整えた。

モデル電極を使った空気極の反応機構の解明と高性能空気極設計指針確立に対しては、プロトン-電子-酸化物イオン混合伝導性を有した BaGd_{0.3}La_{0.7}Co₂O₆ を新たなターゲットとしてモデルパターン電極を作製している。上記材料は 3 種のキャリア (プロトン、電子、酸化物イオン) を同時に伝導することから「トリプルコンダクター」と呼称され、高性能 PCFC 空気極の候補として期待されている材料である。すでにモデル電極の構築に成功しており、今後これらの電極を評価することで

トリプルコンダクターにおける二相界面反応の寄与と三相界面反応の寄与を切り分けて評価し、高性能 PCFC 空気極の設計指針を確立する。
以上の検討により得られる知見と活かすことで、高エネルギー変換効率と高耐久性を両立する PCFC セルの実現を目指す。

⑤ポスト解体分析（産業技術総合研究所、東北大学）

表 3-8-5.1 ポスト解体分析（2018-2019 年度）

項目名称	最終目標 (2019 年度末)	成果	達成度	今後の課題
ポスト解体 分析	電力中央研究所などで過酷試験されたセルスタックの物理化学的な劣化要因を把握し、一般化のための課題抽出をおこなう。	燃料利用率 80%以上、負荷変動などの過酷試験を想定したセルスタックの劣化事象に対し、特に燃料極での酸化や微構造変化などの課題を抽出した。さらに、他大学の協力のもと、より詳細な解体分析を進めている。	○	更なる耐久性評価に対応する高度な分析・解析技術の開発

電力中央研究所にて過酷試験された企業セルスタックについて、解体分析に立ち会い、その劣化箇所や劣化部位を観察する。性能劣化や耐久試験結果と劣化部位の微構造観察や残留応力などの解析をして、セルスタック特有の劣化要因を特定、劣化機構解明のために一般化課題として劣化要因を抽出する。

本書作成の2019年6月時点で、過酷試験が終了したセルスタックから順次解体分析を開始したところであり、現在その詳細分析を実施している。予備的な検討では、筒状平板形セルスタックの燃料利用率80%以上運転セルスタックにて、燃料出口付近での微構造変化を観測しており、Niの酸化による微構造変化を検討している。これまで得られている耐久性迅速評価の過去のデータも適用し、さらに他大学の協力のもと、より詳細な解体分析を進め、連携して総合的に劣化要因の状況把握をおこない、課題を抽出する。

(10) 劣化機構の解明 (2018年度～2019年度)
 (産業技術総合研究所、東北大学、京都大学、東京大学、九州大学)

表 3-9-1.1 劣化機構の解明 (2018-2019年度)

項目名称	最終目標 (2019年度末)	成果	達成度	今後の課題
劣化機構の解明	スタック耐久性評価で、過酷試験されたセルスタックの劣化事象を切り出して、高効率・強靱化のための要素解析・劣化機構解明をおこなう。また、高効率・強靱化に必要な新規な評価法の検討も進める。	燃料利用率 80%以上、負荷変動などの過酷試験を想定したセルスタックの劣化事象に対し、特に燃料極での酸化や微構造変化などの起こりうる劣化メカニズムを解明し、高効率・強靱化のための基礎データを集積した。さらに、高効率セルの劣化を検出する新規評価法も開発した。	○	更なる耐久性評価に対応する高度な分析・解析技術の開発

① セル内不均一性に関する物理化学的解析 (産業技術総合研究所)

物理化学的解析においては、高燃料利用率運転下、高出力密度運転下における SOFC 性能劣化に対する基礎的なデータ収集を行った。具体的には、i) 燃料極の性能変化、微構造変化に対する水蒸気分圧、電流密度の影響評価、ii) 空気極劣化に対する空気加湿、電流密度の影響評価、iii) 電解質におけるプロトン透過現象の把握の 3 点に注目して研究を進めた。

i) 燃料極の性能変化、微構造変化に対する水蒸気分圧、電流密度の影響

燃料極性能に対する水蒸気分圧、電流密度の影響について、市販のアノードサポートセル (Elcogen 製) を用いて試験を行った。試験は主に 973K で行い、燃料は乾燥水素、1%加湿水素、60%水素を用いた。電流密度依存性は、開回路電圧 (OCV)、0.25A/cm²、0.5A/cm²、1A/cm² の 4 水準を基本として行った。

100 時間程度のセル試験結果から、高加湿 (60%) 雰囲気下においても燃料極性能の大きな低下は見られず、電流密度による影響も見られなかった。一方で、乾燥水素から加湿水素に燃料を切り替えることで、燃料極側の反応抵抗が大きく減少することが分かった。インピーダンススペクトル解析から、反応抵抗成分 (r_p) が 3 桁程度低下するとともに、容量成分 (c_p) が 3 桁程度増加していることが分かった。また、加湿水素燃料下でも発電時は r_p 、 c_p ともにほぼ変化しないことが分かった。(図 3-9-1.1) 燃料極の微構造はほぼ変化していないことから、水蒸気存在で、電極反応の律速過程が活性化されたことが分かった。

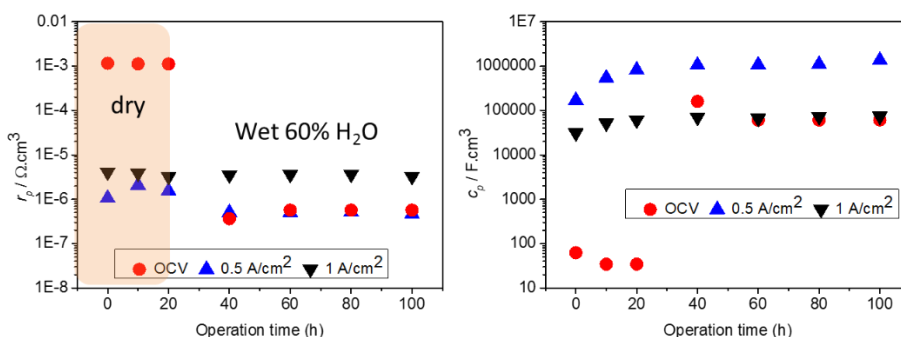


図 3-9-1.1 発電試験中の反応抵抗成分 (r_p)、容量成分 (c_p) の変化。973K での試験において乾燥水素で 20 時間試験後、60%加湿水素に切り替えた。

また、モデル電極を用いたニッケル形態変化試験では、水蒸気 (10%) 存在下でよりニッケルの凝集が促進されることが明らかとなった。

ii) 空気極劣化に対する空気加湿、温度、電流密度の影響

空気極性能に対する水蒸気の存在、電流密度の影響について、GDC 電解質上に LSCF 空気極を作製した試験セルを用いて評価した。性能試験は 973K~1173K で 100 時間程度行い、3%加湿空気を流して行った。電流密度依存性は、開回路電圧 (OCV)、1.2A/cm² で行った。

開回路電圧下では、900°C、800°Cでは反応抵抗成分 (r_p)は変化せず、700°Cでは r_p が試験初期に大きく増加する傾向が見られた。一方、発電下では 800°C、700°Cで r_p の減少が見られた。試験後の LSCF 空気極/GDC 電解質界面の形状を、走査型プローブ顕微鏡を用いて分析したところ、LSCF/GDC 接触界面の形状が変化していることが分かった (図(2)-1-2)。電流密度や試験温度により界面形状変化が異なること、また界面近傍での相互拡散状態が異なることが示唆された。

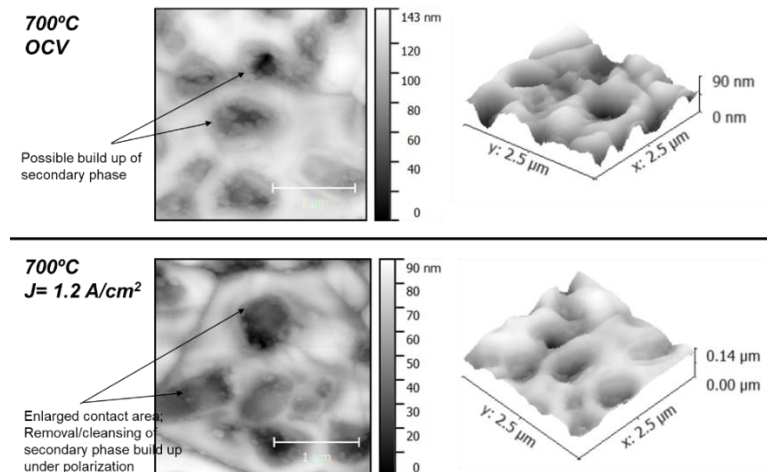


図 3-9-1.2 試験後の LSCF 空気極/GDC 電解質界面形状の走査型プローブ顕微鏡を用いて分析結果。上段：973K、OCV 試験後、下段：973K、1.2A/cm² 試験後

iii) 電解質におけるプロトン透過現象

空気極の劣化には水蒸気の有無が関連していることが知られており、電解質を介した水素や水蒸気の透過の有無は、空気極の性能低下や不純物の反応性にも影響を与える。ここでは、電解質及び反応防止層として用いられる YSZ、GDC について、粒界密度の異なる試料を作製し、重水で加湿した空气中で 600°C あるいは 900°C でそれぞれ飽和処理した後、二次イオン質量分析計 (SIMS) により溶解した水素の濃度を定量した。

単結晶 YSZ では D 濃度が検出限界 (10^{-16} cm⁻³) 以下であった一方、多結晶体では D の溶解が確認され、溶解 D 濃度は粒界密度が高いほど高いことが分かった。(図 3-9-1.3) また、低温ほど溶解量が多いことも明らかとなった。このことは、水素は粒界に溶解することを示唆している。

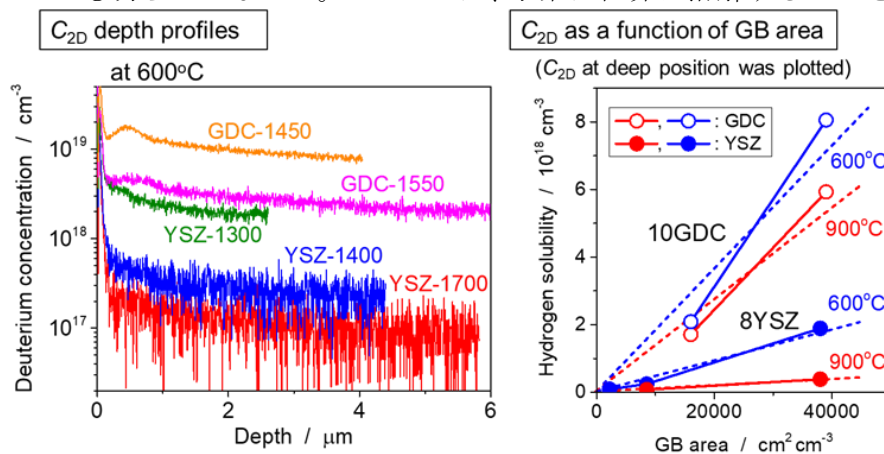


図 3-9-1.3 YSZ における溶解 D の SIMS 分析結果(左)と、溶解量の粒界密度依存性(右)

② セル内不均一性に関する機械的解析 (東北大学)

i) セル運転時挙動の評価

局所的な燃料・空気枯れ，ホットスポット発生など，運転時のセル内不均一性は高燃料利用率運転時の機械的損傷のリスク要因となる。そこで平成 30，31 年度は，不均一性を把握するための実験手法の開発を進めた。従来開発してきたセル形状・AE・温度同時測定においては高燃料利用率試験を可能にするために集電体に接続するリード線配置を最適化するとともに，これらのリード線を電位プローブとして利用することで，セル電流の分布を逆解析によって評価する手法を検討した。これまでにガス分布の過渡変化時の局部電池電流の検出が可能であることを見出した。

ii)セル残留応力および損傷の事後評価手法の検討

SOFC の残留応力を評価する方法として X 線回折法の一つである $\cos \alpha$ 法に着目した。この手法は X 線回折のデバイリング全体を利用するもので，比較的簡便に残留応力を計測できるが SOFC 部材への適用例は無かった。そこで本研究では，はじめに YSZ を用いてこの手法の適用可能性を検証した。結果の一部を図 3-9-2.1 に示す。外部から一軸圧縮応力を印加した YSZ について，本手法で測定した応力方向のひずみを歪みゲージでの測定値と比較したところ，高い相関性が得られ，この手法が適用可能であることを見出した。

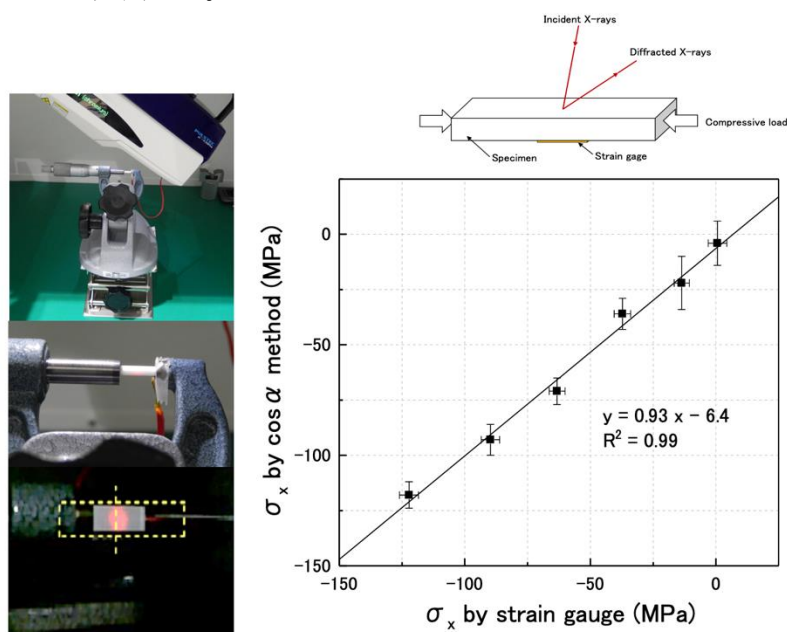


図 3-9-2.1 $\cos \alpha$ 法とひずみゲージ法による測定の相関性

また，電池性能を大きく左右する可能性がある構成材料間のはく離について，テラヘルツ分光法を用いた観察を実施した。この手法の概念図と結果の一部を図 3-9-2.2 に示す。測定においては，テラヘルツ波を試料表面に照射し，その反射波を計測する。反射波の場所ごとの差異を解析することによって，異常な箇所を検出することができる。この手法の検証には，カソード剥離が生じた（と思われる）ボタンセルならびに健全なボタンセルを用いた。これらは外見には差がない（図左上部写真）が，一方のセルは発電時に急激な性能低下がみられたものであり，カソードの剥離が疑われたものである。反射波強度の場所依存は両者とも同程度であったため，機械学習の手法を用いた分類法で，より詳細な比較検討を行った。まず，与えられた材質の物性値と形状から想定される理論波形を算出し，次に剥離の有無が最も顕著に現れる波長帯を計算から特定する。この波長域を中心にして階層型クラスタリングにより剥離領域を特定した。この手法により得られた可視化の結果は，試料を切断して断面観察によって得られた結果とよく一致し，膜厚や不純物の影響を排したはく離のみの評価が可能であることが確認できた。また，機械学習を用いることでテラヘルツ分光法により得られる分解能よりも高い分解能で評価できる可能性を見出した。本試験は状況に応じて企業セルの試験にも適用した。



図 3-9-2.2 はく離現象の可視化 (テラヘルツ) 茶色 : はく離部分、青色 : 密着部分 (b) 断面観察によるはく離領域観察

iii) 材料の基礎データの取得

合金材料のクリープは、電気的接合の劣化やガス流路の変形による流配の変化などを生じ、セル内不均一性を助長する可能性がある。そこで、上述したように、本プロジェクト前半から、日本特殊陶業社より提供された複数のインターコネク候補合金を用いて高温クリープ挙動の測定を実施してきたが、より詳細な解析により長期耐久性を予測するために、さらに長時間のクリープ試験を継続した。セルの長期安定性・信頼性を正しく評価するために、運転温度に近い $700^{\circ}\text{C} \sim 800^{\circ}\text{C}$ の複数の温度でそれぞれ数千時間に亘る実験を行った。SOFCのインターコネク材料として代表的な Crofer22APU と Crofer22H のクリープ特性を図 3-9-2.3 に比較している。Crofer22H では、Crofer22APU に比べてクリープ破断に至る時間が長く、この温度でも高い耐クリープ特性を有することがわかる。図 3-9-2.4 は、これまでに測定した合金の1つについて、得られたデータから活性化エネルギーならびに Larson-Miller 指数に基づく解析を行った例である。ここでは、0.5%ひずみパラメータと応力との関係が線形であると仮定して、種々の温度の条件で0.5%ひずみに到達する時間と応力との関係を推定した。この推定が長時間の挙動を正しく反映するのであれば、例えば 700°C で 10 MPa 程度の応力下におかれた場合に、この合金の9万時間後のひずみは0.5%程度であることを示しており、9万時間の信頼性を見通すために重要なデータとなる。

ただし、合金のクリープ挙動に関しては、数万時間程度から非線形的なひずみの増大に遷移し、10万時間程度で破断に至るとの報告も多くなされている。SOFCの合金部材が10年間を超えて安定に動作するかについては、これら長時間後の特性を正確に把握する必要があり、さらなる基礎科学的な検討が不可欠である。

一方、アノード支持層のクリープ特性についても、実動作環境範囲での蓋然性の高いシミュレーションを可能にするために、従来取得した弾性率等を基に有限要素法によって応力レベルを算出し、この範囲での中-高温域におけるクリープ特性を調べた。試験条件は4点曲げによって確認した弾性域を参考に設定した。図 3-9-2.5 に例示するように還元されたアノードは中温度 400°C でもクリープ変形(時間発展型塑性変形)を生じていることがわかる。またクリープ変形は温度・負荷荷重上昇と共に増加し、同時に遷移クリープ発生領域が増加していることがわかる。これらの結果

は最適化解析による定式化によりアノードの機械特性情報としてSIMUDELでの応力計算に適用される。

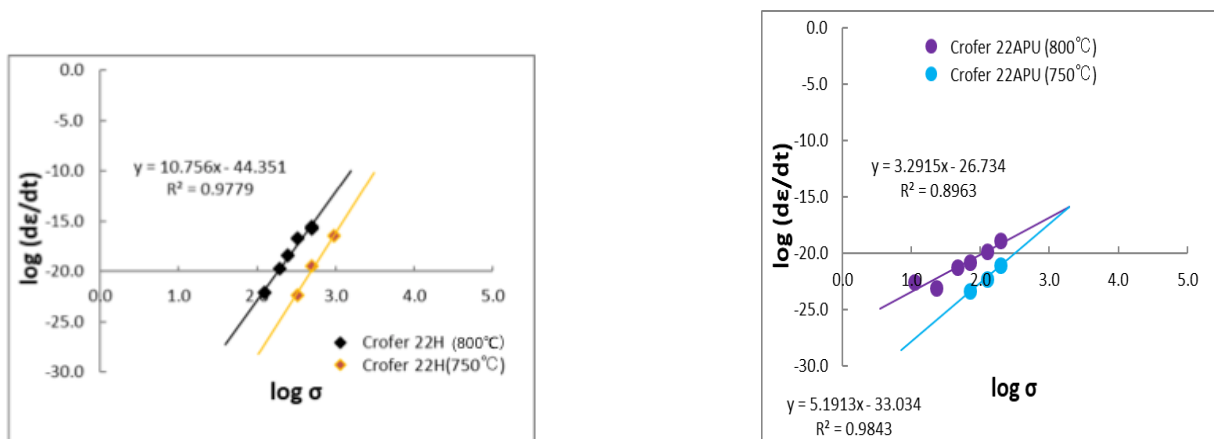


図 3-9-2.3 Crofer22H と Crofer22APU の高温クリープ試験の結果 (750°C , 800°C)

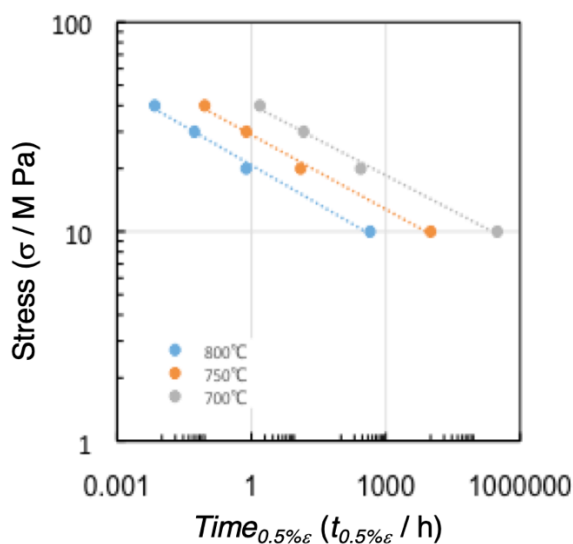


図 3-9-2.4 インターコネクト候補合金試料の、0.5%ひずみに達する時間と温度、応力の関係

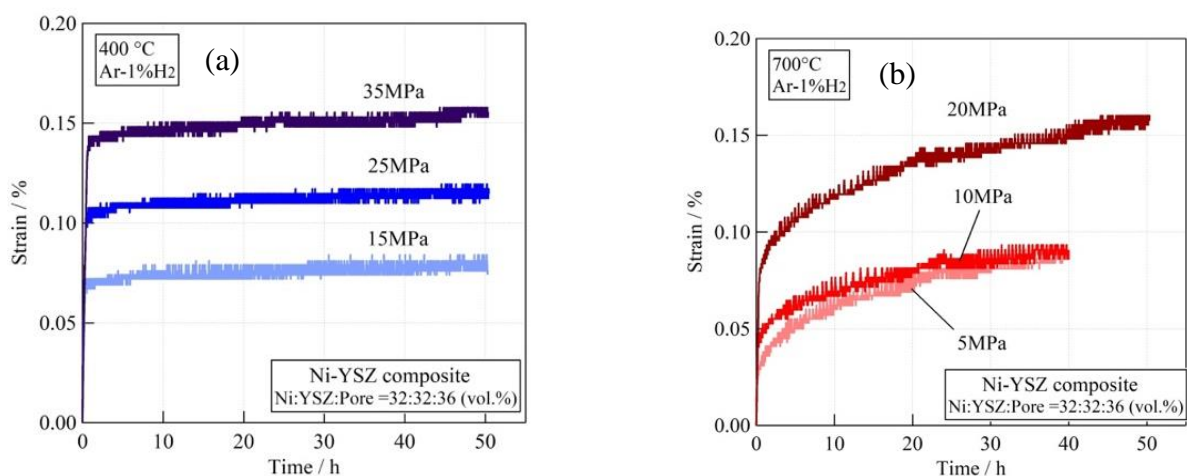


図 3-9-2.5 弾性域内負荷応力に対する各温度でのクリープ特性 (a) 400°C, (b) 700°C (試験片形状：26mm×6mm×2mm)

③ 電極のマクロ・ミクロ構造に関する解析 (京都大学・東京大学)

本研究開発内容：①「スタック耐久性評価」にて過酷試験に供したセルスタック試験体について、電極反応場となる三相界面近傍や電極厚み方向などのマクロ・ミクロ構造に着目した解析を実施し、状態変化や変化領域を明確化する。また、単セル等を用いて高燃料利用率下などの過酷条件において模擬試験を行い、電気化学的挙動および電極微構造変化に関する基礎データを集約する。劣化要因の抽出を行い、過酷条件での性能変化を予測する手法を確立する。以下の項目について実施した。

(京都大学)

i) 過酷試験セルスタックの評価・診断と劣化要因の抽出

過酷試験に供したセルスタック試験体の電極に対して、集束イオンビーム一走査型電子顕微鏡複合装置 (FIB-SEM) による3次元構造解析を行い、三相界面近傍のパラメータを収集し定量解析を実施した。

過酷試験（約2000時間）に供した中温平板型セルのNi-YSZアノードの解析結果を図3-9-3.1に示す。電気化学特性やSEMによる簡易な微構造観察では、顕著な劣化の兆候は観察されなかった。しかし、FIB-SEMによる電極微構造パラメータの定量解析により、燃料ガス供給路の入口側と出口側において活性な三相界面長さの分布に違いがあることが明らかとなった。具体的には、燃料ガス出口側の電極/電解質界面近傍において、Ni体積の減少およびNi孤立相の増加により三相界面長さが減少した。燃料利用率の高いガス流路下流では、このような電極微構造の変化が時間とともに進展し、大きな性能低下を引き起こす可能性があるため注意が必要である。

ii) 電池性能と電極微構造の基礎データベースの構築

高燃料利用率下における電気化学的挙動を取得することを目的として、単セル(Ni-YSZ|YSZ|GDC|LSC)による発電試験を実施した。一例として、800 °CにおいてメタンをSteam/Carbon = 3の条件で水蒸気改質したガスを各燃料利用率(U_f)時のガス組成になるように触媒燃焼器を用いて調整し、燃料極に供給した際の電流-電圧特性を取得した結果を図3-9-3.2に示す。すべての U_f 条件において開回路電圧は理論値と同等の値を示しており、ガス組成の調整に問題のないことがわかる。 $U_f = 50\%$ よりも

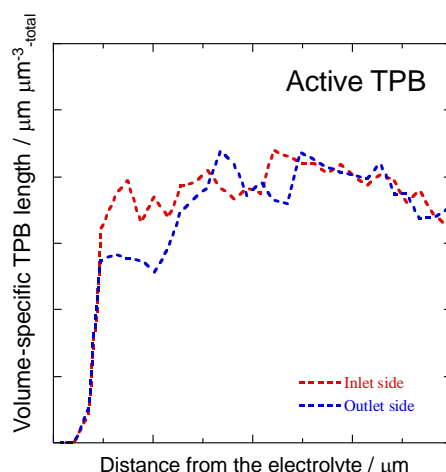


図 3-9-3.1 過酷試験に供した中温平板セルのアノードにおける活性な三相界面長さの分布 (電極/電解質界面から電極バルク方向)。

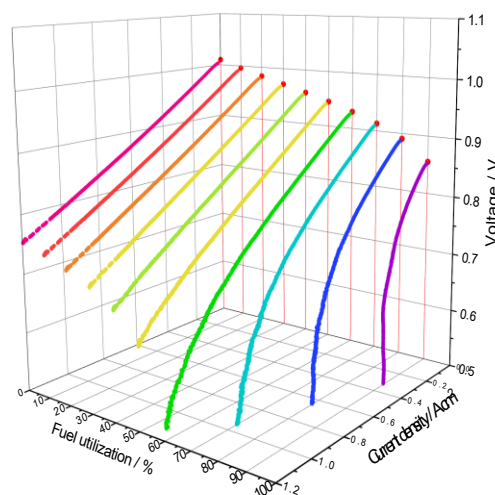


図 3-9-3.2 800 °Cにおける単セルの電流-電圧特性 ($U_f = 0, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 90$)。燃料ガス：メタン水蒸気改質ガス(S/C=3の条件)、空気極ガス： O_2 。

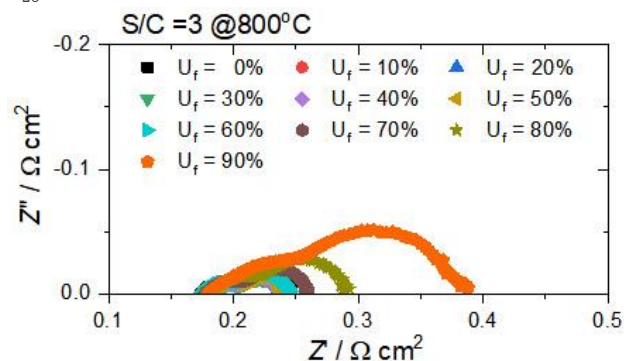


図 3-9-3.3 図 3-9-3.2 測定時に同時に取得した OCV 下における単セルのインピーダンススペクトル

上の領域で、電流－電圧曲線の形状が変化し、燃料枯れによる影響がみられた。図3-9-3.3に電流－電圧特性評価と同時に取得した開回路状態における単セルのインピーダンススペクトルを示す。オーム抵抗は U_f に依存しておらず、短時間の試験において劣化は進行していないと考えられる。また、 U_f の上昇に伴って低周波数側の円弧が大きくなっており、燃料枯れによる拡散の影響が顕著に表れることが明らかとなった。これらのデータを用いて、実セルサイズの平板形セルの発電特性を予測中である。

(東京大学)

レーザー顕微鏡を用いて三相界面の観察に適したNiパターン電極のin-operando観察を行った。機械研磨した高密度YSZペレット（直径24mm、厚さ0.5mm、ファイナセラミックス株式会社）上に、DCスパッタリング法（CANON-ANELVA E-200S, 1Pa, 300 W）により格子状のNi薄膜（厚さ約1 μ m）を製膜し、その後空气中で3時間1400℃で焼成しNiO膜に酸化させた。同サンプルに集電線を接着し、図3-9-3.4(a)に示す高温観察チャンバーに設置した後、図3-9-3.4(b)に示すように高温チャンバーに燃料として10vol% H₂、87vol% N₂、3vol% H₂Oを供給し、ヒーター温度を1000℃まで昇温した。アノード参照極間電位差を0.7Vに固定し、観察窓からレーザー顕微鏡（VK-X1000, KEYENCE）を用いて燃料極側を直接観察した。アノード表面温度は約850℃と推定される。図3-9-3.4(c)に48時間後の三相界面の様子を示す。NiがYSZ上を約30 μ m程度移動し、非常に複雑な構造に変化する様子がin-operandoで観察できた。

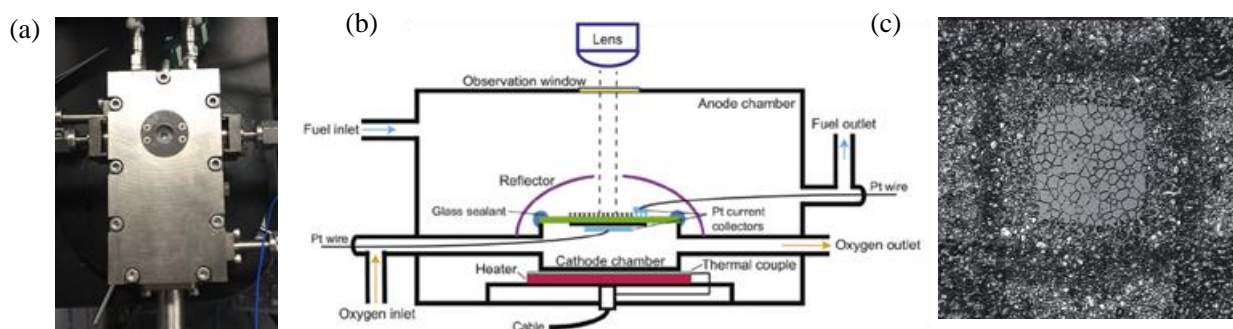


図 3-9-3.4 Ni パターン電極 in-operando 観察実験

④ 反応場の局所構造・組成に関する解析（九州大学）

高効率・強靱化を実現する電極材料、微構造の設計指針導出につなげるため、スタックの過酷運転を模擬したボタンセル試験と、電極反応場近傍の高分解能観察を実施し、過酷条件下における電極反応場の局所構造変化、組成変化、劣化因子、劣化機構を検討した。セル試験は、参照極を取り付けた電解質支持型セルを用い、高燃料利用率条件を模擬した組成の燃料ガスを供給し、電流密度、電圧、アノード過電圧等、個別の因子を制御し、アノード電位を計測しながら実施した。過酷条件下で劣化後に現れたNi酸化電位近傍での振動現象を解析し、アノード内のNiパス切断により発生するオーム損が、Niを酸化させる方向に作用すること、および耐久性向上のためにNi粒子のつながりを強固に維持することが重要であることを確認した。図3-9-4.1には、高電流密度運転および高加湿運転で、セル劣化後に現れた振動現象を示す。どちらの場合も電解質のオーム損を補正したアノード電位がNi酸化条件となる動作点の近傍で振動していた。セル運転中における電極反応場の局所構造を調べるために、電圧を維持しながら急速に降温したセルを高分解能STEMで観察した。水蒸気分圧、過電圧、アノード電位がNiの酸化状態、微構造、電極反応場の広がり及ばず影響を分析した。スタック側との連携では、中温筒状横縞形セルスタックについて、オーム損変化の原因に関して局所構造や組成の変化を中心にSTEM分析を実施した。業務用平板形セルスタックについて、電中研で実施された負荷変動耐久試験後のSTEM分析を実施した。

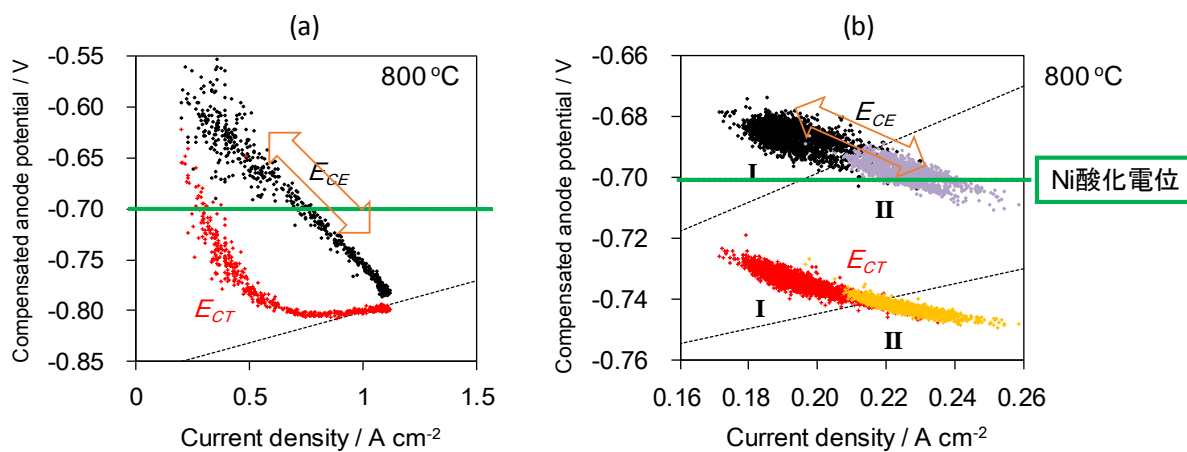


図 3-9-4.1 (a)高電流密度運転 (H₂/H₂O/N₂=20/80/100, 0.5 V 一定, ~1.1 A cm⁻², 90 h 後) および(b)高加湿運転 (H₂/H₂O/N₂=5/95/100, 0.6 V 一定, ~0.24 A cm⁻², 910 h 後) で現れた振動現象 (E_{CE}: 電解質のオーム損を補正したアノード電位)

(11) 耐久性迅速評価方法の開発

(東京大学、京都大学、東北大学) (2018年度～2019年度)

表 3-10-1.1 耐久性迅速評価方法の開発 (2018-2019年度)

項目名称	最終目標 (2019年度末)	成果	達成度	今後の課題
耐久性迅速評価方法の開発	高燃料利用率下での燃料極の微構造変化と性能、機械的な変形などの事象をシミュレーションできるようにする。	過酷条件において課題となる局所水蒸気分圧を高精度に予測するために、必要に応じてモデルの改良を行った。局所水蒸気分圧の下で過酷運転時の燃料極のNi形態変化を予測することができ、過酷条件における燃料極劣化のシミュレーション・予測手法を構築した。	○	更なる耐久性評価に対応する高度な分析・解析技術の開発

① シミュレーション技術の開発

a. 東京大学でのとりくみ

電極内のガス拡散抵抗実験を実施し、ガス拡散モデルの検証を行った。NiO-YSZ (AGC セイメケミカル, 60vol% : 40vol%) の粉末をペレット状に成型し焼成した。このサンプルを図 3-10-1.1(a) に示すように電気炉内に設置して 800 °C にて還元を行った後、上部と下部の供給口から窒素と水素をそれぞれ同体積流量供給した。出口でのガス組成をガスクロマトグラフ (GC) にて測定し、サンプルのガス拡散特性を評価した。一方、FIB-SEM で構造パラメータを評価し、Cylindrical Pore Interpolation Model (CPIM) をでサンプル内の濃度分布を予測した。図 3-10-1.1(b) および(c) に、水素と窒素をそれぞれ 20ccm 供給した際のサンプル内のガス種の分布を示す。標準ガス拡散モデルによる予測結果と CPIM の予測結果を比較するとともに、CPIM の妥当性について検証した。また上記 CPIM モデルを汎用 CFD ツール ANSYS FLUENT の SOFC ソルバーに実装した。

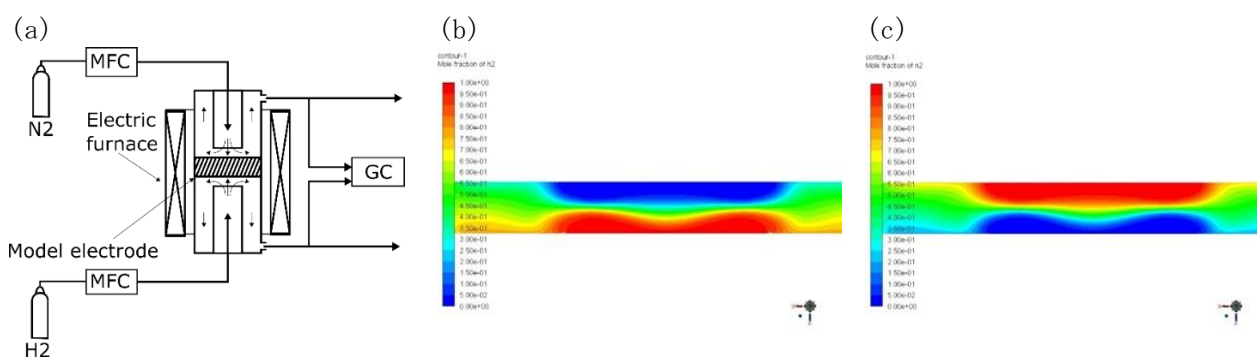


図 3-10-1.1(a) ガス拡散抵抗評価装置構成図, (b) サンプル内水素モル分率分布, (c) サンプル内窒素モル分率分布。

b. 京都大学での取り組み

高燃料利用率作動時の燃料流路下流域など、水蒸気分圧が高い条件でも適用可能な電極反応モデルが必要である。その基礎データ取得を目的に、電解質両面に Ni-YSZ 電極 (Ni:YSZ = 50 : 50 vol%) をもつ対称セルに供給し、電極性能を EIS により評価した。ガス供給系としては、水素と酸素の混合ガスを水素過多の条件で供給し、水素の一部を白金触媒で燃焼させる方式を採用した。電気炉温度 800°C において、供給ガス中のモル分率を ($H_2:H_2O=1.0-x : x = 0.05 \sim 0.8$) となるように変

更したところ、Ni-YSZ 燃料極の比面積抵抗が 20%加湿 ($x = 0.2$) 付近で最小となり、それ以上の水蒸気分圧では、水蒸気分圧の増加とともに抵抗も増大した。

従来のマクロレベルの数値解析では、電極見かけ電極面積当たりで評価した過電圧モデルを採用する手法が一般的であった。そこでこれまでに、計算負荷の増大を抑えつつ電極微構造情報をマクロレベルの数値解析に反映させることを目的に、電極内で厚み方向の現象を解析的にとらえた電極モデルを開発した。提案モデルは電極内の微構造パラメータの空間分布を反映することが可能である。この提案電極モデルを ANSYS Fluent へと組み込むため、サブルーチンと関連情報をまとめ、組み込みを実施する東京大学グループへ提供した。

擬 3 次元セル・スタックシミュレータの非定常化の準備として、セルの厚さ方向 1 次元非定常解析モデルを構築した。従来の等価回路モデルに換えて、電子電流、イオン電流およびガス種の拡散を非定常で解析する。その際、電気二重層容量は Ni-YSZ 接触面積密度に比例すると仮定した。出力変動に対する応答や、実験で得られたインピーダンスの再現を試み、モデルの検証を行った。図 3-10-1.2 は実験で得られた Ni-YSZ 燃料極のインピーダンスと本モデルによる数値予測の比較した例である。OCV 条件で本数値モデルをキャリブレーションしたうえで、発電状態のインピーダンスを予測したところ、さらなるフィッティングを要することなく、実験結果を概ね再現できた。

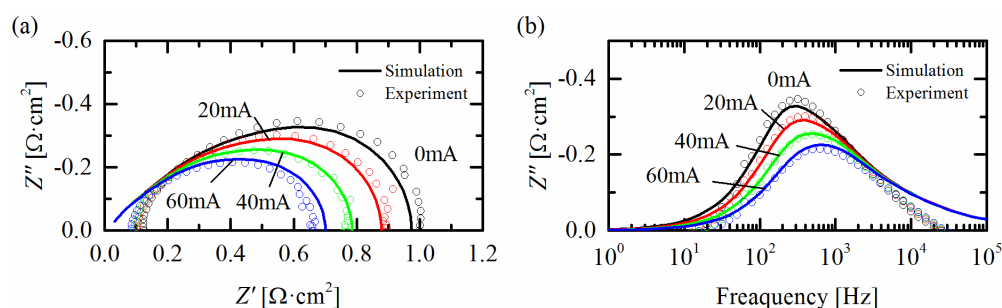


図 3-10-1.2 非定常 1 次元セル解析モデルによる解析例：Ni-YSZ 燃料極のインピーダンス解析結果の数値予測。

c. 東北大学での取り組み

SOFC 運転時のセルのマクロな変形や応力の発生、あるいは材料の組成・微細構造の変化には、セル内部での酸素ポテンシャルの分布が深く関与している。東北大学では、セル構成材料内部の各場所での酸素ポテンシャルの変化を物質輸送と酸素不定比性から計算し、ここから得られる化学歪みとその経時変化を構造解析に用いる手法を開発した。本プロジェクトでは、このルーチンをより汎用化・ロバスト化し、一般的な汎用 FEM ソフトウェアと連携した汎用解析ツールへと拡張することを目指している。

i) 酸素ポテンシャル-応力シミュレーション汎用ツールの構築

昨年度までに、東北大学で独自に開発してきたインハウスプログラムを、一部のルーチンに改良を加え、汎用ソフトウェア Abaqus、Marc および ANSYS の GUI を用いた汎用ポテンシャル解析ツールのプロトタイプを作成した。構築した当該汎用ツールをさらに細かく仕様を決定し SIMUDEL.TU の ANSYS バージョンを完成させた。現在本学および企業にて当該ソフトウェアの検証を行っている。

ii) 燃料分布解析汎用ツールとの連携

i) で構築した汎用ツール SIMUDEL.TU の ANSYS バージョンと ANSYS 構造解析連携シミュレーションに Fluent SOFC モジュール解析結果を導入した連携解析ツールを構築した。

拡張したプログラムおよびソフトウェアに関して、固体電解質の物性値の設定の検討を行った。Fluent SOFC モジュールでは、解析モデルのうち流路と電極及び流路と電極表面における計算を想定する。SIMUDEL.TU_AN 及び ANSYS Mechanical での変形解析では、解析モデルのうち流路を除いた固体領域の計算を行う。Fluent の SOFC モデルは電解質をモデル全体と比較して非常に薄いものとして考えられているため、Interface (面) 上にしか設定できないが、本ツールでは、固体電解質の電気化学解析や構造解析が必要となり、固体電解質は面ではなく体積を有していないとしない。電解質をカソード側としてモデル化する本ケースにおいても、SOFC モデル上、電解質は Interface (面) として設定されており、化学反応や発熱などは Interfa

ce(面)上で発生する。従って、本モデルにおいては、流れ、圧力、温度、化学種といった各変数が、3次元モデル化された電解質内において、可能な限り、厚さ方向にのみ均一となるよう調整を試みた。

電解質部分における流れは、平面方向には流れなし・ポーラスの抵抗を極端に大きくすることでほぼ移動が生じないように調整し、上下方向には流れあり・ポーラスの抵抗を上下方向に零とすることでほぼ上下方向にのみ移動が生じるように調整した。電解質部分における化学種は、平面方向には拡散なし・ポーラス内における分子拡散を非等方性とすることで平面方向に拡散しないよう調整し、上下方向には拡散あり・ポーラス内における分子拡散を非等方性とすることで上下方向にのみ拡散するように調整し、係数を大きくすることで瞬時に広がるように調整した。電解質部分における熱伝導は、平面方向には熱伝導なし・異方性熱伝導率を使用し、発生した反応熱が平面方向に伝わらないように調整し。上下方向には熱伝導あり・異方性熱伝導率を使用し、発生した反応熱が上下方向にいち早く伝わるように調整した。ただし、固体中の熱伝導は平面方向を完全に零に設定することはできない。アノード、カソードおよび電解質領域にはポーラス(多孔質体)機能を使用している。多孔質体では、空隙率を設定することで、多孔質体を構成する固体材料とガスの双方の熱伝導率を考慮した有効熱伝導率が計算に使用される。すべてガス(固体考慮なし)を空隙率=1(デフォルト)とし、0-1の範囲で設定。空隙率はガス流体の流れにも影響を及ぼす。電解質領域を空隙率零とすることはできない。このような設定にすると、ガスが存在できないためエラーとなる。また、ガスには異方性熱伝導率は定義することができないため、電解質領域については、空隙率でわずかに固体を含むようにする(例えば0.99)。他の変数への影響を考慮し、固体材料の異方性熱伝導率を用いて、上下方向にのみ極端に大きな値になるように調整する(k_s の値)。以上より、平面方向のガスの熱伝導(上記 k_f)は無視できないが、 $k_f \ll k_s$ となることで、上下方向の熱伝導が顕著になるように調整する。SOFCモジュールにおいては、電位は設定上の電解質Interface面における電位差を考慮している。電解質Interface面の仮想厚さ、および電気抵抗はモジュール内で設定している。また、反応における発熱量について計算する際に、電解質における電位差を使用している。SOFCモジュールの設定で、電解質の厚さおよび抵抗は、通常通り設定する。以上より、電解質における電位差はSOFCモジュール内で計算する必要があることから、3次元モデル化した電解質領域では電位差が発生しないように調整する必要がある。しかし、伝導率についてはSOFCモジュール内で定数でしか設定することができず、異方性を設定することができないため、例えば大きい伝導率を設定すると、平面方向にも広がってしまい電位分布がおかしくなってしまう。以上より、電位については電解質3D領域内で、上下方向に均一に調整することは難しいことがわかった。

検証例題を3つ用意した。① 電解質領域のモデル化なし(SOFCモジュールで電解質厚さを0.5mmと設定)、② 電解質領域を3Dモデル化(SOFCモジュールで電解質厚さを0.5mmと設定(前述の理由より)、電解質領域に前述の変数設定を適用)、③ 電解質領域を3Dモデル化(SOFCモジュールで電解質厚さを0.5mmと設定、電解質領域に前述の変数設定を適用しない→適用の効果比較のため)これは、カソード領域が単純に増えた形になる。解析では、①が正と考え、②が3D化した場合の諸々考慮した設定で①と出来るだけ近くなることを想定し、③は単純にモデルを拡張したのみで、要は正しくないものとして検証した。

その結果、SOFCモジュールにおける電解質“面”でのInterface Current Density分布図 [amps/m²]は、①②③概ね一致し、モデル間差異は大きくなかった。電解質表面の温度分布 [K]は、①②は概ね一致しているが、③は電解質3D領域内で平面方向に伝わっているためアノードとカソード面で分布が異なっているのがわかった。カソード側 中央断面 O₂質量分率は、①②は概ね一致しているが、③は電解質3D領域内で平面方向に拡散しているのがわかった。カソード側電解質表面O₂質量分率は、①②は概ね一致しているが、③は電解質3D領域内で平面方向に拡散しているため、アノードとカソード面で分布が異なっているのがわかった。アノード側中央断面H₂質量分率は、①②③概ね一致しており、アノード側は形状も同じためか、モデル間差異は大きくないことがわかった。アノード側 電解質表面 H₂質量分率は、①②③概ね一致しており、アノード側は形状も同じためか、モデル間差異は大きくないことがわかった。中央断面の圧力分布 [Pa]は、中央断面では①②③概ね一致しており、モデル間差異は大きくない。電解質表面の圧力分布 [Pa]は、電解質表面では①②概ね一致しているが、③は調整を加えていないことから、若干ずれが生じているのが分かった。電位 [V]は、設定の通り電解質3D領域での電位の分布を調整できないため、①と②③で様相が異なってしまうことがわかった。

以上の結果から最も好ましい解が得られるのは②の設定の場合であると判断し、この方法を採用することとした。

SIMUDEL.TU の ANSYS バージョンは各機関で使用されており、フィードバックをもとに適宜修正していく予定である。また、さらに実用的な計算へと適応可能なよう改良を加えていく。現状のソフトウェアを各社のセルに適用し、一部はメーカーと共同で構造解析に適用する

Fluent SOFC モジュールとの連携ツールは枠組みの構築に成功したが、さらなるブラッシュアップが必要である。より精度の高いツールが完成し次第にメーカーセルに適用していく。

(12) 総括とまとめ (産業技術総合研究所、東京大学、東北大学) (2018年度～2019年度)

固体酸化燃料電池セルスタックの高効率・強靱化への課題抽出・設計指針提示 (コンセプト創出) のため、本年度より研究内容を一新して開発を進めた。平成29年度(2017年度)までで開発した耐久性迅速評価方法を適用し、高効率運転時のセルスタックの耐久性向上のための各種試験、メカニズム解明をはじめ、強靱性セルの可能性検討を開始した。スタック耐久性技術検討WG会議、基盤コンソーシアム会議・シミュレーション技術適用検討グループ会議、強靱性セル可能性検討グループ会議、及び調査研究との合同・連携会議などをそれぞれ3回程度開催し、プロジェクトの進捗管理、推進ととりまとめをプロジェクトリーダーと各主査の指導のもと推進した。

以下、主な項目ごとに総括をする。

①スタック耐久性評価：

電力中央研究所で行ったスタック開発企業4社(京セラ、日本特殊陶業、日本ガイシ、デンソー)の高燃料利用率($U_f=85\%$ まで)・負荷変動試験において、2000時間超の過酷試験の範囲では劣化傾向は通常試験と同程度であった。しかしながら、過電圧上昇、オーム損抵抗増大なども一部セルスタックに観測され、今後試験時間を延長して、高効率運転時の変化を詳細に観測する。実機システムでの高燃料利用率運転での課題を明らかにするため、燃料供給の流量変動による効果を検討・考察した(産総研・大阪ガス)。わずかな水量の突沸によって、瞬間的に燃料利用率が100%程度になっている可能性があることが分かった。また高出力変化速度に対しても検討し、定格0.7kW出力程度のスタック搭載システムでは、5分程度の変動は問題ないこと、10秒以内の変動も気化器が対応できる可能性があることが判明した。

②劣化機構の解明：

大学・研究機関において、高燃料利用率運転に供した企業セルの解析、及び今後起こりうる材料科学的、機械的な変化を予想し先回りして劣化機構解明に取り組んだ(産総研、東北大、京大、東大、九大)。企業セルの分析については、順次解析を進め、高燃料利用率・負荷変動時の劣化メカニズムを解明した。例えば、筒状平板形セルスタックでは、電池性能としては安定でも、その燃料ガス出口付近でのNiの酸化が観測され長期運転での劣化が予想された。高燃料利用率運転時の劣化先回り検討では、ボタンセルでの高燃料利用率試験を各機関で実施した。水蒸気分圧の上昇によって燃料極反応が活性化される一方、燃料極中のNiの凝集が観測された。Ni酸化反応電位付近にある場合に燃料極電位の振動現象なども観測した。また、燃料利用率を80%程度まで制御して電極特性解析する試験も行い、燃料枯れによってガス拡散律速が顕著となり抵抗増大を観測した。Niパターン電極によるNi/YSZ界面が規定されたサンプルでのNi酸化還元の際の場観察にも成功し、体積変化、酸化還元の形態変化が複雑に起こることを観察した。運転時のセル内不均一性による機械的な評価も検討し、セル内の残留応力を評価する方法として $\cos\alpha$ 法などが有効であることを見出した。

今後これらの解析法をさらに高度化し、高効率運転した実セルスタックの解析に適用・展開する予定である。

② シミュレーション技術の開発：

東京大学、京都大学、東北大学が主体的に本課題に取り組んだ。高効率運転では高水蒸気雰囲気となるため、燃料極内のガス拡散モデルを検証し、今後のシミュレーションに適用するデータを取得した。また、高水蒸気分圧下での電極反応モデルを構築するため、その交換電流密度などの基礎データ取得や擬3次元セルスタックシミュレータの非定常化の準備のためにセルの厚さ方向非定常解析モデルを構築した。また、プロジェクト前期までに、インハウスコード“SIMUDEL”と汎用ソフトANSYSを連携させて、化学歪とその経時変化を考慮した構造解析を可能にできたが、さらに、この前段に汎用ソフトFLUENTを接続するインターフェースを開発し、高効率運転時の燃料ガス組成や温度の分布がマクロな変形や応力の発生に及ぼす影響をシミュレーションすることを可能にした。

④強靱性セルの可能性検討：

固体酸化物形燃料電池の適用性拡大のため、急速起動停止や負荷変動時の熱バランス、温度分布・電流分布などに対して強靱なセルスタックを目指して金属支持体のセルを試作した。数種類の電解質成膜方法を検討し、金属支持体上に緻密なジルコニア系電解質膜を成膜することに成功した。湿式法で製作した単セルで、最大出力 $1\text{W}/\text{cm}^2$ ($@750^\circ\text{C}$) を示す単セルの製作に成功した。

⑤ プロトン導電性デバイスの検討：

プロトン導電体電解質の輸率向上や雰囲気ガスとの反応性、安定性について検討し、その性能向上を図った。また空気極材料をプロトンやホール伝導を向上させる方策を検討し、電極活性を向上させることに成功した。単セルで 600°C において $0.5\text{W}/\text{cm}^2$ の出力を達成することに成功した。

上記のほかに、別事業である「SOFC に関して用途の実用化、商品性向上に向けた調査事業」とも連携し、変動する再生可能エネルギーが本格的に導入されるうる将来の電力需給市場での補完電力の価値などへの議論も進め、将来あるべき SOFC システムの適用先と適用仕様などについても議論を深めた。

3. 2 成果の意義

(1) 事業全体の成果

本研究開発は、2013 年度～2017 年度で 9 万時間以上の耐久性を見通すことができる固体酸化物形セルスタックの耐久性迅速評価方法を確立し、2018 年度～2019 年度で高効率化 SOFC システム（発電効率 65%以上(LHV)）のコンセプトを創出した。

これまで不明であった、セルスタックの 9 万時間耐久の見通しを耐久性迅速評価方法により世界で初めて明らかにし、その耐久寿命の見通しを得ることができた。この成果は、セルスタックの耐久性を向上させ、それを搭載したシステムの高耐久化にも寄与する。結果としてメンテナンスフリーのシステムへの基礎データとなり、普及に寄与することが期待される。

また、高効率化のために高燃料利用率下で負荷変動をさせる過酷試験をセルスタックに対して行ない、その劣化要因・メカニズム解明やシミュレーションもおこなった。この成果は、SOFC システムの高効率化や適用性拡大のための重要な基礎データであり、高性能 SOFC システムの可能性を示すことができた。今後の更なる用途拡大のために重要なデータを提供することができた。

(2) 研究開発項目ごとの成果

以下に、主な研究開発項目ごとに具体的な成果について紹介する。

スタック耐久性評価

異なる数種類の SOFC スタック耐久試験において、性能表示式を適用して電池の抵抗成分（空気極過電圧、オーミック抵抗、燃料極過電圧など）の分離に成功した。数千～数万時間の耐久試験に適用し、後述する劣化機構解明と合わせて、9 万時間耐久性を見積もることに成功した。高効率を想定した高燃料利用率（利用率 80%以上）かつ負荷変動試験（ミリ秒～数秒の周期）にも同様の方法を適用し、SOFC セルスタックの高効率運転時の劣化についても抵抗成分の分離・評価を行うことに成功した。また、性能評価・解析によって分離できた空気極過電圧、空気極ネルンスト損、燃料過電圧、燃料極ネルンスト損、電解質及び接触抵抗によるオーム損、酸素透過やリークに関する電圧低下などを参考に、空気極/電解質界面近傍での酸素ポテンシャル分布、燃料極/電解質界面近傍での酸素ポテンシャル分布を導出し、これまで解明されていなかった劣化機構解明に役立てた。本研究開発に参画していたセルスタックでは、部材や構造は異なるが、空気極過電圧やオーム損抵抗の増大が最も大きな抵抗増大要因であった。それらの評価データをスタック開発会社に開示し、その改良が進んで耐久性が向上した。このように、耐久性迅速評価方法の確立をしつつも、その対象となるセルスタックの高耐久化は民間事業の努力で推進した。耐久試験による劣化評価・劣化要因抽出→劣化機構解明→劣化改善→耐久性・信頼性の向上、という開発サイクルを回すことができ、セルスタックの耐久性は 9 万時間(10 年)で電圧低下率 10%以下を見通すレベルに達した。このような高い耐久性を実証できたことで、高い耐久性・信頼性を持つ SOFC システムを設計しやすくなり、長期運転期間でのコスト低減も図られ、SOFC システムの実用化・普及に貢献した。

劣化機構の解明

基盤機関がこれまで蓄積してきた劣化解析・分析手法を整備した、劣化解析プラットフォームを構築した。これは、最先端分析装置を適用して、SOFC セルスタック部材・材料の劣化メカニズム解明を集学的に行うものである。産業技術総合研究所の 2 次イオン質量分析(SIMS)による不純物解析、九大の STEM によるナノレベル微構造解析、京大・東大の収束イオンビーム-電子顕微鏡(FIB-SEM)解析、東北大の応力解析、などを総合して劣化メカニズム解明をおこない、劣化評価・寿命予測の基礎データを集積した。従来から高い分析・評価技術を有していたが、9 万時間の耐久性評価のため、上記技術を複合化・統合化して分析・解析できるようにし、複雑な劣化現象を解明するための劣化進展モデルを検討した。シミュレーション技術とも連携し、Cr や S などの不純物による劣化、中間層/電解質界面での絶縁層生成、電解質の相変態などの劣化主要因・メカニズムをつきとめるとともに、長期運転の影響を考察した。さらに高燃料利用率下での Ni-YSZ 燃料極での Ni 粒成長・凝集や形態変化などの劣化要因を明らかにし、高効率運転で起こりうる劣化メカニズムを解明した。

9 万時間を見通す劣化評価、集学的・複合的な劣化評価プラットフォームの取り組みは世界でも最先端の取り組みであり、初めて実セルスタックを対象とした劣化メカニズム解明に成功している。

耐久性迅速評価方法の開発

スタック耐久試験における性能表示式から抵抗成分が分離できるとともに劣化機構解明でのメカニズム解明からの各抵抗成分の劣化予測が可能となった。これに加え、FIB-SEM による 3 次元微構造再構築分析とシミュレーション技術によって、微構造変化から予想される劣化メカニズムを解明することができた。特に電極での微構造変化を解明し、Cr 被毒による多孔質電極の微構造変化や

中間層/電解質界面での SrZrO₃ などの絶縁層生成、電解質での相変態による劣化、Ni の凝集による劣化などを 9 万時間という長時間スケールを予想することが可能となった。さらに、セルスタック内の応力解析をシミュレーションする技法も開発した。セル構成材料内部の非定常酸素ポテンシャル分布から、化学歪を考慮して応力解析をおこなう技法を開発した。

このように、シミュレーション技術を長期耐久や高効率運転での予想に適用することで、実験では予想できない 9 万時間後の劣化状態を推定することに成功した。本成果は、さらにパラメータや基礎データを集積して、13 万時間耐久や負荷変動などの新規に必要とされている耐久性評価に適用する予定である。

3. 3 研究開発項目別残課題

2013年度～2017年度の取り組みで9万時間耐久を見通す耐久性迅速評価方法の確立をおこなった。性能表示式が9万時間のスタック耐久性評価に適用できることを示すとともに、不純物や界面での絶縁層生成、電解質相変態など、いくつかの劣化要因について詳細なメカニズム解明に成功した。劣化メカニズム解明により、耐久性予測のためのシミュレーションによる検証・課題抽出も可能となった。また、2018年度～2019年度の取り組みでは、高効率LHV65%を目指した高燃料利用率(Uf80%)試験や負荷変動試験を実施し、その可能性を示すことができた。しかしながら、本成果を広く有効に適用していくには、下記の点が課題として残っている。研究開発項目ごとに以下に示す。

(1) スタック耐久性評価：

9万時間(10年)を見通す耐久性迅速評価法は確立されたが、長期運転時間の寿命をより伸ばし、電力機器としての価値を高めるには、13万時間以上の耐久性が必要である。そのために、13万時間耐久性評価のための解析技術の向上、革新分析・解析手法などの開発が必要である。9万時間耐久で得られた成果を一部は転用できるが、1.5倍に伸びる寿命を担保するには、新たな解析・評価技術の開発が必要である。火力発電所のボイラー部材などでは、9万時間を超えて急激にクリープ強度が低下する部材などもあり、SOFCでそのような事象がないかを検証する必要がある。さらに、燃料電池部材・材料の抜本的な改良・改善などの開発も必要である。現在まで性能評価を行っている試験は、温度一定電気炉内でのスタック試験である。高効率・強靱化システムへのスタック搭載を意識して、より実環境に近い状態での高燃料利用率スタック運転、負荷変動を行う必要がある。またその耐久性評価のための、特殊な環境に適応した分析・解析手法を開発する必要がある。

(2) 劣化機構の解明：

13万時間以上の長期運転で現出劣化現象をとらえるために、微小な劣化変化や反応性を観測できる最先端の分析・評価技術の開発が必要である。また、高効率・高負荷変動運転時には、定常運転より温度分布やガスの流れ分布、電流密度変化・分布が大きく、それを総合的に考慮した劣化解析が必要となる。従来の分析・評価技術を高度化して対応する必要がある。

(3) 耐久性迅速評価方法の開発：

本プロジェクトでは、シミュレーション技術を取り入れ、長期耐久試験後の性能シミュレーションを行うことができた。前述した13万時間という長時間で起こる劣化現象の解明に加え、温度変化燃料ガス変化などの過渡的現象にも対応でき、より多くのセルスタックに適用できるシミュレーション技術が必要である。

さらに、より詳細な、今後の技術的な発展を図る上で重要となると思われる成果・残された課題などを次に示す。

- 1) 劣化挙動の温度依存性が大きいことが判明したのが大きな成果である。特に低温で劣化が抑制される熱活性型(オーム損増など)と低温で劣化が促進・先鋭化される電極反応由来型とがある。このことより、将来的には、SOFCの適用性の拡大を図る上で温度変動にともなう劣化の進展と回復過程の把握・検証が重要となる。
- 2) 空気極劣化におけるプロトンの影響が示唆されたが、次世代セルとして注目をあつめるプロトン伝導型セルでは、最も警戒すべき劣化モードとなる。他方、プロトン伝導型セルでの空気極挙動がよりよく理解されれば、YSZ型セルにおける空気極劣化がより深く理解できるようになると予想される。
- 3) 変形・応力解析シミュレーション技術が大きく進展したが、より強靱なセルの開発が必要となるときには、威力を発揮するものと期待される。
- 4) SrZrO₃相生成抑制のために取ったセリア中間層緻密化が他の劣化要因となった可能性が示唆された。一つの事象を解決するために取った施策が、他の悪影響を生じさせたことになる。このような現象は、低コスト化と高耐久性・高効率化の同時達成を図る上では乗り越えなければならない障壁の構造を示唆している。
- 5) 空気極の熱力学的な安定性と耐久性との相関が明確になってきた。即ちマンガン系のペロブスカイト電極の安定性はよいものの、クロム被毒に対する耐性が問題視されてきたが、本プロジェクトに参画しているMHPS機では、既に空気極の過電圧が小さくかつSDCの中間層を挿入することによってクロム被毒を克服することができた。このことは空気極と熱力学安定性が耐久性に直接関与することを強く示唆している。即ち、LSF、LSCF、LSCを比較するとこの順番でSrOの熱力学的活量が高くなることから、クロム被毒、硫黄被毒も著しくなる傾向を強く示す。今

後、LSCなどの活性空気極を用いて性能向上を図る場合に、耐久性の維持がトレードオフ的に困難になることが予想され、このトレードオフ関係の克服が重要となろう。

- 6) スタック技術と耐久性との関連で言えば、本プロジェクトで明確になったこととしてシール剤の耐久性への影響が無視できないことをあげることができる。空気極なり燃料極中に良く見いだされる不純物としてB, Siなどは早期から認識されてきた。特にBは空気極中でも燃料極中でも揮発傾向が強いため、電極中で不純物としてBが観測されることは即ボロン成分と電極成分との強い相互作用を示した後、部分的にBが化合物として残存していることを示している。この強い相互作用が、運転初期に集中して現れるのか、継続して出現しているのかを見極めることは難しいが、電極性能に必要な組成が維持されているか（空気極の場合）、微構造変化が生じていないかなどを確認することが必要とされる。通常、BはSEM-EDXでは検出されにくいため、その対策が遅れがちである。SIMSを用いることのメリットはこの点にある。Bは多くの場合、平板形のシール用ガラスより放出される。このため、セルと同じ温度に曝されるシール剤を用いたセルスタックでは、シール剤と金属材料との反応による2次的な不純物の放出（Pなど）に起因する劣化、Bの揮発による劣化を克服するのに、他のスタック方法と採用しているところに比べるとより多くの年月を必要としているようである。本プロジェクトでは、平板形、業務用平板形がこれに対応する。他の手法（例えば、レーザー溶接、コンプレッションシール）との耐久性にたいする比較検討が望まれる。
- 7) 平板形では、電流密度を大きくとって稼働させることが、メリットの一つとして認識されているので、高電流密度下での性能評価が重要となる。他方、電流密度が大きいということは、単位面積当たりの発熱も大きくなるため、セル内での熱の流れ、温度勾配などが重要となる。他方で、セル内での電流密度分布、温度分布の測定は困難を伴う。セル内にどのように温度分布を作るかは、電流密度分布を平坦化する場合にも重要なポイントになる。従って、スタックの性能評価としての実験・解析技術として、一定温度に制御された電気炉の中での測定・解析ばかりでなく、ある程度実機稼働状態に近い温度分布の元での測定・解析が必要となろう。実験的には、如何に少ない測定点で全体をカバーするかという視点が重要であるとともに、測定とシミュレーションとの連動という視点も今後さらに重要になると思われる。

4. まとめ及び課題、事業化までのシナリオ

4. 1 まとめ

本プロジェクトは、固体酸化物形燃料電池(SOFC)普及拡大のために重要な技術課題である、耐久性・信頼性を高め、その長期耐久性評価法を確立するための基礎・基盤研究開発である。そのため、複数のスタック開発会社と大学・研究機関が強固な連携を組み、産学官連携でプロジェクトを推進した。スタック開発・改良は、スタック開発会社の独自技術で進める一方、耐久性の評価、解体分析結果の一部などに関しては、共通の会議体で議論を進めるなど、技術情報のオープン・クローズを適宜、適切に管理しながら、プロジェクトを推進した。以下に達成した内容を総括する。

(1) 9万時間(10年)耐久性を見通す耐久性迅速評価法の確立：

2013年度～2017年度の期間で、固体酸化物形燃料電池(SOFC)の9万時間耐久性を見通すための耐久性迅速評価方法を確立した。耐久性迅速評価方法は、スタック性能評価、研究機関・大学で行った先端分析技術を集学的に活用した劣化機構解明、得られた劣化パラメータなどを取り込んだ耐久性評価法(シミュレーション技術他)の総称である。スタック開発会社や電力中央研究所で数千～数万時間長期運転させたセルスタックに関し、上記の耐久性迅速評価法を適用することで9万時間の耐久性を見通すことに成功した。劣化機構解明では、産業技術総合研究所のSIMSによる不純物濃度解析、九州大学のSTEM微構造解析、京都大学・東京大学FIB-SEMによる3次元再構築解析、東北大学によるセル構造体の機械的歪や応力解析などを高度化し、9万時間耐久性評価の解析をおこなった。温度や過電圧などの影響を考慮した劣化進展モデルや加速劣化試験を検討し、シミュレーション技術も高度化することで、短時間で9万時間を見通すための基礎データの取得をおこない、耐久性迅速評価方法を確立した。

(2) 高効率・強靱化セルスタックのための課題抽出・設計指針の提示：

2018年度～2019年度の期間で、SOFCシステム効率65%LHVを達成するための、スタック効率向上・負荷変動性の可能性について検討をおこなった。過酷試験として、燃料利用率80%以上での長期耐久やミリ秒～数十秒周期の負荷変動によるスタック耐久性評価を実施した。過酷試験時のスタック劣化率や抵抗増大要因は、通常運転と類似であることを見出した。一方で、微構造や局所的な部位では、部材や材料の劣化が観測され、高効率長期運転中のセルスタックでは、微小な劣化が生じることが解明された。このような、高効率での運転時に起こりうる材料劣化現象を大学・研究機関で検討し、通常は現出しないが今後起こりうる劣化メカニズムを検討し、高効率・強靱化への開発コンセプトを創出した。

4. 2 事業化までのシナリオ

本プロジェクトは、固体酸化物形燃料電池(SOFC)の耐久性迅速評価方法の開発を行うことが主題であるが、その対象となるSOFCセルスタックの耐久性向上が民間企業で同時に行われた。

耐久性迅速評価方法は、いくつかの解析法の総称であるが、現象・メカニズム解明のみならず、規格・標準化や生産工程に資する基礎データを提供できる可能性がある。例えば、電力中央研究所で開発した性能表示式は、形状や部材が異なる数種類のセルスタックに対して適用可能であり、測定法などの規格・標準化に基礎データを提供できる可能性がある。また、東北大で開発したセルの歪測定などは、生産工程でのセル健全性を検査するための基礎データとなりうる。その他にも多数このような要素技術があり、本研究開発で得られた解析法を今後応用し実用化していく可能性はある。

本耐久性迅速評価方法の開発で、民間企業におけるSOFCセルスタックの耐久性向上も図られた。2013年度のプロジェクト開始時点で、家庭用燃料電池エネファームType-Sの商用化は開始されていたが、補助金制度による普及がようやく始まった段階であった。汎用・低コスト材料、高効率化用材料・スタックのためのSOFCセルスタック耐久性の向上が必要であった。本プロジェクトではそのような、2011-2012年導入機よりも先進的なセルスタックの耐久性を対象として、耐久性迅速評価方法を開発した。本研究開発の成果を一部適用して、2016年の高効率エネファーム機(LHV53%)の商用化が実現し、更なる進展が期待される。今後、普及機用低コスト材料やプロセスの最適化が民間企業で図られる予定である(2021年以降には、エネファームのコストが投入回収期間8年以内となるよう、水素・燃料電池戦略ロードマップも設定された)。2022年以降には、初期導入されたエネファームType-Sが10年稼働時間を超え、その買い替え需要も期待される。より大規模な生産台数(例えば、年産数10万台)を目指して開発が進められる予定である。

業務・産業用燃料電池は、2017年度より補助金制度による商用化が始まっている。これらのSOFC

システムに搭載されているセルスタックの一部は、本プロジェクトでの耐久性迅速評価法にて解析・評価したものが搭載されている。本研究開発でコンセプト創出をおこなった高効率・負荷変動対応セルスタックの開発が今後進み、それを搭載した高効率 SOFC システムも開発されると、LHV65%以上の発電効率が分散電源で達成される。業務用・産業用燃料電池の分野で、従来のコージェネレーション市場に加え、オフィスや事業所の電力需要の市場も取り込める可能性があり、より一層の普及拡大が期待される。

以上、家庭用燃料電池エネファーム、業務・産業用燃料電池の商用化が始まり、家庭用については普及期に達してきているが、SOFC 技術を本格社会実装していくには、さらに新たな価値や機能を開発し、新しい市場を拡大していく必要がある。例えば、再生可能エネルギーが大量に導入されると想定される今後の電力グリッドを安定化させるために、燃料電池の出力を瞬時に対応できるようなモードを付与できる機能、電気分解の機能をもたせるシステムなど、適用性拡大が期待される。本研究開発の高効率・強靱化のためのコンセプト創出がそのような新しいシステム構築に寄与できる。また、残課題で述べたように、上記のような新しいコンセプトの SOFC システムを構築していく新たな取り組みも必要となる。

本格普及・事業化のためには、国内だけでなく、海外展開も狙った開発も必要である。海外展開では、各国の都市ガス事情、電力事情や生活スタイルが異なるために、それぞれに応じた高性能・低コスト SOFC システムを構築していく必要がある。

5. 研究発表・講演、文献、特許等

プロジェクト全体(2019年6月28日現在：以下同じ)

項目	2013 H25	2014 H26	2015 H27	2016 H28	2017 H29	2018 H30	2019 H31, R1	合計
論文	29	11	27	20	31	21	5	144
研究発表	109	86	96	63	71	84	14	523
プレス・新聞発表	2	3	4	2	3	0	0	14
受賞	2	1	0	0	0	6	0	9
展覧会	1	1	1	2	1	1	0	7
特許	0	0	0	0	1	0	0	1

以下に研究項目ごとの発表内容を示すが、複数の研究項目にわたっている場合には、それぞれの項目で重複して掲載した場合もある。ただし上記件数の集計には、重複している件数は除外した。

5. 1 スタック耐久性評価 (2013年度～2017年度)

(1) 中温筒状平板形の耐久性評価

なし

(2) 高温円筒横断形の耐久性評価

①研究発表・講演、文献等、その他

—論文—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成25年 7月	株式会社シーエムシー出版 次世代燃料電池開発の最前線	トリプルコンバインド型燃料電池の開発	小林由則
2	平成25年	三菱重工技報 Vol. 50 No. 3	次世代燃料電池SOFC複合発電システム(高効率ハイブリッド発電システム)	小林由則、安藤喜昌、西浦雅則、富田和男、岸沢浩、眞竹徳久
3	平成25年 10月9日	ECS transactions, 57(1), 763-770 (2013)	Performance Evaluations for Long Term Durability and Reliability of Segment-in-series Tubular Type SOFCs	T. Yamamoto, K. Yasumoto, M. Yoshikawa, H. Morita, Y. Mugikura
4	平成28年 5月	IEA SOFC Annex THE YELLOW PAGES OF SOFC TECHNOLOGY	IEA SOFC Annex THE YELLOW PAGES OF SOFC TECHNOLOGY	富田和男、須藤隆紀
5	平成28年 7月	一般社団法人都市環境エネルギー協会機関誌「都市環境エネルギー」「研究・技術最前線」	『SOFC-MGT ハイブリッド機の実用化に向けた取り組みについて』	岸沢浩
6	平成28年 7月	ガスタービン学会誌7月号	MHPS におけるSOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムの開発状況	富田和男

—研究発表・講演—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成25年5月28～29日	第20回燃料電池シンポジウム	三菱重工における SOFC-ガスタービン複合発電システムの開発	安藤喜昌、西浦雅則、富田和男、大澤弘行、深川雅幸、岩田光由、岸沢浩、小林由則
2	平成25年7月18日	燃料電池・FCH 部会 第217 回定例研究会	次世代燃料電池 SOFC 小型トリプルコンバインドシステムの開発状況と今後の展開	小林由則
3	平成25年7月24日	第7回山梨燃料電池実用化推進会議	大型次世代燃料電池 SOFC の開発状況と今後の展開 (三菱重工の取り組み)	小林由則
4	平成25年8月2日	電気化学会産官学フォーラム	大型次世代燃料電池 SOFC の開発状況と今後の展開 (三菱重工の取り組み)	小林由則
5	平成25年10月7日	第5回福岡県地域エネルギー政策研究委員会	分散型電源としての燃料電池の可能性	小林由則
6	平成25年10月6日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII) Satellite seminar	Recent Progress of SOFC Combined Cycle System with Segmented-in-series Tubular Type Cell Stack at MHI	Y. Kobayashi, Y. Ando, M. Nishiura, H. Kishizawa, M. Iwata, N. Mataka, K. Tomida
7	平成25年10月8日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII)	Recent Progress of SOFC Combined Cycle System with Segmented-in-series Tubular Type Cell Stack at MHI	Y. Kobayashi, Y. Ando, M. Nishiura, H. Kishizawa, M. Iwata, N. Mataka, K. Tomida
8	平成26年4月25日	東京大学第18回CEEシンポジウム	分散型電源としての燃料電池の可能性 (大型次世代燃料電池 SOFC の開発状況と今後の展開)	小林由則
9	平成26年5月29日	第21回燃料電池シンポジウム	高効率 SOFC 複合発電システムの開発	岩田光由
10	平成26年6月1日	日本興業協会	分散型エネルギーとしての燃料電池の可能性	小林由則
11	平成26年6月2日	3rd International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells for Next Generation Power Plants	Recent Developments of SOFC-GT system in MHPS.	Hiroyuki Ozawa
12	平成26年7月1日	France-Japan Symposium Advanced Materials for Energy Future	Recent Progress of SOFC-GTCC of MHPS.	Kazuo Tomida
13	平成26年7月23日	FCDIC 第132回研究会	分散型エネルギーとしての燃料電池の可能性-大型次世代燃料電池 SOFC の開発状況と今後の展開-	小林由則
14	平成26年7月30日	東京都 東京戦略会議	MHPS の燃料電池について	小林由則
15	平成26年9月21日	2014 Asian SOFC Symposium and Exhibition	Recent progress of SOFC Combined Cycle System with Segmented - in - series Tubular Type Cell Stack at MHPS	Kenichi Hiwatashi
16	平成26年11月1日	FCV を中心とした水素社会実現を促進する研究会	水素社会の実現に向けたMHPSの取り組み	小林由則
17	平成26年11月10日	2014 Fuel Cell Seminar & Energy Exposition	Recent progress of SOFC Combined Cycle System with Segmented - in - series Tubular Type Cell Stack at MHPS	Hiroki Irie
18	平成26年11月27日	日本エネルギー学会東北支部 平成26年度講演会	大型次世代燃料電池 SOFC 複合発電システムの実用化に向けた取り組み	小林由則
19	平成27年1月	FCDIC 燃料電池	SOFC ハイブリッドシステムの開発・稼働状況	岸沢浩
20	平成27年1月21日	電気化学学会 最先端技術	大型分散電源としての次世代燃料電池 SOFC の可能性	小林由則
21	平成27年1月23日	ガスタービンセミナー	次世代大型燃料電池 SOFC と GT コンバインド発電の可能性	小林由則

22	平成27年5月28～29日	第22回燃料電池シンポジウム	分散型電源としての高効率SOFC発電システムの開発状況	岩田光由
23	平成27年6月11日	都市ガスシンポジウム2015	分散型電源としてのSOFC開発状況	岩田光由
24	平成27年6月24日	第12113回 JPI 特別セミナー	本格実証開始 SOFC と MGT が組み合わされたハイブリッドシステムの進捗と三菱日立パワーシステムズ株式会社の展開と課題	小林由則
25	平成27年7月23日	やまなし水素・燃料電池シンポジウム	水素社会へ向けた次世代大型燃料電池SOFCの展開	北川雄一郎
26	平成27年7月24日	日本機械学会 関西支部 第20回神奈川フォーラム	SOFC-MGT ハイブリッド機の実用化に向けた取り組みについて	岸沢浩
27	平成27年7月23日～24日	第53回触媒研究懇談会	MHPS における円筒形SOFC複合発電システムの取組み	富田和男
28	平成27年7月26日～31日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	Recent Progress of SOFC Combined Cycle System with Segmented-in-series Tubular Type Cell Stack at MHPS	K. Miyamoto, M. Mihara, H. Oozawa, K. Hiwatashi, K. Tomida, M. Nishiura, H. Kishizawa, R. Mori, Y. Kobayashi
29	平成27年8月16日	ながさき出島インキュベータ(D-FLAG) SOFCPR セミナー	固体酸化物形燃料電池(SOFC) セミナー	富田和男
30	平成27年9月14日	日本機械学会 2015 年度年次大会	水素社会へ向けた次世代大型燃料電池SOFCの展開	小林由則, 武信弘一, 安藤喜昌, 西浦雅則, 富田和男, 岸沢浩
31	平成27年10月13日	日本化学会CSJ フェスタ	水素社会へ向けた SOFC 複合発電システムの開発状況と今後の展開	富田和男
32	平成27年10月21日	九州大学学術研究都市セミナー	水素社会へ向けた 大型燃料電池の開発と今後の展開	北川雄一郎
33	平成27年10月28日	燃料電池部品研究会	250kW 級SOFC-MGT ハイブリッドシステムの部品構成	永井卓磨
34	平成27年10月29日	The 4th International Conference on Microgeneration and Related Technologies	Development of The Next Generation Large Scale SOFC toward Realization of Hydrogen Society	Y. Kitagawa, K. Tomida, M. Nishiura, H. Kishizawa, Y. Takeuchi and K. Hiwatashi
35	平成27年11月16日	Fuel Cell Seminar and Energy Exposition	Development of high efficiency SOFC power generation at MHPS	Y. Kitagawa, K. Tomida, M. Nishiura, K. Hiwatashi, H. Kishizawa, H. Oozawa, Y. Kobayashi, Y. Takeuchi and M. Mihara
36	平成27年12月1日	World Engineering Conference and Convention	Development of the Next Generation Large Scale SOFC toward Realization of Hydrogen Society	Yoshinori Kobayashi
37	平成27年11月26日	一般社団法人 都市環境エネルギー協会平成27年度都市環境エネルギー技術研修会	SOFC-MGT ハイブリッド機の実用化に向けた取り組みについて	岸沢浩
38	平成27年12月16日	第24回SOFC研究発表会	SOFC ハイブリッドシステム/トリプルコンバインドシステムに向けたセルスタック開発の近況	須藤隆紀, 吉田慎, 水原昌弘, 大澤弘行, 樋渡研一, 西浦雅則, 岸沢浩, 安藤喜昌, 富田和男, 北川雄一郎, 末森重徳, 竹内良昭
39	平成28年1月28日	九州水素・燃料電池フォーラム	250kW 級SOFC-MGT ハイブリッドシステムの機器構成	入江弘毅
40	平成28年2月1日	福岡水素エネルギー戦略会議第2回水素エネルギー社会実現フォーラム	水素社会へ向けたMHPS における SOFC - マイクロガスタービンハイブリッドシステムの開発状況と今後の展開	富田和男
41	平成28年2月3日	水素先端世界フォーラム	水素社会へ向けた 次世代大型燃料電池SOFCの展開	北川雄一郎
42	平成28年4月	【FCV フォーラムⅢ(第30回セミナー)】主催: 一般社団法	SOFC ハイブリッドシステムの開発状況	吉村建人

		人燃料電池開発情報センター (FCIDC)		
43	平成28年5月	FCIDC シンポジウム	SOFC-MGT ハイブリッド機の市場投入に向けた実証運転	菊地宏太
44	平成28年6月	第35回エネルギー・資源学会研究発表会	水素社会へ向けたMHPS におけるSOFC-MGT ハイブリッドシステムの開発状況と今後の展開	遠藤亮将
45	平成28年7月26日～8月8日	日本機械学会賞(技術)	日本機械学会展示会『日本の先端技術の紹介』へのポスター展示	富田和男
46	平成28年11月	第104回SOFC研究会	低炭素化社会の実現に向けたSOFC-MGT ハイブリッドシステムについて	樋渡研一
47	平成28年11月	FCIDC 第31回燃料電池セミナー	SOFC ハイブリッドシステムの分散型電源としての役割	岩田光由
48	平成29年9月	福岡水素エネルギー人材育成センター	業務産業用燃料電池システムのMHPSの取り組み	岩田光由
49	平成29年10月	ファインセラミックス関連団体連絡協議会	MHPS におけるSOFC 複合発電システムの開発状況と今後の展開	樋渡研一
50	平成29年11月	未来技術シンポジウム	SOFC-MGT ハイブリッドシステムの市場導入に向けた取り組み	高島正
51	平成29年11月	第11回地球温暖化シンポジウム	業務用・産業用固体酸化物形燃料電池 SOFC-MGT ハイブリッドシステムの市場導入に向けた取り組み	富田和男
52	平成29年12月	火力原子力発電技術協会中部支部主催 講演会	SOFC 複合発電システム開発状況と今後の展開	樋渡研一

—プレス発表など—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成25年9月23日	日刊工業新聞、Fuel Cell Works、Gas to Power Journal、Green Car Congress、Smart Energy Universe、EPC Engineer、JCN Network、PR-inside、BizWire Express、Digital Journal、IT News、Benzinga、Sys-Con	加圧型複合発電システム 連続4,000時間達成	MHPS
2	平成25年9月24日	電気新聞、化学工業日報	加圧型複合発電システム 連続4,000時間達成	MHPS
3	平成28年9月	MHPS プレス発表	固体酸化物形燃料電池 (SOFC) とマイクロガスタービン (MGT) の複合発電システム業務・産業用の市場投入に向けた実証試験を開始	MHPS
4	平成29年8月	MHPS プレス発表	固体酸化物形燃料電池 (SOFC) ハイブリッドシステムマイクロガスタービン (MGT) との組み合わせにより業務・産業用に市場投入	MHPS
5	平成30年1月	MHPS プレス発表	固体酸化物形燃料電池 (SOFC) とマイクロガスタービン (MGT) のハイブリッドシステム業務・産業用分散型電源として初受注・着工	MHPS

—新聞・雑誌—

No.	年月	発表形態	タイトル	発表者
1	平成26年 4月	FCDIC 燃料電池	分散型エネルギー供給社会の実現に向けて-新エネルギーベストミックスに於ける水素・燃料電池の果たす役割-	小林由則
2	平成26年 8月	日刊工業新聞 図解新世代の燃料電池技術	トリプルコンバインド型発電	小林由則
3	平成26年 8月	JEMA	SOFC (固体酸化物形燃料電池) とマイクロガスタービンを組み合わせた高効率発電システムの開発	岩田光由
4	平成28年 9月	ガスタービン学会誌7月号	MHPS における SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムの開発状況	富田和男、北川雄一郎
5	平成29年 1月	FCDIC 燃料電池	MHPS における SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムの開発状況	MHPS
6	平成29年 3月	クリーンエネルギー	SOFC-MGT ハイブリッドシステムの開発状況	岸沢浩

—展示会への出展—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成26年 2月26-28 日	FC EXPO 2014 ～第10回 国際水素・燃料電池展～	燃料電池による高効率発電システム	小林由則、岸沢浩、中山博之 岩田光由、菊地宏太
2	平成27年 2月25-27 日	FC EXPO 2015 ～第11回 国際水素・燃料電池展～	水素社会へ向けた次世代大型燃料電池 SOFC の展開	小林由則、岸沢浩、中山博之、 岩田光由、菊地宏太、遠藤亮介
3	平成28年 3月2日 ～3月4 日	スマートグリッド EXPO2016	水素社会へ向けた次世代大型燃料電池 SOFC の展開	北川雄一郎、岩田光由、菊地宏太、 吉村建人
4	平成29年 3月1日 ～3月3 日	次世代火力発電 EXPO2017	SOFC-MGT ハイブリッドシステム	岩田光由、須藤 隆紀、加藤 芳 樹、菊地 宏太
5	平成30年 2月28日 ～3月2 日	次世代火力発電 EXPO	SOFC-MGT ハイブリッドシステム	岸沢浩、高島正、樋渡研一、岩 田光由、須藤隆紀

(3) 低温小型円筒形の耐久性評価

①研究発表・講演、文献等、その他

—研究発表・講演—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成25年 5月28日	第20回燃料電池シンポジウム	TOTOにおける家庭用SOFCの開発状況	上野晃、大塚俊治、川上晃、伊藤一馬、大江俊春
2	平成25年 6月21日	高分子学会燃料電池材料研究会	TOTOにおける家庭用燃料電池モジュールの開発状況	田中修平
3	平成26年 1月23日	電気化学セミナー	TOTOにおけるSOFC発電モジュールの開発状況	上野晃
4	平成26年 2月26日	FC EXPO 技術セミナー	TOTOにおけるSOFC発電モジュールの開発状況	上野晃
5	平成26年 4月3日	Fuel Cells 2014 Science & Technology A Grove Fuel Cell Event	Overview of SOFC Hot Module development status at TOTO	赤木陽祐、竹澤代一
6	平成26年 5月29日	FCDIC シンポジウム	TOTOにおける家庭用SOFCの開発状況	川村昌之、大塚俊治、川上晃、大江俊春
7	平成26年 10月24日	KRI ワークショップ	TOTOにおけるSOFCモジュールの開発状況について	上野晃
8	平成27年 5月28日	第22回燃料電池シンポジウム	TOTOにおける家庭用SOFCの開発状況	上野晃、川上晃、大塚俊治、大江俊春
9	平成27年 6月4日	燃料電池・FHC部・第230回定例研究会/大阪化学技術センター	TOTOにおけるSOFCモジュールの開発状況	上野晃
10	平成27年 7月27日	工学院大学 化学応用額持論A講義	固体酸化物形燃料電池の技術開発	上野晃

(4) 中温平板形の耐久性評価

なし

(5) 中温筒状横縞形の耐久性評価

なし

(6) 中温一体焼結形の耐久性評価

①研究発表・講演、文献等、その他

—論文—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成25年 10月8日	ECS Transactions, 57(1), 115-122 (2013)	Development of a New concept SOFC at Murata	Y. Tomoshige, N. Mori, M. Iha, T. Takada, T. Konoike
2	平成27年 7月26日	ECS Transactions, 68(1), 1015-1022 (2015)	Sulfur Poisoning of LSCF Cathode in Single Step Co-fired SOFC	N. Mori, Y. Sato, M. Iha, T. Takada, T. Konoike, H. Kishimoto, K. Yamaji, H. Yokokawa
3	平成27年 7月26日	ECS Transactions, 68(1), 1871-1878 (2015)	Development of a Novel Co-fired SOFC at Murata	N. Mori, Y. Sato, H. Nakai, M. Iha, T. Takada and T. Konoike
4	平成27年 7月26日	ECS Transactions, 68(1), 2209-2216 (2015)	Durability Assessment of SOFC Stacks with Several Types of Structures for Thermal Cycles During Their Lifetimes on	T. Hatae, K. Sato, Y. Matsuzaki, S. Amaha, M. Yoshikawa, Y. Mugikura, K. Miyara, T. Oshima, S. Taniguchi, K. Sasaki, M.

			Residential Use	Shimazu, Y. Takahashi, A. Kawakami, N. Mori and H. Yokokawa
--	--	--	-----------------	---

—研究発表・講演—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 25 年 12 月 19 日	第 22 回 SOFC 研究発表会	一体共焼結形 SOFC の開発状況	森直哉、伊波道明、高田隆裕、鴻池健弘
2	平成 26 年 3 月 30 日	電気化学会第 81 回大会	一体共焼結法を用いた SOFC の開発	伊波道明
3	平成 25 年 10 月 8 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells	Development of a New concept SOFC at Murata	Y. Tomoshige, N. Mori, M. Iha, T. Takada, T. Konoike
4	平成 26 年 12 月 17 日	第 23 回 SOFC 研究発表会	一体共焼結形 SOFC の開発状況	佐藤洋輔、森直哉、伊波道明、高田隆裕、鴻池健弘
5	平成 27 年 6 月 4 日	燃料電池・FCH 部会 第 230 回定例研究会	村田製作所における SOFC 開発の取り組み	伊波道明
6	平成 27 年 7 月 26 日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	Sulfur Poisoning of LSCF Cathode in Single Step Co-fired SOFC	N. Mori, Y. Sato, M. Iha, T. Takada, T. Konoike, H. Kishimoto, K. Yamaji, and H. Yokokawa
7	平成 27 年 7 月 29 日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	Durability Assessment of SOFC Stacks with Several Types of Structures for Thermal Cycles During Their Lifetimes on Residential Use	T. Hatae, K. Sato, Y. Matsuzaki, S. Amaha, M. Yoshikawa, Y. Mugikura, K. Miyara, T. shima, S. Taniguchi, K. Sasaki, M. Shimazu, Y. Takahashi, A. Kawakami, N. Mori and H. Yokokawa
8	平成 27 年 11 月 19 日	粉体粉末冶金協会秋季大会	村田製作所における一体共焼結形固体酸化物形燃料電池 (SOFC) の開発状況	森直哉
9	平成 27 年 12 月 29 日	第 24 回 SOFC 研究発表会	一体焼結形 SOFC の緊急停止耐性	佐藤洋輔、森直哉、伊波道明、高田隆裕、鴻池健弘

(7) 業務用平板形の耐久性評価

なし

5. 2 劣化機構の解明 (2013 年～2017 年)

(1) 熱力学的解析による劣化機構解明、加速要因分析

① 研究発表・講演、文献等、その他

—論文—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 25 年 10 月	ECS transactions, 57(1), 627-634 (2013)	Evaluation of the Cathode Performance and the Distribution of Deposited Cr Species in the LSCF6428 Cathode by Cr Poisoning	D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, M. E. Brito, K. Develos-Bagarinao, M. Nishi, T. Shimonosono, F. Wang, H. Yokokawa and T. Horita

2	平成25年10月	ECS transactions, 57(1), 1865-1872 (2013)	Oxygen ion diffusion in dense SrZrO ₃ layer on YSZ	M. Nishi, H. Yokokawa, H. Kishimoto, K. Yamaji and T. Horita
3	平成25年10月	ECS transactions, 57(1), 1957-1967 (2013)	Cubic-Tetragonal Phase Transformation of YSZ Electrolyte in SOFCs	T. Shimonosono, H. Kishimoto, M. Nishi, M. E. Brito, K. Yamaji, H. Yokokawa and T. Horita
4	平成26年2月	J. Power Sources, 258, 281-289 (2014)	Sr and Zr Diffusion in LSCF/10GDC/8YSZ Triplets for Solid Oxide Fuel Cells (SOFCs)	F. Wang, H. Kishimoto, K. Yamaji, H. Yokokawa and T. Horita
5	平成27年7月	ECS Transactions, 68(1), 1943-1952 (2015)	Effect of LSCF Microstructure on GDC Interlayer Stability and Cation Diffusion in Porous and Dense LSCF/GDC/YSZ Triplets	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
6	平成27年7月	ECS Transactions, 68(1), 1003-1013 (2015)	Annealing-induced Surface Segregation and SrSO ₄ Formation on La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O _{3-δ} Cathodes	K. Develos-Bagarinao, J. C. De Vero, D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
7	平成27年7月	ECS Transactions, 68(1), 1045-1050 (2015)	Degradation of LSCF Cathode Induced by SO ₂ in Air	H. Kishimoto, F. Wang, D.-H. Cho, P. Lv, K. Develos-Bagarinao, J. C. De Vero, D.-H. Cho, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
8	平成27年7月	ECS Transactions, 68(1), 1039-1044 (2015)	Effect of Chromium Vapor Pressure on Accelerated Poisoning Tests for (La _{0.6} Sr _{0.4})(Co _{0.2} Fe _{0.8})O ₃ Cathode	D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, K. Develos-Bagarinao, H. Yokokawa and T. Horita
9	平成28年6月	J. Electrochem Soc., 163(8), F899-F904 (2016)	Interrelation between Sulfur Poisoning and Performance Degradation of LSCF Cathode for SOFCs	F. Wang, H. Kishimoto, K. Develos-Bagarinao, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
10	平成28年10月	J. Electrochem Soc., 163(13), F1463-F1470 (2016)	Influence of La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O _{3-δ} Microstructure on GDC Interlayer Stability and Cation Diffusion across the LSCF/GDC/YSZ Interfaces	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
11	平成29年2月	J. Electrochem Soc., 164(4), F259-F269 (2017)	Effect of Cathodic Polarization on the La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O _{3-δ} -Ceria-Interlayer/YSZ Electrolyte Interfaces of Solid Oxide Fuel Cells	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
12	平成29年5月	J. Mater. Chem. A, 5, 8733-8743 (2017)	Elucidating the origin of oxide ion blocking effects at GDC/SrZr(Y)O ₃ /YSZ interfaces	K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
13	平成29年7月	ECS Transactions, 78(1), 2337-2346 (2017)	Evaluation of Impurity Levels in Cathodes of 7 Different SOFC Stacks and Modules before and after Long-Term Operation	K. Yamaji, T. Ishiyama, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, T. Horita, H. Yokokawa
14	平成29年7月	ECS Transactions, 78(1), 759-764 (2017)	Evaluation of Electrochemical Properties of La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O _{3-δ} Porous Electrode with Sulfur Poisoning	R. A. Budiman, T. Ishiyama, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
15	平成29年7月	ECS Transactions, 78(1), 971-981 (2017)	Effect of Gd-doped Ceria Interlayer Microstructure on the Interdiffusion Behavior Between La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O _{3-δ} Cathodes and Yttria-Stabilized Zirconia Electrolytes	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
16	平成30年1月	SOLID STATE IONICS, 314, 165-171 (2018)	Sr and Zr transport in PLD-grown Gd-doped ceria interlayers	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, H. Matsuda, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
17	平成30年2月	J. Power Sources, 377, 128-135 (2018)	Enhanced stability of solid oxide fuel cells by employing a modified cathode-interlayer interface with a dense La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O _{3-δ} thin film	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa

—研究発表・講演—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成25年5月28日	第20回燃料電池シンポジウム	SOFC 耐久性向上のための熱力学的解析の成果	堀田照久, 西美奈, 下之蘭太郎, 岸本治夫, 山地克彦, プリトマニエル, 横川晴美
2	平成25年5月28日	第20回燃料電池シンポジウム	(La _{0.8} Sr _{0.2})(Co _{0.7} Fe _{0.3})O ₃ 空気極における Cr 蓄積と性能低下の関係	趙度衡, 王芳芳, 堀田照久, 西美奈, 岸本治夫, 山地克彦, 横川晴美
3	平成25年6月3日	一般社団法人 水素エネルギー協会 平成25年度総会特別講演会 (第141回定例研究会)	固体酸化物形燃料電池の最新開発動向	山地克彦
4	平成25年6月6日	The 19th International Conference on Solid State Ionics	Effect of polarization on Sr and Zr diffusion behavior in LSCF/10GDC/8YSZ system	王芳芳, Manuel Brito, 山地克彦, 趙度衡, 西美奈, 岸本治夫, 堀田照久, 横川晴美
5	平成25年6月6日	The 19th International Conference on Solid State Ionics	TETRAGONAL-CUBIC PHASE BOUNDARY OF 8 AND 10 MOL% YTTRIA-STABILIZED ZIRCONIA	下之蘭太郎, 堀田照久, 西美奈, 岸本治夫, 山地克彦, プリトマニエル, 横川晴美
6	平成25年9月28日	2013年電気化学秋季大会	Cr 被毒による LSCF 空気極の性能低下と通電の影響	趙度衡, 岸本治夫, 山地克彦, バガリナオ カテリン, 西美奈, 王芳芳, 横川晴美, 堀田照久
7	平成25年9月28日	2013年電気化学秋季大会	SrZrO ₃ 緻密層とイットリア安定化ジルコニアにおける酸化物イオン拡散	西美奈, 横川晴美, 岸本治夫, 山地克彦, 堀田照久
8	平成25年10月7日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII)	Evaluation of the Cathode Performance and the Distribution of Deposited Cr Species in the LSCF6428 Cathode by Cr Poisoning	D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, M. E. Brito, K. Develos-Bagarinao, M. Nishi, T. Shimonosono, F. Wang, H. Yokokawa and T. Horita
9	平成25年10月7日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII)	Oxygen ion diffusion in dense SrZrO ₃ layer on YSZ	M. Nishi, H. Yokokawa, H. Kishimoto, K. Yamaji and T. Horita
10	平成25年10月7日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII)	Cubic-Tetragonal Phase Transformation of YSZ Electrolyte in SOFCs	T. Shimonosono, H. Kishimoto, M. Nishi, M. E. Brito, K. Yamaji, H. Yokokawa and T. Horita
11	平成25年11月21日	第39回固体イオニクス討論会	Chromium and Sulfur Poisoning of the LSCF Cathode under SOFC Operating Condition	王芳芳, 趙度衡, 西美奈, バガリナオ カテリン, 岸本治夫, 山地克彦, 堀田照久, 横川晴美
12	平成25年11月21日	第39回固体イオニクス討論会	緻密 SrZrO ₃ 層における同位体酸素拡散	西美奈, 横川晴美, 岸本治夫, 山地克彦, 堀田照久
13	平成25年12月19日	第22回 SOFC 研究発表会	(La _{0.8} Sr _{0.2})(Co _{0.7} Fe _{0.3})O ₃ 空気極の Cr 被毒に及ぼす Cr 蒸気供給量の影響	趙度衡, 岸本治夫, 山地克彦, バガリナオ カテリン, 西美奈, 堀田照久, 横川晴美
14	平成25年12月19日	第22回 SOFC 研究発表会	Temperature dependence on sulfur poisoning of (La _{0.8} Sr _{0.2})(Co _{0.7} Fe _{0.3})O ₃ under 0.1ppm SO ₂	P. Lv, H. Kishimoto, D.-H. Cho, K. Yamaji, K. Develos-Bagarinao, M. Nishi, H. Yokokawa, T. Horita
15	平成26年3月29日	電気化学会第81回大会	低濃度 Cr 蒸気供給下での (La _{0.8} Sr _{0.2})(Co _{0.7} Fe _{0.3})O ₃ 空気極の Cr 被毒挙動	趙度衡, 岸本治夫, 山地克彦, バガリナオ カテリン, 西美奈, 堀田照久, 横川晴美
16	平成26年3月29日	電気化学会第81回大会	Effect of operating temperature on sulfur poisoning of LSCF6428 cathode	P. Lv, H. Kishimoto, K. Yamaji, K. Develos-Bagarinao, M. Nishi, H. Yokokawa, T. Horita
17	平成26年5月29日	第21回燃料電池シンポジウム	Interfacial stability and cation diffusion studies on dense and porous LSCF/GDC/YSZ multilayers	K. Develos-Bagarinao, D.-H. Cho, H. Lv, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
18	平成26年5月29日	第21回燃料電池シンポジウム	産総研における SOFC 耐久性迅速評価方法に関する基礎研究	山地克彦, 趙度衡, 呂佩玲, 岸本治夫, バガリナオ カテリン, 堀田照久, 横川晴美
19	平成26年6月16日	CIMTEC2014	Improvement of Durability of SOFC: Origin of Polarization at Cathode / Electrolyte Interfaces	堀田照久, 西美奈, 岸本治夫, 山地克彦, 横川晴美
20	平成26年9月9日	日本セラミックス協会 第27回秋季シンポジウム	Cation diffusion behavior in LSCF/GDC/YSZ multilayers	K. Develos-Bagarinao, J. C. De Vero, H. Lv, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa

21	平成 26 年 9 月 27 日	2014 年 電気化学秋季大会	Cation diffusion in LSCF/GDC/YSZ multilayers prepared by pulsed laser deposition	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, H. Lv, D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
22	平成 26 年 12 月 16 日	第 23 回 SOFC 研究発表会	産総研における SOFC 耐久性迅速評価方法に関する基礎研究	山地克彦, 趙度衡, 呂佩玲, Bagarinao Develos Katherine, 岸本治夫, 堀田照久, 横川晴美
23	平成 26 年 12 月 16 日	第 23 回 SOFC 研究発表会	Investigation on the effect of GDC/YSZ orientation on the microstructure and cation interdiffusion across LSCF/GDC/YSZ multilayers	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
24	平成 26 年 12 月 16 日	第 23 回 SOFC 研究発表会	Surface and interfacial properties of LSCF/GDC/YSZ heterostructures	K. Develos-Bagarinao, J. C. De Vero, D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
25	平成 26 年 12 月 16 日	第 23 回 SOFC 研究発表会	Cr 蒸気供給下での通電モードによる LSCF 空気極の劣化挙動の変化	趙度衡, 山地克彦, 岸本治夫, バガリナオ カタリン, 堀田照久, 横川晴美
26	平成 27 年 3 月 15 日	電気化学会第 82 回大会	Influence of microcrack and pore formation in GDC interlayer on cation diffusion in LSCF/GDC/YSZ triplets	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
27	平成 27 年 3 月 15 日	電気化学会第 82 回大会	(La _{0.6} Sr _{0.4})(Co _{0.2} Fe _{0.8})O ₃ 空気極における Cr 蓄積量と Cr 被毒挙動への運転温度の影響	趙度衡, 山地克彦, 岸本治夫, バガリナオ カタリン, 堀田照久, 横川晴美
28	平成 27 年 3 月 15 日	電気化学会第 82 回大会	Effect of applied current on sulfur poisoning of LSCF6428 cathode by 0.1ppm SO ₂	H. Lv, D.-H. Cho, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
29	平成 27 年 5 月 28 日	第 22 回燃料電池シンポジウム	SOFC 耐久性迅速評価プロジェクトについて	山地克彦
30	平成 27 年 6 月 16 日	20th International Conference on Solid State Ionics	Role of Gadolinia-Doped Ceria Interlayer Micro-structure and Orientation on the Cation Diffusion Behavior in LSCF/GDC/YSZ Model	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
31	平成 27 年 7 月 27 日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	Annealing-induced Surface Segregation and SrSO ₄ Formation on La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O _{3-δ} Cathodes	K. Develos-Bagarinao, J. C. De Vero, D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
32	平成 27 年 7 月 27 日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	Degradation of LSCF Cathode Induced by SO ₂ in Air	H. Kishimoto, F. Wang, D.-H. Cho, P. Lv, K. Develos-Bagarinao, J. C. De Vero, D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
33	平成 27 年 7 月 28 日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	Effect of LSCF Microstructure on GDC Interlayer Stability and Cation Diffusion in Porous and Dense LSCF/GDC/YSZ Triplets	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
34	平成 27 年 7 月 29 日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	Effect of Chromium Vapor Pressure on Accelerated Poisoning Tests for (La _{0.6} Sr _{0.4})(Co _{0.2} Fe _{0.8})O ₃ Cathode	D.-H. Cho, K. Develos-Bagarinao, J. C. De Vero, D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
35	平成 27 年 9 月 12 日	2015 年 電気化学秋季大会	Influence of LSCF microstructure on SrZrO ₃ formation in LSCF/GDC/YSZ triplets	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
36	平成 27 年 9 月 12 日	2015 年 電気化学秋季大会	Oxide ionic diffusion barrier at the SrZrO ₃ /YSZ interface	K. Develos-Bagarinao, J. C. De Vero, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
37	平成 27 年 9 月 12 日	2015 年電気化学会秋季大会	Temperature effects of low concentration SO ₂ (0.01 ppm) in air on degradation of LSCF cathode	K. Yan, D.-H. Cho, K. Develos-Bagarinao, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
38	平成 27 年 11 月 25 日	第 41 回固体イオニクス討論会	Investigation of the oxide ion transport blocking effect at the SrZrO ₃ -YSZ and the Y-doped SrZrO ₃ -YSZ interfaces	K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
39	平成 27 年 12 月 1 日	第 35 回表面科学学術講演会	固体酸化物形燃料電池 (SOFC) の材料診断と表面分析	山地克彦

40	平成27年12月16日	第24回SOFC研究発表会	Evaluation of GDC interlayer stability in LSCF/GDC/YSZ triplets annealed at intermediate temperatures	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, D.-H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
41	平成27年12月17日	第24回SOFC研究発表会	定電流条件下での低濃度Cr蒸気供給によるCr蓄積とLSCF空気極の性能変化	趙度衡, 山地克彦, 岸本治夫, バガリナオ カタリン, 堀田照久, 横川晴美
42	平成27年12月17日	第24回SOFC研究発表会	Oxide ion diffusion in SrZrO ₃ and Y-doped SrZrO ₃ thin films on YSZ	K. Develos-Bagarinao, J. C. De Vero, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
43	平成27年12月16日	第24回SOFC研究発表会	Temperature effects of sulfur poisoning behavior of LSCF cathode in 0.01 ppm SO ₂	K. Yan, D.-H. Cho, K. Develos-Bagarinao, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
44	平成28年1月28日	ICACC16	Fundamental Study on Degradation of SOFC materials in AIST	K. Yamaji
45	平成28年5月26日	第22回燃料電池シンポジウム	産総研におけるSOFC耐久性迅速評価への取り組み	K. Yamaji, Y. Xiong, D. H. Cho, Y. Kang, J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, T. Horita, H. Yokokawa
46	平成28年7月7日	12th European SOFC & SOE Forum	Oxide ion blocking effect at SrZrO ₃ /YSZ and Y-doped SrZrO ₃ /YSZ interfaces	K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
47	平成28年7月8日	12th EUROPEAN SOFC & SOE FORUM	Optimization of GDC interlayer against SrZrO ₃ formation in LSCF/GDC/YSZ	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
48	平成28年9月5日	2016 Asian SOFC Symposium	Effect of cathodic polarization on SrZrO ₃ formation at the LSCF/GDC interface	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
49	平成28年9月5日	2016 Asian SOFC Symposium	Effect of current applying on reaction with La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8-d} O _{3-d} cathode and chromium containing vapor	T. Ishiyama, K. Develos-Bagarinao, D. H. Cho, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
50	平成28年9月6日	2016 Asian SOFC Symposium	Oxide ion blocking effect due to SrZrO ₃ formation at cathode-electrolyte interfaces	K. Develos-Bagarinao, J. Szasz, J. C. De Vero, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, E. Ivers-Tiffée, H. Yokokawa
51	平成28年9月6日	2016 Asian SOFC Symposium	Fundamental studies on durability of SOFC materials in AIST	K. Yamaji, Y. Xiong, D. H. Cho, Y. Kang, J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, T. Horita, H. Yokokawa
52	平成28年10月5日	Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-State Science (PRiME 2016)	Elucidating the origin of the oxide ion blocking effect at GDC/SrZr(Y)O ₃ /YSZ hetero-interfaces	K. Develos-Bagarinao, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
53	平成28年10月5日	Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-State Science (PRiME 2016)	Effect of SrZrO ₃ Formation at LSCF-Cathode/GDC-Interlayer Interfaces on the Electrochemical Properties of Solid Oxide Fuel Cells	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
54	平成28年12月15日	第25回SOFC研究発表会	産総研におけるSOFC迅速耐久性評価方法に関する基礎研究	山地克彦, 岸本治夫, 堀田照久, 横川晴美, 石山智大, バガリナオ カタリン
55	平成28年12月16日	25th SOFC Japan Symposium	Effect of GDC interlayer microstructure on the stability of cathode-interlayer interfaces of solid oxide fuel cells	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
56	平成28年2月28日	TMS2017 Meeting	Poisoning Mechanism and Performance Degradation at SOFC Cathode/Electrolyte Interfaces	T. Horita, T. Ishiyama, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, K. Yamaji
57	平成29年3月25日	電気化学会第84回大会	Interfacial stability and cation interdiffusion at the LSCF-cathode/GDC(100)-interlayer interface after long-term cell operation	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa

58	平成 29 年 5 月 25 日	第 24 回燃料電池シンポジウム	産総研における SOFC 材料の劣化挙動解析への取り組み	山地 克彦, 岸本 治夫, 堀田 照久, 横川 晴美, 石山 智大, バガリーナオ カテリン, デベロ ジェフリー, ブディマン リヤン, 王 芳芳
59	平成 29 年 6 月 23 日	21st International Conference on Solid State Ionics	Sr and Zr transport in LSCF/GDC/single-crystal YSZ model heterostructures	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, H. Matsuda, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa
60	平成 29 年 7 月 24 日	15th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cell (SOFC-XV)	Evaluation of Electrochemical Properties of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ Porous Electrode with Sulfur Poisoning	R. A. Budiman, T. Ishiyama, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa
61	平成 29 年 7 月 25 日	15th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cell (SOFC-XV)	Evaluation of Impurity Levels in Cathodes of 7 Different SOFC Stacks and Modules before and after Long-Term Operation	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa
62	平成 29 年 7 月 26 日	15th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cell (SOFC-XV)	Effect of Gd-doped Ceria Interlayer Microstructure on the Interdiffusion Behavior Between $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ Cathodes and Yttria-Stabilized Zirconia Electrolytes	K. Yamaji, T. Ishiyama, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, T. Horita. H. Yokokawa
63	平成 29 年 9 月 10 日	ECS Japan Fall Meeting	Effect of oxide substrates on the SrSO_4 formation in $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ thin films	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa
64	平成 29 年 11 月 9 日	The 3rd East-Asia Microcopy Conference (EAMC3)	Investigation on the poisoning mechanism of $(\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4})(\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8})\text{O}_{3-\delta}$	L. ShuSheng, R. A. Budima, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa
65	平成 29 年 11 月 21 日	The 4th International Conference on Advanced Electromaterials	SrSO_4 formation in $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ thin films on different oxide substrates deposited by pulsed laser deposition	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, L. ShuSheng, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa
66	平成 29 年 12 月 14 日	第 26 回 SOFC 研究発表会	Study of Cr poisoning on LSCF by using electron microscopies	L. ShuSheng, R. A. Budima, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa
67	平成 29 年 12 月 14 日	第 26 回 SOFC 研究発表会	Effect of Chromium and SO_2 poisoning on the surface of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ electrode	R. A. Budiman, K. Develos-Bagarinao, L. ShuSheng, D.-H. Cho, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa
68	平成 29 年 12 月 15 日	第 26 回 SOFC 研究発表会	Effect of LSCF thin film composition on sulfur poisoning	D. J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, L. ShuSheng, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa
69	平成 30 年 1 月 25 日	42nd International Conference and Expo on Advanced Ceramics and Composites	Effect of composition of LSCF thin films on SrSO_4 formation	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, L. ShuSheng, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa
70	平成 30 年 1 月 25 日	42nd International Conference and Exposition on Advanced Ceramics and Composites (ICACC2018)	Probing Interfacial Properties of Heterostructures in Solid Oxide Fuel Cells	K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa
71	平成 30 年 3 月 9 日	電気化学会第 85 回大会	Cathode-interlayer interface modifications for improved long-term stability of SOFC	J. C. De Vero, K. Develos-Bagarinao, L. ShuSheng, H. Kishimoto, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa
72	平成 30 年 3 月 9 日	電気化学会第 85 回大会	Investigation of Sulfur Poisoning Effect on $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$: Poisoning Mechanism and Its Implication on Performance Degradation	R. A. Budiman, K. Develos-Bagarinao, L. ShuSheng, D.-H. Cho, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa
73	平成 30 年 3 月 9 日	電気化学会第 85 回大会	Determination of the Chromium Poisoning Mechanism of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$	R. A. Budiman, K. Develos-Bagarinao, L. ShuSheng, D.-H. Cho, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa

—展示会への出展—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 26 年 2 月 26 日-28 日	FC EXPO 2014 第 10 回国際水素・燃料電池展	固体酸化物形燃料電池 (SOFC) の 耐 久性向上に関する材料研究	岸本 治夫, 山地 克彦, バガリナ オ カタリン

—受賞—

No.	年月	受賞者	受賞内容	表彰団体・賞名
1	平成 29 年 11 月	J. C. De Vero	SrSO ₄ formation in La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O _{3-δ} thin films on different oxide substrates deposited by pulsed laser deposit	BEST poster Award, The 4th International Conference on Advanced Electromaterials

② 特許等

—特許—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託会社名
1	平成 29 年 5 月 8 日	特願 2017-092313	長寿命固体酸化物形燃料電池セル	国立研究開発法人産業技術総合研究所

(2) 化学的解析による劣化機構解明、加速要因分析

① 研究発表・講演、文献等、その他

—研究発表・講演—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 25 年 5 月 28 日	第 20 回燃料電池シンポジウム	SOFC の化学的耐久性に関する研究：現状と将来展望	佐々木一成, 吉富寛晃, 三好航太, 瓜生智愛, 花崎雅洋, 西村隆史, 細井貴己, 周 致雲, 大嶋敏宏, 立川雄也, 林灯, 白鳥祐介, 谷口俊輔
2	平成 25 年 6 月 6 日	The 19th International Conference on Solid State Ionics	Chemical Degradation of SOFCs: External Impurity Poisoning and Internal Diffusion-Related Phenomena.	K. Sasaki, T. Yoshizumi, H. Yoshitomi, K. Miyoshi, S. Taniguchi, Y. Shiratori
3	平成 25 年 7 月 6 日	第 50 回化学関連支部合同九州大会 (ポスター)	固体酸化物形燃料電池への低コスト材料の応用に関する研究	豊福泰大, 細井貴己, 川畑勉, 谷口俊輔, 白鳥祐介, 佐々木一成
4	平成 25 年 7 月 6 日	第 50 回化学関連支部合同九州大会 (ポスター)	SOFC における耐被毒性アノード材料に関する研究	杉本達吉, 川畑勉, 白鳥祐介, 谷口俊輔, 佐々木一成
5	平成 25 年 7 月 6 日	第 50 回化学関連支部合同九州大会 (ポスター)	固体酸化物形燃料電池の炭素析出挙動の面分布に関する研究	西村隆史, 川畑勉, 立川雄也, 白鳥祐介, 谷口俊輔, 佐々木一成
6	平成 25 年 7 月 6 日	第 50 回化学関連支部合同九州大会 (ポスター)	固体酸化物形燃料電池のサイクル劣化機構に関する研究	花崎雅洋, 瓜生智愛, 白鳥祐介, 谷口俊輔, 佐々木一成
7	平成 25 年 9 月 24 日	第 23 回格子欠陥フォーラム (基調講演)	燃料電池：格子欠陥が働いて機能するデバイス	佐々木一成
8	平成 25 年 10 月 10 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-III)	Chemical Degradation of SOFCs: External Impurity Poisoning and Internal Diffusion-related Phenomena.	K. Sasaki, T. Yoshizumi, K. Haga, H. Yoshitomi, T. Hosoi, Y. Shiratori, S. Taniguchi
9	平成 25 年 10 月 8 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-III) (ポスター)	Durability of SOFC against Thermal and Redox Cycling.	M. Hanasaki, C. Uryu, S. Taniguchi, Y. Shiratori, K. Sasaki
10	平成 25 年 10 月 8 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-III) (ポスター)	Durability of SOFCs using Inexpensive Ca-doped ZrO ₂ Electrolytes.	Y. Toyofuku, T. Hosoi, T. Kawabata, Y. Shiratori, S. Taniguchi, K. Sasaki
11	平成 25 年 10 月 8 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-III) (ポスター)	Effect of Ceria Addition in SOFC Anodes on Sulfur Poisoning.	J. Sugimoto, T. Kawabata, Y. Shiratori, S. Taniguchi, K. Sasaki
12	平成 25 年 10 月 10 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-III) (ポスター)	In-plane Distribution of Carbon Deposition on SOFCs.	T. Nishimura, T. Kawabata, Y. Tachikawa, Y. Shiratori, S. Taniguchi, K. Sasaki
13	平成 25 年 12 月 19 日	第 22 回 SOFC 研究発表会 (ポスター)	SOFC アノードへのセリア添加効果に関する研究：硫黄被毒への影響	杉本達吉, 川畑勉, 谷口俊輔, 白鳥祐介, 佐々木一成

14	平成25年12月19日	第22回SOFC研究発表会(ポスター)	SOFCの硫黄系不純物と炭化水素との複合被毒効果の面分布に関する研究	西村隆史、川畑勉、立川雄也、谷口俊輔、白鳥祐介、佐々木一成
15	平成25年12月19日	第22回SOFC研究発表会(ポスター)	SOFCのサイクル劣化メカニズムに関する研究	花崎雅洋、瓜生智愛、大尾岳史、谷口俊輔、白鳥祐介、佐々木一成
16	平成25年12月19日	第22回SOFC研究発表会(ポスター)	固体酸化燃料電池のCaイオン拡散を伴う内因性劣化に関する研究	豊福泰大、細井貴己、川畑勉、白鳥祐介、谷口俊輔、佐々木一成
17	平成25年12月20日	第22回SOFC研究発表会	固体酸化燃料電池の化学的耐久性:各種劣化メカニズムの体系化	佐々木一成、花崎雅洋、西村隆史、細井貴己、豊福泰大、杉本達吉、永井美徳、川畑勉、瓜生智愛、谷口理香、周致雲、立川雄也、大尾岳史、大嶋敏宏、白鳥祐介、谷口俊輔
18	平成26年3月30日	電気化学会第81回大会	SOFCの化学的耐久性に関する研究	佐々木一成、花崎雅洋、西村隆史、細井貴己、瓜生智愛、井上侑子、大嶋敏宏、大尾岳史、立川雄也、白鳥祐介、谷口俊輔
19	平成27年3月15日	電気化学会第82回大会(ポスター)	SOFCの高加温条件下における金属Niの酸化劣化に関する研究	川崎達也、佐々木一成、花崎雅洋、立川雄也、白鳥祐介、谷口俊輔
20	平成27年3月15日	電気化学会第82回大会(ポスター)	SOFC界面でのSrZrO ₃ の生成メカニズムとセル性能への影響に関する研究	金江秀、川畑勉、井上侑子、立川雄也、白鳥祐介、谷口俊輔、佐々木一成
21	平成27年7月30日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFCXIV(ポスター)	Microstructural Characterization of SrZrO ₃ Formation and the Influence to SOFC Performance	S. Kanae, Y. Toyofuku, T. Kawabata, Y. Inoue, T. Daio, J. Matsuda, J.-T. Chou, Y. Shiratori, S. Taniguchi, K. Sasaki
22	平成28年10月2日-7日	Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-State Science (PRIME 2016), (ポスター)	SrZrO ₃ Formation in SOFCs: Microstructural Characterization and Cell Performance	S. Kanae, Y. Toyofuku, T. Kawabata, Y. Inoue, J. Matsuda, J. T. Chou, Y. Shiratori, S. Taniguchi, K. Sasaki
23	平成28年12月15日	第25回SOFC研究発表会(ポスター)	SOFC界面でのSrZrO ₃ の生成メカニズムとセル性能への影響に関する研究	金江秀、川畑勉、井上侑子、松田潤子、周致雲、白鳥祐介、谷口俊輔、佐々木一成
24	平成29年5月25-26日	第24回燃料電池シンポジウム(ポスター)	SOFC耐久性評価のためのSrZrO ₃ 生成メカニズム検討	井上侑子、周致雲、川畑勉、金江秀、松田潤子、谷口俊輔、佐々木一成
25	平成29年7月26日	15th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XV)	TEM and ETEM Study of SrZrO ₃ Formation at LSCF/GDC/YSZ Interface	J. Matsuda, S. Kanae, T. Kawabata, J.-T. Chou, Y. Inoue, S. Taniguchi, K. Sasaki

—論文—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成25年10月	ECS Transactions, 57(1), 315-323 (2013)	Chemical Degradation of SOFCs: External Impurity Poisoning and Internal Diffusion-related Phenomena.	K. Sasaki, T. Yoshizumi, K. Haga, H. Yoshitomi, T. Hosoi, Y. Shiratori, S. Taniguchi
2	平成25年10月	ECS Transactions, 57(1), 691-697 (2013)	Durability of SOFC against Thermal and Redox Cycling.	M. Hanasaki, C. Uryu, S. Taniguchi, Y. Shiratori, K. Sasaki
3	平成25年10月	ECS Transactions, 57(1), 807-813 (2013)	Durability of SOFCs using Inexpensive Ca-doped ZrO ₂ Electrolytes.	Y. Toyofuku, T. Hosoi, T. Kawabata, Y. Shiratori, S. Taniguchi, K. Sasaki
4	平成25年10月	ECS Transactions, 57(1), 1395-1400 (2013)	Effect of Ceria Addition in SOFC Anodes on Sulfur Poisoning.	J. Sugimoto, T. Kawabata, Y. Shiratori, S. Taniguchi, K. Sasaki
5	平成25年10月	ECS Transactions, 57(1), 1593-1598 (2013)	In-plane Distribution of Carbon Deposition on SOFCs.	T. Nishimura, T. Kawabata, Y. Tachikawa, Y. Shiratori, S. Taniguchi, K. Sasaki
6	平成27年7月	ECS Transactions, 68(1), 2463-2470 (2015)	Microstructural Characterization of SrZrO ₃ Formation and the Influence to SOFC Performance	S. Kanae, Y. Toyofuku, T. Kawabata, Y. Inoue, T. Daio, J. Matsuda, J.-T. Chou, Y. Shiratori, S. Taniguchi, K. Sasaki
7	平成29年7月	ECS Transactions, 78(1), 993-1001 (2017)	TEM and ETEM Study of SrZrO ₃ Formation at LSCF/GDC/YSZ Interface	J. Matsuda, S. Kanae, T. Kawabata, J.-T. Chou, Y. Inoue, S. Taniguchi, K. Sasaki

—展示会への出展—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 29 年 3 月 1 日-3 日	第 13 回国際水素・燃料電池展 FC EXPO (東京) (ポスター)	SOFCの耐久性迅速評価のための化学的解析	佐々木一成

② 特許等

なし

(3) 三相界面微構造解析による劣化機構解明、加速要因分析 (2013 年度—2017 年度)

① 研究発表・講演、文献等、その他

—研究発表・講演—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 25 年 7 月 4 日	19th International conference on Solid State Ionics	Microstructural change in LSM/SDC and LSCF/SDC interfaces upon current loading	H. Muroyama, M. Komoto, T. Matsui, and K. Eguchi
2	平成 25 年 10 月 9 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII)	Impact of Chemical Composition of Strontium-doped Lanthanum Manganite Cathode on Microstructural Change and Performance During Long-term Operation of SOFCs	T. Matsui, Y. Mikami, H. Muroyama, and K. Eguchi
3	平成 25 年 10 月 10 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII)	Microstructural Change of Ni-YSZ Anode under Thermal Cycles with Redox Treatments	M. Kubota, H. Muroyama, T. Matsui, and K. Eguchi
4	平成 25 年 10 月 10 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII)	Comparative Study on Performance Stability of Ni-Oxide Cermet Anodes under Humidified Atmospheres in Solid Oxide Fuel Cells	H. Muroyama, R. Kishida, T. Matsui, and K. Eguchi
5	平成 25 年 10 月 15 日	The 6th Asia-Pacific Congress on Catalysis (APCAT-6)	Microstructures and Materials of Electrodes for Solid Oxide Fuel Cells	K. Eguchi
6	平成 25 年 12 月 19 日	第 22 回 SOFC 研究発表会	LSCF/SDC/YSZ 界面近傍における SrZrO ₃ 生成分布の解析	松井敏明、河本将宏、室山広樹、江口浩一
7	平成 25 年 12 月 20 日	第 22 回 SOFC 研究発表会	昇降温操作を伴う酸化-還元処理下における Ni-YSZ 燃料極の微構造変化	久保田勝、室山広樹、松井敏明、江口浩一
8	平成 26 年 5 月 27 日	石油学会第 57 回年会	固体酸化物形燃料電池および燃焼・改質のための複合金属酸化物触媒材料の開発	江口浩一
9	平成 26 年 5 月 29 日	第 21 回燃料電池シンポジウム	SOFCにおける電池性能と電極微構造変化の相関(3)	江口浩一、松井敏明、室山広樹、吉田英生、岩井裕、齋藤元浩、乾清行、岸田恭輔、岡本範彦、笠木伸英、鹿園直毅
10	平成 26 年 9 月 22 日	2014 Asian SOFC Symposium and Exhibition	Influence of (La, Sr)MnO _{3-δ} cathode composition on cathode/electrolyte interfacial structure during discharge operation	T. Matsui, Y. Mikami, H. Muroyama, and K. Eguchi
11	平成 26 年 10 月 17 日	第 44 回石油・石油化学討論会	直接内部改質型 SOFC における燃料極内部のガス組成分布解析	安藤大樹、岡西岳太、室山広樹、松井敏明、江口浩一
12	平成 26 年 12 月 17 日	第 23 回 SOFC 研究発表会	SOFC内部改質発電における燃料極上のガス組成分布解析	安藤大樹、岡西岳太、室山広樹、松井敏明、江口浩一
13	平成 27 年 6 月 16 日	20th International conference on Solid State Ionics	Formation of SrZrO ₃ in Perovskite Cathode / Ceria Interlayer / Zirconia Electrolyte during Operation of Solid Oxide Fuel Cells	K. Eguchi, T. Matsui, H. Muroyama, M. Komoto, K. Kishida, and H. Inui
14	平成 27 年 7 月 29 日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	Gas Composition Analysis on Ni-YSZ Anode in Direct Internal Reforming Solid Oxide Fuel Cell	H. Muroyama, D. Ando, T. Okanishi, T. Matsui, and K. Eguchi
15	平成 27 年 11 月 26 日	第 41 回固体イオニクス討論会	固体酸化物形燃料電池の LSCF 空気極/GDC 中間層/YSZ 電解質における劣化要因解析	井上結稀、岡西岳太、室山広樹、松井敏明、江口浩一

16	平成27年12月16日	第24回SOFC研究発表会	LSOF 空気極/GDC 中間層/YSZ 電解質における通電時の微構造変化解析	井上結稀、岡西岳太、室山広樹、松井敏明、江口浩一
17	平成27年12月16日	第24回SOFC研究発表会	レドックス処理による Ni-GDC 燃料極の性能変化と微構造変化の相関	白井敬介、岡西岳太、室山広樹、松井敏明、江口浩一
18	平成28年3月29日	電気化学会第83回大会	SOFC における緊急停止・再起動操作が Ni-GDC 燃料極の微構造変化と性能変化に与える影響	白井敬介、岡西岳太、室山広樹、松井敏明、江口浩一
19	平成28年3月29日	電気化学会第83回大会	ドーパントが ZrO ₂ 系電解質のイオン伝導度に及ぼす影響	李思齊、岡西岳太、室山広樹、松井敏明、江口浩一
20	平成28年7月4日	The 16th International Congress on Catalysis (ICC16)	Development of solid oxide fuel cells and related catalysis	K. Eguchi
21	平成28年12月5日	第42回固体イオニクス討論会	固体酸化物燃料電池の空気極/中間層/電解質における微構造解析	井上結稀、室山広樹、松井敏明、江口浩一
22	平成28年12月16日	第25回SOFC研究発表会	熱・酸化還元処理が Ni-Ce _{0.9} Gd _{0.1} O _{2-δ} 燃料極の微構造変化と性能変化に与える影響	白井敬介、室山広樹、松井敏明、江口浩一
23	平成29年3月26日	電気化学会第84回大会	CeO ₂ 系酸化物/ZrO ₂ 系酸化物界面における固相反応がイオン伝導度に及ぼす影響	松井敏明、李思齊、井上結稀、室山広樹、江口浩一
24	平成29年5月25日	第24回燃料電池シンポジウム	SOFC 空気極の劣化要因解析	江口浩一、井上結稀、李思齊、室山広樹、松井敏明
25	平成29年6月20日	21st International conference on Solid State Ionics	Degradation Factors in (La, Sr) (Co, Fe)O _{3-δ} Cathode / Doped-CeO ₂ Interlayer / Y ₂ O ₃ -ZrO ₂ Electrolyte System for Solid Oxide Fuel Cells	K. Eguchi, S. Li, K. Kishida, H. Inui, H. Muroyama, T. Matsui
26	平成29年12月14日	第26回SOFC研究発表会	GDC 反応防止層/YSZ 電解質界面で生成する固溶体のイオン伝導度	吉田憲史、李思齊、井上結稀、室山広樹、松井敏明、江口浩一
27	平成29年12月15日	第26回SOFC研究発表会	水蒸気による LSOF 空気極の性能低下と微構造変化の相関	金敏圭、室山広樹、松井敏明、江口浩一
28	平成28年6月17日	第21回動力・エネルギー技術シンポジウム、横浜 C232 (2016).	固体酸化物燃料電池燃料極の酸化還元サイクル下での性能変化メカニズムの解明	志村敬彬、焦震鈞、原祥太郎、鹿園直毅
29	平成28年6月22日	EUROTHERM 2016, FCS-1, Krakow Poland (2016).	Study on the Correlation Between Solid Oxide Fuel Cell Ni-YSZ Anode Performance and Reduction Temperature	Z. Jiao, A. Ueno, and N. Shikazono
30	平成28年12月16日	第25回SOFC研究発表会, 151C (2016).	Study on the Influences of Reduction Temperature on SOFC Anode Using Nickel Oxide-Film Electrode	Z. Jiao and N. Shikazono

—論文—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成26年3月31日	J. Power Sources, 262, 451-456 (2014)	Degradation of nickel- yttria-stabilized zirconia anode in solid oxide fuel cells under changing temperature and humidity conditions	Y.-H. Lee, H. Muroyama, T. Matsui, K. Eguchi
2	平成26年9月15日	Fuel Cells, 14(6), 1022-1027 (2014)	Interfacial stability between air electrode and ceria-based electrolyte under cathodic polarization in solid oxide fuel cells	T. Matsui, M. Komoto, H. Muroyama, K. Eguchi
3	平成26年12月15日	炭素, 265, 187-194 (2014)	固体酸化物燃料電池の燃料極における炭素析出の影響	松井敏明、江口浩一
4	平成27年1月22日	J. Electrochem. Soc., 162(4), F380-F386 (2015)	Microstructural evolution of Ni-YSZ cermet anode under thermal cycles with redox treatments	M. Kubota, T. Okanishi, H. Muroyama, T. Matsui, K. Eguchi
5	平成27年5月1日	Journal of the Japan Petroleum Institute, 58(2), 79-85 (2015)	Performance and degradation of Ni-based cermet anode for solid oxide fuel cells	K. Eguchi
6	平成27年6月10日	触媒, 57(3), 130-135 (2015)	SOFC アノードにおける炭化水素の内部改質反応	松井敏明、江口浩一
7	平成27年7月26日	ECS Transactions, 68(1), 1151-1160 (2015)	Gas Composition Analysis on Ni-YSZ Anode in Direct Internal Reforming Solid Oxide Fuel Cell	H. Muroyama, D. Ando, T. Okanishi, T. Matsui, K. Eguchi

8	平成 28 年 4 月 30 日	J. Power Sources, 312, 80-85 (2016)	Degradation factors in (La, Sr) (Co, Fe)O _{3-δ} cathode/ Sm ₂ O ₃ -CeO ₂ interlayer / Y ₂ O ₃ - ZrO ₂ electrolyte system during operation of solid oxide fuel cells	T. Matsui, M. Komoto, H. Muroyama, K. Kishida, H. Inui, K. Eguchi
9	平成 28 年 12 月 30 日	Solid State Ionics, 300, 135-139 (2017)	Electrochemical property of solid solutions formed in (La, Sr) (Co, Fe)O _{3-δ} cathode/ doped-CeO ₂ interlayer/ Y ₂ O ₃ -ZrO ₂ electrolyte system during operation of solid oxide fuel cells	T. Matsui, S. Li, H. Muroyama, K. Kishida, H. Inui, K. Eguchi
10	平成 28 年 9 月 1 日	Science Bulletin, 305, 1-7 (2016).	Study on 3D Reconstruction Size Effect on the Quantification of Solid Oxide Fuel Cell Nickel-Yttria-Stabilized-Zirconia Anode Microstructural Information Using Scanning Electron Microscopy-Focused Ion Beam Technique	Z. Jiao and N. Shikazono
11	平成 28 年 10 月 1 日	J. Power Sources, 328, 377-384 (2016).	Study on the Influences of Reduction Temperature on Nickel-Yttria-Stabilized Zirconia Solid Oxide Fuel Cell Anode Using Nickel Oxide-Film Electrode	Z. Jiao, A. Ueno, Y. Suzuki, and N. Shikazono
12	平成 28 年 10 月 31 日	J. Power Sources, 330, 149-155 (2016)	Evaluation of nickel-yttria stabilized zirconia anode degradation during discharge operation and redox cycles operation by electrochemical calculation	T. Shimura, Z. Jiao Z. and N. Shikazono.
13	平成 28 年 12 月 21 日	Int. J. Hydrogen Energy, 41 (47), 22373-22380 (2016)	Dependence of solid oxide fuel cell electrode microstructure parameters on focused ion beam - Scanning electron microscopy resolution	T. Shimura, Z. Jiao and N. Shikazono
14	平成 29 年 1 月 6 日	J. Electrochem. Soc., 164 (2) F147-F153 (2017)	Investigation of Microstructural Change of Nickel-Yttria Stabilized Zirconia Anode during Oxidation and Reduction Based on Three-Dimensional Reconstruction	T. Shimura, Z. Jiao, S. Hara, and N. Shikazono
15	平成 29 年 7 月 24 日	ECS Transactions, 78 (1), 1169-1177 (2017)	Study on Nickel Morphological Change at Active Three-Phase-Boundary in Solid Oxide Fuel Cell Anode Using Patterned Nickel-film Electrode	Z. Jiao, and N. Shikazono
16	平成 29 年 7 月 24 日	ECS Transactions, 78 (1), 1149-1159 (2017)	Evaluation of the Influence of Gadolinium Doped Ceria Particle Size on the Electrochemical Performance and Microstructure of Nickel-Gadolinium Doped Ceria Anodes	K. Miyahara, A. Sciazko, T. Shimura, Z. Jiao, and N. Shikazono
17	平成 29 年 8 月 15 日	Acta Materialia, 135, 124-131 (2017)	Study on the Effects of Discharge on Local Morphological Change of Nickel at Active Three-Phase-Boundary Using Patterned Nickel-film Electrode in Solid Oxide Fuel Cell Anode	Z. Jiao and N. Shikazono
18	平成 29 年 8 月 23 日	J. Electrochem., Soc., 164 (12), F1158-F1164 (2017).	Polarization Characteristics and Microstructural Changes of Solid Oxide Fuel Cell and Solid Oxide Electrolysis Cell Fuel Electrodes	T. Shimura, Z. Jiao, and N. Shikazono

—受賞—

No.	年月	受賞者	受賞内容	表彰団体・賞名
1	平成 26 年 5 月 27 日	江口浩一	固体酸化物燃料電池および燃焼・改質のための複合金属酸化物触媒材料の開発	石油学会 学会賞（学術部門）

(4) セル構造体解析による劣化機構解明、加速要因分析 (2013 年度—2017 年度)

① 研究発表・講演、文献等、その他

—研究発表・講演—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 25 年 5 月 28-29 日	第 20 回燃料電池シンポジウム	SOFC 材料の機械的特性とセルの信頼性評価	川田達也
2	平成 25 年 6 月 2-7 日	The 19th International Conference on Solid State Ionics	Anelastic Properties of $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_{3-\delta}$ at High Temperatures	木村勇太
3	平成 25 年 9 月 9 日	日本機械学会 2013 年度年次大会	高温・Redox サイクルにおける Ni/NiO-YSZ 材料の機械的特性評価	宮坂泰平, 佐藤一永, 橋田俊之
4	平成 25 年 9 月 9 日	日本機械学会 2013 年度年次大会	SOFC 作動条件下における Ni-YSZ アノード材料のクリープ特性	井口史匡, 北原大道, チャイプラソブボンカセムチャイ, 川田達也, 湯上 浩雄
5	平成 25 年 9 月 9 日	日本機械学会 2013 年度年次大会	ラマン散乱分光法を用いた作動中の SOFC における応力状態評価	井口史匡, 小野 寺祥, 小貴翔馬, 川田達也, 湯上浩雄
6	平成 25 年 9 月 18 日	第 112 回触媒討論会	分子動力学法によるニッケルレジルコニア系サーメット材料におけるドーパントがシタリングに及ぼす効果の検討	許競翔, 齋藤慎一朗, 樋口祐次, 尾澤伸樹, 久保百司
7	平成 25 年 9 月 27-28 日	電気化学会秋季大会	Defect chemistry and conduction properties of Sc doped- CaTiO_3	洪 炫珍, 橋本真一, 八代圭司, 川田達也
8	平成 25 年 10 月 6-11 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII)	Identification of Ni-YSZ anode creep property using PSO for multiscale simulation	S. Watanabe, F. Iguchi, K. Sato, K. Yamamoto, T. Hashida, K. Terada, and T. Kawada
9	平成 25 年 10 月 6-11 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII)	Oxygen Nonstoichiometry of $\text{Ce}_{0.8}\text{La}_{0.2}\text{O}_{2-\delta}$	H. Sato, S. Hashimoto, T. Nakamura, K. Yashiro, K. Amezawa, T. Kawada
10	平成 25 年 10 月 6-11 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII)	The Effect of Ferroelasticity of $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$ on the Mechanical Stability of Solid Oxide Fuel Cells	Yuta Kimura, Julian Tolchard, Mari-Ann Einarsrud, Tor Grande, Koji Amezawa, Shin-ichi Hashimoto, Tatsuya Kawada
11	平成 25 年 10 月 6-11 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII)	Evaluation of Stress Condition of Operated Anode Supported-Type SOFC under Operating Conditions Based on Raman Scattering Spectroscopy	S. Onuki, S. Onodera, F. Iguchi, M. Shimizu, T. Kawada, and H. Yugami
12	平成 25 年 10 月 6-11 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII)	Evaluation of Elastic and Strength Properties of Ni-YSZ cermets for Solid Oxide Fuel Cells under Redox Cycling	K. Sato, T. Miyasaka, S. Watanabe, T. Hashida
13	平成 25 年 10 月 27-30 日	MS&T' 13	Experimental Evaluation of Oxygen Nonstoichiometry under a Mechanical Stress	Tatsuya Kawada, Yuki Gono, Yuta Kimura, Tomohisa Masumitsu, Keiji Yashiro, Shin-ichi Hashimoto
14	平成 25 年 11 月 20-22 日	第 39 回固体イオニクス討論会	機械的応力による金属酸化物の電気化学特性への影響	五井友基, 八代圭司, 渡辺智, 川田達也, 橋本真一
15	平成 25 年 12 月 18 日	最新電池技術市民講演会	固体酸化物燃料電池の現状と信頼性・耐久性向上のための材料開発	八代圭司
16	平成 25 年 12 月 19-20 日	第 22 回 SOFC 研究発表会	Defect Chemistry and Conductivity Characterization of Sc-doped CaTiO_3	Hyun-Jin Hong, Shin-ichi Hashimoto, Keiji Yashiro, Tatsuya Kawada
17	平成 25 年 12 月 19-20 日	第 22 回 SOFC 研究発表会	SOFC における機械特性とシミュレーション技術	渡邊智, 寺田賢二郎, 佐藤一永, 井口史匡, 橋田俊之, 坂本正, 中村崇司, 宇根本篤, 尾澤伸樹, 八代圭司, 橋本真一, 雨澤浩史, 湯上浩雄, 川田達也

18	平成 26 年 2 月 19-21 日	ELyT Workshop 2014	Mechanical Analysis to Improve Reliability and Durability of Solid oxide fuel cells	Kazuhiisa Sato, Toshiyuki Hashida, Junichiro Mizusaki
19	平成 26 年 2 月 24-25 日	FIRST workshop in Europe of the Fracture and Reliability Research Institute	Assessment of Mechanical Reliability for Development of SOFCs	Kazuhiisa Sato, Toshiyuki Hashida
20	平成 26 年 3 月 14 日	日本機械学会東北支部 第 49 期総会・講演会	機械・電気・化学的因子を考慮した固体酸化物形燃料電池の応力解析	榎本 翔太, 佐藤 一永, 橋田 俊之
21	平成 26 年 4 月 24 日	2014 MRS Spring Meeting & Exhibit	High temperature Mechanical Properties of The SOFC Materials and Their Impacts on The Reliability of Cells and Stacks	Tatsuya Kawada
22	平成 26 年 5 月 14 日	225th ECS Meeting	Domain Reorientations and Its Influence on Mechanical Properties of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$	Yuta Kimura, Keiji Yashiro, Shin-ichi Hashimoto, Koji Amezawa, Tatsuya Kawada
23	平成 26 年 5 月 14 日	225th ECS Meeting	Effect of Mechanical Stress on Oxygen Potential of Transition Metal Oxides	Yuki Gono, Keiji Yashiro, Yuta Kimura, Satoshi Watanabe, Shin-ichi Hashimoto, Tatsuya Kawada
24	平成 26 年 6 月 17 日	資源素材学会東北支部春季大会	固体酸化物燃料電池における不定比性酸化物の力学的挙動に関する研究	田口昂宏, 榎本翔太, 佐藤一永, 橋田俊之
25	平成 26 年 7 月 18 日	日本機械学会 M&M2014 材料力学カンファレンス	面内圧縮応力状態における安定化ジルコニアの電気的特性	井口史匡, 山根拓也, 清水信, 湯上浩雄
26	平成 26 年 7 月 21 日	日本機械学会 M&M2014 カンファレンス	信頼性向上のための全固体電池のその場観察	佐藤一永, 橋田俊之, 桑田直明, 河村純一
27	平成 26 年 7 月 21 日	日本機械学会 M&M2014 カンファレンス	動作環境下における SOFC 構成材料の機械特性評価	渡辺智, 橋本真一, 八代圭司, 川田達也
28	平成 26 年 7 月 21 日	日本機械学会 M&M2014 カンファレンス	固体酸化物燃料電池用空気極材料の強靭性の性質	木村勇太, 橋本真一, 雨澤浩史, 八代圭司, 川田達也
29	平成 26 年 9 月 9 日	日本機械学会 2014 年度年次大会	発電環境下における固体酸化物燃料電池の応力変化	榎本翔太, 佐藤一永, 橋田俊之
30	平成 26 年 9 月 27 日	2014 年電気化学秋季大会	固体酸化物燃料電池用 Ni-YSZ サーマットの高温機械特性	Kasemchai Chairasobphol, 井口史匡, 清水信, 湯上浩雄
31	平成 26 年 10 月 3 日	最先端電池基盤技術コンソーシアム燃料電池分科会セミナー	固体電池の開発における材料強度学と情報科学の必要性	佐藤一永, 橋田俊之
32	平成 26 年 10 月 31 日	Nano-S&T 2014 - BIT's 4th Annual World Congress of Nano Science & Technology 2014 for Nano Science & Technology	Nano-scale Design of Solid Oxide Fuel Cells for Improvement of Reliability and Durability	Kazuhiisa Sato, Toshiyuki Hashida, Junichiro Mizusaki
33	平成 26 年 11 月 16 日	第 40 回固体イオニクス討論会	SOFC 用 Ni-YSZ サーマットの高温機械特性	Chairasobphol Kasemchai, 井口史匡, 清水信, 湯上浩雄
34	平成 26 年 12 月 16 日	第 23 回 SOFC 研究発表会	Direct observation of the current distributions across the SOFC by measuring the lateral voltage differences at operating conditions	Abhilasha S. Devaraji, 橋本真一, 八代圭司, 川田達也
35	平成 26 年 12 月 16 日	第 23 回 SOFC 研究発表会	低温域における Ni 酸化時の異常収縮現象	八代圭司, 渡辺智, 村松真由, 川田達也, 中村崇司, 雨澤浩史, 水崎純一郎, 坂本正, 尾澤伸樹, 佐藤一永, 橋田俊之, 井口史匡, 橋本真一, 湯上浩雄, 宇根本篤, 寺田賢二郎, 岸本治夫, 山地克彦
36	平成 26 年 12 月 16 日	第 23 回 SOFC 研究発表会	Ni-YSZ サーマット中の Ni の空気酸化および電気化学的酸化がセルに及ぼす影響の比較	佐藤 迪凱, 坂本 正, 佐藤 一永, 橋田 俊之
37	平成 26 年 12 月 16 日	第 23 回 SOFC 研究発表会	ラマン散乱分光法を用いた SOFC 作動状態における微小欠陥の影響の研究	小貴 翔馬, 井口 史匡, 湯上 浩雄
38	平成 26 年 12 月 16 日	第 23 回 SOFC 研究発表会	SOFC における酸素不定比性材料の弾性・強度特性における酸素分圧依存性	田口 昂宏, 渡辺 智, 佐藤 一永, 橋田 俊之
39	平成 27 年 2 月 19 日	2015 ELyT lab Workshop	Comparison between effects of aerial oxidation and electrochemical oxidation of Ni for Ni-YSZ cermets	Michiyoshi Sato, Tadashi Sakamoto, Kazuhisa Sato, Toshiyuki Hashida
40	平成 27 年 2 月 21 日	2015 ELyT lab Workshop	Stress Variations of Solid Oxide Fuel Cells under Operating Conditions	Kazuhiisa Sato, Toshiyuki Hashida

41	平成 27 年 3 月 9 日	固体化学の新しい指針を探る研究会若手研究者による研究発表会	SOFC アノード複合体内部における残留応力に関する研究	赤座由樹, 井口史匡, 清水信, 湯上浩雄
42	平成 27 年 3 月 13 日	日本機械学会東北支部 第 50 期総会・講演会	固体酸化物燃料電池における酸素不定比性酸化物の高温・酸素分圧制御下における強度特性変化に関する研究	田口昂宏, 渡辺智, 佐藤一永, 橋田俊之
43	平成 27 年 3 月 15 日	電気化学会第 82 回大会	SOFC アノード内部の残留応力と微細構造の関係	周雲帆, 赤座由樹, 井口史匡, 清水信, 湯上浩雄
44	平成 27 年 3 月 16 日	安全・安心な社会を築く先進材料・非破壊計測技術シンポジウム	固体電池開発における高温その場観察と情報処理技術の必要性	佐藤一永, 橋田俊之, 水崎純一郎
45	平成 27 年 6 月	20th International Conference on Solid State Ionics	Effect of Chemomechanical Coupling on Defect Equilibrium and Transport in Solid State Ionic Devices	Tatsuya Kawada, Yuta Kimura, Yuki Gono, Keiji Yashiro, Shin-ichi Hashimoto and Koji Amezawa
46	平成 27 年 7 月 27 日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	Anormal Shrinkage upon Nickel Oxidation at Low Temperatures	K. Yashiro, T. Nakamura, K. Yamaji, S. Hashimoto, K. Amezawa, and T. Kawada
47	平成 27 年 7 月 30 日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	Direct Observation of the Current Distributions Across SOFC by Measuring the Lateral Voltage Differences	Abhilasha S. Devaraj, Keiji Yashiro, Shin-ichi Hashimoto, Tatsuya Kawada
48	平成 27 年 7 月 30 日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	Influence of Small Defects Produced in Electrolytes during Manufacturing Processes on Operated SOFCs	S. Onukia, F. Iguchia, M. Shimizua, T. Kawadab, and H. Yugamia
49	平成 27 年 7 月 30 日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	High Temperature Strength and Elastic Properties of Doped Ceria under Various Oxygen Partial Pressures	T. Taguchi, S. Watanabe, K. Sato, T. Hashida
50	平成 27 年 8 月 22 日	International Conference on Electrochemical Energy Science and Technology (EEST2015)	Chemical Stability of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ as SOFC Cathode	Xingwei Wang, Keiji Yashiro, Shin-ichi Hashimoto, Tatsuya Kawada
51	平成 27 年 8 月 30 日	第 11 回固体イオニクスセミナー	全固体電池開発における力学・電気・化学・熱的因子間の相互作用効果	佐藤一永, 橋田俊之
52	平成 27 年 9 月 12 日	2015 年電気化学秋季大会	The electrochemical reaction and the stability of the $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ electrodes	Xingwei Wang, Keiji Yashiro, Shin-ichi Hashimoto, Tatsuya Kawada
53	平成 27 年 9 月 14 日	Material science 2015	Strength, elastic and electrical properties of nonstoichiometric materials under various Oxygen partial pressures	Kazuhisa SATO, Toshiyuki HASHIDA
54	平成 27 年 11 月 25 日	The 41th Symposium on Solid State Ionics of Japan	Thermal properties of Perovskite-type $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_{0.3-x}\text{O}_{3-\delta}$ ($x=0-1.0$)	Yu Cheol Shin, Shin-ichi Hashimoto, Yashiro Keiji, Koji Amezawa, Tatsuya Kawada.
55	平成 27 年 12 月 4 日	第 28 回東北若手の会	Microstructural changes of nickel during the low-temperature oxidation	Fei. Zhao, Keiji. Yashiro, Shinichi. Hashimoto, Tatsuya. Kawada
56	平成 27 年 12 月 4 日	第 28 回東北若手の会	$\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ が示す強弾性挙動の特性評価	宍戸康平, 木村勇太, 八代圭司, 橋本真一, 川田達也
57	平成 27 年 12 月 17 日	第 24 回 SOFC 研究発表会	SOFC 構成材料の動作環境下における機械的耐久性評価	桑折智大, 木村勇太, 渡辺智, 八代圭司, 橋本真一, 川田達也
58	平成 28 年 1 月 28 日	The 40th International Conference and Exposition on Advanced Ceramics and Composites	Mechanical and Thermal Properties of Anode Materials for SOFCs under Redox Cycle Conditions (招待講演)	K. Sato
59	平成 28 年 10 月 2 日	Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-State Science (PRIME 2016)	The Origin of Instability of Lanthanum Strontium Cobalt Ferrite (La-Sr-Co-Fe-O ; LSCF) under Oxygen Potential Gradient	Xingwei Wang, Takamichi Miyazaki, Keiji Yashiro, Shin-ichi Hashimoto, Tatsuya Kawada
60	平成 28 年 10 月 2 日	Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-State Science (PRIME 2016)	Influence of a Ni Metal Phase and Geometrical Structures of YSZ in Ni-YSZ SOFC Anode to Its Mechanical Properties	F. Iguchi, H. Yugami, M. Shimizu, Y. Akaza, S. Akrasevee, and Y. Miyoshi
61	平成 28 年 10 月 2 日	Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-State Science (PRIME 2016)	Investigation of Cr-Poisoning in SOFC Cathode By Using the Patterned Thin Film Electrode	Y. Shindo, Y. Fujimaki, T. Nakamura, K. Yashiro, F. Iguchi, H. Yugami, T. Kawada and K. Amezawa

62	平成28年10月2日	Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-State Science (PRIME 2016)	Origin of Electrochemical Capacitance of Ni/YSZ Anode and Its Application to Evaluation of Active Reaction Site	Keiji Yashiro, Mirai Takeda, Shin-ichi Hashimoto, Tatsuya Kawada
63	平成28年12月15日	第25回SOFC研究発表会	SOFCの起動停止および運転動作におけるセル・スタック動的挙動の評価	川田達也, 渡邊智, 坂本正, 佐藤一永, 佐藤維美, 村松真由, 寺田賢二郎, 木村勇太, 八代圭司, 橋本真一, 橋田俊之, 井口史匡, 湯上浩雄, 中村崇司, 雨澤浩史, 尾澤伸樹
64	平成29年6月18-23日	21st International Conference on Solid State Ionics (SSI2017)	A Comparative Study of Polarization at Perovskite Type Oxide Cathodes for Solid Oxide Fuel Cells	T. Kawada
65	平成29年7月23-28日	15th international symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XV)	Materials Properties for the Simulation of Electro-Chemo-Mechanical Coupling Behavior of SOFC	K. Yashiro, T. Kawada, S. Watanabe, M. Muramatsu, T. Sakamoto, S. I. Hashimoto, K. Terada, M. Sato, T. Hashida, K. Sato, F. Iguchi, H. Yugami, K. Amezawa, T. Nakamura, Y. Kimura, and A. Umemoto
66	平成29年7月23-28日	15th international symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XV)	Mechanical strength evaluation of YSZ, GDC and LSCF under SOFC operating condition	S. Watanabe, K. Sato, F. Iguchi, K. Yashiro, T. Hashida, T. Kawada
67	平成29年9月4日	2017年度日本機械学会年次大会	酸化還元サイクル環境中における固体酸化物燃料電池の機械的劣化評価に関する研究	熊田圭悟, 佐藤一永, 橋田俊之
68	平成29年9月30日	日本機械学会 東北支部 第53期秋季講演会	レドックスサイクル環境下における固体酸化物燃料電池の劣化評価に関する研究	熊田圭悟, 佐藤一永, 橋田俊之
69	平成29年12月1日	応用物理学会フォトンクス分科会 第2回フォトンクス研究会	テラヘルツ分光と機械学習を併用した固体酸化物燃料電池の損傷可視化	藪田佳絵, 熊田圭悟, 碓智文, 福井健一, 沼尾正行, 佐藤一永, 橋田俊之
70	平成30年1月21-26日	42nd International Conference and Expo on Advanced Ceramics and Composites	Residual Stress Measurement of 8 mol% YSZ Coating for SOFC Application	Zaka Ruhma, Keiji Yashiro, Fumitada Iguchi, Kazuhisa Sato, Tatsuya Kawada
71	平成30年3月2日	日本機械学会 第48回学生員卒業研究発表講演会	テラヘルツ分光法に基づく固体酸化物燃料電池の機械学習による内部損傷の可視化	藪田佳絵, 熊田圭悟, 碓智文, 福井健一, 沼尾正行, 佐藤一永, 橋田俊之
72	平成30年3月9-11日	電気化学会第85回大会	希土類添加セリア複合体における残留ひずみとその電気的特性への影響	阿部知也, 八代圭司, 中村崇司, 井口史匡
73	平成30年3月14-16日	日本セラミックス協会2018年年会	希土類添加セリア複合体における残留ひずみと電気化学特性	阿部知也, 八代圭司, 中村崇司, 井口史匡
74	平成30年3月15日	日本機械学会 東北支部 第53期総会・講演会	固体酸化物燃料電池における電極/電解質界面破壊特性の評価手法開発に関する基礎的研究	朝生悠希, 熊田圭悟, 佐藤一永, 橋田俊之

—論文—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成25年10月6日	ECS Transactions, 57(1), 753-762 (2013)	Evaluation of Elastic and Strength Properties of Ni-YSZ cermets for Solid Oxide Fuel Cells under Redox Cycling	K. Sato, T. Miyasaka, S. Watanabe, T. Hashida
2	平成25年10月6日	ECS Transactions, 57(1), 1379-1386 (2013)	Identification of Ni-YSZ anode creep property using PSO for multiscale simulation.	S. Watanabe, F. Iguchi, K. Sato, K. Yamamoto, T. Hashida, K. Terada, and T. Kawada
3	平成25年10月6日	ECS Transactions, 57(1), 1125-1133 (2013)	Oxygen Nonstoichiometry of $Ce_{0.9}La_{0.1}O_{2-\delta}$	H. Sato, S. Hashimoto, T. Nakamura, K. Yashiro, K. Amezawa, T. Kawada
4	平成25年10月6日	ECS Transactions, 57(1), 951-957 (2013)	Evaluation of Stress Condition of Operated Anode Supported-Type SOFC under Operating Conditions Based on Raman Scattering Spectroscopy	S. Onuki, S. Onodera, F. Iguchi, M. Shimizu, T. Kawada, H. Yugami
5	平成25年10月6日	ECS Transactions, 57(1), 635-642 (2013)	The Effect of Ferroelasticity of $La_{1-x}Sr_xCo_{1-y}Fe_yO_{3-\delta}$ on the Mechanical Stability of Solid Oxide Fuel Cells	Yuta Kimura, Julian Tolchard, Mari-Ann Einarsrud, Tor Grande, Koji Amezawa, Shin-ichi Hashimoto, Tatsuya Kawada

6	平成25年	Solid State Ionics 241, 12-16 (2013).	Thermo-chemical lattice expansion in $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_{3-\delta}$	M. Kuhn, S. Hashimoto, K. Sato, K. Yashiro, J. Mizusaki
7	平成25年	J. Solid State Chem. 197, 38-45 (2013).	Oxygen nonstoichiometry and thermo-chemical stability of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{CoO}_{3-\delta}$	M. Kuhn, S. Hashimoto, K. Sato, K. Yashiro, J. Mizusaki
8	平成26年	Solid State Ionics 262, 337-339 (2014)	Anelastic properties of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_{3-\delta}$ at high temperatures	Y. Kimura, J. Tolchard, M. Einarsrud, T. Grande, K. Amezawa, M. Fukuhara, S. Hashimoto, T. Kawada
9	平成26年	Solid State Ionics 256, 83-88 (2014).	Crystal structure and thermal expansion behavior of oxygen stoichiometric lanthanum strontium manganite at high temperature	Y. Shirai, S. Hashimoto, K. Sato, K. Yashiro, K. Amezawa, J. Mizusaki, T. Kawada
10	平成26年	Solid State Ionics 262, 696-700 (2014).	Simulation of oxygen diffusion process on electrical conductivity relaxation	H. Kudo, K. Yashiro, S. Hashimoto, K. Amezawa, T. Kawada
11	平成26年	J. Electrochem. Soc., 161 (11), F3111-F3116 (2014)	Effect of Mechanical Stress on Oxygen Potential of Transition Metal Oxides	Y. Gono, Y. Kimura, K. Yashiro, S. Watanabe, S. Hashimoto, T. Kawada
12	平成26年	J. Electrochem. Soc., 161 (11), F3079-F3083 (2014)	Ferroelastic Domain Reorientations and Its Influence on Mechanical Properties of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$	Y. Kimura, K. Yashiro, S. Hashimoto, T. Kawada
13	平成27年7月26日	ECS Transactions, 68(1), 2075-2081 (2015)	Direct Observation of the Current Distributions Across SOFC by Measuring the Lateral Voltage Differences	Abhilasha S. Devaraj, Keiji Yashiro, Shin-ichi Hashimoto, Tatsuya Kawada
14	平成27年7月26日	ECS Transactions, 68(1), 2421-2428 (2015)	Influence of Small Defects Produced in Electrolytes during Manufacturing Processes on Operated SOFCs	S. Onuki, F. Iguchi, M. Shimizu, T. Kawada, and H. Yugami
15	平成29年1月20日	ECS Transactions, 75(28), 1-9 (2017)	The Origin of Instability of Lanthanum Strontium Cobalt Ferrite (La-Sr-Co-Fe-O; LSCF) under Oxygen Potential Gradient	Xingwei Wang, Takamichi Miyazaki, Keiji Yashiro, Shin-ichi Hashimoto, Tatsuya Kawada
16	平成29年	ECS Transactions, 78(1), 2355-2363, (2017)	Evaluation of Mechanical Damages in SOFCs during Start/Stop Operation by Using Acoustic Emission Technique	K. Kumada, K. Sato, and T. Hashida,
17	平成29年	Materials Transactions, 59, 27-32, (2018).	Influence of NiO Reduction on Residual Strain in NiO/Ni-YSZ	F. Iguchi, S. Akrasevee, and Y. Miyoshi
18	平成29年	Materials Transactions 59(1), 23-26, (2018)	Anisotropy of Fracture Toughness of Stabilized Zirconia Investigated by Nano-Indentation Method	Hideaki Ito, Kazuhisa Sato, Atsushi Uemoto, Shin-ichi Hashimoto, Koji Amezawa
19	平成29年	ECS Transactions, 78(1), 2309-2316 (2017)	Materials Properties for the Simulation of Electro-Chemo-Mechanical Coupling Behavior of SOFC	K. Yashiro, T. Kawada, S. Watanabe, M. Muramatsu, T. Sakamoto, S. I. Hashimoto, K. Terada, M. Sato, T. Hashida, K. Sato, F. Iguchi, H. Yugami, K. Amezawa, T. Nakamura, Y. Kimura, and A. Uemoto
20	平成29年	ECS Transactions, 78(1), 2181-2190 (2017)	Mechanical Strength Evaluation of YSZ, GDC and LSCF under SOFC Operating Conditions	S. Watanabe, K. Sato, F. Iguchi, K. Yashiro, T. Hashida, and T. Kawada

—受賞—

No.	年月	受賞者	受賞内容	表彰団体・賞名
1	平成25年11月1日	佐藤一永	固体型電池の信頼性向上のための情報処理技術の活用	日本機械学会動力エネルギーシステム部門優秀講演表彰

② 特許等

なし

5. 3 耐久性迅速評価方法の開発 (2013 年度～2017 年度)

(1) スタック性能劣化解析とその高度化

① 研究発表・講演、文献等、その他

—プレス発表など—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 29 年 1 月 25 日	電気新聞(2 面)	燃料電池評価技術性能分析 2 手法、確立図る	安本憲司, 吉川将洋
2	平成 29 年 12 月 1 日	電気評論	燃料電池の性能および寿命評価技術	麦倉良啓, 森田寛, 安本憲司, 吉川将洋

—研究発表・講演—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 25 年 5 月 28 日	第 20 回燃料電池シンポジウム	SOFC 性能評価技術の開発(6)	吉川将洋, 山本 融, 安本憲司, 麦倉良啓
2	平成 25 年 8 月 30 日	平成 24 年度 NEDO 新エネルギー成果報告会	耐久性評価手法の検討に係る技術開発	吉川将洋
3	平成 25 年 9 月 9 日	64th Annual Meeting of International Society of Electrochemistry	Performance evaluation technology for long term durability and reliability of SOFCs	麦倉良啓, 安本憲司, 森田 寛, 吉川将洋, 山本 融
4	平成 25 年 10 月 23 日	2013 Fuel Cell Seminar & Energy Exposition	Development of SOFC performance evaluation technology (5)	吉川将洋, 山本 融, 安本憲司, 麦倉良啓
5	平成 25 年 12 月 1 日	燃料電池開発情報センター年報 (2013 年度版)	電力中央研究所における固体酸化物形燃料電池の研究開発	安本憲司
6	平成 25 年 12 月 19 日	第 22 回 SOFC 研究発表会	電中研における SOFC 性能評価手法の開発	安本憲司, 吉川将洋, 山本 融, 麦倉良啓
7	平成 26 年 5 月 29 日	第 21 回燃料電池シンポジウム	SOFC スタック性能劣化解析(1)	吉川将洋, 山本 融, 浅野浩一, 安本憲司, 麦倉良啓
8	平成 26 年 9 月 3 日	65th Annual Meeting of International Society of Electrochemistry	Performance evaluation technology for long term durability and reliability of SOFCs	Y. Mugikura, K. Yasumoto, H. Morita, M. Yoshikawa, T. Yamamoto
9	平成 26 年 9 月 23 日	2014 Asian SOFC Symposium and Exhibition	Performance evaluation technology for long term durability and reliability of SOFCs	T. Yamamoto, K. Yasumoto, K. Asano, H. Morita, M. Yoshikawa, Y. Mugikura
10	平成 26 年 11 月 11 日	2014 Fuel Cell Seminar & Energy Exposition	Degradation analysis of SOFC performance (1)	M. Yoshikawa, T. Yamamoto, K. Asano, K. Yasumoto, Y. Mugikura
11	平成 26 年 12 月 16 日	第 23 回 SOFC 研究発表会	性能評価手法を用いた SOFC セルスタックの劣化解析	吉川将洋, 山本 融, 浅野浩一, 安本憲司, 麦倉良啓
12	平成 27 年 2 月 18 日	燃料電池・FCH 部会 第 228 回定例研究会	性能評価手法を用いた SOFC セルスタックの劣化解析	吉川将洋
13	平成 27 年 5 月 28 日	第 22 回 FCDIC 燃料電池シンポジウム	SOFC スタック性能劣化解析(2)-耐久試験と改良効果の検証-	吉川将洋, 山本融, 浅野浩一, 安本憲司, 麦倉良啓
14	平成 27 年 7 月 30 日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	Durability assessment of SOFC stacks with several types of structures for thermal cycles during their lifetimes on residential use	T. Hatae, K. Sato, T. Somekawa, Y. Matsuzaki, S. Amaha, M. Yoshikawa, Y. Mugikura, K. Miyara, T. Oshima, S. Taniguchi, K. Sasaki, M. Shimazu, Y. Takahashi, A. Kawakami, N. Mori, and H. Yokokawa
15	平成 27 年 7 月 30 日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	Performance Degradation Analysis of Different Type SOFCs	M. Yoshikawa, T. Yamamoto, K. Asano, K. Yasumoto, Y. Mugikura
16	平成 27 年 11 月 17 日	Fuel Cell Seminar & Energy Exposition	Degradation analysis of SOFC performance (2)	Y. Mugikura, T. Yamamoto, K. Asano, K. Yasumoto, H. Morita, M. Yoshikawa
17	平成 27 年 12 月 16 日	第 24 回 SOFC 研究発表会	電中研における SOFC スタック性能評価手法の開発	T. Yamamoto, M. Yoshikawa, H. Morita, K. Yasumoto, Y. Mugikura

18	平成 28 年 5 月 26 日	第 23 回 FODIC 燃料電池シンポジウム	SOFC スタック性能劣化要因解析 (3)-耐久性試験と改良効果の検証-	吉川将洋、山本融、安本憲司、麦倉良啓
19	平成 28 年 5 月 26 日	第 23 回 FODIC 燃料電池シンポジウム	家庭用 SOFC セル・スタックのサイクル耐久性評価	染川貴亮、佐藤光基、天羽伸二、松崎良雄、吉川将洋、麦倉良啓、宮良健吾、大嶋敏宏、谷口俊輔、佐々木一成、島津めぐみ、高橋悠也、川上晃、森直哉、横川晴美
20	平成 28 年 7 月 5 日	12th European SOFC & SOE Forum 2016	Degradation analysis of SOFC performance	T. Yamamoto, K. Yasumoto, H. Morita, M. Yoshikawa, Y. Mugikura
21	平成 28 年 7 月 7 日	12th European SOFC & SOE Forum 2016	Durability assessment of SOFC stacks with several types of structures for thermal cycles during their lifetimes on residential use	佐藤光基、染川貴亮、波多江徹、天羽伸二、松崎良雄、吉川将洋、麦倉良啓、墨泰志、大森誠、横川晴美
22	平成 28 年 8 月 24 日	67th Annual Meeting of International Society of Electrochemistry	Degradation analysis of SOFC performance (3)	Y. Mugikura, K. Yasumoto, H. Morita, T. Yamamoto, M. Yoshikawa
23	平成 28 年 9 月 5 日	2016 Asian SOFC Symposium	Performance evaluation technology for long term durability of SOFCs	Y. Mugikura, K. Yasumoto, H. Morita, T. Yamamoto, M. Yoshikawa
24	平成 28 年 10 月 5 日	Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-State Science (PRIME 2016)	Degradation Analysis of SOFC Stack Performance - Durability Test and Verification of Improved SOFCs	M. Yoshikawa, T. Yamamoto, K. Yasumoto, Y. Mugikura
25	平成 28 年 11 月 10 日	SOFC 研究会	国際学会参加報告「12th European SOFC & SOE Forum 2016」	山本融
26	平成 28 年 12 月 15 日	第 25 回 SOFC 研究発表会	電中研における SOFC の劣化解析	吉川将洋、山本融、安本憲司、麦倉良啓
27	平成 28 年 12 月 16 日	第 5 回 SPring-8 グリーンサステイナブルケミストリー研究会、第 7 回 SPring-8 先端利用技術ワークショップ	電力中央研究所における固体酸化物形燃料電池の研究開発固体酸化物形燃料電池の性能劣化分析について	山本融
28	平成 28 年 12 月 22 日	燃料電池開発情報センター年報 (2016 年度版)	電力中央研究所における固体酸化物形燃料電池の研究開発	安本憲司
29	平成 29 年 5 月 25 日	第 24 回燃料電池シンポジウム	SOFC スタック性能劣化解析 (4)-空気極の硫黄被毒と化学吸着フィルターの導入効果-	吉川将洋、山本融、安本憲司、麦倉良啓
30	平成 29 年 6 月 22 日	The 21st International Conference of Solid State Ionics (SSI-21)	Long-term Degradation Analysis of SOFC Performance	T. Yamamoto, K. Yasumoto, H. Morita, M. Yoshikawa, Y. Mugikura
31	平成 29 年 7 月 25 日	15th international symposium of Solid Oxide Fuel Cells (SOFC XV)	Degradation analysis of SOFC Stack performance: Investigation of cathode sulfur poisoning due to contamination in air	M. Yoshikawa, T. Yamamoto, K. Yasumoto, Y. Mugikura
32	平成 29 年 11 月 8 日	2017 Fuel Cell Seminar & Energy Exposition	Degradation analysis of SOFC performance (4)	Y. Mugikura, K. Yasumoto, H. Morita, T. Yamamoto, M. Yoshikawa

—論文—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 25 年 10 月 9 日	ECS Transactions, 57(1), 763-770 (2013)	Performance Evaluations for Long Term Durability and Reliability of Segment-in-series Tubular Type SOFCs	T. Yamamoto, K. Yasumoto, M. Yoshikawa, H. Morita, Y. Mugikura
2	平成 25 年 10 月 9 日	ECS Transactions, 57(1), 649-656 (2013)	Performance evaluation technology for long term durability and reliability of SOFCs	Y. Mugikura, K. Yasumoto, H. Morita, M. Yoshikawa, T. Yamamoto
3	平成 27 年 7 月 26 日	ECS Transactions, 68 (1) 2199-2208 (2015)	Performance Degradation Analysis of Different Type SOFCs	M. Yoshikawa, T. Yamamoto, K. Asano, K. Yasumoto, Y. Mugikura
4	平成 27 年 7 月 26 日	ECS Transactions, 68(1) 2209-2216 (2015)	Durability Assessment of SOFC Stacks with Several Types of Structures for Thermal Cycles During Their Lifetimes on Residential Use	T. Hatae, K. Sato, T. Somekawa, Y. Matsuzaki, S. Amaha, M. Yoshikawa, Y. Mugikura, K. Miyara, T. Oshima, S. Taniguchi, K. Sasaki, M. Shimazu, Y.

				Takahashi, A. Kawakami, N. Mori, and H. Yokokawa
5	平成 29 年 1 月	ECS Transactions, 75 (42), 23-31 (2017)	Degradation Analysis of SOFC Stack Performance – Durability Test and Verification of Improved SOFCs –	M. Yoshikawa, T. Yamamoto, K. Yasumoto, Y. Mugikura
6	平成 29 年 7 月	ECS Transactions, 78 (1) 2347-2354 (2017)	Degradation analysis of SOFC Stack performance: Investigation of cathode sulfur poisoning due to contamination in air	M. Yoshikawa, T. Yamamoto, K. Yasumoto, Y. Mugikura

—受賞—

No.	年月	受賞者	受賞内容	表彰団体・賞名
1	平成 25 年 10 月	吉川将洋	Development of SOFC performance evaluation technology (5)	Fuel Cell Seminar & Energy Exposition・Honorable Mention 2013 Poster Presentation

② 特許等

なし

(2) シミュレーション技術の開発

a. 京都大学

—研究発表・講演—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 25 年 5 月 29 日	第 50 回日本伝熱シンポジウム	平板型 SOFC における熱流動場の非一様性がセルの発電状態に与える影響	磯本哲志, 岩井裕, 齋藤元浩, 吉田英生
2	平成 25 年 6 月 20 日	8th World Conferences on Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics	Temperature Distribution Control by Tuning Composition Ratio of Ni-YSZ Anode in Direct Internal Reforming SOFC	Hiroshi Iwai, Yuuki Tanaka, Tadamasa Takahashi, Motohiro Saito, Hideo Yoshida
3	平成 25 年 9 月 3 日	13th UK Heat Transfer Conference	Towards the Microstructural Optimisation of Solid Oxide Fuel Cell Electrodes	Masashi Kishimoto, Hiroshi Iwai, Hideo Yoshida, Nigel P. Brandon
4	平成 25 年 9 月 3 日	13th UK Heat Transfer Conference	Steam Methane Reforming on SOFC Porous Anode Considering its Microstructure	Hiroshi Iwai, Tadamasa Takahashi, Motohiro Saito, Hideo Yoshida
5	平成 25 年 9 月 9 日	日本機械学会 2013 年度年次大会	多孔質微構造観察に基づく SOFC 燃料極におけるメタン水蒸気改質の研究	岩井裕, 高橋忠将, 齋藤元浩, 吉田英生
6	平成 25 年 10 月 2 日	Smart Energy Conversion & Storage	Tortuosity of an Anode-Supported Solid Oxide Fuel Cell Estimated from Saturation Currents and a Mass Transport Model in Comparison With a Real Micro-Structure	G. Brus, K. Miyawaki, H. Iwai, M. Saito and H. Yoshida
7	平成 25 年 10 月 11 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC XIII)	Characteristic Length of Oxide-ion Conduction for Prediction of Active Thickness in SOFC Anode	M. Kishimoto, H. Iwai, M. Saito, H. Yoshida
8	平成 25 年 10 月 19 日	日本機械学会 熱工学コンファレンス 2013	3D プリントによる SOFC 電極微構造の拡大再構築と拡散実験への適用可能性評価	岡峰龍之介, 高木聡, 岩井裕, 齋藤元浩, 吉田英生
9	平成 25 年 10 月 19 日	日本機械学会 熱工学コンファレンス 2013	壁面担持型触媒における内部拡散を考慮したメタン水蒸気改質の反応速度モデル	齋藤元浩, 小島淳一, 岩井裕, 吉田英生
10	平成 25 年 10 月 26 日	日本機械学会 関西支部 第 14 回秋季技術交流フォーラム	SOFC 燃料極におけるメタン水蒸気改質	岩井裕
11	平成 25 年 12 月 19 日	SOFC 研究会 第 22 回 SOFC 研究発表会	FIB-SEM 観察により取得したカソード微構造と電極性能の相関	三好航太, 松本航, 岩井裕, 齋藤元浩, 吉田英生
12	平成 25 年 12 月 19 日	SOFC 研究会 第 22 回 SOFC 研究発表会	電極微構造を考慮した直接内部改質型 SOFC の数値解析	白井竜弥, 岩井裕, 齋藤元浩, 吉田英生

13	平成 26 年 6 月 27 日	日本機械学会 第 19 回動力・エネルギー技術シンポジウム、講演論文集 pp. 293-294 (2014)	直接内部改質型 SOFC に与える Ni-YSZ 燃料極の組成比の影響	白井竜弥, 岩井裕, 齋藤元浩, 吉田英生
14	平成 26 年 7 月 2 日	11th European SOFC & SOE Forum 2014, Lucerne, A0912 (2014).	Operating characteristics of an anode-supported planar SOFC stack with post-operation three-dimensional reconstruction of the electrodes microstructure	Grzegorz Brus, Tetsushi Isomoto, Hiroshi Iwai, Motohiro Saito, Hideo Yoshida, Yosuke Komatsu, Remigiusz Nowak, Janusz S. Szymd
15	平成 26 年 8 月 14 日	15th International Heat Transfer Conference, Kyoto, IHTC15-9438 (2014)	Tortuosity in a Porous Anode Electrode of Solid Oxide Fuel Cells Estimated from Saturation Currents and a Mass Transport Model in Comparison with a Real Micro-Structure	Grzegorz Brus, Kosuke Miyawaki, Hiroshi Iwai, Motohiro Saito, Hideo Yoshida
16	平成 26 年 8 月 15 日	15th International Heat Transfer Conference, Kyoto, IHTC15-9617 (2014)	Influence of Porous Cathode Microstructure on Overpotential Characteristics of Solid Oxide Fuel Cells	Kota Miyoshi, Hiroshi Iwai, Masashi Kishimoto, Wataru Matsumoto, Motohiro Saito, Hideo Yoshida
17	平成 26 年 12 月 16 日	第 23 回 SOFC 研究発表会講演要旨集 pp. 178-181 (2014).	Local evolution of three-dimensional microstructure morphology of planar anode-supported SOFC	Grzegorz Brus, Hiroshi Iwai, Anna Sciazko, Motohiro Saito, Hideo Yoshida, Janusz S. Szymd
18	平成 26 年 12 月 17 日	第 23 回 SOFC 研究発表会講演要旨集 pp. 262-265 (2014).	電極 3 次元微構造に基づいた Ni-YSZ/YSZ/LSM 単セルの過電圧解析	田中裕規, 岩井裕, 齋藤元浩, 吉田英生
19	平成 27 年 6 月 5 日	第 52 回伝熱シンポジウム	SOFC 用 LSM 空気極の多孔質微構造にもとづく交換電流密度の定式化	三好航太, 宮前卓磨, 岩井裕, 齋藤元浩, 吉田英生
20	平成 27 年 10 月 25 日	日本機械学会熱工学コンファレンス 2015	2D Numerical Simulation of Anode Supported Planner SOFC Considering Microstructure of Electrodes	Nurul Zieyana, 岩井裕, Grzegorz Brus, 岸本将史, 齋藤元浩, 吉田英生
21	平成 27 年 12 月 17 日	第 24 回 SOFC 研究発表会講演要旨集, 24-210B (2015)	LSM 空気極へのクロム被毒を考慮した平板型セルの数値解析	山口裕司, 岩井裕, 岸本将史, 齋藤元浩, 吉田英生
22	平成 28 年 3 月 17 日	First Pacific Rim Thermal Engineering Conference, PRTEC, Hawaii's Big Island, USA, PRTEC-14619	Chromium Poisoning to LSM-YSZ Cathode: 3D Simulation of a Single Cell	K. Miyoshi, Y. Tanaka, H. Iwai, M. Kishimoto, M. Saito, H. Yoshida
23	平成 28 年 5 月 24 日	Energy Materials Nanotechnology Meeting on Fuel Cells, Jeju Island, Korea, 2016	Three-dimensional Numerical Simulation of a Solid Oxide Fuel Cell Based on Porous Microstructure of Electrodes Obtained by FIB-SEM	Hiroshi Iwai,
24	平成 28 年 6 月 14 日	World Hydrogen Energy Conference 2016, Zaragoza, Spain, 2016	Numerical study on current density distribution in a thin YSZ electrolyte of an SOFC	Hiroshi Iwai, Yuki Tanaka, Motohiro Saito, Masashi Kishimoto, Hideo Yoshida
25	平成 28 年 6 月 22 日	7th European Thermal-Sciences Conference, Krakow, Poland, 2016	Rate Equation of Steam Methane Reforming Reaction on Ni-YSZ Cermet Considering its Porous Microstructure	Shinichi Sugihara, Yusuke Kawamura, Hiroshi Iwai
26	平成 28 年 6 月 22 日	7th European Thermal-Sciences Conference, Krakow, Poland, 2016	Development of a Charge - transfer Distribution Model for Stack Simulation of Solid Oxide Fuel Cells	Hironori Onaka, Hiroshi Iwai, Masashi Kishimoto, Motohiro Saito, Hideo Yoshida, Grzegorz Brus, Janusz S. Szymd
27	平成 28 年 7 月 6, 7 日	12th European SOFC & SOE Forum Lucerne, Switzerland, 2016	3D Simulation of a Patterned LSM Cathode Considering Reaction on LSM/pore Double-Phase Boundary	Takuma Miyamae, Hiroshi Iwai, Motohiro Saito, Masashi Kishimoto, Hideo Yoshida
28	平成 28 年 11 月 2 日	4th International Forum on Heat Transfer, 1953, Sendai, 2016	2D Numerical Simulation of Anode Supported Planar SOFC Considering Microstructure of Electrodes	Nurul Zieyana, Hiroshi Iwai, Masashi Kishimoto, Grzegorz Brus, Janusz S. Szymd, Hideo Yoshida
29	平成 28 年 11 月 2 日	4th International Forum on Heat Transfer, 1952, Sendai, 2016	Numerical Analysis on the Effect of Geometry Aspect Ratio for Planar Intermediate Temperature Solid Oxide Fuel Cell	Wee Choon Tan, Hiroshi Iwai, Masashi Kishimoto, Grzegorz Brus, Janusz S. Szymd, Hideo Yoshida
30	平成 29 年 6 月 14 日	第 22 回動力・エネルギー技術シンポジウム, 豊橋	薄膜電解質を有する SOFC セルにおける電極間相互作用に関する数値解析	門宮龍馬, 岩井裕, 岸本将史, 齋藤元浩, 吉田英生
31	平成 29 年 10 月 29 日	The Ninth JSME-KSME Thermal and Fluids Engineering Conference, TFEC9-1209, Okinawa	In-situ temperature measurement of a planar solid oxide fuel cell accompanied with power generation	Shinichi Sugihara, Yusuke Kawamura, Hiroshi Iwai

			and steam-methane reforming reactions	
32	平成29年2月2日	The 11th Pacific Symposium on Flow Visualization and Image Processing, 106, Kumamoto	Current density distribution in thin electrolyte of SOFC	H. Iwai, Y. Tanaka, M. Saito, M. Kishimoto, H. Yoshida

—論文—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成25年2月1日	J. Power Sources, 233, 268-276, (2013).	Improvement of the Sub-grid-scale Model Designed for 3D Numerical Simulation of Solid Oxide Fuel Cell Electrodes Using an Adaptive Power Index	Masashi Kishimoto, Hiroshi Iwai, Kosuke Miyawaki, Motohiro Saito, Hideo Yoshida
2	平成25年6月27日	Fuel Cells, 13, 476-486, (2013).	Effect of Composition Ratio of Ni-YSZ Anode on Distribution of Effective Three-Phase Boundary and Power Generation Performance	M. Kishimoto, K. Miyawaki, H. Iwai, M. Saito, H. Yoshida
3	平成26年5月20日	J. Power Sources, 267, 503-514 (2014)	Comprehensive understanding of the active thickness in solid oxide fuel cell anodes using experimental, numerical and semi-analytical approach	Kosuke Miyawaki, Masashi Kishimoto, Hiroshi Iwai, Motohiro Saito, Hideo Yoshida
4	平成26年7月1日	Solid State Ionics, 265, 13-21 (2014)	Tortuosity of an SOFC anode estimated from saturation currents and a mass transport model in comparison with a real micro-structure	Grzegorz Brus, Kosuke Miyawaki, Hiroshi Iwai, Motohiro Saito, Hideo Yoshida
5	平成27年6月5日	Fuel Cells 15(3), 545-548 (2015)	Local Evolution of Triple Phase Boundary in Solid Oxide Fuel Cell Stack after Long-Term Operation	G. Brus, H. Iwai, Y. Otani, M. Saito, H. Yoshida, J.S. Szymd
6	平成27年6月8日	International Journal of Hydrogen Energy 40, 6927-6934 (2015)	Change of an anode's microstructure morphology during the fuel starvation of an anode-supported solid oxide fuel cell	G. Brus, K. Miyoshi, H. Iwai, M. Saito, H. Yoshida
7	平成27年7月27日	ECS Transactions, 68(1), 657-664 (2015)	Evaluation of Exchange Current Density for LSM Porous Cathode Based on Measurement of Three-Phase Boundary Length	K. Miyoshi, T. Miyamae, H. Iwai, M. Saito, M. Kishimoto, H. Yoshida
8	平成27年7月30日	ECS Transactions, 68(1), 1237-1244 (2015)	Local Evolution of Three-Dimensional Microstructure Morphology of Planar Anode-Supported SOFC	G. Brus, H. Iwai, Y. Otani, A. Sciazko, M. Saito, H. Yoshida and J. S. Szymd
9	平成27年8月15日	J. Power Sources 288, 199-205 (2015)	Local Evolution of Anode Microstructure Morphology in a Solid Oxide Fuel Cell after Long-Term Stack Operation	G. Brus, H. Iwai, A. Sciazko, M. Saito, H. Yoshida, J.S. Szymd
10	平成28年5月31日	J. Power Sources, 315, 63-69 (2016)	Exchange current model for $(La_{0.8}Sr_{0.2})_{0.95}MnO_3$ (LSM) porous cathode for solid oxide fuel cells	Kota Miyoshi, Takuma Miyamae, Hiroshi Iwai, Motohiro Saito, Masashi Kishimoto, Hideo Yoshida
11	平成28年9月15日	J. Power Sources, 326 331-340 (2016)	Chromium poisoning in LSM-YSZ cathode: 3D simulation of a single cell	Kota Miyoshi, Hiroshi Iwai, Masashi Kishimoto, Saito Motohiro, Hideo Yoshida
12	平成29年2月2日	International Journal of Hydrogen Energy 42, 3027-3035 (2017).	Description of reaction rate for steam methane reforming throughout a channel in combination with diffusion in a porous catalytic wall: Extension	Motohiro Saito, Syogo Sakurai, Hiroshi Iwai, Hideo Yoshida

			to concentration variation along flow direction	
13	平成29年7月12日	Heat and Mass Transfer, (2017), DOI: 10.1007/s00231-017-2095-3	Charge-transfer distribution model applicable to stack simulation of solid oxide fuel cells	Hironori Onaka, Hiroshi Iwai, Masashi Kishimoto, Motohiro Saito, Hideo Yoshida, Grzegorz Brus, Janusz S. Szymd
14	平成29年7月25日	ECS Transactions, 78 (1), 955-964, (2017).	Numerical Study on Progress of Cr Poisoning in LSM-YSZ Cathode of a Planar Solid Oxide Fuel Cell	Hiroshi Iwai, Yuji Yamaguchi, Masashi Kishimoto, Motohiro Saito, Hideo Yoshida
15	平成30年2月15日	Heat and Mass Transfer, 2018, DOI: 10.1007/s00231-018-2299-1	Formulation of steam-methane reforming rate in Ni-YSZ porous anode of solid oxide fuel cells	Shinichi Sugihara, Yusuke Kawamura, Hiroshi Iwai

b. 東京大学

—研究発表・講演—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成25年10月10日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII)	Quantitative Analysis of SOFC Anode Microstructure Change During Redox Cycles	T. Shimura, and N. Shikazono
2	平成25年10月10日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII)	Simulation of Solid Oxide Fuel Cell Anode Microstructure Evolution Using Phase Field Method	Z. Jiao, and N. Shikazono
3	平成25年12月19日	第22回SOFC研究発表会	Simulation of Solid Oxide Fuel Cell Anode Microstructure Evolution Using Phase Field Method	Z. Jiao, and N. Shikazono
4	平成26年7月2日	11th European SOFC & SOE Forum 2014, Lucerne, Switzerland, B1110 (2014)	Simulation of Solid Oxide Fuel Cell Anode Microstructure Evolution Using Phase Field Method	Z. Jiao, and N. Shikazono.
5	平成26年9月23日	2014 Asian SOFC Symposium and Exhibition, Busan, Korea, OR-045 (2014).	Numerical Simulation of Nickel Sintering in Solid Oxide Fuel Cell Anode	N. Shikazono, S. Hara, Z. Jiao, and A. Ohi
6	平成26年12月17日	第23回SOFC研究発表会講演要旨集, 2014年12月16-17日, 256-261 (2014).	Simulation of Solid Oxide Fuel Cell Anode Microstructure Evolution Using Phase Field Method	Z. Jiao, S. Hara, and N. Shikazono
7	平成27年12月1日	World Engineering Conference and Convention 2015, OS 2-4-4.	Numerical Simulation of Solid Oxide Fuel Cell Anodes,	N. Shikazono
8	平成27年12月17日	第24回SOFC研究発表会講演要旨集, 24-117B (2015)	Simulation of Solid Oxide Fuel Cell Composite Anode Reduction Process Based on Phase Field Method,	Z. Jiao, S. Hara, and N. Shikazono
9	平成28年3月17日	First Pacific Rim Thermal Engineering Conference, PRTEC, Hawaii's Big Island, USA PRTEC-PL7	Numerical Simulation of Solid Oxide Fuel Cell Electrodes	N. Shikazono, S. Hara, and Z. Jiao
10	平成28年3月30日	MRS Spring meeting, Phoenix, USA	Numerical Simulation of Temporal Change in SOFC Anode Microstructure	Ni. Shikazono, and Z. Jiao
11	平成28年6月1日	229th ECS Meeting, 1505, San Diego USA, May 29 - June 3 (2016).	Numerical Simulation of solid oxide fuel cell electrodes	N. Shikazono, S. Hara, Z. Jiao, Z. Yan, and Y. Kim
12	平成28年9月5日	2016 Asian SOFC Symposium, P-I-04, Tokyo, Japan, (2016)	Effect of powder morphology on the microstructural characteristics of LSCF cathode: A Kinetic Monte Carlo investigation	Z. Yan, S. Hara, Y. Kim, and N. Shikazono
13	平成28年9月6日	2016 Asian SOFC Symposium, O-II-10, Tokyo, Japan, (2016)	Simulations from Fabrication to Long-time Operation for Nickel-Yttria Stabilized Zirconia Composite Solid Fuel Cell Anode	Z. Jiao, and N. Shikazono
14	平成29年11月13日	International Conference on Sintering 2017, San Diego USA	Numerical simulations towards microstructural design of solid oxide fuel cell anodes	S. Hara, Z. Yan, Z. Jiao, and N. Shikazono

15	平成29年11月13日	International Conference on Sintering 2017, San Diego USA	Prediction of microstructure evolution of solid oxide fuel cell electrodes during sintering through Kinetic Monte Carlo (KMC) simulations	Z. Yan, S. Hara, Y. Kim, and N. Shikazono
----	-------------	---	---	---

—論文—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成26年3月4日	J. Electrochem. Soc. 161(5), F577-F582 (2014)	Simulation of Nickel Morphological and Crystal Structures Evolution in Solid Oxide Fuel Cell Anode Using Phase Field Method	Z. Jiao, and N. Shikazono
2	平成27年7月28日	ECS Transactions, 68(1) 1333-1343 (2015)	Evaluation of Ni-YSZ Anode Degradation during Redox Cycling	T. Shimura, Z. Jiao, S. Hara, and N. Shikazono
3	平成27年7月28日	ECS Transactions, 68(1) 1281-1289 (2015)	Numerical Assessment of SOFC Anode Polarization with Microstructure Evolution,	Z. Jiao, T. Shimura, and N. Shikazono
4	平成28年2月15日	J. Power Sources, 305, 10-16 (2016).	Simulation of the reduction process of solid oxide fuel cell composite anode based on phase field method	Z. Jiao, and N. Shikazono
5	平成29年4月1日	J. Power Sources, 346, 103-112 (2017).	Prediction of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ cathode microstructures during sintering: Kinetic Monte Carlo (KMC) simulations calibrated by artificial neural networks	Z. Yan, Y. Kim, S. Hara, and N. Shikazono
6	平成29年4月27日	International Journal of Hydrogen Energy, 42(17), 12601-12614 (2017)	Effect of powder morphology on the microstructural characteristics of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ cathode: A Kinetic Monte Carlo investigation	Z. Yan, S. Hara, and N. Shikazono
7	平成29年7月25日	ECS Transactions, 78(1), 717-728 (2017).	Microstructural Control of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ (LSGF) Cathode by Validated Kinetic Monte Carlo Simulations	Z. Yan, S. Hara, Y. Kim, and N. Shikazono
8	平成29年7月28日	ECS Transactions, 78(1), 2741-2749 (2017).	Investigation of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ Electrode Performance and Microstructural Evolutions Based on Three Dimensional Microstructure Reconstruction and Electrochemical Simulation	T. Shimura, A. He, Y. Kim, Z. Jiao, and N. Shikazono
9	平成29年12月21日	International Journal of Hydrogen Energy, 42(51), pp. 30166-30178 (2017)	Homogeneity and representativeness analyses of solid oxide fuel cell cathode microstructures	Z. Yan, S. Hara, Y. Kim, and N. Shikazono
10	平成30年1月12日	J. Electrochem., Soc., 165(2), F55-F63 (2018)	Prediction of Nickel Morphological Evolution in Composite Solid Oxide Fuel Cell Anode Using Modified Phase Field Model	Z. Jiao, and N. Shikazono
11	平成30年3月15日	Scripta Materialia, 146, pp. 31-35 (2018)	Towards a realistic prediction of sintering of solid oxide fuel cell electrodes: from tomography to discrete element and kinetic Monte Carlo simulations	Z. Yan, S. Hara, and N. Shikazono

c. 東北大学

—研究発表・講演—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 25 年 6 月 19 日-21 日	第 18 回計算工学講演会, 東京大学生産技術研究所, 東京	多孔質電極の焼結・電気化学・変形のマルチスケールシミュレーション	高橋 健, 高瀬真介, 寺田賢二郎, 加藤準治, 京谷孝史, 渡辺 智, 川田達也
2	平成 25 年 9 月 9 日	日本機械学会 2013 年度年次大会	計算科学シミュレーションによる Ni/YSZ 電極の劣化プロセスの解明	許競翔, 樋口祐次, 尾澤伸樹, 佐藤一永, 橋田俊之, 久保百司
3	平成 25 年 10 月 6-11 日	13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XIII)	Theoretical Study on the Effect of Three-Dimensional Porous Structure on the Sintering of Nickel Nanoparticles in the Ni/YSZ Anode	Jingxiang Xu, Yuji Higuchi, Nobuki Ozawa, Kazuhisa Sato, Toshiyuki Hashida, Momoji Kubo
4	平成 25 年 10 月 18 日	日本コンピュータ化学会 2013 秋季年会	分子動力学法を用いたシタリングを誘起する Ni/YSZ アノードの劣化解析	許 競翔, 樋口祐次, 尾澤伸樹, 久保百司
5	平成 25 年 12 月 8 日	International Symposium on Advanced Nanodevices and Nanotechnology 2013	Fracture Properties of Gadolinia Doped Ceria Electrolytes for Solid Oxide Fuel Cell	Shinichiro Saito, Ryota Sakanoi, Yuji Higuchi, Nobuki Ozawa, Kazuhisa Sato, Toshiyuki Hashida, and Momoji Kubo
6	平成 25 年 3 月 30 日	電気化学会第 81 回大会	固体酸化物形燃料電池のアノードにおけるシタリングのドーパント種依存性に関する理論研究	許競翔, 樋口祐次, 尾澤伸樹, 佐藤一永, 橋田俊之, 久保百司
7	平成 26 年 2 月 17 日	TMS 2014	Effect of the 3D Porous Structure on the Sintering of Ni Nanoparticles in the Ni/YSZ Anode: A Molecular Dynamics Simulation Study	Jingxiang Xu, Yuji Higuchi, Nobuki Ozawa, Momoji Kubo
8	平成 26 年 8 月 18 日	XXIII International Materials Research Congress 2014	Fracture Process on a Grain Boundary of Ceria with Water Molecules in Solid Oxide Fuel Cell by Molecular Dynamics Method	S. Saito, R. Sakanoi, Y. Higuchi, N. Ozawa, K. Sato, T. Hashida, M. Kubo
9	平成 27 年 4 月 30 日	2015 Symposium on Material Science and Energy Perspectives	Large-Scale Molecular Dynamics Simulations for the Design of Solid Oxide Fuel Cell	J. Xu, Y. Higuchi, N. Ozawa, M. Kubo
10	平成 27 年 5 月 12 日	ナノ学会第 13 回大会	大規模分子動力学シミュレーションによる固体酸化物形燃料電池の Ni/YSZ 電極における YSZ 粒子サイズがシタリングに及ぼす影響に関する研究	許競翔, 樋口祐次, 尾澤伸樹, 久保百司
11	平成 27 年 7 月 29 日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	Density Functional Theory Study of Dopant Effect on Sintering in the Anode of Solid Oxide Fuel Cell	J. Xu, Y. Higuchi, N. Ozawa, M. Kubo
12	平成 27 年 9 月 18 日	第 116 回触媒討論会	分子動力学法を用いた固体酸化物形燃料電池燃料層における化学反応が Ni 粒子のシタリングに与える影響の検討	許競翔, 樋口祐次, 尾澤伸樹, 久保百司
13	平成 27 年 9 月 26 日	The 5th Annual World Congress of Nano Science and Technology-2015	Theoretical Study of Ambient Atmosphere Effect on Nickel Sintering in Anode of Solid Oxide Fuel Cell	J. Xu, S. Bai, Y. Higuchi, N. Ozawa, M. Kubo
14	平成 28 年 3 月 29 日	電気化学会第 83 回大会	分子動力学法を用いた固体酸化物形燃料電池における水蒸気が Ni 粒子シタリングに及ぼす効果	許競翔, 樋口祐次, 尾澤伸樹, 久保百司
15	平成 29 年 5 月 20-21 日	第 20 回応用力学シンポジウム	板状デバイスの非線形マルチスケール解析を想定した数値平板試験	佐藤維美, 村松真由, 松原成志朗, 西紳之介, 寺田賢二郎, 川田達也
16	平成 29 年 5 月 31-6 月 2 日	第 22 回計算力学講演会	強弾性材料 LSCF の微視組織を考慮したマルチスケールシミュレーション	村松真由, 八代圭司, 川田達也, 寺田賢二郎
17	平成 29 年 5 月 31-6 月 2 日	第 22 回計算力学講演会	板状デバイスの非弾性マルチスケール解析のための数値平板試験	佐藤維美, 村松真由, 松原成志朗, 西紳之介, 寺田賢二郎, 川田達也
18	平成 29 年 6 月 13-16 日	5th International Conference on Material Modeling (ICMM5)	A Simulation of Ferroelastic Phase Formation in LSCF	M. Muramatsu, K. Yashiro, T. Kawada, and K. Terada

			Polycrystal Based on Phase-field Model	
19	平成 29 年 6 月 18-23 日	21st International Conference on Solid State Ionics (SSI2017)	A Large Scale Electro-chemo-mechanical Analysis of Solid Oxide Fuel Cell Considering Creep Deformation Under Operation	M. Muramatsu, M. Sato, M. Terada, K. Watanabe, S. Yashiro, K. Kawada, T. Iguchi, F. and Yokokawa, H.
20	平成 29 年 9 月 16-18 日	日本機械学会 第 30 回計算力学講演会	Phase-field 法を用いた固体酸化物燃料電池材料の相変態-変形連成シミュレーション	村松真由、八代圭司、川田達也、寺田賢二郎
21	平成 29 年 10 月 7-9 日	M&M2017 材料力学カンファレンス	数値平板試験による平板型固体酸化物燃料電池のマルチスケール解析	佐藤維美、村松真由、松原成志朗、西紳之介、寺田賢二郎、八代圭司、川田達也
22	平成 29 年 11 月 6 日-11 日	CMCS 2017	A Multi-Scale Simulation Of Ferroelastic Phase Formation In Lscf Polycrystal Based on Phase-Field Method	M. Muramatsu, T. Kawada, and K. Terada
23	平成 29 年 12 月 5-7 日	第 43 回固体イオニクス討論会	非定常ポテンシャル計算による電極電解質界面の交流応答のシミュレーション	渡部康太、佐藤維美、村松真由、八代圭司、川田達也

—論文—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 27 年 7 月 26 日	ECS Transactions, 68(1), 3187-3193 (2015)	Density Functional Theory Study of Dopant Effect on Sintering in the Anode of Solid Oxide Fuel Cell	Jingxiang Xu, Yuji Higuchi, Nobuki Ozawa, and Momoji Kubo
2	平成 27 年 9 月 28 日	J. Mater. Chem. A, 3, 21518-21527 (2015)	Multi-nanoparticle model simulations of the porosity effect on sintering processes in Ni/YSZ and Ni/ScSZ by the molecular dynamics method	Jingxiang Xu, Shandan Bai, Yuji Higuchi, Nobuki Ozawa, Kazuhisa Sato, Toshiyuki Hashida and Momoji Kubo
3	平成 29 年	土木学会 Vol. 73, No. 2 (応用力学論文集 Vol. 20), I_283-I_294, 2017	板状デバイスの非線形マルチスケール解析に対する数値平板試験	佐藤維美・村松真由・松原成志朗・西紳之介・寺田賢二郎・八代圭司・川田達也

d. 産業技術総合研究所

—研究発表・講演—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 26 年 9 月 10 日	公益社団法人日本セラミックス協会 第 27 回秋季シンポジウム	固体酸化物燃料電池における安定化ジルコニア電解質の相変態と電気伝導度	岸本 治夫、下之園太郎、バガリナオ カタリン、山地 克彦、堀田 照久、横川 晴美
2	平成 27 年 5 月 28 日	第 22 回燃料電池シンポジウム	SOFC 用 LSCF 空気極の耐久性に関する基礎研究	岸本 治夫、趙 度衡、呂 佩玲、デベロ ジェフリー、王 芳芳、バガリナオ カタリン、山地 克彦、堀田 照久、横川 晴美
3	平成 27 年 12 月 16 日	第 24 回 SOFC 研究発表会	産総研における SOFC 劣化寿命予測法の確立に向けた取り組み	岸本 治夫、趙 度衡、厳 康、デベロ ジェフリー、熊 岳平、石山 智大、バガリナオ カタリン、山地 克彦、堀田 照久、横川 晴美
4	平成 28 年 12 月 15 日	第 25 回 SOFC 研究発表会	Effect of Chromium poisoning on degradation rate of the surface oxygen exchange constant	R. A. Budiman, K. Develos-Bagarinao, T. Ishiyama, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
5	平成 29 年 3 月 25 日	電気化学会第 84 回大会	Evaluation of Surface Oxygen Exchange Coefficient of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ Porous Electrode during Sulfur Poisoning	Budiman Riyan, K. Develos-Bagarinao, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa
6	平成 29 年 3 月 26 日	電気化学会第 84 回大会	Ni 固溶ジルコニア電解質の相変態現象における温度因子	石山 智大、バガリナオ カタリン、岸本 治夫、山地 克彦、堀田 照久、横川 晴美
7	平成 29 年 6 月 20 日	21st International Conference on Solid State Ionics	Evaluation of Surface Composition and Surface Oxygen Exchange Coefficient of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ after Chromium Poisoning	R. A. Budiman, K. Develos-Bagarinao, L. ShuSheng, D.-H. Cho, J. C. De Vero, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita, H. Yokokawa

8	平成29年7月27日	15th international symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XV)	Gradual Conductivity Degradation of Nickel Doped Yttria Stabilized Zirconia By Phase Transformation at Operating Temperature	T. Ishiyama, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa
9	平成29年12月7日	第43回固体イオニクス討論会	Effect of Chromium Poisoning on Surface Oxygen Exchange Coefficient of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ Electrode	R. A. Budiman, K. Develos-Bagarinao, L. ShuSheng, D.-H. Cho, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa

—論文—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成29年7月	ECS Transactions, 78(1), 321-326(2017)	Gradual Conductivity Degradation of Nickel Doped Yttria Stabilized Zirconia By Phase Transformation at Operating Temperature	T. Ishiyama, K. Develos-Bagarinao, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Horita. H. Yokokawa

②特許等

なし

(3) 耐久性迅速評価技術の開発 (PL)

①研究発表・講演・文献等、その他

—研究発表・講演—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成25年10月5日	International Energy Agency (IEA) Annex 24 (Solid Oxide Fuel Cells), Naha, Okinawa, Japan	Japanese activities on degradation issues,	Harumi Yokokawa
2	平成25年12月6日	THERMEC 2013, Las Vegas	Durability of SOFC stacks and its relation to their fabrication procedures	Harumi Yokokawa
3	平成26年2月4日	ICH2P-2014, Fukuoka	Thermodynamics of SOFC and SOEC	Harumi Yokokawa
4	平成26年3月26日	Emerging technologies on distributed energy systems, Tokyo	Industrial Efforts in SOFC development and Cooperative Investigations on SOFC durability and reliability	Harumi Yokokawa
5	平成26年1月25日	法政大学マイクロ・ナノテクノロジー研究センター公開シンポジウム「グリーンテクノロジーを支える次世代エネルギー変換システム」	燃料電池の開発の現状と将来展望—固体酸化物形燃料電池を中心にして	横川晴美
6	平成26年1月28日	第93回SOFC研究会、東京	NEDO「耐久性迅速評価方法に関する基礎研究」とこれまでの経緯	横川晴美
7	平成26年4月25日	第18回CEEシンポジウム「固体酸化物形燃料電池の新たな展開」	基調報告 固体酸化物形燃料電池システム開発における日本と世界の潮流	横川晴美
8	平成26年5月29日	第21回燃料電池シンポジウム	SOFC 耐久性の迅速評価プロジェクトの概要	横川晴美
9	平成26年7月3日	11th European SOFC and SOE Forum	Towards Comprehensive Description of Stack Durability / Reliability Behavior	Harumi Yokokawa
10	平成26年7月3日	11th European SOFC and SOE Forum	Thermodynamics of LSM-YSZ Interfaces – A Revisit with Confirmed $\text{La}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ Thermodynamic Data	Harumi Yokokawa
11	平成26年9月21日	2014 Asian SOFC Symposium and Exposition	Current Status of NEDO SOFC Project on Rapid Evaluation Method for Durability	Harumi Yokokawa
12	平成26年10月29日	東北大学流体科学研究所-東京大学生産技術交流会	電気化学エネルギー変換装置としてのSOFCの劣化挙動とシミュレーション技術—NEDO 耐久性プロジェクトでの課題と成果—	横川晴美
13	平成26年10月31日	第1回SOFC研究会技術セミナー	SOFCの材料科学と劣化解析	横川晴美
14	平成26年12月16日	第23回SOFC研究発表会	耐久性迅速評価プロジェクトの現状	横川晴美
15	平成27年6月4日	OSTEC FCH 部会講演会	NEDO SOFC 耐久性プロジェクトの現状	横川晴美

16	平成 27 年 6 月 15 日	11th International Conference on Ceramic Materials and Components for Energy and Environmental Applications, Vancouver	10-Year Cooperative Investigations on Durability/Reliability of Stationary SOFCs Among Industries, Research Institutes and Universities within NEDO SOFC projects	Harumi Yokokawa
17	平成 27 年 7 月 27 日	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	Current Status of Rapid Evaluation of Durability of Six SOFC Stacks within NEDO Project	Harumi Yokokawa
18	平成 27 年 8 月 1 日	IEA ANNEX32 meeting	Current Status of NEDO SOFC project	Harumi Yokokawa
19	平成 27 年 10 月 22 日	長崎県第 19 回先端技術導入促進セミナー	燃料電池開発の現状と展望—固体酸化物形を中心に—	横川晴美
20	平成 27 年 10 月 26 日	第 100 回 SOFC 研究会	SOFC 技術開発の歴史	横川晴美
21	平成 27 年 11 月 17 日	ICAE2015	Ten Year Efforts in Cooperation on Durability/ Reliability of Solid Oxide Fuel Cells in Japan	Harumi Yokokawa
22	平成 27 年 12 月 9 日	第 3 回 SOFC 研究会技術セミナー	SOFC 電極材料の熱力学	横川晴美
23	平成 27 年 12 月 16 日	第 24 回 SOFC 研究発表会	耐久性迅速評価プロジェクトの現状	横川晴美
24	平成 28 年 3 月 22 日	13th MODVAL symposium	Simulation Technology on SOFC Durability with an Emphasis on Conductivity Degradation of ZrO ₂ -base Electrolyte	Harumi Yokokawa, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Mayu Muramatsu, Kenjiro Terada, Keiji Yashiro, Tatsuya Kawada
25	平成 28 年 5 月 26 日	第 23 回燃料電池シンポジウム	SOFC スタック耐久性迅速評価プロジェクトの現状	横川晴美
26	平成 28 年 7 月 4 日	IEA Annex 32 (SOFC) meeting	Current Status of SOFC Activities in Japan	Harumi Yokokawa
27	平成 28 年 7 月 6 日	12th European SOFC & SOE Forum	Current Status of NEDO Durability Project with an Emphasis on Correlation Between Cathode Overpotential and Ohmic Loss	Harumi Yokokawa
28	平成 28 年 8 月 23 日	6th International Congress on Ceramics	Strong Collaboration on SOFC Durability among SOFC Stack Developers, Research Institutes and Universities for Commercialization of SOFC Systems	Harumi Yokokawa
29	平成 28 年 9 月 5 日	2016 Asian SOFC Symposium	Recent Development in NEDO Project on Durability/ Reliability on SOFC stacks	Harumi Yokokawa
30	平成 28 年 10 月 12 日	第 3 回 SOFC 技術セミナー	SOFC 電極材料の熱力学	横川晴美
31	平成 28 年 12 月 15 日	第 25 回 SOFC 研究発表会	耐久性迅速評価プロジェクトの進捗状況	横川晴美
32	平成 29 年 1 月 23 日	41st International Conference & Exposition on Advanced Ceramics & Composites	Achievements of NEDO projects on SOFC durability cooperated among industrial stack developers, research institutes and universities in Japan	Harumi Yokokawa
33	平成 29 年 3 月 2 日	第 13 回「国際」水素・燃料電池展	NEDO projects on SOFC durability: Stack degradation behaviors, mechanisms, rapid evaluation for long-term stability	横川晴美
34	平成 29 年 5 月 25 日	第 24 回燃料電池シンポジウム、船堀	SOFC スタック耐久性迅速評価プロジェクトの成果	横川晴美
35	平成 29 年 7 月 23 日	IEA Annex 32 annual meeting, Hollywood, Florida	Recent activities on SOFC in Japan	Harumi Yokokawa
36	平成 29 年 7 月 28 日	15th International symposium of Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XV)	Achievements of NEDO Projects on SOFC Durability	Harumi Yokokawa
37	平成 29 年 9 月 8 日	東京大学レアアース泥開発促進コンソーシアム、東京	レアアース、Sc 等を用いた SOFC 技術について	横川晴美
38	平成 29 年 9 月 21 日	日本セラミックス境界第 30 回秋季シンポジウム	SOFC スタック開発の経緯と今後の課題	横川晴美
39	平成 29 年 11 月 8 日	Fuel Cell Seminar and Exposition 2017, Long beach	Achievements of NEDO SOFC Durability Projects Since 2005	Harumi Yokokawa
40	平成 29 年 12 月 6 日	第 43 回固体イオニクス討論会、天童	Considerations on Plausible Effects of Protons in Degradations of LSCF/GDC Oxygen Electrodes in O ²⁻ Ion Conductive Cells	横川晴美

41	平成29年11月21日	The 4th International Conference on Advanced Electro-materials, Jeju	Durability of Low-Cost and High-Performance SOFCs – Recent Achievement of NEDO Projects in Cooperation among Industries, Research Institutes and Universities –	H. Yokokawa
42	平成29年12月14日	第26回SOFC研究発表会	耐久性迅速評価プロジェクトの成果	横川晴美
43	平成30年5月18日	第25回燃料電池シンポジウム	固体酸化物形燃料電池の耐久性に関する基盤技術の確立と実用化促進に対する貢献	横川晴美
44	平成30年7月4日	The 13 th European SOFC&EC Forum 2018	Achievements of NEDO durability projects on SOFC stacks in the light of physicochemical properties (diffusion and chemical reactions)	Harumi Yokokawa
45	平成30年12月13日	第27回SOFC研究発表会	スタック長期耐久性の物理化学的理解の到達点と課題	横川晴美

—論文—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成25年6月1日	Fuel Cells, 13(4), 526-535 (2013).	Chromium Poisoning of LaMnO ₃ -Based Cathode within Generalized Approach	H. Yokokawa, T. Horita, K. Yamaji, H. Kishimoto, T. Yamamoto, M. Yoshikawa, Y. Mugikura, K. Tomida,
2	平成25年10月5日	ECS Transactions 57(1), 299-308 (2013).	Report of Five-year NEDO Project on Durability/ Reliability of SOFC Stacks	Harumi Yokokawa
3	平成26年2月26日	State-of-the-art Fuel Cells and Hydrogen Technology in Japan - Collected from the 20th FCDIC Fuel Cell Symposium and the 1st FCV Forum, Fuel Cell Development Information Center, Tokyo, pp31-37	NEDO Projects on Fundamental Investigation on Durability / Reliability of SOFC Stacks	Harumi Yokokawa
4	平成26年9月25日	Encyclopedia of Applied Electrochemistry, ed. R. F. Savinell, K. Ota, G. Kreysa, Springer Verlag, pp2023-2029	Solid Oxide Fuel Cells: Thermodynamics	H. Yokokawa,
5	平成27年10月	Fuel Cells 15(4), 652-668 (2015)	Towards Comprehensive Description of Stack Durability / Reliability Behavior	Harumi Yokokawa
6	平成27年7月27日	ECS Transactions 68(1), 1827-1836 (2015)	Current Status of Rapid Evaluation of Durability of Six SOFC Stacks within NEDO Project	Harumi Yokokawa
7	平成27年9月5日	電気化学および工業物理化学 89(3), 734-738 (2015)	SOFC電極劣化機構の解明と今後の展望	横川晴美
8	平成29年3月	J. Electrochem. En. Conv. Stor. 2017; 14(1):011004-01 011004-09	Simulation Technology on SOFC Durability With an Emphasis on Conductivity Degradation of ZrO ₂ -Base Electrolyte	H. Yokokawa, H. Kishimoto, T. Shimonosono, K. Yamaji, M. Muramatsu, K. Terada, K. Yashiro, T. Kawada
9	平成29年4月	Fuel Cells 17(4), 473-497 (2017)	Recent Achievements of NEDO Durability Project with an Emphasis on Correlation Between Cathode Overpotential and Ohmic Loss	H. Yokokawa, Y. Hori, T. Shigehisa, M. Suzuki, S. Inoue, T. Suto, K. Tomida, M. Shimazu, A. Kawakami, H. Sumi, M. Ohmori, N. Mori, T. Iha, K. Yamaji, H. Kishimoto, K. Develos-Bagarinao, K. Sasaki, S. Taniguchi, T. Kawada, M. Muramatsu, K. Terada, K. Eguchi, T. Matsui, H. Iwai, M. Kishimoto, N. Shikazono, Y. Mugikura, T. Yamamoto, M. Yoshikawa, K. Yasumoto, K. Asano, Y. Matsuzaki, S. Amaha, T. Somekawa
10	平成29年5月	「日本の燃料電池開発の歴史 燃料電池開発情報センター創立30周年記念」pp.34-67、燃料電池開発情報センター、東京	第4章 固体酸化物形燃料電池技術開発の歴史	横川晴美
11	平成29年7月	ECS Trans 78(1), 2211-2222 (2017)	Achievements of NEDO Projects on SOFC Durability	H. Yokokawa

12	平成 30 年 5 月 18 日	燃料電池 18(2), 47-58, (2018)	固体酸化物形燃料電池の耐久性に関する基盤技術の確立と実用化促進に対する貢献	横川晴美
13	令和元年6月	Fuel Cells (2019)	Achievements of NEDO Durability Projects on SOFC Stacks in the Light of Physicochemical Mechanisms,	H. Yokokawa, M. Suzuki, M. Yoda, T. Suto, K. Tomida, K. Hiwatashi, M. Shimazu, A. Kawakami, H. Sumi, M. Ohmori, T. Ryu, N. Mori, M. Iha, S. Yatsuzuka, K. Yamaji, H. Kishimoto, K. Develos-Bagarinao, T. Shimonosono, K. Sasaki, S. Taniguchi, T. Kawada, M. Muramatsu, K. Terada, K. Eguchi, T. Matsui, H. Iwai, M. Kishimoto, N. Shikazono, Y. Mugikura, T. Yamamoto, M. Yoshikawa, K. Yasumoto, K. Asano, Y. Matsuzaki, K. Sato, T. Somekawa

—受賞—

No.	年月	受賞者	受賞内容	表彰団体・賞名
1	平成 30 年 5 月 18 日	横川晴美	固体酸化物形燃料電池の耐久性に関する基盤技術の確立と実用化促進に対する貢献	燃料電池開発情報センター学術賞
2	平成 30 年 7 月 4 日	Harumi Yokokawa	In recognition of their distinguished contribution to the scientific and technological advancement of fuel cells	Christian Friedrich Schoenbein Medal of Honour, 13 th European SOFC & SOE Forum 2018.

5. 4 総括とまとめ

なし

5. 5 スタック耐久性評価 (2018年度~2019年度)

(1) スタック過酷試験 (電力中央研究所 (東京ガス株式会社との共同実施)、産業技術総合研究所 (京セラ株式会社、日本特殊陶業株式会社、日本ガイシ株式会社、株式会社デンソー、東邦ガス株式会社との共同実施))

① 研究発表・講演、文献等、その他

—口頭発表—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成30年5月	第25回 FCDIC 燃料電池シンポジウム	SOFC スタック性能劣化解析(5)-各社 SOFC の9万時間耐久への到達度-	山本 融、吉川将洋、安本憲司、麦倉良啓
2	平成30年7月	13th European SOFC & SOE Forum 2018	Long-term Degradation Analysis of SOFC Performance	T. Yamamoto, H. Morita, and Y. Mugikura
3	平成30年9月	69th Annual Meeting of the International Society of Electrochemistry	Degradation analysis of SOFC performance (5)	Y. Mugikura, K. Yasumoto, H. Morita, and T. Yamamoto
4	令和元年5月	第26回 FCDIC 燃料電池シンポジウム	過酷運転条件下における SOFC スタックの性能評価	浅野浩一、井戸彬文、森田寛、山本融、麦倉良啓

(2) 高効率発電システム用スタック過酷試験 (産業技術総合研究所 (大阪ガスとの共同実施))

なし

(3) 強靱性セルの試作と可能性検討 (京都大学、東北大学、九州大学、産業技術総合研究所)

(産業技術総合研究所)

① 研究発表・講演、文献等、その他

—口頭発表—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成30年11月	第38回エレクトロセラミックス研究討論会	反応焼結法を用いた(Ba, Sr)(Co, Fe)O ₃ 空極材料の低温作製	山口 祐貴、鷺見 裕史、島田 寛之、藤代 芳伸

(九州大学)

① 研究発表・講演、文献等、その他

—論文発表—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2018年9月	Solid State Ionics, 327, 59-63,	Pr ₂ Ni _{0.7} Cu _{0.2} Ga _{0.05} O ₇ -Sm _{0.2} Ce _{0.8} O _{1.9} composite film as active cathodic layer for intermediate temperature solid oxide fuel cells,	ByeongSu Kang, Atsushi Inoishi, Atsushi Takagaki, Tatsumi Ishihara,
2	2018年11月	Nano Energy 56, 382-390, 2019	Nano strain induced double columnar oxide as highly active oxygen dissociation electrode for Ni-Fe metal supported solid oxide fuel cells	ByeongSu Kang, Junko Matsuda, YoungWan Ju, HackHo Kim, Tatsumi Ishihara

—口頭発表—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2018年 8月20日	IUMRS-ICEM2018	Double Columnar Dense Cathode for Intermediate Temperature Solid Oxide Fuel Cells	ByeongSu Kang, Tasumi Ishihara
2	2018年 12月5日	固体イオニクス討論会	Effect of Double Columnar Interlayer on Sm(Sr)CoO ₃ Cathode for LT-SOFC	ByeongSu Kang, Atsushi Takagaki, Tatsumi Ishihara

(4) プロトン導電デバイスの検討 (産業技術総合研究所、東北大学、パナソニック株式会社(共同実施)、宮崎大学(再委託)、横浜国立大学(再委託))

①研究発表・講演、文献等、その他

—口頭発表—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	令和元年5月30日	第56回日本伝熱シンポジウム	プロトン伝導型SOFCにおける電流効率のガス濃度分布依存性に関する数値解析	李 坤朋, 荒木 拓人, 河村 駿希, 奥山 勇治
2	令和元年6月6日	World Hydrogen Technologies Convention 2019 (Invited)	Mechanism of Cathodic Reaction in SOFC and PCFC Investigated by Using Operando X-Ray Absorption Measurements	K. Amezawa, K. Mizuno, Y. Fujimaki, K. Nishidate, T. Nakamura, Y. Kimura, O. Sekizawa, K. Nitta, K. Yashiro, T. Kawada
3	令和元年6月17日	22nd International Conference on Solid State Ionics (Poster)	Evaluation of the electrode reaction mechanism in an La _{0.6} Sr _{0.4} CoO _{3-δ} PCFC cathode	K. Nishidate, Y. Shinomiya, K. Mizuno, Y. Kimura, T. Nakamura, K. Yashiro, T. Kawada, Y. Mikami, S. Onuma, T. Kuroha, N. Taniguchi, Y. Tsuji, K. Amezawa
4	令和元年6月18日	22nd International Conference on Solid State Ionics (Invited)	Cathodic Reaction in Intermediate Temperature Fuel Cells Investigated by Using Patterned Thin Film Model Electrodes	Koji Amezawa

(5) ポスト解体分析 (産業技術総合研究所、東北大学)

なし

5. 6 劣化機構の解明 (産業技術総合研究所、九州大学、京都大学、東京大学、東北大学)

(2018年度~2019年度)

(1) セル内不均一性に関する物理化学的解析 (産業技術総合研究所)

①研究発表・講演、文献等、その他

—論文発表—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成30年6月	JOURNAL OF ALLOYS AND COMPOUNDS, 748, 608-619, 2018	Sulfur poisoning behavior of La _{1-x} Sr _x Co _{1-y} FeyO _{3-δ} thin films with different compositions	De Vero Jeffrey, Bagarinao Develos Katherine, Liu ShuSheng, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yanaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa

2	平成30年 7月	Proceedings of the 13th European SOFC & SOEC Forum, 8. B14-B15, 59-97, 2018	Sulfur poisoning behavior of La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.803-δ} thin film cathodes at low sulfur concentration	De Vero Jeffrey, Bagarinao Develos Katherine, Liu ShuSheng, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa
3	平成30年 10月	JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, 165. 14, F1206-F1216, 2018	Time-Dependence of Surface Composition, Transport Properties Degradation, and Thermodynamic Consideration of La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.803-δ} under Chromium Poisoning	Budiman Riyan, Bagarinao Develos Katherine, Liu ShuSheng, Do-Hyung Cho, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa
4	平成30年 12月	JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, 165. 16, F1340-F1348, 2018	Elucidating the degradation mechanism at the cathode-interlayer interfaces of solid oxide fuel cells	De Vero Jeffrey, Bagarinao Develos Katherine, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa
5	平成31年 3月	MRS Communications	Influence of electrolyte substrates on the Sr-segregation and SrSO ₄ formation in LSCF thin films	De Vero Jeffrey, Liu ShuSheng, Bagarinao Develos Katherine, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa
6	平成31年 4月	JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY	Determination of Factors Governing Surface Composition and Degradation of La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.803-δ} Electrode under Sulfur-Contained Air	Budiman Riyan, Bagarinao Develos Katherine, Liu ShuSheng, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa

—口頭発表—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成30年 6月7日	36th Physics Society of the Philippines Conference	Long-term stability of perovskite cathodes in solid oxide fuel cells	De Vero Jeffrey, Bagarinao Develos Katherine, Liu ShuSheng, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa
2	平成30年 7月3日	IEA Workshop (Annex 32)	Research and Development on Solid Oxide Fuel Cells and Solid Oxide Electrolysis in Japan	Teruhisa Horita
3	平成30年 7月6日	13th European SOFC & SOEC Forum 2018	Sulfur poisoning behavior of La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.803-δ} thin film cathodes at low sulfur concentration	De Vero Jeffrey, Bagarinao Develos Katherine, Liu ShuSheng, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa
4	平成30年 8月6日	5th Asian SOFC Symposium	New National SOFC Project in Japan on High Efficiency and Toughening	Teruhisa Horita
5	平成30年 8月8日	5th Asian SOFC Symposium	Investigation of Cr Poisoning on LSCF at Nano- and Atomic Scales	Liu ShuSheng, Budiman Achmad Riyan, Bagarinao Develos Katherine, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa
6	平成30年 8月8日	5th Asian SOFC Symposium	Water Vapor Effect on Surface Composition and Degradation of La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.803-δ} Electrode under Sulfur-Contained Air	Budiman Riyan, Bagarinao Develos Katherine, Liu ShuSheng, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa

7	平成30年 8月8日	5th Asian SOFC Symposium	Influence of annealing temperature on the SrSO ₄ formation in LSCF thin films	De Vero Jeffrey, Bagarinao Develos Katherine, Liu ShuSheng, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa
8	平成30年 9月13日	19th International Microscopy Congress (IMC19)	Multi-scale studies on the poisoning mechanism of lanthanum strontium cobalt ferrite in solid oxide fuel cell	Liu ShuSheng, Budiman Achmad Riyan, Bagarinao Develos Katherine, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa
9	平成30年 11月9日	Hydrogen and Fuel Cell Technology development Forum	Current Status of Hydrogen and Fuel Cells projects in Japan	Teruhisa Horita
10	平成30年 12月13日	第27回 SOFC 研究発表会	Influence of humidity and YSZ substrate orientation on the coarsening behavior of nickel	Liu ShuSheng, Bagarinao Develos Katherine, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita
11	平成30年 12月13日	第27回 SOFC 研究発表会	Influence of Sr and Co Deficiency on the Transport Properties of La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O _{3-δ}	Budiman Riyan, Bagarinao Develos Katherine, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa
12	平成30年 12月13日	第27回 SOFC 研究発表会	蛍石型酸化物イオン伝導性電解質材料への水素溶解	山口 拓哉, 石山 智大, 岸本 治夫, バガリナオ カテリン, 山地 克彦
13	平成30年 12月13日	第27回 SOFC 研究発表会	固体酸化物形燃料電池の高効率・強耐久性に向けた開発	堀田 照久
14	平成30年 12月14日	第27回 SOFC 研究発表会	Role of cathode composition and operating temperature on sulfur poisoning of LSCF thin film	De Vero Jeffrey, Bagarinao Develos Katherine, Liu ShuSheng, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa
15	平成30年 12月13日	2018 Filipino Scholars Symposium	Sulfur poisoning of LSCF thin films grown by pulsed laser Deposition	De Vero Jeffrey, Bagarinao Develos Katherine, Liu ShuSheng, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa
16	平成31年 1月24日	2019 Annual Meeting of the Physical Society of Taiwan	Influence of high current density on the cathode-electrolyte interfaces of solid oxide fuel cells	De Vero Jeffrey, Bagarinao Develos Katherine, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa
17	平成31年 3月14日	TMS2019 Annual Meeting	Poisoning and Recovery Mechanism of SOFC Cathode	Teruhisa Horita
18	平成31年 3月27日	電気化学会第86回大会	Understanding of the Degradation Mode in Anode-supported Cell by Electrochemical Impedance Analysis	Budiman Riyan, Bagarinao Develos Katherine, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita
19	平成31年 3月27日	電気化学会第86回大会	Evolution of cathode-electrolyte interfaces under high cathodic polarization	De Vero Jeffrey, Bagarinao Develos Katherine, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa

20	平成31年 3月29日	電気化学会第86回大会	蛍石型酸化物イオン伝導体への水素溶解	山口 拓哉, 石山 智大, 岸本治夫, バガリナオ カタリン, 山地 克彦
21	令和元年5 月24日	第26回燃料電池シンポジウム	固体酸化物形燃料電池の高効率・強靱化に向けた産学官連携での取り組み	堀田 照久
22	令和元年6 月17日	22nd International Conference on Solid State Ionics (SSI-22)	Influence of Humidity and YSZ Orientation on Ni Coarsening	Liu ShuSheng, Bagarinao Develos Katherine, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita
23	令和元年6 月18日	22nd International Conference on Solid State Ionics (SSI-22)	Evolution of La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O _{3-δ} cathode/Gd-doped ceria electrolyte interfaces under high cathodic polarization at intermediate operating temperatures	De Vero Jeffrey, Bagarinao Develos Katherine, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa
24	令和元年6 月18日	22nd International Conference on Solid State Ionics (SSI-22)	Hydrogen Dissolution into Fluorite-Type Oxide Ion Conductors	Takuya Yamaguchi, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Bagarinao Develos Katherine, Katsuhiko Yamaji
25	令和元年6 月18日	22nd International Conference on Solid State Ionics (SSI-22)	Factors Governing Transport Properties and Oxygen Reduction Reaction Process of Sr and Co-Deficient La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O _{3-δ}	Budiman Riyan, Bagarinao Develos Katherine, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji, Teruhisa Horita, Harumi Yokokawa
26	令和元年6 月21日	22nd International Conference on Solid State Ionics (SSI-22)	Role of interfaces in long-term durability of nanostructured La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} O _{3-δ} thin-film cathodes	Bagarinao Develos Katherine, Budiman Riyan, Kozue Ogasawara, Liu ShuSheng, Tomohiro Ishiyama, Haruo Kishimoto, Katsuhiko Yamaji

② 特許等

なし

③ 受賞

なし

(2) セル内不均一性に関する機械的解析 (東北大学)

① 研究発表・講演、文献等、その他

—研究発表—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成30年 5月14日	233rd ECS Meeting (米国電気化学会第233回大会)	Chemo-Mechanical Coupling Phenomena in Solid Oxide Fuel Cells	Tatsuya Kawada
2	平成30年 5月25日	平成30年度資源・素材学会東北支部春季大会	テラヘルツ分光と機械学習を併用した固体酸化物燃料電池の損傷可視化	藪田佳絵, 熊田圭悟, 福井健一, 沼尾正行, 佐藤一永, 橋田俊之
3	平成30年 7月3-6日	13th European SOFC & COE Forum	Material-, cell evaluation and simulation to improve mechanical reliability of SOFCs	Keiji Yashiro, Mayu Muramatsu, Satoshi Watanabe, Tadashi Sakamoto, Kenjiro Terada, Masami Sato, Toshiyuki Hashida, Kazuhisa Sato, Fumitada Iguchi, Hiroo Yugami, Koji Amezawa, Takashi Nakamura, Yuta Kimura and Tatsuya Kawada
4	平成30年 7月3-6日	13th European SOFC & COE Forum	Degradation Study of Tape Casted Metal Supported Solid Oxide Fuel Cell	Zaka Ruhma, Keiji Yashiro, Fumitada Iguchi, Itaru Oikawa, Yoshiaki Hayamizu, Hitoshi Takamura, Tatsuya Kawada

5	平成30年 7月22-27 日	12th International Conference on Ceramics Materials for Energy and Environmental Applications (CMCEE2018)	Chemo-mechanical Properties of SOFC Materials and their Impact on Reliability	Tatsuya Kawada
6	平成30年 8月5-9日	5th Asian SOFC Symposium	Mechanical Properties of Electrolyte Materials at Elevated Temperatures	Satoshi Watanabe, Tomohiro Kori, Kazuhisa Sato, Keiji Yashiro, Toshiyuki Hashida and Tatsuya Kawada
7	平成30年 8月28日	First International Conference on 4D Materials	Investigation of mechanical damage of SOFC caused by electrochemical oxidation using in-situ acoustic emission and electrochemical technique	K. Kumada, K. Sato, T. hashida
8	平成30年 9月11日	日本機械学会 2018 年度年次大会	テラヘルツ分光法に基づく全固体電池の機械学習による内部損傷の可視化	藪田 佳絵, 熊田 圭悟, 福井 健一, 沼尾 正行, 佐藤 一永, 橋田 俊之
9	平成30年 9月11日	日本機械学会 2018 年度年次大会	酸化還元サイクル環境中における個体酸化物燃料電池の機械的劣化評価に関する研究	熊田圭悟、佐藤一永、橋田俊之
10	平成30年 12月14日	第27回SOFC研究発表会	非定常ポテンシャル計算を用いたNi-YSZモデル電極の電極電解質界面における交流応答のシミュレーション	渡部康太、佐藤雅維美、村松真由、八代圭司、川田達也
11	平成31年 3月19日	1st CUHK-TU Joint Workshop on Advanced Materials and Manufacture	Machine Learning-Supported Visualization of Internal Damage in Solid Oxide Fuel Cells Based on Terahertz Spectroscopy	Yoshie Yabuta, Keigo Kumada, Ken-ichi Fukui, Masayuki Numao, Kazuhisa Sato, Toshiyuki Hashida

② 特許等

なし

③ 受賞

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成30年5月25日	資源素材学会東北支部春季大会 ポスター賞・銅賞	テラヘルツ分光と機械学習を併用した固体酸化物燃料電池の損傷可視化	藪田佳絵, 熊田圭悟, 福井健一, 沼尾正行, 佐藤一永, 橋田俊之

(3) 電極のマクロ・マイクロ構造に関する解析 (京都大学・東京大学)

① 研究発表・講演、文献等、その他

—論文発表 (京都大学)—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成30年 8月1日	Heat and Mass Transfer, 54, pp. 2425-2432 (2018).	Charge-transfer distribution model applicable to stack simulation of solid oxide fuel cells	Hironori Onaka, Hiroshi Iwai, Masashi Kishimoto, Motohiro Saito, Hideo Yoshida, Grzegorz Brus, Janusz S. Szymd
2	平成31年 3月2日	Journal of the Electrochemical Society, 166(4), F295-F300, 2019	Degradation analysis of solid oxide fuel cells with (La, Sr)(Co, Fe)O _{3-δ} cathode/Gd ₂ O ₃ -CeO ₂ interlayer/Y ₂ O ₃ -ZrO ₂ electrolyte system: the influences of microstructural change and solid solution formation	T. Matsui, S. Li, Y. Inoue, N. Yoshida, H. Muroyama, K. Eguchi

—論文発表 (東京大学)—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成30年5月1日	Journal of Power Sources, 385, pp. 91-99 (2018).	Three dimensional electrochemical simulation of solid oxide fuel cell cathode based on microstructure reconstructed by marching cubes method	He, A., Gong, J. and Shikazono, N.,
2	平成30年8月31日	Journal of Power Sources, 396, pp. 115-123 (2018).	In operando optical study of active three phase boundary of nickel-yttria stabilized zirconia solid-oxide fuel cell anode under polarization	Jiao, Z. and Shikazono, N.,
3	平成31年1月8日	J. Electrochem. Soc., 166(2), F44-F52 (2019).	Influence of initial powder morphology on polarization characteristics of	Sciazko, A., Miyahara, K., Komatsu, Y., Shimura, T., Jiao, Z. and Shikazono, N.

			Nickel/Gadolinium-Doped-Ceria Solid Oxide Fuel Cells electrode	
--	--	--	--	--

—口頭発表（京都大学）—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成30年5月17日	第25回燃料電池シンポジウム	SOFC 空気極の劣化要因解析(2)	松井敏明、井上結稀、李思齊、吉田憲史、室山広樹、江口浩一
2	平成30年8月7日	The 5th Asian Solid Oxide Fuel Cells Conference	Degradation factors of cathode during operation of solid oxide fuel cells	K. Eguchi, S. Li, K. Kishida, H. Inui, H. Muroyama, T. Matsui
3	平成30年9月25日	2018年電気化学会秋季大会	Sm-Ca-Mn系複合酸化物のSOFCにおける酸素還元特性	吉田憲史、室山広樹、松井敏明、江口浩一
4	平成30年12月13日	第27回SOFC研究発表会	SOECにおけるLSCF酸素極の安定性評価と微構造解析	山下圭二、室山広樹、松井敏明、江口浩一
5	平成30年12月14日	第27回SOFC研究発表会	Sm-Ca-Mn系複合酸化物-SDC混合電極の酸素還元特性	吉田憲史、室山広樹、松井敏明、江口浩一
6	平成31年3月27日	電気化学会第86回大会	SOEC作動時における性能安定性評価と微構造解析	山下圭二、室山広樹、松井敏明、江口浩一
7	令和元年5月23日	第26回燃料電池シンポジウム	高温作動型SOFC空気極の性能と微構造の相関	松井敏明、吉田憲史、室山広樹、江口浩一
8	平成30年5月30日	第55回日本伝熱シンポジウム	SOFC多孔質燃料極内の輸送・反応現象に基づくインピーダンス解析モデルの構築	岸本 将史、大仲 浩徳、岩井 裕、吉田 英生
9	平成30年6月14日	第23回動力・エネルギー技術シンポジウム	空気極内部の過電圧分布を考慮したクロム被毒モデルの構築および擬3次元スタック解析への適用	永見真俊、岸本将史、岩井裕、齋藤基裕、吉田英9
10	平成30年7月4日	13th European SOFC & SOE Forum 2018	Numerical analysis of cross-electrode interaction in SOFCs with thin electrolyte	Hiroshi Iwai, Ryoma Kadamiya, Masashi Kishimoto, Motohiro Saito, Hideo Yoshida
11	平成30年7月13日	Nano Korea 2018	Structure and performance of SOFC electrodes	Hiroshi Iwai
12	平成30年10月20日	熱工学コンファレンス2018	熱分解式含浸法によりGDCを含浸したSOFC用LSCF空気極の作製および性能評価	笠井颯人、岸本将史、岩井裕、齋藤元浩、吉田英生
13	平成31年3月10日	日本機械学会関西学生会2018年度学生員卒業研究発表講演会	含浸を施したSOFC空気極の構造モデルの構築と1次元電極数値モデルへの適用	花井竣矢、岸本将史、岩井裕、齋藤元浩、吉田英生
14	平成31年3月10日	日本機械学会関西学生会2018年度学生員卒業研究発表講演会	SOFC多孔質電極の空隙微構造に与える造孔材の影響とガス輸送特性との相関	山崎皓平、岸本将史、岩井裕、齋藤元浩、吉田英生
15	平成31年3月10日	日本機械学会関西学生会2018年度学生員卒業研究発表講演会	含浸法により電極にGDC微細粒子を導入したSOFCの発電特性と微構造解析	谷村裕也、岸本将史、岩井裕、齋藤元浩、吉田英生
16	平成31年3月10日	日本機械学会関西学生会2018年度学生員卒業研究発表講演会	SOFC多孔質電極におけるガス透過率の測定	樋口和宏、岸本将史、岩井裕、齋藤元浩、吉田英生

—口頭発表（東京大学）—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成30年6月14日	第23回動力・エネルギー技術シンポジウム	固体酸化物形燃料電池のLa _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O _{3-δ} 空気極の電気化学特性変化と微細構造変化に関する研究	志村敬彬、何岸、鹿園直毅
2	平成30年7月5日	13th European SOFC & SOE Forum 2018	ological changes of Nickel-Gadolinium Doped in humidified conditions	Sciazko, A., Shimura, T., Komatsu, Y. and Shikazono, N.
3	平成30年7月5日	13th European SOFC & SOE Forum 2018	Microstructure and polarization characteristics of LSCM-GDC composite fuel electrode	Yokoi, R., Shimura, T., Sciazko, A. and Shikazono, N.
4	平成30年7月5日	13th European SOFC & SOE Forum 2018	Secondary Phase Structures at the Interlayer-Electrolyte Interface of SOCs	Shimura, T., He, A. and Shikazono, N.
5	平成30年7月26日	12th International Conference on Ceramic Materials and Components for Energy and Environmental Applications	Numerical Simulation of Solid Oxide Fuel Electrodes	Shikazono, N., Jiao, Z., Yan, Z. and Hara, S.

6	平成30年 7月26日	13th World Congress in Computational Mechanics	Development of a Fully Parallelized Code for Phase Field Simulation of Microstructure Evolution in Solid Oxide Fuel Cell Electrodes	Onishi, J., Jiao, Z. and Shikazono, N.
7	平成30年 8月7日	5th Asian SOFC Conference	Study on the effects of polarization on Ni morphological change at active three- phase-boundary in patterned Ni-film solid oxide fuel cell anode	Jiao, Z. and Shikazono, N.
8	平成30年 8月8日	5th Asian SOFC Conference	Tomographic and Numerical Investigations of Composite Cathodes	Kim, Y., An, H., Sato, K., Okabe, T., Taniguchi, J. and Shikazono, N.
9	平成30年 8月8日	5th Asian SOFC Conference	An adjoint-based optimization method for SOFC electrodes	Onishi, J. and Shikazono, N.
10	平成30年 8月8日	5th Asian SOFC Conference	Three dimensional numerical simulation of solid oxide fuel cell cathode based on microstructure reconstructed by marching cubes method	He, A. and Shikazono, N.
11	平成30年 8月8日	5th Asian SOFC Conference	Microstructural Optimization for Solid Oxide Fuel Cell Electrode using Artificial Neural Networks and Genetic Algorithm	Yan, Z., Hara, S. and Shikazono, N.
12	平成30年 10月30日	日本機械学会第9回マイクロ・ ナノ工学シンポジウム	固体酸化物形燃料電池 (SOFC) の課題と展望	鹿園直毅
13	平成30年 12月13日	第27回SOFC研究発表会	SOFC 電極電解質の一体焼結プロセスにおける 三次元微細構造変化	久保田直樹, 金木咲良, 生嶋大暉, 原祥太 郎, Zilin Yan
14	平成30年 12月13日	第27回SOFC研究発表会	Study on Morphological Change of Nickel at Active Three-Phase-Boundary Using Patterned Nickel-film Electrode in Solid Oxide Fuel Cell Anode	Jiao, Z. and Shikazono, N.
15	平成31年 1月16日	第57回セラミックス基礎科学 討論会	FIB-SEM トモグラフィーによる Au サブミクロ ン粒子焼結体の微細構造の3次元的可視化と 焼結挙動解析	篠部寛, 大熊学, Sciazko Anna, 志村敬彬, 小柏俊典, 鹿園直毅, 若井史博

② 特許等

なし

③ 受賞実績

No.	年月	表彰団体・賞名	受賞内容	受賞者
1	平成30年10月 20日	日本機械学会熱工学部門 業績賞	熱工学の発展への貢献	鹿園直毅
2	平成30年11月 2日	日本機械学会動力エネルギーシステ ム部門 優秀講演表彰	固体酸化物形燃料電池の La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O ₃ 空気極の電化学特 性変と微細構造変化に関する研究	志村敬彬

(4) 反応場の局所構造・組成に関する解析 (九州大学)

① 研究発表・講演・文献等、その他

—論文発表—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成30年11 月1日	J. Electrochem Soc., 165(11) F959-F965 (2018)	Mechanism of SrZrO ₃ Formation at GDC/YSZ Interface of SOFC Cathode	J.-T Chou, Y. Inoue, T. Kawabata, J. Matsuda, S. Taniguchi, K. Sasaki
2	平成31年4 月5日	Int. J. Hydrogen Energy, 44(11), 9386-9399 (2019)	Oxidation-induced degradation and performance fluctuation of solid oxide fuel cell Ni Anodes under simulated high fuel utilization conditions	T. Kawasaki, J. Matsuda, Y. Tachikawa, S.-M Lyth, Y. Shiratori, S. Taniguchi, K. Sasaki

—口頭発表—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成30年5月17日	第25回燃料電池シンポジウム	SOFC 耐久性評価のための SrZrO ₃ 生成・成長挙動の解析	井上侑子, 周致雲, 川畑勉, 松田潤子, 谷口俊輔, 佐々木 一成
2	平成30年9月5日	日本セラミックス協会 第31回秋季シンポジウム	固体酸化物形燃料電池における SrZrO ₃ 生成・成長メカニズムの解析	井上侑子, 周致雲, 川畑勉, 松田潤子, 谷口俊輔, 佐々木 一成
3	平成31年12月5日	固体イオニクス討論会	Effect of Double Columnar Interlayer on Sm(Sr)CoO ₃ Cathode for LT-SOFC	BeyongSu Kang, Atsushi Takagaki, Tatsumi Ishihara
4	令和元年5月23日	第26回燃料電池シンポジウム	SOFC 耐久性評価のための SrZrO ₃ 生成及び成長メカニズムの解析	周致雲, 井上侑子, 川畑勉, 松田潤子, 谷口俊輔, 佐々木 一成

② 特許等

なし

③ 展示会への参加

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成31年2月27日-3月1日	第15回国際水素・燃料電池展 FC EXPO 2019	化学的解析による劣化機構解明, 加速要因分析	佐々木 一成

5. 7 耐久性迅速評価方法の開発 (東京大学、京都大学、東北大学)

(2018年度~2019年度)

(1) シミュレーション技術の開発

① 東京大学

—論文発表—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成31年3月8日	International Journal of Hydrogen Energy, 44 (13), pp. 6871-6885 (2019).	Numerical Simulation of La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.803} -Gd _{0.1} Ce _{0.901} .95 Composite Cathodes with Micro Pillars	He, A., Shimura, T., Gong, J. and Shikazono, N.
2	令和元年6月15日	Energy Conversion and Management, 190, pp. 1-13 (2019).	Modeling of Solid Oxide Fuel Cell (SOFC) Electrodes from Fabrication to Operation: Correlations between Microstructures and Electrochemical Performances	Yan, Z., He, A. Hara, S. and Shikazono, N.
3	令和元年5月3日	International Journal of Hydrogen Energy, 44 (23), pp. 12043-12056 (2019).	Evaluation of Electrochemical Performance of Solid-Oxide Fuel Cell Anode with Pillar-Based Electrolyte Structures	Shimura, T., Nagato, K. and Shikazono, N.

—口頭発表—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	令和元年5月23日	FDIC 第26回燃料電池シンポジウム	固体酸化物形燃料電池によるバイオマス炭化物ガス化発電	小松洋介, Munguang Promsen, 鹿園直毅, 望月和博, 清水浩之, 佐藤翼, 柳橋直毅, 江川益博

② 京都大学

—論文発表—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成30年8月	Heat and Mass Transfer, 54, pp. 2425-2432 (2018).	Charge-transfer distribution model applicable to stack simulation of solid oxide fuel cells	Hironori Onaka, Hiroshi Iwai, Masashi Kishimoto, Motohiro Saito, Hideo Yoshida, Grzegorz Brus, Janusz S. Szmyd
2	平成30年10月	Journal of Power Sources, 400 (1), 135-146, 2018.	Quasi-three-dimensional numerical simulation of a solid oxide fuel cell	W. C. Tan, H. Iwai, M. Kishimoto, H. Yoshida

			short stack: Effects of flow configurations including air-flow alternation	
3	平成 31 年 8 月	Journal of Power Sources, 431, 153-161, 2019.	Physicochemical impedance modeling of solid oxide fuel cell anode as an alternative tool for equivalent circuit fitting	M. Kishimoto, H. Onaka, H. Iwai, M. Saito, H. Yoshida

—口頭発表—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 30 年 5 月 30 日	第 55 回日本伝熱シンポジウム	SOFC 多孔質燃料極内の輸送・反応現象に基づくインピーダンス解析モデルの構築	岸本 将史, 大仲 浩徳, 岩井 裕, 吉田 英生
2	平成 30 年 6 月 14 日	第 23 回動力・エネルギー技術シンポジウム	空気極内部の過電圧分布を考慮したクロム被毒モデルの構築および擬 3 次元スタック解析への適用	永見真俊, 岸本将史, 岩井裕, 齋藤基裕, 吉田英生
3	平成 30 年 7 月 4 日	13th European SOFC & SOE Forum 2018	Numerical analysis of cross-electrode interaction in SOFCs with thin electrolyte	Hiroshi Iwai, Ryoma Kadomiya, Masashi Kishimoto, Motohiro Saito, Hideo Yoshida
4	平成 31 年 3 月 10 日	日本機械学会関西学生会 2018 年度学生員卒業研究発表講演会	平板型燃料極支持 SOFC の 2 次元解析に基づく発電・温度分布均一化手法の探索	渡邊孟徳, 岸本将史, 岩井裕, 齋藤元浩, 吉田英生

③ 東北大学

—論文発表—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 30 年 6 月 13 日	6th European Conference on Computational Mechanics (ECCM 6)-7th European Conference on Computational Fluid Dynamics (ECFD 7)	Electrochemical Potential Simulation of Solid Oxide Fuel Cell Considering Phase Transformation of Zirconium Oxide	Muramatsu, M.*, Ishiyama, T., Kishimoto, H., Yamaji, K., Yahiro, K., Kawada, T., Terada, K. and Yokokawa, H.
2	平成 30 年 6 月	Solid State Ionics, Vol. 319, pp. 194-202, 2018	Shape Deformation Analysis of Anode-supported Solid Oxide Fuel Cell by Electro-chemo-mechanical Simulation	Muramatsu, M., Sato, M., Terada, K., Watanabe, S., Yashiro, K., Kawada, T., Iguchi, F. and Yokokawa, H.
3	平成 30 年 8 月	International Journal of Mechanical Sciences, Vols. 146-147, pp. 462-474, 2018	Simulation of Ferroelastic Phase Formation Using Phase-field Model	Muramatsu, M., Yashiro, K., Kawada, T. and Terada, K.

—口頭発表 (東北大学) 「シミュレーション技術の開発—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	平成 30 年 6 月 13 日	6th European Conference on Computational Mechanics (ECCM 6)-7th European Conference on Computational Fluid Dynamics (ECFD 7)	Electrochemical Potential Simulation of Solid Oxide Fuel Cell Considering Phase Transformation of Zirconium Oxide	Muramatsu, M.*, Ishiyama, T., Kishimoto, H., Yamaji, K., Yahiro, K., Kawada, T., Terada, K. and Yokokawa, H.
2	平成 30 年 6 月 25 日	13th World Congress on Computational Mechanics (WCCM 2018)	An Analysis of Formation of Ferroelastic Phase in Metallic Oxide LSCF in Solid Oxide Fuel Cell	Muramatsu, M.*, Kawada, T. and Terada, K.
3	平成 30 年 6 月 25 日	13th World Congress on Computational Mechanics (WCCM 2018)	Substitution Approach for De-coupled Two-scale Analysis of Composite Plates	Sato, M.*, Muramatsu, M., Terada, K., Kawada, T.
4	平成 30 年 5 月 17 日	第 25 回燃料電池シンポジウム, 若手招待講演	SOFC 耐久性評価に向けた熱・電気化学-力学シミュレーション手法の構築	村松真由
5	平成 30 年 6 月 7 日	第 23 回計算工学講演会	SOFC 耐久性評価に向けた熱・電気化学-力学シミュレーション手法の構築	佐藤維美*, 村松真由, 寺田賢二郎, 川田達也
6	平成 30 年 6 月 7 日	第 23 回計算工学講演会	微視組織の発展を考慮した燃料電池材料のマルチスケール解析	村松真由*, 八代圭司, 川田達也, 寺田賢二郎
7	平成 30 年 11 月 24 日	第 31 回日本機械学会計算力学講演会	非線形特性を有する複合板の分離型マルチスケール解析のための代替アプローチ	佐藤維美*, 村松真由, 西紳之介, 寺田賢二郎, 川田達也

② 特許等

なし

③ 受賞

1	平成30年8月1日	2018 Emerald Literati Awards for Excellence Engineering Computations, Outstanding Paper (年間最優秀論文)	"Numerical simulations of non-stationary distributions of electrochemical potentials in SOFC"	Muramatsu, M., Yashiro, K., Kawada, T. and Terada, K.
---	-----------	---	---	---

3. その他特記事項

(6. 2. 1) 「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発／

固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証／ 固体酸化物形燃料電池を用いた5 kW級業務用システムの実証評価」

助成先：三浦工業株式会社

●成果サマリ（実施期間：平成25年度～平成28年度終了）

- 年度毎に新たな実証試験を行うべく、前年に取得した運転データを活用し、抽出された課題を解決する試験機を開発
- 性能評価に限らず、ユーザー先実証にて電力、熱利用の実態把握
- 4年間の実用化実証の成果として、平成29年度に発電効率48%・総合効率90%のモデルを開発し、実用化

●背景/研究内容・目的

高効率な分散型電源として期待される固体酸化物形燃料電池の、業務用分野における商品を目指して開発している5kW級のシステム機について、フィールドにて実証評価を行うことで、実用化の課題を明確化し、設計にフィードバック、年次で改良を重ねて開発スピードを上げることが目的としている。

●研究目標

実施項目	目標
①発電効率	48%
スタック効率	57%
燃料利用率	72%
補機損失	400W
PCS効率	93%
効率50%の課題抽出	抽出
②総合効率	90%
③システム機での劣化率 改質水供給圧変動	0.25%/kh ±1kPa
スタック温度むら	±20℃
運転温度	760℃
④システム機の確立 水自立機能	ワンパッケージ化 成立
別置きパーガス	不要化
別置きPCS	一体化

●実施体制及び分担等

NEDO

三浦工業株式会社

●これまでの実施内容／研究成果

- ◎平成25年度に実証機5台を用いて、実証運転を実施、各種データを得ることができた。
- ◎平成26年度には前年度実証機の入替等を行い、評価を実施。その他、性能、品質向上評価機を計8台設置して要素試験を開始し、次世代機への反映データを取得している。
- ◎平成27年度機はこれまでの運転データを元に効率、耐久性改善に加え、パーガスレス化などを実現したワンパッケージモデルを開発。また、試験フィールドを実際のユーザー先へ広げ、系統連系や既存設備との接続を行うことで、電気、熱を高効率に活用するための課題抽出を行った。
- ◎平成28年度機は、前年度までの実証で抽出した開発課題を基に、より現場での取り扱い易さを追求した設計・開発を実施。市場導入を想定したコンパクトなモデルで、性能把握を行った。

●今後の課題

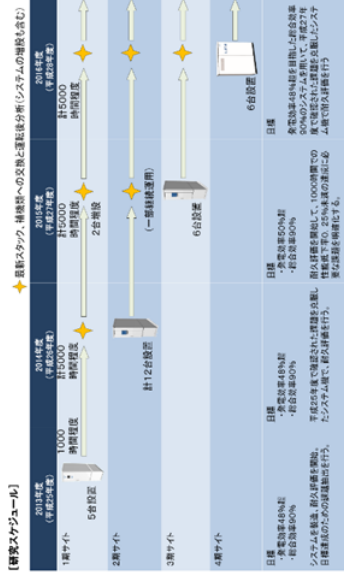
- ◎発電効率50%超を目指した総合効率90%のシステム確立と早期実現
- ◎サーマルサイクルやシャットダウンに対する耐性向上

●実用化・事業化の見通し

平成29年度（助成事業期間終了後）は、既存実証機にて引き続き性能、耐久性評価を継続。4年間の実用化実証の成果として、発電効率48%、総合効率90%の商品モデルである“業務用4.2kW固体酸化物形燃料電池（SOFC）FC-5A型”を開発、販売開始に至った。



業務用4.2kW固体酸化物形燃料電池（SOFC）FC-5A



●研究成果まとめ

実施項目	成果内容	自己評価
発電効率	48%達成	○
総合効率	90%達成	○
劣化率	達成（見通し取得）	△
システム機確立	達成（ワンパッケージ化）	○

特許出願

論文発表 なし

外部発表 29件

受賞等 なし

課題番号：6. 2. 1

研究開発名：

「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発」

固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証／
固体酸化物形燃料電池を用いた5kW級業務用システムの実証評価

助成先：三浦工業株式会社

1. 研究開発概要

高効率な分散型電源として期待される固体酸化物形燃料電池の、業務用分野における商品を目指して開発している5kW級のシステム機について、フィールドにて実証評価を行うことで、実用化の課題を明確化し、設計にフィードバック、年次で改良を重ねて開発スピードを上げることを目的としている。実証期間は図1の通り、平成25年度から28年度の4年間の予定となっている。

【研究スケジュール】

★最新スタック、補機類への交換と運転後分析(システムの増設も含む)

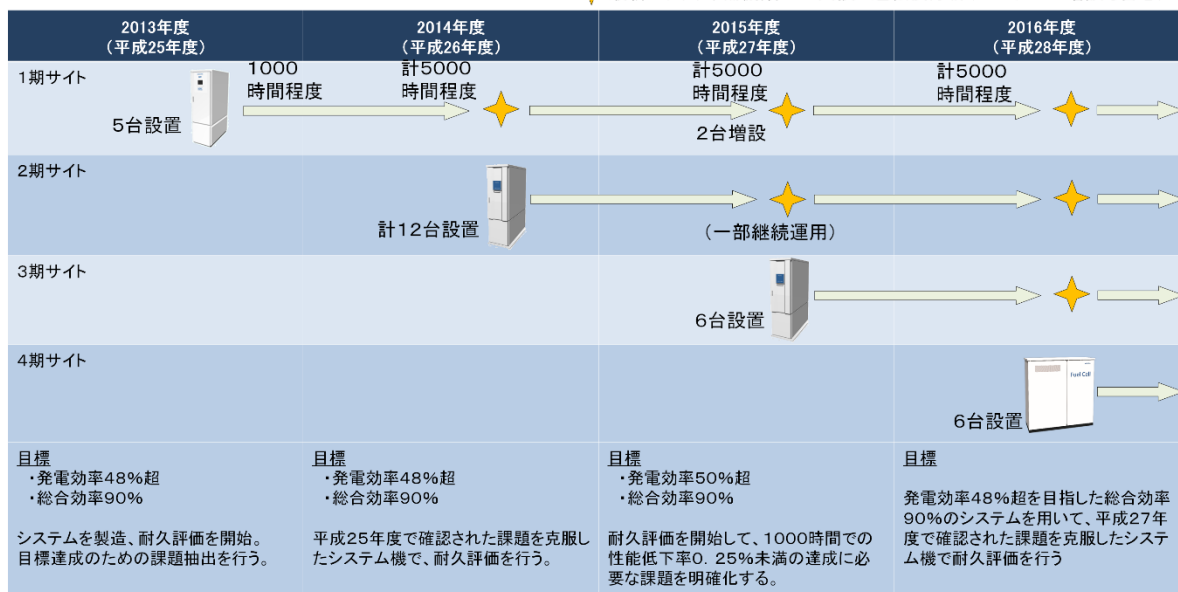


図1 実証期間と概要

2. 研究開発目標（設定の理由も含め）

平成32年度（以下、令和2年度）に5kW級の固体酸化物形燃料電池において、発電効率50%超、総合効率90%、耐久9万時間超を満足するシステムを商品化することを企業の目標としている。

そこで、本研究開発の目標を、「平成27年度において、発電効率50%超、総合効率90%のシステムでの耐久評価を開始して、1000時間での性能低下率0.25%の達成に向けた課題を明確化する」「平成28年度において、発電効率48%超を目指した総合効率90%のシステムを用いて、前年度で確認された課題を克服したシステム基で耐久評価を行う」と定める。年度ごとの目標は下記の通りである。

<研究開発目標>

平成25年度：発電効率48%超、総合効率90%を目標としたシステムを製造、耐久評価を開始して、目標達成のための課題抽出を行う。

平成26年度：発電効率48%超、総合効率90%の達成を目標とするために、平成25年度で確認された課題を克服したシステム機で耐久評価を行う。

平成27年度：発電効率50%超を目指した総合効率90%のシステムでの耐久評価を開始して、1000時間での性能低下率0.25%未満の達成に必要な課題を明確化する。

平成 28 年度：発電効率 48%超を目指した総合効率 90%のシステムを用いて、前年度で確認された課題を克服したシステム基で耐久評価を行う。

令和 2 年度での商品化目標は、NEDO 技術開発ロードマップをベースに 2020 年（平成 32 年）の初期導入時期までに、「発電効率 50%LHV 以上、9 万時間以上の耐久見通し、発電システム 100 万円/kW 以下」の実現をうたわれている本技術開発目標と同レベル以上の目標となっており、高い目標であると考えている。

また、開発当初の性能から、スタック効率、パワーコンディショナー効率を引き上げること、補機損失を低減することが重要となるが、本研究では、その目標に対して開発ステップを踏んだ機器、モジュールを、実際にシステムに搭載し、耐久実証をした結果をフィードバックすることを主テーマとして、前記開発目標を掲げた。

なお、性能低下については、業界で用いられている 1000 時間あたりに性能が低下する割合を用いた指標を使用している。本事業において、単年度ごとのシステム機の運転目標時間は 5000 時間程度としており、その運転満了時の平均化した劣化率を 1000 時間あたりに換算して表現をすることになる。

先述の令和 2 年度の商品化計画の前に、平成 29 年度より、発電効率 48%超、総合効率 90%のシステムでの商品化を目標としており、経済産業省の最新のロードマップに沿った商品化スケジュールとしている。

3. 研究開発成果

3.1 研究開発成果、達成度

(1) 研究開発目標の達成度及び研究開発成果の意義

平成 25 年に事業を開始して、これまでの実施した内容の概要は下記の通りである。なお、中間評価時点で報告した成果については、年度毎の実証概要のみとし、成果詳細は割愛する。

- 平成 25 年度に実証機 5 台を稼働させ、運転を開始。平成 26 年度には、入替等を行い、最新のモデルでの実証運転を実施、各種データを得ることができた。（表 2）


サイト名	A	B	C	D	E
場所	東京	東京	大阪	愛知	神奈川
運転時間	6,300	2,200	1,900	3,700	3,400
発電(AC)効率	42.4%	42.0%	42.3%	42.3%	43.0%
外観					

表 1 平成 25 年度実証概

サイト名	A	B	C	D	E
場所	東京	東京	大阪	愛知	神奈川
運転時間	4,200	10,000以上	10,000以上	3,600	3,100
発電(AC)効率	48.0%	44.4%	44.6%	49.4%	45.1%
外観					

表2 平成26年度実証概要（平成25年度実証機の入替）

- ・その他、平成26年度は性能、品質向上評価機を計8台設置して要素試験を開始。水自立機能の確立やパージガスレス化の実現に向けた開発、試験を行い、次世代機への反映データを取得している。
- ・平成27年度機はこれまでの運転データを元に効率、耐久性改善に加え、パージガスレス化などを実現したワンパッケージモデルを開発。また、試験フィールドを実際のユーザー先へ広げ、系統連系や既存設備との接続を行うことで、電気、熱を高効率に活用するための課題抽出を行った。（表3）同年度までに運用した実機において、スタック効率、燃料利用率の向上、補機損失低減を目標達成するデータを取得している。

業種	フィットネス	福祉施設 (入居型)	飲食店	飲食店	工場	福祉施設 (通所型)
電力用途	照明など	照明など	照明など	照明など	照明など	照明など
温水用途	給湯、浴室	給湯、浴室	給湯、洗浄機	給湯、洗浄機	ボイラ	給湯、浴室

表3 平成27年度実証概要

- ・平成28年度機は、前年度までの実証で抽出した開発課題を基に、より現場での取り扱い易さを追求した設計・開発を実施。市場導入を想定したコンパクトなモデルで、性能把握を行った。（表4）


サイト名	A	B	C	D
場所	東京	東京	大阪	愛知
外観				

表4 平成28年度実証概要

- ・平成29年度（NEDO助成事業期間終了後）は、既存実証機にて引き続き性能、耐久性評価を継続。4年間の実用化実証の成果として、発電効率48%、総合効率90%の商品モデルである“業務用4.2kW固体酸化物型燃料電池（SOFC）FC-5A型”を開発、販売開始に至った。



FC-5A 製品仕様	
燃料	都市ガス 13A
定格発電量 (kW-AC)	4.2
熱回収量 (kW)	3.7
発電効率 (%-LHV)	48
熱回収効率 (%-LHV)	42
総合効率 (%-LHV)	90
製品寸法(mm)	1,880(W)×810(D)×1,780(H)
質量(kg)	780

業務用 4.2kW 固体酸化物形燃料電池(SOFC) FC-5A 外観及び仕様

(2) 成果の普及 及び 知的財産権等の確保に向けた取組

- 平成 29 年度の市場導入にあたり、自社ニュースリリースにて販売開始を発表、またこれまでの開発過程で NEDO 助成を受け実証事業を続けてきたことを発表した。
- 後述 5 の通り、研究開発の進捗、成果について対外的な発表を随時行い、特許出願など事業化に向けた取組にも着手している。

3.2 成果の意義

- NEDO 助成事業にて実証評価を行ったシステムが商品化（実用化）出来たことが、本事業における最大の成果である。これにより、経済産業省が策定した「水素・燃料電池戦略ロードマップ」記載の「2017 年 業務・産業用燃料電池の市場投入」の目標を達成した。

3.3 研究開発項目別残課題

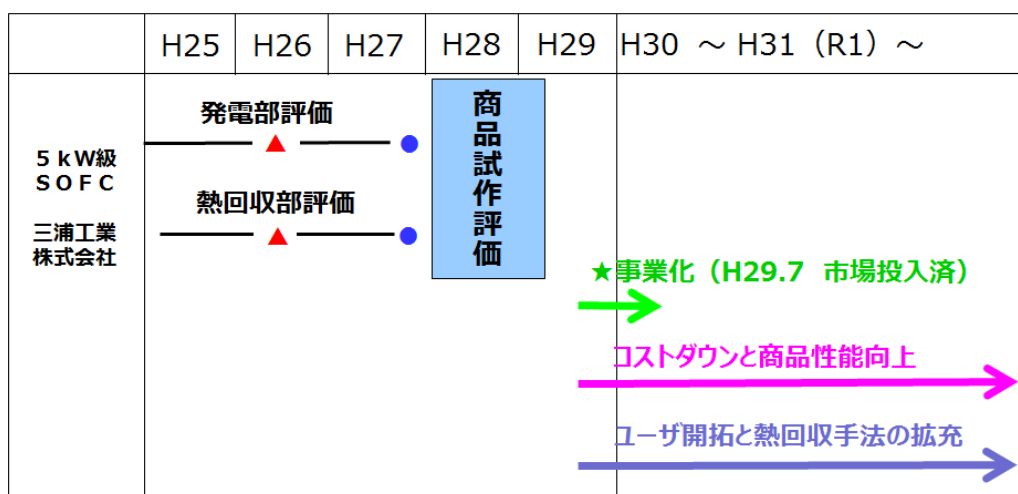
- 平成 27 年度の研究開発目標であった発電効率 50%超を目指した総合効率 90%のシステムについては、NEDO 助成事業終了後も早期実現に向けて研究を継続している。但し、平成 28 年度の単体試験データを用いた試算においては、発電効率 50%超の見通しを得ている。
- システム機での劣化率（目標：0.25%/kh）については、定常運転時に目標値以内の見通しを得ることが出来、さらに後の新たな課題も抽出することが出来た。

4. まとめ及び課題、事業化までのシナリオ

本事業では年度毎に新たな実証試験を行うため、前年に取得した運転データを活用し、抽出された課題を解決する試験機を開発してきた。特に、平成 27 年度以降は性能評価に限らず、ユーザー先実証にて電力、熱利用の実態把握を行うほか、工事簡略化や狭小スペースへの設置を想定したコンパクトな機器設計を行った。

開発段階の機器をフィールド（模擬を含む）に設置し、運転条件などパラメータを変えながら実証評価を行い、各種データを設計にフィードバック、開発スピードを上げることで平成 29 年度の実用化（商品化）に至った。（表 5）

課題としては、発電効率 50%超のシステムの早期実現である。本事業期間内に課題抽出を行い、達成ポイントの見通しまで得ることが出来ているが、実用化に向けた更なる研究を重ねる必要がある。



▲ : 基本原理確認 ● : 基本技術確立

表5 事業化スケジュール

5. 研究発表・特許等

ー研究発表・講演、文献等、その他ー

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	H25年05月28日	FCDIC	5kW級業務用SOFCシステムの開発	竹本真典
2	H25年05月30日	三浦工業	自社フェア（東京）	展示会出展
3	H25年07月04日	三浦工業	自社フェア（大阪）	展示会出展
4	H25年07月18日	三浦工業	自社フェア（名古屋）	展示会出展
5	H25年07月24日	NEDO	再生エネルギーフェア	展示会出展
6	H25年08月06日	佐賀窯業技術センター	5kW級業務用SOFCシステムの開発	竹本真典
7	H25年08月30日	NEDO 成果報告会	5kW級業務用燃料電池の開発	ポスター展示
8	H25年09月13日	三浦工業	自社フェア（札幌）	展示会出展
9	H25年10月02日	東京ガス	フェア	展示会出展
10	H25年10月18日	三浦工業	自社フェア（福岡）	展示会出展
11	H26年02月26日	FC-EXPO	燃料電池展	展示会出展
12	H26年05月29日	FCDIC	5kW級業務用SOFCシステムの開発	井上一信
13	H26年07月30日	NEDO	再生エネルギー展	展示会出展
14	H26年09月17日	NEDO 成果報告会	固体酸化物形燃料電池を用いた5kW級業務用システムの実証評価	井上一信
15	H26年10月27日	大阪科学技術センター	5kW級SOFCシステムの開発と実証評価について	井上一信
16	H26年11月19日	東京ガス	フェア	展示会出展
17	H27年01月30日	FCDIC 投稿	三浦工業における業務用SOFCシステム開発への取り組み	井上一信
18	H27年02月26日	FC-EXPO	燃料電池展	展示会出展

19	H27年05月29日	FCDIC	5kW級SOFCシステムの開発と実証	井上一信
20	H27年06月18日	福岡県	三浦工業の業務用SOFC開発の取り組み	山本英貴
21	H27年09月07日	NEDO 成果報告会	固体酸化物形燃料電池を用いた5kW級業務用システムの実証評価	井上一信
22	H27年09月16日	NEDO 中間評価	固体酸化物形燃料電池を用いた5kW級業務用システムの実証評価	竹本真典
23	H28年03月02日	FC-EXPO	燃料電池展	展示会出展
24	H28年05月26日	FCDIC	5kW級業務用SOFCシステムの開発と実証	徳永幸博
25	H28年10月07日	NEDO フォーラム 2016 in 四国	三浦工業における5kW級業務用SOFCの開発について	山本英貴
26	H28年10月26日	NEDO 成果報告会	固体酸化物形燃料電池を用いた5kW級業務用システムの実証評価	徳永幸博
27	H29年03月01日	FC-EXPO	燃料電池展	展示会出展
28	H29年05月25日	FCDIC	5kW級SOFCシステムの開発と実証	徳永幸博
29	H29年09月20日	NEDO 成果報告会	固体酸化物形燃料電池を用いた5kW級業務用システムの実証評価	徳永幸博

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託会社名
1	H28年3月29日	特願 2016-064802	燃料電池システム	三浦工業株式会社
2	H28年6月28日	特願 2016-127484	燃料電池システム	三浦工業株式会社
3	H29年4月21日	特願 2017-546259	燃料電池システム	三浦工業株式会社
4	H29年6月16日	特願 2017-118386	燃料電池システム	三浦工業株式会社

(6. 2. 0) 「固体酸化物燃料電池等実用化推進技術開発／実用化技術実証／中容量常圧型円筒形SOFCシステムの実用化技術実証」

助成先：富士電機株式会社

<p>● 成果ガリ (実施期間)：平成26年度～平成29年度終了</p> <p>● 平成26-27年度は、要素技術開発として、円筒形SOFCを用いた常圧型エンジン及び常圧システムを製作し、性能評価を実施。</p> <p>● 平成28-29年度は、実証機 (40kW級) の設計/製作/評価を実施。</p> <p>上記の結果、実証機において目標値である発電効率50%、総合効率80%を達成した。</p> <p>● 背景/研究内容・目的</p> <p>東日本大震災以降、分散型電源やコージェネに注目が集まり、省エネ機器への関心と共に自家発電のニーズが高まっている。その中でも固体酸化物燃料電池 (SOFC) は、中容量でも発電効率50%以上が見込めるため、熱需要の少ないスーパーマーケットや小規模事務所など広範囲への適用が期待されている。</p> <p>そこで、中容量 (数十kW規模) で高い発電効率 (AC発電効率50%以上) を有するSOFCシステムの実用化技術実証を行う。</p> <p>● 研究目標</p> <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="width: 50%;">実施項目</th> <th style="width: 50%;">目標</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td style="text-align: center;">A</td> <td> <ul style="list-style-type: none"> ● 平成26年度～平成27年度要素技術開発を実施する ● 起動/停止を含め安定運転方法の確立 ● DC発電効率55% (AC発電効率50%) の目処付け ● 平成28年度～平成29年度実証機の設計/製作/評価を実施する ● AC発電効率50% (LHV) の見通し ● 耐久性4万時間以上の見通し ● 発電システム価格100万円/kW以下の見通し </td> </tr> </tbody> </table>	実施項目	目標	A	<ul style="list-style-type: none"> ● 平成26年度～平成27年度要素技術開発を実施する ● 起動/停止を含め安定運転方法の確立 ● DC発電効率55% (AC発電効率50%) の目処付け ● 平成28年度～平成29年度実証機の設計/製作/評価を実施する ● AC発電効率50% (LHV) の見通し ● 耐久性4万時間以上の見通し ● 発電システム価格100万円/kW以下の見通し 	<p>● これまでの実施内容／研究成果</p> <p>平成26年度及び平成27年度は、要素技術開発として、円筒形SOFCを用いた常圧型エンジン及び常圧システムを製作し、性能評価を実施し、目標としていた発電効率55%以上の見通しを得た。</p> <p>平成28年度以降、要素技術開発の成果を基に実規模の40kW級実証機の設計/製作/評価を実施した。その結果、5,000時間以上の運転評価を行い、発電効率50%以上・総合効率80%以上及び耐久性 40,000時間以上の見通しを得た。</p> <p>● 研究成果まとめ</p> <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="width: 20%;">実施項目</th> <th style="width: 60%;">成果内容</th> <th style="width: 20%;">自己評価</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>常圧型エンジンの開発</td> <td>エンジンの設計/製作/評価を実施し、DC発電効率55%以上を確認した。</td> <td style="text-align: center;">○</td> </tr> <tr> <td>高効率システムの開発</td> <td>高効率システムの設計/製作/評価により、安定運転方法を確立した。</td> <td style="text-align: center;">○</td> </tr> <tr> <td>実証機の開発</td> <td>40kW級実証機の設計/製作/評価を実施し、目標通りの性能が得られることを確認した。</td> <td style="text-align: center;">○</td> </tr> <tr> <td>商品機の基本設計</td> <td>実証機をベースに、市場導入機 (商品機) の基本設計を行い、システム価格を試算したが、すぐに目標値を達成することは難しいことが分かった。</td> <td style="text-align: center;">△</td> </tr> </tbody> </table>	実施項目	成果内容	自己評価	常圧型エンジンの開発	エンジンの設計/製作/評価を実施し、DC発電効率55%以上を確認した。	○	高効率システムの開発	高効率システムの設計/製作/評価により、安定運転方法を確立した。	○	実証機の開発	40kW級実証機の設計/製作/評価を実施し、目標通りの性能が得られることを確認した。	○	商品機の基本設計	実証機をベースに、市場導入機 (商品機) の基本設計を行い、システム価格を試算したが、すぐに目標値を達成することは難しいことが分かった。	△
実施項目	目標																			
A	<ul style="list-style-type: none"> ● 平成26年度～平成27年度要素技術開発を実施する ● 起動/停止を含め安定運転方法の確立 ● DC発電効率55% (AC発電効率50%) の目処付け ● 平成28年度～平成29年度実証機の設計/製作/評価を実施する ● AC発電効率50% (LHV) の見通し ● 耐久性4万時間以上の見通し ● 発電システム価格100万円/kW以下の見通し 																			
実施項目	成果内容	自己評価																		
常圧型エンジンの開発	エンジンの設計/製作/評価を実施し、DC発電効率55%以上を確認した。	○																		
高効率システムの開発	高効率システムの設計/製作/評価により、安定運転方法を確立した。	○																		
実証機の開発	40kW級実証機の設計/製作/評価を実施し、目標通りの性能が得られることを確認した。	○																		
商品機の基本設計	実証機をベースに、市場導入機 (商品機) の基本設計を行い、システム価格を試算したが、すぐに目標値を達成することは難しいことが分かった。	△																		
<p>● 今後の課題</p> <p>本事業を通して、性能面での製品開発の見通しが得られたが、商品化に向けて、FC本体及びシステムのさらなる低コスト化が必要である。</p> <p>● 実用化・事業化の見通し</p> <p>装置の低コスト化を見極めながら、出荷開始時期を検討していく。</p>																				
<p>● 実施体制及び分担等</p> <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width: 30%; text-align: center;">NEDO</td> <td style="width: 40%; text-align: center;">富士電機株式会社 (実施項目A)</td> <td style="width: 30%;"></td> </tr> </table>		NEDO	富士電機株式会社 (実施項目A)																	
NEDO	富士電機株式会社 (実施項目A)																			
<table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="width: 20%;">特許出願</th> <th style="width: 20%;">論文発表</th> <th style="width: 20%;">外部発表</th> <th style="width: 40%;">受賞等</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td style="text-align: center;">26</td> <td style="text-align: center;">4</td> <td style="text-align: center;">13</td> <td style="text-align: center;">0</td> </tr> </tbody> </table>		特許出願	論文発表	外部発表	受賞等	26	4	13	0											
特許出願	論文発表	外部発表	受賞等																	
26	4	13	0																	

課題番号： 6. 2. □

研究開発名：「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発／固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証／中容量常圧型円筒形 SOFC システムの実用化技術実証」

1. 研究開発概要

東日本大震災以降、分散型電源やコージェネに注目が集まり、省エネ機器への関心と共に自家発電のニーズが高まっている。その中でも固体酸化物形燃料電池 (SOFC) は、中容量でも発電効率 50% 以上が見込めるため、熱需要の少ないスーパーマーケットや小規模事務所など広範囲への適用が期待されている。

そこで、中容量 (数十 kW 規模) で高い発電効率 (AC 発電効率 50% 以上) を有する SOFC システムの実用化技術を開発し実証を行う。

2. 研究開発目標

(1) 平成 26 年度～平成 27 年度

要素技術開発として常圧型 SOFC モジュールの開発及び高効率システムの開発を実施する。常圧型 SOFC モジュールの試作/評価を行うと共に、モジュール及びシステムの評価用装置を設計/製作し、常圧システムの評価を行い、発電効率 50%LHV 以上の見通しを得る

(2) 平成 28 年度～平成 29 年度

実証機の設計/製作/評価を通して、発電効率 50%LHV 以上及び耐久性 4 万時間以上の見通しを得る。また、商品機の基本設計を行い、発電システム価格 100 万円/kW 以下の見通しを得る。

3. 研究開発成果

3.1 研究開発成果

(1) 平成 26 年度～平成 27 年度

実規模サイズとなる 40kW 級モジュールの性能評価と排熱回収システムなどの製品設計に必要な要素技術評価が可能な評価装置 (実規模検証機) を設計/製作し、初期評価を実施した。表-1 に成果まとめを示す。

表-1 成果まとめ (1)

項目	目標	結果
SOFCモジュールの開発	SOFCモジュールの設計/製作 直流での性能評価 DC発電効率(定格): 55%以上	SOFCモジュールの設計データ取得 直流性能の把握 DC発電効率(定格) 55%以上を確認
常圧型高効率システムの開発	高効率システムの設計/製作 排熱回収効率(定格): 30%以上 常圧システムの制御ロジック開発	高効率システムの設計技術確立 排熱回収効率(定格) 30%以上を確認 制御ロジックの確立

(2) 平成 28 年度～平成 29 年度

平成 28 年度に 40 k W 級実証機的设计/製作を行い、平成 29 年度から実証試験を開始した。図-1 に実証機の外觀を示す。実証機は当社千葉工場内に設置し、基本性能評価及び耐久性評価を実施した。基本性能として、計画通りの発電効率 50%以上及び排熱回収効率 30%以上が得られた。また、夏場の耐久性評価により外気温度が 40℃を超える真夏日でも安定運転可能なことが確認できた。表-2 に実証機的设计仕様と実験結果を示す。

図-1 実証機の外觀



表-2 実証機的设计仕様と実験結果

項目	設計仕様	実証機評価結果
発電出力	AC_40kW級	AC_40kW
出力電圧	AC_210V	AC_210V
原燃料	都市ガス_13A	都市ガス_13A
送電端発電効率	50%	50%
排熱回収効率	30%	30%
運転方式	自動運転、待機運転	自動運転、待機運転
パッケージ寸法	5.0m×2.2m×2.8m	5.0m×2.2m×2.8m
騒音値(平均)	60 dB以下	59 dB
排気中NOx濃度	5 vol.ppm以下	5 vol.ppm以下
排気中SOx濃度	未検出	未検出

3.2 成果の意義

本実証事業を通して、中容量(数十kW)で高い発電効率(AC発電効率50%以上)を有するSOFCシステムの要素技術開発と、実証機により実用化に向けた目標性能を達成することができ、製品化に向けた最低限の技術課題はクリアできたと考えている。

3.3 研究開発項目別課題

価格目標であった発電システム価格 100 万円/kW 以下は、今回達成することが出来なかった。発電システムのメイン機器である SOFC セルスタックをはじめ想定通りに低コスト化が進まなかったことが原因であるが、低コスト化開発は現在も継続中であり今後低コスト化が図られるものと考えている。

4. まとめ及び課題、事業化までのシナリオ

現状、SOFC セルスタックをはじめ発電システム価格が目標通りの見通しが得られていないので、今後、セルスタック価格の低下推移などを把握しながら出荷開始時期を判断していきたいと考えている。

5. 研究発表・特許等

－研究発表・講演、文献等、その他－

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2016/1	FCDIC	2015 年度版年報	横山尚伸
2	2016/1	SOFC 研究会	富士電機における燃料電池の開発状況	横山尚伸
3	2015/9	NEDO	中容量常圧型円筒形 SOC システムの実用化技術実証	横山尚伸
4	2016/5	FCDIC	富士電機における業務用 SOFC の開発状況	大栗延章
5	2016/12	SOFC 研究発表会	富士電機における業務用 SOFC の開発状況	大栗延章
6	2016/10	NEDO	中容量常圧型円筒形 SOC システムの実用化技術実証	横山尚伸
7	2017/2	化工学会	富士電機における燃料電池の開発状況について	畑間未来子
8	2018/1	FC EXPO 2018	富士電機における業務用燃料電池の開発と今後の展望	清田透
9	2018/1	山梨大学	PAFC, 小型 SOFC システム構成及び補機部品の解説	清田透
10	2017/12	電気評論	業務用 SOFC (固体酸化物形燃料電池) の開発状況	大栗延章
11	2017/12	最新電池技術-2018	富士電機における燃料電池の開発状況	横山尚伸
12	2017/12	SOFC 研究発表会	富士電機における業務用 SOFC の開発状況	大栗延章
13	2017/11	第 24 回寺子屋式講演会	富士電機における燃料電池の開発状況	横山尚伸
14	2017/11	日本電機工業会	富士電機における固体酸化物形燃料電池発電システムの開発状況	大栗延章
15	2017/10	FCDIC 年報	固体酸化物形燃料電池システムの開発	加藤太一郎
16	2017/8	NEDO	中容量常圧型円筒形 SOC システムの実用化技術実証	横山尚伸
17	2017/5	FCDIC	富士電機における業務用 SOFC の開発状況	加藤太一郎

－特許等－

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託会社名
1	2015/6/10	特願 2015-117215	燃料電池システム	富士電機株式会社
2	2015/6/12	特願 2015-118856	燃料電池モジュール	富士電機株式会社
3	2015/12/18	特願 2015-247024	燃料電池装置	富士電機株式会社
4	2016/2/12	特願 2016-024902	燃料電池装置	富士電機株式会社
5	2016/2/12	特願 2016-024856	燃料電池装置	富士電機株式会社
6	2016/3/9	特願 2016-045720	燃料電池システム	富士電機株式会社
7	2016/3/18	特願 2016-054943	筐体、燃料電池モジュール、及び燃料電池システム	富士電機株式会社
8	2016/7/15	特願 2016-140327	改質水蒸発器及び発電装置	富士電機株式会社
9	2016/8/9	特願 2016-156584	燃料電池装置及び燃料電池装置の運転制御方法	富士電機株式会社
10	2016/9/6	特願 2016-173496	燃料電池システム及びその運転方法	富士電機株式会社
11	2016/9/13	特願 2016-178431	燃料電池システム	富士電機株式会社
12	2016/9/16	特願 2016-181512	燃料電池システム及びその運転方法	富士電機株式会社
13	2016/10/28	特願 2016-211818	燃料電池システム及びその運転方法	富士電機株式会社
14	2017/4/19	特願 2017-082434	燃料電池システム	富士電機株式会社
15	2017/6/9	特願 2017-114652	燃料電池システム、燃料電池システムの制御装置及び制御方法	富士電機株式会社
16	2017/9/13	特願 2017-176213	固体酸化物形燃料電池ユニット	富士電機株式会社
17	2018/1/12	特願 2018-003081	変形対策部材及び燃料電池システム	富士電機株式会社
18	2018/2/28	特願 2018-34820	固体酸化物形燃料電池システム	富士電機株式会社
19	2015/10/29	特願 2015-024127	燃料電池	富士電機株式会社
20	2017/1/31	102017000000	燃料電池装置	富士電機株式会社
21	2017/8/31	102017000000	燃料電池システム及びその運転方法	富士電機株式会社
22	2017/1/26	15/416598	燃料電池装置	富士電機株式会社
23	2017/9/1	15/694002	燃料電池システム及びその運転方法	富士電機株式会社
24	2017/8/24	PCT/JP2017/030395	燃料電池システム及びその運転方法	富士電機株式会社
25	2017/9/4	PCT/JP2017/031756	燃料電池システム及び固体酸化物形燃料電池	富士電機株式会社
26	2018/2/26	PCT/JP2018/006873	燃料電池システム	富士電機株式会社

(6. 2. 八)

「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発／固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証／固体酸化物形燃料電池(SOFC)による業務用・産業用システム実証および事業化検討」

助成先：日立造船株式会社

●成果ガリ(実施期間：平成26年度～平成29年度終了)

- ・実用環境下での20kW級システム実証試験を実施。4,000h定格ベースロード運転により、AC送電端効率50%以上を達成、耐久性4万時間以上の見通しを得た。また、本実証で得られた課題を反映し、熱解析での検証も踏まえて商品機のコンパクト化設計を完了した。
- ・現状、目標コスト100万円/kWの見通しが得られず、システム簡略化などコストダウン対策の検討継続中。

●背景/研究内容・目的

既存の熱機関による発電設備と比較して発電効率の高いSOFCは、エネルギーの安定供給および温室効果ガス排出量削減の観点から期待が大きい。特に数百kW未満においては効率差による省エネルギー効果が大きく、実用化の可能性が高い。高圧・低圧系統の分散型電源普及により、全電源エネルギー効率の改善を目指す。

また、化石燃料を持たない国としては、バイオ燃料の有効利用、風力・太陽光といった再生可能エネルギーの出力平準化も必須であり、SOFCの燃料多様性を活かしてこれらの課題に取り組みいく必要がある。

本助成事業においては、都市ガスを原燃料としたSOFCによる高効率分散型発電装置を開発・実用化することを目的とし、燃料多様化も含めた事業拡大の足掛かりとした。具体的には、10kW級ベンチ試験により、スケールアップ課題抽出・対策検討を行い、さらに20kW級実証機にて実用条件下での安全性・耐久性の確認を行う。

●研究目標

実施項目	最終目標
A	10kW級ベンチ試験による性能確認およびスケールアップ課題抽出
B	実用環境下20kW級実証による、AC送電端効率50%以上達成、耐久性4万時間以上の見通し
C	商品機設計の完了
D	装置単価100万円/kWの見通し

●実施体制及び分担等



●これまでの実施内容／研究成果

(実施項目A)

平板型家庭用セルスタック12基を搭載した10kW級ベンチ試験により、システム性能確認を実施。安定した起動昇温から発電までの運転を実現するとともに、各スタック毎のガス流量分配や温度分布など、実証機および商品機の設計に資するデータを取得した。またスタック端で9kW(55%相当)以上の性能を確認するとともに、送電ロスなどの課題抽出・対策検討を実施した。

(実施項目B)

セルスタック24基を搭載した20kW級実証機により、実用環境下(都市ガス供給および排熱利用条件の異なるユーザーサイト2ヶ所)での4,000h定格ベースロード試験を実施した。AC送電端50%以上を達成、電圧低下率から耐久性4万時間以上の見通しを得るとともに、安定運転およびさらなる高効率化に向けた課題を抽出し、商品機の設計に反映した。

(実施項目C)

上記実証の成果を反映、また熱流体解析ソフトFluent(ver.14.5)を用いたヒートバランス確認も踏まえてボットモジュール構造の最適化・コンパクト化検討を実施、商品機の詳細設計を完了した。実証機比で、装置体積-45%、設置面積-30%、重量-27%を達成した。

(実施項目D)

部品点数低減、コンパクト化および軽量化による材料費・加工費の削減を検討したが、現状では100万円/kWの見通しが立たず、量産化効果、システム簡略化等による対策検討を継続中である。

●今後の課題

- ・大幅なコストダウン
- ・さらなる高性能化による採算性向上(発電効率(燃料利用率)、耐久性)
- ・市場拡大のための多用途展開

●実用化・事業化の見通し

本助成事業において性能面での目標をクリアし、導入補助金ありきでの実用化の目的は立った。グリッドバリエーションを突破して事業自立するためには、大幅なコストダウン、高度化(高効率、耐久性向上)が必要。事業拡大のために、多用途化や海外展開も視野に検討を進める。

●研究成果まとめ

実施項目	成果内容	自己評価
A	10kW級性能確認、課題抽出	○
B	20kW級実証により、50%以上達成、4万h耐久見通しを得る	○
C	商品機設計で大幅なコンパクト化	○
D	100万円/kW未達、検討継続	△

特許出願	論文発表	外部発表	受賞等
8	3	13	0

課題番号：6. 2. ハ

助成事業名：「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発／固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証／固体酸化物形燃料電池(SOFC)による業務用・産業用システム実証および事業化検討」

1. 研究開発概要

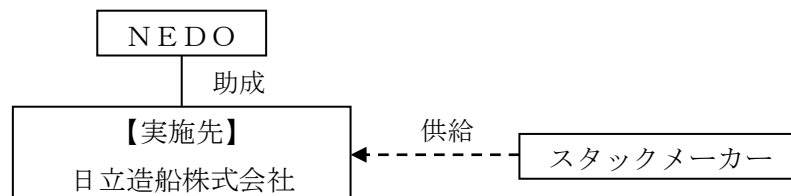
(1) 背景・目的

既存の熱機関による発電設備と比較して発電効率の高いSOFCは、エネルギーの安定供給および温室効果ガス排出量削減の観点から期待が大きい。特に数百kW未満においては効率差による省エネルギー効果が大きく、実用化の可能性が高い。高圧・低圧システムの分散型電源普及により、全電源エネルギー効率の改善を目指す。

また、化石燃料を持たない国としては、バイオ燃料の有効利用、風力・太陽光といった再生可能エネルギーの出力平準化も必須であり、SOFCの燃料多様性を活かしてこれらの課題に取り組んでいく必要がある。

本助成事業においては、都市ガスを原燃料としたSOFCによる高効率分散型発電装置を開発・実用化することを目的とし、燃料多様化も含めた事業拡大の足掛かりとしたい。具体的には、10kW級ベンチ試験により、スケールアップ課題抽出・対策検討を行い、さらに20kW級実証機にて実負荷条件下での安全性・耐久性の確認を実施する。

(2) 事業体制



2. 研究開発目標

(1) 目標

第1期 中間目標 (H28年3月末)	第2期 最終目標 (H30年3月末)
<u>10kW級ベンチ試験による性能確認およびスケールアップ課題抽出</u> ①LHV基準で、発電端効率50%以上達成、およびAC端効率50%以上の見通し ②大型化の技術課題に対する解決策見極め ③10kW試験を通して得られた知見を元に、20kW級実証機的设计・製作完了 ④コンパクト化の見通し 20kW級商品機 0.3m ² /kW	<u>20kW級実証により、都市ガス対応機として以下の内容を満たすこと</u> ①AC端50%以上(LHV)、および耐久性40,000hの見通し ②商品機の試設計完了 ③装置単価100万円/kWの見通し

(2) 上記目標設定の理由・開発内容

【第1期 (H26～H27年度)】10kW級ベンチ試験による性能確認およびスケールアップ課題抽出

① LHV基準で、発電端効率50%以上達成、およびAC端効率50%以上の見通し

商品機レベルの容量(20kW級を予定)での実証試験を実施する前に、まずは既存の10kWベンチ試験装置(H25年度に製作、セルスタック搭載数12基)での発電試験により、起動停止など運転方法を確立するとともに、大型化の際の課題を抽出し、実証試験機設計にフィードバックすることを主目的とする。設計に資するデータ取得が主目的であるため、耐久性を考慮した長時間の連続運転は実施しないものとする。発電効率は、高度化が進むガスエンジン等の熱機関との比較から、商品機においては少なくともLHV基準でAC端(送電端)効率50%以上を目標とする。家庭用の様な小容量設備が対象であれば、45%程度でも燃料電池以外の他方式との差別化が可能であるが、業務用・産業用を対象とした場合は高めの設定が必要となる。

ここでは、まずDC端(発電端)効率50%以上達成を確認し、パワーコンディショナーなど発電部以外の最適化を講じることによってAC端効率50%以上を達成できる見通しを立てる。なお、当該助成事業における発電システムはアノードガスリサイクルは行わないものとする。

② 大型化の技術課題に対する解決策見極め

大型化の際の技術課題としては次のような項目が挙げられる。

- ・セルスタックを複数接続することによる熱マネジメント
- ・各セルスタックへの燃料および空気の流量分配
- ・電氣的接続方法(抵抗値増大)
- ・ホットモジュール(構成材料)の耐久性

これら以外で10kW級発電試験を通して抽出された課題も含めて、解決策を見極める。

③ 20kW級実証機的设计・製作完了

10kWベンチ試験機的设计・製作・試験を通して、安全・安定な運転操作を重視した課題抽出・対策検討を行い、20kW級実証機的设计・製作を実施する。

④ コンパクト化の見通し

装置サイズについては、他技術・他製品との比較から、20kW級商品機において設置面積0.3m²/kWの見通しをたてることを中間目標とする。コンパクト化の障害となる主要因は、発電時のスタックの温度管理である。セルスタックを納める断熱モジュールにおいては、約700℃での高温操作、かつ発電時の発熱反応により、スタックを密接配置することで部分的に過昇温し、セルスタックの劣化を加速する可能性がある。そこでシミュレーション(ANSYS Fluent14.5)により、セルスタックレイアウトと温度分布の関係を推測し、コンパクト化に向けた最適なセルスタックレイアウトを検討する。

【第2期 (H28～H29年度)】20kW級実証により、都市ガス対応機として以下の内容を満たすこと

① AC端50%以上(LHV)、および耐久性4万時間の見通し

前述のとおり、発電効率はLHV基準でAC端50%以上とする(アノードガスリサイクル無し)。

これを 20kW 級実証試験により立証する。技術的なハードルは非常に高くなるが、事業拡大においてはアノードガスリサイクルにより AC 端 55%も視野に入れる。

また家庭用においては、既に 90,000 時間に向けた取組みが行われているが、大型化における影響(運転条件の不安定さなど)を考慮し、本助成事業終了時(事業参入時)には第一ステップとして 40,000 時間を目標とし、事業拡大の高度化において最終的に 90,000 時間を指すものとする。期間内で実際に 40,000 時間実証することは不可能であり、目標 4,000 時間、少なくとも 2,000 時間以上の連続運転により、単スタック発電における電圧低下傾向と比較することで、耐久性 40,000 時間(電圧低下率 10%以内)の見通しを付ける。

②商品機の試設計完了

実証試験機的设计・製作・試験を通して、課題抽出・対策検討、コンパクト化およびコストダウンを加味した商品機的设计を行う。商品化時の装置サイズは他社製品機との比較上、0.2m²/kWを目標とする。

③装置単価 100 万円/kW の見通し

自社 FS における採算性試算例では、都市ガスを燃料とした場合の採算性を考慮した装置単価上限は 40~50 万円/kW、FIT を利用可能なバイオ燃料においては 80~100 万円/kW 程度と見込まれる。本助成事業においては、参入時コストダウン目標として 100 万円/kW の見通しを立てることとした。事業拡大時においてセルスタック等、量産化を達成した際の装置単価目標は、50 万円/kW とした。

(3) スケジュール

開始予定日 平成 26 年 9 月 1 日

終了予定日 平成 30 年 2 月 28 日

表 1 NEDO 助成事業スケジュール

	平成26年度				平成27年度				平成28年度				平成29年度			
	第1 四半期	第2 四半期	第3 四半期	第4 四半期	第1 四半期	第2 四半期	第3 四半期	第4 四半期	第1 四半期	第2 四半期	第3 四半期	第4 四半期	第1 四半期	第2 四半期	第3 四半期	第4 四半期
1. 10kW級ベンチ試験		△助成事業開始														
①発電基本データ取得																
②スケールアップ 課題抽出																
③コンパクト化検討・装置改造																
2. 20kW級実証試験																
①1号機装置設計・製作																
②試運転調整(起動停止確認)																
③発電データ取得																
④2,3号機設計・製作																
⑤耐久性試験2000h以上																
3. 事業化検討																
①市場・性能・コストの見通し																
②課題抽出と対策検討																
年度内方針	10kW級ベンチ試験評価				20kW級実証機設計・製作				起動停止方法確立と安定運転				耐久性確認と事業化検討			

3. 研究開発成果

3. 1 研究開発成果、達成度

(1) 10kW 級ベンチ試験による性能確認およびスケールアップ課題抽出

①LHV 基準で、発電端効率 50%以上達成、および AC 端効率 50%以上の見通し

②大型化の技術課題に対する解決策見極め

a. 装置概要

本開発製品は既に技術開発が進んでいる家庭用の平板型セルスタック (0.8kW 級) を積載することで業務用・産業用規模への大型化を図るものである。

本助成事業においては、セルスタック単体データを基に 10kW 級ベンチ試験装置を設計・製作し、起動停止方法の確立、発電効率の確認および大型化の際の課題の抽出を行った。

図 1 にベンチ試験装置のフロー図を示す。本装置は、家庭用セルスタックを 12 基搭載した、約 10kW (220V) 出力のモノジェネシステムである。セルスタックの他、燃料改質器、脱硫機、予熱器、燃焼器およびブロア等のプロセス機器、パワーコンディショナー、昇圧チョッパーおよび制御機器で構成される。原燃料となる都市ガス 13A は水蒸気改質により H_2 リッチガスとなって各セルスタックに分配される。カソード空気も同様に各スタックに分配し、約 700°C の条件下で発電反応を行う。電気取出しは各セルスタックを直列に接続し、パワーコンディショナー等を介して AC220V で送電する。

図 2 に同装置写真を示す。セルスタックは 4 段×3 列の配置とし、1 列 (セルスタック 4 基) ごとに改質器を 1 基配置した。改質器は、セルスタックからの輻射を効率良く受けるための構造・配置について熱解析を通して最適化している。

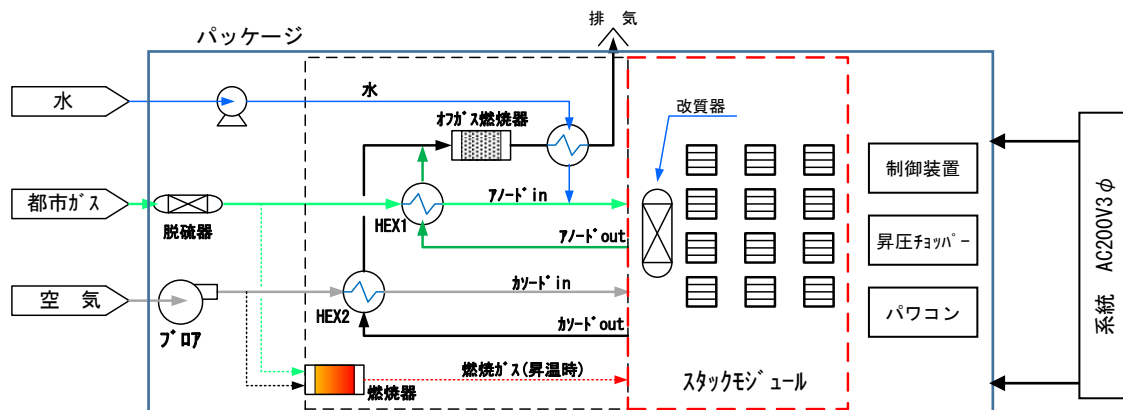
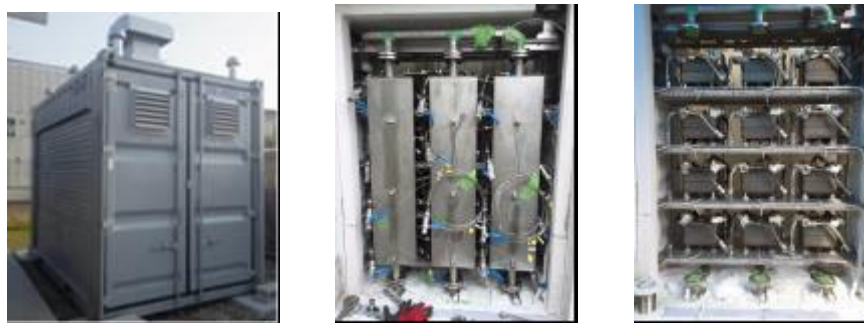


図 1 10kW 級ベンチ試験装置フロー図



(a) 装置外観

(b) 矩形改質器

(c) セルスタック

図 2 10kW 級ベンチ装置 写真

b. プロセスガス流量分配

前述の通り、プロセスガスは燃料、空気共に全セルスタックに対して並列に供給する(図3参照)。ガスの利用率はそれぞれ燃料 75%/空気 50%と設定しているが、偏流が生じると発電効率に影響するだけでなく、セル耐久性にも悪影響をおよぼすため、初期の目標値を±3%と設定した。

図4に本システムでの各セルスタックの流量分配結果を示す。実際の流体条件(温度、組成)での測定は困難であるため、常温のN₂および空気にて体積流量を合わせる条件で評価を行ったが、いずれも目標値以内に納まることが確認できた。セルスタック圧力損失バラツキ次第では、流量分布が大きく乱れる可能性があるため、今後はサンプル数を増やし、必要に応じてオリフィスを設置するなど、流量を均一化することも検討していく。

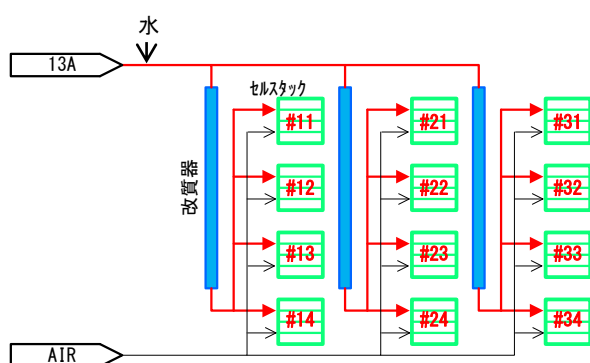


図3 プロセスガス分配フロー

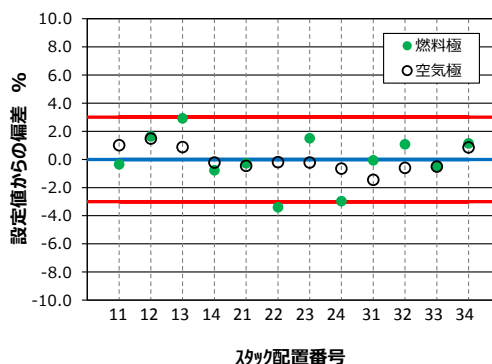


図4 流量分配測定結果(一例)

c. 起動昇温

本装置における起動昇温用の熱源は都市ガス触媒燃焼(Pd系)を採用した。燃焼ガスを断熱モジュール内(セルスタック外部)に吹き込むことで加熱する。セルスタック単体での昇温速度は熱衝撃によるセル破損を避けるべく4°C/min以下と設定されているが、本開発におけるスケールアップシステムにおいては、安全を見て2°C/min以下に設定した。当社採用のセルスタックは、低温作動タイプ(~700°C)でもあるため、他社システムよりも短時間での起動、具体的には昇温⇒起動発電⇒定格発電までで6時間以内を目指す。

起動昇温データの一例を図5に示す。発電開始可能な温度に到達するまで約16時間を要したが、一連の操作(昇温⇒水供給⇒燃料供給(改質)⇒発電)を問題なく行えることを確認できた。昇温時間に関しては、試験装置(試作1号機)としての構造上の要因が主であり、2号機以降では放熱量の低減、燃焼ガスの熱回収効率向上を考慮した構造としていく。

また現状運転においては熱衝撃によるセルスタックへのダメージを避けるため、昇温初期の燃焼負荷を50%以下に抑え、セルスタック表面ならびに断熱モジュール内雰囲気温度に過度の傾斜が生じないように、1.0°C/minを下回る緩やかな昇温を行った。燃焼ガス吹き込み方法の改善を検討するとともに、これまでのセルスタック単体での実績から昇温状況とセルスタック耐久性との因果関係を精査し、温度傾斜・昇温速度の許容値を設定していく。

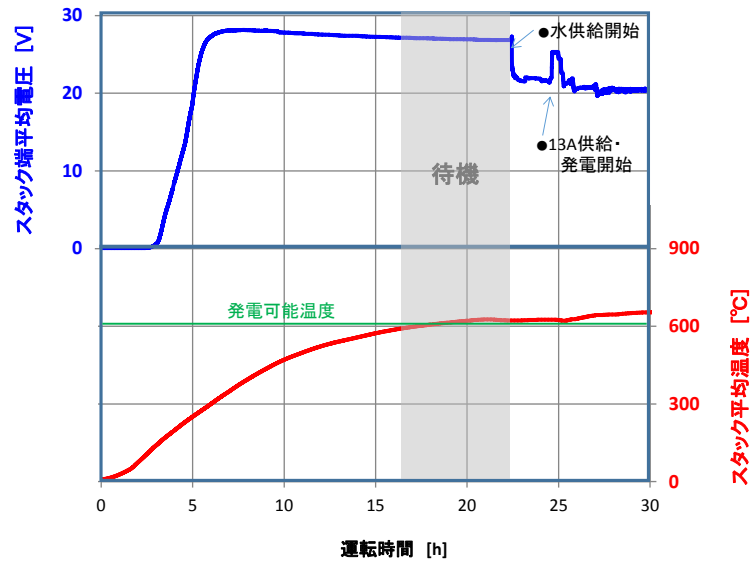


図 5. 起動昇温データ

d. 発電性能評価

セルスタック単体でのI-V特性と12セルスタック直列におけるI-V特性とを比較することで、本装置のシステムとしての妥当性を確認する。

図6にI-V特性の比較を示す。OCVおよび定格電流(42A)引出し時における電圧値は、ほぼ同じ値が得られたことから、本装置がシステムとして正常な発電機能を持つことを確認した。

次に図7にセルスタック表面温度と電圧出力の関係を示す。セルスタックモジュール内(第一断熱箱)に複数セルスタックを配置する場合、熱管理状況によりセルスタック毎に温度差が生じる。700°C未満の温度範囲において、40°Cの温度差が生じた場合、電圧値としては3%程度の差が生じる。セルスタック温度が高いと流体の圧力損失が増加するため、12セルスタックにおける流量分配は温度が高いセルスタック程流量が少なくなる。燃料および空気の利用率の観点からは電圧値が低下する方向となるが、当該温度範囲においては、温度上昇に伴う電池内部抵抗の低下の影響が大きく、電圧値は上昇する結果となった。流量分配同様に、発電効率向上のためセルスタック温度の均一化を検討していく。

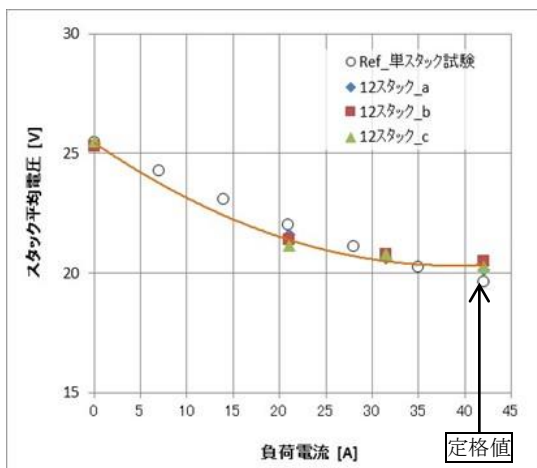


図 6 I-V 特性比較

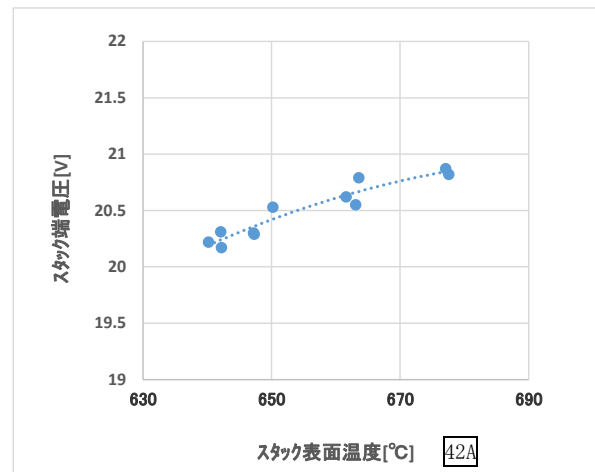


図 7 セルスタック温度と電圧値の関係

e. セルスタック温度管理

前述の通り、発電出力向上に対してセルスタック温度管理が非常に重要であるとともに、耐久性の面でも厳密な管理が必要となる。

発熱反応を伴うセルスタックを積載するため、適正な除熱を行わないと、セルスタックモジュール内の上部、中央部に位置するセルスタックが異常高温になる可能性がある。コンパクト化を考慮しセルスタック間距離を小さくしていくと、一層そのリスクは増す。

当社のシステムにおいては、セルスタックにおける発熱を吸熱反応を伴う改質器で回収する構成としている。改質器の構造、セルスタックモジュール内の構造物のレイアウトおよびプロセスガスの供給条件など、熱解析ソフトFluent(ver. 14.5)を用いて最適化の検討を行い、実証機および商品機の設計にフィードバックする。熱解析結果に関しては3. 1 (4) 項で記述する。

f. システムロスの調査

ここまで、セルスタックそのものの性能(発電端)とプロセスの健全性について述べてきた。次に、現状の変換ロスおよび送電抵抗について述べる。

現状の10kW級試験装置における状況を表2にまとめる。各セルスタック間を接続している導線(Ni)および昇圧器までの導線(Ni)における抵抗ロスが大きい状況にある。

表2 各測定部位での出力推移

測定箇所	出力(kW)	低下要因
各スタック端出力積算(DC)	10.33	
↓	↓	・・・スタック間導線抵抗
12スタック直列端出力(DC)	9.7	
↓	↓	・・・送電抵抗、昇圧ロス
パソコン入(DC)	8.9	
↓	↓	・・・パソコン効率(95%)
パソコン出(AC)	8.4	

セルスタックを積載する構造においては、700℃環境下に曝される電気配線および接続端子が多いことから、様々な損失因子が考えられる。現在、損失原因を特定および改善に向け下記のような検討を実施中である。

- 導線(Ni)の高温下曝し試験
- 接続端子による損失調査
- スタック電極、端子および導線構造の見直し
- 導体および端子の試作、効果の確認

③10kW 試験を通して得られた知見を元に、20kW 実証機的设计・製作完了

10kW 級ベンチ試験および熱解析等による知見を元に基本設計を完了。H28 年 2 月には装置本体完成予定である。合わせて初期商品機の仕様も検討しており、これらの仕様を表 3 に示す。基本的には現状で技術が確立しつつある 10kW 級のプロセスを 2 式併設することで 20kW 級とする。機器点数が多くなることからコンパクトおよび低コストの観点では課題が残るが、一刻も早い実用化を目指すためにスケールアップにおける技術的課題を可能な限り除外したいという意図である。

目標となる装置サイズについては 0.3m²/kW を目標としているが、初期実証機においては作業性を考慮してややゆとりのある構造としており、基本設計段階では達成が難しい状況にある。今後断熱構造の見直しや機器レイアウトを見直すことで、よりコンパクト化を図る。

また、実証機および商品機の外観デザインについても検討中である。業務用規模かつ都市ガス燃料対応機とした場合、都市部で人目に触れる機会が多く、従って本開発製品の外観から、「先進・高効率」、「安心・安全」がイメージできるものである必要があると考える。図 8 に実証機～商品機の外観デザイン検討例を示す。排熱回収オプション接続、容量アップ時の併設し易さ、および強度・施工性など、機能面も考慮して検討を進めたい。

表 3 実証機・商品機仕様

	実証機	初期商品機
■導入年	H27～	H29～
■出力規模	20 kW級	20 kW級
■燃料	都市ガス13A	都市ガス13A
■スタック 接続方法	ガス:全パラ 電気:全24直列	ガス:全パラ 電気:全24直列
■排熱利用	・モノジェネ (排ガスは冷却後に排気)	・モノジェネ(冷却排気) ・コージェネ(温水回収)
■水供給方法	外部供給	外部供給
■ボンベガス 有無	緊急時バージ用N ₂ および 4%H ₂ -N ₂ beseガス	ポンベ無し

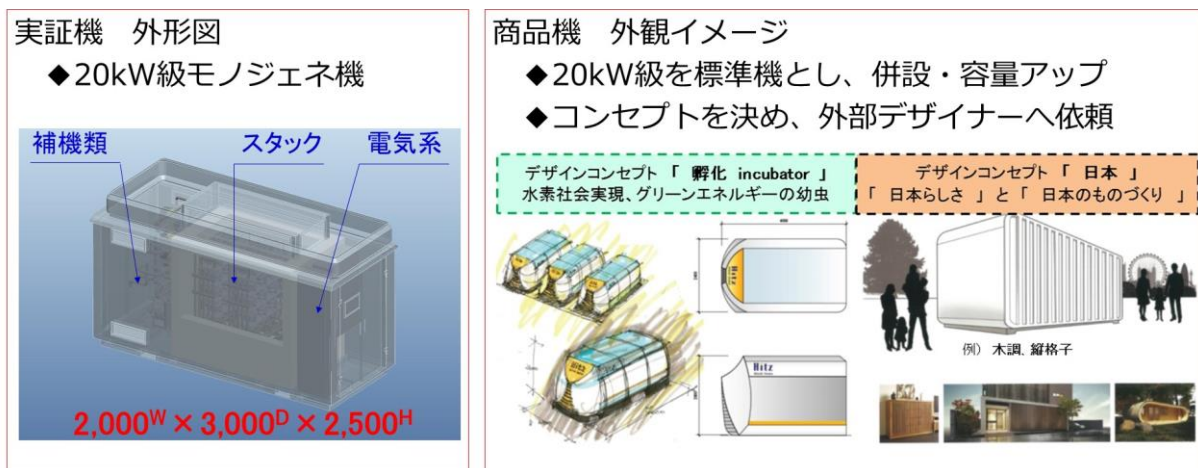


図 8 実証機～商品機の外観デザイン (例)

④コンパクト化検討

発熱体であるセルスタックを複数近接することで部分的な異常高温が生じ、セルスタックが破損する恐れがある (コンパクト化の阻害要因)。また、前述の通り、セルスタック間の温度分布が大きくなると発電効率の低下にも繋がる。そこで、熱解析を通して、セルスタックモジュール内のヒートバランスや温度分布を予測し、セルスタックモジュール構造および運転条件の最適化を実施した。

a. 解析モデル作成

解析ソフト Fluent (ver14.5) を用いて、まずは 10kW 級モジュールのモデル作成を完了した。ここでは、計算の簡略化のため、セルスタックおよび改質器内部における詳細な反応は考慮せず、温度依存性のある発熱体・吸熱体として取り扱うこととした。

b. 検討結果

セルスタックレイアウトや改質器構造などをパラメータとして、異常高温等の問題を避けつつ、実証機ベースで $0.3\text{m}^2/\text{kW}$ の目途を得た。セルスタックの除熱の状況としては、モジュール内ではガス(空気)の対流は非常に小さく、改質器および断熱材への輻射による熱移動が主となっている。

また、今回の検討では、セルスタック表面およびモジュール内雰囲気温度分布を 20°C 以内に抑え、かつ改質器およびセルスタックの操作温度を反応に適した温度レベルに維持可能な構造および操作条件を確認した。図 9 に解析結果一例を示す。スタック操作温度は、耐久性を考慮して表面温度基準で 700°C を上限としているが、この温度範囲においては図 7 に示す通り、操作温度が高ければ高いほど出力が高くなる。従って、本開発システムにおいては操作温度を 670°C と設定し、解析では 670°C 前後で如何にスタック間の温度差を抑えられるかに主眼を置いて検討を進めた。図 9(c) では、スタック表面温度が $670\sim 680^\circ\text{C}$ の範囲内で維持できていることが示されている。

本解析結果より、セルスタック異常高温等の問題を回避しつつ、ホットモジュールのコンパクト化を図ることが可能となり、 20kW 級商品機サイズ $0.3\text{m}^2/\text{kW}$ の目途を得た。

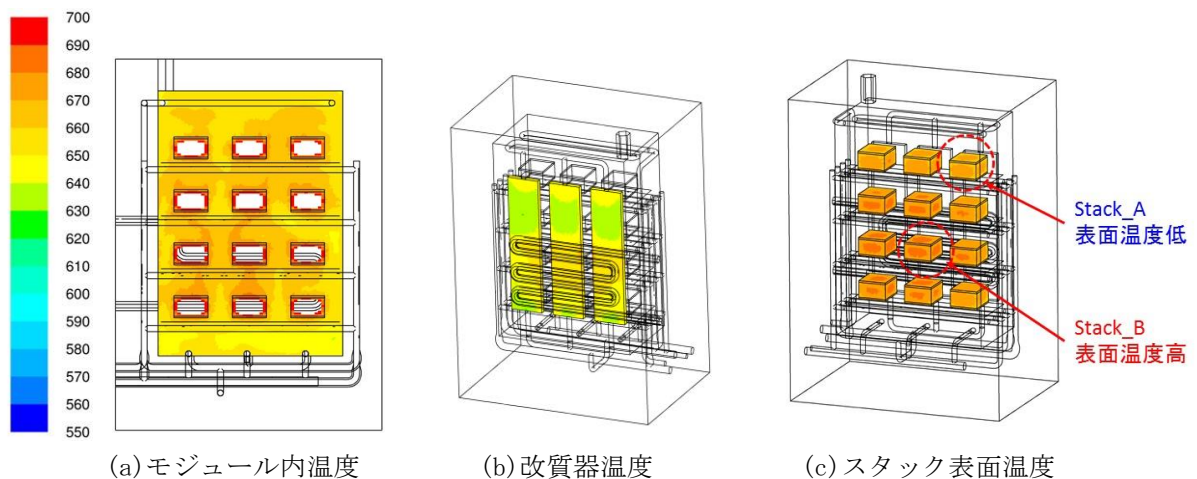


図 9 10kW 級モジュール熱解析結果一例

(2) 20kW 級実証試験による性能確認と商品化に向けた検討

①20kW 級実証試験による AC 送電端 50%以上達成、および耐久性 4 万時間の見通し

a. 20kW 級実証装置概要

H28 年度までの 20kW 級社内実証試験等のデータおよび熱解析による知見を元に、社外実証用 20kW 級装置を 2 基設計・製作した。これを用いて実負荷環境下での耐久性確認試験を行うべく、ユーザーサイト 2 ヶ所 ((i)大阪産業技術研究所、(ii)咲くやこの花館) を設定した。いずれも先進的な水素プロジェクトの創出を目指し、大阪府および大阪市が運営する

「H₂Osaka ビジョン推進会議」の取組みの一環として本実証事業を推進。大阪府バッテリー戦略研究センター、大阪市環境局・建設局、ものづくりビジネスセンターなど支援機関のサポートにより実施した。

それぞれユーティリティ、設置場所環境および熱電需要の異なる条件下において長期運転を行うことで、耐久性の確認を行うとともに、サイトの顧客だけでなく幅広く見学者を招いて、その完成度をアピールした。図 10 にシステムフローを示す。

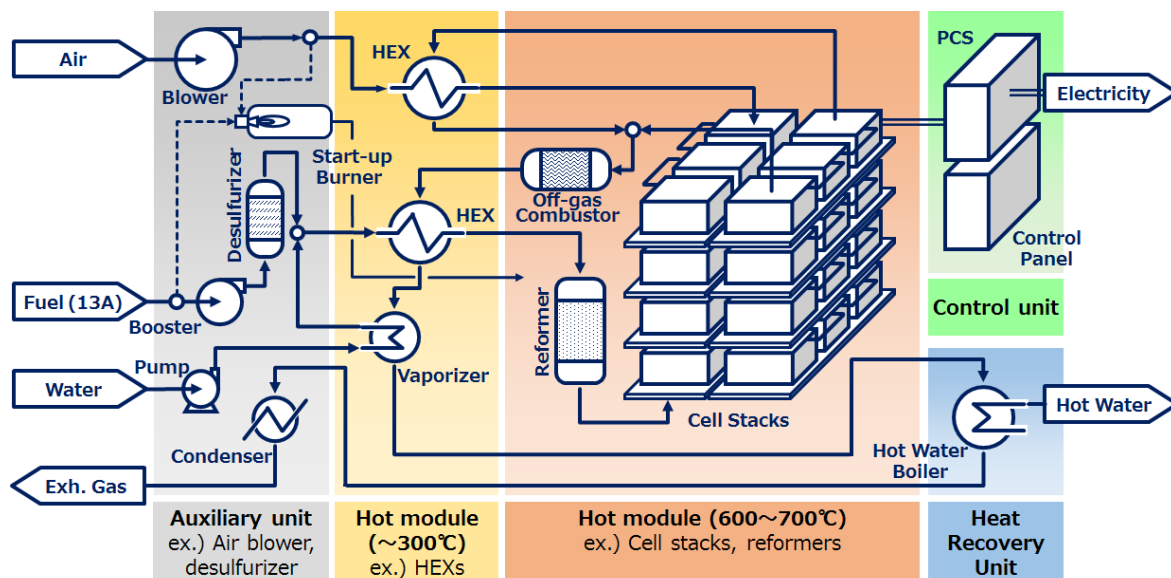
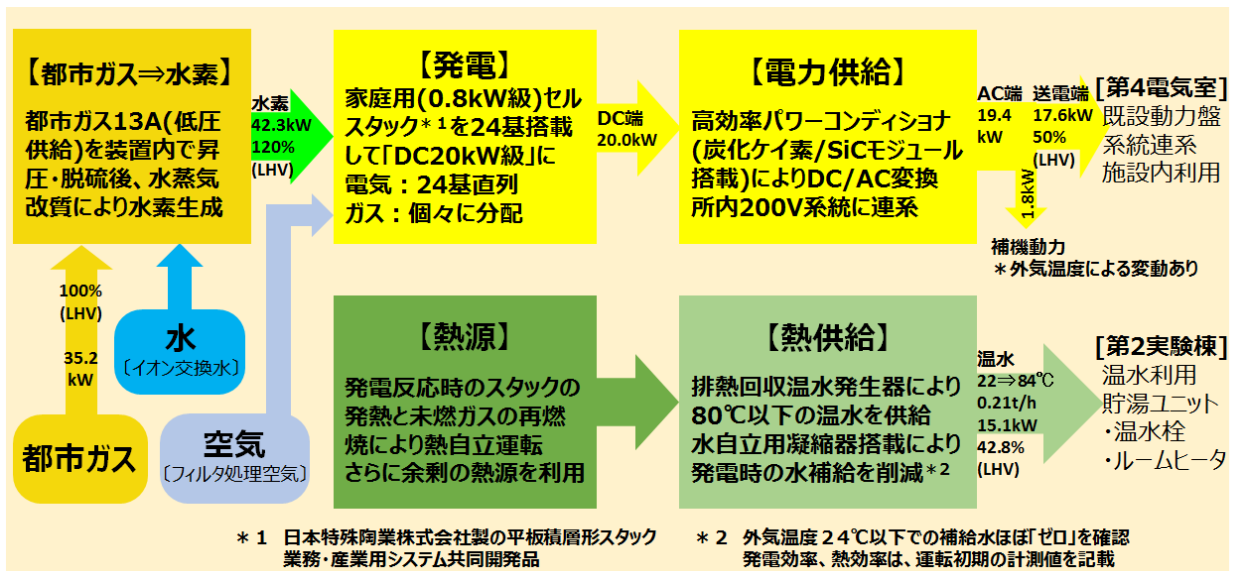


図 10 20kW 級システムフロー図

b. サイト(i)大阪産業技術研究所 実証結果

以下に、発電運転時の性能（エネルギーバランス）を示す。都市ガス 13A(低圧導管)を用いて、セルスタック端で 20.0kW(効率 57%)、PCS で変換後に 19.4kW、装置内消費動力を差し引いて AC 送電端出力 17.6kW(効率 50%)を達成し、これを系統連系し同所内動力として利用していただいた。また、排熱として 11kW 以上(外気温 24°C時 15.1kW 実績)を得ることが可能で、これにより 80°C温水を製造しユーザーに提供、温水栓やルームヒーターの熱源として利用していただいた。総合効率は 80%以上(最大 92.8%)を達成した。



また、セルスタックの耐久性に関して、本機に搭載されている代表的な3台における電圧(スタック出力)の経時変化を図11に示す。約1600h経過時に、装置不具合により3カ月程度の停止期間が生じ、その前後で外気温およびセルスタック操作温度が20℃程度低下したことを受け、電圧値の絶対値は0.5V程度低下したが、これは劣化によるものではなく、気温の上昇とともに電圧値も回復すると予測される。むしろ電圧低下率は著しく低減し、非常に安定した運転を実現出来ていることがわかる。

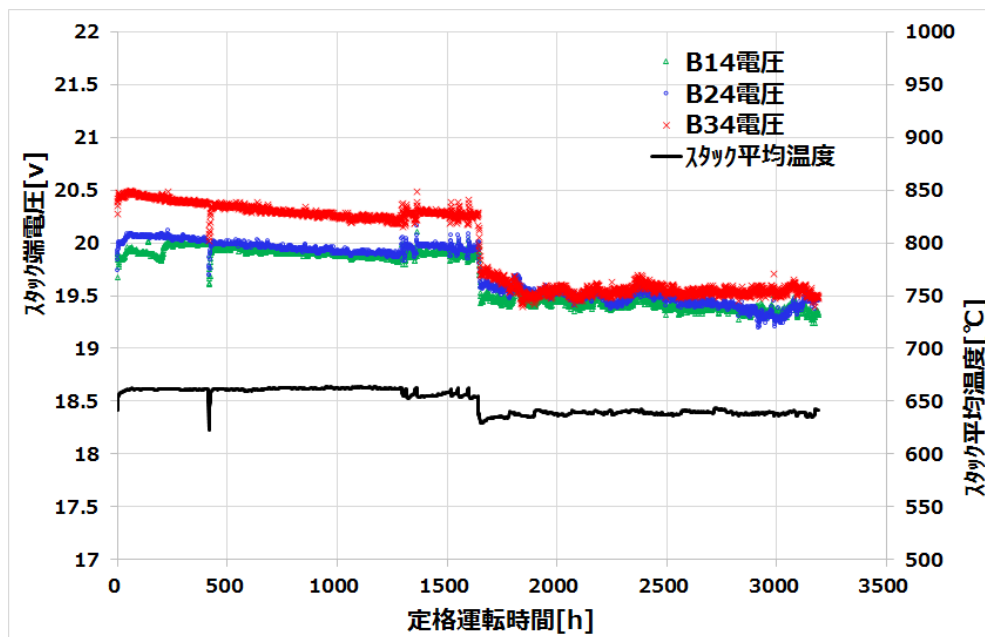
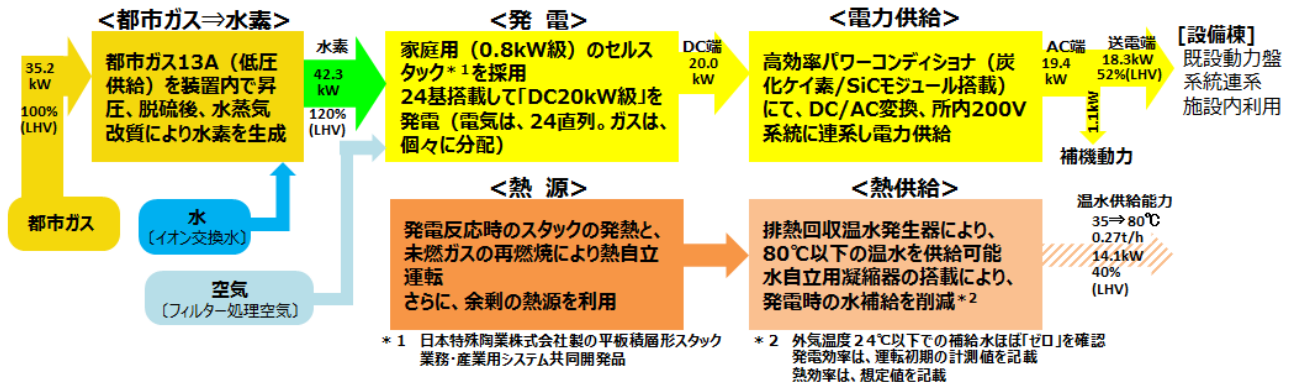


図11 耐久性データ一例

c. サイト(ii)花博記念公園鶴見緑地 咲くやこの花館 実証結果

以下に、発電運転時の性能（エネルギーバランス）を示す。都市ガス 13A(中圧導管)を用いて、セルスタック端で 20.0kW(効率 57%)、パワーコンディショナーで変換後に 19.4kW、装置内消費動力を差し引いて AC 送電端出力 18.3kW(効率 52%)を達成し、これを系統連系し同所内動力として利用していただいた。中圧導管を利用できたことから、燃料昇圧ブローが不要となり、サイト(i)と比較して発電効率が約 2%向上した。温水の利用は無いため、排ガスはラジエータで冷却し、凝縮水を回収リサイクルした後に排気する、モノジェネシステムとなっている。



一部、本助成期間後も含め 4,000h の定格連続運転を実施し、電圧低下率により 4 万時間耐久性の評価を行った。図 12 にセルスタック全電圧の経時変化を示す。本システムにおいてはホットモジュール内の操作温度をコントロールすることなく、成り行きで推移するため、外気温の変動に伴いセルスタック電圧値も変動する。従って電圧低下率を厳密に評価することは困難であるが、前半 2,000h においては 0.826%/kh、後半 2,000h においては 0.103%/kh となり、40kh 以上の耐久性の目途が立ったと言える。これは、セルスタック単体データと同等であり、システムとしての妥当性を検証出来た。

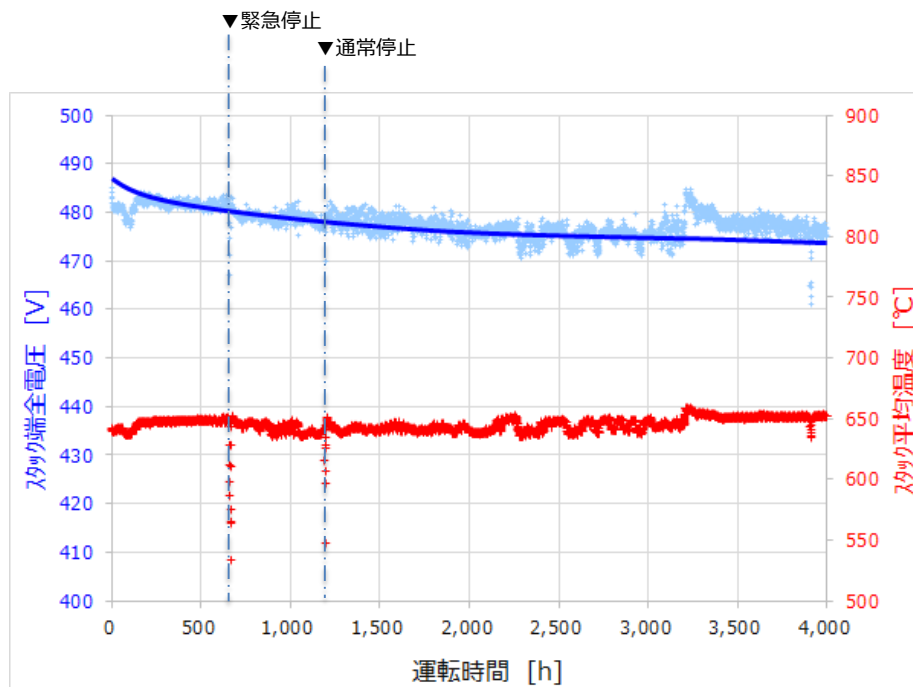


図 12 耐久性データ一例

②商品機の試設計完了

本助成事業における実証機は、その性能と安全性を確認することを主目的としており、装置サイズは幅 2.2m×長さ 4.3m×高さ 2.8m 程度と大きく、目標である 0.3m²/kW と大幅な乖離があった。そこで実証試験の実績と熱解析によるホットモジュール内のヒートバランス解析データを元に、性能・安全を担保しつつ機器点数の低減や高集積化など、簡素かつコンパクトな商品機の実設計を実施した。一例として、図 13-1 に実証機、図 13-2 に商品機のホットモジュールのイメージ図を示す。セルスタックのレイアウト変更、プロセス配管の簡素化および各種熱交換器の設計変更により、装置容積比-45%、設置面積比-30%のサイズダウンに成功した。ほぼ目標値の 0.3m²/kW を達成し、設置場所への人荷用エレベーター 1.5ton 以上での搬入も可能となった。

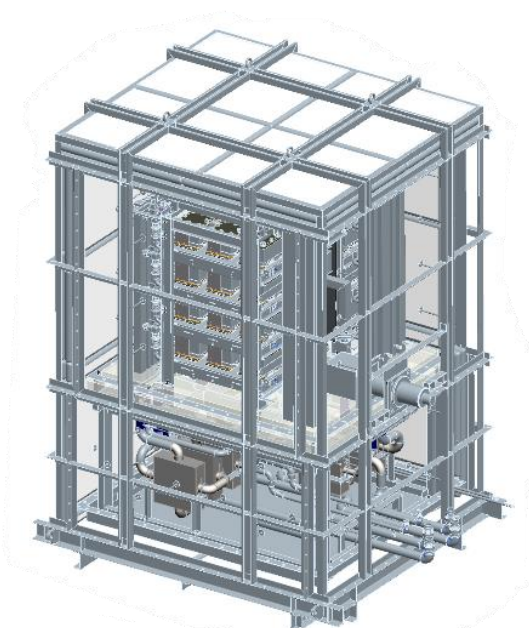


図 13-1 実証機ホットモジュール

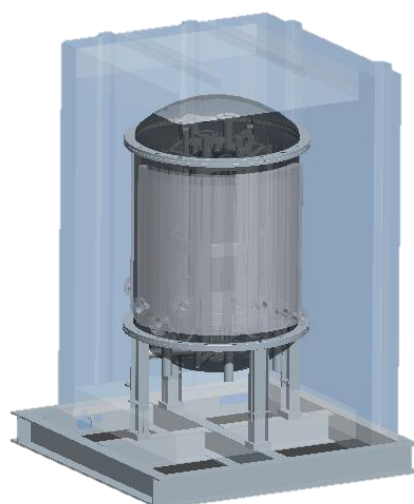
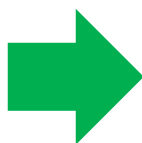


図 13-2 商品機ホットモジュール

③装置単価 100 万円/kW の目途

コンパクト化と同様に機器点数・材料費の低減、それに伴う組立工数の低減など、現行システムベースでの削ぎ落としとともに、高度化（発電効率向上）などによる採算性および付加価値の向上について検討中である。具体的な検討内容は下記のとおり。

- 改質器・オフガス燃焼器の一体化（ホットモジュール内高温機器点数の削減）
- プロセスガス供給システムの簡略化（プロセス供給部機器点数削減）
- 構成材料の共通化、および新材料、加工パートナーの開拓
- 燃料利用率の向上（＝設備単価低減、採算性向上）

現状、装置製作および運転の実績が乏しいため、実用化初期における 100 万円/kW の達成は困難な状況である。補機等メーカーとの協業も視野に入れ、量産による大幅コストダウンを意図した機器・システムの仕様最適化を検討していく必要がある。

(3) 成果まとめ

表4に本助成事業の成果と達成度をまとめる。

表4 成果と達成度一覧

開発項目	目標	成果	達成度
(1)10kW 級性能確認、課題抽出	<ul style="list-style-type: none"> ・発電端 50%達成と AC 送電端 50%以上見通し ・大型化の技術課題に対する解決策見極め ・20kW 級実証機的设计、製作完了 ・コンパクト化の見通し 	<ul style="list-style-type: none"> ・10kW ベンチ試験により、セルスタック端 50%を達成、安定運転を確認した。 ・また技術的課題を抽出し、AC 送電端 50%の見通しを得るとともに、20kW 機実証機的设计製作を完了した。 ・熱流体解析により 0.3m²/kW の見通しが得られた。 	○
(2)_①20kW 級実証試験による性能確認	<ul style="list-style-type: none"> ・AC 送電端 50%以上 ・耐久性 4 万時間の見通し 	<ul style="list-style-type: none"> ・4,000h 定格運転実施。AC 送電端平均 50%以上達成、電圧低下率を確認し 4 万時間耐久の見通しが得られた。 	○
(2)_②商品機試設計	<ul style="list-style-type: none"> ・設計完了 	<ul style="list-style-type: none"> ・設計完了。実証機に対して設置面積 30%サイズダウン。 	○
(2)_③コストダウン検討	<ul style="list-style-type: none"> ・装置単価 100 万円/kW の見通し 	<ul style="list-style-type: none"> ・積算により上市初期の達成が困難であることを確認。検討継続。 	△

3. 2 成果の意義

(プロジェクト達成の意義)

本事業は、業務用・産業用規模での SOFC の有効性（技術的、経済的）について実証試験を通して確認していくことを目的としており、上記最終目標を達成することで、系統電源よりも高い発電効率、ガスエンジンなど従来熱機関を上回る顧客価値を有する分散型発電装置を提供することが可能となる。また災害時にも燃料供給さえ継続されれば電力および熱を供給可能で、BCP 電源としての活用も期待できる。さらに、ここで得られる開発製品は都市ガス以外の幅広い燃料・各種プラント等への展開も可能で、エネルギー産業全体の活性化に貢献するものである。

3. 3 開発項目別残課題

表 5 に開発項目別の課題と対策をまとめる。

表 5 課題と対策一覧

開発項目	課題	対策	達成時期
(1)10kW 級性能確認、課題抽出	<ul style="list-style-type: none"> セルスタック温度分布 送電、変換ロス 	<ul style="list-style-type: none"> 解析により機器レイアウト最適化 低抵抗材料採用、導線および端子構造見直し、高効率パワーコンディショナー 	平成 28 年 9 月末(済)
(2)_①20kW 級実証試験による性能確認	<ul style="list-style-type: none"> 騒音 コンパクト化 	<ul style="list-style-type: none"> ブロー等補機の低騒音型の採用、ホットモジュール放熱低減によるパッケージ内冷却空気量低減 断熱構造見直し、解析を踏まえた機器レイアウト最適化 	2019 年 9 月末
(2)_②商品機試設計	<ul style="list-style-type: none"> 高温下使用における材料選定(特に接続部シール) 客先設置要件への対応 	<ul style="list-style-type: none"> 高温酸化に強い特殊鋼材、メタル 0 リングの採用 オールインパッケージではあるが、分割して人荷用エレベーターで搬入可能とする 	2019 年 9 月末
(2)_③コストダウン検討	<ul style="list-style-type: none"> 100 万円/kW の見通し得られず 	<ul style="list-style-type: none"> 量産効果が大となる最適仕様の検討およびメーカーとの協業 	2024 年頃

4. まとめ及び課題、事業化までのシナリオ

(1) 本プロジェクトにおける実用化・事業化の考え方

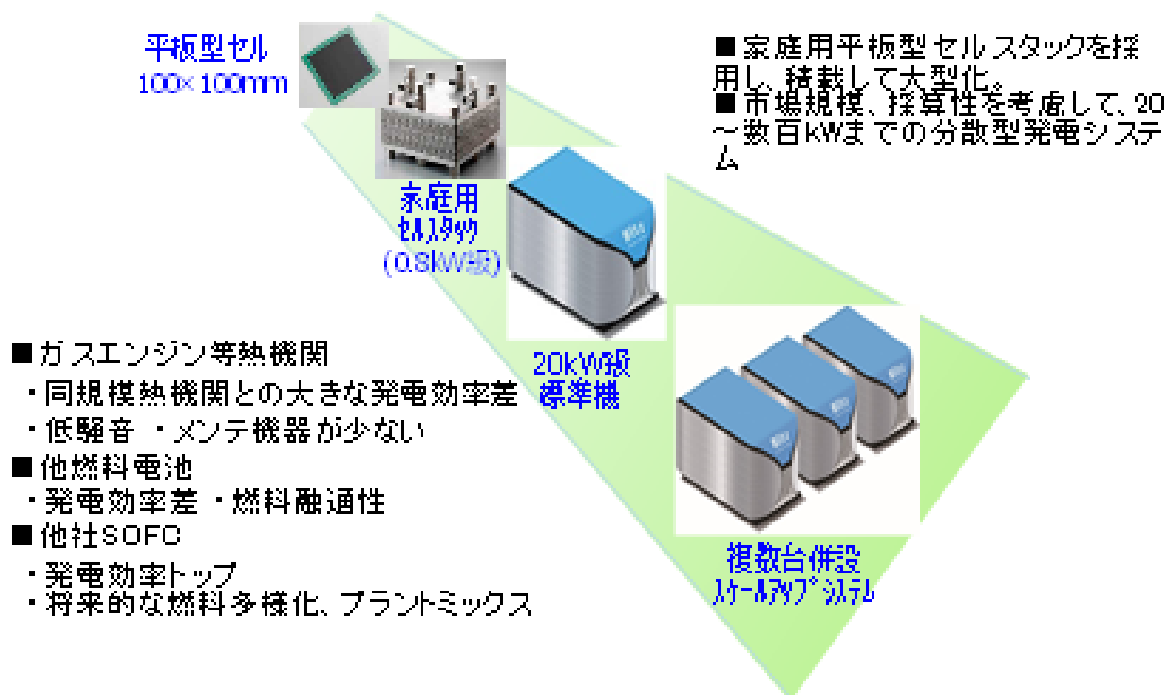
①事業化戦略・基本方針

- a. 業務・産業用 SOFC の開発・製造・販売を行う。
- b. 市場参入期は、都市ガス 20kW 級機の商品化に注力する。
- c. 教育体制、保守パートナー制、および量産化コストダウンを可能とするアライアンスの構築。
- d. PPS、売電事業との連携で競争力強化を図る。

②事業化ステップ（製品ターゲットと対象市場）

- a. 都市ガス対応機(20kW)
対象市場／顧客：食品スーパー、ホテル、病院など
- b. 都市ガス対応機高度化(高効率、コストダウン、20～200kW)
対象市場／顧客：各種工場など
- c. 燃料多様化対応機(20～200kW)
対象市場／顧客：バイオ燃料製造設備など
- d. 革新的高度化(超高効率化、大型化)
対象市場／顧客：ガス化燃料、再エネ出力平準化

(2) 開発製品について

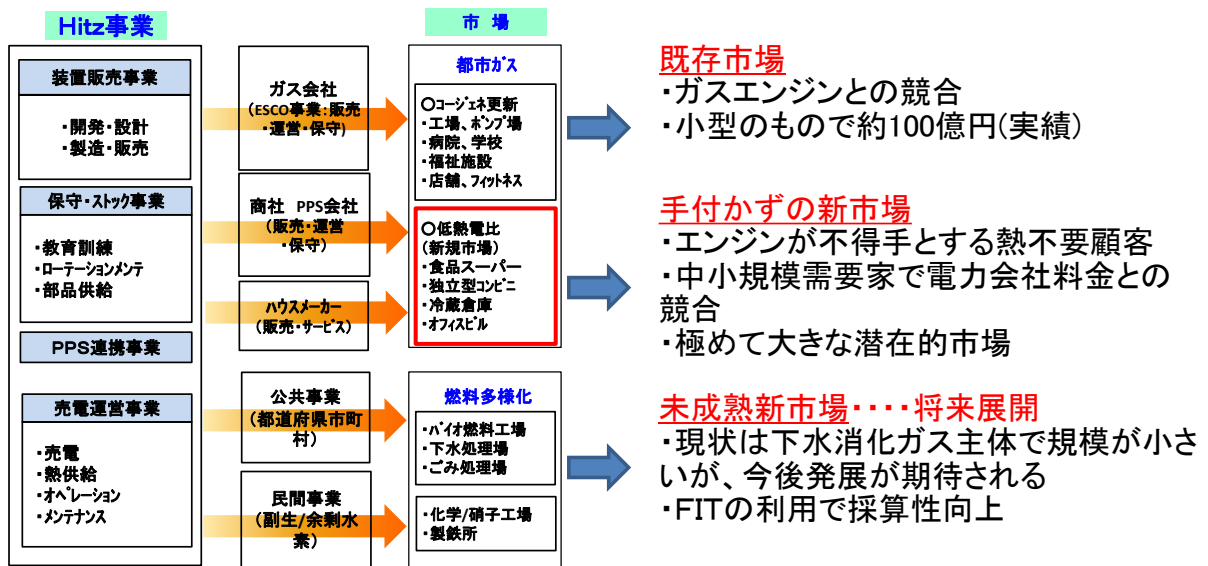


(3) 市場性

H26 年度に実施した事業採算性の検討において、対象市場としては電力量料金の高い 500kW 未満の中小規模分散型発電市場が有望であることを確認した。既存のガスエンジンが導入されてきた市場に加えて、熱を不要とする市場の大きさに注目し、高い発電効率を活かして分散型発電を普及したい。

この数千億円以上と見込める都市ガス市場に対して、現状国内では未成熟で非常に小さい市場ではあるバイオ燃料等への燃料多様化市場も今後の伸びが期待できる。既に F 社製 PAFC の下水消化ガス製造サイトへの導入が進められているが、今後大きく伸びが期待されるごみ由来燃料、石炭ガス化プラントなどへの導入も期待でき、業務用～大型産業用まで大きな市場が期待できる。

一方で、分散型発電設備を普及していく場合、顧客価値として従来の電力料金を下回る発電単価を実現する必要がある。採算性検討の結果、比較的中小規模（350kW 未満）の電力契約を行っている顧客が有望であると判断した。小規模かつ低熱電比の市場が非常に大きいと期待されることは前述のとおりである。今後もエネルギー関連会社、ハウスメーカーなどからの情報収集を密に行い、市場性を精査する。



5. 研究発表・特許等

－研究発表・講演、文献等、その他－

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2015.9.1 2016.10.26 2017.9.20 2018.9.27	NEDO 成果報告会	固体酸化物形燃料電池 (SOFC) による業務用・産業用システム実証および事業化検討	高木義信
2	2015.9	Hitz 技報 (2015vol.76)	固体酸化物形燃料電池による産業用発電装置の開発(第一報)	高木義信ほか※論文
3	2018.11	Hitz 技報 (2018vol.79)	固体酸化物形燃料電池による産業用発電装置の開発(第二報)	高木義信ほか※論文
4	2015.7.2	FCCJ 定置用 WG	固体酸化物形燃料電池 (SOFC) による業務用・産業用システム実証および事業化検討	高木義信
5	2015.12.18	技術情報センター	日立造船における SOFC システム開発の組み	高木義信
6	2016.11.11	RITE 無機膜研究センター	Hitz 日立造船における SOFC システム開発	高木義信
7	2016.1.28	SOFC 研究会	日立造船における業務・産業用 SOFC 開発	
8	2016.5.24	機械学会伝熱シンポ	Hitz 日立造船における SOFC システム開発	高木義信
9	2017.1	FCDIC 機関紙	定置用産業用 SOFC 発電装置の開発	高木義信ほか※論文
10	2017.3.3	FC_EXPO(ビッグサイト)	日立造船における業務用 SOFC 開発	高木義信
11	2017.7.20	OSTEC 燃料電池部会	日立造船における業務用 SOFC 開発	高木義信
12	2017.8.24	FCDIC 研究会	日立造船における業務用 SOFC 開発	高木義信
13	2017.9.20	FC_EXPO(インテックス大阪)	産業用燃料電池開発と水素社会に向けた Hitz の取組み	家山一夫
14	2017.10.31	SOFC 研究会	日立造船における業務用 SOFC 開発	高木義信
15	2017.12.22	三重県水素・燃料電池研究会	日立造船における業務用 SOFC 開発	高木義信
16	2018.11.6	RITE 無機膜シンポジウム	SOFC 燃料電池開発状況と市場投入に向けて	家山一夫

－特許等－

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託会社名
1	2015.03.31	特願 2015-070985	起動ユニットおよび起動用車両	
2	2015.3.31	特願 2015-070986	燃料電池システム	
3	2015.5.29	特願 2015-109290	燃料電池システム	
4	2015.7.3	特願 2015-134248	燃料電池システム	
5	2015.8.26	特願 2015-166753	燃料電池システム	
6	2015.8.31	特願 2015-170445	昇温装置及び燃料電池システム	
7	2016.5.31	特願 2016-108909	燃料電池システム	
8	2016.7.6	特願 2016-134036	燃料電池システム	

(6. 2. 2) 「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発

／ 固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証 ／ 固体酸化物燃料電池 (SOFC) を用いた業務用システムの技術実証」

助成先：株式会社デンソー
共同実施先：東邦ガス株式会社

● 成果ガマリ (実施期間：平成27年12月15日～平成28年度)

- ・業務用SOFC発電ユニットの実証試験を実施し、目標を満たす発電出力AC4.54kW/発電効率AC50%を確認し、技術成立性を検証した。
- ・連続運転劣化率目標-0.8%/khrに対し、1.5%/khrで劣化率目標には未達。ただし、セルスタックの燃料極微構造の改良や空気極の被毒対策で、セルスタック自体の耐久性向上は確認できているため、次期モデルではシステムとして0.5%/khr程度の劣化率に抑えられると考えられる。

● 背景/研究内容・目的

<背景>

- ・業務用SOFCシステムの実証試験を実施し、その導入効果の検証及び実用化に向けた技術開発、課題を抽出する。

<研究内容>

- ・業務用SOFCシステムの要素開発、実証評価を実施し、導入効果の検証、および実用化に向けた課題の抽出を行う。

【NEDO事業実施目標】

発電性能 出力AC4.5kW (DC5.0kW)
効率AC50% (DC55%)

● 研究目標

実施項目	目標
A	基本設計仕様構築
B	実用化課題抽出
C	基礎耐久課題抽出

● 実施体制及び分担等

NEDO	株式会社デンソー (実施項目A/B/C)
	東邦ガス株式会社 (実施項目B)

● これまでの実施内容/研究成果

- 技術実証を目的とした発電ユニットの製作および評価を通じ、以下を実施した。
- ・発電出力と効率の初期性能目標を満たすことを確認、設計検証を完了した。
 - ・部分負荷発電を含む基本運転を確認し、各業務ユーザーにおけるCO₂削減量、1次エネルギー削減率などの導入効果を試算した。



発電ユニット実証機

	目標値	実測値
燃料	都市ガス(13A)	
定格出力	AC 4.5kW (DC 5.0kW)	AC 4.54kW ※1 (DC 5.0kW)
発電効率	AC 50%以上	AC 50% ※1
連続運転劣化率	0.8%/khr以下 ※2	1.5%/khr
CO ₂ 削減効果	26%以上 ※2	宿泊施設 27% 事務所 16%

※1 DC測定値をPCS変換/補償損失10%考慮
※2 バリ協定期間目標

● 研究成果まとめ

● 今後の課題

- ・システム連続発電の継続、改良CSの搭載評価による信頼性検証
- ・業務用ユーザーの電力、熱需要に応じた最適設計への反映

● 実用化・事業化の見通し

放射を活用した熱マネ技術の効果は確認でき、実用に供することが確認できた。しかし、実用化に際しては、更なる発電効率の向上、低コスト化を意識した構造設計が必要。

上記2点に主眼を移した開発を継続する。

実施項目	成果内容	自己評価
A	目標性能達成	○
B	計画通りの推進中	△
C	計画通りの推進中	△

特許出願	論文発表	外部発表	受賞等
なし	2件	5件	なし

課題番号： 6. 2. ニ

研究開発名：「**固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発／固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証／固体酸化物形燃料電池（SOFC）を用いた業務用システムの技術実証**」

1. 研究開発概要

業務用 SOFC システムの実証試験を実施し、その導入効果の検証及び実用化に向けた技術開発、課題を抽出する。なお、共同実施先として東邦ガス株式会社がシステム試験の一部を実施する。

平成 27 年度

- ・基本設計仕様構築

ベンチテスト機を試作。初期性能及び基本作動を評価し H28 年度実証機の改良設計仕様を明確にする。

平成 28 年度

- ・基礎耐久課題抽出

基礎耐久課題抽出機を試作し連続運転を実施。基礎耐久課題を明確にする。

- ・実用化技術課題抽出

SOFC システムの模擬負荷実証試験を実施。導入効果の検証、性能変化等を調査し課題を抽出する。

2. 研究開発目標

2.1 研究の背景

SOFC はその効率の高さから、環境性、経済性に優れており社会に期待される技術の一つである。近年では業務用途として飲食店等、熱需要のある分野でコージェネレーションとして普及を始めている。しかし熱需要の殆どない事務所、コンビニ等のモノジェネ市場に対しては、省エネ施策の導入がまだ不十分なのが現状であり、この分野にも普及可能となれば更なる省エネ、CO₂ 削減が期待できる。そこで、最新発電所による需要端効率を凌ぐ発電効率を持つ SOFC の開発を行い、モノジェネ使用でも十分な省エネ、CO₂ 削減ができ、且つ経済性も確保できる SOFC システムを開発する。

契約電力 50kW 未満の低圧電力契約者で比較的高い電力料金を払っていて、熱需要が少ないオフィス、事務所、小売店等が有望なターゲットであり、将来の市場規模は、電力・ガス料金や、市場価格にもよるが、年間 2 万台以上と見込まれる。

競争相手として、小型のガスエンジンコージェネがあるが、発電効率が低い為、モノジェネとしては経済的に成立しない点、静粛性の点で SOFC の方が有利と考える。また、太陽電池 (PV) も有効な省エネ手段であるが、気象環境に左右されると云う課題を持っており、制御性に優れる SOFC は有意性の高いシステムの一つである。

2.2 研究開発の目標

申請者の開発する業務用 SOFC システムの商品化目標は以下 (表 1) の通り。

表 1. 研究開発の目標

項目	商品化目標	現状	平成 27 年度	平成 28 年度
発電出力 ^(注 1)	AC4.5kW	DC2.5kW	DC <5kW	AC 4.5kW
発電効率 ^(注 2)	AC50%	AC 41%	AC 44%	AC50%
耐久信頼性 ^(注 3)	>9 万時間	>6 千時間	>9 千時間	>1.2 万時間
連続運転劣化率	-0.1%/kH	-1.5%/kH ^(注 4)	-1.0%/kH ^(注 4)	-0.8%/kH
コスト (ユーザ取得価格) ^(注 5)	40 万円/kW	—	—	—
ユニット体格 (奥行 D) ^(注 6)	D 450mm	—	D 550mm	D 550mm

発電出力 (AC4.5kW) は、電力料金の高い低圧受電契約 (必要発電出力 10kW 未満) の業務用ユーザをターゲットに、既存の業務用コージェネ製品の販売現場からの情報収集に基づき以下の理由で設定している。

- ・業務用ユーザは長期経済メリットよりも低インシヤルコストを重要視する傾向
- ・実販売ベースで低圧受電契約 (必要発電出力 10kW 未満) のユーザは 5kW クラスの商材を選択する傾向、実需で 5kW クラスが 10kW 市場を吸収

耐久信頼性は 10 年 (9 万時間) を目標とし、ユーザが投資回収^(注 7) を 5 年で成し得る前提で発電効率 (50%)、連続運転劣化率 (5 年後に発電効率が 47.5%、10 年後に 45%)、インシヤルコスト (40 万円/kW) を設定している。

体格は同出力の既存ガスエンジンコージェネシステムの約 1~3 割減の容積。特に奥行 (D 寸法) を抑えた壁寄せ薄型にすることでロードサイド店舗などの限られたスペースでの設置に配慮した目標設定としている。

(注 1) DC 出力 5.0kW から目標補機動力 250W、目標電力変換損失 250W を引いた値。
平成 27 年度まではシステム発電しない (AC 電力変換なし) ため DC 出力とする。
耐久評価前の初期性能。

(注 2) LHV ベース。DC 効率から、動作条件 (U_a, U_f) で求まる補機動力損失と電力変換損失を除いた値。耐久評価前の初期性能。

(注 3) 連続運転劣化率から求まる初期性能 (効率) が 10%劣化

(初期効率 50%の場合 5 ポイント劣化) する時間。

(注 4) 単層スタックによる劣化データ。

(注 5) 数十 MW/年 生産ケースでの試算ベースの量産コスト。

平成 29 年度までの開発期間は量産設計前のため目標設定から除外。


(注 6) 最大部の外形。BoP 格納部は約 10%減。

(注 7) 発電効率、連続運転劣化率で求まるランニングコストメリットとイニシャルコストで求まる投資回収年数

2.3 上記目標設定の理由

開発品の業務用 SOFC システムと既存コージェネシステムとの仕様（開発品は目標）の比較を表 2 に示す。

表 2. 研究開発の目標と仕様比較

コージェネシステム	開発品(目標)	業務用ガスエンジンコージェネ	※参考:家庭用燃料電池
外観			
発電出力	4.5kW	5.0~6.0kW	0.7kW
発電効率	50%	28~29%	40~46%
ランニングコストメリット	▲400千円/年	約 ▲220千円/年	約 ▲60~90千円/年
発電ユニット奥行 D	450mm (W1500×H1150×D450)	約500~650mm	約330~400mm

申請者はランニングコストメリットを生む「高発電効率」と、省スペースで設置できる「薄型（小型）」で従来機器と差別化を図ることが業務用ユーザに対する訴求力と成りえるとして前述の通りの目標設定とした。

3. 研究開発成果

3.1 研究開発成果、達成度

(1) 基本設計仕様構築

本研究開発において、設計した 5kW 級 SOFC システムの構成概要を図 1 に、システムフロー図を図 2 に示す。SOFC システムは、5kW 級燃料電池モジュールとガス供給ブロア、水供給ポンプ、脱硫器、排熱回収器、計測機器、制御コントローラなどの補機を一体化したもので、左側の円筒部分に燃料電池モジュールを配置した構造である。

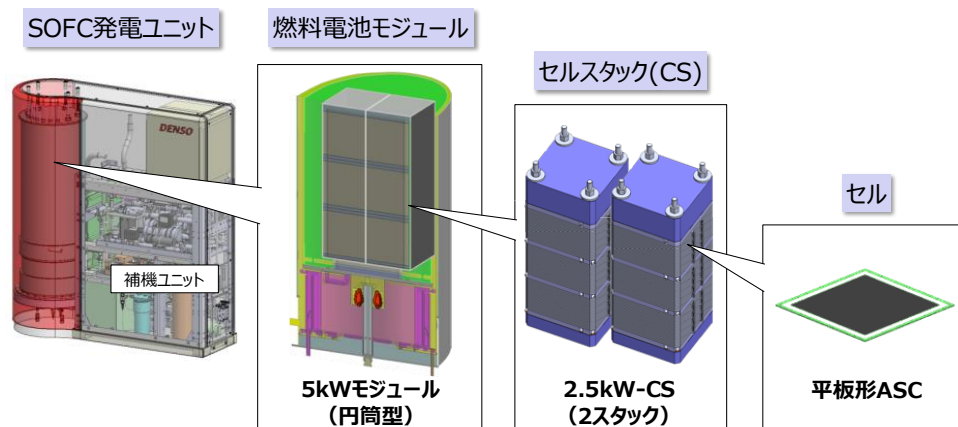


図1 5kW級SOFCシステムの構成概要

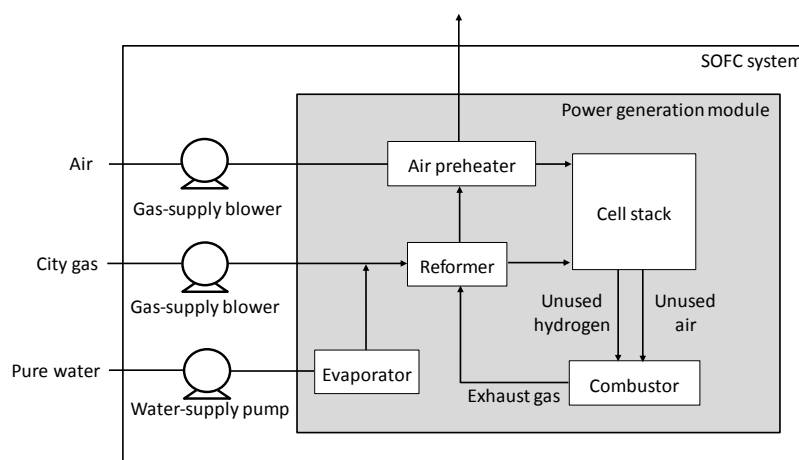


図2 5kW級SOFCシステムのシステムフロー図

システム構成は、燃料電池の積層体であるセルスタック（以下CSと略す）、CSが発電するために必要な空気（酸素）と、改質燃料（水素、一酸化炭素）を予熱・改質してCSに供給する空気予熱器・改質器、未使用のオフガスを燃焼し、予熱に必要な高温の燃焼ガスを生成する燃焼器等で構成される燃料電池モジュール、空気と都市ガス等の被改質原料と改質に必要な水を供給するポンプ類で構成されるBoPシステム（以下システムと略す）とで構成される。

開発品の特長は、発電時に発熱するCSと燃料電池モジュールを構成する空気予熱器や改質器などの予熱機器との間で積極的な輻射伝熱を行うことで、下記の作用と効果を狙っている。

- ・CS温度分布の抑制：温度に起因したCSの性能バラつきを抑え発電効率の向上に貢献
- ・CS冷却空気量の低減：空気ブロー動力を低減し発電効率の向上に貢献
- ・CS周辺断熱材の排除：断熱材スペースを無くすことでHMの小型化に貢献

輻射伝熱を差別化とした燃料電池モジュールの試作機で発電性能評価を実施し、基本設計

仕様の妥当性を検証した。燃料電池モジュール低負荷から定格点まで電流・電圧測定を行った結果を図3に示す。定格電流にてDC出力5040W、DC発電効率55%（LHV）を取得した。これは、PCS変換効率95%、補機損失5%と仮定すると、AC出力4.54kW相当、AC発電効率50%相当の性能であり、初期性能目標を満たすことを確認した。また、燃料電池モジュール内各部の最適な温度制御も合わせて確認し、輻射熱マネジメントを用いたモジュール設計の検証を完了した。

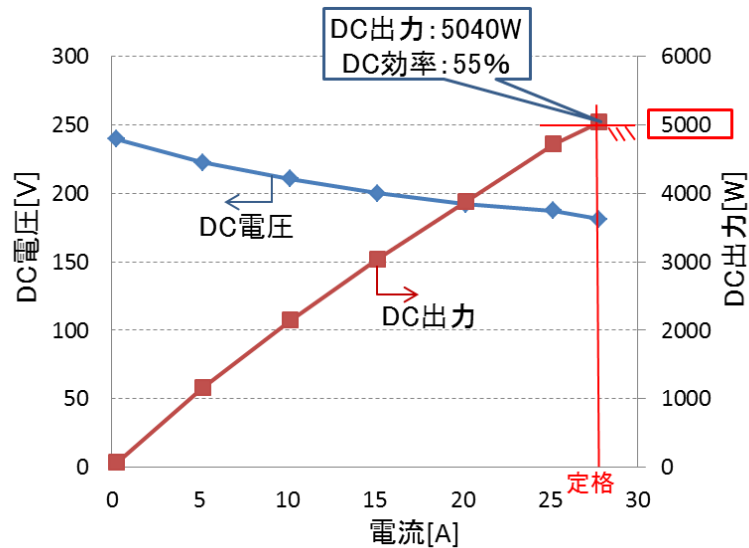


図3 発電特性 評価結果

(2) 基礎耐久課題抽出

商品化にあたっては、長期間の信頼性と耐久性を有する必要があるため、連続運転時の耐久性向上に関わる課題を抽出するため、連続運転を行った。

連続運転結果を図4に示す。累計運転時間は1,250hであり、代表的なセルの1,000hあたりの劣化率(電圧低下率)は1.5%/khrで、事前に検証した搭載CS単体での劣化率1.4%/khrと同等水準であったことから、システム由来の信頼性課題は小さいと考えられる。一方で、CS単体の耐久性については、図5に示すとおり、燃料極微構造の改良や空気極の被毒対策などを行った結果、2017年度モデルCSでは劣化率0.4%/khrの水準まで到達している。このことから、2017年度モデルCSをシステム搭載することで0.5%/khr程度の劣化率に抑えられると考えられ、本研究開発における暫定目標0.8%/khr以下(1.2万hr以上・1.5年耐久)を満たすレベルにあると想定される。

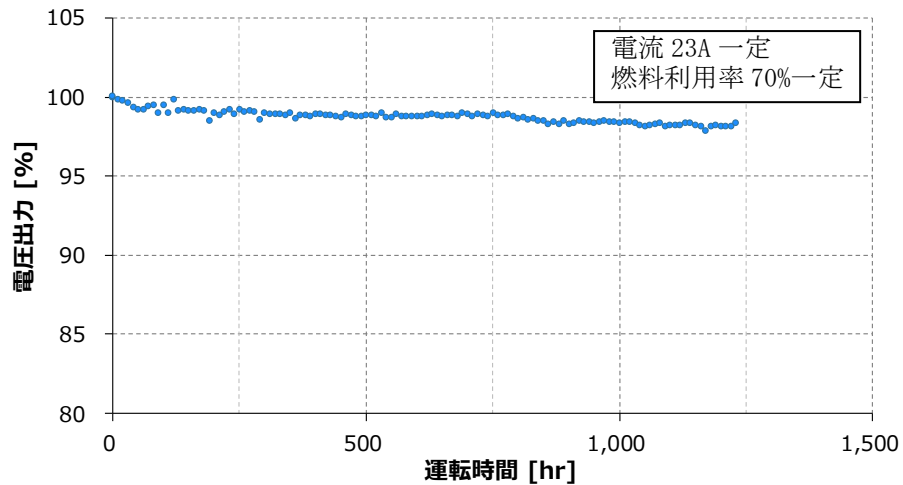


図4 システム実証機の連続運転結果

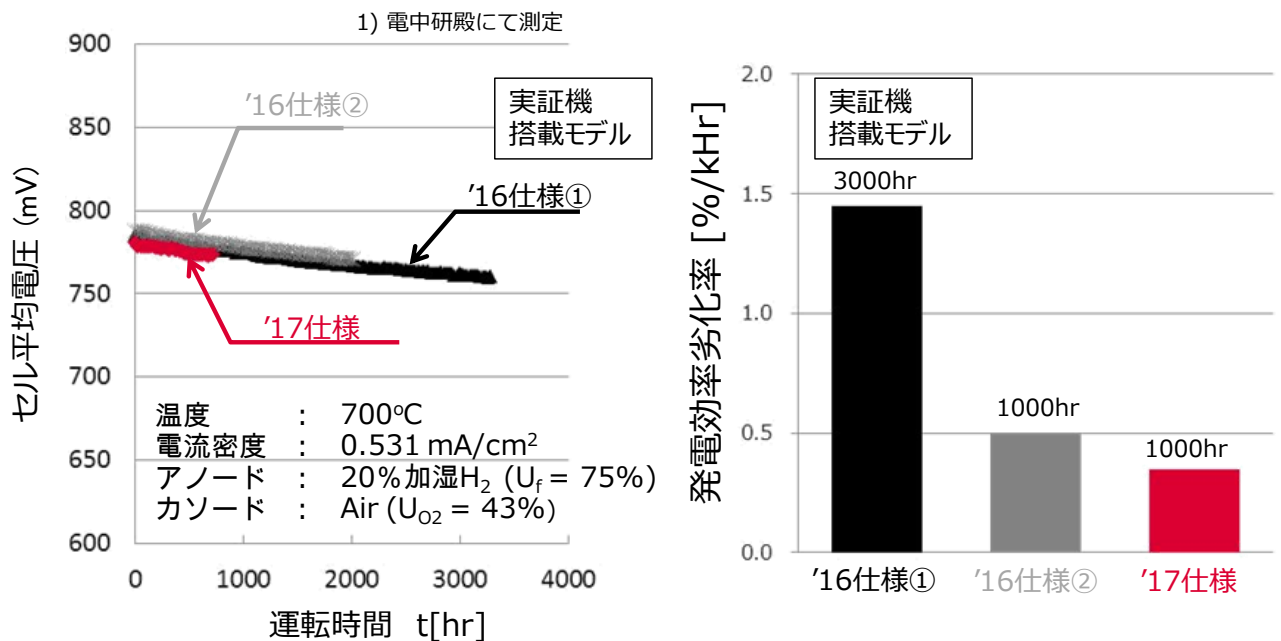


図5 CS単体の耐久性の改良結果

(3) 実用化技術課題抽出

5kW級 SOFC コージェネの導入による省エネ効果や CO₂ 削減効果を検証するため、部分負荷発電時の性能評価を行った。

実証試験のシステム構成を図6に示す。ここでは、システムで発電した電気の消費先として電子負荷装置、システムで発生した熱の消費先としてチラーをあわせて設置した。

部分負荷発電性能評価では、定格出力に対して25%、50%、75%での出力と発電効率を取得し、定格出力に対する負荷率と定格効率に対する発電効率比を整理した結果を図7に示す。50%出力以下における発電効率が低いが、発電モジュールの断熱設計見直しにより、熱バランスを改善することで向上できると考えている。

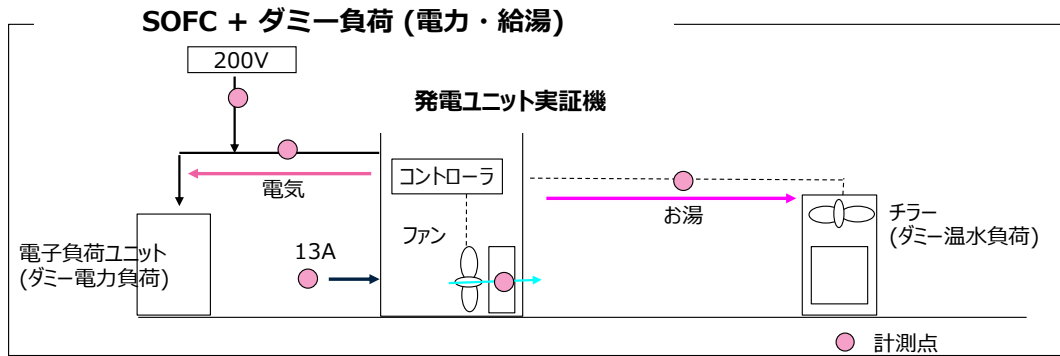


図 6 実証試験のシステム構成

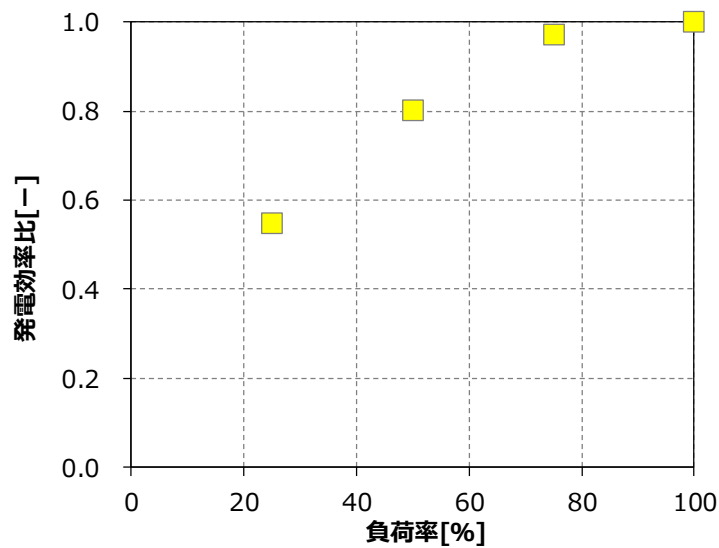


図 7 部分負荷発電性能

この部分負荷発電性能と飲食店などの商業施設のエネルギー消費パターンを基に、本 5kW 級 SOFC コージェネを商業施設に導入した際の省エネ効果と CO₂ 削減効果を試算した。

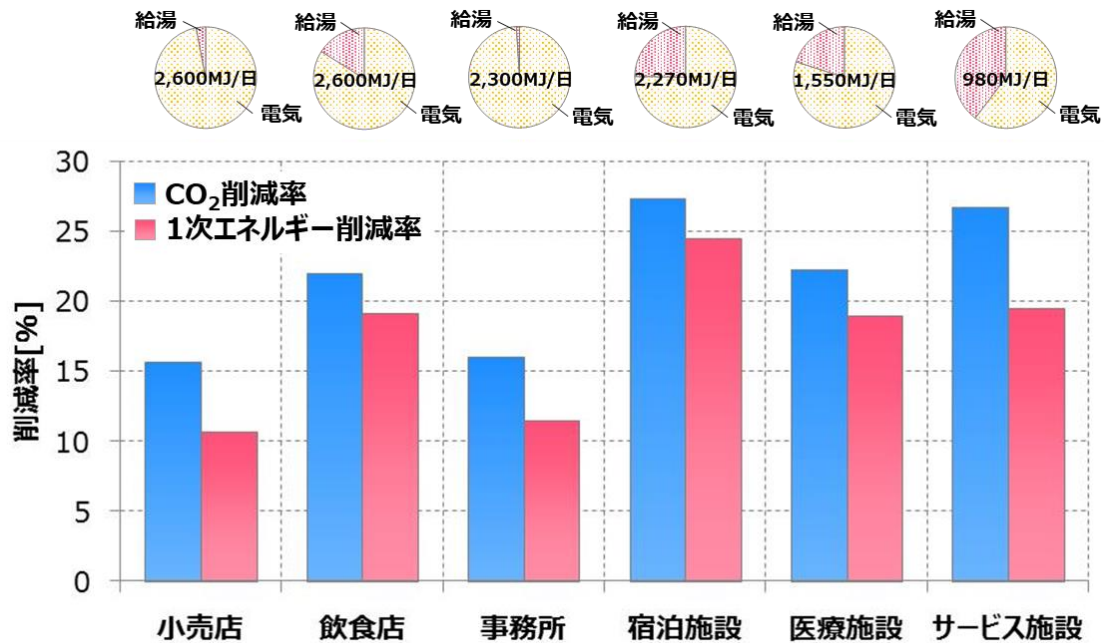


図 11 5kW 級 SOFC コージェネを導入した際の省エネ・CO₂ 削減効果

宿泊施設、サービス施設では、給湯需要が大きいことから、CO₂ 削減効果が 27%と大きく、パリ協定中期目標 26%削減(2013 年度比)を満たすことを確認した。一方で、給湯需要の少ない事務所、小売店等では CO₂ 削減効果 16%程度と限定的であることが明らかとなった。

3. 2 成果の意義

(1) 技術開発

業務用 SOFC 発電ユニットの実証試験を実施し、目標を満たす発電性能 AC4.54kW/発電効率 AC50%を取得し、連続評価では CS 単体の劣化率と同等の結果を得たことから、高効率・小型に寄与する輻射熱マネ技術を織り込んだモジュール、システムの技術妥当性を示せた。

(2) 商品企画

業務ユーザ毎の熱/電力需要を踏まえた CO₂ 削減率の試算により、給湯需要の大きい宿泊施設、サービス施設での導入効果が大きいことを確認できたが、大きな市場が見込まれる事務所、小売店等では給湯需要の少ないことから、導入効果は限定的となり、市場拡大には高効率化の必要性が明らかとなった。

3. 3 研究開発項目別残課題

(1) 基本設計仕様構築

- ・輻射熱マネ技術を織り込んだモジュールの部分負荷効率の向上
- ・低コスト化を見据えた更なる VE/VA 設計

(2) 基礎耐久課題抽出

- ・システム連続発電の継続、および改良 CS の搭載評価による信頼性検証
- ・商品化目標である劣化率 $-0.1\%/khr$ を見通すための耐久課題の明確化

(3) 実用化技術課題抽出

- ・実負荷の出力変動を想定した負荷追従評価による過渡特性の把握と課題の明確化
- ・業務用ユーザの電力、熱需要に応じた最適仕様の導出
- ・市場規模を考慮したターゲットユーザの明確化

4. まとめ及び課題、事業化までのシナリオ

4.1 成果の実用化に向けた課題

業務用の高効率コージェネを想定しており、発電出力は 10kW 未満で、5kW が中心である。この電力需要者は、契約電力 50kW 未満の低圧電力契約者が多く、比較的高い電力料金を払っている。排熱も利用することにより、エネルギーコストの低減を目指す。現在は、競争相手として、小型のエンジンコージェネがあるが、高効率と、静粛性の点で SOFC の方が有利と考える。

4.2 成果の実用化に向けた具体的取組

実用化に向けて、株式会社デンソーと東邦ガス株式会社は共同研究を推進している。株式会社デンソーは自動車で培った社内技術を集約した SOFC 要素技術開発/システムアップを担当し、東邦ガス株式会社は、ユーザに近いことから、使い勝手等を中心としたシステム評価を実施している。また、両社合同で市場調査を実施し、事業性の検証も並行して推進中である。

4.3 成果の実用化の見通し

事業化に向けては、コストが重要なファクターとなる。性能面に関しては目標達成目途が得られたが、今後は、性能を維持しつつ作りやすさ(コストダウン)の追及が必要である。株式会社デンソーでは、自動車部品や CO₂ 給湯機で培った生産(量産)技術を擁しており、それらの知見を有効活用するため、関係部署と連携を取り進めることでコスト目標は達成できる見通しである。

性能面に於いては、現時点市場流通している既販機の発電効率は 39~55%程度であり、株式会社デンソーが目指す 55%超は、デンソーの独自技術である「輻射を活用した熱マネ最適化」で優位性を確保している。

5. 研究発表・特許等

(1) 論文発表

- ・燃料電池 Vol.16 No.3 2017 「デンソーにおける業務用 SOFC の開発状況」
- ・第 27 回 世界ガス会議 2018 「Development of Solid Oxide Fuel Cell System for Commercial Use at TOHO GAS and DENSO CORPORATION」

(2) 外部発表

- ・ 2016 Asian SOFC Symposium 「Development Status of Commercial Use SOFC Cogeneration System at DENSO」
- ・ 第 107 回 SOFC 研究会 「デンソーにおける業務用 SOFC の開発状況」
- ・ 燃料電池・FCH 部会 平成 29 年度公開シンポジウム 「デンソーにおける業務用 SOFC の開発状況」
- ・ 第 27 回 世界ガス会議 2018 「Development of Solid Oxide Fuel Cell System for Commercial Use at TOHO GAS and DENSO CORPORATION」
- ・ FCDIC 第 25 回燃料電池シンポジウム 「デンソーにおける業務用 SOFC の開発状況」

(3) 特許

なし

(6. 2. ホ) 「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発／
 固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証／
 円筒形SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムの市場投入に向けた技術実証」

委託／共同研究／助成先：
 三菱日立パワーシステムズ株式会社

● 成果サリ (実施期間 : 2015年度～2017年度終了)

- ・4サイトに実証機を設置し、出力・効率を確認。
- ・各サイトで市場投入に必要な技術検証項目を設定し、研究開発を実施。
- ・目標であった2017年度に市場投入を実現。

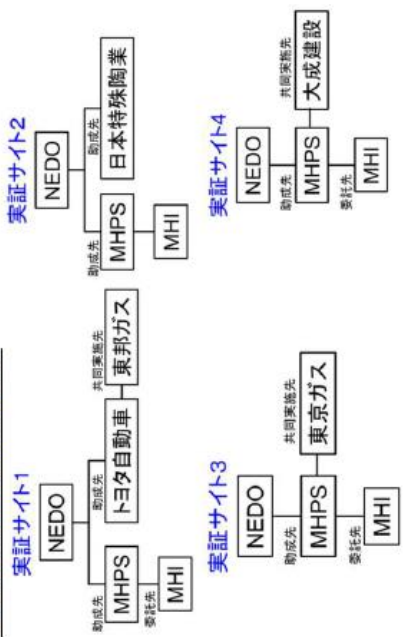
● 背景/研究内容・目的

円筒形SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムは、中容量分散電源として実用化が期待されているが、市場投入に向けて様々な実運用環境下での運用性、市場への適合性、コスト低減の実証が必要である。そのため、実運用環境での実証試験を行い、セルスタックの性能、耐久性及びシステムの運用性、安全性などのデータを取得するとともに、システムの製造、設置コスト低減への課題抽出を行い、今後のSOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムの市場投入に繋げる。

● 研究目標

2017年度にSOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムを市場投入する。

● 実施体制及び分担等

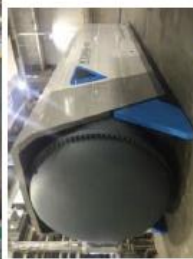


● これまでの実施内容/研究成果

- 4サイトに実証機を設置し、以下を確認
- ◆ 発電端出力230kW以上※1
 - ◆ 発電端効率56%LHV以上※2
 - ◆ 総合効率75%LHV以上※1
- を確認。
 (※1… 高出力運転時、※2… 高効率運転時)



実証サイト1



実証サイト3



実証サイト2



実証サイト4

● 研究成果まとめ

実施項目	成果内容	自己評価
コンパクト化	設置面積の削減	○
セル製造	日本特殊陶業製セルの使用。	○
起動・負荷変化	Cold起動：20h、Hot起動：4h、 負荷変化率：5%/min	○
自立運転	自立運転の基礎技術を確立	○

● 今後の課題

- ・コストダウン

● 実用化・事業化の見通し

2017年度に市場投入。

特許出願	論文発表	外部発表	受賞等
0	1	5	2

課題番号：6. 2. ホ

固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発／

固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証／

円筒形 SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムの市場投入に向けた技術実証

1. 研究開発概要

円筒形 SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムは、中容量分散電源として実用化が期待されているが、市場投入に向けて様々な実運用環境下での運用性、市場への適合性、コスト低減の実証が必要である。そのため、実運用環境での実証試験を行い、セルスタックの性能、耐久性及びシステムの運用性、安全性などのデータを取得するとともに、システムの製造、設置コスト低減への課題抽出を行い、今後の SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムの市場投入に繋げる。

2. 研究開発目標

2017 年度に SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムを市場投入する。

3. 研究開発成果

3. 1 研究開発成果、達成度

発電出力 250kW、送電端効率 55%-AC (15°C、LHV 基準) の商品価値を有するシステムの実現を達成するため、4 サイト (4 台) の実証機の運用を行い、システムとしての性能を実証すると共に、後述する課題に対する試験を行い、各種試験条件における耐久性と安全性に関する実績データの蓄積を行った。加えて各サイトにおいては、今後の SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムの市場性向上のために、後述する個別の課題についての取組みを実施した。また複数 (4 台) のシステム装置、設備の製造、設置を経ることによるコスト低減の実践を図った。

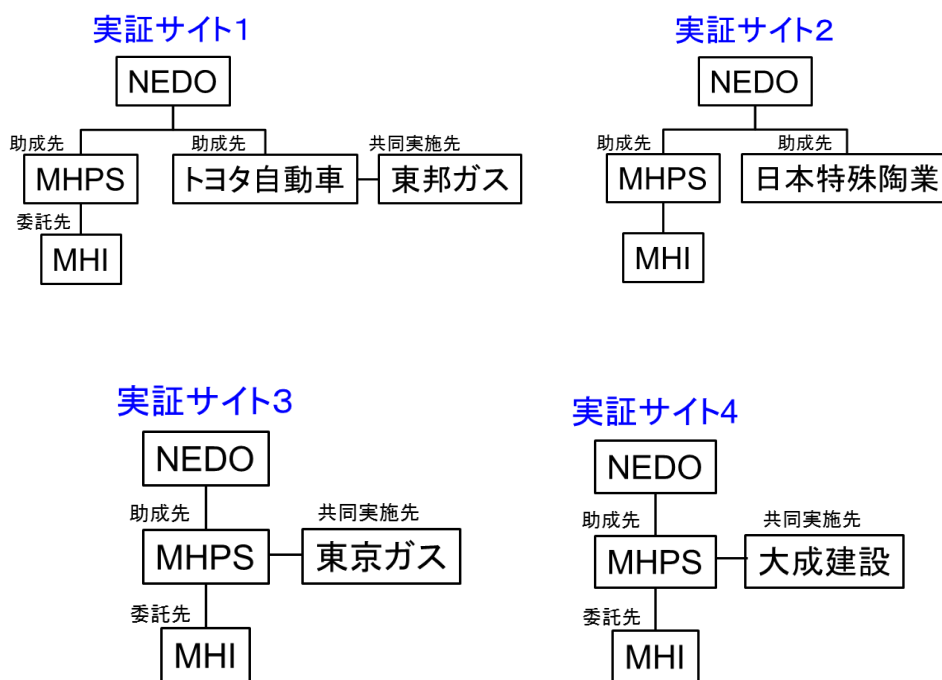


図 3.1.0.1 実施体制

3. 1. 1 実証サイト1 (トヨタ自動車株式会社)



図 3.1.1.1 実証サイト1(トヨタ自動車株式会社 元町工場)設置ハイブリッドシステム

業務用システムでの拡販を視野に入れた場合、産業用への普及も図ることで円筒形セルスタックの量産効果が得られ、コスト低減にも寄与すると考えられる。そのため将来、SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムを産業用として市場へ投入することを想定した場合、工場内の実運転環境下において効率、運転性、耐久性を検証する必要がある。

そこで、我が国を代表する製造業であるトヨタ自動車株式会社（以下、トヨタと示す）の工場に、SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムを設置し、将来の商用機設置場所として有望と考えられる工場の実運用形態に適応させるための検証を実施した。なお、SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムに用いるマイクロガスタービンの開発は、トヨタグループの株式会社トヨタタービンアンドシステム（現 株式会社トヨタエナジーソリューションズ）が担当した。

工場内の各種停電を模擬して、長期の停止を想定した冷態(cold 状態)からの起動、日曜日のみの停止を想定した中間温度(warm 状態)からの起動、瞬停等を想定した高温(hot 状態)からの起動を行い、問題なく起動可能であることを確認した。特に Hot からの起動時間は4時間以内で可能であることを確認した。

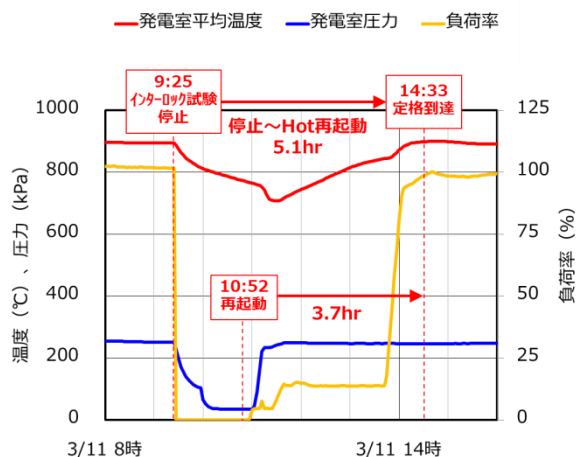


図 3.1.1.2 Hot 起動試験結果

3. 1. 2 実証サイト2（日本特殊陶業株式会社）

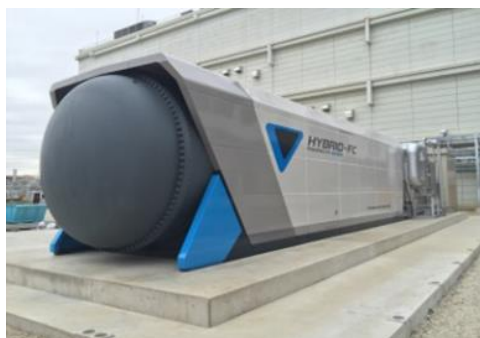


図 3.1.2.1 実証サイト2(日本特殊陶業株式会社 小牧工場)設置ハイブリッドシステム

日本特殊陶業株式会社（以下 NTK という）では、主に以下の2項目について実証することを目的とした。

1点目は、SOFC 事業にとっての BCP（Business Continuity Plan）の見地から重要な、セルスタックの製造拠点多拠点化への対応性である。

今後 SOFC システムを普及拡大させるにあたって、そのコアであるセルスタックの量産・供給はこれまで MHPS が単独で実施してきた。

一方 NTK は自社資金で円筒形セルスタック製造ラインを小牧工場に導入し、セルスタックの試作検証を行っている。NTK をセルスタックの供給拠点の2拠点目とし、セルスタック供給2拠点化を実現するには、NTK が製造する円筒形セルスタックの品質・性能が MHPS 製セルスタックと同等であることを確認しなくてはならない。

そのため、NTK で製造したセルスタックで構成したカートリッジと MHPS で製造したセルスタックで構成したカートリッジを同じ圧力容器に混載し、同一運転環境下で各カートリッジの性能を評価し、発電性能、温度分布特性、過渡的挙動等の相違の有無を検証した。

その結果、日特陶で製造したセルスタックも MHPS 製セルスタックと同等の品質であることが確認された。

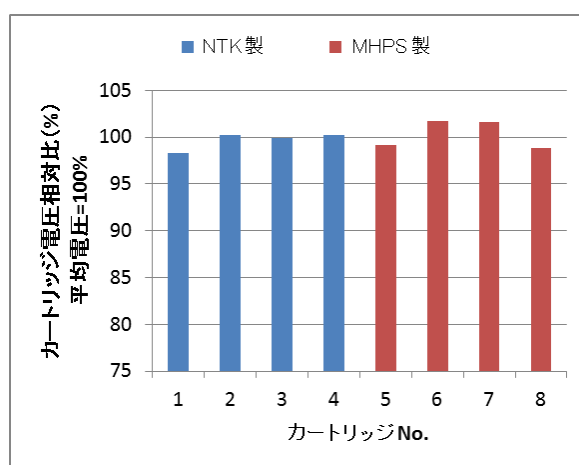


図 3.1.2.2 カートリッジ性能比較

2点目はベースロード長期運転によるセルスタックへの影響の評価である。

NTKの窯業工場は停電がほぼ無い、即ちSOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムの起動停止がほぼ無い。この環境を利用し、ベースロード長期運転によるセルスタックへの影響の評価を実施し、200kW以上の発電出力を安定して継続できることを確認した。またこれに加えColdからの起動時間については20hrで定格に到達することを確認した。

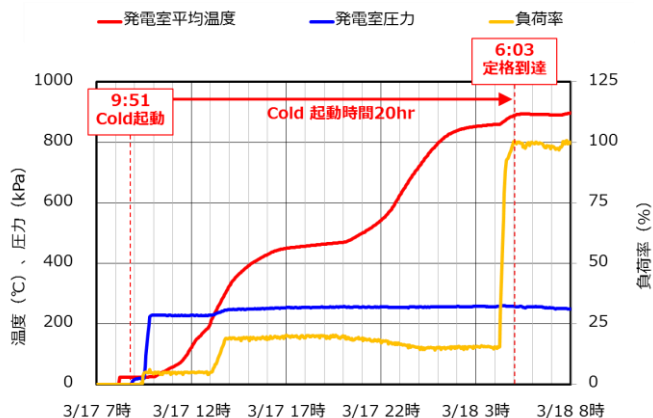


図 3.1.2.3 Cold 起動試験結果

3. 1. 3 実証サイト3 (東京ガス株式会社)

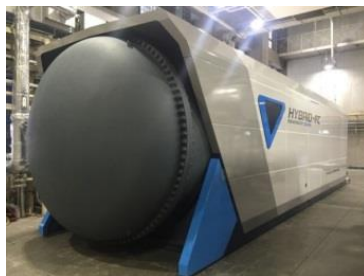


図 3.1.3.1 実証サイト3(東京ガス株式会社 千住テクノステーション)設置ハイブリッドシステム

東京ガス株式会社のサイトでは耐久性の複合的な要因を確認するため、まず連続運転における耐久性の確認を実施した後、起動停止、負荷変化も実施して耐久性を評価した。その結果を他の実証サイトでそれぞれ確認する連続耐久性、起動停止耐性、負荷変化耐性の各特性と比較検証し、複合的な耐久性が組み合わさった際の運用条件の検討データとした。

これらの事例とて、負荷追従特性試験の結果を示す。50⇔100%のサイクル試験を実施し、負荷変化速度 4A/min (5%/min) においてもシステムに異常をきたすことなく追従できることを確認した。

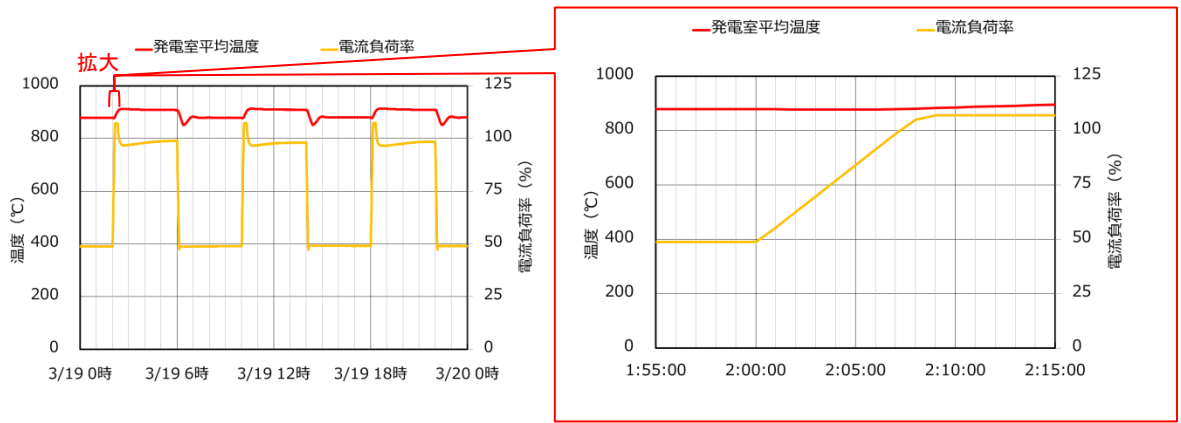


図 3.1.3.2 5%/min (50⇔100%) サイクル試験結果

更に、起動停止、異常発生時の水素、窒素の使用量を半減以下にするため、システムでの確認を行った。水素レスでの起動停止が可能であることを実証すると共に、図 3.1.3.3 に示すように窒素使用量は九州大学での実証試験と比べて削減することができた。この結果、図に実証サイト 1 (トヨタ) の配置を示すが、水素カードルは不要となり、窒素も従来比 (九大) で 60%低減できる目途を得ることができ、水素、窒素共に目標の半減以下を達成した。

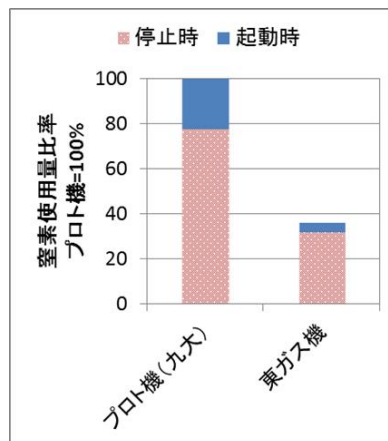


図 3.1.3.3 起動、停止における九大機 (プロト機) との窒素使用量の比較

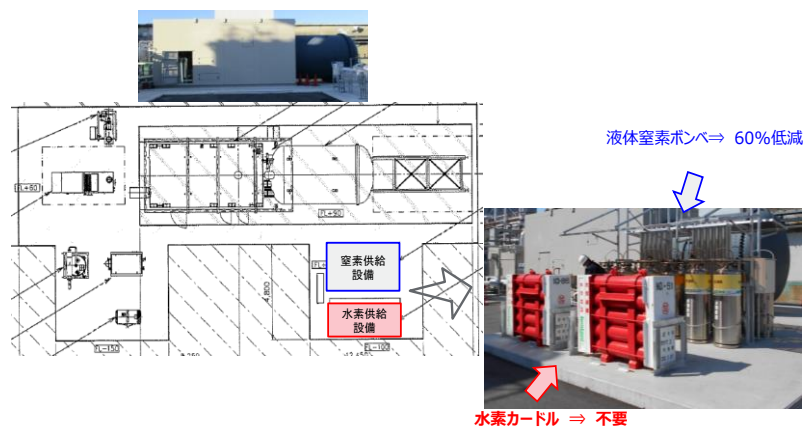


図 3.1.3.4 トヨタ自動車サイトでの水素・窒素供給設備

3. 1. 4 実証サイト 4 (大成建設株式会社)

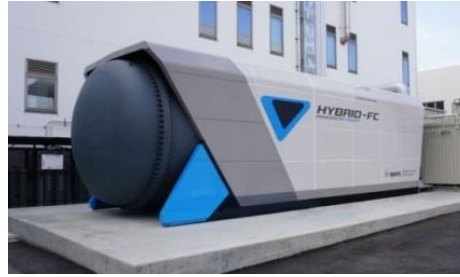


図 3.1.4.1 実証サイト 4(大成建設株式会社 技術センター(戸塚))設置ハイブリッドシステム

SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムは高効率であることからベースロードの連続運転が望ましいが、設置環境によっては部分負荷運転や変動する負荷への追従を求められるケースがある。特に SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムの大きな市場の一つと考えられる大規模複合施設や大型オフィスビル等を想定したコージェネレーションシステムでは電力需要の日内変動、週間変動に対する追従能力は、商品性を大きく向上させる要因となる。

このため実証サイト 4 においても、実証サイト 3 同様、50⇔100%のサイクル試験を実施し、負荷変化速度 4A/min (5%/min) への追従を確認するとともに、負荷率 46%の部分負荷運転ができることを確認し、目標の 50%を達成した。

また、停電、瞬停などが許容されない精密機器や半導体などの工場、病院、行政機関、データセンターなどでは BCP や DCP (District Continuity Plan) の観点から、供給電力の無瞬断や、継続的な自立運転に対応した発電設備が望まれており、これに対応するためには、自家発電設備の常時運転か、蓄電池の保有等の対策が必要である。ここで SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムの高効率を生かした常時運転が有効であるため、市場投入機では無瞬断にて重要負荷への電力供給を継続する UPS 機能による高付加価値化を図る予定である。そのために SOFC、MGT それぞれに存在するの課題への取り組みを行った。

SOFC 側の課題としては、自立運転時に電力負荷変動(ミリ秒オーダーでの変動)に対し、システム側の各種状態量の制御(燃料流量等。秒オーダーでの制御)の時定数が大きく異なるため、それに対応した制御について各要素の検証を行い SOFC の各種状態量の制御手法を構築した。

MGT 側について過回転を防止して自立運転へ移行させる手法の検証により、上記機能に向けた MGT 側の対応を実施した。

これら各要素での検証を反映し、停電を模擬してシステムが自立運転へ移行することを確認した結果を図 3.1.4.2 に示す。停電を検知後、SOFC は電圧低下することなく無瞬断で自立運転に移行、MGT は無負荷運転を経て 12 秒後に自立運転に移行した。自立運転移行後、負荷変動にも良好に追従していることが分かる。その後連系復帰動作指令を与え、MGT、SOFC の順で連系運転に復帰することができた。自立運転後もハイブリ

ッドシステムとして SOFC、MGT 共に安定運転ができることを確認できたので、自立運転の基礎技術を確立できたものと考えている。

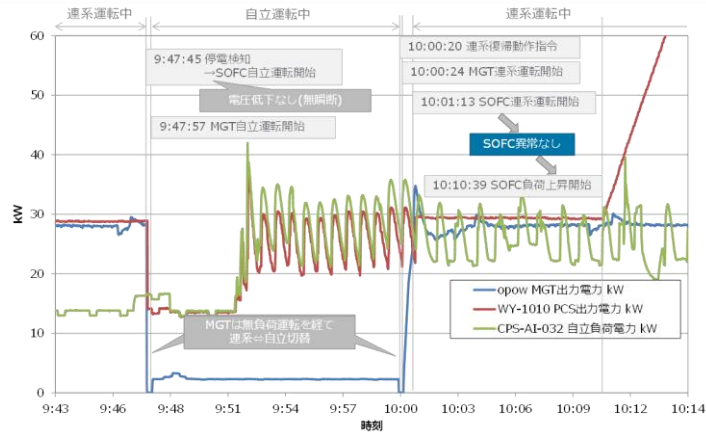


図 3.1.4.2 自立運転試験結果

加えて補機ユニットのコンパクト化を実施し、燃料電池ユニット全体の設置面積を23%削減した。商品性向上につながるものとする。

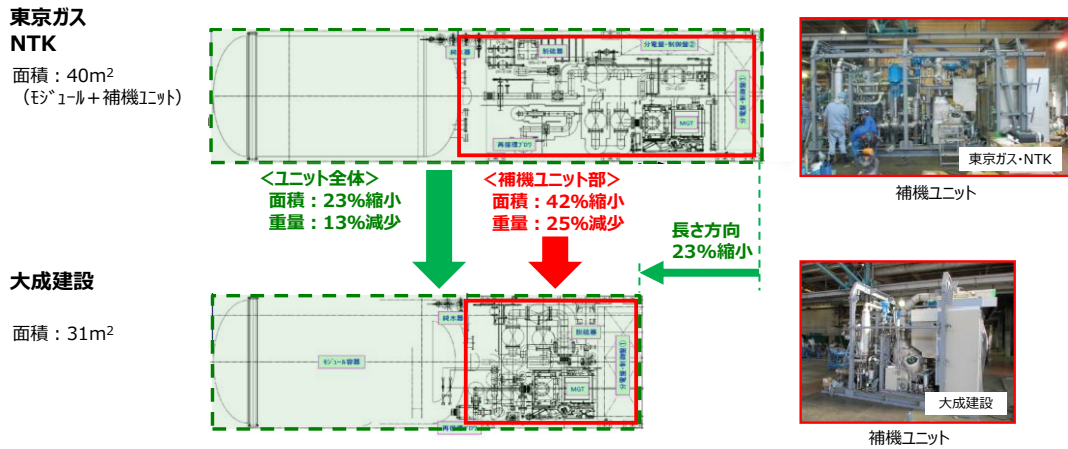


図 3.1.4.2 補器ユニットのコンパクト化

3. 2 成果の意義

市場投入を決定し、受注活動を開始した。これに関する MHPS 社のプレスリリースを図 3.2.1 に示す。

固体酸化物形燃料電池 (SOFC) ハイブリッドシステム マイクロガスタービン (MGT) との組み合わせにより業務・産業用に市場投入

2017年8月9日発行 第164号

三菱日立パワーシステムズ (MHPS) は、業務・産業用に開発した固体酸化物形燃料電池 (SOFC: Solid Oxide Fuel Cell) とマイクロガスタービン (MGT) の組み合わせによる加圧型複合発電システム (ハイブリッドシステム) の販売を開始しました。エネルギー・環境問題の改善に役立つ分散型電源・コージェネレーション (熱電併給) システムの有力な選択肢として、幅広い産業界からの受注を目指します。

このハイブリッドシステムは、900℃の高温で作動するセラミックス製SOFCとMGTの両方で発電します。SOFC燃料側は改質器なしで都市ガスをそのまま利用し、空気側はMGTの圧縮機からの空気を利用します。SOFC内部にて都市ガスを改質して取り出す水素や一酸化炭素と空気中の酸素を反応させて直接電力を発生させます。加圧により電圧が増大する加圧型SOFCの特性により発電効率向上をはかっています。さらに、SOFC燃料側出口の残燃料と空気側出口の残空気を、燃焼炉で燃焼させ、高温のガスでMGTタービンを駆動することで、高効率なシステムとしています。また、コージェネレーションシステムでは、さらに残りの熱を蒸気または温水として回収します。

2016年度まで国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の助成事業 (注) により250kW級の検証を行ってきたもので、国内4か所に実証機を設置し、耐久性の検証、実負荷環境として起動停止試験や負荷変化試験などの試験を行い、安定して稼働できることが確認できています。今回市場投入するものは、その結果を反映させたモデルとなります。

燃料電池システムは、発電効率が高く、またコージェネレーションシステムとしてCO₂排出量も少ないことから、経済産業省は両システムの普及を、省エネ・環境性に優れた低炭素社会の実現に向けての有力な施策と位置づけています。

MHPSは、業務・産業用ハイブリッドシステムの受注・販売活動を通じて、同システムのさらなる性能や利便性の向上に取り組み、持続可能性の高い低炭素社会づくりにふさわしいエネルギー創出に貢献していきます。

(注) 助成事業の名称は「円形SOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムの市場投入に向けた技術実証」(2015~2016年度) です。



当社SOFC

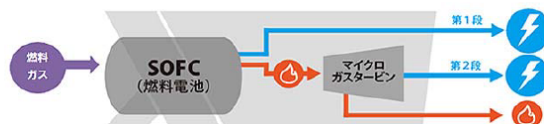


図 3.2.1 MHPS 社による受注開始を発表するプレスリリース

更に受注の獲得に成功し、事業化を推進中である。これに関する MHPS 社のプレスリリースを図 3.2.2 に示す。

固体酸化物形燃料電池 (SOFC) とマイクロガスタービン (MGT) のハイブリッドシステム 業務・産業用分散型電源として初受注・着工

- ◆ 水素利活用設備の1つである高効率なハイブリッドシステムを2019年2月に運転開始
- ◆ 東京・丸の内では省エネ・環境配慮性をアピール

2018年1月31日発行 第194号

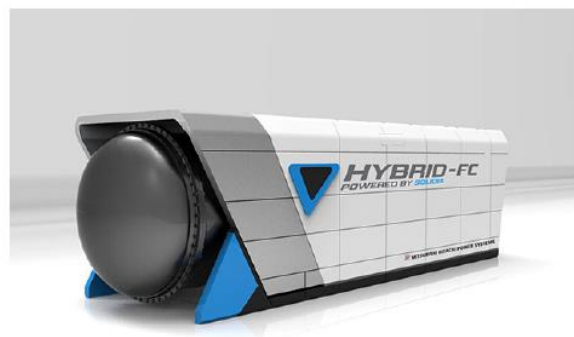
三菱日立パワーシステムズ (MHPS) は、業務・産業用に市場投入した固体酸化物形燃料電池 (SOFC: Solid Oxide Fuel Cell) とマイクロガスタービン (MGT) の組み合わせによる加圧型複合発電システム (ハイブリッドシステム) を、三菱地所株式会社が東京・丸の内にて所有・運営する丸の内ビルディング (丸ビル) 向けに初めて受注 (注) し、設置工事に着手しました。効率が高く排気がクリーンな分散型電源として、東京駅前で街づくりが進む丸の内エリアにある丸ビルを、省エネ・環境配慮性の観点から支えていくもので、本格運転開始は同ビルの発電機改修工事が完成する2019年2月の予定です。

このハイブリッドシステムは、都市ガスを燃料とし、約900℃の高温で動作するセラミックス製SOFCとMGTの両方で発電するものです。燃料を燃焼させることなく、SOFC内部で都市ガスを改質して水素や一酸化炭素を取り出し、空気中の酸素と化学反応させることで発電します。さらに、後行程でMGTを使って発電することで燃料を有効活用します。また、コージェネレーション (熱電併給) の場合には、残りの排熱を蒸気または温水として回収するため、総合効率はそれぞれ65%、73%以上に達するとともに、従来の発電システムに比べて顧客の工場・ビルからのCO₂排出量を約47%削減することができ、低炭素社会の実現に貢献します。

当社では、2016年度まで国立研究開発法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の助成事業により250kW級の実証に取り組み、国内4ヵ所に実証機を設置して安定稼働を確認。業務・産業用の実用モデルを開発し、昨年夏に販売を開始したものです。

丸ビルは、三菱地所による丸の内再構築の皮切りとして建て替えられ、2002年に竣工し昨年15周年を迎えています。三菱地所では、同ビルの発電機が改修時期を迎えるにあたり、低炭素社会の形成へ向けに省エネ・環境配慮性の高い分散型コージェネシステムの導入に着眼。当社のハイブリッドシステムが選定されたのです。

MHPSは、今回の初受注を受け、業務・産業用燃料電池の普及促進に向けた提案営業を活発化するとともに、同システムのさらなる性能や利便性の向上に取り組み、持続可能性の高い低炭素社会にふさわしいエネルギー創出に貢献していきます。



SOFCとMGTのハイブリッドシステム

固体酸化物形燃料電池 (SOFC) とマイクロガスタービン (MGT) のハイブリッドシステム 「MEGAMIE」を安藤ハザマ向けに受注

- ◆ 安藤ハザマ技術研究所 (茨城県つくば市) に本年度中に納入へ
- ◆ 省CO₂分散型電源と自己託送 (電力融通) によるエネルギーマネジメントシステムを支える

2019年4月25日発行 第268号

三菱日立パワーシステムズ (MHPS) は、固体酸化物形燃料電池 (SOFC: Solid Oxide Fuel Cell) とマイクロガスタービン (MGT) の組み合わせによる加圧型複合発電システム (ハイブリッドシステム) である「MEGAMIE (メガミー)」を、安藤ハザマ (株式会社 安藤・間) から受注しました。本年度中に安藤ハザマの技術研究所 (茨城県つくば市) に納入、同社が国の支援を得て進める広域的環境負荷抑制プロジェクトの「安藤ハザマ次世代エネルギープロジェクト」をCO₂の排出削減に寄与する次世代分散型電源として支えています。

メガミーは、都市ガスを燃料とし、約900℃の高温で動作するセラミックス製SOFCとMGTの両方で発電するものです。燃料を燃焼させることなく、SOFC内部で都市ガスを改質して水素や一酸化炭素を取り出し、空気中の酸素と化学反応させることで発電します。さらに、後行程でMGTを使って発電することで燃料を有効活用します。また、コージェネレーション (熱電併給) の場合には、残りの排熱を蒸気または温水として回収するため、総合効率はそれぞれ65%以上、73%以上に達するとともに、従来の発電システムに比べて顧客の工場・ビルからのCO₂排出量を約47%削減することができ、低炭素社会の実現に貢献します。

安藤ハザマの次世代エネルギープロジェクトは、CO₂発生量の少ない分散型電源を活用した自家発電・自己託送制度による自社事業所への電力融通事業で、2018年8月に国土交通省の同年度「第1回サステナブル建築物等先導事業 (省CO₂先導型)」(注) に採択されたものです。

当社のメガミー商用機は、初号機が三菱地所株式会社の丸の内ビルディングで東京駅前の街づくりを低炭素社会の形成に向けた省エネ・環境配慮性の高い分散型コージェネ機能で担う新しい自家発電設備として、本年2月から稼働。今回受注の安藤ハザマ向けはこれに次ぐもので、企業内事業所を横断的に結んだエネルギー供給における環境負荷抑制への挑戦をサポートしていくこととなります。

MHPSは、今回のメガミー受注を追い風として、業務・産業用燃料電池の普及促進に向けた提案営業を活発化するとともに、同システムのさらなる性能や利便性の向上に取り組み、持続可能性の高い低炭素社会にふさわしいエネルギー創出に貢献していきます。

(注) 国土交通省が、省エネ・省CO₂に係る先導的な技術を導入した住宅・建築物のリーディングプロジェクトに対して、整備費用の一部を補助するものです。



SOFCとMGTのハイブリッドシステム「MEGAMIE」

図 3.2.2 MHPS 社による商用機受注を発表するプレスリリース

3. 3 開発項目別残課題

現在までの運転において、出力・効率において目標が未達であり、今後も出力・効率向上のため、実証機をもとに対策検証などを行い、市場ニーズに見合う製品仕様を決定していく。

また、コストについても今回の実証の中では目標に到達しておらず、引き続き社内研究にてコスト低減を継続している。

4. まとめ および課題、事業化までのシナリオ

本事業にて取り組んだハイブリッドシステムは、経済産業省の水素・燃料電池戦略ロードマップの目標であった、2017年度中市場投入を達成した。

コストについては目標としていたところまでは到達できておらず、引き続き量産を含めたコスト低減を継続していき、市場ニーズに合うものとしていく。

5. 研究発表・特許など

－研究発表・講演、文献等、その他－

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2016年3月8日	第11回燃料電池発電技術研究会	MHPSにおけるSOFC複合発電システムの開発状況と今後の展開	富田 和男
2	2016年3月22日	水素エネルギー社会形成研究会 平成27年度第4回セミナー	水素社会の実現に向けたSOFC-MGTハイブリッド機の開発状況と今後の展開	吉田 慎
3	2016年6月6日	第35回エネルギー・資源学会研究発表会	水素社会へ向けたMHPSにおけるSOFC-MGTハイブリッドシステムの開発状況と今後の展開	遠藤 亮将
4	2016年	ガスタービン学会誌7月号	MHPSにおけるSOFC-マイクロガスタービンハイブリッドシステムの開発状況	富田 和男 北川 雄一郎
5	2017年11月13日	第六回電力エネルギー未来技術シンポジウム	SOFC-MGTハイブリッドシステムの市場導入に向けた取り組み	高島 正

－特許等－

本事業に係る特許の出願はなし。

(6. 2. 8) 「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発

／固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証

／燃料リサイクル機構を用いた高効率固体酸化物形燃料電池実用化技術開発」

助成先：株式会社デンソー
共同実施先：東邦ガス株式会社

● 成果サマリ (実施期間：平成30年度～令和1年度予定)

- ・平成30年度目標である、DC出力5kW/DC効率65%に対して、DC評価にて5.02kW/67.4%を実測し、年度目標を達成した。
- ・平成31年度(令和1年度)目標である、AC出力4.5kW/AC効率60%は、上記DC評価から変換損失を考慮し、4.52kW/60.7%となることから、年度目標を達成できる見込みである。
- ・実用化課題抽出及び基礎耐久課題抽出に供する試作機製作も、現時点計画通り進捗しており、各課題抽出に着手できる予定である。

● 背景/研究内容・目的

<背景>

・現時点燃料電池として効果的なCO2削減/省エネ施策のない、モノエネ市場を主ターゲットにした高発電効率SOFCを開発し、環境問題に貢献する。

<研究内容>

燃料リサイクル機構を用いた高効率業務用SOFCシステムの実証試験を実施し、その導入効果の検証、実用化課題の抽出

【NEDO事業実施目標】

発電性能 AC出力 4.5kW級
AC効率 60%以上 (DC67%以上)

● 研究目標

実施項目	目標
A	基本設計仕様構築
B	実用化課題抽出
C	基礎耐久課題抽出

● 実施体制及び分担等

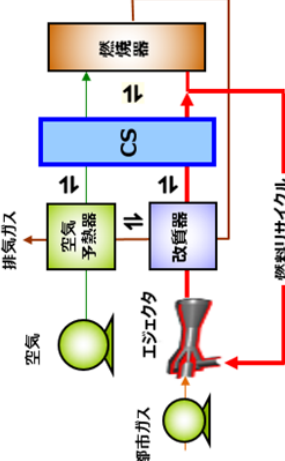
NEDO	株式会社デンソー (実施項目A/B/C)
	東邦ガス株式会社 (実施項目B)

● これまでの実施内容/研究成果

燃料リサイクルの原理検証機の製作および評価を通じ、以下を実施した。

- ・AC効率60.7%相当(DC67.4%)を確認し、エジェクタを用いたリサイクル機構の成立性を検証した。
- ・FCモジュールの部分負荷性能/製造課題の抽出を行い、次期設計/試作ヘッドバックを実施した。

※発電ユニットでの実用化課題の抽出に向け、試作/評価準備中。



● 今後の課題

- ・性能&作りやすさ(コストダウン)を狙ったFCモジュールの開発設計
- ・発電ユニット(アセンブリー)での、実用化技術課題、耐久課題の抽出
- 実用化・事業化の見通し

発電効率60%超を確認でき、市場で十分な経済効果が期待できるため、実用化の見通しは十分あると考える。

今後は事業化に向けて、量産を鑑みたコストダウン、市場評価による効果確認と品質確認を進める。

実施項目	成果内容	自己評価
A	目標性能達成	○
B	計画通り推進中	(○)
C	計画通り推進中	(○)

特許出願	論文発表	外部発表	受賞等
なし	なし	なし	なし

課題番号： 6. 2. へ

研究開発名：「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発／固体酸化物形燃料電池を用いた業務用システムの実用化技術実証／燃料リサイクル機構を用いた高効率固体酸化物形燃料電池実用化技術開発」

1. 研究開発概要

燃料リサイクル機構を用いた高効率業務用 SOFC システムの実証試験を実施し、その導入効果の検証及び実用化に向けた技術開発、課題を抽出する。なお、共同実施先として東邦ガス株式会社がシステム試験の一部を実施する。

平成30年度

- ・基本設計仕様構築

ベンチテストモジュールを試作。初期性能及び基本作動を評価し実証機の設計仕様を明確にすると同時に、H31年度でのシステム評価に向けた基礎課題抽出機試作に着手する。

平成31年度

- ・実用化技術課題抽出

実用化課題抽出機による SOFC システムの模擬負荷実証試験を実施。導入効果の検証、性能変化等を調査し製品化課題を抽出する。

- ・基礎耐久課題抽出

基礎課題抽出機を試作し連続/断続/負荷変動運転等を実施。基礎耐久課題を明確にする。

2. 研究開発目標

2.1 研究の背景

SOFC はその効率の高さから、環境性、経済性に優れており、社会に期待される技術の一つである。近年では業務用途として飲食店等、熱需要のある分野でコージェネレーションとして普及を始めている。しかし、熱需要の殆どない事務所、コンビニ等のモノジェネ市場に対しては、省エネ施策の導入がまだ不十分なのが現状であり、この分野にも普及可能となれば更なる省エネ、CO₂削減が期待できる。そこで、最新発電所による需要端効率を凌ぐ発電効率を持つ SOFC の開発を行い、モノジェネ使用でも十分な省エネ、CO₂削減ができ、且つ経済性も確保できる SOFC システムを開発する。

契約電力 50kW 未満の低圧電力契約者で比較的高い電力料金を払っていて、熱需要が少ないオフィス、事務所等が有望なターゲットである。

競争相手として、小型のガスエンジンコージェネがあるが、発電効率が低い為、モノジェネとしては経済的に成立しない点、静粛性の点で SOFC の方が有利と考える。また、太陽電池 (PV) も有効な省エネ手段であるが、気象環境に左右されると云う課題を持っており、制御性に優れる SOFC は優位性の高いシステムの一つである。

2.2 研究開発の目標

申請者の開発する業務用 SOFC システムの商品化目標は以下 (表 1) の通り。

表 1.研究開発の目標

項目	商品化目標	現状	平成 30 年度	平成 31 年度	平成 32 年度
発電出力 ^(注1)	AC4.5kW 級	DC5kW	DC5kW	AC4.5kW 級	AC4.5kW 級
発電効率 ^(注2)	AC60%	DC55%	DC65%	AC60%	AC60%
耐久信頼性 ^(注3)	>9 万時間	(エジェクタによる燃料循環条件での実績無)	—	—	(仮: 1 万時間)
連続運転劣化率	-0.1%/kH	(エジェクタによる燃料循環条件での実績無)	—	—	(仮: -0.5%/kH)
コスト (ユーザ取得価格) ^(注4)	50 万円/kW	—	—	—	—

(注 1) DC 出力から目標補機動力、目標電力変換損失を引いた値。

現状はシステム発電しない (AC 電力変換なし) ため DC 出力。耐久評価前の初期性能。

(注 2) LHV ベース。DC 効率から補機動力損失と電力変換損失を除いた値。耐久評価前の初期性能。

(注 3) 連続運転劣化率から求まる初期性能 (効率) が 10%劣化 (初期効率 60%の場合 6 ポイント劣化) する時間。


(注 4) 数十 MW/年 生産ケースでの試算ベースの量産コスト。

平成 32 年度までの開発期間は量産設計前のため目標設定から除外。

2.3 上記目標設定の理由

開発品の業務用 SOFC システムと既存発電システムとの仕様 (開発品は目標) の比較を表 2 に示す。

表 2.研究開発の目標と仕様比較

	開発品(目標値)	業務用燃料電池(市販品)	業務用ガスエンジン(市販品)
			
発電出力	4.5 kW級	3~4.2 kW	5 kW
発電効率	60 %	52~48 %	30 %
ランニングコスト (モノジェネ時)	約 ▲54万円/年	約 ▲19~33万円/年	約 ▲14万円/年
発電ユニット 奥行D	450mm (W1800xH1800xD450)	約 675~810mm	約 500~650mm

既設の LNG 火力発電所の平均発電効率は 45.6%(平成 28 年 2 月 9 日 経済産業省 総合資源エネルギー調査会 資料)と言われているが、「火力発電の高効率化 (平成 27 年 11 月、資源エネルギー庁 資料)」では、次世代火力発電技術の高効率化で 2025 年頃、ガスタービン燃料電池複合発電(GTFC)で発電効率 63%を掲げており、大幅な効率向上が見込まれている。

一方で、低圧受電使用端での効率を鑑みると送電、変圧ロスが発生する。「効率性向上のための送配電網の 維持・運用費用の負担の在り方の検討(平成 28 年 9 月 2 日 経済産業省 電力・ガス取引監視等委員会 資料)」ではその値は 6.9%(沖縄電力)~9.0%(東北電力、中国電力)と記載があり、最低値である 6.9%を用いても、低圧使用端での効率は 58.7% (63%×0.931) 程度となる。よって、商品化目標値である発電効率 60%は将来の高効率火力発電所をもってしても達成は困難な値であり、十分目標値として高いレベルにあると考える。

また、電気事業連合会は 2030 年度の排出係数を 0.37kg-CO₂/kWh に設定している(2015 年 7 月 17 日「電気事業における低炭素社会実行計画」の策定について)。図 1 にモノジェネ利用での発電効率に対する排出係数の関係を示す。

発電効率 60%を確保する事で、現状の大手電力会社排出量平均値 0.512kg-CO₂/kWh (H30.12.27 環境省・経済産業省公表) に対し、41%減、2030 年度目標 0.37kg-CO₂/kWh を大幅に下回る事が可能であり、CO₂削減に大きく貢献できると考えている。

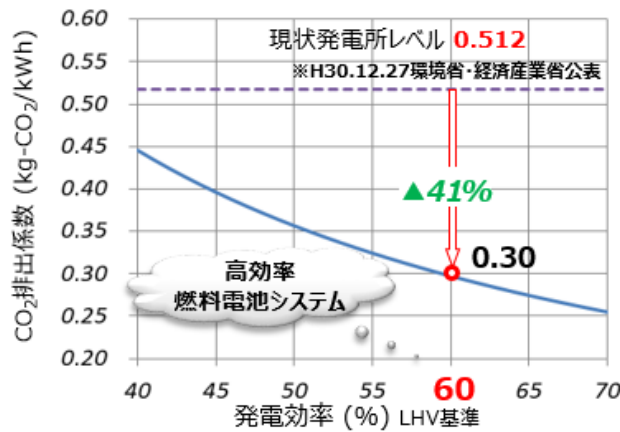


図 1. 発電効率と CO2 排出係数

また薄型にすることで店舗裏などの限られたスペースでの設置に大きく有利となることから、前述目標を設定した。

3. 研究開発成果

3. 1 研究開発成果、達成度

(1) 基本設計仕様構築

本研究開発において、設計した 5kW 級システムのシステムフロー図を図 2 に示す。システム構成は、燃料電池の積層体である平板型セルスタック（以下 CS と略す）、CS が発電するために必要な空気（酸素）と、改質燃料（水素、一酸化炭素）を予熱・改質して CS に供給する空気予熱器・改質器、未使用のオフガスを燃焼し、予熱に必要な高温の燃焼ガスを生成する燃焼器等で構成される燃料電池モジュール（以下 FC モジュール）、空気と都市ガス等の被改質原料と改質に必要な水を供給するポンプ類で構成される BoP システム（以下システムと略す）とで構成される。

なお、開発品は CS で未反応の燃料オフガスの再利用（燃料リサイクル）による高効率化（燃料利用率向上）を狙い、当社市販製品（カーエアコンや CO₂ 給湯機）で量産実績があるエジェクタを活かした燃料リサイクル技術を織り込んだことを特徴とする。

そのエジェクタを搭載した FC モジュールの概念図を図 3 に示す。

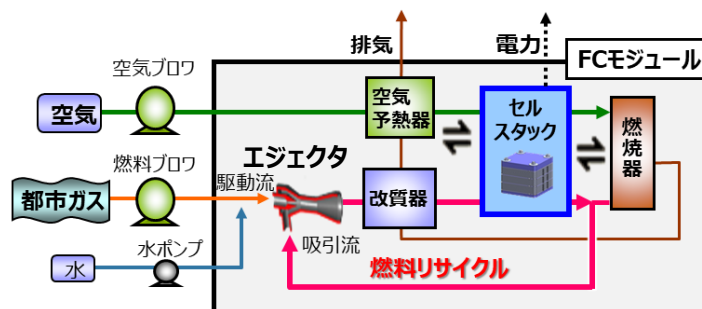


図 2. 5kW 級 SOFC システムのシステムフロー図

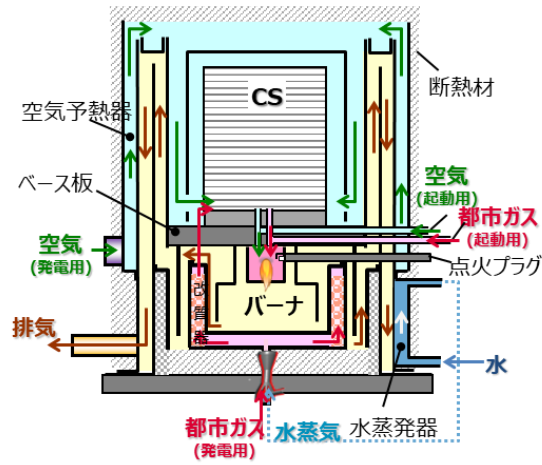


図 3. FC モジュールの概念図

大出力となる業務用の FC モジュールでは、多段積層された CS の温度分布による発電バラツキが性能面、信頼性面の課題となることから、開発品のコンポーネントレイアウトは CS 周囲に折り返し流路を構成する円筒多層型の空気予熱器を配置することで、均一温度場を設けて CS 輻射温調を行っている。

2つの差別化ポイントである燃料リサイクル技術、CS 輻射温調技術の成り立ちを検証を織り込んだ原理実証機を設計・試作し、都市ガスパロア・空気ブロア・水ポンプなどで構成されるガス/水供給装置を組み合わせた評価設備を恒温室にて構築し、定格出力での性能確認を行った結果を表 2 に示す。

平成 30 年度目標である DC 出力 5kW・DC 効率 65%に対して、DC 評価にて 5.02kW・67.4%を実測し、年度目標 (DC67%以上) を達成した。なお、パワーコンディショナー (以下 PCS) などを組み合わせたシステム評価は平成 31 年度に実施予定であるが、電力変換損失および補機動力での損失を 10%と仮定した場合、AC 出力 4.52kW・AC 効率 60.7%となることから、平成 31 年度目標 (AC60%以上) を達成できる見込みと考える。

参考として、前 NEDO 事業で試作した平成 28 年度実証機の実測を表 2 に示しているが、本事業の開発品は燃料リサイクルによる燃料利用率向上、および輻射温調による温度分布均一化などの効果で、発電効率を 10pt 程度向上できることを確認した。

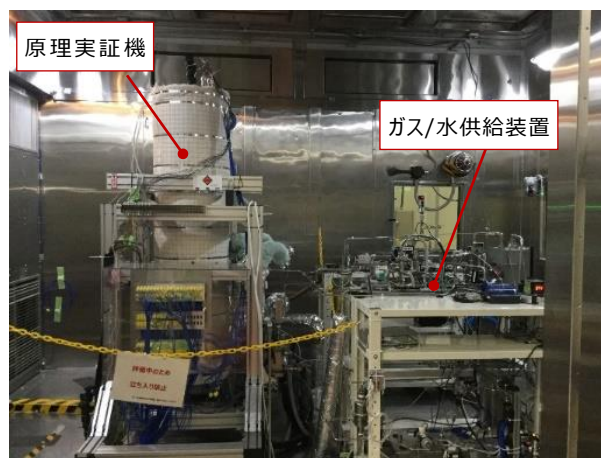


図 4. 原理実証機の評価装置

表 2. 研究開発の目標

	【参考値】 前事業 実測値	本事業 目標値		本事業 実測値
	平成 28 年度	平成 30 年度	平成 31 年度	
発電出力	AC4.5kW	DC5kW	AC4.5kW	DC5.02kW (AC4.52kW)
発電効率	AC50%	DC65%以上	AC60%以上	DC67.4% (AC60.2%)
燃料利用率	75%	85%	87%	87%
温度分布	50℃	30℃以下	30℃以下	15℃

ただし、FC モジュールは円筒多層流路を薄板溶接で構成されていることから、シール性を担保する溶接品質の向上と検査工程の簡略化がコストダウンを推進する上での課題であることが分かった。

そこで、量産時の低コスト化が可能な構造とするため、溶接部位、気密検査回数的大幅削減を狙って、多層となる円筒側面からの貫通部を廃止した構造に見直した FC モジュールの再設計を進めた。合わせて、円筒薄板の高精度組付を可能とする溶接設備、組付支援設備などを導入し、実用化課題抽出、および基礎耐久課題抽出を目的に平成 31 年度に評価を行う FC モジュールの試作で製造品質向上を進めている。

(2) 実用化技術課題抽出

5kW 級 SOFC モノジェネシシステムにおけるユーザ導入時の課題を抽出することを目的に、平成 30 年度に試作を行った原理実証機を用いて部分負荷時の発電性能評価を行った。

定格出力に対して 25%、50%、75%での出力と発電効率を取得し、定格出力に対する負荷率と定格効率に対する発電効率比を整理した結果を図 5 に示す。50%出力以下における発電効率が低いが、定格性能を重視した FC モジュール内のレイアウト設計、温調制御手法に課題があると分析しており、低負荷時にも重点をおいた熱マネジメント設計を実施することで改善できると考えている。

本課題をフィードバックした改良型の FC モジュールおよびシステム試作機の設計を完了しており、平成 31 年度にシステムでの部分負荷運転、負荷追従運転などを実施し、モノジェネユーザへの導入による省エネ効果や CO2 削減効果を検証し、実用化に向けての課題抽出を進める。

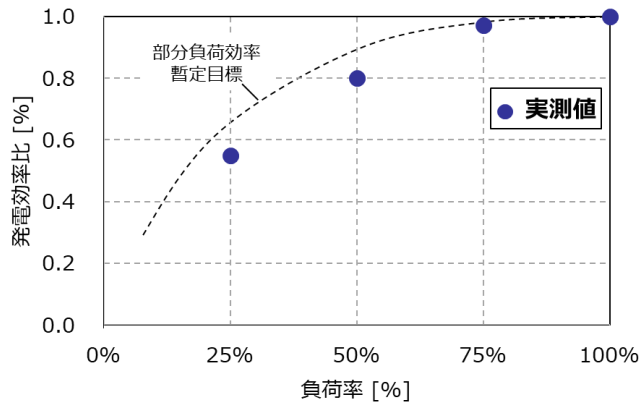


図 5. 部分負荷発電性能

(3) 基礎耐久課題抽出

前記(2) 実用化技術課題抽出で明確となった低負荷にも重点をおいた熱マネジメント設計を反映した改良型の FC モジュールおよびシステム試作機の設計を完了しており、平成 31 年度に連続/断続/負荷変動運転等を評価実施し、実用化に向けての耐久課題とフィードバック項目の明確化を進める。

3. 2 成果の意義

モノジェネユーザをターゲットとした高効率 FC モジュールの DC 発電評価を実施し、AC 効率換算で前 NEDO 事業での発電効率を 10pt 上回る発電効率 AC60.2%相当 (DC67.4%) の優れた性能を取得した。本結果から、エジェクタを用いた燃料リサイクル技術、円筒多層構造による輻射温調技術の妥当性を確認し、効率 60%超のモノジェネシステムの技術成立性を示せた。

3. 3 研究開発項目別残課題

(1) 基本設計仕様構築

- ・ FC モジュールの低コスト化を見据えた更なる VE/VA 設計と性能確保の両立

(2) 実用化技術課題抽出

- ・ FC モジュール内のレイアウト設計、温調制御の最適化による部分負荷効率の向上
- ・ 実負荷の出力変動を想定した負荷追従評価による過渡特性の把握と課題の明確化
- ・ システム評価結果に基づく業務モノジェネユーザの導入効果の定量化

(3) 基礎耐久課題抽出

- ・ 連続/断続/負荷変動評価を通じた耐久課題の抽出とフィードバック項目の明確化

4. まとめ及び課題、事業化までのシナリオ

4.1 成果の実用化に向けた課題

研究の目的の項でも述べたが、燃料電池市場は大きく分けてコジェネ市場とモノジェネ市場に分かれる。コジェネ市場では既に製品化され社会貢献が図られているが、モノジェネ市場に於いては現時点効果的な燃料電池は存在していない。モノジェネ市場で十分な価値を発揮する為には、発電効率と排熱回収効率を合算した総合効率ではなく、発電効率の高さが非常に重要になることから、発電効率に最重点を置いた開発を我々は目指してきた。

また、日本ガス協会（JGA）の試算では、業務用燃料電池市場は2030年断面で26千台/年とされているが、その内訳をみると、コジェネ4千台/年、モノジェネ22千台/年となっている。業務用分野の省エネ/CO₂削減を推進するためには、コジェネ市場のみならず、事務所/オフィス系といったモノジェネ市場に対する手立てが非常に重要であると考えられる。

更に、平成29年6月2日に資源エネルギー庁から報告された「エネルギーに対する年次報告」では、産業トップランナー制度に於いて、現状の製造分野のみならず業務用分野へ拡大し、全産業のエネルギー消費の7割に拡大する指針も示されており、燃料電池は、エネルギー核心戦略の中で重要な役割を占めることから、市場規模の拡大で成長性が見込まれ、経済効果が期待できる。

4.2 成果の実用化に向けた具体的取組

実用化に向けて、株式会社デンソーと東邦ガス株式会社は共同研究を推進している。株式会社デンソーは自動車で培った社内技術を集約したSOFC要素技術開発/システムアップを担当し、東邦ガス株式会社は、ユーザに近いことから、使い勝手等を中心としたシステム評価を実施している。また、両社合同で市場調査を実施し、事業性の検証も並行して推進中である。

実用化の2年前にマイルストーンを設定して、基礎耐久品質を含めた要素技術開発をほぼ完了させ、その後市場モニタに移行する計画を立案している。具体的には、耐久品質(10年9万時間、最終的には15年13万時間)を確保したFCモジュールの開発設計、発電ユニット(アッセンブリ)での、実用化技術課題(負荷追従最適制御の構築等)、耐久課題(連続/断続/負荷変動運転を通じた劣化耐久性確認等)の抽出を行い、社会実装に向けた開発を実施する。今後の開発進捗によって柔軟にマイルストーンを前後させていく計画である。

4.3 成果の実用化の見通し

事業化に向けては、コストが重要なファクターとなる。性能面に関しては目標達成目途が得られたが、今後は、性能を維持しつつ作りやすさ(コストダウン)の追及が必要である。株式会社デンソーでは、自動車部品やCO₂給湯機で培った生産(量産)技術を擁しており、それらの知見を有効活用するため、関係部署と連携を取り進めることでコスト目標は達成できる見通しである。

前述の内容であるが、株式会社デンソーが製品を提供するモノジェネ市場は、有効な省エネ/CO₂削減手段が無いことから市場ニーズ・ユーザーニーズには合致していると考えられる。

性能面に於いては、現時点市場流通している既販機の発電効率は39～55%程度であり、株式会社デンソーが目指す60%超は、デンソーの優位技術である「エジェクタを用いた燃料リサイクル」で優位性を確保している。コスト面に於いても、前述の社内技術の活用で優位性を確保できる見通しである。

大規模集中発電所のCO₂原単位を凌ぐデンソーSOFCは分散化電源としての価値が飛躍的に向上する。本開発の波及効果として、昨今のエネルギー動向からVPP等の調整力にも活用できるようになり、太陽光などの自然エネルギー由来電源の調整力としての価値が飛躍的に向上するものとする。

5. 研究発表・特許等

なし

(6.3) 「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発／次世代技術開発／可逆動作可能な固体酸化物型燃料電池による低コスト水素製造および高効率発電を利用した電力貯蔵」

委託／共同研究／
助成先：九州大学

●成果概要（実施期間：平成25年度～平成29年度終了）

- ・燃料電池と高温電解に可逆的に作動可能なセルの作製と性能向上のための電極材料の開発を行い、Ni-Ce_{0.6}Mn_{0.3}Fe_{0.1}O₂が最も安定な燃料極であることを示した。
- ・デンプンコート法を用いて、LaGaO₃系酸化物を電解質とするセルの作製を行い、ほぼ理論起電力と大きな出力を示すセルの開発に成功した。
- ・Cr₂O₃を添加し、PrBaMn₂O₆を添加することで、焼結することなく、低温で、酸化還元を繰り返し安定に示すことができた。

●背景/研究内容・目的

現在、再生可能エネルギーの普及に伴い、大型の蓄エネルギーデバイスへの強い要望がある。固体酸化物燃料電池は、ほぼ同じ構造で電解質となることから、燃料電池による発電と電解による燃料の合成を可逆的に行うことが可能である。そこで、本研究ではFeの酸化還元と低温作動型可逆燃料電池を組み合わせた新しい概念の燃料電池の開発を行うことを目的とする。低温で作動させるためには、空気極の過電圧が大きく、低温まで小さい過電圧を維持できる空気極触媒が必要である。一方で、電解質の薄膜化も必要であり、高酸素イオン伝導体のLaGaO₃系酸化物の薄膜からなる小型円筒型セルの開発を行い、また350°C程度の低温において、酸化還元を繰り返し、劣化しないFe粉末の合成を目的とする。

●研究目標

実施項目	目標
A	高活性カソードの開発
B	LaGaO ₃ 系酸化物酸化物を用いる円筒型セル
C	低温で可逆的に酸化還元可能なFe粉末
D	小型組セルの見通しを得る

●実施体制及び分担等

NEDO	九州大学（実施項目A、B、C、D）
------	-------------------

●これまでの実施内容/研究成果

- 1) セルの基本性能
- ・SOFC単セル発電性能：500°Cにおいて電流密度200mA/cm²で0.6Vの端子電圧
 - ・SOFC単セル発電耐久性：500°Cにおいて電流密度100mA/cm²で初期動作電圧の達成（長期評価は24時間程度でほぼ劣化なしを達成）
 - ・SOFC単セル水蒸気電解性能：500°Cにおいて1.3Vの電解電圧において、電流密度0.32A/cm²を達成。
 - ・SOFC単セル水蒸気電解耐久性：800°Cで100時間の劣化率 ほぼ0%。
 - ・電解と発電の電気エネルギー効率78%を達成
- 2) 円筒セル
- ・湿式法を用いたSOFC作動が可能な円筒型セルの作成と動作確認
 - ・ほぼ理論起電力を示すLSGM薄膜からなるセルの作成法、拡散抑制層の作成法の開発
 - ・発電と電解の繰り返し100サイクル以上の安定性の達成、100サイクル後、初期特性の95%の維持当初計画していた組セルは、ガスシールが不十分で実施できず、今後の課題。
- 3) Fe粉末
- ・400°Cにおいて初期の水素供給・吸蔵速度 358 mmol H₂/Kg Fe/min
 - ・水素供給・吸蔵速度の耐久性 初期の水素供給・吸蔵速度に対して30 cycle後の維持率はほぼ100%を達成。

●今後の課題

- ・繰り返し特性に優れたセルを用いる小型スタックの作成と実際のシステムとしての作動特性の実現と評価
- ・長期安定性の評価と向上

●実用化・事業化の見通し

現在の大型蓄電装置の必要性からコストと安定性を実現できると、市場性はあると考えている。一方で水素キャリアーとしてのFeはそれぞれ自身でも市場性があると期待され、引き続き、検討することで実用化の可能性があると考えている。

●研究成果まとめ

実施項目	成果内容	自己評価
新規電極	サーメット系、酸化物カソードの検討	目標を達成
小型円筒型セル	多孔質LSGM膜の作成 Ni-YSZ基体管の高性能化	一部未達があるが、ほぼ達成
Fe粉末	焼結抑制剤と触媒の混合	目的を達成
特許出願	論文発表	外部発表
0	5	28
		受賞等
		0

課題番号：6. 3

研究開発名：「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発／次世代技術開発／可逆動作可能な固体酸化物型燃料電池による低コスト水素製造および高効率発電を利用した電力貯蔵」

1. 研究開発概要

本研究では従来、創エネルギーデバイスと考えられている固体酸化物型燃料電池(SOFC)を可逆的に動作させ、社会的に要望の高い蓄エネルギーデバイスへと展開することを目的とする。具体的には本研究ではFeの酸化還元を立脚したSORCを用いる新しい概念の蓄エネルギーデバイスを開発する。このデバイスは充電モードで、水蒸気をSORCで電解($\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2 + 1/2\text{O}_2$)して水素を製造し、生成した水素で Fe_2O_3 を還元($\text{Fe}_2\text{O}_3 + 3\text{H}_2 \rightarrow 2\text{Fe} + 3\text{H}_2\text{O}$)する。一方、放電モードでは、水蒸気でFeを酸化($2\text{Fe} + 3\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{Fe}_2\text{O}_3 + 3\text{H}_2$)して Fe_2O_3 と水素を製造し、この水素をSORCで酸化($\text{H}_2 + 1/2\text{O}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O}$)する。つまり、このセルでは $\text{H}_2/\text{H}_2\text{O}$ をレドックスメディアータとして、充電と放電を行う一種の2次電池であり、SOFCを蓄電デバイスへ応用する。Feの酸化還元によるこの方式の蓄電デバイスは、理論エネルギー密度が 1200Wh/kg-Fe となり、通常のLiイオン2次電池に比べると約5倍、NaS電池に比べても、約4倍の優れたエネルギー密度になり、Feという環境調和性材料を用いながら、大きなエネルギー密度を得ることが可能な新しい蓄電デバイスになることが期待される。

本研究ではこのような優れた特徴のある蓄電デバイスへの展開を目的にSORCの開発と小型セルによる概念の実証を行う。このために、充電に相当する電解と放電に相当する発電を、高効率で、また可逆的に繰り返し行うことのできるSORCの開発を行う。また、蓄エネルギーデバイスとして、SOFCを応用するためには待機時のエネルギー消費量を小さくするために、従来のSOFCよりはるかに低温での作動が必要なことから、 500°C 以下の低温で優れた出力密度を有するSORCの電極・電解質を開発する。

2. 研究開発目標（設定の理由も含め）

1) セルの基本性能

長期にわたり、安定に繰り返し作動が可能で、優位性があることを考えると以下の目標を設定した。

- SORC単セル発電性能： 500°C において電流密度 $200\text{mA}/\text{cm}^2$ で 0.5V の端子電圧の達成
- SORC単セル発電耐久性： 500°C において電流密度 $100\text{mA}/\text{cm}^2$ で初期動作電圧の2%以下の劣化率@1000時間
- SORC単セル水蒸気電解性能： 500°C において 1.3V の電解電圧において、電流密度 $0.2\text{A}/\text{cm}^2$ を達成。
- SORC単セル水蒸気電解耐久性： 500°C において電流密度 $0.3\text{A}/\text{cm}^2$ で初期動作電圧の3%劣化/1000時間
- 電解と発電の電気エネルギー効率80%以上

2) 円筒セル

作成した水素がリークすることなく、繰り返し利用するには、シールがタイトである必要があり、円筒型セルが適すと考えられる。円筒型セルでは集電長が長いので、高酸素イオン伝導体の薄膜を用いる円筒型セルが必要となり、以下の目標を設定した。

- 湿式法を用いたSORC作動が可能な円筒型セルの作成と動作確認。
- 理論起電力を示すLSGM薄膜からなるセルの作成法、拡散抑制層の作成法の開発
- 発電と電解の繰り返し50サイクル以上の安定性の達成、50サイクル後、初期特性の80%の維持

3) Fe粉体

全体としてのセルの作動条件の目標から、H₂ を蓄える役割をする Fe には以下の目標が必要と考えられ、設定した。

- ・400°Cにおいて初期の水素供給・吸蔵速度 110 mmol H₂/Kg Fe/min
- ・水素供給・吸蔵速度の耐久性 初期の水素供給・吸蔵速度に対して100 cycle 後の維持率を80%以上とする。

3. 研究開発成果

3.1 研究開発成果、達成度

(1) 高効率発電および低コスト水素製造を両立する SORC 電極・電解質の研究開発

当初の3年間の研究において種々の電極の安定性を検討したところ、NiFe-Ce_{0.8}Gd_{0.2}O₂ (DDC)が比較的、良好な電極特性を示すことを見出した。そこで、実際に小型セルを試作し、可逆運転の可能性を検討した。その結果、50サイクルにわたり、100mA/cm²の電流密度で繰り返し運転が可能なが分かった。しかし、30サイクル程度からNiの凝縮による発電性能と空気極性能の低下が確認され、電極性能と耐酸化性の向上が必要である。そこで、酸化、還元雰囲気にも曝されても、劣化しない電極として金属を使用しないでもSORC作動が可能な酸化物の燃料極触媒についての検討を行った。

種々の酸化物のSOFCアノード特性を検討したところ、Ce_{0.6}Mn_{0.3}Fe_{0.1}O₂ (CMF)が比較的優れたアノード特性を有することを見出した。そこで、CMFのSOEC特性を検討するとともに可逆セルとしての運転特性についての検討を行った。

図1にはCMFをアノードに用いるセルの水蒸気電解特性の温度依存性を示した。図中には比較としてNi-SDC電極を用いたセルの水蒸気電解特性を示した。図に示すようにCMFは良好な電解特性を示し、Ni-SDCに匹敵する電解電流を引くことが可能であった。温度の低下とともに、低電位での電解電流はNi-SDCの方が良好であるが、電位を印加して、CMFがわずかに還元状態になると内部抵抗が低下し、電解電流を引くことができるようになった。生成する水素についても分析しており、ほぼファラデー則に従うH₂の生成を確認しているため、CMFはNi-SDCに匹敵する燃料極特性を有することが分かる。

現在の水蒸気電解では、Niの酸化を抑制するために高濃度のH₂を再送入する必要があり、システムの複雑化を招く。そこで、理想的にはH₂を共存させないで、電解できることが望ましい。図2にはNi-SDCおよびGDCにおいて、800°C、250mA/cm²で少し長めの水蒸気電解を行った際の電圧変化を示した。Ni-SDCではNiの酸化の抑制を目的に10%H₂を共存させた。図2に明らかかなように、Ni-SDCでは電解電位は25時間ころから急激に増加し、電解を行うことができなくなった。これはNi極の凝縮と剥離を生じたためであることが分かっている。

これに対して、CMFでは100時間にわたりH₂を共存させなくても安定に電解を行うことができた。

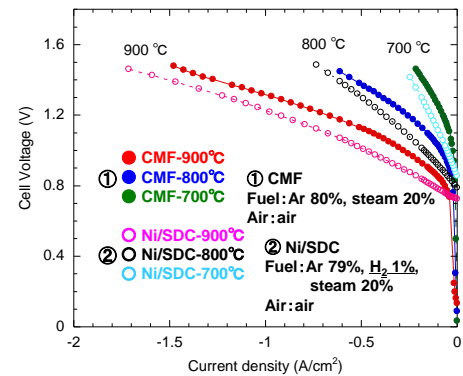


図1 CMF をアノードに用いるセルの水蒸気電解特性の温度依存性

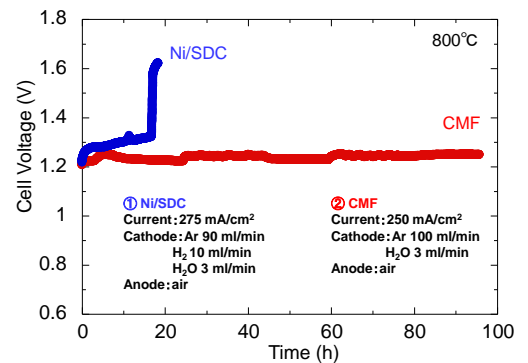


図2 Ni-SDC および GDC の 250mA/cm² における水蒸気電解の電圧変化

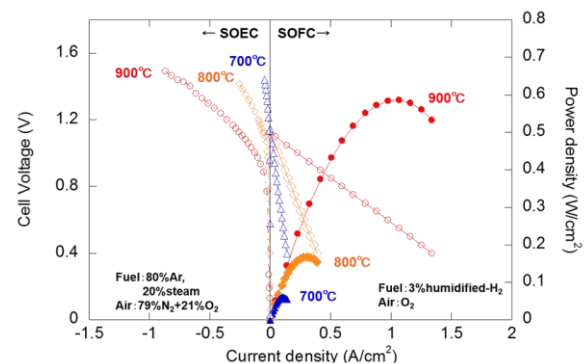


図3 CMF/LSGM/BLC (CMFセル)におけるSOFC-SOEC可逆作動のI-V曲線 SOFC: 3%humidified-H₂, O₂ SOEC: 20%steam+80%Ar, 79%N₂+21%O₂

そこで、CMF は水蒸気電解用の電極として優れた性能があることが分かる。

図 3 には CMF を空気極するセルについて SOEC/SOFC を行った結果を示している。電解の過電圧が小さいので、開回路付近での電位のジャンプもなく、可逆的な I-V 曲線を示すことが分かる。SOFC の出力はまだ、十分高くないものの、CMF は可逆的で安定な燃料極として、今後の展開が期待できる。CMF は図 3 に示すように 800°C では優れた燃料極特性を示すが、電導度が低く、作動温度の低下による電極抵抗の増加が大きく、低温では、電解特性および発電特性の低下が顕著であった。そこで、低温まで作動可能な酸化物電極をさらに検討した。

本研究では還元雰囲気でも比較的安定な酸化物である $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{FeO}_3$ (LSF) について検討を行った。図 4 には LSF を燃料極に用いる LSGM セルの水蒸気電解の I-V 曲線を示す。LSF は比較的、良好なカソード特性を示し、図 4 に示すように、従来検討してきた Ni-GDC の電極に比べても遜色のない電解特性を示すことを見出した。図 2 には発生する水素量を、電流密度に対して求めた結果を示した。電流とともに水素がいずれの温度でも発生し、図中に示した Faraday 則に従った生成量を観測することができたので、水蒸気電解がクーロン効率 1 で進行することが分かる。そこで、LSF は優れた燃料極であり、電解時において、良好な反応性を示すことが分かった。一方、内部抵抗を見積もったところ、LSF は開回路状態では IR 損が非常に大きいものの、電解を開始すると IR 損が減少し、過電圧も減少することを見出した。電解時には LSF は一部が還元状態になり、部分還元された LSF が極めて高活性であることを示唆している。

図 5 には LSF を燃料極としたセルの SOFC/SOEC の作動特性を示した。LSF は電解においては優れたカソード電極特性を示すとともに、SOFC のアノード電極においても優れた電極特性を発現し、図 6 に示すように、可逆的に作動できることが分かる。900°C において 0.5W/cm² 程度と酸化物アノードとしては比較的、大きな出力を与えることが分かった。一方、酸化物電極で課題である、低温作動においても比較的、良好な作動特性を示し、700°C で、LSGM (0.3mm) を電解質として 0.1W/cm² 程度の出力を示すことが分かった。そこで、LSF は優れた燃料極特性を、SOFC/SOEC ともに示すことを見出した。

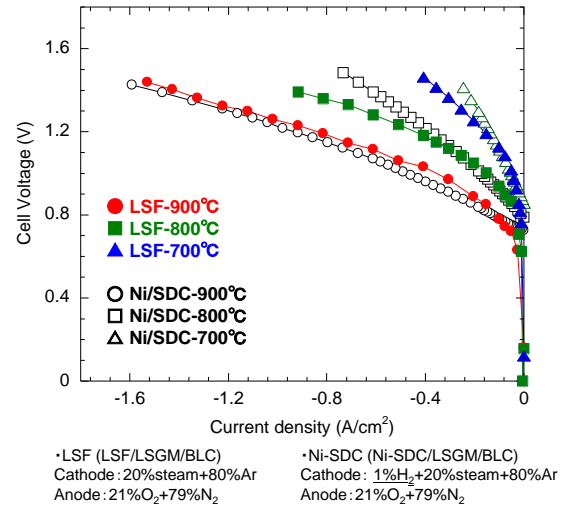


図 4 LSF を燃料極に用いる LSGM セルの水蒸気電解の I-V 曲線

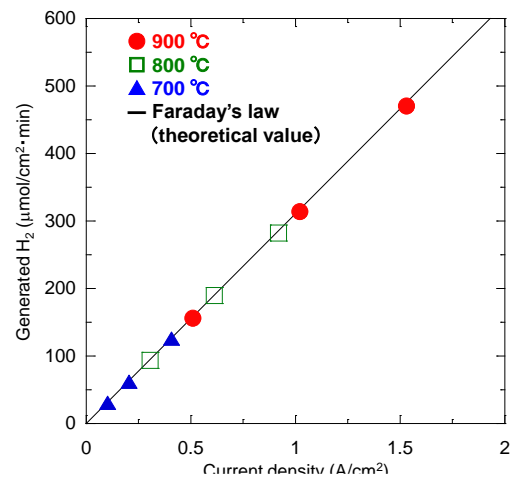


図 5 発生する水素量の電流密度

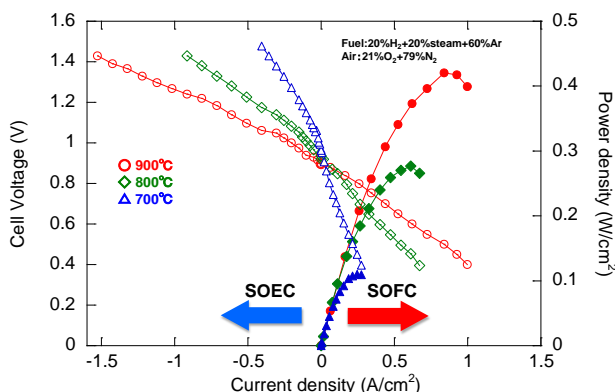


図 6 LSF を燃料極としたセルの SOFC/SOEC の作動特性

図7にはSOFC/SOECの40% H_2 -20% H_2O における繰り返し作動特性を示した。図に示すように非常に安定して繰り返しSOFC/SOECを繰り返すことが可能であり、40時間にわたって、SOFCモードで0.5V、SOECモードで1.3Vの安定した電位を40サイクルにわたって安定に示した。そこで、LSFは可逆動作型SOFCの燃料極として優れた性能があることを新たに見出した。しかし、LSF電極においても低温作動時のIR損の増加が大きく、出力の低下が大きい。酸化物電極では安定性という観点では興味ある特性を示すものの、低温作動という観点では十分な活性とは言い難い。

そこで、Ni系サーメットについて、劣化しにくい作動条件の検討を行った。図8には種々のNiベースサーメット燃料極を用いるセルのSOEC/SOFC可逆運転のI-V曲線を示す。I-V曲線はNiと混合する金属または酸化物によって大きく変化し、図5に示すようにNi-CMFを用いる最も内部抵抗の小さいI-V曲線を得ることができた。一方、興味あることにNi-LSGMサーメットは電極の活性が低く、 SiO_2 や Cr_2O_3 と混合した系より活性が低いという結果となった。これはNiとLSGMの界面で抵抗の大きい La_2NiO_4 が生成するためと推定される。一方、Ni-Fe系合金も比較的、良好な電極特性を示すことが分かる。いずれにしてもNi-CMFの電極特性が最も良好であったことから、さらに詳細な検討を行った。

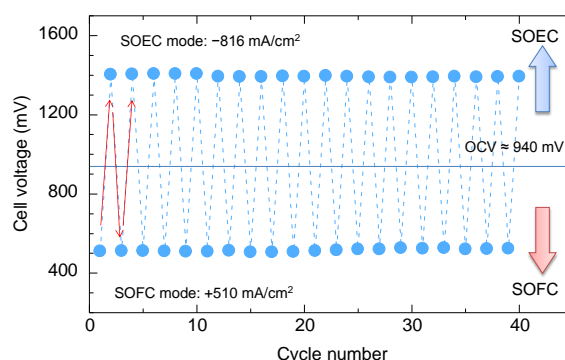


図7種々のNiベースサーメット燃料極を用いるセル

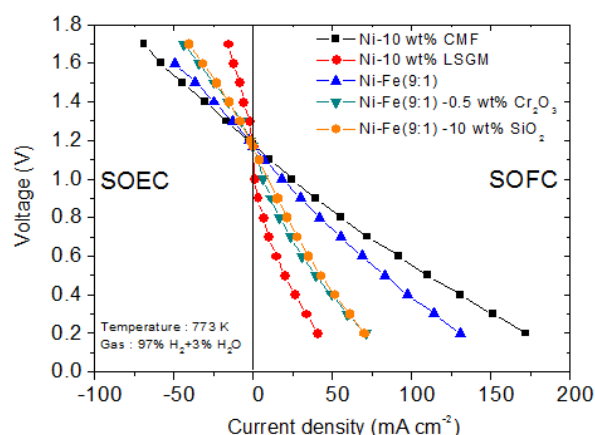


図8種々のNiベースサーメット燃料極を用いるセル

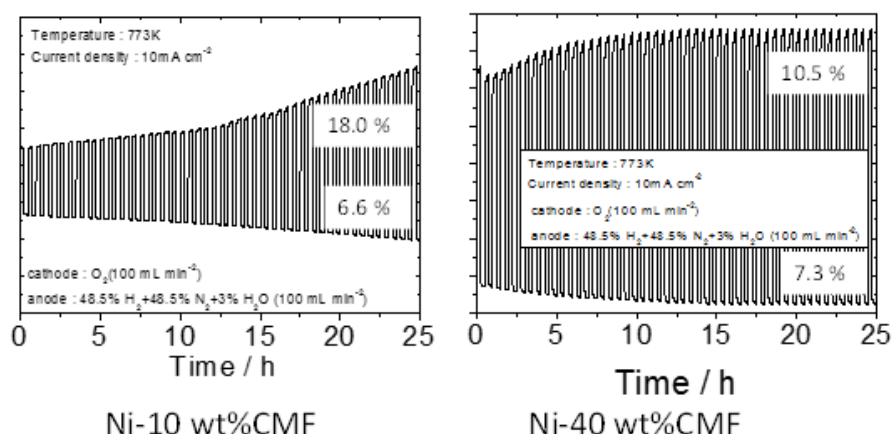


図9異なるNi/CMF比のサーメット電極の繰り返しSOEC/SOFC特性

図9には異なるNi/CMF比のサーメット電極の繰り返しSOEC/SOFC特性を示す。10wt%のCMFを混合した系では当初の繰り返し特性は非常に良好で、SOECとSOFCの電位差は小さいが、繰り返しにより劣化が著しく、100サイクル後にはSOEC側で18%、SOFC側で6%の劣化となった。これはNiの凝縮によるものと推定される。そこで、CMFの混合量を40%とした系で検討すると、図9に示すように、初期の特性は良好ではなく、電位差は大きく、初期のサイクル劣化は大きかったが、ある程度の繰り返しが可能で、100サイクル後の劣化率はSOEC側が10.5%とむしろ少ない結果となった。そ

ここで、組成の最適化である程度、繰り返し特性を向上できる可能性がある。

次に操作条件による劣化率の変化を検討した。図 10 には Ni-CMF を用いて 3% H_2O および 20% H_2O の加湿条件での繰り返し SOFC/SOEC 動作を行った際の繰り返し特性を示す。90%Ni-10%CMF で 500°C の作動条件なので、電流密度は大きくはないが、図 10 に示すように、3% H_2O を送入時には比較的初期からセルの性能低下が開始し、セルの性能低下は SOEC モードにおいて顕著に観測される。これに対して、図 10(b) に示すように水蒸気の分圧を向上し、水蒸気の利用度を低下すると、SOEC および SOFC の電位差は大きくなり、エネルギー効率は低下するものの、100 サイクルにわたり、繰り返し

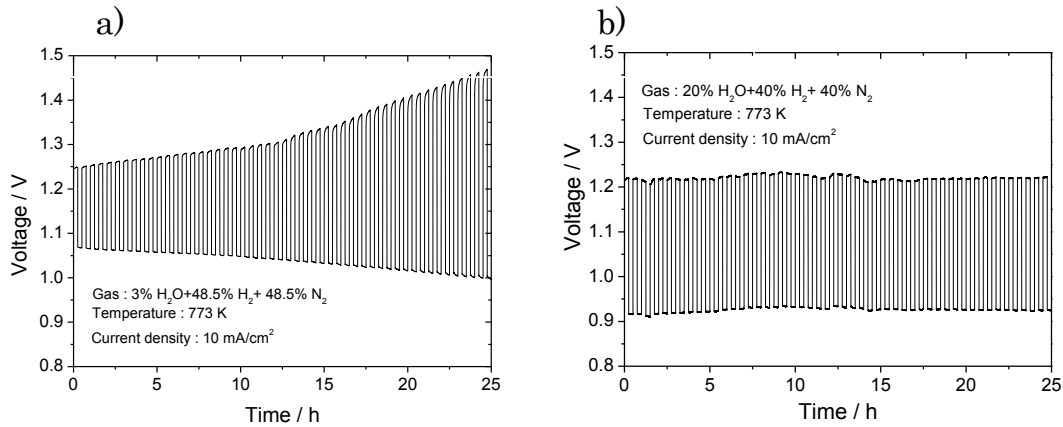


図 10 Ni-CMF を用いて 3% H_2O および 20% H_2O の加湿条件での繰り返し SOFC/SOEC 動作を行った際の繰り返し特性

SOFC/SOEC を行うことができ、劣化を生じにくくなることが分かった。そこで、水蒸気利用率は安定性に対して大きな影響があり、繰り返し作動させるためには、水蒸気利用率をある程度、低く抑制する必要があることが分かった。

図 11 には 100 サイクル前後の OCV における Ni-CMF アノードのインピーダンスの比較を示す。図 11 に示すように、100 サイクルの繰り返し作動試験により、IR 損に相当する高

周波側の円弧に変化はないものの、電極の過電圧を表す低周波側の円弧が大きく増加しており、アノードの劣化が加速することが分かる。主に濃度過電圧が増加したことから、繰り返し動作において、とくに SOEC の条件で、Ni の酸化と凝縮を生じやすく、この結果、拡散抵抗が大きくなったものと推定した。今後、燃料極についてはさらに安定性の向上が必要であるが、本研究で目的とした 100 サイクルでの繰り返し特性などは目的を達成することができた。

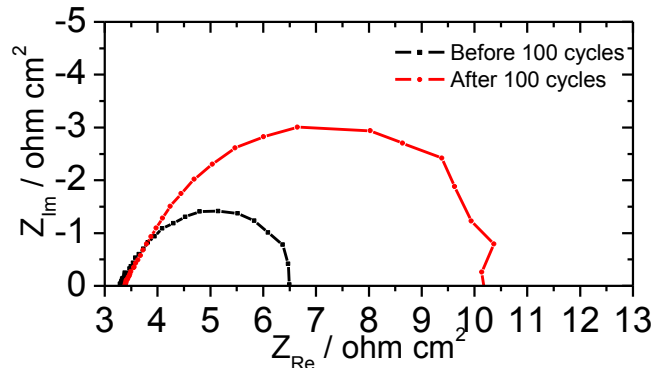


図 11 100 サイクルの繰り返し可逆作動試験前後のインピーダンスプロット

(2) 薄膜円筒型セルの開発

円筒管基板として NiO-YSZ (66:34 wt%) を用いて、ディップコートして作成した円筒管型セルの発電特性を示した。製膜の溶媒を最適化したことにより、図 12 に示すように起電力はまだ低いながらも、700°C で 0.4W/cm² 程度の出力を示すセルの作成が行えた。このセルは、作動温度の低下により、発電特性は低下するものの、500°C でも発電が可能で、40mW/cm² 程度の出力を示すことが分かった。ガスリークを生じる機構の検討を目的に、構成材料の還元時の体積変化を検討したところ、干渉層

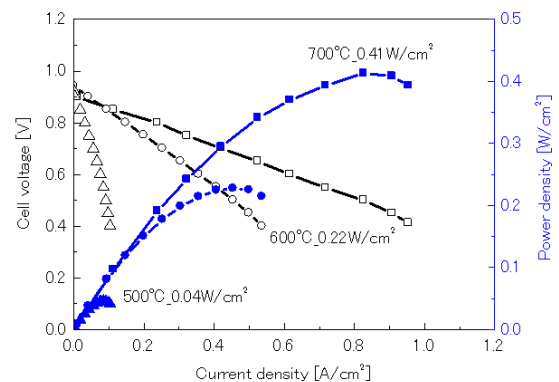


図 12 円筒管基板として NiO-YSZ を用いて作成した円筒管型セルの発電特性

に用いている CMF が、還元を行うと体積膨張を 2% 程度生じ、これがクラックを発生する理由と推定された。そこで、CMF の薄膜化を行う、体積変化の影響を低減することを検討した。その結果、CMF の塗布回数を削減して、円筒型セルの作成を行った。その結果、CMF の膜厚を低減することで、電解質の割れの発生を抑制でき、ほぼ理論起電力を示すセルが作成できることを明らかにした。このセルの低温発電特性を検討したところ、出力は温度とともに大きく低下することが分かる。そこで、本研究で目的としている 500°C でも十分、大きな出力を示す円筒型セルの開発には、さらに内部抵抗の低減が必要である。

図 13 には作成した円筒型セルを用いて SOEC/SOFC を行った際の I-V 曲線を示す。図に示すように、作成した円筒型セルでの電解も可能であり、700°C では 1.5V で 0.6A/cm² 程度の電解電流を得ることができた。一方、発電側は、逆動作により出力がやや低下したが、0.4W/cm² 程度の出力を得ることができた。

このような出力の低減する理由として、IR 損および過電圧の増加であることが分かっている。そこで、このような IR 損の増加する理由として、空気極の剥離を推定した。ディップコート法で作製した LSGM 電解質は表面が緻密でスムーズなので、その上に低温焼成で作製するカソード層は容易にデラミネーションすると考えた。そこで、LSGM の最外層をポーラス化することを試みた。

多孔質電解質として LSGM のスラリーにセルロースを溶解したスラリーを用いた。LSGM のディップコートを行う際に最外層のディップコートスラリーにセルロースを添加したスラリーを用い、厚さ 5mm 程度の多孔層を析出させた。種々の濃度のセルロースを添加した LSGM で、多孔質電解質層の作製を検討したが、造孔剤のセルロース量が少ないと多孔化が十分でなく、スラリー濃度が大きいとスラリーの粘度が大きくなり、均一な塗布を行うことができなかった。そこで、最適の添加量として 10wt% であることが分かった。

図 14 には SSC のみ、SSC-LSGM コンポジット、LSGM 多孔質界面を作製したセルの発電特性を示した。図に示すように、SSC のみに比べると多孔質 LSGM 層を導入することで、開回路起電力が、わずかに低下したが、発電特性は大きく向上し、700°C において 0.8W/cm² 程度の最大出力に達成できることが分かった。そこで、多孔質層の導入は、カソード性能の向上に有効で、IR 損及び過電圧を低減できることが分かる。一方、図 15 には作成した多孔質界面を有するセルの発電特性の温度依存性を示した。図に示すように、700°C では著しく出力密度を向上することができたが、温度の低下とともに、出力の低下が大きく、開発を目的とした 500°C では、最大出力密度は 0.1W/cm² 程度となった。これは、温度の低下とともに、電極の過電圧が、著しく増加するためである。カソード界面に多孔質層の導入しより、700°C では IR 損および過電圧の低減を達成できたが、温度低下とともに、このような多孔質電解質層の導入効果が無くなり結果であった。

図 15 には LSGM 多孔層を導入したセルの電解特性の温度依存性も示した。図 15 に示すように、電解質の緻

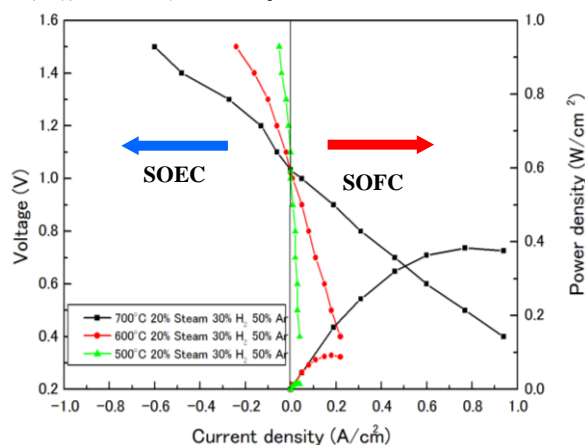


図 13 円筒型セルを用いて SOEC/SOFC を行った際の I-V 曲線

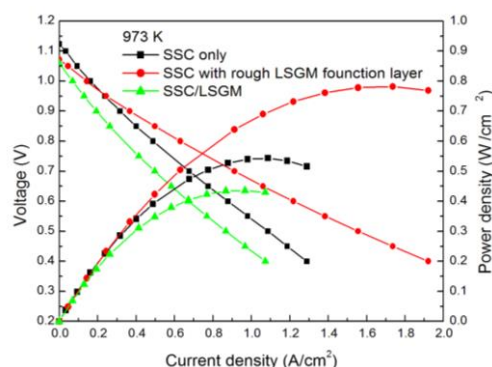


図 14 SSC, SSC-LSGM コンポジット、LSGM 多孔質界面を作製したセルの発電特性

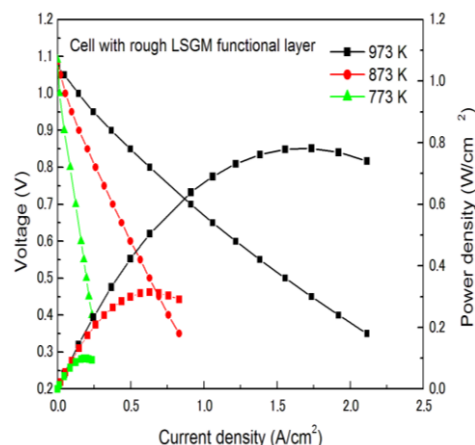


図 15 SSC, SSC-LSGM コンポジット、LSGM 多孔質多孔質界面を作製したセルの発電特性

密性を向上できたことで、開回路状態ではほぼ理論起電力を示し、電解を行うことができた。電解電流は600°Cで0.6A/cm²と比較的良好であるが、先に述べたように、500°Cでは電極の過電圧が大きく、0.1A/cm²程度と小さくなった。一方、図16にはN₂中で、エージングを行った結果を示した。N₂中でエージングを行い、Ni-YSZへのCeの添加を行うと開回路起電力がわずかに低下するが、内部抵抗が低下し、600°Cおよび500°Cでの電解特性を向上することができた。この結果、図16に示すように、500°Cでの電解電流は0.32A/cm²の電解特性を達成することが可能であった。これはCe添加によりNi-YSZ燃料極基板の過電圧が低下したためと考えられる。今後、さらに空気極界面に関しては詳細な検討を行うことでさらに出力の向上が期待できる。

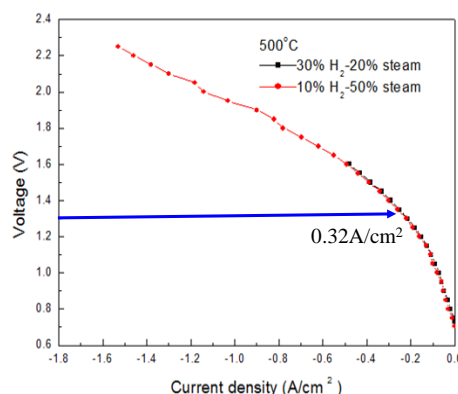
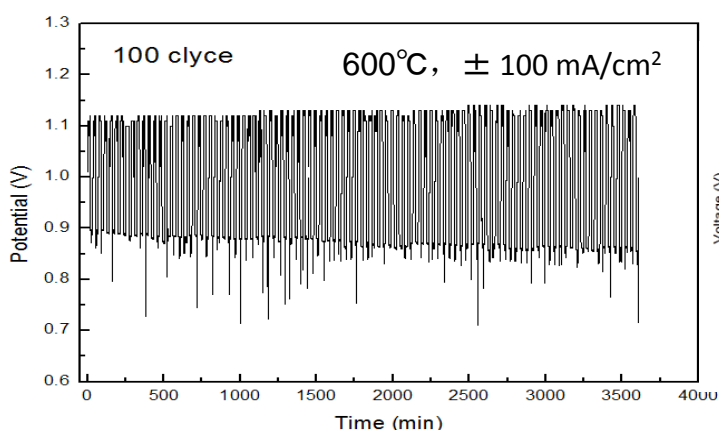


図16 Ni-YSZにCeを添加したセルの水蒸気電解特性



サイクル前後のセルのI-V曲線

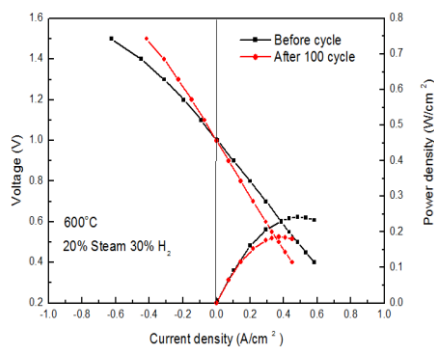


図17 100mA/cm²で繰り返しSOFCとSOECを行った際の電圧の変化とIV特性の変化

次に作成した円筒型セルの繰り返しSOFC/SOEC特性を検討した。この円筒型セルでは燃料極側にCMFを用いていることから、図10で示したような優れた繰り返し安定性の達成が期待できる。図17には100mA/cm²で繰り返しSOFCとSOECを繰り返した際の電圧の変化を示した。初期の端子電圧はSOFCおよびSOECでそれぞれ、0.897, 1.107Vであった。100サイクル後には、OCVが1.005から0.998Vにわずかに低下したので、電極の剥離や電解質へのピンホールの生成などが疑われるが、大きな低下ではないので、セルは健全に作動していると推定される。100サイクル後には端子電圧はSOFCおよびSOECでそれぞれ、0.856, 1.114Vであった。そこで、発電性能の劣化率はそれぞれ95%および99%であり、比較的、良好であった。

今後、セルの小型組セル化を検討することで、500-600°C程度で、十分、大きな出力を示す高耐久性のセルの開発を行うことができると期待される。以上より、開発目標を達成することができた。

(3) 実用化に向けた鉄微粒子作製プロセスの研究開発

FeにCrとPrBaMn₂O₅を混合することで、酸化・還元に伴うFeの焼結を抑制でき、繰り返し酸化・還元を行えることを見出した。そこで、本研究では、混合する添加量の最適化を検討した。図18には混合量の異なるCrを混合したFe粉体の繰り返し、酸化・還元を行った結果を示した。図に示すようにCr

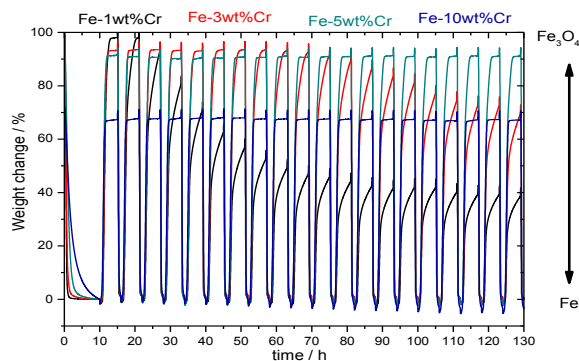


図18 混合量の異なるCrを混合したFe粉体の繰り返し、酸化・還元特性

量が増加すると、繰り返し特性が向上し、5wt%で最も安定に繰り返し酸化・還元を行うことができた。しかしCr量が多くなると繰り返すことのできる重量変化が低下する。これは、CrがFeと FeCr_2O_4 スピネル化合物を形成し、Feの焼結を抑制するためと推定される。

そこで、最適化された3wt% Cr_2O_3 -3wt%PBMOを、ビーズミルを用いて均一に混合した Fe_2O_3 を用いて繰り返し酸化還元を行った結果を図19に示す。図に示すように、初回のサイクルから $\text{Fe}_3\text{O}_4 \rightarrow \text{Fe}$ に匹敵する重量変化を示し、30サイクルにわたり、ほぼ劣化なく繰り返し酸化と還元を行うことが分かった。この間の劣化率はほぼ0%であり、安定な繰り返しを行うことが可能であった。

図20には作成したFe-Cr-PBMOを用いたFe-空気電池セルの繰り返し充放電の結果を示す。初回にほぼ理論容量での放電を行うことができる。繰り返し充放電を行うと放電電位が低下するとともに放電容量は低下した。放電容量の低下は、充電容量の低下により生じており、充電時のFeの焼結による還元が十分、進行しないため、放電が行えないものと推定される。今後は電極距離や水蒸気分圧などを調製し、ある程度の繰り返しが行えるようになると期待できる。

次に調製法の影響を検討した。従来の検討ではFeへの触媒成分の添加はおもにボールミルによる物理的な混合法で行っていたが、より均一な粒径と触媒の添加を目的に、噴霧熱分解による触媒成分の混合を行った。図21には用いた噴霧熱分解の方法を示した。噴霧熱分解では、水溶液に懸濁した硝酸Feの水溶液とCMF粉体をミストとして蒸発させ、電気炉中で熱分解し、得られた粉体を回収する方法である。粒径が $10\mu\text{m}$ 程度のサイズのある程度、整った球形のFe粉体の合成を行うことができた。CeおよびMnのEDX分布を観測すると、均一に分布していることが分かる。そこで噴霧熱分解法で、均一なCMFを分布した多孔質Fe粒子を得ることができた。

図22には噴霧熱分解およびボールミルで合成したCMFを分散したFe粒子の酸化還元特性を示す。噴霧熱分解法で作製したFe粉体は、通常のボールミル法に比べると均一で、焼成過程で水の蒸発により多孔質化していることから、焼結が起こりにくく、 Fe_3O_4 とFeの酸化還元を繰り返し安定に生じることが分かる。そこで、本研究で目的とした低温でも十分作動可能な酸化還元を安定に示すことが分かる。

そこで、噴霧熱分解で、作成したCMFで修飾したFe粉体を内部に設置したLSGM電解質支持管を用いる全固体Fe-空気電池による作動特性を検討した。

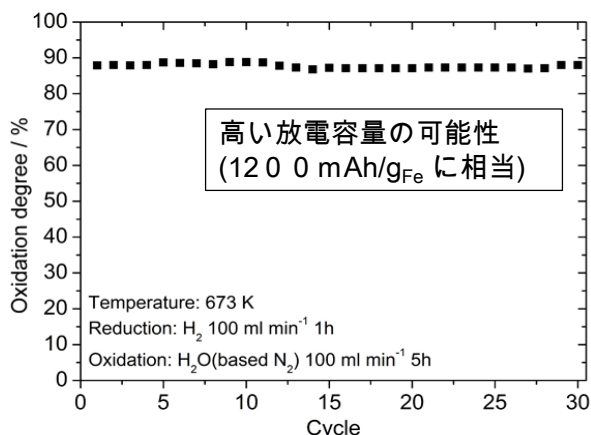


図19 ビーズミルを用いて均一に混合した Fe_2O_3 を用いて繰り返し酸化還元を行った結果

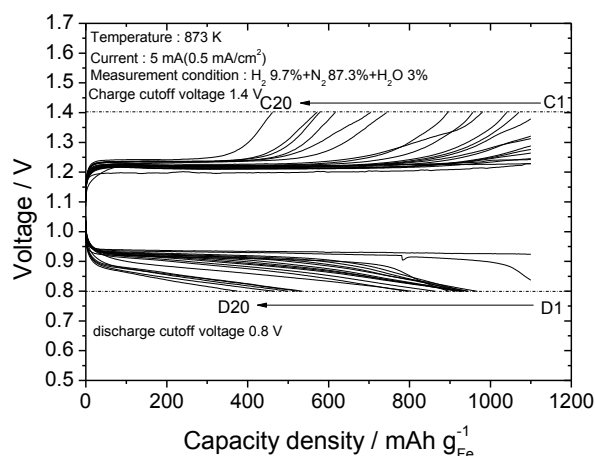


図20 作成したFe-Cr-PBMOを用いたFe-空気電池セルの繰り返し充放電

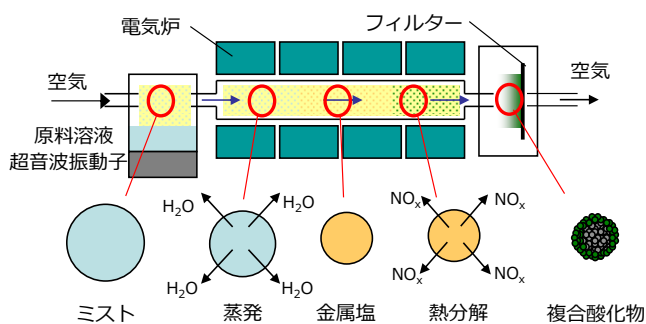


図21 用いた噴霧熱分解の方法

図 23 に示すように、初回の放電で、ほぼ理論容量を達成でき、繰り返し安定に放電を行うことが可能であった。電気化学的に繰り返し充放電は可能であったが、繰り返し充放電を行うと容量は、わずかに低下し、20 サイクル後の容量は、約 800mAh/g となった。放電は 0.95V で行われ、充電は 1.25V であったことから充放電の効率は約 76%であった。電極の過電圧の低減を行うことができると、さらに効率の向上が期待できる。劣化の機構の解析を目的に図 24 には空気極と燃料極のインピーダンスの変化を示す。図に示すように、繰り返しとともに空気極、燃料極ともに過電圧と IR 損は変化するが、燃料極の変化が顕著で、とくに低周波数側の濃度過電圧の増加が顕著なことが分かる。これは電極性能が劣化するというわけではなく、内部の Fe の酸化還元速度が十分に追いつかず、濃度過電圧が増加する結果である。そこで、今後、さらに優れた充放電特性および効率の達成には Fe の酸化還元速度を向上できる触媒の高活性化が必要不可欠である。

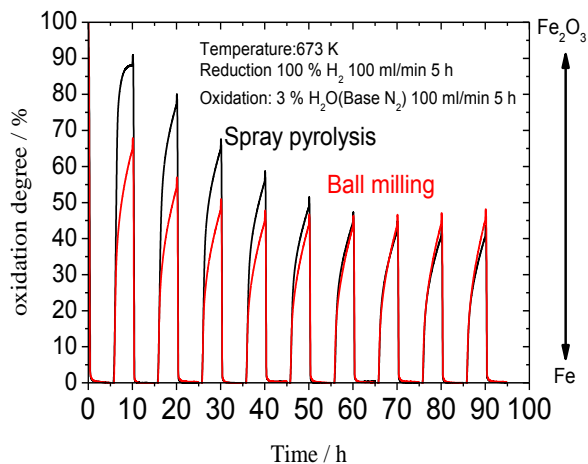


図 22 噴霧熱分解およびボールミルで合成した CMF を分散した Fe 粒子の酸化還元特性

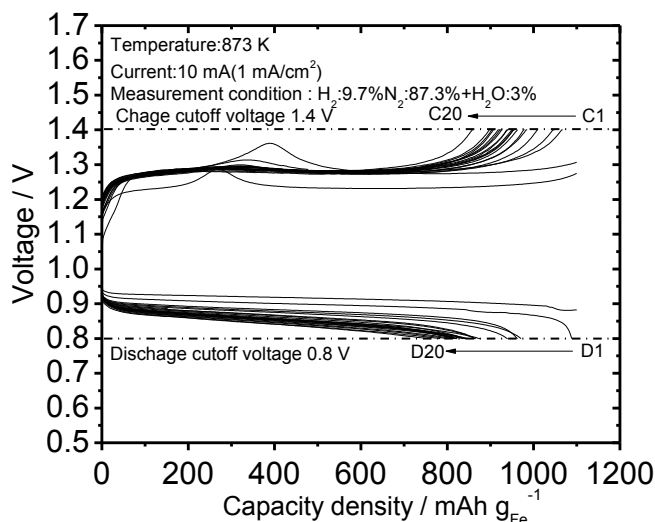


図 23 CMF で修飾した Fe 粉体を内部に設置した LSGM 電解質支持管を用いる全固体 Fe-空気電池による作動特性

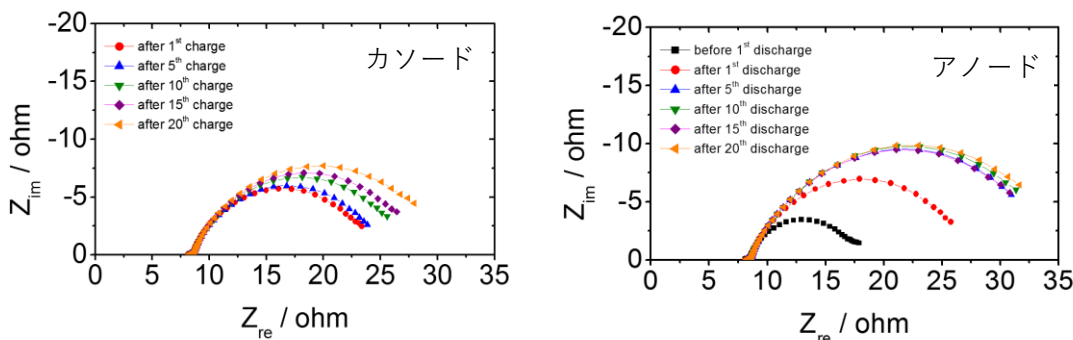


図 24 円筒型セルの空気極と燃料極の繰り返し充放電中のインピーダンスの変化

(2) 目的の達成状況

本研究では、発電装置として考えられている SOFC について、低温でも発電が可能なセルの開発の検討を行った。中低温作動型セルは、現在、最も大きな課題の発電特性の経時劣化の抑制に有効で、安価な材料の使用を実現できるので、重要な課題となっている。そこで、本研究成果は次世代型 SOFC の開発において、大きな寄与をすると期待している。一方で、近年、再生可能エネルギーの普及により電力に過剰分が発生する状況にあり、SOFC を逆動作させた SOEC は高効率な水素、酸素の製造法として期待されている。そこで、本研究ではシールの容易な小型円筒型セルについて、高酸素イオン伝導体の LSGM のディップコートという安価な成膜法での小型セルの作製を行い、低温まで優れた発電性能と繰り返し安定な電解/発電を行えることを示した。これらの成果は今後の SOFC のエネルギー貯蔵分野という適応範囲の拡大につながり、新しい応用分野を切り開くものと期待できる。¹⁾ 最終的には水素の貯蔵も課題になることが予想されたので、Fe の酸化・還元と組み合わせた Fe-空気電池への展開を視野に入れて、350°C 程度でも酸化・還元できる触媒を分散した Fe 粒子の合成を検討したが、この技術は水素の貯蔵方法としても期待でき、また SOFC のまったく新規な分野への展開を実現し、例えば、電力の平準化や再生可能エネルギーの時間と空間を超えた輸送を実現できる可能性がある。²⁾ 本研究では小型組セルの開発に関しては実施ができなかったが、セルの開発および Fe 粉体の開発については目標を達成したと考えている。

3.2 成果の意義

本研究では低温でも十分な出力を有する小型円筒型セルの開発を検討し、空気極として検討されてきた La(Sr)FeO₃ が優れた燃料極としての可逆性を有していることを見出すとともに、Ni-CMF が優れた燃料極としての安定性を有することを見出した。これらは、SOFC の普及において今後重要になる低温作動型セルの開発において、貴重な知見になると考えている。一方で、本研究では 500°C という従来の SOFC よりはるかに低い温度で作動が可能な LSGM を電解質膜に用いる小型円筒型セルの開発を行った。このセルの発電特性は非常に優れているので、今後、重要な課題となる低温作動、高出力化において重要な寄与をする技術になると考えている。一方、酸化還元で繰り返し劣化しない Fe 粉体の開発は、蓄エネルギー媒体の開発において重要であり、低温で酸化・還元できる Fe 粉体の開発できた意義は、燃料電池の排エネルギーの有効利用という観点からも重要な技術になると考えている。以上より、電極材料、小型円筒型セル、エネルギー蓄積媒体としての繰り返し耐久性の高い Fe 粉体の合成は、次世代型 SOFC の開発において、意義の高い成果と考えている。

3.3 研究開発項目別残課題

今回、セル材料およびセルの作製方法、セルの構造についてはほぼ目的を達成し、単セルレベルでは目標とした性能を達成できたと考えている。項目別の残課題を以下に挙げる。

②小型円筒型セル

引き続き、さらに長期での繰り返し作動における劣化挙動の解析と、課題の明確化、劣化率の低減を行う。また、さらに 500°C での出力密度の向上を行う必要がある。このために Ni-YSZ アノード基板の低抵抗化による IR 損の低減と、添加物による過電圧の低減などを行う必要がある。

③実用化に向けた鉄微粒子作製プロセスの研究開発

本研究では Cr₂O₃ と PBMO を分散した Fe が低温での優れた酸化・還元特性を示すことを明らかにした。残された課題は、さらに低温での繰り返し安定性を実現できる、添加物触媒の開発を行うことと、Cr₂O₃ または PBMO による繰り返し安定性が向上できる機構の解明にある。

一方で、本研究では開発した材料と円筒セル、Fe 粉末を組み合わせたシステムによる、蓄エネルギーの効率については儒分、議論できなかった。そこで、残課題としてはセルシステムの作成と蓄エネルギーの評価を通して、本提案するデバイスの有用性を明らかにすることである。

4. まとめ及び課題、事業化までのシナリオ

本研究により以下の成果を得ることができた。

1) セルの基本性能

- ・ S O R C 単セル発電性能：500°Cにおいて電流密度 2 0 0 m A / c m² で 0. 5 V の端子電圧の達成
- ・ S O R C 単セル発電耐久性：500°Cにおいて電流密度 1 0 0 m A / c m² で初期動作電圧の 2 % 以下の劣化率 @ 1 0 0 0 時間
- ・ S O R C 単セル水蒸気電解性能：500°Cにおいて 1. 3 V の電解電圧において、電流密度 0. 3 A / c m² を達成。
- ・ S O R C 単セル水蒸気電解耐久性：500°Cにおいて電流密度 0. 3 A / c m² で初期動作電圧の 3 % 劣化 / 1 0 0 0 時間
- ・ 電解と発電の電気エネルギー効率 80%以上

2) 円筒セル

- ・ 湿式法を用いた S O R C 作動が可能な円筒型セルの作成と動作確認。
- ・ 理論起電力を示す L S G M 薄膜からなるセルの作成法、拡散抑制層の作成法の開発
- ・ 発電と電解の繰り返し 50 サイクル以上の安定性の達成、50 サイクル後、初期特性の 80%の維持

3) F e 粉体

- ・ 400°Cにおいて初期の水素供給・吸蔵速度 110 m m o l H₂ / K g F e / m i n
- ・ 水素供給・吸蔵速度の耐久性 初期の水素供給・吸蔵速度に対して 1 0 0 cycle 後の維持率を 8 0 % 以上とする。

現在の大型蓄電装置の必要性からコストと安定性を実現できると、市場性はあると考えている。一方で水素キャリアーとしての Fe はそれ自身でも市場性があると期待され、引き続き、検討することで実用化の可能性があると考えている

5. 研究発表・特許等

－研究発表・講演、文献等、その他－

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2013. 10. 10	ECS Transactions 2013 57 (1), 1793-1799, (2013)	(La, Ba)CoO ₃ and Pr _{1.9} (Ni, Cu, Ga)O ₄ Composite Oxide as Active Cathode for Intermediate Temperature Solid Oxide Fuel Cells using doped LaGaO ₃ Electrolyte Films	Jong-Eun Hong, Jing Xie, Shintaro Ida, and Tatsumi Ishihara
2	2013. 11. 21	第39回固体イオニクス討論会	サーメット電極とLaGaO ₃ 系酸素イオン伝導体を用いるFe-空気電池の可逆性向上	猪石 篤, 酒井孝明, 朱 容 完, 伊田進太郎, 石原達己
3	2013. 11. 25	The 7 th Asian Conference on Electrochemical Power Sources (ACEPS-7)	Solid State Fe-air Battery Using LaGaO ₃ Based Oxide Ion Conductor	Tatsumi Ishihara, Atsushi Inoishi, Shintaro Ida
4	2013. 12. 19	第22回SOFC研究発表会	Decrease in Sintering Temperature of LDC/LSGM Films for Anode Supported Solid Oxide Fuel Cells by Doping Cobalt	Jong-Eun Hong, Shintaro Ida, Tatsumi Ishihara
5	2013. 12. 22	Solid State Ionics, one line, (2013)	Effects of transition metal addition on sintering and electrical conductivity of La-doped CeO ₂ as buffer layer for doped LaGaO ₃ electrolyte film	Jong-Eun Hong, Shintaro Ida, Tatsumi Ishihara
6	2014. 07. 28	ChemPlusChem, 80(2), 359-362, (2015)	Lithium-Air Oxygen Shuttle Battery with a ZrO ₂ -Based Ion-Conducting Oxide Electrolyte	Atsushi Inoishi, Maki Matsuka, Takaaki Sakai, Young-Wan Ju, Shintaro Ida and

				Tatsumi Ishihara
7	2014. 9. 28	2014年電気化学秋季大会	LSGM電解質の湿式法による薄膜化とFe-空気電池への応用	猪石 篤, 細井浩平, 酒井孝明, 伊田進太郎, 石原達己
8	2014. 11. 18	第40回固体イオニクス討論会	LaGaO ₃ 系固体電解質を用いた水蒸気電解へのセリア系酸化カソード特性	細井浩平, 猪石 篤, 酒井孝明, 伊田進太郎, 石原達己
9	2014. 12. 17	第23回SOFC研究発表会	酸化燃料極を用いる可逆動作型SOFC	細井浩平, 猪石 篤, 酒井孝明, 伊田進太郎, 石原達己
10	2015. 4. 1	Journal of the Ceramic Society of Japan	Microtubular SOFC using Doped LaGaO ₃ Electrolyte Film Prepared with Dip Coating Method	Kohei Hosoi, Jong Eun Hong, Takaaki Sakai, Shintaro Ida, Tatsumi Ishihara
11	2015. 09. 11	2015年電気化学秋季大会	Ni系アノード基盤上に作成したLaGaO ₃ 電解質膜を用いる円筒型SOFC Tubular SOFC Using LaGaO ₃ electrolyte coated on Ni-base Anode Substrate	譚喆, 伊田進太郎, 石原達己 Zhe Tan, Shintaro Ida, and Tatsumi Ishihara
12	2015. 11. 13	第56回電池討論会	Feへの添加物による全固体鉄-空気電池の充放電特性向上	金学鏞, 伊田進太郎, 石原達己
13	2015. 11. 18	The 3 rd International Conference on Advanced Electromaterials (ICAE2015)	Solid-oxide Fe-air rechargeable battery using Fe-Ce(Mn, Fe)O ₂ for low temperature operation	Hackho Kim, Atsushi Inoishi, Shintaro Ida and Tatsumi Ishihara
14	2015. 11. 27	日本化学会九州支部設立百周年記念講演会	可逆動作固体酸化燃料電池と新しいFe-空気電池	石原達己
15	2015. 12. 16	第24回SOFC研究発表会	湿式法によるLaGaO ₃ 系電解質薄膜の作成とSOFC発電特性	石原達己, 細井浩平, Zhe Tan, 伊田進太郎
16	2015. 12. 17	第24回SOFC研究発表会	LaGaO ₃ 系電解質円筒型を用いる低温動作型可逆動作セルと鉄-空気電池	金学鏞, 伊田進太郎, 石原達己
17	2016. 01. 24	40th International Conference and Exposition on Advanced Ceramics and Composites	Ce(Mn, Fe)O ₂ dense anode for tubular type Solid Oxide Fuel Cells using LaGaO ₃ electrolyte film	T. Ishihara, K. Hosoi, S. Ida
18	2016. 2. 23	Electrochimica Acta	Ce _{0.6} Mn _{0.3} Fe _{0.1} O _{2-δ} as an Alternative Cathode Material for High Temperature Steam Electrolysis Using LaGaO ₃ -based Oxide Electrolyte	Kohei Hosoi, Takaaki Sakai, Shintaro Ida, Tatsumi Ishihara
19	2016. 03. 29	公益社団法人電気化学会第83回大会	触媒修飾Fe粉末を用いる全固体鉄-空気2次電池のくり返し特性向上	金学鏞, 伊田進太郎, 石原達己
20	2016. 03. 29	公益社団法人電気化学会第83回大会	カルシウム鉄酸化物をカソードに用いた固体酸化水蒸気電解の検討 Steam Electrolysis Using Solid Oxide Electrolysis Cell with Calcium Iron Oxide Cathode	伊田進太郎, 宮崎歩, 細井浩平, 酒井孝明, 石原達己 Shintaro Ida, Ayumu Miyazaki, Kohei Hosoi, Takaaki Sakai, and Tatsumi Ishihara
21	2016. 05. 16	Journal of Physical Chemistry C	La _{0.8} Sr _{0.2} FeO _{3-δ} as Fuel Electrode for Solid Oxide Reversible Cells Using LaGaO ₃ -Based Oxide Electrolyte	Kohei Hosoi, Hidehisa Hagiwara, Shintaro Ida, and Tatsumi Ishihara
22	2016. 06. 05	Rare Earths 2016 in Sapporo, JAPAN	Ce _{0.6} Mn _{0.3} Fe _{0.1} O ₂ as an Active Fuel Electrode for Reversible Type Solid Oxide Cells	Tatsumi Ishihara, Kohei Hosoi, Shintaro Ida
23	2016. 12. 15	第25回SOFC研究発表会	Ni-SrTiO ₃ アノード基板上に作成したLaGaO ₃ 電解質膜を用いる円筒型SOFC Tubular Type SOFC Using LaGaO ₃ Electrolyte Coated on Ni-based SrTiO ₃ Support Substrate	Zhe Tan, Shintaro Ida, and Tatsumi Ishihara 譚 喆, 伊田 進太郎, 石原達己

24	2017. 02. 17	ISEPD2017	LaGaO ₃ Oxide Thin Film Prepared with a Dip-coating and Co-sintering Method	Eisuke Minami, Keigo Onita, Shintaro Ida, Tatsumi Ishihara
25	2017. 02. 17	ISEPD2017	LaFeO ₃ Perovskite Oxide for Reversible Operation of Solid Oxide Fuel Cell	Tatsumi Ishihara, Kohei Hosoi, Shintaro Ida
26	2017. 03. 25	公益社団法人電気化学会第84回大会	ディップコート法によるLSGMの薄膜化と円筒型燃料電池の応用 Tubular type SOFC with thin LSGM electrolyte film by using dip-coating method	譚喆, 伊田進太郎, 石原達己 Zhe Tan, Shintaro Ida, and Tatsumi Ishihara
27	2017. 05. 26	第24回燃料電池シンポジウム	ディップコート法によるLaGaO ₃ 系酸化物の薄膜化とSOFC発電特性 Preparation of LaGaO ₃ electrolyte film by dip coating method and power generation property of SOFC	石原達己, Zhe Tan, 南祐介 Tatsumi Ishihara, Tan Zhe, and Yusuke Minami
28	2017. 06. 18	SSI-21	Oxygen Nonstoichiometry and Electrical Conductivity of Mn and Fe doped CeO ₂	Tatsumi Ishihara, Kohei Hosoi, and Hackho Kim
29	2017. 09. 10	2017年電気化学秋季大会	NiO-YSZ円筒基板上へのLSGM膜の作成と可逆動作型燃料電池 Preparation of LSGM Thin Film Tubular Cell on NiO-YSZ Support for Solid Oxide Reversible Cells	譚喆, 石原達己 Zhe Tan, and Tatsumi Ishihara
30	2017. 09. 12	第13回固体イオニクスセミナー	ディップコート法によるLSGMの薄膜化と円筒型燃料電池	江川日菜, 譚喆, 石原達己
31	2017. 11. 21	ICAE 2017	Preparation of Tubular Type Solid Oxide Electrolysis Cell using LSGM Film Prepared by Dip-coating Method	Tatsumi Ishihara, Ze Tan, Keigo Onita, Eisuke Minami
32	2017. 12. 05	第43回固体イオニクス討論会	LSGMにおける表面濃縮現象とNiとの反応性 Surface Segregation of LSGM and its reactivity with Ni	石原達己, Hening Schraknepper, 譚喆 Tatsumi Ishihara, Hening Schraknepper, and Tan Zhe
33	2018. 03. 09	電気化学会第85回大会	ディップコート法で作成したLaGaO ₃ の薄膜を用いる円筒型SORCの動作特性 Property of Tubular SORC Using LaGaO ₃ thin film Prepared by dip coating method	江川日菜, 譚喆, 石原達己 Hina Egawa, Tan Zhe, and Tatsumi Ishihara

－特許等－

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託会社名
		なし		

課題番号： 6. 4. イ

調査事業名：「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発／強靱性を有する
高効率燃料電池の普及促進に向けた事前調査」

委託期間

平成 29 年 12 月 1 日～平成 30 年 3 月 20 日

実施体制

国立大学法人 九州大学

(国立研究法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構からの委託)

伊藤 衡平	水素エネルギー国際研究センター	副センター長・教授
土肥 英幸	水素エネルギー国際研究センター	教授
葛西 昌弘	水素エネルギー国際研究センター	特任准教授
中島 裕典	工学研究院	助教

みずほ情報総研株式会社

(国立大学法人 九州大学からの再委託)

米田 雅一	サイエンスソリューション部	次長
茂木 春樹	サイエンスソリューション部	チーフコンサルタント
北村 修	サイエンスソリューション部	シニアコンサルタント
杉山 佐保	サイエンスソリューション部	コンサルタント

和文要約

燃料電池の普及促進のために、総合効率の高いコージェネレーション方式だけでなく、より高発電効率なモノジェネレーション方式の燃料電池にも着目し、高効率発電を維持したまま出力変動可能な機能を有する燃料電池の価値を明確化し、燃料電池の研究開発を推進する必要がある。そこで上記の様な新たな付加価値を有する燃料電池について、普及・導入促進の可能性・規模について調査を実施した。具体的には従来の発電技術に加え、SOFC および競合技術としての高効率 LNG 火力発電、太陽光発電、風力発電、蓄電池、水素製造/混焼を組み込んだエネルギーモデルを数理計画法により解くことで得られる最適電源構成からその競争力および市場規模の、また同時に得られる運転状態から強靱性のニーズの判断を実施した。

2030 年および 2040 年に想定される電力の CO₂ 排出原単位の制約において、SOFC が競争力を持つための発電効率と設備コストとの関係について明らかにした。2030 年想定では SOFC の発電効率が 55% の場合、設備コストが 2900\$/kW を下回ると、分散電源に対し競争力を持ち、1100\$/kW を下回ると高効率 LNG 火力発電に対して競争力を持つこと、効率 5% の向上が設備費 740\$/kW の低下に相当することが示された。

2040 年想定では、効率 5% の向上が設備費 860\$/kW に相当し、発電効率の価値はより高まるが、起動停止も含めたより頻繁な負荷変動が SOFC に求められることが明らかとなった。

英文要約

In order to wide penetration of fuel cells, it is necessary to focus not only on cogeneration systems with high overall efficiency but also on monogeneration with higher power generation efficiency. In the research and development, it is necessary to clarify and promote the value of fuel cells that have the function of changing output while maintaining high-efficiency power generation. Therefore, we investigated the possibility and the market potential of fuel cell with new function as described above. Specifically, we develop an energy model that incorporates SOFC, high-efficiency LNG thermal power generation, solar power generation, wind power generation, storage batteries, and hydrogen production / mixed combustion, and the competitiveness and market size of SOFC were estimated from the optimal power configuration obtained by solving the energy model. At the same time, the need for toughness was determined from the operating pattern.

In the constraints of CO₂ emission intensity assumed in 2030 and 2040, we have clarified the relationship between efficiency and cost for SOFC to be competitive. Assuming 2030, if the efficiency of SOFC is 55% and the equipment cost falls below 2900 \$/kW, it will be competitive with distributed power sources such as PV, and if the same efficiency and below 1100 \$/kW, it will be competitive with high-efficiency GTCC. At this time, 5% improvement of efficiency corresponds to an equipment costs reduction of 740 \$ / kW. Assuming 2040, 5% improvement of efficiency corresponds to an equipment costs reduction of 860 \$/kW, which increases the value of efficiency, but it has become clear that more frequent load fluctuations including start and stop are required for SOFC.

1. 研究開発の成果と達成状況

1.1 成果要約

燃料電池の普及促進のために、総合効率の高いコージェネレーション方式だけでなく、より高発電効率なモノジェネレーション方式の燃料電池にも着目し、高効率発電を維持したまま出力変動可能な機能を有する燃料電池の価値を明確化し、燃料電池の研究開発を推進する必要がある。そこで上記の様な新たな付加価値を有する燃料電池について、普及・導入促進の可能性・規模について調査を実施した。

具体的には従来の発電技術に加え、SOFC および競合技術としての高効率 LNG 火力発電、太陽光発電、風力発電、蓄電池、水素製造/混焼を組み込んだエネルギーモデルを数理計画法により解くことで得られる最適電源構成からその競争力および市場規模の、また同時に得られる運転状態から強靱性のニーズの判断を実施した。

1.1.1 2030 年を想定した SOFC の仕様(発電効率, 設備費, 寿命)と市場ポテンシャル

2030 年頃を想定し、今後導入が予想される高効率な発電システムや電力貯蔵システム等と SOFC を発電効率、設備コスト、寿命等の観点から整理し、エネルギーシステム全体の価値の観点から定量化し、エネルギーシステムとして SOFC のポジショニング(調査内容 1)を実施した。具体的には、2030 年に想定される¹⁾電力の CO₂ 排出原単位 370gCO₂/kWh から 350gCO₂/kWh への削減において、エネルギーシステム全体のコストが最小となるような、機器構成を求めることにより、SOFC が競争力を持つための発電効率と設備コストとの関係について明らかにした。

結果を Fig. 1 に示す。図中の限界コストとは、その値以上の SOFC の設備費では、与えた環境において競争力を持たないことを意味する(最適解中の SOFC 設備設置量として 0 が選択される)。図中○は競合技術として高効率 LNG 火力(発電効率 56%HHV, 1375\$/kW)、太陽光発電(1600\$/kW)、風力発電(2900\$/kW)、蓄電池(入出力部 500\$/kW, 貯蔵部 150\$/kWh)を設定した場合を、●は分散電源である太陽光発電、風力発電、蓄電池を設定した場合の結果である。SOFC の発電効率が 55%の場合、設備コストが 2900\$/kW を下回ると、分散電源に対し競争力を持ち、1100\$/kW を下回ると高効率 LNG 火力発電に対して競争力を持つ。プロットの傾きから効率 Δ5%の向上が設備費 Δ740\$/kW に相当する。

Table 1 に SOFC 仕様と市場ポテンシャル、その時の強靱性のニーズ(調査内容 2)として年間起動停止回数と稼働率を示す。発電効率 60%、1700\$/kW(寿命 20 年)においては、日本全体の市場ポテ

ンシヤルは1兆円を超え、年間稼働率98.2%、起動停止回数27回/年と見積もられた。Table 2は大規模設備である高効率LNG火力の新設ができない環境として、競合技術を分散電源に限定した場合の仕様と市場ポテンシヤルとの関係を示すが、発電効率60%での限界コストは3600\$/kW(寿命20年)となる。分散電源に限定した競争環境がどの程度発生するかは想定が困難なため、市場ポテンシヤルの値は注意が必要である。

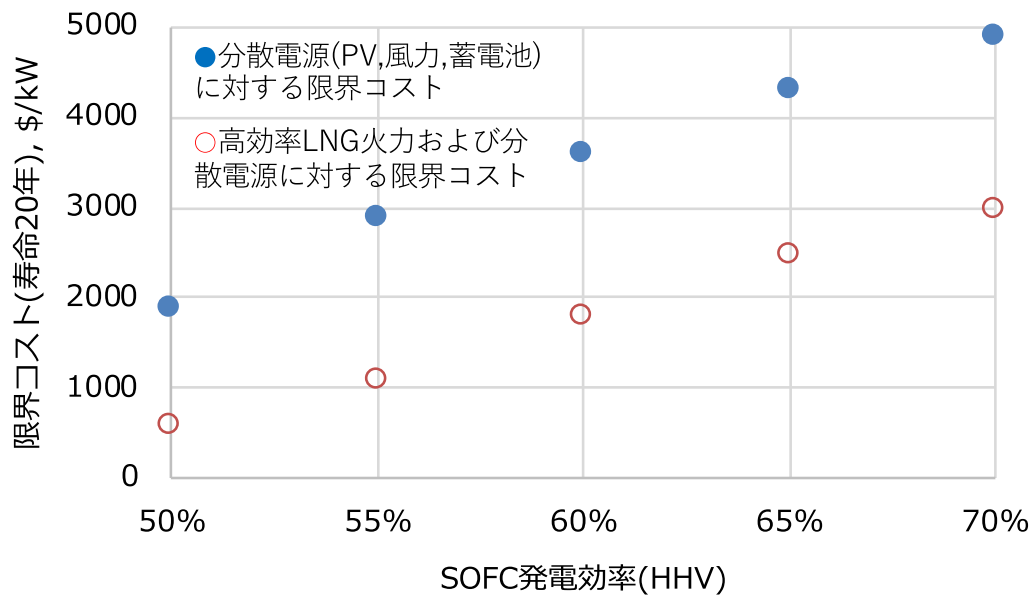


Fig. 1 2030年想定における競争力を持つためのSOFCの設備コストと発電効率との関係

Table 1 2030 年頃を想定した SOFC の仕様と市場ポテンシャル(350gCO₂/kWh 制約)

競合技術：高効率 LNG 火力，分散電源(太陽光，風力，蓄電池)

発電効率 HHV	設備 寿命 年	限界 コスト \$/kW	設備 コスト \$/kW	導入ポテン シャル 万kW	市場ポテン シャル 兆円	起動停止 回数 回/年	年間 稼働率
50%	10	402	335	211	0.07	416	53.5%
	15	517	431		0.09		
	20	600	500		0.11		
55%	10	738	670	1088	0.73	321	93.2%
	15	948	862		0.94		
	20	1100	1000		1.09		
60%	10	1207	1140	893	1.02	27	98.2%
	15	1551	1465		1.31		
	20	1800	1700		1.52		
65%	10	1676	1542	824	1.27	26	98.3%
	15	2154	1982		1.63		
	20	2500	2300		1.90		
70%	10	2011	1877	772	1.45	24	98.3%
	15	2585	2413		1.86		
	20	3000	2800		2.16		

Table 2 2030 年頃を想定した SOFC の仕様と市場ポテンシャル(350gCO₂/kWh 制約)

競合技術：分散電源(太陽光, 風力, 蓄電池)

発電効率 HHV	設備 寿命 年	限界 コスト \$/kW	設備 コスト \$/kW	導入ポテン シャル 万kW	市場ポテン シャル 兆円	起動停止 回数 回/年	年間 稼働率
50%	10	1274	1207	238	0.29	412	79.2%
	15	1637	1551		0.37		
	20	1900	1800		0.43		
55%	10	1944	1810	247	0.45	74	96.5%
	15	2499	2326		0.57		
	20	2900	2700		0.67		
60%	10	2414	2280	358	0.82	48	97.3%
	15	3102	2930		1.05		
	20	3600	3400		1.22		
65%	10	2883	2682	390	1.05	48	97.5%
	15	3705	3446		1.34		
	20	4300	4000		1.56		
70%	10	3285	3017	420	1.27	48	97.8%
	15	4222	3877		1.63		
	20	4900	4500		1.89		

1.1.2 2040 年を想定した SOFC 仕様と市場ポテンシャル

さらなる CO₂削減が求められる環境(調査項目 3)として、2040 年頃を想定し、185gCO₂/kWh 制約における SOFC の発電効率と競争力を持つための限界コストについて検討した結果を Fig. 2 に示す。図中○は競合技術として高効率 LNG 火力(発電効率 56%HHV,1375\$/kW)、太陽光発電(1600\$/kW)、風力発電(2900\$/kW)、蓄電池(入出力部 500\$/kW,貯蔵部 150\$/kWh)を設定した場合を、●は分散電源である太陽光発電、風力発電、蓄電池を設定した場合の結果である。2030 年想定との比較で、発電効率に対するプロットの傾きは大きく、効率Δ5%の向上が設備費Δ860\$/kW に相当し、発電効率の価値がより高まっていると解釈される。Table 3, Table 4 に SOFC 仕様と市場ポテンシャル、その時の強靱性のニーズとして年間起動停止回数と稼働率を示す。Table 4 は分散電源のみを競合技術として設定した場合の結果である。2030 年想定との比較において、起動停止回数は増加し、稼働率は減少している。より厳しい CO₂削減環境においては、起動停止も含めたより頻繁な負荷変動が SOFC に求められる結果となっている。

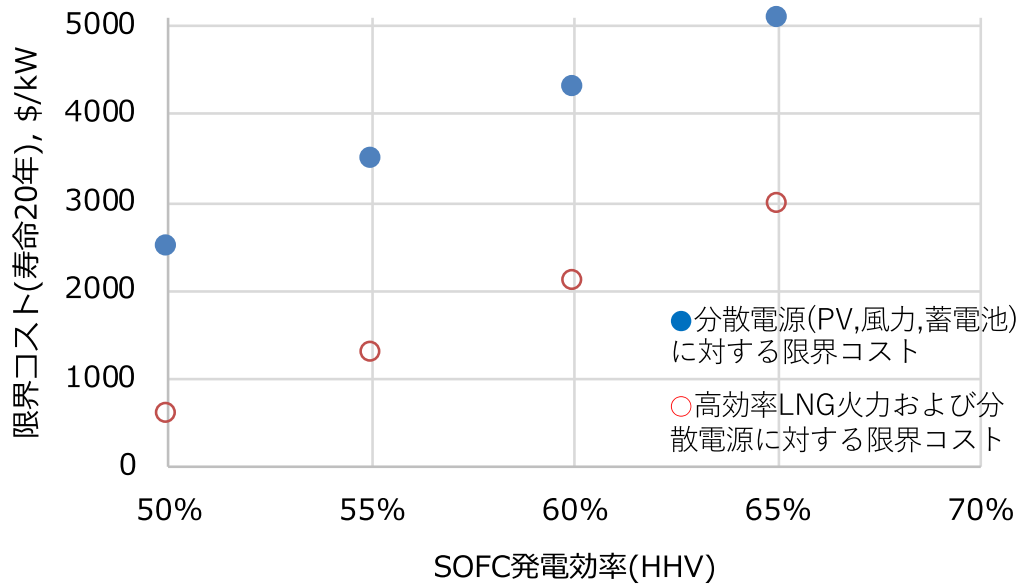


Fig. 2 2040年想定における競争力を持つためのSOFCの設備コストと発電効率との関係

Table 3 2040年頃を想定したSOFCの仕様と市場ポテンシャル(185gCO₂/kWh 制約)
競合技術：高効率LNG火力，分散電源(太陽光，風力，蓄電池)

発電効率 HHV	設備 寿命 年	限界 コスト \$/kW	設備 コスト \$/kW	導入ポテン シャル 万kW	市場ポテン シャル 兆円	起動停止 回数 回/年	年間 稼働率
50%	10	738	603	994	0.60	437	21.0%
	15	948	775		0.77		
	20	1100	900		0.89		
55%	10	872	805	1653	1.33	506	28.3%
	15	1120	1034		1.71		
	20	1300	1200		1.98		
60%	10	1408	1341	1182	1.59	109	92.6%
	15	1809	1723		2.04		
	20	2100	2000		2.36		
65%	10	2011	1810	1515	2.74	78	93.6%
	15	2585	2326		3.52		
	20	3000	2700		4.09		

Table 4 2040 年頃を想定した SOFC の仕様と市場ポテンシャル(185gCO₂/kWh 制約)

競合技術：分散電源(太陽光, 風力, 蓄電池)

発電効率 HHV	設備 寿命 年	限界 コスト \$/kW	設備 コスト \$/kW	導入ポテン シャル 万kW	市場ポテン シャル 兆円	起動停止 回数 回/年	年間 稼働率
50%	10	1676	1542	954	1.47	244	84.6%
	15	2154	1982		1.89		
	20	2500	2300		2.19		
55%	10	2347	2146	1438	3.09	214	85.0%
	15	3016	2757		3.96		
	20	3500	3200		4.60		
60%	10	2883	2682	1617	4.34	115	90.2%
	15	3705	3446		5.57		
	20	4300	4000		6.47		
65%	10	3420	3017	1984	5.99	107	91.7%
	15	4394	3877		7.69		
	20	5100	4500		8.93		

1.2 SOFC の新規なシステム仕様に関する予備検討

再エネの変動吸収やピーク対応を想定した SOFC の新規なシステムについては本事前調査事業の範囲から外れるが、傾向を把握するための予備的検討を行った。検討に用いた部分負荷特性、特に SOFC については十分な検討を実施していないため、参考としての位置付けである。

370gCO₂/kWh から 300gCO₂/kWh への削減過程において、標準仕様および標準仕様の 1.5 倍の高出力密度で想定した高出力密度仕様の SOFC システム（負荷率 50%で発電効率が最大となる部分負荷特性を設定）で比較した結果を Table 5 に示す。標準仕様の設備単価 2700\$/kW に対し、高出力密度仕様では 2300\$/kW で標準仕様と同等の設置量が選択されている。この結果は、高出力密度仕様とすることで 15%以上のコストダウンが可能なら¹、そのような設計指針の可能性を示唆する。また、に高出力密度仕様の 1 年間の各時間における負荷率を示しているが、殆どの時間で発電効率最大となる負荷率 50%の運転がなされ、需要の多い夏場において、最大負荷を含む高負荷運転が利用されている。

¹ 標準仕様と同じセルスタックから 1.5 倍の最大出力を取り出す仕様でシステムを想定することで最大出力における発電効率は低下するものの、システムの出力単価(\$/kW)の低減の可能性

Table 5 標準仕様と高出力密度仕様での最適解における最適設備設置量

CO2制約, gCO2/kWh		300		370
		標準仕様	高出力密度仕様	2030年 基本構成
仕様	最大発電効率	60%	60%	
	設備単価, \$/kW	2700	2300	
	寿命, 年	20	20	
設備設置量	原子力	0.144	0.144	0.144
	水力他	0.099	0.099	0.099
	石炭	0.150	0.150	0.199
	LNG	0.405	0.405	0.440
	石油	0.071	0.059	0.063
	SOFC	0.037	0.042	0.000
	風力	0.079	0.080	0.043
	太陽光	0.401	0.410	0.193
	蓄電池入出力	0.076	0.083	0.048
	貯蔵	0.249	0.280	0.164

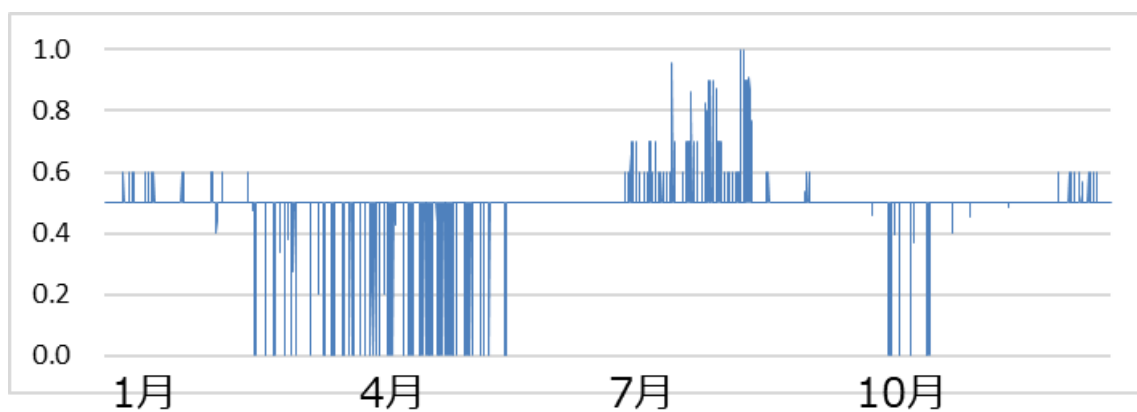


Fig. 3 高出力密度仕様の負荷率分布

2. 本文

2.1 はじめに

2.1.1 本調査研究の概要

燃料電池の普及促進のために、総合効率の高いコージェネレーション方式だけでなく、より高発電効率なモノジェネレーション方式の燃料電池にも着目し、高効率発電を維持したまま出力変動可能な機能を有する燃料電池の価値を明確化し、燃料電池の研究開発を推進する必要がある。そこで上記の様な新たな付加価値を有する燃料電池について、普及・導入促進の可能性・規模について調査を実施した。

具体的には、SOFC および競合技術としての高効率 LNG 火力発電、太陽光発電、風力発電、蓄電池、水素製造/混焼を組み込んだエネルギーモデルを数理計画法により解くことで得られる最適電源構成からその競争力および市場規模の、また同時に得られる運転状態から強靱性のニーズの判断を実施した。

2.1.2 本調査研究の目標

①2030年頃を想定し、SOFCが競争力を有するための発電効率、設備コスト、寿命に関する仕様をシミュレーションによって定量化する。競争力の対象となる競合技術は、大規模運用が既に実証段階にある高効率 LNG 火力発電、蓄電池、水素製造/混焼とする。2030年頃に想定されるCO₂制約および競合技術の仕様に関しては、範囲を設定しケーススタディの形で実施する。設置環境としては日本国内における系統電力での利用を想定し、燃料電池に有利と考えられる分散型での運用は本調査に含まない。

②シミュレーション結果から得られるSOFCの運転パターンから、起動停止、負荷変動能など要求される強靱性のニーズを明らかにする。

③さらなるCO₂削減が要求される環境において(2030年以降)、要求仕様(効率、コスト、寿命、強靱性)がどのように変化するかについてその傾向を分析する。

2.2 調査・分析方法

2.2.1 概要

これまでのエネルギーに関する開発機器や新規技術は、既存の機器や技術のリプレースを想定しているため、LCOE を用いた競争力の評価が一般的である²⁾³⁾⁴⁾⁵⁾⁶⁾⁷⁾。しかし、インフラや投入資源がドラスティックに変化する将来を想定した場合、使用環境はこれまでと異なるものになることが予想される。このような状況では、稼働率を与えて得られる LCOE の評価では不十分であり、技術の価値はエネルギーシステム全体の価値の増減によって評価する必要がある⁸⁾。評価は、SOFC および競合技術としての高効率 LNG 火力発電、蓄電池、水素製造/混焼を組み込んだエネルギーモデルから数理計画法により得られる最適電源構成からその競争力および市場規模を、また同時に得られる運転状態から強靱性のニーズを判断することで実施した。概要を Fig. 4 に示す。

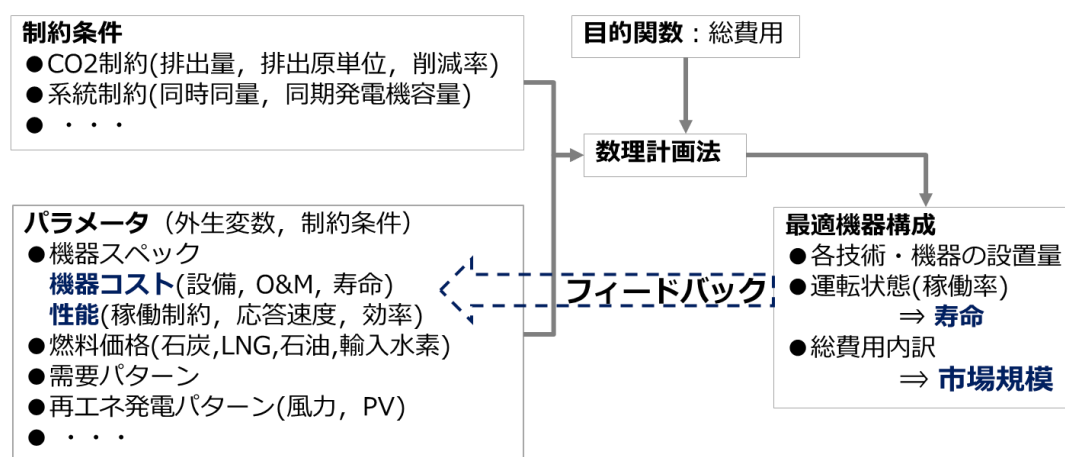


Fig. 4 評価の概要

図に示すサイクルを様々な制約条件およびパラメータを変更させて実施することで、競合技術に対して競争力をもつための機器仕様とそのときの市場規模が得られる。例えば、最適機器構成において、SOFC が選択されない場合、設定した仕様では競争力を持たない、また、最適機器構成において SOFC が選択された場合、その設置量が市場ポテンシャルの指標となる。

2.2.2 電源構成モデル

本調査研究では、Fig. 5 に示す設備構成を設定し、数理計画法により、総費用最小を与える最適設置量 x_j 、時間毎のエネルギーフロー $y_{j,i}$ およびエネルギー貯蔵状態 $s_{i,i}$ を決定する。2030年時点の既存の設備として原子力、水力、石炭・LNG・石油火力発電、PV、風力発電および蓄電池を設定した。基準とした電源構成および設備設置量は2030年のCO₂排出原単位である370gCO₂/kWhの制約で費用最小を与える構成とし(後述)、この構成を以後、基本構成と呼ぶ。基本構成に対し高効

率 LNG 火力, 高効率 SOFC および水電解+高圧貯蔵を加えたエネルギーモデル(Fig. 5)を用い競争力に関する評価を実施する. 蓄電池および水電解/高圧貯蔵のエネルギー貯蔵設備については, 入出力部と貯蔵部それぞれの設置量を別々の決定変数として扱う. 蓄電池は入出力部を通して充放電が行われ, 放電された電力は全て系統へ供給される. 蓄電池の入出力部は変圧器, インバーター, 充放電コントローラーより構成され(設備設置量の単位は kW), 貯蔵部は電池セルなどから構成される(設備設置量の単位は kWh). 水素製造では, 変圧器, インバーター, 水電解装置, 圧縮機が入力部を構成し(単位は kW), 高圧タンクが貯蔵部を構成する(単位は kWh). 以後, この入力部, 貯蔵部を合わせて水素混焼設備と呼ぶ. 水素混焼設備は全ての火力発電および高効率 SOFC への隣接設置を想定し, それぞれの発電設備に個別の水素混焼設備とする. この想定により水素の輸送は考慮しない.

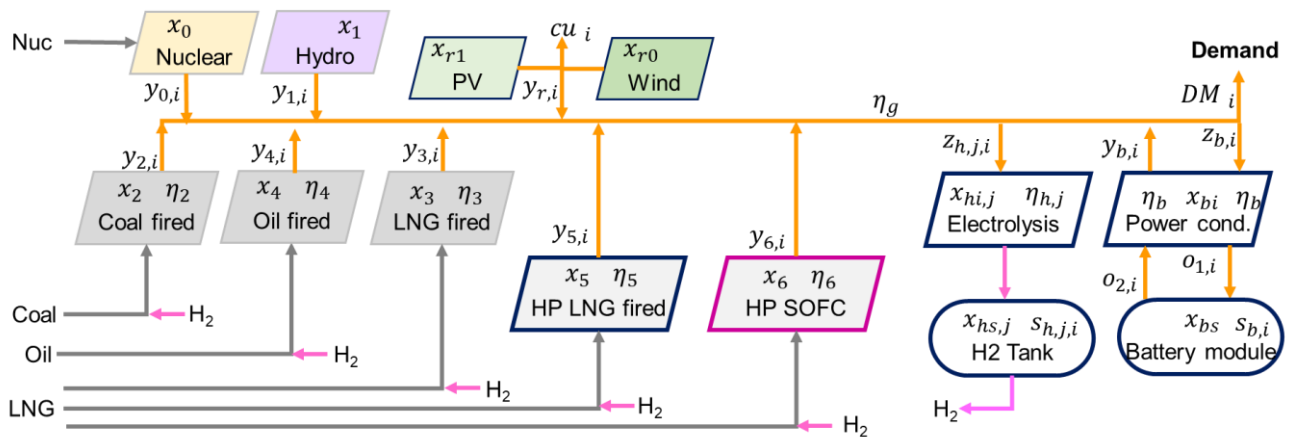


Fig. 5 エネルギーモデル

2.2.3 目的関数

最適化における目的関数には, 式(1)で示す年間総費用を用いる. 式中, 右辺最終項が燃料費に, 右辺の残りが設備費に相当し, X は設備設置量および運転状態に関する決定変数のベクトルを表す.

$$F(X) = \sum CC_j \cdot x_j + \sum CCr_j \cdot xr_j + CCbi \cdot xbi + CCbs \cdot xbs + \sum (CChi_j \cdot xhi_j + CChs_j \cdot xhs_j) + \sum CF_j \sum q_{j,i} \quad (1)$$

$q_{j,i}$ は時刻 i に(1時間毎1年分8760が最大)における装置 j の燃料供給量(石炭, LNG, 石油, 原燃), CF_j [\$/G]は燃料価格である. 設備に関する年間設備費 CC_j , $CCbi$, $CCbs$, $CChi_j$, $CChs_j$ (単位は\$/y/kWまたは\$/y/kWh)は, 設備費 C_j [\$/(kW or kWh)], 割引率 R , 装置寿命 L_j および維持費率(設備費の一定割合) OM_j を用いて式(2)で設備ごとに得られる値である(Appendix 参照).

$$CC_j = \left(\frac{R}{1 - (1 + R)^{-L_j}} + OM_j \right) C_j \quad (2)$$

2.2.4 制約条件

(1) 設備容量

式(3)は設備設置量に関する制約を表す。非負であり、PV および風力については、導入ポテンシャル⁹⁾を最大とした上限を設定する。

$$\begin{aligned} x_j, xr_j, xbi, xbs, xhj, xhs_j &\geq 0 \\ xr_0 &\leq Pot_{WT}, \quad xr_1 \leq Pot_{PV} \end{aligned} \quad (3)$$

(2) 同時同量, 出力範囲

式(4)は同時同量に関する制約を示し、各設備から系統への電力供給合計が、全ての時刻 i において、電力需要 DM_i に充電と水電解に使用する電力を加えた値に一致する必要がある。また、各出力は設備容量および最低出力率対して式(5)の制約を受ける。

$$\left(\sum y_{j,i} + yr_i + yb_i \right) (1 - Lg) = DM_i + zb_i + \sum zh_{j,i} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} x_j \cdot MIN_j &\leq y_{j,i} \leq x_j \\ 0 &\leq yr_{j,i} \leq xr_j \\ 0 &\leq yb_i \leq xb \\ 0 &\leq yh_{j,i} \leq xh_j \end{aligned} \quad (5)$$

(3) 再生可能エネルギー出力抑制

PV と風力発電に関してはエネルギー収支から式(6)の関係が成り立つ。ここで WT_i , PV_i はそれぞれ太陽光発電、風力発電の単位設置量あたりの発電量を、 cu_i は抑制量を示す。

$$yr_i = xr_0 WT_i + xr_1 PV_i - cu_i \quad (6)$$

(4) 蓄電池

蓄電池の充放電における制約は式(7)～(11)で示される。 xbi , xbs はそれぞれ入出力部および貯蔵部の設置量、 zb_i , yb_i は時刻 i における充電量と放電量、 η_b は効率、 sb_i は蓄電池残量で $i-1$ は当該時刻の単位時間前を表す。式(7)は放電量が蓄電池残量×効率より小さいことを示す。また、式(9)は充電量が入出力部の設置量および貯蔵部の設置量と蓄電池残量との差、つまり貯蔵部受け入れ可能量より小さいことを示す。式(10)は蓄電残量のエネルギー収支による制約である。

$$yb_i < \eta_b \cdot sb_{i-1} \quad (7)$$

$$zb_i < xbi \quad (8)$$

$$zb_i < (xbs \cdot db - sb_{i-1})/\eta_b \quad (9)$$

$$sb_i = sb_{i-1} + \eta_b \cdot zb_i - yb/\eta_b \quad (10)$$

$$sb_i < xbs \cdot db \quad (11)$$

(5) 水素混焼設備(水素製造・貯蔵)

式(12)～(17)は水電解による水素製造，高圧貯蔵および水素混焼に関する制約である。 xhi_j , ηh_j は装置 j 用水素製造の入力部の設置量および効率を， $zh_{j,i}$ は時刻 i における電力消費を表す。 xhs_j , $oh_{j,i}$, MX_j はそれぞれ貯蔵部の設置量，水素残量，混焼における水素の最大混入比率を示す。

$$zh_{j,i} < (xhs_j \cdot dh_j - sh_{j,i-1})/\eta h_j \quad (12)$$

$$zh_{j,i} < xhi_j \quad (13)$$

$$oh_{j,i} < sh_{j,i-1} \quad (14)$$

$$oh_{j,i} < MX_j \cdot y_{j,i}/\eta_j \quad (15)$$

$$sh_{j,i} = sh_{j,i-1} + \eta h_j \cdot zh_{j,i} - oh_{j,i} \quad (16)$$

$$sh_{j,i} < xhs_j \cdot dh_j \quad (17)$$

(6) CO₂制約

本モデルによる CO₂ 排出は化石燃料の消費だけを考慮する。予め設定される電力の CO₂ 排出原単位 COE ，燃料種 j の CO₂ 原単位 COF_j および火力発電における水素を除く燃料消費量 $q_{j,i}$ を用いて CO₂ 排出に関して式(18)の制約となる。

$$COE \sum DM_i = \sum (COF_j \sum q_{j,i}) \quad (18)$$

2.2.5 外生変数

(1) 電力需要・太陽光発電・風力発電

電力需要 DM_i および単位設備容量当たりの PV の発電量 PV_i ，風力発電量 WT_i は 1 時間毎 1 年分を外生的に与える。公開されている九州地区における 1 時間毎の電力需要実績から，2013 年 1 月から 2013 年 12 月までの 8760 時間分を電力需要として用いる。 PV_i は需要と同時刻の福岡市の発電量を NEDO 日射量データベース¹⁰⁾ からシミュレートし，PV 設置 1kW あたりの年間発電量が 1051kWh(設備利用率 12%)となるように正規化した値を用いる。単位設備容量当たりの風力発電

出力 WT_i は、式(19)に示す風速 v_i の3次式¹¹⁾で表す。 v_{min} 、 v_{max} はそれぞれ起動風速、発電量が飽和する飽和風速である。風速には電力需要と同時刻の福岡市の風速データ¹²⁾を年間平均風速が5.5m/sとなるように正規化した値を用いる。3次式の定数 a 、 b 、 c 、 d は曲線が連続となるように起動風速、飽和風速における値と傾きを指定する式(21)から決定した。本検討で用いた起動風速3.5m/s、飽和風速12m/sから $a=-0.00326, b=0.0757, c=-0.410, d=0.658$ 、年間設備利用率は25%となる。

$$\begin{aligned} v_i \leq v_{min} &\Rightarrow WT_i = 0 \\ v_i \geq v_{max} &\Rightarrow WT_i = 1 \\ v_{min} < v_i < v_{max} &\Rightarrow \end{aligned} \tag{19}$$

$$\begin{aligned} WT_i &= F_{WT}(v_i) = a \cdot v_i^3 + b \cdot v_i^2 + c \cdot v_i + d \\ F_{WT}(v_{min}) &= 0, F_{WT}(v_{max}) = 1 \end{aligned} \tag{20}$$

$$F'_{WT}(v_{min}) = F'_{WT}(v_{max}) = 0 \tag{21}$$

(2) その他諸元

2030年における諸元¹³⁾をTable 6～Table 9に示す。設備費、効率等は既報^{14),15)}を、燃料価格はNew Policy Scenario⁷⁾による2030年値を採用した。効率は稼働および水素混焼率に関わらず一定、水素混焼は石炭およびLNG火力に対し設置可能とした。蓄電池に関してはリチウムイオンバッテリー¹³⁾¹⁶⁾⁶⁾¹⁷⁾¹⁸⁾を(Appendix 参照)、水素混焼設備はアルカリ電解と高圧貯蔵を想定した。水素混焼設備における入力部には圧縮機を含み、水電解および圧縮機の一般的な設備単価である $\$/(\text{m}^3\text{-H}_2/\text{h})$ から変換効率を用いて $\$/\text{input-kW}$ に換算した¹⁹⁾²⁰⁾²¹⁾⁶⁾²²⁾。また、高圧貯蔵タンクからの水素供給には残圧が必要なためタンク容量全てを利用することは困難である。同様にリチウムイオンバッテリーにおいても一般的に全量を利用できないことから充電深度を90%と設定し、式(2)で示される貯蔵部に関する費用係数に反映した。

Table 6 基本構成(2030)における火力発電等の仕様

	効率 (発電端), HHV	所内率	設備費 \$/kW	O&M %設備費/y	設備寿命 y	最低稼働	最大混焼 比率
原子力発電	100.0%	4.0%	3700	4.0%	40	100%	-
水力発電	100.0%	0.4%	6400	1.0%	40	100%	-
石炭火力発電	40.6%	6.0%	2500	3.0%	30	20%	100%
LNG火力発電	45.6%	2.0%	1200	2.0%	30	20%	100%
石油火力発電	38.0%	5.0%	2000	2.0%	30	0%	-

Table 7 基本構成(2030)における風力・太陽光発電の仕様

	設備 利用率	所内率	設備費 \$/kW	O&M %設備費/y	設備寿命 y
風力発電	12.0%	2.0%	2900	2.0%	25
太陽光発電	25.0%	1.0%	1600	1.0%	30

Table 8 基本構成(2030)における蓄電池の仕様

	効率 自己放電	充電深度	設備費	O&M %設備費/y	設備寿命 y
蓄電池 入出力部	90.0%	-	500 \$/kW	1.0%	15
貯蔵部	0%/d	90.0%	150 \$/kWh	1.0%	10

Table 9 燃料価格想定(2030年)⁷⁾

	\$/GJ	tCO ₂ /GJ
原子力	4.3	0
水力等	0	0
石炭	2.96	0.091
石油	17.28	0.0684
LNG	11.28	0.0494

2.3 結果

2.3.1 2030年(基本構成)の設定

政府が「長期エネルギー需給見通し」で想定する2030年の電源構成をTable 10とFig. 6の左側に、右側には本検討で用いる基本構成を示す。この基本構成はTable 6～Table 9の仕様から排出原単位として370gCO₂/kWhを制約条件とした最適化により得られた電源構成である。この最適化において風力発電と太陽光発電の設備費は長期エネルギー需給見通しの電源構成に近くなるように調整を行った²。風力発電、太陽光発電の設備費がそれぞれ2900\$/kW、1600\$/kWにおいて総発電量および風力・太陽光設置量が長期エネルギー需給見通しで想定する電源構成に近い値となる。Table 11は基本構成における設備設置量を2030年の電力需要想定10650億kWh/年で換算したものである。最適解において、石油火力および水素混焼設備は選択されていない。

Table 10 年間総発電量および再エネ導入量

		長期エネルギー 自給見通し	最適電源構成
年間総発電 電力量	再エネ	22-23%	23.1%
	原子力	22-20%	21.0%
	LNG	27%	27.9%
	石炭	26%	28.0%
	石油	3%	0.0%
導入量	風力	1000	1096
万kW	太陽光	6400	6446

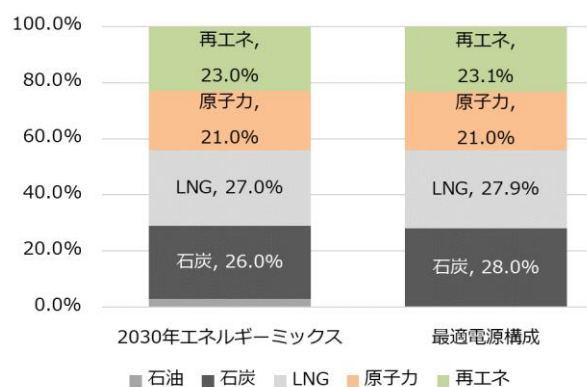


Fig. 6 年間総発電量の比較

Table 11 基本構成における設備設置量

設備	設置量 万kW	設備	設置量 万kW
原子力	2799	蓄電池	入出力部 392
水力他	1927		貯蔵部 680
石炭	3893	水素混焼 (石炭)	入出力部 0
LNG	10167		貯蔵部 0
石油	0	水素混焼 (LNG)	入出力部 0
風力	1096		貯蔵部 0
太陽光	6446		

² 最適化計算において、風力、太陽光以外の諸元はTable 6～Table 9の値で固定、原子力および水力の設備設置量はそれぞれ21%、15%となる設備量を定数として与えた。

Fig.7 は電力の供給状況を示したものであるが (電源プロファイル)、左は1日の各時刻を1年間の平均として、中は最大需要日を右は最小需要日を示す。同様に Fig.8 には週単位の最大需要と最小需要における電源プロファイルを示す。電力需要が少ない日(Fig.7 右, Fig.8 下)には、需要を超える余剰電力が現れるが、年平均(Fig.7 左)ではまだ僅かな量となっている。

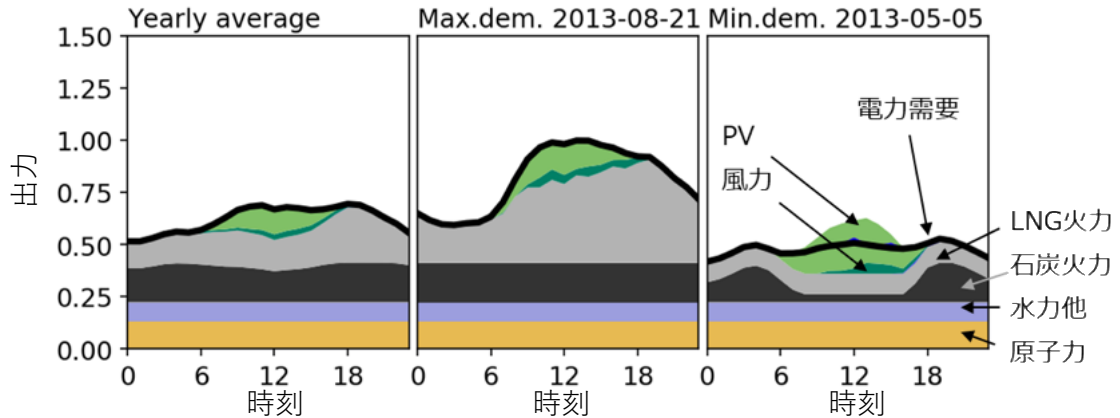


Fig.7 基本構成における電源プロファイル (左：年平均、中：最大需要日、右：最小需要日)

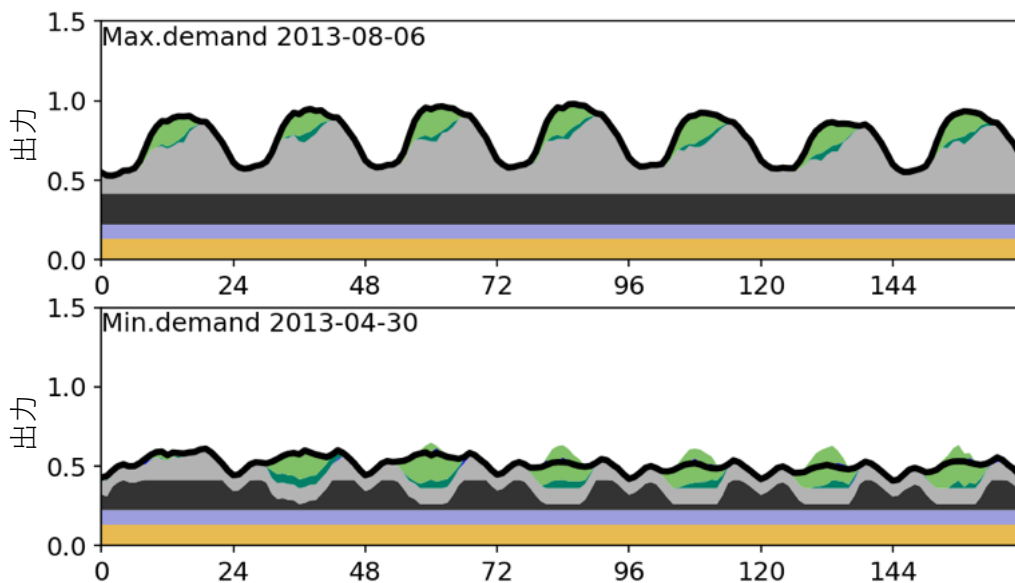


Fig.8 基本構成における電源プロファイル (上：最大需要週、下：最小需要週)

Fig.9 は構成機器の負荷率分布を横軸を負荷率、縦軸を頻度として表した図である。設置量および負荷を定数として与えている原子力(G0-Nuc),水力(G1-Hydro)は1年間の全ての時間の負荷率が100%となっている。図中 x は設置量, CF は稼働率, SS は起動停止回数を示す。石炭火力(G2-Coal)の稼働率は92%, LNG火力(G3-NG)の稼働率は35%であり, LNG火力が負荷変動吸収を担っている。

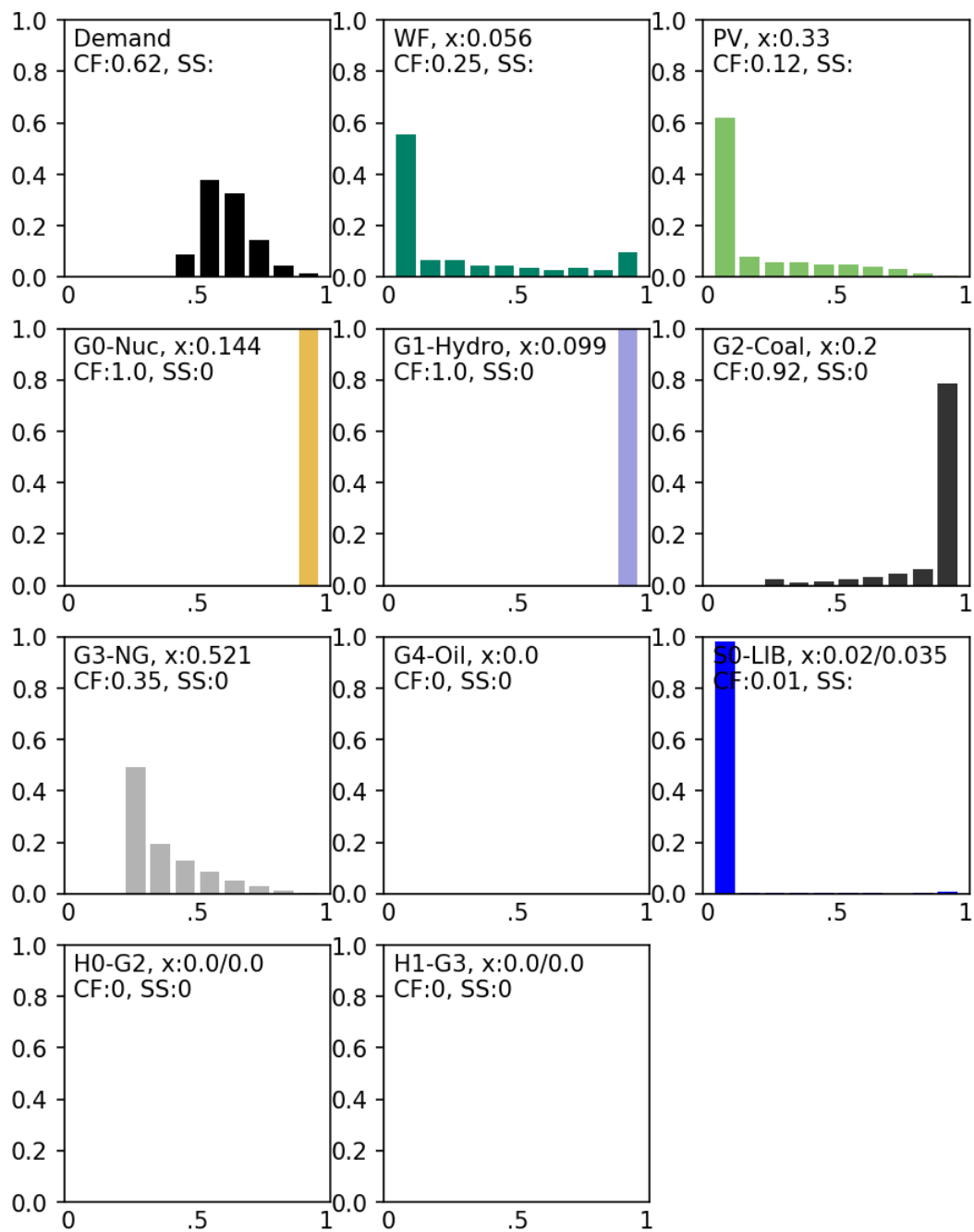


Fig. 9 基本構成における負荷率分布

2.3.2 競合技術と既存設備

(1) 競合技術としての高効率 LNG 火力発電の仕様

SOFC が競合する技術として、基本構成に含まれる各機器に加え、高効率 LNG 火力発電を考慮する。2030 年頃に新設される高効率 LNG 火力発電の設備費および発電効率についてはいくつかの資料¹⁵⁾²³⁾³⁾から得られるデータの上位 4 点の平均とした(Fig. 10)。基本構成で設定した LNG 火力発電との比較を Table 12 に示す。

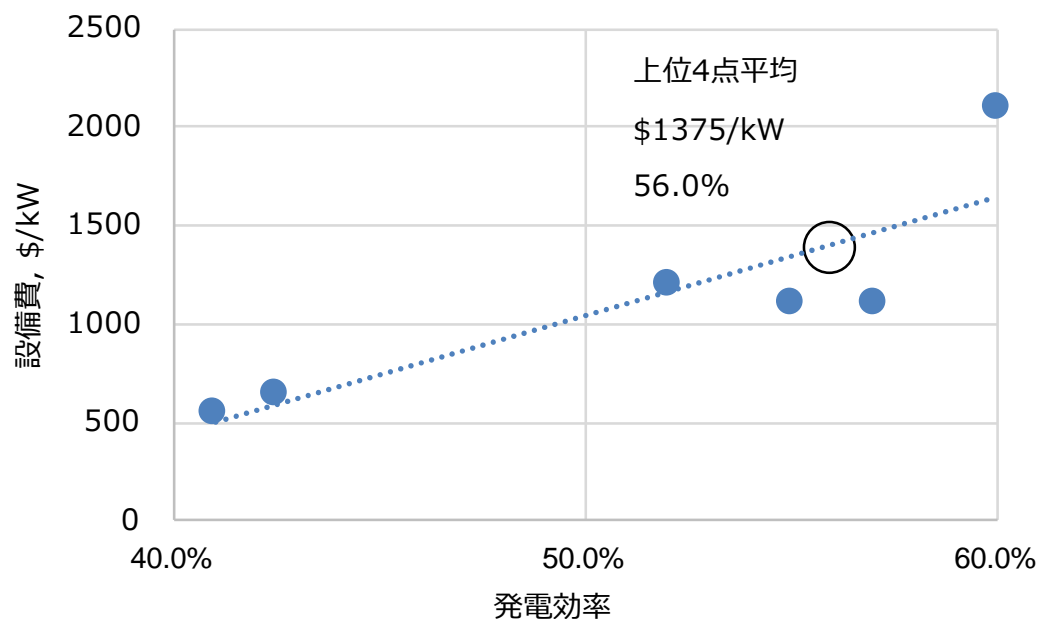


Fig. 10 高効率 LNG 火力発電の設備費と発電効率(2030 年)

Table 12 高効率 LNG 火力発電の仕様

	発電効率	所内率	設備費	O&M	設備寿命
	(HHV)		\$/kW		年
既設LNG火力	45.6%	2.0%	1200	2.0%	30
高効率LNG火力	56.0%	2.0%	1375	2.0%	30
SOFC	xxx	2.0%	xxx	2.0%	xxx

(2) 既存設備の扱い(CO₂制約と時期)

2030 年, 370gCO₂/kWh を出発点として更なる CO₂ 削減を実施する過程において, CO₂ 原単位 (gCO₂/kWh) とその原単位を達成する時期との関係を 2030 年の 370gCO₂/kWh と 2050 年の 0 と

を結ぶ直線で定義した(Fig. 11). この関係は、基本構成に含まれる既設の機器に対して、式(22)で残存量を定義する。ここで、 x_{0j} は基本構成における各機器の設置量、 L_j は設備寿命、 COE はCO₂制約である。例えば 300gCO₂/kWh 制約で最適化計算を実施する場合、基本構成(2030年)から4年が経過し、基本構成に含まれる機器は4年分に相当する割合が、老朽化のため減少すると仮定した。最適化において、この減少分を考慮した機器残存量を下限とする式(23)の制約を加える。

$$x_{min_j} = \left\{ 1 - \frac{(2050 - 2030)(370 - COE)}{370} \right\} \frac{x_{0j}}{L_j} \quad (22)$$

$$x_j > x_{min_j} \quad (23)$$

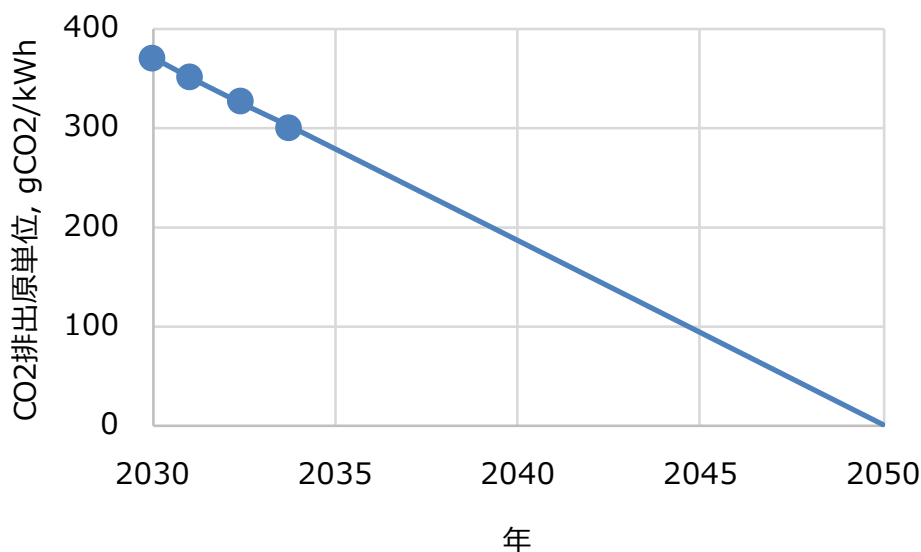


Fig. 11 CO₂ 排出原単位と想定時期

2.3.3 350gCO₂/kWh 制約での最適化

2030年頃を想定し、SOFCが競争力を有するための発電効率、設備コスト、寿命に関する仕様をシミュレーションによって明らかにする。具体的には 370gCO₂/kWh から更なる CO₂ 削減を実施する過程において、SOFC 設置が選択肢に入るか否かによって競争力と仕様との関係を定量化する。

(1) 発電効率 65%

基本構成(370gCO₂/kWh, 2030年)から排出源単位 350gCO₂/kWhへの削減において、新たな技術として高効率 LNG 火力発電および SOFC が選択可能な条件で、SOFC の発電効率は 65%で固定し、様々な設備費で最適化計算を実施した。計算は年間総費用を最小とする設備設置量および

各機器の運転状態(入出力)を決定する。最適解において SOFC の設置量が 0 より大きければ、競争力を有し、その設置量を市場ポテンシャルと判断する。なお、設備費と設備寿命は式(2)を用い年間設備費に換算し、一つのパラメータとして扱う。

CO₂排出原単位：350gCO₂/kWh, SOFC 発電効率：65%の固定で、SOFC の年間設備費を 250～150\$/y/kW の範囲で設定し複数回の最適化を実施した。最適解から得られる SOFC および高効率 LNG 火力発電の設置量を Fig. 12 にプロットした。縦軸は年間の最大電力需要が 1kW(5460kWh/y)とした時の設備設置量を kW で表す。SOFC の年間設備費が 250\$/kW/y を超える領域では、高効率 LNG 火力発電の設備設置量が 0.053kW となり、SOFC は選択されない。250 を下回ると、SOFC が選択されるようになり、SOFC の年間設備費が 230 を下回ると、SOFC の設置量は 0.042kW となり、高効率 LNG 火力発電は選択されない。

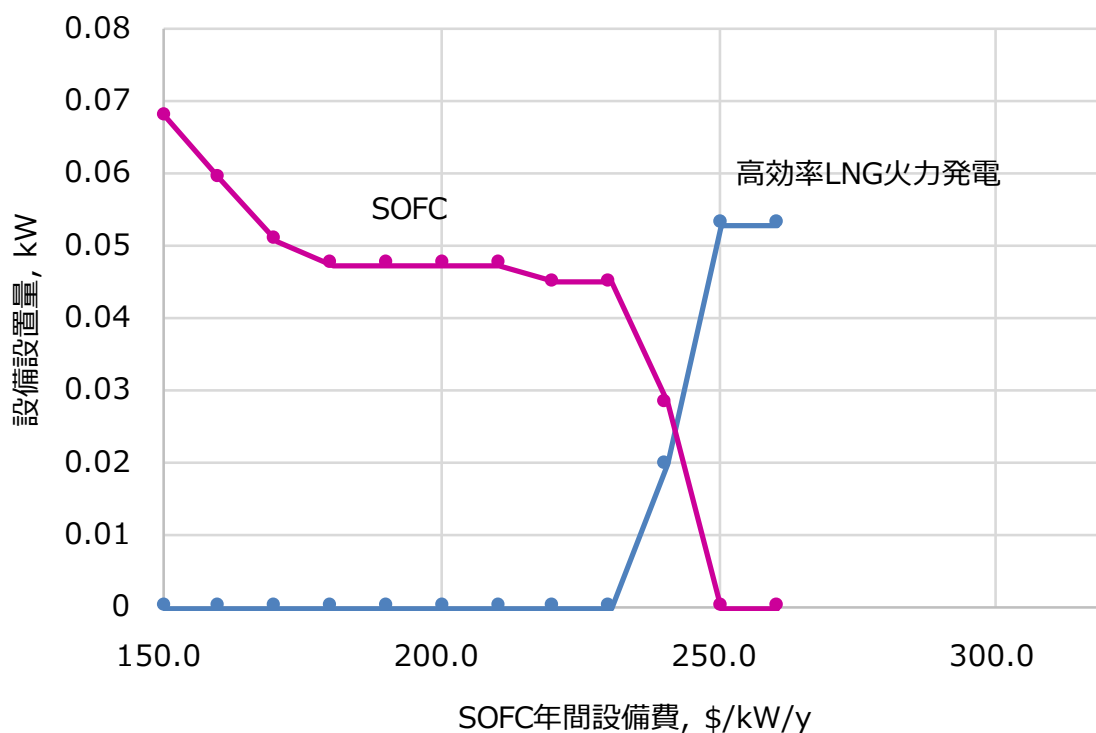


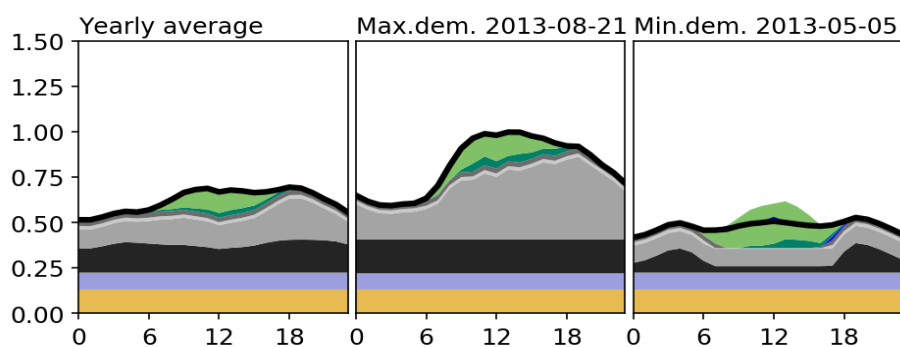
Fig. 12 SOFC 年間設備費と最適解における設備設置量

SOFC の設備寿命 20y, 維持費率 2%, 割引率 5%の場合, 250, 230\$/kW/y の年間設備費はそれぞれ設備費として 2500\$/kW, 2300\$/kW に相当する。また縦軸の設備設置量に、2030年に想定される日本全体の電力需要 1兆 kWh/y を用い $10^{12}/5460$ 倍した値が日本全体の設備ポテンシャルとみなすことができる。この結果から、SOFC 設備仕様と市場ポテンシャルとの関係は以下のように説明される。350gCO₂/kWh への削減プロセスにおいて、SOFC の変換効率が 65%の時、年間設備費が 250\$/kW/y 以下で系統電源として SOFC は競争力を持ち、230\$/kW/y における日本全体の市場ポテンシャルとして 820 万 kW 程度($0.045 \times 10^{12}/5460$)が見込まれる。

高効率 LNG 火力および SOFC が共に選択されている年間設備費 240\$/kW/y の時の最適解から設備設置量と電力供給割合を抜き出し Table 13 にその時の電源プロフィールを Fig. 13 に示す。原子力と水力を除く、既設の設備設置は全て微減している。これは、老朽化による廃棄が反映された結果であり（水力と原子力は一定の設置）、新たな設備設置は見られない。したがって 370 から 350gCO₂/kWh への削減においては、再エネの増設よりも既設の火力発電の稼働率を落とし、高効率 LNG 火力または SOFC の設置で補うシナリオの方が経済的に有利であると判断される。電源プロフィールは基本構成(Fig. 7, Fig. 8)と大きな変化はない。

Table 13 最適化計算結果

		設備設置量, kW (最大需要を1kWとした時)		電源構成 (kWh基準の供給比率)	
		350gCO ₂ /kWh	370g(基本構成)	350gCO ₂ /kWh	370g(基本構成)
		原子力		0.144	0.144
水力		0.099	0.099	15.0%	15.0%
石炭火力		0.192	0.200	25.2%	28.0%
LNG火力		0.502	0.521	23.8%	27.9%
石油火力		0.000	0.000	0.0%	0.0%
風力		0.054	0.056	7.8%	8.1%
太陽光		0.319	0.330		
蓄電池	入出力部(パワコン)	0.019	0.020	0.0%	0.0%
	貯蔵部(電池パック)	0.031	0.035		
高効率LNG火力		0.020	0.000	2.9%	0.0%
SOFC		0.028	0.000	4.2%	0.0%



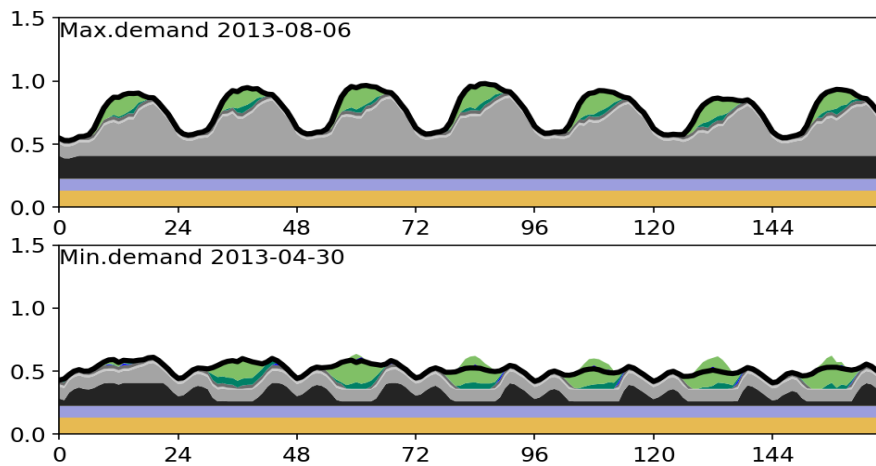


Fig. 13 電源プロファイル

Fig. 14 は最適解から各設備の負荷率の分布を求めたものである。基本構成に比べ既設の石炭火力、LNG 火力の稼働率は下がっている。高効率 LNG 火力(G5-NG)および SOFC(G6-NG)では共にその稼働率は 98%，SOFC の年間起動停止回数は 26 回となっている。このような負荷率分布から強靱性に関するニーズ（要求される運転パターン）を知ることができる。

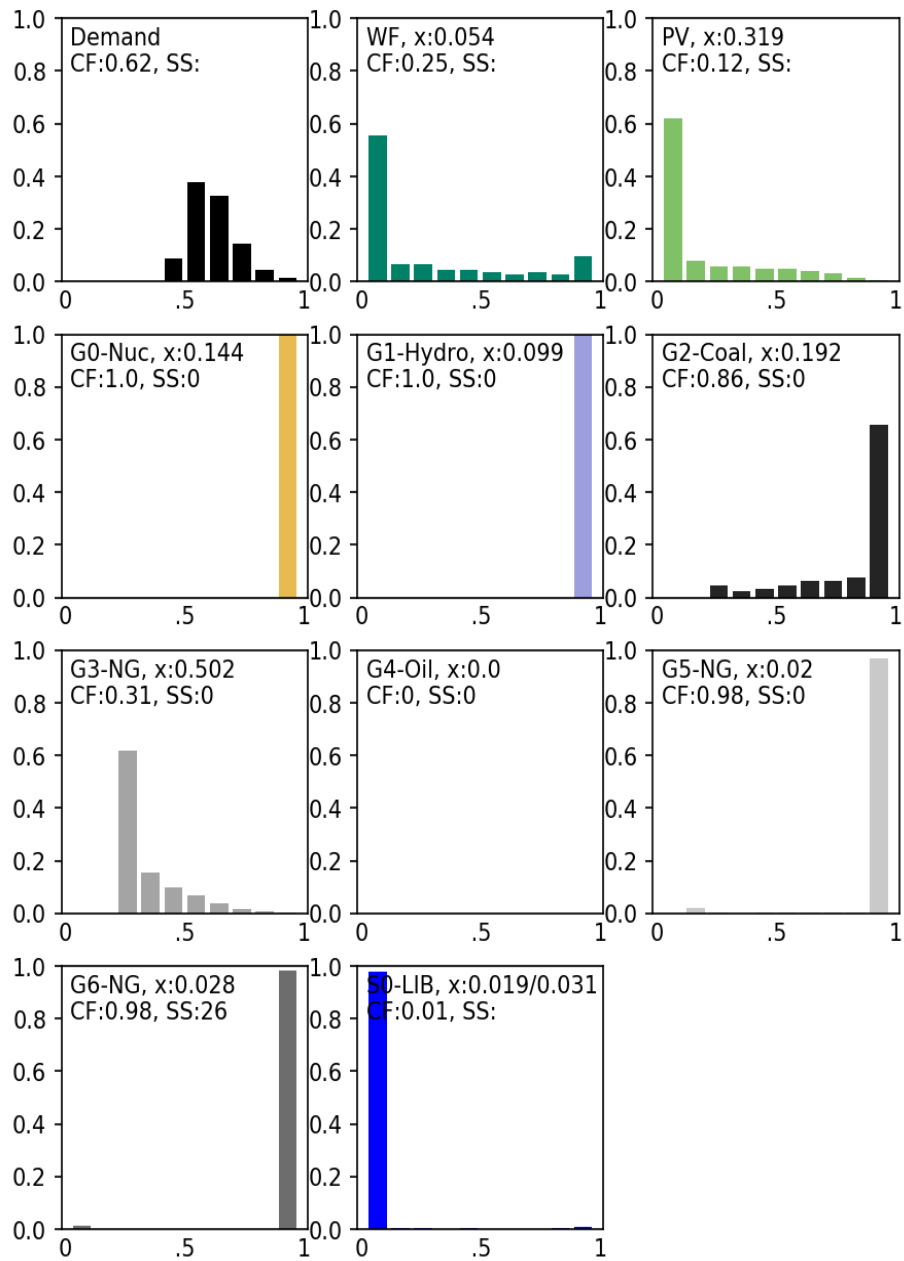


Fig. 14 各設備の負荷率分布

(2) 発電効率の影響

発電効率を 50%~70% に設定した場合の、最適化の結果を前項(65%)の結果と併せて Fig. 15 に示す。発電効率 50% では 60\$/kW/y で、55% では 110\$/kW/y で 60% では 180\$/kW/y 以下で、70% では 300\$/kW/y 以下で競争力を持つ。寿命 20 年で換算するとそれぞれ 600\$/kW/y, 1100\$/kW/y, 1800\$/kW, 3000\$/kW の設備単価に相当する。

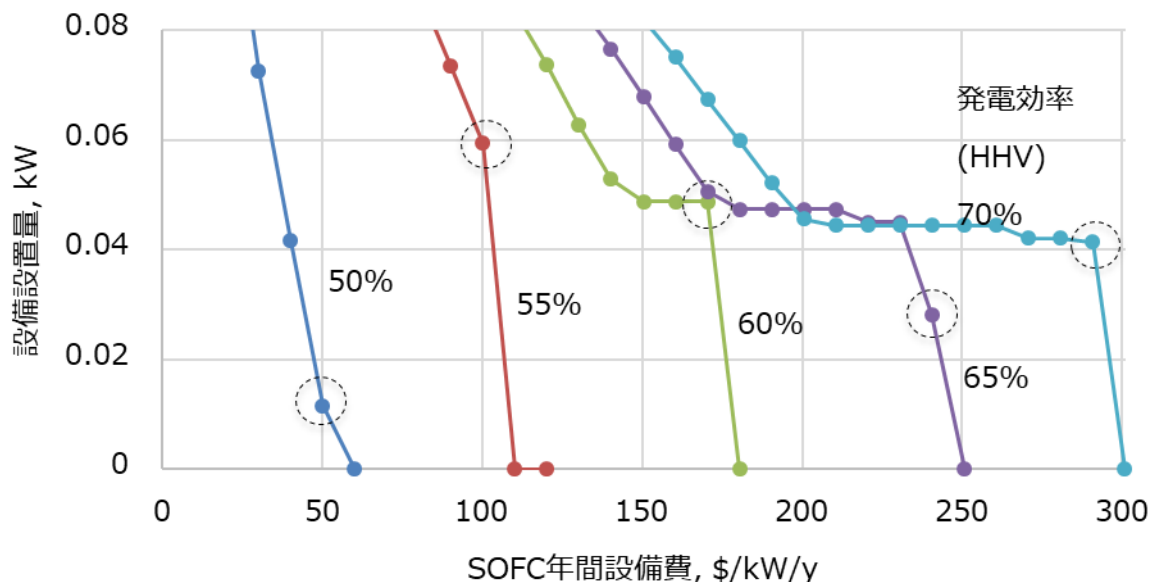


Fig. 15 SOFC 年間設備費と設備設置量との関係に対する発電効率による影響

Table 14 に破線で囲った点における最適解のサマリを示す。370 から 350gCO₂/kWh への削減過程においては、PV、風力および蓄電池は最低設置量として制約された値(その時点で設置されている量)を超えず、高効率 LNG 火力発電または SOFC の設置により、既設の石炭火力、LNG 火力の稼働率を下げる対策が解として選択されている。MAC も基本構成に対し、\$10 程度低下している。これは高効率 LNG 火力および SOFC が新たな選択肢として加わったためである。

SOFC の発電効率が 60% 以上の場合、年間稼働率は 98% を越え、起動停止回数も 24~27 回/年と、比較的少ない。一方で 55% 以下の場合には、稼働率が低下し、起動停止回数も極端に増加している。これは、より効率の高い発電機器の負荷が優先されるためと解釈できる。 Fig. 15 中破線で囲んだ点の詳細な計算結果を Output 1~Output 5 に示す。

Table 14 発電効率 60,65,70%設定における最適解のサマリ

排出原単位, gCO ₂ /kWh		370	350				
SOFC発電効率(HHV)		基本設定	50%	55%	60%	65%	70%
設備費	年間設備費, \$/kW/y	-	50.1	100.2	170.4	230.6	280.7
	寿命20年での 設備単価, \$/kW		500	1000	1700	2300	2800
市場ポテンシャル, 万kW			211	1088	893	824	772
年間稼働率			53.5%	93.2%	98.2%	98.3%	98.3%
起動停止回数, 回/年			416	321	27	26	24
限界削減費用(MAC), \$/tCO ₂		93.4	90.5	89.7	84.2	82.2	80.3
電力単価増, ¢/kWh		基準	0.10	0.10	0.09	0.09	0.09
電源供給比率	原子力	21.0%	21.0%	21.0%	21.0%	21.0%	21.0%
	水力他	15.0%	15.0%	15.0%	15.0%	15.0%	15.0%
	石炭火力	28.0%	25.0%	24.9%	25.2%	25.4%	25.6%
	LNG火力	27.9%	22.5%	22.8%	23.7%	24.0%	24.3%
	石油火力	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
	高効率LNG火力	0.0%	7.8%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
	SOFC	-	0.9%	8.4%	7.3%	6.7%	6.3%
	太陽光, 風力	8.1%	7.8%	7.8%	7.8%	7.8%	7.8%
	蓄電池放電	0.02%	0.01%	0.01%	0.02%	0.02%	0.02%
太陽光, 風力抑制率		0.92%	0.89%	0.66%	0.66%	0.66%	0.66%
設備設置量, 万kW (総電力需要 を1兆kWh/ 年として換 算)	原子力	2629	2629	2629	2629	2629	2629
	水力他	1810	1810	1810	1810	1810	1810
	石炭火力	3656	3524	3524	3524	3524	3524
	LNG火力	9546	9202	9202	9202	9202	9202
	石油火力	0	0	0	0	0	0
	高効率LNG火力	-	954	0	0	0	0
	SOFC		211	1088	893	824	772
	風力	1029	985	985	985	985	985
	太陽光	6052	5834	5834	5834	5834	5834
	蓄電池入出力部	369	342	342	342	342	342
	貯蔵部, kWh	639	570	570	570	570	570

Fig. 16 は SOFC 競争力を持つための発電効率とコスト(限界コスト)との関係をプロットしたものである。発電効率の上昇に伴い限界コストも上昇し、その傾きから発電効率の価値を見積もると 発電効率 5%の上昇が設備コスト 740\$/kWh 程度の価値に相当する。Table 15 は Fig. 16 の各点における導入ポテンシャル、起動停止回数、年間稼働率を示す。発電効率 55%と 60%では起動停止回数および稼働率が大きく変化している。Fig. 17 は発電効率 55%と 60%での負荷率分布の左を縦軸を 1 日の時刻、横軸を日として、負荷率を濃淡で示したコンター図である。このように強靱性ニーズとしての起動停止回数および負荷率分布に着目すると、発電効率として境界が存在する。

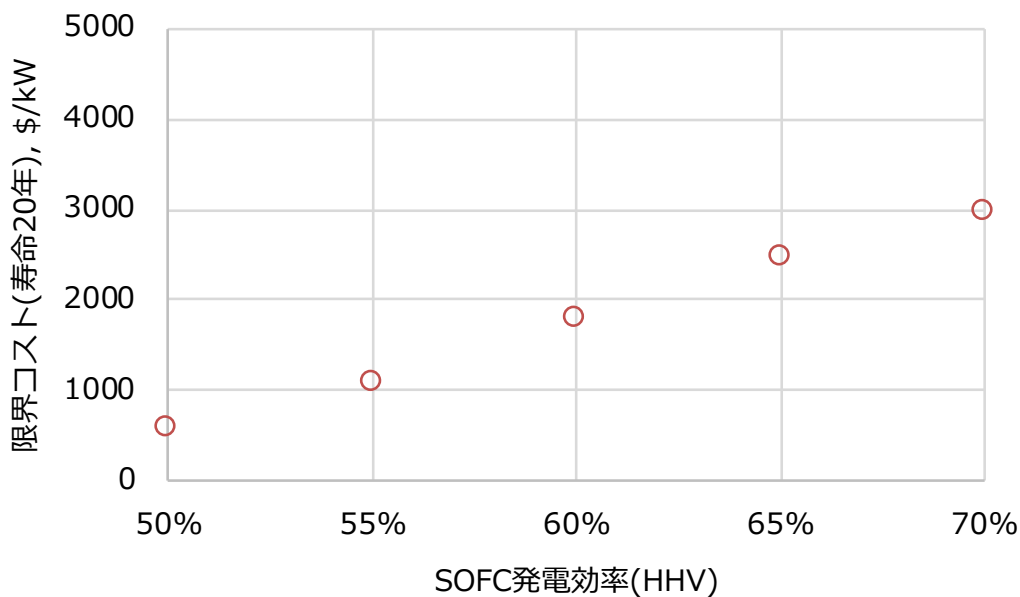


Fig. 16 2030 年想定における競争力を持つための SOFC の設備コストと発電効率との関係

Table 15 2030 年頃を想定した SOFC の仕様と市場ポテンシャル(350gCO₂/kWh 制約)

競合技術：高効率 LNG 火力，分散電源(太陽光，風力，蓄電池)

発電効率 HHV	設備 寿命 年	限界	設備	導入ポテン	市場ポテン	起動停止 回数 回/年	年間 稼働率
		コスト \$/kW	コスト \$/kW	シャル 万kW	シャル 兆円		
50%	10	402	335	211	0.07	416	53.5%
	15	517	431		0.09		
	20	600	500		0.11		
55%	10	738	670	1088	0.73	321	93.2%
	15	948	862		0.94		
	20	1100	1000		1.09		
60%	10	1207	1140	893	1.02	27	98.2%
	15	1551	1465		1.31		
	20	1800	1700		1.52		
65%	10	1676	1542	824	1.27	26	98.3%
	15	2154	1982		1.63		
	20	2500	2300		1.90		
70%	10	2011	1877	772	1.45	24	98.3%
	15	2585	2413		1.86		
	20	3000	2800		2.16		

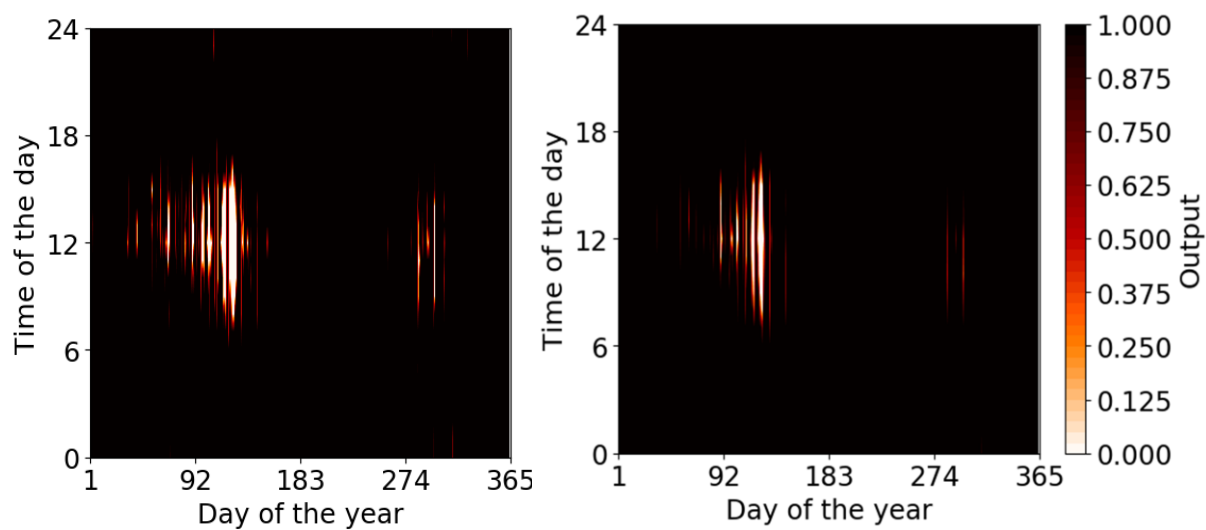


Fig. 17 負荷率分布(左:55%, 右:60%)

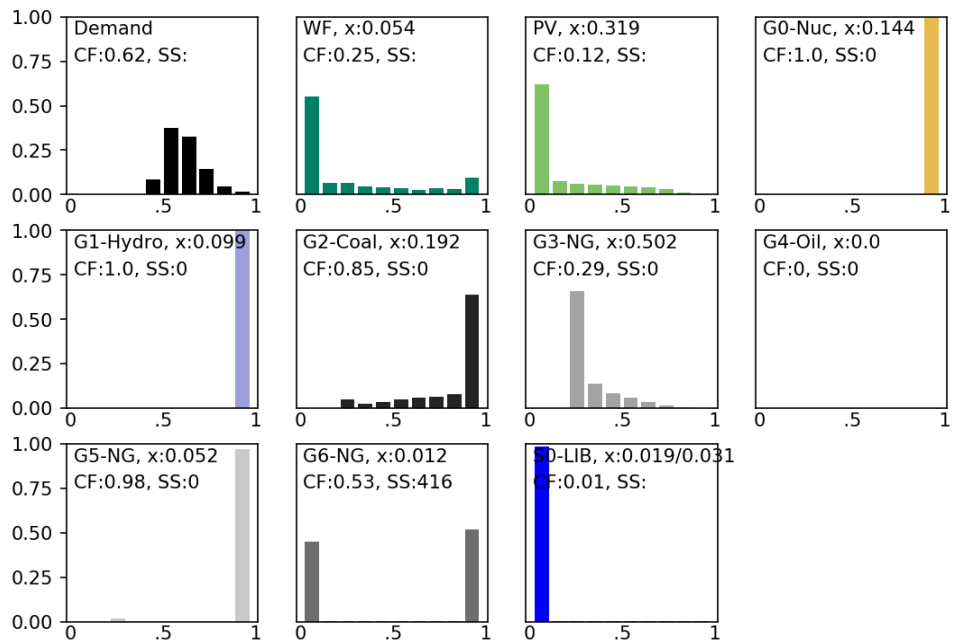
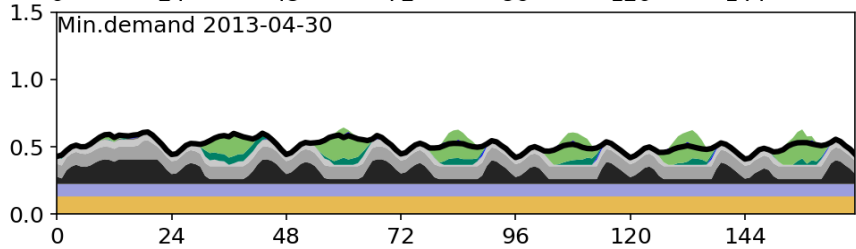
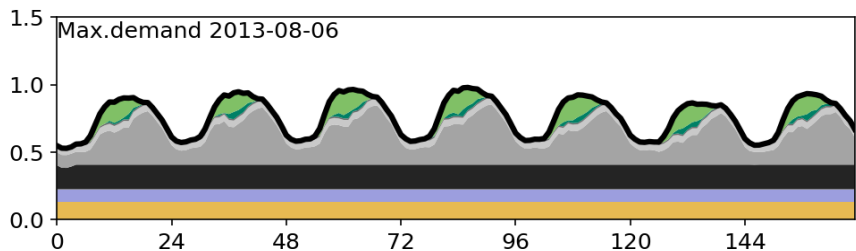
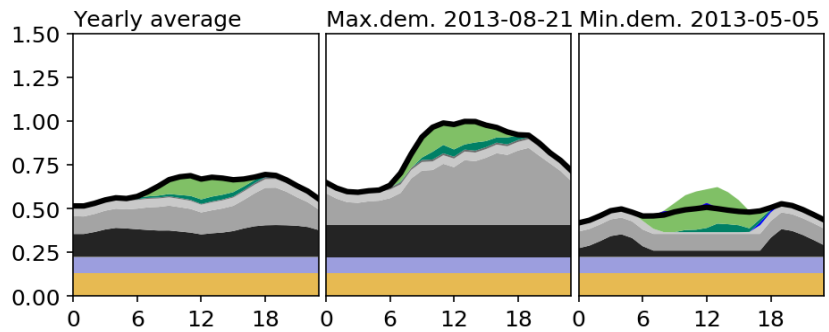
Output 1 CO₂ 制約 350g, 効率 50%, 設備費 500\$/kW, 寿命 20 年

350 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率: 50%

SOFC 設備費, 寿命: 500\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.192
	LNG	0.502
	石油	0.000
	高効率LNG	0.052
	SOFC	0.012
	風力	0.052
	太陽光	0.012
	蓄電池入出力 貯蔵	0.054 0.319
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	25.0%
	LNG	22.5%
	石油	0.0%
	高効率LNG	7.8%
	SOFC	0.9%
	風力+太陽光	7.8%
	蓄電池	0.0%
余剰	蓄電池充電	0.2%
	出力抑制	0.9%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	45.7
	LNG	51.3
	石油	0.0
	高効率LNG	6.1
	SOFC	0.6
	風力	14.2
	太陽光	38.3
	蓄電池入出力 貯蔵	1.0 0.7
燃料費	原子力	19.5
	石炭	40.1
	LNG	117.4
	石油	0.0
	高効率LNG	33.2
	SOFC	4.5
費用計, \$/y	467.8	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.851
	LNG	0.294
	石油	0.000
	高効率LNG	0.982
	SOFC	0.535
蓄電池入出力	0.002	
排出量, tCO ₂ /y	1.91	
MAC, \$/tCO ₂	90.5	
電力単価, ¥/kWh	8.57	



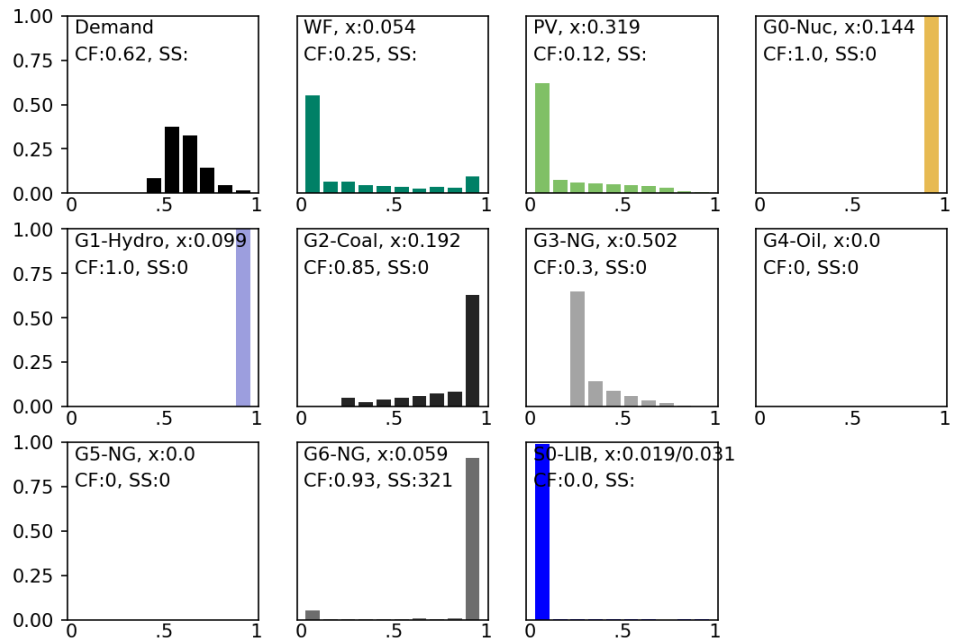
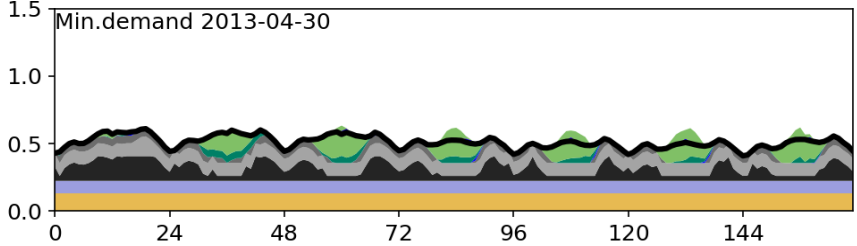
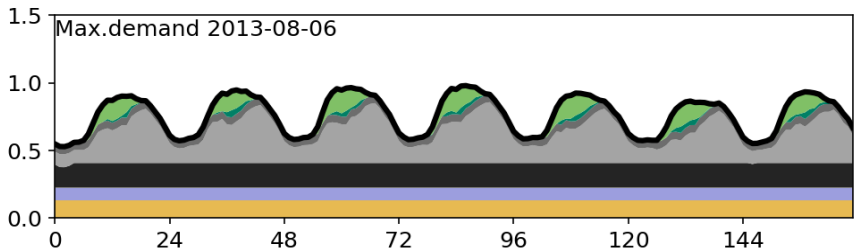
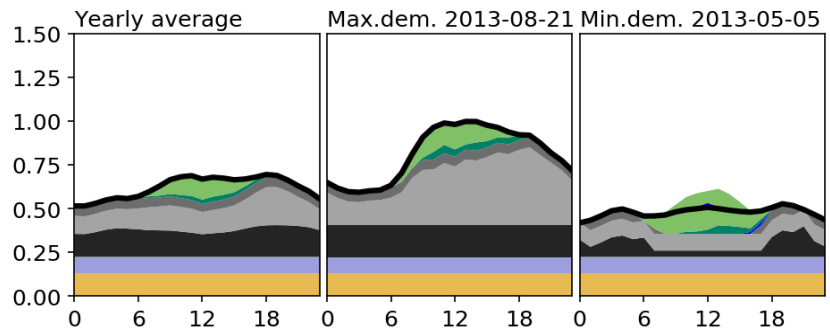
Output 2 CO₂制約 350g, 効率 55%, 設備費 1000\$/kW, 寿命 20 年

350 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率：55%

SOFC 設備費, 寿命：1000\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.192
	LNG	0.502
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.059
	風力	0.000
	太陽光	0.059
	蓄電池入出力 貯蔵	0.054 0.319
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	24.9%
	LNG	22.8%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	8.4%
	風力+太陽光	7.8%
余剰	蓄電池充電	0.2%
	出力抑制	0.7%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	45.7
	LNG	51.3
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	6.0
	風力	14.2
燃料費	太陽光	38.3
	蓄電池入出力	1.0
	貯蔵	0.7
	費用計, \$/y	467.7
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.849
	LNG	0.298
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.932
	蓄電池入出力	0.002
排出量, tCO ₂ /y	1.91	
MAC, \$/tCO ₂	89.7	
電力単価, ¥/kWh	8.57	



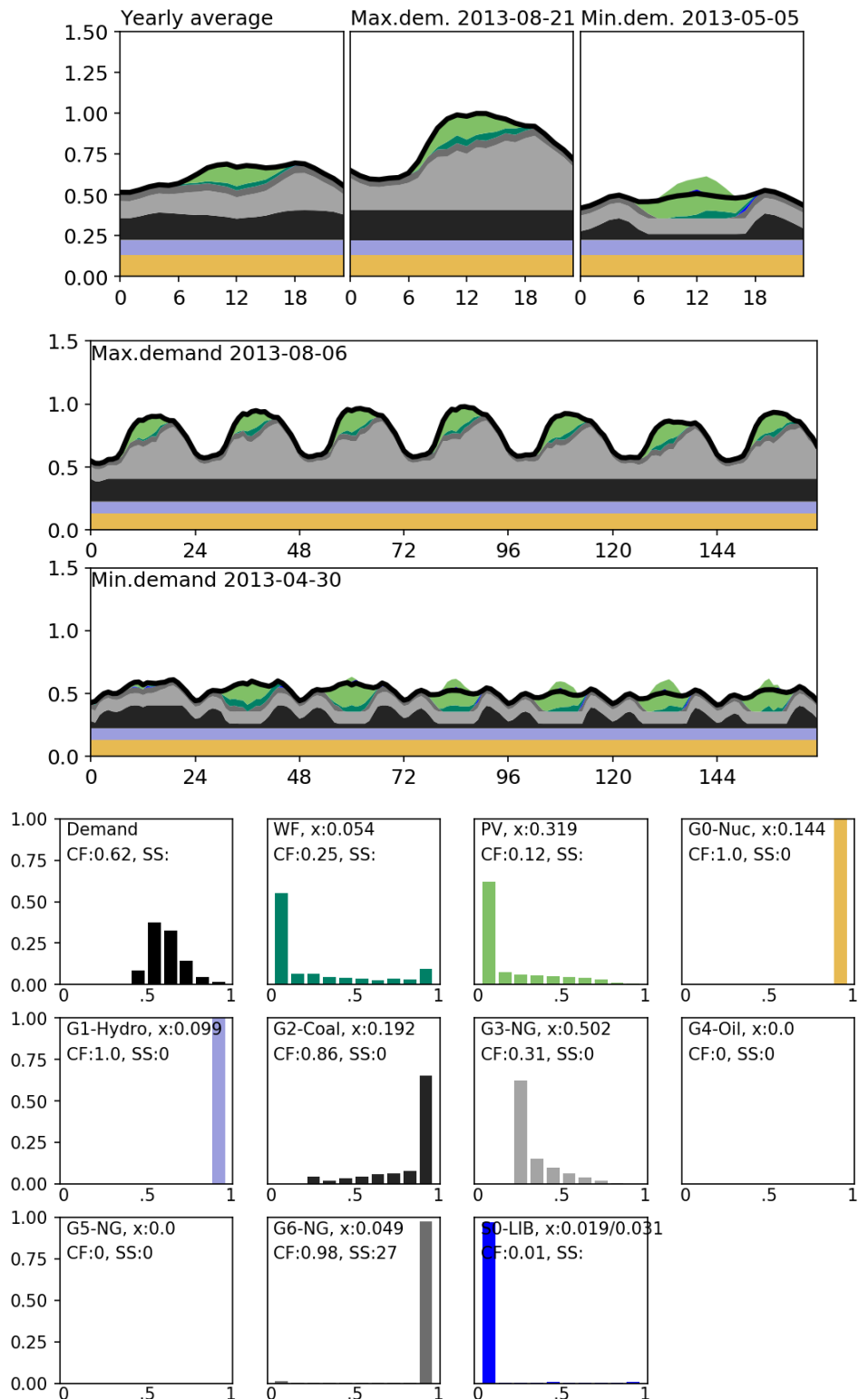
Output 3 CO₂ 制約 350g, 効率 60%, 設備費 1700\$/kW, 寿命 20 年

350 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率：60%

SOFC 設備費, 寿命：1700\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.192
	LNG	0.502
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.049
	風力	0.054
	太陽光	0.319
	蓄電池入出力 貯蔵	0.019 0.031
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	25.2%
	LNG	23.7%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	7.3%
	風力+太陽光	7.8%
	蓄電池	0.0%
	余剰	蓄電池充電
出力抑制		0.7%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	45.7
	LNG	51.3
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	8.3
	風力	14.2
	太陽光	38.3
	蓄電池入出力 貯蔵	1.0 0.7
燃料費	原子力	19.5
	石炭	40.4
	LNG	123.8
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	29.0
	費用計, \$/y	467.5
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.858
	LNG	0.310
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.982
	蓄電池入出力	0.003
排出量, tCO ₂ /y	1.91	
MAC, \$/tCO ₂	84.2	
電力単価, ¥/kWh	8.56	



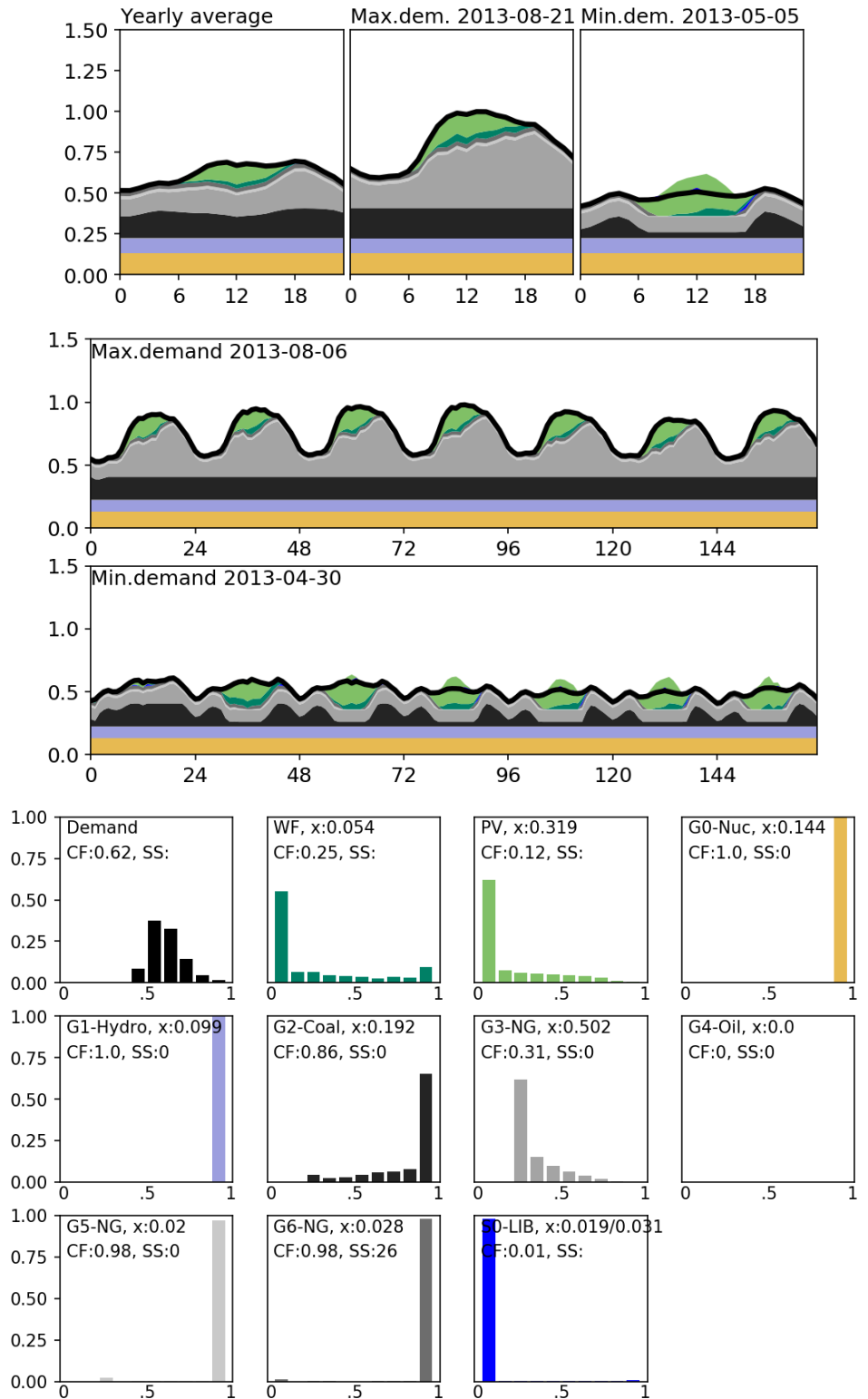
Output 4 CO₂ 制約 350g, 効率 65%, 設備費 2400\$/kW, 寿命 20 年

350 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率：65%

SOFC 設備費, 寿命：2400\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.192
	LNG	0.502
	石油	0.000
	高効率LNG	0.020
	SOFC	0.028
	風力	0.054
	太陽光	0.319
	蓄電池入出力 貯蔵	0.019 0.031
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	25.2%
	LNG	23.8%
	石油	0.0%
	高効率LNG	2.9%
	SOFC	4.2%
	風力+太陽光	7.8%
	蓄電池	0.0%
	余剰	蓄電池充電
出力抑制		0.7%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	45.7
	LNG	51.3
	石油	0.0
	高効率LNG	2.3
	SOFC	6.8
	風力	14.2
	太陽光	38.3
	蓄電池入出力 貯蔵	1.0 0.7
燃料費	原子力	19.5
	石炭	40.5
	LNG	124.2
	石油	0.0
	高効率LNG	12.5
	SOFC	15.5
	費用計, \$/y	467.8
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.860
	LNG	0.310
	石油	0.000
	高効率LNG	0.979
	SOFC	0.985
蓄電池入出力	0.003	
排出量, tCO ₂ /y	1.91	
MAC, \$/tCO ₂	86.8	
電力単価, ¥/kWh	8.57	



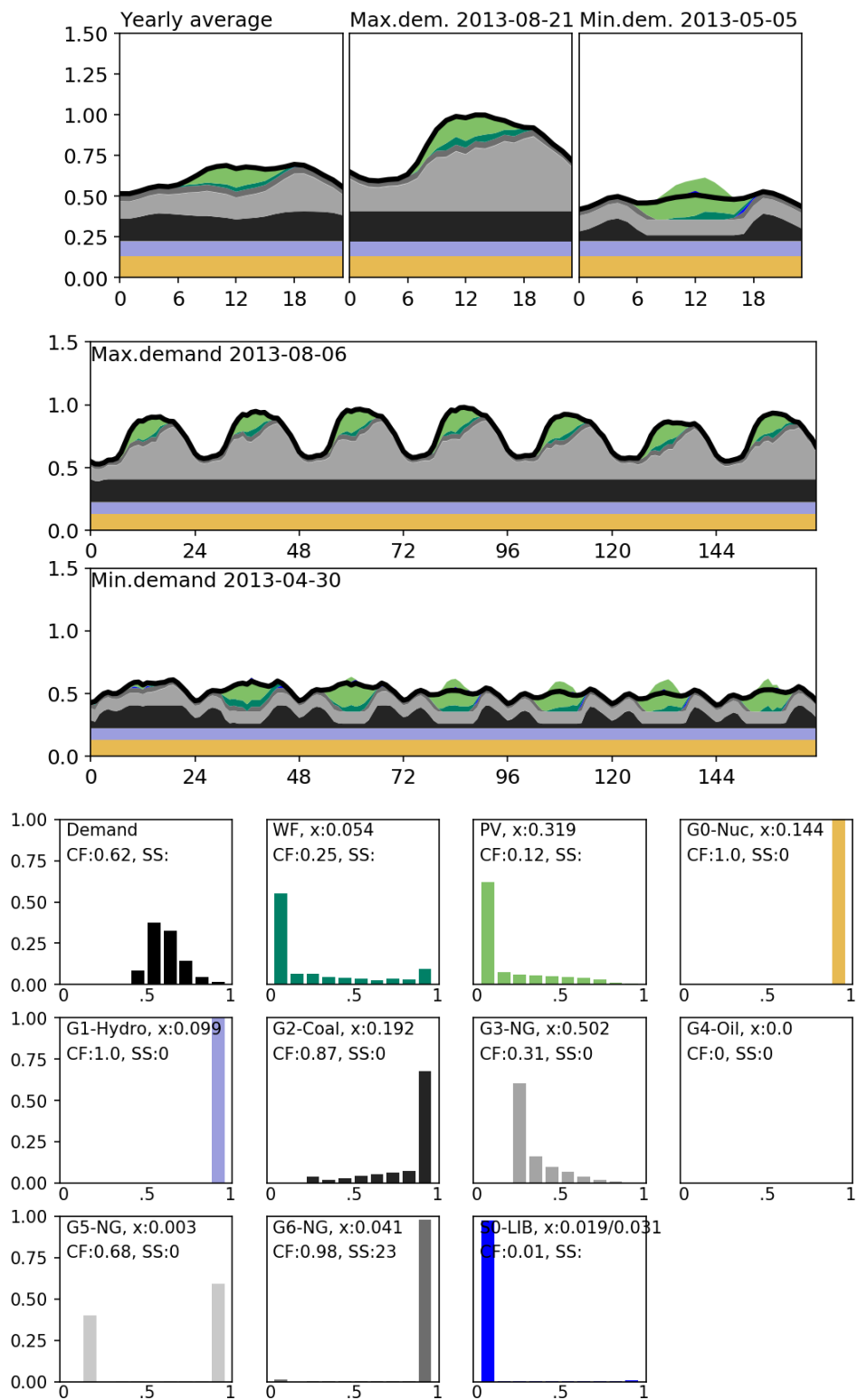
Output 5 CO₂ 制約 350g, 効率 70%, 設備費 2900\$/kW, 寿命 20 年

350 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率：70%

SOFC 設備費, 寿命：2900\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.192
	LNG	0.502
	石油	0.000
	高効率LNG	0.003
	SOFC	0.041
	風力	0.054
	太陽光	0.319
	蓄電池入出力 貯蔵	0.019 0.031
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	25.6%
	LNG	24.1%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.3%
	SOFC	6.2%
	風力+太陽光	7.8%
	蓄電池	0.0%
	余剰	蓄電池充電
出力抑制		0.7%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	45.7
	LNG	51.3
	石油	0.0
	高効率LNG	0.3
	SOFC	12.0
	風力	14.2
	太陽光	38.3
	蓄電池入出力 貯蔵	1.0 0.7
燃料費	原子力	19.5
	石炭	41.0
	LNG	125.9
	石油	0.0
	高効率LNG	1.3
	SOFC	21.1
費用計, \$/y	467.7	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.872
	LNG	0.315
	石油	0.000
	高効率LNG	0.676
	SOFC	0.983
蓄電池入出力	0.003	
排出量, tCO ₂ /y	1.91	
MAC, \$/tCO ₂	84.8	
電力単価, ¥/kWh	8.56	



2.3.4 325, 300gCO₂/kWh 制約における計算結果

CO₂排出原単位に関する制約を 325, 300gCO₂/kWh とし、それぞれの最適解における SOFC の設備費と設置量との関係を Fig. 18, Fig. 19 に示す。350 に比べて、325, 300 の場合、SOFC が競争力を有する領域での設備設置量は大幅に増加しているが、350g 制約に比べより多い CO₂ 削減となるためである。線が立ち上がる年間設備費の値(限界設備コスト)は僅かに大きくなる。市場ポテンシャルを日本全体の電力需要 1 兆 kWh/y で換算した値は 325, 300gCO₂/kWh それぞれ、1700 万 kW(=0.95/5460*1e12), 2500 万 kW(=0.14/5460*1e12) 程度で 350gCO₂/kWh の場合との比較で、それぞれ 2 倍、3 倍と要求される CO₂ 削減量に応じた値となっている。

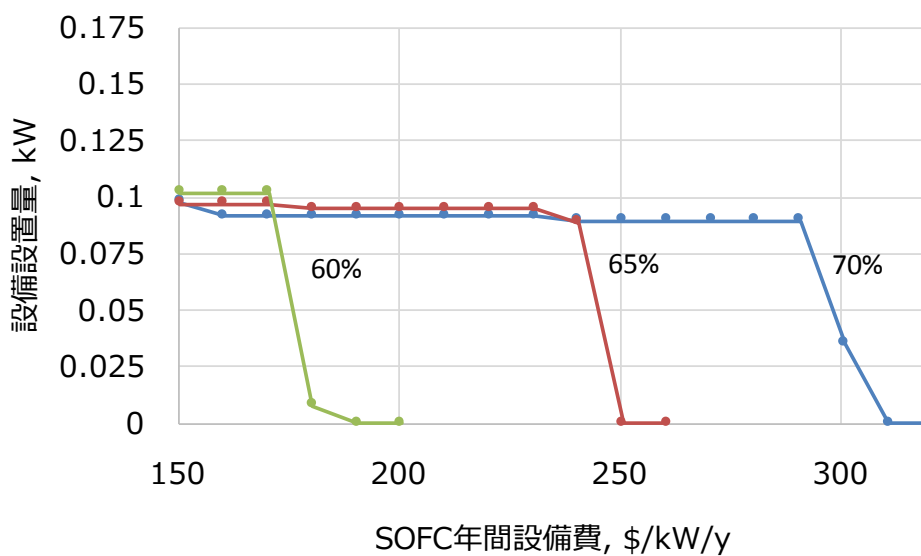


Fig. 18 SOFC 年間設備費と設置量との関係(325gCO₂/kWh)

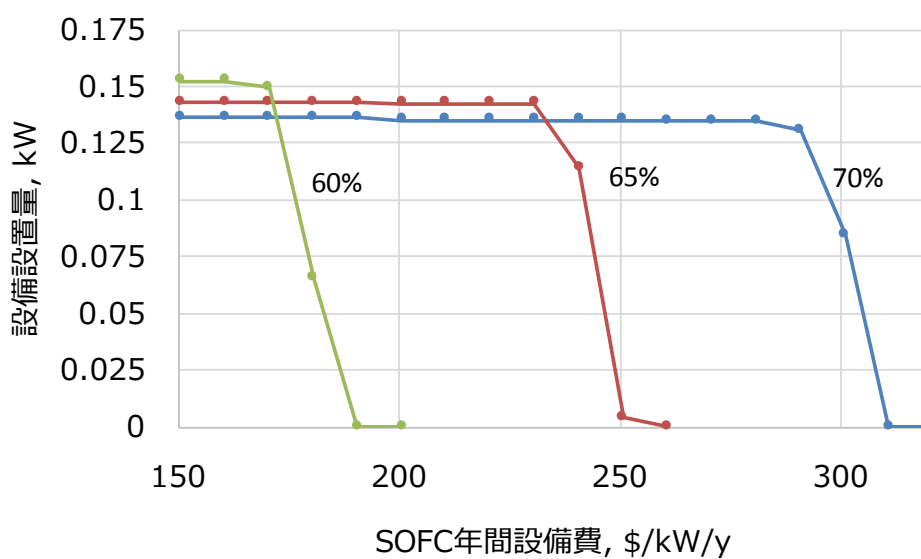


Fig. 19 SOFC 年間設備費と設置量との関係(300gCO₂/kWh)

SOFCの発電効率60%における主な機器の負荷率分布を350, 325, 300gCO₂/kWh 制約それぞれの比較を Fig. 20 に示す。CO₂制約が厳しくなるにつれ、既設の石炭火力(G2-Coal)および LNG 火力(G3-NG)の稼働率(CF)は低下し、負荷率分布も低負荷率側へシフトしている。SOFC(G6-NG)の稼働率も同様に低下し、300gCO₂/kWh 制約においては、部分負荷による運転が現れている。

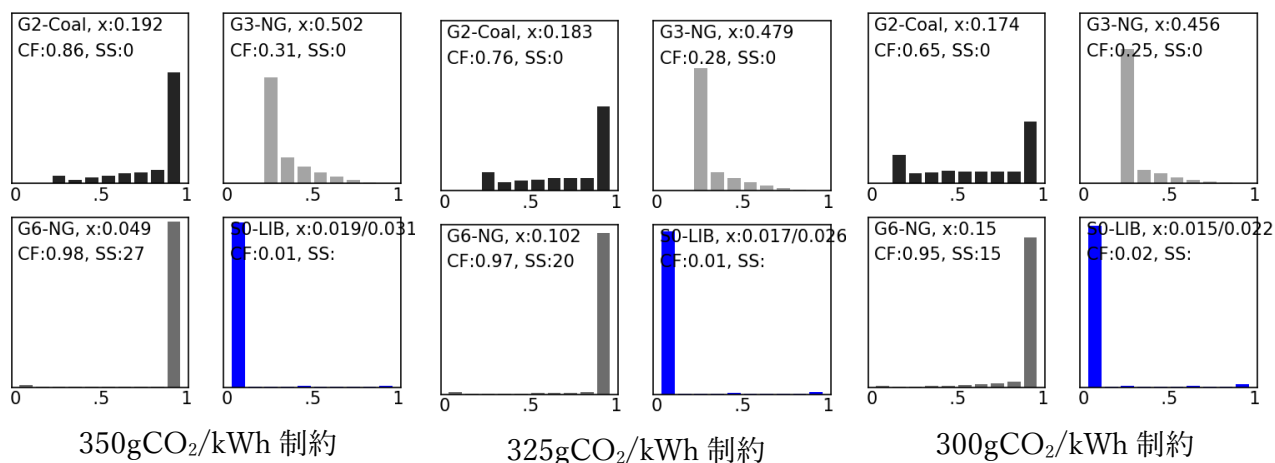


Fig. 20 350, 325, 300gCO₂/kWh における負荷率分布の比較

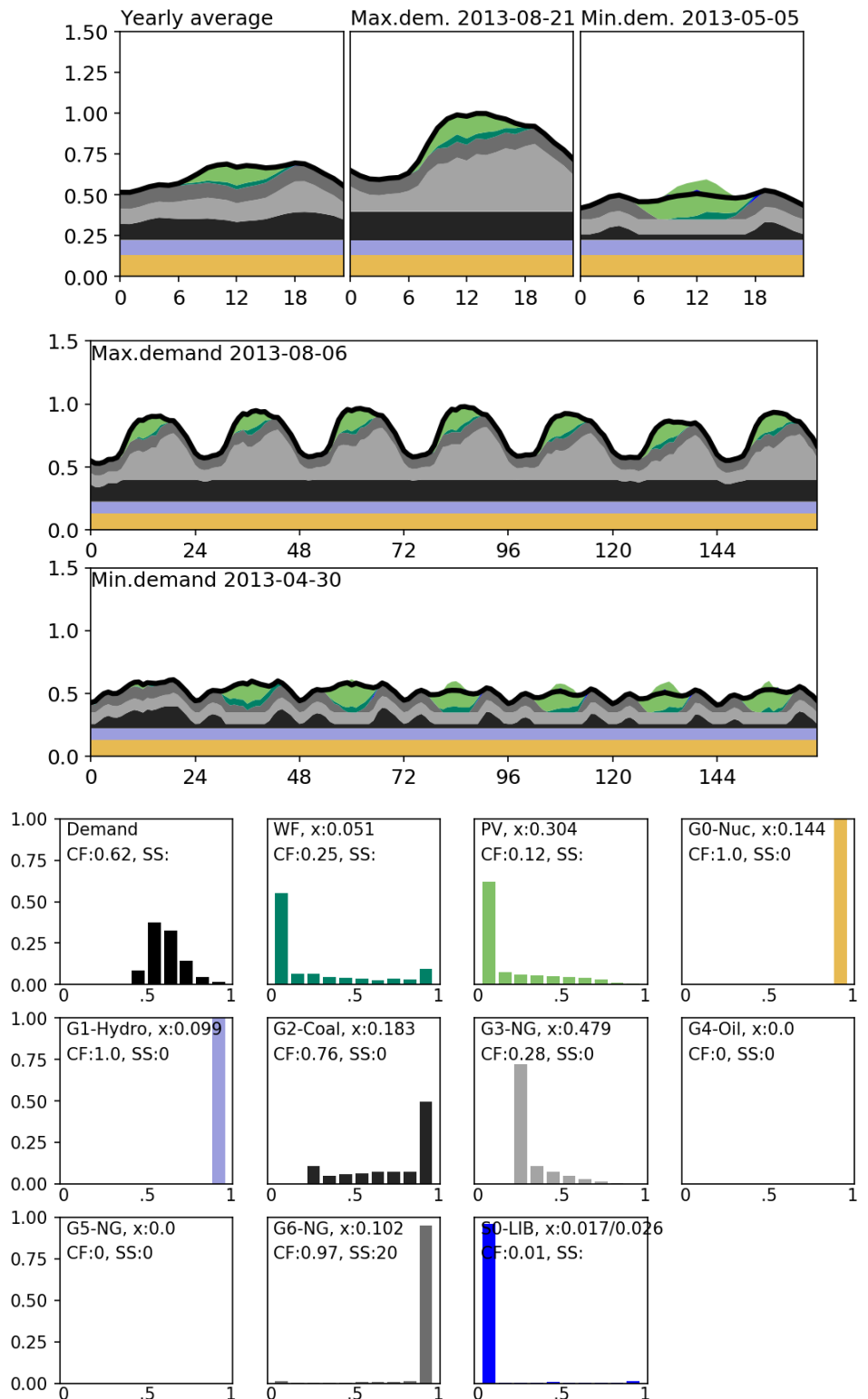
Output 6 CO₂ 制約 325g, 効率 60%, 設備費 1700\$/kW, 寿命 20 年

325 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率：60%

SOFC 設備費, 寿命：1700\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.183
	LNG	0.479
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.102
	風力	0.051
	太陽光	0.304
	蓄電池入出力 貯蔵	0.017 0.026
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	21.3%
	LNG	20.1%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	15.1%
	風力+太陽光	7.4%
	蓄電池	0.0%
	余剰	蓄電池充電
出力抑制		0.4%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	43.6
	LNG	48.9
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	17.3
	風力	13.4
	太陽光	36.5
	蓄電池入出力 貯蔵	0.9 0.6
燃料費	原子力	19.5
	石炭	34.2
	LNG	105.2
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	59.9
費用計, \$/y	475.3	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.762
	LNG	0.276
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.972
	蓄電池入出力	0.005
排出量, tCO ₂ /y	1.77	
MAC, \$/tCO ₂	96.1	
電力単価, ¥/kWh	8.71	



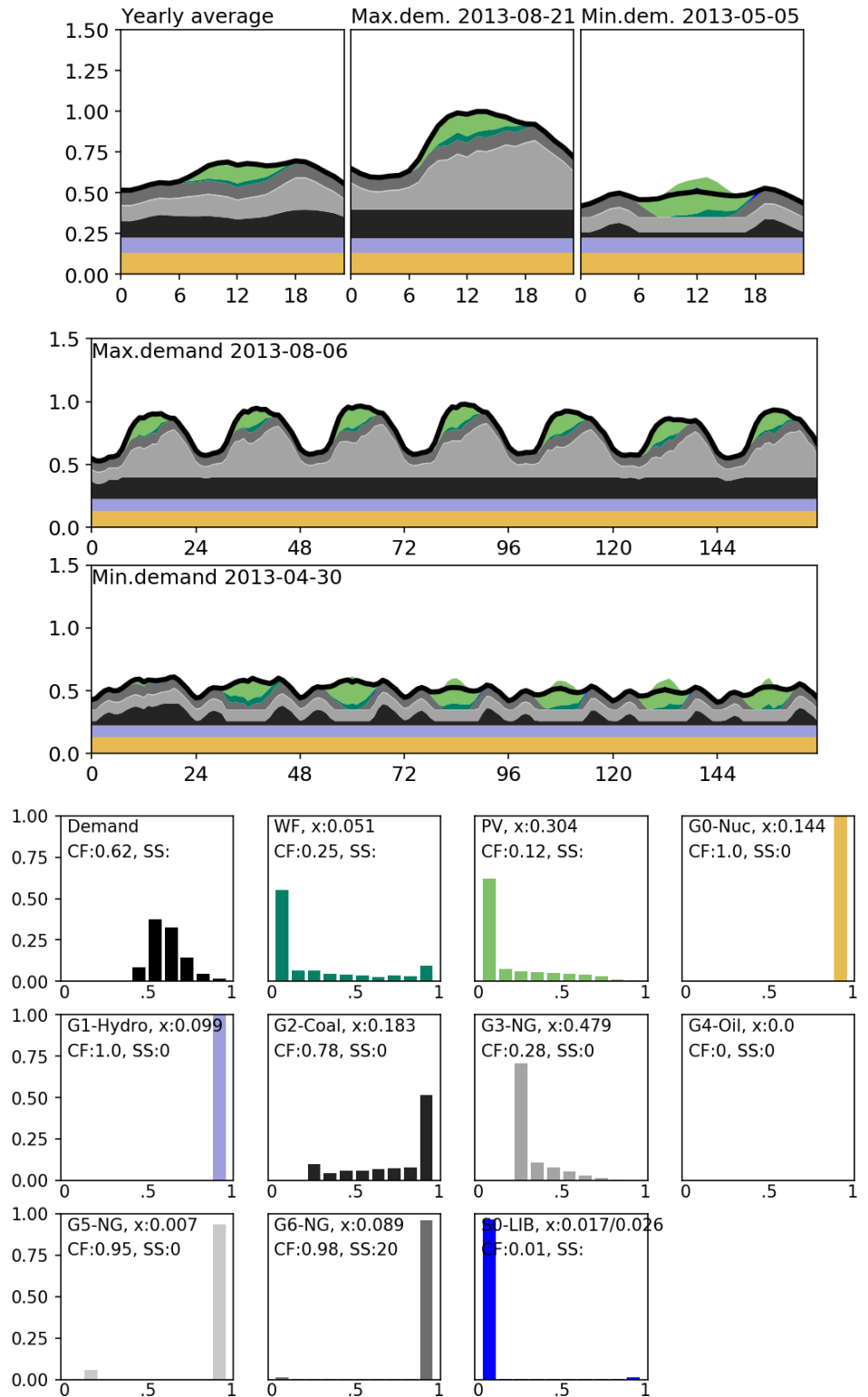
Output 7 CO₂ 制約 325g, 効率 65%, 設備費 2400\$/kW, 寿命 20 年

325 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率：65%

SOFC 設備費, 寿命：2400\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.183
	LNG	0.479
	石油	0.000
	高効率LNG	0.007
	SOFC	0.089
	風力	0.051
	太陽光	0.304
	蓄電池入出力 貯蔵	0.017 0.026
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	21.8%
	LNG	20.5%
	石油	0.0%
	高効率LNG	1.0%
	SOFC	13.2%
	風力+太陽光	7.4%
	蓄電池	0.0%
	余剰	蓄電池充電
出力抑制		0.4%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	43.6
	LNG	48.9
	石油	0.0
	高効率LNG	0.8
	SOFC	21.3
	風力	13.4
	太陽光	36.5
	蓄電池入出力 貯蔵	0.9 0.6
燃料費	原子力	19.5
	石炭	34.9
	LNG	107.3
	石油	0.0
	高効率LNG	4.4
	SOFC	48.4
	費用計, \$/y	475.9
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.778
	LNG	0.281
	石油	0.000
	高効率LNG	0.951
	SOFC	0.977
	蓄電池入出力	0.004
排出量, tCO ₂ /y	1.77	
MAC, \$/tCO ₂	97.0	
電力単価, ¥/kWh	8.72	



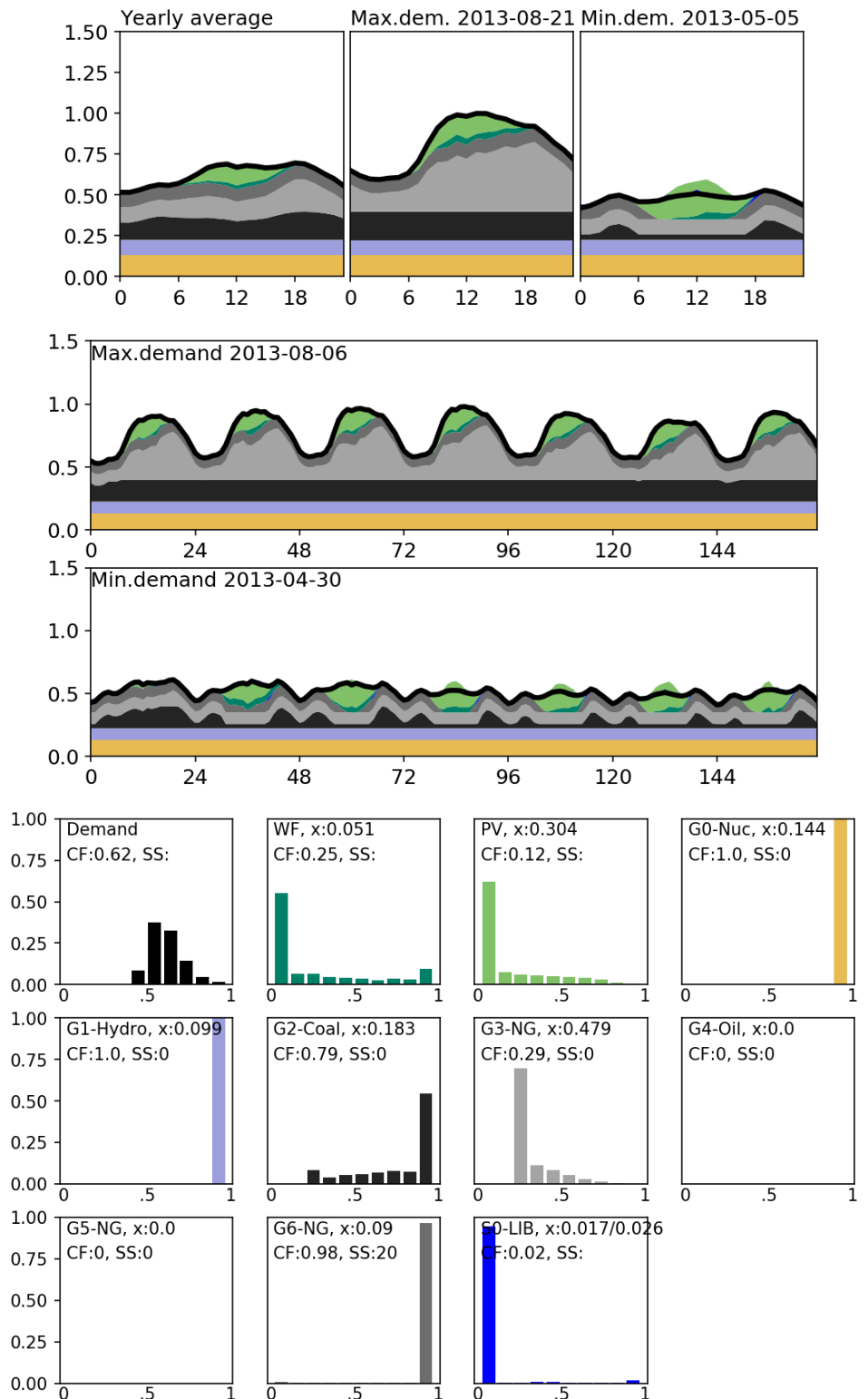
Output 8 CO₂ 制約 325g, 効率 70%, 設備費 2900\$/kW, 寿命 20 年

325 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率：70%

SOFC 設備費, 寿命：2900\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.183
	LNG	0.479
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.090
	風力	0.051
	太陽光	0.304
	蓄電池入出力 貯蔵	0.017 0.026
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	22.2%
	LNG	21.0%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	13.4%
	風力+太陽光	7.4%
	蓄電池	0.0%
	余剰	蓄電池充電
出力抑制		0.4%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	43.6
	LNG	48.9
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	26.0
	風力	13.4
	太陽光	36.5
	蓄電池入出力 貯蔵	0.9 0.6
燃料費	原子力	19.5
	石炭	35.6
	LNG	109.6
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	45.4
	費用計, \$/y	475.4
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.794
	LNG	0.288
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.978
	蓄電池入出力	0.006
排出量, tCO ₂ /y	1.77	
MAC, \$/tCO ₂	94.3	
電力単価, ¥/kWh	8.71	

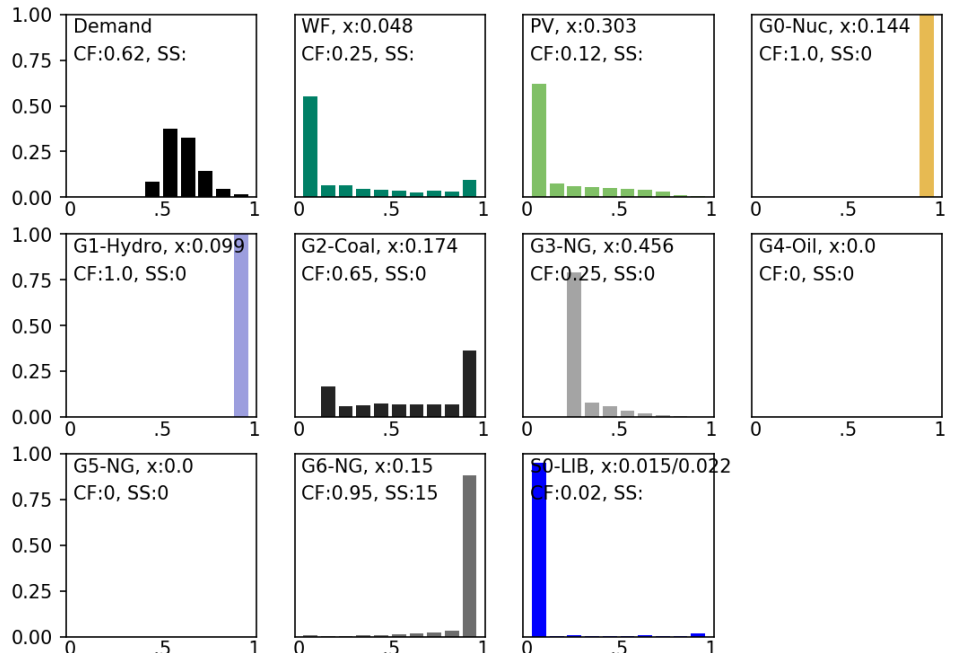
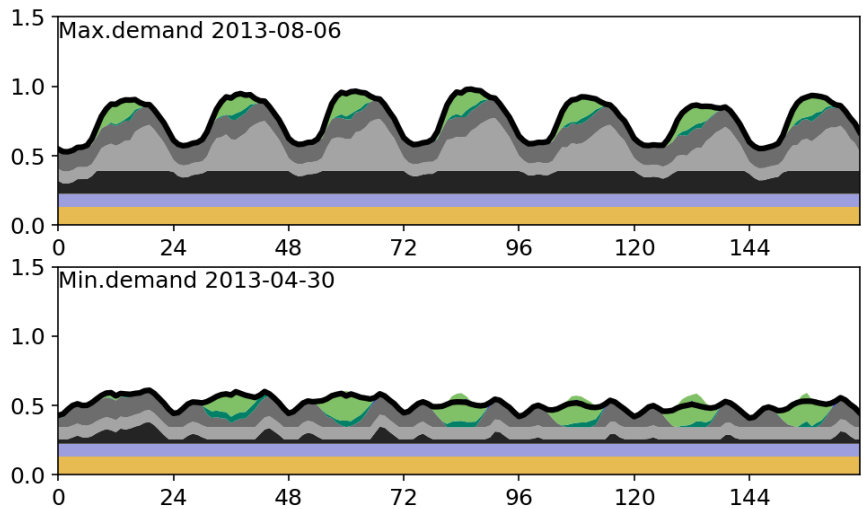
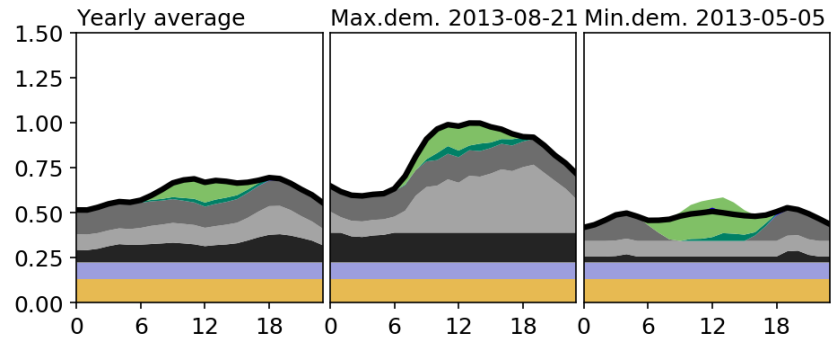


Output 9 CO₂ 制約 300g, 效率 60%, 設備費 1700\$/kW, 壽命 20 年

300 gCO₂/kWh

SOFC 發電效率：60% SOFC 設備費, 壽命：1700\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.174
	LNG	0.456
	石油	0.000
	高效率LNG	0.000
	SOFC	0.150
	風力	0.048
	太陽光	0.303
	蓄電池入出力	0.015
	貯藏	0.022
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	17.4%
	LNG	17.6%
	石油	0.0%
	高效率LNG	0.0%
	SOFC	21.7%
	風力+太陽光	7.3%
	蓄電池	0.0%
余剰	蓄電池充電	0.6%
	出力抑制	0.3%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	41.5
	LNG	46.5
	石油	0.0
	高效率LNG	0.0
	SOFC	25.5
	風力	12.6
	太陽光	36.4
	蓄電池入出力	0.8
貯藏	0.5	
燃料費	原子力	19.5
	石炭	27.9
	LNG	91.8
	石油	0.0
	高效率LNG	0.0
	SOFC	86.0
費用計, \$/y	484.4	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.655
	LNG	0.253
	石油	0.000
	高效率LNG	0.000
	SOFC	0.950
	蓄電池入出力	0.006
排放量, tCO ₂ /y	1.64	
MAC, \$/tCO ₂	106.9	
電力単価, ¥/kWh	8.87	



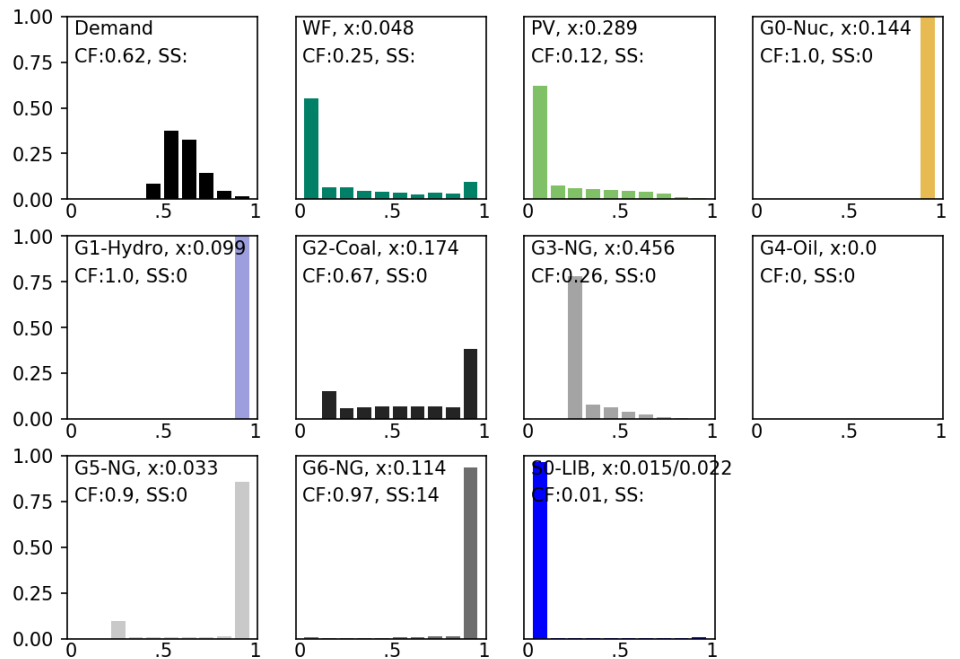
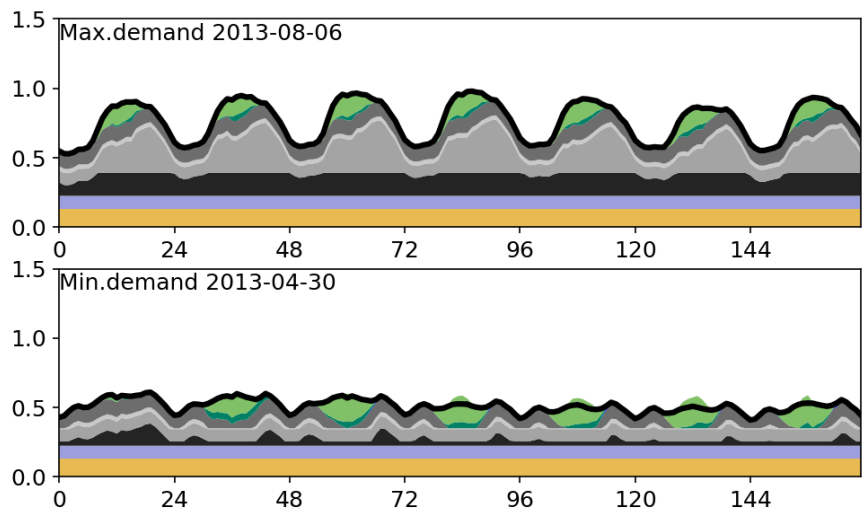
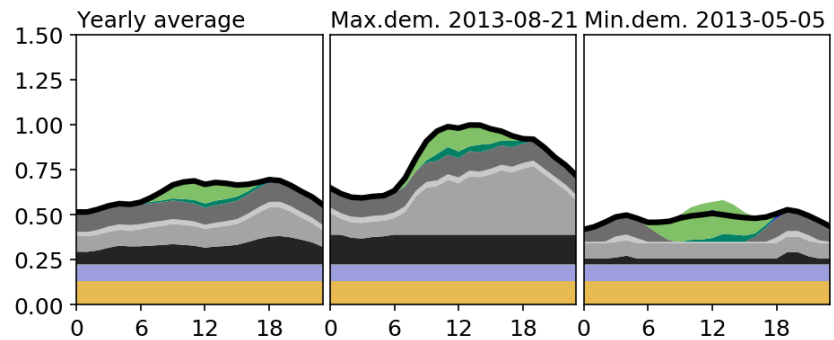
Output 10 CO₂ 制約 300g, 効率 65%, 設備費 2400\$/kW, 寿命 20 年

300 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率：65%

SOFC 設備費, 寿命：2400\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.174
	LNG	0.456
	石油	0.000
	高効率LNG	0.033
	SOFC	0.114
	風力	0.048
	太陽光	0.289
	蓄電池入出力	0.015
貯蔵	0.022	
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	17.8%
	LNG	17.8%
	石油	0.0%
	高効率LNG	4.5%
	SOFC	16.9%
	風力+太陽光	7.1%
	蓄電池	0.0%
余剰	蓄電池充電	0.4%
	出力抑制	0.3%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	41.5
	LNG	46.5
	石油	0.0
	高効率LNG	3.8
	SOFC	27.4
	風力	12.6
	太陽光	34.7
	蓄電池入出力	0.8
貯蔵	0.5	
燃料費	原子力	19.5
	石炭	28.5
	LNG	93.1
	石油	0.0
	高効率LNG	19.1
	SOFC	61.8
	費用計, \$/y	485.0
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.668
	LNG	0.257
	石油	0.000
	高効率LNG	0.905
	SOFC	0.970
蓄電池入出力	0.004	
排出量, tCO ₂ /y	1.64	
MAC, \$/tCO ₂	106.7	
電力単価, ¥/kWh	8.88	



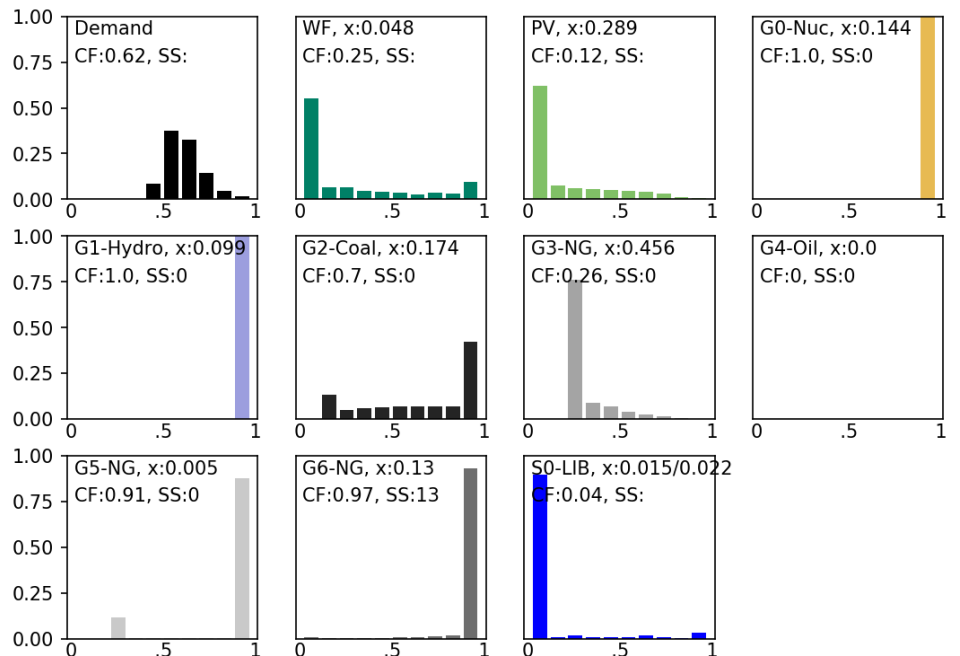
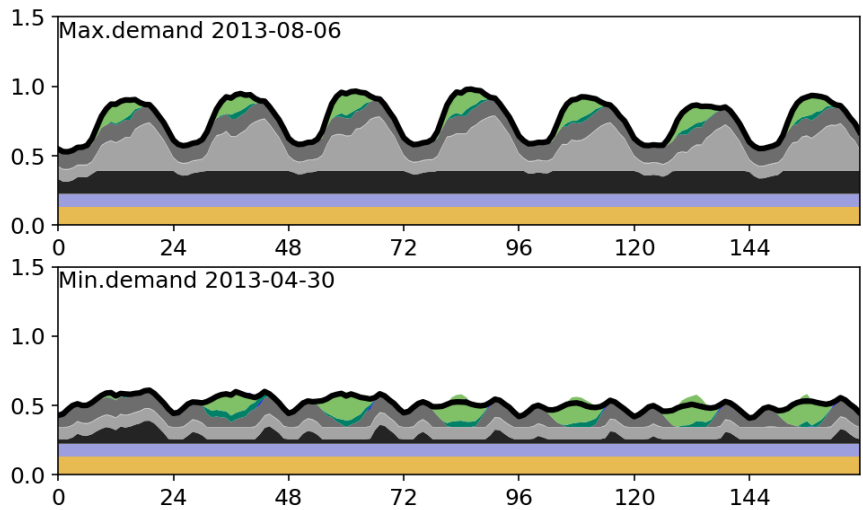
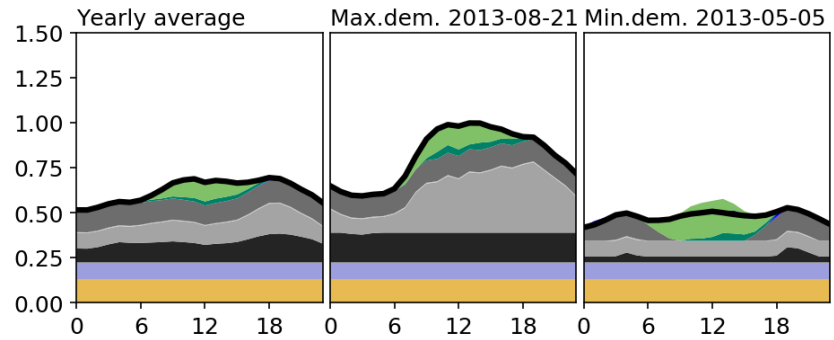
Output 11 CO₂ 制約 300g, 効率 70%, 設備費 2900\$/kW, 寿命 20 年

300 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率: 70%

SOFC 設備費, 寿命: 2900\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.174
	LNG	0.456
	石油	0.000
	高効率LNG	0.005
	SOFC	0.130
	風力	0.048
	太陽光	0.289
	蓄電池入出力	0.015
	貯蔵	0.022
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	18.6%
	LNG	18.4%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.7%
	SOFC	19.2%
	風力+太陽光	7.0%
	蓄電池	0.1%
余剰	蓄電池充電	1.2%
	出力抑制	0.2%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	41.5
	LNG	46.5
	石油	0.0
	高効率LNG	0.6
	SOFC	37.9
	風力	12.6
	太陽光	34.7
	蓄電池入出力	0.8
貯蔵	0.5	
燃料費	原子力	19.5
	石炭	29.9
	LNG	95.9
	石油	0.0
	高効率LNG	3.0
	SOFC	65.5
費用計, \$/y	484.2	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.700
	LNG	0.265
	石油	0.000
	高効率LNG	0.906
	SOFC	0.968
	蓄電池入出力	0.011
排出量, tCO ₂ /y	1.64	
MAC, \$/tCO ₂	104.6	
電力単価, ¥/kWh	8.87	



2.3.5 2040年想定(185gCO₂/kWh 制約)

2040年頃を想定し、さらなるCO₂削減が要求される環境において、SOFCの要求仕様(効率、コスト、寿命、強靭性)がどのように変化するかについての分析を実施した。2040年のCO₂制約として185gCO₂/kWhを採用し(Fig. 11)、発電効率50%~65%における最適設備設置量を Fig. 21に示す。この最適化においてSOFCの年間設備費以外のパラメータは一定である。なお、185gCO₂/kWh制約では全てのケースで石炭火力の負荷率は20%(最低稼働として設定した値)に張り付く結果となったため、石炭火力の稼働は0%に固定し、石炭火力の年間設備費は総費用に計上する設定とした³。2030年想定との比較で、競争力を持つ限界コスト以下の領域でプロットの傾きが緩やかとなっている。2030年想定の場合、SOFCは高効率LNG火力と主な競合関係にあったが、2040年想定では、SOFC、高効率LNG火力、太陽光、風力、蓄電池の競合関係が現れる。これらの機器の設置量の変化をSOFC年間設備費に対してFig. 22にプロットした。

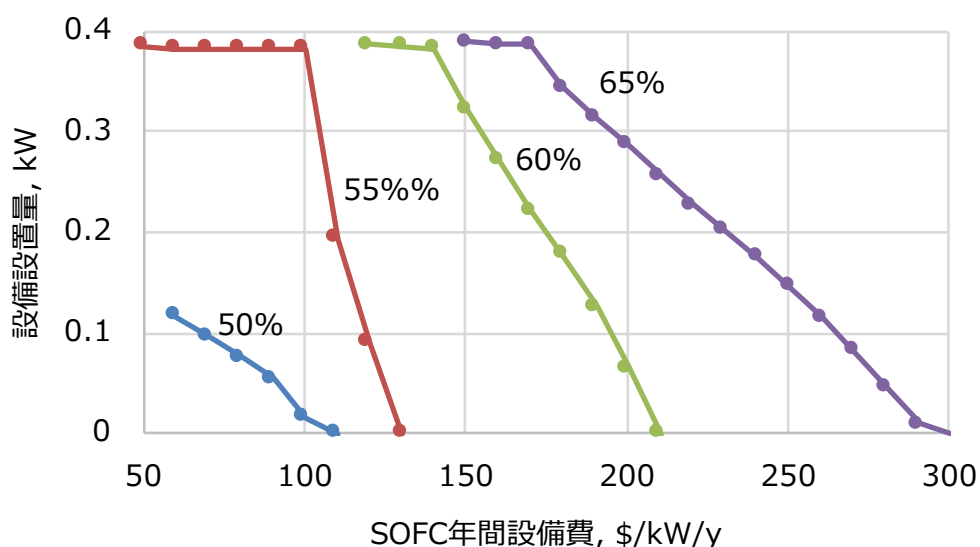


Fig. 21 SOFC 年間設備費と設置量との関係(185gCO₂/kWh)

³ 火力発電は起動停止を考慮せず最低負荷率を設定するモデルとなっているため、石炭火力を稼働させた場合、185gCO₂/kWh制約を満たすためにより多くの再エネが導入される形となり、総費用は増える。

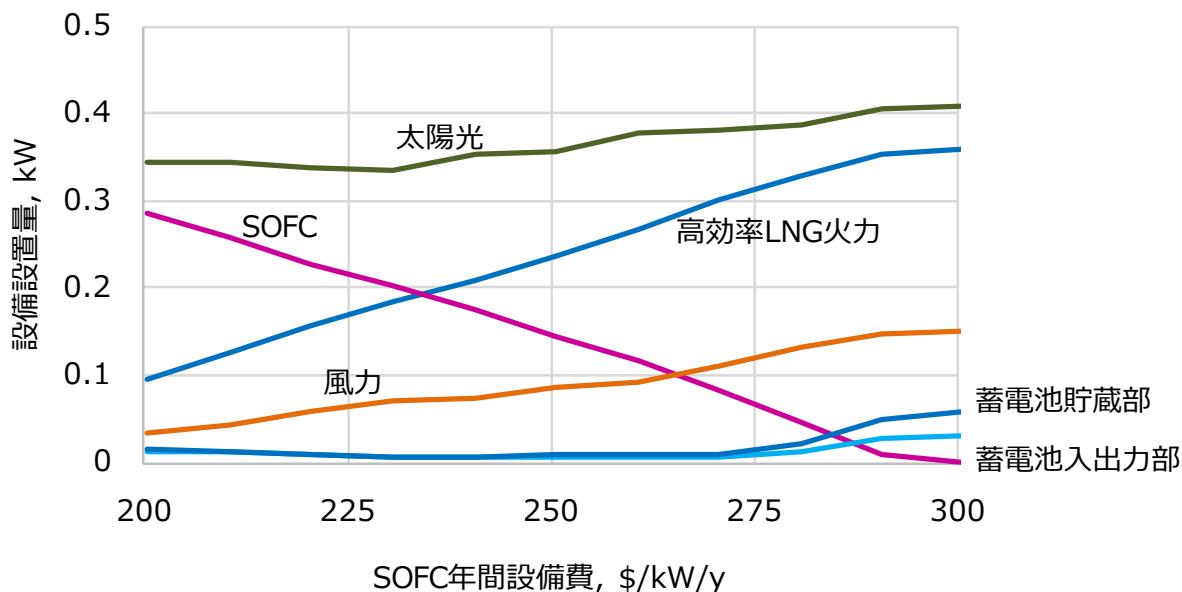


Fig. 22 SOFC の年間設備費と最適設備設置量(SOFC 発電効率:65%)

年間設備費 300\$/kW/y(寿命 20 年で 3000\$/kW)以下の領域で SOFC は選択され、この値は 350gCO₂/kWh 制約との比較で 50\$/kW/y 増加している。市場ポテンシャルは年間設備費 230\$/kW/y において 350g 制約の場合に比べ、約 4 倍を超える(日本全体で 3700 万 kW)。また、単なる高効率 LNG 火力発電との競合ではなく、SOFC の設備費に応じて、太陽光、風力、蓄電池の設置量も変化する。最適解の詳細を Table 16 に、240\$/kW/y の時の負荷率分布を Fig. 23 に示す。負荷率分布では既設の LNG 火力が 24%、新設の高効率 LNG 火力においても 56%と低く、SOFC が 92%となっている。SOFC の年間起動停止回数は 32 回と 350gCO₂/kWh に比べ増加する。

Table 16 185gCO₂/kWh 制約, SOFC 発電効率 65%における最適解

排出原単位, gCO ₂ /kWh		185				
SOFC発電効率		65%				
SOFC設備費, \$/kW		3000	2900	2800	2400	2000
設備設置量	原子力	0.144	0.144	0.144	0.144	0.144
	水力他	0.099	0.099	0.099	0.099	0.099
	石炭	0.133	0.133	0.133	0.133	0.133
	LNG	0.348	0.348	0.348	0.348	0.348
	石油	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
	高効率LNG	0.360	0.354	0.330	0.209	0.096
	SOFC	0.000	0.009	0.047	0.176	0.287
	風力	0.151	0.147	0.131	0.073	0.034
	太陽光	0.409	0.406	0.387	0.354	0.344
	蓄電池入出力 貯蔵	0.030 0.057	0.027 0.051	0.013 0.022	0.007 0.007	0.013 0.014
供給比率	原子力	21.0%	21.0%	21.0%	21.0%	21.0%
	水力他	15.0%	15.0%	15.0%	15.0%	15.0%
	石炭	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
	LNG	12.7%	12.6%	12.4%	12.5%	12.8%
	石油	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
	高効率LNG	38.6%	37.6%	33.3%	17.7%	6.6%
	SOFC	0.0%	1.3%	6.6%	24.6%	37.0%
	風力+太陽光	12.6%	12.4%	11.6%	9.2%	7.5%
	蓄電池	0.1%	0.1%	0.0%	0.0%	0.1%
余剰	蓄電池充電	1.0%	0.9%	0.4%	0.2%	0.8%
	出力抑制	4.4%	4.1%	3.2%	0.8%	0.1%
設備費	原子力	52.2	52.2	52.2	52.2	52.2
	水力他	43.2	43.2	43.2	43.2	43.2
	石炭	31.6	31.6	31.6	31.6	31.6
	LNG	35.5	35.5	35.5	35.5	35.5
	石油	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
	高効率LNG	42.1	41.4	38.6	24.5	11.3
	SOFC	0.0	2.6	13.1	42.3	57.5
	風力	40.0	38.6	34.5	19.3	8.9
	太陽光	49.1	48.8	46.4	42.6	41.3
	蓄電池入出力 貯蔵	1.6 1.3	1.4 1.2	0.7 0.5	0.4 0.2	0.7 0.3
燃料費	原子力	19.5	19.5	19.5	19.5	19.5
	石炭	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
	LNG	66.3	66.0	64.6	65.3	66.8
	石油	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
	高効率LNG	164.3	160.0	141.7	75.2	28.2
	SOFC	0.0	4.7	24.4	90.2	135.7
費用計, \$/y	546.6	546.6	546.4	541.8	532.6	
負荷率	原子力	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
	水力他	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
	石炭	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
	LNG	0.240	0.239	0.234	0.236	0.242
	石油	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
	高効率LNG	0.705	0.697	0.662	0.555	0.451
	SOFC	0.000	0.934	0.935	0.918	0.847
	蓄電池入出力	0.006	0.005	0.002	0.001	0.012
排出量, tCO ₂ /y	1.01	1.01	1.01	1.01	1.01	
MAC, \$/tCO ₂	208.0	206.1	192.3	152.8	146.0	
電力単価, ¥/kWh	10.01	10.01	10.01	9.92	9.75	

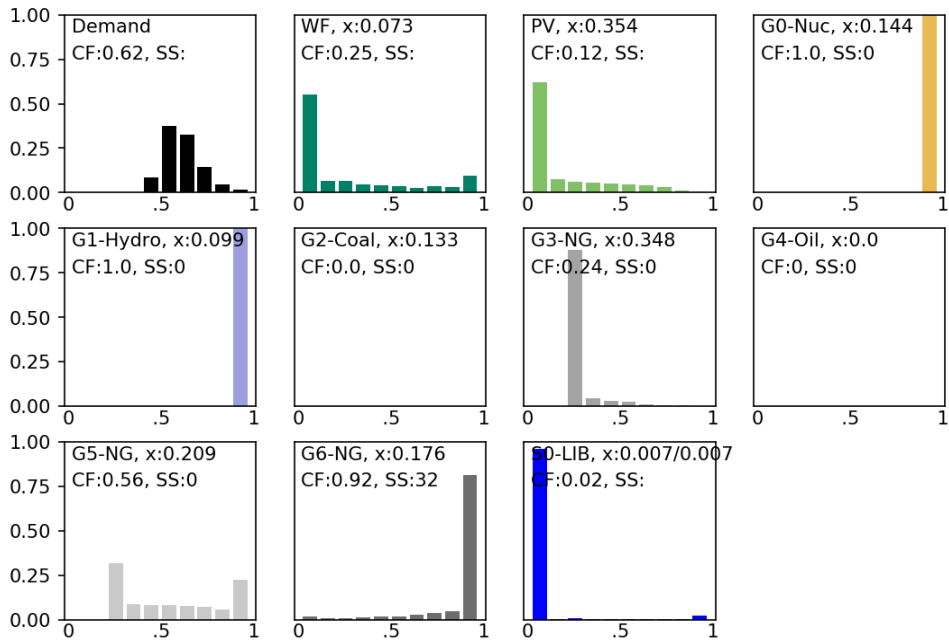


Fig. 23 185gCO₂/kWh, 240\$/kW/y, 効率 65%における負荷率分布

同様に 185gCO₂/kWh 制約において、SOFC の発電効率を 60%および 70%と設定した場合の最適設備設置量を Fig. 24, Fig. 25 に示す。効率 60%では年間設備費 210\$/kW/y, 効率 70%では 370\$/kW/y で SOFC が選択されその値は 350gCO₂/kWh 制約に比べ、それぞれ 40, 70 \$/kW/y 増加している。

発電効率 55, 60, 65%における代表的な最適化出力を Output 12~Output 14 に示す。

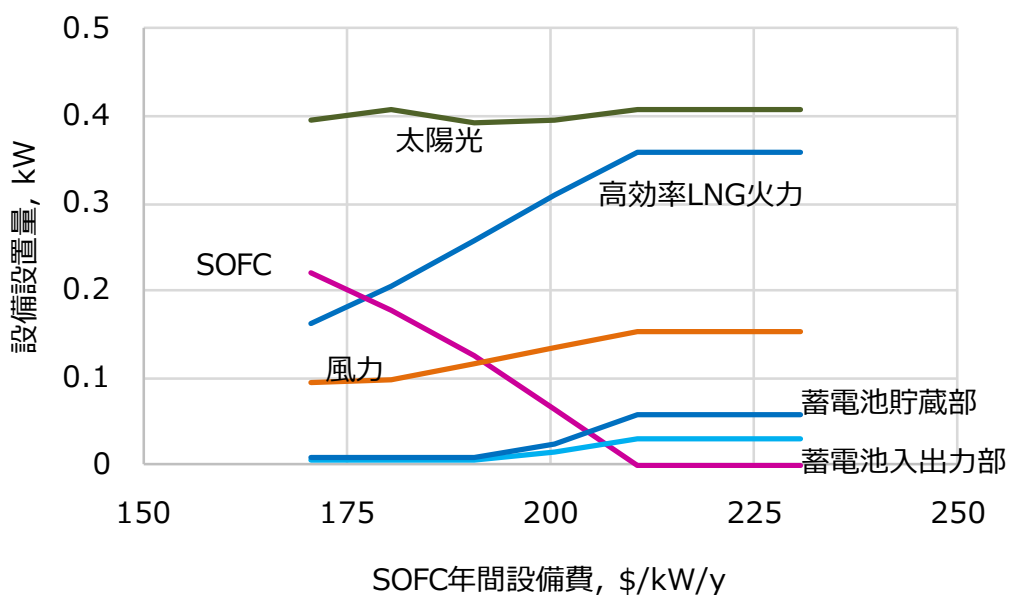


Fig. 24 SOFC の年間設備費と最適設備設置量(SOFC 発電効率:60%)

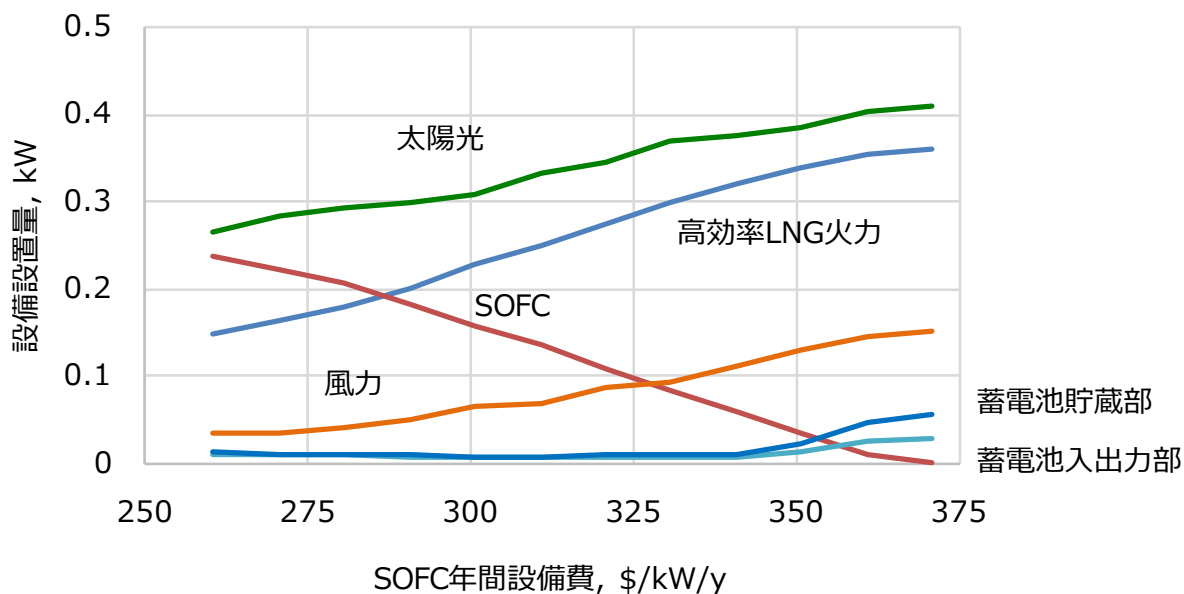


Fig. 25 SOFC の年間設備費と最適設備設置量(SOFC 発電効率:70%)

Fig. 26 は SOFC 競争力を持つための発電効率とコスト(限界コスト)との関係をプロットしたものである。発電効率の価値は 2030 年想定に比べ上昇し、発電効率 5%の上昇が設備コスト 860\$/kWh 程度の価値に相当する。Table 17 は Fig. 26 の各点における導入ポテンシャル、起動停止回数、年間稼働率を示す。発電効率 55%と 60%では起動停止回数および稼働率が大きく変化している。Fig. 27 は発電効率 55%と 60%での負荷率分布を示したコンター図である。2030 年想定と同様に強靱性ニーズとしての起動停止回数および負荷率分布に着目すると、発電効率として境界が存在し、境界での変化はより激しい。

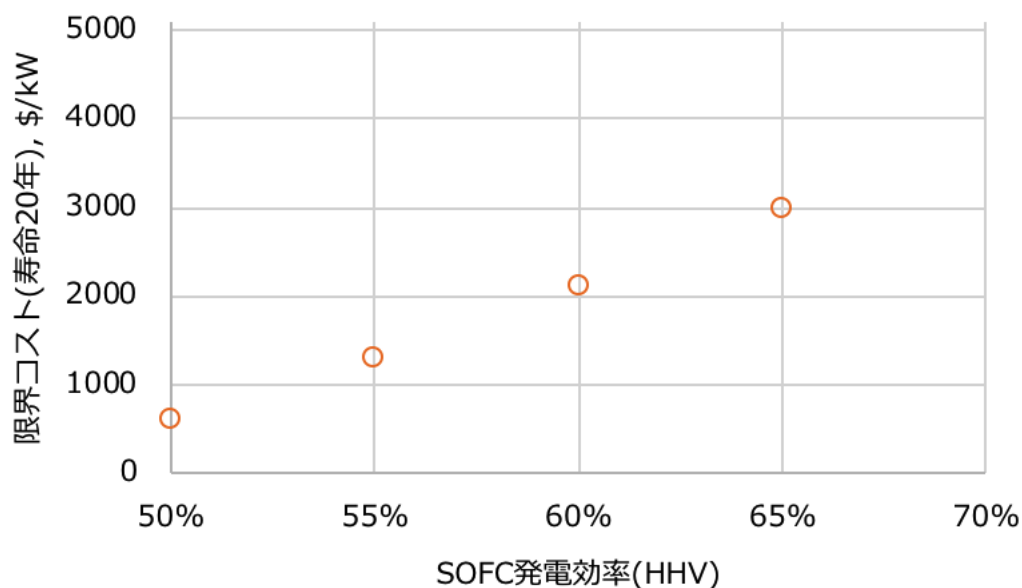


Fig. 26 2040 年想定における競争力を持つための SOFC の設備コストと発電効率との関係

Table 17 2040 年頃を想定した SOFC の仕様と市場ポテンシャル(185gCO₂/kWh 制約)

競合技術：高効率 LNG 火力，分散電源(太陽光，風力，蓄電池)

発電効率 HHV	設備 寿命 年	限界 コスト \$/kW	設備 コスト \$/kW	導入ポテン シャル 万kW	市場ポテン シャル 兆円	起動停止 回数 回/年	年間 稼働率
15	948	775	0.77				
20	1100	900	0.89				
55%	10	872	805	1653	1.33	506	28.3%
	15	1120	1034		1.71		
	20	1300	1200		1.98		
60%	10	1408	1341	1182	1.59	109	92.6%
	15	1809	1723		2.04		
	20	2100	2000		2.36		
65%	10	2011	1810	1515	2.74	78	93.6%
	15	2585	2326		3.52		
	20	3000	2700		4.09		

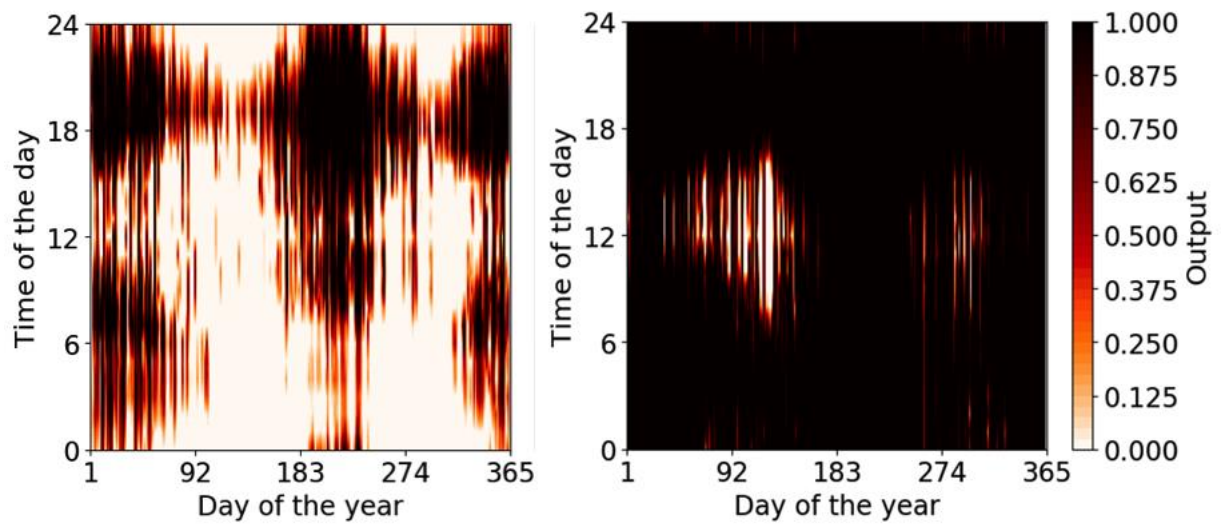


Fig. 27 負荷率分布(左:55%, 右:60%)

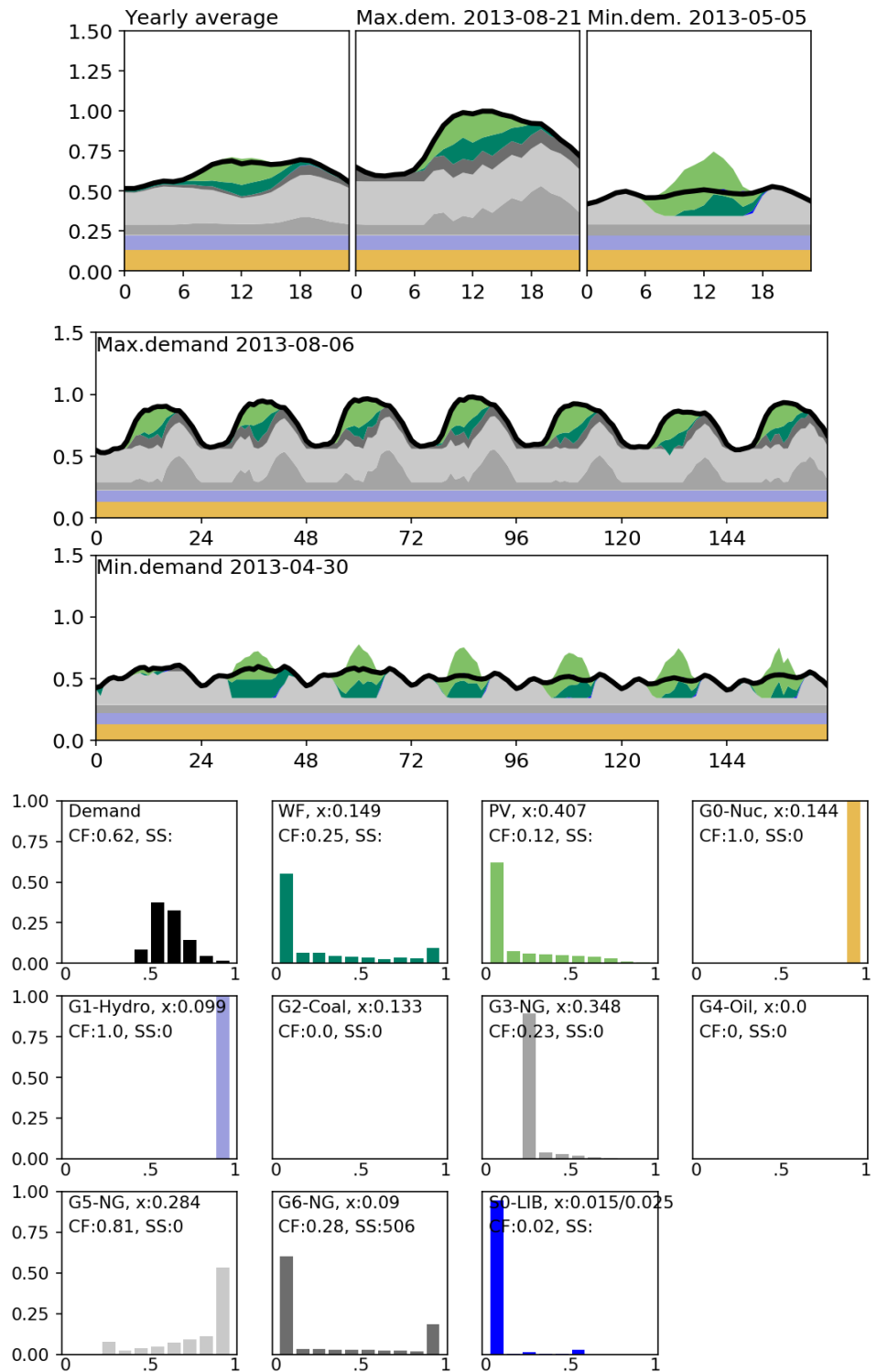
Output 12 CO₂ 制約 185g, 効率 55%, 設備費 1200\$/kW, 寿命 20 年

185 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率：55%

SOFC 設備費, 寿命：1200\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.133
	LNG	0.348
	石油	0.000
	高効率LNG	0.284
	SOFC	0.090
	風力	0.149
	太陽光	0.407
	蓄電池入出力 貯蔵	0.015 0.025
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	0.0%
	LNG	12.3%
	石油	0.0%
	高効率LNG	35.1%
	SOFC	3.9%
	風力+太陽光	12.6%
	蓄電池	0.0%
	余剰	蓄電池充電
出力抑制		3.7%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	31.6
	LNG	35.5
	石油	0.0
	高効率LNG	33.2
	SOFC	10.9
	風力	39.4
	太陽光	48.8
	蓄電池入出力 貯蔵	0.8 0.6
燃料費	原子力	19.5
	石炭	0.0
	LNG	64.4
	石油	0.0
	高効率LNG	149.4
	SOFC	16.9
費用計, \$/y	546.3	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.000
	LNG	0.233
	石油	0.000
	高効率LNG	0.811
	SOFC	0.283
蓄電池入出力	0.002	
排出量, tCO ₂ /y	1.01	
MAC, \$/tCO ₂	197.5	
電力単価, ¥/kWh	10.00	



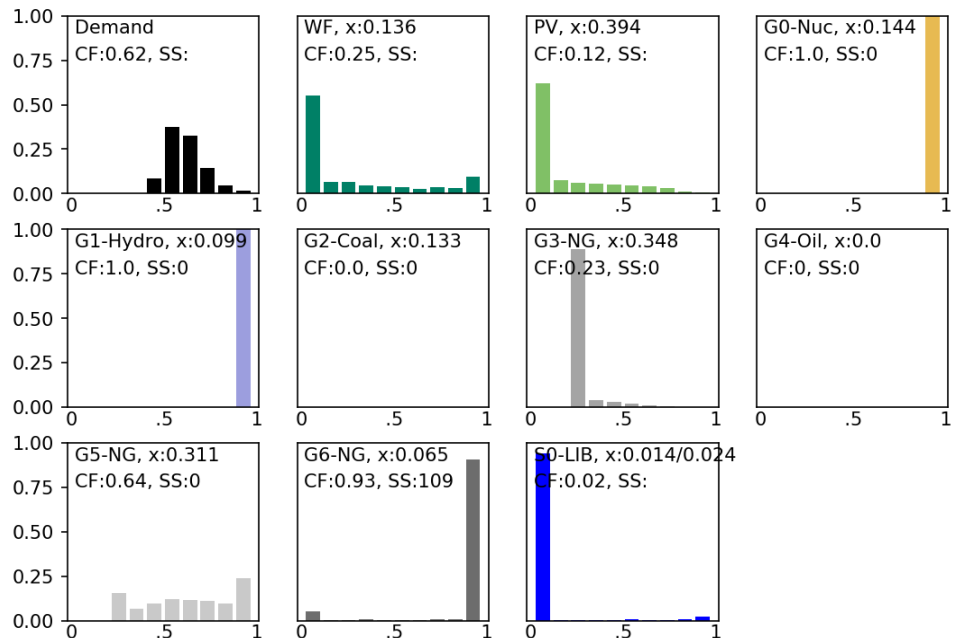
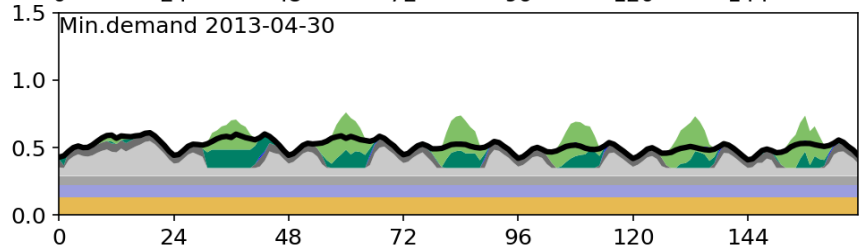
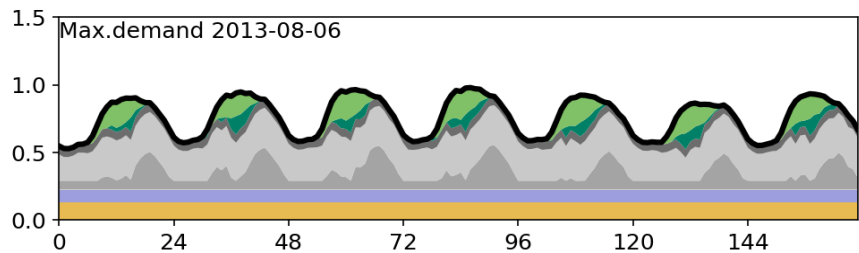
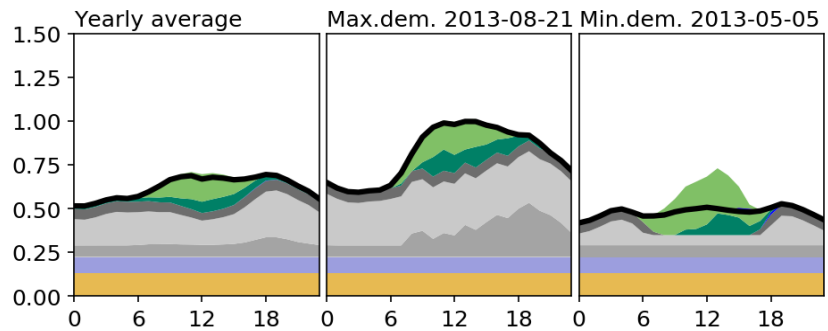
Output 13 CO₂ 制約 185g, 効率 60%, 設備費 2000\$/kW, 寿命 20 年

185 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率: 60%

SOFC 設備費, 寿命: 2000\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.133
	LNG	0.348
	石油	0.000
	高効率LNG	0.311
	SOFC	0.065
	風力	0.136
	太陽光	0.394
	蓄電池入出力 貯蔵	0.014 0.024
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	0.0%
	LNG	12.4%
	石油	0.0%
	高効率LNG	30.5%
	SOFC	9.1%
	風力+太陽光	11.9%
余剰	蓄電池充電	0.4%
	出力抑制	3.3%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	31.6
	LNG	35.5
	石油	0.0
	高効率LNG	36.3
	SOFC	12.9
	風力	35.9
	太陽光	47.3
	蓄電池入出力 貯蔵	0.8 0.6
燃料費	原子力	19.5
	石炭	0.0
	LNG	64.6
	石油	0.0
	高効率LNG	129.9
	SOFC	36.2
費用計, \$/y	546.4	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.000
	LNG	0.234
	石油	0.000
	高効率LNG	0.645
	SOFC	0.926
蓄電池入出力	0.003	
排出量, tCO ₂ /y	1.01	
MAC, \$/tCO ₂	192.5	
電力単価, ¥/kWh	10.01	



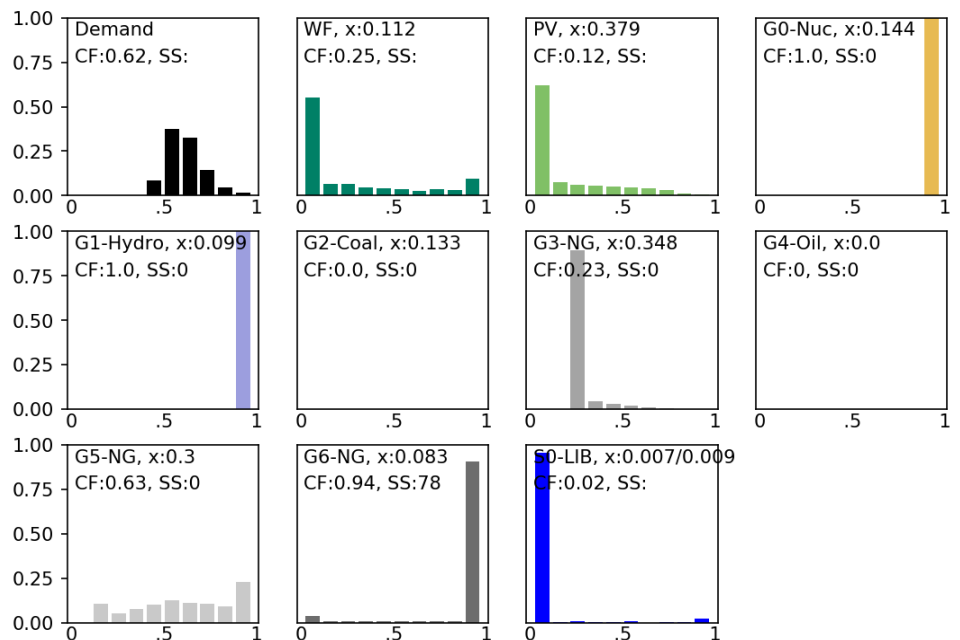
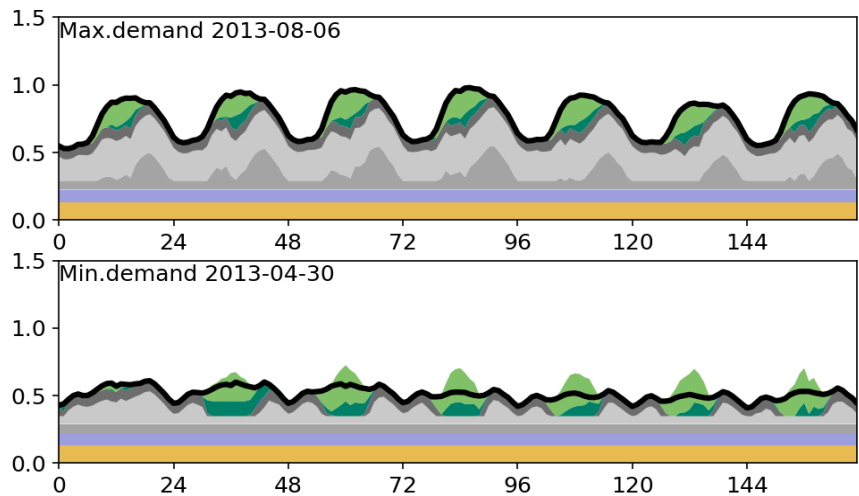
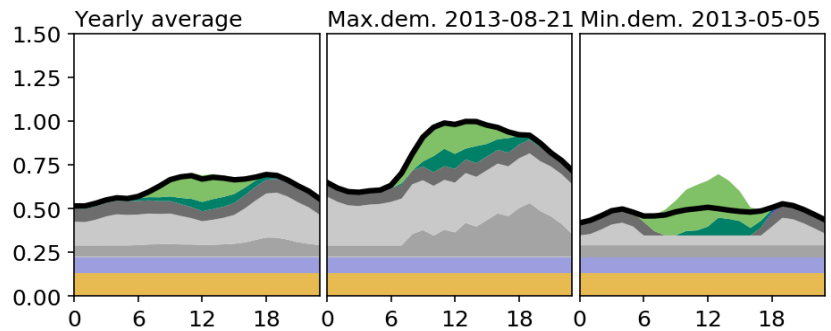
Output 14 CO₂ 制約 185g, 効率 65%, 設備 2700\$/kW, 寿命 20 年

185 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率: 65%

SOFC 設備費, 寿命: 2700\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.133
	LNG	0.348
	石油	0.000
	高効率LNG	0.300
	SOFC	0.083
	風力	0.112
	太陽光	0.379
	蓄電池入出力 貯蔵	0.007 0.009
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	0.0%
	LNG	12.3%
	石油	0.0%
	高効率LNG	29.0%
	SOFC	11.8%
	風力+太陽光	10.9%
	蓄電池	0.0%
	余剰	蓄電池充電
出力抑制		2.4%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	31.6
	LNG	35.5
	石油	0.0
	高効率LNG	35.1
	SOFC	22.4
	風力	29.5
	太陽光	45.6
	蓄電池入出力 貯蔵	0.4 0.2
燃料費	原子力	19.5
	石炭	0.0
	LNG	64.3
	石油	0.0
	高効率LNG	123.1
	SOFC	43.2
費用計, \$/y	545.7	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.000
	LNG	0.233
	石油	0.000
	高効率LNG	0.633
	SOFC	0.936
蓄電池入出力	0.001	
排出量, tCO ₂ /y	1.01	
MAC, \$/tCO ₂	178.6	
電力単価, ¥/kWh	9.99	



2.3.6 分散電源間の競争力

CO₂削減の過程で火力発電設備の稼働率低下は避けられない。加えて、CO₂削減のタイムスケジュールが不確定な場合、数十万 kW 規模となる火力発電設備新設の投資リスクは高まる。また、実在の系統において規模や制約から大型の発電設備の設置が困難となるケースも予想される。一方で風力、太陽光、蓄電池ならびに SOFC は比較的小規模単位での設備設置が可能であり、設備単価や効率も規模にあまり依存しないという特徴を持つ。このような環境を想定し、高効率 LNG 火力を除くエネルギーモデルを用い最適化を実施した。この最適化においては、分散電源である風力、太陽光、蓄電池が SOFC の主な競合技術となる。

(1) 2030 年想定

350 および 300gCO₂/kWh 制約における SOFC の設備費と設置量との関係をそれぞれ Fig. 28, Fig. 29 に示す。350gCO₂/kWh 制約では発電効率 60% の場合 360\$/kW/y (3600\$/kW, 寿命 20 年) 以下で SOFC は風力、太陽光、蓄電池に対して競争力を持つ。Table 18 に破線の○で示した点のサマリーを示すが、SOFC 年間設備費の低下に伴い風力、SOFC と太陽光、蓄電池の設置量がトレードオフの競合関係となっている。高効率 LNG 火力が選択できない特殊環境においては、SOFC が競争力を持つための設備コストのハードルは大きく下がる。また、高効率 LNG 発電が選択できる場合との比較で、再エネ導入量が増加する(例えば Output 3 と Output 17)。このため、起動停止回数は増加し、稼働率は低下している。

Fig. 30 に SOFC が競争力を持つための設備コスト(限界コスト)と発電効率との関係を、Table 19 に導入ポテンシャル、起動停止回数、年間稼働率を示す。発電効率 50% と 55% の間で起動停止回数および負荷率が大きく変化する境界が存在する。

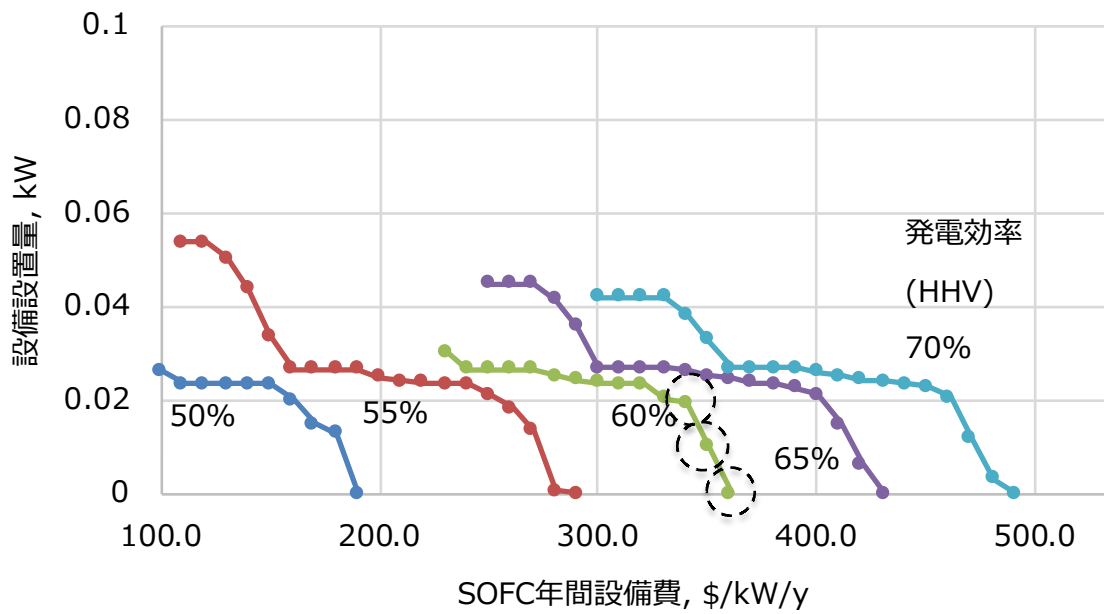


Fig. 28 分散電源における SOFC の競争力(350gCO₂/kWh)

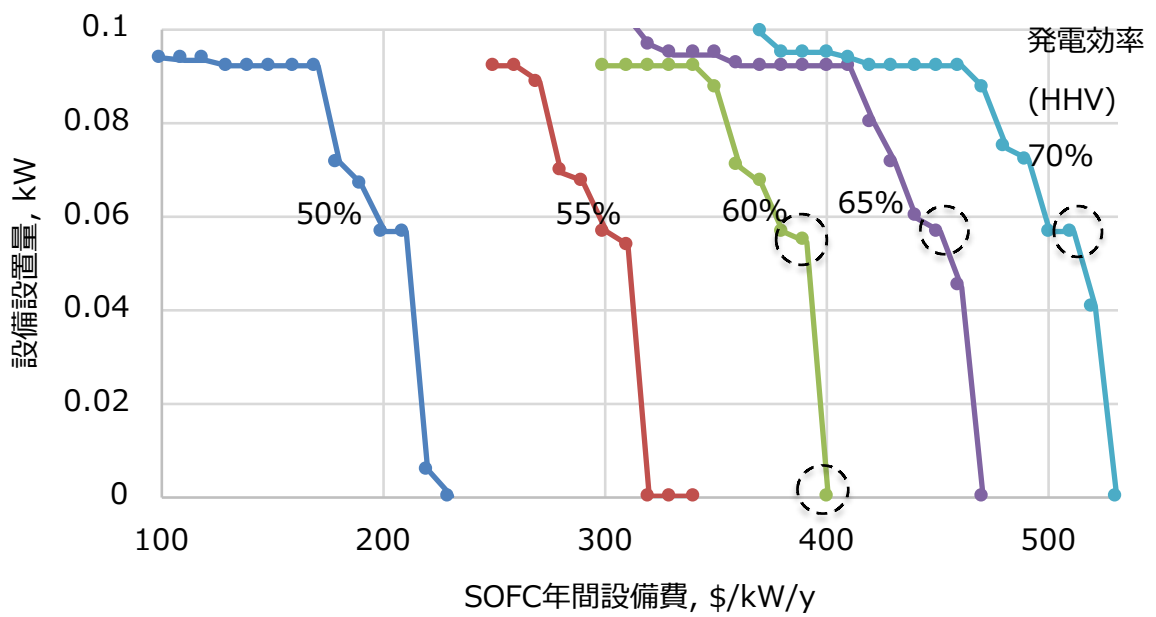


Fig. 29 分散電源における SOFC の競争力(300gCO₂/kWh)

Table 18 分散型電源としての検討

排出原単位, gCO ₂ /kWh		350			300			
SOFC発電効率		60%			60%		65%	70%
SOFC設備費, \$/kW		3600	3500	3400	4000	3900	4500	5100
設備設置量	原子力	0.144	0.144	0.144	0.144	0.144	0.144	0.144
	水力他	0.099	0.099	0.099	0.099	0.099	0.099	0.099
	石炭	0.192	0.192	0.192	0.174	0.174	0.174	0.174
	LNG	0.502	0.504	0.502	0.490	0.456	0.456	0.456
	石油	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
	高効率LNG	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
	SOFC	0.000	0.010	0.020	0.000	0.054	0.056	0.056
	風力	0.094	0.094	0.091	0.159	0.149	0.147	0.145
	太陽光	0.413	0.377	0.351	0.473	0.444	0.437	0.431
	蓄電池入出力 貯蔵	0.042 0.100	0.031 0.068	0.023 0.047	0.072 0.203	0.053 0.122	0.051 0.115	0.051 0.117
供給比率	原子力	21.0%	21.0%	21.0%	21.0%	21.0%	21.0%	21.0%
	水力他	15.0%	15.0%	15.0%	15.0%	15.0%	15.0%	15.0%
	石炭	26.3%	26.1%	25.9%	18.7%	19.7%	20.0%	20.2%
	LNG	26.9%	26.1%	25.4%	31.2%	23.3%	22.9%	22.8%
	石油	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
	高効率LNG	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
	SOFC	0.0%	1.5%	2.9%	0.0%	7.7%	8.0%	8.0%
	風力+太陽光	10.8%	10.2%	9.7%	13.7%	13.0%	12.8%	12.7%
	蓄電池	0.1%	0.1%	0.0%	0.3%	0.3%	0.3%	0.3%
余剰	蓄電池充電	1.0%	0.7%	0.5%	2.7%	2.4%	2.3%	2.4%
	出力抑制	2.2%	1.8%	1.5%	4.0%	3.4%	3.2%	3.1%
設備費	原子力	52.2	52.2	52.2	52.2	52.2	52.2	52.2
	水力他	43.2	43.2	43.2	43.2	43.2	43.2	43.2
	石炭	45.7	45.7	45.7	41.5	41.5	41.5	41.5
	LNG	51.3	51.4	51.3	50.0	46.5	46.5	46.5
	石油	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
	高効率LNG	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
	SOFC	0.0	3.6	6.7	0.0	21.3	25.4	28.8
	風力	24.7	24.7	24.1	42.0	39.4	38.7	38.2
	太陽光	49.6	45.3	42.1	56.7	53.3	52.5	51.8
	蓄電池入出力 貯蔵	2.2 2.3	1.6 1.6	1.2 1.1	3.8 4.7	2.8 2.8	2.7 2.7	2.7 2.7
燃料費	原子力	19.5	19.5	19.5	19.5	19.5	19.5	19.5
	石炭	42.2	41.9	41.6	30.1	31.5	32.0	32.4
	LNG	140.3	136.3	132.9	163.1	121.9	119.9	119.3
	石油	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
	高効率LNG	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
	SOFC	0.0	6.1	11.5	0.0	30.7	29.3	27.3
費用計, \$/y		473.2	473.1	473.0	506.8	506.5	506.0	506.1
負荷率	原子力	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
	水力他	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
	石炭	0.896	0.890	0.884	0.704	0.739	0.751	0.759
	LNG	0.351	0.340	0.332	0.418	0.336	0.331	0.329
	石油	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
	高効率LNG	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
	SOFC	0.000	0.971	0.973	0.000	0.930	0.932	0.935
蓄電池入出力	0.008	0.005	0.004	0.016	0.015	0.014	0.014	
排出量, tCO ₂ /y		1.91	1.91	1.91	1.64	1.64	1.64	1.64
MAC, \$/tCO ₂		109.6	106.5	102.9	136.7	136.7	136.7	136.7
電力単価, ¥/kWh		8.67	8.66	8.66	9.28	9.28	9.27	9.27

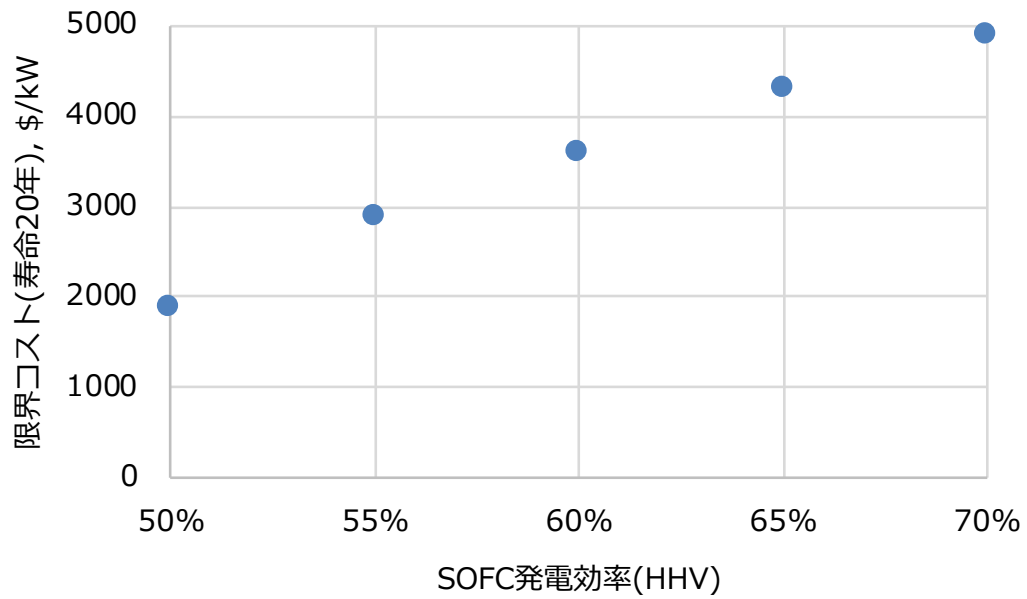


Fig. 30 2030年想定で分散電源に対して競争力を持つためのSOFCの設備コストと発電効率

Table 19 2030年頃を想定したSOFCの仕様と市場ポテンシャル(350gCO₂/kWh制約)
競合技術：分散電源(太陽光, 風力, 蓄電池)

発電効率 HHV	設備 寿命 年	限界 コスト \$/kW	設備 コスト \$/kW	導入ポテン シャル 万kW	市場ポテン シャル 兆円	起動停止 回数 回/年	年間 稼働率
50%	10	1274	1207	238	0.29	412	79.2%
	15	1637	1551		0.37		
	20	1900	1800		0.43		
55%	10	1944	1810	247	0.45	74	96.5%
	15	2499	2326		0.57		
	20	2900	2700		0.67		
60%	10	2414	2280	358	0.82	48	97.3%
	15	3102	2930		1.05		
	20	3600	3400		1.22		
65%	10	2883	2682	390	1.05	48	97.5%
	15	3705	3446		1.34		
	20	4300	4000		1.56		
70%	10	3285	3017	420	1.27	48	97.8%
	15	4222	3877		1.63		
	20	4900	4500		1.89		

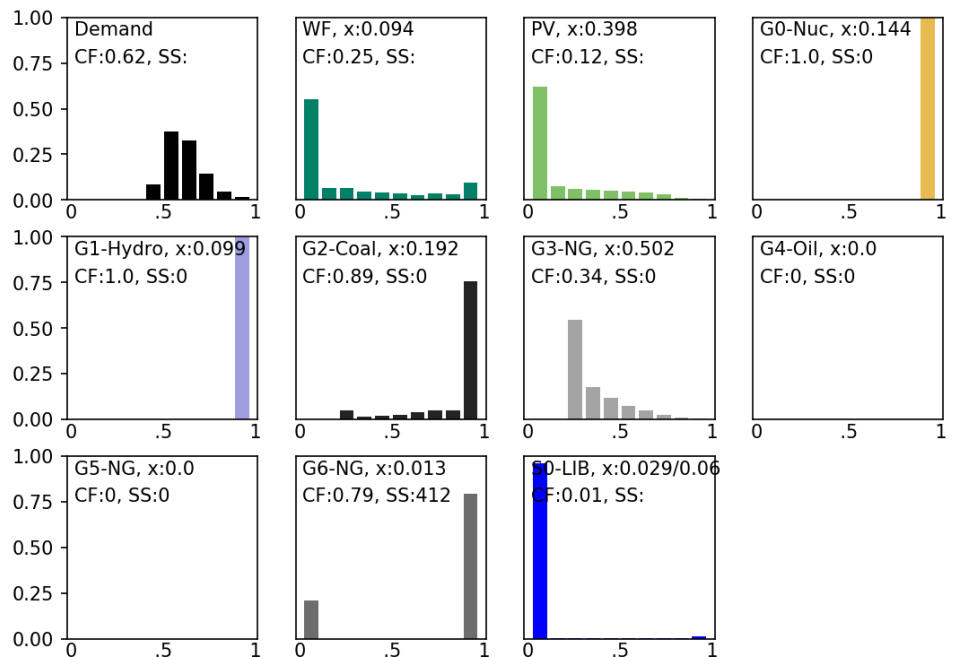
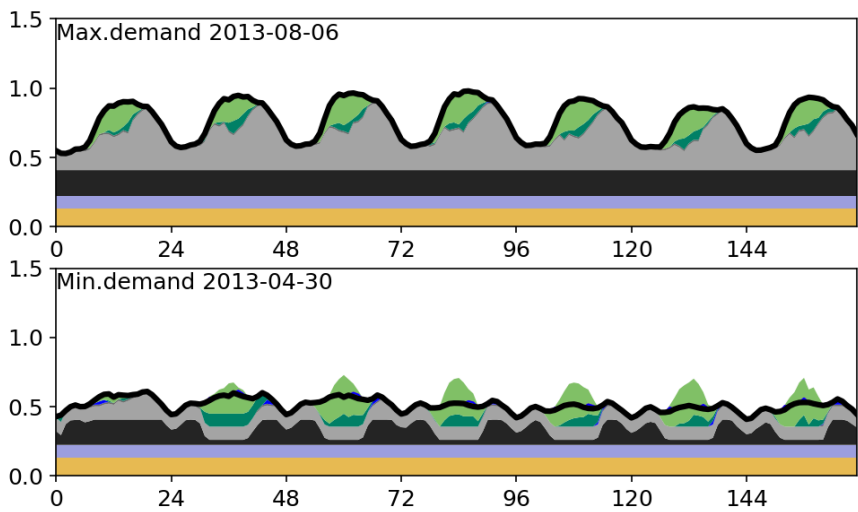
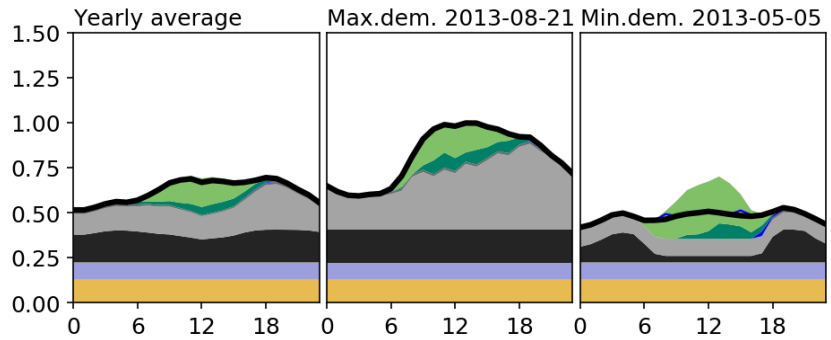
Output 15 分散, CO₂制約 350g, 効率 50%, 設備費 1800\$/kW, 寿命 20 年

350 gCO₂/kWh (分散)

SOFC 発電効率: 50%

SOFC 設備費, 寿命: 1800\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.192
	LNG	0.502
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.013
	風力	0.094
	太陽光	0.398
	蓄電池入出力 貯蔵	0.029 0.060
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	26.2%
	LNG	25.7%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	1.6%
	風力+太陽光	10.5%
	蓄電池	0.1%
	余剰	蓄電池充電
出力抑制		2.3%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	45.7
	LNG	51.3
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	2.3
	風力	24.7
	太陽光	47.8
	蓄電池入出力 貯蔵	1.5 1.4
燃料費	原子力	19.5
	石炭	42.0
	LNG	134.0
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	7.5
費用計, \$/y	473.1	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.893
	LNG	0.335
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.792
蓄電池入出力	0.005	
排出量, tCO ₂ /y	1.91	
MAC, \$/tCO ₂	110.9	
電力単価, ¥/kWh	8.66	



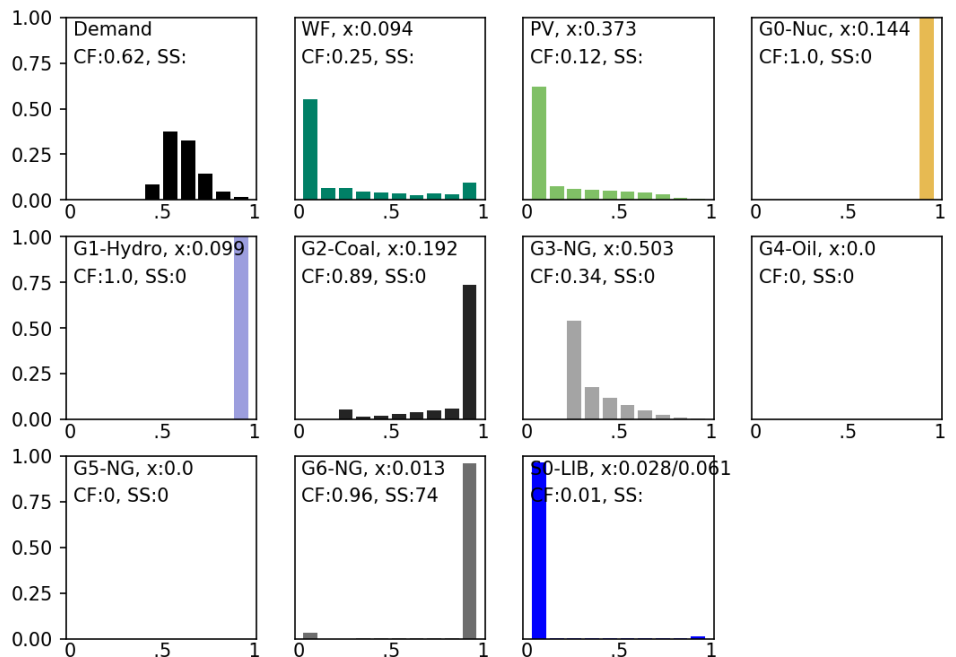
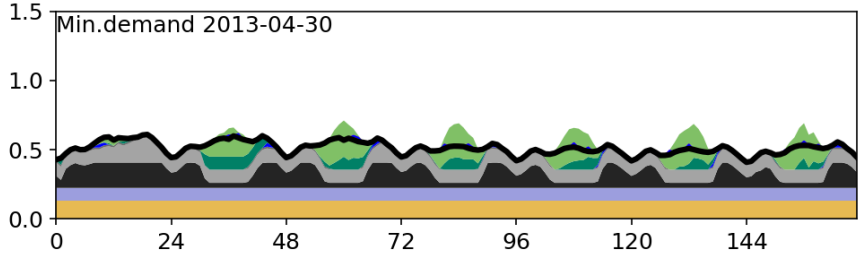
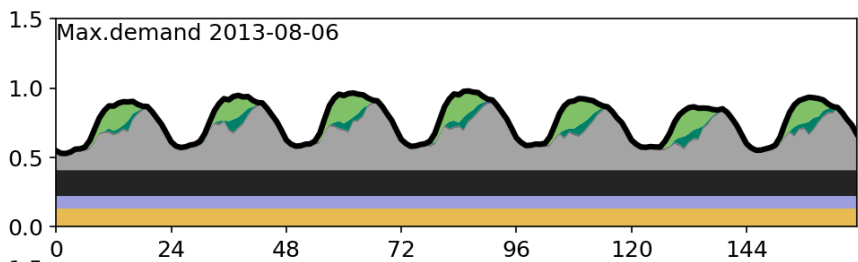
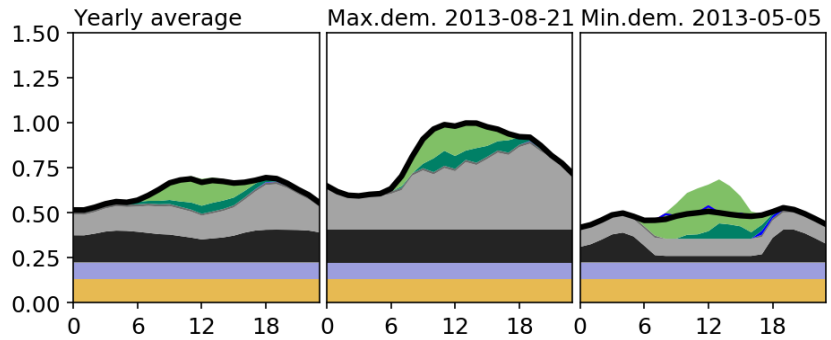
Output 16 分散, CO₂ 制約 350g, 効率 55%, 設備費 2700\$/kW, 寿命 20 年

350 gCO₂/kWh (分散)

SOFC 発電効率: 55%

SOFC 設備費, 寿命: 2700\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.192
	LNG	0.503
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.013
	風力	0.094
	太陽光	0.373
	蓄電池入出力 貯蔵	0.028 0.061
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	26.0%
	LNG	25.8%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	2.0%
	風力+太陽光	10.1%
	蓄電池	0.0%
	余剰	蓄電池充電
出力抑制		1.8%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	45.7
	LNG	51.3
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	3.7
	風力	24.7
	太陽光	44.7
	蓄電池入出力 貯蔵	1.5 1.4
燃料費	原子力	19.5
	石炭	41.7
	LNG	134.9
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	8.6
費用計, \$/y	473.1	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.887
	LNG	0.337
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.964
蓄電池入出力	0.004	
排出量, tCO ₂ /y	1.91	
MAC, \$/tCO ₂	105.7	
電力単価, ¥/kWh	8.66	



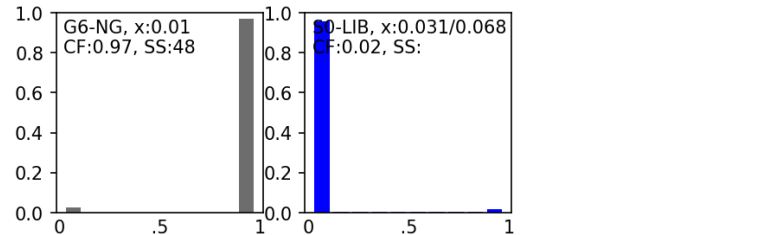
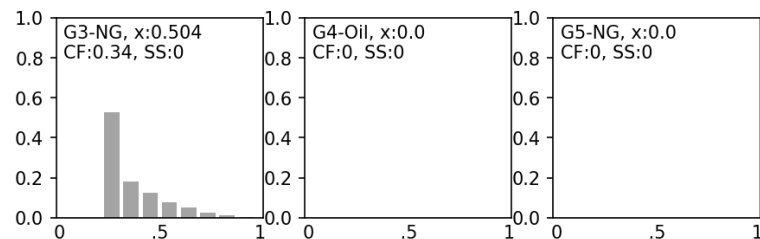
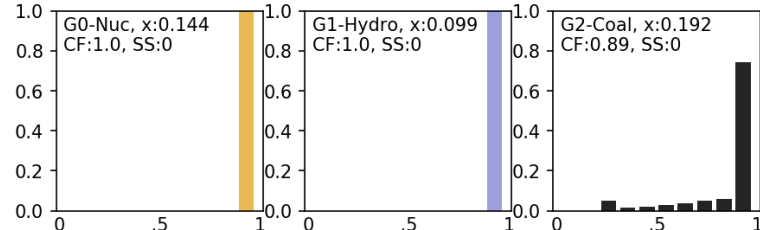
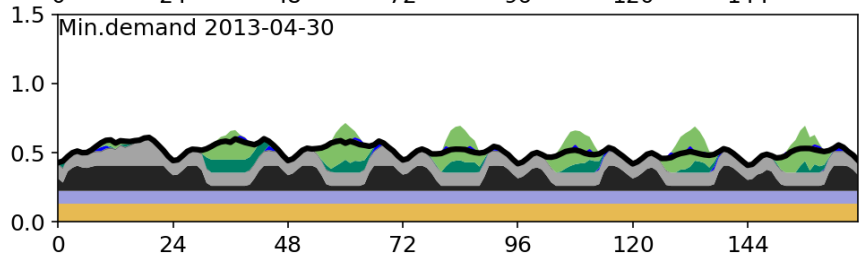
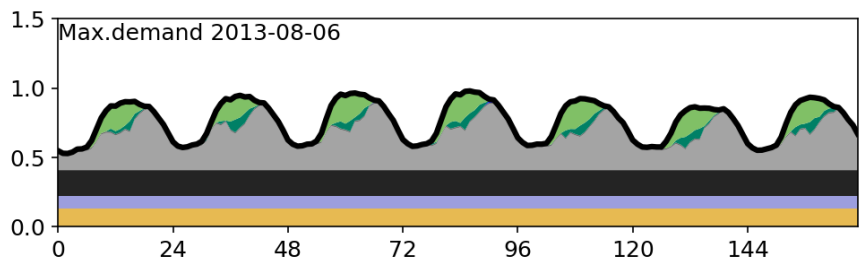
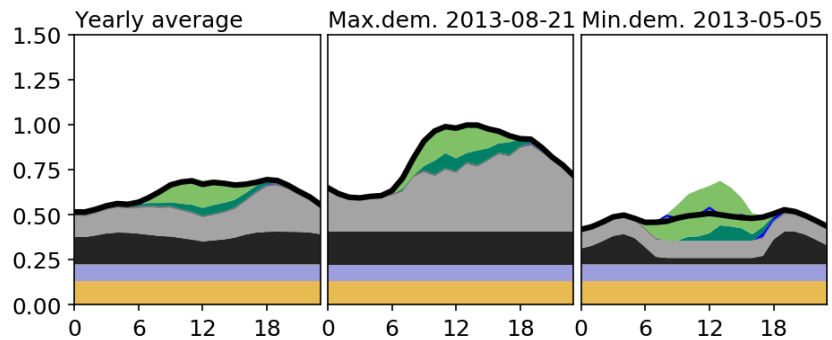
Output 17 分散, CO₂ 制約 350g, 効率 60%, 設備費 3500\$/kW, 寿命 20 年

350 gCO₂/kWh (分散)

SOFC 発電効率: 60%

SOFC 設備費, 寿命: 3500\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.192
	LNG	0.504
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.010
	風力	0.094
	太陽光	0.377
	蓄電池入出力 貯蔵	0.031 0.068
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	26.1%
	LNG	26.1%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	1.5%
	風力+太陽光	10.2%
余剰	蓄電池充電	0.7%
	出力抑制	1.8%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	45.7
	LNG	51.4
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	3.6
	風力	24.7
	太陽光	45.3
	蓄電池入出力 貯蔵	1.6 1.6
燃料費	原子力	19.5
	石炭	41.9
	LNG	136.3
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	6.1
費用計, \$/y	473.1	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.890
	LNG	0.340
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.971
蓄電池入出力	0.005	
排出量, tCO ₂ /y	1.91	
MAC, \$/tCO ₂	106.5	
電力単価, ¥/kWh	8.66	



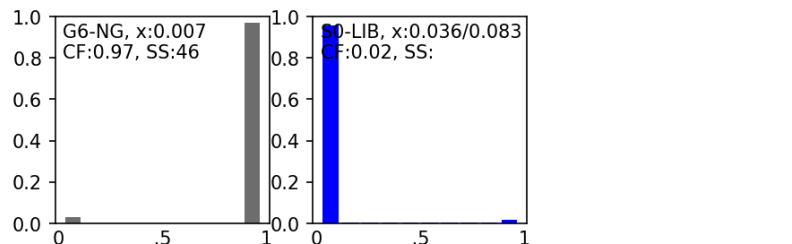
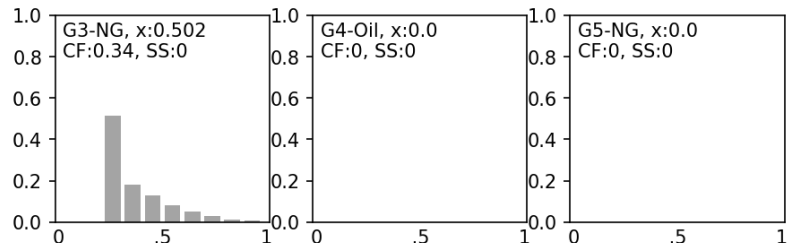
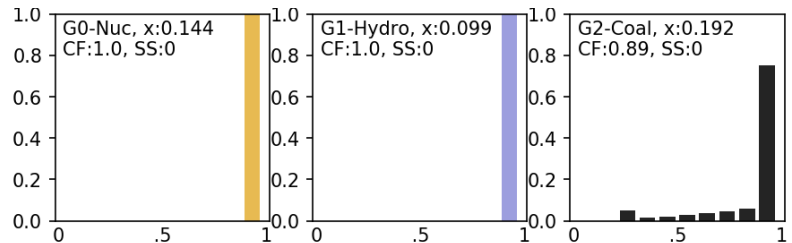
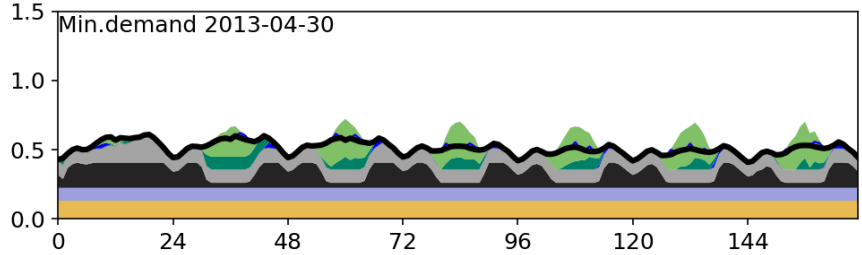
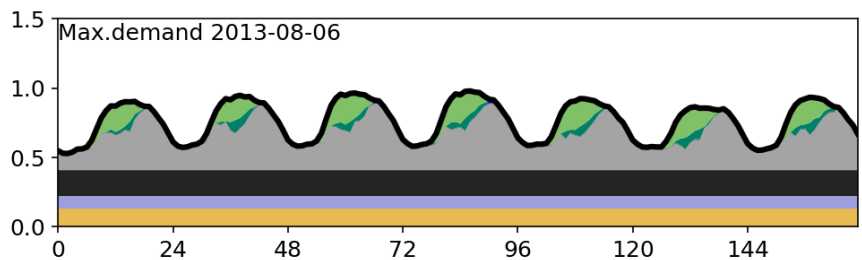
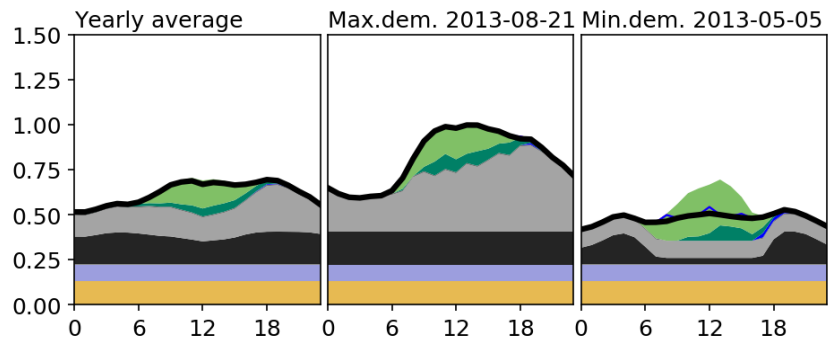
Output 18 分散, CO₂ 制約 350g, 効率 65%, 設備費 4200\$/kW, 寿命 20 年

350 gCO₂/kWh (分散)

SOFC 発電効率: 65%

SOFC 設備費, 寿命: 4200\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.192
	LNG	0.502
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.007
	風力	0.094
	太陽光	0.389
	蓄電池入出力 貯蔵	0.036 0.083
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	26.2%
	LNG	26.4%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	1.0%
	風力+太陽光	10.4%
余剰	蓄電池充電	0.8%
	出力抑制	1.9%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	45.7
	LNG	51.3
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	2.7
	風力	24.7
	太陽光	46.7
	蓄電池入出力 貯蔵	1.9 1.9
燃料費	原子力	19.5
	石炭	42.0
	LNG	137.8
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	3.5
費用計, \$/y	473.2	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.893
	LNG	0.345
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.971
蓄電池入出力	0.006	
排出量, tCO ₂ /y	1.91	
MAC, \$/tCO ₂	107.9	
電力単価, ¥/kWh	8.67	



Output 19 分散, CO₂ 制約 300g, 効率 50%, 設備費 2100\$/kW, 寿命 20 年

300 gCO₂/kWh (分散)

SOFC 発電効率: 50%

SOFC 設備費, 寿命: 2100\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.174
	LNG	0.456
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.056
	風力	0.159
	太陽光	0.446
	蓄電池入出力 貯蔵	0.051/0.112

供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	19.0%
	LNG	23.6%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	7.8%
	風力+太陽光	13.5%
蓄電池	0.2%	

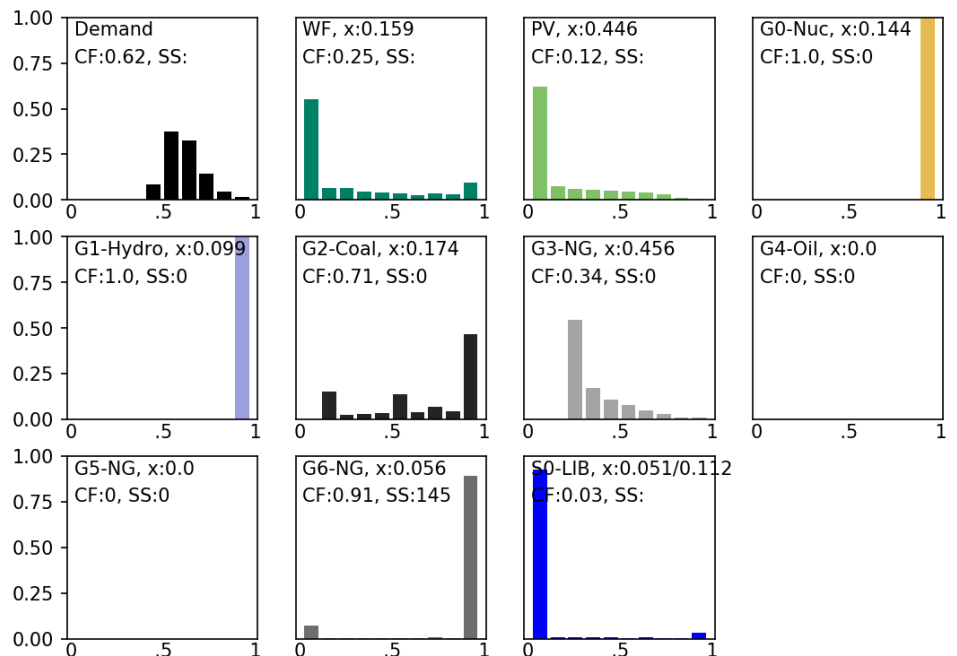
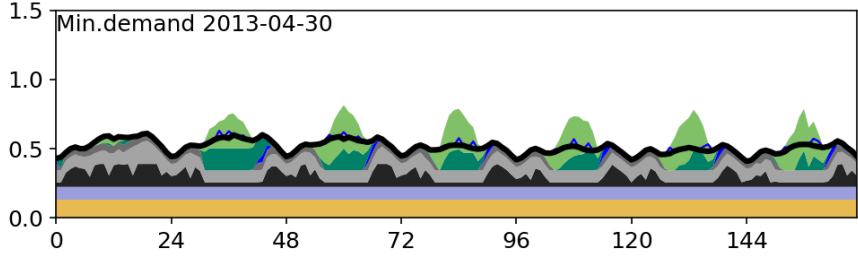
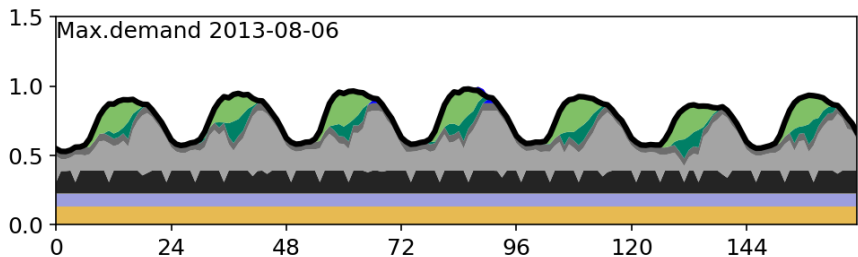
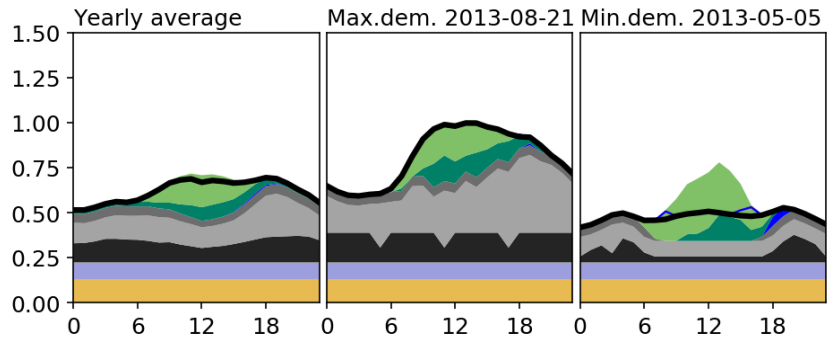
余剰	蓄電池充電	1.5%
	出力抑制	3.8%

設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	41.5
	LNG	46.5
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	11.9
	風力	41.9
	太陽光	53.5
	蓄電池入出力 貯蔵	2.7/2.6

燃料費	原子力	19.5
	石炭	30.4
	LNG	123.3
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	37.2
	費用計, \$/y	506.3

負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.713
	LNG	0.340
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.909
	蓄電池入出力	0.009

排出量, tCO ₂ /y	1.64
MAC, \$/tCO ₂	136.7
電力単価, ¥/kWh	9.27



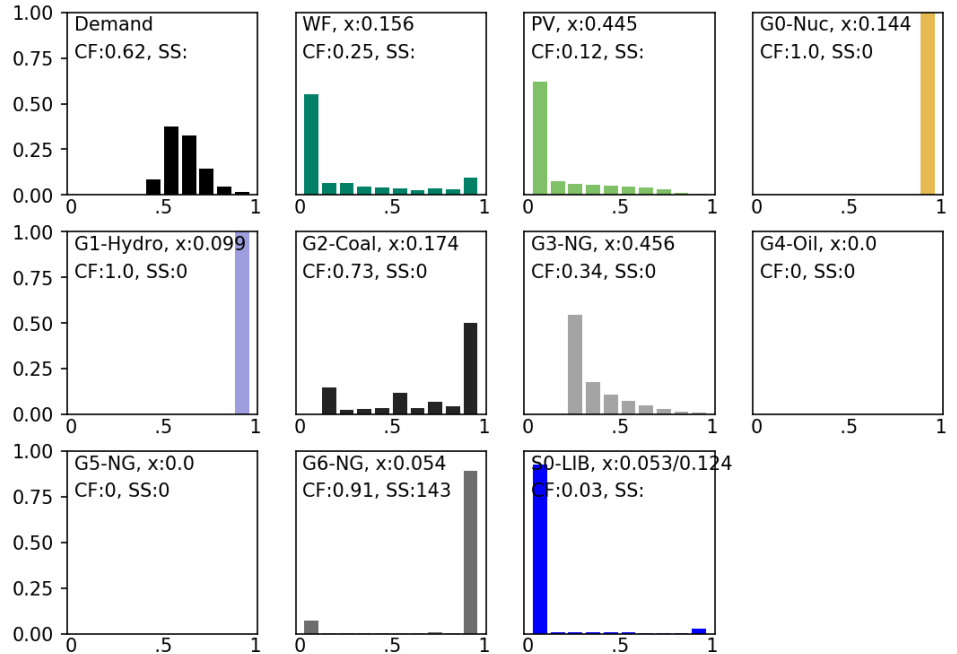
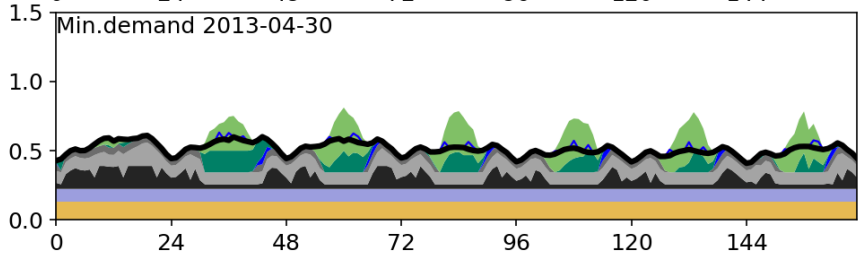
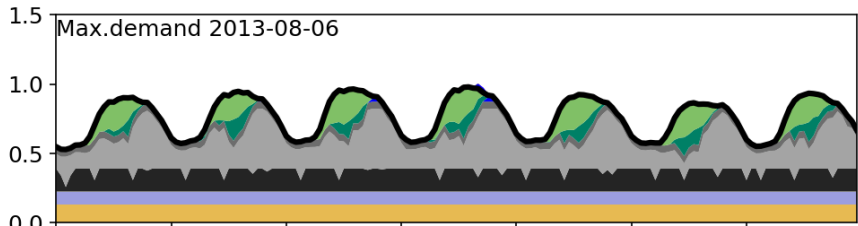
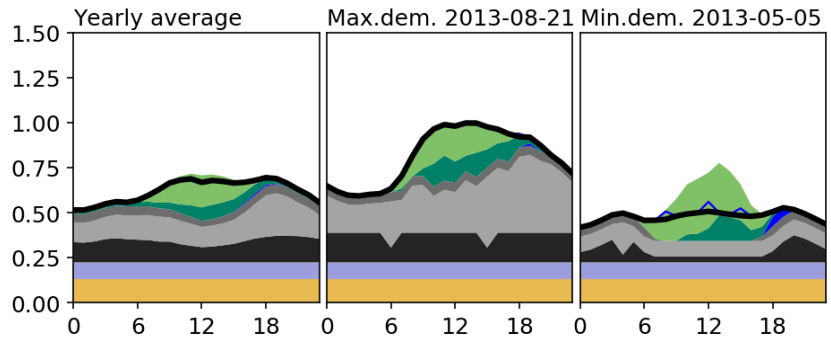
Output 20 分散, CO₂制約 300g, 効率 55%, 設備費 3100\$/kW, 寿命 20 年

300 gCO₂/kWh (分散)

SOFC 発電効率 : 55%

SOFC 設備費, 寿命 : 3100\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.174
	LNG	0.456
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.054
	風力	0.156
	太陽光	0.445
	蓄電池入出力 貯蔵	0.053 0.124
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	19.4%
	LNG	23.6%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	7.5%
	風力+太陽光	13.4%
不剩	蓄電池充電	1.7%
	出力抑制	3.6%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	41.5
	LNG	46.5
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	16.7
	風力	41.2
	太陽光	53.5
	蓄電池入出力 貯蔵	2.8 2.9
燃料費	原子力	19.5
	石炭	31.1
	LNG	123.2
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	32.4
費用計, \$/y	506.6	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.729
	LNG	0.340
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.912
	蓄電池入出力	0.010
排出量, tCO ₂ /y	1.64	
MAC, \$/tCO ₂	136.7	
電力単価, ¥/kWh	9.28	



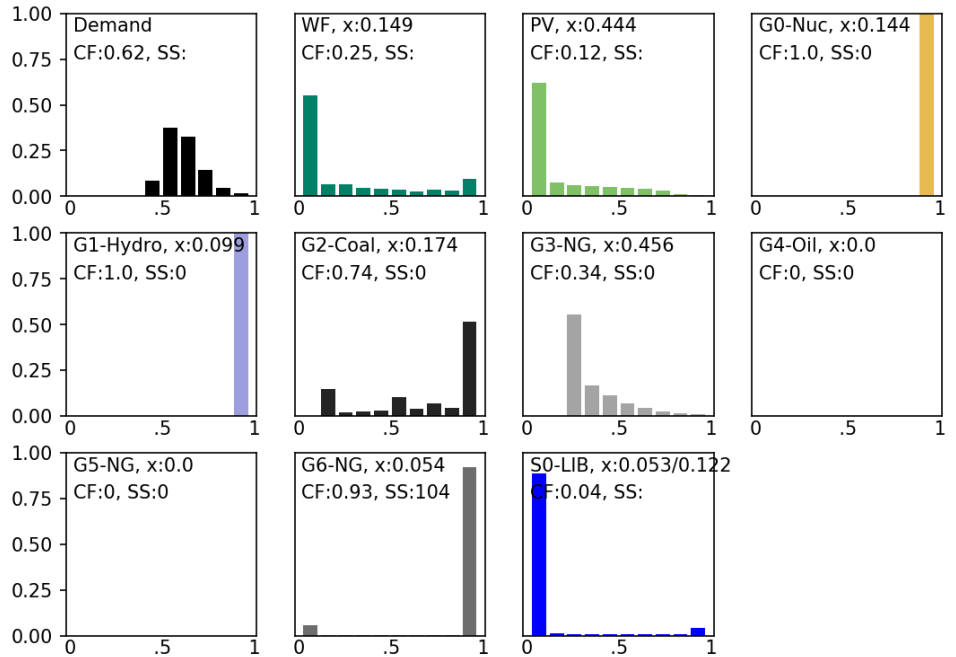
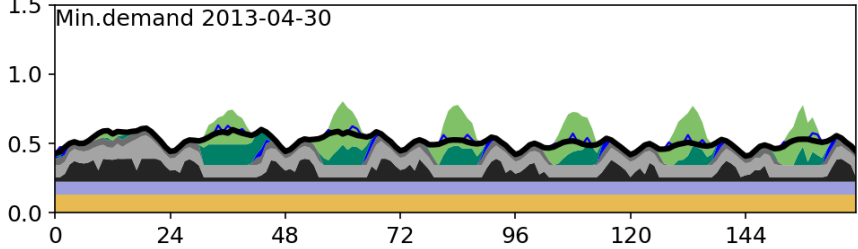
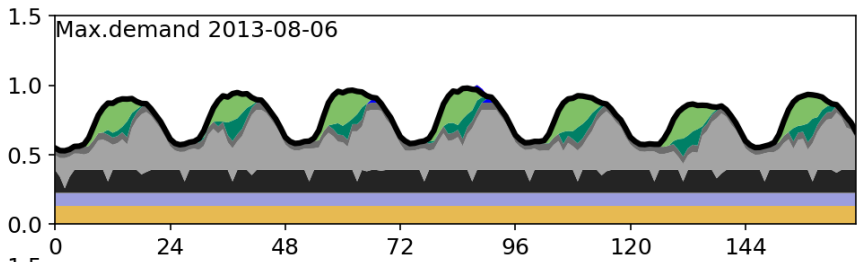
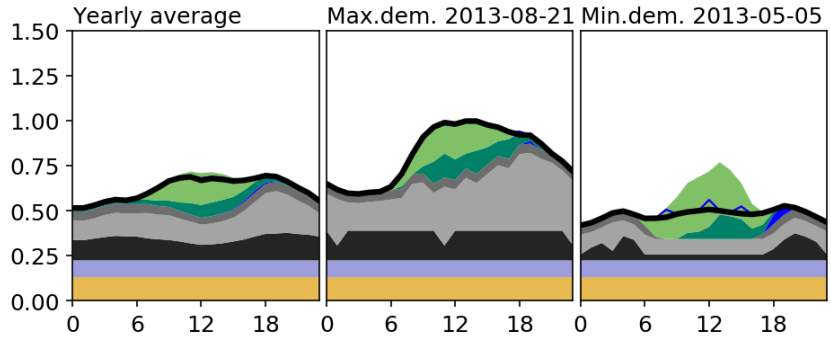
Output 21 分散, CO₂制約 300g, 効率 60%, 設備費 3900\$/kW, 寿命 20 年

300 gCO₂/kWh (分散)

SOFC 発電効率 : 60%

SOFC 設備費, 寿命 : 3900\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.174
	LNG	0.456
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.054
	風力	0.149
	太陽光	0.444
	蓄電池入出力 貯蔵	0.053 0.122
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	19.7%
	LNG	23.3%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	7.7%
	風力+太陽光	13.0%
	蓄電池	0.3%
不剩	蓄電池充電	2.4%
	出力抑制	3.4%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	41.5
	LNG	46.5
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	21.3
	風力	39.4
	太陽光	53.3
	蓄電池入出力 貯蔵	2.8 2.8
燃料費	原子力	19.5
	石炭	31.5
	LNG	121.9
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	30.7
	費用計, \$/y	506.5
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.739
	LNG	0.336
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.930
	蓄電池入出力	0.015
排出量, tCO ₂ /y	1.64	
MAC, \$/tCO ₂	136.7	
電力単価, ¥/kWh	9.28	



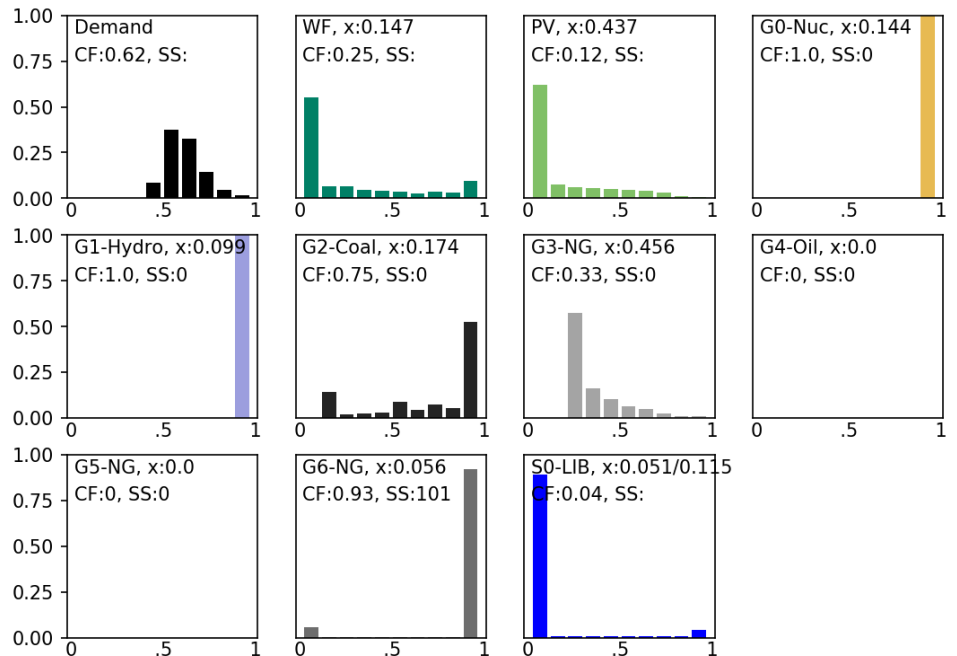
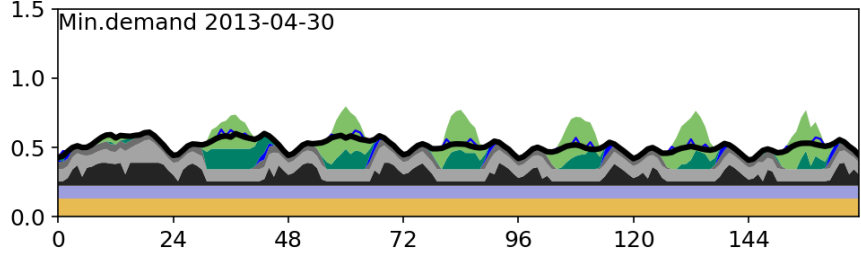
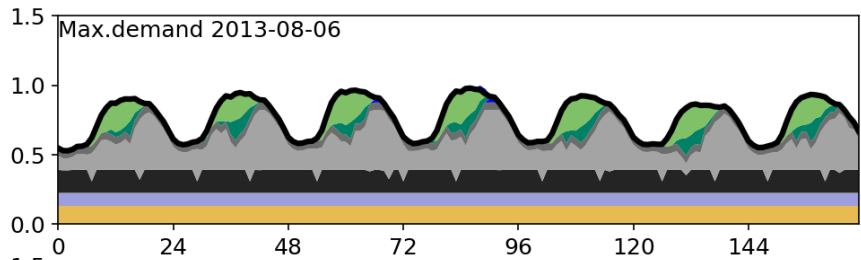
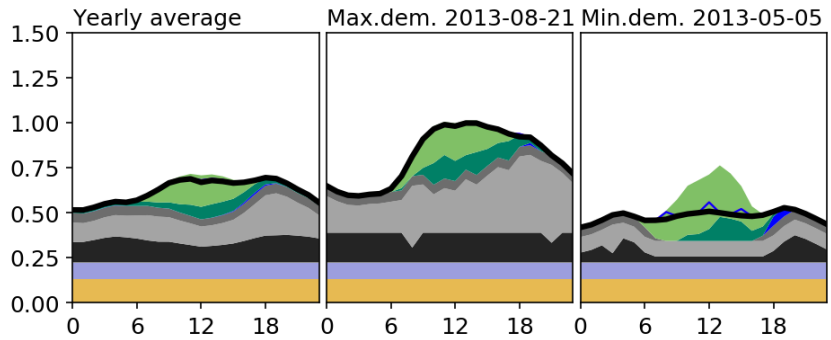
Output 22 分散, CO₂ 制約 300g, 効率 65%, 設備費 4500\$/kW, 寿命 20 年

300 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率: 65%

SOFC 設備費, 寿命: 4500\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.174
	LNG	0.456
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.056
	風力	0.147
	太陽光	0.437
	蓄電池入出力 貯蔵	0.051 0.115
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	20.0%
	LNG	22.9%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	8.0%
	風力+太陽光	12.8%
蓄電池	0.3%	
余剰	蓄電池充電	2.3%
	出力抑制	3.2%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	41.5
	LNG	46.5
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	25.4
	風力	38.7
	太陽光	52.5
	蓄電池入出力 貯蔵	2.7 2.7
燃料費	原子力	19.5
	石炭	32.0
	LNG	119.9
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	29.3
費用計, \$/y	506.0	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.751
	LNG	0.331
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.932
蓄電池入出力	0.014	
排出量, tCO ₂ /y	1.64	
MAC, \$/tCO ₂	136.7	
電力単価, ¥/kWh	9.27	



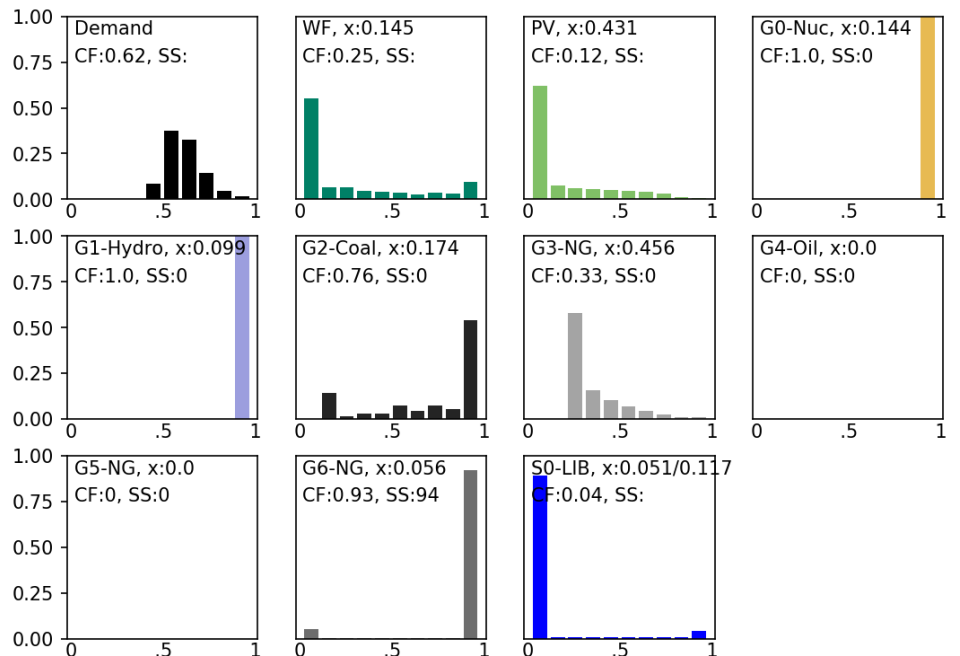
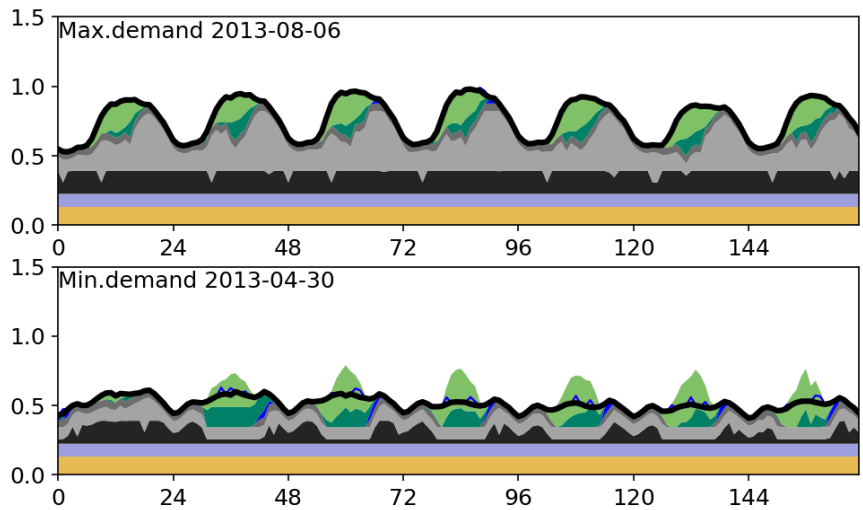
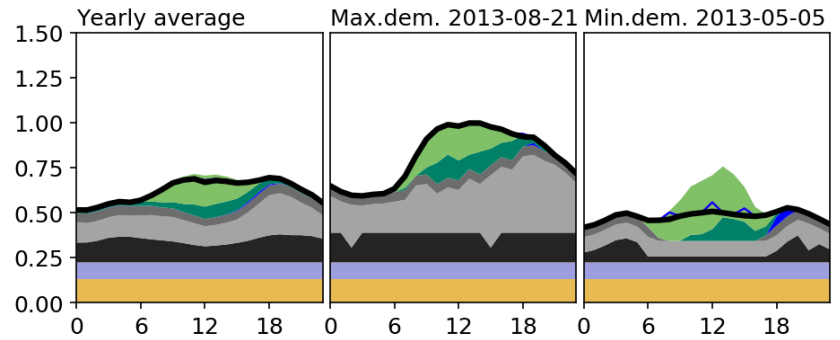
Output 23 分散, CO₂制約 300g, 効率 70%, 設備費 5100\$/kW, 寿命 20 年

300 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率: 70%

SOFC 設備費, 寿命: 5100\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.174
	LNG	0.456
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.056
	風力	0.145
	太陽光	0.431
	蓄電池入出力 貯蔵	0.051 0.117
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	20.2%
	LNG	22.8%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	8.0%
	風力+太陽光	12.7%
蓄電池	0.3%	
余剰	蓄電池充電	2.4%
	出力抑制	3.1%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	41.5
	LNG	46.5
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	28.8
	風力	38.2
	太陽光	51.8
	蓄電池入出力 貯蔵	2.7 2.7
燃料費	原子力	19.5
	石炭	32.4
	LNG	119.3
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	27.3
費用計, \$/y	506.1	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.759
	LNG	0.329
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.935
蓄電池入出力	0.014	
排出量, tCO ₂ /y	1.64	
MAC, \$/tCO ₂	136.7	
電力単価, ¥/kWh	9.27	



(2) 2040 年想定

同様に、分散電源である風力、太陽光、蓄電池を SOFC の主な競合技術とし、2040 年を想定して 185gCO₂/kWh 制約で検討した結果を Fig. 31, Fig. 32, Table 20 に示す。

SOFC の発電効率 55%と 60%との間に、強靱性のニーズ(負荷変動, 起動停止回数)が大きく変化する境界が見られるが、発電効率が 60%以上の領域においてもこれまでの結果と比べ起動停止回数は多く、稼働率は低い。これは太陽光および風力の設置量が多いことによるものと考えられる。

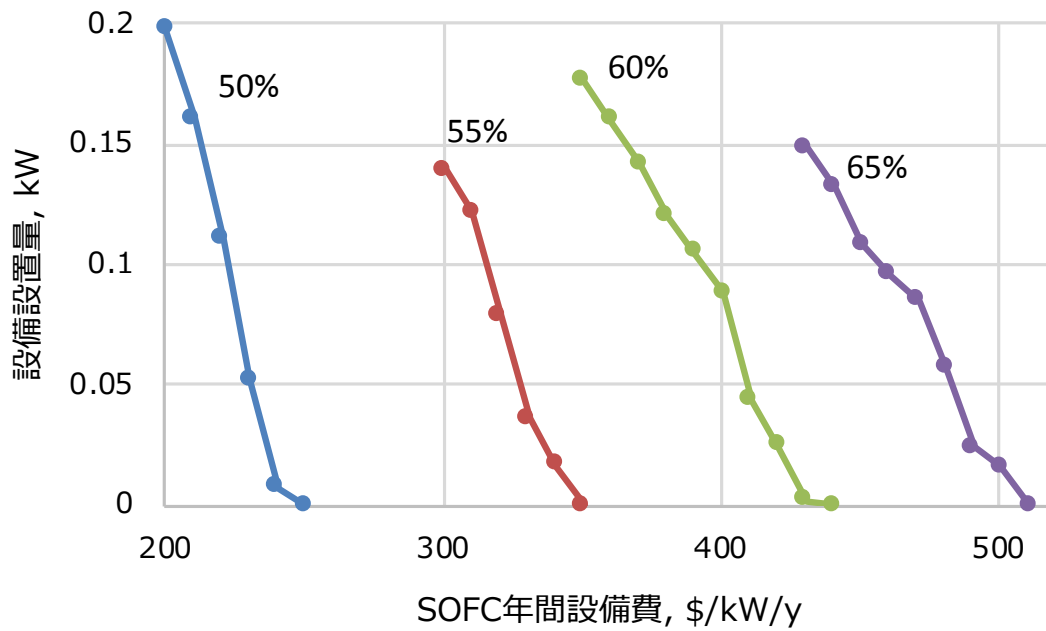


Fig. 31 分散電源における SOFC の競争力(185gCO₂/kWh)

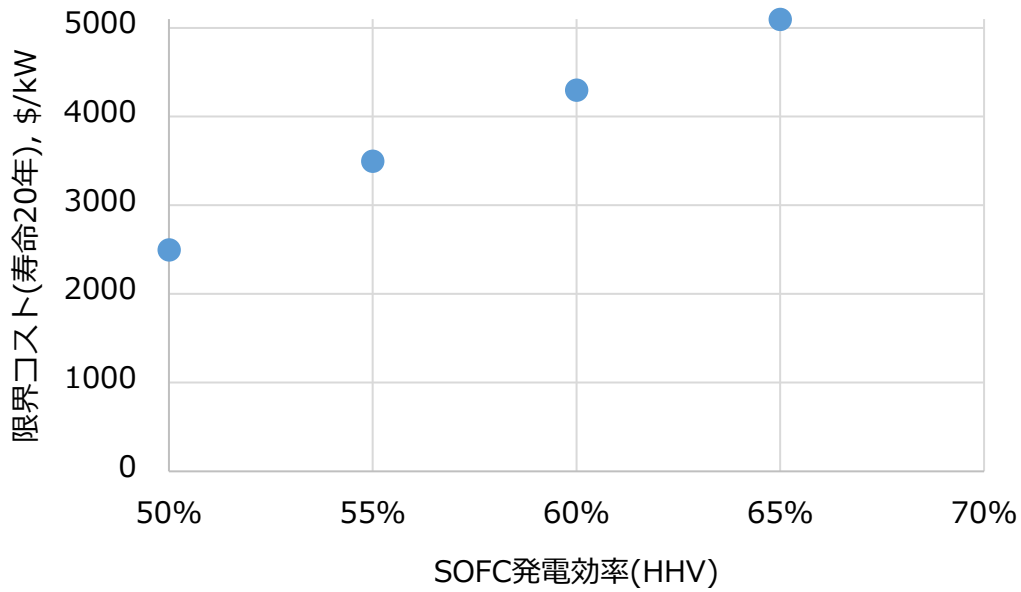


Fig. 32 2040年想定における分散電源に対して競争力を持つためのSOFC設備コストと発電効率

Table 20 2040年頃を想定したSOFCの仕様と市場ポテンシャル(185gCO₂/kWh制約)
競争技術：分散電源(太陽光, 風力, 蓄電池)

発電効率 HHV	設備 寿命 年	限界 コスト \$/kW	設備 コスト \$/kW	導入ポテン シャル 万kW	市場ポテン シャル 兆円	起動停止 回数 回/年	年間 稼働率
50%	10	1676	1542	954	1.47	244	84.6%
	15	2154	1982		1.89		
	20	2500	2300		2.19		
55%	10	2347	2146	1438	3.09	214	85.0%
	15	3016	2757		3.96		
	20	3500	3200		4.60		
60%	10	2883	2682	1617	4.34	115	90.2%
	15	3705	3446		5.57		
	20	4300	4000		6.47		
65%	10	3420	3017	1984	5.99	107	91.7%
	15	4394	3877		7.69		
	20	5100	4500		8.93		

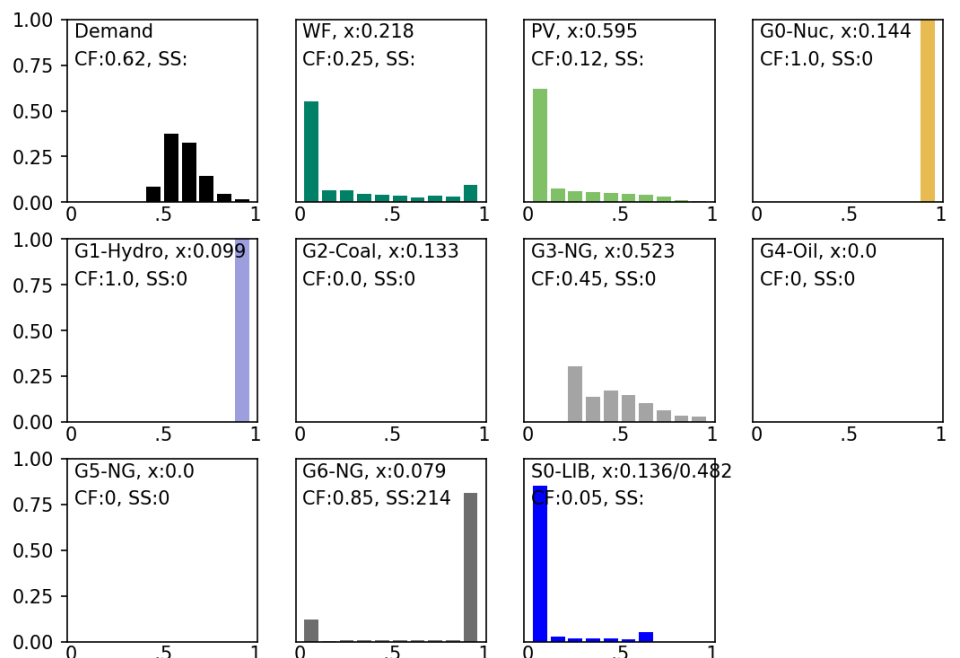
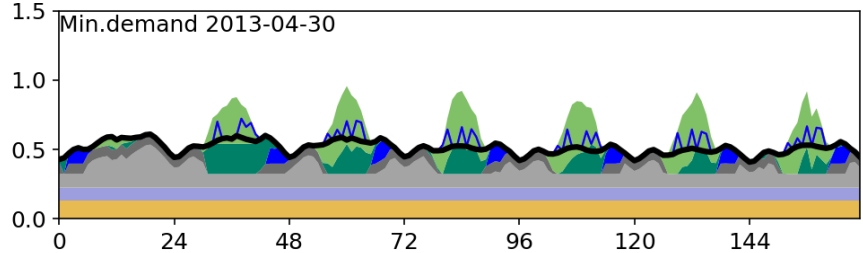
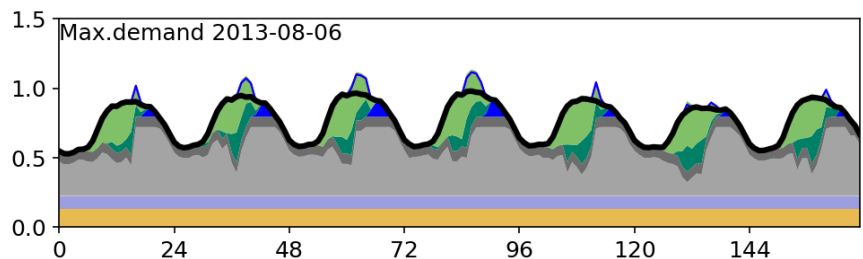
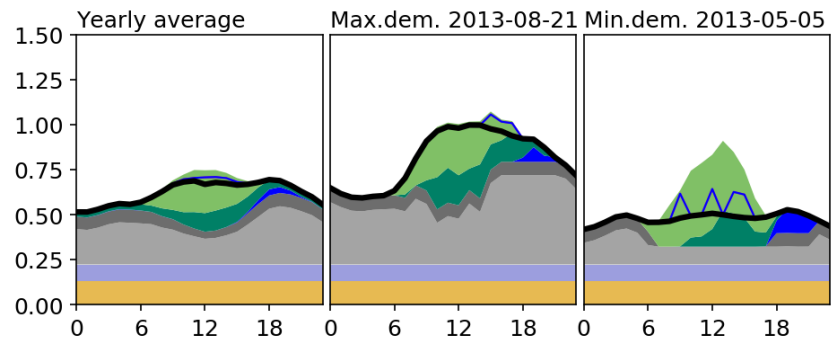
Output 24 分散, CO₂制約 185g, 効率 55%, 設備費 3200\$/kW, 寿命 20 年

185 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率: 55%

SOFC 設備費, 寿命: 3200\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.133
	LNG	0.523
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.079
	風力	0.218
	太陽光	0.595
	蓄電池入出力	0.136
貯蔵	0.482	
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	0.0%
	LNG	35.7%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	10.2%
	風力+太陽光	17.3%
蓄電池	0.9%	
余剰	蓄電池充電	5.7%
	出力抑制	4.3%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	31.6
	LNG	53.3
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	25.2
	風力	57.4
	太陽光	71.4
	蓄電池入出力	7.2
貯蔵	11.2	
燃料費	原子力	19.5
	石炭	0.0
	LNG	186.6
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	44.0
費用計, \$/y	602.9	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.000
	LNG	0.449
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.850
蓄電池入出力	0.033	
排出量, tCO ₂ /y	1.01	
MAC, \$/tCO ₂	173.1	
電力単価, ¥/kWh	11.04	



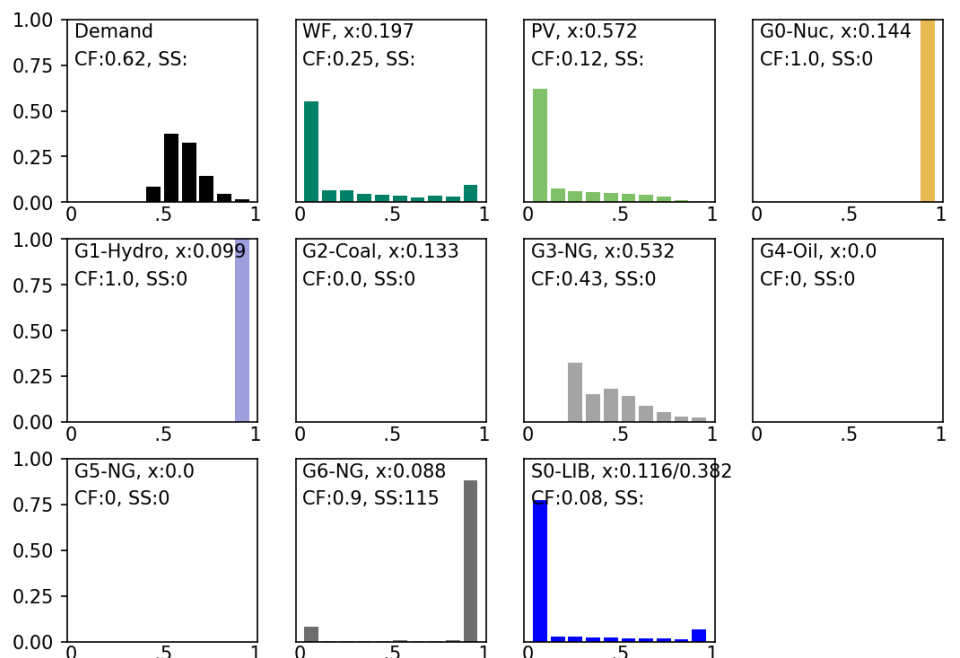
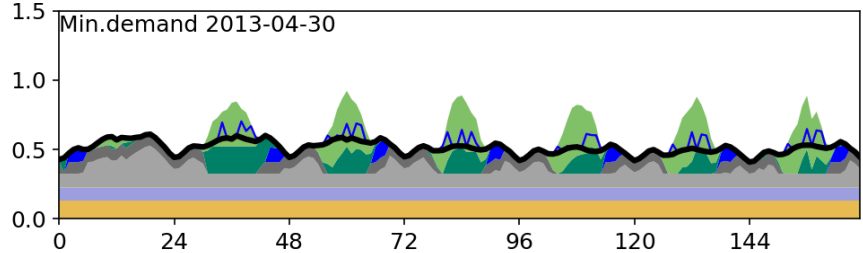
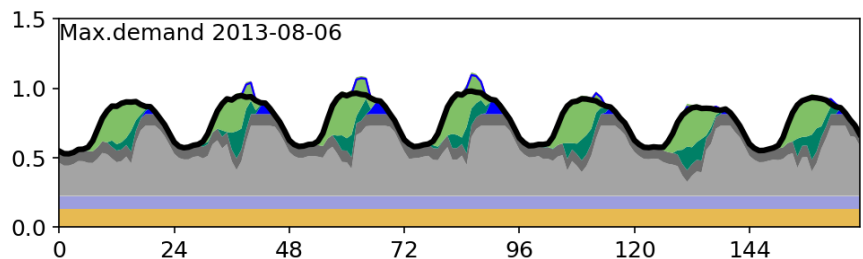
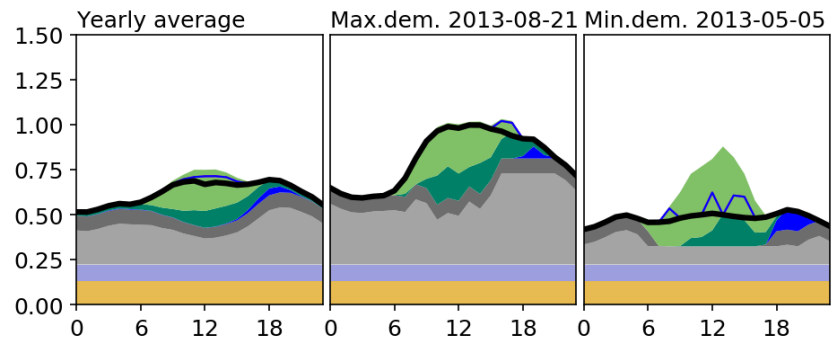
Output 25 分散, CO₂制約 185g, 効率 60%, 設備費 4000\$/kW, 寿命 20 年

185 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率: 60%

SOFC 設備費, 寿命: 4000\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.133
	LNG	0.532
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.088
	風力	0.197
	太陽光	0.572
	蓄電池入出力	0.116
貯蔵	0.382	
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	0.0%
	LNG	34.9%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	12.1%
	風力+太陽光	15.9%
蓄電池	1.1%	
余剰	蓄電池充電	7.6%
	出力抑制	4.1%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	31.6
	LNG	54.3
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	35.4
	風力	52.1
	太陽光	68.6
	蓄電池入出力	6.2
貯蔵	8.9	
燃料費	原子力	19.5
	石炭	0.0
	LNG	182.5
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	48.2
費用計, \$/y	602.6	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.000
	LNG	0.431
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.902
蓄電池入出力	0.045	
排出量, tCO ₂ /y	1.01	
MAC, \$/tCO ₂	173.1	
電力単価, ¥/kWh	11.04	



2.3.7 ケーススタディ(原子力, 燃料価格)

(1) 原子力比率の影響

ここまでの最適化は外生的に定数として与える原子力の比率を 21%で固定して実施した。この原子力比率を 10%, 21%, 30%と設定したケーススタディを実施した。原子力比率が変化することで、基本構成(370gCO₂/kWh 制約におけるコストミニマム)が Fig. 33 に示すように変化する。それぞれの基本構成を出発点とし、350gCO₂/kWh への削減過程において SOFC の競争力に与える原子力比率の影響について検討した。

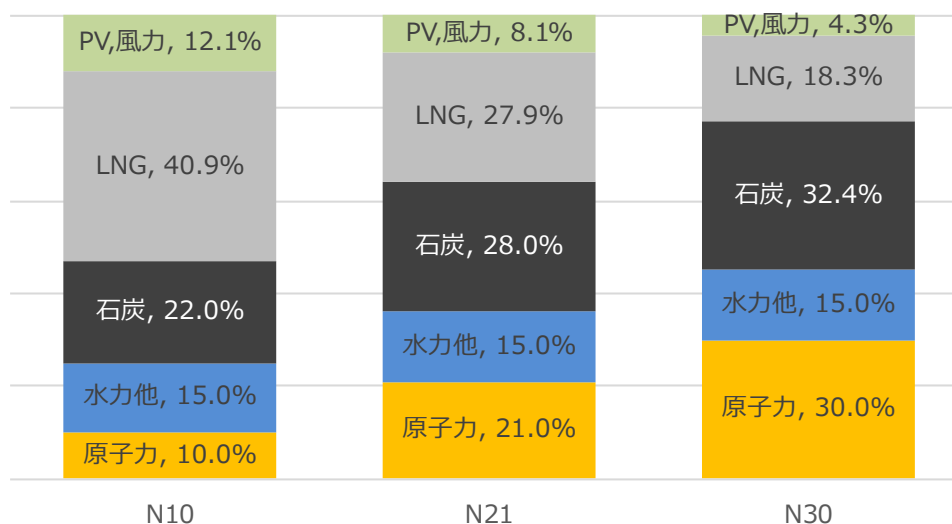


Fig. 33 基本構成における電源供給比率の原子力比率による影響

Fig. 34 は SOFC 設備コスト 1700\$/kW, 発電効率 60%, 350gCO₂/kW 制約における市場ポテンシャルと原子力比率との関係を示す。

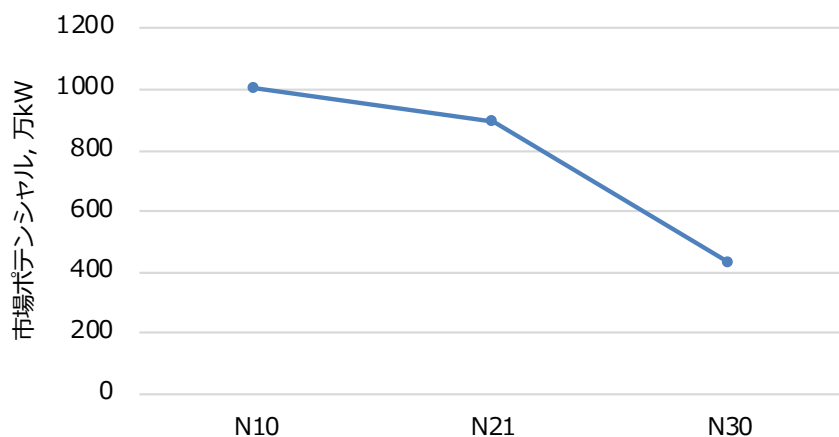


Fig. 34 原子力比率による市場ポテンシャルの変化

(350gCO₂/kW 制約, SOFC 設備コスト : 1700\$/kW, 発電効率 60%)

Table 21, Table 22 は原子力比率が 10%および 30%のケースの結果のサマリである。原子力比率によって、高効率 LNG 火力に対して競争力をもつための限界コストの変化は少ないが、原子力比率の増加に伴い、起動停止回数は大きく減少し、稼働率は微増している。これは原子力比率の増加で減少する太陽光、風力の影響と考えられる。

Table 21 原子力比率 10%における SOFC 仕様と市場ポテンシャル(350gCO₂/kWh)

発電効率 HHV	設備 寿命 年	限界 コスト \$/kW	設備 コスト \$/kW	導入ポテン シャル 万kW	市場ポテン シャル 兆円	起動停止 回数 回/年	年間 稼働率
50%	10	402	335	656	0.22	466	59.1%
	15	517	431		0.28		
	20	600	500		0.33		
55%	10	805	738	414	0.31	187	81.9%
	15	1034	948		0.39		
	20	1200	1100		0.46		
60%	10	1207	1140	1002	1.14	45	96.7%
	15	1551	1465		1.47		
	20	1800	1700		1.70		
65%	10	1676	1542	787	1.21	45	97.0%
	15	2154	1982		1.56		
	20	2500	2300		1.81		

Table 22 原子力比率 30%における SOFC 仕様と市場ポテンシャル(350gCO₂/kWh)

発電効率 HHV	設備 寿命 年	限界 コスト \$/kW	設備 コスト \$/kW	導入ポテン シャル 万kW	市場ポテン シャル 兆円	起動停止 回数 回/年	年間 稼働率
50%	10	335	268	486	0.13	388	33.8%
	15	431	345		0.17		
	20	500	400		0.19		
55%	10	738	670	410	0.27	16	98.8%
	15	948	862		0.35		
	20	1100	1000		0.41		
60%	10	1207	1140	429	0.49	11	99.0%
	15	1551	1465		0.63		
	20	1800	1700		0.73		
65%	10	1676	1609	446	0.72	11	99.1%
	15	2154	2068		0.92		
	20	2500	2400		1.07		

Output 26 原子力 10%, CO₂制約 350g, 効率 60%, 設備費 1700\$/kW, 寿命 20 年

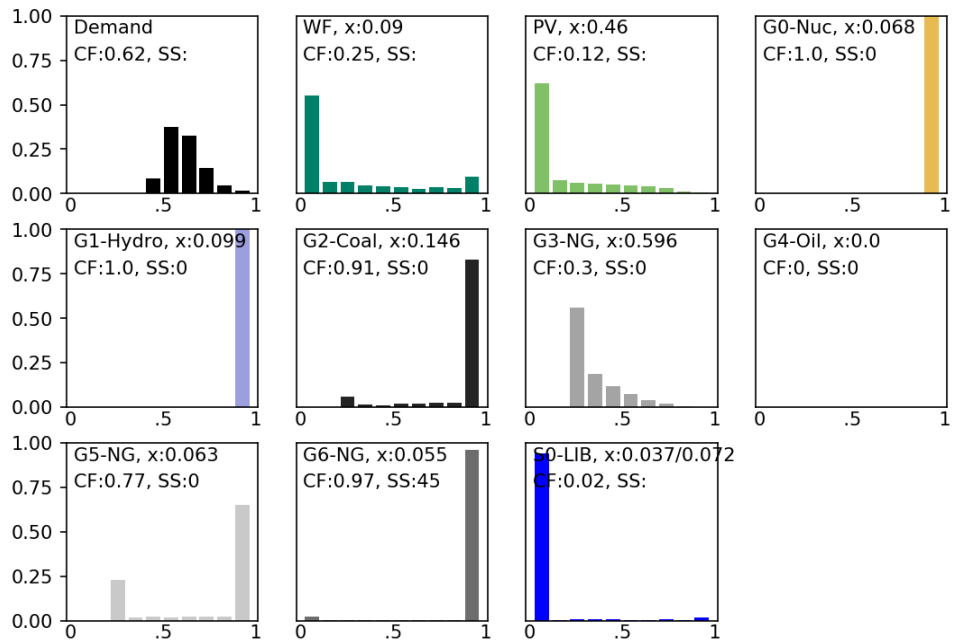
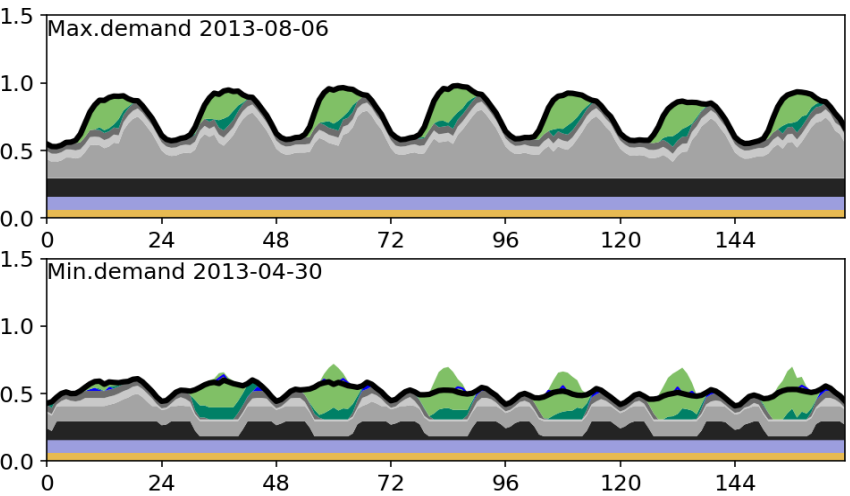
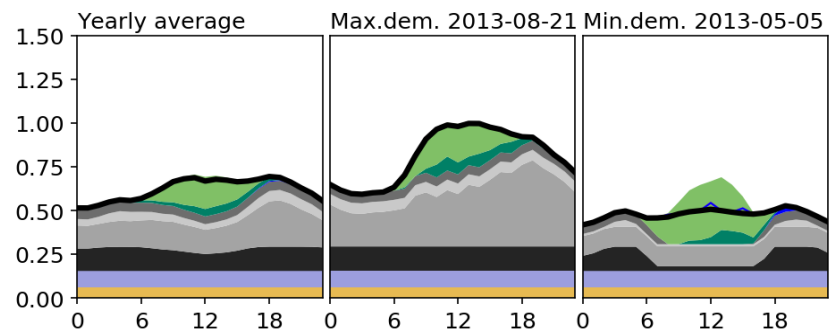
350 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率: 60%

SOFC 設備費, 寿命: 1700\$/kW, 20y

(原子力 10%)

設備設置量	原子力	0.068
	水力他	0.099
	石炭	0.146
	LNG	0.596
	石油	0.000
	高効率LNG	0.063
	SOFC	0.055
	風力	0.090
	太陽光	0.460
	蓄電池入出力 貯蔵	0.037 0.072
供給比率	原子力	10.0%
	水力他	15.0%
	石炭	20.3%
	LNG	27.5%
	石油	0.0%
	高効率LNG	7.4%
	SOFC	8.1%
	風力+太陽光	11.6%
余剰	蓄電池充電	1.0%
	出力抑制	1.4%
設備費	原子力	24.9
	水力他	43.2
	石炭	34.8
	LNG	60.8
	石油	0.0
	高効率LNG	7.4
	SOFC	9.3
	風力	23.6
	太陽光	55.2
	蓄電池入出力 貯蔵	2.0 1.7
燃料費	原子力	9.3
	石炭	32.6
	LNG	143.8
	石油	0.0
	高効率LNG	31.6
	SOFC	32.0
費用計, \$/y	512.1	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.912
	LNG	0.303
	石油	0.000
	高効率LNG	0.769
	SOFC	0.967
蓄電池入出力	0.009	
排出量, tCO ₂ /y	1.91	
MAC, \$/tCO ₂	76.5	
電力単価, ¥/kWh	9.38	



Output 27 原子力 30%, CO₂制約 350g, 効率 60%, 設備費 1700\$/kW, 寿命 20 年

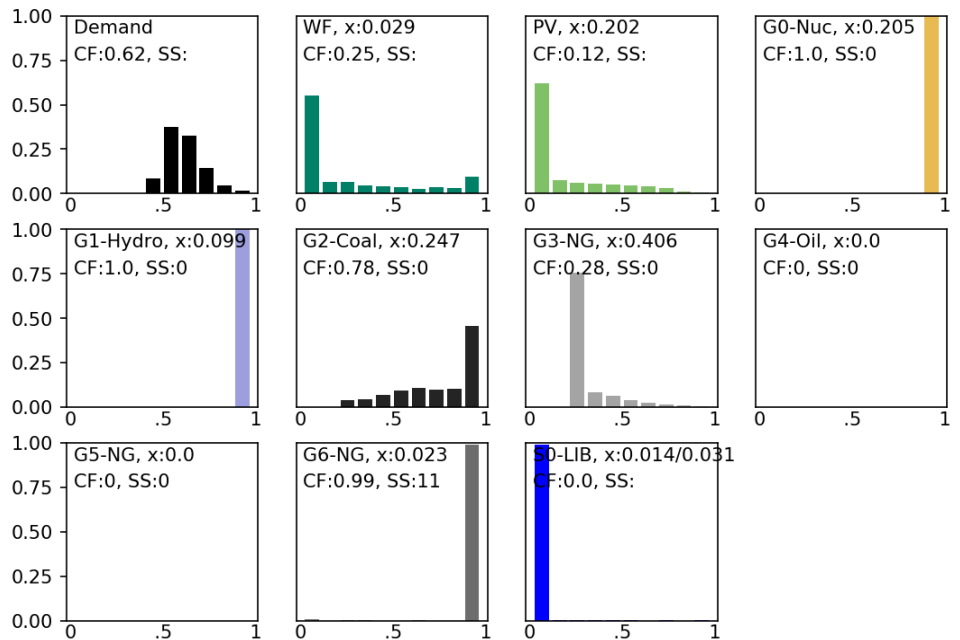
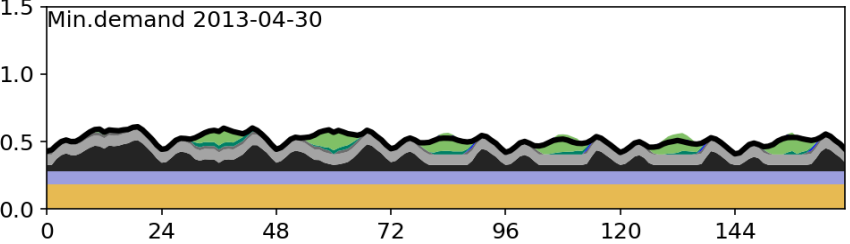
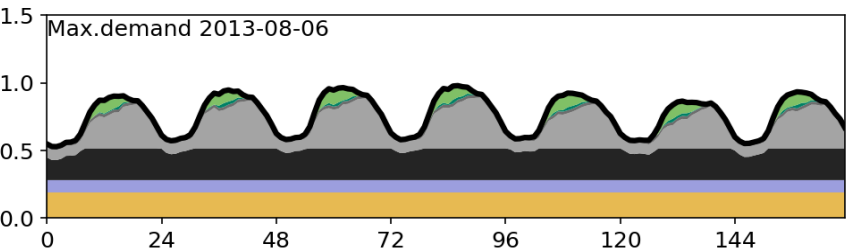
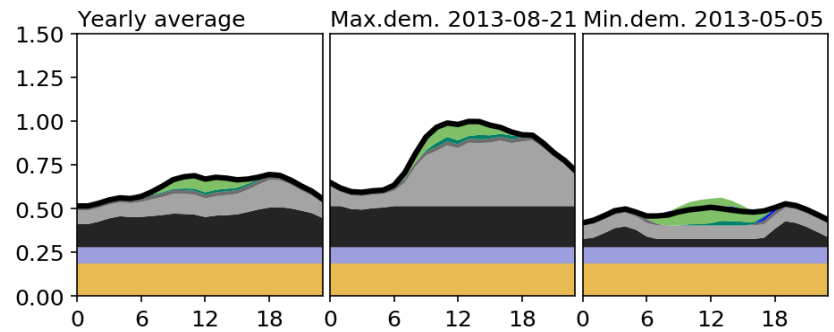
350 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率: 60%

SOFC 設備費, 寿命: 1700\$/kW, 20y

(原子力 30%)

設備設置量	原子力	0.205
	水力他	0.099
	石炭	0.247
	LNG	0.406
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.023
	風力	0.029
	太陽光	0.202
	蓄電池入出力 貯蔵	0.014 0.031
供給比率	原子力	30.0%
	水力他	15.0%
	石炭	29.5%
	LNG	17.1%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	3.5%
	風力+太陽光	4.8%
	蓄電池	0.0%
	余剰	蓄電池充電
出力抑制		0.3%
設備費	原子力	74.6
	水力他	43.2
	石炭	58.8
	LNG	41.5
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	4.0
	風力	7.6
	太陽光	24.3
	蓄電池入出力 貯蔵	0.8 0.7
燃料費	原子力	27.8
	石炭	47.4
	LNG	89.5
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	14.0
費用計, \$/y	434.1	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.784
	LNG	0.277
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.990
蓄電池入出力	0.002	
排出量, tCO ₂ /y	1.91	
MAC, \$/tCO ₂	94.7	
電力単価, ¥/kWh	7.95	



(2) 燃料価格の影響

燃料価格の SOFC 競争力に与える影響についてケーススタディを実施した。2030 年の燃料価格想定として IEA World Energy Outlook 2016⁷⁾の Current Policy Scenario を高位燃料価格に、450 Scenario を低位として設定した。Fig. 36 は燃料価格想定の違いによる基本構成(370gCO₂/kWh 制約におけるコストミニマム)の電源供給比率を示す。それぞれの基本構成を出発点とし、350gCO₂/kWh への削減過程において SOFC の競争力に与える燃料価格の影響について検討した。図中横軸の値はそれぞれのケースにおける燃料価格を\$/GJ で示す。

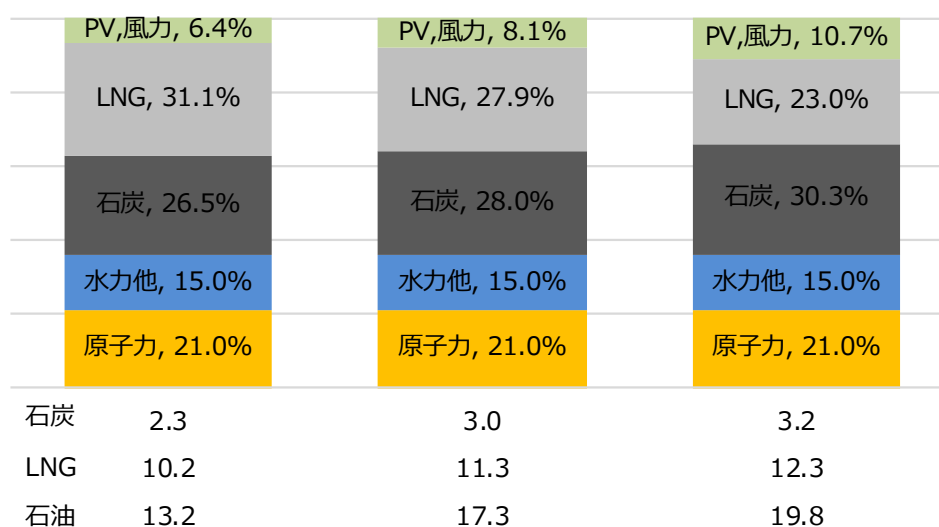


Fig. 35 基本構成における電源供給比率の燃料価格による影響

Fig. 36 は SOFC 設備コスト 1700\$/kW, 発電効率 60%, 350gCO₂/kW 制約における市場ポテンシャルと燃料価格との関係を示す。燃料価格が上昇することで市場ポテンシャルの低下がみられるが、この範囲ではその変化は大きくない。

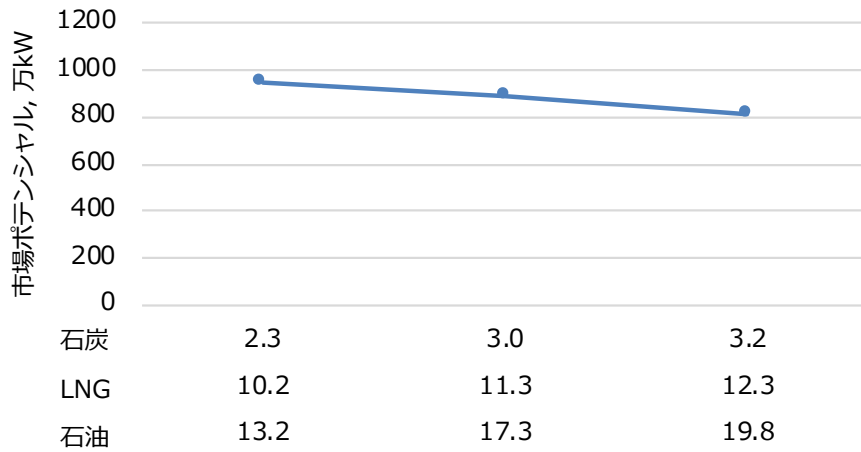


Fig. 36 燃料価格による市場ポテンシャルの変化
(350gCO₂/kW 制約, SOFC 設備コスト：1700\$/kW, 発電効率 60%)

Table 23, Table 24 は燃料価格の違いによる結果のサマリである。燃料価格が上昇すると起動停止回数は増加, 稼働率は低下する傾向である。

Table 23 燃料価格低下ケースにおける SOFC 仕様と市場ポテンシャル(350gCO₂/kWh)

発電効率 HHV	設備 寿命 年	限界 コスト \$/kW	設備 コスト \$/kW	導入ポテン シャル 万kW	市場ポテン シャル 兆円	起動停止 回数 回/年	年間 稼働率
50%	10	402	335	301	0.10	375	58.8%
	15	517	431		0.13		
	20	600	500		0.15		
55%	10	738	670	1263	0.85	331	92.1%
	15	948	862		1.09		
	20	1100	1000		1.26		
60%	10	1207	1140	953	1.09	10	99.1%
	15	1551	1465		1.40		
	20	1800	1700		1.62		
65%	10	1609	1542	832	1.28	9	99.2%
	15	2068	1982		1.65		
	20	2400	2300		1.91		

Table 24 燃料価格上昇ケースにおける SOFC 仕様と市場ポテンシャル(350gCO₂/kWh)

発電効率 HHV	設備 寿命 年	限界	設備	導入ポテン	市場ポテン	起動停止 回数 回/年	年間 稼働率
		コスト \$/kW	コスト \$/kW	シャル 万kW	シャル 兆円		
50%	10	335	268	506	0.14	451	42.0%
	15	431	345		0.17		
	20	500	400		0.20		
55%	10	738	670	893	0.60	65	95.6%
	15	948	862		0.77		
	20	1100	1000		0.89		
60%	10	1274	1207	816	0.98	50	96.6%
	15	1637	1551		1.27		
	20	1900	1800		1.47		
65%	10	1743	1676	759	1.27	49	96.7%
	15	2240	2154		1.63		
	20	2600	2500		1.90		

Table 25 は設備費 1700\$/kW, 発電効率 60%での最適解における設備設置量を燃料価格で比較したものである。ゴシックは燃料価格の上昇に対し負の、網掛けは正の相関を持つ設備を示す。燃料価格の増加で高効率な発電機器は有利になるが、再エネが多く選択されることで SOFC は負の相関となっている。

Table 25 燃料価格による最適設備設置量(350gCO₂/kWh, 1700\$/kW, 効率 60%)

		低位	基準	高位
燃料 価格	石炭, \$/GJ	2.3	3.0	3.2
	LNG	10.2	11.3	12.3
	石油	13.2	17.3	19.8
設 備 設 置 量 k W	原子力	0.144	0.144	0.144
	水力	0.099	0.099	0.099
	石炭火力	0.176	0.192	0.219
	LNG火力	0.528	0.502	0.443
	石油火力	0.000	0.000	0.000
	高効率LNG火力	0.003	0.000	0.000
	SOFC	0.052	0.049	0.045
	風力	0.040	0.054	0.090
	太陽光	0.254	0.319	0.387
	蓄電池I/O	0.011	0.019	0.047
STR, kWh	0.014	0.031	0.117	
平均発電コスト, ¥/kWh		8.1	8.6	8.9

Output 28 燃料價格低位, CO₂制約 350g, 効率 60%, 設備費 1700\$/kW, 寿命 20 年

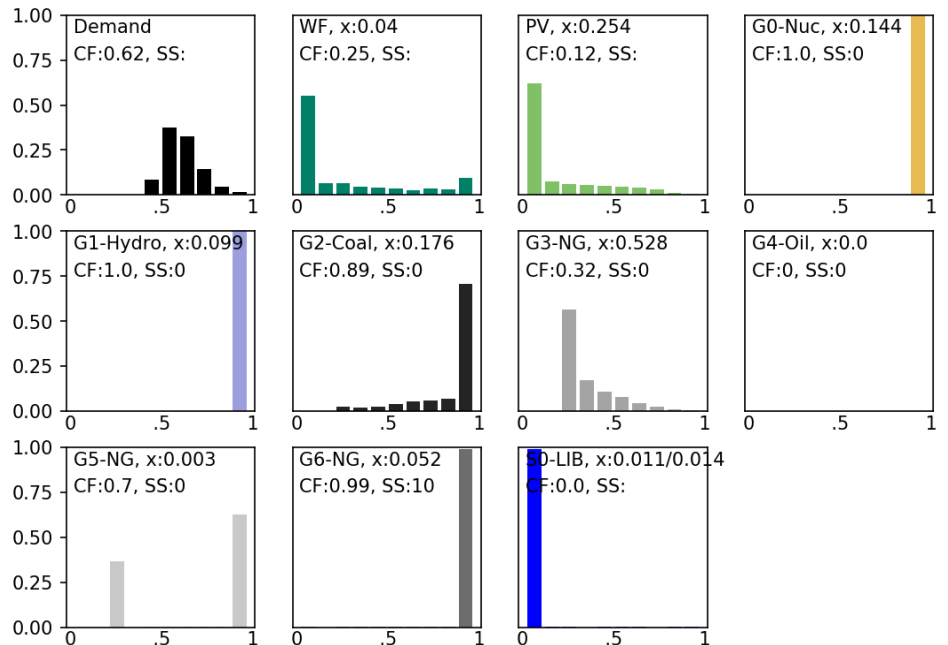
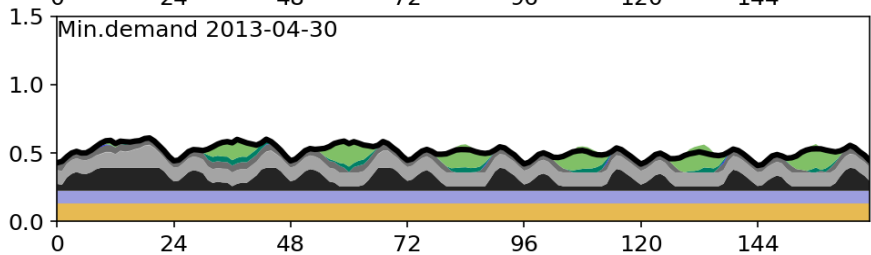
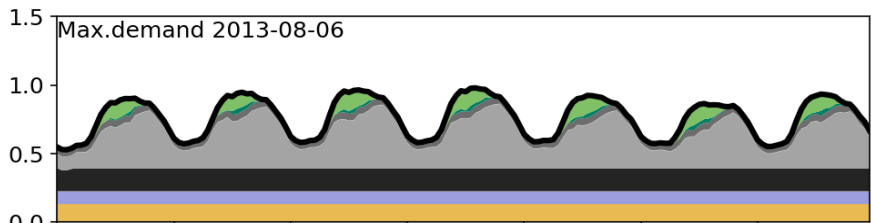
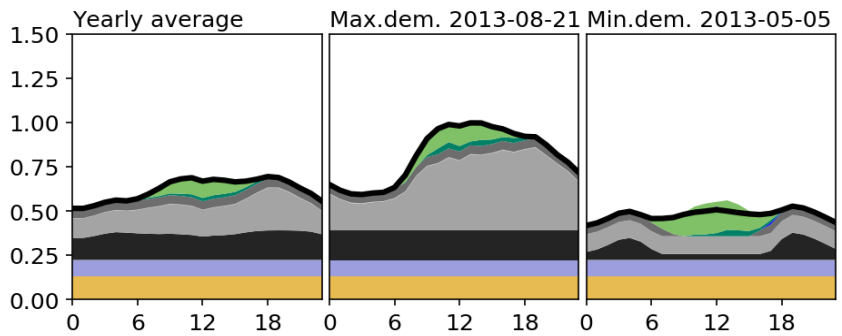
350 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率: 60%

SOFC 設備費, 寿命: 1700\$/kW, 20y

(燃料價格: 低位)

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.176
	LNG	0.528
	石油	0.000
	高効率LNG	0.003
	SOFC	0.052
	風力	0.040
	太陽光	0.254
	蓄電池入出力 貯蔵	0.011 0.014
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	23.9%
	LNG	25.8%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.3%
	SOFC	7.9%
	風力+太陽光	6.1%
	蓄電池	0.0%
余剰	蓄電池充電	0.1%
	出力抑制	0.2%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	41.9
	LNG	53.9
	石油	0.0
	高効率LNG	0.3
	SOFC	8.9
	風力	10.4
	太陽光	30.6
	蓄電池入出力 貯蔵	0.6 0.3
燃料費	原子力	19.5
	石炭	29.4
	LNG	122.4
	石油	0.0
	高効率LNG	1.1
	SOFC	28.3
費用計, \$/y	442.9	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.889
	LNG	0.321
	石油	0.000
	高効率LNG	0.704
	SOFC	0.991
蓄電池入出力	0.001	
排出量, tCO ₂ /y	1.91	
MAC, \$/tCO ₂	84.3	
電力単価, ¥/kWh	8.11	



Output 29 燃料價格高位, CO₂制約 350g, 効率 60%, 設備費 1700\$/kW, 寿命 20 年

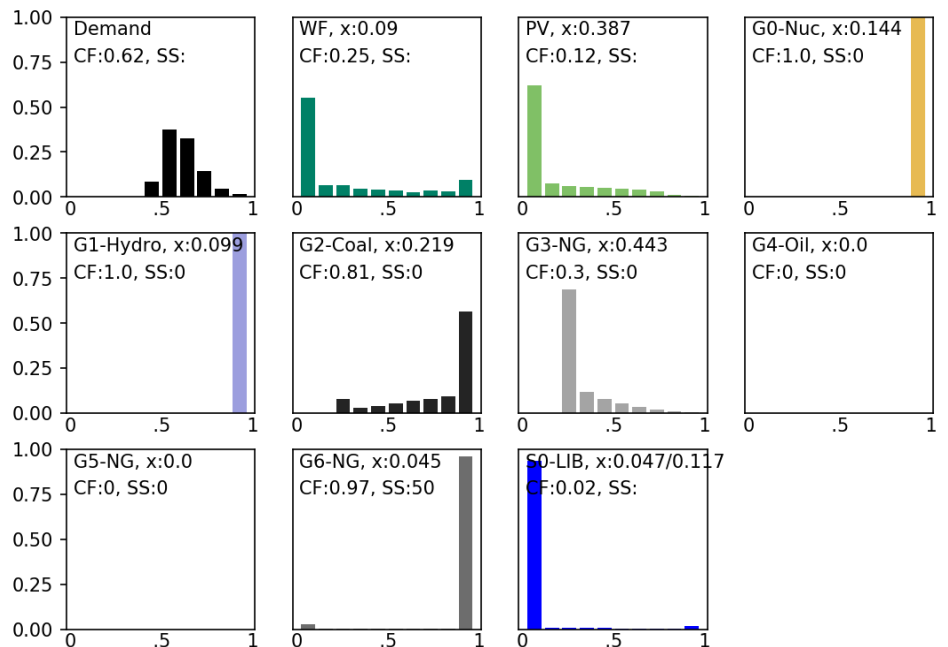
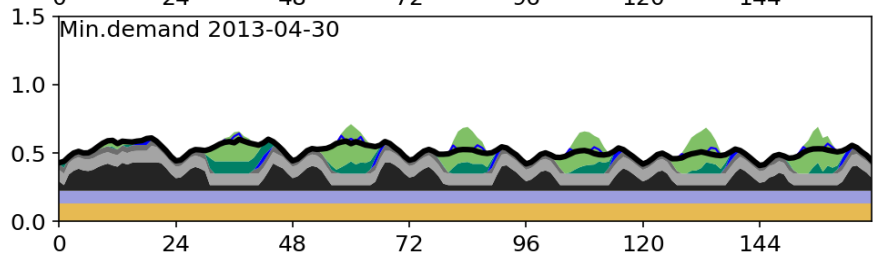
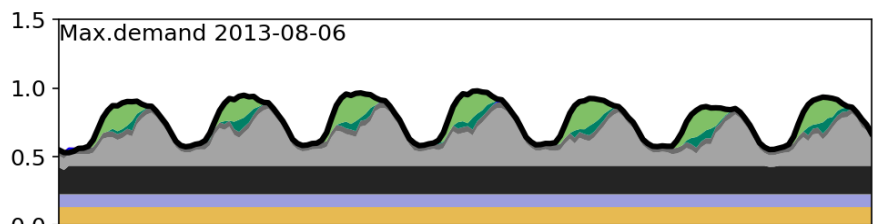
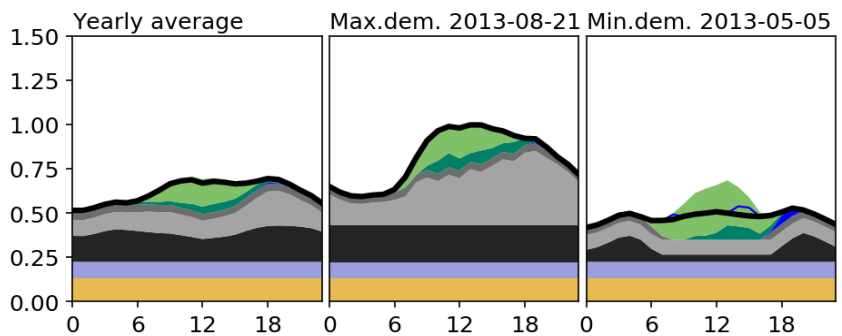
350 gCO₂/kWh

SOFC 発電効率: 60%

SOFC 設備費, 寿命: 1700\$/kW, 20y

(燃料價格: 高位)

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.219
	LNG	0.443
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.045
	風力	0.090
	太陽光	0.387
	蓄電池入出力 貯蔵	0.047 0.117
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	27.2%
	LNG	19.9%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	6.6%
	風力+太陽光	10.2%
	蓄電池	0.1%
余剰	蓄電池充電	1.4%
	出力抑制	1.4%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	52.0
	LNG	45.2
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	7.6
	風力	23.6
	太陽光	46.5
	蓄電池入出力 貯蔵	2.5 2.7
燃料費	原子力	19.5
	石炭	47.7
	LNG	113.7
	石油	0.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	28.5
費用計, \$/y	484.8	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.815
	LNG	0.295
	石油	0.000
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.966
蓄電池入出力	0.011	
排出量, tCO ₂ /y	1.91	
MAC, \$/tCO ₂	94.6	
電力単価, ¥/kWh	8.88	



2.3.8 SOFC の新規なシステム仕様について

これまでの SOFC システムの殆どが、高い発電効率をもたらす高負荷運転を基本としてシステム設計がなされてきた。本検討においても 2030 年頃に競争力を持つ SOFC はその最適運転パターンとして負荷変動および起動停止が求められるものの高い年間稼働率の運転となっている。一方で SOFC に比べ効率の低い発電機は頻繁な負荷変動の結果、その年間稼働率は低い。このような傾向は更なる CO₂削減が要求される環境においてはより一層強まる。

再エネの変動吸収やピーク対応を想定した SOFC の新規なシステムについては今後の重要な検討課題であるが、傾向を把握するため予備的検討を行った。検討に用いた部分負荷特性、特に SOFC については十分な検討を実施していないため、参考としての位置付けである⁴。

(1) 高出力密度によるセルスタックの利用

SOFC のセル電圧および出力密度の特性の例²⁴⁾を Fig. 37 に示す。既存の SOFC は高効率の一定負荷運転が想定されているため比較的低い電流密度でその設計がなされている。再エネの変動吸収やピーク対応を想定し、高負荷（高出力密度）による発電効率の低下が容認できるなら、SOFC の持つ出力密度に関するポテンシャルを生かせるのではないか。このような発想のもとに予備検討を実施した。

⁴ SOFC においてその電流密度を大幅に増加させた場合の部分負荷効率の設定は、文献情報が乏しく、SOFC システムのシミュレーションと実験結果を組み合わせることで想定すべきであり、第 2 期の重要な課題の一つである

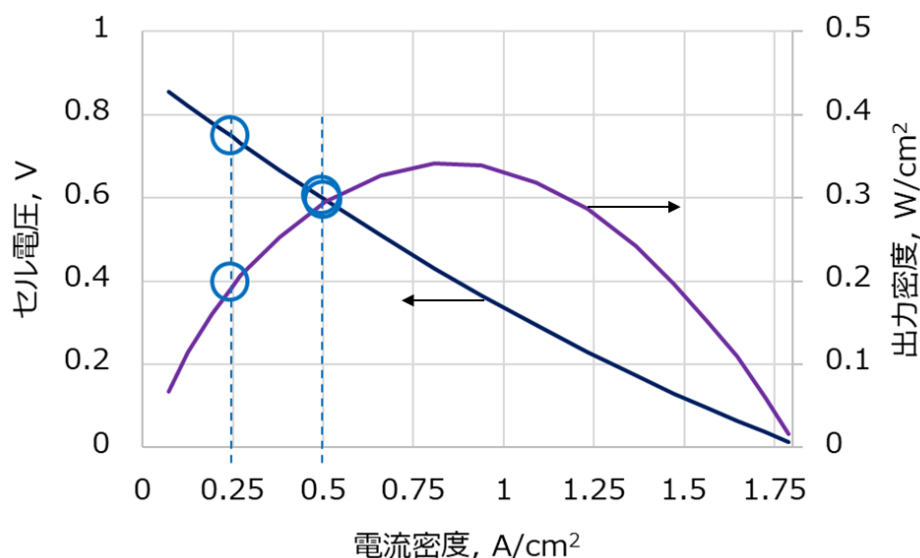


Fig. 37 電流密度とセル電圧および出力密度との関係

この検討では $0.25\text{A}/\text{cm}^2$ でのセルスタックの利用を標準仕様として、2 倍の電流密度である $0.5\text{A}/\text{cm}^2$ 、出力密度 1.5 倍で利用した場合を考える。システムコストの内、セルスタック以外の部分が出力に比例すると仮定して、高出力密度で使用した場合の相対的なシステム単価を試算した結果を Table 26 に示す。このように高出力密度でのシステム設計はシステムの出力単価の低減につながる可能性を有する。

Table 26 高出力密度利用によるシステムコスト(kW 単価)の試算

		標準	高出力密度	
		1倍 ($0.25\text{A}/\text{cm}^2$)	2倍 ($0.5\text{A}/\text{cm}^2$)	3倍 ($0.75\text{A}/\text{cm}^2$)
セルスタックの負荷	電流密度			
	出力密度	1.00倍	1.50倍	1.72倍
システムコストに占めるセルスタックの割合と相対出力単価	50%	100	83.3	79.1
	60%	100	80.0	74.9
	70%	100	76.7	70.7

(2) SOFC の部分負荷効率

システムの最大効率を 60%として標準仕様および出力密度 1.5 倍仕様の部分負荷効率の想定を Fig. 38 に示す。この想定は資料²⁴⁾²⁵⁾¹⁷⁾を参考に設定したが、SOFC のシステムとしての十分な検討がなされておらず、仮の設定という位置づけである点に注意が必要である。以後の最適化計算ではこの部分負荷特性から得られる燃料増量を 3 次式で近似し、10 分割の区分線形化で表現した関数を用いた。

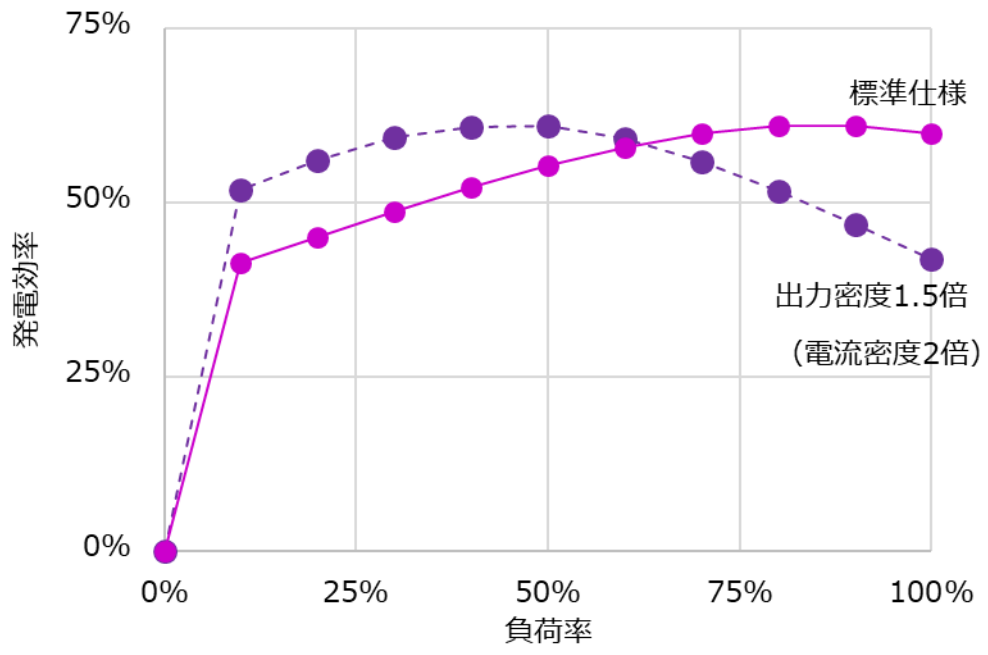


Fig. 38 SOFC システムの部分負荷効率の想定

(3) 火力発電の部分負荷効率

火力発電の負荷率による効率変化(部分負荷効率)は先行文献²⁶⁾²⁷⁾に示されている石炭, LNG, 石油火力およびLNG複合発電のデータを読み取り用いた(Fig. 39). 最適化計算に用いた発電効率はFig. 39の値に定格(負荷率 1.0)における発電効率を乗じて設定した. 従来型火力と高効率LNG火力で設定した値をTable 27に示す. 従来型火力の負荷率 1.0における発電効率は基本構成の最適化解から計算した年間平均効率が効率固定で設定した値と等しくなるように調整した値である. 最適化計算では, Table 27の値から得られる燃料消費量を負荷変動範囲において3次式で近似した曲線を10分割の区分線形化して利用した.

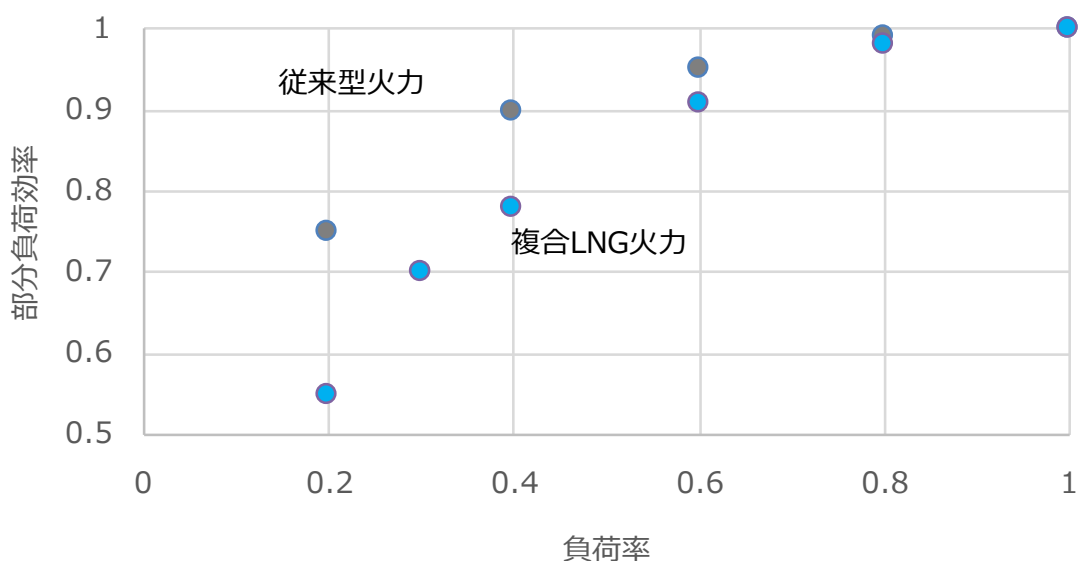


Fig. 39 火力発電の部分負荷効率

Table 27 定格および部分負荷における発電効率の設定値

	従来火力			高効率LNG 火力
	石炭	LNG	石油	
1.0(定格)	40.7%	49.6%	38.0%	56.0%
0.8	40.1%	48.9%	37.5%	55.2%
0.5	37.9%	46.3%	35.5%	52.2%
0.2	30.5%	37.2%	28.5%	42.0%
0			0.0%	
最適化後の年 間平均効率	40.6%	45.6%	38.0%	—

(4) 部分負荷効率を考慮した基本構成(370gCO₂/kWh)

2030年想定の基本構成(370gCO₂/kWh)について部分負荷効率を考慮した最適化により再設定を実施した。また、この仮定において在来型の火力発電の最大効率についても最適化後の運転パターンから得られる年間平均効率が固定効率で用いた値と等しくなるように調整を行った(Table 27)。結果を効率固定の場合との比較で Table 28 に示す。設備設置量で見ると、効率可変の場合、石油火力が選択され、LNG 火力の設置量は減少、太陽光が減少、蓄電池が増加している。これらは火力発電の負荷率を高めた運転が有利になることから理解できる。再エネが減少しているにも関わらず、蓄電池からの放電が増加している理由は、ピーク対応として利用されているためである。部分負荷効率を考慮した基本構成での電源プロファイル、負荷率分布を Output 30 に示すが、再エネ余剰が無い時間帯にも蓄電池による充電が発生していることがわかる。蓄電池設置量が増加したことで再エネの抑制は起きない結果となっている。

Table 28 部分負荷効率を考慮した基本構成

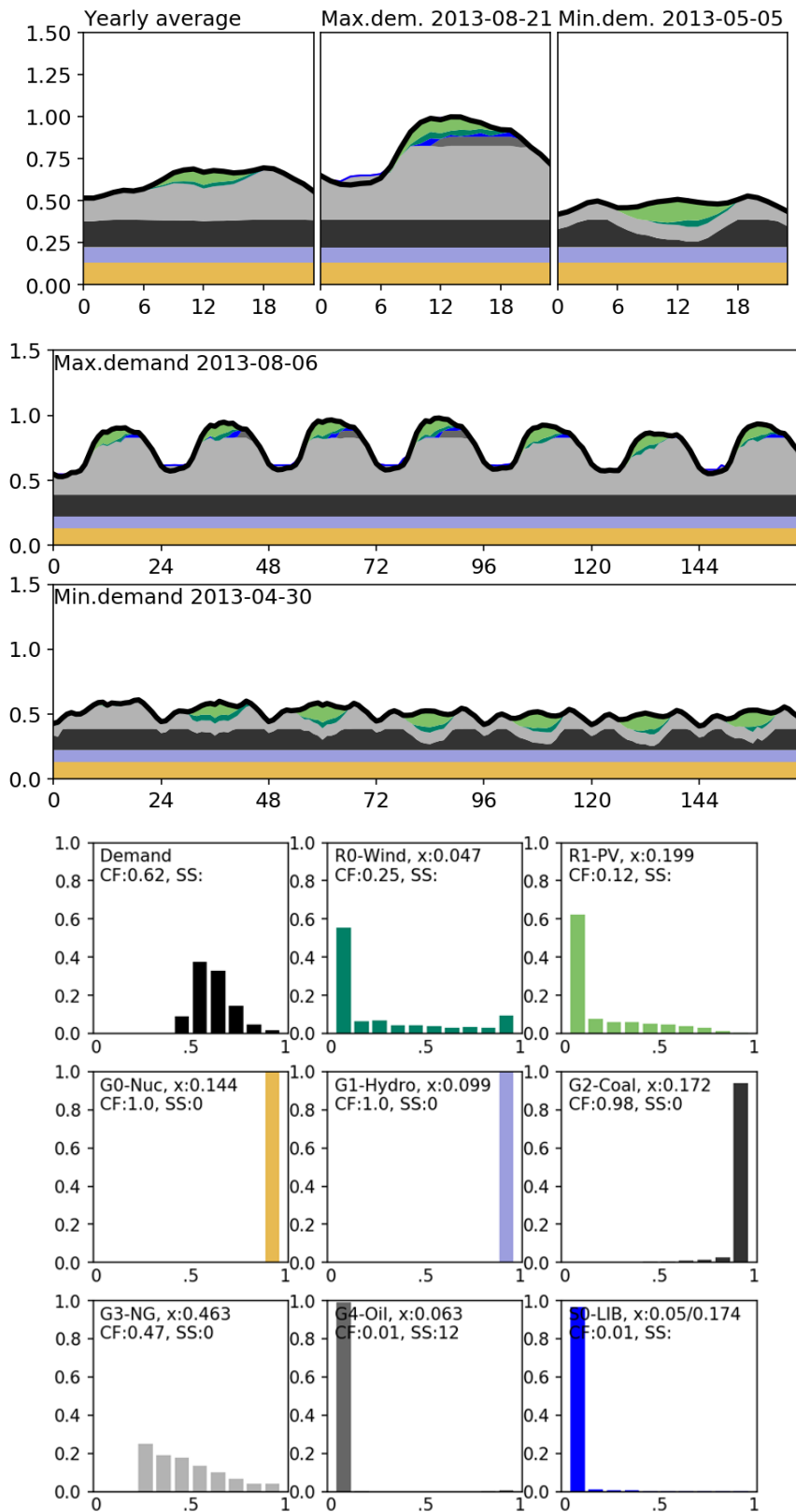
		基本構成 370gCO ₂ /kWh		
			最適化	
			効率固定	効率可変
設備設置量	原子力		0.144	0.144
	水力他		0.099	0.099
	石炭		0.200	0.199
	LNG		0.521	0.440
	石油		0.000	0.063
	風力		0.056	0.043
	太陽光		0.330	0.193
	蓄電池入出力 貯蔵	長期エネルギー 需給見通し	0.020	0.048
		0.035	0.164	
供給比率	原子力	21.0%	21.0%	21.0%
	水力他	15.0%	15.0%	15.0%
	石炭	26.0%	28.0%	29.4%
	LNG	27.0%	27.9%	29.3%
	石油	3.0%	0.0%	0.1%
	風力+太陽光	8.0%	8.1%	5.2%
	蓄電池	0.0%	0.02%	0.04%
余剰	蓄電池充電 出力抑制		0.2%	0.9%
			0.9%	0.0%

Output 30 基本構成(370 gCO₂/kWh)部分負荷効率考慮

370 gCO₂/kWh

(基本構成)

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.172
	LNG	0.463
	石油	0.063
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.000
	風力	0.000
	太陽光	0.000
	蓄電池入出力	0.047
	貯蔵	0.199
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	25.7%
	LNG	32.8%
	石油	0.1%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	0.0%
	風力+太陽光	5.4%
蓄電池	0.1%	
余剰	蓄電池充電	1.2%
	出力抑制	0.0%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	40.8
	LNG	47.3
	石油	10.7
	高効率LNG	0.0
	SOFC	0.0
	風力	12.3
	太陽光	24.0
	蓄電池入出力	2.7
	貯蔵	4.1
燃料費	原子力	19.5
	石炭	41.2
	LNG	171.4
	石油	0.5
	高効率LNG	0.0
SOFC	0.0	
費用計, \$/y	469.8	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.982
	LNG	0.465
	石油	0.006
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.000
蓄電池入出力	0.009	
排出量, tCO ₂ /y	2.02	
MAC, \$/tCO ₂	75.6	
電力単価, ¥/kWh	8.60	



(5) 高出力密度利用の効果(300gCO₂/kWh 制約)

基本構成(370gCO₂/kWh)から 300gCO₂/kWh への削減過程において、標準仕様および標準仕様の 1.5 倍の高出力密度で想定した高出力密度仕様の SOFC が、費用最小を与える最適解において選択されるそれぞれのコストを比較することで競争力を判断した。標準仕様における 2700\$/kW の設置量は 0.037 であるが、同等の設置量を高出力密度仕様では 2300\$/kW で得られている (Table 29)。この結果は、高出力密度仕様とすることで 15%以上のコストダウン(2300/2700)がシステムとして可能なら、そのような設計指針の可能性を示唆する。

Table 29 標準仕様と高出力密度仕様での最適設備設置量

CO2制約, gCO ₂ /kWh		300		370
		標準仕様	高出力密度仕様	2030年
仕様	最大発電効率	60%	60%	基本構成
	設備単価, \$/kW	2700	2300	
	寿命, 年	20	20	
設備設置量	原子力	0.144	0.144	0.144
	水力他	0.099	0.099	0.099
	石炭	0.150	0.150	0.199
	LNG	0.405	0.405	0.440
	石油	0.071	0.059	0.063
	SOFC	0.037	0.042	0.000
	風力	0.079	0.080	0.043
	太陽光	0.401	0.410	0.193
	蓄電池入出力	0.076	0.083	0.048
	貯蔵	0.249	0.280	0.164
供給比率	原子力	21.0%	21.0%	21.0%
	水力他	15.0%	15.0%	15.0%
	石炭	16.3%	16.3%	29.4%
	LNG	32.4%	34.0%	29.3%
	石油	0.0%	0.0%	0.1%
	SOFC	5.0%	3.2%	0.0%
	風力+太陽光	10.2%	10.3%	5.2%
	蓄電池	0.2%	0.2%	0.0%
余剰	蓄電池充電	2.0%	2.4%	0.9%
	出力抑制	0.5%	0.5%	0.0%

表中の各値は SOFC の電力供給比率を除き大きな違いはない。SOFC の供給比率は標準仕様の 5%に対し、高出力密度仕様では 3.2%と減少しているが、稼働状況の違いによるものである。 Fig.

40 は標準仕様の、Fig. 41 は高出力密度仕様の負荷率分布を示す。それぞれ右側の図は 8760 時間の負荷率を示す。標準仕様ではほとんどの時間が負荷率 90%稼働で年間稼働率(CF)は 89%、年間起動停止回数は 59 回となっている。高出力密度仕様ではほとんどの時間が負荷率 50%となり、夏場など需要の多い時にピーク対応として運転されているが、年間稼働率は 49%、年間起動停止回数は 57 回である。ピーク対応として利用される石油火力が標準仕様では基本構成から増加しているのに対し、高出力密度仕様では減少していることから (Table 29)、高出力密度仕様の SOFC が高効率発電機とピーク対応とを兼ねていることが覗える。負荷率分布が 90%と 50%に集中しているのは 10 区分の区分線形化で表現される効率が標準仕様、高出力密度仕様それぞれ 90%、50%で最大値を取っているためである。

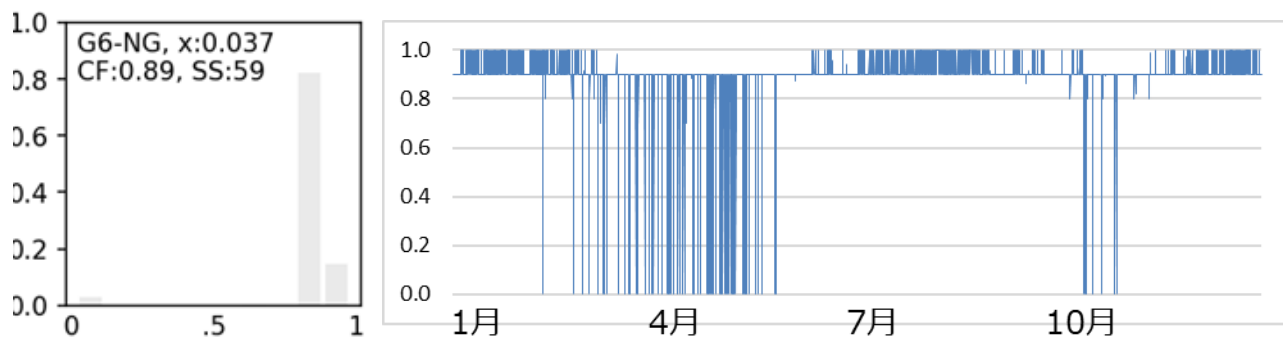


Fig. 40 標準仕様の負荷率分布

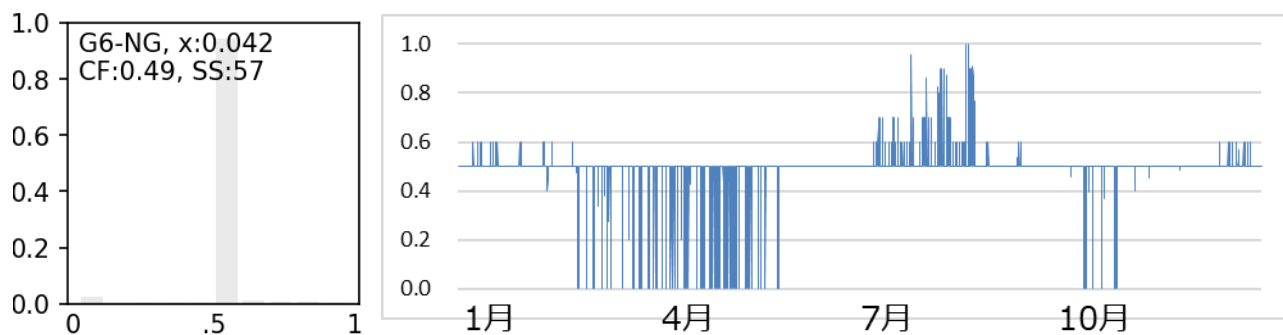


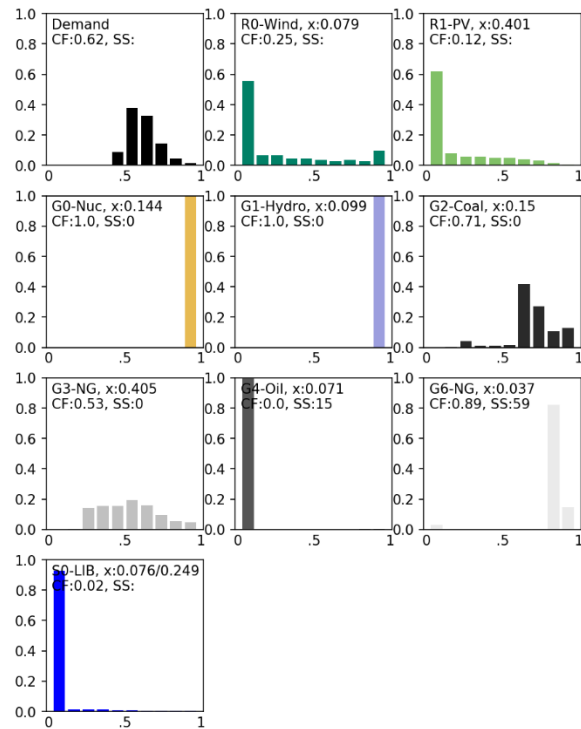
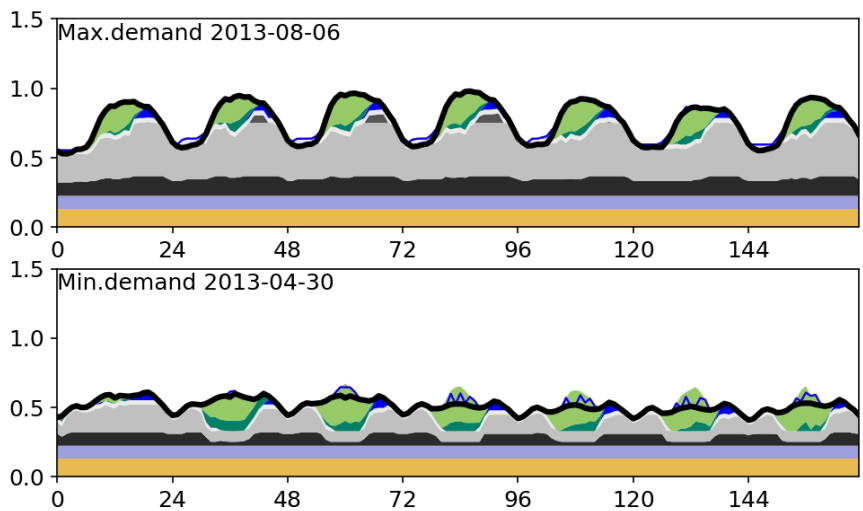
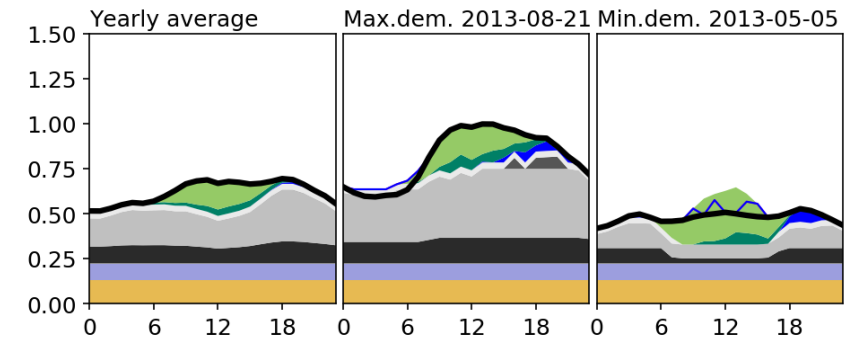
Fig. 41 高出力密度仕様の負荷率分布

Output 31 標準仕様 SOFC(300 gCO₂/kWh)部分負荷効率考慮(分散電源限定)

300 gCO₂/kWh

標準仕様 SOFC 効率：60% SOFC 設備費，寿命：2700\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.150
	LNG	0.405
	石油	0.071
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.037
	風力	0.000
	太陽光	0.037
	蓄電池入出力	0.079
	貯蔵	0.401
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	16.3%
	LNG	32.4%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	5.0%
	風力+太陽光	10.2%
	蓄電池	0.2%
余剰	蓄電池充電	2.0%
	出力抑制	0.5%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	35.7
	LNG	41.3
	石油	12.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	10.0
	風力	20.9
	太陽光	48.1
	蓄電池入出力	4.1
貯蔵	5.8	
燃料費	原子力	19.5
	石炭	26.8
	LNG	165.9
	石油	0.4
	高効率LNG	0.0
	SOFC	19.6
費用計, \$/y	505.3	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.714
	LNG	0.525
	石油	0.004
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.889
蓄電池入出力	0.018	
排出量, tCO ₂ /y	1.64	
MAC, \$/tCO ₂	0.0	
電力単価, ¥/kWh	9.25	

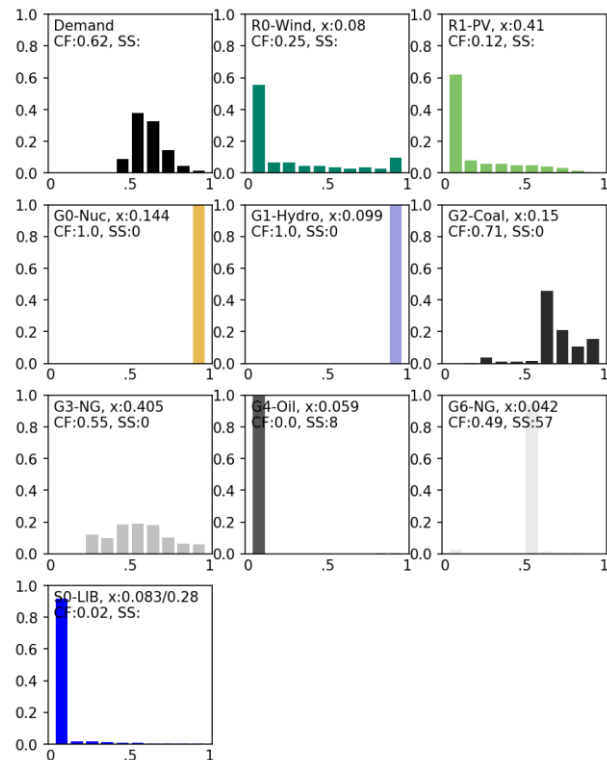
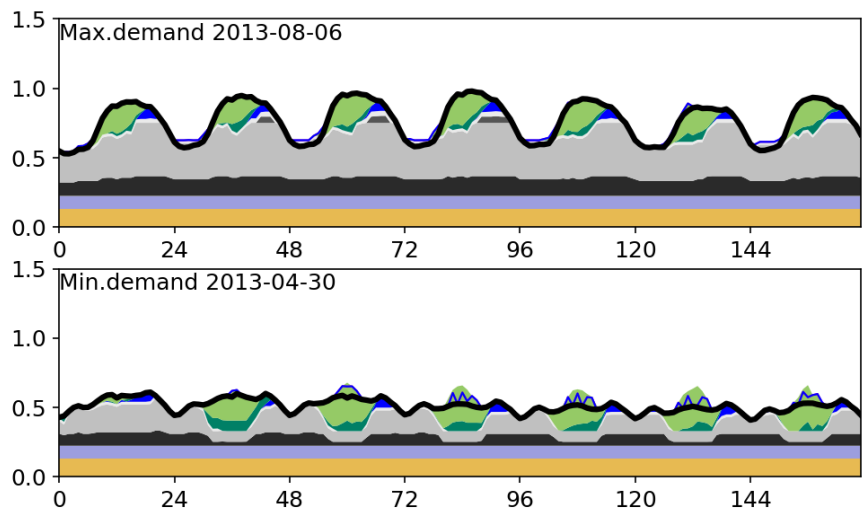
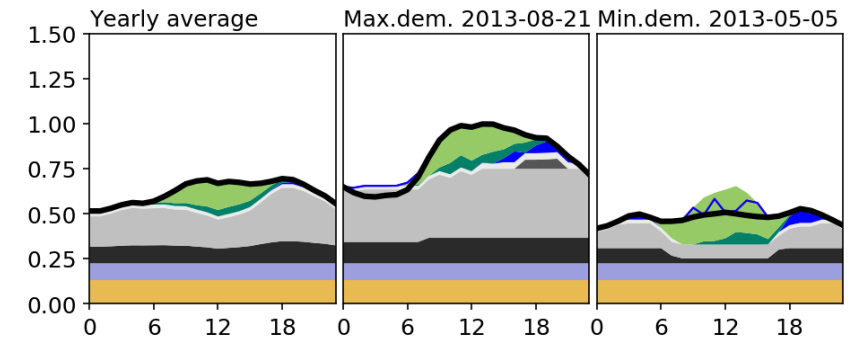


Output 32 高出力密度仕様 SOFC(300 gCO₂/kWh)部分負荷効率考慮(分散電源限定)

300 gCO₂/kWh

高出力密度仕様, 効率: 60% SOFC 設備費, 寿命: 2700\$/kW, 20y

設備設置量	原子力	0.144
	水力他	0.099
	石炭	0.150
	LNG	0.405
	石油	0.059
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.042
	風力	0.000
	太陽光	0.042
	蓄電池入出力 貯蔵	0.080 0.410
供給比率	原子力	21.0%
	水力他	15.0%
	石炭	16.3%
	LNG	34.0%
	石油	0.0%
	高効率LNG	0.0%
	SOFC	3.2%
	風力+太陽光	10.3%
	蓄電池	0.2%
余剰	蓄電池充電	2.4%
	出力抑制	0.5%
設備費	原子力	52.2
	水力他	43.2
	石炭	35.7
	LNG	41.3
	石油	10.0
	高効率LNG	0.0
	SOFC	9.7
	風力	21.2
	太陽光	49.3
	蓄電池入出力 貯蔵	4.4 6.5
燃料費	原子力	19.5
	石炭	26.8
	LNG	172.9
	石油	0.3
	高効率LNG	0.0
	SOFC	12.4
費用計, \$/y	505.4	
負荷率	原子力	1.000
	水力他	1.000
	石炭	0.715
	LNG	0.551
	石油	0.004
	高効率LNG	0.000
	SOFC	0.492
蓄電池入出力	0.021	
排出量, tCO ₂ /y	1.64	
MAC, \$/tCO ₂	0.0	
電力単価, ¥/kWh	9.26	



3. 研究発表，講演，特許の状況

平成 29 年 12 月 25 日 検討委員会報告

「固体酸化物型燃料電池等実用化推進技術開発に係る調査のための検討委員会」

平成 30 年 3 月 13 日 検討委員会報告

その他の発表，特許出願無し

4. Appendix

4.1 蓄電池と SOFC

4.1.1 蓄電池の諸元

公開情報 $a^{13)}$, $b^{16)}$, $c^{6)}$, $d^{17)}$, $e^{18)}$ から得られた蓄電池の諸元について、入出力部を Table 30 に貯蔵部を Table 31 に示す。本検討の全ての最適化計算で、入出力部 500\$/kW, 貯蔵部 150\$/kWh, AC/AC 効率 81%(90%×90%), 自己放電 0%/d を設定値として採用した。

Table 30 蓄電池の諸元(入出力部)

設備費 万円/kW	発電効率	寿命 年	想定年次	文献	Remarks
10	95%			<i>a</i>	効率はパワコンのロス, 充放電効率を含む
7.73			2020	<i>b</i>	
	88%			<i>c</i>	
	95%	20	2018	<i>d</i>	

Table 31 蓄電池の諸元(貯蔵部)

設備費 万円/kWh	自己放電 %/d	寿命 年	想定年次	文献	Remarks
2				<i>a</i>	
2.3			2020	<i>b</i>	
1			2030	<i>b</i>	EV用
	0.11%			<i>e</i>	
	.08-.16%	20	2018	<i>d</i>	
4			2010	<i>b</i>	
1.5			2030	<i>b</i>	

4.1.2 SOFC の諸元

公開情報 a^{24} , b^{28} , c^{29} , d^{30} から得られた SOFC の諸元一覧を Table 32 に、それらのプロットを Fig. 42 に示す。プロット中の実線は本検討において設定した範囲を示す。

Table 32 SOFC の諸元

設備費 万円/kW	発電効率		寿命 年	年間設備費 \$/kW/y	想定年次	文献	Remarks
	HHV	LHV					
51	50.5%	56.0%	10	762.5	2020	<i>a</i>	円筒平板 700W
16	52.3%	58.0%	12.5	207.2	2020	<i>b</i>	円筒横縞 220 kW
32	55.9%	62.0%	15	372.3	2030	<i>a</i>	円筒平板 700W
10	54.1%	60.0%	20	100.2	2030	<i>b</i>	円筒横縞 220 kW
31	55.9%	62.0%	15	360.7	2030	<i>a</i>	マイクロチューブ 700W
19	53.2%	59.0%	20	187.5	2020	<i>c</i>	平板 10 kW CHP (DOE)
11	53.2%	59.0%	20	110.3	2020	<i>c</i>	平板 100-250 kW CHP (DOE)
50	49.6%	55.0%	15	581.7	2025	<i>d</i>	業務用 数kW級
50	54.1%	60.0%	15	581.7	2040	<i>d</i>	
50	49.6%	55.0%	15	581.7	2025	<i>d</i>	業務用 数10~数100 kW級
30	49.6%	55.0%	15	349.0	2025	<i>d</i>	数10 MW/年 生産ケース
30	63.1%	70.0%	15	349.0	2040	<i>d</i>	

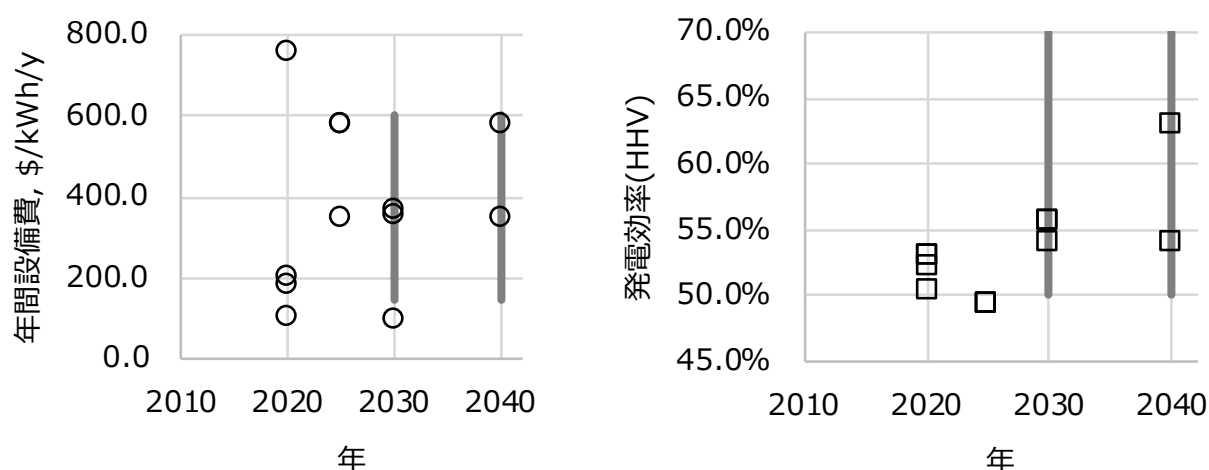


Fig. 42 公開情報からの SOFC の諸元と検討で設定した範囲

4.2 実行環境とパフォーマンス

本エネルギーモデルでは、発電効率固定の場合を LP(線形計画問題)として、発電効率可変の場合を MILP(混合整数計画問題)として扱った。最適化計算はソルバーには Gurobi Optimizer 7.5³¹⁾ を、モデリングには Gurobi の Python-API³¹⁾ を、データの入出力には Excel とその API としての xlwings³²⁾ を用いた。Fig. 43 はいくつかの最適化について、スレッド数に対する計算時間の逆数を相対値でプロットしたものである。4~8 スレッドにピークを持つ場合が多い。この結果から、最適化計算は 4 コアの計算機または利用スレッド数を 4 に限定して実施した。複数台の計算機を用い効率固定で 1000 ケースをこえる最適化を、効率可変で数十ケースの最適化を実施した。計算時間は 1 ケースあたり効率固定の数分に対し、効率可変の場合には 8~60 時間を要し、モデルの改善、ソルバーパラメータの最適化、並列化効率の向上は今後の課題である。

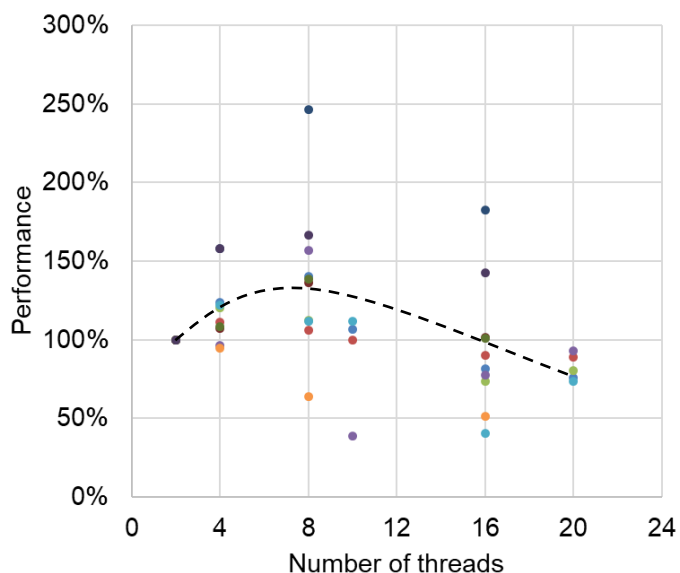
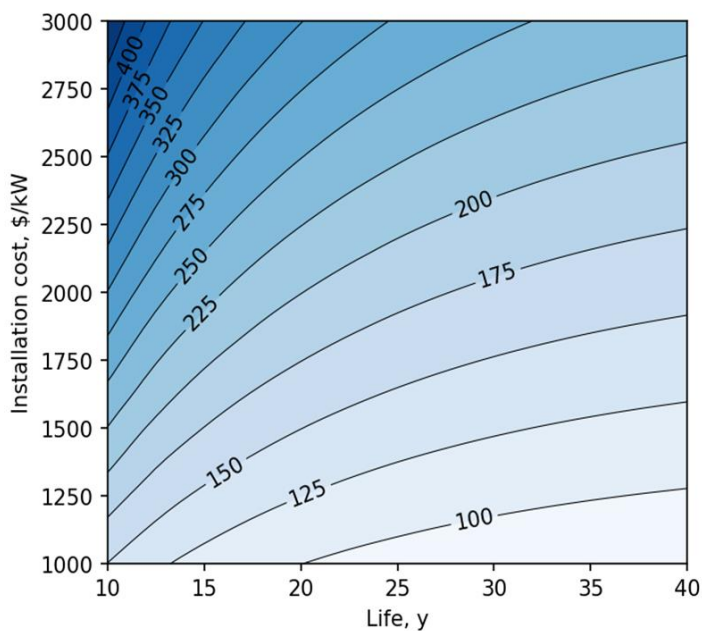


Fig. 43 並列化効率に関する検討

4.3 年間設備費換算

Table 33 設備費・設備寿命と年間設備費(割引率：5%, O&M：設備費の2%/年)

	設備寿命, 年					
	5	10	15	20	25	30
1500	376	224	175	150	136	128
1600	402	239	186	160	146	136
1700	427	254	198	170	155	145
1800	452	269	209	180	164	153
1900	477	284	221	190	173	162
2000	502	299	233	200	182	170
2100	527	314	244	211	191	179
2200	552	329	256	221	200	187
2300	577	344	268	231	209	196
2400	602	359	279	241	218	204
2500	627	374	291	251	227	213
2600	653	389	302	261	236	221
2700	678	404	314	271	246	230
2800	703	419	326	281	255	238
2900	728	434	337	291	264	247
3000	753	449	349	301	273	255
3100	778	463	361	311	282	264
3200	803	478	372	321	291	272
3300	828	493	384	331	300	281
3400	853	508	396	341	309	289
3500	878	523	407	351	318	298
3600	904	538	419	361	327	306
3700	929	553	430	371	337	315
3800	954	568	442	381	346	323
3900	979	583	454	391	355	332
4000	1004	598	465	401	364	340



4.4 参考資料

- 1) METI, 長期エネルギー需給見通し（確報）, 長期エネルギー需給見通し. (2015) 0-12.
- 2) 資源エネルギー庁, コスト検証WGの結果とIEA、Fraunhoferの報告書の比較, 発電コスト検証ワーキンググループ. 第7回会合 (2015).
- 3) IPCC Working Group III Contribution to AR5, Annex III: Technology-specific cost and performance parameters., Clim. Chang. 2014 Mitig. Clim. Chang. (2014) 1329-1356.
- 4) DOE, Hydrogen for Energy Storage, Hann. Messe 2014. (2014).
- 5) IEA, Hydrogen and Fuel Cells, Technol. Roadmap. (2015) 81.
- 6) Fuel Cells and Hydrogen Joint Undertaking, Commercialisation of energy storage in Europe, Commer. Energy Storage Eur. -March (2015).
- 7) IEA, World Energy Outlook 2016, (2016).
- 8) E.M. Series, Electricity Market Series Re-powering Markets Market design and regulation during the transition to low-carbon power systems, (n.d.).
- 9) 環境省, 再生可能エネルギーの導入ポテンシャルの地域別集計表, (2016).
- 10) NEDO, 日射量データベース, (n.d.).
- 11) 山本博巳, 坂東茂, 杉山昌広, 火力発電の複数の運転モードと需給調整力を考慮した電源構成モデルの開発, 電力中央研究所報告. -Y12030 (2013).
- 12) 気象庁, 過去の気象データ検索, (n.d.).
- 13) 小宮山涼一, 大槻貴司, 藤井康正, 再生可能エネルギー余剰電力の水素貯蔵を考慮に入れた最適電源構成の検討, 電気学会論文誌B. 134 -10 (2014) 885-895.
- 14) 資源エネルギー庁, 火力発電に係る判断基準ワーキンググループ 最終取りまとめ, 総合資源エネルギー調査会 省エネルギー・新エネルギー分科会省エネルギー小委員会. (2016) 1-42.
- 15) 資源エネルギー庁, 各電源の諸元一覧, 発電コスト検証ワーキンググループ. 第7回会合 (2015) 0-19.
- 16) NEDO, 二次電池技術開発ロードマップ2013, (2013).
- 17) 栗坂昌克, 横山昌央, 蓄電池併設型太陽光発電用パワーコンディショナ「ラインバックマイスター」の開発, GS Y Uasa Technical Rep. 14 -1 (2017).
- 18) Y. Seyama, T. Shimozono, K. Nishiyama, H. Nakamura, T. Sonoda, Development of Large-scale Lithium Ion Batteries “LIM series” for Industrial Applications, GS News Tech. Rep. 62 -2 (2003).
- 19) JHFC, Japan Hydrogen & Fuel Cell Demonstration Project, 燃料電池システム等実証研究（第2期JHFCプロジェクト）報告書, 第2期JHFCプロジェクト Stage 2 Demonstr. Proj. Rep. (2011).

- 20) NEDO, ロードマップ詳細版(水素), 燃料電池・水素技術開発ロードマップ2010. (2010) 13-26.
- 21) 日本自動車研究所, 総合効率と GHG 排出の分析, 総合効率検討作業部会. (2010).
- 22) E. Sutherland, A. Elgowainy, S. Dillich, H2 Delivery Cost Projections – 2013, DOE Hydrog. Fuel Cells Progr. Rec. Record #: (2013) 1-4.
- 23) 秋元圭吾, 佐野史典, 我が国の2050年排出削減目標に関する分析, エネルギー・資源. 38 -1 (2016) 1-9.
- 24) 低炭素社会戦略センター, 固体酸化物形燃料電池システム 要素技術の構造化に基づく定量的技術シナリオと科学・技術ロードマップ, イノベーション政策立案のための提案書. -LCS-FY2013-PP-04 (2015).
- 25) M. Rashid, Power Electronics Handbook 4th Edition, 2018.
- 26) 山本博巳, 矢部邦明, 坂東茂, 永井雄宇, 再生可能エネルギーの大量導入が電源の設備量と運転モードに及ぼす影響評価, 電力中央研究所報告. 研究報告 : Y14 (2014).
- 27) 火力原子力発電技術協会, http://www.nikkeipr.co.jp/pvjapan/2_ST-02-3.pdf, 太陽光発電大量導入時代の火力発電. (n.d.).
- 28) 低炭素社会戦略センター, 固体酸化物形燃料電池システム (Vol.2) –中・大型機SOFC製造コスト評価と技術開発課題–, イノベーション政策立案のための提案書 技術開発編. -LCS-FY2014-PP-05 (2015).
- 29) R. Scataglini, A Total Cost of Ownership Model for Solid Oxide Fuel Cells in Combined Heat and Power and Power-Only Applications, -September (2015) 6-11.
- 30) NEDO, 燃料電池・水素技術開発ロードマップ 詳細版 (燃料電池分野), (2017).
- 31) <http://www.gurobi.com>, Gurobi Optim. (n.d.).
- 32) <https://www.xlwings.org>, Xlwings. (n.d.).

4.5 添付ファイル(最適化出力)

ファイル		シート	
FC370std.xlsx	基本構成	InpA1	電力需要, PV発電, 風力発電8760時間分
		InpA2	構成機器の諸元, 最適化結果
		rawA	最適化結果, 各機器の入出力8760時間分
FC350.xlsx	350g制約	C350E50	発電効率50%
		C350E55	発電効率55%
		C350E60	発電効率60%
		C350E65	発電効率65%
		C350E70	発電効率70%
		InpA2	発電効率60%
FC325E60.xlsx	325g制約	InpA2	発電効率60%
FC325E65.xlsx	325g制約	InpA2	発電効率65%
FC325E70.xlsx	325g制約	InpA2	発電効率70%
FC300E60.xlsx	300g制約	InpA2	発電効率60%
FC300E65.xlsx	300g制約	InpA2	発電効率65%
FC300E70.xlsx	300g制約	InpA2	発電効率70%
FC185.xlsx	185g制約	C185E50	発電効率50%
		C185E55	発電効率55%
		C185E60	発電効率60%
		C185E65	発電効率65%
		C350E50	発電効率50%
		C350E55	発電効率55%
FC350opt.xlsx	分散電源限定, 350g制約	rawA55	同上, 時間毎詳細出力
		C350E60	発電効率60%
		C350E65	発電効率65%
		C350E70	発電効率70%
		C300E50	発電効率50%
		C300E55	発電効率55%
FC300opt.xlsx	分散電源限定, 300g制約	C300E60	発電効率60%
		C300E65	発電効率65%
		C300E70	発電効率70%
		C185opt50	発電効率50%
		C185opt55	発電効率55%
		rawA E55	同上, 時間毎詳細出力
FC185opt.xlsx	分散電源限定, 185g制約	C185opt60	発電効率60%
		C185opt65	発電効率65%

ファイル		シート	
FC350nuc.xlsx	ケーススタディ, 原子力比率	基本構成N10	原子力比率10%の基本構成(370g制約)
		C350N10E50	原子力比率10%, 350g制約, 発電効率50%
		C350N10E55	原子力比率10%, 350g制約, 発電効率55%
		C350N10E60	原子力比率10%, 350g制約, 発電効率60%
		C350N10E65	原子力比率10%, 350g制約, 発電効率65%
		基本構成N30	原子力比率30%の基本構成(370g制約)
		C350N30E50	原子力比率30%, 350g制約, 発電効率50%
		C350N30E55	原子力比率30%, 350g制約, 発電効率55%
		C350N30E60	原子力比率30%, 350g制約, 発電効率60%
		C350N30E65	原子力比率30%, 350g制約, 発電効率65%
FC350Fuel.xlsx	ケーススタディ, 燃料価格	基本構成FH	高位燃料価格での基本構成 (370g制約)
		基本構成FL	低位燃料価格での基本構成 (370g制約)
		C350FLE50	低位燃料価格, 350g制約, 発電効率50%
		C350FLE55	低位燃料価格, 350g制約, 発電効率55%
		C350FLE60	低位燃料価格, 350g制約, 発電効率60%
		C350FLE65	低位燃料価格, 350g制約, 発電効率65%
		C350FH50	高位燃料価格, 350g制約, 発電効率50%
		C350FH55	高位燃料価格, 350g制約, 発電効率55%
		C350FHE60	高位燃料価格, 350g制約, 発電効率60%
		C350FHE65	高位燃料価格, 350g制約, 発電効率65%
VC370std.xlsx	部分負荷考慮, 基本構成	基本構成fix	効率固定による基本構成
		基本構成var	部分負荷考慮による基本構成
VC350E60.xlsx	部分負荷考慮, 350g制約	240E60	部分負荷考慮, 効率60%, 高出力密度仕様, コスト2400\$/kW
		230E60	部分負荷考慮, 効率60%, 高出力密度仕様, コスト2300\$/kW
		rawA(4)	同上, 時間毎詳細出力
		280E60ST	部分負荷考慮, 効率60%, 標準仕様, コスト2800\$/kW
		rawA(7)	同上, 時間毎詳細出力
		270E60ST	部分負荷考慮, 効率60%, 標準仕様, コスト2700\$/kW
		rawA(2)	同上, 時間毎詳細出力

(6. 4. 0) 「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発／SOFCに関して用途の実用化、商品性向上に向けた調査事業／一シミュレーション解析によるエネルギーインフラ評価・解析一」

●**成果サマリ(実施期間：平成30年度～平成31年度終了(予定))**
 ・電力システムにおける経済性向上、CO2排出量削減に向けたSOFCの価値の評価を行う。I. 特定街区内または集合住宅内のミクロなエネルギーシステムモデル、II. 市町村地域レベルのエネルギー供給システムを想定した系統全体の電力システムモデルを開発した。(2月時見込み)
 ・開発したモデルでは、有識者との意見交換等を踏まえ、SOFCの部分負荷特性、負荷追従性等の諸性能、コスト等の技術動向を反映した。(2月時見込み)

●**背景/研究内容・目的**
 本事業では、SOFCが競争力を有するための発電効率と部分負荷特性、負荷追従性、設備コストと寿命に関する仕様を定量化する。特に、最新の状況を考慮し、電力システムの運営上想定される需給調整面における問題点に着目し、SOFCの導入による電力システム全体の経済性と系統安定性の向上度を評価する。また、別途進んでいる「固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究」と緊密に連携することにより、本調査研究におけるシステム評価の信頼性を向上させ、SOFCの技術開発目標と共に、新たなSOFCの価値を創造することを目的とする。

●**研究目標**

実施項目	目標
①文献及び学会等による最新技術動向調査	文献、学会論文の情報等を通じて、SOFC技術に関する最新動向調査を行う。
②有識者検討会	有識者検討会を通じて、SOFC技術に関する最新動向調査を行う。
③モデルインプットデータの収集・加工	開発モデルに必要なインプットデータの収集・加工を行う。
④3つのモデルの分析	SOFCの経済性向上と電力系統安定化への貢献度を評価する電力システムモデル(3つ)を開発する。
⑤SOFCの価値評価	SOFCの「電力システムの経済性向上への貢献度」、「電力システムのCO ₂ 排出量に対する貢献度」を評価する。

●**これまでの実施内容／研究成果**

実施項目	成果内容	自己評価
①文献及び学会等による最新技術動向調査	国内外の文献を70程度調査し、文献に記されている主な内容について調査し、それぞれの文献に記載されている内容について、項目ごとに分類し、表形式で整理した。	○
②有識者検討会	九州大学の「固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究」推進チームと意見交換会を実施した。	○
③モデルインプットデータの収集・加工	本事業で開発する3つのモデル(I. 特定街区内または集合住宅内のミクロなエネルギーシステムモデル、II. 市町村地域レベルのエネルギー供給システムを表すモデル、III. 一般電気事業者を想定した系統全体の電力システムモデル)の三通りのエネルギーシステムモデルに必要なインプットデータを収集し、モデルに入力可能な形で加工した。	○
④3つのモデルの分析	上記の三通りのエネルギーシステムモデルを用いて、トータルシステムとしての費用構造の分析を行った。I～IIIの各々の再生可能電源を含むエネルギーシステムにおいて、優れた負荷追従性と部分負荷時の効率特性を有するSOFCを経済性向上と電力系統安定化への貢献度を定量的に評価する基本システムを構築した。	◎
⑤SOFCの価値評価	「II. 市町村地域レベルのエネルギー供給システムを表すモデル」を対象に、事業価値を算出するためのPL(損益計算書)、CF(キャッシュフロー計算書)のベースモデルを作成した。各モデルにおけるCO ₂ 排出削減量を算出した。	○

●**今後の課題**
 各モデルの連携や需給調整市場における調整力コストの反映など、より現実的な事業を想定した評価を行う。

特許出願	論文発表	外部発表	受賞等
0	2	6	0

(※2019年度7月31日現在)

●**実施体制及び分担等**

NEDO	国立大学法人東京大学大学院 工学系研究科(実施項目②、④、⑤)	
		(協)イーコンサル(実施項目①、②、③、④)

課題番号：6. 4. 口

研究開発名：「固体酸化物形燃料電池等実用化推進技術開発／SOFCに関して用途の実用化、商品性向上に向けた調査事業／—シミュレーション解析によるエネルギーインフラ評価・解析—」

1. 研究開発概要

本事業では、エネルギーシステム全体の評価の観点から SOFC が競争力を有するための発電効率と部分負荷特性、負荷追従性、設備コストと寿命に関する仕様を定量化する。特に、最新の状況を考慮し、電力システムの運営上想定される需給調整面における問題点に着目し、SOFC の導入による電力システム全体の経済性と系統安定性の向上度を評価することにより、SOFC の技術開発目標と共に、新たな SOFC の価値を創造することを目的とする。この SOFC の価値とは、「電力システムにおけるインバランスの補償に対する貢献度」、「電力システムの経済性向上への貢献度」「電力システムの CO₂ 排出量に対する貢献度」等であり、この各項目を定量的に明らかにする。

2030 年を想定し、SOFC の部分負荷特性を考慮した三通りのエネルギーシステムモデル（①特定街区内または集合住宅内のミクロなエネルギーシステムモデル、②市町村地域レベルのエネルギー供給システムを表すモデル、③一般電気事業者を想定した系統全体の電力システムモデル）を開発し、トータルシステムとしての費用構造を分析する。

2. 研究開発目標（設定の理由も含め）

研究開発の目標について、開発ごとの研究開発目標を表1 に示す。

表 1 開発項目別目標

実施項目	目標
①文献及び学会等による最新技術動向調査	文献、学会論文の情報等を通じて、SOFC 技術に関する最新動向調査を行う。
②有識者検討会	有識者検討会を通じて、SOFC 技術に関する最新動向調査を行う。
③モデルインプットデータの収集・加工	開発モデルに必要なインプットデータの収集・加工を行う。
④3つのモデルの分析	SOFC の経済性向上と電力系統安定化への貢献度を評価する電力システムモデル（3つ）を開発する。
⑤SOFC の価値評価	SOFC の「電力システムの経済性向上への貢献度」、「電力システムの CO ₂ 排出量に対する貢献度」を評価する。

3. 研究開発成果

3.1 研究開発成果、達成度

（1）文献及び学会等による最新技術動向調査

国内外の文献を 70 程度調査し、文献に記されている主な内容について調査した。具体的な情報源としては、「International Journal of Hydrogen Energy」等の国際専門誌とともに、国内外の水素・燃料電池関連プロジェクト（英国の H₂FC SUPERGEN 等）である。それぞれの文献に記載されている内容について

て、項目ごとに分類し、表形式で整理した。

(2) 有識者検討会

①九州大学との意見交換

九州大学大学院工学研究院機械工学部門水素エネルギーシステム専攻 伊藤衡平教授の「固体酸化物形燃料電池の耐久性迅速評価方法に関する基礎研究」推進チームと2019年1月16日、3月11日の2回、意見交換会を実施した。各研究チームの研究内容の共有、本調査で分析を行うエネルギーシステムモデルにおいて評価されたSOFCの部分負荷特性、負荷追従性等の諸性能について必要となる情報の抽出、議論を行った。

②SOFC技術に関する海外動向調査

SOFC技術に関する海外動向調査として、下記のカンファレンスにおいて、研究発表および意見交換等を行った。

■GREEN2018 (2018年12月21日から24日)

次世代型超高効率燃料電池(プロトン型SOFC)の最新動向についての研究発表および意見交換(エネルギー関連材料の研究交流と情報収集)

■SmartMaterials2019 (2019年3月6日～8日)

次世代型超高効率燃料電池用の電解質新材料の開発とセル設計についての研究発表および意見交換(燃料電池を含むエネルギー変換デバイスやエネルギー貯蔵技術に関連して、材料やデバイスに関する研究について)

(3) モデルインプットデータの収集・加工

①I. 特定街区内または集合住宅内のマイクロなエネルギーシステムモデル

マイクロエネルギーシステムモデルでは、30軒の家庭における実際の電力需要データを用いて、発電のみを行う750W出力のSOFC燃料電池を導入した際の家庭にとって最も経済性の高い運転パターンと、それによる年間の経済メリットを計算した。時間の分解能を30分とし、3種類(夏期・冬期・中間期)の季節、2種類(平日・休日)の曜日の6種類の代表日についての30軒の電力需要を入力データとして分析を行うにあたり、家庭の電力需要データ、電気料金等の入力データを設定した。家庭向けの電力価格は、基本料金と従量料金という従来の形式ではなく、現在進展する料金体系の自由化を想定し、基本料金は廃止し、従量料金のみと、27円/kWhと想定した。また、上げ調整力については、30分以内に1kWhを上げる調整に対し、15円/kWhが報酬として追加されるものと設定した。これは、kWh発電によって得られるメリット(27円/kWh相当の価値)に加えて、家庭が得ることができるものである。なお、家庭の電力需要データは、家庭の実際の電力需要を計測した「i-cosmos (アイコスモス)」¹のデータを用いた。

②II. 市町村地域レベルのエネルギー供給システムを表すモデル

市町村地域レベルのエネルギー需給モデルでは、時間の分解能を30分とし、3種類(夏期・冬期・中間期)の季節、2種類(平日・休日)の曜日、3種類(大・中・小)の日射量の組み合わせによる代表日を設定することにより、地域新電力事業者の年間のエネルギー需給と収支を分析した。分析にあたり、モデルへのインプットとなるデータを収集した。エネルギー需要に関しては、高圧を20,000kW、低圧を10,000kWとしたうえで、新電力事業者の需要計画値を参考に各代表日の需要を設定した。エネルギー供給については、電力卸取引市場(JEPX)と太陽光発電(住宅用・非住宅用)から調達することとし、2017年2月、5月、8月のJEPXの実績値を用いた。非住宅用PVの調達価格はJEPXに連動すると仮定し、住宅用PVの調達価格は(株)スマートテックの卒FIT世帯向け電力買取サービス「スマートFIT」の価格8円/kWhを引用した。SOFCの電力の買取価格は大阪ガスのエネファームの余剰電力買取価格を参考に設定した。なお、常時バックアップは廃止を想定した。

地域新電力事業における入力データ例を図1に示す。

¹家庭と双方向にコミュニケーションを持つことを可能とするWEBサービスで、23自治体(関東地域22自治体、関西地域1自治体)の一般家庭229世帯の電力需要データ(出所:国立研究開発法人科学技術振興機構(JST)低炭素社会戦略センター(LCS))

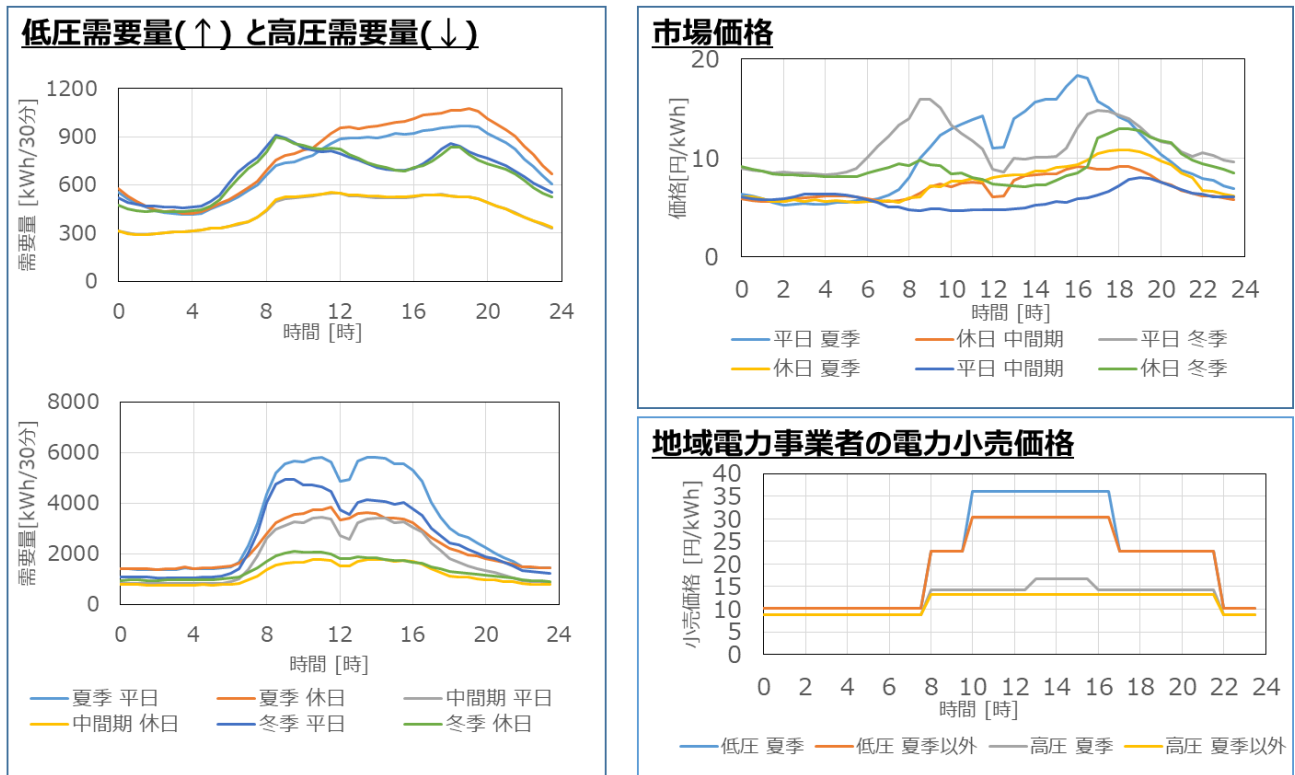


図1 地域新電力事業における入力データ例

③Ⅲ. 一般電気事業者を想定した系統全体の電力システムモデル

電力システムモデルの評価では、時間の分解能を30分とし、3種類（夏期・冬期・中間期）の季節、2種類（平日・休日）の曜日、3種類（大・中・小）の日射量の組み合わせによる代表日を設定することにより、九州地域の年間を通じた電力システムの発電単価、CO2排出量、太陽光発電の抑制量、および市場からの調整力の調達量を最適化により求める。これらの前提条件に必要となる情報として、九州電力の電源構成、2017年2月、5月、8月のJEPXの実績値、太陽光発電、風力発電の発電データおよび予測誤差²等のデータを収集・整理した。

(4) 3つのモデルの分析

①Ⅰ. 特定街区内または集合住宅内のミクロなエネルギーシステムモデル

マイクロエネルギーシステムモデルでは、0) 系統から電力を100%購入する場合(ベースケース)と比べて、1) 750Wの燃料電池を導入し自家消費目的のみに発電した場合、2) 上げ調整力としての報酬も得る可能性がある場合、の2ケースについて計算した。また、家庭の電力需要データとして、「i-cosmos」のデータから、現状のSOFCの稼働状況を把握し、調整力市場に参加することで、SOFCの稼働率の関係を詳細に分析した。

②Ⅱ. 市町村地域レベルのエネルギー供給システムを表すモデル

地域の新電力事業者によるFIT終了後の太陽光発電とSOFCの活用の事業性評価を目的とし、市町村地域レベルのエネルギー需給モデルを構築した。事業モデルの概要を図2に示す。地域電力事業者の利益を最大化する最適化問題として定式化し、電力需要と太陽光発電調達の計画値を外生変数とし、SOFCと市場調達の計画値を内生的に決定するモデル構造となっている。FIT終了後の住宅用PVを調達する際の予測誤差をSOFCの出力制御により補償することで、インバランスを考慮した新電力事業者の利潤が最大化される。既往の文献³を参考に、住宅用

² 高橋雅仁、松橋隆治 “重回帰分析を用いた系統エリア大の風力発電・太陽光発電の出力予測と予測誤差特性の分析,”エネルギー資源学会論文誌, 38, 5, 2017.

³ 国立研究開発法人科学技術振興機構 低炭素社会戦略センター, “地域電力事業者の運用改善のための蓄電資源導入に関する研究”, 2018.

PVの予測誤差をラプラス分布に基づき6つの確率帯に離散化し、新電力事業者の利潤の期待値が最大となるSOFCの運転パターンを推計した。

SOFCに関しては、家庭用SOFCの0~210kW（700W/台×0~300台）の導入を想定した。コジェネはせず発電のみで運転し、余剰電力を事業者が設置世帯から買い取ることにした。一度停止すると運転再開の際に再度セラミックを高温にする必要があり故障の原因となることから、住宅用PVの予測誤差に応じて出力を上げ下げしながら常時運転する。1台当たりの出力の下限を200W、上限を700Wに設定した。

モデルによる計算の結果、SOFCの出力の増加にしたがい、インバランスの残留率は減少し、新電力事業者の利益が増加した。太陽光発電のない夜間においては、SOFCの運転パターンは、市場価格とSOFC電力調達価格の比較によって決まり、市場価格の方が安ければ最小出力、高ければ最大出力となった。また、太陽光発電のある昼間は、予測誤差の補償を見込んで、出力に余力を残した運転計画となるが、日射量が小さく市場価格が高い場合には出力は上限に張り付いた。SOFCの容量別に算出した新電力事業の収益とインバランス残留率について、図3に示す。また、経済性効果SOFCの運転パターン例を図4、図5に示す。さらに、SOFCの容量別に算出したSOFCの導入効果として、インバランス補償量を表2、CO2削減量を表3に示す。

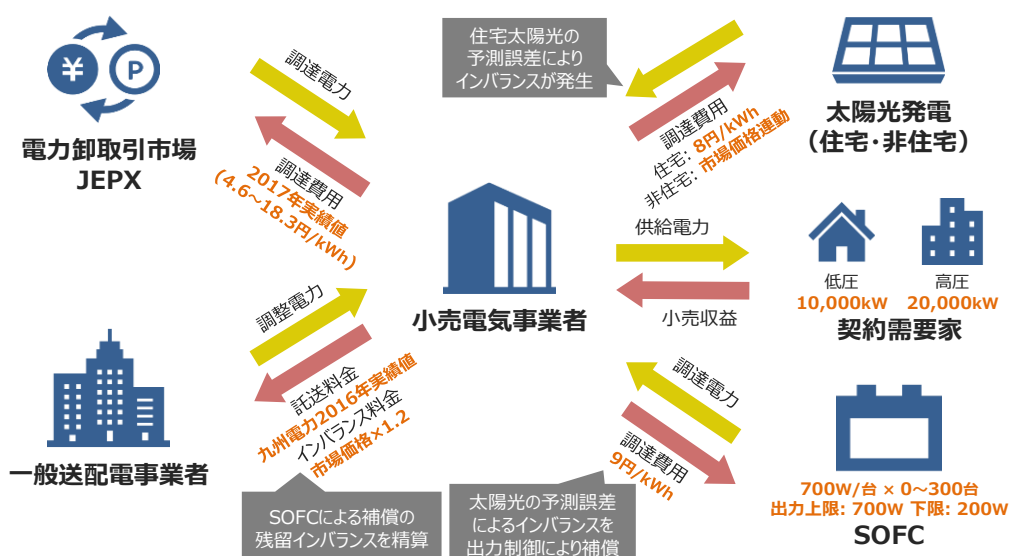


図2 市町村レベルのモデルの概要

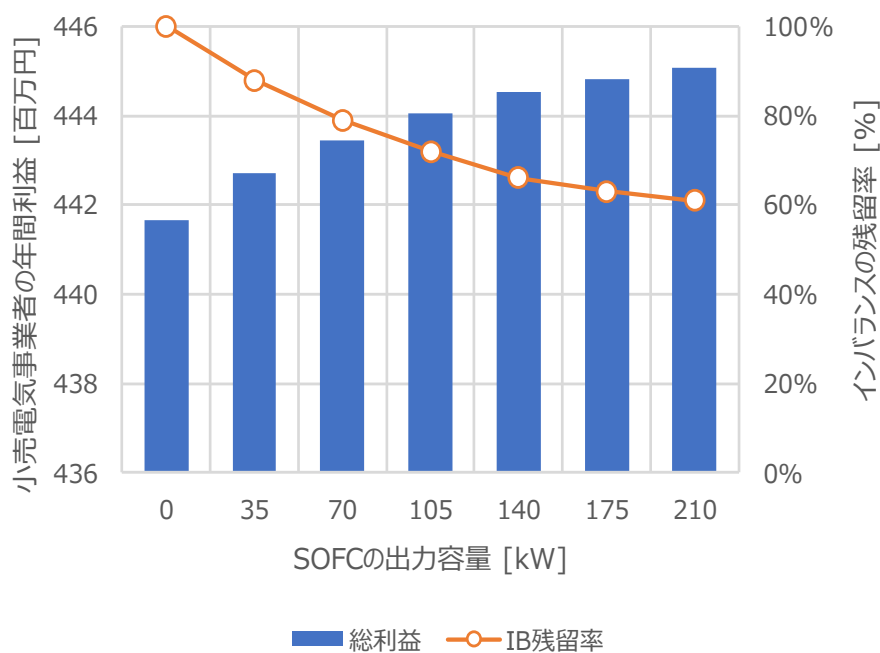


図3 SOFCの導入量別の収益とインバランス

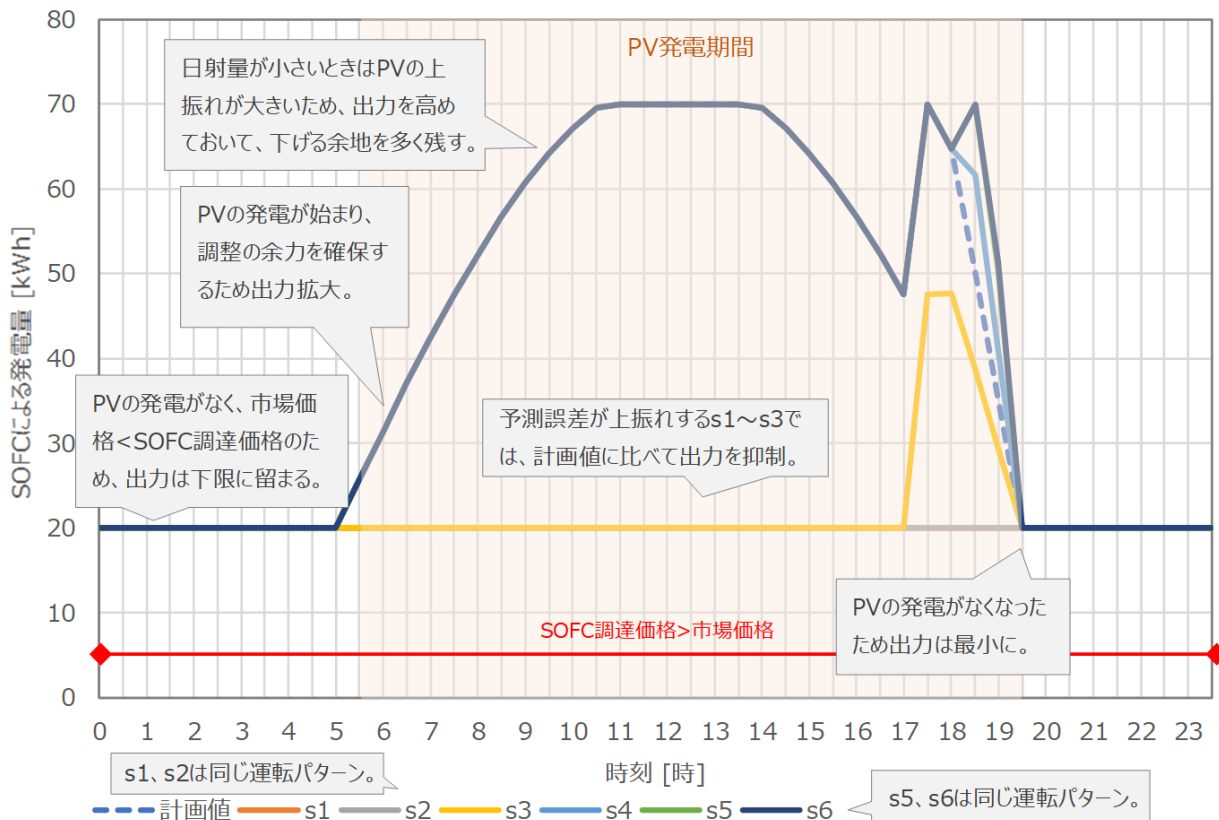


図4 SOFCの運転パターン例（中間期・休日・日射量小）

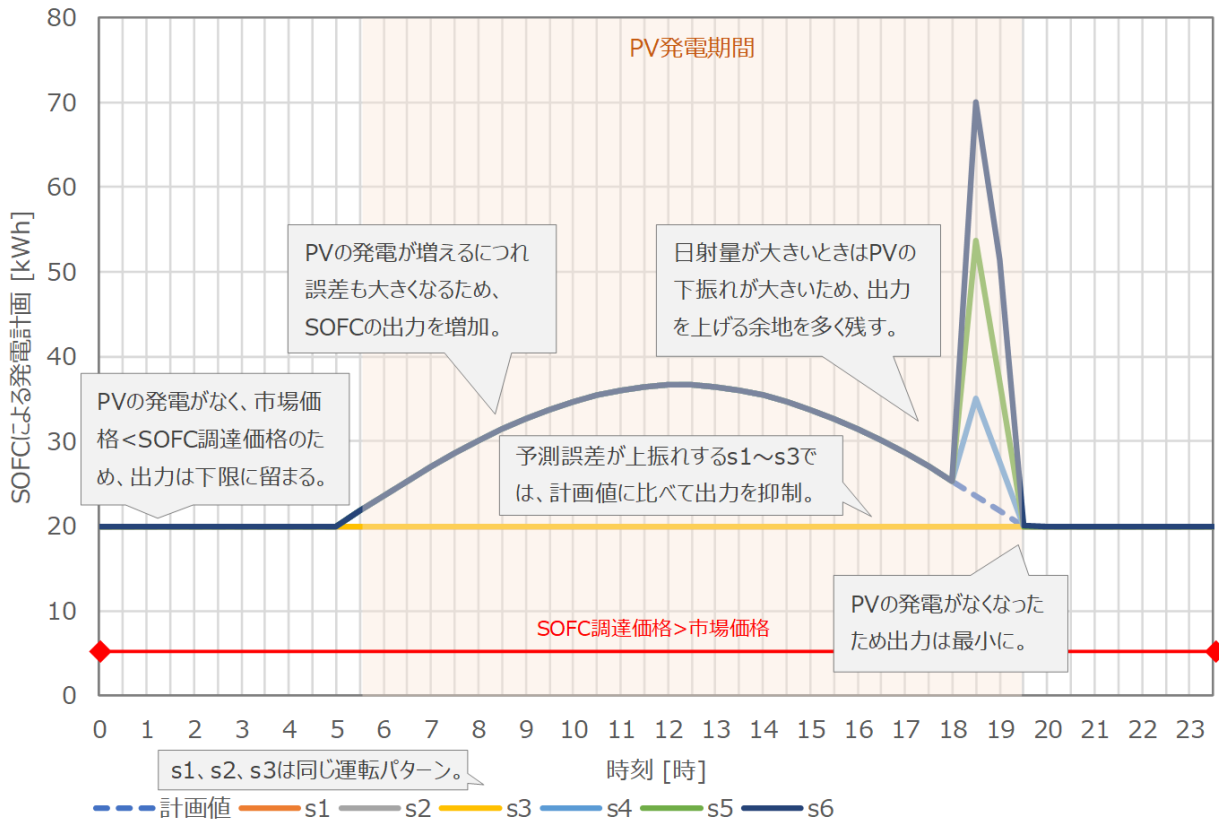


図5 SOFCの運転パターン例（中間期・休日・日射量大）

表2 SOFCの導入量別のインバランス補償量

SOFC台数	SOFC容量 (kW)	インバランス発生量 (kWh/年)			インバランス補償量 (kWh/年)		
		全体	PV発電上振れ	PV発電下振れ	全体	PV発電上振れ	PV発電下振れ
0	0	461,285	197,318	263,967	0	0	0
50	35	406,615	143,961	262,654	54,670	53,357	1,313
100	70	365,371	109,130	256,241	95,914	88,187	7,726
150	105	331,651	82,250	249,401	129,634	115,068	14,566
200	140	306,073	62,670	243,403	155,212	134,648	20,564
250	175	292,398	54,031	238,367	168,887	143,287	25,600
300	210	282,255	47,229	235,026	179,030	150,089	28,941

表3 SOFCの導入量別のCO2削減量

SOFC台数	SOFC容量 (kW)	SOFC発電量 (kWh/年)	CO ₂ 削減量 (tCO ₂ /年)			インバランス削減率	収益増加率
			SOFCによる系統電力の代替による削減	インバランス補償量に相当するPV発電による削減	合計		
0	0	0	0	0	0	0%	0.00%
50	35	165,784	28	28	56	-12%	0.24%
100	70	328,258	55	49	104	-21%	0.40%
150	105	490,504	82	66	148	-28%	0.54%
200	140	655,519	109	79	189	-34%	0.65%
250	175	824,421	137	86	224	-37%	0.71%
300	210	992,090	165	92	257	-39%	0.77%

※ SOFCの発電効率は52%とした。【参考資料: アイシン精機ウェブサイト <http://www.aisin.co.jp/cogene/enefarm/features/environment.html>】

※ 都市ガスのCO₂排出係数は0.0136tC/GJとした。【参考資料: 温室効果ガス排出量 算定・報告・公表制度 排出係数一覧 <https://ghg-santeikohyo.env.go.jp/files/calcul/itiran2019.pdf>】

※ 系統電力のCO₂排出係数は2017年度の国平均の実績値0.512kgCO₂/kWhとした。

【参考資料: 温室効果ガス排出量 算定・報告・公表制度 排出係数一覧 https://ghg-santeikohyo.env.go.jp/files/calcul/h31_coefficient.pdf】

① Ⅲ. 一般電気事業者を想定した系統全体の電力システムモデル

混合整数線形計画法に基づく起動停止計画モデルについて解説する。起動停止計画とは、前日に翌日の電力需要の予測値や再生可能電源の出力予測値に基づいて、安定した電力システムを維持すると共に運用コストを最小化する最適化問題によって、発電設備の起動停止スケジュールを決定するものである。混合整数線形計画による最適化モデルの目的関数は(1)式のように設定している。(1)式において、 u は起動停止ベクトル (バイナリ変数)、 U は起動停止の可能領域、 c は 起動コスト、 ξ は、想定シナリオ (→本研究においてはPVの出力変化シナリオ)、 $Prob_{\xi}$:シナリオ ξ の生起確率、 F は燃料費関数を意

味する。主な変数としては、九州電力管内の全ての発電所の起動停止スケジュール、各発電機の各時間帯における出力、再生可能エネルギーの出力抑制量などであり、主な制約条件としては、各時間帯の需給制約、各発電設備の負荷と発電効率の関係、各発電設備出力の上下限制約および時間当たりの負荷変動率の上下限などが挙げられる。

目的関数 $\min_{u \in U} [c^T u + \sum_{\xi} \{Prob_{\xi} \cdot F(u, \xi)\}]$ (1)

電力システムモデル評価の最適化にあたり、外部からの調整力については、需給調整市場が開かれ、そこに SOFC や自家発電設備などの資源が参入し、調整力のみを提供できる状況を想定する。また、調整力の必要性については、電力需要の不確実性および太陽光発電、風力発電の予測誤差を定量化し、これを下記のように離散化した。すなわち、区間

$S[a, b, c, d, e, f] = [-4.1\sigma, -2.1\sigma, -0.8\sigma, +0.8\sigma, +2.1\sigma, +4.1\sigma]$ という確率区分を定め、各確率区分が発生する確率を、 $0 \sim \pm 0.8\sigma$ が各 34.1%、 $\pm 0.8\sigma \sim \pm 2.1\sigma$ が各 13.6%、 $\pm 2.1\sigma \sim \pm 4.1\sigma$ が各 2.1% としている。 σ は既往の文献に基づいて設定する。ここで、確率区分 a, b, c は下げ代、d, e, f は上げ代としての調整力必要とする確率区分である。実際に、九州地域の現状の一年間の起動停止計画モデル計算を行い、調整力を評価した結果を図 6 に示す。図 6 より、下げ代が必要な a, b, c のケースでは、主として火力発電の負荷調整運転が利用され、上げ代が必要な d, e, f のケースでは、主として市場から供給される資源を利用していることが分かる。すなわち、SOFC を上げ代調整力に用いることが有望である。

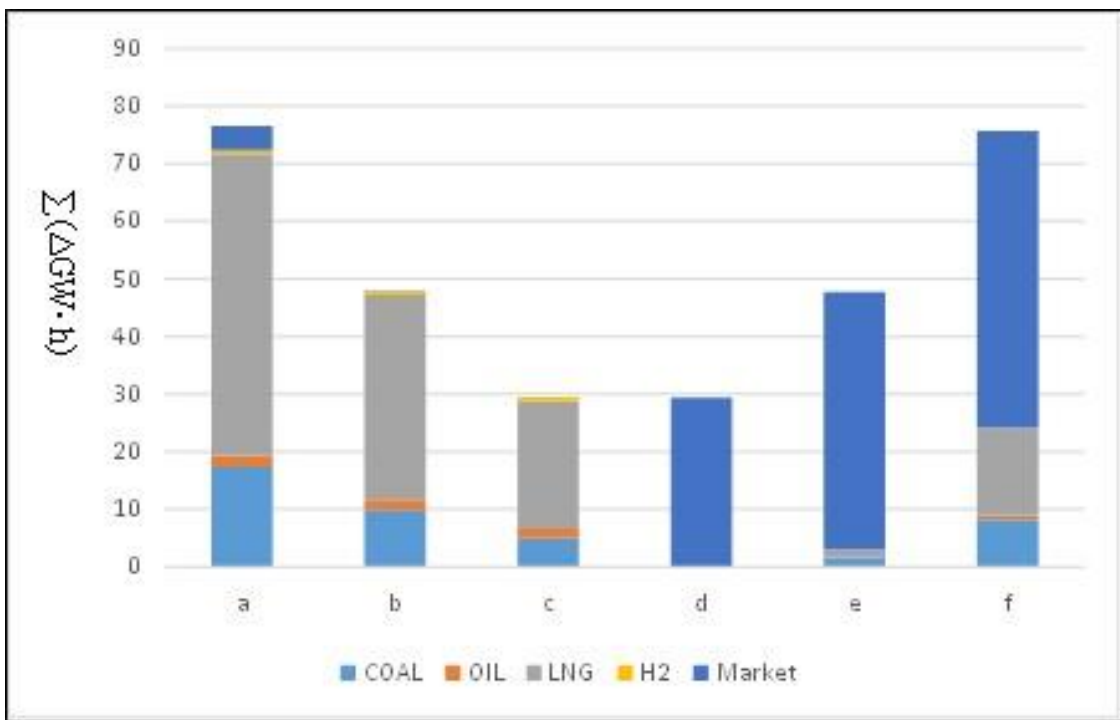


図 6 調整力（上げ代、下げ代）の供給内訳 (調整力単価 5 円/ΔkWh の場合)

ここでは、調整力の不足が深刻な課題となっている九州電力エリアを対象に、確率的手法を適用した起動停止計画モデルを開発した。この起動停止計画モデルを用い、需給調整市場が開かれた状況を想定して SOFC 等の外部資源による調整力供給の影響を分析した。太陽光発電が多く原子力発電も稼動する九州エリアでは、調整力としての発電資源が重要であり、本評価では特に上げ代調整力に SOFC を利用することが有望であるとの結果を得た。今後は、SOFC の最適運転パターンを算出する I のミクロな電力システムモデルと連携し、SOFC の調整力としての有効性と付加価値の定量化を進める。この連携の仕組みは具体的には以下のように行う。近々に開かれる予定の需給調整市場における調整力コストを I と III で共通のパラメータとして、I で SOFC の運転の変化を見ると共に、III では SOFC 等外部からの調整力購入量

を評価し、SOFCにとって、適正な調整力コストを見出し、電力システムへの貢献度を評価した。

(5) SOFCの価値評価

「Ⅱ. 市町村地域レベルのエネルギー供給システムを表すモデル」を対象に、事業価値を算出するためのPL(損益計算書)、CF(キャッシュフロー計算書)のベースモデルを作成した。また、各モデルにおけるCO2排出削減量を算定した。

3.2 成果の意義

再生可能エネルギーの増加に伴い、再生可能エネルギーの出力予測誤差に起因するインバランス発生量が増加すると考えられる。さらに、このインバランスに係るペナルティ単価も増加傾向にあり、新電力等の事業者にとって、このインバランスの発生が大きな経営リスクとなる。そこで、本研究で示したように、SOFCをこのインバランス対策に用いることで、再生可能エネルギーの更なる導入、新電力の経営リスクの軽減を図ることができ、SOFCの新たな価値を見出すことができた。このように、経済性向上、CO2削減量の増加、インバランスの削減率を定量的評価することで、SOFCの付加価値を向上させて、技術開発の方向性を示すとともに、更なる普及の促進を可能にする。

3.3 研究開発項目別残課題

特になし。

4. まとめ及び課題

本研究では、一定の条件のもとで、SOFCによる再生可能エネルギーのインバランス対策に用いるなど新たな価値を示すことができた。一方、今後の調整力市場やインバランス単価などが制度面で不透明なところがあるため、今後の政策動向、SOFCの技術動向に応じたSOFCの運転制御方法を確立する必要があると考える。

5. 研究発表・特許等

研究発表内容を表4に示す。

表4 研究発表

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2018.10.29-31	2018 International Conference on Renewable Energy and Environment Engineering, Paris, France	A Study on Unit Commitment Taking Uncertainties in Forecast of Renewable Energy Outputs into Consideration	Eiji Nishiura and Ryuji Matsuhashi
2	2019.1.29-30	第35回エネルギーシステム・経済・環境コンファレンス	再生可能エネルギーの大量導入による系統安定性への影響を考慮した起動停止計画に関する研究	西浦英治, 松橋隆治