

「燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決
型産学官連携研究開発事業」
中間評価【公開】

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 スマートコミュニティ・エネルギーシステム部 燃料電池・水素室
-----	--

—目次—

目次

概 要	概要-1
1. 事業の位置付け・必要性について	1
1. 事業の背景・目的・位置づけ	1
2. NEDO の関与の必要性・制度への適合性	3
2.1 NEDO が関与することの意義	3
2.2 実施の効果（費用対効果）	3
2. 研究開発マネジメントについて	5
1. 事業の目標	5
2. 事業の計画内容	7
2.1 研究開発の内容	7
2.2 研究開発の実施体制	8
2.3 研究開発の運営管理	22
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	22
3. 情勢変化への対応	25
4. 評価に関する事項	26
3. 研究開発成果について	27
1. 事業全体の成果	27
2. 研究開発項目毎の成果	28
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	607
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	607
プロジェクト用語集	609

（添付資料）

- ・プロジェクト基本計画
- ・水素 燃料電池戦略ロードマップ
- ・事前評価結果
- ・NEDO 燃料電池・水素技術開発ロードマップ
- ・事業概要ポンチ絵（各研究開発テーマ）

概要

		最終更新日	2022年9月7日
プロジェクト名	燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業	プロジェクト番号	P20003
担当推進部/PM	次世代電池・水素部 原 大周（2020年4月～2021年3月） スマートコミュニティ・エネルギーシステム部 原 大周（2021年4月～2021年8月） スマートコミュニティ・エネルギーシステム部 大平 英二（2021年9月～2022年1月） スマートコミュニティ・エネルギーシステム部 後藤 謙太（2022年2月～現在）		
0. 事業の概要	本事業は、第6次エネルギー基本計画や水素・燃料電池戦略ロードマップ等で定めるシナリオに基づき、2030年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システム（水素貯蔵タンク等を含む）や水電解システムを実現するためのユーザーニーズに基づく協調領域の基盤技術を開発するとともに、従来以外の用途に展開するための技術開発並びに大量生産を可能とする生産プロセス又は検査技術の取組を助成することにより、世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術や今後拡大が期待される水電解技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立する。		
1. 事業の位置付け・必要性について	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、回転や摺動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。 本事業は、燃料電池の自律的な普及拡大に向けて更なる高性能化、高耐久化、低コスト化に資する要素技術を開発し、産業界へ橋渡しするとともに、これまで実用化されてきた自動車や定置用以外の様々な用途への燃料電池の展開につながる技術を確立する。		
2. 研究開発マネジメントについて			
事業の目標	1) アウトプット目標 本事業では研究開発の課題解決のために、以下の3つの研究開発項目とし、目標の設定および研究開発のマネジメントを行う。 ■ 研究開発項目Ⅰ「共通課題解決型基盤技術開発」 ・2030年以降のFCVや業務・産業用燃料電池への実装を目指した技術の開発。 ■ 研究開発項目Ⅱ「水素利用等高度化先端技術開発」 ・2030年以降の更なる燃料電池システムの低コスト、高性能、高耐久に資する水素貯蔵関連技術や水電解などのその他多様な水素関連技術の高度化に資する技術の開発 ・研究開発項目Ⅰの性能やコスト目標を凌駕する燃料電池の実現に資する革新的な要素技術 ■ 研究開発項目Ⅲ「燃料電池の多用途活用実現技術開発」 ・2030年までの燃料電池の多用途展開を目指して、エネルギーマネジメント要素も含めた実証事業等 ・燃料電池システム、水電解システム（アルカリ水電解、PEM水電解）のコスト低減を実現するための革新的な生産技術や周辺機器、これらを含めたシステム化技術等の研究開発 ○最終目標（2024年度） 上記の3つの研究開発項目の最終目標については以下の表のとおり。		

分野	最終目標	根拠
研究開発項目Ⅰ「共通課題解決型基盤技術開発」		
PEFC	航続距離800km以上、最大出力密度6kW/L以上、最大負荷点0.6V以上、耐用年数15年以上、最高運転温度100℃以上、燃料電池システムコスト<0.4万円/kWに貢献する技術を確立する	・水素・燃料電池戦略ロードマップ ・NEDO燃料電池技術開発ロードマップ
SOFC	発電効率65%超（低位発熱量）、耐久時間13万時間以上に貢献する技術を確立する。耐久時間13万時間の業務・産業用燃料電池システムの劣化モデリング技術等を確立する	
共通	上記目標値に貢献する高精度性能予測技術、燃料電池システム劣化予測技術、高精度計測技術（高温下までのMEAセル/部材構造/特性評価手法、高精度計量観察技術）および低コスト化技術等を確立する	
研究開発項目Ⅱ「水素利用等高度化先端技術開発」		
PEFC/SOFC	研究開発項目Ⅰの性能やコスト目標を凌駕する燃料電池の実現に資する革新的な要素技術の設計指針を確立するとともに、実用化に向けた課題を明らかにする	※触媒活性や電解質のプロトン輸送抵抗等の材料特性は課題共有フォーラムの資料等を参考
水素貯蔵他	2030年以降の更なる燃料電池システムの低コスト、高性能、高耐久に資する水素貯蔵関連技術やその他多様な水素関連技術の高度化に資する技術を開発し、技術成立性を提示する	
研究開発項目Ⅲ「燃料電池の多用途活用実現技術開発」		
共通	2030年までの燃料電池ユニット等の多用途展開を目指して、エネルギーマネジメント要素も含めた実証事業を行い、自家用車以外で3種類以上の用途の適用可能性を提示する。燃料電池システムおよび水電解システムのコスト低減を実現するために革新的な生産技術等を開発する。	

○中間目標

最終目標に達するための中間段階の目標値を個別のテーマ毎に別途定め、達成度合いは当該技術のユーザー企業に意見を照会して肯定的な意見を得る。

2) アウトカム目標

我が国が強みを有する燃料電池分野の市場拡大に貢献する。具体的には、市場規模としてFCVの2035年約3.4兆円、2040年約12.6兆円、定置用燃料電池の2035年約0.5兆円、2040年約3兆円、FCV・定置用燃料電池以外の新規システムの2035年約0.5兆円、2040年約0.9兆円に寄与する（水素・燃料電池戦略ロードマップの目標値と富士経済の市場予測からNEDOが推定）。

事業の計画内容	主な実施事項	2020fy	2021fy	2022fy	2023fy	2024fy	—
	研究開発項目Ⅰ、Ⅱ、Ⅲ（共通）						
	2020年度採択テーマ	▼ 採択	▼ 継続可否審査	—	▼ 継続可否審査	—	—
	2021年度採択テーマ		▼ 採択	▼ 継続可否審査	—	—	—
	2022年度採択テーマ			▼ 採択	▼ 継続可否審査	—	—
	2023年度採択テーマ				▼ 採択	—	—
	研究開発項目Ⅰ「共通課題解決型基盤技術開発」	①高効率発電技術開発 ②高負荷運転技術開発 ③高耐久起動停止等技術開発 ④極限環境下劣化防止等技術開発 ⑤課題横断型技術開発高負荷運転技術開発					

	研究開発項目Ⅱ 「水素利用等高度化先端技術開発」	 <ul style="list-style-type: none"> ①革新的な水素貯蔵関連技術の開発 ②革新的な燃料電池技術の開発 ③その他多様な水素関連技術の高度化のための技術開 					
	研究開発項目Ⅲ 「燃料電池の多用途活用実現技術開発」	 <ul style="list-style-type: none"> ①燃料電池の多用途展開加速実証 ②低コスト・革新的生産・システム化技術開発 					
事業費推移 (会計・勘定別に NEDO が負担し た実績額 (評価 実施年度につい ては予算額) を記 載) (単位:百万円)	会計・勘定	2020fy	2021fy	2022fy	2023fy	2024fy	総額
	特別会計 (需給)	4,207	6,898	7,910			19,013
	総 NEDO 負担額	4,207	6,898	7,910			19,013
	(委託)	3,716	5,980	6,420			16,116
	(助成) : 助成率 1/2	491	918	1,490			2,899
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 新エネルギーシステム課					
	プロジェクト リーダー	<ul style="list-style-type: none"> ■プロジェクトリーダー (PL) ・PEFC および水素貯蔵 トヨタ自動車株式会社 トヨタ Z E V ファクトリー 商用 Z E V 製品開発部 チーフプロフェッショナルエンジニア 木崎 幹士 (2020 年 4 月～現在) ・SOFC 東京大学生産技術研究所 シニア協力員 兼 産業技術総合研究所 名誉リサーチャー 横川 晴美 (2020 年 4 月～現在) ■サブプロジェクトリーダー (SPL) ・PEFC 技術研究組合 FC-Cubic 先端解析技術推進部 部長 雨宮 一樹 (2020 年 4 月～現在) ・水素貯蔵 トヨタ自動車株式会社 トヨタ Z E V ファクトリー 商用 Z E V 製品開発部 水素貯蔵システム開発室 大神 敦幸 (2022 年 6 月～現在) 					
	プロジェクト マネージャー	次世代電池・水素部 原 大周 (2020 年 4 月～2021 年 3 月) スマートコミュニティ・エネルギーシステム部 原 大周 (2021 年 4 月～8 月) スマートコミュニティ・エネルギーシステム部 大平 英二 (2021 年 9 月～2022 年 1 月) スマートコミュニティ・エネルギーシステム部 後藤 謙太 (2022 年 2 月～現在)					
	委託先・助成先	[委託事業] ■研究開発項目Ⅰ「共通課題解決基盤技術開発」 ・PEFC : 18 テーマ (51 機関) ・PEFC 評価解析プラットフォーム : 5 テーマ (18 機関) ・SOFC : 5 テーマ (25 機関) ■研究開発項目Ⅱ「水素利用等高度化先端技術開発」 ・PEFC : 24 テーマ (51 機関) ・水素貯蔵 : 11 テーマ (37 機関) ・SOFC : 6 テーマ (14 機関) ・水電解 : 1 テーマ (3 機関) (2022 年度より) [助成事業 (助成率 : 1 / 2 以内)]					

		<p>■研究開発項目Ⅲ「燃料電池の多用途活用実現技術開発」 ・17テーマ（24 機関） 委託先、助成先の各テーマの詳細については2章参照。</p>
情勢変化への対応	<p>2017年12月：水素基本戦略策定 2018年7月：第5次エネルギー基本計画 2019年1月：課題共有フォーラムの開催（NEDO）；2020年の本プロジェクト開始後に計6回実施 2019年3月：水素・燃料電池戦略ロードマップ改訂 2020年2月：「燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業」に係る公募 2020年10月：2050年カーボンニュートラル宣言 2021年2月：2021年追加公募（性能目標達成のために貢献度の高い分野のテーマに重点を置く） 2021年6月：2050年カーボンニュートラルに伴うグリーン成長戦略改訂 2021年10月：第6次エネルギー基本計画 2022年3月：「HDV用燃料電池技術開発ロードマップ」策定 2022年3月：2022年度追加公募（HDV用燃料電池に関する技術開発、テーマに重点を置く）</p>	
評価に関する事項	事前評価	2019年度実施 担当部 次世代電池・水素部
	中間評価	2022年度 中間評価実施
	事後評価	2025年度 事後評価実施予定
3. 研究開発成果について	<p>本事業は、多数のテーマからなるテーマ公募型の事業であり、研究開発成果の詳細は3.2で詳述する。事業全体としては、2年毎の継続可否評価にて各テーマの妥当性を評価している。継続可否評価では、産業界（FCシステムメーカー等）の有識者も含めた外部審査委員が中間目標の達成状況や最終目標達成の見通しを確認し、実施すべきと認めたものを継続しており、各テーマの中間目標の達成状況も全体として良好であること、最終目標の達成につながる成果も得られつつあることから、中間目標に対する事業全体としての達成度は○と判断する。</p> <p>なお、2020年度採択テーマを対象として実施した継続可否評価の委員会毎の結果は以下の通りである。</p> <p>委託事業（研究開発項目Ⅰと研究開発項目Ⅱ） ・PEFC（研究開発項目Ⅰ）：14テーマ → 11テーマ ・PEFC（研究開発項目Ⅱ）：14テーマ → 10テーマ ・水素貯蔵（研究開発項目Ⅱ）：4テーマ → 4テーマ ・SOFC（研究開発項目Ⅰ・Ⅱ）：7テーマ → 5テーマ</p> <p>助成事業（研究開発項目Ⅲ） ・実用化開発（研究開発項目Ⅲ）：7テーマ → 3テーマ</p>	
	投稿論文	「査読付き」156件、「その他」22件
	特許	「出願済」70件、うち外国出願8件
	その他の外部発表（プレス発表等）	<p>「一般発表」656件 「招待講演」94件 「受賞実績」35件 「新聞・雑誌等への掲載」57件 「展示会」10件 「その他」16件</p>

4.成果の実用化・事業化に向けた取組及び見直しについて	<p>本事業では、公募・採択、研究開発の進捗管理、継続可否評価まで一貫して実用化・事業化を意識したマネジメントを推進している。また、関心表明書（LOI）の制度を取り入れ、研究開発項目Ⅰは提案まで、研究開発項目Ⅱは継続可否判断までに、各テーマの技術の実用化・事業化に関心を有する企業の提出を義務付けている。単に提案時に関心を示してもらうだけでなく、各テーマの推進に当たっては、開発方針や目標設定、知財戦略などの意見交換や関心表明企業へのサンプル提供・評価フィードバックなどを実施することとしており、NEDOは関心表明企業から受けた協力事項の報告を求めて状況を把握するとともに、PL意見交換会等で実用化・事業化に沿った取り組みとなっているかフォローしている。</p>	
5. 基本計画に関する事項	作成時期	2020年2月 策定
	変更履歴	<p>2022年3月 改訂 （研究開発項目ⅡおよびⅢにて、水電解セルスタックの生産技術および周辺機器含めたシステム技術の高度化に資する研究開発を実施内容に追加）</p>

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、回転や摺動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。

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、2014年4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産学官の有識者検討会議である水素・燃料電池戦略協議会は「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産学官で共有するためのアクションプランを提示した。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。

上記の多様な水素政策を実現するため、2018年にNEDOは、2040年以降に達成すべき究極の目標値を含めて技術的課題を時系列に整理した「NEDO燃料電池・水素技術開発ロードマップ」（以下、「NEDO技術マップ」という。）を策定した。水素社会の実現のためには、水素・燃料電池分野の技術開発について産学官が長期的視野を共有し、NEDO技術マップで目標設定された燃料電池システム等の高性能や低コストに向けた技術開発に取り組むことが重要である。

さらに2020年には2050年にカーボンニュートラルを目指すことが宣言された。2021年10月に第6次エネルギー基本計画が策定され、この中で水素は、電力分野の脱炭素化を可能とするだけでなく、運輸部門や電化が困難な産業部門等の脱炭素化も可能とする、カーボンニュートラルに必要な二次エネルギーと位置づけられている。水素社会実現に向けた取組の抜本強化が掲げられ、燃料電池トラックや燃料電池も活用できる船舶、燃料電池鉄道車両等への用途拡大に向けた技術開発や実証とともに、水素製造技術として燃料電池の逆反応となる水電解装置の技術開発の必要性が示されている。日本の競争優位を維持し、燃料電池のコスト低減を通じた社会実装を実現する観点から、①基礎研究を含む要素技術の研究開発強化、②多用途展開支援及び設備投資促進に伴う供給能力強化を通じた規模の経済の活用、③協調領域での標準化を含むFCメーカー等の更なる協力関係構築といった取組を官民一体となって取り組んでいくことが重要である。

② 我が国の状況

我が国は2009年に固体高分子形燃料電池（以下、「PEFC」という。）ベースの家庭用燃料電池（エネファーム）を世界で初めて商品化された。2011年には固体酸化物形燃料電池（以下、「SOFC」という。）ベースでも商品化され、2019年11月にはPEFCとSOFCを合わせて累計30万台を突破した。2017年にはSOFCベースの業務・産業用燃料電池の商品化も達成している。2014年には世界に先駆けてFCVが量販され、2019年には国内メーカーのFCVは海外販売実績を含めて累計1万台を超えている。加えて、水素ステーションについても2019年11月末時点で110箇所が整備されている。

このように、長年に渡る産学官の研究成果は着実に実用化に繋がっており、現時点では我が国が長い歴史の中で蓄積した燃料電池技術の競争力は、諸外国に比べて高い。しかし、水素社会の実現に向けた燃料電池の更なる大量普及のためには、低コスト化に直結する発電効率や耐久性の向上、現状で年間数百台程度しかないFCVの生産性向上等の課題の解決や、従来の家庭向けの熱電併給や自動車用等とは異なる新たな市場を切り拓く用途拡大の取組を推進する必要がある。

③ 世界の取組状況

米国では、DOEが中心となって燃料電池に関する技術開発を推進している。車載用PEFCとしては、商用車のコスト分析を背景として、高耐久電解質膜、白金使用量低減が大きなテーマとなっており、コアシエル触媒や非白金触媒などの開発を推進している。また、SOFCの分野ではNETL（National Energy Technology Laboratory）が主導しつつ材料開発からセルスタック及びシステムまで一貫した開発が推進されるとともに、ユーザー企業が参画した実証事業も行われている。さらにアルカリ形燃料電池（AEMFC）や可逆燃料電池（RFC）等の足の長いテーマも研究推進している。

欧州では、主にFCH-JU（2021年にClean Hydrogen JUに改組）が燃料電池の研究開発や実証事業を担っている。定置用燃料電池では、SOFCにおいて家庭用を指向した小型システムから業務用のマイクロ熱電併給システム（micro-CHP）、更には火力発電代替としての数MW級までの開発及び実証事業が進められるとともに、セルスタック性能劣化の診断技術の開発も進行中である。移動体用燃料電池では、PEFCの非白金触媒等の材料開発、セル評価手法の標準化や周辺機器の改良、大量生産を見据えた新たな製造プロセスの構築等も取り組まれている。さらに欧州では、従来用途としての車載用だけではなく鉄道や船舶、航空機等の多用途展開も志向している点が特徴的である。

中国では、「第13次5カ年計画戦略的進行産業発展計画」（2016～2020）で燃料電池の研究開発を支援しており、基礎研究（FC主要材料・部材の研究開発）、応用技術研究（スタックの性能向上、FCシステムの高出力・高耐久化、車両統合システムプラットフォーム開発）を推進している。さらに、中国では中央政府の他に地方政府も活発に燃料電池の技術開発や普及政策を推進しており、燃料電池バスやトラック等の商用車を中心に、FCVの更なる普及拡大へ向けた動きが本格化している。2021年末までに、北京、上海、広東の3大モデル都市群が相次いで正式にスタートし、鉍石鋼材の輸送、建築材料の輸送、完成車物流など18以上の応用目的に向け、燃料電池車両が累計2万台を超え、水素ステーション建設が306カ所を超える計画となっている。

日本と同様に燃料電池自動車の量産を開始した韓国では、政府が2019年に「水素経済活性化ロードマップ」を策定した。この中では、2040年までにFCVを620万台（輸出分を含む）、水素ステーションを1,200カ所といった目標に加えて、2040年に年間4.3兆ウオンの付加価値の創出を謳っている。

また、産業通商資源部は2020年から、「水素燃料電池トラック改造技術開発と実証事業」の推進として、電気・動力部品の国産化 R&D 事業を実施している。

このように世界各国において、政府が主導して燃料電池の開発や普及に関する政策が強化されつつある状況下、現時点では一日の長がある我が国の国際競争力を更に強化等させて、当該分野で世界をけん引する位置づけを確保することが肝要である。

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

水素社会を実現する上で燃料電池利用の拡大は極めて重要であり、その普及のためには更なる低コスト化・高効率化等の推進や自動車以外の用途開発が求められており、自律的な普及拡大に向けた革新的な燃料電池技術の開発を行う必要性が依然として高い。しかしながら、企業では次世代の製品開発にリソースが割かれ、2030年以降を見据えた革新的な技術開発に十分取り組んでいるとは言い難い状況である。さらに、FCVを製品化したために様々な課題が顕在化してきており、協調領域の共通課題に対しては企業間、産学間の連携の上で取り組むことが我が国産業界の競争力確保にとって肝要である。

NEDOは、1980年の設立以来、長きにわたり燃料電池の技術開発プロジェクトを推進してきた。これまでに蓄積してきた知見やネットワークを活用することで、産業界ニーズ（中長期的課題）の集約、アカデミアによるイノベーションの促進、産業界への橋渡しまで一気通貫で、効率的・効果的に事業を遂行できると考えられることから、NEDOが産業界とアカデミアのハブとなり、中心となって関与することの意義は大きい。

実際にNEDOでは、2019年1月に実施したFCV課題共有フォーラムを皮切りに、技術研究組合FC-CubicやFC-CJらと協力の上、産業界の協調領域の課題を整理し、広く発信する課題共有会を度々実施してきた。これらの課題をプロジェクトの研究テーマとして取り上げることで、産業界ニーズをアカデミアの技術力も活用して解決することが可能となる。

2.2 実施の効果（費用対効果）

本事業は、燃料電池自動車や業務・産業用燃料電池、その他多様な用途向けの燃料電池の市場拡大に貢献する。

○事業期間、事業規模

本事業は、2020年度から2024年度の5年間の事業計画である。予算規模は、5年間の総額として350億円の見込みである。

○アウトカム目標

我が国が強みを有する燃料電池分野の市場拡大に貢献する。具体的には、市場規模としてFCVの2035年約3.4兆円、2040年約12.6兆円、定置用燃料電池の2035年約0.5兆円、2040年約3兆円、FCV・定置用燃料電池以外の新規システムの2035年約0.5兆円、2040

0年約0.9兆円への市場拡大に寄与する（水素・燃料電池戦略ロードマップの目標値と富士経済の市場予測からNEDOが推定）。

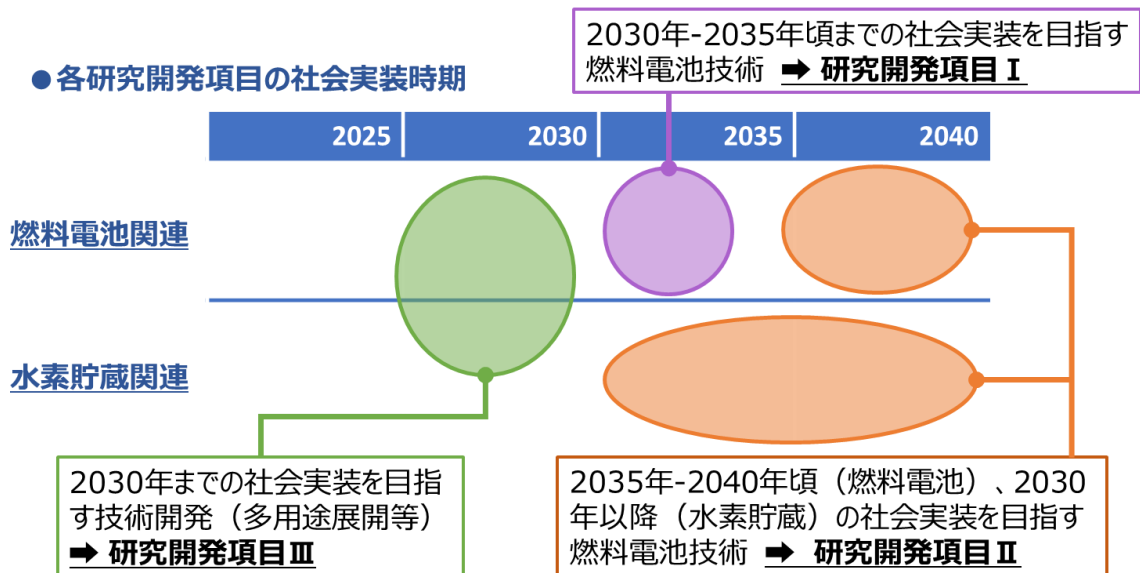
プロジェクト総額（5年間）		350億円（見込み）
アウトカム指標		目標と達成時期
市場規模	燃料電池車分野の市場	(2035年度) 34,400億円 (2040年度) 126,000億円
	業務・産業用燃料電池の市場	(2035年度) 5,000億円 (2040年度) 9,000億円
	自動車を除く移動体、燃料電池を使用した新規システムの市場	(2035年度) 5,000億円 (2040年度) 30,000億円
温室効果ガス排出量削減への貢献		グリーン成長戦略等に示される 2050年カーボンニュートラルの実現 に貢献

2. 研究開発マネジメントについて

1. 事業の目標

- 本事業は、第6次エネルギー基本計画や水素・燃料電池戦略ロードマップ等で定めるシナリオに基づき、
- ・2030年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システム（水素貯蔵タンク等を含む）や水電解システムを実現するためのユーザーニーズに基づく協調領域の基盤技術を開発するとともに、
 - ・従来以外の用途に展開するための技術開発並びに大量生産を可能とする生産プロセス又は検査技術の取組を助成することにより、
 - ・世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術や今後拡大が期待される水電解技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立する。

これらの開発課題を解決するために、以下のように研究開発項目を整理し、研究開発マネジメントを行う。



それぞれの研究開発項目をさらに必要な技術開発の項目として以下に分類する。

■研究開発項目Ⅰ「共通課題解決型基盤技術開発」

- ①高効率発電技術開発
- ②高負荷運転技術開発
- ③高耐久起動停止等技術開発
- ④極限環境下劣化防止等技術開発
- ⑤課題横断型技術開発

■研究開発項目Ⅱ「水素利用等高度化先端技術開発」

- ①革新的な水素貯蔵関連技術の開発
- ②革新的な燃料電池技術の開発

③その他多様な水素関連技術の高度化のための技術開発

■研究開発項目Ⅲ「燃料電池の多用途活用実現技術開発」

①燃料電池の多用途展開加速実証

②低コスト・革新的生産・システム化技術開発

○最終目標（2024年度）について

本事業の最終目標は、産業界やアカデミアと議論のうえ策定した燃料電池・水素技術開発ロードマップ等を基にして設定している。研究開発項目Ⅰは前述のとおり2030年頃の実用化・事業化を目指し、ロードマップで示す2030年目標の達成に資する要素技術の確立を目標とする。

■研究開発項目Ⅰ「共通課題解決基盤技術開発」（委託事業）

- 2030年以降のFCVや業務・産業用燃料電池への実装を目指した技術を開発する。具体的には、
 - PEFCにおいては航続距離800km以上、最大出力密度6kW/L以上、最大負荷点0.6V以上、耐用年数15年以上、最高運転温度100℃以上、燃料電池システムコスト<0.4万円/kWに貢献する要素技術を確認する。
 - SOFcにおいては、発電効率65%超（低位発熱量）、耐久時間13万時間以上に貢献する要素技術を確認する。また、耐久時間13万時間の業務・産業用燃料電池システムの劣化モデリング技術等を確認する。
- なお、上記目標値の実現に資する要素技術の確認が本事業の最終目標であり、開発された各要素技術を組み合わせた燃料電池システムの構築および目標値の達成検証は民間独自で実施すべき事項であることから本事業では対象としない。
- 共通事項として、上記目標値に貢献する高精度性能予測技術、燃料電池システム劣化予測技術、高精度計測技術（高温下までのMEAセル／部材構造／特性評価手法、高精度計量観察技術）および低コスト化技術等を確認する。

■研究開発項目Ⅱ「水素利用等高度化先端技術開発」（委託事業）

2030年以降の更なる燃料電池システムの低コスト、高性能、高耐久に資する水素貯蔵関連技術やその他多様な水素関連技術の高度化に資する技術開発し、技術成立性を提示する。また、研究開発項目Ⅰの性能やコスト目標を凌駕する燃料電池の実現に資する革新的な要素技術の設計指針を確認するとともに、実用化に向けた課題を明らかにする。

■研究開発項目Ⅲ「燃料電池の多用途活用実現技術開発」（助成事業（助成率：1/2以内））

2030年までの燃料電池ユニット等の多用途展開を目指して、エネルギーマネジメント要素も含めた実証事業等を行い、自家用車以外で3種類以上の用途の適用可能性を提示する。また、燃料電池システムのコスト低減を実現するために革新的な生産技術を開発する。

○中間目標について

最終目標を達成するための個別の目標値はテーマ毎に定め、達成度合いを当該技術のユーザー企業に意見を照会して肯定的な意見を得る。

2. 事業の計画内容

2.1 研究開発の内容

○研究開発の内容について

各研究開発項目について、共通の研究開発スケジュールに基づき研究開発マネジメントを行う。

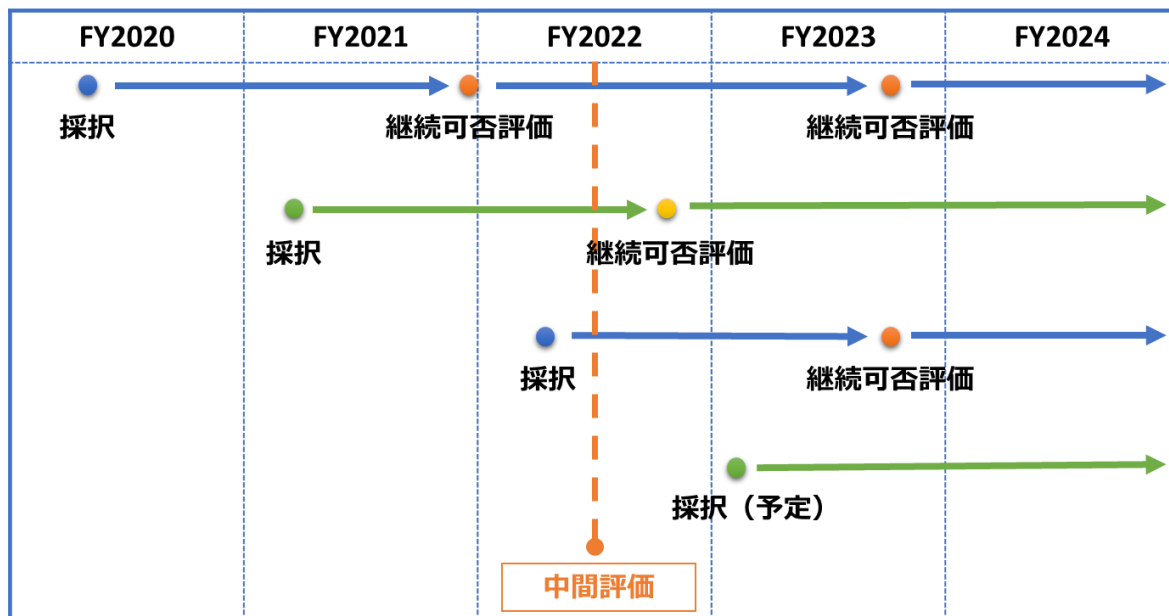
研究開発項目Ⅰ「共通課題解決型基盤技術開発」および研究開発項目Ⅱ「水素利用等高度化先端技術開発」は、技術成熟度が低い基礎的なフェーズかつ業界の協調領域であるとともに未だ黎明期の燃料電池市場において民間独自での取組は困難であることから委託事業とする。

研究開発項目Ⅲ「燃料電池の多用途活用実現技術開発」は、実用化に向けて民間がリスクを取りつつ推進されるべき事業であることから、助成事業とする（NEDO負担率：1/2 助成）。

また、委託事業としてⅠ～Ⅲの研究開発項目に係わる燃料電池システム等の普及拡大に関する各種調査を行う。

○研究開発のスケジュール

- ・産業界ニーズや研究開発動向を踏まえ毎年度公募を実施する。
- ・採択したテーマは2年毎に評価し継続可否を判断するステージゲート方式を採用する。



○事業実施のポイントについて

- ・ 研究テーマは産業界のユーザーニーズに対応したもの。純粋基礎研究は対象外。
- ・ 成果の技術移転先たるユーザー企業を明確化。 → 関心表明書
- ・ 社会実装を出口として意識したマネジメントを推進。 → P L 意見交換等
- ・ 電気化学には知見が少ないが有望な新規の材料研究者等の参入を促すと共に、我が国の材料研究データを蓄積して開発力を強化するため、共通的な指標で材料を評価、解析し、その結果を解釈して研究者に向けて材料設計指針をフィードバックする P E F C 評価解析プラットフォームを構築。

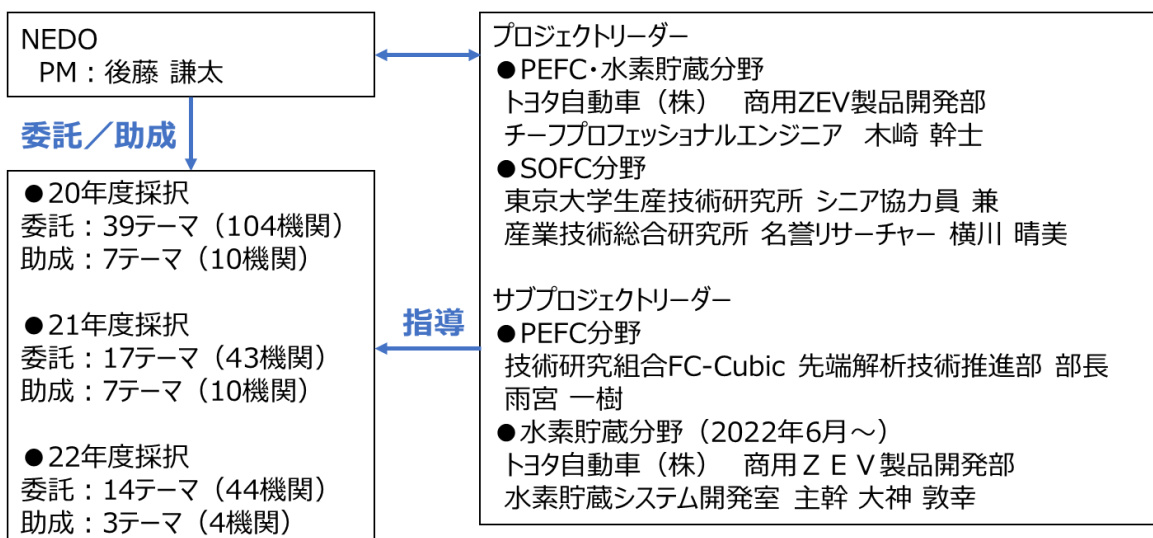
- ・ 各研究グループにはG L（グループリーダー）を設定し、責任と権限を明確化。
- ・ 関係するテーマ間の連携や知の共有を積極的に推進。
- ・ 2年毎にテーマ継続可否を審査。

2.2 研究開発の実施体制

プロジェクトの進行全体の企画・管理や、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ため、プロジェクトマネージャー（以下、「PM」という。）にNEDOスマートコミュニティ・エネルギーシステム部 後藤 謙太を任命する。

NEDOは研究開発実施者を公募する。研究開発実施者は、企業又は大学等の研究機関等（以下、「団体」という。）のうち、原則として日本国内に研究開発拠点を有する者を対象とし、単独又は複数で研究開発に参加するものとする。ただし、特別な研究開発能力や研究施設等の活用又は国際標準化推進の観点から必要に応じて、国外の団体を研究開発に参加させることができるものとする。なお、本事業を推進するにあたり外部専門家としてプロジェクトリーダー（PL）、サブプロジェクトリーダー（SPL）を委嘱し、NEDOとともに各テーマのマネジメントを推進する。

研究開発の実施体制は以下の図のとおり。



研究開発テーマは次項以降の表のとおりで、テーマ数は2022年度時点で全87テーマである。

■ 研究開発項目 I「共通課題解決基盤技術開発」（委託事業）

・PEFC：18 テーマ（51 機関）（灰色網掛は、継続可否審査で非継続となったテーマ）

ID	研究開発項目	テーマ名	委託先
PE01	研究開発項目 I ①革新的高効率発電実現技術開発	高温低加湿作動を目指した革新的低白金化技術開発	学校法人同志社、 石福金属興業株式会社 国立大学法人東北大学 国立研究開発法人産業技術総合研究所 国立大学法人千葉大学
PE02	研究開発項目 I ①革新的高効率発電実現技術開発	未踏合金カソード触媒の創製	国立大学法人京都大学 国立大学法人岩手大学
PE03	研究開発項目 I ①革新的高効率発電実現技術開発	高効率・高出力・高耐久 PEFC を実現する革新的材料の研究開発事業	国立大学法人山梨大学 パナソニックホールディングス株式会社 田中貴金属工業株式会社 日本化学産業株式会社 株式会社日産アーク 国立大学法人東北大学 国立大学法人大阪大学
PE04	研究開発項目 I ②高負荷運転実現技術開発	大型モビリティに適応する多用途型燃料電池モジュールの研究開発	東芝エネルギーシステムズ株式会社
PE05	研究開発項目 I ④極限環境下における劣化防止技術開発	ラジカル低減機能と燃料欠乏耐性を有するアノード触媒の研究開発	国立大学法人山梨大学 国立大学法人岩手大学 国立大学法人信州大学 国立大学法人東北大学
PE06	研究開発項目 I ④極限環境下における劣化防止技術開発	高耐久性を目指したラジカルクエンチャーの研究開発	学校法人上智学院
PE07	研究開発項目 I ④極限環境下における劣化防止技術開発	配位高分子を用いた中温作動燃料電池の研究開発	株式会社デンソー
PE08	研究開発項目 I ④極限環境下における劣化防止技術開発	硫黄化合物等の吸着脱離メカニズム解明と被毒予防・回復技術開発	国立研究開発法人物質・材料研究機構 一般財団法人日本自動車研究所
PE09	研究開発項目 I ④極限環境下における劣化防止技術開発	二次元反応場制御によるナノシート触媒/触媒層の高耐久化技術開発	国立大学法人信州大学 学校法人同志社 石福金属興業株式会社

PE10	研究開発項目 I ②高負荷運転技術 開発	アナターゼ型 TiO ₂ 薄膜を活用した低 接触抵抗・高耐久性セパレータ表面 処理技術の開発	国立大学法人東京工業大学 学校法人中部大学
PE11	研究開発項目 I ②高負荷運転技術 開発	高効率・高出力・高耐久 PEFC を実 現する GDL 一体型フラットセパレータ の研究開発	国立大学法人山梨大学 株式会社エノモト 国立大学法人大阪大学
PE12	研究開発項目 I ②高負荷運転技術 開発	高耐食性・低接触抵抗性を発現する PEFC ステンレスセパレータコーティング 技術の研究開発	国立大学法人名古屋工業大学 学校法人東京理科大学 国立研究開発法人物質・材料研究 機構
PE13	研究開発項目 I ②高負荷運転技術 開発	導電性ナノファイバーネットワークによる 自立 MPL の研究開発	日本バイリン株式会社
PE14	研究開発項目 I ④極限環境下劣化 防止等技術開発	燃料電池スタックシール用高速架橋工 ラスタマー材料の研究開発	国立大学法人九州大学 国立大学法人大阪大学 国立大学法人横浜国立大学 一般財団法人化学物質評価研究 機構
PE15	研究開発項目 I ④極限環境下劣化 防止等技術開発	燃料電池セパレーター用ラミネート金 属・高分子ナノコンポジット (NC) フィ ルムの研究開発	国立大学法人神戸大学 学校法人甲南学園 (甲南大学) 積水化学工業株式会社
PE16	研究開発項目 I ④極限環境下にお ける劣化防止技術 開発	固体高分子形燃料電池用接着シー ル技術の研究開発	国立大学法人東京工業大学 国立研究開発法人産業技術総合 研究所 国立研究開発法人物質・材料研究 機構 兵庫県公立大学法人兵庫県立大 学 国立大学法人大阪大学 国立大学法人名古屋工業大学 埼玉県産業技術総合センター
PE17	研究開発項目 I ①革新的高効率発 電実現技術開発	燃料電池セパレーター製造プロセスの 研究開発	国立研究開発法人産業技術総合 研究所
PE18	研究開発項目 I ④極限環境下にお ける劣化防止技術 開発	燃料電池の耐久性向上に向けたフラ ーレン誘導体ラジカルクエンチャーの研 究開発	国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学

■ 研究開発項目 I「共通課題解決基盤技術開発」（委託事業）

・評価解析プラットフォーム：5 テーマ（18 機関）

ID	研究開発項目	テーマ名	委託先
PF01	研究開発項目 I / PEFC 評価解析プラットフォーム ①マネジメントグループ	評価解析プラットフォームマネジメント	技術研究組合 FC-Cubic みずほリサーチ&テクノロジーズ株式会社
PF02	研究開発項目 I / PEFC 評価解析プラットフォーム ②シミュレーショングループ	長寿命化・高性能化達成のための設計シミュレーターの開発	国立大学法人京都大学 国立大学法人東北大学 国立大学法人九州大学 国立大学法人東京大学 国立大学法人東京工業大学
PF03	研究開発項目 I / PEFC 評価解析プラットフォーム ③材料分析／解析グループ	プラットフォーム材料の解析及び解析技術の高度化の技術開発	株式会社日産アーク 公益財団法人高輝度光科学研究センター 国立大学法人京都大学 大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構 一般財団法人ファインセラミックスセンター 国立大学法人電気通信大学 国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学 国立大学法人茨城大学 技術研究組合 FC-Cubic
PF04	研究開発項目 I / PEFC 評価解析プラットフォーム ④電気化学的特性測定グループ	電気化学的特性測定技術の研究開発	技術研究組合 FC-Cubic 山梨県
PF05	研究開発項目 I / PEFC 評価解析プラットフォーム ⑤マテリアルズ・インフォマティクスグループ	マテリアルズ・インフォマティクスによる燃料電池材料の研究開発	国立研究開発法人物質・材料研究機構 株式会社日産アーク

■ 研究開発項目 I「共通課題解決基盤技術開発」（委託事業）

・SOFC： 5テーマ（25機関）（灰色網掛は、継続可否審査で非継続となったテーマ）

ID	研究開発項目	テーマ名	委託先
SO01	研究開発項目 I ①革新的高効率発電実現技術開発	超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発（WP1 革新的高性能電極・部材の開発）	国立大学法人東北大学 国立大学法人京都大学 国立大学法人名古屋工業大学 一般財団法人ファインセラミックスセンター 株式会社リタケカンパニーリミテド
SO02	研究開発項目 I ①革新的高効率発電実現技術開発	超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発（WP2 高効率・高出力密度セルの開発）	国立研究開発法人産業技術総合研究所 パナソニックホールディングス株式会社 国立大学法人九州大学 国立大学法人宮崎大学
SO03	研究開発項目 I ①革新的高効率発電実現技術開発	超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発（WP3 セル評価・アプリケーション研究）	一般財団法人電力中央研究所 国立研究開発法人産業技術総合研究所 国立大学法人東京大学 国立大学法人横浜国立大学
SO04	研究開発項目 I ③高耐久起動停止性能の実現技術開発	固体酸化物形燃料電池強靱化技術の開発	国立大学法人京都大学 国立大学法人東北大学大学院環境科学研究科 国立大学法人九州大学 国立研究開発法人産業技術総合研究所 イムラ・ジャパン株式会社
SO05	研究開発項目 I ⑤課題横断型技術開発	固体酸化物形燃料電池スタックの高度評価・解析技術の研究開発	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 国立大学法人東京大学 国立大学法人京都大学 国立大学法人九州大学 国立大学法人東北大学 イムラ・ジャパン株式会社

■ 研究開発項目Ⅱ「水素利用等高度化先端技術開発」（委託事業）

・PEFC：24テーマ（51機関）（灰色網罫は、継続可否審査で非継続となったテーマ。）

ID	研究開発項目	テーマ名	委託先
IP01	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	高分子形と酸化物形の技術融合による電極一体型次世代PEFCの創製	国立大学法人九州大学
IP02	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	カーボンフリー白金合金ナノ粒子連結触媒とポリフェニレン系細孔ファイリング電解質膜の開発および高電圧・高出力MEAへの展開	国立大学法人東京工業大学
IP03	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	広温湿度作動PEFCを実現する先端的材料コンセプトの創出	山梨大学 日本化学産業株式会社
IP04	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	高性能・高耐久・低コストMEAに向けた先端要素技術の研究開発	国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学
IP05	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	超高電位を目指した酸化物カソードの開発・超機能発現のための表面/界面解析と制御	国立大学法人横浜国立大学 学校法人片柳学園東京工科大学 国立大学法人大阪大学
IP06	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	超高電位を目指した酸化物カソードの開発・理論起電力達成のための触媒合成	学校法人福岡大学 国立研究開発法人量子科学技術 研究開発機構 国立大学法人九州大学 国立大学法人宇都宮大学 高知県公立大学法人高知工科大学
IP07	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	超高電位を目指した酸化物カソードの開発・先端計測と理論解析による触媒能発現機構の解明	国立研究開発法人物質・材料研究機構 国立大学法人東京大学、 株式会社日産アーク
IP08	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	十四員環型活性点の高活性化・高密度化による革新的非白金触媒の研究開発	国立大学法人東京工業大学 国立大学法人静岡大学 国立大学法人熊本大学 旭化成株式会社
IP09	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	PEFC用イオン液体含侵型Pt/MPC高活性・高耐久カソード触媒合成技術の研究開発	独立行政法人国立高等専門学校機構 奈良工業高等専門学校 独立行政法人国立高等専門学校機構 和歌山工業高等専門学校
IP10	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	イオン液体構造を有するアイオノマーによる革新的低白金技術の研究開発	独立行政法人国立高等専門学校機構 鶴岡工業高等専門学校

IP11	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	機能性ナノファイバーフレームワークを基本骨格とする低コスト・高耐久性電解質複合膜の研究開発	東京都公立大学法人東京都立大学
IP12	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	150℃運転可能な高耐久超薄コンポジット電解質膜/電極接合体の研究開発	国立大学法人豊橋技術科学大学 兵庫県公立大学法人 豊田通商株式会社
IP13	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	高伝導無水系電解質膜の研究開発	国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学
IP14	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	多機能 OCT を用いた金属異物非接触マイクロ断層検出システムの開発	学校法人名城大学
IP15	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	『湾曲グラファイト網面』をプラットフォームとする革新的カーボンアロイ PEFC カソード触媒の研究開発	国立大学法人群馬大学 日清紡ホールディングス株式会社 国立大学法人千葉大学
IP16	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	金属酵素インスパイアド非白金電極触媒の研究開発	国立大学法人北海道大学 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
IP17	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	触媒担体表面の化学修飾技術による PEFC 超高機能界面の創出	国立大学法人大分大学
IP18	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	～1-nm 白金系触媒の構造・組成制御に基づく PEFC カソード触媒の高活性化	学校法人東京理科大学
IP19	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	燃料電池高温低加湿運転に向けた炭化水素系およびガラス系無機電解質膜の研究	国立研究開発法人産業技術総合研究所 国立研究開発法人物質・材料研究機構
IP20	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	スケーリング則を脱するカソード触媒の基盤研究：酸化物をベースとした非白金触媒の理解	国立研究開発法人物質・材料研究機構 国立大学法人東京大学 国立大学法人横浜国立大学
IP21	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	広作動条件に対応可能な革新的白金系ナノシート触媒の技術開発	国立大学法人信州大学 国立大学法人琉球大学 学校法人同志社大学
IP24	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	燃料電池および水電解の革新的な生産技術に資する静電スプレー法に関するプロセス要素技術の研究開発事業	国立大学法人山梨大学 国立大学法人大阪大学 株式会社メイコー
IP22	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	広い温度範囲で作動可能なリン酸固定型極薄ハイブリッド電解質膜の研究開発	国立大学法人豊橋技術科学大学 兵庫県公立大学法人兵庫県立大学

IP23	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料 電池技術の開発	規則的ナノ細孔を活用した中温プロトン 伝導膜の研究開発	株式会社デンソー 国立大学法人京都大学
------	-------------------------------	--------------------------------	------------------------

■ 研究開発項目Ⅱ「水素利用等高度化先端技術開発」（委託事業）

・水素貯蔵：11 テーマ（37 機関）

ID	研究開発項目	テーマ名	委託先
HS01	研究開発項目Ⅱ ①革新的な水素貯蔵関連技術の開発	CFRP 製水素タンクのマルチスケール設計・評価解析技術の研究開発	国立大学法人東京大学 国立大学法人筑波大学 学校法人日本大学 日本大学理工学部理工学研究所
HS02	研究開発項目Ⅱ ①革新的な水素貯蔵関連技術の開発	低コストと高性能を両立した炭素繊維の研究開発	国立大学法人東海国立大学機構 国立大学法人九州大学
HS03	研究開発項目Ⅱ ①革新的な水素貯蔵関連技術の開発	車載機器用高圧水素適合性高分子材料評価法およびデータベースの確立	国立大学法人九州大学 公立大学法人滋賀県立大学 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構
HS04	研究開発項目Ⅱ ①革新的な水素貯蔵関連技術の開発	移動式 FC 用水素源アンモニアボランの社会実装に向けた先端技術開発	国立大学法人琉球大学 ハイドロラボ株式会社
HS05	研究開発項目Ⅱ ①革新的な水素貯蔵関連技術の開発	革新的低コスト燃料電池自動車用高圧水素容器の健全性を保証するための非破壊検査，オンラインモニタリング，損傷許容技術の開発	国立大学法人東京工業大学 東京都公立大学法人東京都立大学 国立大学法人東北大 国立大学法人東京大学 学校法人明治大学 国立研究開発法人物質・材料研究機構 国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学 国立大学法人東海国立大学機構 岐阜大学
HS06	研究開発項目Ⅱ ①革新的な水素貯蔵関連技術の開発	非 FW／分割プリフォームおよび新規樹脂（REDOX 硬化型樹脂）による高圧水素タンクの革新的ハイレート製造プロセスの開発	学校法人金沢工業大学 国立大学法人東京農工大学 学校法人日本大学 ミズノテクニクス株式会社
HS07	研究開発項目Ⅱ ①革新的な水素貯蔵関連技術の開発	水素貯蔵効率向上に向けた水素タンクの研究開発	豊田合成株式会社 株式会社アツミテック
HS08	研究開発項目Ⅱ ①革新的な水素貯蔵関連技術の開発	機械学習を用いた高圧水素複合容器の最適設計技術に関する理論検討及び実証研究	株式会社 SUPWAT 国立大学法人東京大学

	開発		
HS09	研究開発項目Ⅱ ①革新的な水素 貯蔵関連技術の 開発	マルチロードパス構造による連装型水素 タンクモジュールの研究開発	国立大学法人東京農工大学 国立大学法人東京大学 日本大学生産工学部生産工学研 究所 学校法人金沢工業大学 東京都公立大学法人 国立大学法人東海国立大学機構
HS10	研究開発項目Ⅱ ①革新的な水素 貯蔵関連技術の 開発	軽量液体水素タンク用高分子系ハイブ リッド複合材料の研究開発	国立研究開発法人物質・材料研 究機構
HS11	研究開発項目Ⅱ ①革新的な水素 貯蔵関連技術の 開発	大型 FCV 用液体水素貯蔵システム開 発に向けた容器内液体水素挙動解明 に関する研究開発	一般財団法人日本自動車研究所 国立大学法人琉球大学 国立大学法人東京大学 国立大学法人神戸大学

■ 研究開発項目Ⅱ「水素利用等高度化先端技術開発」（委託事業）

・SOFC：6テーマ（14機関）（灰色網罟は、継続可否審査で非継続となったテーマ。

朱色網罟は、非継続になったものの2022年度公募で再度提案し、採択されたテーマ）

ID	研究開発項目	テーマ名	委託先
IS01	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	可逆動作可能な固体酸化物燃料電池の開発とエネルギー貯蔵システム	国立大学法人九州大学 特殊技研金属株式会社 国立大学法人北海道大学
IS02	研究開発項目Ⅱ ③その他多様な水素関連技術の高度化のための技術開発	高効率・高耐久・可逆作動 SOFC の研究開発	国立大学法人山梨大学
IS03	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	可逆動作型プロトン伝導セラミック燃料電池の新規な健全性評価・解析技術の開発	学校法人日本大学
IS04	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	低温作動水素透過膜支持型燃料電池の研究開発事業	国立大学法人北海道大学
IS05	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	可逆動作可能な固体酸化物燃料電池の可逆性と繰り返し安定性の向上	国立大学法人九州大学 特殊技研金属株式会社 国立大学法人北海道大学
IS06	研究開発項目Ⅱ ②革新的な燃料電池技術の開発	固体酸化物形電気化学セル強靱化技術の開発	国立研究開発法人産業技術総合研究所 国立大学法人東北大学 国立大学法人京都大学 国立大学法人九州大学 イムラ・ジャパン株式会社

■ 研究開発項目Ⅱ「水素利用等高度化先端技術開発」（委託事業）

・水電解：1テーマ（3機関）（2022年度より）

ID	研究開発項目	テーマ名	委託先・
EC01	研究開発項目Ⅱ ③その他多様な水素関連技術の高度化のための技術開発	プロトン交換膜型水電解装置用革新的低貴金属担持アノード触媒の研究開発	国立大学法人山梨大学 日本化学産業株式会社 石福金属興業株式会社

■ 研究開発項目Ⅲ「燃料電池の多用途活用実現技術開発」（助成事業（助成率：1／2以内））

・17テーマ（24機関）（灰色網掛は、継続可否審査で非継続となったテーマ、橙色網掛は、当初計画通りに終了したテーマ）

ID	研究開発項目	テーマ名	助成先
MU01	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用途活用実現技術開発	MEA 高速生産技術および検査技術の開発	株式会社 SCREEN ファインテックソリューションズ
MU02	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用途活用実現技術開発	高出力燃料電池搭載内航船舶の実用化に向けた実証	日本郵船株式会社 東芝エネルギーシステムズ株式会社 川崎重工業株式会社 ENEOS株式会社
MU03	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用途活用実現技術開発	低コスト高効率化技術を用いた燃料電池システムによる多用途活用技術開発	株式会社デンソー
MU04	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用途活用実現技術開発	用途拡大を見据えた薄型・高効率SOFCシステムの実用化開発	株式会社アイシン
MU05	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用途活用実現技術開発	高信頼性炭化水素系補強電解質膜の低コスト・革新的生産技術開発	東レ株式会社
MU06	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用途活用実現技術開発	車載用燃料電池セパレータの大量普及時に向けた品質担保手法の開発	日清紡ケミカル株式会社
MU07	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用途活用実現技術開発	高耐久空冷式燃料電池システムの開発	日清紡ホールディングス株式会社
MU08	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用途活用実現技術開発	多用途展開可能なクラウド対応型燃料電池（FC）発電モジュールの開発	株式会社豊田自動織機
MU09	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用途活用実現技術開発	燃料電池システムを搭載した油圧ショベルの研究開発と実証検証	コベルコ建機株式会社

MU10	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用 途活用実現技術 開発	商用運航の実現を可能とする水素燃料 電池船とエネルギー供給システムの開発・ 実証	岩谷産業株式会社 関西電力株式会社
MU11	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用 途活用実現技術 開発	燃料電池搭載農業用トラクタの実用化に 向けた実証研究	株式会社クボタ
MU12	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用 途活用実現技術 開発	港湾荷役機器ラバータイヤ式門型クレーン の水素駆動化（水素燃料電池の採用） 開発事業	株式会社三井 E&S マシナリー
MU13	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用 途活用実現技術 開発	高圧水素タンク及びM E Aの全数高速 検査を実現する革新的 X線検査技術の 開発	東レ株式会社
MU14	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用 途活用実現技術 開発	高性能 SOFC スタックおよびエネルギーマ ネジメント連携によるドローン等実用化技 術開発	日産自動車株式会社 株式会社アツミテック 株式会社プロドローン インテグレーションテクノロジー株式 会社
MU15	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用 途活用実現技術 開発	カーボンと樹脂の複合材料を用いた燃料 電池セパレータ高生産性技術開発	トヨタ車体株式会社
MU16	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用 途活用実現技術 開発	高信頼性炭化水素系電解質膜の革新 的 C C M生産技術開発	東レ株式会社
MU17	研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用 途活用実現技術 開発	高圧方式に適した大型アルカリ水電解装 置及びセパレータの開発	株式会社日本触媒 株式会社トクヤマ

2.3 研究開発の運営管理

NEDOは、研究開発全体の管理及び執行に責任を負い、研究開発の進捗のほか、外部環境の変化等を適時に把握し、必要な措置を講じるものとする。運営管理は、効率的かつ効果的な方法を取り入れることとし、次に掲げる事項を実施する。

① 研究開発の進捗把握・管理

PMは、経済産業省、PL、SPL、研究開発実施者と緊密に連携し、研究開発の進捗状況を把握する。また、外部有識者で構成する技術検討委員会等を組織し、積極的にユーザーニーズの把握に努めると共に、定期的に技術的評価を受け、目標達成の見通しとこれに対する課題等を常に把握することに努め、研究進捗把握等のマネジメントを行う。

② 技術分野における動向の把握・分析

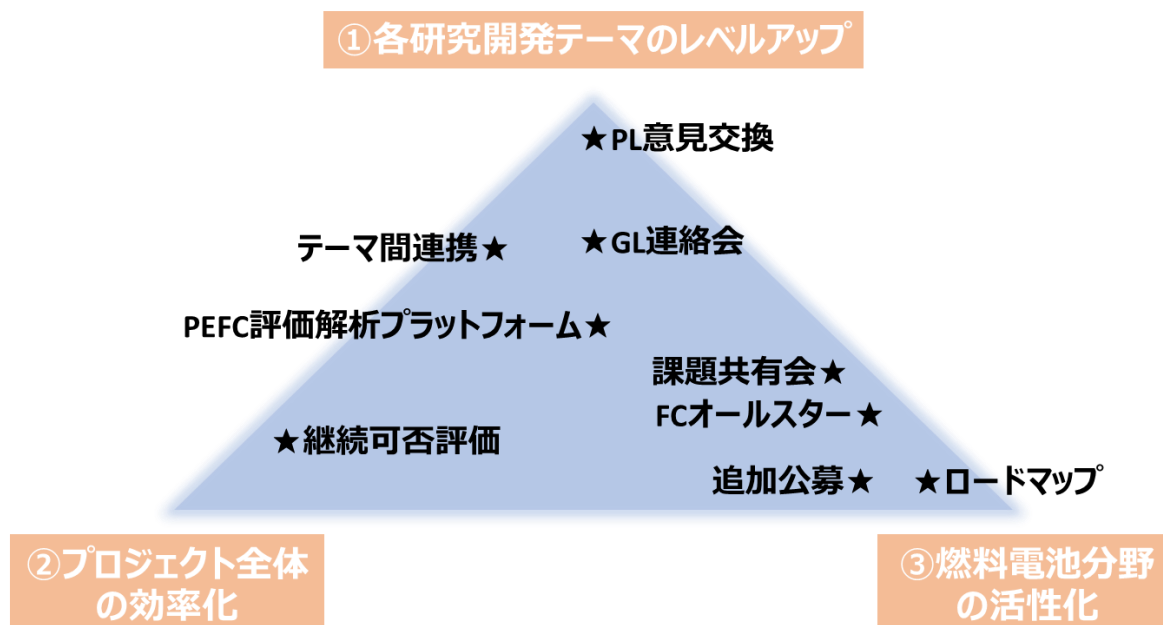
PMは、プロジェクトで取り組む技術分野について、内外の技術開発動向、政策動向、市場動向等について調査し技術の普及方策等を分析、検討する。

③ テーマ継続可否評価

各研究開発テーマについて、約2年毎に外部有識者による評価を実施し、テーマの継続可否を判断する。

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

本事業では、2.3の運営管理の大方針に基づき、実用化・事業化を意識した研究開発マネジメントを遂行する。具体的には、①各研究開発テーマのレベルアップを意識したマネジメント、多数の研究開発テーマからなるプロジェクト全体の効率化を意識したマネジメント、③採択したテーマの管理だけでなく燃料電池分野の活性化につながるマネジメントである。



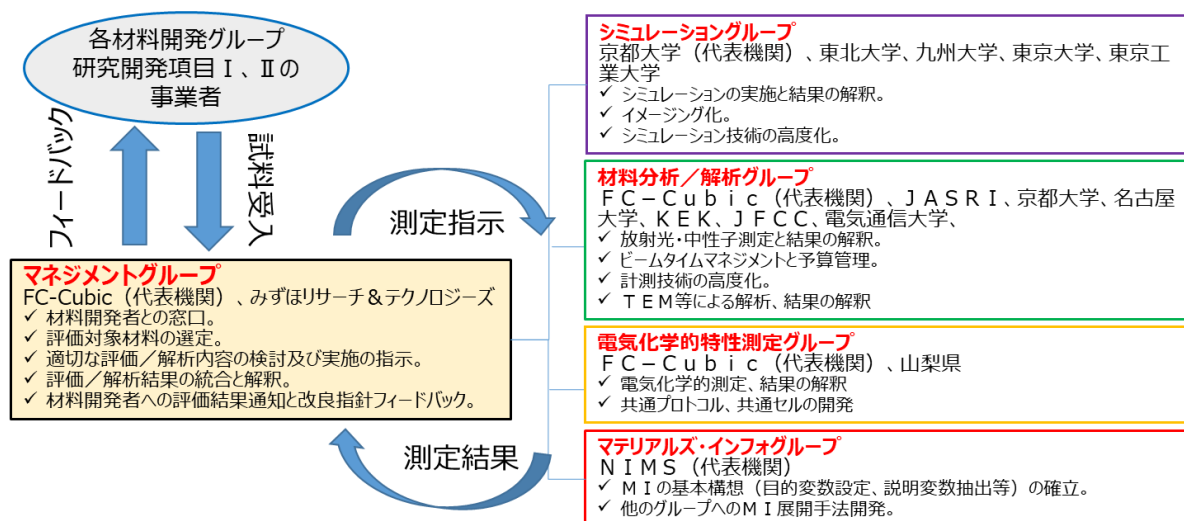
具体的に実施しているマネジメントは次の通りである。

(1) P E F C 評価解析プラットフォーム

共通的な指標で材料を評価、解析し、その結果を解釈して研究者に向けた材料設計指針をフィードバックする世界初の P E F C 評価解析プラットフォームを構築した。ここでは、高度な解析・評価技術を有するプラットフォームの参画メンバーがマネジメントグループの指揮のもと、材料研究を行う各研究グループの開発サンプルを評価解析し、その結果を考察し、総合的な解釈のもとフィードバックを行う事で、材料研究の加速化・深化に貢献している。

材料研究グループとの連携に当たっては、N D A 締結等のルール整備から、連携会議を通じた材料毎の解析方針の検討、解析結果の統合的な解釈と改善指針のフィードバックなどを精力的に実施中である。これまでに 3 0 0 以上ものサンプルを評価しており、2 0 2 1 年度末に実施した材料研究グループへのアンケートにおいて極めて高い満足度を得られている。また、電気化学には知見が少ないが有望な能力を有する新規の材料研究者等の参入にもつながっている。

各材料研究グループのレベルアップにつながるだけでなく、共通的な指標で評価可能であることから、その評価結果を用いて研究開発の方針を検討するなど、プロジェクト全体の効率化にも寄与するものである。



(2) PL 意見交換

PL、SPL、PM、NEDO担当者が定期的に各テーマの進捗状況を把握し、産業界のニーズや実用化・事業化を見据えた研究開発方針を議論している。実用化・事業化を念頭に、開発方針や目標設置の確認、競合技術とのベンチマーク、目標達成に向けたシナリオの検討、実用における課題の整理等について、定期的に議論を実施し、適宜研究開発の軌道修正を図っている。これまでに P E F C、S O F C、水素貯蔵の各研究グループと延べ 2 0 0 回以上の P L 意見交換を実施した。

(3) GL 連絡会

各テーマのグループリーダーが集まる G L 連絡会を各分野で計 1 1 回開催し、テーマ間での開発内容の共有や分野全体に関する最新情報を共有している。各事業者の開発概要、進捗状況、困りごと等を全体に共

有し、テーマ間の知の共有や連携を図るとともに、ロードマップの検討状況や評価解析プラットフォームの検討状況（評価プロトコルの策定やM I R A Iセルの解析結果、各種イベントの情報提供等）を共有することにより、多数のテーマが参画する本事業の効率的な遂行に活用している。

（４）テーマ間連携

プロジェクトの効率的な運営や成果の最大化のために、効果やタイミングを見定めた上で様々な技術領域にて、N E D O / P L 主導によるテーマ間の連携活動を推進している。例えば、水素貯蔵分野の事業者間の知見共有やコネクションづくりを促進するためのワークショップをN E D O 主導で開催した。第1回は「高圧水素容器の破壊モード」をテーマに本プロジェクト関係なく知見を共有し、活発な意見交換につながり、また人的ネットワークの形成にも貢献した。その他、P L 意見交換などを通して、機能性ナノファイバーの研究テーマと電解質の研究テーマの連携を促し、双方成果の融合化による機能発現を模索する動きを推進中である。その他、イオン液体、ラジカルクエンチャー、カーボンシェル触媒など関連するいくつかのテーマが存在する場合は、効果も十分に吟味の上、連携活動を推進している。

（５）テーマ継続可否評価

本事業では、テーマ公募型として燃料電池の大きな課題に対して、多数のテーマに採択し、研究開発を推進している。特に委託事業に関しては、2030年以降を見据えたハイリスクな研究開発であることから、限られた予算の中でいかに事業化につながるテーマを見出すか、という観点プロジェクトの効率的な推進において重要である。そのため、本事業では、外部有識者からなる継続可否評価委員会を設置し、2年毎に各テーマの進捗等を確認し、継続可否を判断することとしている。

継続可否評価は、①研究目的、②目標設定、③研究進捗、④研究計画の4つの視点で評価し、中間目標の達成状況や最終目標達成の見通しに加えて、研究目的や設定目標が最新の産業界ニーズに対応しているか、競合技術との優位性を確保できるテーマであるか等も改めて確認する。

第1回の継続可否評価として、本事業の初年度（2020年度）に採択したテーマの継続可否評価を、2022年3月に実施した。評価対象は、2020年度に採択した全46テーマとし、研究開発項目および分野により委員会を5つに分割、各委員会6名の外部有識者（2名以上は産業界）が、書面およびヒアリング審査により各テーマの継続可否を判断した。結果として、33テーマを継続することとした。

なお、継続可否評価では、単に継続可・不可だけでなく、拡大（増額）して継続、縮小（減額）して継続、非継続など多様な結果を提示するとともに、継続可となった案件に対しては、委員会として継続する条件や要望事項を附帯するなどして、今後の改善につながるコメントを提示した。

（６）ロードマップ

NEDOでは、産業界や大学、研究機関などのステークホルダー間で目指すべき方向性や具体的な目標性能を共有し、研究開発の効率化や加速化につなげるため、2005年から燃料電池技術開発ロードマップを策定・公開してきた。本事業も前述のとおり、2017年度に策定した技術開発ロードマップに示す目標をベースとして目標設定等を行っているが、昨今水素・燃料電池の期待高まりとともに、本分野の技術動向や市場動向は急速に進展してきており、最新の状況を把握しながらロードマップを見直し、研究開発プロジェクトに反映していくことが肝要である。

本事業では、世界各国で大型トラック等への燃料電池適用に向けた動きが加速化していること、日本では大型トラック等のHDV（Heavy Duty Vehicle）向けの燃料電池ロードマップが存在しな

いことを受けて、2021年度にHDV向け燃料電池技術開発ロードマップを策定に関する検討を行った。産業界とアカデミアの密な議論により、目指すべき方向性、具体的な数値目標、今後の課題を明確化し、2022年3月に一般公開した。本ロードマップでは、燃料電池システムの目標から、触媒、電解質、GDL等の各部材に求められる性能にブレークダウンし提示しており、要素技術を開発するアカデミア等の指針になると期待される。

(7) FCオールスター

本事業では、PEFC評価解析プラットフォームの活動の一環として、PEFCの共通課題解決に向けて、FCオールスターと題し、燃料電池システムOEM4社による課題検討会を実施している。各社が協調して取り組むべき課題がどこに存在するか、といった観点で議論を行っており、2021年度は性能には直接直結しないが、開発に大きなリソースが割かれており、これまでNEDOであまり扱ってこなかったシール材料に焦点を当てた。今後は高温運転化などの新たな課題も生じることから、本分野をオールジャパンで取り組むべきとして、具体的な課題設定や目標を議論し、2022年3月のシンポジウムでその内容を発表した。

(8) 追加公募

本事業では、初年度の公募だけではなく、産業界等との議論に基づき新規課題を設定し2021年度と2022年度に追加公募を実施した。2021年度は基本計画に示す性能目標（2030年目標）の達成や、その他産業界からのニーズに対して特に貢献度の高い分野の研究テーマを重点項目として設定、2022年度はHDVロードマップやFCオールスターでの議論に基づき、HDVに燃料電池を適用するにあたって求められる運転条件（広範な温湿度下）・耐久性・発電性能等の実現に資する要素技術開発や接着シールに関する技術開発を重点項目として設定し、関連するテーマを採択した。

(8) 知財戦略

本事業では、知財マネジメント基本方針に従い、知財合意書や知財運営委員会規則をテーマ毎に策定することとしている。また、各テーマにおいて知財戦略を策定することを提案段階からの条件としており、採択審査委員／継続可否評価委員として知財専門家を委嘱し、採否の判断にするとともに、留意・改善すべき事項等を事業者提示している。

更に、実用化・事業化を意識し、関心表明企業への権利移転等も念頭に出願方針を検討することを図るとともに、PL意見交換や継続可否評価にて、出願方針や懸念事項等を確認している。

3. 情勢変化への対応

2017年12月：水素基本戦略策定

2018年7月：第5次エネルギー基本計画

2019年1月：課題共有フォーラムの開催（NEDO）

- ・トヨタ自動車株式会社や株式会社本田技術研究所、燃料電池実用化推進協議会（FC C J）らとともにFCV課題共有フォーラムを開催し、燃料電池に関する技術課題のうち協調領域の課題の抽出・共有を図った。
- ・2020年の本プロジェクト開始後に計6回実施

2019年3月：水素・燃料電池戦略ロードマップ改訂

2020年2月：「燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業」に係る公募

- ・第5次エネルギー基本計画や水素・燃料電池戦略ロードマップ等で定めるシナリオに基づき2030年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システム（水素貯蔵タンク等を含む）を実現するためのユーザーニーズに基づく協調領域の基盤技術を開発するとともに、従来以外の用途に展開するための技術並びに大量生産を可能とする生産プロセス又は検査技術等の公募
- ・本公募では、46テーマを採択した（2020年7月）

2020年10月：2050年カーボンニュートラル宣言

2021年2月：2021年追加公募

- ・基本計画に示す性能目標（2030年目標）の達成や、その他産業界からのニーズに対して特に貢献度の高い分野（例えば低接触抵抗セパレータやガス拡散層等（GDL・MPL）の技術開発）の技術開発を重点項目として設定し、追加公募した
- ・本追加公募では、24テーマを採択した（2021年6月）

2021年6月：2050年カーボンニュートラルに伴うグリーン成長戦略改訂

2021年10月：第6次エネルギー基本計画

2022年3月：「HDV用燃料電池技術開発ロードマップ」策定

- ・世界的に燃料電池の適用検討が加速化する大型トラックや船舶、鉄道、建機、農機、フォークリフトなどのHDV向けロードマップを産学協調により策定した

2022年3月：2022年度追加公募

- ・HDVロードマップや産学官との議論に基づき、HDVに燃料電池を適用するにあたって求められる運転条件（広範な温湿度下）・耐久性・発電性能等の実現に資する要素技術開発や接着シールに関する技術開発を重点項目として設定し、追加公募した
- ・本追加公募では、18テーマを採択した（2022年7月）

また、各テーマの進捗や海外の技術動向を踏まえ、必要性やタイミング等を考慮したうえで各テーマの予算を増額し、研究開発を加速化させるマネジメントもこれまでに多数実施している。

4. 評価に関する事項

NEDOは技術評価実施規程に基づき、技術及び政策的な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、プロジェクト評価を実施する。

評価の時期は、中間評価等を2022年度、事後評価を2025年度とし、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。

また、中間評価結果を踏まえ、必要に応じてプロジェクトの加速・縮小・中止等の見直しを迅速に行う。

3. 研究開発成果について

1. 事業全体の成果

本事業は、多数のテーマからなるテーマ公募型の事業であり、研究開発成果の詳細は2. で詳述する。事業全体としては、前述のとおり2年毎の継続可否評価にて各テーマの妥当性を評価している。継続可否評価では、産業界（FCシステムメーカー等）の有識者も含めた外部審査委員が中間目標の達成状況や最終目標達成の見通しを確認し、実施すべきと認めたものを継続しており、各テーマの中間目標の達成状況も全体として良好であること、最終目標の達成につながる成果も得られつつあることから、中間目標に対する事業全体としての達成度は○と判断する。

中間目標	達成度
最終目標に達するための中間段階の目標値を個別テーマ毎に別途定め、達成度合いは当該技術のユーザー企業に意見を照会して肯定的な意見を得る。	○

2020年度採択テーマを対象として実施した継続可否評価の委員会毎の結果は以下の通りである。

委託事業（研究開発項目Ⅰ、研究開発項目Ⅱ）

- ・PEFC（研究開発項目Ⅰ）：14テーマ → 11テーマ
- ・PEFC（研究開発項目Ⅱ）：14テーマ → 10テーマ
- ・水素貯蔵（研究開発項目Ⅱ）：4テーマ → 4テーマ
- ・SOFC（研究開発項目Ⅰ・Ⅱ）：7テーマ → 5テーマ

助成事業（研究開発項目Ⅲ）

- ・実用化開発（研究開発項目Ⅲ）：7テーマ → 3テーマ

なお、特に個別材料の要素技術開発を中心に実施しているPEFCの委託研究においては、本事業の最終目標に資するテーマであるかの判断が難しい。そこで、評価解析プラットフォームなどが中心となり、最終目標の達成に求められる材料毎の目標をシミュレーションにより算出し、各テーマが掲げる目標値がしっかりと貢献するものであるかを確認済みである。また、定期的に各テーマに評価結果を確認し、現状の達成度合いを可視化しつつ進めている。触媒であればハーフセルで最終目標を見通す成果が得られてきているが、実用化・事業化に向けては、MEA・セルでの性能・耐久確認が必要であり、後半年度はより材料研究グループと評価解析プラットフォームを連携させて事業を推進していく。

2.研究開発項目毎の成果

2-1. 研究開発項目 I「共通課題解決基盤技術開発」

PEFCにおける中間目標に対する成果と達成状況を課題番号（管理番号）PE01～PE15に記す。
（2020年度と2021年度の採択テーマ）

2-2. 研究開発項目 I「共通課題解決基盤技術開発」

PEFC評価解析プラットフォームにおける中間目標に対する成果と達成状況を課題番号（管理番号）PF01～PF05に記す。（2020年度の採択テーマ）

2-3. 研究開発項目 I「共通課題解決基盤技術開発」

SOFCにおける中間目標に対する成果と達成状況を課題番号（管理番号）SO01～SO05に記す。
（2020年度と2021年度の採択テーマ）

2-4. 研究開発項目 II「水素利用等高度化先端技術開発」

PEFCにおける中間目標に対する成果と達成状況を課題番号（管理番号）IP01～IP19に記す。
（2020年度と2021年度の採択テーマ）

2-5. 研究開発項目 II「水素利用等高度化先端技術開発」

水素貯蔵における中間目標に対する成果と達成状況を課題番号（管理番号）HS01～HS08に記す。
（2020年度と2021年度の採択テーマ）

2-6. 研究開発項目 II「水素利用等高度化先端技術開発」

SOFCにおける中間目標に対する成果と達成状況を課題番号（管理番号）IS01～IS04に記す。
（2020年度と2021年度の採択テーマ）

2-7. 研究開発項目 III「燃料電池の多用途活用実現技術開発」

助成事業における中間目標に対する成果と達成状況を課題番号（管理番号）MU01～MU14に記す。
（2020年度と2021年度の採択テーマ）

課題番号（管理番号）： PE01

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／高温低加湿作動を目指した革新的低白金化技術開発」

実施者： 学校法人 同志社、石福金属興業株式会社、国立大学法人 東北大学、国立研究開発法人 産業技術総合研究所、国立大学法人 千葉大学

期間： 2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

本格的なFCVの普及に向けては現状のスタック性能は不十分であり、NEDO 燃料電池・水素技術開発ロードマップに示された2030年スタック目標でも示されているとおり、カソード白金系触媒の飛躍的な高活性化が不可欠である。本研究開発では、これらの2030年度以降に目指すべき性能を実現可能な白金系高活性触媒を開発することを目的とする。

本研究開発では、前プロジェクトで開発を進めてきた1) 高活性触媒技術をベースにさらに高活性化、2) 有機物修飾技術をベースに、さらに高活性、高安定性の有機物、ポリマー探索、に加えて、3) 高比表面積+連通孔を有するメソポーラスカーボン(MPC)担体の使用により、細孔内の高速酸素拡散性を付与し、高活性化、高電流密度化、さらに、4) MPC 細孔内へのプロトン伝導性イオン液体の含浸を試み、100℃以上での高温低加湿作動を目指している。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

○中間目標（2022年度6月）

回転ディスク電極による評価により1000 A/g-PGM(@0.9 V)以上の質量活性、また80℃フル加湿条件のMEA評価により0.2 A/cm²の電流密度で0.84 V以上、発電電圧0.6 Vで電流密度3.0 A/cm²以上の発電性能を有する高活性触媒を開発する。

○最終目標（2024年度）

回転ディスク電極による評価により1500 A/g-PGM(@0.9 V)以上の質量活性、また作動温度100℃以上、加圧条件1.5気圧以下のMEA評価により、0.2 A/cm²の電流密度で0.84 V以上、発電電圧0.6 Vで電流密度3.0 A/cm²以上の発電性能を見通し可能な革新的高活性触媒を開発する。また、触媒粒子のメソ孔への担持および表面修飾技術により同程度の粒径を有する標準触媒に対して耐久性3倍を見通す。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
①高温低加湿に対応可能な高酸素拡散性を有する高活性触媒の開発 (学校法人	高活性触媒、MPC、プロトン伝導性ILを組み合わせ ・RDE: 1000 A/g @0.9 V ・MEA: 0.84V@0.2A/cm² 0.60V@3.0A/cm ²	・RDE PtCo/MPC 1100 A/g-PGM, Pt/Pd/MPC 650 A/g-PGM (1530 A/g-Pt), PtCo/KB600JD + ヌラミン 4120 A/g-PGM ・MEA (0.1 mg-PGM/cm ² , 80℃, 75%RH, +50 kPa) PtCo/MPC: 0.81 V@0.2	○	・低電流密度での低活性に関しては原因を究明済（イオンマー添加不足） ・ PtCo/MPC+IL

同志社)		A/cm ² , 0.64 V@3.0 A/cm ² Pt/Pd/MPC: 0.79 V@0.2 A/cm ² , 0.53 V@3.0 A/cm ² ・メラミン誘導体をベースとするプロトン導電性イオン液体 5 種を合成、活性向上効果を RDE、MEA で実証 ・メラミンが吸着した PtCo/C 触媒で Co 溶出を抑制、耐久性が大幅に向上することを確認		修飾により 0.84 V@0.2 A/cm ² を達成見込み
②新規触媒の少量生産技術および MEA 評価技術の開発(石福金属興業)	・連続生産方式の決定と連続運転の実施と課題の抽出 ・新規触媒の 1 g/バッチレベルの少量生産技術を開発 ・MEA 評価技術を開発	・連続槽型反応器によるコアシェル触媒の連続生産技術を開発し、終日連続運転に向けた課題を抽出 ・再現性が高く、微細孔分散に Pt を担持した Pt/MPC の作製技術を開発 ・評価解析 PF の標準条件で Pt 目付量 0.1 mg/cm ² で 3 A/cm ² まで I-V 特性が得られる技術を得た	○	・合金触媒の少量生産技術の開発 ・高温低加湿条件での MEA 評価
③酸化物ミクロ構造制御による高温対応モデル触媒開発(東北大学)	カソード: 1000 A/g-PGM アノード: H ₂ O ₂ 生成対 Pt 比で 1/10 以下となる触媒表面の原子構造の明確化	カソード: Pt-高エントロピー合金触媒、また硫化 Co 中間層を有する PtCo 合金触媒が中間目標値をクリアする材料系であることを示した。 アノード: (111)表面原子配列、表面組成 Ir:Pt=7:3 の Ir-Pt 合金は、H ₂ O ₂ 生成が単味 Pt 比 1/10 以下であり、かつ HOR 活性も向上することを示し、さらに特性向上メカニズムを明らかにして目標を達成した。	○	Pt-高エントロピー合金触媒における、元素種、元素数の最適化と表面 Pt 層安定化メカニズムの検討。有機物表面修飾技術との融合による特性向上
④高温低加湿に対応可能な有機物修飾による触媒高活性化技術の開発(産総研)	有機物修飾により RDE: 1000 A/g MEA: 0.84V@0.2A/cm²	・活性/RDE@0.9 V メラミン吸着 PtCo/C: 1043 A/g-Pt ・活性/MEA (@0.21 mg-PGM/cm ² , 80°C, 75% RH, 50 kPa-G) オクチルメラミン修飾 PtCo/F: 0.822 V@0.2 A/cm ² ・メラミンが吸着した Pt/C 触媒の高耐久化を確認	○	MEA における有機物修飾剤の作用とその機序の解明、及び作用機序に基づく有機物修飾剤の開発
⑤高温で高 ORR 活性を	・1000 A/g-PGM 以上を到達し得るイオン液体と金	・[MTBD][beti]を修飾した Pt(111)の ORR 活性は Pt(111)の	○	・さらに ORR を高活性化し、耐

発現する活性化因子の解析(千葉大学)	属単結晶面の組み合わせの決定 ・高温で測定可能な振動分光測定装置の開発	3 倍 ・メラミン修飾 Pt ₃ Fe(111)の活性は Pt(111)の 39 倍 ・メラミンがステップに優先的に吸着し、耐久性を高めていることを解明 ・高温で測定可能な赤外分光装置の作製完了 ・活性化される面に MTBD とメラミンが斜めに吸着していることを確認	久性を向上させる疎水性物質と金属単結晶面の決定、及び高温での ORR と表面吸着種測定
--------------------	--	--	---

注：赤字の活性目標は未達であるが、原因が解明されていること、また青字で示した想定外の結果も得られたため総合的に達成度は○とした。

3.2 研究開発の詳細

(1) 高温低加湿に対応可能な高酸素拡散性を有する高活性触媒の開発（学校法人同志社）

担体として平均細孔径 4nm の連通孔を有するメソポーラスカーボン(MPC) (東洋炭素、CNovel MH-18) を選択し、Pt/Pd/MPC コアシェル触媒および PtCo/MPC 合金触媒を合成、RDE 評価を行ったところ質量活性としてそれぞれ 650 A/g-PGM (1530 A/g-Pt)、1100 A/g-PGM を得た。コアシェル触媒は Pt ベースの活性は高いが PGM あたりの活性が低く、PtCo/MPC で中間目標(1000 A/g-PGM)を達成した。CNovel MH-18 の粒径は 2 μm と大きいのでビーズミル粉碎により、平均粒径 800, 450, 250 nm) の担体粉末を得た。これに Pt/Pd コアシェル粒子を担持した触媒を用いた MEA 評価を行ったところ、平均粒径 800 nm の MPC を用いた触媒が最も高い性能を示した。また、PtCo/MPC(800nm)を用いた MEA 評価(0.1 mg/cm²)では、0.81 V@0.2 A/cm², 0.64 V@3.0 A/cm² の発電特性が得られ、出力目標(>0.6 V)は達成できたが、活性目標(0.84 V)が未達であった。低電流密度での低活性の原因は触媒層中のイオノマー不足であることがわかっており、I/C の最適化を行うこと、また後述するプロトン性イオン液体(PIL)の活性向上効果により、近日中に目標を達成予定である。

プロトン化メラミン誘導体 + nonafluorobutanesulfonylimide(NFSI)アニオンからなる 5 種類の新規 PIL を合成した。全固体ハーフセルでの測定より低湿度環境での MPC 担体へのプロトン伝導性付与効果を、また RDE および MEA 評価により触媒の活性向上効果を確認した。MEA では活性向上とともに高電流密度領域での酸素拡散抵抗の低下も見られ、想定外の PIL 添加効果を見出した。

産総研で開発された有機物（メラミン）を吸着させた PtCo/C 合金触媒の RDE 評価で、4120 A/g-PGM という極めて高い質量活性が得られた。また、メラミンを 10 μM 溶解させた 0.1 M HClO₄(80℃) 中での電位サイクル耐久性試験(ADT)によりメラミンの吸着が Co 溶解を抑制し、大幅に合金触媒の耐久性が向上することを見いだした。

(2) 新規触媒の少量生産技術および MEA 評価技術の開発(石福金属興業)

パラジウムコア白金シェル触媒(Pt/Pd/C)の Pt シェル形成工程は、前プロジェクト(先進低白金化技術開発)で開発したパラジウム担持カーボン(Pd/C)コアの Pd を酸化溶出して Pt を還元析出させることで Pd コア表面に Pt シェルを形成する直接置換法(Direct Displacement Reduction, DDR)を適用し、連続生産技術として連続槽型反応器(Continuous Stirred Tank Reactor, CSTR)を選択した。CSTR

で作製した Pt/Pd/C の評価解析を NEDO 評価解析プラットフォーム MEA 評価を行った。連続生産した Pt/Pd/C は Pd コアの表面に Pt シェルが形成されており、コアシェル構造ができていることが確認できた。また MEA 評価の結果、Reference 触媒と比較して 0.85 V の電流値から PGM ベースで 1.4 倍の活性を示した。

同志社大学で検討を進めているメソ孔を有する MPC に含浸熱分解法、10 g/バッチで 50 wt.% Pt/MPC を作成する技術を開発した。Pt 粒子の担持状態は、粒子径が約 2.6 nm、ほぼ Pt の凝集がなく高分散に担持されていることが確認された。

50 wt.%Pt/MPC を適用して電極塗工シートを作製し、この電極塗工シートから MEA を 5 セット作製し、MEA 評価の再現性を確認した。5 つの I-V 特性はほぼ一致しており、MEA 作製技術の高い再現性が確認された。

(3) 酸化物マイクロ構造制御による高温対応モデル触媒開発(東北大学)

合金の多元系化(高エントロピー化)は、構成元素種間の原子径や融点、混合エンタルピーの差を通じて、緩慢な原子拡散挙動や局所歪みなどを引き起こし、触媒特性、とくに高温耐久性に寄与すると期待される。そこで、Pt(hkl)(hkl=111,110,100)基板上に代表的な高エントロピー合金(HEA)層として Cr-Mn-Fe-Co-Ni₅ 元系合金をアークプラズマ堆積し、さらに Pt を被覆した単結晶積層構造を構築して、その活性と耐久性を評価した。Pt/HEA/Pt(hkl)は同一条件で合成した Pt/Co/Pt(hkl)系と比較して初期活性が同等以上、5000 サイクル負荷後の活性も高く、高耐久であることがわかった。Pt-高エントロピー合金の ORR 特性は、真空合成時の基板温度や熱処理時間に敏感であった。以上を通じ、Pt-ハイエントロピー合金触媒は Pt-Co や Pt-Ni などの 2 元系合金触媒に比較して優れた特性を発現すること初めて明らかにした。今後、合成条件(構成元素種、元素数、基板温度などの熱処理条件)の最適化を行う。

合金化元素の Co を硫黄(S)により修飾(硫化)し、さらに Pt で表面被覆した Pt/Co/Pt(111)合金モデル触媒の ORR 特性を検討した。まず、Co 層表面に S 分子線照射を行うためのバルブクラックセルを導入し、S によるガスケットや真空計の腐食対策を施した超高真空チャンバーに装着した。作製したモデル触媒のサイクル負荷特性を検討すると、S 照射量が過剰な場合、Pt 層表面が S により被毒され、S 分子線未照射試料と比較して初期活性、サイクル負荷特性とも大幅に低下した。一方、S 照射量が適切な場合には、とくに耐久性が向上し、その際の S 照射量を水晶振動子法により評価すると、Co 層表面原子の 0.5%程度が硫化することに相当した。このように、Pt/Co 界面における硫化 Co の存在は合金触媒の耐久性を向上させることがわかった。今後、Pt-ハイエントロピー合金触媒に対しても S 分子線照射の効果を検討する。

セル性能の低下、特に電解質膜劣化の原因となる過酸化水素(H₂O₂)生成を抑制するアノード触媒開発を目的として、Ir の基本点指数面(hkl=111,110,100)基板上に真空合成した Pt-Ir、Ir-Ru 合金単結晶モデル触媒を対象に、そのアノード特性を H₂O₂ 生成に対応する反応電流と水素酸化反応(HOR)速度定数 k₀ に基づいて評価した。まずその走査電気化学顕微鏡(SECM)を用いた上記アノード特性評価法を確立した。その上で、実際に評価した Ir 系単結晶表面のアノード特性をまとめると、Pt-Ir 系合金は Pt に比較して H₂O₂ 生成が大幅に抑制されるとともに HOR 特性も向上することがわかった。とくに、(111)表面原子配列を有し、Ir : Pt = 7 : 3 の表面組成、Pt4f バンドの結合エネルギーが約 71.5eV の場合、対 Pt(111)比で H₂O₂ 生成は 1/10 以下であり、HOR は 2 倍以上となり目標値を達成した。

(4) 高温低加湿に対応可能な有機物修飾による触媒高活性化技術の開発(産業技術総合研究所)

前プロでメラミン等のある種の含窒素芳香族化合物が Pt 触媒の活性を向上させることが見出された。次の課題はメラミン等の修飾剤を電解液に溶出させずに、白金上に安定的に存在させることである。この目的のために①修飾剤の疎水性化、及び②修飾剤のポリマー化を行った。①に関しては、メラミンにアルキル基を導入することや疎水性アニオンと対形成させることよりの疎水性化を行った。これらの手段による疎水性化で、メラミンの活性上昇効果の持続性が改善されることが分かった。一方、MEA 評価(0.21 mg-PGM/cm², 80°C, 75% RH, 50 kPa-G)においても、疎水性アルキル基を持つオクチルメラミンを担持した PtCo/F 触媒は未修飾の PtCo/F よりも全電位領域で高い性能を示した(オクチルメラミン修飾 PtCo/F : 0.822 V@0.2 A/cm², 0.64 V@3.0 A/cm²)。有機物修飾による高電流密度域での性能の上昇はこれまでの活性上昇メカニズムとは異なる効果の存在を示唆しており、高出力化への期待が持てる。

②のポリマー化においては、メラミンポリマーの一種であるポリメラミンスルホン酸を白金触媒に修飾すると、の耐久試験(0.6V(3s)-0.95V(3s), 矩形波電位サイクル 2,800 回, 79°C) 後も活性上昇効果が残ることがわかった。また、このポリマーは自身の吸着安定性が高いことのみならず、白金ナノ粒子触媒の劣化を抑制することが新たに分かった。この耐久性上昇効果の原因を検証するために、溶液中に 10 μ M メラミンが存在している条件で耐久試験を行った(0.6V(3s)-1.0V(3s), 矩形波電位サイクル 10,000 回, 79°C)。メラミン存在下では白金触媒の劣化が大きく抑制されており、メラミン分子に白金触媒の劣化を大幅に抑制する作用があることがわかった。

また、有機物の吸着のさせ方により活性上昇効果が異なることを見出し、吸着方法を工夫することにより、メラミン修飾 PtCo/C の 0.9V における質量活性が 1,000 A/g-PGM を超えることを見出した(1,043 A/g-PGM)。

(5) 高温で高 ORR 活性を発現する活性化因子の解析(千葉大学)

Pt 基本指数面および Pt 高指数面をプロトン性イオン液体[MTBD][beti]で修飾することにより、Pt(111)電極の ORR が 3 倍活性化されることを見出した。ORR の高活性化には MTBD カチオンが寄与し、beti アニオンの寄与はほとんどないことを明らかにした。

Pt 合金の中で単結晶電極を使った ORR が調べられていなかった Pt₃Fe 単結晶電極を作製し、ORR 活性と耐久性に対する表面構造依存性を調べた。0.90 V(RHE)における Pt₃Fe(111)の面積比活性は Pt(111)の 20 倍に達した。疎水性物質の 4 級アルキルアンモニウムカチオン(THA⁺)、メラミン、[MTBD][beti]で Pt₃Fe 単結晶電極を修飾すると、どの結晶面も疎水性物質の修飾で ORR 活性が向上した。面積比活性および活性増大率が最も高かったのはメラミン修飾した Pt₃Fe(111)であり、裸の Pt₃Fe(111)と比べて 2.1 倍、裸の Pt(111)と比較すると 39 倍の極めて高い ORR 活性を示した。

耐久性を評価するため、メラミン修飾した Pt₃Fe 単結晶電極の加速劣化試験を行った。メラミン修飾により、高指数面のステップ構造由来の吸着水素ピークは Ar 下ボルタモグラムから消失し、メラミンがステップ(欠陥)に優先的に吸着していることが分かった。メラミン修飾により Pt₃Fe(111)の耐久性は 2.1 倍向上した。Fe の溶出が起こりやすいオープンな構造のステップ(欠陥)にメラミンが吸着することにより Fe の溶出が抑制され、耐久性が向上したと考えられる。この結果により、メラミンによる Pt 合金触媒の耐久性向上の機構が明らかとなった。

[MTBD][beti]修飾により Pt(111)と Pt(110)電極の ORR 活性は増大し、Pt(100)電極は失活する。赤外反射吸収スペクトル(IRAS)測定により、Pt(111)と Pt(110)では斜めおよび垂直に吸着した MTBD による立体障害が少なく、PtOH の被覆率も減少するため活性化することが分かった。一方、Pt(100)では平行に吸着した MTBD の立体障害と MTBD 分解で生じる吸着 CO によって

ORR が失活する。また、メラミン修飾により ORR 高活性化する Pt(111)と Pt(331)上では、メラミンは分子面を表面に対し斜めにして吸着し、吸着水を排除していることを超高真空中(UHV)の IRAS 測定で証明した。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) (同志社大学) MPC 担体に関してはメソ孔構造、粒子サイズ、形状の最適化を行い、さらなる高性能化を目指す。また、東北大学でのハイエントロピー合金で得られた知見を活用し、高活性化、高耐久化に向けた三元系、四元系実触媒に応用する。イオン液体に関してはまだ不十分である MEA 作製方法(添加方法、添加量)の最適化を行う。また、低加湿条件におけるプロトン伝導性付与効果を実証して最終目標を目指す。

(2) (石福金属興業) 本プロジェクトで検討されている Pt および Pt 合金/MPC、イオン塩、有機物修飾、MPC の処理等を組み合わせた触媒をユーザーが初期評価を可能とする量の少量生産技術を開発する。本プロジェクトの連絡会等で情報交換を密にし、適切なタイミングで技術の導入を進める。

(3) (東北大学) 最終目標達成に向けて、Pt-高エントロピー合金触媒における、合金化元素種、元素数や熱処理温度、熱処理時間などを最適化し、触媒表面極近傍の原子レベル構造制御を行うとともに、表面 Pt 層の構造安定化を通じた耐久性向上メカニズムを詳細に検討する。さらにメラミンなどの含窒素有機分子による表面修飾との技術融合を行って最終目標を達成する。

(4) (産総研)最終目標である高温低加湿条件で 0.84 V 以上@ 0.2 A/cm^2 を実現していくためには、RDE での大きな効果を高温低加湿運転条件での MEA で実現させる必要がある。そのためには MEA 中で起こりうる有機物修飾の作用について全容を明らかにし、この作用の原因に応じた対策を講じることにより、最終目標の達成を目指す。具体的には、MEA における有機物の移動、MEA 環境下における有機物の安定性、また、有機物が触媒活性の過電圧やプロトン・酸素輸送抵抗に与える影響を MEA の運転条件ごとに検討し、MEA での有機物の効果を最大化し、有機物ネガティブな作用を最小化できるような有機物の設計、有機物の導入方法の検討を行う。

(5) (千葉大学)メラミンのような含窒素疎水性物質は多種存在し、ORR 高活性が報告されているハイエントロピー合金をはじめとする合金触媒の表面構造規整も可能である。多彩な疎水性物質と合金単結晶電極を組み合わせ、その活性化因子を解明すれば、最終目標を達成可能な触媒設計指針を決定する。

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)事業化主体として石福金属興業、製品は各種高活性化、高耐久化処理(有機物修飾、イオン液体(塩)添加)を実施した白金系触媒(Pt や Pt 合金をメソポーラスカーボン担体に担持した触媒)を想定している。既に MEA 評価の結果から優れた発電特性が得られており、検討を進めている高活性化、高耐久化処理は高価な材料を使用しないことから、性能面でもコスト面でも優位性があると考えている。

(2)量産化技術の基となる連続生産を含む少量生産技術開発を、技術の移管先候補であり、本プロジェクトに参画している石福金属にて進めているため、早い時期からユーザーでのサンプル評価に必要な量の提供やユーザーでの評価結果が良かった場合の量産化が可能と考えている。

(4)プロジェクト成果を学会、成果報告会等を通じて報告することにより、MPC 担体に担持した Pt 系触媒を希望する国内外のユーザーが既に現れている。このチャンスを逃すことなく、開発した触媒をユーザーに評価して頂き、実用化に繋げたい。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2021/9/14	特願 2021-149446	コアシェル触媒の連続生産方法	石福金属
2	2021/11/22	特願 2021-189507	燃料電池用触媒担持性に優れた高耐久性多孔質カーボン担体	学校法人同志社
3	2022/2/18	特願 2022-024199	有機塩で修飾した燃料電池用高活性高耐久性 Pt 系触媒	学校法人同志社／石福金属興業／産業技術総合研究所
4	2021/12/22	特願 2021-208273	燃料電池白金触媒の耐久性を向上させる手法	産業技術総合研究所

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021年 1月	Chem. Lett.	Enhancement of the Activity for the Oxygen Reduction Reaction on Well defined Single Crystal Electrodes of Pt by Hydrophobic Species	Nagahiro Hoshi, Masashi Nakamura
2	2020年 11月	ACS Catalysis	Creation of Highly Active Pt/Pd/C Core-shell Structured Catalyst by Synergistic Combination of an Intrinsically High Activity and a Surface Decoration with Melamine or Tetra-(tert-butyl)-tetraazaporphyrin	山崎眞一、朝日将史、田口昇、五百蔵勉、岸本裕子、大門英夫、稲葉稔、古閑一則、黒瀬裕、井上秀男
3	2021年 1月	J. Electroanal. Chem.	Structural effects on voltammograms of the high index planes of Pd in alkaline solution	木口史也、中村将志、星 永宏
4	2021年 1月	ACS Catalysis	Oxygen Reduction Reaction of Third Element-Modified Pt/Pd(111): Effect of Atomically Controlled Ir Locations on the Activity	楠木啓介、工藤大輔、林謙汰、千田祥大、轟直人、和田山智正

			and Durability	
5	2021年 2月	Electrochemistry	Cation Effects on ORR Activity on Low-index Planes of Pd in Alkaline Solution	木口史也、中村将志、星 永宏
6	2021年 3月	Electrochem. Commun.	The activity for the ORR on Pt-Pd-Co ternary alloy electrodes affected markedly by surface structure and composition	鳥畑真周、中村将志、轟直人、和田山智正
7	2021年 3月	ACS Applied Materials & Interfaces	Effect of Hydrophobic Cations on the Inhibitors for the Oxygen Reduction Reaction on Anions and Ionomers Adsorbed on Single-Crystal Pt Electrodes	久米田友明、星永宏、中村将志
8	2021年 6月	水素エネルギーシステム	高温低加湿運転を目指した革新的低白金化技術開発	稲葉 稔、大門英夫、森本 友
9	2021年 8月	Electrocatalysis	Structural Effects on the Activity for the Oxygen Reduction Reaction on the High-Index Planes of Palladium in Alkali Solution	木口史也、中村将志、星 永宏
10	2021年 9月	J.Vac.Sci.Technol.A	Atomically resolved interface structures of vacuum-deposited Pt on SnO ₂ (110), (101), and (111)	千田祥大、轟直人、和田山智正
11	2021年 9月	J.Phys.Chem.C	Hydrogen Peroxide Generation and Hydrogen Oxidation Reaction Properties of Ir(111)-, (100)-, and (110)-Low-Index Single-Crystal Surfaces	林謙汰、富森雄、千田祥大、轟直人、和田山智正

12	2022年 1月	Electrocatalysis	Effects of Surface Structures and Hydrophobic Species on the Oxygen Reduction Reaction Activity of Pt ₃ Fe Single-Crystal Electrodes	鈴木あかね, 中村将志, 星 永宏
13	2021年 12月	J.Vac.Sci.Technol.A	Oxygen reduction reaction properties of vacuum-deposited Pt on thermally grown epitaxial graphene layers	渡邊将志, 金内貴文, 千田祥大, 林謙太, 轟直人, 和田山智正
14	2022年 2月	Electrochem. Commun.	Structural effects of the oxygen reduction reaction on the high index planes of Pt ₃ Fe	鈴木あかね, 中村将志, 星 永宏
15	2022年 2月	J. Electroanal. Chem.	Sulphonated melamine polymer for simultaneously enhancing the oxygen reduction reaction activity and stability of a Pt catalyst	山崎眞一, 朝日将史, 田口昇, 五百蔵勉
16	2022年 5月	Phys. Chem. Chem. Phys.	Hydrogen peroxide generation and hydrogen oxidation reactions of vacuum-prepared Ru/Ir(111) bimetallic surfaces	林謙汰, 楠木啓介, 富森雄, 佐藤陸, 轟直人, 和田山智正
17	2020年 9月	第126回触媒討論会 (Web)	Pt系触媒の耐久性に与える耐久性試験プロトコルとカーボン担体の影響	大門英夫, 稲葉稔他
18	2020年 10月	PRiME 2020 (Web)	Electrochemical Properties and Cell Performance of Pd Core-Pt Shell Structured Catalyst Synthesized by Direct Displacement Reaction Method	大門英夫, 稲葉稔他
19	2020年 11月	第52回溶融塩化学討論会 (Web)	高活性・高耐久性白金コアシェル触媒の開発	稲葉 稔, 大門英夫

20	2020年 9月	2020 金属学会秋期大会 (Web)	よく規定された Ru/ Ir(111) 表面の水素酸化および過酸化 水素生成特性	林謙汰、楠木啓 介、佐藤陸、工藤 大輔、轟直人、和 田山智正
21	2020年 9月	2020 金属学会秋期大会 (Web)	Pt/SnO _x /Pt(111)モデル触 媒の合成と酸素還元反応特性	千田祥大、濱田 里久、轟直人、和 田山智正
22	2020年 11月	第 61 回電池討論会(Web)	よく規定された Ir 基合金表面 系の水素酸化および過酸化水 素発生反応特性	林謙汰、楠木啓 介、佐藤陸、工 藤大輔、轟直 人、和田山智正
23	2020年 11月	第 61 回電池討論会(Web)	ドライブプロセス合成した Pt/SnO _x モデル触媒の表面 構造と酸素還元反応特性	千田祥大、濱田 里久、轟直人、 和田山智正
24	2020年 9月	第 126 回触媒討論会	固体高分子形燃料電池用コア シェル触媒の研究開発	井上秀男
25	2020年 12月	燃料電池研究会 第 149 回 セミナー「PEFC 用電極触媒の 研究開発動向」	酸素還元反応を活性化する疎 水性物質と電極表面構造	星 永宏, 中村 将志
26	2021年 3月	電気化学会第 88 回大会 (web)	アルカリ溶液中での Pd 基本指 数面および高指数面の ORR 活性における面・カチオン依存 性	木口史也, 中村 将志, 星 永宏
27	2021年 3月	電気化学会第 88 回大会 (web)	酸素還元反応を活性化する PtPd _x Co _y 単結晶電極の表面 構造の解析と疎水性物質修飾	鳥畑真周, 中村 将志, 轟 直人, 和田山智正, 星 永宏
28	2021年 3月	電気化学会第 88 回大会 (web)	疎水性カチオンによる Pt 単結 晶電極上の硫酸イオン吸着阻 害と ORR 高活性化	榎本慎也, 久米 田友明, 中村将 志, 星 永宏
29	2021年 3月	電気化学会第 88 回大会 (web)	表面構造と疎水性物質による Pt ₃ Fe 単結晶電極上の ORR 高活性化	鈴木あかね, 中村 将志, 星 永宏
30	2021年 3月	2021 年電気化学会第 88 回 大会	Ir-Pt 系単結晶表面の水素 酸化反応および過酸化水素生 成特性	林謙汰、富森雄、 轟直人、和田山 智正
31	2021年 3月	2021 年電気化学会第 88 回 大会	Pt 単結晶上に気相合成した Pt/SnO ₂ の表面構造と酸素 還元反応特性	千田祥大、安達 淳、轟直人、和田 山智正

32	2021年 3月	2021年電気化学会第88回 大会	Pt/Nb/Pt(111)モデル触媒表面の酸素還元反応特性	霞裕幸、高野智也、工藤大輔、轟直人、和田山智正
33	2021年 3月	2021年電気化学会第88回 大会	Ir 添加 Pt-M(111)表面合金の酸素還元反応特性	木村功輝、三宅翔樹、楠木啓介、轟直人、和田山智正
34	2021年 3月	2021年電気化学会第88回 大会	Pt系触媒の ORR 活性と耐久性（特別講演）	大門英夫、市側靖治、西川翔真、肥後雄太、佐藤優美、岩井聡希、岸本祐子、稲葉稔
35	2021年 5月	第28回燃料電池シンポジウム	高温低加湿作動を目指した高活性白金系触媒開発	稲葉 稔、市側靖治、西川翔真、肥後雄太、佐藤優美、岩井聡希、土井貴之、森本友、大門英夫
36	2021年 5月	第28回燃料電池シンポジウム	高耐久性化と電池特性向上に向けた PEFC 用 Pt 系触媒の炭素担体に関する検討	大門英夫、市側靖治、西川翔真、肥後雄太、佐藤優美、岩井聡希、岸本裕子、土井貴之、森本 友、稲葉 稔
37	2021年 9月	第128回触媒討論会	メソポーラスカーボン担体に担持した Pd コア-Pt シェル触媒の電池特性	大門英夫、市側靖治、佐藤優美、岩井聡希、岸本裕子、森本友、土井貴之、稲葉稔
38	2021年 10月	240th The Electrochemical Society Meeting	Pd@Pt Core-Shell Structured Catalyst Supported on Mesoporous Carbon for Achieving a High Cell Performance	H. Daimon, S. Ichikawa, S. Nishikawa, Y. Sato, Y. Higo, S. Iwai, Y. Kishimoto, and M. Inaba

39	2021年 10月	240th ECS Meeting(Web 予定)	Hydrogen Peroxide Generation and Hydrogen Oxidation Reaction Properties of Pt/Ir(111) and Ir/Pt(111) Bimetallic Surfaces	林謙汰、富森雄、 楠啓介、轟直人、 和田山智正
40	2021年 11月	ISSS-9 (高松, Web)	Hydrogen Oxidation Reaction Activity for Vacuum-prepared Ru/Ir(111) Bimetallic Alloy Surfaces	林謙汰、楠啓介、 富森雄、轟直人、 和田山智正
41	2021年 10月	240th ECS Meeting(Web 予定)	Oxygen Reduction Reaction Properties and Microstructures of Pt/Nb:SnO ₂ Model Catalysts Fabricated on Pt Single Crystal Surfaces	千田祥大、安達 淳、轟直人、和田 山智正
42	2021年 11月	ISSS-9 (高松, Web)	Microstructures and Oxygen Reduction Reaction Properties of Pt/Nb-doped- SnO ₂ /Pt(111) Surfaces	千田祥大、安達 淳、轟直人、和田 山智正
43	2021年 11月	ISSS-9 (高松, Web)	Oxygen Reduction Reaction Activity and Electrochemical Structural Stability of Nb- modified Pt/Co/Pt(111) Surfaces	霞裕幸、高野智 也、工藤大輔、轟 直人、和田山智 正
44	2021年 11月	ISSS-9 (高松, Web)	Oxygen Reduction Reaction Durability Enhancement of Pt- Ni(111) Single Crystal Surfaces by Ir	木村功輝、三宅 翔樹、楠木啓 介、轟直人、和田 山智正
45	2021年 5月27 日28日	第28回燃料電池シンポジウム	プロトン性イオン液体修飾 Pt 単結晶電極上の酸素還元反 応	鈴木琉斐、中村 将志、星 永宏
46	2021年 9月	2021年電気化学秋季大会	Pt ₃ Fe 高指数面を用いた酸素 還元反応の高活性化	鈴木 あかね、中 村 将志、星 永 宏

47	2021年 9月	2021年電気化学秋季大会	プロトン性イオン液体で酸素還元反応が活性化される Pt 単結晶電極の表面構造	鈴木 琉斐, 中村 将志, 星 永宏
48	2021年 10月	240th ECS Meeting	Enhancement of the ORR Activity By Hydrophobic Species Analyzed Using Single Crystal Electrodes	星 永宏, 中村 将志
49	2021年 9月	第 32 回電解プロセス研究会	石炭金属におけるコアシェル触媒の研究開発	井上秀男
50	2021年 11月	第 62 回電池討論会	Ir および Ir-Pt 合金単結晶モデル触媒の水素酸化反応および過酸化水素発生特性	林謙汰, 富森雄, 轟直人, 和田山 智正
51	2021年 11月	第 62 回電池討論会	Pt(111)および(110)基板上に気相合成した Pt/SnO ₂ モデル触媒の表面マイクロ構造と酸素還元反応特性	千田祥大, 安達 淳, 轟直人, 和田山 智正
52	2021年 11月	第 62 回電池討論会	含窒素有機物修飾による白金触媒の耐久性の向上	山崎眞一, 朝日 将史, 田口昇, 五百蔵勉
53	2021年 11月	第 62 回電池討論会	メラミン類縁体の塩を修飾した白金触媒の酸素還元活性	朝日将史, 山崎 眞一, 五百蔵勉
54	2021年 11月	18th Japan-Korea Symposium on Catalysis	Architectures of Pt-Based Catalysts Mitigating Voltage Loss in High Current Density Region for Fuel Cell Vehicle	H. Daimon, S. Nishikawa, Y. Ichikawa, Y. Sato, S. Iwai, Y. Higo, and M. Inaba
55	2021年 11月	第 62 回電池討論会	メソポーラスカーボンに担持した Pd コア Pt シェル触媒の電池特性	大門英夫, 佐藤 優美, 岩井聡希, 肥後雄太, 市側 靖治, 西川翔真, 眞鍋臣子, 岸本 祐子, 森本 友, 土井貴之, 稲葉 稔
56	2021年 11月	第 62 回電池討論会	メソポーラスカーボンに担持した Pt 系触媒の耐久性	岩井聡希, 佐藤 優美, 市側靖治, 西川翔真, 眞鍋 臣子, 岸本祐子, 大門英夫, 森本

				友, 土井貴之, 稲葉 稔
57	2021年 11月	第62回電池討論会	イオン液体修飾によるPt系触媒の高活性化	肥後雄太, 西川翔真, 眞鍋臣子, 岸本祐子, 大門英夫, 森本 友, 土井貴之, 稲葉 稔
58	2021年 10月	第11回CSJ化学フェスタ2021	イオン液体修飾Pt単結晶電極の赤外スペクトル	久保隆太, 中村将志, 星 永宏
59	2021年 11月	第62回電池討論会	Pt単結晶電極の酸素還元反応を高活性化するイオン液体の吸着配向	久保隆太, 中村将志, 星 永宏
60	2022年 3月	第129回触媒討論会	燃料電池用コアシェル触媒の研究開発	井上秀男
61	2022年 3月	電気化学会第89回大会(web)	メラミン類による白金触媒の耐久性向上効果	山崎眞一, 朝日将史, 田口昇, 五百蔵勉
62	2022年 3月	電気化学会第89回大会(web)	Pt ₃ Fe 高指数面での酸素還元反応および耐久性に対する疎水性物質の効果	鈴木あかね, 中村将志, 星 永宏
63	2022年 3月	電気化学会第89回大会(web)	カフェイン修飾Pt単結晶電極上の酸素還元反応	鈴木琉斐, 中村将志, 星 永宏
64	2022年 3月	電気化学会第89回大会(web)	Pt単結晶電極の酸素還元反応を高活性化するイオン液体の吸着配向	久保隆太, 中村将志, 星 永宏
65	2022年 3月	電気化学会第89回大会(web)	Pt(111)の過酸化水素生成特性にタングステン酸化物が及ぼす影響	林謙汰, 上川洸瑠, 轟直人, 和田山智正
66	2022年 3月	電気化学会第89回大会(web)	Ptを含む遷移金属ハイエントロピー合金単結晶表面の酸素還元反応特性	千田祥大, 富森雄, 江幡朋陽, 田口昇, 五百蔵勉, 轟直人, 和田山智正
67	2022年 3月	電気化学会第89回大会(web)	Pt/遷移金属高エントロピー層/Pt(111)モデル表面系の酸素還元反応特性	富森雄, 千田祥大, 江幡朋陽, 田口昇, 五百蔵勉, 轟直人, 和田山智正

68	2022年 3月	日本金属学会 2022 年春期 講演大会	Pt/Cantor 合金/Pt(111)表 面系の格子積層構造と酸素還 元反応特性	江幡朋陽,千田祥 大,富森雄,轟直 人,和田山智正
69	2022年 3月	日本金属学会 2022 年春期 講演大会	アークプラズマ蒸着法により作製 した WO _x / Pt(111)の電気 化学的過酸化水素生成	上川洸瑠, 林謙 汰, 轟直人, 和 田山智正
70	2022年 3月	電気化学会第 89 回大会 (web)	イオン塩修飾による Pt 系触媒 の高活性化と高耐久性化	大門英夫,市側靖 治, 西川翔真, 肥後雄太, 佐藤 優美, 岩井聡希, 眞鍋臣子, 岸本 祐子,土井貴之, 稲葉 稔
71	2022年 5月	第 29 回燃料電池シンポジウム (船堀)	高温低加湿作動を目指した高 活性白金系触媒開発 (2)	稲葉 稔、市側靖 治, 西川翔真, 肥後雄太, 佐藤 優美, 岩井聡希, 土井貴之、大門 英夫、森本 友
72	2022年 5月	第 29 回燃料電池シンポジウム (船堀)	電池特性向上と高耐久性化に 向けた Pt 系触媒の開発	大門英夫, 宮田 大世, 吉川天崇, 市側靖治, 西川 翔真, 岸本裕子, 土井貴之, 稲葉 稔
73	2022年 5月	第 154 回電気化学会燃料電 池研究会セミナー(Web)	Pt 合金の高エントロピー化によ る触媒特性向上	和田山智正
74	2022年 5月	第 154 回燃料電池セミナー (Web)	含窒素有機物修飾による白金 系触媒の高性能化への取り組 み	朝日将史
75	2022年 5月	第 29 回燃料電池シンポジウム (船堀)	含窒素環状化合物による白金 触媒の耐久性の向上効果	山崎眞一、朝日 将史、田口昇、五 百蔵勉
76	2022年 5月	第 29 回燃料電池シンポジウム (船堀)	メラミン類の修飾による白金触 媒の活性向上効果	朝日将史、山崎 眞一、五百蔵勉

課題番号（管理番号）： PE02

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／未踏合金カソード触媒の創製」

実施者：京都大学、岩手大学、（物質・材料研究機構）

期間：2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

本研究開発では、2030年以降のスタック発電電圧目標達成に資する新規高活性カソード触媒の開発を目指し、構造均一性が高い非平衡合金相からなる未踏合金カソード触媒を創製する。同時に、触媒活性を最大限に引き出す MEA 化技術を開発し、現行の触媒に対して 10 倍以上の活性を持つ触媒を創製する。2024 年度末最終目標として、MEA で 0.84 V@0.2 A/cm² 以上、かつ、2019 年度のパナソニック MEA に対して 70 mV 以上の電圧向上を目指す。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

○中間目標（2022 年度 6 月）

現行の Pt 合金触媒に対して白金当たりの質量活性 10 倍以上を実現するために必要な触媒設計指針を得るため、高品質 Pt ナノ粒子および Pt 基合金ナノ粒子の分極要因の把握と構造因子の計測を行う。

目標設定の考え方

現行の Pt 合金触媒に対して白金当たりの質量活性 10 倍以上という非連続な性能向上を短期間で実現するためには、精度の高い触媒設計指針が必要である。そのため、最初の 2 年間は、様々な粒径、形状、組成、合金構造をもち、粒子間の構造均一性が高い高品質 Pt ナノ粒子および Pt 基合金ナノ粒子の合成と解析を中心に行い、質量活性 10 倍以上を実現する設計パラメータを抽出する。

評価方法

operando 解析（XAS、軟 X 線 XAS、PDF）で抽出した触媒物性パラメータと触媒活性との間の定量的な相関関係を作成し、外挿により質量活性が 10 倍となる物性値を求め、第一次の触媒設計指針案を策定する。

○最終目標（2024 年度）

高次形態制御 Pt 基合金触媒をカソードに用いた MEA で 0.84 V@0.2 A/cm² 以上、かつ、2019 年度の提案書記載のユーザ企業の MEA に対して 70 mV 以上の電圧向上を実証する。さらに、耐久性については、触媒周辺構造の制御も援用して、現行の Pt 合金触媒と同等以上の耐久性賦与を目指す。

目標設定の考え方

0.84 V@0.2 A/cm² 以上は、FCV の航続距離 800 km 以上、現行 MEA に対して 70 mV 以上の電圧向上は定置用燃料電池の発電効率 5 ポイント以上改善を達成するために必要な性能である。さらに後者に対しては、実際に定置用燃料電池を製造・販売しているパナソニックからの評価を受けることで、プロジェクト終了後、速やかに事業化開発に移行することが可能になる。耐久性については、現行の FCV および定置用燃料電池の作動条件で、現行の Pt 合金触媒と同等以上を目指す。

評価方法

開発触媒を用いたカソード Pt 量 0.1 mg/cm² の MEA を JARI セル相当の実用検証セルに組み込み、H₂/air の条件で 0.84 V@0.2 A/cm² 以上の性能を実証する。また、パナソニックでエネファーム開発に使用されている実用セル・評価条件を用いて、2019 年度仕様のパナソニック MEA と横並びの評価を行い、70 mV 以上の電圧向上を実証する。さらに、上記 MEA を用い、負荷変動試験に対する耐久性を確認する。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
高次形態制御 Pt 基合金触媒の創出 (京都大学化学研究所)	<ul style="list-style-type: none"> 従来触媒の 10 倍の質量活性を示す高品質高次形態制御 Pt 基合金ナノ粒子を設計・合成する。 未踏合金ナノ粒子群を創製する。 	質量活性：A/g _{Pt} <ul style="list-style-type: none"> Pd@Pt：701 Ru@Pd@Pt：381 Pt ナノワイヤー：289 L1₀-PtZn：297 L1₀-Pt(Co,Ni)：847 コアシェル共晶合金触媒におけるコア未踏合金群 <ul style="list-style-type: none"> 典型元素合金：Pd-P 規則合金： L1₀-PtZn、L1₀-PdZn Z3-(Pd,M)₃Fe (M=In,Pb,Cu) L1₀-(Pd,Zn)₃Fe L1₀-(Pt,Ir)Fe 	○	<ul style="list-style-type: none"> 非平衡相を含む高活性カソード触媒の合成 活性向上と高耐久化 触媒粒子表面への被毒阻害層の導入 メソポーラスカーボン担体への粒子内包化技術の確立
高次形態制御 Pt 基合金触媒のポスト処理技術および MEA 化技術の開発 (岩手大学)	<ul style="list-style-type: none"> ポスト処理などを利用して、高品質 Pt ナノ粒子、Pt 基合金ナノ粒子及び Pt 基合金ナノワイヤーの性能・耐久性に及ぼす影響を検証する。 RDE と MEA の活性差を明らかにする。 	<ul style="list-style-type: none"> Pt 基合金ナノ粒子触媒のポスト処理方法と MEA での活性の相関関係を検証し、ポスト処理方法を最適化。 異なる合成方法を用いて Pt 基合金ナノワイヤーを調製し、MEA を用いて活性を評価。 	○	<ul style="list-style-type: none"> 触媒の小規模 MEA 化 (1 × 1 cm²) の推進 RDE 測定値と MEA 測定値との相関を明確にし、MEA 化の問題点洗い出し
高次形態制御 Pt 基合金触媒の評価解析・設計指針提案 (京都大学)	<ul style="list-style-type: none"> 寺西 G、竹口 G において開発された Pt 基合金触媒の ORR 活性を評価する。 高次形態制御 Pt 基合金触媒のアイオノマーのスルホ基の特異吸着挙動を解明する。 規則合金触媒や形態制御触媒に特化した高エネルギー X 線回折と二体相関関数解 	<ul style="list-style-type: none"> PtCo 規則合金相の優位性を放射光解析でも原理を実証。ナノワイヤ化による活性向上について放射光解析、高度化 PDF 解析により原理を実証。 コアシェル触媒やナノワイヤ触媒などの構造規制触媒に対する構造モデルフィッティングを可能とするプログラムの開発をほぼ完了。 	○	<ul style="list-style-type: none"> 触媒表面の有機分子除去技術の確立 MEA 化による課題抽出 メソポーラスカーボン担体への粒子内包化技術の確立

	析を用いた、触媒パラメータの測定方法を確立する。			
--	--------------------------	--	--	--

3.2 研究開発の詳細

(1) 高次形態制御 Pt 基合金触媒の創出

高性能カソード触媒を得るためには、触媒表面に高活性な活性点を高密度に露出させる必要があり、サイズや形状が均一に制御された高品質カソード触媒の合成が必要である。高活性が期待される $L1_0$ (AuCu 型) 構造の Pt 基規則合金に着目し、高い電気化学的比表面積 (ECSA) を有する微小サイズ (3~4 nm) の高品質ナノ粒子合成を行った。通常、固溶状態の A1 (Cu 型) 構造から $L1_0$ 構造への規則化には高温での熱処理工程を要するが、高温で安定な無機物質 (例えば MgO や CaO) で前駆体ナノ粒子を均一に被覆する無機マトリックス法を採用し、被覆条件や除去条件を最適化することで微小サイズ (3~4 nm) のカーボン担持触媒の調製に成功した。この時、熱処理温度を調整することで平均粒径をほぼ変えることなく規則化度を制御することが可能であり、A1-Pt(Co,Ni)/C と $L1_0$ -Pt(Co,Ni)/C の ORR 面積比活性 ($\mu\text{A}/\text{cm}^2_{\text{Pt}}$) はそれぞれ 1103 および 3140 であった (図 1)。2~3 nm の粒径を有する市販の純 Pt/C 触媒の面積比活性が 303 であることから、他元素との合金化による活性向上に対して、規則化による活性向上が極めて顕著であることが示された。以上の結果は、 $L1_0$ -Pt 基規則合金ナノ粒子の高いポテンシャルを端的に示しており、 $L1_0$ 規則合金をモデル材料として未踏規則合金カソード触媒を探索す

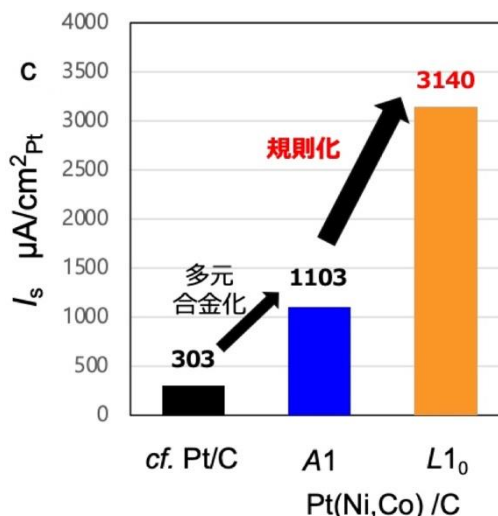


図 1. 無機マトリックス法により合成された A1-Pt(Co,Ni)/C と $L1_0$ -Pt(Co,Ni)/C の ORR 面積比活性 (0.1 M HClO₄, @0.9 V vs. RHE)

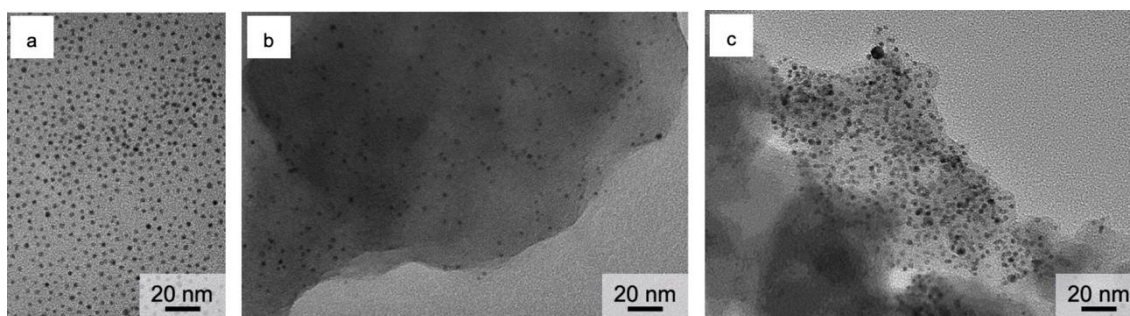


図 2. (a) Pt@(Co,Ni)O_x ナノ粒子、(b) MgO 被覆 Pt@(Co,Ni)O_x ナノ粒子、および (c) 550 °C での熱処理後に MgO の酸処理除去と同時にカーボン担体に担持することで調製された A1-Pt(Co,Ni)/C の TEM 像

る意義を強く支持する結果である。

触媒を担体に担持する際の分散度や均一性は、触媒の活性や耐久性に影響を及ぼす重要なファクターである。上述の無機マトリックス法が、液相中で合成された単分散ナノ粒子 (図 2-a) の粒径と均一性を、熱処理後においても維持する上で有用であることが示された。この手法は、無機マトリックスで前

駆体ナノ粒子を均一に被覆することが可能であり（図 2-b）、かつ化学的な処理によって無機マトリックスのみを選択的に溶解除去することができれば（図 2-c）、どのような担持触媒にも適用可能な汎用性の高い手法であり。今後の規則合金触媒の調製検討においても活用されることが期待される。

(2) 高次形態制御 Pt 基合金触媒のポスト処理技術および MEA 化技術の開発

Pd, Mn, Ni, Fe を各々 Pt と合金化した Pt 基合金ナノワイヤーを Vulcan XC-72R を担体として触媒を調製し、ORR 性能を RDE で測定したところ、活性は Ni > Pd > Mn > Fe の序列となった。これら Pt 基合金ナノワイヤー触媒をカソード ($0.1 \text{ mg}_{\text{Pt}}/\text{cm}^2$) に用いて MEA を作成し、セル温度 80°C で評価を行ったところ、活性は RDE と同じ序列となり、水素吸着から求めた ECSA の序列、CO ストリッピングから求めた ECSA の序列と一致した（図 3）。

これとは別に、ポスト処理を行った Pt-Co/KB1600 ナノ粒子触媒を調製したところ、市販触媒に勝る性能が得られた。

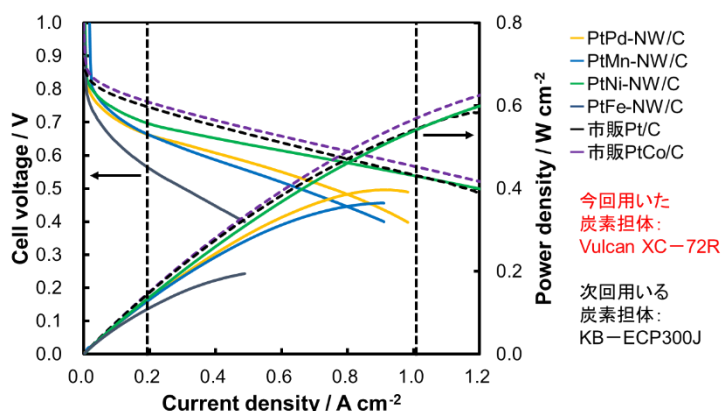


図 3. Pt 基合金ナノワイヤー電極を用いた MEA の I-V 測定結果

(3) 高次形態制御 Pt 基合金触媒の評価解析・設計指針提案

Pt/C 触媒に対して窒化炭素シェルを被覆することにより、①窒素基との相互作用によって Pt の電子状態が変化し ORR 活性が向上すること、同時に②アイオノマー被毒が抑制できることを電気化学的に明らかにし、解析 PF の支援を受けて①②の機構を解明した。さらに、これまで、 $L1_0$ -PtCo 規則合金相の優位性を、電気化学的手法だけでなく、これまで行われてこなかった放射光解析によりその原理を実証した。またナノワイヤ化による活性向上効果についても同様に放射光解析、高度化した PDF 解析によりその原理を実証した。さらに窒化炭素層により高耐久化が達成できることを示した（図 4）。

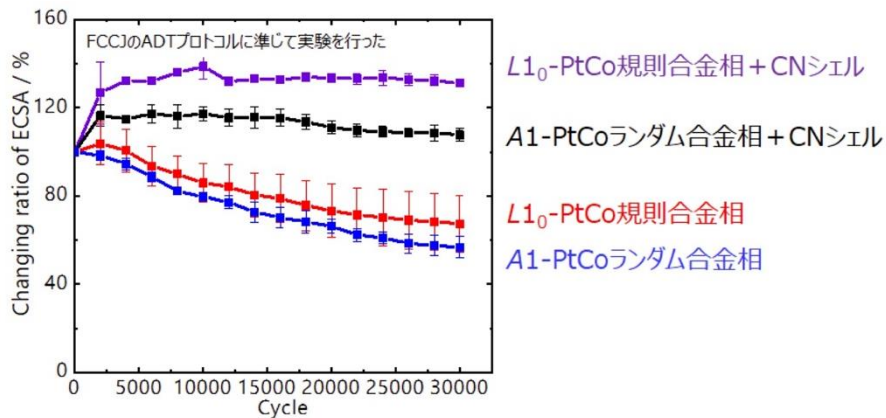


図 4. PtCo 触媒の規則合金化による活性向上、耐久性向上 (RDE)

Pd@Pt コアシェル触媒の高エネルギーX線回折と二体相関関数解析から、Pt シェル相は歪を有しており、熱処理を加える前はモデルに描いたようなコア結晶にエピタキシャル成長したものではないことが分かってきている。その定量的な解析には既存のプログラムでは不可能であるため、NIMS で開発している Orochi プログラムへコアシェル構造のナノ粒子単体のシミュレーションを実装した。また、ナノワイヤなどの形状を付与した触媒への期待も高まっており、それに対しても結晶方位を規定したシミュレーション環境を世界で初めて実現した。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 従来触媒の 10 倍の Pt 質量活性 ($\sim 3000 \text{ A/g}_{\text{Pt}}$) の達成と高耐久化

Pt-Pt 結合距離の短縮化と Pt(111)面における異方性応力をもたらす L_{10} -Pt(Co,Ni)において、面積活性 $3000 \mu\text{A/cm}^2_{\text{Pt}}$ 以上のポテンシャルを実証済みであり、低白金化、脱白金化、異形状化、窒化炭素膜被覆などの検討を通じてさらなる向上を図る。ECSA $70 \text{ m}^2_{\text{Pt/g}_{\text{Pt}}}$ 以上は従来の純 Pt 触媒と同程度の数値であり十分に達成し得ると考えられるため、高い Pt 面積活性および ECSA を同時達成し、従来触媒の 10 倍の Pt 質量活性を実証する。さらに、窒化炭素層により高耐久化が達成できることを示しており、炭素埋め込み技術と窒化炭素層を組み合わせ、非平衡相触媒の高活性化・高耐久化を目指す。

(2) 理論計算によるポテンシャル評価による未踏合金のスクリーニング

未踏合金として見出された Z3 合金群は同様の特性を有する極めて希少な規則合金であるものの、Pt(111)面における異方性応力等による活性向上のポテンシャルは未知であり、現状での材料選択はトライアンドエラーとなっている。今後はこれまでに構築した未踏合金群に対して DFT 計算を行うことで酸素吸着エネルギーおよび Pt 格子のひずみを評価し、合成実験を行う前のスクリーニングを実施する。合成を京大寺西 G が、理論計算を再委託先のパナソニック G が担当し、同時遂行による効率的かつ効果的な触媒開発を実施する。また、未踏合金で得られた知見を L_{10} 合金などの既存合金にフィードバックすることで、低・脱白金化を可能にする第 3 添加元素を絞り込む。

(3) 小規模 MEA 化技術の確立と MEA 化の問題点洗い出し

寺西 G で開発された合金を用い、小規模 MEA ($1 \times 1 \text{ cm}^2$) 形成プロセスを最適化する。また、内山 G で得られた RDE 活性と小規模 MEA 活性の差を検証し、MEA における物質輸送の影響を明

らかにするとともに、パナソニック G で作製された 6cm 角の MEA との性能を比較検討する。

4. 成果の実用化・事業化に向けた取組及び見直しについて

(1) 当初の計画通り、2022 年度よりパナソニックの本社技術部門が再委託先としてプロジェクトに参画し、MEA 性能実証・耐久見極めを行う。

(2) パナソニックにおいては、本社技術部門が実施する性能実証で良好な結果が得られ次第、速やかに商品化開発に移行する（事業部技術部長と合意）。

(3) 商品化に向けては、2023 年度末までに材料メーカーへのアプローチならびに情報交換を行うとともに、2024 年度から協力企業として参画してもらう。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021 年 11 月 30 日-12 月 2 日	第 62 回電池討論会	窒素ドーパカーボンを被覆した Pt/C 触媒のアイオノマー特異吸着抑制効果	高 雲飛 1, 内山 智貴 1, 松永 利之 1, 寺西 利治 1, 佐藤 良太 1, 今井 英人 2, 櫻井 吉晴 3, 辻 庸一郎 4, 内本 喜晴 1 1 京都大学 2 Nissan ARC 3 JASRI 4 FC-Cubic
2	2021 年 11 月 30 日-12 月 2 日	第 62 回電池討論会	Pd ナノワイヤコア Pt シェル触媒のオペランド XAS の解析と ORR 活性	曹 偉傑 1, 内山 智貴 1, 松永 利之 1, 寺西 利治 1, 佐藤 良太 1, 今井 英人 2, 櫻井 吉晴 3, 辻 庸一郎 4, 内本 喜晴 1 1 京都大学 2 Nissan ARC 3 JASRI 4 FC-Cubic

3	2021年11月30日-12月2日	第62回電池討論会	Pt ナノワイヤのオペランド XAS の解析と ORR 活性	内山 智貴 1, 曹 偉傑 1、松永 利之 1、寺西 利治 1, 佐藤 良太 1, 今井 英人 2, 櫻井 吉晴 3, 辻 庸一郎 4, 内本 喜晴 1 1 京都大学 2 Nissan ARC 3 JASRI 4 FC-Cubic
4	2021年11月30日-12月2日	第62回電池討論会	Pt/C 触媒へのアイオノマー特異吸着と Pt の電子状態変化	内山 智貴 1, 曹 偉傑 1, 松永 利之 1, 寺西 利治 1, 佐藤 良太 1, 今井 英人 2, 櫻井 吉晴 3, 辻 庸一郎 4, 内本 喜晴 1 1 京都大学 2 Nissan ARC 3 JASRI 4 FC-Cubic
5	2022年3月	第89回電気化学学会大会	異なる炭素担体を用いた PEFC 用 PtCo ナノワイヤー (NW)/C カソード触媒における酸処理の影響と電気化学的特性の関係	才川 雅登 1, Garavdorj Batnyagt1, 吉田 拓未 1, Md.Mijanur Rahman1, 宇井 幸一 1, 竹口 竜弥 1 1 岩手大学
6	2022年3月	第89回電気化学学会大会	高表面積炭素材料に担持した合金 Pt-Ni ナノワイヤー触媒の酸素還元反応活性	Garavdorj Batnyagt1、吉田 拓未 1、才川 雅登 1、Md.Mijanur Rahman1、宇井 幸一 1、竹口 竜弥 1 1 岩手大学

課題番号（管理番号）： PE03

研究開発テーマ名：「**共通課題解決基盤技術開発**

／**高効率・高出力・高耐久 PEFC を実現する革新的材料の研究開発事業**」

実施者： 国立大学法人山梨大学（株式会社東レリサーチセンター（共同実施）、日揮ユニバーサル株式会社、株式会社リガク、学校法人東京理科大学（再委託））、パナソニックホールディングス株式会社、田中貴金属株式会社、日本化学産業株式会社、株式会社日産アーク（2020～2022/6）、国立大学法人東北大学、国立大学法人大阪大学

期間： 2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

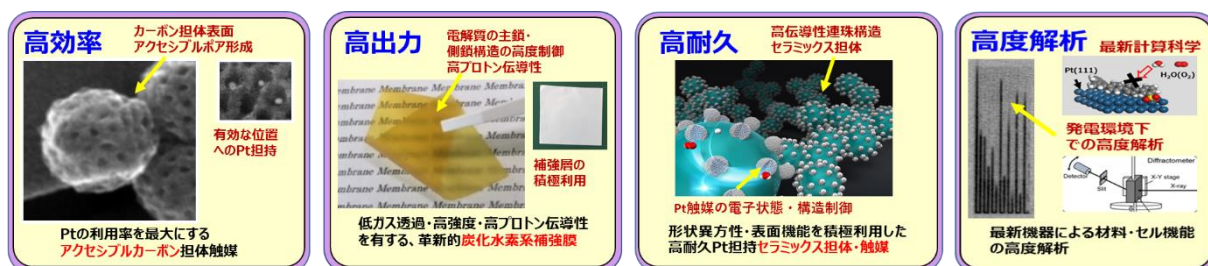
燃料電池の 2030 年以降に目指すべき目標性能を達成するための担体・触媒・電解質・触媒層に関する過電圧低減と耐久性向上を達成させ、高効率・高出力・高耐久を両立した新たな電極・電解質材料を産業界と共に実用化につなげる。これに伴い各最終目標に対して 2022 年 6 月時点の中間目標 1 として 60%程度、2023 年度末の中間目標 2 として 80%程度達成の目途付けを行う。

本プロジェクトにおいては、以下の 3 テーマを実施する。

A. 「高効率・高出力・高耐久を実現する触媒の研究開発」

B. 「高効率・高出力・高耐久を実現する炭化水素系電解質材料の研究開発」

C. 「高効率・高出力・高耐久を実現する触媒層の研究開発」



2. 研究開発目標と目標設定の考え方

○中間目標（2022年6月）

- ・高活性・耐久性をもつ電極触媒、高プロトン伝導性・ガスバリア性をもつ電解質膜及びそれらを用いたセルにて、機能と劣化メカニズムを検証する。
- ・現状比 6 倍の耐久性と 1.5 倍の活性を持つ電極触媒と 1.6 倍のプロトン伝導度とガスバリア性を持つ電解質を設計する。

○最終目標（2024年度）

- ・現状比 10 倍の耐久性と 2.5 倍以上の活性を有する電極触媒、2 倍のプロトン伝導度とガスバリア性を持つ電解質を設計する。
- ・産業界と協力し、上記機能を検証すると共に量産工程を確立する。

高効率運転目標及び高出力運転目標の設定について、2020 年 1 月に FC-Cubic から情報共有いただいた 2030 年の IV 性能予測と各要素技術アイテムから過電圧改善値を読み取り、山梨大学で対応する各研究テーマの材料・構造の 2 A/cm^2 における目標過電圧改善値とした。

高耐久起動停止等の目標の設定については、山梨大学で実施した前 NEDO プロジェクトにて乗用車 20 万 km 相当(60000 サイクル)をクリアしたことから、今回、商用車に求められる 200 万 km 相当の耐久性を実現するため、乗用車の 10 倍の値を目標とする。極限環境下劣化防止等の目標については、200 万 km 相当に必要な商用車における負荷変動特性を想定する。さらに、水素枯渇時においても劣化せず発電を可能にすることを目標とした。

ベンチマーク結果と比較すると、目標のベースとした FCCJ から発信された 2030 年の性能目標は米国、欧州、中国それぞれの目標に対して優位であると考えられることから、現在の開発目標値は海外の大学・機関に比べて優位であると判断できる。また、産業界等のニーズに対しても、FCCJ 目標は産業界のニーズに基づいたものであること、本事業では FCV・エネファーム・材料等の企業より関心表明をいただき、各社のそれぞれの課題に向けて、目標を精査し新材料およびそれを活かす触媒層の研究開発を共同で進めていることから、産業界のニーズを的確にとらえ、妥当な目標設定となっていると判断できる。また、関心表明企業をはじめとする燃料電池関連企業との密接なコミュニケーションを通じてニーズを的確にとらえていると認識しており、今回設定した最終目標を実現することにより実用化達成できると考える。

また、PEFC 評価解析プラットフォームやユーザー企業等へ触媒を供試する取り組みを通して、当プロジェクトでの触媒材料設計のみならず、共通課題解決型基盤技術開発プロジェクト全体のクオリティーの向上に貢献する取り組みも目標に組み入れることを検討する。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

A.高効率・高出力・高耐久を実現する触媒の研究開発				
項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
高効率運転	・高効率運転に寄与する主要メカニズムを明らかにして、酸素還元活性が 360A/g (@0.90 V)以上となることを検証する。	特殊な微細構造をもつセラミック担体・カーボン担体を設計し、その一部にて 2030 年目標に匹敵する酸素還元活性を RDE で確認した。触媒の電気伝導度と接触抵抗を大幅低減させ、抵抗過電圧の抑制にも成功した。これらの活性向上要因を SPring-8 でのオペランド解析や山梨大学の最新評価設備等で解明し、更なる活性向上方針をまとめた。	○	・120℃での触媒耐久性 (FCCJ 負荷変動模擬プロトコル利用) の評価結果が湿度で大きく異なる。 ⇒120℃での Pt 酸化開始電位は 80℃の時と大きな差はない。今後設定される高温プロトコルに沿った評価を実施し、材料の妥当性を確認する。 ・高温での機械強度・輸送特

高負荷運転	<ul style="list-style-type: none"> 高負荷運転に寄与する主要メカニズムを明らかにして、抵抗過電圧が 170mV (@2 A/cm²) 以下になることを検証する。 	<p>特殊な微細構造をもつセラミック担体に Pt ナノロッドを担持した触媒にて、触媒の電気伝導度と接触抵抗の大幅低減に成功した。その抵抗過電圧が中間目標に到達することを MEA で確認した。さらに、その触媒を用いた MEA は評価解析プラットフォームにて評価され、結果のフィードバックを受けた。</p>	○	<p>性等の測定における温度制御 ⇒温度制御装置の設計まで完了。測定セルの設計を実施し、双方を導入できれば可能と考える。</p> <p>・ユーザーの要望する量産工程(塗工速度)に対応した触媒層作製 ⇒塗工を専門とする関連企業を交え検討中。</p>
高耐久起動停止	<ul style="list-style-type: none"> 高耐久起動停止等に寄与する主要メカニズムを明らかにして、乗用車の起動停止サイクル数の6倍の耐久性を酸性電解液中にて検証する。 	<p>特殊な微細構造をもつセラミック担体に Pt ナノロッドを担持した触媒にて、その起動停止・負荷変動サイクル数が中間目標に到達することを RDE(室温)及び MEA(@120℃)にて確認した。</p>	○	<p>・触媒開発において、100℃を超える温度における触媒解析手法が、確立されていない。 ⇒発電反応を含む電気化学反応中、あるいはそれを模した状態で測定可能なセルの開発。測定環境条件を実現可能な、環境制御装置の開発。</p>
極限環境下劣化防止	<ul style="list-style-type: none"> 極限環境下劣化防止等に寄与する主要メカニズムを明らかにして、水素雰囲気中での抵抗過電圧が 100 mV (@2 A/cm²)以下であると共に、空気中での抵抗過電圧が 300 mV (@2 A/cm²)以上になることを検証する。 	<p>新たなセラミック担体を開発すると共にPtナノロッドを担持した触媒にて、中間目標レベルの過電圧まで抑制されていることを確認した。さらに、その触媒をアノードに用いた場合、過酸化水素の発生量が抑制されることを RDEにて確認した。</p>	○	

B.高効率・高出力・高耐久を実現する炭化水素系電解質材料の研究開発

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
----	------	----	-----	-------

<p>高効率運転</p>	<p>・炭化水素系高分子電解質の主鎖構造、親水部と疎水部の組成と連結性、結合官能基、置換基等をそれぞれ設計して組み合わせる手法で、得られる電解質膜が高効率運転に寄与するための主要な因子を明らかにする。現在のフッ素系電解質膜に比べてプロトン導電率が 1.2 倍、ガス透過率が 1/2 を得る。</p>	<p>疎水部および親水部の構造と組成、置換基の効果、およびそれらの組み合わせにより炭化水素系高分子電解質膜の物性を制御できることが明らかになった。プロトン導電率向上(フッ素系電解質膜の 1.1 倍)とガス透過率低下(フッ素系電解質膜の 1/3 倍)の指針に沿った構造で中間目標の達成を確認した。プロトンや水を含んだ時の構造、モルフォロジー変化を明らかにした。</p>	<p>○</p>	<p>炭化水素系電解質材料開発において、100 °C を超える温度における電解質解析手法が、確立されていない。 ⇒発電反応を含む電気化学反応中、あるいはそれを模した状態で測定可能なセルの開発。測定環境条件を実現可能な、環境制御装置の開発。</p>
<p>高負荷運転</p>	<p>・炭化水素系高分子電解質の分子構造や配列、部分フッ素基導入等をそれぞれ設計して組み合わせる手法で、得られる電解質イオノマーが高負荷運転に寄与するための主要な因子を明らかにする。現在のフッ素系イオノマーに比べてプロトン導電率が 1.2 倍、ガス透過率が 1.2 倍を得る。</p>	<p>分子構造、特に部分フッ素化と嵩高い置換基構造の導入、およびそれらの組み合わせにより、炭化水素系高分子電解質イオノマーのプロトン導電率向上(フッ素系電解質膜と同程度)とガス透過率向上(フッ素系電解質膜の 1.18 倍)のための設計指針に沿った構造で中間目標の達成を確認した。触媒表面上での電解質イオノマーおよびモデル化合物の吸着構造や吸着エネルギーをシミュレーションした。</p>	<p>○</p>	<p>炭化水素系電解質材料開発において、100 °C を超える温度における電解質解析手法が、確立されていない。 ⇒発電反応を含む電気化学反応中、あるいはそれを模した状態で測定可能なセルの開発。測定環境条件を実現可能な、環境制御装置の開発。</p>

高耐久起動停止	<p>・炭化水素系高分子電解質の分子構造、結晶性や分子配向等をそれぞれ設計して組み合わせる手法で、得られる電解質膜が高耐久起動停止等に寄与するための主要な因子を明らかにする。そして、化学安定性と機械的耐久性が現在のフッ素系電解質膜の0.6倍を得る。</p>	<p>剛直な芳香族骨格の導入や多孔性基材による補強化、およびそれらの組み合わせにより、炭化水素系高分子電解質膜の化学耐久性と機械的耐久性を向上させるための構造設計指針に沿った構造で、耐久性試験を実施し、中間目標を達成した。</p>	○	
---------	--	---	---	--

C.高効率・高出力・高耐久を実現する触媒層の研究開発

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
高効率運転	<p>・高効率発電に寄与する主要メカニズムを明らかにする。0.012 A/cm² (0.9 V, 360 A/g 相当)の目標値を得、開発材料の目標値をMEAで検証する。</p>	<p>Pt/Nb-SnO₂ 触媒で 3.1 倍の質量活性向上や新規カーボン担体触媒 (Pt/OMC) で 2.3 倍の質量活性向上が達成できているので、高酸素透過イオノマー技術、ES 法塗工技術またはダイコータ技術の合わせ技で、開発触媒を用いた MEA のセル評価により、高効率目標の達成を確認した。</p>	○	<p>触媒層開発において、100℃を超える温度における触媒層およびセル解析手法が用意されていない。</p>
高負荷運転	<p>・高負荷運転に寄与する主要メカニズムを明らかにする。過電圧低減目標として 270 mV (触媒 170 mV, 電解質材料 100 mV) @2 A/cm² の目標値を得、開発材料の目標値をMEAで検証する。</p>	<p>Pt/Nb-SnO₂ 触媒層を用いた MEA にて、1.5A/cm² でΔ80 mV の活性化過電圧の低減を達成した。高酸素透過イオノマー技術や、ES 法塗工技術またはダイコータ技術の合わせ技で、開発触媒を用いた MEA のセル評価により、高負荷運転の目標達成を確認した。</p>	○	<p>⇒発電反応を含む電気化学反応中、あるいはそれを模した状態で測定可能なセルの開発。測定環境条件を実現可能な、環境制御装置の開発。</p>

高耐久起動停止	<p>・高耐久起動停止等に寄与する主要メカニズムを明らかにする。FCCJ 36000 サイクル(ECSA 低下率が 50%以下)を見通す。さらに乗用車の起動停止サイクル数の 6 倍の耐久性の目途を得、開発材料の目標値を MEA で検証する。</p>	<p>市販触媒・セラミック担体触媒における耐久性を検討し、高耐久化への開発指針を材料設計にフィードバックした。その結果、Pt/Nb-SnO₂ 触媒層を用いた MEA にて、起動停止及び負荷変動モードにて FCCJ 最終目標 60000 サイクル (ECSA 低下率が 50%以下) を 80℃及び 120℃にて見通すことができた。</p>	○	
極限環境下劣化防止	<p>・極限環境下劣化防止等に寄与する主要メカニズムを明らかにする。FCCJ 目標 24 万サイクル (ECSA 低下率が 50%以下)を見通し、さらに起動時の逆電流の抑制及び水素枯渇時における劣化防止技術を開発する。加えて、乗用車の負荷変動サイクルの 6 倍の耐久性の目途を得、開発材料の目標値を MEA で検証する。</p>	<p>スカベンジャー機能を持つ CeOx 系担体触媒を開発し、市販触媒に比べ過酸化水素発生量を大幅に抑制することに成功した。ES 塗工法技術あるいはダイコータ技術の合わせ技で MEA 検証することにより、目標達成を確認した。</p>	○	

3.2 研究開発の詳細

(1) 「高効率・高出力・高耐久を実現する触媒の研究開発」

①セラミックス系担体触媒

図 1 に示すように、セラミック担体の性能向上方針として、これまでのドーパントの導入、融着連珠構造化、さらには、Pt 粒子の担持に加え、あらたに、ロッド状の Pt を担持することで、従来のカーボン担体以上の電気伝導性を有することができ、広い温度範囲（最大 120℃）にて、活性向上と高耐久性と抵抗過電圧の低減をすべて満足できる材料設計方針を策定できた。

その結果、図 2 に示すように、Pt ナノロッド化することで、2024 年度最終目標に匹敵する高い質量活性を得た。これは、活性の高い Pt(111)面を優先配向させることで、酸素還元活性の向上と活性化エネルギーの低下が実現できたものと考えられる。また図 3 に示すように、単セル評価により高出力化も実現できていることを確認した。さらに、図 4 に示すように、単セル評価により、120℃における負荷応答耐久サイクル試験においても、高耐久性を有することを確認した。

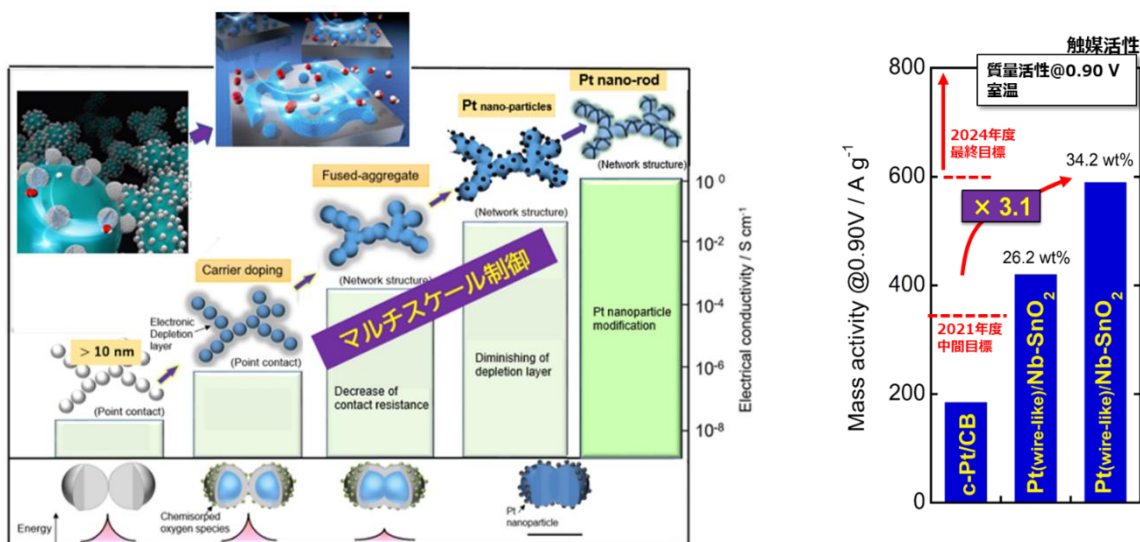


図 1、セラミック担体系触媒の性能向上方針

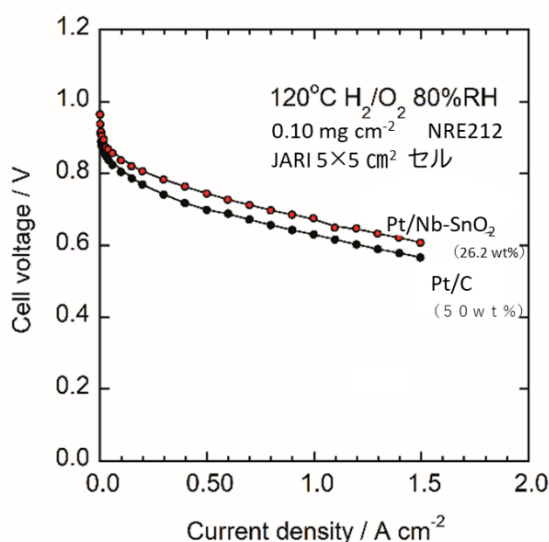


図 3.セラミック担体の高出力発電性能の確認

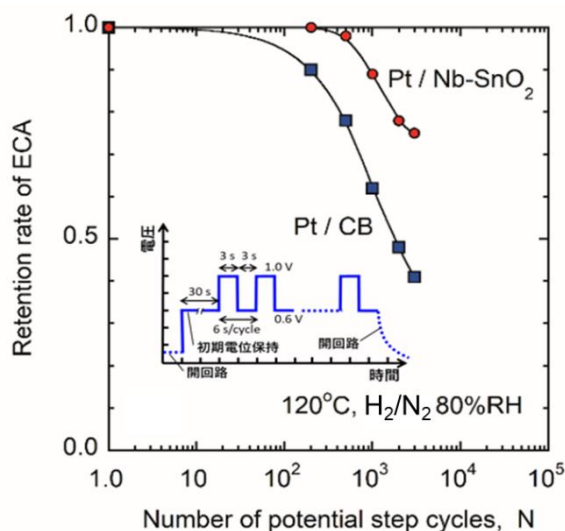


図 4 .セラミック担体の高耐久性の確認
(負荷変動サイクル)

②カーボン担体系触媒

新規なネットワーク構造を有する規則的メソポーラスカーボン担体（OMC）とそのメソ孔内への Pt 選択担持法の開発で高効率・高出力を実現するアクセシブルポア触媒を実現できた。

- ・ 鋳型法によって、一次粒子径 50～80 nm の規則的メソポーラスカーボン（OMC）粒子表面に入口径約 5 nm のナノ孔が高度に規則配列した担体構造を実現した（図 5）。
- ・ OMC の一次粒子の直径および連結長さの制御因子を明らかにした。
- ・ 特定の分子構造を有する分散剤により、Pt ナノ粒子が OMC 担体ナノ孔内表層近傍に選択担持される条件を見出した（図 6）。
- ・ RDE 法で市販触媒より優れた活性・耐久性を確認した。

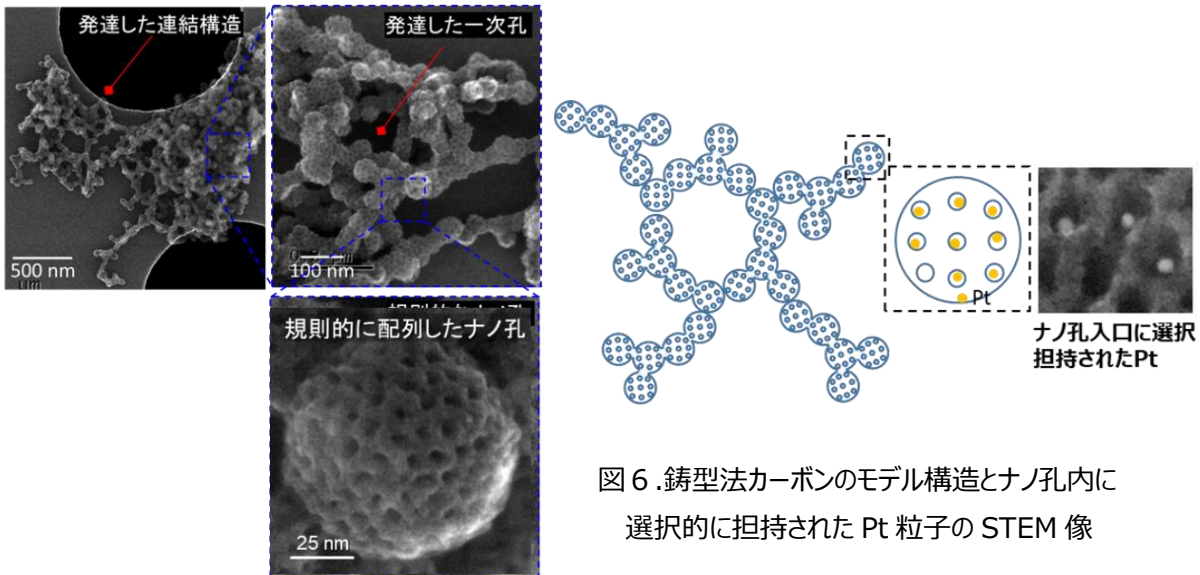


図6. 鋳型法カーボンのモデル構造とナノ孔内に選択的に担持された Pt 粒子の STEM 像

図5. 鋳型法カーボン（OMC 連結構造担体）の STEM 像

(2) 「高効率・高出力・高耐久を実現する炭化水素系電解質材料の研究開発」

ポリフェニレン系電解質の機械強度改善を目指して、ポリエチレン(PE)多孔基材による補強を検討した。

- ・炭化水素系材料同士で親和性が高く、ピンホールやムラなどは認められなかった（図7）。
- ・IECが異なる幾つかの SPP-QP を用いたところ、いずれの場合にも均一透明な補強膜が得られた。



図7. 機械強度向上のための多孔基材による補強

ポリフェニレン系電解質/PE 補強膜の含水率、プロトン導電率、ガス透過率、伸び応力曲線を測定し、補強効果を検証した（図8）

- ・高 IEC 炭化水素系との組み合わせにより、高プロトン導電率を達成した。。
- ・補強膜は低ガス透過率、高機械強度（破断強度、破断伸び）が改善した。

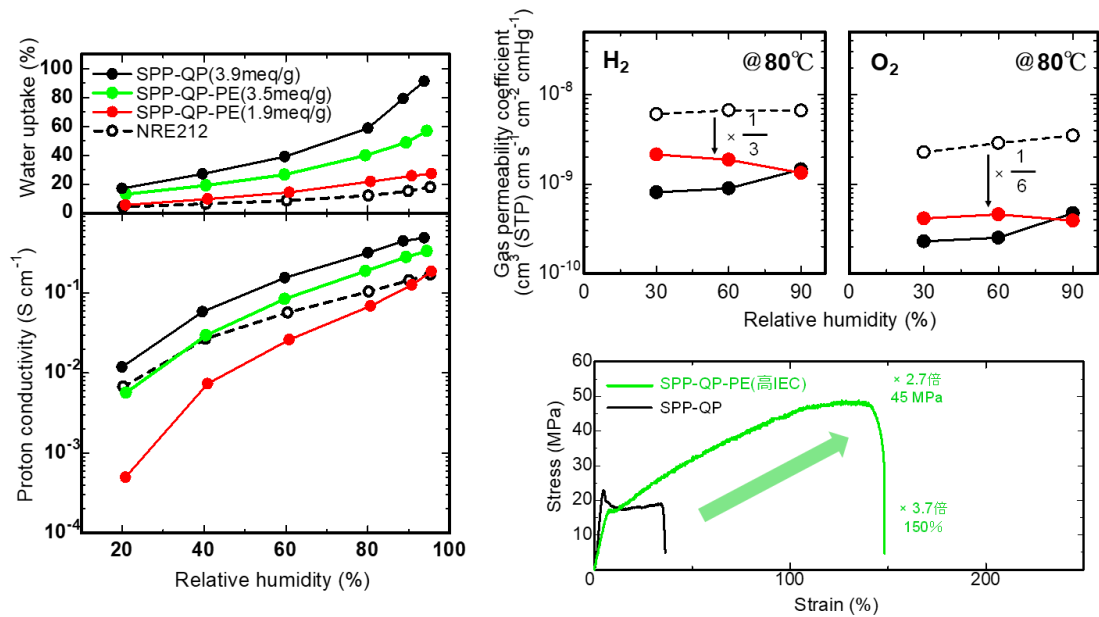


図 8. ポリフェニレン系電解質 / PE 補強層の含水率、プロトン伝導率、ガス透過率、伸び応力曲線

ポリフェニレン系電解質を部分フッ素化することにより、ePTFE による補強の可能性を探求した (図 9)。

- ・部分フッ素化の効果により、エタノールにも可溶な炭化水素系電解質膜を開発できた。
- ・部分フッ素化電解質膜は、ePTFE による補強が可能であった。
- ・部分フッ素化電解質膜を ePTFE で補強した補強膜は、120°C、20%RH でも、高いプロトン導電率を保持した。

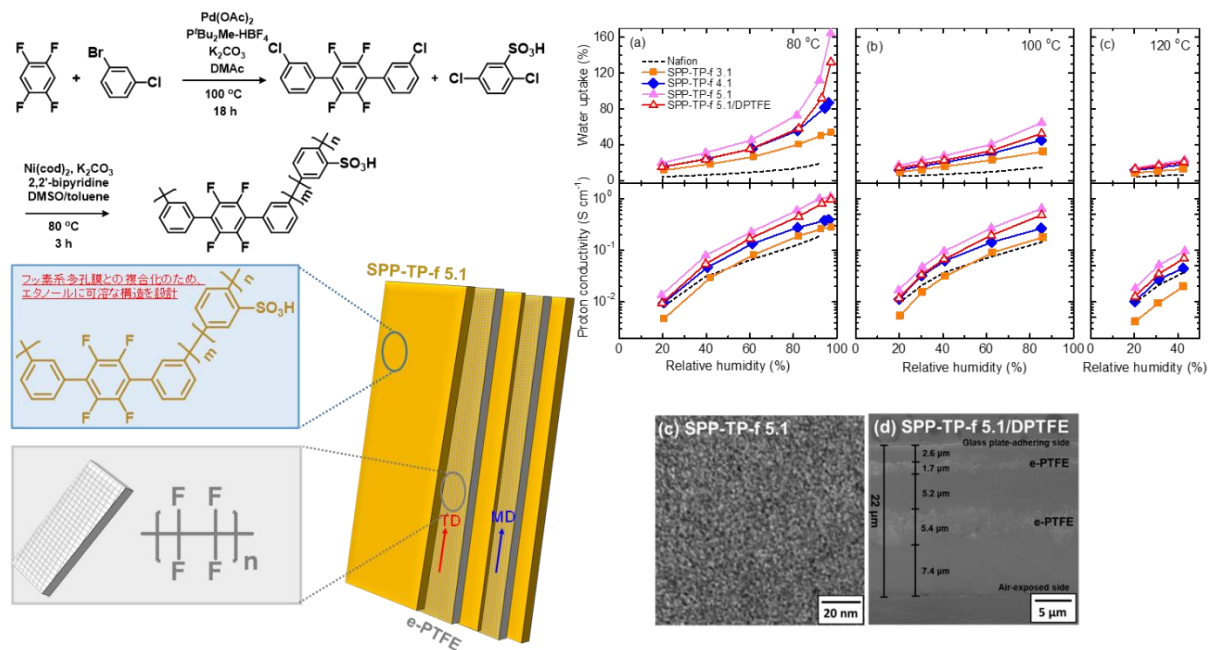


図 9. 部分フッ素化電解質膜の ePTFE による補強膜とそのプロトン導電率特性 (80, 100, 120°C)

(3) 「高効率・高出力・高耐久を実現する触媒層の研究開発」

市販「アクセシブル」カーボン担体触媒において、LOI 企業の要望仕様で高い性能・耐久性を発揮させるための触媒層を探求した。

- ・カーボン担体の一次粒子内のナノ細孔内の Pt を有効に利用するための細孔容積と高分子電解質量との関係を紐解く指標として、ナノ細孔のヒステリシス容積が有効であることが明らかになった。
 - ・触媒の細孔に蓋をしないように高分子電解質を被覆させ、Pt 粒子間距離を長くすることで発電性能と耐久性を向上できることが分かった。
 - ・カーボン担体の一次粒子内のナノ容積を大きくすることにより、触媒の Pt 粒子間距離を長くすることで発電性能と耐久性を向上できることが分かった。
 - ・カーボン担体の一次粒子内のナノ細孔内外の Pt は担持密度で分布が変化。担持密度を過剰に増大させると外表面 Pt の粒子サイズが増大し、イオノマーの偏在を促進する。
 - ・Pt 担持量 40wt%で細孔の入り口を塞がないように高分子電解質を被覆させると発電性能を向上できる。
 - ・ナノ細孔容積の大きい高比表面積カーボン担体触媒は
 - (a)低 Pt 担持：起動停止時の水素と酸素の置換時間が長く、カーボン劣化を促進
 - (b)高 Pt 担持：表面 Pt 担持比率が増大、表面 Pt 粒子の凝集とその Pt によるカーボン腐食が進行
- ⇒検討した高比表面積カーボン担体においては、Pt 担持量 40wt%が高効率&高耐久化の両立の観点から最適であると考えられた。今後同様な手法を用いて、OMC などのカーボン担体触媒における高効率・高出力・高耐久の触媒層技術を確立する。

上記の各材料の研究開発の結果、図 10.に示すように、研究開発した成果をまとめると、1.5A/cm²におけるセル電圧・過電圧で設定した中間目標を達成することを確認した。

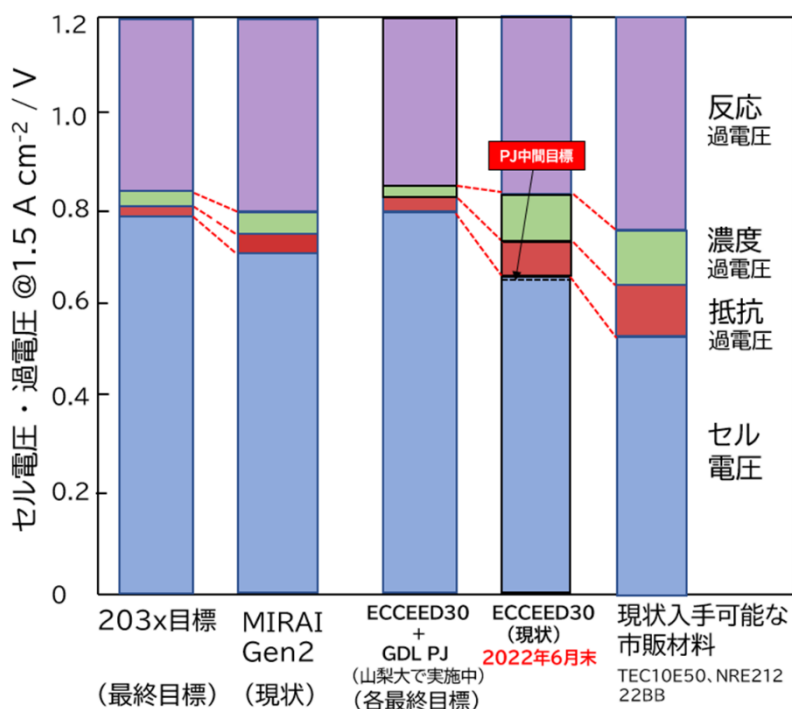


図 10. 1.5A/cm²におけるセル電圧・過電圧の中間目標達成の確認

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 「高効率・高出力・高耐久を実現する触媒の研究開発」

a) 高効率発電技術開発

〈セラミックス担体〉 今後、2030 年に向けてより高い触媒活性を得るため、セラミックス担体の表面構造を精密制御して高度に構造規制された Pt・合金ナノ粒子・ナノワイヤーを担持して耐久性を保持したうえでより高活性な新規セラミックス担体・触媒を開発し、量産手法の目途付けを実施する。

〈カーボン担体系触媒〉 カーボン担体表面の細孔構造と細孔内の Pt の担持位置を制御して、高効率発電技術に資する触媒技術を構築すると共に、量産手法の目途付けを実施する。構造最適化を行った Pt/OMC 連結構造触媒を用いて最終目標値達成の目途付けを実施する。

b) 高負荷運転技術開発

〈セラミックス担体〉 2030 年に向けたセルの出力向上のためにセラミックス担体の表面・微細構造を精密制御して、耐久性を保持したうえで、より高出力な新規セラミックス担体・触媒（触媒層）を開発し、量産手法の目途付けを実施する。

〈カーボン担体系触媒〉 大電流密度域における反応物と生成物の高速物質輸送を実現するために、多孔性の触媒（触媒層）の空隙分布と空隙率を制御すると共に、それら高速物質輸送と触媒層内のプロトン伝導性を両立したイオノマーの種類・量・分布を検討し、高出力を可能とする Pt・合金ナノ粒子担持カーボン触媒(触媒層)を開発する。

c) 高耐久起動停止等技術開発

〈セラミックス担体〉 起動停止及び負荷変動耐久性に優れるセラミックス担体・Pt 担持触媒を商用車に応用するには、より高耐久化（起動停止を模擬した電位変動に対する耐久性が標準触媒の 10,000 倍以上・負荷変動を模擬した電位変動に対する耐久性が標準触媒の 50 倍以上）が必要であることから、それらを実現する触媒技術を構築し、量産手法の目途付けを実施する。

d) 極限環境下劣化防止等技術開発

〈セラミックス担体〉 水素枯渇時において発電状態を維持しながら逆電流発生を抑制する Pt 担持セラミックス触媒や、触媒活性点付近にスカベンジャーを固定化する新たなアノード用セラミックス触媒技術の開発を行う。

(2) 「高効率・高出力・高耐久を実現する炭化水素系電解質材料の研究開発」

a) 高効率発電技術開発

高効率運転実現メカニズムを解明した新規電解質膜で、現在のフッ素系電解質膜に比べて 2 倍以上高いプロトン導電率、1 桁以上低いガス透過率を検証する。

b) 高負荷運転技術開発

高効率運転実現メカニズムを解明した新規電解質膜で、現在のフッ素系電解質膜に比べて 2 倍以上高いプロトン導電率、2 倍以上高いガス透過率を検証する。

c) 高耐久起動停止等技術開発

高耐久起動停止等実現メカニズムを解明した新規炭化水素系電解質膜で、現在のフッ素系電解質膜と同等の化学安定性と機械的耐久性を検証する。

(3) 「高効率・高出力・高耐久を実現する触媒層の研究開発」

a) 高効率発電技術開発

これまでに得られた設計指針と新規に開発された触媒材料や電解質材料を用い高効率発現メカニズムを解明し、高効率化の最終目標 $0.02\sim 0.04\text{ A/cm}^2$ (@ 0.9V , $600\sim 1200\text{ A/g}$ 相当) を MEA で検証する。また、ベンチマーク材料を用いた触媒層と比較検証する。

b) 高負荷運転技術開発

これまでに得られた設計指針と新規に開発された触媒材料や電解質材料を用い高負荷運転実現メカニズムを解明し、過電圧低減の最終目標として 160 mV (触媒 100 mV , 電解質材料 60 mV) @ 2 A/cm^2 を MEA で検証する。

c) 高耐久起動停止等技術開発

これまでに得られた設計指針と新規に開発された触媒材料や電解質材料を用い起動停止劣化メカニズムを解明し、FCCJ 最終目標 60000 サイクル (ECSA 低下率が 50% 以下) を見通す。さらに乗用車の起動停止サイクル数の 10 倍の耐久性を検証する。各開発材料の目標値を MEA として検証する。

d) 極限環境下劣化防止等技術開発

これまでに得られた設計指針と新規に開発された触媒材料や電解質材料を用い各極限環境下における劣化メカニズムを解明し、FCCJ 最終目標 40 万サイクル (ECSA 低下率が 50% 以下) を見通す。さらに起動時の逆電流の抑制及び水素枯渇時における劣化防止技術を開発する。加えて、乗用車の負荷変動サイクルの 10 倍の耐久性を検証する。各開発材料の目標値を MEA として検証する。

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) 「高効率・高出力・高耐久を実現する触媒の研究開発」

触媒・担体材料の量合成・性能向上及び CCM 量産レベルを想定する作製工程の検討を課題として、量産工程の検討を進める。研究テーマ(3)「高効率・高出力・高耐久を実現する触媒層の研究開発」との連携をベースに塗工メーカーに供試できる体制を必要に応じ構築する。また、目標運転温度を念頭に置いた新規プロトコルでの評価が必須であるが、産官学での議論のもと最適なプロトコルの早期設定に協力し必要な評価を進める。極限環境下劣化防止の観点からは、 120°C でのスカベンジング効果を発揮したうえで、電解質膜およびイオノマーのプロトン伝導度への影響を極力抑制する触媒・担体の組成・微細構造等の最適化検討を進めている。その結果、研究体制の中で材料設計を進め量産工程も検討できる状況である。また、関心表明企業からの電解質膜の提供を受け、それに加え意見交換を継続的に行い産業界の意向にも配慮した進め方をしている。

カーボン担体触媒に関しては、開発 OMC 担体の量合成を実施するメーカーの開拓が重要と考え、国内のカーボン合成を得意とするメーカー複数社に量合成への協力を打診。協力体制構築の目途が立ちつつある。

(2) 「高効率・高出力・高耐久を実現する炭化水素系電解質材料の研究開発」

炭化水素系電解質材料の量合成プロセスの開発が重要であることから、関心表明企業との情報交換などにより外部企業との連携を探索中。いくつかの候補となりえる企業の目途が立ちつつある。また、併せて炭化水素系電解質に適した多孔性基材の探索と選択を行うなかで、複数の外部企業から炭化水素系およびフッ素系の多孔性基材の提供を受けられる体制を構築している。さらに 120°C 以上で高プロトン導電性を示す炭化水素系高分子電解質の設計と物性評価に取り組み、「広温

湿度作動 PEFC を実現する先端的材料コンセプトの創出」テーマと連携しながら進めると共に、関心表明企業との連携により情報やサンプルの交換を検討する。

(3) 「高効率・高出力・高耐久を実現する触媒層の研究開発」

高温でも開発目標性能を発現する触媒層の開発を目的として量産工程に応用可能な触媒層形成プロセスを構築しており、その中でも性能を最大限に発揮する理想的な工法の探求を推進する。研究用途に絞った開発機を参画触媒企業に導入し、そこからのフィードバックを受け量産工法開発につなげる。また、既存工法への適応可能性も課題として設定し、ダイコータ法をベースに探求。さらには産業界における各種工法の適応性、要求仕様の把握も重要なため、PEFC 評価解析プラットフォームや関心表明企業との連携により産業界の実態と要望を把握する。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2021.8.20	PCT/JP2021/030602	担持金属触媒	国立大学法人山梨大学
2	2020.8.25	特願 2020-142118	担持金属触媒	国立大学法人山梨大学

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	Sep-20	ECS Trans.98,	Development of In Situ A-SAXS and XAS Measurements of Pt Catalyst under Controlled Electrochemical Condition using Channel Flow Electrode Cell	T.Watanabe, T.Kawamoto, K.Suda, C.Pondchanok, Y.Hiraoka, I.Hirosawa, J.Inukai
2	Nov-20	RSC Adv.,10 (No.67)	Ladder-Type Sulfonated Poly (arylene perfluoroalkylene)s for High Performance Proton Exchange Membrane Fuel Cells	Z.Long, J.Miyake, K.Miyatake
3	Nov-20	Energy Fuels,34(No.11)	Effect of an Electrospray-Generated Ionomer Morphology on Polymer Electrolyte Fuel Cell Performance	S.Cho, K.Tamoto, M.Uchida

4	Dec-20	ACS Appl. Polym. Mater. 2 (No.12)	Structural Investigation of Sulfonated Polyphenylene Ionomers for the Design of Better Performing Proton-Conductive Membranes	K. Shiino, T. Otomo, T. Yamada, H. Arima, K. Hiroi, S. Takata, J. Miyake, K. Miyatake
5	Feb-21	ACS Applied Energy Materials, 4,	Effect of Pt and Ionomer Distribution on Polymer Electrolyte Fuel Cell Performance and Durability	A. Kobayashi, T. Fujii, C. Harada, E. Yasumoto, K. Takeda, K. Kakinuma, M. Uchida
6	Apr-21	J. Surf. Finish. Soc. Jpn. 72 (No.4)	Oscillation Mechanism in Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell Studied by Operando Monitoring of Oxygen Partial Pressure Using Optical Probes	Y. Kakizawa, T. Kobayashi, M. Uchida, T. Ohno, T. Suga, M. Teranishi, M. Yoneda, T. Saiki, H. Nishide, M. Watanabe, A. Iiyama, J. Inukai
7	Apr-21	ACS Appl. Mater. Interfaces, 13 (No.13)	High-Performance Fuel Cell Operable at 120°C Using Polyphenylene Ionomer Membranes with Improved Interfacial Compatibility	Z. Long, K. Miyatake
8	May-21	J. Electrochem. Soc., 168 (No.5)	Analytical System for Simultaneous Operando Measurements of Electrochemical Reaction Rate and Hard X-ray Photoemission Spectroscopy	K. Suda, T. Kawamoto, S. Yasuno, T. Watanabe, T. Koganezawa, M. Matsumoto, H. Imai, I. Hirose, J. Inukai

9	May-21	ACS Catal.,11 (No.5)	Temperature Dependence of Oxygen Reduction Activity at Pt/Nb-Doped SnO ₂ Catalysts with Varied Pt Loading	G. Shi, T.Tano, D. A. Tryk, A.Iiyama, M.Uchida, K. Kakinuma
10	May-21	J.Electrochem. Soc.168(No.5)	Evaluation of Ionomer Distribution on Electrocatalysts for Polymer Electrolyte Fuel Cells by Use of a Low Acceleration Voltage Scanning Electron Microscope	K. Kakinuma, M. Kawamoto, K. Tamoto, M. Yamaguchi, S. Honmura, A. Iiyama, M. Uchida
11	Jul-21	Vacuum and Surface Science, 64(No.7)	Water Distributions inside Polymer Electrolyte Thin Films Studied by Neutron Reflectometry	T. Kawamoto J. Inukai
12	Aug-21	J. Power Sources Adv.,10,	Wet/Dry Cycle Durability of Polyphenylene Ionomer Membranes in PEFC	T. Tanaka, H. Shintani, Y. Sugawara, A. Masuda, N.Sato, M. Uchida, K.Miyatake
13	Sep-21	Electrochim.Acta, 390	Enhanced Oxygen Reduction Electrocatalysis on PtCoSn Alloy Nanocatalyst Mediated by Ta-doped SnO ₂ Support for Polymer Electrolyte Fuel Cells	G. Shi, T.Hashimoto, D. A. Tryk, T.Tano, A. Iiyama, M.Uchida, K.Kakinuma
14	Sep-21	iScience, 24 (No.9)	ePTFE Reinforced,Sulfonated Aromatic Polymer embranes Enable Durable,High-Temperature Operable PEMFCs	Z. Long K. Miyatake
15	Sep-21	ACS Mater. Au, 1 (No.1)	Reinforced Polyphenylene Ionomer Membranes Exhibiting High Fuel Cell Performance and Mechanical Durability	J. Miyake, T. Watanabe, H. Shintani, Y. Sugawara, M. Uchida, K. Miyatake

16	Nov-21	Polym. Chem., 12 (No.42)	Poly(para-phenylene)Ionomer Membranes:Effect of Methyl and Trifluoromethyl Substituents	F. Liu, J. Ahn, J. Miyake, K. Miyatake
17	Jan-22	J. Power Soueces Adv.,13	The Distribution and Diffusion Coefficient of Water Inside a Nafion® Membrane ina Running Fuel Cell under Transient Conditions Analyzed by Operando Time-Resolved CARS Spectroscopy	H. Nishiyama, A. Iiyama, J. Inukai
18	Jan-22	Energy Adv., 1	An Aromatic Ionomer in the Anode CatalystLayer Improves the Start-up Durability of Polymer Electrolyte Fuel Cells	T. Tanaka, M. Uchida, K. Miyatake
19	Jan-22	ACS Appl. Energy Mater., 5 (No.1)	Effect of Pt Loading Percentage on Carbon Blacks with Large Interior Nanopore Volume on the Performance and Durability of PolymerElectrolyte Fuel Cells	A. Kobayashi, T. Fujii, K. Takeda, K. Tamoto, K. Kakinuma, M. Uchida
20	Jan-22	J.Electrochem. Soc.,169(No.1)	Particle-Size Effect of Pt Anode Catalysts on H2O2 Production Rate and H2 Oxidation Activity at 20 to 80 °C	H. Uchida, G. Shi, M.Imran, D. A. Tryk
21	Feb-22	J. Catal., 407	Pt nanorods oriented on Gd-doped ceria polyhedra enable superior oxygen reduction catalysis for fuel cells	G. Shi, T.Tano, D.A. Tryk, A. Iiyama, M. Uchida, Y. Kuwauchi, A.Masuda, K. Kakinuma
22	Mar-22	STAR Protoc., 3(No.1)	Protocol for Synthesisand ePTFE Reinforced,Sulfonated Polyphenylene in the Application to Proton Exchange Membrane Fuel Cells	Z. Long K. Miyatake

23	Apr-22	ACS Omega, 7(N0.16)	Properties and Morphologies of Anion-Exchange Membranes with Different Lengths of Fluorinated Hydrophobic Chains	Y. Shirase, A. Matsumoto, K. L. Lim, D.A.Tryk, K. Miyatake, J. Inukai
24	Oct-20	PRiME 2020	Effect of Electrospray-Generated Ionomer Morphology on Polymer Electrolyte Fuel Cell Performance	S.Cho, K.Tamoto, M.Uchida
25	Oct-20	ECS PRiME2020	Activation of the Oxygen Reduction Reaction at Structurally Regulated Pt/Nb-SnO ₂ Catalysts	G.Shi, D.A.Tryk, A.Iiyama, K.Kakinuma
26	Oct-20	ECS PRiME2020	Highly Durable and Active Electrocatalysts using SnO ₂ Supports for Polymer Electrolyte Fuel Cells	K.Kakinuma, M.Uchida, A.Iiyama
27	Oct-20	PRiME 2020	Distribution of Water Molecules inside Proton Exchange Membrane in Transient State during Fuel Cell Operation Monitored By Operando Time-Resolved CARS Spectroscopy	H.Nishiyama, S.Takamuku, A.Iiyama, J.Inukai
28	Oct-20	PRiME 2020	Imaging and Quantification of Water inside Membrane-Electrode Assembly of Polymer Electrolyte Fuel Cell during Power Generation By Use of Neutron Beam	Y.Kakizawa, H.Hayashida, K.Sud, T.Kawamoto, J.Inukai
29	Oct-20	PRiME 2020	A simple analytical approach for fitting steady-state polarization behavior of polymer electrolyte fuel cells using Tafel slope component analysis (TSCA)	D.A.Tryk, K.Kakinuma, M.Uchida, A.Iiyama
30	Oct-20	PRiME 2020	Sublayered Thin Films of Polymer Electrolyte for Fuel Cells Formed on SiO ₂ and Pt	T.Kawamoto, T.Kimura, M.Aoki,

			Substrates Analyzed By Neutron Reflectometry Under Controlled Temperature and Humidity	N.L.Yamada, T.Mizusawa, J.Miyake, K.Miyatake, J.Inukai
31	Oct-21	240th ECS Meeting	Fabrication of Cathode Catalyst Layer By Use of Multi-Nozzle Electro spray Method on Polymer Electrolyte Fuel Cell	M. Uchida, K. Tamoto, T. Nagasaka, C. Taguchc, S. Yoneyama
32	Oct-21	240th ECS Meeting	Effect of Pt and Ionomer Distribution on Cell Performance and Durability	M. Uchida, K. Kakinuma, A. Kobayashi, T. Fujii
33	Oct-21	240th ECS Meeting	Voltage Oscillation in PEFCs during Power Generation Analyzed By Operando Multi-Probe Monitoring System of Oxygen Partial Pressure	J.Inukai, Y.Kakizawa, A.Iiyama
34	Oct-21	240th ECS Meeting	Highly Durable and Active Pt nanorod Electrocatalysts using SnO ₂ Supports for Polymer Electrolyte Fuel Cells	K. Kakinuma G. Shi, T.Tano, H. Taniguchi, T. Asakawa, M. Uchida, A. Iiyama
35	Oct-21	240th ECS Meeting	Soft X-Ray Imaging of Polymer Electrolyte Fuel Cells Using Different Support Materials for Catalyst Layers	K. Kinose, T. Suzuki, K. Kakinuma, M. Uchida, A. Iiyama, S. Tsushima
36	Oct-21	SFCHT2021	Analysis of water distribution and its chemical state inside the proton exchange membranes under transient conditions during operation by operando time-resolved CARS spectroscopy	西山博通、 犬飼潤治

37	Oct-21	240th ECS Meeting	Development of Operando Analytical System for Simultaneous Measurements of Electrochemical Reaction Rate and HAXPES	J. Inukai, K. Suda, T. Kawamoto, S. Yasuno, T. Watanabe, T. Koganezawa M. Matsumoto, H. Imai, I. Hirosawa
38	Oct-21	SFCHT2021	Voltage Oscillation in PEMFC during Power Generation Accompanied by Oscillation of Oxygen Partial Pressure	J.Inukai
39	Oct-21	SFCHT2021	Neutron Imaging of Water Distribution Inside a Running PEFC	S.Wakolo, Y.Kakizawa, K.Suda, T.Kawamoto, H.Nishiyama, M.Uchida, K.Kakinuma, H.Hayashida, J.Inukai
40	Oct-21	SFCHT2021	Sublayered Structures of Hydrated Ionomer Thin Film on Substrates Analyzed by Neutron Reflectometry at Humidity	川本鉄平、 犬飼潤治
41	Nov-21	Niobium Technology for Clean Energy	Highly Durable and Active Cathode Catalysts using Niobium for Polymer Electrolyte Fuel Cells	K.Kakinuma
42	Dec-21	Pacificchem2021	Chemical states of water molecules in polymer electrolyte membrane inside running fuel cell studied by operando CARS spectroscopy with high spatial/time resolutions	J.Inukai, H.Nishiyama, A.Iiyama

43	Sep-20	表面技術協会第 142 回講演大会	非線形ラマン分光法を用いた燃料電池電解質膜内水分分布の Operando 測定	西山博通、高椋庄吾、飯山明裕、犬飼潤治
44	Oct-20	第 10 回日本化学会化学フェスタ 2020	高分子膜の設計次第で燃料電池はどう変わる？	宮武健治
45	Oct-20	電気化学会・関東支部主催セミナー	燃料電池とは？－基礎から最新研究動向まで	柿沼克良
46	Apr-21	技術情報協会	セラミック担体を用いた PEFC 用高耐久・高活性触媒の開発	柿沼克良
47	May-21	第 28 回燃料電池シンポジウム	高性能・高耐久性炭化水素系電解質膜の創製	宮武健治
48	May-21	電気化学会・関東支部セミナー	燃料電池とは？－基礎から最新研究動向まで－	柿沼克良
49	May-21	FCDIC・第 28 回燃料電池シンポジウム	作動温度の高温化に向けた Pt 担持セラミック触媒の活性 と耐久性の向上	柿沼克良、太農哲朗、谷口均志、史国玉、山口美保、浅川孝之、鹿野優人、佐藤敬氏、内田誠、飯山明裕
50	May-21	第 28 回燃料電池シンポジウム	Operando 時間分解 CARS 分光測定による運転時過渡状態における燃料電池電解質膜内部の水分分布測定およびその化学状態の解析	西山博通、飯山明裕、犬飼潤治
51	May-21	第 58 回日本伝熱シンポジウム	異なる担体材料を触媒層に用いた固体高分子形燃料電池の軟 X 線イメージング	黄瀬郁奈恵、鈴木崇弘、柿沼克良、内田誠、飯山明裕
52	Sep-21	第 18 回 SPring-8 産業利用報告会	白金合金ナノ粒子燃料電池用触媒の白金異常分散を用いた in situ SAXS による粒子径分布測定	川本鉄平
53	Sep-21	表面技術協会第 144 回講演大会	発電中の固体高分子形燃料電池ガス拡散層内部の酸素分圧測定－電圧振動解析を例として－	犬飼潤治
54	Oct-21	第 152 回燃料電池研究会セミナー	燃料電池運転中過渡状態における電解質膜内水分分布の operando 時間分解 CARS 分光測定	西山博通

55	Oct-21	第 68 回材料と環境討論会	燃料電池触媒の耐久性と触媒粒子形態・化学状態の相関解明に向けたその場 SAXS, XAS 測定技術の開発	渡辺剛、川本鉄平、西山博通、須田耕平、Chinapang Pondchanok、犬飼潤治、平岡裕治、廣沢一郎
56	Nov-21	ISSS9 (高松)	Distribution of water and its chemical states inside the fuel cell electrolyte membranes under transient conditions during power generation analyzed by operando time-resolved CARS spectroscopy	西山博通、S.Wekesa、飯山明裕、犬飼潤治
57	Nov-21	日本表面真空学会：2021 年学術講演会	オペランド時間分解 CARS 分光法による発電時過渡状態における燃料電池電解質膜内の水分分布とその化学状態の解析	西山博通、犬飼潤治
58	Nov-21	2021 年日本表面真空学会学術講演会	In-situ 中性子反射率法を用いた燃料電池用イオン導電性ポリマーの水分分布構造解析	川本鉄平、青木誠、野原慎士、犬飼潤治
59	Dec-21	MRM2021 (横浜)	Operando time-resolved CARS spectroscopy measurement of the water distribution in PEM under transient conditions during fuel cell operation	西山博通、飯山明裕、犬飼潤治
60	Dec-21	MRM2021 (横浜)	Distributions of Water in Polymer Electrolyte Thin Films for Fuel Cells Analyzed by Neutron Reflectometry under Controlled Temperature and Humidity	川本鉄平
61	Dec-21	MRM2021 (横浜)	Voltage Oscillation in Polymer Electrolyte Fuel Cells Studied by Operando Monitoring of Oxygen Partial Pressure inside Gas Diffusion Layers	J.Inukai、Y.Kakizawa、A.Iiyama
62	Feb-22	2021 年度 モノづくり日本会議	高温化対応 PEFC(固体高分子形燃料電池)用革新的シナジー触媒の開発	柿沼克良

63	Mar-22	日本顕微鏡学会第 46 回関 東支部講演会	固体高分子形燃料電池用電極触媒 の開発におけるその場 TEM 観察法の 活用	西野華子、上野武夫、 宮尾敏広、内田誠、 飯山明裕
64	Mar-22	電気化学会第 89 回 大会	ネットワーク構造を有する規則的メソポ ーラスカーボン担持 Pt 触媒の ORR 活性	宮尾敏広、西野華子、 山崎博子、佐藤智子、 田本加代子、内田誠、 飯山明裕、柴沼知哉、 小泉直人
65	Mar-22	日本セラミックス協会 2022 年年会	水素社会実現にむけた燃料電池・水 電解触媒の開発	柿沼克良
66	Mar-22	電気化学会第 89 回 大会	Pt/Nb-SnO ₂ 系電極触媒における Pt の形状等の制御と性能との相関	柿沼 克良、史 国玉、 太農 哲朗、荒田 知 里、雨宮 功、渡辺 純 貴、松本 匡史、今井 英人、内田 誠、飯山 明裕
67	Nov-20	山梨科学アカデミー	山梨科学アカデミー賞	宮武健治
68	Mar-21	公益社団法人電気化 学会	電気化学会フェロー賞	内田誠
69	Apr-21	文部科学大臣表彰科 学技術賞（研究部 門）	次世代燃料電池への応用を目指した 革新的高分子薄膜の研究	宮武健治、犬飼潤治、 内田誠
70	May-21	燃料電池開発情報セ ンター（FCDIC）顕 彰制度学術賞	高性能・高耐久性炭化水素系電解 質膜の創製	宮武健治
71	Oct-20	日刊自動車新聞	環境対応、交通安全で最新成果披 露	柿沼克良
72	Mar-21	シーエムシー出版	燃料電池用電極触媒層の形成への 応用—静電スプレー法による固体高 分子形燃料電池用低白金担持カソ ードのセル性能の改善—	内田誠
73	Jun-21	朝日新聞	国産燃料電池初搭載	飯山明裕
74	Jun-21	日経新聞	燃料電池のアシスト自転車試作	日経新聞
75	Jun-21	毎日新聞	山梨発の電動アシスト自転車	毎日新聞
76	Jun-21	日経産業新聞	燃料電池の電動自転車試作	日経産業新聞新聞
77	Nov-21	読売新聞	水素燃料電池展望語る	読売新聞
78	Dec-21	山日新聞	山梨大燃料電池寿命 5 倍へ	山日新聞
79	Jan-22	日経新聞	電動自転車脱炭素へギア	日経新聞

80	Jan-22	日経産業新聞	電動自転車に燃料電池搭載	日経産業新聞
81	Sep-Nov-20	イノベーションジャパン 2020	セラミック担体・触媒に関する展示	柿沼克良

課題番号（管理番号）： PE04

研究開発テーマ名：「**共通課題解決型基盤技術開発／大型モビリティに適応する
多用途型燃料電池モジュールの研究開発**」

実施者： 東芝エネルギーシステムズ株式会社

期間： 2020年9月～2022年6月

1. 研究開発概要

1. 1 研究開発の目的

船舶や鉄道などの大型モビリティに適用可能な、コンパクト、軽量かつ高出力の 200kW 級純水素燃料電池のモジュールを開発することで、燃料電池システムの多用途化を推進し、水素の活用を促進する。

1. 2 研究開発の概要

本プロジェクトでは、様々なモビリティへの搭載を想定した標準型燃料電池モジュールの開発を行ない、船舶向けについては2022年6月までに開発を完了し、船舶用途での事業化をスタート、この成果を研究開発項目Ⅲ「燃料電池の多用途活用実現技術開発」にて実施する「高出力燃料電池搭載内航船舶の実用化に向けた実証」（以下、FC 船実証事業）へ供給し、実船舶に搭載して実証することを計画していた。

また、鉄道そのほかのモビリティにも適用させるため、2021年9月までに鉄道そのほかのモビリティ向けの要求仕様調査を実施し、2022年6月に完成する燃料電池モジュールの構造に反映した。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

2. 1 研究開発の研究目的と実施する意義

水素社会の実現に向けて、燃料電池システムの適用領域の拡大は極めて重要な課題である。燃料電池技術は、現在、燃料電池乗用車、バスなどの比較的小型のモビリティと、定置発電用途での技術開発が進み実用化が進んでいる。

しかし、そのほかの用途への拡大適用は限られており、開発の加速が必要な状況である。水素基本戦略(2017年12月)においても、船舶への適用やその他のアプリケーション(鉄道への適用含め)に向け多用途に展開していくことがうたわれている。特にエネルギー消費の多い船舶や鉄道に水素・燃料電池を活用することは、CO2削減に大きく貢献することができることが期待されている。

さらには電動化の進展は環境対策だけではなく、新しい市場を産み出すことにもつながる。静かで振動もなく臭いもない観光船、架線が要らずどの路線にも入っていける旅客列車や貨物列車、すべて電気でコントロールでき、騒音を大幅に削減でき、また排気対策が不要となる等大型重機などへの適用が求められている。これらの用途には AI や IoT が活用され、更なる効率化や省力化が広がっていく可能性がある。そのためにも、世界的な潮流となっている様々な用途に使える HEAVY DUTY 用の燃料電池モジュールの開発を推進することは、日本がリーダーシップをとるうえで大きな意義がある。

また、本研究で得られるモジュールの小型化に向けた補機開発により、船舶・鉄道に対応する補機を供給する国内メーカーの技術強化に繋がる。

2. 2 中間目標

項目	中間目標	目標設定の考え方
(1) 船舶向け標準型モジュールの開発		
① MW 級に対応するコンパクトかつ大出力化	連続出力：200kW	船舶鉄道用途の電源としての市場分析の結果。
	モジュールとしての出力密度：0.067kW/L 以上	高耐久連続出力のスタックを用いたモジュールサイズについて、2019 年度比で 2 倍以上の出力密度とする。
	発電効率：50%-LHV 以上	船舶用途においては運行距離と水素タンクサイズ、及び経済性についても重要になる。高効率求められる。事業開始時から目標変更し、定置用並みの発電効率とする。
	耐久性：設計寿命 8 万時間以上 ・機器保守あり、最大出力での連続運転可能	船舶の耐用年数は 20~30 年、鉄道車両も 15 年程度とされている。営業時間のみでの定格連続運転を 15 年運用として約 8 万 hr とする。
② 船舶運転特性対応	・船舶の負荷パターンを明確にする ・負荷パターンに対応した機器構成、制御方式	FC 船実証事業の FS 結果より船舶における応答性を明確とし、対応する補機構成・制御システムとする。
③ 船舶向け複数台の連携制御	船電源としての仕様を研究の中で定量化する。 3 MW システムでのシミュレーション完了。	200kW モジュールをさらに MW 級に展開できる構成・機能を開発する。
④ 船舶環境対応	船舶環境条件・規則要件に適合	船舶向けに必要な環境条件や規則要件を明らかにし、船用としての適合性を確認
(2) 鉄道その他アプリケーション対応開発		
① 鉄道仕様調査	仕様を確定し、モジュール構造に反映	鉄道への展開を考慮して、鉄道車両に搭載可能なサイズを明確とし、標準型モジュールの構造に反映する。
(3) 燃料電池モジュールの耐久性と運転制御仕様の影響評価		
移動体モジュールとしての各運転パターンに基づいた耐久性評価	評価方法の確定	PEFC 評価解析プラットフォームの開発成果を活用すべく、連携して評価方法を決定する。

3. 研究開発の成果

3. 1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
(1) 船舶向け標準型モジュールの開発				
① MW 級に対応するコンパクトかつ大出力化	連続出力：200kW	200kW 連続定格発電可能なシステム構成とし、発電試験により確認した。	○	—
	モジュールとしての出力密度：0.067kW/L 以上	目標サイズに対して課題があるが、FC 船実証事業における実証船への搭載に向けては問題ないことを確認した。	○	—
	発電効率：40%-LHV 以上	発電試験より、定格 Net 発電効率 50%-LHV、最大 Net 発電効率 58%-LHV を確認した	○	—
	耐久性：設計寿命 8 万時間以上 機器保守あり、最大出力での連続運転可能	加速劣化プロトコルに基づいた評価から 8 万時間の見込みを確認した。	○	—
② 船舶運転特性対応	負荷変化速度：6kW/sec 以下	FC 船実証事業の FS 結果より船舶における応答性を明らかにし、目標を 6kW/sec とした。発電試験により、負荷変化速度 20kW/sec を達成した。	○	—
	起動時間：60sec 以内	FS 結果より起動時間の目標を 60sec 以内とした。発電試験により、起動指令から発電開始まで 60sec 以内を確認した。	○	—
③ 船舶向け複数台の連携制御	舶電源としての仕様を研究の中で定量化する。 3 MW システムでのシミュレーション完了。	複数モジュールを連携させる MW 級に展開できる構成とし、機能確認した。	○	—
④ 船舶環境対応	船舶環境条件・規則要件に適合	燃料電池船の安全ガイドラインへの準拠を確認。船用機器に求められる環境条件への適合見込みを確認した。	○	—
(2) 鉄道その他アプリケーション対応開発				
① 鉄道仕様調査	仕様を確定し、モジュール構造に反映	鉄道床下に設置可能なサイズ条件を明らかにし、試作モジュール高さに反映した。	○	—
(3) 燃料電池モジュールの耐久性と運転制御仕様の影響評価				
移動体モジュールとしての各運転パターン	評価方法の確定	PEFC 評価解析プラットフォームとの協議の結果、本事業においてスタック材料開発は対象外であるため、劣化評価に向けた材料	○	—

に基づいた耐 久性評価		提供は行わない方針とし、今後データ提供 に向けた協議を行う方針とした。		
----------------	--	--	--	--

3. 2 研究開発の詳細

(1) 船舶向け標準型モジュールの開発

① MW級に対応するコンパクトかつ大出力化

- 船舶向けモジュールとして要求される仕様としては、船舶の耐用年数として一般的な 20～25 年に対応する長寿命であること、長時間の航行時負荷に対応する連続出力が可能であること、また、実運航におけるバンカリング（水素充填）の頻度は、数日に 1 回程度が望ましく、水素貯蔵量や燃費経済性の観点から、高効率であることが求められる。上記の要求事項及び、FC 船実証事業での燃料電池船 FS により明らかにした船舶搭載において要求される水素供給圧力、船舶電力系統との連携、設置スペース、メンテナンス等の要求事項に基づき、標準モジュールの基本仕様を決定した。
- 連続定格 200 kW、寿命 8 万時間、効率 50%-LHV 以上とするために要求される各補機やサブシステム（ブロワ、ポンプ、熱交換器、バルブ、DCDC コンバータ）の詳細仕様を検討し、決定した。また、コンパクト化に向けて、機器配置、構成、および配管レイアウトやフレームの詳細を決定し、試作機を作成した。
- 試作機の初期性能評価試験を実施し、200 kW 定格出力での連続運転性能を確認した。また、発電効率を評価し、定格で 50%-LHV、最高効率で 58%-LHV 確認した。また初期特性に基づいて寿命予測モデルの妥当性確認し、8 万時間の耐久性の見込みを得た。

② 船舶運転特性対応

- 連携実証事業の FS により燃料電池システムの応答性として、30 秒以内で 0～100% の出力変化が要求されることが分かった。また、水素供給圧力も比較的低压であることが求められる。この応答性に対応するための空気、燃料、冷却水系の各系統の機器制御方法や、DCDC コンバータの制御方法を開発した。特に低水素供給圧力への対応が必要となる水素圧力調整弁について、動作・制御方法を開発し、制御ドライバーの試作、試作モジュールとの組み合わせ試験を実施した。試作機にて、目標を上回る 10 秒以内での 0～100% の出力変化を達成し、また起動指令より発電開始までの起動時間についても目標の 60 秒以内を確認した。

③ 船舶向け複数台の連携制御

- 船舶における出力として必要となる MW クラスの出力に対応するため、複数台の標準モジュールと共通補機（放熱・冷却機器、換気機器、船舶との安全機能の取合い）から構成されるシステムの基本仕様を検討した。複数台のモジュールの発電出力、動作状態、安全機能をマネジメントする制御ユニット（FMU：Fuel Cell Management Unit）の詳細仕様を検討し、試作と動作確認を完了した。

④ 船舶環境対応

- FC 船実証事業コンソメンバーの日本海事協会殿と連携し、船舶向けモジュール及びモジュール内各機器に求められる船級認証のプロセスを確認した。燃料電池モジュール内の各機器につい

て、規則への準拠と、燃料電池用途への適合性を確認し、船舶向けモジュールの試作機に採用した。

- ・ 船舶規則に要求される振動、傾斜に対応するモジュール強度構造を検討し、試作機の設計に反映した。
- ・ 水素リークに対する安全性の確認に向けた換気流れシミュレーションを実施。試作機での試験によりシミュレーションの妥当性を確認した。

(2) 鉄道その他アプリケーション対応開発

- ・ 鉄道において要求される仕様を調査し、試作モジュールのサイズは鉄道床下に搭載可能な高さとした。また国内鉄道事業者へのヒアリングを実施し、海外向け車両や低床車両、車両床上設置の場合に要求されるサイズを明らかにした。
- ・ 2022 年度発行予定の燃料電池鉄道車両の規格の動向調査を実施した。国際規格の検討が ISO/IEC TC 9 にて進められており、情報入手と設計対応項目の確認を実施した。

(3) 燃料電池モジュールの耐久性と運転制御仕様の影響評価

- ・ 様々な使用条件に対応した燃料電池モジュールの耐久性について、PEFC 評価解析プラットフォームと材料提供を含めた評価方法の検討に向けて協議を実施した。本事業ではスタックの材料開発を対象としていないため、材料提供による評価は行わないが、情報共有・協議を継続し、データ提供に向けた検討を継続することとした。

3. 3 最終目標達成に向けたアプローチ (事業非継続のため割愛)

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

4. 1 本事業の成果まとめ

(1) 大型移動体に対応する燃料電池モジュールとして、船舶向けのモジュール開発を行い、初期特性の評価を完了した。

(2) 「高出力燃料電池搭載内航船舶の実用化に向けた実証」との連携により、船舶搭載において要求される仕様・取り合い条件を調査し、標準型モジュール仕様に反映した。

(3) 初期特性評価の結果、定置用並みの高効率と、連続定格発電性能を確認し、また 8 万時間の長寿命の見込みを得た。

(4) サイズに対しては課題があり、特に船用機器の採用により大型化した。FC 向けに開発が進む機器について船用規則・基準に対応する開発を行うことで、さらなる小型化を可能とする目途をつけた。



4. 2 今後の取組

(1) 2022 年 6 月にて本事業は終了

(2) 今後の燃料電池の多様化展開に向け、本事業の成果を活用する。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2021.12.23	2021-209482	燃料電池システム、制御装置、及び制御方法	東芝エネルギーシステムズ株式会社
2	2022.02.03	2022-015903	燃料電池システム	東芝エネルギーシステムズ株式会社
3	2022.03.04	2022-033867	燃料電池システム及び燃料電池システムの制御方法	東芝エネルギーシステムズ株式会社

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021年5月	東芝レビュー76巻3号 P31-35	水素社会実現に向けた燃料電池システムの最新技術	山下 恭平
2	2021年6月	(一財)大阪科学技術センター エネルギー技術対策委員会 燃料電池・FCH部会第271回定例研究会	燃料電池船の実用化に向けた取組状況	大橋 哲雄
3	2021年7月	2021年 NEDO のフォーラム	NEDO 燃料電池・水素プロジェクトレビュー2021	大橋 哲雄
4	2022年3月	技術開拓未来塾 2021-2022 第3回講座	水素エネルギーを活用したカーボンニュートラルに向けた取組	杉本 文彦
5	2022年3月	第18回国際水素・燃料電池展 [春] FC EXPO 2022 FC-3 水素・燃料電池展専門技術セミナー	純水素燃料電池システム開発の最新動向と今後の取組み	坂田 悦朗

以上

課題番号（管理番号）： PE05

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／ラジカル低減機能と燃料欠乏耐性を有するアノード触媒の研究開発」

実施者：国立大学法人山梨大学、国立大学法人岩手大学（再委託 国立大学法人弘前大学）、国立大学法人信州大学、国立大学法人東北大学

期間：2020年9月～2025年3月

1. 研究開発概要

低貴金属量で従来触媒と同等以上の高い水素酸化反応（HOR）活性を有し、ラジカル発生源となる H_2O_2 発生速度を抑制可能なアノード触媒と触媒層、燃料欠乏時の高電位耐性を有するアノード触媒と触媒層を研究開発する。具体的には、Pt合金/炭素担体に加え、酸化物粒子担体やナノシート助触媒を用いて H_2O_2 発生を抑制する。触媒の作用機構を電気化学的、触媒科学的、計算科学的に解明する。そして、これらが有効に機能してラジカル発生を抑制可能な触媒層を研究開発する。また、燃料欠乏時の高電位に耐性が高いPt合金/GCB、Pt合金/酸化物担体、Pt/IrO₂ナノシート等を開発し、触媒層の耐久性を確認する。さらに酸化抑制と高酸化状態からの回復法についても計算科学的に解明する。目標を達成した開発触媒は触媒メーカーと協力して量合成法を確立するとともに、協力機関の実機サイズに近いMEAでの評価を受けて有用性を実証する。本研究成果はFCV、バスやトラック等のHeavy-duty（HD）商用車、鉄道車両や定置用燃料電池等の市場拡大に貢献する。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

中間目標：高いHOR活性を維持し、 H_2O_2 抑制率が高い触媒と助触媒の開発指針を実験と計算科学で明確にする。また、電位ステップサイクル法等により、燃料欠乏耐性の高い触媒候補材料を明確にする。

最終目標：2030年以降の高性能・高耐久性の固体高分子形燃料電池に実装され得るアノード触媒を開発する。低貴金属量で高いHOR活性を維持しつつ、

1) ラジカル発生による電解質膜およびアイオノマーの化学分解を抑制して耐久性を向上させる H_2O_2 発生抑制機能を有するアノード触媒と触媒層、

2) 燃料欠乏時の高電位耐性を有するアノード触媒と触媒層を研究開発する。

そして、これら触媒の作用機構、劣化機構を電気化学的、触媒科学的、計算科学的に解明する。

目標を達成した開発触媒は触媒メーカーと協力して量合成法を確立するとともに、協力機関の実機サイズに近いMEAでの評価を受けて有用性の実証を行う。

従来のPt/Cと同等以上のHOR質量活性を有し、高い H_2O_2 発生抑制率、耐酸化性を同時に満足するアノード触媒は、これまでに研究開発されていなかった。他方、燃料欠乏時の深刻な劣化を回避するため、 O_2 発生能の高いIrO₂をアノードに添加し、炭素担体の酸化を抑制する研究例はあるが、高価なIrを多量に使用する難点があった。 H_2O_2 発生抑制と燃料欠乏耐性は、高耐久性が求められるHDトラックでも重要視されている。本研究開発では、作用機構、劣化機構を明確にし、触媒メーカーと連携して量合成法を確立する。

本研究開発のアノード触媒が備える新機能（ラジカル低減機能と燃料欠乏耐性）と研究開発目標は、産業界との議論を経て提案したものであり、ニーズに合致している。また、協力機関（自動車会社、システムメーカー、触媒メーカー）と定期的に技術協議を行い、研究の方向性を確認し、連携関係を構築している。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
過酸化水素発生抑制と高酸化耐性を有する Pt 合金触媒の合成と作用機構の解明 (山梨大学)	チャンネルフロー二重電極(CFDE)法により、PEFC実用温度域でのHOR質量活性、H ₂ O ₂ 抑制率と電位サイクル耐久性に対する合金組成、粒径、炭素担体の効果を明確にし、第一候補触媒をPEFC評価解析PFに提供する。	<ul style="list-style-type: none"> ・実用温度域でH₂O₂発生速度とHOR質量活性に対するPt粒径の効果を明らかにし、トレードオフ関係を打破する触媒開発の重要性を示した。 ・PtCo合金組成と炭素担体の効果を試験し、より優れたH₂O₂発生抑制を確認できた。 ・第一候補のPtCo/C_{HT}触媒を評価解析PFに提供し、in situ XAFSにより、Ptスキン構造の形成とH₂O₂発生抑制機構に関する新しい知見を得た。 	○	単セル加圧 OCV 試験で、電解質膜の耐久性向上に対する PtCo 合金組成と炭素担体効果を明らかにする。
	アノード触媒層の含水率を高く保ち、ラジカル捕捉能も有する酸化物ナノ粒子の効果を単セル加圧OCV試験で明らかにする。	化学的に安定で安価な酸化物ナノ粒子をアノード触媒層に加えることにより、低RHでのオーム抵抗の減少とI-V特性の大幅な向上を伴いつつ、電解質膜（PEM）の劣化を抑制できることを初めて見出し、特許出願した。	◎	酸化物ナノ粒子、炭化水素系アイオノマーとH ₂ O ₂ 発生抑制アノード触媒の相乗効果を明らかにする。
	CFDE法、0.02⇔1.5 V各10秒保持のアノード電位ステップサイクルで、PtCo/GCBの耐久性を市販Pt/GCBに対して定量的に示す。同様に、プロジェクト（PJ）内の開発触媒の耐久性を評価してフィードバックする。	<ul style="list-style-type: none"> ・CFDE法で燃料欠乏時の高電位を模擬した電位ステップサイクルにより、基準となる市販Pt/GCB触媒の諸特性の変化を明確にできた。 ・Pt_xCo/GAB（黒鉛化アセチレンブラック）触媒を合成し、物性解析した。 ・PJ内で開発したアノード触媒のH₂O₂発生速度、HOR活性をCFDE法共通試験し、優れたH₂O₂発生抑制と起動停止耐久性を確認できた。 	○	単セルでの燃料欠乏耐性試験を行い、温度と電流密度の効果を明らかにする。
高活性・燃料欠乏耐性の白金/酸化物担体触媒の開発と	高いHOR活性を維持しつつ H ₂ O ₂ 発生を抑制する白金/酸化物担体触媒の開発指針を示す。	単セルで市販c-Pt/C触媒と同等のHOR活性を示すPt/Ti ₄ O ₇ -C触媒を開発し、Ti ₄ O ₇ -C合成法を特許出願した。さらに、ラジカル捕捉機能を持つ新規複合酸化物を開発している。	○	Ti ₄ O ₇ -C 担体に白金合金を担持し、合金組成を最適化する。

作用機構の 解明 (岩手大学)	山梨大学のCFDE共通試験法で評価されたHOR質量活性・H ₂ O ₂ 抑制率・電位変動耐久性をもとに触媒を改良する。そして岩手大学にて小型MEAで発電性能を評価し、PEFC評価解析プラットフォームへ第一次候補触媒を提供する。	<ul style="list-style-type: none"> ・グラム単位でTi₄O₇-C担体を合成し、Ptを担持した触媒を山梨大学の共通試験に提供した。実用温度域で優れたH₂O₂発生抑制効果と市販Pt/C触媒と同等のHOR質量活性を併せ持ち、起動停止模擬の電位変動に対する耐久性も確認された。 ・この触媒を用いた単セル加圧OCV試験において、市販Pt/Cアノード触媒セルに比べ電解質膜の寿命が顕著に向上することを見出した。 	○	加圧 OCV 試験後の触媒を各種分光学的手法で評価し、電解質膜の寿命向上に支配的な要因・作用機構を解明する。
	MEAにおいて0.02⇔1.5 V各10秒保持のアノード電位ステップサイクルを実施し、高電位における白金/酸化物触媒の劣化機構を解明する。	<ul style="list-style-type: none"> ・加圧OCV条件での劣化試験で良好な耐性を示した触媒を用いたMEAで0.02⇔1.5 V各10秒保持のアノード電位ステップサイクルを実施予定であり、すでに検討を始めている。 ・単セルでの水素欠乏耐性を評価するため、触媒を協力機関に提供した。 	○	電位ステップサイクル後の触媒を各種分光学的手法で評価し、劣化機構を解明する。
劣化耐性に優れた高活性・低白金複合触媒の開発とその作用・劣化機構の解明 (信州大学)	透過O ₂ と最も反応しやすいOPD水素の形成を抑制する水素スピルオーバー助触媒を検討し、HOR質量活性、H ₂ O ₂ 抑制率と電位サイクル耐久性に効果を示す助触媒候補を挙げる。	<ul style="list-style-type: none"> ・WO_x/Pt回転電極を用い、H_{ad}のスピルオーバー助触媒効果を確認できた。 ・WO₃微粒子を市販c-Pt/Cに微量添加したWO₃-Pt/CをRRDE法で評価し、H₂O₂発生抑制を確認できた。 ・この触媒は山梨大学の共通試験において、80℃で優れたH₂O₂発生抑制とc-Pt/C触媒と同等のHOR質量活性を併せ持ち、起動停止模擬の電位変動に対する耐久性も確認された。 	○	WO _x の粒子サイズや形態に着目し、H ₂ O ₂ 発生抑制アノード助触媒の効果を明らかにする。量合成してMEAでの性能を確認する。
	0.02⇔1.5 V各10秒保持の電位ステップサイクルで、IrO ₂ ナノ構造を含む開発触媒の耐久性を市販Pt/Cに対して定量的に示す。	<ul style="list-style-type: none"> ・単セルの燃料欠乏を模擬した定電流印加・半電池試験法を確立した。市販c-Pt/CへのIrO₂(ns)(ナノシート)添加により異常電位上昇を抑制できること(転極耐性)を明らかにし、特許出願した。 ・IrO₂(ns)-Pt/Cの1 gバッチ合成法を確立した。協力機関(システムメーカー)での単セル燃料欠乏耐性試験でPtの10%未満のIr添加でアノードの電位上昇を顕著に抑制できた。 	◎	小型化したIrO ₂ ナノシートを用い、更なるIr量の低減を目指す。また、助触媒の存在形態(Ptを覆わない方法)を検討し、性能向上を検討する。協力機関の石福金属興業への技術移転を進める。

計算科学に基づくOHラジカルの発生及び酸化劣化を抑制可能なアノード触媒の理論的設計 (東北大学)	純Pt及びPt合金ナノ粒子と担体種の組み合わせの中から6種類以上の触媒モデルを選択し、酸素の吸着サイト及び吸着酸素からのH ₂ O ₂ 生成に対する反応経路を解明する。	Pt、Pt/SnO ₂ 、Pt/RuO ₂ 、Pt/TiO ₂ 、Pt/Ti ₄ O ₇ 、PtCo/SnO ₂ の6種類を選択した。酸化物担体上のPtに水素原子を吸着させると、Pt単味に比べてH ₂ O ₂ 生成反応に対する活性化エネルギーが増加し、H ₂ O ₂ 生成反応速度が抑制されることを第一原理計算により初めて示すことができた。	○	これまでに検討した触媒を含め12種類の触媒モデルにおける計算結果を基に、H ₂ O ₂ 生成を抑制可能な触媒の設計指針を提案する。
	純Pt及びPt合金ナノ粒子の中から3種類以上のモデルを選択し、燃料欠乏時の水によるナノ粒子の酸化反応と、復帰時の水素による還元反応における反応経路を解明する。	純Ptナノ粒子よりもPtスキん/PtCo合金ナノ粒子及びPtスキん/PtNi合金ナノ粒子の方がH ₂ Oによる酸化反応に対して高い活性化エネルギーを持つことを第一原理計算により示した。Co及びNiによる合金化は燃料欠乏状態におけるPtナノ粒子触媒の酸化耐性向上に有効と考えられる。	○	上記の課題で解明される触媒モデルの水による酸化耐性を検討し、H ₂ O ₂ 生成を抑制可能かつ高酸化耐性を有する触媒構造の設計指針を提案する。

3.2 研究開発の詳細

(1) H₂O₂発生抑制率の高い第一候補PtCo/C_{HT}触媒は、山梨大学と触媒メーカー・TKKが共同で開発・量合成された。評価解析PFでのin situ XAFS法解析により、市販c-Pt/C触媒に比べ、この触媒への水素吸着が弱められてH₂O₂発生が抑制される機構が初めて明らかにされた(図1)。さらに、同じアノード触媒を用いた単セルの低加湿(30%RH, 90℃)加圧OCV試験が評価解析PFで行われ、2000時間を経過しても電解質膜が殆ど劣化しない(c-Pt/Cアノード触媒での電解質寿命の400倍以上)という従来にない優れた効果が確認できた。これらの成果は、大学、触媒メーカーと評価解析PFの連携によって得られた。

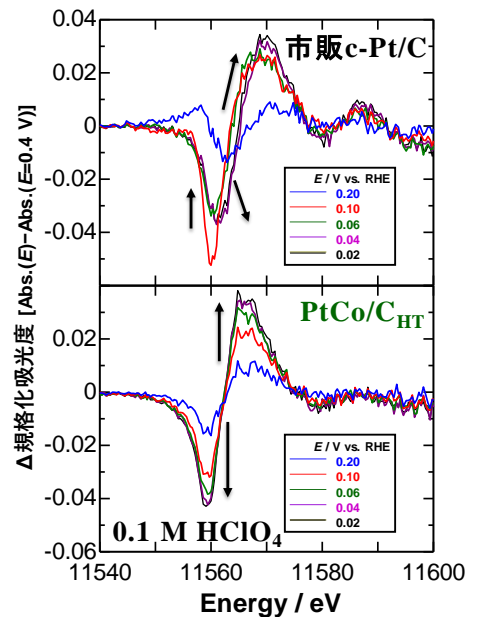


図1 Pt L₃端のin situ XAFS差スペクトル。c-Pt/Cの低電位側で、on-top吸着H_{ad}に帰属される11563 eV付近のピーク(斜め下向き矢印)がPtCo/C_{HT}では見られない。

(2) 化学的に安定で安価な酸化物 MO_x ナノ粒子をc-Pt/Cアノード触媒層に加えることにより、加圧OCV試験での電解質膜の寿命が約3倍に向上することを初めて見出した(図2)。図3に示すように、低加湿(アノード20%RH/カソード40%RH)運転で、オーム抵抗の減少とI-V特性の大幅な向上が確認された。高電位域での質量活性が向上していることから、このような性能向上は、 MO_x による含水率向上による触媒有効利用率の向上によるものと考えられた。これまでのラジカル捕捉剤とは異なり、電解質寿命と出力性能の両立が可能になった(特許出願済み)。

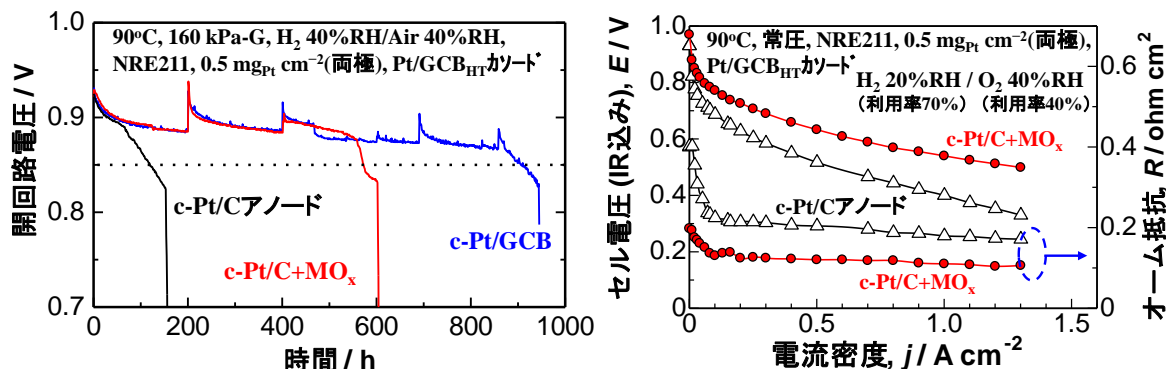


図2 種々のアノード触媒を用いた単セルのOCVの経時変化. 図3 MO_x 添加によるI-V特性の向上.

他方、カーボンブラックC担体に替えて、黒鉛化度の高いGCB担体を用いる(市販c-Pt/GCB)ことにより、加圧OCV試験でのPEMの寿命が約5倍に向上した(図2)。表面の酸素官能基の減少による H_2O_2 発生抑制と考えられる。今後、PtCo合金および MO_x 添加との相乗効果を明らかにする。

(3) グラム単位で Ti_4O_7 -C担体を合成する簡便な方法を確立し、特許出願した。Ptを担持したPt/ Ti_4O_7 -Cをアノード触媒に用いた単セルにおいて、c-Pt/C触媒と同等以上のHOR活性と加圧OCV試験で4倍以上の電解質膜の寿命を得た。山梨大学の共通試験では、80℃で優れた H_2O_2 発生抑制効果と起動停止模擬の電位変動に対する耐久性も確認された。岩手大学でのX線光電子分光法(XPS)により、Ptと Ti_4O_7 担体間の強い相互作用を示唆するPt 4fコアレベルシフトが観測された(図4)。

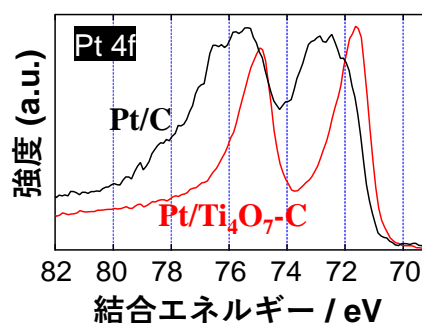


図4 Pt/ Ti_4O_7 -C触媒のXPS.

Ptナノ粒子を Ti_4O_7 などのいくつかの酸化物に担持した触媒上では、吸着水素と O_2 による H_2O_2 生成に対する活性化エネルギーが増加して H_2O_2 生成反応速度が抑制されることが、東北大学での第一原理計算により初めて示された(図5)。これは上記の実験結果を良く支持している。

Ti 系酸化物を担体に用いると電解質膜の化学劣化が加速されることが米国で報告されていたが、Ptと担体間の相互作用によって、劣化を抑制できることを実験的、計算科学的に明確に示すことができた。

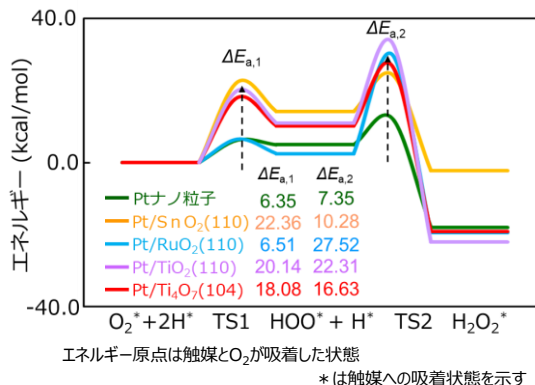


図5 PtおよびPt/酸化物の H_2O_2 生成反応のエネルギープロファイル.

(4) 水から酸素発生する活性の高い $\text{IrO}_2(\text{ns})$ を添加した市販 c-Pt/C （特許出願済み）を協力機関（システムメーカー）に提供して単セルでの燃料欠乏耐性試験を行った。図6に示すように、 c-Pt/C のみでは、転極直後にアノード電位が急上昇して50秒後には3 Vに達した。その後測定したHOR性能は大きく劣化していた。他方、Pt質量の10%未満のIr添加でアノード電位が酸素発生電位（約1.5 V）に約180秒間維持され、電位上昇を顕著に抑制できた。また、転極後のHOR性能低下も抑制されていた。この IrO_2 添加量は、従来報告されていた量（ $\text{Ir/Pt} > 0.2$ ）の1/2以下であり、 $\text{IrO}_2(\text{ns})$ の小型化によってIr量のさらなる削減が可能になる。この触媒は山梨大学での共通試験において、80°Cで優れた H_2O_2 発生抑制と c-Pt/C 触媒と同等のHOR質量活性を併せ持ち、起動停止模擬の電位変動に対する耐久性も確認された。2022年2月から、 $\text{IrO}_2(\text{ns})$ の量合成を担当する石福金属興業が協力機関に加わり、研究の加速が期待できる。

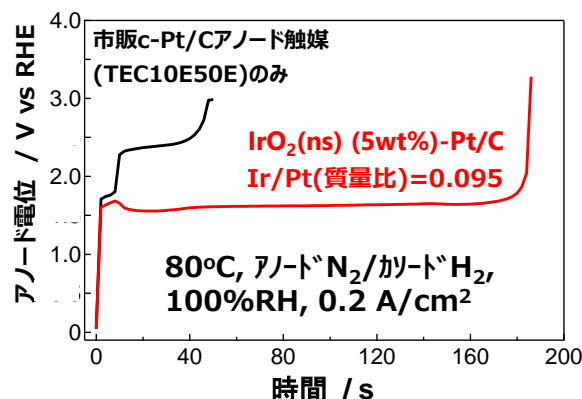


図6 単セル燃料欠乏耐性試験。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

- (1) 触媒メーカーと協力した触媒、助触媒の量合成、PJ内での半電池共通試験と、協力機関、評価解析PF等での単セル試験結果のフィードバックの迅速化により最終目標達成のみでなく、成果の実用化と事業化を加速できる。
- (2) PJ内の実験と計算科学から導き出された触媒コンセプト（作用機構と劣化機構を明確にした新触媒）を融合し、高いHOR活性、電解質膜寿命向上($\times 2$)、燃料欠乏耐性($\times 2$)を全て備えた触媒層を有する単セルで性能を実証する。

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) 本PJ開始時には、触媒メーカー（TKK、ジュークス）、システムメーカー（東芝エネルギーシステムズ、パナソニック）が協力機関として参画した。2019年度までのNEDO-PJで、山梨大学とTKKは H_2O_2 発生抑制 $\text{PtCo/C}_{\text{HT}}$ 触媒を共同で開発した。岩手大学はジュークスとカソード触媒の共同研究を行ってきた。本PJで定期的開催する技術協議連絡会には、全参画機関、NEDOの担当主査に加え、自動車会社（トヨタ自動車、本田技術研究所）、上記協力機関からの登録委員等が参加し、NDA締結のもとで活発に意見交換してきた。信州大学と岩手大学の開発触媒は協力機関の東芝エネルギーシステムズに提供され、単セル転極耐性試験において大きな成果を得ている。
- (2) 燃料欠乏耐性向上助触媒として極めて有望な信州大学の IrO_2 ナノシートの量合成を担当する石福金属興業が協力機関に加わった。技術移転を促進して、評価解析PFおよび協力機関での実サイズセルへの触媒提供を加速する。2022年2月からは、自動車会社（トヨタ自動車、本田技術研究所）が協力機関に加わった。より実用的なデータ取得の加速が期待できる。
- (3) 最終目標を達成した開発触媒は触媒メーカーと協力して量合成法を確立するとともに、協力機関の実機サイズに近いMEAでの評価を受けて有用性の実証を行うことにより、スムーズな実用化に繋げる。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2021/9/8	特願 2021- 146229	導電性チタン酸化物、金属担持導電性チタン酸化物、膜電極接合体、固体高分子形燃料電池、導電性チタン酸化物の製造方法、及び金属担持導電性チタン酸化物の製造方法	岩手大学
2	2021/11/28	特願 2021- 192613	酸化イリジウムナノシートを助触媒として含む電極触媒	信州大学
3	2022/6/1	特願 2022- 089901	燃料電池用膜電極接合体、燃料電池セル、及び燃料電池用膜電極接合体の製造方法	山梨大学

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021年6月	水素エネルギーシステム [水素エネルギー協会 会誌]	新規アノード触媒の研究開発：電解質膜の劣化抑制機能、高い水素酸化活性、耐CO被毒性と耐酸化性の発現	内田裕之
2	2021年11月	Chemical Communications	Inexpensive gram scale synthesis of porous Ti_4O_7 for high performance polymer electrolyte fuel cell electrodes	千坂光陽, 長野和佳, Byambasuren Delgertsetseg, 竹口竜弥
3	2022年1月	Journal of the Electrochemical Society	Particle size effect of Pt anode catalysts for fuel cells on H_2O_2 production rate and H_2 oxidation activity at 20 to 80 °C	内田裕之, Guoyu Shi, Muhamma Imran, Donald A. Tryk
4	2021年3月	第88回電気化学会	Pt/C 水素アノード触媒の過酸化水素発生速度に対する粒径と温度の効果	内田裕之, Guoyu Shi, Muhammad Imran, D. A. Tryk
5	2021年3月	第143回表面技術協会	高性能・高耐久燃料電池：カソードおよびアノード触媒の研究開発 (特別講演)	内田裕之
6	2021年4月	ANSCSE24	Effect of SnO_2 Support on Degradation of Pt Anode in Polymer Electrolyte Fuel Cell: First-Principles Study (招待講演)	Nobuki Ozawa, Kento Yoshida, Momoji Kubo

7	2021年9月	第128回触媒討論会	高電位状態の固体高分子形燃料電池アノードにおけるPt合金ナノ粒子触媒の酸化プロセスの第一原理計算に基づく解析	尾澤伸樹, 吉田賢統, 久保百司
8	2021年12月	第62回電池討論会	Half-cell study of IrO ₂ nanosheet-Pt/C as a cell reversal tolerant anode	Ting-Wei Huang, 杉本 渉
9	2022年3月	電気化学会第89回大会	Effect of Pt-loading and carbon support of Pt/C anode catalysts on the durability of Nafion electrolyte membrane	Mohamed R. Berber, Muhammad Imran, 内田裕之
10	2022年3月	電気化学会第89回大会	PtCo/C水素アノード触媒の過酸化水素発生抑制機構の解析	内田裕之, Muhammad Imran (山梨大学), 松本匡史, 荒尾正純, 今井英人 (日産アーク)
11	2022年3月	日本化学会第102春季年会	燃料電池用電極触媒の現状と課題 (招待講演)	内田裕之
12	2022年3月	電気化学会第89回大会	固体高分子形燃料電池アノードにおけるPtナノ粒子/酸化物複合触媒におけるH ₂ O ₂ 生成反応の第一原理計算による検討	尾澤伸樹, 吉田賢統, 久保百司
13	2022年9月	第130回触媒討論会	第一原理計算を用いた燃料欠乏状態の固体高分子形燃料電池アノードにおけるPt合金ナノ粒子触媒の酸化耐性の検討	尾澤伸樹, 加納諒也, 久保百司
14	2022年9月	第130回触媒討論会	IrO ₂ ナノシートを微量添加したPt/Cの転極耐性特性	杉本 渉, Ting-Wei Huang
15	2021年11月	プレスリリース	【弘大・岩手大技術開発】燃料電池新素材 大量・安価に	弘前大学, 岩手大学
16	2021年11月	東奥日報	【弘大・岩手大技術開発】燃料電池新素材 大量・安価に	弘前大学, 岩手大学
17	2021年11月	陸奥新報	燃料電池車に新触媒技術	弘前大学, 岩手大学
18	2021年6月	人とくるまのテクノロジー展 2021 名古屋	燃料電池の劣化を大幅に抑制する白金-コバルト合金水素極触媒	山梨大学, 田中貴金属工業

課題番号（管理番号）： PE06

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／高耐久性を目指したラジカルエンチャーの研究開発」

実施者： 上智学院

期間： 2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

カソードからクロスオーバーした酸素分子が、アノードで還元する際に過酸化水素(H_2O_2)を副生し、不純物等によりその H_2O_2 が分解して OH ラジカルが生成する。OH ラジカルは、活性酸素と呼ばれる分子種の中で最も反応性が高く、最も酸化力が強い。そのために燃料電池自動車に用いられている電解質膜の一部には、OH ラジカルに対する電解質膜の耐久性を高めるために、セリウムイオンがラジカルエンチャーとして添加されている。(アノード触媒層側に酸化セリウムを導入している場合もある) これにより数十万 km の走行が可能になっているが、発電中の水の移動に伴うセリウムイオンの移動が併発し、アノード付近のラジカルエンチャー濃度が減少し、結果的に電解質膜の劣化を誘発している。現在では、ラジカルエンチャーの添加量を増加させることでこの問題に対処しているが、根本的な解決になっておらず、コストと耐久性の両面で重要な課題となっている。

本研究はこの課題を解決するために立案されたものであり、現行のラジカルエンチャーの移動機構とラジカルエンチャー機構を解明するとともに、移動抑制技術を構築することを目的としている。また、新たな低分子、高分子ラジカルエンチャー、及び低燃料ガス透過性技術を開発することでさらなる電解質材料の高耐久性化を図る。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

従来用いられているセリウム系のラジカルエンチャーの多くは水溶性であるため、燃料電池 (FC) 起動時の水輸送にともないカソード側に移動する。これにより電解質材料の劣化が加速され、かつセリウムイオンによる電解質膜の性能低下、触媒被毒による高出力化を妨げている可能性がある。そこで本研究では、基礎的なラジカル劣化機構解明から劣化抑制の新技术の確立により、未だ未成熟なラジカルエンチャー技術を構築する。中間目標値に関しては、関心表明を頂いた企業との相談上、以下のように決定した。

○中間目標 (2022年度6月)

FC 起動時にセリウムイオンの移動速度を 50%低減する技術を開発する。本研究では、最初の二年間で従来系であるセリウム系ラジカルエンチャーの移動機構の解析と移動抑制技術を開発し、またイオン性ではない新規な有機低分子のラジカルエンチャーの開発に着手する。

目標の達成度を評価するために FC の性能・耐久性で定量的に評価するのは長期間を要する。そこで、本研究で開発するラジカルエンチャーの移動量測定の手法を用いて、中間目標の達成度を評価する。また、ラジカルエンチャーの効果は、OCV 耐久性試験を用いて比較的短期間で評価する。

○最終目標 (参考) (2024年度)

FC 作動時にラジカルエンチャーの移動がなく、かつその使用量を従来の使用量に対して 25%削減可能にする。本研究におけるラジカルエンチャーの研究開発単独ではなく、他の燃料電池材料の開発研究との協調により、2018 年度に提示された NEDO 燃料電池・水素技術開発ロードマップの目標値に準拠すべきと考えた。したがって、ラジカルエンチャーの技術開発のみで、ロードマップの 2030 年度頃の目標値を達成す

るのではなく、本技術開発によって電解質材料の耐久性の向上とセリウムイオンの被毒による出力低下を抑制することで、ロードマップの目標値達成の一つの手段として貢献したいと考えた。

上述ように、他の開発研究との協調により、2024 年度末に最大負荷点 0.6 V 以上、耐用年数 15 年以上を実現しようとしているので、本研究内でそれを評価することは現実的ではないと考えている。そのため、ラジカルエンチャーの研究開発の面だけで評価が可能で、ラジカルエンチャーの移動を 0 として、かつセリウムイオンなど高出力化を妨げる成分を 0 としたラジカルエンチャーを開発することを具体的な評価基準としたい。さらに、低コスト化等の観点から現行のラジカルエンチャーの使用量に対して 25%の削減を目指す。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
セリウム系ラジカルエンチャーの移動解析と移動抑制技術の構築	FC 起動時にセリウムイオンの移動速度を 50% 低減する技術を開発する。	<ul style="list-style-type: none"> ・膜面方向のセリウムイオン移動速度を 50% 低減することができた。 ・リン酸ジルコニウム系ラジカルエンチャーのクエンチ効果を OCV 耐久性試験で評価し、耐久性の向上を確認した。 ・電子線プローブマイクロアナライザーではセリウムイオンの移動速度を測定できなかった。 	○	リン酸ジルコニウムの極性基、疎水性、層間距離と移動抑制効果の関係を検証することで、移動速度 75% 低減の達成を実現する。移動現象の測定に関しては、引き続き評価解析プラットフォームと連携し、膜厚方向の移動挙動について検証を行う。
新規な低分子ラジカルエンチャーと酸素透過抑制技術の開発	<ul style="list-style-type: none"> ・新規な低分子ラジカルエンチャーの一次評価（クエンチ効果の有無）を行う。 ・フラーレン化合物を中心とした新規な低分子ラジカルエンチャーを評価解析プラットフォームに提出する。 	<ul style="list-style-type: none"> ・フラーレン系ラジカルエンチャーの合成を行った。 ・フラーレン系ラジカルエンチャーを用いた多層化電解質膜を作成し、そのガス透過性と電気化学特性を評価した。 ・多層化膜の初期的な耐久性試験(フェントン試験)を開始した。 	○	セリウムイオンを用いた有機錯体やホスホン酸基を有する化合物の合成と評価を行う。また、Nafion 膜に対して新規ラジカルエンチャーを相溶した炭化水素系電解質を多層化することで、クエンチ効果と燃料ガス透過性の両方の低減を図る。
ラジカルエンチ能を有する高分子電解質の開発	ホスホン酸基等を有する炭化水素系電解質材料の合成を検討する。	<ul style="list-style-type: none"> ・ホスホニウム基を有する高分子材料の合成を行った。 ・ポリフェノール系高分子材料の合成に成功し、同 	○	電解質材料との複合化、または電解質材料に上記項目で見出した低分子クエンチャーの導入を図る。また、得

		定とラジカル濃度の測定を行った。		られた材料を用いた MEA を作成し、OCV 耐久性試験を行う。
--	--	------------------	--	----------------------------------

3.2 研究開発の詳細

(1) セリウム系ラジカルエンチャーの移動解析と移動抑制技術の構築

a. In-situ 測定と定量化

評価解析プラットフォーム(PF)にラジカルエンチャー移動抑制剤を導入した MEA を提出して、電子線プローブマイクロアナライザーによるセリウムイオンの移動度測定を実施した。しかし、セリウムイオンに対する感度が低く、通常の使用量より高濃度 (6→24 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$)の試料においても、セリウムイオンの移動速度を測定できなかった。現在は、より感度が高い放射光での測定を実施している。評価解析 PF への依頼に並行して、本学において SEM-EDX(エネルギー分散型 X 線分光装置) と ESCA(X 線光電子分析装置)によるセリウムイオンの検出測定を行ったが、同様に移動速度の定量には至らなかった。

以上の結果をもとに、測定用のセルを作成し、各種ラジカルエンチャーをアノード触媒層中に導入した擬似 MEA 中のセリウムイオンの移動 (Nafion 膜面方向の移動) を、顕微蛍光 X 線(XRF)を用いて行った。加湿した窒素雰囲気下では比較試料とした酸化セリウム (CeO_2) からのセリウムイオンの移動が観察されず、酸化セリウムのみ移動挙動が異なることが分かった。水素雰囲気下にして、水素ポンプ方式における各種ラジカルエンチャーの移動解析を行った結果、全ての試料において移動が観察された。移動速度は CeO_2 :1.58 mm/h、ZP-Ce:1.13 mm/h、NZP-Ce:0.71 mm/h となった。また、顕微 XRF におけるセリウムイオンの検出強度からセリウムイオンの移動量が、リン酸ジルコニウム系(ZP-Ce と NZP-Ce)では酸化セリウムの 1/2 程度あることが分かった。以上により、膜にイオン交換したセリウムイオンより移動速度が遅い酸化セリウムを比較試料としても、リン酸ジルコニウム系は移動速度と移動量の低減が可能であり、NZP-Ce においては中間目標値である移動速度 50%低減を達成した。

b. ラジカルエンチャーの移動抑制技術

セリウムイオン濃度(6 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$)が同じになるようにアノード触媒層に各種ラジカルエンチャーを含有した MEA を作成し、その OCV 耐久性試験を行った。リン酸ジルコニウム系の移動抑制剤を用いた MEA では、いずれの試料においても劣化抑制効果が観察された。その中で、ZP-Ce と NZP-Ce は 500 時間以上の耐久性が示され、既存のラジカルエンチャーである酸化セリウムより劣化抑制効果が高いことが分かった。

OCV 耐久性試験中の I-V、CV、LSV、排水フッ素イオン濃度測定においても、上述の結果と一致した。例えば、LSV 測定においては、酸化セリウムをクエンチャーに用いた MEA では、時間とともに僅かな電流値の上昇が観察され、340 時間後から急激な電流値の上昇が観察され、450 時間では破膜に近い状況を示した。一方、リン酸ジルコニウムの系においては、試料間の差は無視できる程度であり、いずれも初期電流値を維持した。その結果、500 時間まで膜劣化の兆候は観察されなかった。

このようにリン酸ジルコニウムによるラジカルエンチャーの移動抑制を実証したのは世界初であり、かつアノード触媒層に添加することで電解質膜の劣化抑制効果があることをはじめて見出した。

(2) 新規な低分子ラジカルエンチャーと酸素透過抑制技術の開発

新規有機低分子クエンチャーとして、フラレノールの検討を行った。フラレンと発煙硫酸を反応させて Cyclo sulfated fullerene (CFS) を得て、これを加水分解することでフラレノールを合成した。水酸基の導入量は約 12 であった。電解質膜の質量に対して 10wt.%のフラレノールを Nafion 211 膜にスプレー塗布して、複合膜を得た。複合膜のフェントン試験では、Nafion 211 膜と比較すると複合膜の質量減少が 1 / 3 程度に抑制され、フラレノールがラジカルクエンチ能を有していることがわかった。

リン酸ジルコニウム系ラジカルクエンチャーと同様に、初期的な OCV 耐久性試験を行った。クエンチャーを全く含まない MEA と比較すると、耐久性が維持されており、このような有機低分子化合物においてもラジカルクエンチ能があることが示された。フラレノールのラジカルクエンチ能を MEA による OCV 耐久性試験で検証した例はほとんどなく、今後、新規有機系低分子のラジカルクエンチャー開発に大きく貢献する知見と考える。

(3) ラジカルクエンチ能を有する高分子電解質の開発

ラジカルクエンチ効果が期待できるホスホニウム基を有する電解質材料の合成に着手した。成膜可能な新規電解質材料の合成に成功し、電気化学特性評価とプロトニックイオン液体との複合化を行った。これらの材料群は高分子量化されているために燃料電池作動中の移動がなく、かつプロトン伝導性も付与することが可能である。また、スルホ基と比較すると耐熱性が高く、高温無加湿運転の電解質材料としても期待できる。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) セリウム系ラジカルクエンチャーの移動解析と移動抑制技術の構築

現状、一般的なリン酸ジルコニウムを用いることで中間目標である膜面方向の移動制御(50%低減)は達成できている。さらに提案しているリン酸ジルコニウム物質群を検討し、リン酸ジルコニウムの極性基、疎水性、層間距離と移動抑制効果の関係を検証することで、移動速度 75%低減の達成を実現する。移動現象の測定に関しては、引き続き評価解析プラットフォームと連携し、膜厚方向の移動挙動について検証を行う。

移動抑制の実証と並行して、OCV 耐久性試験と電気化学的評価を行っており、明確に劣化抑制の効果を実証している。移動速度と OCV 値の変化から予測される劣化速度も、移動速度の目標値と同様に抑制できると予想されることから、十分に最終目標を達成できると考えている。

(2) 新規な低分子ラジカルクエンチャーと酸素透過抑制技術の開発

計画通り、フラレン系の新規ラジカルクエンチャーの合成を行い、初期評価を開始している。今後は、これらの材料群に加えて、セリウムイオンを用いた有機錯体やホスホン酸基を有する化合物の合成と評価を行う。また、Nafion 膜に対して新規ラジカルクエンチャーを相溶した炭化水素系電解質を多層化することで、クエンチ効果の向上と燃料ガス透過性の低減を図る。

有機系のラジカルクエンチャーを開発することで、電解質材料との相溶性が向上し、かつ水による溶解や分解の問題を回避できる。そのため、将来的にはラジカルクエンチャーの移動をなくすことが可能と考えている。炭化水素系電解質材料の低燃料ガス透過性は、すでに実証済みであるので、Nafion 膜への多層化によりガス透過性の低減による OH ラジカル発生の低減が図れる。初期的な評価により、安定ラジカルを形成することができるフェノール類はフェントン試験でそのラジカルクエンチ能が実証されている。これらの新規ラジカルクエンチャーは電解質材料中に分子レベルで分散することが可能である。そのため、微

粒子が物理的に分散している CeO₂ のような非水溶性のセリウム系ラジカルクエンチャーより、反応表面積が広く、高いクエンチ能が期待できる。

(3) ラジカルクエンチ能を有する高分子電解質の開発

安定ラジカルを有するクエンチャー高分子、リン酸基やホスホニウム基を有する高分子材料の合成に着手した。今後は、電解質材料との複合化、または電解質材料に課題(2)で見出した低分子クエンチャーの導入を図る。また、得られた高分子材料を用いた OCV 耐久性試験を行い、クエンチ効果と耐久性向上の検証を行う。

課題(2)で得られた知見をもとに、低分子材料を高分子量化、またはそのユニットを従来の電解質材料に導入するので、目標である移動のないクエンチャー材料の開発は可能と考える。従来の電解質材料、特にフッ素系電解質材料に低分子のラジカルクエンチャーを導入することは困難ではあるが、フッ素系電解質材料に相溶性の高い、クエンチャー高分子を合成し複合化することは可能である。一方で、炭化水素系電解質材料に関しては、合成の自由度が高いため、十分にクエンチ能を有する高分子電解質の合成は可能である。また、ラジカルクエンチャー部位を電解質材料に導入するので、ラジカル発生部位に最も近く、分散性も高くなることから、従来系よりクエンチ効果が高いと期待できる。さらに、フッ素系電解質材料の 1/100 程度のガス透過性を示す炭化水素系電解質材料を本系で利用できれば、ラジカル発生の抑制にもなるので相乗効果が期待できる。

以上のことから上記の 3 つの研究課題を通したアプローチによって、最終目標を達成できると考えている。

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

本研究開発は、①セリウム系ラジカルクエンチャーの移動解析と移動抑制技術の構築、②新規な低分子ラジカルクエンチャーと酸素透過抑制技術の開発、③ラジカルクエンチ能を有する高分子電解質の開発の 3 つのステップで計画しているため、それぞれの段階で実用化・事業化が可能と考えている。いずれの段階でも、現行の燃料電池をもとに計画されているため、MEA 全体や各部材を再検討する必要がなく、実施が可能な内容になっている。

ラジカルクエンチャー、移動防止剤等の添加剤、多層膜剤などの製品、または電解質膜の製造プロセス技術が実用化の対象となる。現在までは、関心表明企業との連携のみであったが、今後は定置用燃料電池を扱う企業とも議論を進めたい。

現状のペースで研究が推進し、かつ連携企業や関心表明企業と密に連携を続ければ、スケジュールどおりに実用化が進むと考えている。大学から企業への橋渡しは、関心表明企業を通して行うことで、より短期間でスムーズに進むと期待している。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

－研究発表・講演、文献等、その他－

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2020年 3月	RSC Advances	Synthesis and investigation of sulfonated poly (p-phenylene)- based ionomers with precisely controlled ion exchange capacity for use as polymer electrolyte membranes	M. Yoshida-Hirahara, S. Takahashi, M. Yoshizawa-Fujita, Y. Takeoka, M. Rikukawa
2	2020年 5月	第69回高分子学会 年次大会	ホスホニウム基を有するポリフェニレン系マルチブロック共重合体の合成と評価(I) -重合に及ぼすホスホニウム基の影響-	小松優太、藤田正博、竹岡裕子、陸川政弘
3	2020年 5月	第69回高分子学会 年次大会	超強酸基を有するポリフェニレン系ブロック共重合体の合成と諸特性評価(I) -合成経路の確立と諸特性評価-	篠原裕空、藤田正博、竹岡裕子、陸川政弘
4	2020年 6月	グリーンエネルギー	高分子電解質形燃料電池の電解質材料における超高速プロトン輸送と可視化の実現	陸川政弘
5	2021年 9月	第70回高分子討論 会	カチオン性 n 共役系高分子を用いた生体分子認識(II) -核酸塩基選択性と細胞毒性-	上山華穂・藤田正博・竹岡裕子・陸川政弘
6	2021年 9月	第70回高分子討論 会	柔粘性イオン結晶を用いた固体電解質の作製と評価	藤田正博・山田大雅・山口駿・楊之端・竹岡裕子・陸川政弘
7	2022年 3月	モビリティ用電池の化学	炭化水素系電解質材料	陸川政弘
8	2022年 5月	第71回高分子学会 年次大会	高分子電解質形燃料電池用ラジカルエンチャーの創製(I) -フラレノール類の評価-	鬼木直土・藤田正博・竹岡裕子・陸川政弘
9	2022年 5月	第71回高分子学会 年次大会	ジブロック共重合体を用いたプロトン-電子両伝導体の創製(I) -合成条件の検討-	田中ななみ・藤田正博・竹岡裕子・陸川政弘

課題番号（管理番号）： PE07

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／配位高分子を用いた中温作動燃料電池の研究開発」

実施者：株式会社デンソー（再委託先：京都大学）

期間：2020年9月～2022年6月

1. 研究開発概要

燃料電池普及を促進するためには、冷却機器の小型化、水素燃料の不純物許容量増大などの利点に繋がるセル動作温度の高温化（100℃超の中温域での燃料電池作動）が強く求められている。本研究では、従来の中温作動燃料電池であるリン酸系プロトン伝導体を用いた中温作動燃料電池の課題である性能向上（プロトン伝導率、液水耐性）や電極触媒の被毒による発電性能低下を回避し、高性能かつ高耐久な燃料電池を実現するために、配位高分子プロトン伝導体を用いた新規な中温作動燃料電池の開発を目的とし、そのための要素技術の研究開発を行う。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

本プロジェクトの最終目標は、100℃超の中温かつ無加湿作動環境にて0.7V-3A/cm²の発電性能の達成を目指す。その達成に向けて、電解質膜抵抗、電極抵抗のそれぞれの影響因子に対して目標性能を達成するための各物性目標を割り付ける。具体的には、これらの影響因子と発電性能の相関関係から目標の発電性能を外挿し、必要な影響因子の物性値を目標値とする。各影響因子の評価は、FCCJプロトコルなどで標準化された手法で実施しつつ、これらの各影響因子の目標達成への具体的施策を立案する。

中間特性としては、上記各影響因子の物性値目標達成に向けた取り組みをもとに、従来PEFCと同程度の発電特性（0.6V-2A/cm²）相当を1000時間超の耐久性を確保したうえで、100℃超の中温かつ無加湿作動にて達成できる材料コンセプトの明確化を目標とする。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
(1) 影響因子の目標設定	最終目標 0.7V-3A/cm ² を達成するための各物性目標値の設計と実現案の立案	100℃超の中温作動に特化した各物性評価環境の立上げを完了し、種々開発材の物性データを評価。	△	材料シミュレーションと機械学習の活用により材料設計を高速化、高精度化し、各目標値に対する物性値を明確化する。
(2) 配位高分子プロトン伝導体	120℃伝導率： 100mS/cm(電解質) 30mS/cm(アイオノマー) 耐水性：使用環境下で不溶	種々の材料検討から伝導率・耐水性を個別に目標達成可能としたが、一方で両立は未達成。	△	

	薄膜化：膜厚 10 μ m で MEA 化	樹脂複合時の伝導体の体積分率低下による伝導率低下を考慮し、低下分を底上げ可能な支持体調査を一通り完了。	△	最適化したプロトン伝導体材料と支持体の適合。
(3) 発電性能	120 $^{\circ}$ C 発電性能： 0.6V-2A/cm 2 相当 (PEFC 同等)	電解質、アイオノマーを配位高分子化した MEA を試作し、120 $^{\circ}$ C 無加湿下において低発電性能であるがクロスリークなく高 OCV の MEA を試作。	△	低発電性能の要因解明及び対策立案。
(4) 耐久性	1000 時間の連続発電	中温に特化した耐久ベンチの立ち上げ完了。 劣化挙動を観察可能な加速耐久条件を選定。 300 時間の定常発電試験を完了。	△	加速試験での劣化部位を確認し、対策を実施。

3.2 研究開発の詳細

(1) 影響因子の目標設定

セル発電特性の影響因子及びその評価方法を表 1 に示す。各評価方法のうち、本プロジェクトで目指す 100 $^{\circ}$ C 超無加湿環境での評価が未確立な手法（表中赤字の手法）に特化して手法確立を行った。また、確立した手法を用いて開発した各配位高分子プロトン伝導体を随時評価し、比較対象となる Nafion やリン酸に対する長短所を明らかにすることができた一方で、最終目標に対する各物性目標値の割り付け及びその実現案の立案にまでは至らなかった。

表 1 各抵抗の影響因子と評価法

抵抗	影響因子	評価方法
電解質抵抗	膜厚	測長
	伝導率	交流インピーダンス法
電極反応抵抗 (交換電流密度)	酸素溶存量	微小電極法 (液体 ^{1,2} ・固体 ³)
	Pt (吸着被覆)	CO置換法 ⁴
	三相界面長	COストリッピング
電極拡散抵抗	分子拡散 (主にGDL/MPL)	分圧/全圧変化に対する 限界電流応答
	アイオノマ中 酸素拡散	微小電極法 (液体 ^{1,2} ・固体 ³)
	クヌーセン拡散 (触媒層中気相)	全拡散抵抗と 上記2つの拡散抵抗の差分 ⁵

(2) 配位高分子プロトン伝導体

(2)-1 プロトン伝導率

これまでに我々が開発した配位高分子プロトン伝導体の代表例である Zn[dema][リン酸]⁶⁾ は 120℃無加湿環境下で 10mS/cm 超の伝導率を示すものの、目標とする Nafion (実用環境) の 100 mS/cm 程度と比較すると不十分であることから、その高伝導化に着手した。配位高分子プロトン伝導体はその構成金属と配位子を様々な組み合わせることで機能設計をすることができ、ある組合せと組成で形成した配位高分子プロトン伝導体 A は 120℃無加湿下で約 130mS/cm を示し、電解質の中間目標を上回ることを確認した (図 1a)。

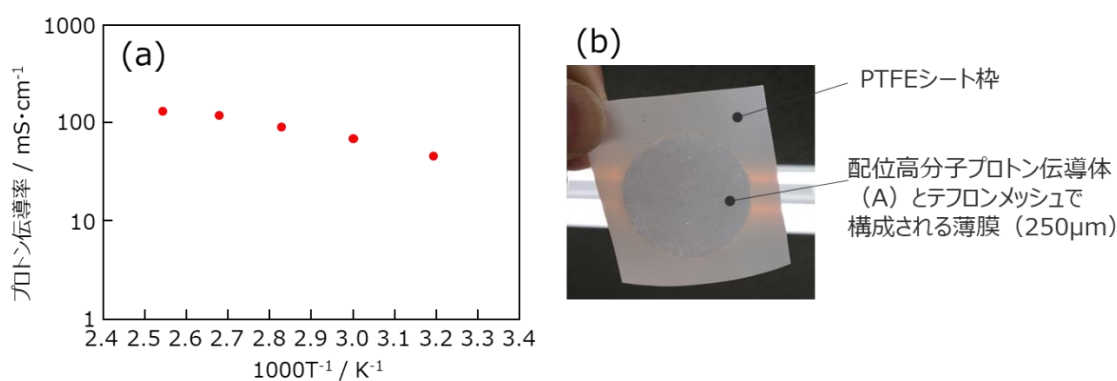


図 1 合成した配位高分子プロトン伝導体 (A) の伝導率(a)と A から作成した電解質薄膜(b)

伝導率向上のためには材料の構造分析に基づくプロトン伝導の経路・メカニズムの解明が必要となる。しかしこれまでに合成してきた高伝導配位高分子プロトン伝導体の多くは非晶質であり、結晶性の材料のように構造決定が容易ではない。そこで、SPring-8 やあいちシンクロトロン光センターなどの放射光施設にて放射光 X 線全散乱測定を行い、その測定結果を PDF (Reduced Pair Distribution Function、簡約二体相関分布関数) 解析することで構造推定を実施した。PDF 解析結果を図 2 に示す。図 2 より、合成した配位高分子プロトン伝導体には 3~4 Å 程度の周期構造が存在することが示唆され、これは金属 (M) —リン酸 (P) —金

属 (M) -リン酸 (P) -のような周期構造に由来すると推定している。このネットワークに沿ったリン酸基を經由してプロトンが伝導している可能性を得た。

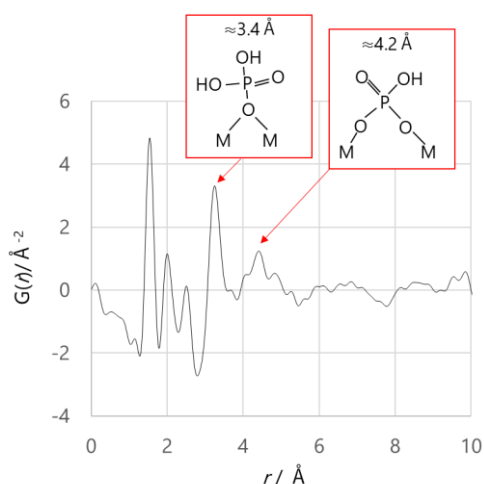


図 2 PDF 解析による配位高分子プロトン伝導体の構造推定

更にパルス磁場勾配 NMR を用いて、材料中のプロトンの拡散係数を測定し、どのプロトンが伝導に寄与しているかを調査した。その結果、リン酸基のプロトンの拡散係数が他のプロトンの拡散係数の 3 倍程度あることが分かり、このプロトンが伝導に大きく寄与していることが推定された。金属-リン酸のネットワーク形成に伴ってリン酸が配列化することは、リン酸間のプロトン伝導を易化すると想定され、このネットワーク構造がプロトン伝導に大きな役割を果たしていることが推定される。

(2)-2 耐水性

高伝導化が達成できた一方、目標とする耐水性は得られていない。そこで、電解質 A をベースに配位子を疎水分子に部分置換し、耐水性の向上を試みた。配位子の疎水化により耐水性は向上し、指標とする液水への重量維持率の向上 (30℃液水中 48 時間静置後に重量変化なし) することが確認でき、水への浸漬後も伝導率の低下は見られなかった (図 3)。しかし一方で、疎水化の背反で一桁以上の伝導率の低下が生じることから、この伝導率の向上が今後の課題である。

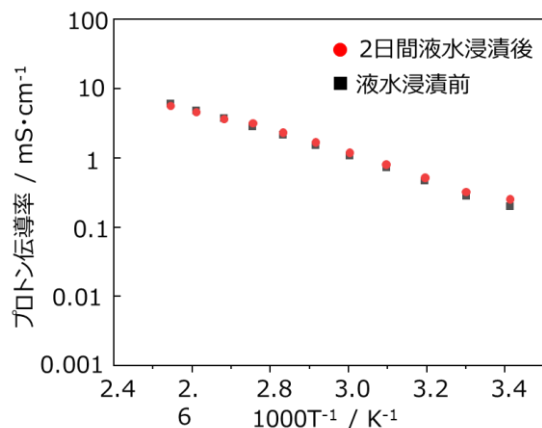


図 3 耐水性を向上させた配位高分子プロトン伝導体のプロトン伝導率 (液水浸漬前後)

(2)-3 薄膜化

薄膜化配位高分子プロトン伝導体単独では燃料電池電解質に要求される機械強度を満たすことが困難であることが見込まれるため、プロトン伝導体開発と並行して支持体との複合化の検討も必要となる。そのため、支持体の候補として微多孔膜への含浸（細孔フィリング型）、または樹脂とのハイブリッドを挙げて両者について検討を行った。

細孔フィリング型の検討では、1 μm の細孔径を持つポリイミド微多孔膜への配位高分子プロトン伝導体の加圧・加熱圧入を実施した。圧入した膜の伝導率試験を行ったところ、室温では一定の伝導率（体積分率を考慮すると適当な値）を示すことを確認できた（図4）。しかし、高温下にて伝導率低下が確認され、伝導体の微多孔膜からの配位高分子プロトン伝導体の流出が確認された。上記結果から、配位高分子プロトン伝導体と微多孔膜の最適化（伝導体と微多孔膜の親和性向上やサイズ設計）が必要であることが分かった。

次に、種々の樹脂とのハイブリッド化を検討した。ハイブリッド膜は樹脂を分散させた溶液と配位高分子プロトン伝導体を混合し、その後キャスト・乾燥して形成した。得られた膜の均一性（樹脂との相溶性）を検討した結果、ある種の樹脂において一定の機械強度を示す薄膜を形成できることが分かった。今後は配位高分子プロトン伝導体の高性能化開発と並行して、この樹脂の修飾（高機械強度化のメカニズム確認、主鎖構造の最適化など）及びハイブリッド化条件の最適化による改善検討が必要となる。

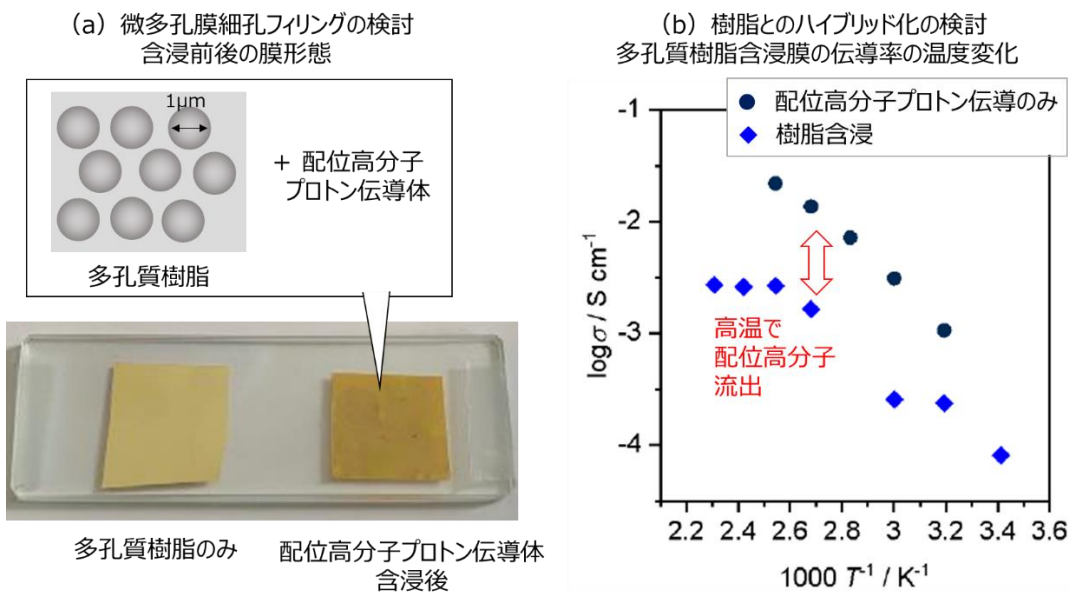


図5 微多孔膜と配位高分子プロトン伝導体を複合させた結果

(3) 発電性能

(2) -1項にて示した配位高分子プロトン伝導体Aは、120 $^{\circ}\text{C}$ 無加湿下で約130mS/cmの高いプロトン伝導率を示すとともに成型可能な柔軟性を有していたため、プレスにより薄膜化させることを試みた。単独では強度的に自立できなかったためテフロンメッシュと複合させたところ、膜厚250 μm 程度で自立可能な膜の形成に成功した（図1b）。この膜を用いてのMEA評価を行った結果、十分なOCVを示すとともにガスリークや副反応などは発生していないことが確認できたが目標よりも大幅に低い性能に留まったことから、今後より詳細な分析と性能向上対策が必要である。

(4) 耐久性

本プロジェクトでは、中間目標（2022年6月）として定常出力にて1000時間程度安定的に発電できることを、さらに最終目標として実用レベルの耐久性を獲得することを目指す。そのためには従来のPEFCの耐久評価とは異なる環境（100℃中温無加湿）での耐久ベンチの立ち上げと加速試験条件の設定が必要なことから、中温作動耐久試験環境を構築した（100% H_2 発電評価設備）。そのうえで、定常発電試験（定電圧発電）を300時間まで実施した。また、燃料電池実用化推進協議会（FCCJ）やUS Fuel Cell Council（USFCC）、US Department of Energy（DOE）などの加速試験プロトコルなどを参照⁷⁾に加速耐久試験条件を設定し、加速耐久試験後の劣化サンプルの分析（SEM、TEMによる形態変化観察、in-situ XAFSによるPt触媒状態分析）を実施した。今後は、上記耐久劣化サンプルの分析結果をもとに劣化部位とその要因解明を実施し、耐久性向上に向けた対策立案とその検討を行う。

- 1) Z. Liua, et al., Electrochim. Acta, 2006, 51, 3914.
- 2) S.Mitsushima, et al., Electrochim. Acta, 2010, 55, 6639.
- 3) K. Kudo, et al., Electrochim. Acta, 2016, 209, 682.
- 4) T. R. Garrick, et al., J. Electrochem. Soc., 2017, 164, F60.
- 5) T. Suzuki, et al., R&D Review Toyota CRDL, 2004, 39, 33
- 6) T. Ogawa, et al., Chem. Sci. 11, 5175-5181
- 7) Y. Hashimasa, et al., T Transactions of the JSME B, 2011, 77, 773

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

終了事業のため割愛

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) 実用化・事業化の想定内容・時期

本研究開発の技術は、移動体用の動力用途の燃料電池システムとしての実用化を目指している。ターゲットとなる移動体としては、大型トラックや鉄道、船舶、建設機械（油圧ショベル）、農業用機械（トラクタ）、産業用機械（フォークリフト）などである。事業化時期としては、次世代の移動体用燃料電池システム2030年（3X）の次のフェイズ（3X'、4X）での量産化を想定し、時期としては2035年前後の実用を目指し ta 研究開発である。

(2) 成果の実用化・事業化に向けた取組及び見通し

事業化に向けては、関連部品設計やシステム構築、量産化、安定供給など多種多様な課題が想定されるが、自動車部品メーカーとしてHV、PHEV、EV向けの事業にて制御、熱マネージメント、センシングなどでの事業化で培ってきた生産実績、経験、ノウハウ、特許を活用することで、車載燃料電池システムの実用化課題に対しても対応可能と考える。

事業化に向けてデンソーは上記のような利点を有するものの、中温作動燃料電池の事業化に際しては研究開発の最上流となる革新材料の具現化が重要なキーとなる。そこで本NEDO事業へ参画することで材料研究を加速するとともに、キーマテリアルとなるCPプロトン伝導体に関する知財、ノウハウの蓄積してきた。今後はラポレベルの検討から脱却し、より実用環境に近い検討を進めるために材料供給に長けるビジネスパートナーとの連携構築を図っていく。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2022/3/1	特願 2022-031177	膜電極接合体の製造方法	株式会社デンソー
2	2021/8/6	特願 2021-129938	伝導膜及び燃料電池	株式会社デンソー

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2022/3/25	日本化学会春季年会	プロトン性イオン液体に金属イオンを導入したプロトン伝導性配位高分子ガラスの合成と燃料電池特性	高橋一輝
2	2021/11/9	デンソー先端技術研究所 30周年記念講演会	配位高分子を用いた中温作動燃料電池の開発	篠崎良太
3	2022/7/28	NEDO 水素・燃料電池成果報告会 2022	配位高分子を用いた中温作動燃料電池の研究開発	世登裕明
4	2021/7/1	NEDO 水素・燃料電池プロジェクトレビュー2021	配位高分子を用いた中温作動燃料電池の研究開発	世登裕明
5	2022/1/13	中日新聞	熱に強い！燃料電池素材	世登裕明
6	2021/11/10	デンソー先端技術研究所オンライン記者発表	先端技術研究所 30年の歩みと今	伊藤みほ
7	2022/6/3	電波新聞	デンソー先端研と京大 CP 材開発	世登裕明

課題番号（管理番号）： PE08

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／硫黄化合物等の吸着脱離メカニズム解明と被毒予防・回復技術開発」

実施者： 国立研究開発法人 物質・材料研究機構、一般財団法人 日本自動車研究所

期間： 2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

燃料電池自動車（FCV）のさらなる普及に向けた課題の一つとして、燃料あるいは空気中に含まれる硫黄化合物による被毒が挙げられる。燃料水素あるいは大気中にわずかに含まれる硫黄化合物は白金触媒表面に強固に吸着するため、反応活性面積の低下を引き起こし、大きな出力低下の原因となりうる。

硫黄化合物が種々の金属表面に強固に吸着するということは古くから知られている一方で、燃料電池の反応化学的視点から硫黄の電位依存吸着・脱離挙動を明らかにし、反応に与える影響を定量的に取り扱うための基礎的研究は十分には行われてこなかった。

そこで本研究では、単結晶電極を用いた表面化学的アプローチと、車載時の発電環境を意識した MEA レベルでの評価・分析を組み合わせ、電極触媒への硫黄化合物の吸着・分解・脱離挙動を解明し、被毒を予防・回復するための技術および材料指針の獲得を目指した研究開発を行っている。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

○ 中間目標（2022年度6月）：白金系触媒への硫黄化合物の吸着・分解・脱離メカニズムを明らかにし、燃料電池 MEA で有効な硫黄被毒回復の要素技術を立案する。この技術により、硫黄被毒による電圧への影響を“半減”させる見通しを得る。

NIMS は白金単結晶表面における硫黄吸着・分解・脱離挙動を解明して、これに基づく被毒予防・回復技術を「電極／電解質水溶液系」レベルで実証する。この知見を「MEA を利用したセル特性・排出成分評価」に展開し、ガス中に含まれる硫黄化合物が燃料電池内に混入した場合の触媒への吸着、電極間の移動、アノードあるいはカソード出口からの排出に関する物質収支を定量化し、こうした回復技術が MEA の運転モードにおいて有効であることを確認する。

○ 最終目標（2024年度末）

1. 既存および新規の電極触媒への硫黄化合物等の吸着・脱離挙動の理解に基づき、車載上で適用可能な被毒予防・回復のための運転モードを立案する。2. 白金に比肩する触媒活性を示し、かつ硫黄被毒耐性に優れた白金以外の電極触媒を提案する。こうした二つの最終目標を達成して、硫黄被毒による不可逆的な出力低下割合を“ゼロ”にする見通しを得る。

○ 目標設定の考え方

2030年以降の FCV や業務・産業用燃料電池への実装を目指すために、PEFC においては航続距離 800 km 以上、最大出力密度 6 kW/L 以上、最大負荷点 0.6 V 以上、耐用年数 15 年以上、最高運転温度 100℃以上、燃料電池システムコスト<0.4 万円/kW に貢献する要素技術を確立することが基本計画の目標として掲げられている。硫黄被毒現象は上記目標のほぼすべてに悪影響を及ぼすものであり、基本計画の実現をさらに困難にする要因として認識されている。例えば、硫黄の吸着後、速やかに最大出力密度および最大負荷点が低下することに加え、長期的視点でも不可逆的な性能低下を引き起こし、航続距離および耐用年数を悪化させることも懸念されている。さらには、スタックの性能維持・長寿命化のため、硫

黄除去デバイスの付与あるいは触媒担持量の増加など、システムコスト低減の妨げにも直結している。

このような背景から、硫黄被毒による不可逆な出力低下を“ゼロ”にする技術の確立は、2030年以降の基本計画や目標を実現するために不可欠な研究・開発要素である。

○ 目標の検証の仕方

触媒表面に硫黄種を吸着させ、酸化脱離が起こる電位およびその反応機構を明らかにすることによって、プロトン交換膜およびアイオノマーの劣化を抑制しつつ、硫黄種が脱離することを証明して、最終目標「硫黄被毒による不可逆的な出力低下割合を“ゼロ”にする」の達成度を評価する。

評価・解析プラットフォームの支援を得て、MEAを用いたセル性能評価と排出ガス分析を組み合わせ、上記にて立案された予防・回復技術についての検証も行う。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
開発項目 A 被毒予防・回復技術確立のための硫黄吸着・分解・脱離過程の解明	白金系モデル触媒への硫黄種の吸着・分解・脱離メカニズムを明らかにし、燃料電池 MEA で有効な硫黄被毒回復の要素技術を立案する。 これに基づいて立案された予防・回復技術を「電極/電解質水溶液系」において実証する。 この技術により、硫黄被毒による電圧への影響を“半減”させる見通しを得る。	白金単結晶表面における硫黄種の吸着・分解・脱離メカニズムを解明 被毒回復挙動の電位依存効果・面方位依存効果を解明、助触媒効果を発見 1. 被毒状態から回復するための電位制御、2. 被毒状態から回復し易い面方位、3. 被毒を予防する助触媒候補を提案	○	
開発項目 B 燃料電池セルにおける硫黄被毒挙動の解明と回復技術の開発	白金系触媒への硫黄化合物の吸着・分解・脱離メカニズムを明らかにし、燃料電池 MEA で有効な硫黄被毒回復技術を立案する。 この技術により、硫黄被毒による電圧への影響を“半減”させる見通しを得る。	高電位（OCV、酸素存在下）→低電位（水素存在下）による被毒回復作用を実証 無負荷時の透過ガスを利用した被毒回復技術を立案（水素遮断法、空気遮断法） アノード・カソードにおいて硫黄被毒の半減を達成	○	

3.2 研究開発の詳細

(1) NIMS による硫黄吸着・分解・脱離過程の解明と新材料探索：水素 3%含有アルゴン雰囲気において 1600 度で誘導加熱することによって清浄かつ原子レベルで平滑な単結晶白金表面を調製し、さらに、水素 3%含有アルゴン飽和させた 1 mM 硫化ナトリウム水溶液に 1 時間浸漬した後、超純水で洗浄することによって白金表面に硫黄を吸着させた。多様な面方位を持つ単結晶白金表面に硫黄を吸着させ、過塩素酸水溶液中において電気化学測定を行った（図 1-1）。

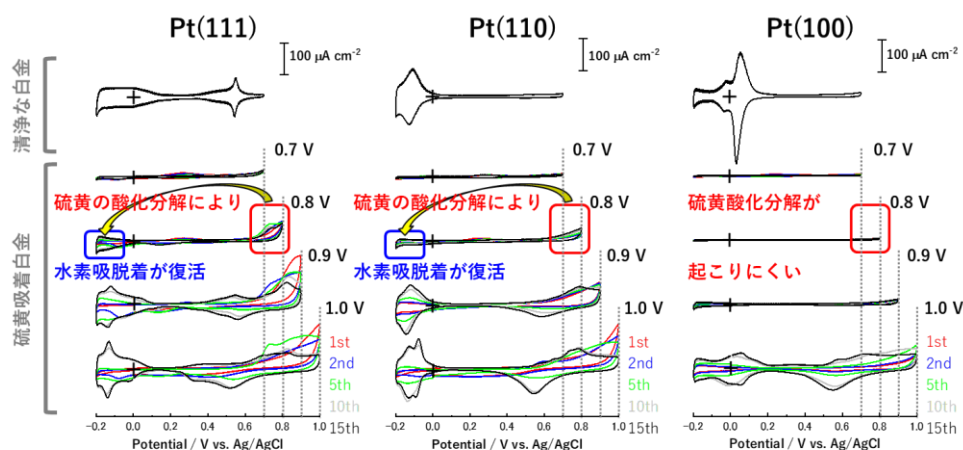


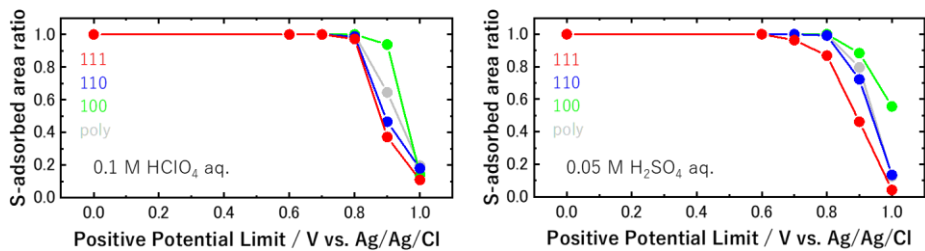
図 1-1 清浄および硫黄吸着単結晶 Pt(111)、Pt(110)および Pt(100)表面の電流電位応答。

清浄な Pt(111)、Pt(110)および Pt(100)表面は、過塩素酸水溶液中において特徴的な電流電位応答を示すことが知られている。たとえば、Pt(111)表面においては、-0.2 から 0.1 V vs. Ag/AgCl（以下いずれも Ag/AgCl 基準とする）付近に水素吸着脱離波、0.3 から 0.55 V 付近に水酸化物イオンの吸着脱離波が観察される。Pt(110)および Pt(100)表面においても-0.2 から 0.1 V 付近にそれぞれの表面に特有の形状をした水素吸着脱離波が得られている。

一方、硫黄を吸着させた表面においては、被毒効果によりこうした電流応答は消失する。いずれの表面においても-0.2 から 0.7 V の電位サイクルを繰り返しても電流応答に変化は見られないが、Pt(111)および Pt(110)表面においては正電位限界を 0.8 V まで延長することにより硫黄の酸化分解に起因する電流が流れ、水素吸着脱離波が復活する。Pt(100)表面においては、正電位限界が 0.8 V あるいは 0.9 V では電流応答に劇的な変化は見られず、1.0 V まで延長して電位サイクルを行うことによって、ようやく水素吸着脱離波が顕著に復活する。このことは、**Pt(100)表面は Pt(111)および Pt(110)表面より吸着硫黄種の酸化分解が起りにくい、すなわち、硫黄被毒への耐性が低い**ということを示唆している。

清浄な白金電極の水素脱離波の電気量（すなわち清浄な白金表面の面積）に対して、ある正電位限界まで 10 サイクルさせた硫黄吸着白金電極の水素脱離波の電気量（すなわち硫黄被毒状態から回復した白金表面の面積）の割合を図 1-2 に示す。

いずれにおいても正電位限界をさらに正側にするにより、水素吸着脱離波の回復がより顕著になる。また、Pt(111)、Pt(110)、Pt(100)の序列で硫黄被毒状態からの回復が起こりやすく、それぞれの面方位の原子配列を併せ持つ多結晶白金表面では Pt(110)と Pt(100)の中間程度となる。以上、**硫黄が分解されにくい(100)フリーあるいは硫黄が分解され易い(111)・(110)リッチな白金が硫黄被毒への耐性に優れた触媒として機能するのではないか**との指針が得られた。



S-adsorbed area ratio : 白金表面の被毒の度合い

$$= 1 - \frac{\text{ある正電位限界まで10サイクルさせた硫黄吸着白金電極の水素脱離波}}{\text{清浄な白金電極での水素脱離波}}$$

図 1-2 (左図) 過塩素酸および (右図) 硫酸水溶液中における硫黄吸着 Pt(111)、Pt(110)、Pt(100)表面および多結晶白金表面の被毒回復実験結果。式の通り、さまざまな正電位限界まで 10 周電位サイクルを繰り返した各電極と清浄な白金電極の面積を比較。* 関心表明企業への成果共有会を開催し、企業参加者の要望を受け、過塩素酸のみならず、硫酸水溶液中でも同様の実験を実施

硫黄が吸着した Pt(111)および Pt(100)表面について表面 X 線回折測定を行い、表面原子配列を決定した結果、Pt(111)表面においては硫黄が $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30$ 構造、すなわち硫黄 1 原子に白金 3 原子が配位しており、Pt(100)表面においては硫黄が $(\sqrt{2} \times \sqrt{2})R45$ 構造、すなわち硫黄 1 原子に白金 4 原子が配位しているということが明らかになった。Pt(100)表面では、硫黄原子により多数の白金原子が結合していることによって、より安定な吸着状態となるため、酸化分解、すなわち被毒からの回復が起こりにくいのではないかと考察に至っている。

加えて、硫黄被毒への耐性に本質的に優れた白金-助触媒系材料の探索にも取り組んでいる。多様な条件群について検討を行う中、**セリウムイオンを含み、水素飽和させた水溶液に浸漬することによって白金表面がセリウム種により修飾される**という現象を見出した。

図 1-3 に示す通り、未被覆の白金表面では硫黄を酸化分解させるために少なくとも 0.8 V より正電位まで走査する必要があるが、セリウム種により修飾した白金表面においては硫黄の酸化分解に由来する電流が 0.2 V 付近に観察された。このことはすなわち、**セリウム種により白金表面を修飾することにより、通常**
の白金表面より容易に硫黄の酸化分解が起こるということを示している。

セリウム種により修飾された白金表面に硫黄を吸着させ酸化分解を行うと、硫黄種のみならず、セリウム種も同時に白金表面から脱離してしまうが、白金表面のセリウム種修飾条件は、セリウムイ

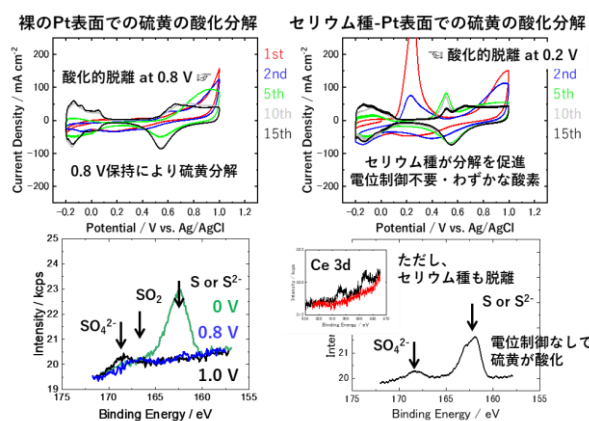


図 1-3 (左図) 未被覆の白金表面および (右図) セリウム種修飾白金表面に吸着した硫黄の電気化学的酸化分解の実験結果。X 線光電子分光法によると未被覆の白金表面では 0.8 V より正電位に保持することにより硫黄種が酸化分解するが、セリウム種修飾白金表面ではよりマイルドな電位条件において硫黄種の一部が酸化分解する。

オンを含む水溶液と接触させ、水素バブリングを行うという、固体高分子型燃料電池のアノード動作環境と類似したものである。したがって、**燃料電池の運転制御によって「1. 白金表面のセリウム種修飾、2. セリウム種修飾白金表面への硫黄の吸着、3. 硫黄の酸化分解とセリウム種の脱離」のサイクルを繰り返すことが可能であり、本技術は持続可能な硫黄被毒の回復技術に落とし込み得るものとして検討を続けている（特願 2022-114139）。**

(2) JARI によるセルレベルでの被毒回復技術の検証：セルの硫黄被毒を回復する常套的手段は、①被毒状態にあるアノード/カソードを高電位に保持して硫黄を酸化させた後、②低電位に切り替えることによって硫酸イオンを脱離させることである。これを車載上で実現するためには、ガス雰囲気制御が有効であると考えられる。アノード/カソードともに Pt/C (Pt 担持量 0.1/0.3 mg cm⁻²) とし、厚さ 12 μm のフッ素系電解質膜を用いて MEA を作製し、JARI セル 2 (電極面積 25 cm²、2 本サーペンタイン流路) にてガス雰囲気・電圧制御が被毒に及ぼす影響について試験を行った。

燃料水素中に H₂S が含まれる場合、白金表面に吸着硫黄種が蓄積する被毒効果のため出力は徐々に低下する。アノードへの水素供給を遮断しつつカソードの空気雰囲気を維持することにより、アノードでは水素が消費され、カソードからクロスオーバーした酸素により電位は正側にシフトする。この時、①に示すようにアノードに吸着した硫黄種は酸化され、硫酸イオンを生成する。アノードに再度水素を供給することで電位は負側にシフトし、②に示すように硫酸イオンは脱離し、燃料電池外に排出される。このような水素遮断と OCV 処理による被毒回復効果を検証した。

アノードにおける H₂S 被毒回復試験のフローと、OCV または水素遮断処理を行った前後での ECSA を比較した結果を図 2-1 に示す。

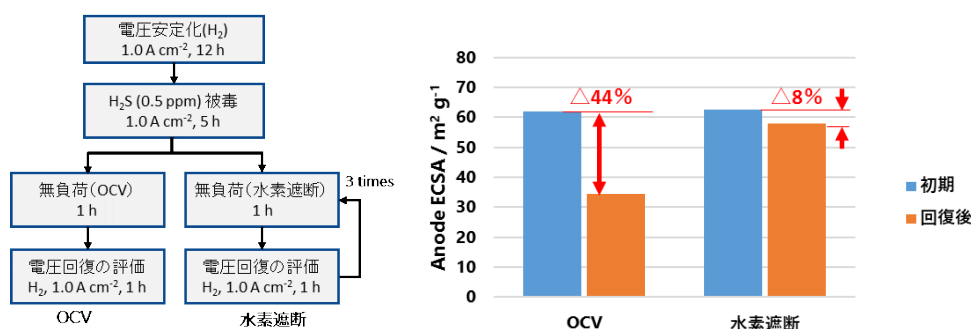


図 2-1 試験フローおよび、H₂S 被毒時・回復操作時におけるセル電圧の経時変化。

OCV 処理のみでは初期と比較して 44%低下した状態までの回復に留まる一方、水素遮断処理では初期と比較して 8%低下した状態まで回復することより、水素遮断はより大きな回復効果が見込まれる手法であるということが確認された。これは前述の通り、アノードにおける水素遮断時のクロスオーバー酸素による高電位化と発電再開時の低電位化により、白金触媒上の吸着硫黄種の酸化と硫酸イオンの脱離が進行したためと考えられる。以上から、水素遮断処理により、硫黄被毒によるアノードの ECSA 低下を回復させることが可能であることが示された。

カソードに SO₂ や H₂S などの硫黄化合物が混入した場合においても、アノード同様、出力低下が起こるが、燃料電池の発電を停止させると高電位となるため、①に示すように吸着硫黄種は硫酸イオンに変化する。その後、②の条件を満たすため、アノードの水素雰囲気を維持しながらカソードの空気を遮断することにより、アノードからカソードに水素が透過する。カソードに残留する酸素が水素との反応で消費された後、カソードの電位が負側にシフトすることを利用して②の状態を作り出し、硫

酸イオンを排出させる。

こうした空気遮断による硫黄被毒回復の効果の検討は、単セルを定電圧で制御しながら発電させ、空気遮断中の上限電圧の違いによる影響を評価した。図 2-2（左図）に硫黄被毒時および空気遮断時の電圧および電流密度の経時変化を示す。電圧を 0.67 V に保持しながらカソードに H₂S（0.2 ppm）を添加した空気を供給した。硫黄の被毒により電流密度が低下した後、上限電圧を OCV または 0.8 V で制御しながら、アノードに水素を供給し続けるとともにカソードの空気を遮断した。この操作によってカソードに残留した酸素が消費され、カソードの電位が約 0.03 V 程度まで低下する。空気遮断を 5 分継続してから、再び単セルを 0.67 V 一定で発電させた。この空気遮断と発電を繰り返したときの電流密度回復への影響を評価した。

空気遮断の繰り返しによる電流密度回復への効果を図 2-2（右図）に示す。H₂S 添加前の電流密度は約 1.08 A cm⁻²であったが、硫黄被毒後には約 0.9 A cm⁻²まで低下した。これに対し、空気遮断の繰り返しにより電流密度が増加することを確認した。上限電位を OCV にした場合は 0.8V にした場合に比べて電流密度がより大きくなった。以上、NIMS で示された単結晶での結果と同様、カソードの電位が高いほど硫黄被毒回復効果が大きいことが、単セルによる評価でも示された。このように、アノードおよびカソードにおける発電停止中のガス雰囲気制御による回復手法の適用により、硫黄被毒による燃料電池性能への影響を半減させる見通しが得られた。

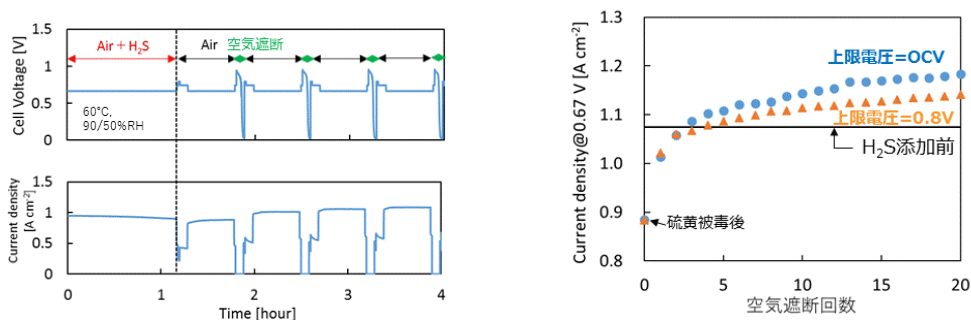


図 2-2（左図）空気遮断による被毒回復時の電圧および電流密度の経時変化。
（右図）空気遮断の繰り返し回数に対する硫黄被毒前後での電流密度。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

- (1) カソードにおいては通常の運転条件にて酸素が硫黄種の酸化分解を促すが、アノードにおいては触媒の被毒耐性を本質的に向上させつつ、クロスオーバー酸素を利用することが現実的であるとの考えに至っている。通常、白金触媒では、アノードへの酸素クロスオーバーは過酸化水素を発生させ、プロトン交換膜の劣化を引き起こす。そこで今後は、セリウム種修飾白金触媒に関する検討の深化を含め、プロトン交換膜の劣化を抑制しつつ、硫黄種が優先的に酸化脱離する新材料探索に注力する。
- (2) 継続可否審査を受けて、セルレベルでの検証は実施しないこととなったが、評価・解析プラットフォームの支援が得られれば、上記にて立案された予防・回復技術についての検証を行うことも検討する。

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)および(2) NIMS および JARI のいずれも単独で成果を実用化・事業化することは想定しておらず、得られた最新の成果については、関心表明企業に対して積極的に共有している。さらに、実用化・事業化を阻み得る課題をあらかじめ明らかにしておく目的で、反応機構の解明といったアカデミアならではの取り組みを進めつつ、同企業らの要望を研究開発課題に機動的に取り込んでいる。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2022/7/15	特願 2022-114139	電極、燃料電池、およびそれらの製造方法	物質・材料研究機構

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2022年5月	燃料電池研究会 第154回セミナー	Pt触媒における硫黄化合物の被毒回復手法	松田佳之
2	2022年3月	日本化学会 第102春季年会 (2022) オンライン	白金単結晶(111), (100), (110)電極表面における硫黄種の吸着脱離挙動	諸岡 哲朗, Ruttala Devivaraprasad, Elumalai Ganesan, 近藤 敏啓, 増田 卓也
3	2022年3月	量子ビームサイエンスフェスタ オンライン	白金単結晶表面における硫黄吸着・分解・脱離挙動の解明-燃料電池触媒の被毒・回復モデル-	諸岡哲朗, Ruttala Devivaraprasad, Elumalai Ganesan, 近藤敏啓, 増田卓也,
4	2022年3月	NIMS 先端計測シンポジウム 2022, NIMS, オンライン	白金単結晶電極表面における硫黄種の酸化脱離挙動	諸岡 哲朗, Ruttala Devivaraprasad, Elumalai Ganesan, 近藤 敏啓, 増田 卓也
5	2022年3月	電気化学会 第89回大会	水素中のH ₂ SがPEFC性能に及ぼす影響とガス遮断による被毒回復挙動	清水貴弘, 松田佳之, 高橋研人, 沼田智昭, 橋正好行, 今村大地
6	#####	第62回電池討論会	空気中の硫黄化合物がPEFC性能に及ぼす影響と空気遮断による被毒回復効果	高橋研人, 沼田智昭, 清水貴弘, 松田佳之, 橋正好行, 今村大地
7	2021年9月	2021年電気化学会 秋季大会, 北海道大学, オンライン	白金単結晶電極表面における硫黄種の吸着脱離挙動と酸素還元活性	諸岡 哲朗 Devivaraprasad Ruttala, Ganesan Elumalai 白澤 徹郎, 近藤 敏啓, 増田 卓也

課題番号（管理番号）： PE09

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／二次元反応場制御によるナノシート触媒/触媒層の高耐久化技術開発」

実施者： 国立大学法人信州大学（再委託 琉球大学）、学校法人同志社、石福金属興業株式会社

期間： 2020年9月～2022年6月

1. 研究開発概要

低白金使用量で100℃以上の高温かつ低加湿などの極限環境下でも使用可能な高活性、高耐久な新規ナノシート触媒を開発する。現行の炭素担持白金合金ナノ粒子の課題であるナノ粒子の不安定性と炭素担体の酸化消費を抑制した新規ナノシート触媒を開発し、ナノシート触媒の性能を最大限に引き出す触媒層・MEA 化技術を確立する。大学が開発した高性能触媒系は触媒メーカーと共同し、量合成プロセスを開発する。新規ナノシート触媒の開発により、2030年以降の燃料電池自動車に求められる低白金使用量で100℃以上の高温かつ低加湿などの極限環境下における耐久性をPt/C比で6倍を見通せる触媒を開発し、新規ナノシートに適した触媒層・MEA 化技術を開発し、PEFCの飛躍的拡大に貢献する。また開発した新規ナノシートの量産を見据えた合成プロセスの開発を実施する。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

標準的な触媒として使用されている直径が2～3 nmのPtナノ粒子は、質量活性は高いものの、内部原子は50%に達するため、無駄が多い。利用率を高めるためにさらに小粒径化した場合、比活性が低く、また不安定なため容易に肥大化してしまう問題がある。この課題を解決するには、ナノ粒子から脱却した触媒開発が必要である。1 原子層の厚みと数ミクロン～サブミクロンの拡がりをもった単原子ナノシートは、原理上内部原子が存在しないため、無駄がない。二原子層相当の厚みであっても、理論的には100%の利用効率を実現でき、ナノ粒子より高い触媒活性を期待できる。さらに、ナノシートは粒子のようにオストワルト成長しにくいいため、高い耐久性も期待できる。以上より、不安定なナノ粒子の代替として、安定なナノシートを用いることで内部原子の無駄をなくし、数原子厚でも肥大化しにくい低白金化ナノ触媒になると考えられる。

○中間目標：金属ナノシート、酸化グラフェン、層状白金酸(PtO_x)をテンプレートまたは出発原料とし、Pt系ナノシート触媒を合成する技術を確立する。ハーフセル試験により、極限環境下で耐久性に優れる高ORR活性触媒系を明確にし、量合成に適した触媒合成法を示す。初期ORR活性が標準Pt/C触媒と同程度であり、起動停止・負荷応答耐久性が4倍以上の性能を見通す技術を開発する。触媒開発チームが開発した触媒を用いた触媒層・MEA内において、ナノシート触媒特有の二次元反応場における課題を抽出する。1 cm^2 MEAを80℃で発電させた場合のIV性能と耐久性が標準的なPt/C触媒と同程度以上である触媒層・MEA化技術を確立する。これにより、劣化主要因を排除した触媒で標準触媒と同程度のMEA初期性能を見通せ、極限環境下での優位性を導く。

○最終目標：負荷応答耐久性、起動停止耐久性と100℃以上の高温耐性を向上させるために、触媒構造ならびに合成法の見直し最適化を実施する。初期ORR活性が標準Pt/C触媒と同程度であり、起動停止・負荷応答耐久性が6倍以上の性能を見通す。MEA化プロセスを十分検討できるスケールで触媒を提供できる触媒合成法を開発する。開発したPt系ナノシート黒触媒を用い、カーボンフリー・アイオノマーフリ

ーな触媒層・MEA 化技術を検討し、現行 MEA 化技術で対応するために必要な課題を明らかにする。100℃における耐久性能を、80℃までの耐久性能を外挿したものと同等にするための触媒層・MEA 化技術を、現行の触媒層製造技術を用いて確立することで、極限環境下での優位性を導く。MEA 化プロセスを十分検討できるスケールで触媒を提供できる新規ナノシートの量合成に必要な反応制御技術を開発する。燃料電池自動車（Fuel Cell Vehicle、以下 FCV）メーカーでの実用性能、耐久評価に必要な 10 g/batch 程度で新規ナノシート触媒を合成可能な技術を開発する。

これら中間目標、最終目標は FCV メーカーを含めた産業界等からの情報をもとに設定したものである。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標（2022年6月末）に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
金属や酸化物ナノシートをテンプレートとした高活性・高耐久白金系ナノシート触媒の開発 (信州大学) (再委託:琉球大学)	<ul style="list-style-type: none"> ・ 金属ナノシートをテンプレートに用い、Pt 系ナノシートの合成方法を開発する。 ・ 層状 PtO_x から Pt ナノシートを誘導し、高活性かつ高耐久な Pt ナノシート黒を合成する。 ・ RDE 法での初期 ORR 質量活性が標準 Pt/C 触媒と同等以上であり、起動停止耐久性能が標準 Pt/C 触媒の 4 倍以上を見通す触媒であること。 	<ul style="list-style-type: none"> ・ Pt ナノシートを炭素担体に担持した触媒を開発した。ECSA（電気化学的活性表面積）は、標準触媒の約 2 倍、初期 ORR 活性は約 2 倍であった。Pt ナノシートの高い ORR 活性は、高い ECSA に起因していることを明らかにした。 ・ 負荷変動試験に対する耐久性を検討した。その結果、5000 サイクル後の Pt ナノシートの ECSA は、標準 Pt/C 触媒の約 3 倍であった。この結果から、ナノシートの方がナノ粒子よりも Pt の溶解に対する耐久性に優れることを明らかにした。 	○	比活性向上の要素技術が必要である。触媒供給律速により、MEA での性能評価がやや遅れ気味である。ラボスケールで安定に 100 mg バッチができるレシピができたが、ラボリリースでのサンプル供給量に限界がある。
カーボンナノシートをテンプレートとした高活性・高耐久白金系ナノシ	<ul style="list-style-type: none"> ・ カーボンナノシートをテンプレートに用い、多結晶および単結晶 Pt ナノシートを合成する技術を確 	<ul style="list-style-type: none"> ・ MEA 評価が可能な量の多結晶 Pt ナノシートを調製する方法を開発した。 	○	多結晶および単結晶 Pt ナノシートともに、標準 Pt/C 触媒並みの質量活性を有するものの、ECSA は標準触

<p>ー触媒の開発 (同志社大学)</p>	<p>立する。厚さ・大きさの異なる多結晶 Pt ナノシートの合成技術を確立する。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 単結晶 Pt ナノシートを 1 cm² MEA での評価が可能な 100 mg 程度、合成できる合成法の指針を得ること。 	<ul style="list-style-type: none"> ・ 使用する酸化グラフェンサイズにより多結晶 Pt ナノシートの大きさを制御した。 ・ テンプレート除去法の最適化により、標準 Pt/C 触媒と同等の質量活性を有する多結晶 Pt ナノシート開発に成功した。 ・ 単結晶 Pt ナノシートの合成法を改良し、高収率合成法を開発にした。 ・ 単結晶 Pt ナノシートの初期 ORR 比活性は標準 Pt/C 触媒よりも 4 倍高いことを示した。 		<p>媒の 1/4 程度である。これはナノシート厚さが厚いためであり、今後はナノシートの更に薄くする方法や、ナノシート厚さが保持されるテンプレート除去法が開発が必要である。</p>
<p>極限環境下においてナノシート触媒の『二次元反応場』の特異性を活かした触媒層・MEA 化技術の開発 (信州大学)</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・ 炭素担持ナノシートを用いた MEA の負荷応答試験と、起動停止模試験において、100℃以下における耐久性能が標準触媒と同等以上である触媒層・MEA 化技術を確立する。 ・ 二次元反応場を持つナノシート触媒に特有な課題を抽出する。 	<ul style="list-style-type: none"> ・ コアシェル型の Ru@Pt(ns)/C を用い、MEA での負荷応答試験の結果、Pt/C と比べて高耐久な可能性が示された。発電時の Pt 質量活性が低く、これは ECSA が低いことに起因する。また、濃度過電圧が大きいため高電流密度での性能が低いことがわかった。 ・ 多結晶ナノシート（同志社触媒）を用い、無担持・イオノマーフリー電極を作製した。加湿条件が発電性能に及ぼす影響が大きいことが示された。耐久性能は標準触媒よりも高いことが示された。 	<p>○</p>	<p>MEA での Pt 利用率（ECSA）が低いため、触媒インクの調製条件、ナノシートを高分散させる方法を見出す必要がある。</p> <p>濃度過電圧を低減させるために、ナノシートのサイズを小さくするなどの工夫が必要である。</p>

3.2 研究開発の詳細

(1) 層状 PtO_x を合成し、熱還元により厚さ 0.5 nm の Pt ナノシート(Pt(ns))の合成に成功した（世界最薄）。Pt(ns)/C (Pt ~10 mass%、図 1) は、Pt/Cと比較して ECSA と質量活性は 2 倍程度高く、負荷変動および起動停止耐性も高いことがわかった。ナノ粒子では一般的に、ECSA が大きくなると比活性も耐久性も低下する。Pt(ns)の比活性は、標準性能 Pt/C より大きな ECSA であるにもかかわらず、3 nm Pt ナノ粒子と同等であった。これらのことから、Pt ナノシートは粒子サイズ効果のトレードオフの関係を克服できる触媒であることを見出した。

Pt(ns)/C を MEA で評価した結果、MEA では ECSA が極端に低く、かつ濃度過電圧が大きいことがわかった。Pt 担持率が低いため触媒層が厚くなり、期待した MEA 性能を得られなかった可能性があり、担持率を現行触媒と同等まで高められる担持方法を検討している。

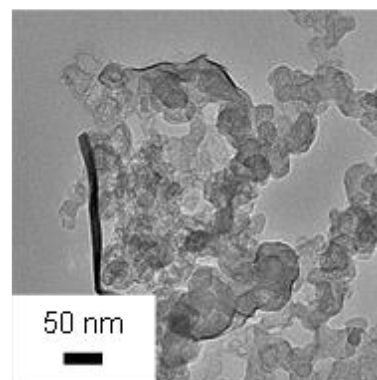


図 1. Pt ナノシート担持触媒の TEM 像。

(2) 酸化グラフェンをテンプレートとして多結晶 Pt(ns) を合成した。直径 2~5 nm 程度の球状 Pt 粒子が 1 μm を超える大きさを二次元的に連なった Pt(ns)が得られた（図 2）。多結晶 Pt(ns)の ORR 活性はテンプレートである酸化グラフェンの除去条件に強く依存し、除去法最適化（水素と酸素による逐次的除去）により標準性能 Pt/C と同程度に達した。一方、積層した酸化グラフェン層間を利用することで、単結晶 Pt(ns) の調製に成功した（図 3）。ナノシート量合成に関する調製法開発指針も得た。単結晶 Pt(ns)の触媒活性は酸化グラフェンテンプレート除去後に発現し、サイクリックボルタモグラムから特定の結晶面が露出した単結晶表面と類似した表面を有することを確認した。単結晶 Pt(ns)の ECSA は 10 m²/g 程度と低かったにもかかわらず、ORR 質量活性は 250 A/g と、標準性能 Pt/C と同程度に達した。このことを考慮すると、単結晶 Pt ナノシートの表面積当たりの触媒活性は極めて高いことを明らかにした（標準性能 Pt/C の 4 倍）。

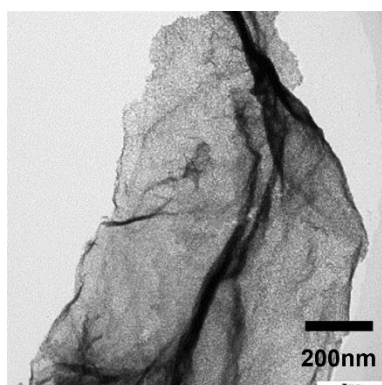


図 2. 合成した多結晶 Pt ナノシートの TEM 像。

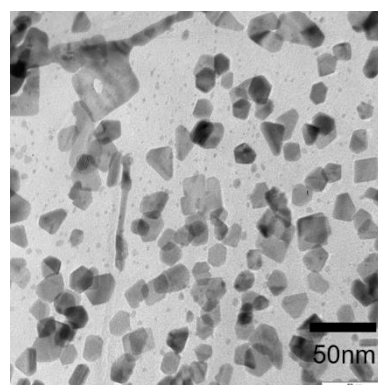


図 3. 合成した多結晶 Pt ナノシートの TEM 像。

(3) 石福金属興業社製の化学合成したコアシェル型 Ru@Pt ナノシート (Ru@Pt(ns)/C) を用い、転写により触媒層を作製し、MEA 性能を評価した（図 4）。開回路電圧は標準性能 Pt/C とほぼ同等

であったが、低電流密度域における質量活性は 16 A/g (Pt/C の約 1/3) であり、Pt の利用率が低いことがわかった。Pt(ns)がリストックした可能性や炭素担体との接触した面が有効に使われなかった可能性が挙げられる。高電流密度域における性能が低く、濃度過電圧及び触媒層中の抵抗過電圧が大きいことがわかった。ナノシートが横方向に大きいため活性点が密に存在することで反応場が集中し、触媒の活性点あたりの酸素ガスとの界面の面積が小さく流束が大きくなった可能性が考えられる。

同志社大学の多結晶 Pt(ns)黒触媒を用い、イオンマーフリー・カーボンフリーの触媒層を作製し MEA 性能を評価した (図 5)。低電流密度域において活性化過電圧が大きく、Pt(ns)の利用率が低い。高電流密度域における性能は、酸素条件で濃度過電圧は抑制され、Pt/C と同程度の性能を示したが、空気条件では濃度過電圧が大きかった。リストックしたナノシート間の空隙が小さく拡散が阻害された可能性が考えられる。起動停止耐久試験を実施した結果、同志社大学の多結晶 Pt(ns)黒を用いた MEA では、8000 サイクルでも残存率が 80%以上あり (標準性能 Pt/C は 4000 サイクルで 50%以下)、極めて高耐久な電極性能を得ることができた。

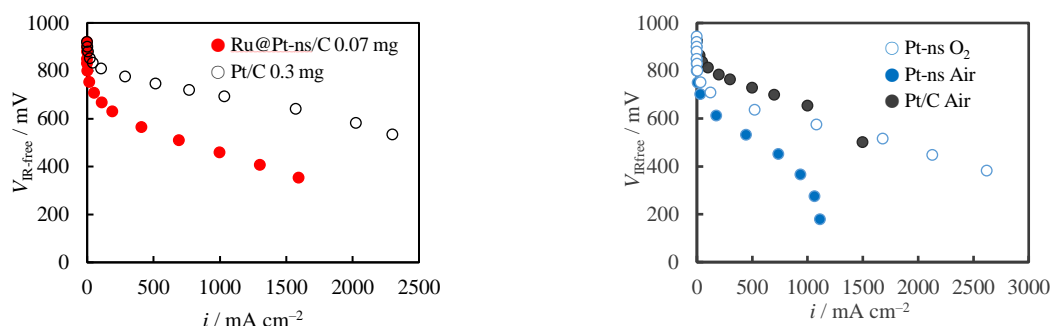


図 4. Ru@Pt(ns)/C と標準性能 Pt/C を用い た触媒層の発電特性。 図 5. Pt 黒アイオンマーフリー電極の発電特性。

(4) 化学合成によるコアシェル型ナノシート触媒の量合成法を検討した。Ru(ns)をコアとし、その表面に化学還元により二次元的に Pt シェルを成長させたコアシェルナノシート触媒を 2 g/バッチで合成した。PEFC 評価解析 PF にて観察した走査透過電子顕微鏡 (STEM) 像より、シート状の大小の粒子が観察された。シート状粒子の主元素は Ru であり、Pt はシート状粒子だけでなく担体上も含め全体に分布していた。ハーフセル試験の結果より、作製した触媒の ECSA は $67 \text{ m}^2/\text{g}$ 、ORR 質量活性は 327 A/g であり、標準 Pt/C と同程度の活性を示した。PEFC 評価解析 PF にて MEA 評価を実施した。MEA 初期活性及び耐久性は、標準性能 Pt/C と比較して ORR 活性が 4 割ほど、耐久性も約 5 割であった。シート構造に由来する酸素拡散の阻害が生じていると思われる。

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) 信州大学杉本研究室、同志社大学、琉球大学が担当する触媒開発チームが確立させた合成技術を、石福金属興業へ速やかに技術移転する。石福金属興業は開発された各触媒の量産化における課題の抽出及びキーパラメーターを明らかにし、触媒開発チームにフィードバックしつつ商用生産を見越した合成プロセスの開発を目指す。開発触媒は FCV やエネファームメーカー等に提供し、顧客要求に沿った設計を進め、触媒の有用性評価を行う。

(2) 究極的な目標は、触媒の劣化点となり得るカーボン担体を使用せず、高い活性を有する無担持の

Pt ナノシート黒触媒の開発とそれを使いこなす触媒層を開発することである。しかし、無担持触媒はFCV やエネファームメーカーでこれまでに採用された例がなく、ユーザー側で大きな工程変更になるためハードルが高い。そのため、既存の触媒よりもさらに広い作動条件下（運転温度、湿度、出力）での高い性能と優れた耐久性が求められるトラックなどのヘビーデューティービークル向けを中心に、ユーザーを巻き込んだ触媒層設計を行うことでナノシート触媒の課題を解決していく。

(3) 石福金属興業では、FC 触媒を含むナノ材料の開発、試作および製造を実施するための拠点の建築を含む事業化に向けた大規模な設備投資が進捗中である。また、実用化・事業化に向けて人的リソースの確保を進めている。石福金属興業は本プロジェクトの材料が搭載された製品の実用化に向けて、製品設計完了及びサンプルワーク、設備選定・発注、生産ライン立ち上げ、第1生産ライン(パイロットスケール)稼働、第2生産ライン(実スケール)稼働というプロセスで早期の実用化を目指すことについて、社内の合意を得ている。加えて、既存および新規の顧客に対し、本件開発を含む中長期的な開発ロードマップを共有することで、本件のような革新的競争力があるがユーザー側にも多数の課題が発生する触媒の事業化の確度を高める活動を行っている。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2021/12/21	特願 2021-207235	層状白金酸塩、層状白金酸、白金酸ナノシート、白金ナノシート及びそれらの製造方法	信州大学
2	2022/3/8	特願 2022-034914	白金ナノシートの製造方法	同志社大学、石福金属興業

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021/3/23	電気化学会第88回大会	固体高分子形燃料電池における過電圧分離に関する検討	福長 博
2	2021/6/4	第12回触媒科学研究発表会	積層型酸化グラフェンの層間を利用した白金ナノシート合成における調製条件のシート形状への影響	御堂有希、中前達貴、竹中壮
3	2021/9/15	第128回触媒討論会	酸化グラフェン層間内での白金ナノシート合成における調製条件のシート形状への影響	御堂有希、中前達貴、竹中壮
4	2021/11/23	18th Japan-Korea Symposium on Catalysis (18th JKSC)	Preparation of Nanosheets of Platinum Group Metals Using Stacked Graphene Oxides	Tatsuki Nakamae, Sakae Takenaka

5	2022/3/15	電気化学会第 89 回大会	白金ナノシート触媒の開発とカソード触媒特性	須田祐矢、都倉勇貴、當麻志乃、杉本 渉、滝本大裕
6	2022/3/24	日本化学会 第 102 春季年会 (2022)	全原子が露出した Pt ナノシートの創製と電極触媒への応用	滝本 大裕・當間 志乃・須田 祐矢・松本 匡史・今井 英人・杉本 渉
7	2022/3/30	第 129 回触媒討論会	酸化グラフェン層間を利用した効率的 Pt ナノシート調製法開発	中前達貴、竹中 壮
8	2022/9/21	第 130 回触媒討論会	Pt ナノシートの調製と酸素還元反応	滝本大裕、當間志乃、都倉勇貴、杉本 渉、松本匡史、今井英人
9	2020/9/8	プレスリリース	「二次元反応場制御によるナノシート触媒/触媒層の高耐久化技術開発」が NEDO で採択	石福金属興業
10	2020/9/9	鉄鋼新聞	「石福金属興業 燃料電池用触媒の技術開発 NEDO 事業に 2 件採択」	石福金属興業
11	2020/9/25	化学工業日報	「石福金属 燃料電池用触媒を高度化車載用 NEDO プロ参画」	石福金属興業

課題番号（管理番号）： PE10

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／アナターゼ型 TiO₂ 薄膜を活用した低接触抵抗・高耐久性セパレータ表面処理技術の開発」

実施者： 国立大学法人東京工業大学、中部大学

期間： 2021年4月～2025年3月

1. 研究開発概要

燃料電池は、従来の発電方法と比べて発電効率が高く、かつ、排ガスが生じないことから、省エネルギー化や二酸化炭素排出量の削減が期待される。燃料電池の中で重要な部品の一つがセパレータである。セパレータはそれぞれのセルを分割し、燃料ガスと酸素を分離する役割を果たす(図1)。

セパレータは導電経路となるため、高い導電性が求められる。また、燃料電池内部が酸性条件であることから、高い耐腐食性が要求される。セパレータ材として SUS を使用する場合、SUS は耐腐食性が低いため、導電性と耐腐食性を兼ね備え、かつ、接触抵抗が低い薄膜コーティング技術を開発する必要がある。

セパレータに関わるコストは触媒と同程度であり、セパレータのコスト低減は、触媒のテーマに勝るとも劣らない重要性を持つ。したがって、セパレータ開発は低コスト燃料電池セル開発において極めて重要である。

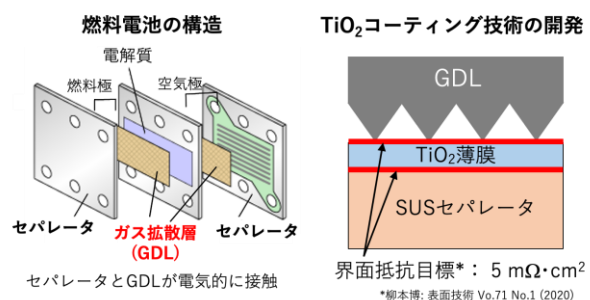
本研究では SUS セパレータのコーティング材として、耐腐食性が高く、電気伝導性が高い Nb ドープしたアナターゼ型 TiO₂(TNO)薄膜に着目する。この TNO を低コストで成膜することを目指し、大気中で成膜するミスト CVD(化学気相成長)技術を確認する。その際、ガス拡散層(GDL)と TNO 間、SUS セパレータと TNO 間において低い接触抵抗を実現する(図1)。さらに、自動的・自律的に実験を進めるシステムを構築し、研究スピードを向上する。以上より、低コスト、長寿命を実現する燃料電池用セパレータを提供する。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

★最終目標値 2024年度末

- GDL - TNO - SUS 接触抵抗 5 mΩ cm² 以下
(東工大・中部大、1 cm角、ミスト CVD、1 MPa 加圧下)
- 耐腐食試験合格 (東工大・中部大、5 cm角、ミスト CVD、SUS 上)
pH3 の溶液中で、電位 0.9 V vs. SHE、温度 80℃、エッチングレートは 0.02 nm h⁻¹ 以下 (5,000 時間で 100 nm 以下)、接触抵抗は試験前と同等の 5 mΩ cm² 以下

ガス拡散層(GDL)とセパレータの接触抵抗



本研究の目的
・ TiO₂薄膜を保護膜としたセパレータの開発
・ 自動化・自律化した成膜・評価システムの開発

図1 本研究の構想。(左) 燃料電池の構造。(右) ガス拡散層(GDL)、導電性 TiO₂、SUS が形成する界面における接触抵抗を低減する必要がある。この接触抵抗が低いと過電圧が小さくなり、**高効率・高出力の燃料電池が実現する**。SUSと大気中成膜プロセスの採用により、**セパレータのコストを半減する**。

- ミスト CVD による TNO 成膜速度は 12 nm min^{-1} 以上

目標設定の考え方

- 接触抵抗値はすでに実用化されている燃料電池と同等の数値(柳本博、表面技術 71, 17(2020))である。
- 腐食耐久性は燃料電池の他部材の寿命以上とする。
- コスト削減の観点から、総プロセス時間を 1/10 とする。また、真空装置が不要となることから、製造装置コストも 1/10 とする。
- 上記の最終目標値は協力企業と合意済みである。

評価方法

- 接触抵抗評価：1 cm角のセパレータと GDL を Cu 電極板で挟み込み、1 MPa でプレスした状態で電気抵抗を計測する。四端子法により評価する。
- 耐腐食試験は、燃料電池における実環境下の検査を分析会社、あるいは、PEFC 評価解析プラットフォームに依頼する。

★中間目標値 2022 年度末

- スパッタ法により作製した TNO について、GDL-TNO-SUS 接触抵抗が $10 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$ 以下 (東工大、1 cm角)
- ミスト CVD により作製した TNO の抵抗率が、ガラス上で $1 \times 10^{-1} \Omega \text{ cm}$ 以下 (東工大・中部大、1cm角)
- ミスト CVD による TNO 成膜速度が 5 nm min^{-1} 以上 (中部大、1 cm角)

目標設定の考え方

- 成膜→評価→改善の自動・自律サイクルが迅速に回せるよう、1 cm角とする。
- 電気伝導性 TiO_2 薄膜をミスト CVD で成膜した報告は過去に無い。電気抵抗率が $1 \times 10^{-1} \Omega \text{ cm}$ 以下を最初のターゲットとする。
- ミスト CVD 成膜において、TNO は還元雰囲気にて作製する必要があり、キャリアガスの選定が必要である。また、最適化するパラメータとして、キャリアガスの種類、キャリアガスの流速、超音波の周波数、基板温度、原料溶液の濃度及び組成が考えられる。これらを最適化して、成膜速度や結晶粒の大きさ、Nb から放出される電子量を制御し、低抵抗化を行う。

評価方法

- 接触抵抗評価：1 cm角のセパレータと GDL を Cu 電極板で挟み込み、1 MPa でプレスした状態で電気抵抗を計測する。四端子法により評価する。
- 耐腐食試験は、燃料電池における実環境下の検査を分析会社、あるいは、PEFC 評価解析プラットフォームに依頼する。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
スパッタ法による TNO 薄膜作製と接触抵抗発生メカニズムの解明	スパッタ法により作製した TNO について、GDL-TNO-SUS 接触抵抗が $10 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$ 以下(1 cm 角)	<ul style="list-style-type: none"> ● スパッタ法を用いた場合、GDL – TNO – SUS 間の接触抵抗は $441 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$ である。中間目標 ($\leq 10 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$)とはいまだ開きがある ● しかし、ミスト CVD を使った場合、接触抵抗は $30 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$ であり、中間目標($10 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$)と同桁の抵抗率を達成した 	○	スパッタ法とミスト CVD 法で成膜した薄膜で、接触抵抗が大きく異なる。この差異の起源を明らかにすれば、さらなる低接触抵抗化の指針が得られると考えている。
接触抵抗評価とミスト CVD 成膜：自動化技術の開発	ミスト CVD により作製した TNO の抵抗率が、ガラス上で $1 \times 10^{-1} \Omega \text{ cm}$ 以下(1 cm 角)	<ul style="list-style-type: none"> ● 抵抗率は $2.6 \times 10^{-1} \Omega \text{ cm}$ であり、中間目標 ($1 \times 10^{-1} \Omega \text{ cm}$)と同桁の抵抗率を達成した ● 接触抵抗測定 of 自動実験を確立した 	○	さらなる抵抗率の低下に向けた成膜条件の最適化(Nb ドープ量の制御や結晶性の向上に向けたガス流量の制御)
ミスト CVD による TNO の成膜プロセス開発	ミスト CVD による TNO 成膜速度が 5 nm min^{-1} 以上	<ul style="list-style-type: none"> ● 成膜速度は、10 nm min^{-1} であり、中間目標 (5 nm min^{-1}) を大きく上回る値を達成した 	◎	出発原料が強酸性のため金属セパレータの腐食が懸念されるため、出発原料の再検討が必要(既に開始)

3.2 研究開発の詳細

スパッタ法による TNO 薄膜作製と接触抵抗発生メカニズムの解明

- スパッタ法により SUS 基板の上に堆積した TNO 薄膜を用いて、GDL-TNO 間の接触抵抗を評価した。TNO 薄膜を成膜した基板と GDL を銅のブロックで挟みこみ、上からプレスした状態で、四端子法により測定した。その結果、接触抵抗は $441 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$ であった。この値は、中間目標である GDL-TNO-SUS(1 cm 角)の接触抵抗 ($\leq 10 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$)とはいまだ開きがある。ただし、後述するように、ミスト CVD 法により成膜した場合、接触抵抗は $30 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$ を達成しており、中間目標に肉薄している。
- 上述の大きな抵抗は GDL-TNO 接触部分、もしくは TNO-SUS 基板界面に由来すると考えた。そこで、両抵抗成分の切り分けを試みた。図 2 に示す方法(四端子法)で、接触抵抗を測定した。本測定手法を用いて TNO-SUS 接触抵抗(①)と GDL-TNO-SUS 接触抵抗(②)を測定したところ、①は $0.15 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$ 、②は $690 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$ であった。以上より、**GDL-TNO 接触部分が高抵抗であることを明らかにした。**

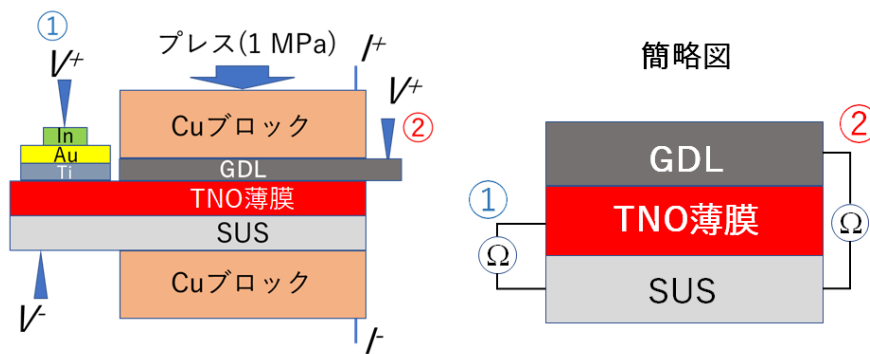


図 2. 接触抵抗測定の様式図：Nb ドープ TiO_2 (TNO)薄膜のプレスされていない部分に電極を作製し、そこから V^+ の電位を測り、 V^- は SUS 基板から測ることで、ガス拡散層(GDL)との接触を差し引いた TNO-SUS 基板間のみの抵抗値を測定できる。

接触抵抗評価とミスト CVD 成膜：自動化技術の開発

- ミスト CVD により導電性アナターゼ型 TNO 薄膜をガラス上に作製することに成功した。Nb 源の添加量が抵抗率に与える影響を調査した結果、Nb 添加量の増加に依存して抵抗率は大きく低下し、20 atom% のときに $2.6 \times 10^{-1} \Omega \text{ cm}$ (Van der Pauw 法により測定：図 2 中挿入写真)であった(図 3)。この値は、**中間目標値である $1 \times 10^{-1} \Omega \text{ cm}$ と同桁の抵抗率を達成した。**
- さらに、ミスト CVD で SUS 上に作製した TNO について上記の方法で評価した GDL-TNO-SUS 間の接触抵抗は $30 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$ であった。

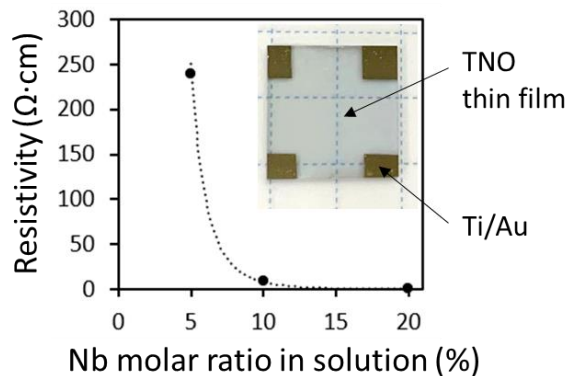


図 3. ミスト CVD(化学気相成長)で作製した Nb ドープ TiO_2 (TNO)薄膜の抵抗率。原料液へのニオブ(V)エトキシドの添加量に強く依存する。

この値は、**中間目標値(10 mΩ cm²)と同桁の抵抗値を達成**した。興味深い点は、同程度の抵抗率を示すスパッタ法で作製した TNO 薄膜の接触抵抗値は、この値よりも一桁高いことである。薄膜表面の SEM 像観察結果から、ミスト CVD で作製した薄膜は 100 nm 程度の凹凸構造をもつことが分かっており、この特異的な表面構造が低抵抗化に寄与している可能性がある。

- ミスト CVD-接触抵抗評価自律システムの構築を念頭に、接触抵抗測定 of 自動実験を確立した。ロボットアームにより基板を接触抵抗評価装置に自動運搬し、図 2 と同様に 1 MPa でプレスした状態での接触抵抗値を自動取得することができるようになった。ロボットアームによる基板の運搬は 100 回繰り返し動作しても一度も基板を滑落することなく動作できることを確認した。さらに、ミスト CVD による TNO 成膜についても、自動実験が可能なシステムの構築も進めており、**自律的に実験を進める準備が整ってきている。**

ミスト CVD によるアナターゼ型 TiO₂ の成膜プロセス開発

- TiCl₃ と NbCl₅ の水溶液を原料としたミスト CVD 法による TNO 薄膜の作製に取り組んだ。溶液中の金属イオン濃度を 0.1 mol L⁻¹、Nb/(Ti + Nb)比は 10%に固定し、異なる基板温度で成膜した。**基板温度によらず成膜速度は 10 nm min⁻¹程度で、中間目標 (5 nm min⁻¹) を大きく超えていた。**ミスト CVD 法で TNO 薄膜の高速成膜が可能であることがわかった。
- As-depo 膜を真空熱処理 (600 °C × 1 h) すると、アナターゼ型 TiO₂ に結晶化した (図 4)。基板温度が 300°C よりも高いときには、as-depo 状態で白濁しており、微粉体の集合体であった。基板温度が高い時には、ミスト液滴が基板に到達する前に輻射熱によって乾固・微粉体化し、その微粉体が基板に堆積しているためと考えられる。これらの膜は連続膜ではないので導電性を得るのは難しい。以上から、最適な基板温度は 200°C であると判断した。

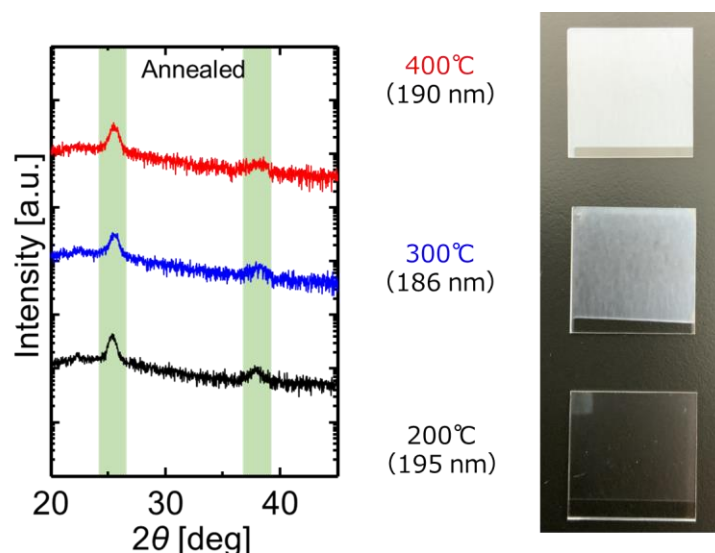


図 4. ミスト CVD (化学気相成長) で作製した Nb ドープ TiO₂ 薄膜の微小角入射 X 線回折パターンと外観の基板温度依存性 (温度の下に記載した数値は各温度で得られた薄膜の膜厚)

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

スパッタ法による TNO 薄膜作製と接触抵抗発生メカニズムの解明

GDL はカーボン繊維が複雑に絡み合った三次元構造を形成しており、疎な表面構造であることから TNO 薄膜との接触面積が小さくなっている。さらには、TNO 薄膜の SUS 基板上での配向性の影響についても疑っている。2022 年度は、**薄膜の表面ラフネスや配向性、膜厚を制御した TNO 薄膜を用いて高抵抗の起源を調査し、GDL – TNO 接触部分の低抵抗化を目指す。**

接触抵抗評価とミスト CVD 成膜：自動化技術の開発

TNO の伝導率には酸素欠陥量の制御や結晶性が支配的な因子であることがスパッタ法やパルスレーザー堆積法を用いた我々の研究グループによる先行研究から分かっている[1]。そこで、ミスト CVD に用いる溶媒および Ti 源に含まれる酸素の量やガス流量、基板温度、さらにはアニール条件を検討し、さらなる低抵抗化を実現する。接触抵抗の低下に向けては、TNO の伝導率に加え、前述のように表面ラフネスも重要な因子となることが想定される。しかし、表面構造は結晶成長や、基板上で起こるミストの蒸発およびミストからの物質供給過程によって支配される[2]。これらの複雑な過程を制御する実験パラメータの最適化は困難を極める。そこで、**既に着手している全自動で自律的に薄膜合成して接触抵抗を評価するシステムを構築する。**全体として、実験スループットを 10 倍以上速くする[3]。

[1] 山田直臣, 一杉太郎, 長谷川哲也, *J. Vac. Soc. Jpn.* **51**, 9 (2008)

[2] X. Zhu et al., *Nano Lett.* **15**, 4948 (2015)

[3] <https://www.titech.ac.jp/news/2020/048276.html>

ミスト CVD による TNO の成膜プロセス開発

ミスト CVD 法により、TNO 薄膜を高速成膜できた。成膜速度の中間目標はクリアできた。ただし、TiO₂に Nb がほとんど取り込まれておらず、低い抵抗率が得られていない。ミスト CVD 法に適した Nb 源の検討が今後の課題である。文献調査により、候補物質が浮かび上がってきた。それを Nb 源とした TNO のミスト CVD 成膜に取り組み、抵抗率に関する中間目標値を達成する。

[4] Fortes et al., *SynOpen* **5**, 252 (2021)

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

- 本 NEDO プロジェクト終了後に**薄膜作製装置メーカーとともに大面積ミスト CVD 装置を開発**する。すでに別の応用先に向けた大面積ミスト CVD 装置は販売されている。それらメーカーと共に、燃料電池セパレータ用と TiO₂用としてカスタマイズする。その装置を自動車メーカーや燃料電池装置メーカーに納め、SUS セパレータの実用化を進める。連続プロセスによる大量生産を 3 年で実現する。その際、熱によるセパレータの変形や均一性を考慮する。1~2 年で製膜装置を自動車メーカーやモジュールメーカーへ販売し実用化する。
- 本研究では、自動化・自律化した研究開発システムを構築する。そのため、**セパレータ材料やコーティング材料が変わっても、迅速に技術開発**する土台を築くことができる。そのように、研究の進め方についても切り込むため、実用化・事業化までの時間を短縮することも期待できる。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021 年 9 月	2021 年 第 82 回応用 物理学会秋季学術講演 会	Al 系合金基板上における透明導電 体 Nb ドープ TiO ₂ 薄膜の低温結晶 化	増山 知輝、清水 亮太、一 杉 太郎 (東工大物質理 工)

課題番号（管理番号）： PE11

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／高効率・高出力・高耐久 P E F Cを実現する G D L 一体型フラットセパレータの研究開発」

実施者： 国立大学法人山梨大学、国立大学法人大阪大学、株式会社エノモト

期間： 2021年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

(1) 事業目的

本プロジェクトでは、第5次エネルギー基本計画や水素・燃料電池戦略ロードマップ等で定めるシナリオに基づき 2030 年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システム（水素貯蔵タンク等を含む）を実現するためのユーザーニーズに基づく協調領域の基盤技術を開発することにより、世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立することを目的とする。

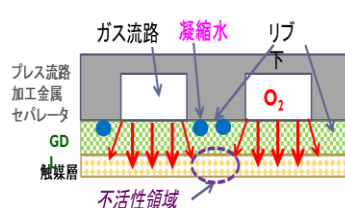


図1 従来セル構造

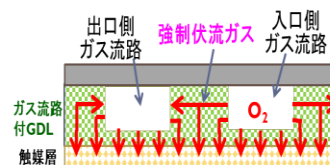


図2 提案セル構造

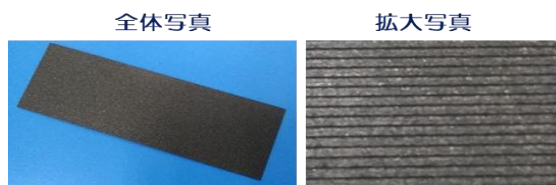


図3 流路付きガス拡散層

(2) 事業概要

先行研究において以下の特徴を持つ GDL 一体型フラットセパレータの開発を実施してきた。その成果として、主に以下の2点があげられる。

- ① 図1と2に示す様に本事業提案のセル GDL に流路を形成しリブ下に強制伏流ガスを発生させ従来セルと比較して触媒利用率を飛躍的に向上する。また、高温焼結法にはよらず製造自体は簡易・安価に実施できるものとした。（図3）
- ② ①によりセパレータはガス流路の成型が不要となり平板化によって大幅なコスト削減が可能となる。また、当セパレータには金属薄板を採用し、表面に炭素/樹脂の混合体による耐食コートを施し高い導電性と耐食性を担保する。

本事業では各種セル性能、中性子線や軟 X 線のイメージング、酸素分圧可視化、実構造 GDL 内気液二相流動の時空間変動解析等の評価解析技術で GDL 内部の酸素や水の動的変化を多角的に解析し、導電性・ガス拡散性、水マネジメント機能の性能発現／劣化メカニズムを解明したうえで、新材料設計を推進する。以上により、本事業で求められる GDL、セパレータにかかわる 2030 年以降に目指すべき目標性能を達成するための過電圧低減と耐久性向上を達成させ、産業界の持つ共通課題を解決する高効率・高出力・高耐久を両立した新たな材料・デバイスを産業界と共に実用化につなげる。また、このデバイスを産業界や PEFC 評価解析プラットフォーム等へ供試して評価を受けることにより、その有用性の検証と材料設計へのフィードバックを行う。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

(1) 研究開発目標

①中間目標Ⅰ：2022年6月

目標物性に寄与する主要メカニズムを明らかにする。各開発材料の最終目標値 30%を達成する。

②中間目標Ⅱ：2023年3月

目標物性に寄与するメカニズムの全体像を把握し、各開発材料の最終目標値の 60%を達成する。

上記各目標の GDL 一体型フラットセパレータは、中間目標時期等の開発途中においても必要に応じて PEFC 評価解析プラットフォームおよびユーザー企業等へ提供する。

最終目標（参考）（2024年度末）

GDL

水素拡散抵抗 : 0.875 sec/m

酸素拡散抵抗 : 14 sec/m

ばね特性(アノード) : 140~175 GPa/m (参考値)

ばね特性(カソード) : 112~175 GPa/m (参考値)

電気抵抗(貫層方向) : 1.5~2.5 mΩcm²

熱抵抗(貫層方向) : 0.5~1.5 kcm²/W

セパレータ

抵抗 : 10 mΩcm² 以下

耐久性 : 5000 h 以上 (0.1 M H₂SO₄ 90 °C 浸漬試験による)

※別途公表される条件があれば再考する

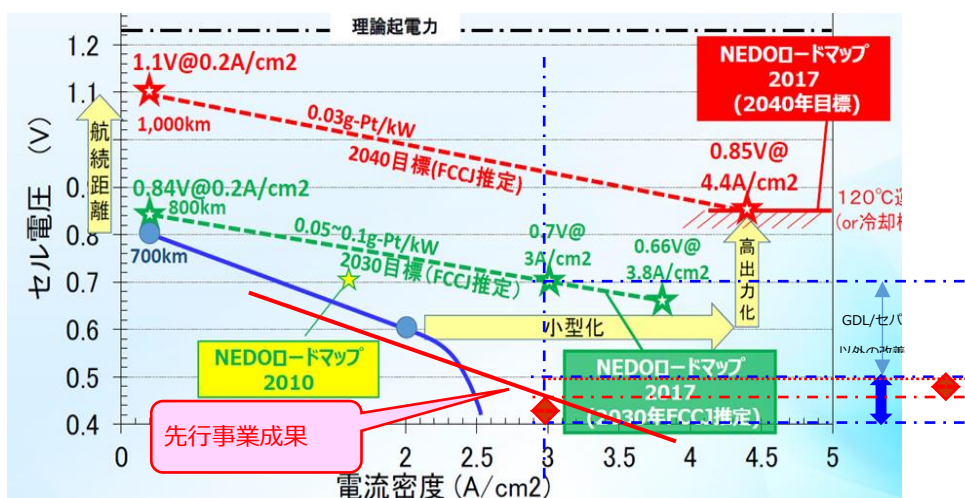


図 4 最終目標の位置づけ

(2) 目標設定の考え方

新規な GDL 一体型フラットセパレータを創製し、産業界と共にそれら材料を実用化につなげる。

①GDL（多孔体）に流路を形成することで、リブ下に強制伏流ガスを発生させ、触媒利用率を向上させる。

⇒【研究開発項目①】GDL に流路を形成することによる触媒利用率の向上

②セパレータのガス流路成型を不要とすることで、平板として使用することにより大幅なコスト削減を図る。更には高温焼結を用いない簡易・安価な製造方法を実証する。

⇒【研究開発項目②】コスト削減のための簡易・安価な製造方法の実証

③セパレータに金属薄板を採用し、表面には炭素／樹脂の混合体による耐食コートを施し高い導電性と耐食性を担保する研究を進める。

⇒【研究開発項目③】金属薄板セパレータ表面の耐食コートに関する高導電性、耐食性の研究

④導電性・ガス拡散性、水マネジメント機能の性能発現/劣化メカニズムを解明し、新材料技術を導入する。

⇒【研究開発項目④】導電性・ガス拡散性、水マネジメント機能の性能発現/劣化メカニズムの解明、新材料技術の導入

目標に掲げた GDL の水素拡散抵抗、酸素拡散抵抗、ばね特性、電気抵抗、熱抵抗、セパレータの抵抗、耐久性等の各種材料特性を評価し、技術構築を推進する。また、各種開発材料の特徴を最大限発揮させるためのそれぞれの材料や MEA の設計技術を構築し、図 4 に示した 2030 年の燃料電池の高効率・高出力化を実現するための GDL やセパレータに課せられた過電圧低減目標への寄与を検証する

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
①GDL に流路を形成することによる触媒利用率の向上	目標物性に寄与するメカニズムの全体像を把握し、各開発材料の最終目標値の60%を達成する。 上記各目標の GDL 一体型フラットセパレータは、中間目標時期等の開発途中においても必要に応じて PEFC 評価解析プラットフォームおよびユーザー企業等へ提供する	関心表明企業への提供サンプル二次評価を踏まえた改良を実施。セル温 105℃ の高温条件で 0.55 V @3.8 A/cm ² を達成し、NEDO2030 年目標 0.7 V @3 A/cm ² に対し、0.63 V @3 A/cm ² のきわめて高い性能を示した。各物性値と発電性能との明確な紐づけはまだ不十分ではあるが、この結果は中間目標 I を十分に達成しており、中間目標 II である最終目標値 60%の達成も見込める。	△	今後、LOI 企業提案の流路形状や本事業で開発している独自櫛型形状の適応と研究開発項目④：導電性・ガス拡散性、水マネジメント機能の性能発現/劣化メカニズムの解明、ならびに新材料技術の導入により、さらに性能が向上する。
②コスト削減のための簡易・安価な製造方法の実証		I-V 特性及びセル抵抗値のバラツキは小さく抑えられ、全ての GDL で 4A/cm ² まで達成していることを確認。金型設計、製造方法も含めた検討を推進中。これらの結果は、中	△	LOI 企業との意見交換により要求される数量を把握し、適切な量産設備投資を行い対応する。

		間目標 I を十分に達成しており、中間目標 II である最終目標値 60%の達成も見込める。		
③金属薄板セパレーター表面の耐食コートに関する高導電性、耐食性の研究		5000h を達成しフレヤ剥がれの発生無し。PEFC 評価解析プラットフォームや関心表明企業との意見交換を踏まえ、F ⁻ 、Cl ⁻ などアニオンを加えた条件での評価を実施。初期段階での耐食コートの効果を確認。抵抗低減への課題は残ったが中間目標 I を十分に達成しており、中間目標 II である最終目標値 60%の達成も見込める。	△	PEFC 評価解析プラットフォームや関心表明企業との意見交換を踏まえ、F ⁻ 、Cl ⁻ などアニオンを加えた条件での試験ニーズがあることを確認。今後、加速試験法として上記評価方法を検討する。
④導電性・ガス拡散性、水マネジメント機能の性能発現／劣化メカニズムの解明、新材料技術の導入		軟 X 線イメージングで GDL 一体型フラットセパレータの PEFC 発電中のセル内部の液水観察に成功。中性子イメージングで GDL 一体型フラットセパレータの PEFC 発電中のセル内部の液水観察に成功。中間目標 I を十分に達成しており、中間目標 II である最終目標値 60%の達成も見込める。	△	温調運転試験への対応のため実験系の改良を進め、高温条件の試験を実施し、最終目標を達成に寄与する性能発現／劣化メカニズムの解明と新材料技術の導入の効果を明らかにする。

3.2 研究開発の詳細

(1) 研究開発項目①：GDL に流路を形成することによる触媒利用率の向上（山梨大学、エノモト）

GDL に流路を形成することによる触媒利用率の向上を目指し開発した流路付き GDL を LOI 企業への提供し、LOI 企業にて、提供サンプルの発電評価を 2 回実施した。発電性能の他に種々の物性評価も実施いただき、様々な課題が抽出された。そこで、GDL に改良を加えた、二次評価の発電評価結果を図 4 の最終目標の位置づけに追記したものを図 5 に示す。この LOI 企業は、触媒や高分子膜への改良を加えた独自の CCM と本事業の流路 GDL の組合せで発電評価を実施頂いた。この

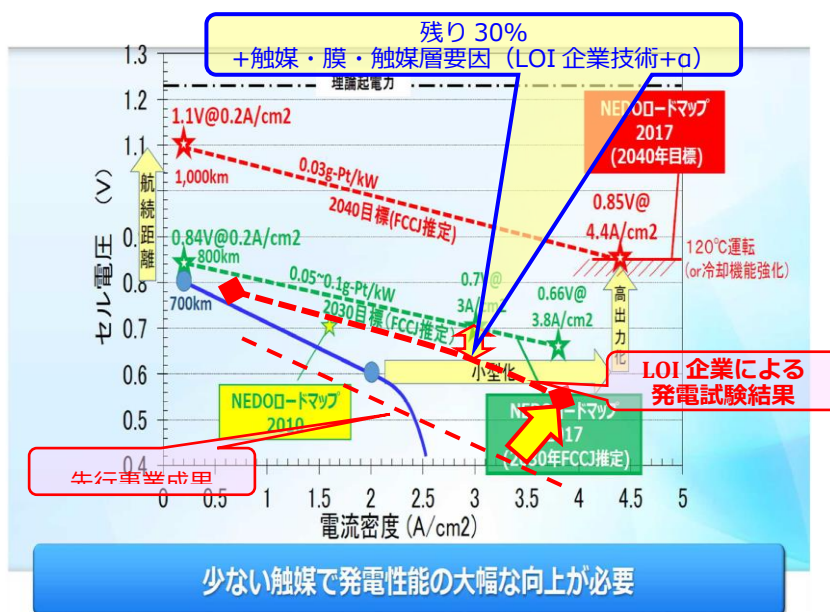


図 5 最終目標に対する進捗

流路付き GDL ではセル温 105 °C の高温条件で 0.55 V @ 3.8 A/cm² を達成し、NEDO2030 年目標 0.7 V @ 3 A/cm² に対し、0.63 V @ 3 A/cm² のきわめて高い性能を示した。各物性値と発電性能との明確な紐づけはまだ不十分ではあるが、この結果は中間目標 I を十分に達成しており、中間目標 II である最終目標値 60% の達成も見込める触媒利用率の向上の効果により得られた結果である。

(2) 研究開発項目②：コスト削減のための簡易・安価な製造方法の実証（エノモト）

【ガス流路付き GDL】

焼成工程を用いない安価な製造方法としてこれまでに小規模量産設備の立上げは完了している。この小規模量産設備で製造したガス流路付き GDL の発電特性のバラツキ検証について n3 で実施した結果、図 6 に示すように I-V 特性及びセル抵抗値のバラツキは小さく抑えられ、全ての GDL で 4 A/cm² を達成していることを確認した。（触媒サイズ：1×10 cm、単セル、セル温 80 °C、加湿 Ca30%RH、背圧 150 kPaG、ストイキ Ca2.5、Ca 触媒 Pt/C 0.3 mg/cm²、高分子膜 NRE211）

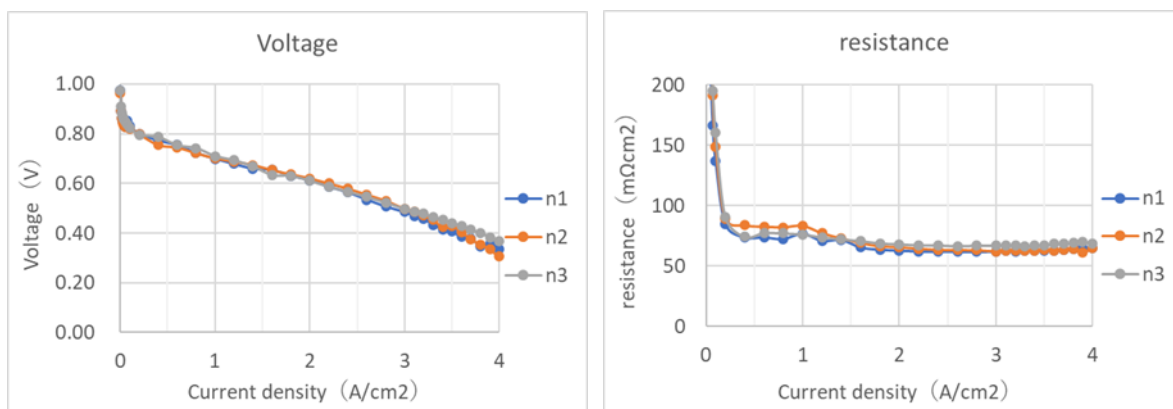


図 6 小規模量産設備で製造した GDL の発電特性評価データ

【セパレータ】

導電性コート層をコーティングする前のセパレータ基材の表面活性化方法として表面洗浄装置を導入した。これまでは溶剤を使用して表面の汚れを除去していたが溶剤残りも懸念されており、当装置の導入によって簡易に確実にコーティング面の洗浄を実施することが出来た。また図 7 に示すように、表面の洗浄と同時に表面の親水性を向上させることが可能となり、導電性コート層とセパレータ基材の密着性を向上させることで更に高耐久性が得られることも期待され、この装置を用いて製造した導電性コーティングセパレータについて耐食性評価を開始している。これらの結果は、中間目標 I を十分に達成しており、中間目標 II である最終目標値 60%の達成も見込める成果である。

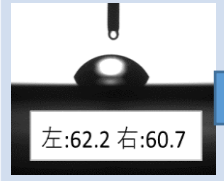
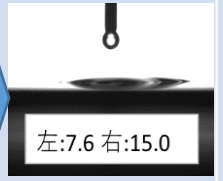

	処理前	処理後 5分後	処理後 60分後
写真 (接触角°)	 左:62.2 右:60.7	 左:7.6 右:15.0	 左:21.0 右:19.8

図 7 セパレータ基材表面処理後の接触角測定結果

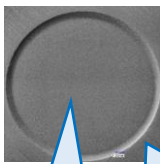
(3) 研究開発項目③：金属薄板セパレータ表面の耐食コートに関する高導電性、耐食性の研究（山梨大学、エノト）

これまでの実績としては、0.1M 硫酸 90℃ 浸漬による耐食性試験において 5000h 経過後でも腐食電流は見られなかったが、導電性コート層にフクレが発生していた。そこで導電性コート層のバインダー樹脂の配合を最適化させたサンプルを作製し耐久性試験をした結果、図 8 に示すように、目標の 5000 h 経過後もフクレや剥がれの発生は見られず大きな改善が確認できた。一方で抵抗値は耐食性試験前は 4.91 mΩcm² であり最終目標の 10 mΩcm² 以下を達成していたが、試験後は 15.5mΩcm² と目標未達であった。今回のサンプルはバインダー樹脂の改良を先行事業での成果より簡易な方法で達成できた。したがって、製造コストの低減化に進捗があった。総合的な判断として、抵抗低減への課題は残ったが中間目標 I を十分に達成しており、中間目標 II である最終目標値 60%の達成も見込める成果を実現できた。

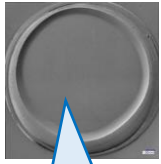
➤ セパレータ

- 抵抗： 10 mΩcm² 以下
- 耐久性： 5000 h 以上 (0.1M H₂SO₄ 90 °C 浸漬試験による)

0h → 5000h 経過



0h



5000h 経過

ふっ素ゴムシートによる
マスキング部

導電性コート層表面
Φ2cm のエリアを評価

フクレ剥がれ無し

図 8 セパレータ耐食性試験サンプル表面写真

また、PEFC 評価解析プラットフォームや関心表明企業との意見交換を踏まえ、F⁻、Cl⁻などアニオンを加えた条

	Cr	Fe	Ni
①SUS基材（コーティング前）	330	82	2700
②導電性耐食コーティング後	<1	10	<1

図 9 溶出金属の定量分析結果 (μg/L-1)

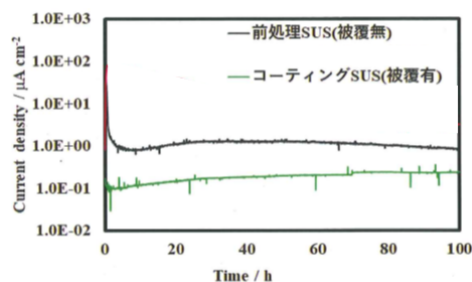


図 10 溶液中での電流密度の経時変化

件 (100 h (H₂SO₄ (pH3+3 ppm、F⁻ + 10 ppm、Cl⁻、80 °C浸漬試験による) での試験ニーズがあることを確認した。したがって、加速試験法としてこの評価方法の採用を目的として本事業で開発した耐食コートセパレータサンプルをこの耐食試験条件での評価実績のある外部分析機関へ依頼した。図 9 および 10 に示す様に、評価サンプルの耐食試験後の溶液について ICP 分析を実施した結果、溶出金属の検出は少なく、外部分析機関の見解として耐食性は十分であるとの見解を得た。今後、上記バインダー樹脂最適化サンプルでも試験を実施し、信頼性を高めていく。

(4) 研究開発項目④：導電性・ガス拡散性、水マネジメント機能の性能発現／劣化メカニズムの解明、新材料技術の導入 (山梨大学、大阪大学、エノモト)

(大阪大学、エノモト) ガス流路付き GDL・フラットセパレータを有する PEFC の発電時液水挙動を、X 線イメージングを用いて明らかにするため、新たな評価セルの設計・製作を行い、室温運転条件における可視化実験を実施した。セルの反応面積は X 線透過性を考慮して十分なコントラストが得られるサイズを設定し、ガス流路付き GDL と組み合わせるフラットセパレータと比較対象となる平行流路付きセパレータ (従来型) を、それぞれの流路形状を揃えて比較できるように設計・製作した。また、X 線可視化セルの反応面積に対応する櫛歯型のガス流路付き GDL を新たに作製して用いた。MPL/GDL に SGL24BC を用いた従来型構造セルにおいて、電流密度 0.6 A/cm² 一定で 20 分発電した時の液水分布可視化結果を図 11 に示す。リブ下により多くの液水が分布していること、また MPL から遠い側に向かって液水量が増加することが示された。この結果は既報の文献などとも一致する結果であり、今回新たに作製した流路形状においても良好な再現性が確認された。これに対して、ガス流路付き GDL を組み込んだセルで同様の試験を行った場合には、液水分布は従来型セルとは大きく異なる結果となった。蓄積される液水の総量は相対的に少なく、また櫛歯型の出口流路寄りの MPL 側に比較的多くの液水

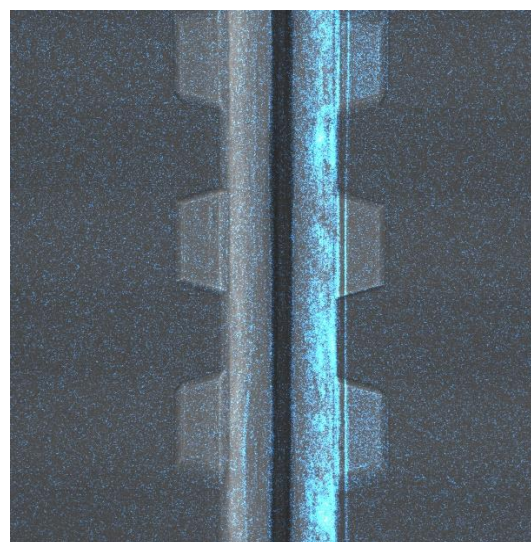


図 11 GDL 内液水分布の X 線イメージング

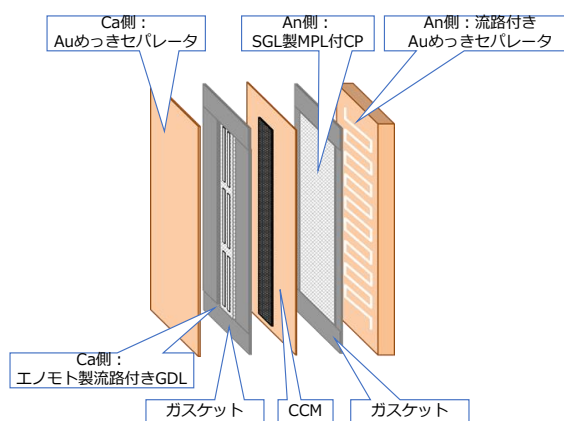


図 12 中性子線イメージング用セル構造。

が存在することが示された。この時の電流電圧特性は従来型セルを上回っており、高電流密度運転における過電圧が抑制されるというガス流路付き GDL で報告されている結果が X 線可視化セルにおいても再現されていることが確認された。以上のように、GDL 内の液水分布と発電性能の対応関係を示す結果が得られた。

(山梨大学) 実構造に近いガス流路付き GDL・フラットセパレータを有する PEFC 単セル (活性表面積 1.0 cm (W) x 9.7 cm (L)) の発電時の液水挙動を、中性子線イメージングを用いて可視化する実験を行った。カソード・アノード側の液水を区別するために、カソード側には交差くし型流路を配置し、アノード側は 1 本サーペントイン流路とした (図 12)。

総合的な判断として、中間目標 I を十分に達成しており、中間目標 II である最終目標値 60% の達成も見込める成果を実現できた。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 研究開発項目①：GDL に流路を形成することによる触媒利用率の向上

これまでに LOI 企業で評価した GDL の流路形状はストレート形状のため、今後、LOI 企業提案の流路形状や本事業で開発している独自櫛型形状の適応と研究開発項目④：導電性・ガス拡散性、水マネジメント機能の性能発現／劣化メカニズムの解明、ならびに新材料技術の導入により、さらに性能が向上し最終目標を達成できると考える。

(2) 研究開発項目②：コスト削減のための簡易・安価な製造方法の実証

LOI 企業との意見交換により要求される数量を把握し、適切な量産設備投資を行い対応する。

(3) 研究開発項目③：金属薄板セパレータ表面の耐食コートに関する高導電性、耐食性の研究

PEFC 評価解析プラットフォームや関心表明企業との意見交換を踏まえ、F⁻、Cl⁻ などアニオンを加えた条件を、加速試験法として評価方法に採用し、信頼性を高める。

(4) 研究開発項目④：導電性・ガス拡散性、水マネジメント機能の性能発現／劣化メカニズムの解明、新材料技術の導入

これまでの結果は GDL と MPL の一体構造の改良による更なる水マネジメント機能向上の可能性を示唆するものである。今後、温調運転試験への対応のため実験系の改良を進め高温条件の試験を実施し、最終目標を達成に寄与する性能発現／劣化メカニズムの解明と新材料技術の導入の効果を明らかにする。

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) 本プロジェクトで創出された GDL 一体型フラットセパレータを供試した各自動車メーカーや定置用燃料電池会社などからの評価結果を受け、要求される数量を満足すべく量産設備投資を行い対応する。製造拠点としては、エノト社国内工場が候補として挙げられるが、顧客によっては同社海外工場も視野に入れる。

(2) 事業化が確実に迅速に行えるよう、以下の施策を、プロジェクト期間中およびプロジェクト終了後に実施する。

	2022.6 (中間目標 I)	2023.3 (中間目標 II)	2025.3 (最終目標)	2030年頃	203X年
事業目標	30%達成	60%達成	100%達成(2030年実用化レベル)		実用化
	⇒	⇒	2030年目標の発電特性の見通しを得る		
事業化への具体的な取り組み	製品サンプル供給体制構築	小規模量産設備構築	大量生産技術確立 大量生産ライン構想	大量生産ライン確立	

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	Dec-21	第6回 FC-Cubic オープン シンポジウムポスター発表	ガス拡散層一体型金属セパレータ	平山尚樹（エノモト）

課題番号（管理番号）： PE12

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／高耐食性・低接触抵抗性を発現するPEFCステンレスセパレータコーティング技術の研究開発」

実施者： 国立大学法人名古屋工業大学、学校法人東京理科大学、国立研究開発法人物質・材料研究機構

期間： 2022年6月～2025年3月

1. 研究開発概要

貴金属を使用しないステンレスセパレータの新しい表面処理法の開発によるFCVの低コスト化を目的とし、本研究開発では高耐食性・低接触抵抗性を有するPEFCステンレスセパレータコーティング技術を開発する。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

本研究開発では貴金属コーティングを使用しない高耐食性・低接触抵抗性を発現するPEFCステンレスセパレータのコーティング技術の研究開発を行うことを最終目標とする。関心表明企業との連携および米国エネルギー省(DOE)による報告を踏まえ、中間目標では、燃料電池環境下におけるステンレスセパレータの鉄イオン溶出量を $10^{-11} \text{ mol cm}^{-2} \text{ hr}^{-1}$ オーダー、ステンレスセパレータの接触抵抗目標値 $10 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$ 以下を達成する要素技術を開発する。最終目標では、開発した要素技術により燃料電池環境下におけるステンレスセパレータの鉄イオン溶出量を $10^{-11} \text{ mol cm}^{-2} \text{ hr}^{-1}$ 以下、ステンレスセパレータの接触抵抗目標値 $5 \sim 2 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$ を達成する。目標の達成度は、腐食電流に換算した燃料電池環境下におけるステンレスセパレータの鉄イオン溶出量および接触抵抗値により評価する。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

(1)電気化学計測によるコーティング膜の最適化とワンプロセスコーティング技術開発/国立大学法人名古屋工業大学	・PEFC 模擬環境での定電位分極において、表面処理したステンレス鋼からの鉄イオン溶出量と接触抵抗値を検証する。 ・表面処理後のプレス加工を模擬した状態でのセパレータの被膜品質を評価する。	・表面処理したステンレス鋼からの鉄イオン溶出量と接触抵抗値の目標値を達成。 ・プレス加工を模擬したセパレータの被膜品質の評価実施中。	○	プレス加工を模擬したセパレータの被膜状態の解析。
(2)局所的腐食発生サイトを自己修復するインヒビター含有めっきの創成/学校法	・ステンレス鋼の溶解を抑制するインヒビターの探索および腐食速度評価。	・ステンレス鋼に対するインヒビター探索実施。 ・ステンレス鋼からの鉄イオン溶出量の目標値を達成。	○	腐食速度を低下させる電気化学的表面処理法の開発。

人東京理科大学				
(3) 局部腐食および過不動態溶解を抑制するステンレスセパレータの開発/ 国立研究開発法人物質・材料研究機構	・ステンレス鋼の不働態皮膜に含まれるクロムや局部腐食発生の引き金となる不純物等の介在物の精査と特定。	・Cr、Ni、Mo、N 含有量の異なる 5 鋼種のステンレス鋼を用いて 2 種の電気化学試験と促進試験を実施済。不働態皮膜安定化におけるCrの中心的役割を解明。	○	耐食性を向上させる電気化学的クリーニング法の開発。
(4) 電子伝導性と半導体的特性を複合化させた超低接触抵抗性を発現する蒸着膜の開発/ 国立大学法人名古屋工業大学	・ステンレス鋼への蒸着膜による接触抵抗の低減手法開発。	・蒸着膜を形成したステンレスシートの接触抵抗目標値を達成。	○	接触抵抗値と膜厚の関係解明。

3.2 研究開発の詳細

- (1) 貴金属使用量を「0」に抑え、トレードオフの関係にあるステンレスセパレータの「腐食量」と「接触抵抗」の具体的な関係性の定量的評価に基づく技術開発は PEFC ステンレスセパレータの低コスト化かつ大量生産に直結するものであり、国内外の FCV 生産に関する競争力を高めるものとなる。
- (2) 「腐食量」と「接触抵抗」の目標値は関心表明企業とともに極めてチャレンジングな値を設定しており、産業界等のニーズに対して研究開発の目標レベルが妥当であることを裏付けている。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

- (1) 生産工程を踏まえた蒸着層形成におけるステンレスシート表面の洗浄方法の課題は、関心表明企業との議論により解決への指針構築が順調に進められている。上記は腐食電流値と接触抵抗値へ直結する因子であり、課題解決が不可欠である。

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) プロジェクト期間終了後は実用企業（トヨタ自動車株式会社・本田技研工業株式会社）が本研究開発技術をベースとし、具体的な実用化・事業化へ展開する。
- (2) 実用化・事業化に向けたコーティング技術改良にともない使用するめっき液や成膜技術において新たな知財が発生した場合は、本プロジェクトが実用化企業と連携し、知的財産を具体化する。日本、中国、欧米、欧州を出願国候補として特許取得を実施し、PCT 出願を検討する。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2022.3	日本金属学会 功績賞	金属の微細組織と腐食挙動の関係解明による表面機能化・高耐食化に関する研究	堤 祐介

課題番号（管理番号）：PE13

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／導電性ナノファイバーネットワークによる自立 MPL の研究開発」

実施者：日本バイリン株式会社

期間：2021年6月～2025年3月

1. 研究開発概要

我が国において本格的な燃料電池の普及には、電池性能向上、コストダウン、高耐久性を満たす必要があり、PEFC においては、航続距離 800km 以上、最大出力密度 6kW/L 以上、最大負荷点 0.6V 以上、耐用年数 15 年以上、最高運転温度 100℃以上、燃料電池システムコスト<0.4 万円/kW に貢献する技術の確立が必須とされている。また、2030 年目標の達成目標として構成する各部材に対して性能向上の積み上げが NEDO 事業において示されており、ガス拡散層の貢献度として出力 3A/cm² で約 0.1V 近い向上が必要とされている。

本事業では、この目標達成に向けて従来のガス拡散層（GDL:カーボンペーパー+MPL）では達成が困難であったガス拡散性と排水性を持った、カーボンペーパーと MPL の機能を兼ね備える薄型の自立 MPL の開発を目指します。また、純度窒素下での高温焼成による炭素化工程が必要でなくなり、システムコストダウンに貢献すると考えられます。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

自立 MPL 開発においては低コスト化を実現しつつ、触媒層への酸素ガス輸送性を向上させるガス拡散層の開発が目的である。拡散ガスのフラックス J は式（1）で表現される。

$$J = \left(\frac{\varepsilon}{\tau}\right) \cdot D_{bulk} \cdot \frac{dC}{dx} \quad \text{式（1）}$$

ここで ε は MPL の空隙率、 τ は屈曲度、 D_{bulk} は酸素ガスのフリー空間中での拡散係数、 C は酸素濃度、 x は自立 MPL の厚さである。なお、MPL 中の拡散係数は

$$D_{MPL} = \left(\frac{\varepsilon}{\tau}\right) D_{bulk}$$

である。式（1）より、

拡散性の向上には MPL の拡散係数を高めたり、拡散長を短くすることが肝要である。すなわち、空隙率が高く、流路の直線性が高く屈曲度 τ が小さいこと並びにできるだけ薄い（ dC/dx が大きい）ことが望まれる。

多孔構造の指標としては、これらの因子を考慮して最適な構造を設計できると考える。一方、ガス拡散層と接触するセパレータのリップ部分のサイズとそこにかかる圧力などが大きく影響すると考えられる

自立 MPL がつぶれやすいとリップ部分下でのガス拡散性の低下や流路部でのガス流れ抵抗が増加することが予想されるため（図 1）、高い耐圧縮構造が重要である。また、電子抵

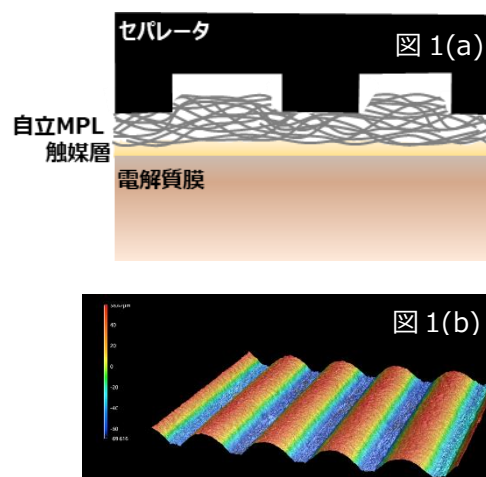


図 1：セパレータによる自立 MPL 圧縮のモデル図(a) と実際の圧縮の様子のレーザー顕微鏡による測定例(b)

抗を低く抑えることが必要であり、このためには緻密性を高めればよいがガス拡散性との最適化が要求される。NEDO 事業において達成目標とされているパラメーターに加えて、実際の構造特性から見た重要な達成すべきファクターとして物性目標値に掲げて取り組んでいる。これら指標物性値と中間目標ならびに最終目標値を表 1 に記載した。

表 1：指標物性（開発項目）の最終目標値と中間目標値

指標物性	単位	2024（最終）	23 年 3 月（中間目標）
厚さ	μm	<50	<50
電子抵抗(貫層方向) (圧力 2 MPa)	mΩ・cm ²	<2.5	<5
ガス拡散抵抗	sec/m	<14	中間値は設定なし
自立 MPL の接触角	°	150<	中間値は設定なし
自立 MPL の厚さ維持率 (圧力 2MPa)	-	0.7<	0.6

表の数値設定の根拠として電子抵抗とガス拡散抵抗値は NEDO によりシミュレートされた値である。厚さの目標値 50μm 以下は現在のガス拡散層の厚さ約 200μm の 1/4 とし、厚さの効果としてガス拡散フラックスを 4 倍として設定する。また、耐圧縮性指標として厚さ維持率は従来の GDL（0.7-0.8 程度）を参考として設定した。なお、自立 MPL ではこの厚さ維持率達成には繊維構造をある程度緻密にする必要があり、ガス拡散性を阻害する。設定値の<50μm は緻密化によるガス拡散性低下を相殺するためである。もともと従来の MPL との比較においては繊維シートの自立 MPL の空隙率εは大きく屈曲度τも小さいとの予想の下に、下記式からガス拡散性を大幅に向上できると考えている。

$$\text{ガス拡散性} \propto 1/\text{厚み} \times \text{空隙率} \times 1/\text{屈曲度}$$

なお、上記数値目標達成の以外にも ①導電性ナノファイバーと導電性粒子の複合プロセスを完成し連続シートを作製する、②導電性ナノファイバーを構成する有機樹脂と導電性材料を最適化する、ことを量産化の可能性および数値目標達成の事前検討として中間目標として設定した。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

開発項目とその中間目標ならびに現在の達成状況を表 2 にまとめた。

表 2：自立 MPL の開発項目と目標値並びに達成度

開発項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
厚さ	50μm	≒30μm	◎	厚み維持率とガス拡散性および電子抵抗の評価を勘案して適正化を図る。
電子抵抗(貫層方向)	5mΩ・cm ²	3mΩ・cm ²	○	体積抵抗の低減 接触抵抗評価
ガス拡散抵抗	設定なし（最終）	20~25（関心表明企業による評	—	構造最適化。評価解析 PF で評価および自社評価

	14sec/m)	価)		
接触角 °	設定なし (最終 $\geq 150^\circ$)	$\geq 150^\circ$	○	排水性との関連並びに耐久性
厚さ維持率	0.6	0.4 ≥ 0.6 (緻密化)	△	セパレータリブ下の状況評価
量産性	連続シート化	実験を開始	×	材料構成確定後に実施
樹脂と導電性材料の最適化	最適化	電子抵抗、接触角検討にて実施	○	最終目標達成に向けた改善

3.2 研究開発の詳細

(1) ガス拡散性と電気抵抗：自立 MPL に求められる重要な条件はガス拡散性、低電子抵抗、高い排水性である。ガス拡散性向上と貫層電気抵抗低減について自立 MPL の薄層化に取り組んだ。静電紡糸技術をベースとして樹脂にカーボンの微細粒子を複合し、表 2 に示す厚さ、電気抵抗を得た。このシートの SEM 写真を写真 1 にした。比較のために既存の MPL とカーボンペーパーも示す。繊維構造により自立性がありカーボンペーパーと既存 MPL の中間に位置する多孔構造が見て取れる。

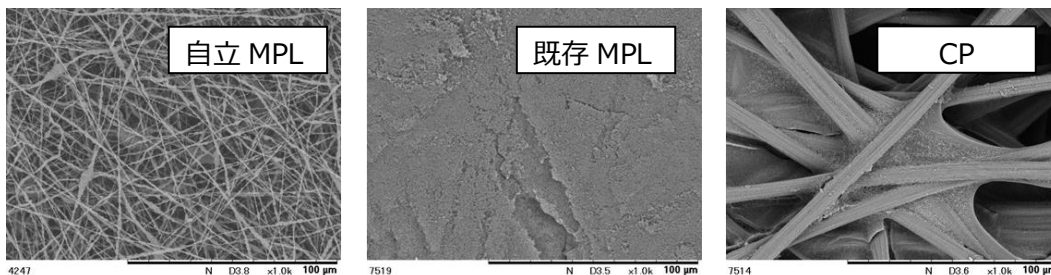


写真 1：自立 MPL と既存の MPL 及びカーボンペーパー（CP）との比較

本写真からガス拡散性に優れることが容易に推察される。現在評価解析 PF による拡散抵抗評価を進めている。また、関心表明企業での発電試験の結果、ガス拡散性が高い (20~25s/m) という評価を得た。現在自社でも孔径分布やダルシ-係数など簡易的な指標検討を進めている。なお、既に報告されている屈曲度推算式等を参考に、式 (1) をベースにガス拡散を最大化する最適な繊維密度を推算中である。

貫層方向電子抵抗は $2.8\text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ @ 2 MPa である。30 μm 程度の厚さとする事で達成できている。最終目標の $2.5\text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ 以下は、ガス拡散性との関係を考慮しつつ、現在の繊維密度 12% をさらに高めることで達成できると想定している。また、導電性繊維の導電性の点からも改善の検討を行っている。

(2) 接触角：目標値の 150° 以上を達成。フッ素系樹脂を選定しこの数値を達成した。フッ素系樹脂の低表面エネルギーに加えて微細ファイバー構造によるロータス効果によると推察している。なおフッ素系は耐久性も考慮して選定しているが、今後厚み維持率向上の観点からより硬い樹脂への変更あるいはポリマーブレンドへの変更も視野に入れている。

(3) 厚さ維持率：厚さ維持率は 0.4 程度で未達である。予備加工処理を入れることで 0.6 程度に向上している。ガス拡散との関係を考慮してさらに繊維の高密度化、当初から検討予定である構造維持粒子の導入などで達成を見込む。現時点 (厚さ維持率 0.4) での変形の様子は図 1 を参照。

(4) その他：量産性評価は利用する樹脂並びに最終的組成等が確定後に本格的な検討を実施する予定である。一方、現在の組成と大きく変更はないと考え、次年度から連続生産の可能性と量産性を確認する予定である。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 本開発におけるガス拡散性向上と電気抵抗低減は自立 MPL の厚さおよび厚み維持率をふくめ相互に関係しあっている。このため、発電特性を調べながら各パラメーターを最適化していくことが必要である。現在のパラメーター毎の達成を進めながら以下の指標に沿って最適な組み合わせを目指していく。

ガス拡散性 \propto 1/厚み \times 空隙率 \times 1/屈曲度比

電子抵抗 \propto 1/空隙率

例えば、繊維密度を上げて電子抵抗を下げる。これは拡散性の低下を招くが現在の繊維密度が 10 数%であり繊維密度を上げて空隙率 ϵ は大きく低下しない。厚みや屈曲度のとの関係を最適化してガス拡散性向上を達成させる。また、繊維密度向上は厚さ維持率の向上にもつながり、変形を抑えセパレータのリブ下へのガス拡散性の極端な低下や流路部での盛り上がりを抑制できる。目的達成に向けて面内ガス拡散性も調べていく予定である。関心表明企業の結果を考慮すると、セパレータ構造との関係もあるが 14s/m は十分達成可能と見込んでいる。

なお、厚さ維持率については最終目標 0.7 の必要性も含め再検討する予定である。

(2) 撥水性その他：撥水性は排水性を決める重要な因子であるが、従来の MPL と大きく構造の異なる自立 MPL では特有の設計思想が必要かもしれない。さらなる撥水性向上については PTFE の付与などが考えられるが、3 次元的に異方性のある構造なので厚み方向や面内方向など、自立 MPL に特有の効果は今後検討する。この内容については評価解析 PF の協力を仰ぎたい。連続生産性検証に関してはすでに自社でのナノファイバーシート生産の実績があり大きな障害はないと考えている。このため、まずは自立 MPL のコンセプト検証と枚葉シートによる発電性能向上達成が本委託事業成功の最重要ポイントであると考え対応する予定である。そのような観点から生産性の本格検討は次年度からの取り組みとしたい。

4. 成果の実用化・事業化に向けた取組及び見直しについて

4.1 ステージごとの事業化戦略

(1) 製品製造

① 自社生産セットの構築

本事業の製品は静電紡糸法（ES 法）による繊維シートの生産を基本としている。ES 法は当社において既に事業化しており写真 2 に示した通り 1m 幅の製品が製造可能である。燃料電池生産に必要なサイズでの連続生産ができる。この方法を応用して自立 MPL 用シートも製造する。自立 MPL は繊維以外の粒子も配置される予定のため単純な置き換えではできないが枚葉品の基礎評価は開始しており、24 年度中には連続加工のめどを立てる方針である。



写真 2：製品巾 1 m の静電紡糸不織布

② コスト低減

可能な限り薄型の MPL を開発することで原料コストの低減を見込んでいる。また製造工程コストは紡糸から加工処理まで 1 ライン化を目指し低減させる。燃料電池車の市場動向に柔軟に対応できるように製造設備の初期サイズ、逐次の増産対応などを考えている。静電紡糸は溶融紡糸のように高温や金属製の高価で高精度のダイ（紡糸ユニット）が不要で比較的増設が簡便で逐次増設に優れた生産方式である。尚、加工処理については場合によっては外注加工などの対応が必要になる可能性は排除できない。

海外も含め製造地域設定はコスト低減の重要な課題であるが、昨今の情勢を鑑みるに将来の適地生産想定が非常に難しい側面がある。まずは国内で安定的生産と輸出も含めた販売により、国プロの成果として利益還元を念頭に進めたい。

(2) 販売

求める性能・コストを満たした場合には関心表明企業に評価部材として採用されることを目指す。また当社は MEA に関連する燃料電池部材の開発も行っており、国内外自動車メーカー等への試料提供の実績も有している。さらに、当社の国内外関連企業において燃料電池及びその部材そのビジネスをすでに実施しており、当該ルートでの製品紹介や拡販を行うことが見込める。事業終了後は直ちにポテンシャルユーザーも含め製品紹介を実施し販売開始につなげる施策を講ずる。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2022/6/30	特願 2022-104795	導電性繊維シート、ガス拡散電極、及び水分管理シート	日本バイリーン

—研究発表・講演、文献等、その他—

なし

以上

課題番号（管理番号）： PE14

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／燃料電池スタックシール用高速架橋エラストマー材料の研究開発」

実施者： 国立大学法人九州大学、国立大学法人大阪大学、国立大学法人横浜国立大学、一般財団法人化学物質評価研究機構

期間： 2021年6月11日～2025年3月31日

1. 研究開発概要

現在上市されている燃料電池自動車の、燃料電池スタックは300層以上の燃料電池セルが積層された構造となっている。積層された各セルのガス流路および冷却水流路を形成するため各層間にシールが必要となり、1基の燃料電池スタックに300個以上のスタックシール部材が用いられている。図1に燃料電池スタックのシール構造の模式図とその要求特性を示す。

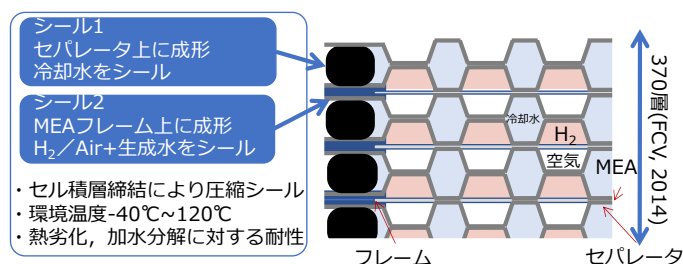


図1 燃料電池スタックのシール構造の模式図とその要求特性

スタックシール部材としてエラストマー材料が用いられており、一般的なエラストマー材料は現状数分程度の加硫時間を要することから、加硫時間の短縮による生産性向上が求められている。図2にスタックシール部材の製造プロセスと本プロジェクトの研究目的を示す。本プロジェクトでは、クリック反応を利用した高速架橋エチレンプロピレンゴム(EPDM)および脂肪族エポキシ樹脂等を用い、スタックシール部材として要求される物性値、耐久性を持つ従来材より短時間で加硫可能な高速架橋熱硬化型エラストマー材料の創生を推進する。

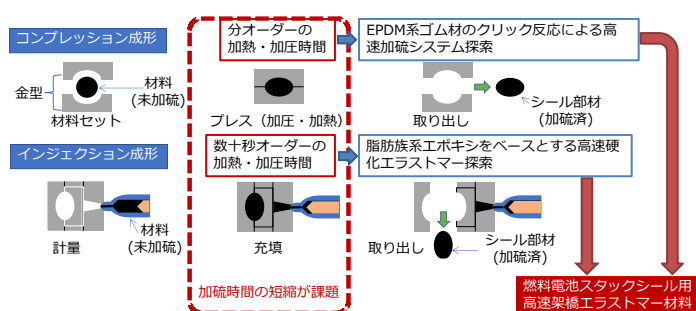


図2 スタックシール部材の製造プロセスと本プロジェクトの研究目的

主にクリック反応を利用した高速架橋 EPDM については大阪大学、脂肪族エポキシ樹脂等を用いた高速架橋熱硬化型エラストマー材料については横浜国立大学が担当し、それぞれ担当する材料系について素反応の検討、架橋反応への適用検討および所要の化合物・硬化物の合成を実施する。合成された化合物、硬化物について、設定した目標値に対応する反応速度、水素透過特性、各種物性値の評価を化学物質評価研究機構および九州大学で担当する。大阪大学、横浜国立大学において合成される化合物、硬化物は少量であることが想定されるため、小型・少量の試験体による計測方法の確立、必要に応じて代替特性の設定について検討を進め、研究期間前半で実施する材料系スクリーニングのための評価法を設定し、材料評価を進める。研究期間後半では絞り込んだ材料について合成法を確立した上で大量合成を実施し、設定した目標値について、対応する JIS 規格に記載された手法で所要の物性値の計測を行う。また、マテリアルズインフォマティクスを活用した高速架橋エラストマー材料分子設計を九州大学が担当する。マテリアルズインフォマティクスを用いたエラストマー物性～配合・構造解析モデルを作成し、研究期間を通じて得られたデータの解析を実施し、配合の絞り込

みなどに資する解析結果をフィードバックする。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

2.1 2022 年度までの目標（中間目標）

- ・現行の約 1/10 となる数秒での架橋反応を実現しうる反応系の決定。
- ・ベースとなる高分子材料系の絞り込み。
- ・水素透過特性、劣化特性に関するスクリーニング評価方法の確立。

2.2 2024 年度までの目標（最終目標、参考）

- ・最適スタックシール材の提案
- ・架橋反応目標時間内で架橋反応が可能、かつ、フィラー充てん硬化物特性として弾性率 2~50 MPa、破断強度 4.8 MPa 以上、破断伸度 50% 以上、TR10 -40℃ 以下、水素透過係数 $4.5 \times 10^{-11} \text{ cm}^3(\text{STP})\text{cm}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{Pa}$ 以下、圧縮永久歪み 8% 以下、 μ -ニー粘度 40~120 M、pH3 硫酸溶液:15 ml 95℃×24hr 浸漬後の金属イオン溶出量 0.5 $\mu\text{g}/\text{g}$ 以下などの諸特性を満足すること。

2.3 目標設定の考え方

スタックシール部材を成形する際の架橋反応の所要時間について、現状、数十秒～数分間の時間を要しており、生産性を改善するため、架橋反応の所要時間を現行の約 1/10 である数秒を目標として設定した。また、スタックシール部材の最終目標として設定した物性値を満足するフィラー充てん架橋ポリマー配合を実現するため、未充てんの架橋ポリマー単体で達成すべき物性値を中間目標として設定した。これにより、研究期間後半で絞り込んだ架橋ポリマー系に対してフィラー充てん配合を検討することで、最終目標を達成可能と考えている。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
①EPDM へのクリック反応の適用による高速加硫系の探索	・高分子材料系絞り込み条件として、クリック反応架橋剤を用いた未充てん EPDM 材の加硫物特性として弾性率 0.5 MPa、破断強度 2 MPa 以上、破断伸度 50% 以上となる基本配合を設定	EPDM ジエンのモデル低分子化合物を用いた検証により選定したベースポリマー-VNB-EPDM はニトリル N-オキシド 2 官能架橋剤との反応により加硫が可能であることを確認。現在、架橋剤を 100g スケール合成中。	○	選定した VNB-EPDM 系エラストマー・ニトリル N-オキシド加硫系について、加硫条件を確立する。
②脂肪族エポキシなどをベースとした熱硬化型エラストマー材探索	・高分子材料系絞り込み条件として、未充てんエポキシ系エラストマー硬化物特性	脂肪族エポキシのアニオン・カチオン重合系、エポキシ・オキサタン共重合系、アミン硬化系について検討	○	設定した基本配合をベースとして、設定された物性目標値を満足し、かつ加硫反応速度

	として弾性率 0.5 MPa、破断強度 2 MPa 以上、破断伸度 50%以上となる基本配合を設定	し、硬化物の引張特性を測定した。その結果、アミン硬化柔軟性エポキシ、および柔軟性エポキシ・オキセタン共重合体がエラストマー的な挙動を示すことを確認した。		が速い配合を確立する。
③新規エラストマー材料加硫特性・物性・劣化特性計測	<p>・材料選定のためのスクリーニング評価法として、pH3 硫酸溶液:15 ml 95℃×24hr 浸漬後の金属イオン溶出量計測精度 0.1μg/g となる計測法の確立</p> <p>・材料選定のためのスクリーニング評価法として、30 mmφ以下の試験片による水素透過率測定法の確立</p>	<p>②にて選定したアミン硬化柔軟性エポキシおよび柔軟性エポキシ・オキセタン共重合体について溶出試験を実施した結果、柔軟性エポキシ・オキセタン共重合体の TOC 溶出量が EPDM 系より大きいことが判明した。</p> <p>30 mmφ以下の試験片による水素透過率測定法を確立し、汎用加硫系を用いた EPDM 加硫剤、②において設定された配合による加硫剤の水素透過係数を測定した。</p>	○	引き続きサブテーム(1)、(2)で作製される試験体の評価を進める。劣化試験について、現状1000時間の浸漬時間が必要であるが、特にスクリーニングの段階では短時間での評価が求められるため、加速評価法を検討する。
④マテリアルズインフォマティクスによる高速架橋エラストマー材料分子設計	既存のゴム材料データを教師データとして用いた平均二乗誤差 0.1 以下となるゴム材料物性予測システムの構築	汎用の加硫系を用いた EPDM 系加硫剤の圧縮永久ひずみ (CS) に関する文献データを調査し、予測モデルを作成した。CS 目標値達成のための物性値、配合の特徴を検討した。 脂肪族エポキシ系予測モデルとして、ガラス転移温度 $T_g < -40^\circ\text{C}$ となる化合物探索 MI モデルの作成を進めているが、文献データが少ないため簡易データ取得法を開発した。12 検体について、ガラス転移温	△	汎用加硫系およびクリック反応加硫剤を用いた EPDM 加硫剤の物性の相関検討を行い、クリック反応加硫系についての配合設計を実施する。 脂肪族エポキシ系エラストマー材料に関する文献がほとんどないため、文献から教師データが得られない。開発しガラス転移温度の高効率測定システムを活用し、教師データを蓄積し、解析を行う予

		度を同時に簡易計測可能な装置を開発した。		定。
--	--	----------------------	--	----

3.2 研究開発の詳細

サブテーマ(1) クリック反応による EPDM 高速加硫系の探索

高速加硫可能なクリック反応系および対象ポリマーの絞り込みを行うことを目的として、クリック反応架橋剤を合成し、市販 EPDM に対するモデル架橋反応を行い、反応の進行を動力学的に調査した。今年度はニトリル N-オキシドを選択し、クリック反応架橋剤を合成した。図 3 に EPDM のジエン成分のモデル化合物とニトリル N-オキシド架橋剤との反応を赤外吸収スペクトルにより追跡した結果を示す。EPDM の架橋性官能基であるエチリデン基、ビニル基をもつジエン成分のモデル化合物として 1-エチリデンシクロヘキサンおよびビニルシクロヘキサンを選択し、反応時間の経過に伴うニトリル N-オキシド基の赤外吸収ピークの減衰からエチリデン基、ビニル基それぞれとニトリル N-オキシドの反応速度を評価した。その結果、ビニル基はエチリデン基の約 20 倍の反応速度であることが判明した。これにより、ジエン成分にビニル基を持つビニルノルボルネン (VNB) を用いた VNB-EPDM を選択して検討を進めることとした。

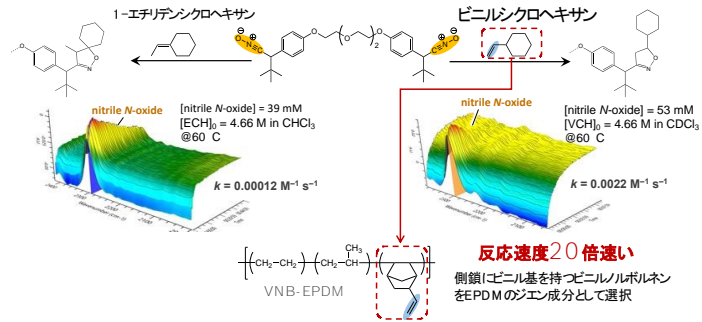


図 3 モデル化合物を用いた反応速度の検出

EPDM の架橋性官能基であるエチリデン基、ビニル基をもつジエン成分のモデル化合物として 1-エチリデンシクロヘキサンおよびビニルシクロヘキサンを選択し、反応時間の経過に伴うニトリル N-オキシド基の赤外吸収ピークの減衰からエチリデン基、ビニル基それぞれとニトリル N-オキシドの反応速度を評価した。その結果、ビニル基はエチリデン基の約 20 倍の反応速度であることが判明した。これにより、ジエン成分にビニル基を持つビニルノルボルネン (VNB) を用いた VNB-EPDM を選択して検討を進めることとした。

サブテーマ(2) 脂肪族エポキシ樹脂などをベースとした熱硬化型エラストマー材料の探索

脂肪族エポキシ樹脂などをベースとした熱硬化型エラストマー材料の探索を目的として、エポキシ樹脂の速硬化性に着目し、各種脂肪族エポキシ化合物のアニオン/カチオン開環重合を検討した。熱カチオン重合開始剤を用いた開環重合系の検討結果から、1,4-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、ポリプロピレングリコール系 2 官能エポキシのカチオン重合において弾性のある硬化物が得られる

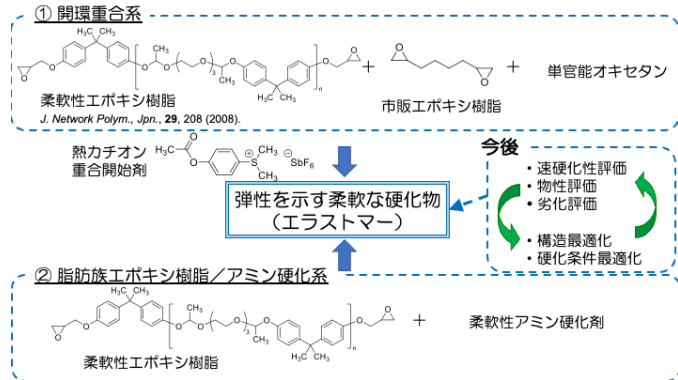


図 4 エポキシ系熱硬化型エラストマー

可能性が見出された。また、2008 年に DIC より報告されたビスフェノール A 型エポキシに柔軟成分としてエチレングリコールを導入した柔軟性エポキシ樹脂のカチオン開環重合について検討した結果、柔軟性エポキシ樹脂と単官能オキシタンとの共重合により柔軟かつ比較的強靱な硬化物が得られることが判明した。さらに、前述の柔軟性エポキシ樹脂の柔軟性アミン硬化系について検討した結果、柔軟性アミン硬化によっても弾性を示す柔軟な硬化物が得られることが判明した。図 4 に本プロジェクトで見出されたエポキシ系熱硬化型エラストマーの一例を示す。種々の配合により硬化物を作製し、物性評価を行った結果、

開環重合系、アミン硬化系とも初期の物性値の目標を概ね達成する配合が得られた。図 5 にアミン硬化系柔軟性エポキシ樹脂の引張試験の結果を示す。いずれの硬化物も破断ひずみが 100%を超え、汎用的なゴム材料と同様な応力ひずみ曲線が得られており、エポキシ樹脂の速硬化性を活かした熱硬化型エラストマー開発の可能性が確認された。

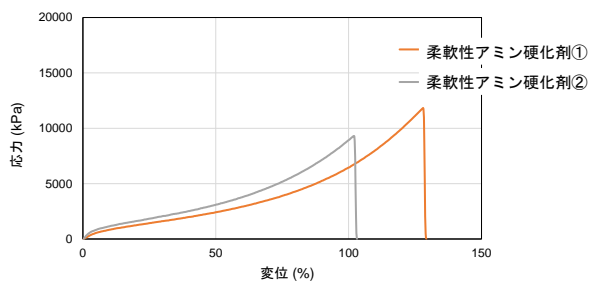


図 5 アミン硬化系柔軟性エポキシ樹脂の応力ひずみ曲線

サブテーマ(3) 新規エラストマー材料

加硫特性・物性・劣化特性計測

サブテーマ(1)、(2)において小スケールで合成された化合物、硬化物について小型・少量の試験体の計測によるスクリーニング手法確立を目的とし、目標として設定された力学的特性、水素透過特性の小型試験片による評価法、燃料電池運転環境を想定した模擬環境における溶出物評価法の検討を実施した。今年度はビニル基を持つ VNB-EPDM、エチリデン基を持つ ENB-EPDM について、従来加硫法により作製した純ゴムおよびカーボンブラック充てん材の物性の比較を JIS K6300、K6251、K6254、K6262 により行った。また、これらについて水、硫酸(pH3)、大気環境下で 95℃、1000 時間の劣化試験を行ったのちに同様に物性を評価した。これらの評価結果により、初期および劣化試験後の物性の目標値について、ゴムの配合設計により目標値を達成できることが示唆された。シール部材の

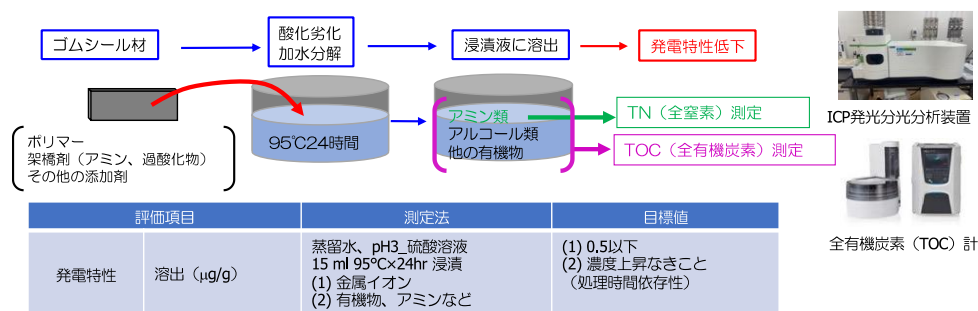


図 6 発電特性低下のメカニズムとその迅速評価法

発電特性に及ぼす影響を確認する目的で、サブテーマ(1)で選定した VNB-EPDM およびサブテーマ(2)でエラストマー特性が確認されたエポキシ硬化物について、pH3 硫酸溶液および蒸留水に 95℃、24 時間浸漬し、溶出物を評価した。その結果、全窒素量、全有機炭素量ともに過酸化物加硫 ENB-EPDM と同等の溶出量であったが、エポキシ硬化物の配合によっては全有機炭素の溶出量が多かった。

既存の ENB-EPDM 硫黄加硫、過酸化物加硫剤について、目標とする物性値と水素透過係数の相関を検討した。その結果、カーボンブラック充てん過酸化物加硫 ENB-EPDM により水素透過特性と力学特性の初期目標値の達成が可能であることが判明した。サブテーマ(1)、(2)で作製された小スケール試験片の水素透過特性評価を目的として、JIS K7126 に比べ小型 30 mm^φ程度の試験片で計測可能な水素透過試験装置を開発した。開発した水素透過試験装置により、各種配合の EPDM 材の水素透過係数は JIS K7126 による評価結果を再現し、いずれも目標とする水素透過率を達成することが判明した。また、サブテーマ(2)で作製されたアミン硬化系柔軟性エポキシ樹脂 1 種について水素透過特性を試測した結果、EPDM 材より小さい水素透過係数を示し、目標とする水素透過係数を達成

することが示唆された。

サブテーマ(4) マテリアルズインフォマティクスによる高速架橋エラストマー材料分子設計

配合の絞り込みに資する解析を行うことを目的として、マテリアルズインフォマティクスを用いた解析モデル作成を進めた。圧縮永久ひずみに関する EPDM 系ゴム材料のデータを教師データとするマテリアルズインフォマティクスを用いた解析モデルとして、設定された目標値のうち、最も達成が困難であることが想定される圧縮永久ひ

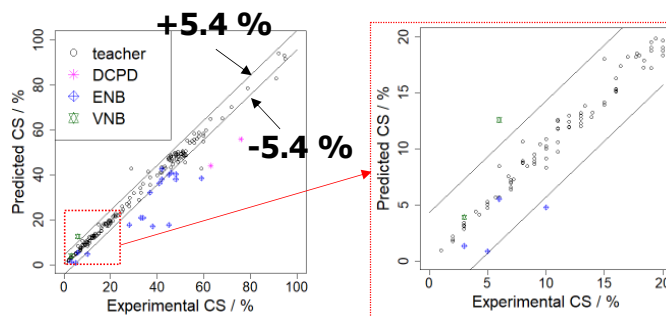


図 5 EPDM 材の圧縮永久ひずみ解析モデル

ずみについて、ゴム材料の配合から予測するモデルを作成した。評価した試験体の配合が明確であり、かつ圧縮永久ひずみの評価条件が明確に記載されていた 10 件の文献から得られた合計 175 個の圧縮永久ひずみデータに加えてサブテーマ(3)で取得したデータを学習させ、圧縮永久ひずみ予測モデルを作成した。教師データが少数であることから、k 分割交差検証法によってモデルを作成、評価した結果、平均絶対誤差が 5.4%程度の予測が可能となった。

エポキシ樹脂のガラス転移温度(T_g)予測モデルを作成した。エポキシ樹脂の T_g 予測モデルについては、熱硬化性エラストマーに関して、本プロジェクトで目的とする T_g が -40°C レベルとなるエポキシ樹脂に関する文献情報が極めて少なく、学習に活用しうる教師データが得られていない。サブテーマ(2)と連携し、コンビナトリアル法を用いた簡易な T_g データ取得法を検討し、 T_g データ取得のための装置開発を行った。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

- (1) サブテーマ(1)および(2)においては、それぞれ VNB-EPDM・ニトリル N-オキシド系架橋剤、柔軟性エポキシ化合物のアミン硬化系、柔軟性エポキシ化合物とオキサンの共重合系に絞り込み、それぞれ高速架橋反応と求められるエラストマー特性が両立できる可能性を見出した。今後、設定した基本材料について、後述のマテリアルズインフォマティクスによる解析モデルを活用し、これらの材料について、より広範囲な化合物系の探索および更なる絞り込みを効率的に実施し、求められるエラストマー特性と高速架橋反応速度を両立する材料を探索し、それぞれの材料系について基本配合を確立する。
- (2) サブテーマ(3)で進めている物性、劣化特性評価については、JIS に規定された手法で計測する基本的な物性評価法およびサブテーマ(1)および(2)において小スケールで合成された試験片についての計測法が整備された段階であり、これらの手法を活用してデータを蓄積し、絞り込みを進める。また、劣化評価については現状求められている劣化時間として 1000 時間のデータ取得を進めているが、これについて、劣化メカニズムの解明を進め、劣化メカニズムを踏まえてより効率よく劣化データが取得できるよう、更なる加速評価法の開発を進める。
- (3) サブテーマ(4)で進めているマテリアルズインフォマティクスをもちいた解析モデルの作成について、既存加硫系を用いた EPDM 材を対象とするモデルおよび低ガラス転移温度となる脂肪族エポキシ樹脂を対象とするモデルの開発を進めている。既存加硫系を用いた EPDM 材を対象とするモデルについては、今後、サブテーマ(1)においてニトリル N-オキシドなどの官能基を持つクリック反応架橋剤を用いた加硫剤との対応が課題であり、サブテーマ(1)における配合の絞り込みに伴って蓄積されるデータを教師データとして加えて学習を行い、クリック反応を用いた高速加硫系に関する分子設計に資するデータの提供を目指した検討

を進める。また、脂肪族エポキシ樹脂を対象とするモデルについては、文献データが得られないため、教師データを蓄積するため開発した高効率ガラス転移温度計測システムを用い、サブテーマ(2)の分子設計、配合設計に伴い蓄積されたデータを中心として、より広範囲の化合物を対象とする低ガラス転移温度となる脂肪族エポキシ硬化物のデータ計測を進め、分子設計、配合設計に資するデータの提供を目指した検討を進める。

- (4) 上記を踏まえ、クリック加硫系による EPDM 材、脂肪族エポキシ材の絞り込みを行い、目標値を満足する高速加硫エラストマー材料の絞り込みを行い、材料メーカー、スタックシール部材メーカーの協力を得てスタックシール部材の施策および評価を進める。

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

本プロジェクトは、2030～2040 年ごろに上市される FCV に搭載される燃料電池スタックへの適用を目指し、そのシール部材として使用される高速架橋エラストマー材料を開発することを目的とする。このため、4 年間で想定する本提案の研究期間の後半では材料を絞り込んだうえで企業と連携し、検討を進める材料設計指針に基づく材料開発を進め、研究期間終了後、本提案の成果として策定された開発方針を活用し開発を進める。具体的な開発を進める際には、関係する企業、機関と協議の上、共同研究開発、あるいは守秘契約などにより必要な体制を構築して推進する予定である。

燃料電池スタックシール材について、所要の性能を満足した上でのコスト低減、製造プロセスに要する時間の短縮が求められており、材料メーカー、シール部材メーカーが連携の上高速架橋型エラストマー材料の開発が進められている状況である。高速架橋型エラストマー材料を用いた燃料電池スタックシール材は、製造プロセスの短縮のため架橋に要する時間の短縮、水素透過の抑制、かつ所要の機械的特性を示すことが求められ、さらに、燃料電池のシール部材由来の溶出物等により発電性能に影響を与えないことが必須である。このような観点で高速架橋型エラストマー材料を開発する必要がある。現状は、さまざまなエラストマーの高速架橋反応が期待される素反応系が開発されており、これらのゴム素材への適用についても検討されている。これらの素反応をエラストマー材料、あるいは熱硬化型エラストマー材料への適用を検討する上で、水素透過特性および燃料電池発電環境における溶出物とエラストマー材料の構造の相関はまだ十分解明されていない。このため高速架橋型エラストマー材料は基礎的なデータの蓄積が必要なフェーズであると考えた。基礎的な研究フェーズでは実験室スケールで得られる開発材の水素透過特性と機械的特性、燃料電池発電環境での溶出特性の評価法の開発、所要の特性を有する高速架橋型エラストマー材料、燃料電池スタックシール材の開発の基盤となる材料設計指針、基礎データが整備されていないのが現状であり、これらを整備した上での高速架橋型エラストマー材料の開発が必要であるとの意見・要望が、FCV メーカー、シール部材メーカーなど、関係各位との議論の上明らかになったことから本プロジェクト提案し、採択された。このような背景を踏まえ、本プロジェクトを推進している。

(2) 成果の実用化・事業化に向けた見通し

本プロジェクト推進時、自動車メーカー、シール部材メーカー、材料メーカー等関係者との議論の場として燃料電池スタックシール部材開発検討委員会を設置し、事業の進捗を共有しながら、関係企業の意見を反映して研究開発を推進している。当該委員会を通じ、既にこれらの自動車メーカー、シール部材メーカー、材料メーカー等と燃料電池スタックシール材の要求特性について議論し、課題を共有している。本プロジェクトにおける成果は、2030～2040 年ごろに上市される FCV に搭載される燃料電池スタックシール部材への適用を目指した高速架橋型エラストマー材料開発に活用され、開発フェーズに応じて材料メーカー、機器メーカー、車両メーカーと

連携の上、スタックシール部材開発およびその適用開発を進める予定である。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

なし

課題番号（管理番号）： PE15

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／燃料電池セパレータ用ラミネート金属・高分子ナノコンポジット(NC)フィルムの研究開発」

実施者： 国立大学法人神戸大学、学校法人甲南学園（甲南大学）、積水化学工業株式会社

期間： 2021年6月～2025年3月

1. 研究開発概要

本申請では、次世代の低接触抵抗・高耐食性セパレータの実現を目指し、新しいセパレータラミネート用「ナノコンポジット（NC）フィルム」の合成技術の確立と、基材へのラミネートプロセスの開発を行う。神戸大学が基材粒子となる異形粒子の合成、甲南大学が基材粒子表面上の選択的導電化、積水化学がスケールアップおよびラミネートプロセス技術の検討を行う。具体的には、耐腐食性のポリマー相と導電相が入り交じったナノコンポジット（NC）フィルムの作製をめざす。本申請で開発する NC フィルムはこの異形導電性マイクロ粒子をビルディングブロックとした複合フィルムであり、金属セパレータの耐食性向上と高電気伝導性の両立および低コスト化を可能とする革新的材料である。またベースとなるポリマーが可塑性を示すため、凹凸の激しいカーボンクロスと接触した時、形状追随性を示して接触面積を増加することを期待している。接触抵抗が $5 \text{ m}\Omega\text{cm}^2$ 以下、かつ 120°C 以上、 $\text{pH}3.0$ の酸性水溶液に対し優れた耐食性を示す NC フィルムの開発を目標とする。これによりセパレータ基材として安価なアルミニウムの使用が可能となり、さらに製造コストを低減でき、燃料電池の爆発的普及に貢献できると期待される。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

産業界のニーズとしては、セパレータを長期使用可能とするため、生成酸性水からの保護と同時に、ガス拡散層との接触抵抗の低減を同時に満たすことが求められている。現在、他社や他プロジェクトでは、ほとんどが金属セパレータの表面処理によりその開発を行っているが、未だ多くの課題は残っているとの認識である。本課題は、耐食性と電気伝導性を有するラミネートフィルムを開発することを目指した、全く新しい方向からの課題解決法である。開発目標としては、ラミネートフィルム物性に対するこれまでの基準がないため、現存のセパレータの物性および他分野でのコーティングフィルムでの要求物性値などを基準にして、以下の開発目標をたてている。

最終目標値としては、①NC フィルムの水蒸気透過度：水蒸気透過度 $3 \text{ g/m}^2\cdot\text{day}$ 未満、②NC フィルムの接触抵抗： $5 \text{ m}\Omega\text{cm}^2$ 以下、③NC フィルムの耐食性：塩水サイクル・噴霧試験(60°C 、 $90\%\text{RH}$ 、 240h)での孔食面積比率 0.2% 以下、④NC フィルムの歩留： 98% 以上、⑤圧空成形時のピール強度 1.0kgf/cm 以上、⑥ 120°C 、 $\text{pH}3.0$ の酸性水溶液の腐食環境下において、72 時間後の電気抵抗および密着性が初期値の 90% 以上を維持すること。（中間目標：①水蒸気透過度 $6\text{g/m}^2\cdot\text{day}$ 未満、②NC フィルムの接触抵抗： $10 \text{ m}\Omega\text{cm}^2$ 以下、③NC フィルムの耐食性：塩水サイクル・噴霧試験(60°C 、 $90\%\text{RH}$ 、 240h)での孔食面積比率 1.0% 以下、④NC フィルムの歩留： 95% 以上、⑤圧空成形時のピール強度 0.8kgf/cm 以上、⑥ 100°C 、 $\text{pH}3.0$ の酸性水溶液の腐食環境下において、48 時間後の電気抵抗および密着性が初期値の 90% 以上を維持) をあげている。

これらの目標値は、関心表明を提出して頂いているユーザーとの打ち合わせの上で設定したものであり、妥当であると考えている。また、上記の様に目標値として数値化しているため目標の達成度としては非常に評価しやすいと考えている。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
異形粒子の面積比制御	相互作用部分/フィルム形成部分の面積比を 0.1~0.9 で制御	ベースポリマーの種類にかかわらず制御可能。現在 0.4~0.9 の制御に成功	○	これまで、アニオンによるイオン基を用いていたが、カチオンについても同様にできるか検討。
異形粒子上に部位選択的に析出した金属の膜厚	50~200nm の範囲で制御	球状粒子に対して、膜厚 100~350nm の範囲で制御することに成功	△	表面の官能基密度が不足していることが判明。密度を上げること、この密度でも導電性材料を複合可能な方法を検討する。
粒子の生産技術確立	乾燥重量として 0.5kg/ロットの生産技術開発	検討段階粒子のバッチアップ製造プロセスを工場製造部隊と検討	○	モデル粒子についての合成を実際に行っていく。
NC フィルムの膜厚制御	20 ~ 100 μ m (\pm 10 μ m)の範囲で制御する技術の確立	25~100 μ m の範囲での制御に成功	○	厚み制御に成功したので、次に大面積化を目指す。
圧空成形時のピール強度	0.5kgf/cm 以上	SUS 基材にコートした試料において、ピール強度 0.3kgf/cm を達成	○	耐水蒸気透過性および付着力を両立したベースポリマーを選定する
耐腐食性	80℃、pH3.0 の酸性水溶液の腐食環境下において、24 時間後の電気抵抗および密着性が初期値の 80%以上を維持	ビルディングブロック粒子の検討が遅れているため、今年度、平面フィルムに対し作製した合金皮膜の耐食性評価を行い、合金種固有のデータ蓄積を行う。	×	部分 Au 置換による腐食の低減。さらには、導電材料として金属系からカーボン系への転換も検討を考えている。

3.2 研究開発の詳細

(1) (1) 金属相互作用部分/フィルム形成能部分の表面積比の最適条件の検討

異形粒子の金属相互作用部である凸部とフィルム形成部である凹部の面積比（定量的には粒子表面における凹部の専有面積）を 0.1~0.9 に制御することを中間目標に挙げているが、合成条件を系

統的に変化させることにより現在、図1に示すように作製条件を制御することにより、0.4～0.9まで制御できており、十分に達成出来ると考えている。

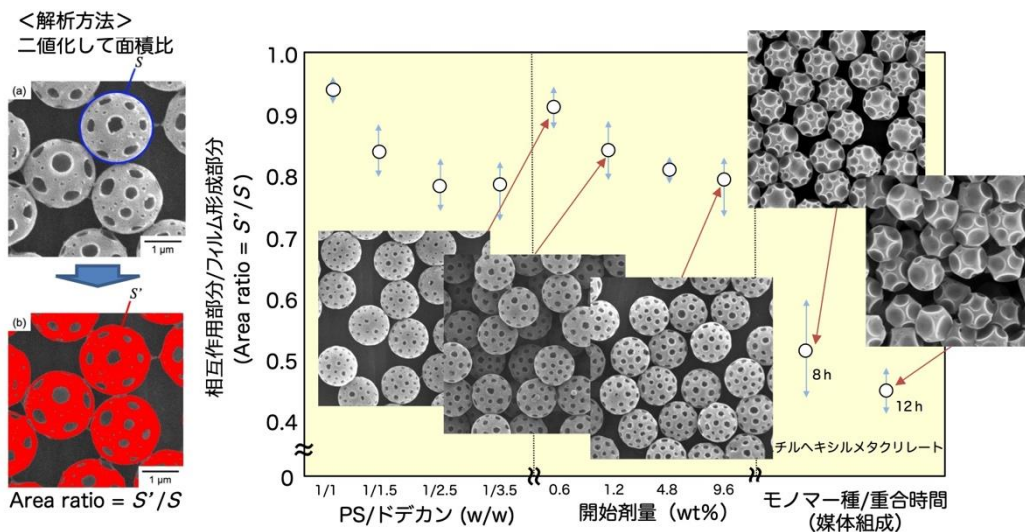


図1 異形粒子の相互作用部分/フィルム形成部面積比率と各種作製条件の相関図

(2) マイクロ粒子への金属ナノ粒子の部位選択的吸着および無電解めっきによる導電化

モデル粒子として異形化の前の真球状粒子を使って粒子表面の導電化を行った。具体的には、あらかじめパラジウム触媒核を、モデル粒子表面部分的に吸着させ、これを触媒核とする無電解めっきにより金属被膜の形成を試みた。中間目標として2023年3月までに金属皮膜の膜厚を50～200nmの範囲で制御する技術を開発することとしているが、図2に示すように現在までに100～350nmで制御可能であることを明らかにしており、さらに膜厚によらず均一な銅ニッケル合金膜が出来ていることもX線回折の格子定数より明らかにしている。なお、別アプローチの湿式還元処理による導電化については、内部へのイオン導入率が悪いので、上記方法に絞って進めることとした。

析出した皮膜厚みのめっき処理時間依存性 Temp. 80 °C

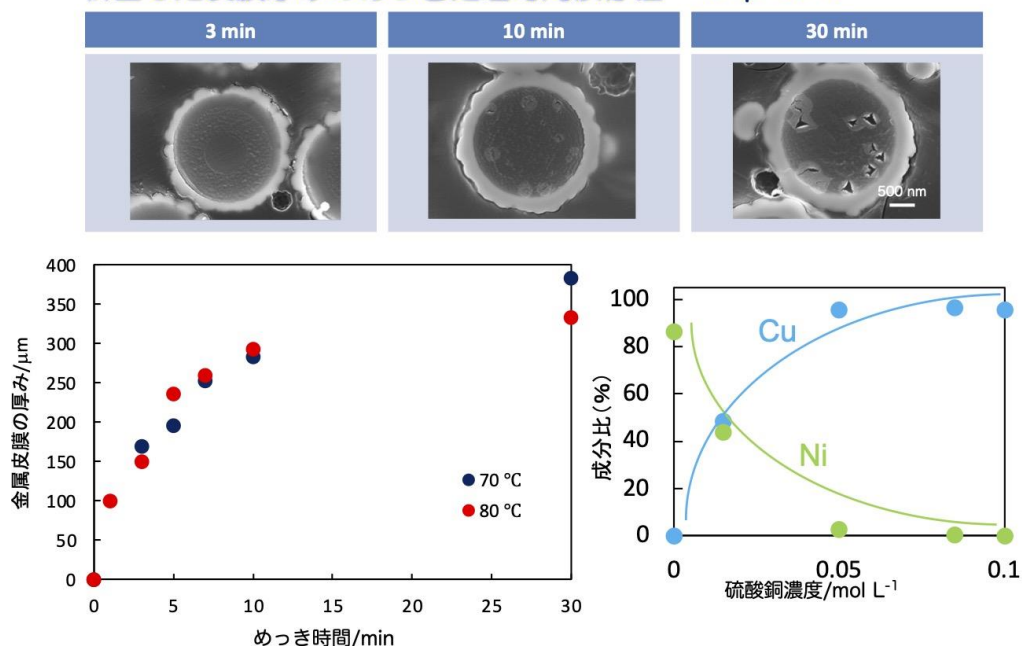


図2 粒子表面へのめっき処理時間と膜厚の関係および硫酸銅濃度による膜の成分比

(3) 微粒子生産技術の開発

上記、異形粒子および導電化技術の最適化が終わっていないため、既存技術を元に仮想的な製造プロセス及び設備を考慮したプロセス検討を始めている。

(4) NC フィルムの膜厚制御

モデル粒子としてバインダー粒子を用いてナノコンポジットフィルムの膜厚制御について検討を行った。試作機にて溶液キャスト方式で PET 基材上に 50mm 角のフィルムを作製し、測定回数 5 回を行った結果を表 1 に示す。狙い通り、厚みの制御ができることを明らかにした。さらに、実際にモデル系として真球状粒子に導電化した粒子を用いて同様にフィルムを作成したところ、強度も十分なフィルムを作成することに成功している。

狙い厚み	平均厚み	最大厚み	最小厚み
25μm	25.9	29.2	23.6
50μm	53.2	56.9	50.3
75μm	75.9	80.2	72.9
100μm	100.3	104.3	95.8

表 1 溶液キャスト法にて作製したフィルムの計算値と実測値の相関

(5) 圧空成形時のピール強度

上記、フィルムを用いて、実際に SUS 基板に熱圧着した後の 90°ピール評価を実施した。実験は導電粒子の含有量を 0~10wt% にすることにより仮想的に粒子表面の導電成分の割合が増えた際のピール強度を実験曲線より外挿値として求めた (図 3)。導電化成分の表面割合を 50% とした際にはピール

強度が 0.3kgf/cm と中間目標である 0.5 には届かなかったが、これは、ベースポリマー種の選定及び基板の表面処理により十分に達成できると考えている。

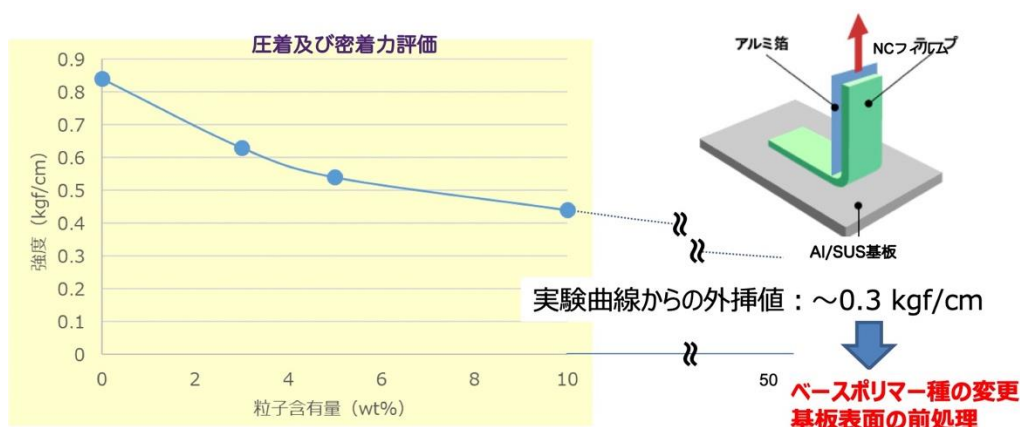


図3 アルミニウム基板へのフィルムの90°ピール試験力とフィルム内導電粒子含有量の関係

(6) NC フィルムの耐腐食性の検討

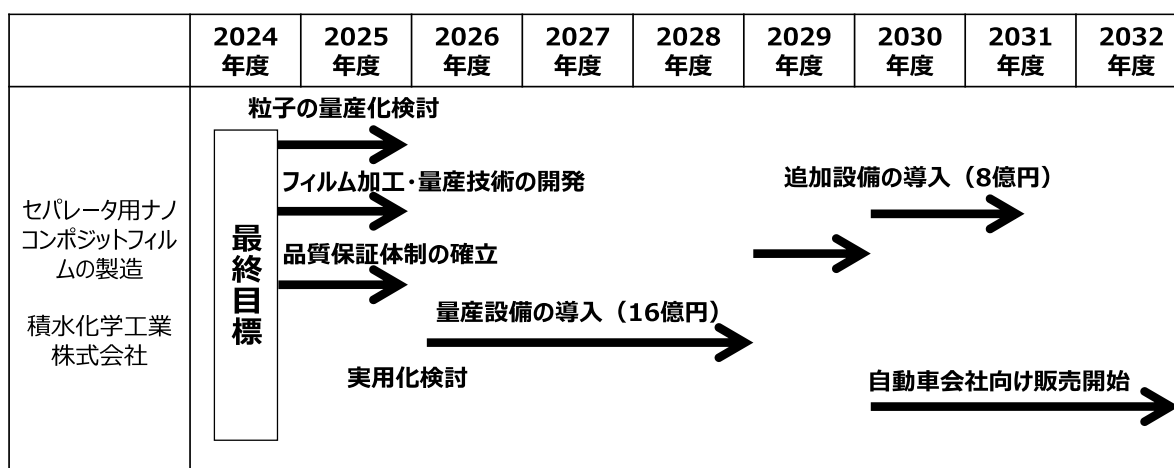
実際に得られたフィルムを用いて、関心表明企業および評価解析プラットフォームと連携して、8月下旬に測定を実施する予定である。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

- (1) 高分子微粒子の異形化の制御および、微粒子上の官能基を利用した合金めっきの厚さおよび組成制御に成功した。しかしながら、異形化した際の硫酸基の官能基密度が減少しており（一つの官能基がしめる占有面積がパラジウムイオンに最適な 0.5 nm^2 からほぼ倍の 0.9 nm^2 に広がっていた）、イオンの吸着量が減少するため異形化粒子のめっきが困難であった。これは異形化プロセスの際に使用するノニオン性分散安定剤が表面に吸着するためであると考えられ、イオン性の分散安定剤に変更することにより解決の可能性がある。
- (2) めっきにより得られる銅ニッケル合金膜の耐食性について、バルク系により同時に検討した。その結果、酸性条件下でのイオンの溶出量が多く、組成を検討しても、目標値である $10^{-10} \text{ mol/cm}^2/\text{h}$ 届かないことが予想されるため、第三成分添加による合金化や合金膜の最表面の金置換について解決方法の検討をおこなう。一方で、NC フィルムの合成におけるビルディングブロックとして異形粒子への不均一な導電化というコンセプトは変更せず、導電相を耐食性合金からナノカーボン（グラフェンおよびカーボンナノチューブ）へ拡大することを検討する。

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) 現時点における実用化・事業化に関する計画に関しては、同じプロジェクトグループの積水化学工業を事業化企業として、下記に掲載しているスケジュール表に従い計画をしている。の最終目標の達成を目指す。



(2) 本技術の実用化・製品化は、以下の様に想定している。

①特殊形状の導電粒子の量産化

事業化予定である積水化学工業では、既に様々な異形粒子の開発や量産技術に関する知見があり、それらを活用することで、これらの課題は解決が可能と想定しており、本開発にあたっては水口工場のファインケミカル事業とその製造部の協力を得て開発を推進する。

②超薄膜フィルムの量産化

現在想定されているセパレータ表面での表面保護層に許容される厚みが10 μ m以下とされており、そのフィルムを熱圧着等の手法でセパレータ表面に貼付するために少なくとも20 μ m以下の超薄膜フィルムを量産化する技術が必要となる。その点、既に基板加工用の薄膜フィルムが製品化されており、そこで培われた開発力・量産実績において他社よりも優れた適用性を有すると考えられる。多賀工場の機能テープ事業部にてそれらの製品を量産・販売しており、同事業部の協力を得て開発を推進する。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2022年9月6-7日	表面技術協会 第146回講演大会	イオン交換基を有する高分子微粒子上への無電解合金めっきと皮膜構造解析	多田知代、高嶋洋平、鶴岡孝章、鈴木登代子、南秀人、赤松謙祐
2	2022年9月5-7日	第71回高分子討論会	炭化水素存在下でのシード分散重合によるポリメタクリル酸メチル粒子の形状制御	池田颯、高橋史弥、藤井真奈、鈴木登代子、南秀人

課題番号（管理番号）： PF01

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／評価解析プラットフォームマネジメント」

実施者： 技術研究組合 FC-Cubic、みずほリサーチ&テクノロジーズ株式会社

期間： 2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

我が国では、FCV用PEFCの開発は、運輸部門でのCO₂排出量の大半（約85%）を占める乗用車等の低炭素化に貢献するものであり、このため、2015年～2019年度に「固体高分子形燃料電池利用高度化技術開発事業」を実施し、2030年頃のFCVのコスト削減を目的とした貴金属使用量削減技術に関して一定の成果を挙げてきた。他方、産学官の有識者と議論を重ねて策定したNEDO技術開発ロードマップにおいて2030年以降に目指すべき値として設定された「航続距離：800km以上」、「スタック出力密度：6kW/L以上」、「最大負荷点電圧：0.6V以上」、「作動最高温度：100℃以上」及び「燃料電池システムコスト<0.4万円/kW」を実現するためには、更なる研究開発が必要となっている。また、世界に先駆けて我が国の自動車メーカーがFCVの量産を開始したことを受け、自動車メーカーの当初想定とは異なる新たな課題が明確になりつつあり、車載用燃料電池の本格的普及を実現する為には、これまでの成果に加えて前述の事業では取り組んでこなかった新たな共通課題を解決することが必要となる。

このような背景のもと、我が国の研究開発を加速させるためには、従来電気化学に縁の薄かった新たな研究者も含めてオールジャパンの体制で一致団結してそれぞれの知見を集約していくことが有効であると考えられることから、本事業のなかで、燃料電池の材料サンプルを共通的な指標で評価解析してその結果を研究者へフィードバックするとともに、産業界が直面する技術的な課題の解決に取り組む「PEFC評価解析プラットフォーム」を構築した。

PEFC評価解析プラットフォームは、a. マネジメントグループ、b. シミュレーショングループ、c. 材料分析／解析グループ、d. 電気化学的特性測定グループ、e. マテリアルズ・インフォマティクスグループの5つの研究開発グループで構築される。

上記2030年の目標を達成するためには、現行FCVからの大幅な性能向上が要求されるが、PEFCを構成する材料・部材の一部の特性向上で達成されるものではなく、MEAを構成する触媒、担体、アイオノマー、電解質膜、更にGDL・MPL、セパレータなど全ての材料・部材の特性向上の積み上げで達成されるものであり、かつそれぞれの耐久性の向上と両立させることが必須である。

PEFC評価解析プラットフォームの構築の意義は、PEFCの基幹材料であるMEAおよびMEAを構成する触媒、担体、アイオノマー、電解質膜、GDL・MPL、セパレータ等、本研究開発事業で新規に開発された材料に対して、産業界のニーズを反映した共通の計測・解析手法およびプロトコルで評価することで、目標の達成度や達成に向けた改良指針を提示することである。これにより、材料開発者の目標達成までのプロセスを明確化させることが可能となり、また材料開発の目標達成状況を公正かつ客観的に評価する基準が構築される。

また、本プラットフォーム内で開発した共通基盤となる計測・解析技術（シミュレーション、材料分析／解析、電気化学特性測定、マテリアルズ・インフォマティクス）を産業界及び学术界へ普及・活用させることも重要な役割である。また、これらの共通基盤技術ならびにPEFCの国内外の政策、市場、研究開発の最新動向を含めた対外的な情報発信を積極的に行い、これまで業界への参入障壁が高いと想定していたサプライヤーやスタック製造の新規プレーヤーの創出、電気化学に縁が薄かった材料研究者のPEFC研究開発への参画を促進

する。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

○中間目標（2022 年度 6 月）

評価解析プラットフォームの構築

- 材料開発者の情報秘匿を遵守するための NDA（秘密保持契約）を整備するとともに、マテリアルズ・インフォマティクスグループを主体に、メタデータを含む計測・解析結果の統一データフォーマットの整備、データ転送のスキームの構築、データベースへの蓄積を開始させる。
- 数種の方法サンプルを事例として、材料受入から材料特性の評価に必要な計測・解析内容の検討、本プラットフォーム内の材料分析/解析グループ、電気化学的特性測定グループへ評価の指示、最終的な計測・解析結果と材料の改良指針のフィードバックのサイクルを確立する。
- 産業界及び電気化学的特性測定グループと連携して共通の性能・耐久性評価プロトコル及び評価セルの確立に向けたマネジメントを行い、電気化学的特性測定グループの目標を達成させる。
- シミュレーショングループ、電気化学的特性測定グループ、材料分析/解析グループと連携し産業界で活用可能な PEM 劣化シミュレーターおよびプロセス-性能シミュレーターの構成要素モデルの開発、およびシステム要求からの材料開発の指針検討や将来のシステム展開を可能とするモデルベース開発（MBD）のベースモデルの整備に向けたマネジメントを行い、シミュレーショングループの目標を達成させる。
- PEFC 評価解析プラットフォームの研究開発への貢献可能性を示すため、最新のスタックの解析を行い、現状技術の到達レベル、その物性等の数値を明らかにするとともに、本事業で開発される材料との差異を示す。
- 日本国内の 2030 年の PEFC スタック性能目標達成のための技術アイテムを抽出するとともに各国の技術動向をまとめ、我が国で取り組むべき戦略と目標値を整理する。
- 1～2ヶ月に1回程度のオープンシンポジウムを開催する。PEFC の研究動向調査および国内外の水素・燃料電池動向を半期に1回程度オープンシンポジウムで発信し、電気化学に縁の薄かった研究者、燃料電池の開発・多用途活用へ関心を持つ企業の本プロジェクトへの新規応募などに繋がる効果を検証し、必要に応じて情報発信の改善点を抽出する。
- 材料研究者および OEM 等へのヒアリングによるニーズ・課題の抽出・整理を行い、2022 年度以降のアップデートすべきモデルの課題・改善点や対象とするアプリケーションの優先度を抽出し、シミュレーショングループにフィードバックする。また、シミュレーショングループで整備したモデルの解説書を作成しセミナーの準備を完了する。
- 我が国の FC システムが真に世界で競争力を有するための仕様を検討するために産学官のステークホルダーを糾合して議論する会議体（オールスター会議）を運営し、目指すべき方向性、各社の協調領域技術と個社で取り組むべき競争領域技術の区分、取り組むべき技術カテゴリー区分、その他必要事項の4点を整理して NEDO へ提言する。

○ 中間目標（2022 年度末）

- 共通となる性能・耐久性表プロトコル及び評価セルを確立させ、材料開発者の進捗状況を共通の基準で評価し、目標達成までのプロセスを明確化できるプラットフォームの整備を完了する。
- PEM 劣化シミュレーターおよびプロセス-性能シミュレーターの構成要素モデルの開発、MBD では電

極劣化モデルおよび多様なアプリケーションへ対応するためのシステムの基本モデルの開発を完了させる。

- 3か月に1回程度のMBDセミナーを開催する。NEDOプロジェクトに参画する産学メンバーへの活用を開始し、2023年度以降のアップデートすべきモデルの課題・改善点を抽出する。
- 2ヶ月に一回程度、セミナー型のオープンシンポジウムとワークショップ型のFCワークショップを定期開催する。オープンシンポジウムは産業課題を共有し燃料電池課初のコミュニティ形成促進を狙い、FCワークショップは本事業全体の成果の社会実装の加速を狙いとする。
- 世界の燃料電池を含む水素関連の政策動向・技術動向の情報を収集して日本国内の技術の立ち位置や課題を整理する。情報収集の方法としてAI技術を活用したツールの検討も行う。
- オールスター会議は、共通の要素技術のテーマを継続検討し、目指すべき方向性、各社の協調領域技術と個社で取り組むべき競争領域技術の区分、取り組むべき技術カテゴリー区分、その他必要事項の4点を整理してNEDOへ提言するとともに、具体的なNEDO事業として立ち上がったテーマについては、その研究グループとオールスターの間で委員会を運営し、研究開発の推進を支援する。

○最終目標（参考）（2024年度末）

本プラットフォームの全体マネジメントを通じて、以下の目標を達成する。特に、計測・解析技術の開発においては、産業界のニーズと技術課題を把握・整理し、世界の研究開発動向も加味して、シミュレーション、材料分析／解析、電気化学的特性測定及びマテリアルズ・インフォマティクスの各グループと密接に連携して高度化すべき技術開発テーマの抽出、優先度付けと具体的な計画を検討して各グループに指示し、目標達成に向けて厳格に進捗を管理するとともに、必要に応じて計画の修正を図る。

- 材料開発者の評価解析プラットフォームの活用を通じて、2030年のPEFCスタック性能目標の達成を見通すことができるPEFCの材料候補を創出することに貢献する。
- シミュレーション、材料分析／解析、電気化学的特性測定及びマテリアルズ・インフォマティクスの各グループで開発した計測・解析技術によって産業界で有効に活用できるシミュレーション、相互解析技術を実現し、世界最高水準のPEFC評価解析プラットフォームを構築する。
- 我が国で取り組むべき戦略と目標値を決定して関係者内で共有する。
- 2040年以降の燃料電池車ほか多用途展開を鑑みた技術ロードマップと取り組むべき戦略の方針を整理し、関係者で共有する。
- 3か月に1回程度のMBDのセミナーを開催する。NEDOプロジェクトに参画する産学メンバーからの活用成果およびモデルの課題を整理し、本プロジェクト終了後、産業界での更なる活用促進、維持・発展のための運用スキームを提示する。
- 「国民との科学・技術対話」のアウトリーチ活動を目的として、2ヶ月に一回程度の定期的なセミナー（オープンシンポジウムやワークショップ）を開催し、本事業全体の成果の社会実装の加速や、燃料電池開発のコミュニティ形成を継続的に促す。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
①プラットフォーム	材料研究 Gr との	20,21年度採択材料研		22年度以降採択事

の運用と有効活用に向けたマネジメント	NDA 締結、計測・解析結果の統一データフォーマットの整備、データ転送のスキームの構築によりデータベースへの蓄積を開始させる。	究 Gr との NDA 締結完了 標準データフォーマットの策定、データ転送プロトコルの構築完了 データベースへの蓄積開始 MI アプリの改良支援、事業者への展開をサポート	○	業者との NDA 締結 データ蓄積の加速と MI への活用のマネジメント
①プラットフォームの運用と有効活用に向けたマネジメント	材料受入、計測・解析内容の検討、PF 内各グループへの解析指示、最終的な計測・解析結果と材料の改良指針のフィードバックのサイクルを確立する。	材料解析に関する標準メニューの設定、解析依頼から結果の FB までの手続きと帳票を整備、22 年 6 月末現在で 22 グループ、282 サンプルの解析依頼を受託、結果の FB を実施	○	リードタイム短縮に向けた評価解析リソースの拡充 触媒、電解質膜以外の材料開発に対する解析メニューの設定
①プラットフォームの運用と有効活用に向けたマネジメント	共通の性能・耐久性評価プロトコル及び評価セルの確立に向けたマネジメントを行い、電気化学的特性測定グループの目標を達成させる。	材料メーカー、スタックメーカー等との連携を促し、電気化学評価の標準化に向けて PF 標準材料、標準セルを決定。標準セル設計、改定評価プロトコルを公開するようマネジメントを行った	○	HDV ロードマップ策定に対応した高温評価設備、プロトコルの設定の加速
①プラットフォームの運用と有効活用に向けたマネジメント	シミュレーショングループ、電気化学的特性測定グループ、材料分析／解析グループと連携し産業界で活用可能な PEM 劣化シミュレーターおよびプロセス－性能シミュレーターの構成要素モデルの開発に向けたマネジメントを行い、シミュレーショングループの目標を達成させる。	シミュレーション開発に必要なパラメータの取得やモデルの検証に必要な可視化技術の構築を目指して、材料分析・解析 Gr において解析技術の高度化に取り組むようマネジメントを行った	○	高度化された解析技術のシミュレーションへの適用についてグループ間での調整を実施し、解析技術の整理、さらなる高度化を検討する
②オープンシンポジウムの運営	1 ～ 2 ヶ月に 1 回程度のオープンシンポジウム	21 年度は 4 回のオープンシンポジウムを開催し、そ	○	オープンシンポジウムに加えて、より密な議論

	<p>ジウムを開催する。PEFCの研究動向調査および国内外の水素・燃料電池動向を半期に1回程度オープンシンポジウムで発信し、電気化学に縁の薄かった研究者、燃料電池の開発・多用途活用へ関心を持つ企業の本プロジェクトへの新規応募などに繋がる効果を検証し、必要に応じて情報発信の改善点を抽出する。</p>	<p>れぞれ、材料解析、シミュレーション、スタック生産技術、MI・自律実験をメインテーマにプログラムを実施、2000 前後のアクセスを記録した これらシンポジウム開催を実施することで産学官の課題共有、世界情勢、技術開発の方向性が明確となり、またプラットフォーム事業への理解と取り組みの共有により、より多くの英知を集める土壌ができた。</p>		<p>ができるワークショップを追加で開始している 両者を有機的に結合しながら情報共有、ツール展開を加速する</p>
③PEFC の研究開発動向調査と情報発信	<p>PEFCの研究動向調査および国内外の水素・燃料電池動向を調査し、半期に1回程度オープンシンポジウムで発信する。</p>	<p>国内・海外の学会における学術研究調査と海外の水素・燃料電池動向の俯瞰的調査およびオープンシンポジウムにて燃料電池関連の世界動向に関してタイムリーなテーマを選定し、オープンシンポジウムで計4回発信した</p>	○	<p>水素製造など燃料電池周辺テーマにも調査範囲を拡大し、水素社会構築に向けてのバリューチェーンを網羅していく</p>
④モデルベース開発の活用促進活動	<p>材料研究者およびOEM 等へのヒアリングによるニーズ・課題の抽出・整理を行い、2022 年度以降のアップデートすべきモデルの課題・改善点や対象とするアプリケーションの優先度を抽出し、シミュレーショングループにフィードバックする。モデルの解説書を作成しセミナーの準備を完了す</p>	<p>シミュレーショングループが開発した FC シミュレーションプログラム FC-DynaMo (バージョン 1.0) のリリースに向けて、LOI 提出企業向けの使用許諾契約 (プログラム改変権を含む) および一般公開向けの使用許諾契約の整備を支援した FC-DynaMo の LOI 提出企業向けに必要なモデルの解説書を作成した</p>	○	<p>FC-Dynamo の展開を加速し、そこから得られたFBを反映しながら産学に有用なツールとして改善を進める</p>

	る。			
⑤FCオールスター会議の運営	産学官のステークホルダーを糾合して議論する会議体（オールスター会議）を運営し、目指すべき方向性、各社の共通基盤技術と個社で取り組むべき競争領域技術の区分、取り組むべき技術カテゴリー区分、その他必要事項の4点を整理して NEDO へ提言する。	産学官連携で取り組むべき PEFC 業界の共通技術課題テーマとしてシール材と補機に注目し、シール材の開発を有力テーマとして議論を進めた シール開発の技術目標、評価解析手法の開発と共通プラットフォーム構造・生産工程に関する実施項目を取りまとめ、第7回 FC-Cubic オープンシンポジウムで発表した	○	採択されたシール材料開発テーマとの連携をすすめるとともに、新たにスタック製造技術に関するオールスター会議の運営を進める

3.2 研究開発の詳細

(1) プラットフォームの運用と有効活用に向けたマネジメント

①材料研究 Gr におけるマテリアルズインフォマティクス (MI) の活用の推進

NEDO 事業者を対象とした NDA 締結、計測・解析結果の統一データフォーマットの整備、データ転送のスキームの構築によりデータベースへの蓄積を開始させた。

MI グループとの隔週の定例会議を実施し、進捗の確認、進め方議論を行い、燃料電池評価解析データの NIMS データベースへの格納の推進のため、PEFC DATA Viewer「MIX Platform」(22年度改称) のアプリケーションの改良の支援、NEDO 事業者へ活用の働きかけを行った。

② 個別材料の評価解析推進にむけたマネジメント

材料受入、計測・解析内容の検討、PF 内各グループへの解析指示、最終的な計測・解析結果と材料の改良指針のフィードバックのサイクルを確立した。

評価解析依頼から解析指示、結果の取りまとめと委託者へのフィードバックまでの手続き、帳票を策定し、その材料解析の手続きに従って、材料研究グループからの解析依頼を受領し、解析を開始した。材料研究グループより提示された新規材料について、マネジメント G で材料測定・解析内容を検討し材料解析検討会議を実施した。材料評価結果の共有、方向性の議論を実施。22グループ 282 サンプルの評価を受託し、結果が出たものからフィードバックを行っている。

③ 共通の性能・耐久性評価プロトコル及び評価セルの確立に向けたマネジメント

共通の性能・耐久性評価プロトコル及び評価セルの確立に向けたマネジメントを行った。
電気化学評価の標準化に向けて産業界で商品化されているレベルの MEA 材料を材料メーカーと調整し供給していただくことに合意した。具体的には触媒、電解質膜、アイオノマー、GDL について標準材料を決定し、解析 PF 内で使用可能となった。また、標準セルの設計、標準プロトコルの改定を行い、それぞれホームページにて公開した。

④PEM 劣化シミュレーターおよびプロセス－性能シミュレーターの開発に向けたマネジメント

シミュレーション開発に必要なパラメータの取得やモデルの検証に必要な可視化技術の構築を目指して、材料分析・解析 Gr において解析技術の高度化に取り組むようマネジメントを行った。具体的には液水や氷の状態を可視化するイメージング、ラジカルスカベンジャー（Ce イオン）の移動パラメータを取得する Operando 蛍光 XAFS、膜劣化を定量化する小角 X 線散乱などの手法開発において、材料分析・解析グループと連携してその実験内容を計画し、さらにそこで用いるサンプルを電気化学的特性測定グループに作製を指示した。

(2) オープンシンポジウムの運営

21 年度は 4 回のオープンシンポジウムを開催し、それぞれ、材料解析、シミュレーション、スタック生産技術、MI・自律実験をメインテーマにプログラムを実施、2000 前後のアクセスを記録した。

これらシンポジウム開催を実施することで産学官の課題共有、世界情勢、技術開発の方向性が明確となり、またプラットフォーム事業への理解と取り組みの共有により、より多くの英知を集める土壌ができた。

21 年度は、新たに、第 1 回 FC ワークショップを開催した。2030 年以降の燃料電池ロードマップに沿った目標設定の共有と、新たな研究の創出を目的としてオープンシンポジウムとは異なり、参加者を限定しての開催とした。

シンポジウムが発信型フォーラムであるのに対して OEM とアカデミアがより密に議論する場を設けて課題解決に向けた活発な議論を行うことが出来た。事業の成果である FC シミュレーションプログラム FC-DynaMO、評価解析プロトコル、PEFC データベース・MI 解析ツール（MIX Platform）の普及の場としてもワークショップを活用してゆく。

(3) PEFC の研究開発動向調査と情報発信

国内・海外の学会における学術研究調査と海外の水素・燃料電池動向の俯瞰的調査およびオープンシンポジウムにて発信すべき燃料電池関連の世界動向に関してタイムリーなテーマを選定し、最新の国内外の情報収集と技術動向調査を継続し行った。

(4) モデルベース開発の活用促進活動

シミュレーショングループが開発した FC シミュレーションプログラム FC-DynaMo（バージョン 1.0）のリリースに向けて、LOI 提出企業向けの使用許諾契約（プログラム改変権を含む）および一般公開向けの使用許諾契約の整備を支援した。FC-DynaMo の LOI 提出企業向けに必要なモデルの解説書を作成した。

(5) オールスター会議の運営

産学官のステークホルダーを糾合して議論する会議体（オールスター会議）を運営し、目指すべき方向性、各社の共通基盤技術と個社で取り組むべき競争領域技術の区分、取り組むべき技術カテゴリー区分、その他必要事項の 4 点を整理して NEDO へ提言を行った。

産学官連携で取り組むべき PEFC 業界の共通技術課題としてシール材に注目し、シール材の開発を有力テーマとして議論を進めた。

第 7 回 FC-Cubic オープンシンポジウムで、「シール開発の技術目標設定、評価解析手法の開発、共通プラットフォームの構築、構造・生産工程に関する実施項目」について発表した。

新たに、スタック製造技術に関するオールスター会議の運営の準備を進めた。第 6 回 FC オープンシンポジウムにおいて、燃料電池生産技術課題と未来についてオールスターメンバにより生産技術課題の発信を行った。第 7 回 FC オープンシンポジウムのポスターセッションにおいてさらに詳細な解説を行って、幅広く技術を保有する設備メーカーを対象に提案を促す活動をおこなった。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) プラットフォームの運用と有効活用に向けたマネジメント

①材料研究 Gr におけるマテリアルズインフォマティクス (MI) の活用の推進

NEDO 事業者の新規材料の解析データのほか電気化学 G、評価解析 G データ蓄積の加速を行い NIMS データベースへの移管を進める。また、燃料電池特有の CV 解析などのツールを MI 解析ソフトに搭載を促して、事業者が MI 解析を容易に行いやすい環境を整備する。FC ワークショップなどでデータ移管、MI 解析ツールの紹介ならびに講習会を通して普及の促進をすすめ、全体として、開発効率の向上、開発リードタイムの短縮を図る。

材料開発者の評価解析プラットフォームの活用を通じて、2030 年の PEFC スタック性能目標の達成を見通すことができる PEFC の材料候補を創出することに貢献する。

②個別材料の評価解析検討会議の運営

材料研究グループから頂いたアンケートでのご要望、新たに採択された材料研究グループのテーマに対応し、解析依頼からフィードバックまでのリードタイム短縮に向けた評価解析リソースの拡充、触媒、電解質膜以外の材料開発に対する解析メニューの充実を図る。評価解析検討会議は参加メンバーの参加率向上、日程調整の効率化の観点から Web 会議を主体としつつ、より密なコミュニケーションを目指して対面会議も増やしていく。

③共通の性能・耐久性評価プロトコル及び評価セルの確立に向けたマネジメント

材料研究グループから提供していただく材料を評価する際には、それ以外の材料は PF 標準材料を用いるように変更していくとともに、標準材料を用いた MEA をベンチマークとして材料のレベルを判断していく。また、HDV ロードマップ策定に対応した高温評価設備、プロトコルの設定を加速する。

④PEM 劣化シミュレーターおよびプロセス・性能シミュレーターの開発に向けたマネジメント

高度化された解析技術のシミュレーションへの適用についてグループ間での調整を実施し、解析技術の整理、さらなる高度化を検討する。また、初期のトライアルで測定手法の妥当性を検証し、来年度以降測定精度を向上して具体的なイメージ像や数値の取得を目指す。

(2) オープンシンポジウムの運営

定期的なセミナー（オープンシンポジウムやワークショップ）の開催を今後も 2 ヶ月に 1 回程度継続し、本事業全体の成果の社会実装の加速や、燃料電池開発のコミュニティ形成を促す。

(3) PEFC の研究開発動向調査と情報発信

水素製造など燃料電池周辺テーマにも調査範囲を拡大し、水素社会構築に向けてのバリューチェーンを網羅していく。主として、①国内外研究開発動向の調査と情報発信、②水素・燃料電池動向の俯瞰的調査と情報発信、に取り組む。

(4) モデルベース開発の活用促進活動

FC-Dynamo の展開を加速し、そこから得られた FB を反映しながら産学に有用なツールとして改善を進める。

3 カ月に 1 回程度の MBD のセミナーを開催する。NEDO プロジェクトに参画する産学メンバーからの活用成果およびモデルの課題を整理し、本プロジェクト終了後、産業界での更なる活用促進、維持・発展のための運用スキームを提示する。

(5) オールスター会議の運営

採択されたシール材料開発テーマとの連携をすすめるとともに、新たにスタック製造技術に関するオールス

ター会議の運営を進める。

FC 生産技術に関しては、2040 年ロードマップに策定をすすめ。生産技術に関する開発目標、開発課題を明確にして、アカデミアへの働きかけを行い新規事業への応募に繋げる活動を行う。

生産技術に関する課題共有活動を関係学会、展示会等で継続的に発信を行い、より多くの英知を集める土壌を形成する。

4. 成果の実用化・事業化に向けた取組及び見直しについて

(1) マネジメント Gr における実用化・事業化の取り組みと見直し

シミュレーション (MBD)、マテリアルズ インフォマティクス (MI) など広く一般の利用により、研究の加速と利用者の研究開発適用による受益を両立できるテーマについてワークショップを通じて公開するとともに、関心表明企業との契約等のマネジメントを実施している。今後もシンポジウムやワークショップを通じて継続的に取り組む。

(2) 具体例 FC システムシミュレータ FC-Dyna Mo」の一般公開

MATLAB 版の公開にあたり、ワークショップの開催運営による技術紹介を実施。また、関心表明企業との交渉、契約書の取り交わしなどマネジメント業務を実施中。7 月末現在 14 法人より問い合わせを受け、7 法人に公開済み。今後も普及につなげるとともに、各法人からのフィードバック反映を通じ、シミュレーション開発を加速する取り組みを実施予定。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	Jul-21	FCH/燃料電池部会	PEFC 高性能・高耐久化のための新しい評価・解析の取組	辻 庸一郎○
2	Dec-21	MATERIALS RESEARCH MEETING 2021	NEDO's FC-Platform - A novel framework specialized in analysis and evaluation for PEFCs	○K. Amemiya, S. Oyama, Y. Tsuji, S. Shimotori (FC-Cubic TRA), M. Yoneda (Mizuho R&T), M. Kawase (Kyoto Univ.), H. Imai (NISSAN ARC), K.Sodeyama (National Inst. for Materials Sci.)
6	Jul-22	京都大学産学連携講座	燃料電池の研究開発・普及を加速するために	辻庸一郎○
3	Feb-22	水素・燃料電池関連分野進出セミナー	燃料電池が拓く水素社会～燃料電池自動車の開発の現	大仲 英巳○

			状と課題～	
4	Mar-22	令和4年電気学会 全国大会	燃料電池自動車（FCV） の開発動向と今後の展望	大仲 英巳○
5	Apr-22	第69回 応用物理 学会春季学術講演 会	燃料電池自動車が拓く水素 社会	大仲 英巳○
6	Sep-21	FC-Cubic HP	産業界の研究 Tool/Know How のカタログ公開	
7	May-22	FC-Cubic HP	電気化学評価用の FC- Cubic 小型燃料電池セルの カタログを公開	
8	Jul-22	NEDO ニュースリリー ス	世界初、パルス中性子ビーム で車載用燃料電池セル内部 の水の可視化に成功	

課題番号（管理番号）： PF02

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／長寿命化・高性能化達成のための設計シミュレーターの開発」

実施者： 国立大学法人京都大学（国立大学法人東京農工大学）、国立大学法人東北大学、国立大学法人九州大学、国立大学法人東京大学、国立大学法人東京工業大学（国立研究開発法人産業技術総合研究所）

期間： 2020年7月～2025年3月（2021年3月追加、2021年8月追加）

1. 研究開発概要

燃料電池の材料サンプルを共通的な指標で評価して研究者へフィードバックする「PEFC 評価解析プラットフォーム」構築の一環として、PEM 劣化モデルおよびプロセス・性能シミュレーターの構成要素モデル、およびモデルベース開発（MBD： Model based development）の基盤技術としての PEFC システムモデルを構築し、産業界で活用可能な数値シミュレーターを開発する。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

新規に開発された材料に対して、物性値や特性値から、セルの初期性能ならびに耐久性を予測する。さらに MBD によって、多様なアプリケーションのスタック性能・耐久性の要求に対してボトルネックとなる材料・MEA 特性と条件を明確化することで、新規材料の有用性を示し、目標達成に向けた改良指針を提示する。

サプライヤーや材料研究者の PEFC 開発への参画を促進し、スタック製造の新規プレーヤーを創出する。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
1. PEMの化学・機械劣化連成シミュレーターの開発	要素モデルを構築する。	実施項目 1-1～1-4 の遂行により、達成。	○	
1-1. PEM化学劣化シミュレーターの開発	典型的条件でのナフィオン膜の劣化反応モデルを提出。	劣化指標となる膜の絶対分子量の低下モデルを構築した。	○	セル内H ₂ O ₂ 濃度の推定と分子量分布対劣化度の定量。
1-2. 応力下の補強膜高分子高次構造変化シミュレーターの開発	高分子膜内部の水の高次構造の変化を把握する。	高分子の化学劣化に対する水クラスターの構造変化の知見を得た。	○	高分子の絡み具合の指標と機械的強度の相関の解析。
1-3. 酸化セリウムからのセリウムイオン溶出速度の計測と溶出制御法の開発	セリウムイオン溶出速度の計測方法を開発し、運転環境との関係を把握する。	MEA運転環境とMPLから膜へのセリウム移動速度の関係を計測した。	○	セリウム溶出現象の各過程を網羅した溶出速度実験式の導出。
1-4. セリウムイオン輸送モデルの構築とセリウムイオン分布予測シミュレーションの開発	高分子膜内Ce ³⁺ 分布シミュレーターを構築する。	Ce ³⁺ の3D分布を計算可能にした。MD法によりCe ³⁺ 輸送係数	○	Ce ³⁺ 輸送係数の定式化。シミュレーターの妥当性の検証。

シミュレーターの開発		を得た。		
2. 製造プロセスから触媒層構造を予測するシミュレーターの開発	100万原子以上のモデルで触媒インクの蒸発・凝集シミュレーションをおこなう。	約150万原子MDで凝集を、CGMD法で触媒インク内のアイオノマー吸着を計算した。	○	担体の凝集構造・高次構造形成過程の解明。各成分の蒸発速度の制御。
2-1. 触媒インクからの触媒層構造形成過程の計測	触媒粒子、アイオノマー凝集体を判別できる計測法の開発と可視化データの取得。	走査電子誘電率顕微鏡で触媒粒子、アイオノマー凝集体の可視化データを取得した。	○	プロセスシミュレーターのパラメーターとなる物理量のデータベースの構築。
2-2. 触媒インク構造計測値からの触媒層モデル構築	離散要素法による粒子凝集計算を行い、各種インク条件・プロセス条件での触媒層構造を予測する。	溶媒組成、I/C比、担体種による凝集形状および凝集径分布の違いから触媒層の3D構造を予測した。	○	各種材料（触媒、触媒担体、溶媒組成）の物性情報の整備。
3. 発電性能を予測するマルチスケールシミュレーターの開発	触媒層内部ナノスケールのプロトン輸送特性・酸素透過特性をシミュレーションする。	複雑触媒層構造内の反応輸送解析の基本コードを完成。実測発電特性と計算結果がほぼ一致した。	○	各種物性（触媒活性、アイオノマー内酸素輸送特性など）の物性情報の整備。
3-1. 電極反応の大規模数値シミュレーション手法の開発	100万原子以上の触媒層の電極反応シミュレーションを実現する。	200万原子で電極反応シミュレーションを行い、炭素担体ネットワーク構造における活性サイトを提示した。	○	300万原子以上の大規模シミュレーション手法を開発し、触媒担体の設計指針を提言。
3-2. 担体の細孔構造、アイオノマー被覆を改善する担体表面の設計法の開発	担体の細孔構造、アイオノマー被覆をシミュレーションで求める。	メゾ細孔を有する炭素担体では、細孔構造によってアイオノマー被覆状態が異なるメカニズムを明らかにした。	○	大規模電極反応シミュレーションにより、アイオノマー被覆を改善する炭素担体の設計手法を開発。
3-3. 触媒担体の性能を予測可能な担体モデルの開発	触媒担体の性能を予測可能な担体モデルを提案する。	各種担体の3D形状を求めるコードを作成し、実験結果から模擬担体構造を再現できた。	○	
3-4. 触媒担体細孔中の水の状態および物質輸送特性の解明	細孔中の水の状態と物質輸送特性を解析可能なシミュレーターを構築する。	一次細孔内部の水の状態とプロトン輸送特性の相関を解析した。	○	より現実的な系でのシミュレーション。
3-5. Cryo-SEM画像から触媒層構造を	精緻な3D実構造数値モデルを構築する	機械学習を含むアルゴリズムで、3D構造モデ	○	複数の触媒層試料に本手法を適用、手

再構築する技術開発と数値モデル化	技術を確立する。	ルの異方性を低減した。		法の検証と改良。
3-6. 触媒層内液水飽和モデルの開発	触媒層内の液水飽和モデルを開発する。	加湿下で水吸着量と酸素拡散抵抗を再現するモデルパラメータを決定した。	○	複数の触媒層試料に本手法を適用、手法の検証と改良。
3-7. 触媒層内アイオノマー薄層の酸素透過抵抗の定式化	アイオノマー薄層の酸素透過抵抗の推算式（80℃）を提出する。	湿度33～100%で酸素透過抵抗の相対湿度依存性を測定し定式化した。	○	アイオノマー薄膜での抵抗を考慮した無次元モデルのシミュレーターコードの修正。
3-8. 電解質膜の吸水速度の定式化	電解質膜の吸水速度の推算式（80℃）を提出する。	60～80℃、 $\lambda = 4 \sim 7$ での水の有効拡散係数と界面物質輸送係数を定式化した。	○	より広い範囲への拡張。
3-9. 流路間伏流の定式化	伏流量の計測手法を開発する。	滞留時間分布で流路内のマクロ混合を評価した。伏流による酸素富化を明らかにした。	○	絞り流路と酸素センサーを用いて伏流の効果を測定し、酸素富化率を定式化。
3-10. 極薄自立MPLの創出と酸素輸送シミュレーション	ナノファイバー径、厚さを制御して試料を作製する。	径、厚さを制御したPAN黒鉛化ナノファイバーでMPLを試作し、性能評価を進めた。	○	2030年出力目標を満足する自立MPL創出の方向性の提示。
4. モデルベースのPEFCシステムシミュレーターの開発	代表的な条件で、誤差10%程度でスタック電圧を再現する。	乗用車対象のシステムシミュレーターFC-DynaMo ver. 1.0を開発し、公開した。	○	MIRAI以外のFCシステムのモデル化および精度検証。
4-1. スタック性能・劣化モデルの開発	MEA厚さ、流路方向の1+1D分布モデルに拡張する。	1+1D物理モデルのFC-DynaMoへの実装が完了した。	○	劣化モデル実装のためのパラメータの取得。
4-2. 多様なアプリケーションへ対応するためのシステムのモデルと制御器の開発	入力状態量を指令し、ユニット操作量を決定する方法に再構築する。	制御器の機能開発とFC-DynaMoへの実装を完了した。	○	
4-3. 活用促進に向けたユーザビリティの改善	容易に操作するためのGUIを開発する。	GUI開発を完了し、FC-DynaMoをアプリ化した。	○	GUIの操作性向上

3.2 研究開発の詳細

(実施項目 1 群)

ナフイオン膜の溶解条件の最適化を行い、絶対分子量分布を測定することに成功した。加速劣化装置で化学劣化させた膜の絶対分子量分布の低下度と劣化条件との関係を把握した。粗視化分子動力学法(CGMD 法)により、EW 値が変化した膜の強度および膜内部の水クラスター構造の変化を解析した。

レーザー試験で MPL 中の CeO_2 溶出条件を導出し、MEA 試験で MEA 運転条件と膜への Ce^{3+} 移動速度の関係を得た。MD 法で高分子膜内部の Ce^{3+} 輸送特性を表すパラメーター(Ce^{3+} 拡散係数、電気浸透係数、対流イオン輸送係数)を取得した。また、厚さ 10 μm 、面積 30 $\text{cm} \times 10 \text{ cm}$ 程度の高分子膜内部の 10000 h 経過後の Ce^{3+} 分布を数百 h で計算するスキームを開発した。

(実施項目 2 群)

159万原子の触媒インクモデルを構築し、反応分子動力学法に基づく触媒インクの蒸発シミュレーション手法を開発した。担体表面と細孔内Ptナノ粒子では蒸発過程でのナフイオン被覆状態の変化が異なる可能性がある。図1に示すCGMDシミュレーションでは、インク中のアイオノマーには疎水性の炭素に直接吸着するものと、親水基がPtに吸着した後に疎水基が炭素に吸着するものの2種類が存在することが判明した。

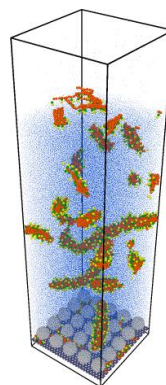


図 1. 触媒インク内部のアイオノマー吸着状態のシミュレーション

触媒種、溶媒仕様、アイオノマー・炭素重量比(I/C比)の異なるインクを走査電子誘電率顕微鏡で観察し、触媒粒子、アイオノマー凝集体をサブミクロンオーダーで判別できる可視化データを取得し、シミュレーション結果と比較した。担体細孔の有無によって生じる表面Pt量の相違をパラメーターに反映し、担体構造がアグリゲート凝集に及ぼす影響を検証した。また、溶媒組成やI/C比が凝集に及ぼす影響を検証した。

(実施項目 3 群)

第1世代および第2世代のMIRAIについて、計測された触媒活性等の物性や触媒層構造を反映した解析を行い、図2に示すように、測定結果と同程度の発電特性を計算で再現し、内部反応分布を予測できた。また、アイオノマー内部のプロトン輸送特性の厚さ依存性をMD法で解析した。プロトン拡散係数は、厚さが7 nm程度で内部の水クラスターの連結性が良くなり、最大値をとることが明らかとなった。

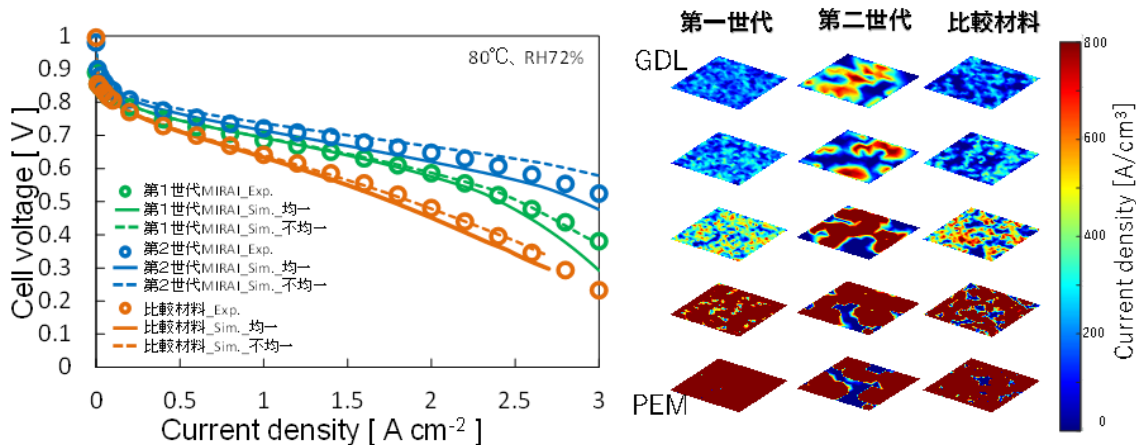


図 2. 各 MEA を対象にした反応輸送解析と実験結果との比較

(左)、電流密度-電圧曲線、(右) 触媒層内反応分布

図3に示す200万原子の触媒層モデルでのシミュレーションの結果、担体鎖のくぼみ部のPtナノ粒子はナフィオンで一部被覆されているため、高い電極反応活性が期待できることがわかった。炭素担体の細孔内も同様と考えられ、細孔サイズの最適化が求められる。ケッチェンモデルを構造化し、担体に被覆されたアイオノマーの分布および物質輸送特性を検討し、バルカンと比較した。カーボンナノチューブを一次細孔に見立て、内部のプロトン輸送特性を解析した。チューブ径が 1 nm以下で、水の連結性が向上し、プロトン輸送特性が著しく上昇する。クライオFIB-SEM連続断面画像から触媒層の3D構造モデルを構築するアルゴリズムを改良し、画像処理起因の異方性の低減に成功した。格子密度汎関数法に基づく触媒層内の水相変化シミュレーターを改良し、加湿条件での水吸着量と酸素拡散抵抗を再現した。

スリット触媒を用いた限界電流密度からアイオノマー透過係数を求め、湿度依存性を取得した。膜内の水の有効拡散係数に加え、界面輸送係数を定式化した。伏流の影響を滞留時間分布で表現し、等価反応器モデルを構築した。これらはシステムシミュレーターに組み込む。

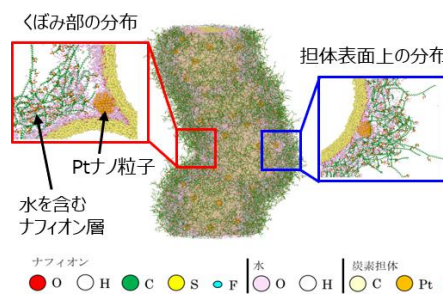


図 3. 4 つのアモルファス炭素が凝集した炭素担体を用いた触媒層モデル

PAN 黒鉛化ナノファイバーと MPL から成る極薄自立 MPL の試作を進めた。既存 GDL と比較して高負荷域で良好な I-V 性能を得た。

(実施項目 4 群)

システムシミュレーター FC-DynaMo ver. 1.0 が完成した。材料とシステム性能との相関把握のために、材料、部品を差替え可能なプログラム構成とし、定置発電機等にも活用可能とした。シミュレーションを容易に実行可能な GUI(グラフィカルユーザーインターフェース)を開発した。MIRAI での計測結果とシミュレーション結果は、30~95 °C、0~130 kW の作動条件でスタック電圧誤差が 10 %未満という精度であった。FC-DynaMo の Windows アプリ版には 40 名から利用申し込みがあった。MATLAB ソースコード版は素材、自動車メーカー等 13 社から利用申し込みがあり、7 社と使用改変許諾契約を締結した。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(実施項目 1 群)

操作条件と加速劣化試験(OH ラジカルと H₂O₂ 濃度既知)の絶対分子量分布から、セル内の H₂O₂ 濃度を推定し、H₂O₂ 生成速度を定式化する。また、絶対分子量と性能劣化の関係を検証する。含水率や高分子鎖長が異なるデータを取得し、膜の機械特性(ヤング率など)との相関を解析する。

MPL 中 CeO₂ の溶出と溶出 Ce³⁺の膜への移動現象の要素試験を進め、各過程での溶出速度式を導出する。このデータは 3D シミュレーターの検証に用いる。MD 計算で輸送特性値を求め、定式化する。

(実施項目 2 群)

300 万原子以上の大規模触媒インクモデルのシミュレーションを高速化し、触媒層における炭素担体の凝集構造、さらには高次構造の形成過程ダイナミクスを明らかにする。系の温度を上げ、蒸発する分子の数を増加させた上で、計算系から排除する分子の数を調節して、水とアルコールの蒸発速度を制御する。

走査電子誘電率顕微鏡での触媒インクの可視化データ等、触媒層形成過程の体系的な物性データを蓄積し、シミュレーターの検証を進める。

アイオノマーと触媒・担体間の相互作用、被覆形態をナノスケールシミュレーションから得られる知見および共通プラットフォーム内の他のグループの計測、分析データをモデルに組み込む。

(実施項目 3 群)

複数のパラメーター(含水率、温度、膜厚)についてアイオノマー内部のプロトン拡散係数および酸素透過係数を求め、定式化する。高多孔性担体などのより複雑な形状や Pt 表面の吸着種の影響などについてのナノスケールシミュレーションから得られる知見と共通プラットフォーム内の計測、分析データを反応界面の速度モデルに取り入れ、各種材料、構造条件での発電性能を予測する。

300 万原子以上の触媒層モデルを用いた大規模電極反応シミュレーション手法を完成させ、電極反応活性を向上させる触媒担体の一次構造、二次構造の理論的な設計指針を提言する。また、アイオノマー被覆を改善可能な炭素担体の細孔構造の理論的な設計指針を提言する。

細孔は水に満たされた状態ではなく、細孔の外の環境とのバランスによって含水量が決まると考えられる。この現象を再現できるようにシミュレーターを再構築し、細孔内部の水の状態を表現する。加湿によるアイオノマーの膨潤を考慮した触媒層の 3D 構造モデルを構築する手法を確立する必要があるため、環境制御型 SEM による構造観察およびアイオノマー膨潤モデルの検討を進める。また、触媒層内の液水飽和モデルをマルチスケールシミュレーターに取り入れる。

アイオノマーの酸素透過係数と膜内の水の有効拡散係数、界面輸送係数をより広い温湿度範囲で計測し、定式化する。また、伏流の効果を表現するパラメーターをシステムシミュレーターに提供する。

MEA 試験時の液水滞留状態 X 線可視化技術、および酸素輸送シミュレーション開発を活用し、信頼性の高い最適自立 MPL の実現に努める。

(実施項目 4 群)

2022 年度に Pt 粒成長・炭素腐食モデルを構築する。2023 年度はセルの積層方向を加えた 1+1+1D モデルに拡張する。また、PEM 化学・機械劣化モデルを実装する。2024 年度には FC-DynaMo の多用途展開適用性の検証を行う予定である。

FC-DynaMo の MATLAB ソースコード版利用機関からのフィードバックを受け、操作性の向上と多用途展開適用性の実証を進める。

4. 成果の実用化・事業化に向けた取組および見通しについて

実施項目 1 群の PEM の化学・機械劣化連成シミュレーター、実施項目 2 群の製造プロセスから触媒層構造を予測するシミュレーター、実施項目 3 群の発電性能を予測するマルチスケールシミュレーターで得

られた結果を、実施項目 4 群で開発中のモデルベースの FC システムシミュレーターに集約する。また、材料分析解析グループ、電気化学測定グループのデータを用いて、シミュレーション結果を検証する。

ナノメートルスケール～マクロスケールのすべての層のモデリング、シミュレーター開発を同時並行で進めているが、各層の結果を有効輸送物性値に集約することで、円滑な情報の受け渡しを実現する。

2022 年 3 月 31 日に公開した FC-DynaMo の MATLAB ソースコード版には、自動車メーカー、エネルギー機器メーカー、産業機器メーカー、電機メーカー、素材メーカー、大学等より関心表明書が提出され、使用改変許諾契約の締結を進めている。使用者からのフィードバックを求めることで、産業界や学界のニーズを把握し、FC-DynaMo に反映させて、年 1 回以上の頻度でバージョンアップしていく。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2020 年 8 月 15 日	ECS Transactions	Analysis of the Influence of Cerium Ions on Mass Transport Properties in Polymer Electrolyte Membrane by Molecular Dynamics Simulation	(Tohoku University) Kyohei Ishikawa, Takuya Mabuchi and Takashi Tokumasu
2	2021 年 10 月	ECS Transactions	Performance of PEFC under Different Gas-mixing Conditions	(Kyoto University) Yulei Ma, Miho Kageyama and Motoaki Kawase
3	2021 年 10 月	ECS Transactions	Analysis method of oxygen reduction reaction rate in PEFC using Pt-sputtered catalyst	(Kyoto University) Hikaru Ogawa, Miho Kageyama and Motoaki Kawase
4	2021 年 10 月	ECS Transactions	Modeling of Fuel Cell Stack for High-Speed Computation and Implementation to Integrated System Model	(Kyoto University) S. Hasegawa, M Kimata, Y. Ikogi, Miho Kageyama, Sanghong Kim and M. Kawase

5	2022年5月	Journal of Power Sources Advances	Evaluation of ionomer distribution on porous carbon aggregates in catalyst layers of polymer electrolyte fuel cells	(Kyusyu University) Kayoung Park, Ruijing Gao, Magnus So, Tae Hyoung Noh, Naoki Kimura, Yoshifumi Tsuge, and Gen Inoue
6	2022年6月	Computer aided chemical engineering	Development of Multi-Purpose Dynamic Physical Model of Fuel Cell System	(Kyoto University) Shigeki Hasegawa, Shun Matsumoto, Yoshihiro Ikogi, Tsuyoshi Takahashi, Sanghong Kim, Miho Kageyama and Motoaki Kawase
7	2022年6月	Computer aided chemical engineering	Model-Based Development of Fuel Cell Stack and System Controllers	(Kyoto University) Shigeki Hasegawa, Yusuke Miyamoto, Yoshihiro Ikogi, Sanghong Kim, Miho Kageyama and Motoaki Kawase (a)
8	2022年度中(予定)	Journal of Power Sources Advances	3D Generation and Reconstruction of the Fuel Cell Catalyst Layer using 2D Images based on Deep Learning	(Kyusyu University) Xuanchen Liu, Kayoung Park, Magnus So, Shota Ishikawa, Takeshi Terao, Kazuhiko

				Shinohara, Chiyuri Komori, Naoki Kimura, Gen Inoue, Yoshifumi Tsuge
9	2022 年度 中 (予定)	International Journal of Hydrogen Energy	Microscale Simulations of Reaction and Mass Transport in Cathode Catalyst Layer of Polymer Electrolyte Fuel Cell	(Kyusyu University) Gen Inoue, Kayoung Park, Magnus So, Naoki Kimura, Yoshifumi Tsuge
10	2022 年度 中 (予定)	Journal of Computer Chemistry, Japan	Effect of Pore Size of Carbon Support on Electrode Reaction Activity of Catalyst Layer in Polymer Electrolyte Fuel Cells : Reactive Molecular Dynamics Simulations	(Tohoku University) Tetsuya Nakamura, Riku Otsuki, Shuichi Uehara, Yuta Asano, Qian Chen, Yusuke Ootani, Nobuki Ozawa, Momoji Kubo
11	2022 年 10 月 (予定)	ECS Transactions	Modeling of the dynamic behavior of an integrated fuel cell system including fuel cell stack, air system, hydrogen system, and cooling System	(Kyoto University) Shigeki Hasegawa, Yoshihiro Ikogi, Sanghong Kim, Miho Kageyama and Motoaki Kawase
12	2022 年 10 月 (予定)	ECS Transactions	Effect of Narrowed Flow Channel on Performance of Polymer Electrolyte Fuel Cell	(Kyoto University) Yulei Ma, Hisaaki Gyoten, Miho Kageyama, and Motoaki Kawase

13	2022年10月(予定)	ECS Transactions	Analysis method of oxygen permeation resistance of ionomer in cathode catalyst layer in PEFC	(Kyoto University) Hikaru Ogawa, Shigeki Hasegawa, Miho Kageyama, Hisaaki Gyoten and Motoaki Kawase
14	2022年10月(予定)	ECS Transactions	Dynamic water transport through the perfluorinated sulfonic-acid membrane	(Kyoto University) Miho Kageyama, Kai Lu, Kimiyo Nakamichi and Motoaki Kawase
15	2022年度中(予定)	International Journal of Heat and Mass Transfer	Effect of ionomer swelling and capillary condensation of water on porous characteristics in cathode catalyst layers of polymer electrolyte membrane fuel cells under humidified conditions	(The University of Tokyo) Toshihiro Kaneko, Junpei Ooyama, Maria Ohki, Hiroyuki Kanesaka, Yuta Yoshimoto, Ikuya Kinefuchi
16	2020年10月6日	238th ECS Meeting (オンライン)	Numerical simulation of cerium ion migration and distribution in a polymer electrolyte membrane	(Tohoku University) Yujie Li, Kyohei Ishikawa, Takuya Mabuchi and Takashi Tokumasu
17	2020年10月6日	238th ECS Meeting (オンライン)	Analysis of the Influence of Cerium Ions on Mass Transport Properties in Polymer Electrolyte Membrane by Molecular Dynamics Simulation	(Tohoku University) Kyohei Ishikawa, Takuya Mabuchi and Takashi Tokumasu
18	2020年10月26日	第11回マイクロ・ナノ工学シンポジウム(オンライン)	水和ナフィオン膜内部におけるセリウムイオン輸送の分子	(東北大学) 石川恭平、馬淵拓哉、

			論的解析	徳増崇
19	2021年3月6日	オンライン	燃料電池の固体高分子膜の水素透過流束	(京都大学) 紀智仁, Balci Beste, 影山美帆, 河瀬元明
20	2021年5月25日~5月27日	第58回日本伝熱シンポジウム	アイオノマー膜厚特性を考慮した固体高分子形燃料電池触媒層性能解析	(東北大学) 松田朋大, 馬淵拓哉, 井上元(九州大学), 徳増崇
21	2021年5月25日~5月27日	第58回日本伝熱シンポジウム	水/エタノール比率がPEFC触媒インク分散に及ぼす影響	(東京工業大学) 笹部崇, 飯田要, 酒井勝則, 植村豪, 篠原和彦, 平井秀一郎
22	2021年5月27日~5月28日	第28回燃料電池シンポジウム	分子シミュレーションによる固体高分子形燃料電池物質輸送特/構造特性の評価	(東北大学) 徳増崇, 馬淵拓哉
23	2021年5月27日~5月28日	第28回燃料電池シンポジウム	アイオノマー薄膜の表面拡散を考慮した燃料電池触媒層内酸素輸送特性の分子論的解析	(東北大学) 堀智紀, 馬淵拓哉, 杵淵郁也(東京大学), 徳増崇
24	2021年5月27日	第28回燃料電池シンポジウム(オンライン)	固体高分子形燃料電池におけるナフィオン/Ptナノ粒子/炭素担体で構成される触媒層の形成及び反応プロセスの分子動力学シミュレーション	(東北大学) 尾澤伸樹, 矢鳴晃人, 久保百司
25	2021年9月5日~8日	日本機械学会 2021年度年次大会	固体高分子形燃料電池触媒層における液水生成: 水蒸気吸着実験及び格子密度汎関数理論計算による評価	(東京大学) 石原聖也, 大山淳平(FC-Cubic), 大木真里亜(FC-Cubic), 吉本勇太, 高木周, 杵淵郁也
26	2021年9月22日	日本流体力学会年会 2021	燃料電池触媒層内のアイオノマー薄膜上における挙動が酸素分子の輸送に与える影響の分子論的解析	(東北大学) 堀智紀, 馬淵拓哉, 杵淵郁也(東京大学), 徳増崇

27	2021年9月22日	化学工学会第52回秋季大会、オンライン	3D Generation and Reconstruction of the Fuel Cell Catalyst Layer using 2D Images based on Deep Learning	(Kyusyu University) Liu Xuanchen, Ishikawa Shota, Park Kayoung, So Magnus, Kimura Naoki, Inoue Gen, Tsuge Yoshihumi
28	2021年9月23日	化学工学会第52回秋季大会、オンライン	流路と拡散層内のマクロ混合が固体高分子形燃料電池の性能に与える影響	(京都大学) 馬楡 壘・影山美帆・行天 久朗・河瀬元明
29	2021年9月23日	化学工学会第52回秋季大会、オンライン	固体高分子形燃料電池のカソード触媒層内のアイオノマー中の酸素透過抵抗の測定	(京都大学) 小川 輝・影山美帆・行天 久朗・河瀬元明
30	2021年9月23日	化学工学会第52回秋季大会、オンライン	固体高分子形燃料電池の電解質膜の非定常水輸送モデル	(京都大学) 陸 凱・影山美帆・行天 久朗・河瀬元明
31	2021年9月23日	化学工学会第52回秋季大会、オンライン	光フェントン反応を利用した高分子電解質膜の加速劣化反応器の開発	(京都大学) 泰地 颯馬、中川浩行
32	2021年9月24日	化学工学会第52回秋季大会、オンライン【招待講演】	固体高分子形燃料電池触媒層作成における塗布・乾燥工程の分子シミュレーション	(東北大学) 徳増 崇, 馬淵 拓哉, 郭 玉婷
33	2021年10月11日～10月14日	240th ECS meeting	Hydrogen Crossover through a Nafion Membrane and a Membrane Electrode Assembly of PEFC at High Temperature	(Kyoto University) Beste Balci, Kimiyo Nakamichi, Tomohito Kii, Miho Kageyama and Motoaki Kawase
34	2021年10月11日～10月14日	240th ECS meeting	Performance of PEFC under Different Gas-mixing Conditions	(Kyoto University) Yulei Ma, Miho Kageyama and Motoaki Kawase

35	2021年10月11日～10月14日	240th ECS meeting	Analysis method of oxygen reduction reaction rate in PEFC using Pt-sputtered catalyst	(Kyoto University) Hikaru Ogawa, Miho Kageyama and Motoaki Kawase
36	2021年10月11日～10月14日	240th ECS meeting	Analysis of cell performance with consideration of catalyst layer construction in PEFC	(Tohoku University) Tomohiro Matsuda, Takuya Mabuchi, Kayoung Park (Kyusyu University), Gen Inoue (Kyusyu University), Takashi Tokumasu
37	2021年10月11日～10月14日	240th ECS meeting	Analysis of the Effect of Surface Diffusion on Effective Diffusivity of Oxygen in Catalyst Layer by Direct Simulation Monte Carlo	(Tohoku University) Tomoki Hori, Takuya Mabuchi, Ikuya Kinefuchi (University of Tokyo) Takashi Tokumasu
38	2021年10月11日～10月14日	240th ECS meeting、オンライン	Modeling of Fuel Cell Stack for High-Speed Computation and Implementation to Integrated System Model	(Kyoto University) S. Hasegawa (a, b), M Kimata (b), Y. Ikogi (b), Miho Kageyama (a), Sanghong Kim (c) and M. Kawase (a)

39	2021年10月11日～10月14日	240th ECS meeting、オンライン	Impact of Solvent Decomposition on Dispersion Structure of PEFC Catalyst Ink	(Tokyo Institute of Technology) Takashi Sasabe (a), Kanaeme Iida (a), Katsunori Sakai (a), Suguru Uemura (b), Kazuhiko Shinohara (c), and Shuichiro Hirai (a)
40	2021年11月14日	化学工学会関西大会 2021、オンライン	Evaluation of Macromixing in Polymer Electrolyte Fuel Cell by Non-Ideal Reactor Modeling	(Kyoto University) Yulei Ma, Miho Kageyama, Hisaaki Gyoten and Motoaki Kawase
41	2021年11月14日	化学工学会関西大会 2021、オンライン	Kinetic analysis method of oxygen reduction reaction	(Kyoto University) Hikaru Ogawa, Miho Kageyama, Hisaaki Gyoten and Motoaki Kawase
42	2021年11月14日	化学工学会関西大会 2021、オンライン	Interfacial effects of transient water in membrane of polymer electrolyte fuel cell	(Kyoto University) Riku Kai, Miho Kageyama, Hisaaki Gyoten and Motoaki Kawase
43	2021年12月13～17日	MRM2021(Yokohama, Japan)	Investigation on Structure of Catalyst Layer including Nafion/H ₂ O/Pt Nanoparticles/Carbon in Polymer Electrolyte Fuel Cells by Molecular	(Tohoku University) Nobuki Ozawa, Testuta Nakamura, Riku Otsuki, Akito Yanaru, Momoji

			Dynamics Simulation	Kubo
44	2022年3月5日	第24回化学工学会学生発表会	固体高分子形燃料電池のパーフルオロスルホン酸膜の酸素透過流束	(京都大学) 段上翔太郎、Balci Beste、中道 貴美代、影山美帆、河瀬 元明
45	2022年3月5日	第24回化学工学会学生発表会	燃料電池触媒インク中の粒子凝集シミュレーション	(九州大学) 齋藤悠貴、Park Kayoung、So Magnus、木村 直樹、井上 元、柘植 義文
46	2022年3月14~15日	日本機械学会 関東支部 第28期総会・講演会, オンライン	アイオノマーの膨潤と液水生成が固体高分子形燃料電池カソード触媒層内の酸素拡散に及ぼす影響の評価	(東京大学) 石原聖也、大山 淳平、大木 真里亜、吉本 勇太、高木 周、杵淵 郁也
47	2022年3月16~18日	化学工学会第87年会	物理モデルベース燃料電池システムシミュレータ開発	(京都大学) 長谷川茂樹・金尚弘・影山美帆・河瀬元明
48	2022年3月16~18日	化学工学会第87年会	固体高分子形燃料電池の電解質膜のガス透過性と水輸送特性	(京都大学) 影山美帆、Balci Beste、陸 凱、段上 翔太郎、中道 貴美代、河瀬 元明
49	2022年3月16~18日	化学工学会第87年会	固体高分子形燃料電池の流路と拡散層におけるマクロ混合の定式化	(京都大学) 馬楡墨・影山美帆・行天久朗・河瀬元明
50	2022年3月16~18日	化学工学会第87年会	PEFCのカソード触媒層内の輸送抵抗の影響を考慮した酸素還元反応速度の解析	(京都大学) 小川輝・長谷川茂樹・影山美帆・行天久朗・河瀬元明
51	2022年3月17日	化学工学会第87年会【招待講演】	二次電池・燃料電池研究におけるAI・DXの取り組み	(九州大学) 井上元
52	2022年5月18日~20日	第59回日本伝熱シンポジウム	触媒層におけるPt / C表面がアイオノマーの吸着と形態変化に及ぼす影響に関する分子論的解析	(東北大学) 郭玉婷、馬淵拓哉、李高阳、徳増崇
53	2022年5月18日~20日	第59回日本伝熱シンポジウム	酸素分子のアイオノマー表面散乱が燃料電池触媒層の酸素輸送抵抗に与える影響	(東北大学) 堀智紀、馬淵拓哉、杵淵郁也、徳増崇

			に関する分子論的解析	
54	2022年5月18日	第58回日本伝熱シンポジウム	アイオノマーがPEFC触媒インクの分散構造に及ぼす影響	(東京工業大学) 笹部 崇、小椋 俊彦、岡田 康樹、酒井 勝則、平井 秀一郎
55	2022年5月19日	第58回日本伝熱シンポジウム	基材レス薄型MPLによる燃料電池内滞留抑制	(東京工業大学) 相原 陸央、石川 湧大、内藤 弘士、酒井 勝則、笹部 崇、谷岡 明彦、平井 秀一郎
56	2022年5月25日	MATLAB EXPO 2022 JAPAN、東京【招待講演】	物理モデルベース燃料電池システムシミュレーターの開発	(京都大学) 長谷川茂樹
57	2022年5月26日	第29回燃料電池シンポジウム	固体高分子形燃料電池物質輸送特/構造特性に関する大規模分子シミュレーション	(東北大学) 徳増 崇、馬淵拓哉
58	2022年5月26日	第29回燃料電池シンポジウム	固体高分子形燃料電池高分子膜内部におけるセリウムイオン移動現象の解析	(東北大学) 鈴木 寛人、徳増崇、馬淵拓哉
59	2022年5月26日～27日	第29回燃料電池シンポジウム【招待講演】	固体高分子形燃料電池において高電極反応活性を有する触媒層構造の反応分子動力学シミュレーションに基づく検討	(東北大学) 尾澤 伸樹、大槻陸、中村哲也、久保百司
60	2022年6月19日～23日	14th International Symposium on Process System Engineering, Kyoto	Development of Multi-Purpose Dynamic Physical Model of Fuel Cell System	(Kyoto University) Shigeki Hasegawa, Shun Matsumoto, Yoshihiro Ikogi, Tsuyoshi Takahashi, Sanghong Kim, Miho Kageyama and Motoaki Kawase

61	2022年6月19日～23日	14th International Symposium on Process System Engineering, Kyoto	Model-Based Development of Fuel Cell Stack and System Controllers	(Kyoto University) Shigeki Hasegawa, Yusuke Miyamoto, Yoshihiro Ikogi, Sanghong Kim, Miho Kageyama and Motoaki Kawase
62	2022年7月2日	第59回化学関連支部合同九州大会	燃料電池触媒インク中の粒子凝集シミュレーション	(九州大学) 齋藤悠貴、Park Kayoung、So Magnus、井上元
63	2022年7月11日	自動車技術会フォーラム2022【招待講演】	モデルベースFCシステム開発用シミュレーター開発	(京都大学) 長谷川茂樹、井漕好博、河瀬元明
64	2022年9月11日～14日	日本機械学会2022年度年次大会	Simulation on water generation and oxygen diffusivity in catalyst layer of proton exchange membrane fuel cell considering swelling of ionomer	(東京大学) 肖運聡
65	2022年9月14日～16日	化学工学会第53回秋季大会、長野	シミュレーションを用いた燃料電池触媒インク中の凝集挙動予測	(九州大学) 齋藤悠貴、So Magnus、井上元
66	2022年9月14日～16日	化学工学会第53回秋季大会、長野	モデル電極を用いた固体高分子形燃料電池のアイオノマー中酸素透過抵抗の解析	(京都大学) 小川輝、影山美帆、行天久朗、河瀬元明
67	2022年9月14日～16日	化学工学会第53回秋季大会、長野	絞り流路が固体高分子形燃料電池の性能に与える影響	(京都大学) 馬楡壘、長谷川茂樹、影山美帆、行天久朗、河瀬元明
68	2022年9月14日～16日	化学工学会第53回秋季大会、長野	固体高分子形燃料電池の膜電極接合体におけるガス透過速度の解析	(京都大学) 影山美帆、Balci Beste、段上翔太郎、中道貴美代、河瀬元明

69	2022年9月14日～16日	化学工学会第53回秋季大会、長野	燃料電池の触媒層とシステムのシミュレーターを併用した材料設計指針の提示	(東京農工大) 金尚弘、井上元、影山美帆、長谷川茂樹、河瀬 元明
70	2022年9月14日～16日	化学工学会第53回秋季大会、長野	燃料電池スタックと補機の制御系開発	(東京農工大) 金尚弘、影山美帆、長谷川茂樹、河瀬元明
71	2022年9月14日～16日	化学工学会第53回秋季大会、長野	燃料電池システムシミュレーターの多様途展開に向けた制御系設計手法の開発	(東京農工大) 金岡大遥、影山美帆、金尚弘、長谷川茂樹、河瀬元明
72	2022年10月9日～13日	242nd ECS meeting	Modeling of the dynamic behavior of an integrated fuel cell system including fuel cell stack, air system, hydrogen system, and cooling System	(Kyoto University) Shigeki Hasegawa, Yoshihiro Ikogi, Sanghong Kim, Miho Kageyama and Motoaki Kawase
73	2022年10月9日～13日	242nd ECS meeting	Effect of Narrowed Flow Channel on Performance of Polymer Electrolyte Fuel Cell	(Kyoto University) Yulei Ma, Hisaaki Gyoten, Miho Kageyama, and Motoaki Kawase
74	2022年10月9日～13日	242nd ECS meeting	Analysis method of oxygen permeation resistance of ionomer in cathode catalyst layer in PEFC	(Kyoto University) Hikaru Ogawa, Shigeki Hasegawa, Miho Kageyama, Hisaaki Gyoten and Motoaki Kawase
75	2022年10月9日～13日	242nd ECS meeting	Dynamic water transport through the perfluorinated sulfonic-acid membrane	(Kyoto University) Miho Kageyama, Kai Lu, Kimiyo Nakamichi and

				Motoaki Kawase
76	2022年10月9日~13日	242nd ECS meeting	Micro-scale simulation of PEFC catalyst layer with dynamic structure change	(Kyusyu University)Gen Inoue, Kayoung Park, Magnus So, Yuki Saito, Keita Nakano, Pham Thi Dung
77	2022年10月9日~13日	242nd ECS meeting	Simulation of Agglomeration in Polymer Electrolyte Fuel Cell Catalyst Inks	(Kyusyu University)Yuki Saito, Park Kayoung, So Magnus, Gen inoue
78	2021年11月30日	世界水素ビジネス 社会実装編 (日経 BP)	長寿命化・高性能化達成のための設計シミュレータの開発	(京都大学) 河瀬元明
79	2021年11月30日	世界水素ビジネス 社会実装編 (日経 BP)	モデルベース FC システム開発用シミュレータの開発	(京都大学) 長谷川茂樹

課題番号（管理番号）： PF03

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／プラットフォーム材料の解析及び解析技術の高度化の技術開発」

実施者：株式会社日産アーク、公益財団法人高輝度光科学研究センター（北海道大学、大阪工業大学、立命館大学）、国立大学法人京都大学、国立大学法人東海国立大学機構名古屋大学、大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構（日本原子力研究開発機構、総合科学研究機構）、一般財団法人ファインセラミックスセンター、国立大学法人電気通信大学、国立大学法人茨城大学

期間：2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

本事業では、第5次エネルギー基本計画や水素・燃料電池戦略ロードマップ等で定めるシナリオに基づき2030年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システム（水素貯蔵タンク等を含む）を実現するためのユーザーニーズに基づく協調領域の基盤技術を開発する。これにより、世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立することを目指している。

本事業の中で開発されるさまざまな燃料電池関連材料を共通的な指標で評価して、その結果を研究者へフィードバックすること、また、シミュレーションにより産業界課題を解決するための指針を提供することを目的として、「PEFC 評価解析プラットフォーム」を構築し運営する。PEFC 評価解析プラットフォームは、a. マネジメントグループ、b. シミュレーショングループ、c. 材料分析／解析グループ、d. 電気化学的特性測定グループ、e. マテリアルズ・インフォマティクスグループの5つの研究開発グループから構成され、本テーマは、c. 材料分析／解析グループの役割を担う。PEFC 評価解析プラットフォームにおける材料分析／解析グループの役割として、（1）材料研究グループから提供される材料の分析／解析支援、および、（2）産業界の課題解決を進めるためのシミュレーター開発の支援を実施する。

電子顕微鏡（TEM・SEM）、振動分光、および、量子ビーム等を用いたマルチスケールの分析／解析環境を整備し、新規開発材料の構造及び形態の計測と解析を実施する。さらに、産業界が求める劣化予測、性能向上、プロセスシミュレーターの開発へ寄与する構造データの提供とシミュレーション結果の検証を可能にするため、材料分析／解析技術の高度化を推進する。材料開発支援における分析／解析技術の提供や産業課題解決支援における解析技術の高度化は、PEFC 評価解析グループ間で密接に連携を取りながら進める。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

（1）材料研究グループから提供される材料およびMEAの分析／解析支援

材料研究グループの研究開発を加速するため、提供されるMEAおよびMEAを構成する触媒、担体、アイオノマー、電解質膜、GDL・MPL、セパレータ等の構造を評価する。多様な材料を解析するため、電子顕微鏡および振動分光法を主とする形態観察・振動分光サブグループと、放射光および中性子の量子ビームを主たるプローブとする量子ビームサブグループを組織し、それぞれのグループにおいて、必要な分析／解析基盤として標準的な材料分析のプロトコル・条件を整備し、さまざまな材料の分析データを横並びで統一的に評価できるシステムを構築する。材料解析に必要な標準分析メニューの決定を行い、前処理方法・測定条件・解析方法を標準化し、必要に応じて、測定の前処理やオペランド計測に必要なセル等を整備する。測定および解析はハイスループット化できるように最適化する。最終的にマニュアル化し、広く産業界・学术界で活用できる形態とする。

更に、構築した分析技術・解析技術を活用し、燃料電池を使用した製品を分析/解析することで、研究開発への貢献可能性を示す。

取得したデータの一部は、マテリアルズ・インフォマティクス（MI）グループに提供する。メタデータに記載すべき計測上の情報や分析/解析の手順について協議し、データベース化する。材料情報、電気化学評価情報等と合わせて、MIによる解析を可能にする。

（２）シミュレーター開発支援と分析/解析技術の高度化

材料分析/解析グループでは、上記の中で、PEM 劣化予測シミュレーター、性能設計シミュレーター、触媒層形成プロセスシミュレーターのパラメータ検討やモデル検証に活用する材料分析/解析技術の高度化を実施する。

「PEM 劣化シミュレーション」においては、PEM 化学劣化の発生を予測するシミュレーターの開発のため、PEM 高次構造と化学劣化反応の関係を定量的に捉える。PEM の高次構造と化学反応性の関係を明らかにするため、膜劣化による高次構造の変化を、SAXS、WAXS を用いて、セル面内、厚み方向に対して数ミクロン程度の分解能で経時的に測定する。また、劣化によって生じる応力による劣化加速現象を取り込むため、劣化状態における高次構造の変化に対して解析を実施し、ラジカルの輸送性や高分子化学結合への攻撃性などを検証する。

過酸化水素由来のラジカル種による化学劣化を抑制するために、セリウム化合物からなるラジカルクエンチャが導入されている。しかしながらこのラジカルクエンチャは、PEFC の動作中に、移動し、濃度が低くなる場合には、劣化状態が大きく影響を受けることが報告されている。この現象を定量的に捉えるため、クエンチャー分布およびその移動を蛍光 X 線による（面内、断面）膜厚方向に対して計測を実施する。

「性能予測シミュレーション」については、電極構造-IV 性能に関連する①物質輸送に大きな影響をもつ、MEA 細孔内における液水の状態、②アイオノマー分布、および担体表面の状態、③触媒被毒およびその回復現象の解析に注力する。

MEA における液水の状態解析では、計測可能な空間分解能、経時変化を観測するための時間分解能、および、テストセル、実セルでの計測など、多様な条件・環境下での計測が必要となるため、異なる特徴を持つ X 線透過イメージング、コンプトン散乱 X 線イメージング、中性子イメージングにより MEA 構造、および、液水飽和解析を実施する。水・氷の可視化技術は、さらにマルチスケールのイメージング技術として多角的に高度化し、シミュレーションの検証にも活用する。

アイオノマーの分布や担体表面の官能基の状態によるアイオノマーの親和性も電極性能に大きな影響を及ぼすと考えられる。これらの微細構造については、コヒーレント X 線回折イメージングにより、触媒層における触媒とアイオノマーの被覆状態を可視化する。また、担体表面の官能基に状態については、XPS/HAXPES 等による担体表面キャラクタライズにより実施する。

触媒被毒による電極性能の影響、および、その回復現象を解析し、シミュレーションへと落とし込む。触媒被毒・回復現象の解析は、放射光を用いたオペランド RIXS により実施し、HR-XANES や CT-XAFS イメージング、DFT 計算等のデータと合わせて、被毒状態・回復過程の解析を実施する。

「プロセス解析」については、触媒インク中の成分の分布状態、および、乾燥状態におけるそれらの分布も含めた構造変化を捉える必要がある。これらを識別し、構造分布を捉えることが可能な中性子小角散乱を用いて、インク/触媒層形成過程の可視化計測を実施する。

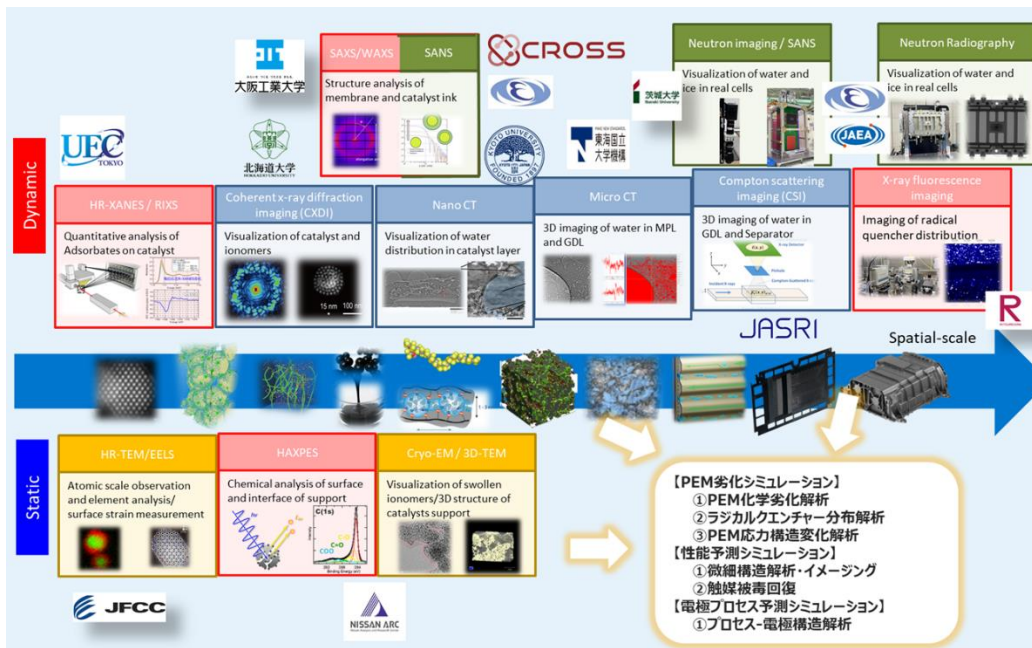


図1 本テーマで開発するマルチスケール構造解析、分光、イメージング技術

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
(1) 材料開発グループから提供される材料の分析／解析支援	分析および解析の支援が開始されている中で、材料提供者、マネジメントグループから情報を得て、必要な形態観察、振動分光、量子ビームによる材料分析／解析のメニューが確立されている。	<ul style="list-style-type: none"> 測定手法、および、測定条件の標準化が行われている。 材料研究グループ 15 機関から、材料解析を受入、標準メニュー解析、および、高度分析を提供している。 解析データの蓄積が開始されている 	○	<ul style="list-style-type: none"> 産業界を含めた材料解析ニーズに応えるため、標準解析の充実、解析技術の高度化を進める。 品質／納期上の課題をクリアし、CS 向上に努める
(2) シミュレーター開発支援と分析／解析技術の高度化	PEM 劣化シミュレーション、性能予測、電極プロセス予測の各テーマについて、初期の解析高度化に目途をつけ、初期のデータがシミュレーショングループに提示されている。	<ul style="list-style-type: none"> マルチスケール凝縮水可視化、PEM 劣化解析、ラジカルエンチャ可視化、触媒層／担体構造解析、触媒被毒／回復解析、触媒層形成プロセス解析において初期の目標を達成している。 	○	産業界、および、シミュレーショングループとの高度な連携が必要である。必要となる解析手法は、産業界の動向やシミュレーター開発の状況に応じて変化すると考えられ、ダイナミックに計画の見直しが必要である。

3.2 研究開発の詳細

(1) 材料研究グループから提供される材料および MEA の分析／解析支援

1-1-1) 形態観察・振動分光による材料の解析 日産アーク

標準的な触媒に対し、クライオ TEM、および、3D-TEM の前処理および、撮像条件の検討を実施し、観察、解析方法を確立した。材料研究 G からの材料解析、MIRAI 材料の解析に着手している。

1-1-2) 高分解能電子顕微鏡による材料の分析 ファインセラミックスセンター

既存設備を用いた STEM 法による原子位置精度を詳細に検証し、各観察条件を最適化することで、±2pm の精度を達成できる条件を決定した。現有設備の限界値の把握と触媒粒子観察時の課題を明確化し、その課題を克服する指針を獲得した。

1-2-1、1-2-2) 量子ビームによる汎用的分析支援 高輝度光科学研究センター、日産アーク

標準分析解析メニューとして 5 手法を確立し、分析解析支援を開始した。標準分析解析の 5 手法についてデータフォーマット案を作成し、データ登録を開始した。

1-2-3) 量子ビームによる高度分析支援 京都大学

120℃、20%RH における標準 Pt/C、PtCo 合金、新旧 MIRAI 触媒の operando XAFS の計測を完了し、温度による白金酸化物の形成状況の違いと電気化学特性の違いを明確化した。ナノ CT による触媒層における凝縮水の状態の可視化を行い、operando セルによる液水飽和度の計測を行った。

(2) シミュレーター開発支援と分析／解析技術の高度化

2-1-1、3) PEM 化学劣化解析 (再委託)大阪工業大学

50 nm の分解能で SAXS および WAXS 測定を可能にするセルを設計・導入した。結晶性、非晶性のピークに注目し、劣化膜、未劣化膜でそれぞれ波形分離を行いピークの面積比より劣化の定量評価が行えている。結晶・非晶をパラメータとしたライブラリーの構築も進んでいる。

2-1-2) ラジカルクエンチャ分布の解析 (再委託)立命館大学

高エネルギーマイクロ X 線を用いた蛍光 X 線分析により、電解質のラジカルクエンチャ分布を面方向では 1mm で、膜厚方向では 2μm の空間分解能で達成し、燃料電池発電状態でのデータ取得が進んでいる。

2-2-1-1) 放射光イメージングによる液水・MEA 構造の可視化解析と技術開発 名古屋大学

液水の時間・空間スケールを評価し、オペランド条件での液水の可視化イメージング計測技術を開発した。解析プログラム開発を行い、液水の検出や空間充填率の計算を実行できる解析プログラムを開発した。面内方向の二次元の液水分布の時間変化のイメージングデータを取得・解析した。

2-2-1-2) コンプトン散乱イメージングによる水分分布の計測 高輝度光科学研究センター

計測方法論を確立し、ガス拡散層内の液水観察に成功した。空間分解能：75μm を達成した。

2-2-1-3) 中性子イメージングによる水分分布の計測 高エネルギー加速器研究機構、(再委託) 日本原子力研究開発機構

車載燃料電池の動作条件下での水分分布の可視化を実施するためのガス供給環境を整備し、新型 MIRAI に搭載された燃料電池単セルを実際に稼働させた条件の下で電池内部に生成する水の分布、排出の挙動の観察に成功した。空間分解能 0.3mm,撮像時間 1 分以下での観察を実現した。

2-2-1-4) 中性子小角散乱による運転中の実機燃料電池セルのマルチスケール解析 茨城大学

大気容器と中性子イメージングカメラを用いてモデルセルの画像を取得した。解像度 500μm 以下を達成した。PC からの遠隔操作で試料の回転を行い CT 画像の取得を可能とした。

2-2-2-1) 担体構造・アイオノマ被覆状態の解析 (再委託)北海道大学

X線自由電子レーザー施設 SACLA を用いたコヒーレント X 線回折計測時の乾燥状態および溶液状態の触媒インク試料の保持方法を確立した。また、確立した試料保持方法にて、計測データからピクセルサイズ 2 nm 以下での試料像を得ることに成功した。

2-2-2-2) 担体表面キャラクタリゼーション 日産アーク

光電子分光 (XPS、HAXPES) 等と熱分析を相補的に活用し、担体内部・表面の官能基を定性定量する手法を確立した。定量精度の確認や精度向上を検証しており、シミュレーショングループへのデータ提示の準備ができています。さらに、担体内部・表面の官能基とアイオノマ分布等の状態解析に進んでいる。

2-2-3-1) オペランド HR-XANES による触媒被毒・回復現象の解析 電気通信大学、名古屋大学

被毒硫黄の計測解析に先立ち必要となる吸着酸素種の同定・挙動把握、CV との紐づけを完了した。オンサイトでの SO₂ 被毒実験を行う装置を立ち上げ、被毒処理条件と XAFS 測定条件を決定した。SO₂ による被毒時の Pt 触媒の配位構造変化を XAFS によって定量的に評価する解析方法を確立した。

2-3-1) 中性子による触媒インク/形成プロセスの解析 高エネルギー加速器研究機構、(再委託) 総合科学研究機構

中性子観測の方法論の取得が進み、乾燥状態の触媒層の被覆したアイオノマーの状態変化の観測を実現した。さらに、調温・調湿システムと中性子コントラスト法を組み合わせ、膨潤状態の触媒層の被覆したアイオノマーの状態変化の観測も実現した。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 最終目標に掲げる PEFC 材料解析に必要な解析ノウハウをさらに蓄積し、材料研究 G、および、産業界ニーズを適宜取り込み充実させていく。特に、高温運転に対応する PEFC 開発や、電解膜劣化解析、2021 年度に採択された GDL/セパレータ等の開発者への支援への対応を強化する。

(2) シミュレーター開発支援と分析/解析技術の高度化

産業界から提示される PEFC 開発の課題を解決するため、解析技術とマルチスケールシミュレーション技術を融合させ、材料とシステムをつなぎ現象解析から「予測」を可能にするシミュレーター、および、シミュレーターへの入力と検証を可能とする高度な解析技術を出口として、解析技術の高度化を進める。産業界、および、シミュレーショングループとの高度な連携が必要であり、また、高度化が必要となる計測・解析手法は、産業界の動向やシミュレーター開発の状況に応じて変化すると考えられ、ダイナミックに計画の見直しが必要である。SG 審査、マネジメントグループ、シミュレーショングループと連携を取りながら進める。

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

評価・解析プラットフォーム全体の成果物は、新規に開発される材料の特徴を見極め機能向上のための適切な改良指針を提供すること、産業界で利用可能なシミュレーターとして、PEM 劣化予測シミュレーター、プロセス性能シミュレーター、将来的な仕様環境に対応したセル評価プロトコル、材料機能高度化に資するマテリアルズ・インフォマティクス技術を想定している。材料分析/解析グループとしては、その研究開発活動を通じて全体の成果物に以下の様に貢献していく。

- 材料改良指針の提示：開発材料の高機能化を通じて産業界の燃料電池の高機能化に貢献する。
- PEM 劣化予測シミュレーター、プロセス性能シミュレーター：産業界の燃料電池開発に直結し、製品の信頼性、性能の向上、開発プロセスの簡素化などを通じて、日本の燃料電池技術開発力の強化につながる。電気化学的特性測定グループは、これらのシミュレーター開発に必須の技術検証手段を提供す

ること貢献する。

- ・評価プロトコル：材料開発の効率化に資するのみならず、その開発品の高度化を通じて産業界の燃料電池技術開発を促進する。
 - ・材料分析／解析プロトコル：プロジェクトを通して、材料分析／解析グループに蓄積された材料解析に関するノウハウを展開し、材料開発の効率化や、その開発品の高度化を通じて産業界の燃料電池技術開発を促進する。
 - ・材料機能高度化に資するマテリアルズ・インフォマティクス技術に対して：データベースとなる電気化学特性データを提供することにより、新規アイデア創出に貢献し、その結果として高機能材料創出に貢献する。
- これら、プラットフォーム全体の成果物は、単に一グループの開発技術だけで実現できるものではなく、グループ間の強い連携の下で実現していく。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2020年2月	J. Electrochem.	“Electrochemical Properties and Single Cell Performance of Pd Core-Pt Shell Structured Catalyst Synthesized by a Simple Direct Displacement Reaction”,	N. Aoki, H. Inoue, R. Yoshiura, Y. Hasegawa, S. Miyazaki, A. Suzuki, H. Daimon, T. Doi, M. Inaba, K. Higashi, T. Uruga, Y. Iwasawa, H. Tanida, Q. Yuan, N. Takao, H. Imai, T. Mikami, and A. Daimaru,
2	2020年4月	Phys. Chem. Chem.	Feed Gas Exchange (Startup/Shutdown) Effects on Pt/C Cathode Electrocatalysis and Surface Pt-Oxide Behavior in Polymer Electrolyte Fuel Cell as Revealed by In Situ Real-Time XAFS and High-Resolution STEM”,	G. Samjeské, T. Kaneko, T. Gunji, K. Higashi, T. Uruga, M. Tada, and Y. Iwasawa,

3	2020年4月	Phys. Chem. Chem. Phys.	Model building analysis – a novel method for statistical evaluation of Pt L3-edge EXAFS data to unravel the structure of Pt-alloy nanoparticles for the oxygen reduction reaction on highly oriented pyrolytic graphite	F. E. Feiten, S. Takahashi, O. Sekizawa, Y. Wakisaka, T. Sakata, N. Todoroki, T. Uruga, T. Wadayama, Y. Iwasawa, and K. Asakura,
4	2020年5月	ACS Appl. Energy Mater.	“Plasma-Devised Pt/C Model Electrodes for Understanding Doubly Beneficial Roles of Nanoneedle-Carbon Morphology and Strong Pt-Carbon Interface in Oxygen Reduction Reaction”,	X. Zhao, Y. Hamamura, Y. Yoshida, T. Kaneko, T. Gunji, S. Takao, K. Higashi, T. Uruga, and Y. Iwasawa,
5	2020年5月	Phys. Chem. Chem.	“Visualization and Understanding of Degradation Behaviors of a PEFC Pt/C Cathode Electrocatalyst by a Multi-Analysis System Combining Time-Resolved Quick XAFS, Three-Dimensional XAFS-CT, and Same-View Nano-XAFS/STEM-EDS Techniques”,	K. Higashi, S. Takao, G. Samjeské, H. Matsui, M. Tada, T. Uruga, and Y. Iwasawa,
6	2020年7月	J. Phys. Chem.	“Quick Operando Ambient Pressure Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy for Reaction Kinetic Measurements of Polymer Electrolyte Fuel Cells”,	T. Nakamura, Y. Takagi, S. Chaveanghong, T. Uruga, M. Tada, Y. Iwasawa, and T. Yokoyama,

7	2020年8月	Nano Lett.	"Atomic-Scale Structure and Catalysis on Positively Charged Bimetallic Sites for Generation of H ₂ ",	Y. Tang, S. Zhang, T. B. Rawal, L. Nguyen, Y. Iwasawa, S. R. Acharya, J. Liu, S. Hong, T. S. Rahman, and F. Tao
8	2020年11月	技術情報協会	「触媒の劣化対策、長寿命化」	岩澤康裕,
9	2020年12月	ACS Applied Energy Materials	Effect of Temperature on Oxygen Reduction Reaction Kinetics for Pd Core - Pt Shell Catalyst with different core size	劉辰 1,2、内山 智貴 1、山本 健太郎 1、渡邊 稔樹 1、高 嘯 1、今井 英人 3、松本 匡史 3、菅原 生豊 4、篠原 和彦 4、大寫 幸一郎 2、櫻井 繁樹 2、内本 喜晴 1
10	2021年1月	ACS Applied Energy Materials	operando X-ray absorption spectroscopic study on influence of specific adsorption of sulfo group in perfluorosulfonic acid ionomer on the oxygen reduction reaction activity of Pt/C catalyst	劉辰 1,2、内山 智貴 1、長田 憲幸 1、荒尾 正純 3、山本 健太郎 1、渡邊 稔樹 1、高 嘯 1、今井 英人 3、片山 翔太 4、菅原 生豊 4、篠原 和彦 4、大寫 幸一郎 2、櫻井 繁樹 2、内本 喜晴 1
11	2021年1月	Phys. Chem. Chem. Phys. 23,	"Sulfur Poisoning of Pt and PtCo Anode and Cathode Catalysts in Polymer Electrolyte fuel Cells Studied by Operando Near Ambient Pressure Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy",	S. Chaveanghong, T. Nakamura, Y. Takagi, B. Cagnon, T. Uruga, M. Tada, Y. Iwasawa, and T. Yokoyama,
12	2021年1月	J. Electrochem. Soc.	In Situ X-ray Absorption Spectroscopy to Monitor the Degradation of Fe/N/C Cathode Catalyst in Proton Exchange	Y. Nabae, Q. Yuan, S. Nagata, K. Kusaba, T. Aoki, N. Takao, T. Itoh, M. Arao, H. Imai, K.

			Membrane Fuel Cells",	Higashi, T. Sakata, T. Uruga, and Y. Iwasawa,
13	2021年3月	Handbook of Characterization and Properties of Nanostructured Materials, Vol. 4, Chapter 8, World Publishing,	"X-ray Absorption Fine Structure Techniques for Nano-Catalytic Materials"	N. Ichikuni, K. Okumura, and Y. Iwasawa,
14	2021年4月	Applied Science	Compton Scattering Imaging of Liquid Water in Porous Carbon-based Materials	辻成希 A、辻庸一郎 B、内本喜晴 C、今井英人 D、櫻井吉晴 A
15	2021年8月	SPring-8/SACLA Research Frontiers 2020	Recent Progress in Advanced SR Characterization of Fuel Cells at SPring-8	Y. Iwasawa
16	2022年4月	J. Phys. Chem. C	Hidden Heterometallic Interaction Emerges from Resonant Inelastic X-ray Scattering in Luminescent Tb–Pt Molecules	T. Yoshida, A. Shabana, D. C. Izuogu, K. Fuku, T. Sato, H. Zhang, Y. Yamamoto, J. Kamata, H. Ohmagari, M. Hasegawa, G. Cosquer, S. Takaishi, T. Kaneko, T. Uruga, Y. Iwasawa, and M. Yamashita
17	2022年5月	Nano Letters	Femtosecond X-ray laser reveals intact sea-island structures of metastable solid-state electrolytes for batteries	A. Suzuki ¹ , H. Tanaka ² , H. Yamashige ² , Y. Oriyasa ³ , Y. Niida ¹ , T. Kimura ¹ , K. Tono ^{4,5} , M. Yabashi ^{4,5} , T. Ishikawa ⁴ , Y. Bessho ⁶ , Y. Joti ^{4,5} ,

				and Y. Nishino ¹
18	2022年7月	Optica	Three-dimensional structure determination of gold nanotriangles in solution using X-ray free-electron laser single-particle analysis	M. Nakano, O. Miyashita, Y. Joti, A. Suzuki, H. Mitomo, Y. Niida, Y. Yang, H. Yumoto, T. Koyama, K. Tono, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, Y. Bessho, K. Ijiro, Y. Nishino. F. Tama
19	2022年10月	ECS Transactions	Operando Cerium Distribution Analysis on Through-plane Membrane Electrode Assemblies in 2nd-generation MIRAI	Yuki Orikasa ¹ , Aika Takezawa ¹ , Kazuki Amemiya ² , Yoichiro Tsuji ² , Takahiko Asaoka ² , Maria Ohki ² , Oki Sekizawa ³ , Kiyofumi Nitta ³
20	2020年9月	CEFMS-NCTU, and RCAS Academia Sinica- 2020	Controlled Environment Nano-Imaging Free From Radiation Damage by X-ray Laser Diffraction. Current Topics in Emergent Materials and Devices- Cooperated with Advanced Research Network in Materials and Devices in Japan 5-Star Alliance, ica- 2020	Y.Nishino
21	2020年12月	A3 Foresight & 5 Star Alliance Joint Workshop on Organic/Inorganic Hybrid Nano Materials and Bio Imaging	Radiation-Damage-Free Nanoimaging using Femtosecond X-ray Laser.	Y.Nishino

22	2020年12月	A3 Foresight & 5 Star Alliance Joint Workshop on Organic/Inorganic Hybrid Nano Materials and Bio Imaging	Micro-liquid enclosure array for X-ray laser diffractive imaging of samples in solution.	A. Suzuki
23	2021年1月	第34回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム	EFC Pt/C カソード電極触媒の劣化に関する EXAFS-CT イメージングと教師なし機械学習解析	松井公佑, 石黒志, D. N. Nguyen, H. C. Dam, 東晃太郎, 宇留賀朋哉, 唯美津木
24	2021年3月	第12回日本放射光学会若手研究会「放射光若手スクール」	SPring-8/SACLA を利用したコヒーレント回折イメージング	鈴木明大
25	2021年3月	SACLA Users' Meeting 2021	Feasibility Study on Solution Sample Holding Technique for XFEL Based Single-particle Imaging	Y.Nishino
26	2021年5月	高分子学会	茨城大学	
27	2021年7月	2021年度 JFCC 研究成果発表会	触媒 Pt 粒子表面の原子間距離計測	大森雄貴、黄馨慧、小林俊介、桑原彰秀
28	2021年9月	日本セラミックス協会 第34回秋季シンポジウム	走査透過電子顕微鏡を用いた白金表面の原子配列解析	大森 雄貴・黄 馨慧・小林 俊介・桑原 彰秀
29	2021年9月	第24回 XAFS の討論会	PEFC Pt/C カソード触媒の SO ₂ 被毒に対する in-situ Pt LIII 端 XAFS 解析	松井公佑、佐藤功真、宇留賀朋哉、唯美津木
30	2021年9月	第70回高分子討論会	X線自由電子レーザーによるソフトマテリアルの無損傷ナノイメージング	西野吉則 1, 鈴木明大 1, 新井田雅学 1, 別所義隆 2, 城地保昌 3
31	2021年11月	名古屋大学学内ワークショップ(R-ing)	Opening Remarks: R-ing: Reaction Infography	唯 美津木
32	2021年11月	12th International Conference on High-Performance Ceramics	Structural analysis based on measurements of slight atomic displacements from scanning transmission electron microscopy	S. Kobayashi, Y. Omori, A. Kuwabara

			images	
33	2021年11月	RSC Catalysis Science & Technology 10th Anniversary Symposium	Operando X-ray Imaging of Practical PEFC Cell	Mizuki Tada
34	2021年11月	2021年繊維学会秋季研究発表会	広角X線回折法(WAXD)によるNafion膜の分子鎖凝集構造評価	世古民生・藤井秀司・中村吉伸・平井智康
35	2021年11月	第62回電池討論会(横浜)	固体高分子形燃料電池セルの高温運転条件におけるPt触媒のオペランドX線吸収分光計測	小林 照 1, 内山 智貴 1, 柿沼 克良 2, 松永 利之 1, 松本 匡史 3, 今井 英人 3, 櫻井 吉晴 4, 朝岡 賢彦 5, 辻 庸一郎 5, 内本 喜晴 1
36	2021年11月	第62回電池討論会(横浜)	窒素ドーパカーボンを被覆したPt/C触媒のアイオノマー特異吸着抑制効果	高 雲飛 1, 内山 智貴 1, 松永 利之 1, 寺西 利治 1, 佐藤 良太 1, 今井 英人 2, 櫻井 吉晴 3, 辻 庸一郎 4, 内本 喜晴 1
37	2021年11月	第62回電池討論会(横浜)	PdナノワイヤコアPtシェル触媒のオペランドXASの解析とORR活性	曹 偉傑 1, 内山 智貴 1, 松永 利之 1, 寺西 利治 1, 佐藤 良太 1, 今井 英人 2, 櫻井 吉晴 3, 辻 庸一郎 4, 内本 喜晴 1
38	2021年11月	第62回電池討論会(横浜)	PtナノワイヤのオペランドXASの解析とORR活性	内山 智貴 1, 曹 偉傑 1, 松永 利之 1, 寺西 利治 1, 佐藤 良太 1, 今井 英人 2, 櫻井 吉晴 3, 辻 庸一郎 4, 内本 喜晴 1
39	2021年11月	第62回電池討論会(横浜)	Pt/C触媒へのアイオノマー特異吸着とPtの電子状態変化	内山 智貴 1, 劉 辰 2, 松永 利之 1, 今井 英人 2, 櫻井 吉晴 3, 辻 庸一郎 4, 内本

				喜晴 1
40	2021年11月	第62回電池討論会 (横浜)	走査透過電子顕微鏡を用いた白金表面の原子間距離計測	大森 雄貴・黄 馨慧・小林 俊介・桑原 彰秀
41	2021年12月	MRM2021, E-3: Advanced Analysis for Fuel Cell Materials and Technologies, Pacifco Yokohama	Small-Angle Neutron Scattering Study of a Fuel Cell Catalyst Layer	Jun-ichi Suzuki1, Yukihiko Kawamura1, Kazuki Ohishi1, Mitsuhiro Shibayama1, Kosuke Hiroi2, Shin-ichi Takata2, Yukinobu Kawakita2, Toshiya Otomo3, Hideto Imai4, Maria Ohki5, Takahiko Asaoka5, Yoichiro Tsuji5, Kazuki Amemiya
42	2021年12月	MRM2021, E-3: Advanced Analysis for Fuel Cell Materials and Technologies, Pacifco YOkohama	Evaluation of Molecular Aggregation State in Nafion Films	Tomoyasu Hirai, Tamio Seko, Hiroyuki Nakagawa, Syuji Fujii, Yoshinobu Nakamura
43	2021年12月	MRM2021, E-3: Advanced Analysis for Fuel Cell Materials and Technologies, Pacifco Yokohama	Redox responsibility of SO ₂ -poisoned PEFC Pt cathode catalyst by Operando XAFS analysis	松井公佑、佐藤功真、宇留賀朋哉、唯美津木
44	2021年12月	MRM2021, E-3: Advanced Analysis for Fuel Cell Materials and Technologies, Pacifco YOkohama	Operando Cerium Ion Mapping in-plain Electrolyte Membranes of Polymer Electrolyte Fuel Cell by Micro X-ray Fluorescence Spectroscopy	Yuki Orikasa1, Yoichiro Tsuji2, Takahiko Asaoka2, Maria Ohki2, Oki Sekizawa3, Kiyofumi Nitta3

45	2021年12月	MRM2021, E-3: Advanced Analysis for Fuel Cell Materials and Technologies, Pacifico Yokohama	In-situ HERFD-XANES and RIXS measurements of oxygen and sulfur species adsorbed on Pt cathode catalysts in polymer electrolyte fuel cells	T. Uruga, T. Kaneko, H. Miwa, H. Matsui, T. Yoshida, K. Higashi, O. Sekizawa, T. Sakata, K. Asakura, T. Sasaki, M. Tada, Y. Iwasawa
46	2021年12月	Materials Research Meeting 2021	Atomic-scale analysis of catalyst particle surfaces using scanning transmission electron microscopy	Yuki Omori, Hsin-Hui Huang, Shunsuke Kobayashi, Akihide Kuwabara
47	2021年12月	Materials Research Meeting 2021	Damage-Free Femtosecond X-ray Laser Snapshot Imaging of Catalyst Layer Nano- Structures of Polymer Electrolyte Fuel Cells	Akihiro Suzuki ¹ , Yoshiya Niida ¹ , Yasumasa Joti ² , Yoshitaka Bessho ³ , Yoshinori Nishino ¹
48	2021年12月	MRM2021, E-3: Advanced Analysis for Fuel Cell Materials and Technologies, Pacifico YOkohama	Cross-sectional image of liquid water in gas diffusion layer by Compton scattering imaging	Naruki Tsuji ¹ , Tetsuya Miyazawa ¹ , Yoichiro Tsuji ² , Yoshiharu Uchimoto ³ , Hideto Imai ⁴ , Yoshiharu Sakurai ¹
49	2021年12月	MRM2021, E-3: Advanced Analysis for Fuel Cell Materials and Technologies, Pacifico YOkohama	Experiment Data Infrastructure with BENTEN for PEFCs Technology Evaluation at SPring-8	T. Matsumoto ¹ , S. Yokota ¹ , T. Kaneko ¹ , T. Miyazawa ¹ , H. Tsuji ¹ , H. Iwamoto ¹ , K. Umetani ¹ , N. Tsuji ¹ , A. Mufundirwa ¹ , Y. Mizuno ¹ , T. Uruga ¹ , Y. Tsuji ² , Y. Uchimoto ³ , H. Imai ⁴ , Y.Sakurai ¹

50	2021 年 12 月	MRM2021, E-3: Advanced Analysis for Fuel Cell Materials and Technologies, Pacifico YOkohama	Thermal effect on Oxygen Reduction Reaction Kinetics for Pd Core - Pt Shell Catalyst with different core size	Hirokazu Tsuji1, *Tomoki Uchiyama2, Chen Liu2, Masazumi Arao3, Hideto Imai3, Takahiko Asaoka4, Yoichiro Tsuji4, Tomoya Uruga1, Yoshiharu Sakurai1, Yoshiharu Uchimoto2
51	2021 年 12 月	MRM2021, E-3: Advanced Analysis for Fuel Cell Materials and Technologies, Pacifico YOkohama	Synchrotron radiation analysis platform for characterization of polymer electrolyte fuel cells at SPring-8 in NEDO project	Tomoya Uruga1, Tetsuya Miyazawa1, Hirokazu Tsuji1, Takuma Kaneko1, Hiroyuki Iwamoto1, Keiji Umetani1, Naruki Tsuji1, Albert Mufundirwa1 Yuki Mizuno1, Takahiro Matsumoto1, Shigeru Yokota1, Tomoki Uchiyama2, Masashi Matsumoto3, Masayuki Inaba3, Yoshiharu Uchimoto2, Yoichiro Tsuji4, Hideto Imai3, Yoshiharu Sakurai1
52	2021 年 12 月	Pacifichem 2021	In-situ simultaneous HERFD-XANES/XRD measurements of the adsorption species on Pt/C electrocatalysts in polymer electrolyte fuel cells under operating conditions	T. Uruga, O. Sekizawa, T. Sakata, T. Kaneko, K. Higashi, O. Sekizawa, Y. Iwasawa, H. Miwa, K.Asakura
53	2022 年 1 月	第 35 回日本放射光学	Operando Pt LIII 端	佐藤功真、松井公佑、

		会年会放射光科学合 同シンポジウム	XAFS による PEFC Pt/C カ ソード触媒のオンサイト SO ₂ 被 毒・回復処理における局所構 造解析	宇留賀朋哉、唯美津木
54	2022 年 3 月	XAS Journal Club from Europa and Asia-Oseania	Operando Characterization of Pt- Bimetallic ORR Catalysts for PEFC	M. Tada
55	2022 年 3 月	量子ビームサイエンスフ ィスタ	中性子小角散乱による燃料 電池触媒層の研究 Small-Angle Neutron Scattering Study of a Fuel Cell Catalyst Layer	鈴木淳市、河村幸彦、 大石一城、柴山充弘、 廣井孝介、高田慎一、 川北至信、大友季哉、 今井英人、大木真里 亜、朝岡賢彦、辻庸一 郎、雨宮一樹
56	2022 年 3 月	公益社団法人日本金 属学会 ～第 72 回金 属組織写真賞～	Pt ₃ Co 合金触媒粒子表面 Pt skin 層の精密原子間距 離計測	大森雄貴・黄馨慧・仲山 啓小林俊介・桑原彰秀
57	2022 年 3 月	公益社団法人日本金 属学会 2022 年春季 (第 170 回)講演大会	走査透過電子顕微鏡を用い た Pt 触媒粒子表面の原子間 距離計測	大森雄貴・黄馨慧・仲山 啓小林俊介・桑原彰秀
58	2022 年 3 月	日本化学会第 102 回 春季年会	In situ HERFD- XANES/RIXS measurements of adsorbed oxygen species on Pt/C electrocatalysts in polymer electrolyte fuel cells under operating conditions	H. Ariga-Miwa, T. Yoshida, T. Uruga, T. Sasaki, T. Kaneko, T. Sakata, K. Higashi, O. Sekizawa, Y. Iwasawa,
59	2022 年 3 月	日本化学会第 102 回 春季年会	Heterometallic interaction emerges from resonant inelastic X-ray scattering in luminescent Tb-Pt molecules	T. Yoshida, Y. Iwasawa, M. Yamashita
60	2022 年 3 月	日本化学会第 102 春 季年会	オンサイト SO ₂ 被毒による PEFC Pt カソード触媒の operando Pt LIII 端 XAFS	佐藤功真, 松井公佑, 宇留賀朋哉, 唯美津木

			解析	
61	2022年5月	日本顕微鏡学会 第78回学術講演会	走査透過電子顕微鏡法を用いたPt系触媒の表面原子間距離精密計測	小林 俊介・大森 雄貴・黄 馨慧・桑原 彰秀
62	2022年7月	歴史的化学論文大賞受賞記念シンポジウム (名古屋大学)	観ることで広がる化学の世界	唯 美津木
63	2022年8月	12th International Conference on Inelastic X-ray Scattering (IXS2022)	Overview of X-ray Compton Scattering Research	Yoshiharu Sakurai
64	2022年9月	73rd Annual Meeting of the International Society of Electrochemistry, online	Operando Radical Quencher Mapping in Through-plane MEA by X-ray Fluorescence Spectroscopy	Aika Takezawa ¹ , Yuki Orikasa ¹ , Yoichiro Tsuji ² , Takahiko Asaoka ² , Maria Ohki ² , Oki Sekizawa ³ , Kiyofumi Nitta ³
65	2022年9月	第83回応用物理学会秋季学術講演会	in situ 硬X線発光分光計測による固体高分子形燃料電池カソード Pt/C 触媒の吸着酸素種/硫黄種の解明	宇留賀 朋哉 ¹ , 三輪 寛子 ² , 吉田 健文 ² , 金子 拓真 ¹ , 佐々木 岳彦 ³ , 東 晃太郎 ¹ , 坂田 智裕 ¹ , 関澤 央輝 ¹ , 松井 公佑 ⁴ , 唯 美津木 ⁴ , 岩澤 康裕 ¹
66	2022年10月	242nd ECS Meeting, Atlanta USA	Imaging Liquid Water in a PEFC with High-Energy X-ray Compton Scattering	Naruki Tsuji ¹ , Testuya Miyazawa ¹ , Takuma Kaneko ¹ , Yuki Orikasa ² , Yoichiro Tsuji ³ , Yoshiharu Uchimoto ⁴ , Hideto Imai ⁵ and Yoshiharu Sakurai ¹
67	2022年10月	242nd ECS Meeting, Atlanta USA	Reverse Monte Carlo Modeling for Catalyst Nanoparticles in Polymer Electrolyte Fuel Cells by	Yuki Mizuno ¹ , Hirokazu Tsuji ¹ , Tomoya Uruga ¹ , Takuma Kaneko ¹ ,

			High-energy X-ray Diffraction Measurement	Koji Ohara ¹ , Yoshiharu Uchimoto ² , Hideto Imai ³ , Yoichiro Tsuji ⁴ , Yoshiharu Sakurai ¹
68	2022 年 10 月	242nd ECS Meeting, Atlanta USA	Anomalous Small-Angle X-ray Scattering of Fuel- Cell Catalyst Samples	Albert Mufundirwa ¹ , Yoshiharu Uchimoto ² , Hideto Imai ³ , Yoichiro Tsuji ⁴ , Hiroyuki Iwamoto ¹ and Yoshiharu Sakurai ¹
69	2022 年 10 月	242nd ECS Meeting, Atlanta USA	Operando Cerium Distribution Analysis on Through-plane MEA in 2nd-generation MIRAI	Yuki Oriksa ¹ , Aika Takezawa ¹ , Kazuki Amemiya ² , Yoichiro Tsuji ² , Takahiko Asaoka ² , Maria Ohki ² , Oki Sekizawa ³ , Kiyofumi Nitta ³
70	2022 年 10 月	242nd ECS Meeting, Atlanta USA	Operando X-ray Fluorescence Measurement Method of Cerium Radical Quencher Distribution in Through-plane MEA	Aika Takezawa ¹ , Yuki Oriksa ¹ , Yoichiro Tsuji ² , Takahiko Asaoka ² , Maria Ohki ² , Oki Sekizawa ³ , Kiyofumi Nitta ³
71	2022 年 10 月	242nd ECS Meeting, Atlanta USA	Characterization of molecular aggregation state in deteriorated Nafion Membrane on the basis of X-ray diffraction measurement	Tomoyasu Hirai, Tamio Seko, Wataru Higashiguchi, Syuji Fujii, Yoshinobu Nakamura
72	2022 年 10 月	242nd ECS Meeting, Atlanta USA	Atomic-scale Structural Analysis of Pt-based Nanoparticles using Scanning Transmission Electron Microscopy	Akihide Kuwabara, Yuki Omori, Hsin-Hui Huang, Shunsuke Kobayashi

73	2022年10月	242nd ECS Meeting, Atlanta USA	Exploring the Function of Nitrogen-doped Carbon Shell on Ordered and Disordered PtCo Alloy Catalysts in Oxygen Reduction Reaction by X-ray Absorption Spectroscopy	○Yunfei Gao1, Tomoki Uchiyama1, Kentaro Yamamoto1, Toshiyuki Matsunaga1, Toshiharu Teranishi1, Ryota Sato1, Hideto Imai2, Yoshiharu Sakurai3, Yoichiro Tsuji4, Yoshiharu Uchimoto1
74	2022年10月	242nd ECS Meeting, Atlanta USA	operando X-ray Absorption Spectroscopic Study on Electrochemical Oxygen Reduction Mechanism of Novel Platinum-based Nanostructured Catalysts	○Weijie Cao1, Tomoki Uchiyama1, Kentaro Yamamoto1, Toshiyuki Matsunaga1, Toshiharu Teranishi1, Ryota Sato1, Hideto Imai2, Yoshiharu Sakurai3, Yoichiro Tsuji4, Yoshiharu Uchimoto1
75	2022年10月	242nd ECS Meeting, Atlanta USA	Operando X-ray absorption spectroscopy of Pt catalyst in polymer electrolyte fuel cell under high temperature and low humidification	○Sho Kobayashi1, Tomoki Uchiyama1, Katsuyoshi Kakinuma2, Kentaro Yamamoto1, Toshiyuki Matsunaga1, Masashi Matsumoto3, Hideto Imai3, Yoshiharu Sakurai4, Takahiko Asaoka5, Yoichiro Tsuji5, Yoshiharu

				Uchimoto1
76	2022年10月	242nd ECS Meeting, Atlanta USA	Operando X-ray Absorption Spectroscopic Study of Pt-based nanowire catalysts under Oxygen Reduction Reaction	○Tomoki Uchiyama1, Weijie Cao1, Kentaro Yamamoto1, Toshiyuki Matsunaga1, Toshiharu Teranishi1, Ryota Sato1, Hideto Imai2, Yoshiharu Sakurai3, Yoichiro Tsuji4, Yoshiharu Uchimoto1
77	2022年10月	242nd ECS Meeting, Atlanta USA	Inhibition of ionomer specific adsorption on Pt/C catalysts coated with dopamine-derived nitrogen-doped carbon	○Yunfei Gao1, Tomoki Uchiyama1, Kentaro Yamamoto1, Toshiyuki Matsunaga1, Toshiharu Teranishi1, Ryota Sato1, Hideto Imai2, Yoshiharu Sakurai3, Yoichiro Tsuji4, Yoshiharu Uchimoto1
78	2022年10月	242nd ECS Meeting, Atlanta USA	Influence of specific adsorption of sulfo group in perfluorosulfonic acid ionomer under the oxygen reduction reaction activity of Pt/C by operando X-ray absorption spectroscopy	○Weijie Cao1, Tomoki Uchiyama1, Kentaro Yamamoto1, Toshiyuki Matsunaga1, Toshiharu Teranishi1, Ryota Sato1, Hideto Imai2, Yoshiharu Sakurai3, Yoichiro Tsuji4, Yoshiharu

				Uchimoto1
79	2022 年 10 月	242nd ECS Meeting, Atlanta USA	operando High Energy Resolution Fluorescence Detected (HERFD) X-ray absorption spectroscopic study of TOYOTA MIRAI Gen.1 catalysts	○Sho Kobayashi1, Weijie Cao1, Yunfei Gao1, Tomoki Uchiyama1, Hideto Imai2, Yoshiharu Sakurai3, Yoichiro Tsuji4, Yoshiharu Uchimoto1
80	2022 年 10 月	242nd ECS Meeting, Atlanta USA	High Resolution Observation of Liquid Water in Polymer Electrolyte Fuel Cell using X-ray Nano Computed Tomography	○Toshiki Watanabe1, Akihisa Takeuchi2, Masayuki Uesugi2, Tomoki Uchiyama1, Takahiko Asaoka3, Yoichiro Tsuji2, Hideto Imai4, Yoshiharu Sakurai2, Yoshiharu Uchimoto1

課題番号（管理番号）：PF04

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発/電気化学的特性測定技術の研究開発」

実施者：技術研究組合FC-Cubic、山梨県

期間：2020年8月～2025年3月

1. 研究開発概要

NEDO技術開発ロードマップの2030年以降の目標を達成するためには、現行FCVからの大幅な性能向上が要求されるが、PEFCを構成する材料・部材の一部の特性向上で達成されるものではなく、MEAを構成する触媒、担体、イオノマー、電解質膜、更にGDL, MPL, セパレータなど全ての材料・部材の特性向上の積み上げで達成されるものであり、かつそれぞれの耐久性の向上と両立させることが必須である。PEFC評価解析プラットフォーム（以下、「本プラットフォーム」と称す）のもと、PEFCの基幹材料であるMEAおよびMEAを構成する部材等、本研究開発事業で新規に開発された材料に対して、産業界のニーズを反映した共通の計測・解析手法およびプロトコルで評価することで、目標の達成度や達成に向けた改良指針を提示することにより、材料開発者の目標達成までのプロセスを明確化させることが可能となり、また材料開発の目標達成状況を公正かつ客観的に評価する基準が構築される。本プラットフォーム内で開発した共通基盤となる計測・解析技術（シミュレーション、材料分析／解析、電気化学的特性測定、マテリアルズ・インフォマティクス）は産業界及び学术界へ普及・活用させる。また、これらの共通基盤技術ならびにPEFCの国内外の政策、市場、研究開発の最新動向を含めた対外的な情報発信を積極的に行い、これまで業界への参入障壁が高いと想定していたサプライヤーやスタック製造の新規プレーヤーの創出、電気化学に縁が薄かった材料研究者のPEFC研究開発への参画を促進することが目標である。本「電気化学的特性測定技術の研究開発」において、本プラットフォームの全体マネジメントのもと、評価解析プラットフォームの構築および共通基盤となる計測・解析技術の開発のうち、電気化学的特性測定技術開発を推進する。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

本事業において、最終的にNEDO技術開発ロードマップの2030年以降の目標の達成に向けて電気化学分野の評価解析体制を構築し、新規MEA・材料を適切に評価解析する機能、これに用いるプロトコル開発機能、PEFC性能・劣化シミュレーターのバリデーション機能が適切に運用できている状態を実現する必要があり、その中間となる2022年6月までに、新規材料・新規MEA開発のための電気化学分野の評価解析の基本体制が構築できていること。また、従来プロトコルに加え適用範囲を拡大した新規プロトコルによる評価解析を展開し、産業界で活用可能な、プロセス－性能シミュレーターおよびPEM劣化シミュレーター有効化のための、構成要素モデルの構築と検証が完了していることを最終目標として設定し、これにつながる中間目標（下記）を各サブテーマに設定し研究開発を進めている。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
電気化学的	・新たな評価プロトコルを	・材料研究テーマの開発材料お	達成	電気化学評価量

特性測定技術の研究開発全体進捗	<p>一部開発材料に適用開始し必要な評価を完了するとともにシミュレーション開発に必要とされるバリデーション技術にめどを立て、改定プロトコルを提示している。</p> <p>・FCの電気化学分野におけるNEDO事業のハブとして認知されている。</p>	<p>よりMIRAIのMEA評価を実施し、マニュアル化しNEDOプロトコルとして公開。新評価セル開発し公開</p> <p>・大型商用車用AST開発計画策定し実施開始している。</p> <p>・バリデーションデータの取得、およびバリデーション手法を設定</p> <p>・要素材料開発方針に影響する追加課題を実施、完了</p>	<p>○</p>	<p>の増大、評価レベル・項目の増大に対応した体制構築と実施</p> <p>評価プロトコル、ノウハウのマニュアル化</p> <p>HDVに対応した加速耐久評価プロトコル策定</p>
①新規開発材料の特性評価・解析	<p>・従来手法による新規開発材料のセル評価を行うとともに、将来の燃料電池自動車目標に向けてサブテーマ③-1で設定する評価プロトコルの改訂版（2021年版）を適用した新規材料評価の課題を確認する。</p> <p>・標準的な現行MEA材料および商品化されたMEA（MIRAI）を評価し、新規開発材料の位置づけを明確化して材料開発を支援する。</p>	<p>・現行FCVに近い材料（PtCo / C 触媒・補強膜・GDL）を評価解析プラットフォーム標準MEA材料と定め、それらを利用して新規開発材料（16機関50材料）を評価、技術課題・位置づけを示して支援した。また、発電評価装置などハードウェアの対応を進め、新規材料評価へ改訂版プロトコルの適用を開始した。</p> <p>・MIRAIのMEAを新規材料と同じ手法で発電性能・耐久性（負荷応答・起動停止・OCV）を評価し材料開発者へ示した。</p>	<p>達成</p> <p>○</p>	<p>・PFとして評価すべき新規開発材料数に対し、評価キャパシティが不足・触媒、電解質膜以外の開発材料への対応（③1に関連）</p> <p>・発電評価、電気化学測定などの評価機器の老朽化（主力設備は2006-2007年の機器）</p>
②-1 電気化学計測による構造・性能シミュレーターのバリデーション	<p>・電極構造モデルの検証用のMEAサンプルに対するIV性能解析により触媒層マクロ特性（プロトン伝導抵抗、酸素拡散抵抗、触媒活性）の実験データを提示する。</p> <p>・モデルによる計算特性と性能解析による実験データとの比較により電極構造モデルの課題を抽出しシミュレーショングループにフィードバックする。</p> <p>・IV性能解析技術の改良により担体細孔中の物</p>	<p>・標準的な材料および産業界で用いられている最新材料を取り入れた検証用のMEAのIV性能解析を実施。得られた触媒層マクロ特性の解析結果を、シミュレーションGrに提供した。</p> <p>・インピーダンススペクトルに二重伝送線モデルを適用した新規なプロトン抵抗解析手法を提案し、多孔性の触媒担体にて、解析手法の妥当性を検証した。</p> <p>・NEDO事業実施者の目標値と進捗値から、本事業全体の目標の充足度と達成状況を解</p>	<p>達成</p> <p>○</p>	<p>劣化シミュレータ、加速耐久試験法確立のため、新たな劣化現象、耐久課題への対応</p>

	<p>質輸送特性を分離して定量可能とする。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・1 D モデルを使用し、NEDO 目標への開発材料の達成状況を調査し報告する。 ・多孔質担体を利用した高活性触媒における担体劣化促進のメカニズムと発現条件を明確にする。 	<p>析し, 不足課題を明示し、NEDO 公募方針決定に貢献した。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・多孔質担体における、炭素性状と腐食速度との因果、さらに炭素腐食が触媒層の性能劣化にどのように影響するかについて検証した。 		
②-2 膜劣化シミュレーターのバリデーション	<ul style="list-style-type: none"> ・化学劣化試験後の膜の化学構造分析、高次構造、機械的特性評価、形状観察の手法を確立し、データを膜劣化シミュレーションのバリデーションに提供している。 ・電極触媒の耐久性向上を狙いとして触媒担体への適用検討が進んでいる金属酸化物が電解質膜劣化に及ぼす影響を明らかにし、劣化メカニズム、発現条件範囲を明確にする。 	<ul style="list-style-type: none"> ・膜劣化シミュレーションのバリデーションに向け、指標とする分子量計測手法を確立し、モデル材料を用いた過酸化水素暴露劣化試験により妥当性を検証した。 ・膜の劣化の進行に伴う構造変化、機械特性変化から、電解質膜劣化過程の状態変化が捕らえられ、シミュレーターのバリデーションだけでなく、膜の加速劣化試験プロトコル開発への知見としても活用できる情報を得た。 ・金属酸化物 (Sn,Ti) 添加による電解質膜劣化への影響を把握を進め、関連材料を検討する材料研究グループと懸念を共有した。 	達成 ○	<ul style="list-style-type: none"> ・化学劣化と機械劣化の相互作用の機構解明とモデル化 ・MEA 耐久試験時のアイオノマーと膜の劣化を区別し評価可能な手法の開発 ・膜単独での高温加速耐久試験法の開発
②-3 フルサイズ MEA による劣化シミュレーターのバリデーション	<ul style="list-style-type: none"> ・フルサイズ MEA で実車での劣化に対応した耐久を実施し、劣化シミュレーターのバリデーションが可能なサンプルを性能解析結果と合わせ材料分析・解析グループに提供できている。 	<p>標準的な Pt 触媒、補強膜を用いたフルサイズ MEA 試作をできるようにした。試作した MEA を用いて劣化耐久を実施し性能評価も行い、フルサイズでの耐久評価が実施できることを確認。</p> <p>方針変更により、バリデーションに用いる MEA は評価 PF 全体として外部調達で実施することとした。これに対応し MEA の外部調達を進めることとした。</p>	達成 ○	<ul style="list-style-type: none"> ・バリデーション以外のフルサイズスタックを用いた評価解析との連携 ・面内分布計測手法の確立

<p>③-1 燃料電池材料特性評価プロトコル、評価セルの開発と共通化</p>	<p>・乗用車向け評価プロトコルのマニュアル改訂版（2021年度版）のドキュメントを作成し、新規材料評価への適用のために山梨県に展開し活用を開始している。</p>	<p>プロトン輸送抵抗（触媒層）、酸素拡散抵抗（触媒層）、プロトン輸送抵抗（電解質膜-面直）についてマニュアル化し山梨県、産業界に展開、フィードバックをもらう。2021年度暫定版を3月末発行。アノード触媒の評価、耐久は条件決めデータ収集しマニュアル化を行った。</p>	<p>達成 ○</p>	<p>・複数の劣化要因の影響把握 ・セパレータのプロトコルが未設定 ・プロトコルの産業界・アカデミアへの普及</p>
<p>③-2「用途/運転領域拡大に伴う評価プロトコルの改定案の検討・提案」</p>	<p>・用途展開/運転領域拡大として評価プロトコルとして反映させる全体のシステムおよび燃料電池システムの構成が決められ燃料電池の運転環境条件の推定ができています。 ・高温評価（100℃以上Max150℃）用の評価プロトコルのマニュアルのドキュメントを作成し、新規材料評価への適用のために展開し活用を開始している。また、プロトコル検討のための高温評価試験体制の整備として、基準材料の選定、評価セルの設計・製作を行う。</p>	<p>・NEDO ロードマップと連携して商用車向けの検討を実施。大型トラック、建機等の運転環境条件の推定はロードマップの検討結果を提供してもらい、それをベースに商用車向けプロトコル案を検討、案作成を進め決定した。 ・高温評価用設備導入済、評価セルは現行セルを基に、部材を高温仕様とし問題無いことを確認。高温での評価、耐久手法の検討を実施し、プロトコル化をおこなった。基準材料はNEDO プロジェクト関係の材料検討を行ない、使用可能な材料選定を行なった。</p>	<p>達成 ○</p>	<p>・大型商用車、建機、船舶、鉄道等の多用途に対応した研究開発目標値を含めた適切な評価耐久プロトコルの検討、設定ができていない。 ・設定したプロトコルに基づく新規燃料電池部材の開発推進ができていない。</p>

3.2 研究開発の詳細

(1) 現行 FCV に近い材料を評価解析プラットフォーム標準 MEA 材料と定め、それらを利用して新規開発材料（16 機関 50 材料）を評価、技術課題・位置づけを示して支援した。また、発電評価装置などハードウェアの対応を進め、新規材料評価へ改訂版プロトコルの適用を開始した。加えて、MIRAI の MEA を新規材料と同じ手法で発電性能・耐久性（負荷応答・起動停止・OCV）を評価し、現状世界トップレベルの技術および今後の材料開発の方向性の参考として材料開発者へ示した。

(2) シミュレーション Gr への電化学特性情報の測定・解析結果の情報提供に加え相互の情報交換によりシミュレーションの技術開発に貢献した。また、プロトン伝導機構の解析手法を開発しその妥当性を検証し、今後シミュレーションの検証に活用している処方を開発した。NEDO 事業全体の目標の充足度と達成状況を解析から、20 年度採択テーマからは、拡散層、パイポーラプレート（セパレーター）にかかる目標値が不足していたが、21 年度採択テーマで充足できたことを示し、各テーマの進捗状況から、本プロジェクト全

体としての 2030 年目標に対する達成状況を可視化した。これらの結果は、PL の活動を通じ、NEDO の公募方針決定に貢献した。多孔質担体の炭素腐食が触媒層の性能劣化にどのように影響するかについて検証し、高表面積が劣化促進の主要因であると特定した。一方炭素腐食による電極性能低下については、複数のメカニズムを提示したが、寄与度と発現条件については特定できておらず、今後の課題として提示した。

(3) 分子量分布測定のための単分子鎖分散液を検討し、高分子量の凝集体を含まない分散液が得られることを見出した。機械特性の温度依存性を検討し、膜の劣化の進行に伴い、重量減少、EW 増加、側鎖ピークの減少、カルボキシル基ピークの出現と成長、結晶化度の上昇、アイオノマーピークのシフト、一軸引張試験での破断伸びの減少が確認され、劣化の進展メカニズムを推定した。これは膜の加速劣化試験プロトコル開発への知見としても活用する。

アノード触媒層に金属酸化物を添加した場合の MEA の劣化への影響を調査し、酸化チタンは Ti イオンがフェントン類似反応によりラジカル生成を加速したのに対し、酸化スズはアノード中での過酸化水素生成が抑制されたと考えられる結果を得た。この結果を酸化物を触媒層等に導入する際の懸念として関連する技術開発を実施する研究グループに対し情報展開し、酸化物の構造・組成、表面状態及び含有する不純物の影響および金属イオンのフェントン類似反応等の起こりやすさについても課題として明らかになった。

(4) フルサイズセルスタックを用いて DOE で膜の加速耐久として実施している化学劣化と機械劣化を組み合わせた複合耐久モード (OCV 条件と電流密度を変動させて膜の加湿状態を変えて膜への機械的負荷を加えるモード) と同様なサイクルが保有する評価装置で実施可能なことを確認した。本耐久実験が確認できたことにより、今後、シミュレーションバリデーション等でフルサイズセルスタックを用いた性能表、耐久評価を行う必要がある場合、実施できることが確認できた。

(5) 当初予定では、引き続き拡散層の電気抵抗、熱抵抗の測定方法の検討を実施する予定であったが、NEDO プロジェクトの新規材料開発でアノード触媒開発、高温向けの材料開発に対応し、アノード触媒の性能評価、耐久評価についてのプロトコル検討を進めた。アノード触媒耐久性評価 (加圧 OCV) アノード触媒 HOR (水素酸化) 活性評価、アノード触媒 負荷変動試験、アノード触媒 水電解耐久の試験案を検討し、産業界と協議の上プロトコルを設定した。

(6) HDV 向けの PEFC のロードマップの検討と連携して HDV 向けの評価プロトコル検討を進め、HDV 向けの AST 条件を検討するため推定された運転環境を考慮し、小型単セルを用いた耐久データから AST 条件を求める実験計画を立案し、実験データ取得を開始した。

(7) 評価プロトコル設定に関しては、セパレータ表面処理技術および GDL 耐久性の評価法の検討を開始した。加えてアカデミアからのニーズに対応して、MEA 評価用小面積セルを産業界の情報をもとに開発し図面を公開し、また信頼性の高い触媒活性測定のための回転電極法のマニュアルを開示した。FC-Cubic での実地実習も実施することも行い、新たな参画者にとって有用な技術情報として活用されている。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 評価容量・能力の増強要望に対応し、FC-Cubic は山梨県への機能集約と設備増強を進め、山梨県との連携を強化し、かつ電気化学評価レベル向上に対する要望にも対応していく。これにより、新たに開発された評価プロトコルへの対応のみならず、開発中の評価技術を活用した電気化学評価結果も踏まえた、新規材料の特徴把握が可能とする。

(2) 劣化シミュレーター、加速耐久試験法確立のため、新たな劣化現象、耐久課題への対応として、中間までに確立した触媒担体細孔内の物質輸送解析技術を活用し、担体細孔内の物質輸送を踏まえた発

電シミュレーターのバリデーションを実施する。また、担体炭素に着目した耐久劣化要因の明確化と、これまでに培ってきた電気化学解析技術を活用したセル性能低下への寄与の定量化をすすめる。

(3) 化学劣化と機械劣化の相互作用の機構解明とモデル化、MEA 耐久試験時のアイオノマーと膜の劣化を区別し評価可能な手法の開発、膜単独での高温加速耐久試験の可能性検討については、材料解析グループとの連携を強化し機構解明とモデル化を進めるとともに、分解生成物の高度分析技術の適用と反応機構解析、MEA 高温耐久試験後のポスト分析を分担実施し、高温での劣化挙動の特徴について把握することで対応していく。

(4) バリデーション以外のフルサイズスタックを用いた評価解析との連携については、評価 PF としての共通フルサイズスタック設定と外製 MEA を用いた評価、解析を推進し、面内分布計測手法の確立に対しては既存装置、産業界での適用技術の活用、導入による技術確立を進める。

(5) 膜劣化プロトコル開発において、複数の劣化要因が影響する課題に対して、特に膜の機械劣化と化学劣化の複合モードについて劣化メカニズム解析と連携したプロトコルを検討していく。

(6) 大型商用での課題に対しては、燃料電池使用環境推定、産官学での劣化メカニズム解析結果の活用、新たな運転環境での性能発現および性能低下現象の単セルでの基盤データ取得によるプロトコル検討、策定を進める。合わせて新たな運転環境に対応する新規燃料電池部材の開発を新規プロトコルを適用して推進する。

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) CO₂ 排出量の大半(約 85%)を占める乗用車等の低炭素化に貢献するため、産学官の有識者と議論を重ねて策定した NEDO 技術開発ロードマップにおける 2030 年以降に目指すべき値を実現するためには、性能と耐久性の向上が必須である。これまでの解析の結果、性能の面では現 NEDO 事業での材料研究課題の目標値の積み上げで 2030 年目標には到達するものの、これを着実に実績として積み上げていく必要がある。一方、耐久性の面では現状目標達成の道筋が見えていない。加えて、今後燃料電池の多用途展開に向けて、大型商用車両が重要な展開先であるとされており、これへの対応も急務である。このような状況の下、新たに開発が進められつつある新規材料の開発促進のため、従来の性能・耐久の評価進めつつ、さらに明確になってきている劣化現象の解析技術などへの対応を早急に進める体制を整えていく必要がある。そのため、早急な特性評価・解析装置の導入並びに人的リソースの投入や評価解析機能の集約による効率的な実施体制の構築が必要でありこれに対応していく。

(2) 提案者である技術研究組合 FC-Cubic は、実際に燃料電池システムを商品化している自動車企業、電機企業からの出向者も多く実際に研究開発に連携して取り組む体制であり、成果の企業への展開・実用化への取り組みが極めてスムーズに進められる。またこれまでの技術開発を通じて集積したノウハウ含めた各種評価法のマニュアル化とそのアカデミア・産業界への展開を今後も進め、自身の技術レベルを向上させ、アカデミアのニーズや産業界の抱える新たな課題に対する取り組みも随時実施していく。人材教育も含め、アカデミアとの連携のハブとしても展開していくことを想定しており、「PEFC 評価解析プラットフォーム」として、オールジャパンの体制で一致団結してそれぞれの知見を集約し、燃料電池技術開発の裾野の拡大、車載用燃料電池の本格的普及、さらに燃料電池の多用途展開を実現していく。事業終了後(本事業開始 5 年後)には、大学・研究機関、サプライヤーおよび新規参入企業・研究者が利用するための評価解析プラットフォームを構成する機関として本格的に運用する。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	Aug-20	Journal of the Electrochemical Society	Analytical Technique on PEFC Performance for Efficiency Loss Characterization and MEA Design	Shota Katayama ○, Seiho Sugawara○
2	Nov-20	Journal of Applied Polymer Science	Thermal desorption and pyrolysis direct analysis in real time mass spectrometry of Nafion membrane	Makoto Yamaguchi○
3	Dec-20	Solid State Ionics	Substrate-dependent proton transport and nanostructural orientation of perfluorosulfonic acid polymer thin films on Pt and carbon substrate	Xiao Gao#, Kentaro Yamamoto#, Tomoyasu Hirai※, Noboru Ohta☆, Tomoki Uchiyama #, Toshiki Watanabe #, Masakuni Takahashi#, Naoki Takao▼, Hideto Imai▼, Seiho Sugawara ○, Kazuhiko Shinohara○, Yoshiharu Uchimoto#
4	Dec-20	ACS Applied Energy Materials	Effect of Temperature on Oxygen Reduction Reaction Kinetics for Pd Core–Pt Shell Catalyst with Different Core Size	Chen Liu#, Tomoki Uchiyama #, Kentaro Yamamoto#, Toshiki Watanabe #, Xiao Gao#, Hideto Imai▼, Masashi Matsumoto▼, Seiho Sugawara

				○, Kazuhiko Shinohara○, Koichiro Oshima #, Shigeki Sakurai☆, Yoshiharu Uchimoto#
5	Jan-21	Journal of Power Sources	Three-dimensional numerical simulation of full-scale proton exchange membrane fuel cells at high current densities	Takayuki Tsukamoto★, Tsutomu Aoki○, Hiroyuki Kanesaka○, Tadahiko Taniguchi○, Tsutomu Takayama★, Haruki Motegi★, Ryo Takayama★, Shoichi Tanaka★, Keisuke Komiyama★, Masakazu Yoneda★
6	Jan-21	Journal of Physical Chemistry C	DFT Study on the Chemical Degradation Mechanism of Perfluorobis(sulfonyl)imide Sulfonic Acid Ionomer Membranes	Makoto Yamaguchi○
7	Jan-21	ACS Applied Energy Materials	Operando X-ray Absorption Spectroscopic Study on the Influence of Specific Adsorption of the Sulfo Group in the Perfluorosulfonic Acid Ionomer on the Oxygen Reduction Reaction Activity of the Pt/C Catalyst	Chen Liu #, Tomoki Uchiyama #, Noriyuki Nagata, Masazumi Arao, Kentaro Yamamoto#, Toshiki Watanabe #, Xiao Gao #, Hideto Imai▼, Syota Katayama ○, Seiho Sugawara○,

				Kazuhiko Shinohara○, Koichiro Oshima #, Shigeki Sakurai☆, Yoshiharu Uchimoto#
8	Jan-21	Journal of Power Sources	Electrochemical method to quantitate gas transport resistance at immediate vicinity of catalyst surface in polymer electrolyte fuel cells	Shota Katayama ○, Seiho Sugawara○
9	Feb-22	Polymer Degradation and Stability	DFT Study on Side Chain Detachment of Perfluorosulfonic Acid Ionomers by Radical-Assisted Nucleophilic Attack of Water	Makoto Yamaguchi○
10	Mar-21	電気化学	PEFC 単セル電気化学測定による MEA 特性評価法	片山翔太○, 菅原生豊○
11	Feb-22	水素エネルギーシステム Volume 196, February	燃料電池評価・解析技術の研究動向	篠原和彦○ 今井英人▼
12	Sep-20	第 69 回高分子討論会	サファイア基板上ナフィオン薄膜のプロトン伝導度と含水量の膜厚依存性検討	山木邦亮○、黒田清一○、山口真○
13	Oct-20	PRiME 2020	Effects of Solvent Composition on Viscosity and Dispersion Structure of PEFC Catalyst Ink	Kaname Iida△, Takashi Sasabe△, Katsunori Sakai△, Suguru Uemura ◆, Kazuhiko Shinohara○, and Shuichiro Hirai△
14	Oct-20	PRiME 2020	Effect of reaction products on the PEFC catalyst ink property and catalyst layer quality	Suguru UEMURA ◆, Katsunori SAKAI△, Takashi, SASABE△, Hidetoshi MATSUMOTO△, Hidekazu SUGIMORIO,

				Kazuhiko SHINOHARA○, Shuichiro HIRAI△
15	Nov-20	第 61 回電池討論会	フッ素化イミドスルホン酸電解質膜の化学劣化機構の密度汎関数法計算による検討	山口真○
16	Sep-21	日本機械学会 2021 年度 年次大会	固体高分子形燃料電池触媒層における液水生成（水蒸気吸着実験及び格子密度汎関数理論計算による評価）	石原 聖也 †, 大山 淳平○, 大木 真里 亜○, 吉本 勇太 †, 高木 周 †, 杵 淵 郁也 †
17	Dec-21	第 62 回電池討論会	メゾポーラスカーボン担体の耐久性向上のための劣化要因解析	片山翔太○、朝岡賢彦○
18	Dec-21	第 62 回電池討論会	PEFC 触媒層中における担体細孔内のプロトン移動抵抗解析手法	河本 将宏○, 片山 翔太○
19	Feb-22	FCH 第 276 回定例研究会	（仮題）PEFC の触媒層性能評価技術－多孔質担体特性の評価法	片山翔太○
20	May-22	自動車技術会 2022 年春季大会	PEFC 触媒層中における担体細孔内のプロトン移動抵抗解析手法	河本 将宏○, 片山 翔太○
21	May-22	第 59 回伝熱シンポジウム	H D V 向け P E F C 用電解質膜の耐久性目標・加速耐久法と課題	金坂浩行○
22	May-22	第 71 回高分子学会 年次大会	フッ素化スルホン酸アイオノマーの側鎖分解反応機構の DFT 計算による検討	山口真○
23	May-22	第 29 回燃料電池シンポジウム	PEFC 燃料電池セルの評価プロトコル概要と高温評価での検討例	金坂浩行○、柳橋 直毅○
24	Sep-22	第 71 回高分子討論会	過酸化水素曝露試験によるナフィオン膜の化学劣化機構の検討	山口真○
25	Sep-22	第 65 回放射線化学 討論会	2 価鉄水和イオンの OH および HO ₂ /O ₂ -による酸化反応機構の密度汎関数法計算に基づく検討	山口真○
26	Jul-22	NEDO ニュースリリース	世界初、パルス中性子ビームで車載用燃料電池セル内部の水の可視化に成功	
27	May-21	FC-Cubic HP	電気化学評価用の FC-Cubic 小型燃料電池セルのカタログを公開	
28	Sep-21	FC-Cubic HP	産業界の研究 Tool/Know How のカタログ公開	
29	Mar-22	FC-Cubic HP	NEDO PEFC セル評価解析プロトコル 2022 年 3 月版を公開	

30	May-22	FC-Cubic HP	電極触媒の RDE 評価法 Ver.1.2 (FC-Cubic 版) を公開	
----	--------	-------------	---	--

課題番号（管理番号）： PF05

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発/マテリアルズ・インフォマティクスによる燃料電池材料の研究開発」

実施者： 物質・材料研究機構、日産アーク

期間： 2020年8月～2025年3月

1. 研究開発概要

NEDO 技術開発ロードマップに示されている 2030 年以降の目標を達成するためには、現行 FCV からの大幅な性能向上が要求されるが、PEFC を構成する材料・部材の一部の特性向上で達成されるものではなく、MEA を構成する触媒、担体、アイオノマー、電解質膜、更に GDL・MPL、セパレータなど全ての材料・部材の特性向上の積み上げで達成されるものであり、かつそれぞれの耐久性の向上と両立させることが必須である。これらを実現するため、燃料電池の材料サンプルを共通的な指標で構造評価してその結果を研究者へフィードバックする「PEFC 評価解析プラットフォーム」を構築し、プラットフォーム内にマテリアルズ・インフォマティクス(MI)グループを設置する。

MI による材料探索においては、品質の高いデータを MI 解析を行いやすい形でいかに大量に集められたかが最終的に大きな鍵となる。本プラットフォームでは、本研究開発事業で新規に開発された大量の材料群の解析・計測データを 10 年後、20 年後も利用できるような形で共通フォーマットを決め、それを系統的に蓄積した PEFC データベースを構築する。本事業で作成する PEFC データベースのような、初めから MI 解析を意識した形でフォーマットを共通化し、なおかつデータの長寿命化（10 年後もどのような実験をしたかが分かり、再実験の必要がない）を図りながら作成されたデータベースは世界的にも存在しない。本研究開発により初めて構築されるデータベースは今後の PEFC 開発において常に利用されるものになると考えられる。

我が国の PEFC 研究開発を加速させるためには、これまでに得られている知見を集約しつつ、そこで得られる大規模データベースと MI 手法を組み合わせることが有効である。本事業では、燃料電池の材料サンプルを共通フォーマットで DB 化し、その結果を MI による解析を通して実験研究者へフィードバックすることで、新規材料開発のための指針提案など、産業界が直面する技術的な課題の解決に取り組む。本提案では、「PEFC 評価解析プラットフォーム」において根幹となる DB 部の構築とそのため前処理手法の開発、さらに MI を利用した材料開発指針提案を行う。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

中間目標(2022 年度 6 月末)は以下の通りである。

①PEFC データベース作成に関しては、既存のデータを収集し、各データに対応した共通フォーマットを作成し、メタデータを含めてストレージ基盤に保存する。さらに本事業で得られる新規材料データの収集と共通フォーマットの策定も実施する。少なくとも 5 種類以上の既存データおよび共通フォーマットの完成および保存を目標成果とする。これらの項目を実施することで、既存データによる共通フォーマットの原型を完成させると共に、実験研究者と共同でメタデータ項目を決めると共にそれらのデータをどのようにデータベースに格納するか(データベース設計)という一連のプロセスのプロトタイプを構築する。さらに、PEFC データベースの利用の仕方についてもマネジメントグループからのフィードバックを元に検討する。

②実験生データ前処理手法開発に関しては、XAFS データの前処理と検証を行う。これにより、バックグラウンドの除去および S/N の改善が行われ、MI に利用しやすい形で PEFC データベースにデータを格納することが可

能となる。XAFS データの前処理をパイプライン化の確立を行うことで、データベース化における速度向上も目標とする。

③MI 手法による解析と新材料開発指針提案に関しては、3 種類の異なる材料系に関して MI 解析を行い、個別材料における高性能化指針を提案することを目標とする。

最終目標は、以下の通りである。項番②を実施している日産アークがマネジメントグループに移ったため、交番①と③について記載する。

①評価解析プラットフォーム(PEFC データベース)の構築

・本研究開発事業で新規に開発された大量の材料群の解析・計測データに対し、実験研究者と共に共通のフォーマットを作成することで本事業独自のデータベースを構築する。MI 解析による新材料開発を考慮した形で作成される世界初の PEFC データベースとなり、これを元に 2030 年の PEFC スタック性能目標の達成を見通すことができる材料候補を探索する。自動自律実験によるデータもデータベースに加えることで、データベースを強化する。2023 年度までに実施している触媒材料設計の指針提案、特に合金の組成を提案すると共に、外挿領域の材料設計を目指したデータの蓄積方針を確立する。

・新規材料の生データに対して、MI 解析を行うための事前処理を行うシステムを開発し、フォーマットの整ったデータベースの作成スキームを構築する。

・本データベースを作成することにより、今後 NEDO 事業に関連する PEFC の実験および計算データの全てを統一的に保存・管理することが可能となり、以後全ての新規材料開発研究において過去のデータを有効活用できるようになる。材料探索の範囲が広がり、これまで見過ごされてきた新規材料候補の発見や、大量のデータを活用した MI による新規材料提案・実験条件提案を行うための基盤が確立される。(事業終了後、構築したデータベースを関係機関が継続的に利用できるようにし、引き続きデータベースへのデータ蓄積が可能な設計にする。データベース維持のための仕組みを確立する。)

③MI 解析手法の適用・開発

・本事業で作成した PEFC データベースをもとに MI 解析を行い、性能向上に関係する記述子抽出を行うことで、新規触媒系材料および電解質材料の改良指針を提案する。特に、データベース中に蓄えられた異なる材料間のデータをお互いに利用し合うことで、新規材料候補および実験条件の探索指針を提案し、2030 年の PEFC スタック性能目標の達成に貢献する。

・触媒単体や電解質単体ではなく、デバイスとしての PEFC を高性能化させるための MI 手法を開発する。具体的には、複数材料間の接触界面における効果や、プロセスパラメーターの最適化の効果を考慮に入れた、現実的なデバイス設計のための MI 手法を開発し、それらを本事業で得られた材料系に適用する。

・提案した改良指針をもとに、新規材料の合成を材料開発グループと共同で行う。得られた結果をさらにデータベース化し、MI 手法の予測精度を向上させることで更なる材料候補の提案と探索指針の再提案を行う。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
①共通フォーマットに基づく系統的 PEFC データベースの開発 (担当: 物質・材料研究機構)	・既存データ(5 種類以上)の収集	複数のグループにおける 5 種類以上の既存データを収集した。	○	プロジェクト前半はデータ数が少なく、収集に時間がかかった。今後、実験実施数の増加と共にデータ数は増大すると考えられる PEFC 専用の DB として、メタデータの語彙リストを構築し、他の分野の DB と合わせた運用ができるようにする。
	・共通フォーマットの策定	実験条件などのメタデータを含めて実験データを保存するデータベースシステム (MIX Platform)を構築した。	○	
②PEFC データベース作成のための生データ前処理手法の開発 (担当: 日産アーク)	・バックグラウンド除去	XAFS スペクトルに対してバックグラウンドやグリッチの除去技術を開発した。	○	両課題とも、さらなる信頼性向上のためにデータを増強し、精度を向上させる必要がある。データ前処理のパイプライン化も実施している。
	・S/N 向上	深層学習を用いた XAFS スペクトルの S/N 向上に成功した。	○	
③PEFC データベースを用いた MI 解析による新規材料開発指針の提案 (担当: 物質・材料研究機構)	・個別データの解析検証、高性能化の指針提案 (3 種の材料系)	材料研究グループ提供のデータを元に MI 解析を行い、高性能触媒組成に関する指針提案を行い、触媒合成まで行うことに成功した。	△	指針提案に成功したが、まだ事例数が 3 種に及ばなかった。今後 PEFC データベース増強に連れて、材料研究グループとの議論を増やし、成功事例を増加させる。

3.2 研究開発の詳細

(1) 共通フォーマットに基づく系統的 PEFC データベースの開発 (担当: 物質・材料研究機構)

材料研究グループのデータを蓄積するためのデータベース基盤をクラウド上に構築した。データベース基盤には、NIMS データプラットフォームセンターで開発している MDR-Closed のサービスを用いた。実験データのデータベースへのアップロードを行う場合、一般的にはどのようなデータを (実験条件などのメタデータを含む)、どのように (サーバーへのアクセスの仕方など) 実施すればよいかが障壁となり、データ提供が進まないことが多い。そこで、ブラウザ上でデータをドラッグ & ドロップすることにより簡単にアップロードでき、最低限のメタデータの入力支援機能を有するウェブアプリ(MIX Platform)環境を構築した。これにより、全 NEDO 事業者がデータを容易に

PEFC データベースに提供することが可能となった。これを用いて、例えば FC-Platform の電気化学測定データなどを PEFC データベースに蓄積している。

共通フォーマットの策定においても、MIX Platform を使ったデータアップロード時におけるメタデータの入力支援機能により最低限の共通フォーマットを維持してデータを収集すると共に、今後 PEFC に特化したメタデータの語彙リストができた際にも対応できる仕様として開発した。

(2) PEFC データベース作成のための生データ前処理手法の開発（担当：日産アーク）

XAFS スペクトルにおけるバックグラウンド除去や S/N 比の向上を実施した。特に検出信号が弱くなるオペランド測定においては、S/N 比が低くなるという問題や、放射光光源の光学系調整条件により装置ノイズとしてグリッチが生じるという問題がある。これらを解決するために Squeeze-and-Excitation Network 法の 1 次元畳み込みニューラルネットワークや非負値行列因子分解(NMF)法などを用いて XAFS スペクトル内のノイズやグリッチを抽出、除去するアルゴリズムを作製し、実測データを学習させ、9 割以上の抽出精度を達成した。また、ノイズ除去プロセスを含む標準解析パイプライン化も実施している。

(3) PEFC データベースを用いた MI 解析による新規材料開発指針の提案（担当：物質・材料研究機構）

材料研究グループからのデータを元に MI 解析を実施している。具体的には高性能触媒の組成候補とその触媒活性の実験データを元に、次に実験すべき新規組成候補を MI 解析により提案し、それを実験により検証すると共に実験データを増強することで次の MI 解析による新規組成候補の予測性能を向上させるアクティブラーニングのアプローチを適用している。これまでに、「実験データ」→「次候補の予測・提案」→「実験実施」のサイクルを 3 度繰り返し、比較的良好な触媒活性を示す組成を見つけることに成功している。これらの研究手法自体は新規性の高いものではないが、PEFC に用いる材料系に寄り添った MI 解析の実施例（特にどのようなデータを目的変数にし、どのようなデータを特徴量にして MI 解析を実施するのか、どのようなデータ手法を使うのか）を増やすことで、他の材料研究グループの系にも横展開可能な状況になっている。今後 PEFC データベース増強に連れて、材料研究グループとの議論を増やし、成功事例を増加させる予定である。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 共通フォーマットに基づく系統的 PEFC データベースの開発（担当：物質・材料研究機構）

最終目標に向けた最大の課題は、データの増強である。今後、既に作成した MIX Platform を用いた材料研究グループによる実験データのアップロードを促進するため、上記プラットフォームの利用説明会を実施すると共に、個別のミーティングを実施することでデータ収集の効率を上げていく。また、材料研究グループとの議論から必要に応じてプラットフォームをアップデートしていく。さらなるデータ収集の手段として、自動自律実験を実施する。これにより、系統的かつ効率的に多数のデータをデータベースに加えていくと共に、それらを用いた MI 解析の実例も蓄積する。さらに、将来的に PEFC だけでなく他の材料データベースに存在するデータも利用することを前提に、PEFC でよく使われる物性や、計測で使われる実験条件、物質・材料名などの PEFC に特化した語彙リストを作成する。これにより、異なる材料間をまたがったデータ利用を行うために必要な、共通フォーマットを含む新規材料データベースが構築でき、大量のデータを活用した MI による新規材料提案・実験提案を行うための基盤が確立される。

(2) PEFC データベースを用いた MI 解析による新規材料開発指針の提案（担当：物質・材料研究機構）

最終課題に向けて残っている課題として、まずは新規材料提案の実例数を増やすことが挙げられる。これに関しては、MI 解析を試すためのデータが不足していたことが原因であり、現在 MIX Platform ができたこと、事業期間が半ばに達したことで、急速に実験データが集まってきていることから、順次 MI 解析を実施することで実例を増やすことができると考えている。特に、現在実施中のアクティブラーニングを用いた触媒組成探索は現状成功しているので、これを横展開して他の材料研究グループのデータへ適用する。同時に、提供された実験データに応じて最適な MI 解析手法を導入すると共に、必要に応じて MI の手法開発も実施する。現在、イオン液体や化学修飾系の材料を検討する開発も実施しているが、物性に関する実験データはあるものの、その特徴量が存在しない場合が多い。そのままでは MI 解析が実行できないため、必要な特徴量を第一原理計算を実施することで求めている。さらに最終目標には、触媒担体や電解質単体でなく、デバイスとしての PEFC の高性能化に向けた MI 解析を実施する内容も含まれている。これに対しては、デバイスの実験データを FC プラットフォームと連携して収集することで対応していく予定である。

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) 共通フォーマットに基づく系統的 PEFC データベースの開発（担当：物質・材料研究機構）

本事業において確立する PEFC データベースは日本初の PEFC に特化したデータベースであり、我が国有数の研究機関、アカデミア、および燃料電池事業のトップランナー企業が協力して構築するものである。PEFC に関するデータが統一的に保存・管理されることになり、以後全ての新規材料開発研究において、過去のデータを有効活用できるようになる。

これにより、燃料電池事業者の市場拡大に対する課題に対して以下の解決案を提案できる。

- ・材料改良指針の提示：開発材料の高機能化を通じて産業界の燃料電池の高機能化に貢献する。
- ・材料機能高度化に資するマテリアルズ・インフォマティクス技術に対して、統一的 PEFC データベースを提供することにより、新規アイデア創出に貢献し、その結果として高機能材料創出に貢献する。

本事業で構築するデータベースは、今後の PEFC 研究に永続的に利用されることを想定した設計になっており、関係機関が継続的にデータ蓄積やデータ検索といった利用が可能な形で成果をまとめる。本事業終了後のデータベースの維持のためには、現在、物質・材料研究機構において将来的に提供され得るデータベースサービス（仮）の利用等を前提とし、継続した利活用を検討する。

(2) PEFC データベースを用いた MI 解析による新規材料開発指針の提案（担当：物質・材料研究機構）

本事業で得られた MI 解析を用いた材料開発の知見とノウハウを関係機関内で共有することで、本事業終了後も継続的に利用することを検討する。さらに本事業で開発した MI 手法を論文などで公開することで、関係機関が一般的に利用できるようにすることを検討する。一部の MI 手法に関しては、MIX Platform によって企業が利用できるように準備を行う。（MIX Platform の一般企業に向けたワークショップを企画している。）

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

なし

課題番号（管理番号）： S001

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発（WP1 革新的高性能電極・部材の開発）」

実施者： 東北大学、京都大学、名古屋工業大学、ファインセラミックスセンター、リタケカンパニーリミテド

期間： 2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要（WP1～WP3 共通）

プロトン伝導セラミック燃料電池(PCFC)は、超高効率発電が可能であり、次世代の水素エネルギーデバイスとして期待されている。本事業、「超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発」では、水素社会の実現と定置用燃料電池の本格的普及拡大を目指して発電効率 70%を見通す画期的な「プロトン伝導セラミック燃料電池（PCFC）」を実現するための要素技術開発に取り組んでいる。研究開発体制として、（WP1 革新的高性能電極・部材の開発）、（WP2 高効率・高出力密度セルの開発）、（WP3 セル評価・アプリケーション研究）の3事業が一体となって研究開発を推進し、WP1「革新的高性能電極・部材の開発」では、高効率かつ高出力密度な PCFC セルを可能とする高性能空気極・部材を実現するため、①計算科学・②実験科学的手法による材料の探索・評価、③材料の基礎物性評価、④空気極反応機構の解明、⑤新規空気極の部材化・構造化技術の確立、の観点から革新的高性能電極・部材の研究開発に取り組んでいる。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方（WP1～WP3 共通）

3つの事業共通の研究開発目標として、以下の最終目標を設定している。

- 1). 発電効率の向上：発電効率 65%以上を実証、70%を見通す
- 2). 出力密度の向上：セルの出力密度 $>1.3\text{W}/\text{cm}^2@500^\circ\text{C}$ （図1）
空気極抵抗： $<0.1\Omega\text{cm}^2@500^\circ\text{C}$ （WP1）
- 3). 耐久性向上：電圧低下率 1%/1000hr 以下
- 4). セル評価とシステム検討：単セルの性能を検証し、システムの机上検討を行う（WP3）

研究開発目標の設定にあたっては、発電効率や寿命等は、国内外の定置用燃料電池の現状を海外プロジェクトの動向を把握した上で、NEDO 燃料電池・水素技術開発ロードマップおよび市場が求める要求性能に基づいて設定した。また、出力密度や空気極性能の目標値は、PCFC 開発トップランナー機関の開発動向調査、国内外の文献調査からチャンピオンデータを抽出し、従来技術に対する優位性や国際競争力がある目標値とした。なお、これらの開発目標は、2019年度までの先導研究において、事業参画企業であるパナソニックおよび WP3 共同実施企業のカシオ（LOI 提出）と議論した上で設定したものである。

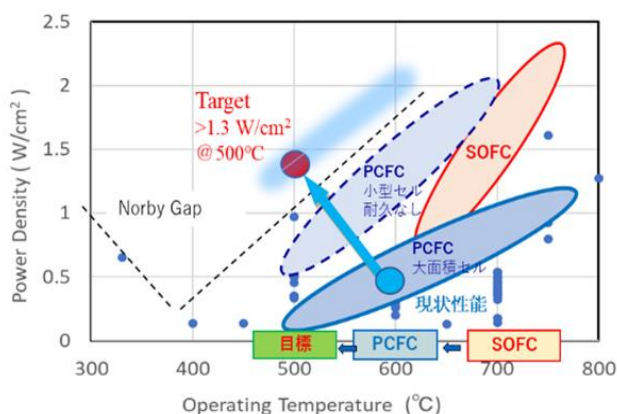


図1. 目標設定の考え方（作動温度に対するセル出力密度のベンチマーク）

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
(1) 計算科学的手法による高性能空気極材料の探索・評価 (ファインセラミックスセンター)	3d遷移金属ペロブスカイト型酸化物を対象に、第一原理計算に基づき、適切な母材、添加カチオンを選定する。	・プロトン溶解の機構を解明（ホール由来反応よりも水和反応が支配的）。 ・V~Co系が、代表的プロトン伝導体BZ系と同程度の水和エネルギーをもつ材料であることを提示。	○	・ペロブスカイト型酸化物におけるプロトン溶解・拡散特性の向上。 ・電極表面におけるO ₂ 吸着機構の解析。
(2) 実験科学的手法による高性能空気極材料の探索・評価 (京都大学)	分極抵抗 0.1 Ω・cm ² 以下@600℃を達成する電極材料を実験的に探索する。また、多孔体実電極設計指針の有効性を検証する。	・BSGC-BCPY 複合電極を開発し、分極抵抗 0.11 Ω・cm ² @600℃を達成。 ・コンポジット化による実電極性能向上を検討。性能向上阻害の因子を推測。	○	・構成材料間の熱力学的両立性や界面効果(表面修飾を含む)の解明。 ・低温での分極抵抗低減。
(3) 空気極材料の基礎物性評価 (名古屋工業大学)	プロトン-電子混合伝導体の部分導電率の定量評価手法を確立する。これを用い、混合伝導体の基礎物性評価を行う。	・水素透過測定に基づく評価手法を世界初で確立。(特許準備中) ・良好な全導電率、プロトン部分導電率を有する材料 PNC を発見。	○	・混合伝導体におけるプロトン伝導性評価ならびに特性支配因子の解明。 ・新規高性能混合伝導体の開発。
(4) 空気極反応機構の解明 (東北大学)	モデル電極を用いて空気極反応機構の解明を行う。得られた知見を踏まえ、高性能化のための材料・構造設計の指針を示す。	・各種材料の性能スクリーニング、反応場の特定、電極特徴量の評価に成功。 ・コンポジット化による高性能化の要因を特定し、O ²⁻ 伝導の考慮が必要であることを明示。	○	・候補材料の反応機構および電極活性・反応特徴量の評価。 ・更なる高性能空気極開発のための設計指針の提示。
(5) 新規空気極の部材化・構造化技術の確立 (リタケカンパニーリミテド)	インクジェット印刷に必要な微粒子合成技術、インクを開発し、これらを用いたインクジェット印刷により、空気極の形成を確認する。	・LSCF をモデル材料に、微粒子合成技術、インクジェット印刷に適用可能なインクの開発に成功。 ・計画を前倒し、複数材料をコンポジット化した空気極の形成に成功。	○	・コンポジット化および微構造形成技術の開発。 ・高性能空気極の設計指針を実現するための、部材化・構造化技術の開発。

3.2 研究開発の詳細

(1) 計算化学的手法による高性能空気極材料の探索・評価 (ファインセラミックスセンター)

PCFC 空気極母材の候補であるペロブスカイト型 3d 遷移金属酸化物 LaMO_3 ($M=\text{V}\sim\text{Ni}$) を対象とし、密度汎関数理論に基づく第一原理計算によりプロトンの固溶性を評価した。固溶性の指標として、酸素空孔に水分子が固溶する水和エネルギー (ΔH_{hyd}) および水素分子がホールの生成を伴って固溶するプロトン化エネルギー (ΔH_{prot}) を検討した。図 2 に、検討された 3d 遷移金属

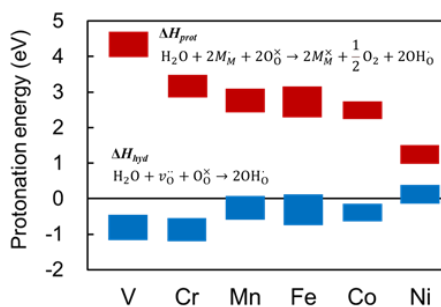


図 2. LaMO_3 ($M=\text{V}\sim\text{Ni}$) における ΔH_{hyd} および ΔH_{prot}

属ごとの ΔH_{hyd} および ΔH_{prot} を示す。金属元素種に依らず $\Delta H_{\text{hyd}} > \Delta H_{\text{prot}}$ であり、 LaMO_3 系では水和反応が支配的であることが分かった。特に、 LaVO_3 、 LaCrO_3 系の ΔH_{hyd} は、代表的プロトン伝導体である BaZrO_3 系の値と同程度で、プロトン固溶性の高い母材であることが示唆された。これらの材料の空気極性能、混合伝導性については、今後、項目(2)、(3)で検討していく。

(2) 実験科学的手法による高性能空気極材料の探索・評価 (京都大学)

$\text{Ba}_5\text{SrGd}_2\text{Co}_4\text{O}_{15}\text{-BaCe}_{0.5}\text{Pr}_{0.3}\text{Y}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$ (BSGC : BCPY = 30 : 70 wt.%) コンポジット電極を開発し、600℃において $0.11 \Omega \text{ cm}^2$ の分極抵抗を達成した (図 3)。また、同電極では $\text{Ba}_5\text{SrGd}_2\text{Co}_4\text{O}_{15}$ 相が主に酸素分子の解離吸着サイトとして機能し、電気化学反応は $\text{Ba}_5\text{SrGd}_2\text{Co}_4\text{O}_{15}/\text{BaCe}_{0.5}\text{Pr}_{0.3}\text{Y}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$ /気相の三相界面で進行することを明らかにした。

一方、 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{CoO}_{3-\delta}$ (LSC、酸化物イオン-電子混合伝導体) と $\text{BaCe}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$ (BCY、プロトン伝導体) をモデル材料に、電極コンポジット化による高性能化 (項目(4)より設計指針として提示) の有効性について、多孔体実電極を用いて検証した。600~700℃では効果が認められたが、550℃以下では LSC 単体の電極活性に及ばなかった。構成材料間や電極/電解質界面に起因する要因が性能向上を阻害している可能性が示唆された。今後は、項目(4)と連携し、中間層の挿入等により、この改善方法について検討していく予定である。

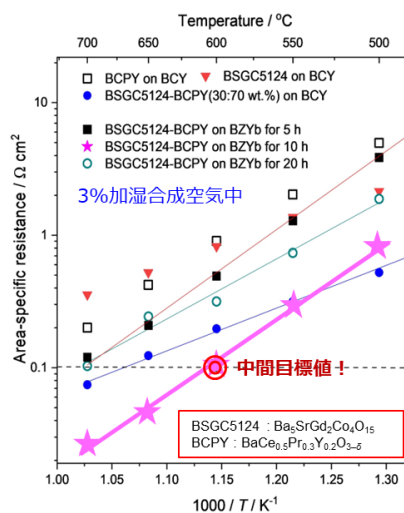


図 3. BSGC-BCPY コンポジット電極の面積比抵抗の温度依存性 (3%加湿合成空气中)

(3) 空気極材料の基礎物性評価 (名古屋工業大学)

PCFC 用空気極の高性能化に有効なプロトン-電子混合伝導体の開発を念頭に、電子伝導性が優勢なプロトン-電子混合伝導体におけるプロトン部分導電率を、水素透過測定から定量的に評価する新手法を確立した (図 4(a)、特許出願中)。

また、この新手法を適用し、新たなプロトン-電子混合伝導体を探索した。一例として、 $\text{PrNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_{3-\delta}$ (PNC) の全導電率 σ_T 、プロトン部分導電率 σ_H を評価した結果 (温度依存性) を図 4(b)に示す。これらより、PNC が、500~600°C の温度範囲において、 $10^{-3} \text{ S}\cdot\text{cm}^{-1}$ 台のプロトン導電率と $10^3 \text{ S}\cdot\text{cm}^{-1}$ 台の全導電率を併せ持つ優れたプロトン-電子混合伝導体であることが明らかとなった。これは、PNC の高性能 PCFC 空気極としての可能性を示す結果であり、今後、項目(2)、(4)において、その検証を行う。

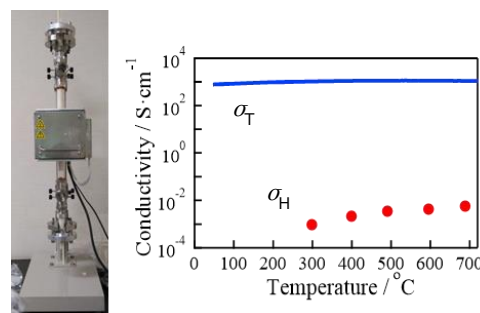


図 4. (a)開発された水素透過測定装置、(b) PNC の σ_H 、 σ_T の温度依存性

(4) 空気極反応機構の解明 (東北大学)

多孔体空気極を模擬したパターン緻密膜電極 (本事業で確立) を用いて、PCFC 空気極候補材料 (LSC 、 $\text{BaCo}_{0.4}\text{Fe}_{0.4}\text{Zr}_{0.1}\text{Y}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$ (BCFZY) 、 $\text{Ba}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{CoO}_{3-\delta}$ (BLC) など) の特性スクリーニングならびに反応機構評価を行った。その結果、600°C以下の低温では、三相界面反応で反応が進行する LSC が良好な ORR 活性を示すことが分かった。この結果を踏まえ、電極コンポジット化の効果についても検討した。LSCとBZYbのコンポジット電極を模擬したパターン緻密膜電極の直流分極測定の結果を図 5 に示す。これより、電極コンポジット化により、高温ではむしろ電極活性が低下するものの、本事業でターゲットとする 600°C以下の低温では高い電極活性を示す可能性があることを示した。これらは低温作動の PCFC 空気極を開発する上で重要な設計指針であり、実電極 (多孔体電極) によるその検証を項目(2)において開始した。

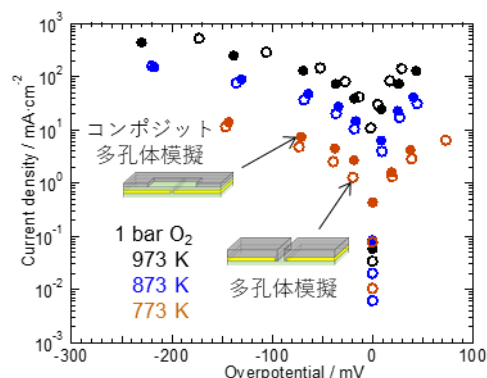


図 5. LSC 多孔体および LSC-BZYb コンポジット多孔体電極の直流分極曲線

(5) 新規空気極材料の部材化・構造化技術の確立 (リタケカンパニーリミテド)

マイクロ・マクロ構造を制御し、複数材料の同時印刷による PCFC 空気極の形成が可能な、インクジェット印刷技術の開発に取り組んだ。プロセス技術や評価手法の確立を先行して行うため、 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ (LSCF) をモデル材料に、インクジェット印刷用のインクに適用可能な、粒径が 50 nm 以下の LSCF 微粒子の合成を実現した。また、合成した LSCF 微粒子を用い、インクの組成 (溶剤や分散材など) の適正化を行うこと

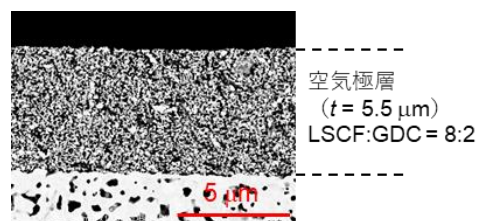


図 6. インクジェット印刷で作製されたコンポジット多孔体電極膜

で、インクジェットで吐出可能なインクを開発するとともに、印刷条件を適正化することで、ドット位置を制御した印刷が可能であることを確認した。さらに、計画を前倒した取り組みとして、2 種類の材料によるコンポジット化技術の開発にも着手した。モデル材料として、LSCF と $\text{Ce}_{0.9}\text{Gd}_{0.1}\text{O}_{1.95}$ (GDC) を用い、インクの組成と印刷条件を適正化することで、コンポジット多孔体膜を形成することに成功した (図 6) 。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) まとめと今後の課題

WP1「革新的高性能電極・部材の開発」では、高効率かつ高出力密度な PCFC セルを可能とする高性能空気極・部材を実現するための要素技術開発に取り組み、中間目標をほぼ達成する、600℃で、 $0.11 \Omega \text{ cm}^2$ の分極抵抗をもつ PCFC 空気極の開発に成功した。また、PCFC の更なる低温作動化を可能とする空気極実現に向け、高性能化に向けた電極材料・構造の設計指針の提示、新規プロトン-電子混合伝導性材料の探索・開発も行った。一方で、現状材料を使用した場合、材料の安定性・耐久性、電解質材料との両立性などが課題であることも顕在化した。今後は、これまでに提案された新規材料の特性評価、部材化を行っていくとともに、電極コンポジット化、表面修飾、電極/電解質界面への中間層挿入などによる高性能化の可能性についても検討し、実用化に耐える高性能電極を実現する。(図 7)

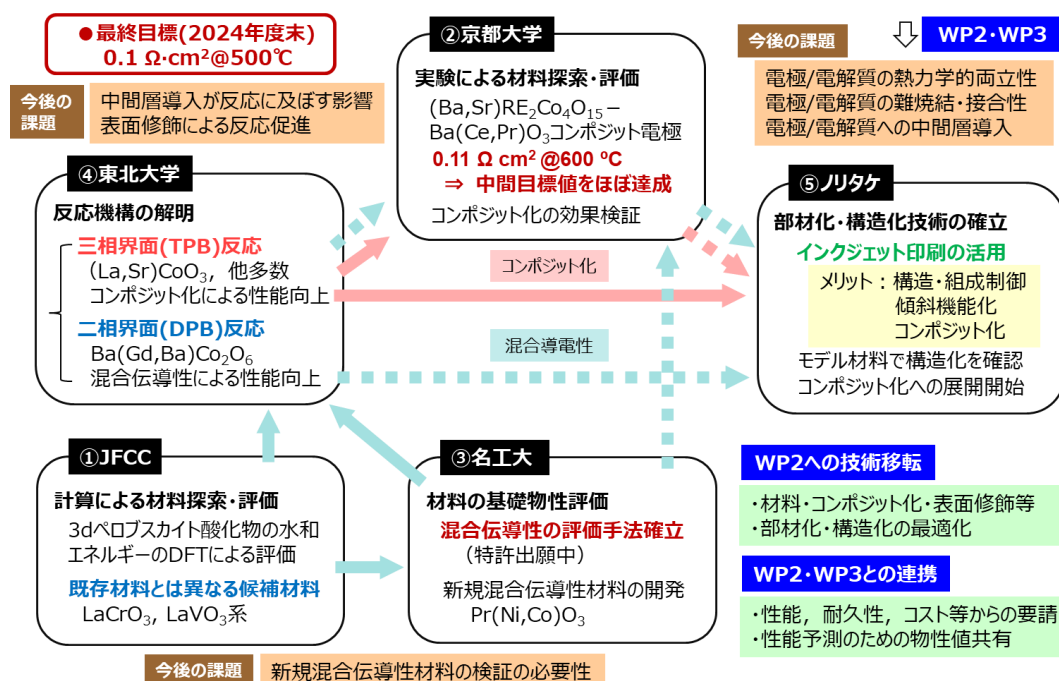


図 7. これまでの成果と今後の課題、最終目標

(2) WP2・WP3 との連携による革新セルの高出力密度化・高効率化

今後は、これまでの研究成果（先導研究および本事業で開発した電極材料、反応機構に関する知見、部材化技術）をベースとして、高性能空気極の材料・構造を提案し、これらを WP2「高効率・高出力密度セルの開発」に技術移転する。これにより、WP2 で計画されている革新セルにおいて、セルの高出力密度化、高効率化を図る（図 7）。また、WP2 および WP3「セル評価・アプリケーション研究」で得られる成果に基づき、性能、耐久性、コスト等からの要請を高性能空気極の開発に反映させる。さらに、空気極材料・性能に関する物性値をプロジェクト内で共有し、WP3 で実施される性能予測に活用する。

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（WP1～WP3 共通）

(1) 実用化を見据えた材料、セル開発

本事業では WP3 の各テーマにおいてスタックレベル、システムレベル、導入市場の視点からの検討を実施しており、常に実用化を見据えて材料・セル開発を進めることで、高性能かつ実用性が高い PCFC の実現に向けて取り組んでいる。（図 8）

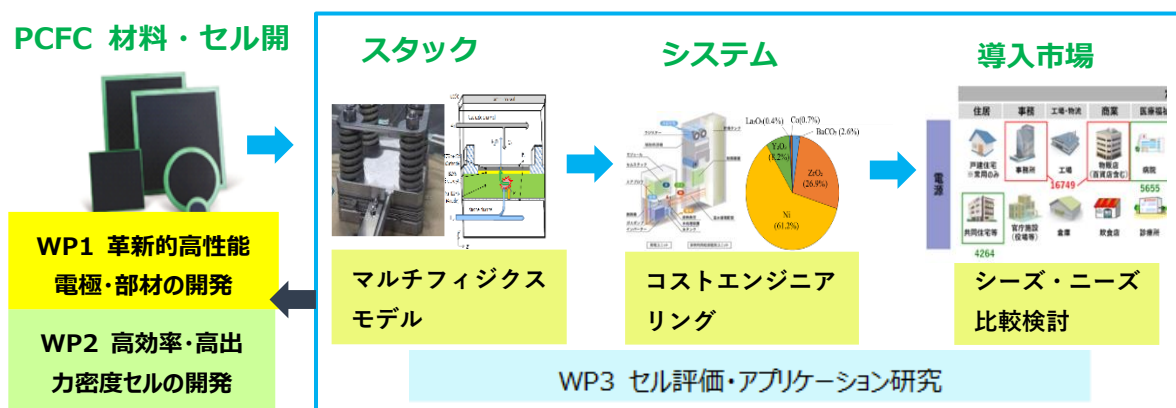


図 8 実用化を見据えた材料、セル開発の取組み体制

(2) ユーザー企業によるセル評価（WP3）

本事業では、実用化時にユーザーとして想定されるユーティリティ企業（東京ガス、東邦ガス、エア・リキード・ラボラトリーズ）がセル評価に無償で協力しており、セル発電評価会議メンバーとして出席、ユーザーの視点からアドバイスをいただいている。また、実用に近い条件で耐久試験を実施することにより、実用化までの開発期間を短縮することができると考えている。

(3) 実用化に向けたロードマップ

本事業は TRL3～4 の段階にあり、5 年間の研究開発で実用化を見通せるセルを実現して、実用化技術開発へ移行する計画である。開発機器の普及は 2030 年以降を想定し、カーボンニュートラルメタンと純水素のバイフュエル、デュアルフュエルによるカーボンニュートラルな水素燃料電池を最初の製品として位置付けている。また、PCEC（高温水蒸気電解による高効率水素製造）も視野に入れている。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2021/6/7	特願 2021-094921	イオン輸率評価法	名古屋工業大学
2	2022/3/24	特願 2022-048429	燃料電池用電極材料のプロトン導電率測定装置、燃料電池用電極材料のプロトン導電率測定方法	名古屋工業大学
3	2022/6/1	特願 2022-089372	イオン輸率評価法	名古屋工業大学

－研究発表・講演、文献等、その他－

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021年 4月	燃料電池	モデル電極を用いたプロトン伝導セラミック燃料電池空気極の反応機構解析	西舘克弥（東北大），四宮由貴（東北大），水野敬太（東北大），木村勇太（東北大），中村崇司（東北大），八代圭司（東北大），川田達也（東北大），見神祐一（パナソニック），山内孝祐（パナソニック），黒羽智宏（パナソニック），○雨澤浩史（東北大）
2	2021年 7月	Electrochem. Soc. Trans.	Evaluation of Reaction Mechanism in PCFC Composite Cathodes by Utilizing Patterned Thin Film Model Electrodes	○D. Zhuo (Tohoku Univ.), K. Nishidate (Tohoku Univ.), T. Imaizumi (Tohoku Univ.), Y. Kimura (Tohoku Univ.), T. Nakamura (Tohoku Univ.), Y. Mikami (Panasonic), T. Kuroha (Panasonic), F. Iguchi (Tohoku Univ.), K. Yashiro (Tohoku Univ.), T. Kawada (Tohoku Univ.),

				K. Amezawa (Tohoku Univ.)
3	2021年 9月	J. Mater. Res.	Detailed determination of both oxide-ion and proton transport numbers in Sr-Ti layered perovskites using the electromotive force technique	八木祐太郎、○籠宮功、柿本健一 (名古屋工業大学)
4	2021年 5月	Journal of materials chemistry A	Oxygen reduction reaction over (Ba,Sr)RE ₂ Co ₄ O ₁₅ -Ba(Ce,Pr,Y)O ₃ composite cathodes for proton-conducting ceramic fuel cells	○T. Matsui A, N. Kunimoto A, K. Manriki A, K. Miyazaki A, N. Kamiuchi B, H. Muroyama A, K. Eguchi A (京大院工 A, 阪大産研 B)
5	2022年 4月	燃料電池	SOFC 空気極のオペランドマイクロ XAFS 計測による分析事例	○雨澤浩史
6	2020年 12月	第46回 固体イオニクス討論会 (日本固体イオニクス学会) WEB	(Ba,Sr) ₆ RE ₂ Co ₄ O ₁₅ -Ba(Ce,Pr,Y)O ₃ 複合材料の PCFC 用空気極特性	(京大院工 A、阪大産研 B) ○松井敏明 A、國本直希 A、万力皐平 A、神内直人 B、室山広樹 A、江口浩一 A
7	2020年 12月	第29回 SOFC 研究発表会 (SOFC 研究会) WEB	複合材料を用いた PCFC 用空気極の高性能化	松井敏明、國本直希、万力皐平、室山広樹、江口浩一
8	2020年 12月	第46回 固体イオニクス討論会 (日本固体イオニクス学会) WEB	パターン緻密膜モデル電極を用いた SOFC 空気極の反応機構の検討	○雨澤浩史 (東北大)、今泉貴明 (東北大)、水野敬太 (東北大)、木村勇太 (東北大)、中村崇司 (東北大)、新田清文 (JASRI)、関澤央輝

				(JASRI), 井口史匡 (東北大), 湯上浩雄 (東北大), 八代圭司 (東北大), 川田達也 (東北大)
9	2020年 12月	第29回 SOFC 研究発表会 (SOFC 研究会) WEB	パターン緻密膜モデル電極を用いた PCFC 空気極の反応機構の検討	○雨澤浩史 (東北大), 西舘克弥 (東北大), 木村勇太 (東北大), 中村崇司 (東北大), 見神祐一 (パナソニック), 黒羽智宏 (パナソニック), 八代圭司 (東北大), 川田達也 (東北大)
10	2020年 12月	第29回 SOFC 研究発表会 (SOFC 研究会) WEB	第一原理計算によるプロトン伝導性ペロブスカイト型酸化物における欠陥化学	○フィッシャー・クレイク、田口綾子、小川貴史、桑原彰秀
11	2021年 5月	PACRIM14 WEB	Evaluation of PCFC cathodic reaction by using patterned thin film model electrodes (Invited)	○K. Amezawa (Tohoku Univ.), K. Nishidate (Tohoku Univ.), D. Zhou (Tohoku Univ.), T. Yoshioka (Tohoku Univ.), Y. Kimura (Tohoku Univ.), T. Nakamura (Tohoku Univ.), Y. Mikami (Panasonic), T. Kuroha (Panasonic), F. Iguchi (Tohoku Univ.), K. Yashiro (Tohoku Univ.),

				T. Kawada (Tohoku Univ.)
12	2021年 3月	電気化学会第88回大会 WEB	(Ba,Sr)6RE2Co4O15- Ba(Ce,Pr,Y)O3 複合材料中 の元素拡散が PCFC 用空気極 特性に及ぼす影響	○國本直希 A・神内 直人 B・室山広樹 A・松井敏明 A・江 口浩一 A
13	2021年 7月	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	Contribution of Triple/Double Phase Boundary Reactions in Mixed Conducting Oxide Cathodes in SOFCs and PCFCs	○K. Amezawa(Tohoku Univ.), K. Mizuno(Tohoku Univ.), K. Nishidate (Tohoku Univ.), Y. Kimura (Tohoku Univ.), T. Nakamura (Tohoku Univ.), R. Strandbakke (Univ. of Oslo), I. Szpunar (Gdańsk Univ. of Technology), Y. Mikami (Panasonic), T. Kuroha (Panasonic), K. Yashiro (Tohoku Univ.), F. Iguchi (Tohoku Univ.), T. Kawada (Tohoku Univ.)

14	2021年 7月	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII) WEB	Evaluation of Reaction Mechanism in PCFC Composite Cathodes by Utilizing Patterned Thin Film Model Electrodes	○D. Zhuo (Tohoku Univ.), K. Nishidate (Tohoku Univ.), T. Imaizumi (Tohoku Univ.), Y. Kimura (Tohoku Univ.), T. Nakamura (Tohoku Univ.), Y. Mikami (Panasonic), T. Kuroha (Panasonic), F. Iguchi (Tohoku Univ.), K. Yashiro (Tohoku Univ.), T. Kawada (Tohoku Univ.), K. Amezawa (Tohoku Univ.)
15	2021年 9月	STAC12(主催：東工大フロンテ ィア材料研究所) WEB	Defect concentrations in proton-conducting perovskite oxides from first principles	○田口綾子、小川 貴史、桑原彰秀、フィ ッシャー・クレイグ
16	2021年 9月	第34回秋季シンポジウム(主 催：セラミックス協会) WEB	第一原理計算によるペロブスカ イト型プロトン伝導性酸化物の 欠陥濃度解析	○田口綾子、小川 貴史、桑原彰秀、フィ ッシャー・クレイグ
17	2021年 8月	第89回マテリアルズテーラリング 研究会 WEB	Evaluation of Reaction Mechanism in PCFC Composite Cathodes by Utilizing Patterned Thin Film Model Electrodes	○D. Zhuo (Tohoku Univ.), K. Nishidate (Tohoku Univ.), T. Imaizumi (Tohoku Univ.), Y. Kimura (Tohoku Univ.), T. Nakamura (Tohoku Univ.), Y. Mikami

				(Panasonic), T. Kuroha (Panasonic), F. Iguchi (Tohoku Univ.), K. Yashiro (Tohoku Univ.), T. Kawada (Tohoku Univ.), K. Amezawa (Tohoku Univ.)
18	2021年10月	2021年化学系学協会東北大会 WEB	Evaluation of Electrode Reaction Mechanism of Ba _{0.5} La _{0.5} CoO _{3-δ} for Protonic Ceramic Fuel Cell Cathode by Using Patterned Thin Film Electrode	○T. Yoshioka (Tohoku Univ.), K. Nishidate (Tohoku Univ.), Y. Kimura (Tohoku Univ.), T. Nakamura (Tohoku Univ.), Y. Mikami (Panasonic), T. Kuroha (Panasonic), K. Yashiro (Tohoku Univ.), T. Kawada (Tohoku Univ.), K. Leonard (Kyushu Univ.), H. Matsumoto (Kyushu Univ.), K. Amezawa (Tohoku Univ.)
19	2021年9月27日-10月1日	Solid State Proton Conductors (SSPC-20) WEB	How Do We Investigate Reaction Mechanism in Oxide Electrode on Proton-Conducting Electrolyte? (Keynote)	○K. Amezawa
20	2021年9月2日	第34回秋季シンポジウム(日本セラミックス協会)	起電力法による Sr ₂ (Ti _{0.95} Al _{0.05})O _{4-d} の	八木祐太郎 ○籠宮功 柿本健一

			酸化物イオン及びプロトン輸率の評価	
21	2021年 9月27日-10月 1日	Solid State Proton Conductors (SSPC-20) WEB	Evaluation of both oxide- ion and proton transport number in Sr ₂ Ti _{0.95} Al _{0.05} O _{4-d}	Y. Yagi ○I. Kagomiya K. Kakimoto
22	2021年 12月	第30回 SOFC 研究発表会 (SOFC 研究会) WEB	表面修飾による PCFC 用空気 極の高性能化	(京大院工 A, 阪 大産研 B) ○松井敏明 A・國本 直希 A・万力阜平 A・宮崎一成 A・神 内直人 B・室山広樹 A・江口浩一 A
23	2021年 12月	第30回 SOFC 研究発表会 (SOFC 研究会) WEB	PCFC 空気極の反応機構解明 と高性能化への設計指針提案	○雨澤浩史, 西館 克弥, Diao Zhuo, 吉岡輝紀, 木村勇太, 中村崇 司, 八代圭司, 川 田達也
24	2021年 12月	第30回 SOFC 研究発表会 (SOFC 研究会) WEB	Elucidation of Reaction Mechanism of PCFC Composite Cathodes by Utilizing Patterned Thin Film Model Electrodes	○Z. Diao, K. Nishidate, T. Imaizumi, Y. Kimura, T. Nakamura, K. Yashiro, T. Kawada, K. Amezawa
25	2022年 3月	2022 年年会(主催:セラミクス 協会) WEB	第一原理計算による燃料電池 空気極候補材料 LaMO ₃ (M=遷移金属)の水和反応	○フィッシャー・クルイグ、 田口綾子、小川貴 史、桑原彰秀
26	2022年 3月	2022 年第 11 回東北大学 MaSC 技術交流会	燃料電池開発の現状と超高効 率化に向けた新たな取り組み (招待)	○雨澤浩史
27	2022年 4月	第 124 回 SOFC 研究会	PCFC 空気極高性能化のため の反応機構評価 (招待)	○雨澤浩史
28	2022年 7月	第 23 回国際固体イオニクス学会 (SSI-23)	Composite Effects on PCFC Cathodes Investigated by Utilizing	○Z. Diao, K. Nishidate, T. Imaizumi, Y. Kimura, T.

			Patterned Thin Film Model Electrodes	Nakamura, K. Yashiro, T. Kawada, K. Amezawa
29	2022年 7月	第23回国際固体イオニクス学会 (SSI-23)	Material Screening for Protonic Ceramic Fuel Cell Cathode by Using Patterned Thin Film Model Electrode	○T. Yoshioka, K. Nishidate, Y. Kimura, T. Nakamura, K. Yashiro, T. Kawada, K. Amezawa
30	2022年 7月	第23回国際固体イオニクス学会 (SSI-23)	Oxygen non-stoichiometry and mixed conductivity of Ti and Mg doped BaCo _{0.4} Fe _{0.4} Y _{0.2} O _{3-d} perovskite	○M. S. Alam, I. Kagomiya, K. Kakimoto

課題番号（管理番号）： S002

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発（WP2 高効率・高出力密度セルの開発）」

実施者： パナソニックホールディングス株式会社、産業技術総合研究所、九州大学、宮崎大学、（京都大学、群馬大学）

期間： 2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要（WP1～WP3 共通）

プロトン伝導セラミック燃料電池(PCFC)は、超高効率発電が可能であり、次世代の水素エネルギーデバイスとして期待されている。本事業、「超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発」では、水素社会の実現と定置用燃料電池の本格的普及拡大を目指して発電効率 70%を見通す画期的な「プロトン伝導セラミック燃料電池（PCFC）」を実現するための要素技術開発に取り組んでいる。研究開発体制として、

（WP1 革新的高性能電極・部材の開発）、（WP2 高効率・高出力密度セルの開発）、（WP3 セル評価・アプリケーション研究）の3事業が一体となって研究開発を推進し、WP2 では①セル高出力密度化に向けた電極／電解質マイクロ界面設計、②革新的プロセスによるセル化技術開発、③高燃料利用状態での動作実証と、耐久向上のための劣化抑制、④機械学習を用いた PCFC セル・材料の性能予測と製造プロセス最適化提案技術の開発の4テーマを設定して高効率、高耐久、高出力密度なセルの研究開発に取り組んでいる。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方（WP1～WP3 共通）

3つの事業共通の研究開発目標として、以下の最終目標を設定している。

- 1). 発電効率の向上：発電効率 65%以上を実証、70%を見通す
- 2). 出力密度の向上：セルの出力密度 $>1.3\text{W}/\text{cm}^2@500^\circ\text{C}$ （図1）
空気極抵抗： $<0.1\Omega\text{cm}^2@500^\circ\text{C}$ （WP1）
- 3). 耐久性向上：電圧低下率 1%/1000hr 以下
- 4). セル評価とシステム検討：単セルの性能を検証し、システムの机上検討を行う（WP3）

研究開発目標の設定にあたっては、発電効率や寿命等は、国内外の定置用燃料電池の現状を海外プロジェクトの動向を把握した上で、NEDO 燃料電池・水素技術開発ロードマップおよび市場が求める要求性能に基づいて設定した。また、出力密度や空気極性能の目標値は、PCFC 開発トップランナー機関の開発動向調査、国内外の文献調査からチャンピオンデータを抽出し、従来技術に対する優位性や国際競争力がある目標値とした。なお、これらの開発目標は、2019年度までの先導研究において、事業参画企業であるパナソニックおよび WP3 共同実施企業のカシマガス工業（LOI 提出）と議論した上で設定したものである。

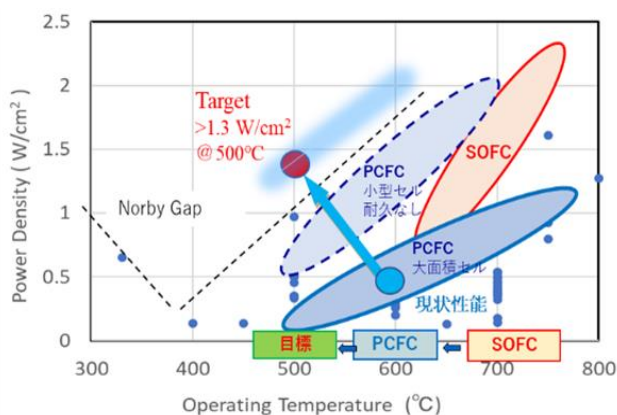


図1. 目標設定の考え方（作動温度に対するセル出力密度のベンチマーク）

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
(1)セル高出力密度化に向けた電極/電解質ミクロ界面設計 (九州大学)	セル設計指針の提示：高効率・高出力密度セル実現のための要素技術検証と界面構造の提示	・電子ブロック層を導入した積層構造を構築し、電子リークの抑制効果を確認 ・ダブルカラムナー層の導入により、開回路電圧(OCV)の向上効果を確認	○	・カソード界面構造および材料の最適化 ・革新セル開発への反映
(2)革新的プロセスによるセル化技術開発 (産総研、(京都大学、群馬大学、))	セル化プロセス技術の開発：国内最高値 0.5W/cm ² (600℃)を超える出力密度 0.7W/cm ² を達成	・中間目標を上回る 1.0W/cm ² を前倒して達成 (海外トップランナーと同等以上) ・WP3 と共同でセル性能予測モデルを構築	◎	・効率・耐久性両立 ・セル多層構造構築 ・低温焼結プロセスの適用 ・WP1 空気極の適用
(3)高燃料利用状態での動作実証と、耐久向上のための劣化抑制技術の開発 (パナソニック、宮崎大学)	高効率実証と劣化率改善：燃料利用率 90%以上における DC 効率 55%以上、セル電圧低下 10%/1000h 以下を達成	・ガス流配の改善等により燃料利用率 90%で DC 効率 61%を確認 ・空気極が異なる 2 種のセル構成で電圧低下率 10%/kh 以下を確認 (4.5%/kh,0.9%/kh) 。 (中間目標を上回るレベルで達成)	◎	・電子リークの抑制 (ブロック層導入) ・劣化メカニズム解析と対策 (PCFC 特有の劣化機構)
(4)機械学習を用いた PCFC セル・材料の性能予測と製造プロセス最適化提案 (宮崎大学、九州大学、産総研)	④機械学習による研究開発の加速：機械学習による開発の基礎となるデータベースの構築と、機械学習による 150 万組成以上の材料物性を予測	・機械学習用データベースを構築(PCFC DB) ・機械学習により電解質の物性(プロトン伝導度、輸率、熱膨張等)を予測、可視化するシステムを構築し、228 万組成を予測、実験による検証を実施して、その有効性を確認した。	○	・物性予測ツールの精度向上 ・データベース拡充 ・機械学習で探索した新規電解質のセル開発への適用 (実施中)

3.2 研究開発の詳細

(1) セル高出力密度化に向けた電極／電解質マイクロ界面設計(九州大学)

電極と電解質のマイクロ界面エンジニアリングにより、電荷移動とプロトン移動を円滑に行うことで電極／電解質界面抵抗の低減および電子リークの防止と高プロトン輸率化を図ることを目的とし、スパッタリング法、レーザーアブレーション法を用いた蒸着による種々の界面構造、層構造を有する電極、中間層の作製とその燃料電池評価による効果の検討を行った。電子リーク抑制とプロトン輸率の向上を目的として従来のセルの空気極と電解質の間に電子ブロック層を挿入した積層構造電極を提案し、電子リーク抑制と性能向上効果を確認した(図2)。

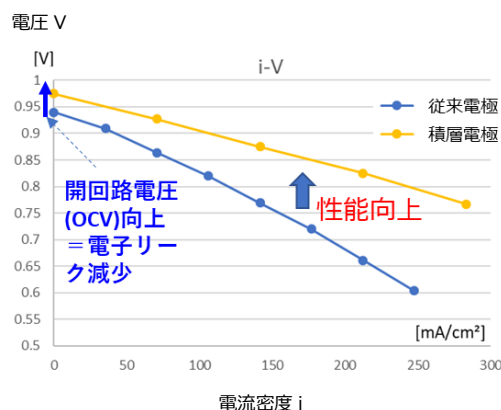


図2. 積層構造電極による電子リーク抑制およびセル性能向上効果

(2) 革新的プロセスによるセル化技術開発

(産業技術総合研究所、京都大学への再委託、群馬大学への再委託)

産総研では、PCFCの高出力密度化を目指したセル開発を実施した。主な開発項目として以下3点：①空気極／電解質界面の改善、②電解質の緻密薄膜化、③燃料極気孔率の最適化、に注力した。空気極は成膜プロセスの変更により、気孔率を減少させ、約5 μmの膜厚で界面接合状態を改善した。電解質は、これまで約10 μmであった膜厚を5 μm以下としてもピンホール等の欠陥がなく成膜する緻密薄膜化プロセスを確立し、燃料極は気孔率を40%以上とすることによりガス拡散性の向上に成功した。以上の相乗効果として、本事業開始前の性能の約2倍となる約1.0W/cm² (600℃時)の出力密度を得た(図3)。この値はベンチマークとしているPCFCトップランナーのコロラド鉱山大学／Fuel Cell Energy社^{Ref.1)}およびSOFCで600℃作動を実現しているCeres Power社セル^{Ref.2)}を上回る性能である。また、京都大学では、各部材間の金属元素の拡散を抑制するマイクロ界面接合プロセスの開発を担当し、還元雰囲気での熱処理によりNiの拡散抑制が可能で、電解質の伝導率低下防止に有効であることを確認した。さらに群馬大学では量産化を見据えた易焼結性電解質ナノ粒子の合成に取り組み、BZYbで1500℃、BZCYYbで1300℃程度の低温でも焼結可能な粉末原料合成に成功した。

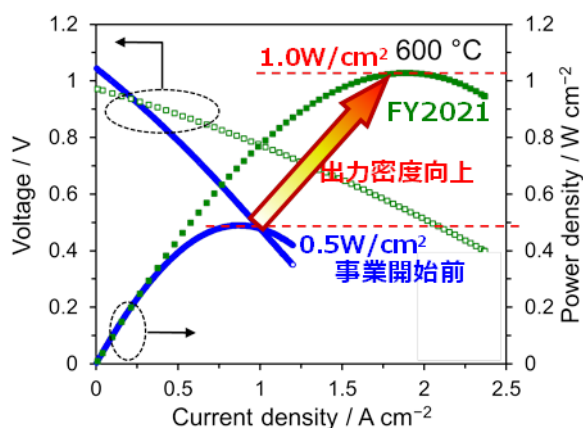


図3. 各部材改良開発によるPCFCの出力密度向上効果

Ref. 1) R. J. Braun, et. al., ECS Transactions 91(1): 997-1008.

Ref. 2) R. Leah et. Al., Proceeding of 14th European SOFC & SOE Forum (2020), 39-46.

(3) 高燃料利用状態での動作実証と耐久向上のための劣化抑制技術の開発（パナソニック、宮崎大学）

パナソニックでは高燃料利用状態の動作実証と、1000 時間の耐久試験を実施した。高燃料利用状態の動作実証では、ガス流配とガスシールを改善した治具を設計試作し、BZYb 電解質に用いた外径φ60mm の燃料極支持型セルを評価した。その結果、燃料利用率 90%において 600℃、0.2 A/cm² で 0.705 V の動作電圧を確認し、その時の発電効率は、メタン基準において 61%となった（発電効率の中間目標は 55%）（図 4）。

また、1000 時間の耐久試験では、2 種のセル構成において、電圧低下率 10%/kh 以下を確認した。従来の LSCF 空気極を用いたセルの劣化率が 12.4%/kh であったのに対して BZYbCo 空気極で劣化率 4.5%/kh、LBC-BZYb 空気極で劣化率 0.9%/kh を実証し（図 5）、空気極側の劣化が主要因であることを特定した。また BZYbCo 空気極では、試験後セルの電解質中において Co と Ni の偏析を確認した。空気極から電解質への Co 拡散が耐久上の問題になると考えられ、中間層による Co 拡散抑制が重要である可能性が示唆された。上記に加え、燃料極ガス中の CO₂（15%、30%添加）の影響を評価し、1000 時間の耐久試験において CO₂ による著しい劣化はないことを確認した。

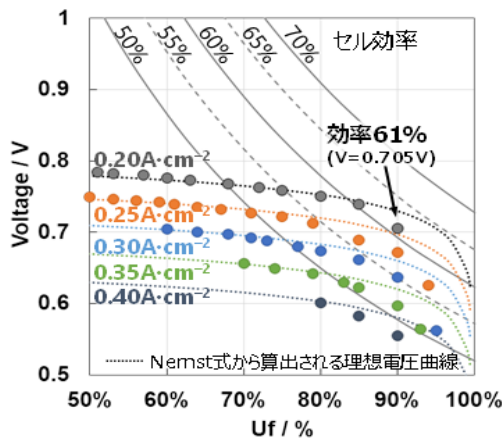


図 4 各電流密度におけるセル電圧の燃料利用率依存性と発電効率

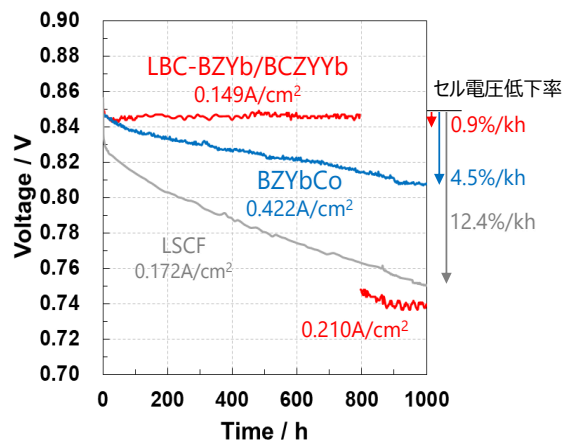


図 5 連続発電試験における電圧経時変化

(4) 機械学習を用いた PCFC セル・材料の性能予測と製造プロセス最適化提案（宮崎大学、九州大学、産業技術総合研究所）

宮崎大学では輸率予測のための機械学習システムの構築およびプロトン伝導度、正孔伝導度の予測のためのデータベース作成と学習モデル構築を行った。プロトン伝導度のデータベースは 72 組成 730 個の実験データを取得して構築した。正孔伝導度のデータベースは 103 組成 738 個のデータを文献より抽出することで構築した。また、Gradient Boosting にて予測を実施し、プロトン伝導度、正孔伝導度を精度よく予測できることを確認した。また、この学習モデルを用いて最適な電解質材料とカソード材料となりうるプロトン・正孔混合伝導体を

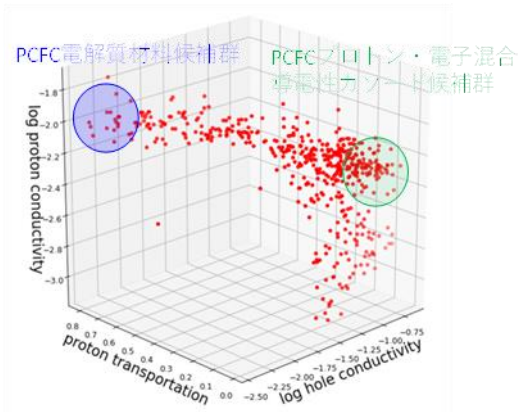


図 6 最適な機能性を有する PCFC を構成する材料を探索するソフトと探索例

探索するツール（図 6）を開発し、実験的に探索した材料を試作してその有効性を確認した。また、九州大学ではペロブスカイト酸化物の網羅的な組成の合成可否判定システムを機械学習を用いて構築した。また、熱膨張を予測する学習モデルを作成し、電解質となる材料の熱膨張に近いカソード材料を推薦するシステムを開発した。さらに産総研では、熱膨張係数、化学膨張率、二酸化炭素耐性のデータを X線回折(XRD)により取得するとともに、機械学習用のデータベース(PCFC Database)を構築した。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) まとめと今後の課題

WP2 高効率・高出力密度セルの開発では、高効率、高出力密度、高耐久な PCFC を実現するための要素技術開発に取り組み、セルの出力密度を 2 倍に向上、高効率の可能性を実証した。耐久性は中間目標を達成したが、条件が限られており、それぞれの開発目標を高レベルで同時に達成していく必要がある。また、実用化に向けては劣化メカニズムの解明、およびリーク電流の抑制が大きな課題である。

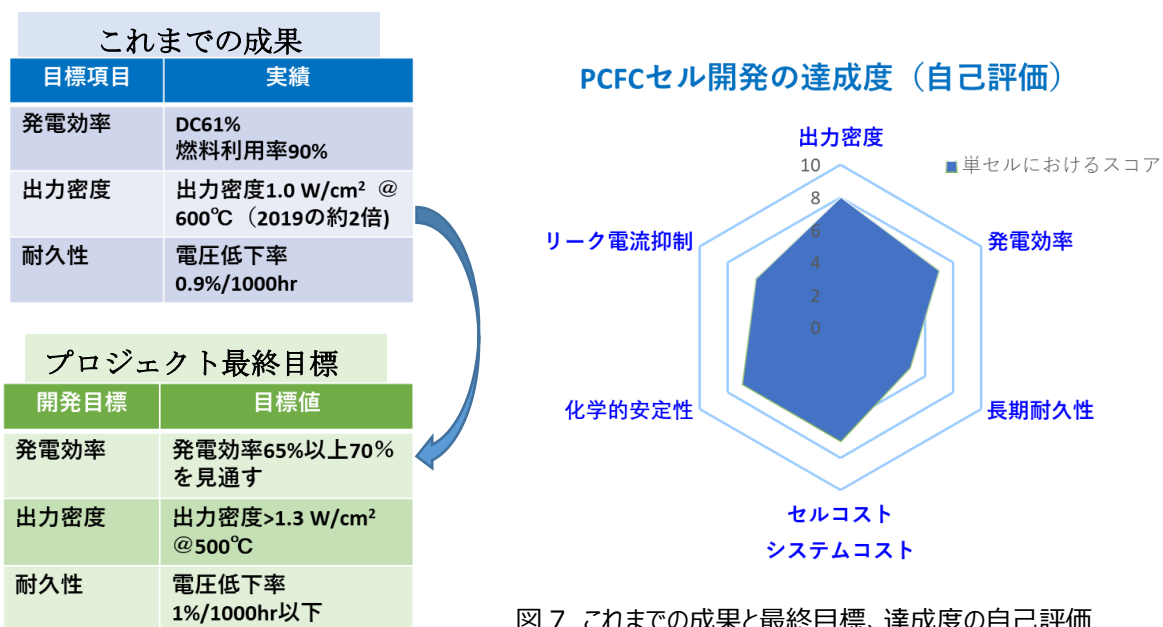


図 7 これまでの成果と最終目標、達成度の自己評価

(2) 各機関の要素技術を適用した革新セルの開発

今後は、これまでの研究成果（先導研究で開発した標準セルおよび本事業で開発した改良セル）をベースとして、WP1 革新的高性能電極・部材の開発の研究成果および各大学の要素技術をセル開発に適用してセルの高出力密度化、高効率化を図る。具体的には中間層の導入や電解質表面・界面の物性改善、界面構造の構築、低温焼成プロセス、機械学習で抽出した新規材料の適用検討などにより、多層構造化した革新セルを開発する。（図 7）

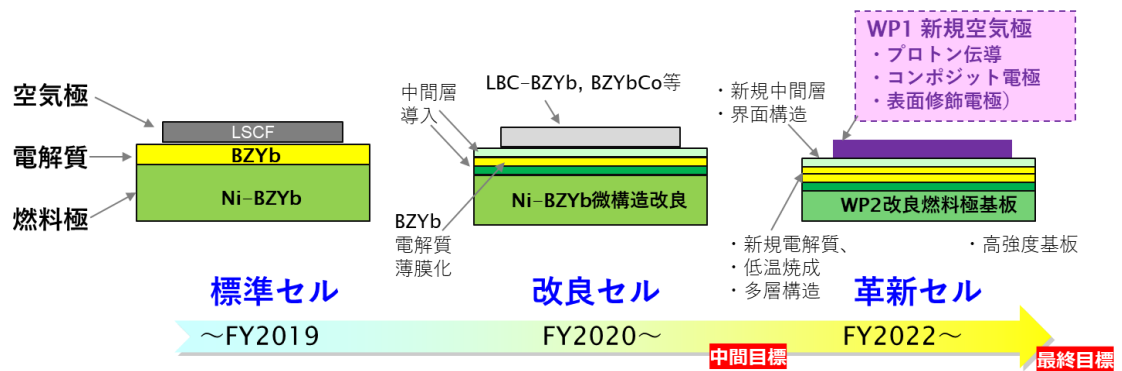


図8 最終目標達成に向けた革新セル開発

(3) WP3 および外部プロジェクトとの連携による耐久性向上への取組

これまでに WP3（セル評価・アプリケーション研究）で実施した長期耐久評価から、劣化挙動を確認し、Co, Ni 等の遷移金属が電解質に及ぼす影響について宮崎大学で詳細に調査してきた。これに加えて外部プロジェクト「固体酸化物形燃料電池スタックの高度評価・解析技術の研究開発」（産総研）、「可逆動作型プロトン伝導セラミック燃料電池の新規な健全性評価・解析技術の開発」（日本大学）との連携により、PCFC では従来の SOFC では見られない劣化挙動（Ni の偏析等）が確認されており、今後はこれら各機関と連携して知見を活用し、劣化メカニズムの解明および長寿命化を図る。具体的には空気極側中間層の導入による劣化率の改善が見られており、要因分析と最適化を進める。

4. 成果の実用化・事業化に向けた取組及び見直しについて（WP1～WP3 共通）

(1) 実用化を見据えた材料、セル開発

本事業では WP3 の各テーマにおいてスタックレベル、システムレベル、導入市場の視点からの検討を実施しており、常に実用化を見据えて材料・セル開発を進めることで、高性能かつ実用性が高い PCFC の実現に向けて取り組んでいる。（図 9）

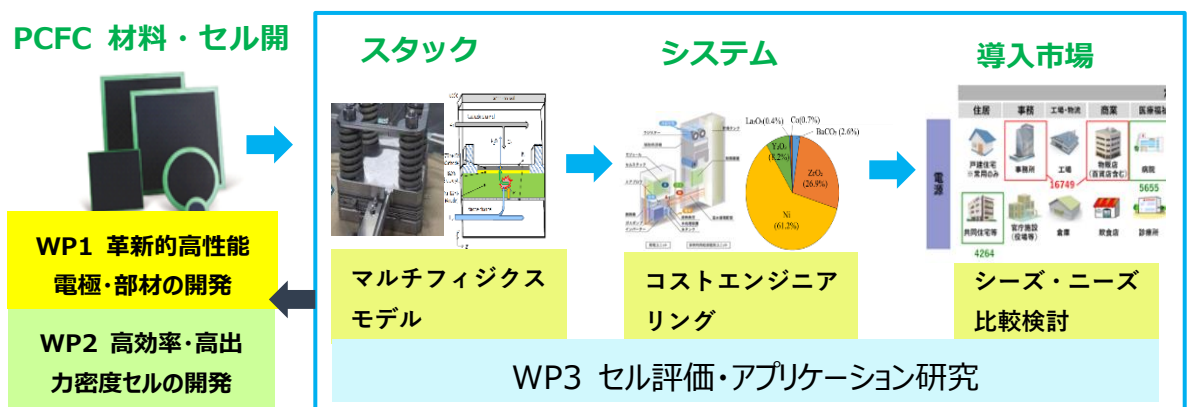


図9 実用化を見据えた材料、セル開発の取組み体制

(2) ユーザー企業によるセル評価（WP3）

本事業では、実用化時にユーザーとして想定されるユーティリティ企業（東京ガス、東邦ガス、エア・リキッド・ラボラトリーズ）がセル評価に無償で協力しており、セル発電評価会議メンバーとして出席、ユー

ザーの視点からアドバイスをいただいている。また、実用に近い条件で耐久試験を実施することにより、実用化までの開発期間を短縮することができると考えている。

(3) 実用化に向けたロードマップ

本事業は TRL3~4 の段階にあり、5 年間の研究開発で実用化を見通せるセルを実現して、実用化技術開発へ移行する計画である。開発機器の普及は 2030 年以降を想定し、カーボンニュートラルメタンと純水素のバイフュエル、デュアルフュエルによるカーボンニュートラルな水素燃料電池を最初の製品として位置付けている。また、PCEC（高温水蒸気電解による高効率水素製造）も視野に入れている。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2021/6/30	特願 2021-18865	プロトン伝導セラミックセル用薄膜電極及びそれを用いたプロトン伝導セラミックセル	産業技術総合研究所
2	2021/10/4	特願 2021-163752	電極材料、膜電極接合体、電気化学セルおよび燃料電池システム	パナソニック株式会社
3	2021/10/26	特願 2021-174983	膜電極接合体の焼成用セッター、膜電極接合体の製造方法、および電気化学セルの製造方法	パナソニック株式会社
4	2021/11/26	特願 2021-192161	セル評価用ホルダ	パナソニック株式会社
5	2022/4/26	特願 2022-072718	膜電極接合体、電気化学セルおよび燃料電池システム	パナソニックホールディングス株式会社

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2020 年 1 月	Chemistry Letters	Non-linear Behavior of Chemical Expansion upon Hydration in Yttrium-doped Barium Zirconate	Kenta Hoshino, 1, 2 Junji Hyodo, 1 and ○ Yoshihiro Yamazaki*1, 2, 3
2	2021 年 2 月	Ceramics International (Elsevier 出版)	Enhanced La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O _{3-δ} -based cathode performance by modification of BaZr _{0.1} Ce _{0.7} Y _{0.1} Yb _{0.1} O _{3-δ}	○島田寛之、山口 祐貴、鷺見裕史、水 谷安伸

			electrolyte surface in protonic ceramic fuel cells	
3	2021年 6月	Journal of Power Sources	Optimum dopant of barium zirconate electrolyte for manufacturing of protonic ceramic fuel cells	○Tomohiro Kuroha, Yoshiki Niina, Mizuki Shudo, Go Sakai, Naoki Matsunaga, Takehito Goto, Kosuke Yamauchi, Mikami Yuichi, and ○Yuji Okuyama
4	2021年 12月	Journal of the Electrochemical Society (IOP 出版)	Protonic Ceramic Fuel Cell with Bi-Layered Structure of $BaZr_{0.1}Ce_{0.7}Y_{0.1}Yb_{0.1}O_{3-\delta}$ Functional Interlayer and $BaZr_{0.8}Yb_{0.2}O_{3-\delta}$ Electrolyte	○島田寛之（産総研）、山口祐貴（産総研）、松田マリック隆磨（電中研）、鷺見裕史（産総研）、野村勝裕（産総研）、申ウソク（産総研）、見神祐一（パナソニック）、山内孝祐（パナソニック）、中田裕貴（パナソニック）、黒羽智宏（パナソニック）、水谷安伸（産総研）
5	2022年 2月	Journal of the Electrochemical Society (IOP 出版)	Phase Transitions, Thermal Expansions, Chemical Expansions, and CO2 Resistances of $Ba(Ce_{0.8-x}Zr_xY_{0.1}Yb_{0.1})O_{3-\delta}$ ($x = 0.1, 0.4$) Perovskite-Type Proton Conductors	○野村勝裕（産総研）、島田寛之（産総研）、山口祐貴（産総研）、申ウソク（産総研）、奥山勇治（宮崎大）、水谷安伸（産総研）

6	2020年 10月	PRiME2020(ECS) Hawaii (On Line)	Proton transport properties of Yb-doped BaZrO ₃ and its application to high efficiency proton ceramic fuel cell	○Y. Okuyama (University of Miyazaki), T. Kuroha (University of Miyazaki, Panasonic Corporation), K. Yamauchi, Y. Mikami (Panasonic Corporation), H. Shimada, Y. Yamaguchi, Y. Mizutani, Y. Fujishiro (National Institute of AIST)
7	2020年 11月	第118回 SOFC 研究会 (SOFC 研究会)	超高変換効率を有した PCFC 電解 質の開発状況	○奥山勇治 (宮崎 大学)
8	2020年 12月	第29回 SOFC 研究発表 会(SOFC 研究会)	プロトン伝導性セラミックス燃料電池 を流れる水素イオン電流測定	○奥山勇治 (宮崎 大学)、黒羽智宏、 見神祐一、山内孝 介 (パナソニック株 式会社)、島田寛 之、山口祐貴、水谷 安伸 (産総研)
9	2020年 12月	第29回 SOFC 研究発表 会(SOFC 研究会)	プロトン伝導セラミック燃料電池の高 出力密度化に向けた検討	○島田寛之、山口 祐貴、鷺見裕史、野 村勝裕、申ウソク、 水谷安伸
10	2021年 2月	45th International Conference & Exposition on Advanced Ceramics & Composites 2021(The American Ceramic Society)	Development of electrochemical device using protonic ceramics	○奥山勇治 (宮崎 大学)

11	2020年 11月	第118回 SOFC 研究会 (SOFC 研究会)	パナソニックにおけるプロトン伝導セラミック燃料電池の開発状況	○見神祐一 (パナソニック)
12	2020年 12月	第29回 SOFC 研究発表 会(SOFC 研究会)	超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池の実用化に向けた取組み	○水谷安伸 (産総研)、雨澤浩史 (東北大学)、森昌史 (電中研)
13	2020年 12月	第29回 SOFC 研究発表 会	BZCY系プロトン伝導性酸化物を用いた SOFC・SOEC の開発状況	○松本広重 (九州大学)
14	2021年 12月	PACRIM14 カナダ (バンクーバー)	Effect of added transition element on proton transport properties of ytterbium-doped barium zirconate	○Y. Okuyama (University of Miyazaki), T. Kuroha (University of Miyazaki, Panasonic Corporation), K. Yamauchi, Y. Mikami (Panasonic Corporation)
15	2021年 12月	14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM14)	Development of protonic ceramic fuel cells with Yb doped BaZrO ₃ electrolyte toward higher power density	○島田寛之 (産総研)、山口祐貴 (産総研)、鷺見裕史 (産総研)、野村勝裕 (産総研)、申ウソク (産総研)、水谷安伸 (産総研)
16	2021年 12月	14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM14)	Progress and challenges on ultra-high efficiency protonic ceramic fuel cells in NEDO project	○水谷安伸 (産総研)、雨澤浩史 (東北大学)、森昌史 (電中研)
17	2021年 12月	14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM14)	Thermal and chemical expansions of Ba(Ce,Zr)O ₃ -based electrolyte materials for PCFCs	○Katsuhiro Nomura, Hiroyuki Shimada, Yuki Yamaguchi, and Yasunobu Mizutani

18	2021年 12月	14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM14)	Low-temperature sintering of the BaZrO ₃ based electrolyte material using reactive sintering method without sintering aids.	○山口祐貴, 島田 寛之, 鷺見裕史, 野村勝裕, 申ウソク 水谷安伸
19	2021年 12月	14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM14)	Colloidal processing approach toward high performance ceramic fuel cells	○佐藤和好 (群馬 大学)
20	2021年 3月	電気化学会第 88 回大会	Yb をドーブした BaZrO ₃ のプロトン 伝導特性と燃料電池への応用	○奥山勇治 (宮崎 大学)、黒羽智宏、 見神祐一、山内孝 介 (パナソニック株 式会社)、島田寛 之、山口祐貴、水谷 安伸 (産総研)
21	2021年 7月	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC- XVII)	Improvement in Power Density of Protonic Ceramic Fuel Cells with Yb doped BaZrO ₃ Electrolyte	○島田寛之、山口 祐貴、鷺見裕史、野 村勝裕、申ウソク、 水谷安伸
22	2021年 7月	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC- XVII)	Effect of Ce/Zr ratio on thermal and chemical expansions and CO ₂ resistance of rare earth- doped Ba(Ce,Zr)O ₃ perovskite-type proton conductors	○野村勝裕 (産総 研)、島田寛之 (産総研)、山口 祐貴 (産総研)、 申ウソク (産総 研)、奥山勇二 (宮崎大学)、水 谷安伸 (産総研)
23	2021年 9月	第 34 回秋季シンポジウム	Yb をドーブした BaZrO ₃ への Ni 固 溶が与える輸率への影響	○奥山勇治 (宮崎 大学)、黒羽智宏、 見神祐一、山内孝 介 (パナソニック株 式会社)
24	2021年 9月	日本セラミックス協会 第 34 回秋季シンポジウム	BaZr _{0.8} Yb _{0.2} O _{3-δ} 電解質を用 いたプロトン伝導セラミック燃料電池 の部材構造制御による出力密度の 向上	○島田寛之、山口 祐貴、鷺見裕史、野 村勝裕、申ウソク、 水谷安伸
25	2021年 9月	日本セラミックス協会 第 34 回秋季シンポジウム	希土類添加 Ba(Ce,Zr)O ₃ 系ペロ ブスカイト型プロトン伝導体の結晶構	○野村勝裕、島田 寛之、山口祐貴、鷺

			造、熱膨張係数、化学膨張率、及び CO2 耐性	見裕史、申ウソク、水谷安伸
26	2021 年 9 月	燃料電池開発情報センター 第 161 回研究会 (燃料電池開発情報センター, FCDIC)	パナソニックにおける PCFC の開発状況	○黒羽智宏 (パナソニック)
27	2021 年 12 月	第 30 回 SOFC 研究発表会 (SOFC 研究会)	機械学習を用いたプロトン伝導性セラミックスの伝導度および輸率の予測	○奥山勇治、堂園航太、藏本将也 (宮崎大学)、辻川皓太、兵頭潤次、山崎仁丈 (九州大学)
28	2021 年 12 月	14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM14)	Development of protonic ceramic fuel cell with BZYb electrolyte	○見神祐一 (パナソニック)
29	2021 年 12 月	14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM14)	Intermediate Temperature SOEC and SOFC Using Proton-Conducting Perovskites	○松本広重 (九州大学)
30	2021 年 12 月	第 47 回固体イオニクス討論会 (日本固体イオニクス学会)	プロトン伝導性セラミックス燃料電池を流れる水素イオン電流評価装置の開発	○奥山勇治、原田佳明 (宮崎大学)、黒羽智宏、見神祐一、山内孝介 (パナソニック株式会社)、島田寛之、山口祐貴、水谷安伸 (産総研)
31	2021 年 11 月	産総研コンソーシアム名古屋工業技術協会 2021 年度第 1 回研究会 (産総研コンソーシアム名古屋工業技術協会)	水素社会に貢献する高性能電気化学セラミックデバイスの開発	○島田寛之 (産総研)
32	2021 年 12 月	第 47 回固体イオニクス討論会	パルスレーザー堆積法を用いたプロトン伝導酸化物薄膜の電気伝導特性と燃料電池の作製	○丹羽栄貴, 中川和, 川下大輝, Hyo Young Kim, JunTae Song, 高垣敦, 石原達己 (九州大学)

33	2022年 3月	日本セラミックス協会 2022 年年会	機械学習による Ba(Ce,Zr)O ₃ 系 ペロブスカイト型プロトン伝導体の空 間群予測	○野村勝裕（産総 研）、島田寛之 （産総研）、山口 祐貴（産総研）、 申ウソク（産総 研）、水谷安伸 （産総研）、奥山 勇治（宮崎大学）
34	2022年 4月	第124回 SOFC 研究会 （Web 講演会企画）	プロトン伝導性セラミック燃料電池の 輸率と発電効率	○奥山勇治（宮崎 大学）
35	2022年 4月	第124回 SOFC 研究会 （Web 講演会企画）	プロトン伝導体を用いた燃料電池・ 水蒸気電解とその課題	○松本広重（九州 大学）
36	2021年 2月	第17回 国際 水素・燃料 電池展 FC-EXPO 2021	新規プロトン伝導セラミック燃料電池 の開発～究極の超高効率燃料電 池の実現に向けて～	○島田寛之（産総 研）
37	2021年 6月	nano tech 2022 第21 回 国際ナノテクノロジー総合 展・技術会議	世界最高レベルの燃料電池	○島田寛之（産総 研）
38	2022年 4月	第124回 SOFC 研究会 （Web 講演会企画）	プロトン伝導セラミックセル研究開発 の最前線	企画幹事：水谷安 伸（産総研）

課題番号（管理番号）：SO03

研究開発テーマ名：「（共通課題解決型基盤技術開発/超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発（WP3 セル評価・アプリケーション研究）」

実施者：電力中央研究所（東京ガス、東邦ガス、エア・リキード・ラボラトリーズ）、産業総合技術研究所、東京工業大学、横浜国立大学

期間：2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要（WP1～WP3 共通）

プロトン伝導セラミック燃料電池(PCFC)は、超高効率発電が可能であり、次世代の水素エネルギーデバイスとして期待されている。本事業、「超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発」では、水素社会の実現と定置用燃料電池の本格的普及拡大を目指して発電効率 70%を見通す画期的な「プロトン伝導セラミック燃料電池（PCFC）」を実現するための要素技術開発に取り組んでいる。研究開発体制として、（WP1 革新的高性能電極・部材の開発）、（WP2 高効率・高出力密度セルの開発）、（WP3 セル評価・アプリケーション研究）の3事業が一体となって研究開発を推進し、WP3 では①セルの耐久性・信頼性及び出力変動負荷サイクル評価・解析、②電気化学測定による性能劣化要因特定技術の確立、③コストエンジニアリングによる製造プロセス及び高性能セル・システム設計、④セルスタックのマルチフィジックス数値解析技術の開発及び実験による確度検証、⑤シーズ・ニーズ比較検討の5テーマを設定し、WP2 で開発されたセルをユーザーの視点からの評価とセルスタックの高出力化・高信頼性化に向けた研究開発を進めるとともに、社会実装時の技術開発課題の抽出と解決策の提案を WP1,WP2 にフィードバックする。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方（WP1～WP3 共通）

3つの事業共通の研究開発目標として、以下の最終目標を設定している。

- 1) 発電効率の向上：発電効率 65%以上を実証、70%を見通す
- 2) 出力密度の向上：セルの出力密度 $>1.3\text{W}/\text{cm}^2@500^\circ\text{C}$ (図1)
空気極抵抗： $<0.1\Omega\text{cm}^2@500^\circ\text{C}$ (WP1)
- 3) 耐久性向上：電圧低下率 1%/1000hr 以下
- 4) セル評価とシステム検討：単セルの性能を検証し、システムの机上検討を行う (WP3)

研究開発目標の設定にあたっては、発電効率や寿命等は、国内外の定置用燃料電池の現状を海外プロジェクトの動向を把握した上で、NEDO 燃料電池・水素技術開発ロードマップおよび市場が求める要求性能に基づいて設定した。また、出力密度や空気極性能の目標値は、PCFC 開発トップランナー機関の開発動向調査、国内外の文献調査からチャンピオンデータを抽出し、従来技術に対する優位性や国際競争力がある目標値とした。なお、これらの開発目標は、2019年度までの先導研究において、事業参画企業であるパナソニックおよび WP3 共同実施企業のカシオ（LOI 提出）と議論した上で設定した。

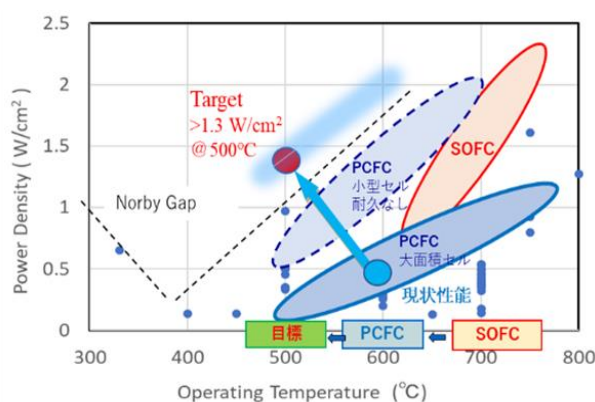


図1 目標設定の考え方（作動温度に対するセル出力密度のベンチマーク）

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
①セルの耐久性・信頼性及び出力変動負荷サイクル評価・解析：電力中央研究所（電中研）	<ul style="list-style-type: none"> 標準セルの基礎発電特性試験と安定性試験による評価 劣化要因を特定し、第一原理計算により改良指針を策定 CO₂ や高濃度水蒸気中における性能劣化の解明 	<ul style="list-style-type: none"> 標準セルの基礎発電特性試験と安定性試験を実施し、再現性を確認 BZYb 電解質が燃料極と反応生成物を形成しないことを確認 15%CO₂ を含んだ水素燃料では、顕著な性能劣化がないことを確認 	○	<ul style="list-style-type: none"> セルホルダーの仕様により発電性能が大きく影響。仕様の統一 Co 元素にも着目し、分析と計算による劣化要因の特定と改良指針の考案 高濃度水蒸気中における性能評価
① 共同実施機関：東京ガス・東邦ガス・エア・リキード・ラボラトリーズ	<ul style="list-style-type: none"> 発電特性、安定性試験およびリバーシブル(発電－電解)特性の評価 	<ul style="list-style-type: none"> 安定性試験を実施し、高い再現性を確認 リバーシブル特性を評価し、リーク電流による効率低下を確認 	○	<ul style="list-style-type: none"> 中間層を用いた改良セルの安定性評価とリーク電流の抑制効果を検討
②電気化学測定による性能劣化要因特定技術の確立：産業総合技術研究所（産総研）	<ul style="list-style-type: none"> 電解質支持形および燃料極支持形セルを用い、緩和時間分布(DRT)法によるセル要素の電気抵抗分離技術の確立 	<ul style="list-style-type: none"> 各セルの電気化学インピーダンス測定結果を DRT 解析し、SOFCとPCFCを比較することによって、燃料極・空気極の分極抵抗分離技術を確立 	○	<ul style="list-style-type: none"> DRT 解析の高度化による電極素反応の分離技術の確立 改良セルの燃料極・空気極の分極抵抗分離技術の確立
③コストエンジニアリングによる製造プロセス及び高性能セル・システム設計：東京工業大学（東工大）	<ul style="list-style-type: none"> セル部材の物性値に基づくセルスタックの設計と性能を予測 5 kW 級モノジェネシステムの生産規模に応じた各製造プロセスのコスト評価 	<ul style="list-style-type: none"> 設計の結果、リーク電流抑制には中間層挿入の有効性を確認 低コスト製造法と年 5 万台の 5 kW 級システムの原材料コストおよび製造コストの算出 	○	<ul style="list-style-type: none"> 中間層材料の選定と理論に基づいたリーク電流抑制可能な中間層/電解質の膜厚の最適化
④セルスタックのマルチフィジクス数値解析技術の開発及び実験による確度検証：横浜国立大学（横国大）	<ul style="list-style-type: none"> 物性値を考慮し、単セルスケールでのマルチフィジクスモデルを作成し、数値解析を実施 セル内部のイオン・電子・反応物質の動きを考慮した適正なセル構造の設計 	<ul style="list-style-type: none"> WP1 で測定された物性値を用い、イオン・電子・反応物質すべての輸送を考慮したマルチフィジクスモデルを開発 本モデルを用いて、電解質厚さの異なる標準セルの発電特性を高い精度で再現することに成功 	○	<ul style="list-style-type: none"> 改良セルとセルスタックにマルチフィジクスモデルを展開

⑤ シーズ・ニーズ 比較検討：産総 研他	・家庭用コジェネシ テムのフィージビリティ スタディと社会実装 時の技術開発課題 のとりまとめ ・PCFC に関連する 技術動向調査、技 術開発課題抽出お よび市場化の整理	・家庭用コジェネシテムの サイクル解析を実施し、 SOFC システムとの差異を 明確化 ・PCFC トップランナーおよ び低温作動高出力密度 化技術に関する文献調査 の実施と水素燃料電池の 市場性を調査	○	・本テーマはステージ ート審査後のテーマ見 直しにより 2022 年 6 月で中断とする。
----------------------------	--	---	---	--

3.2 研究開発の詳細

(1) 「セルの耐久性・信頼性及び出力変動負荷サイクル評価・解析」

産総研製セルの発電特性を評価し、WP2 の中間目標値（出力密度 0.8 W/cm^2 , 600°C ）を超える 0.91 W/cm^2 を得た。また水素-CO₂ 混合ガスによるパナソニック製セルの耐 CO₂ 性を評価し、水蒸気凝縮による電圧振動が観察されたものの、性能の安定性に問題無いことを確認した（図 1）。

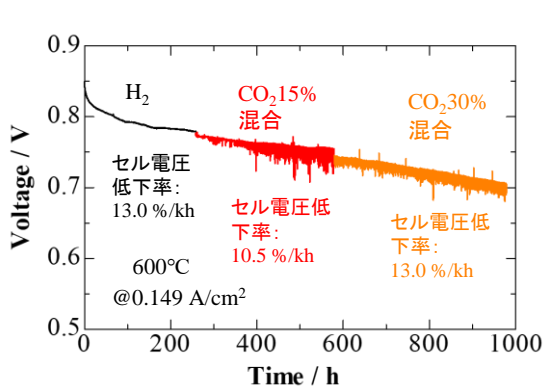


図 1 パナソニック製セル（発電面積:0.8 cm²）の安定性試験結果

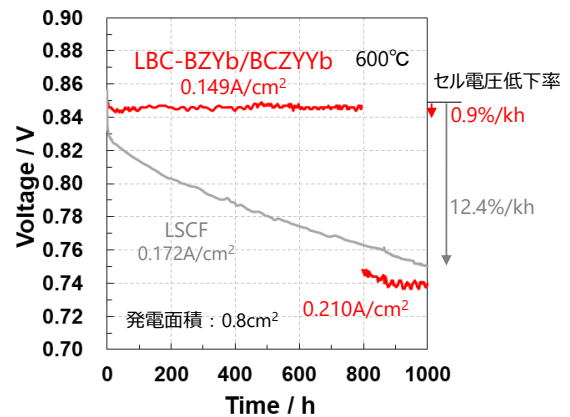


図 2 3%加湿水素によるパナソニック製セルの安定性試験結果

LBC-BZYb 空気極と BZCYYb 中間層を用いたパナソニック製改良セルの発電特性を評価し、WP2 の中間目標値であるセル電圧低下率 10%/kh を下回る 0.9%/kh を確認した（図 2）。中間層挿入の目的は、電解質と空気極の反応性防止だけでなく、電解質中を通るリーク電流（短絡電流）の抑制もある。中間層を挿入した産総研製改良セルのリバーシブル試験の結果、作動温度の低下に伴い電流効率が高くなり、リーク電流抑制効果が高くなった。しかし、その効果は十分でなく（電流効率：30%→70%@500°C）、新たな中間層の検討も必要なことが分かった。

電子線マイクロアナライザー（EPMA）の組成分布測定により、燃料極の原料である NiO が Ba(Zr,Yb)O₃ 電解質に拡散し、その一部の Ni 元素が電解質中に筋状に偏析していることが分かった。本現象は、性能劣化要因となるため、その機構解明が必要なことが分かった。

Ba(Zr,M)O₃ 電解質（M=希土類元素）は、燃料極中の NiO とセル製造条件下で反応し、BaM₂NiO₅ を析出する可能性がある。第一原理計算に基づき Ni-M 間の結合エネルギーを比較することで、M=Sc, Lu, Yb の場合、反応生成物が析出しないことが分かり、実験結果の裏付けが得られた。

(2) 「電気化学測定による性能劣化要因特定技術の確立」

電解質支持形セルを用いて、燃料極の水素分圧および空気極の酸素分圧等を変化させた燃料極-空気極間の電気化学インピーダンスを DRT 解析した結果、4 つのピーク (P_1 - P_4) の検出に成功し、 P_1 が空気極側のイオン拡散過程、 P_2 が燃料極側の水素の電気化学的酸化過程、 P_3 が燃料極側の水の生成過程、 P_4 が空気極側の酸素の電気化学的還元過程に起因することが明らかになった。高出力密度が得られる燃料極支持形セルについても DRT 解析を行い、5 つのピークを検出した (図 3 (a, b))。 P_5 はガス拡散過程と考えられるが、空気極側の分圧に大きく依存することが明らかになった。

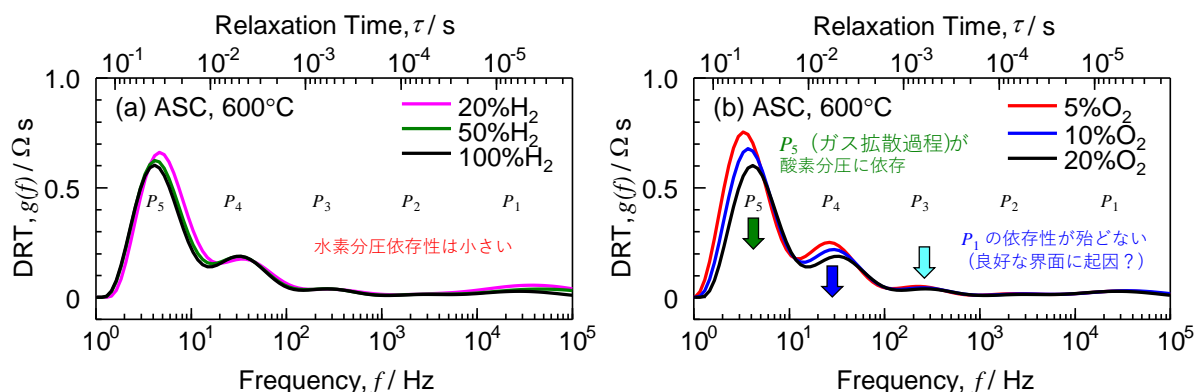


図 3 燃料極支持形セルの DRT スペクトル：(a)水素分圧依存性、(b)酸素分圧依存性

(3) 「コストエンジニアリングによる製造プロセス及び高性能セル・システム設計」

積層電解質による燃料極支持形セルの高性能化については、ネルンスト・プランク式を用いて単層セル、および積層セル内の酸化物イオン、プロトン、ホールの流束を比較した結果、積層電解質膜 BZY (1 μm) | BZCYb (9 μm) でホールの流束が最も小さくなり、その有効性と発電効率の向上が示された。

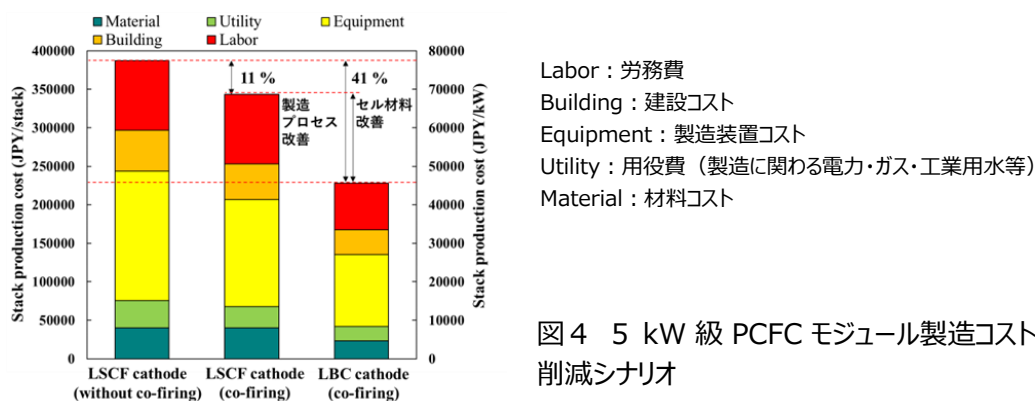


図 4 5 kW 級 PCFC モジュール製造コスト削減シナリオ

5 kW 級モジュール製造コストについて検討した。空気極に LSCF より高性能な LBC を用いて比較した結果、1) 空気極の性能向上によりセル数を削減でき、モジュール製造コスト低減に大きく寄与すること、2) LBC を用いた場合、モジュールコスト 50,000 円/kW 以下を達成できることが示された (図 4)。

(4) 「セルスタックのマルチフィジックス数値解析技術の開発及び実験による確度検証」

アレニウス式の関係による交換電流密度、ホールとプロトン拡散係数を用いた数値解析モデルにおいて、異なる電解質膜の厚み (5-17 μm) をもつ産総研製セルについて、500-700 $^{\circ}\text{C}$ における電流電圧特性の実験と解析結果の比較した結果、どの温度域、電流密度域においても実験と解析電圧が凡そ一致した。特に高温・低電流密度においてはホールリークにより開回路電位から低下する様子や、低温・高電流密度側で反応過電圧により電流密度-セル電圧曲線が下に凸になる様子などよく再現でき

ることが分かった（図 5）。

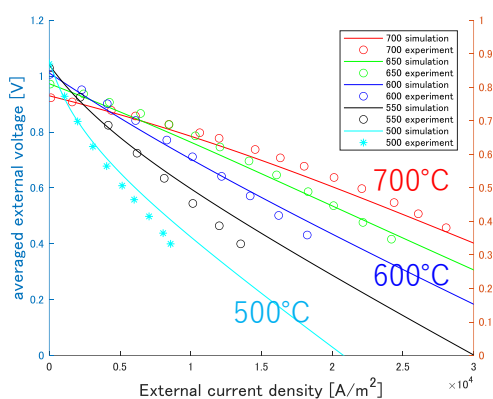


図 5 産総研製標準セル(電解質厚さ 5 μm)の電流密度 – 電圧特性の測定値と計算値の比較
(実線:マルチフィジクスモデルにより得られた計算値, プロット: WP2 産総研により得られた測定結果)

(5) 「シーズ・ニーズ比較検討」

米国では 1 \$/kg- H_2 を 2030 年に実現する Hydrogen Shot が提唱され、PCFC/PCEC は水素製造デバイスとして開発されていること、また、欧州ではメタルサポート形の PCEC 開発の他、水素製造だけでなく合成燃料製造、水素分離膜等への応用研究が加速していることを確認した。

実用化シナリオ策定のため、サイクル解析による家庭用システムのフィジビリティスタディを実施するとともに、水素利用定置用燃料電池の製品ニーズ、ビジネスモデルおよび市場動向調査を実施し、PCFC の差別化要素として純水素だけでなくメタンも利用できる（バイフュエル型燃料電池）こと、また、バーチャル・パワー・プラントやデータセンター等が今後拡大する有望市場であることを抽出した。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 「セルの耐久性・信頼性及び出力変動負荷サイクル評価・解析」

最終目標：実使用条件下で革新セル（WP1 の電極技術と WP2 のセル製造技術の両方を適用）を評価し、課題を明確化するとともに、その対応策を WP2 に提案する。また CO_2 被毒や水蒸気との反応による劣化に対する課題解決に向けた評価・解析を実施し、メタンガス、都市ガスを燃料とする PCFC の 10 年以上の使用に耐える信頼性を見通す。

アプローチ方法：革新セルの発電評価と CO_2 被毒や水蒸気との反応による劣化抑制については、WP2 と連携し進める。メタンガスや都市ガスの改質ガスを想定した安定性試験および水蒸気が発生する空気極側の高濃度水蒸気下を想定した安定性試験前後のセルの電気化学手法により、電極反応や電解質抵抗の変化等を測定できる。また、マイクロ構造分析により試験前後のセルの局所構造の変化を観察できる。これらの変化を引き起こした要因を明らかにして対応策を講じ、WP2 へフィードバックする。

(2) 「電気化学測定による性能劣化要因特定技術の確立」

最終目標：中間層を挿入した燃料極支持形セルの DRT 法によるインピーダンス解析等を行い、セル要素の劣化量の定量化技術を開発する。

アプローチ方法：中間層を挿入した燃料極支持形セルの電気化学インピーダンスを測定し、電極 – 電解質界面における反応機構の解明や、発電性能および耐久性に及ぼす影響に関する詳細な調査を実施する。これが明らかになれば、共同実施先を含むプロジェクト内で行っている耐久試験での性能劣化要因特定に繋がり、劣化を抑制するための対応策を WP2 のセル製造技術へフィードバックする。

(3) 「コストエンジニアリングによる製造プロセス及び高性能セル・システム設計」

最終目標：コストエンジニアリングにより高性能セル設計と製造プロセスの評価を行い、リーク電流を抑制した材料およびセル構造の提案と共に、セルスタックの目標コスト 50 円/W 以下を達成するための材料組成と製造プロセスの改善策を提示する。

アプローチ方法：PCFC の構成材料の輸送物性を把握し、中間層を挿入した燃料極支持形セルにおいて性能向上と耐久性を実現するセル構造を提案する。WP1～3 で提案されるセル構造や製造方法に対応した製造プロセスについて評価を行い、パナソニックとの意見交換も踏まえ、セルスタックコストの目標コスト 50 円/W 以下を達成するための材料組成と製造プロセスの改善策を提示する。

(4) 「セルスタックのマルチフィジクス数値解析技術の開発及び実験による確度検証」

最終目標：10 W 級セルおよび 50 W 級スタックに対して、マルチフィジクス数値解析により適正なセルスタック構造等を提示する。

アプローチ方法：WP1 で要素測定されたプロトン・ホール伝導率や水和・酸化の平衡定数等の物性値を考慮した単セルモデルを測定値と比較しその確度を検証し改良する。具体的には両極での水蒸気濃度、温度等を変化させた場合の電流－電圧特性やインピーダンスを測定することで濃度過電圧や反応過電圧を定式化、改良できる。その改良されたモデルを流れ方向、厚さ方向の分布を考慮するように拡張することでスタックに拡張する。

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（WP1～WP3 共通）

(1) 実用化を見据えた材料、セル開発

本事業では各テーマにおいてスタックレベル、システムレベル、導入市場の視点から検討しており、実用化を見据えた材料・セル開発により、実用性が高い PCFC の実現に向け取り組んでいる。（図 6）

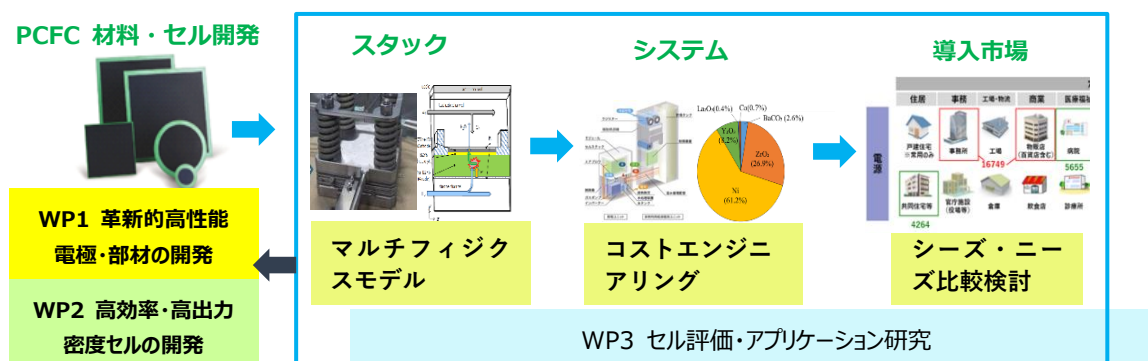


図 6 実用化を見据えた材料、セル開発の取組み体制

(2) ユーザー企業によるセル評価（WP3）

本事業では、実用化時にユーザーとして想定されるユーティリティ企業（東京ガス、東邦ガス、エア・リキード・ラボラトリーズ）がセル評価に無償で協力しており、各会議メンバーとして出席、ユーザーの視点からアドバイスをいただいている。また、実用に近い条件で耐久試験を実施することにより、実用化までの開発期間を短縮できると考えている。

(3) 実用化に向けたロードマップ

本事業は TRL3～4 の段階にあり、5 年間の研究開発で実用化を見通せるセルを実現して、実用化技術開発へ移行する計画である。開発機器の普及は 2030 年以降を想定し、メタンと純水素の水

素燃料電池を最初の製品として位置付けている。また、PCEC（水素製造）も視野に入れている。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021年 5月	Scientific Reports	Comparison of Electrochemical Impedance Spectra for Electrolyte-supported Solid Oxide Fuel Cells (SOFCs) and Protonic Ceramic Fuel Cells (PCFCs)	○Hirofumi Sumi, Hiroyuki Shimada, Yuki Yamaguchi, Yasunobu Mizutani, Yuji Okuyama and Koji Amezawa
2	2021年 7月	ECS Transactions, Volume 103, Number 1	Numerical analysis of the local current efficiency distribution in a PCFC considering gas atmosphere	○Kunpeng Li, Fumiyasu Suito, Ryogo Takatera, Atsuhito Ota, Takuto Araki, Yuji Okuyama, Masashi Mori
3	2021年 7月	ECS Transactions, Volume 103, Number 1	Design and modeling of proton-conducting bilayer electrolytes using a Nernst-Planck-Poisson formulation	○Julian A. Ortiz-Corrales、松尾拓紀、大友順一郎
4	2020年 12月	第29回SOFC研究発表会	固体酸化物形燃料電池の技術および経済性評価—プロトン伝導性セラミック燃料電池の実用化に向けた評価の取り組み—	○松尾拓紀、Ortiz Corrales Julian Andres、山手 駿
5	2020年 12月	第29回SOFC研究発表会	PCFC内のガス濃度分布を考慮した局所電流効率分布に関する数値解析	○荒木 拓人, 李坤朋, 太田 篤人, 森 昌史
6	2021年 3月	電気化学会第88回大会	プロトン伝導性固体酸化物形燃料電池の高効率化に向けた積層型電解質の設計	○松尾拓紀, 中根健太, 松崎良雄, 大友順一郎

7	2021年 3月	テクノブリッジフェア in 中部 2020 (産業技術総合研究所 中部 センター-産学官連携推進室) (招待講演)	脱炭素社会に貢献するプロトン伝 導セラミック燃料電池の開発	○水谷安伸
8	2021年 5月	FCDIC 第28回燃料電池シン ポジウム	プロトン伝導性セラミックス燃料電 池の技術および経済性評価	○大友順一郎、 Julian A. Ortiz- Corrales、山手 峻、松尾拓紀
9	2021年 5月	FCDIC 第28回燃料電池シン ポジウム	プロトン伝導性セラミックス燃料電 池の製造プロセス設計および経済 性評価	○山手 峻、大友順 一郎
10	2021年 5月	FCDIC 第28回燃料電池シン ポジウム	超高効率を実現するプロトン伝導 セラミック燃料電池の研究開発	○水谷安伸、雨澤 浩史、森昌史
11	2021年 7月	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	Design and modeling of proton-conducting bilayer electrolytes using a Nernst- Planck-Poisson formulation	○Julian A. Ortiz- Corrales、松尾拓 紀、大友順一郎
12	2021年 7月	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	Numerical analysis of the local current efficiency distribution in a PCFC considering gas atmosphere	○Kunpeng Li, Fumiyasu Suito, Ryogo Takatera, Atsuhito Ota, Takuto Araki, Yuji Okuyama, Masashi Mori
13	2021年 7月	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	First-principles investigation on the Ba ₂ MNiO ₅ second phase in Ba(Zr,M)O ₃ solid electrolyte in Proton- Conducting Solid Oxide Fuel Cell	○中村 馨、森 昌 史、奥山勇治
14	2021年 7月	燃料電池・FCH 部会 第272 回定例研究会 (大阪科学技術 センター) (招待講演)	超高効率を実現するプロトン伝導 セラミック燃料電池の現状と課題	○水谷安伸、雨澤 浩史、森昌史
15	2021年 9月	化学工学会 第52回秋季大 会 (ST-24 ナノスケールからシ ステムまで幅広く研究展開する電 池・エネルギー変換・貯蔵技術)	プロトン伝導性セラミック燃料電池 モジュールの製造における経済性お よび生産プロセス評価	○山手 峻、大友順 一郎

16	2021年 9月	第34回秋季シンポジウム(日本セラミックス協会)	BaZr _{0.8} Yb _{0.2} O _{3-δ} 電解質を用いた PCFC の電解質元素分布分析と電気化学特性評価	○小林駿、松田マリック隆磨、森昌史、島田寛之、水谷安伸、黒羽智宏、山内孝祐、見神祐一、中田裕貴
17	2021年 9月	第34回秋季シンポジウム(日本セラミックス協会)	PCFC 内リーク電流のガス分圧依存性に関する数値解析	○高寺亮伍、水藤文健、李 坤朋、荒木拓人、奥山勇治 森 昌史
18	2021年 9月	第34回秋季シンポジウム(日本セラミックス協会)	NEDO プロジェクトにおけるプロトン伝導セラミック燃料電池の研究開発状況	○水谷安伸、雨澤浩史、森昌史
19	2021年 9月	第34回秋季シンポジウム(日本セラミックス協会)	Design and performance of bilayer proton-conducting ceramic fuel cells based on ionic and electronic transport properties	○Julian A. Ortiz-Corrales、大友順一郎
20	2021年 12月	14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM14)(招待講演)	First-principles investigation on the BaM ₂ NiO ₅ precipitates in Ba(Zr, M)O ₃ solid electrolyte in Proton-Conducting Solid Oxide Fuel Cell	○中村 馨、森 昌史、奥山勇治
21	2021年 12月	14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM14)(招待講演)	Progress and challenges on ultra-high efficiency protonic ceramic fuel cells in NEDO project	○水谷安伸、雨澤浩史、森昌史
22	2021年 12月	14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM14)(招待講演)	Highly Efficient Cell Design and Cost Analysis of Protonic Ceramic Fuel Cells	○大友順一郎、松尾拓紀、Ortiz Corrales Julian Andres、山手 駿
23	2021年 12月	14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM14)	Residential Cogeneration System with Protonic Ceramic Fuel Cells and Its Social Implementation	○Fumiyasu Suito, Takuto Araki, Kunpeng Li, Ryogo Takatera, Hiroyuki,

				Shimada, Masashi Mori
24	2021年 12月	14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM14)(招待講演)	Effect of air utilization on current efficiency distributions in a protonic ceramic fuel cell	○Takuto Araki, Fumiyasu Suito, Ryogo Takatera, Kunpeng Li, Masashi Mori, Hiroyuki Shimada,
25	2021年 12月	第30回 SOFC 研究発表会 (SOFC 研究会)	NEDO プロジェクトにおける超高効 率プロトン伝導セラミック燃料電池 の研究開発状況	○水谷安伸、雨澤 浩史、森昌史
26	2021年 12月	第30回 SOFC 研究発表会 (SOFC 研究会)	高燃料利用率運転 PCFC 内の局 所ホール電流密度分布計算	○李 坤朋、高寺亮 伍、川中涼介、荒木 拓人、奥山勇治、森 昌史
27	2021年 12月	第30回 SOFC 研究発表会 (SOFC 研究会)	積層型電解質膜を用いたプロトン 伝導性セラミック燃料電池のセルデ ザインおよび経済性評価	○山手 駿、Ortiz Corrales Julian Andres、大友順一 郎
28	2022年 2月	燃料電池・FCH部会 第 276 回定例研究会(招待講 演)	プロトン伝導型 SOFC 内の局所 ホール電流密度分布計算	○荒木拓人
29	2022年 3月	電気化学会第89回大会	Improvement of PCFC performance by optimizing leakage current using multilayer electrolytes	○Julian Andres Ortiz Corrales、大 友 順一郎
30	2022年 3月	化学工学会第87年会	プロトン伝導性積層型セラミック燃 料電池の高効率セル設計と発電 特性評価	○中根 健太、松崎 良雄、大友順一郎
31	2022年 5月	FCDIC 第29回燃料電池シン ポジウム(燃料電池開発情報セ ンター(FCDIC))	プロトン伝導性セラミック燃料電池 の材料・セル性能・製造プロセスに 基づく技術経済性分析	○大友 順一郎、 Julian Andres Ortiz Corrales、山 手 駿

32	2022年 5月	FCDIC 第29回燃料電池シンポジウム（燃料電池開発情報センター（FCDIC））	プロトン伝導性セラミック燃料電池のセル設計及び製造プロセス評価	○山手 駿、Julian Andres Ortiz Corrales、大友 順一郎
33	2022年 5月	FCDIC 第29回燃料電池シンポジウム（燃料電池開発情報センター（FCDIC））	BaZr _{0.8} Yb _{0.2} O ₃ 電解質を用いたプロトン伝導セラミック燃料電池のリバーシブル特性	○ウイフ パウロ、森昌史、島田 寛之・水谷安伸
34	2022年 5月	FCDIC 第29回燃料電池シンポジウム（燃料電池開発情報センター（FCDIC））	超高効率を実現するプロトン伝導セラミック燃料電池の研究開発（第2報）	○水谷安伸、雨澤浩史、森昌史
35	2022年 5月	FCDIC 第29回燃料電池シンポジウム（燃料電池開発情報センター（FCDIC））	BaZr _{0.8} Yb _{0.2} O _{3-δ} 電解質のアンロード材との反応性と PCFC 発電特性評価	○小林駿、松田マリツク隆磨、中村 馨、森 昌史、島田寛之・水谷安伸、黒羽智宏・山内孝祐・見神祐一・中田裕貴
36	2021年 2月	第17回 国際 水素・燃料電池展 FC-EXPO 2021	新規プロトン伝導セラミック燃料電池の開発～究極の超高効率燃料電池の実現に向けて～	○島田寛之
37	2021年 6月	nano tech 2022 第21回 国際ナノテクノロジー総合展・技術会議	世界最高レベルの燃料電池	○島田寛之
38	2022年 4月	第124回 SOFC 研究会（Web 講演会企画）	プロトン伝導セラミックセル研究開発の最前線	企画幹事：水谷安伸

課題番号（管理番号）：S004

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発／固体酸化物形燃料電池強靱化技術の開発」

実施者：国立大学法人京都大学、国立大学法人東北大学、国立大学法人九州大学、国立研究開発法人産業技術総合研究所、イムラ・ジャパン株式会社

期間：2020年9月～2022年6月

1. 研究開発概要

第5次エネルギー基本計画や水素・燃料電池戦略ロードマップ等で定めるシナリオに基づき2030年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システム（水素貯蔵タンク等を含む）を実現するためのユーザーニーズに基づく協調領域の基盤技術を開発することにより、世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立することを目的とする。

本研究開発テーマでは、固体酸化物形燃料電池(SOFC)の起動時間の短縮化を実現するため、急速起動停止を含めた出力変動が容易な強靱性セルを開発する。具体的には、「開回路電圧改善」、「出力密度向上」、「低温作動化」、「急速起動停止特性向上」の各課題に取り組む。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

① 開回路電圧

電解質膜にクラック等の欠陥に伴う開回路電圧の低下は、局所的な温度上昇や電極の劣化等を引き起こすため、欠陥がない電解質膜の製造プロセス確立が不可欠である。まず初めに、従来材料であるイットリア安定化ジルコニア(YSZ)電解質を用いて、理論起電力が得られることを確認する。一方、低温でイオン導電率が高いセリア系やランカゲレート系等の新規電解質では、価数変化や元素拡散によって電子リークが生じ、開回路電圧の低下を引き起こすことがある。最終的には、これらの新規電解質膜を用いた場合でも理論起電力が得られる強靱性セルを開発する。

（中間目標：2022年6月）YSZ電解質を用いて理論起電力と同等（約1.1V）

② 出力密度・作動温度

これまでに湿式法で作製した強靱性セルは、750℃で 1.2 W cm^{-2} の出力密度が得られたが、SOFCの性能は温度低下とともに下がる傾向があり、現状のセルでは700℃で 0.8 W cm^{-2} 、600℃で 0.3 W cm^{-2} まで出力密度が低下する。まず初めに、従来のYSZ電解質や $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ (LSCF)空気極を用いた強靱性セルで、FIB-SEM等による解析によって電極微構造を改良し、700～750℃で 1.0 W cm^{-2} の出力密度が得られることを確認する。最終的には、セリア系やランカゲレート系等の新規電解質や、LSCFより高い低温活性が得られる空気極等を用いて、600～650℃で 0.6 W cm^{-2} の出力密度が得られる強靱性セルを開発する。

（中間目標：2022年6月）出力密度 1.0 W cm^{-2} 、作動温度 700～750℃

③ 急速起動停止特性

従来の燃料極支持型セルと比べて熱衝撃に強いと期待される強靱性セルであるが、急速起動停止を実現するためには起動エネルギーの低減も併せて重要である。本研究開発では、熱容量を低減させた強靱性セル・スタックを設計し、急速起動時でも破損しない強靱性セルを開発する。

(中間目標：2022年6月) 熱容量低減セル・スタック設計手法、急速起動に対する健全性評価手法確立

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度
①湿式法をベースとしたセル作製手法の検討 (京大)	大面積化への適用を視野に入れ、多孔質金属支持体上にテープキャスト法やスピコート法などの湿式法を適用してセルを作製する手法を検討する。	主にスピコート法を適用して単セルの作製を試みた。還元焼成後の段階ではクラックフリーのセルが製造できているが、開回路電圧測定環境下に置くと電解質が破損し、開回路電圧が0.85 V程度となった。	△
②電極および各部材接合界面の微構造のデータベース構築および最適化の検討 (京大)	高温還元焼成プロセスが必要な湿式法で電極や各種界面で発現する現象・状態を正確に把握し解決策をセル作製プロセスへ還元するために、FIB-SEMなどの微構造解析技術を用いてこれらの把握にあたり、構造データベースの構築および最適化へのフィードバックを行う。また、電気化学特性と微構造の相関についても明らかにする。	構成部材を逐次焼成または共焼成した際の元素拡散の影響を比較した(SUS430 (Ce,Gd)O ₂ (GDC) Ni-YSZ)。 GDC中間層の挿入によりNiの金属支持体への拡散の抑制、およびCrおよびFeの拡散を確認した。	○
③溶射法による電解質の緻密化の検討 (東北大)	多孔質金属基板もしくは穴あけ加工を施した金属薄板上に、大気圧プラズマ溶射(APS)、サスペンションプラズマ溶射(SPS)、減圧プラズマ溶射(LPS)等の手法により、プロセス条件を振り、セルを試作する。	電解質材料をYSZからLSGMに変更したことで通常のAPSで緻密性向上し、多孔質金属・穴あき金属板上へのセル作製に成功。電解質内の微小クラックが発生が課題であったが、開回路電圧は0.96→1.09V程度に改善した。	○
④溶射法による電極構造の最適化の検討 (東北大)	溶射法によって作製された電極について電極反応インピーダンスの温度・分圧依存を詳細に解析し、電極反応場の詳細を明らかにし、溶射電極での性能発現の機構を解明すると共に、これにより電極の更なる高性能化の指針を検討する。	溶射法によって作製された電極は、微細なクラックを縦横に有するものの、比較的緻密な構造をとる。しかし、電極反応抵抗は実用的な値が得られており、高性能電極を作製できる可能性を有している。	○

⑤急速起動停止の検討 (東北大)	各種の方法で試作された金属支持型セルについて、運転時セル形状・温度・AE 等同時測定等の手法を適用し、その急速起動・停止時の機械的な信頼性を評価する。必要に応じてセル部材の機械的特性、物理化学的特性を測定し、急速起動停止時の信頼性に影響を及ぼす因子を抽出する。	溶射セルについて繰り返し起動・停止実験。金属部材（多孔質 SUS430）のデイトメトリー測定にて、RedOx 耐性を評価した。	○
⑥選択還元法による NiFe アノード金属基板支持燃料電池の作製 (九州大)	Φ100mm のセルの作製を目的として、基板上へのスクリーンプリントなどの湿式法による成膜手法の検討を行う。作製時の基板からの Fe、Ni などの拡散を明確にするとともに、緻密な YSZ 膜の作製を行い、低温プロセスのレーザーアブレーション法で作製する電解質膜のセルとの性能を比較する。セルを大型化および薄板化するために、反りが無く、面積収縮の少ない基板前駆体の構造や粉体の製造方法について、検討を行う。	PET シート上へのテープキャスト法による YSZ, および Sm 添加 CeO ₂ の薄膜の作成を行った。1250℃での共焼結により、クラックのほぼ無い YSZ 薄膜の作成に成功した。還元過程で膜にクラックが入るが、成膜条件の最適化により開回路電圧は 0.50→1.05V 程度に改善した。	○
⑦金属基板と電解質の反応抑制と電極性能を向上させる機能界面層の開発 (九州大)	金属基板上に湿式法で形成したグリーン状態の YSZ や LaGaO ₃ などは、焼結過程において基板と反応するので、その対策として Ti や Mn などの添加物を検討し、理論起電力を発生できる界面層の探索を行う。電極活性を有する機能性界面層の導入は出力の向上に重要であるため、金属基板界面に機能性界面層を導入し、熱膨張、熱伝導性、起動性への影響を評価する。	CeO ₂ を反応抑止層として検討してきたが、ZrO ₂ との反応が課題であり、Fe や Cr の拡散の抑止も完全ではなかった。そこで、比較的、Zr と Fe, Cr, Ni とも反応しにくい材料として Y ₂ Ti ₂ O ₇ (YTO) を見出した。YTO を界面層とする YSZ 電解質セルでは、SD の界面層と比べて、ほぼ同じ開回路電圧や出力密度を示した。	○
⑧湿式法による高性能化開発 (産総研)	燃料極支持型 SOFC の性能と同等以上の強靱性セルを多孔質ステンレス基板上に湿式法により開発する。	750℃で 1.4 Wcm ⁻² , 700℃で 1.0 Wcm ⁻² の最大出力密度を得ることに成功した。一方、電解質の緻密性を上げたセルでは性能がやや低下したものの、開回路電圧が 0.95→1.05V 程度に改善した。	○
⑨焼結温度の低温化検討	湿式法では 1250℃以上の温度で電解質の焼結を行ってきたが、多孔質ステンレス基板から鉄やクロム等の元素が	焼結助剤を用いないナノ粒子を利用した焼結温度の低温化を検討した。液相合成プロセスにより電解質粉体を作製	○

(産総研)	拡散し、燃料極の性能低下を引き起こす可能性がある。これを抑制するため、常温化学反応等の革新的なプロセスから焼結助剤等の実用的な手法まで幅広く調査し、焼結温度を1000℃以下へ低温化するための技術開発を行う。	し、焼結温度をさらに 50℃ 低温化した1200℃での金属支持型セルの製造に成功した。	
⑩作動温度の低温化検討 (産総研)	600℃程度まで作動温度を低温化させるため、YSZ よりも低温でイオン導電率が高い新規電解質材料や、LSCF よりも低温活性が高い空気極材料を探索し、実際に強靱性セルに適用した際の性能を評価する。	スカンジウム安定化ジルコニア(ScSZ)はYSZと比較して焼結性が高く、さらに金属材料との化学的な両立性が高く、金属支持型セルの電解質材料として適していることが明らかになった。	○
⑪金属支持体の開発 (イムラ・ジャパン)	現行の耐酸化性を有する金属材料や安価な金属材料に対し、前処理等の要否検討を行い、耐久性とコストを両立し得る金属支持体の開発を行う。	支持体金属の加熱による曲がり量は40～120μm程度生じるが、重石により抑制できることを確認。金属表面酸化によりオーミック分極の上昇が30mV相当程度に抑えられることを確認した。	○
⑫低温焼結法の検討 (イムラ・ジャパン)	セル作製プロセスにおける焼成温度の低温化(～1000℃以下)を図るためには、材料の粒径条件や焼結助剤などの多岐にわたる検討が必要になることから、他機関と連携を図り、低温焼成手法を探索する。	サブミクロンとナノサイズ粒子の組み合わせと、焼結助剤の活用の結果、ガスバリア性を向上した緻密層を形成。焼結不足による微小リークの影響で、OCVは0.82V(800℃)程度であった。	△
⑬最適セル構造の検討(湿式法セル作製技術確立) (イムラ・ジャパン)	金属支持型セル特有のセル作製プロセスの課題を明確にしつつ、金属支持型セル特有の劣化機構解明に向けたアプローチを展開する。	湿式プロセスによる金属/ (アノード、電解質) 間の接合性を調査。界面での化学的接合を確認し、発電後の剥離は発生せず。1100℃までは異常酸化の傾向を示さなかった。	○

3.2 研究開発の詳細

以下、主な研究開発項目の内容及び成果を示す。

② 電極および各部材接合界面の微構造のデータベース構築および最適化の検討 (京都大学)

多孔質金属支持体中の元素の燃料極内への拡散が微構造へ与える影響を検討するために、GDC バリア層の金属支持体/燃料極界面への挿入の有無について調査した。なお、SUS430 | GDC | Ni-YSZ 試験体は各層を還元雰囲気下で逐次焼成することで形成した。金属支持体からの Fe と Cr の燃料極への拡散量と燃料極微構造の変化量に相関があることが明らかとなった (図 1)。具体的には、拡散量が多いほど、Ni 粒子の粗大化が確認され、気孔率が減少する傾向が見られた。電池性能への影響が懸念される減少であり、バリア層の重要性が改めて認識された。

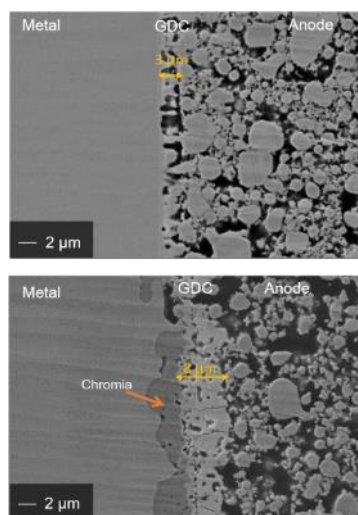


図 1 逐次焼成により成膜した金属支持体/GDC 中間層/Ni-YSZ 燃料極における微構造画像 (下図: クロミア層の存在により元素拡散が抑制された状態)

③ 溶射法による電解質の緻密化の検討、④ 溶射法による電極構造の最適化の検討 (東北大学)

多孔質ステンレス基板上にプラズマ溶射法により NiO-YSZ/La_{0.9}Sr_{0.1}Ga_{0.8}Mg_{0.2}O₃(LSGM)/LSCF 積層膜を作製し、発電が可能であることを確認した。同じ構成のセルを、レーザー穿孔したステンレス平板上に作製し、発電試験を行った。電解質膜は多孔質上に製膜したものに比べてマイクロクラックが少なく良好に見え (図 2(a))、開回路電圧も 1.09 V まで改善した (図 2(b))。溶射法で作製した電極は焼結による電極とは異なり、数 10μm 程度の広がりをもつ薄片が堆積した構造をとり、見かけ上の三相界面長さは小さいように思われるが、インピーダンス測定/DRT 解析 (図 2(c)) によれば、ガス交換の抵抗は焼結電極よりも大きい傾向があるものの、電極反応は比較的スムーズに進行していることが分かった

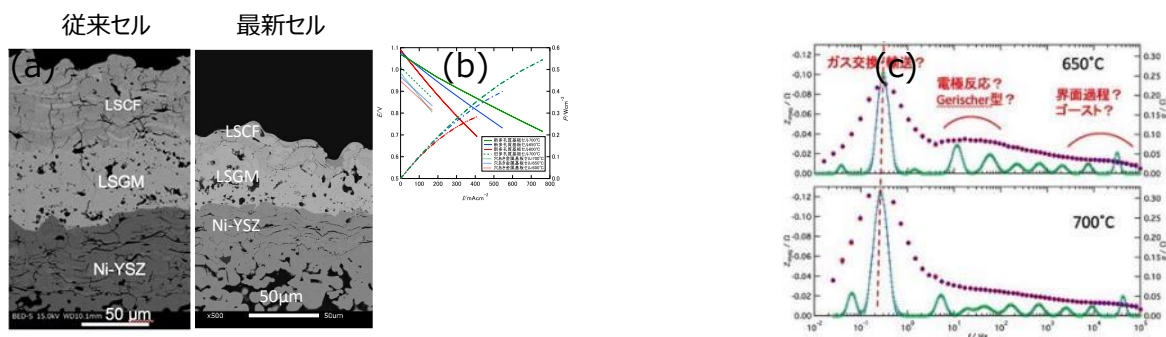


図 2 (a) 溶射法で作製したセルの断面 SEM 像、(b) 発電特性、(c) DRT スペクトル

⑦ 金属基板と電解質の反応抑制と電極性能を向上させる機能界面層の開発 (九州大学)

金属基板上への YSZ 膜の作成では基板の SUS430 系基板からの Fe, Cr の拡散が懸念される。そこで、界面層によるこれらの元素の拡散が可能な干渉層の材料の探索を行い、Y₂Ti₂O₇ についての効果を検討した。その結果、Y₂Ti₂O₇ では比較的、良好な Fe の拡散の抑止が観測された (図 3)。Y₂Ti₂O₇ は反応抑制に関しては良好であるものの伝導度が低く、反応抵抗としては IR 損が増加することが分かった。そこで、Ti サイトへの Ga や In の添加効果を検討した。この改良 Y₂Ti₂O₇ を界面層とする YSZ 電解質セルでの発電性能を評価し、(Ce,Sm)O₂ (SDC) とほぼ同等の起電力と出力密度が得られることを確認した。懸念された IR 損の増加は観測されなかったことから、Y₂Ti₂O₇ は新しい界面抑止層として有望であると期待される。

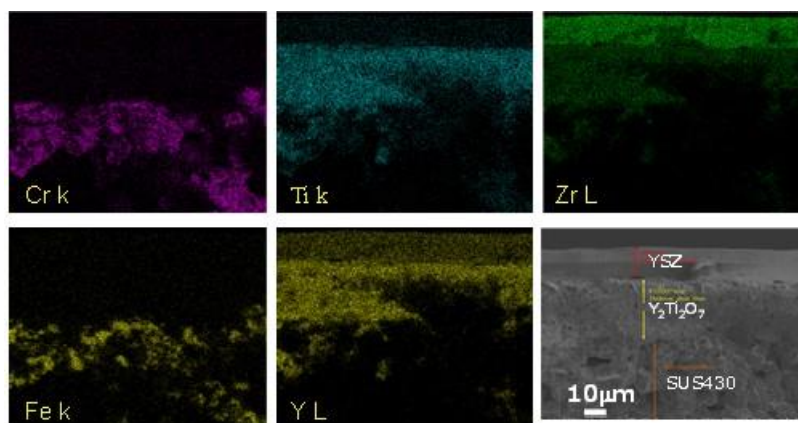


図 3 $Y_2Ti_2O_7$ を反応抑制層として用いたセルの断面 SEM-EDS マッピング

⑧ 湿式法による高性能化開発 (産総研)

湿式法によって燃料極および電解質を成膜し、還元雰囲気中で焼成することによって強靱性セルを作製した。セル製造条件における、脱脂および還元焼成温度と時間、電解質および燃料極厚さの調整、また各層の印刷手法の様々なパラメーターを検討し、緻密電解質が得られる条件の検討を行った。その結果、脱脂温度が還元焼成時の基板の収縮に大きな影響を与えることが明らかになり、最適化により緻密な電解質を持つセルを作製することに成功した (図 4 (a))。開回路電圧は 1.05 V (550°C)、最大出力密度は 1.2 Wcm^{-2} (750°C) であった (図 4 (b))。

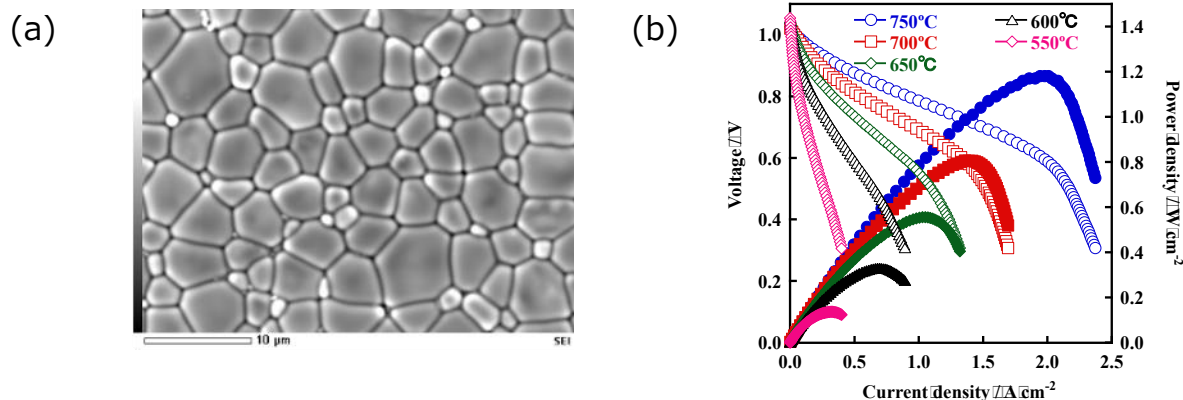


図 4 湿式法で作製した(a)電解質表面 SEM 像、(b)発電特性

⑫ 低温焼結法の検討、⑬ 最適セル構造の検討(湿式法セル作製技術確立) (イムラ・ジャパン)

金属支持体の耐熱性を考慮して 1100°C、2 時間程度の熱処理条件にて Crofer22H 上にアノード層と YSZ 電解質層の形成を検討した。YSZ 電解質層の形成では、5nm 粒子径の YSZ ナノ粒子とサブミクロン粒子径の YSZ 通常サイズ粒子を組み合わせることで緻密焼結の条件出しを進めると共に、焼結助剤の適用にもトライし、GDC 電解質ケースと比較して緻密性を向上することができた (図 5)。続いて Crofer22H 上にアノード/YSZ/カソードを形成させて MSFC を試作し、発電評価を試みた。その結果、開回路電圧は GDC 電解質の 0.13V から 0.82V (800°C) と大幅に改善させることができた。ただし、理論 OCV までには至っておらず、今後も引き続き緻密性向上に向けた対策を進めていく。

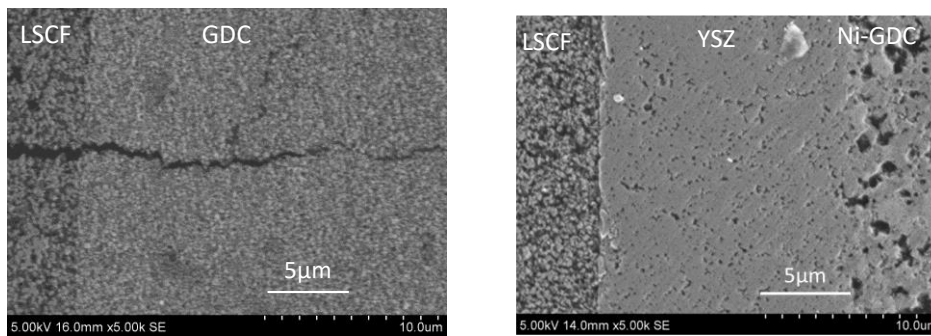


図 5 GDC、YSZ 電解質を用いたセルの断面 SEM 像

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

起動時間に数～数十時間を要し、基本的には連続運転される従来の燃料極支持型セルと比べて急速起動停止特性に優れた強靱化セルでは 15 分以内の起動ができ、日間起動停止(DSS)運転も可能になる。このため、既に実用化されている家庭用燃料電池コージェネレーションシステム（エネファーム）に加えて、再エネの出力変動を吸収し、系統電力を安定化させるピークカット電源や、電動化が進むロボット、ドローン、自動車等のモビリティ用電源への応用等、運用性が飛躍的に拡大することが期待される。

本研究開発テーマの強靱化セルは金属材料を支持体にしており、従来の燃料極支持型セルと比べて、材料費の大幅な低減が期待できる。また、電極、電解質の形成方法も安価な工法が活用でき、加工費の大幅な低減も可能である。更には、出力密度の向上により、スタックのセル枚数を大幅に減らすことができる。これらの相乗効果により、スタックの画期的な低コスト化が期待でき、特にコンシューマー向け商品については、大幅な普及拡大が期待される。

強靱化セルは、既存の定置用システムにおいて燃料極支持型セルと置き換える形で利用することが可能であり、システムメーカーと連携することによって早期実用化・商品化できる公算が高い。また、本研究開発テーマの成果である新規電解質、電極の創出による出力密度向上、低温作動化の技術は、従来の燃料極支持型セルにも応用展開が可能であり、SOFC 全体の市場性、商品性の向上に貢献するものである。

カーボンニュートラルの実現に向けて、再エネからの水素や合成燃料等の製造が重要技術として位置付けられており、SOFC の逆反応である SOEC に対する期待も大きくなっている。燃料電池と高温電解に優れた性能と耐久性を有する SOC が実現すれば、水素を活用した VPP(Virtual Power Plant)や DR(Demand Response)を含めて、更なる市場拡大も見込まれる。次期プロジェクト「水素利用等高度化先端技術開発／固体酸化物形電気化学セル強靱化技術の開発」では、金属支持型セル等の強靱化 SOC の早期実現に向けて、セルスタック・システムメーカーとの共同実施等、連携を強化して取り組みを実施する予定である。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021年4月	J. Asian Ceram. Soc., 9 (2021) 609-616	Ceria Interlayer between Electrolyte and Cathode for Solid Oxide Fuel Cells	Hirofumi Sumi, Susumu Takahashi, Yuki Yamaguchi, Hiroyuki Shimada
2	2021年8月	J. Eng. Technol. Sci., 53 (2021) 210511	Metal-supported SOFC Fabricated by Tape Casting and Its Characterization: A Study of the Co-sintering Process	Zaka Ruhma , Keiji Yashiro , Itaru Oikawa , Hitoshi Takamura & Tatsuya Kawada
3	2020年12月	第46回固体イオニクス討論会	固体酸化物形燃料電池(SOFC)におけるカチオン拡散の影響	鷺見 裕史、高橋 奨、山口 祐貴、島田 寛之
4	2020年12月	第29回 SOFC 研究発表会	強靱化に向けた金属支持型 SOFC の湿式作製プロセスの開発	山口 祐貴、鷺見 裕史
5	2020年12月	第29回 SOFC 研究発表会	固体酸化物形燃料電池のその場応力測定	石原達己 Kang Beyougsu
6	2020年12月	第29回 SOFC 研究発表会	強靱化セルのための Ni-Fe 多孔質金属基板上への YSZ 薄膜の作成と発電特性	石原達己 Kang Beyougsu
7	2020年12月	第29回 SOFC 研究発表会	Ni-Fe fuel electrode layer for steam/CO2 electrolysis on Ni-YSZ supported tubular cell using LSGM electrolyte film	Zhe Tan, Tatsumi Ishihara

課題番号（管理番号）： S005

研究開発テーマ名：「共通課題解決型基盤技術開発/固体酸化物形燃料電池スタックの高度評価・解析技術の研究開発」

実施者：

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

国立大学法人東京大学、国立大学法人京都大学、国立大学法人九州大学、国立大学法人東北大学大学院環境科学研究科、イムラ・ジャパン株式会社

(共同実施：京セラ株式会社、森村 SOFC テクノロジー株式会社、株式会社デンソー、

大阪ガスマーケティング株式会社、東京瓦斯株式会社、東邦ガス株式会社、日産自動車株式会社)

(再委託先：千葉工業大学、慶應義塾大学)

期間：2020年9月～2025年3月

1. 研究開発概要

固体酸化物形燃料電池(SOFC)システムは、家庭用が普及段階、業務・産業用が導入段階で、本格普及・産業競争力強化には、高効率・高耐久などのさらなる性能向上が必要である。そのためには、電源設備としての耐久年数 15 年(現状 10 年耐久)、分散電源としての最高効率 65%以上(現状 55%LHV)を同時に満たし、負荷変動や起動停止などの運用性を向上させる必要がある。これらの性能を満たす長寿命・高効率 SOFC スタックを的確・適正に評価できる方法・解析法はまだなく、先進的な評価・解析法を開発し、寿命予測法を開発することが目的である。評価・解析法を開発する中で、開発企業のセルスタック開発が同時に促進されることも視野に入れる。

事業の必要性について、上記のような SOFC 先進スタック性能(高耐久、高効率、高運用性)を的確に評価する方法はまだなく、スタック開発企業が必要としている。このような高度な評価・解析法ができると、スタック出荷前や長期運転時の性能の適正評価や高性能システムの設計がしやすくなり、生産性向上、適用性拡大・普及促進に寄与できる。本事業を推進することで SOFC システムの本格普及と適用性拡大、社会実装に寄与し、評価・解析法をリバーシブルセルや電解セルなどにも適用することで、低炭素社会、脱炭素社会へとつながる重要な技術を提供できる。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

脱炭素に向けたトランジェント及び水素利用における高効率発電として SOFC が重要であり、その心臓部であるスタックの高度評価・解析法が切望されている。電力設備としての定置用燃料電池システムの寿命は 15 年以上が必要、大型ガスタービンの効率は 65%程度で、その耐久年数、効率を分散電源で実現し、大幅な温室効果ガス削減に寄与する(世界では 5 年耐久で効率 60%LHV 超のシステムがトップクラス)。そのような先進スタックを評価するための高度評価・解析法はまだなく、共通課題として研究開発を進める。

本評価・解析法開発は、現在商用化しているセルスタックだけでなく、次世代セルスタックの性能を的確に評価できるように開発しているほか、欠陥検出法などの生産ラインで適用されることも検討する。さらに、評価・解析法の基礎データは、セルスタックの先進評価プロトコルや規格・標準化への基礎データとなり、その立案に貢献することが期待されている。スタック温度分布、応力解析、寿命予測などのシミュレーション技術の成果は、汎用ソフトへ組み込むことにより、スタック開発企業などが利用でき、その開発を加速するのに貢献する

ことが期待される。上記のように、本研究開発を通じて、単なるスタックの評価・解析法の開発・高度化だけでなく、事業化・社会実装を見据えた SOFC スタックの低コスト化や生産性向上、性能向上に寄与する。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
1.長寿命・高効率セルスタック評価技術開発	先進スタックの高効率運転での数万時間耐久実データの収集・蓄積、加速試験法の検討	先進スタック(筒状平板形、中温平板形、業務用平板形の3種類)の高効率・長期試験を達成し(最大2万時間、燃料利用率85%)、抵抗成分の分離とその増大要因解明を示すことに成功し、寿命予測のための基礎データの集積を行った。	○	<ul style="list-style-type: none"> 抵抗成分分離の高度化と加速試験法の提示 寿命予測式への展開
2.運用性拡大評価技術開発	運用性拡大への評価法の基礎データ集積 <ul style="list-style-type: none"> 動特性解析モデルへの基礎データ集積 急速起動プロトコル構築に向けた評価項目と基礎データ集積 コンパクト化への設計変数・評価関数検討 	<ul style="list-style-type: none"> 動特性解析モデル構築のための基礎データを集積した。 急速起動プロトコルのための基礎データ集積及び温度勾配(過酷)試験装置を完成させた。 スタックのコンパクト化のための熱籠りのシミュレーションに成功した。 	○	<ul style="list-style-type: none"> セルまたはシステムを対象とした動特性解析モデルの構築 スタック急速起動プロトコルの整備 コンパクト化設計と熱シミュレーションの高度化
3.先進劣化評価技術開発	高効率で長期寿命13万時間等を見通す評価技術基礎データの集積	<ul style="list-style-type: none"> 材料・部材、単セルごとの各種劣化機構を詳細に分析し、劣化機構を新たに発見するとともに時間依存の概念や複合効果を検討した。 劣化・寿命予測や応力分布のシミュレーションのため、劣化現象パラメータを計算に組み込むとともに代 	◎	<ul style="list-style-type: none"> 劣化を複合化したメカニズムを入れ込んだシミュレーションの開発 時間項を入れた長期耐久を予測するスタックのシミュレーション 画像から電極の性能を予測するAI機械学習の高度化

		理モデルの開発などで計算負荷低減に成功した。 ・電極微構造画像の劣化を予測する機械学習の手法を検討し、その予備的な成果を得た。		
--	--	--	--	--

3.2 研究開発の詳細

(1) 長寿命・高効率セルスタック評価技術開発

高燃料利用率で13万時間耐久を見通すための劣化寿命予測方法の構築とその妥当性・検証をスタックレベルで行なった。検討スタックは、筒状平板形スタック(京セラ製)、中温平板形スタック(森村SOFCテクノロジー製)、業務用平板形スタック(デンソー製)等とし、スタックの部位ごとの劣化寿命予測方法を確立し、複合的効果も考慮にいたった評価方法を検討開始した。

本技術開発では、前プロジェクト「SOFCの耐久性迅速評価方法に関する基礎研究（2013-2019年度）」で評価検討した一部のセルスタックも用いて、最長2万時間程度まで延長継続して運転した。これにより、セルスタック電圧の経時変化および性能表示式解析による1,000時間毎の各部材の抵抗成分分離をこない、その時間変化データなどの集積に成功した。

本テーマでの特筆すべき成果は、高効率運転（高燃料利用率 $U_f=80\%$ 及び 85%)で、運転時間2万時間ものスタック耐久試験実施とその抵抗成分分離に成功したことである。このような高い燃料利用率で長期のスタック試験を実施した例は世界でもなく、日本のセルスタックが高燃料利用率下でも安定に運転できることを初めて証明した。本スタック評価法による劣化率は、 $0.2-0.6\%/1000$ 時間のレベルであった。高燃料利用率による加速的な劣化条件での運転であり、これまで報告している $0.1-0.3\%/1000$ 時間程度のレベルよりは大きい、十分な耐久性を有するスタックであることが判明した。

本テーマでは、長期運転後のセルスタック解体分析を産総研及び大学等がそれぞれの先端分析技術を駆使しておこなった。先端分析機器を駆使することで、実スタックでの劣化メカニズムの詳細機構解明を推進し、耐久・寿命予測のための重要な基礎データを集積した。本研究開発は、劣化評価・解析法の開発だけでなく、実スタックの分析を通して実スタックで起こっている劣化メカニズムを把握するとともにその改善点を提示することも同時に行っている。その成果例として、森村SOFCテクノロジーの旧型スタックの分析をあげる。1万8千時間にも及ぶスタック耐久試験後に、電極/電解質界面での不純物蓄積の分布解析(産総研実施)や三次元再構築分析でNi-YSZサーメット電極中のNiの凝集・移動の解析(京大が実施)をおこない、不純物元素の蓄積分布や量を示すとともにNiの作動中での凝集や移動などを詳細に分析し、それらの改善点を提示した。この成果を受けて、改良が図られ、耐久性が格段に向上した新型スタックの構築に役立った。このように劣化試験→劣化要因分析・メカニズム解明→改善→耐久向上という開発サイクルを回すことで評価・解析法の開発と同時に先進スタック改良と開発を向上させることに成功した。スタックでの長期耐久性能、寿命予測には、短時間で長期を予測する加速試験も必要である。急峻な負荷変動を繰り返すことで電池性能を加速的に劣化させる加速試験を開始した。

(2) 運用性拡大評価技術開発

本テーマでは、次世代のアクティブに動く SOFC システムの運転モードを想定し、再生可能エネルギーの変動を吸収しつつ負荷変動できるシステム動特性の評価法や急速に起動して発電を行う SOFC スタックの評価プロトコルの構築、材料や部材はそのままにセルスタック設計をコンパクト化した際の高密度化への性能や耐久性への影響評価などを検討した。

システム動特性解析モデル開発では、セルの入力条件（出力指令やガス流量）の時間変化に対するシステム内部の非定常的な状態量変化挙動（動特性）を解析可能なモデルの開発を目標としており、非定常な運転時のセル、および、システムの健全性や運用性の評価への適用が期待される。これまでに、セルレベルでのガス流量などの入力とその電力出力変動など、動特性解析のためのデータを集積した。

急速起動 SOFC スタックのプロトコル構築においては、市場で必要とされる起動時間を調査し、そこからスタック急速起動の昇温速度を 21K/min とした。これを基に東北大で急速起動やセル面内温度分布を模擬できる過酷試験装置の構築をおこない、本過酷試験装置を用いてプロトコル構築に必要なデータを取得開始した。この過酷試験装置は、急速起動で起こりうる温度分布や過渡的な状態を模擬できるものとして、世界でも唯一の評価装置であり重要な成果を出すものと期待される。試験体として、市販の電解質支持型セルや燃料極支持型セルを用いるほか、金属支持型セルの模擬セルとして金属体を用いる予定である。

コンパクト化のためのフィジビリティスタディでは、スタックの設計パラメータと熱的制約の関係を明確化して、最高出力が出せるスタックの可能性や耐久に影響する温度分布を検討する。シミュレーション技術が中心であるが、代理モデルなどを使うことで、実データがない条件での熱シミュレーションなどを行う予定である。これらの技術は、世界で最も進んでいる CFD シミュレーションであり、この技術を展開することで、プロジェクト全体のシミュレーション技術の向上に寄与し、ひいてはスタック開発企業が参考とできるスタック構造や熱設計を提供できる。

(3) 先進劣化評価技術開発

基盤研究機関が有しているこれまでの劣化評価・解析技術を基に、ナノレベルの局所構造からセルレベルのマイクロ構造、スタックレベルのマクロまでの評価ができる基盤機関の評価プラットフォームを進化させ、高効率（高燃料利用率）で長期寿命13万時間耐久を見通すスタックの性能を的確に見通すことができる、高度な評価・解析技術を開発した。企業セルの分析も同時に行っており、基盤機関での最先端分析技術を適用することで、劣化要因やそのメカニズムが解明されている。その結果を受けて企業セルスタックの改良がさらに進み、高耐久・高性能な燃料電池セルスタックの実現に寄与した。各機関での主な成果を示す。

(ア)スタック劣化評価解析（電力中央研究所）：数万時間レベルのスタック耐久実データを収集し、性能表示式への温度依存項を導入した。また、性能表示式による性能要因解析により各抵抗成分の劣化事象の時間依存性の解明と複合効果の検討を開始した。

(イ)化学的信頼性評価解析（産業技術総合研究所）：共同実施のスタック開発企業3社のスタック解体分析に加え、他PJとの連携(PCFCセル開発ほか)の解体分析を実施、劣化機構を解明した。サブミクロンレベルの空間分解能でのラマン分光分析の実施やアノード支持型セルの評価手法を提案した。電解質におけるプロトン透過量の定量化に成功し、電極・電解質界面構造がオーム損に与える影響も解明した(世界で初めてプロトンの粒界透過量を見積もった)。空気極劣化とオーム抵抗劣化が相関する複合効果を検証した。

(ウ)機械的信頼性評価解析（東北大学(慶應義塾)）：世界でも初めてとなる過酷試験装置を完

成させ、急速起動・温度分布の評価を開始、基礎データの集積を開始した。供試セルのTHz事前測定法、応力測定法の開発をおこなった。シミュレーションスキームの策定及び代理モデル構築に成功し、成果を前倒しで得た。

セル欠陥検出に関し、画像取得～機械学習判別法予備実験を終了し、最適化検討を行う。

分子動力学法によるNi酸化現象解明については、Ni> 200万原子酸化シミュレータ5種モデルの計算を達成した。

(工)電極構造変化評価解析（東京大学（千葉工大））：機械学習による電極微構造の時間変化を検討、マニュアル画像処理枚数を約2桁削減に成功した。この検討で精度97%以上を実現した。電極内での局所応力予測を実施し、一様2軸拘束時の熱応力理論値よりも、2～3倍の大きな局所熱応力が発生することが分かった。

AI機械学習によるNi-YSZ電極微構造再構築に関し、非等方な電極もGANにより3次元構築することに成功した。また、U-netにより樹脂含浸しないNi-YSZ電極での炭素析出サンプルの3次元構造再構築に成功した。これら機械学習による電極微構造変化の進展を適用して、長寿命・劣化予測などに展開する予定である。

(オ)マイクロメゾ構造評価解析（京都大学）：SOFC単セルのコインサイズセルを用いて高燃料利用率運転条件における電気化学特性を収集し、大面積セルを用いた際の過電圧内訳を簡易的に評価するデータベースを構築し、広範な水蒸気分圧における燃料極の電気化学反応モデルを構築した。

燃料極支持体のガス輸送特性のデータを蓄積した。運転時相当の条件下における全圧勾配の生成を確認。FIB-SEMによる $5 \times 10^5 \mu\text{m}^3$ 程度の大領域の観察をする技術の開発に成功した。また、機械学習的手法を用いた電極構造パラメータの定量化手法を開発し、長期間に起こる電極微構造変化を予測するための基礎データを集積した。

(カ)局所構造評価解析（九州大学（東京ガス））：加湿水素での金属部材の安定性を評価した。合金組成の影響、添加元素（Si, Nb）の効果、コート材（Co, CeO₂）の影響、予備酸化温度の影響などを明確化し、13万時間耐久時の抵抗増大を予想することに成功した。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 長寿命・高効率セルスタック評価技術開発

今後の課題として、抵抗成分分離の高度化と加速試験法の提示、寿命予測式への展開などを挙げた。スタックの性能表示式では、温度項を考慮した先進的な性能表示式を構築するとともに、その時間変化を予測する。また加速試験法については、負荷変動による局所過熱を想定したものであるが、その妥当性を早期に検証する。さらに、基盤機関のシミュレーションの取り組みと連携してスタックでの劣化性能予測、寿命予測式の構築をおこなう。これらの課題に対して、性能表示式の高度化・加速試験法に関しては、スタック試験データが出始めており、目標達成に向けてそれらを蓄積する。スタックの劣化性能予測・寿命予測に関しては、部材・材料レベルでの長期寿命予測、劣化複合効果などを解析中で、これらを今年度中にセルレベルまで拡張する。均質化モデルや代理モデルなどを適用してスタックまでの性能予測や寿命予測を構築する予定である。

(2) 運用性拡大評価技術開発

今後の課題として、スタック急速起動プロトコルの整備を挙げた。スタック開発企業などが必要とし参考とできるスタック急速起動法のプロトコル整備が急がれる。過酷試験装置などの整備ができ、必要データを取

得する準備はできたので、実データ取得とその評価法整理をこの一年で整備する予定である。コンパクト化におけるスタック構造・熱設計への示唆については、代理モデルを適用することで、様々な CFD 計算ができる見込みである。これらの成果をスタックの耐久性能予測や寿命予測などに展開する予定である。

(3) 先進劣化評価技術開発

今後の課題として、複合劣化のメカニズムを入れ込んだシミュレーション、時間項を考慮したスタック長期耐久予測のシミュレーション、電極微構造画像から性能を予測する AI 機械学習の高度化を挙げた。

複合劣化のメカニズムについては、いくつかの現象について既に明らかになっているものもあり、劣化に影響が大きいいくつかの因子について、シミュレーションに反映させていく。時間項については、前述の性能表示式に時間項を取り入れるものである。電極微構造の AI 機械学習については、トレーニングさせる画像について、性能や運転時間との相関を学習させる必要があり、今後最適なデータについて検討していき、初期状態の画像からある程度長時間の耐久・寿命予測ができる方法を開発する予定である。

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) 実用化される技術：

①長寿命・高効率セルスタック評価技術開発：セルスタック劣化・寿命解析法をスタック開発企業に提供することで、スタックの長寿命化や高性能化が図られる(例：性能表示式他を個別に提示)。

②運用性拡大評価技術開発：

・急速起動評価プロトコルについては、従来 SOFC スタックが運転したことのない領域であり、それらの運転プロトコルが出来上がると、適用領域を拡大させる評価方法が提示され、先進スタック開発が促進される。

・システム動特性評価やシミュレーションなどの開発において、独自のコードやソフト開発を行っている部分もある。これらは知財化を進め、市販ソフトへの組み込みなどで実用化されうる技術となる。

③先進評価技術開発：

・製造時セル欠陥自動判別法の開発：欠陥を有するセルおよび欠陥種別を判別する画像診断法を開発し、プロジェクト実施期間内でスタック開発会社に提示・技術移転する。生産工程への適用・ライン設計に利用可能になると期待され、生産性向上に寄与する。さらに進展すれば、一般化した技術などは装置会社との共同研究を推進し、装置化ができる。

・前項と同様に基盤機関で開発されるその他の評価法も同様の実用化ルートの可能性がある。

(2) 実用化計画：

上記の実用化候補の評価・解析法については、知財化を進め、スタック開発企業、装置開発メーカーと共同で実用化、もしくは実施許諾を進める。本プロジェクト終了後数年以内での実用化が見込まれる。

開発した評価・解析法は、規格・標準化を構築する際の基礎データとして、その確立に貢献する。

(3)開発体制：

・劣化評価・解析法全般は、セルスタック開発企業と基本技術を開発した機関との共同で進める。

・セル検査装置等の開発については、セル提供企業と装置開発企業、基盤機関とが連携して開発を進める。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2020年 9月	日本セラミックス協会 第33回秋季シンポジウム	SOFC 発電によるセリア/ジルコニア 界面における SrZrO ₃ の形態変化	井上侑子, 周致霆, 川 畑勉, 谷口俊輔, 佐々 木 一成
2	2020年 9月	日本セラミックス協会 第33回秋季シンポジウム	SOFC 過酷運転下における Ni- ScSZ アノードの局所構造変化	宮良健吾, 川畑勉, 瓜 生智愛, 井上侑子, 谷口 俊輔, 佐々木一成
3	2020年 10月	熱工学コンファレンス 2020	単位セル性能データベースに基づく固 体酸化物形燃料電池セルの新規数 値シミュレーション手法の開発	岸本将史, 岸田詔平, 徐海元, 岩井裕, 吉田 英生
4	2020年 10月	14th European SOFC and SOE Forum	Study on Influences of Polarization on Nickel Morphological Changes in Nickel-Yttria-Stabilized- Zirconia Fuel Electrode During both Fuel Cell and Electrolysis Mode Operations of Solid Oxide Cells	Jiao, Z., Zhong, Z. and Shikazono, N.
5	2020年 10月	14th European SOFC and SOE Forum	Evolutions of microstructure and performance of Ni-GDC and Ni-YSZ fuel electrodes under reversible operation	Sciazko, A., Shimura, T., Komatsu, Y. and Shikazono, N.
6	2020年 10月	14th European SOFC and SOE Forum	Real-time Operando Observation of Nickel- Gadolinia Doped Ceria Patterned Electrode	Suzuki, Y., Komatsu, Y., Sciazko, A., Jiao, Z. and Shikazono, N.
7	2020年 12月	Applied Energy 283 (2021) 116305	Prediction of electrochemical characteristics of practical- size solid oxide fuel cells based on database of unit cell performance	Masashi Kishimoto, Shohei Kishida, Haewon Seo, Hiroshi Iwai, Hideo Yoshida
8	2020年 12月	第29回 SOFC 研究 発表会	SOFC 耐久性迅速評価方法に関す る基礎研究の成果概要 :	堀田照久

			適用性拡大に向けた高効率運転時の課題抽出	
9	2020年 12月	第29回 SOFC 研究 発表会	リバーシブル運転下におけるパターン Ni-YSZ 電極の in-operando 観 察	欧陽 朱峰, 小松 洋介, Anna Sciazko, 鹿園 直毅
10	2020年 12月	第29回 SOFC 研究 発表会 講演番号 207	信頼性向上のためのセル内不均一 性評価手法の開発	佐藤一永 1, 八代圭司 1, 井口史匡 1, 渡邊智 1, 坂本正 1, 橋田俊之 1, 木村勇太 1, 中村 崇司 1, 雨澤浩史 1, 湯上浩雄 1, 村松眞由 2, 佐藤維美 3, 寺田賢 二郎 1, 尾澤伸樹 1, 久保百司, ○川田達也 1 1 東北大学 2 慶應義 塾大学 3 (株)メカニカル デザイン
11	2020年 12月	第29回 SOFC 研究 発表会 講演番号 208	固体酸化物形燃料電池のその場応 力測定	駒谷拓己○1, 渡辺智 1, 熊田圭吾 2, 及川 格 2, 佐藤一永 2, 八 代圭司 1, 高村仁 2, 川田達也 1 1:東北大学環境科学研 究科、2:東北大学工学 研究科
12	2020年 12月	第29回 SOFC 研究 発表会 講演番号 209	高温模擬作動環境下における SOFC 構成材料間の界面破壊特 性評価手法の開発	○熊田圭悟 1 , NAJMAN HELMI BIN JAAFAR2 , 佐藤一永 3 , 橋田俊之 3 1 岐阜工業高等専門学 校機械工学科、2 東北 大学工学部機械知能・航 空工学科、3 東北 大学 大学院工学研究科附属 先端材料強度科学研究 センター

13	2020年 12月	第29回SOFC研究 発表会 講演番号204	SIMSによるYSZ・GDCへのプロト ンの溶解・拡散挙動の評価	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
14	2020年 12月	第29回SOFC研究 発表会 講演番号203	物理化学的解析に基づくSOFCセ ルの劣化機構解明	石山 智大、ブディマン リ ヤン、リュ シュエン、山口 拓哉、 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
15	2020年 12月	第29回SOFC研究 発表会	SOFC過酷運転下におけるアノード 反応場の局所構造・組織に関する 解析	宮良健吾、川畑勉、瓜 生智愛、井上侑子、谷口 俊輔、佐々木一成
16	2021年 3月	大阪科学技術センター 燃料電池・FCH部会 第270回定例研究会	SOFC適用性拡大に向けた高効率 運転時の課題抽出	堀田照久
17	2021年 4月	J. Electrochem. Soc., 168, 044504 (2021).	Automated Three Dimensional Microstructure Segmentation of Solid Oxide Cell Electrodes by Patch Convolutional Neural Network	Anna Sciazko, 小松 洋介, 志村 敬彬, 鹿園 直毅
18	2021年 7月	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	Determination of Factors Governing Degradation of Anode-Supported Solid Oxide Fuel Cells as Influenced by Current Density and Humidity	R.A.Budiman, K.Develos-Bagarinao, T.Ishiyama, T.Yamaguchi, H.Kishimoto, K.Yamaji
19	2021年 7月	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	Determination of Partial Proton Conductivity in Fluorite-Type Oxides Using Electrochemical Technique	T. Yamaguchi, T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Develos-Bagarinao, K. Yamaji
20	2021年 7月	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	Conductivity Degradation of Transition Metal (Mn, Fe, Co) Doped Ytria Stabilized Zirconia By Phase Transformation	張 文鋭、石山 智大、岸 本 治夫、山地 克彦
21	2021年 7月	17th International Symposium on	Stability of Nickel/Scandia- Doped-Stabilized-Zirconia	Shunsuke Taniguchi, Kengo Miyara, Tsutomu Kawabata,

		Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	Composite Anode Under High Fuel Utilization Conditions	Chie Uryu, Yuko Inoue, Jyh-Tyng Chou, Kazunari Sasaki
22	2021年 11月17日	Journal of the European Ceramic Society, 42 (4), pp. 1556-1567, (2022).	Effects of mass fraction of La _{0.9} Sr _{0.1} Cr _{0.5} Mn _{0.5} O _{3-δ} and Gd _{0.1} Ce _{0.9} O _{2-δ} composite anodes for Nickel free SOFCs	Anna Sciazko, 小松洋介, 横井亮介, 志村敬彬, 鹿園直毅
23	2021年 7月18-23日	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	Recent Achievement of Degradation Analyses in Japanese National Project: High Efficiency and Dynamic Operation Effects on the Durability of SOFC Stacks	堀田照久
24	2021年 7月18-23日	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	Electrochemical characteristics of SOFC anodes operated at high fuel utilization	Toshiaki Matsui, Tomoki Fujinaga, Takashi Ozeki, Ritsuki Shimizu, Hiroki Muroyama, Koichi Eguchi
25	2021年 7月18-23日	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	In-operando observations of Ni-YSZ patterned fuel electrodes under SOFC and SOEC operations	Zhufeng Ouyang, 小松洋介, Anna Sciazko, 西村勝彦, 鹿園直毅
26	2021年 7月18-23日	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	Unsupervised generative adversarial network for 3-D microstructure synthesis from 2-D image	Anna Sciazko, 小松洋介, 鹿園直毅
27	2021年 7月18-23日	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	Super-resolved in-operando observation of SOFC pattern electrodes	山岸鈴奈, Anna Sciazko, Zhufeng Ouyang, 小松洋介, 西村勝彦, 鹿園直毅
28	2021年 7月18-23日	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	Microstructure and performance of Ni-free nano La _{0.75} Sr _{0.25} Cr _{0.5} Mn _{0.5} O _{3-δ} - Gd _{0.2} Ce _{0.8} O _x composite anode	Anna Sciazko, 久保田穰, 佐藤和好, 小松洋介, 鹿園直毅

29	2021年 7月18- 23日	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	Degradation analysis of SOFC performance for long-term operation with high fuel utilization	Akifumi Ido, Koichi Asano, Tohru Yamamoto, Hiroshi Morita, and Yoshihiro Mugikura
30	2021年 7月18- 23日	17th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVII)	In-situ measurement of residual stress in solid oxide fuel cells	Keiji Yashiro, Takumi Komaya, Zaka Ruhma, Satoshi Watanabe, Kazuhisa Sato, Tatsuya Kawada,
31	2021年 3月22 日-24日	電気化学会第88回大 会	電気化学的手法による蛍石型酸化 物イオン伝導体のプロトンの部分伝 導度測定	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
32	2021年 5月27- 28日	FCDIC 第28回燃料 シンポジウム	SOFC スタックの適用性拡大に資す る評価・解析法の開発	堀田照久
33	2021年 5月27- 28日	第28回燃料電池シン ポジウム	SOFC スタック性能劣化解析(6) - 高燃料利用率下での長期耐久試 験 -	浅野浩一、今林拓海、井 戸彬文、森田 寛、山本 融、麦倉良啓
34	2021年 4月	Solid State Ionics	Dependence of hydrogen oxidation reaction on water vapor in anode-supported solid oxide fuel cells	Riyan Budiman、石山 智大、Katherine Develos Bagarinao、 岸本治夫、山地克彦、堀 田照久
35	2021年 4月	第120回 SOFC 研究 会	SOFC 関連技術の最先端研究紹 介1:高度分析技術に基づく材料研 究	石山 智大、山口 拓哉、 バガリナオ カテリン、岸本 治夫、山地 克彦
36	2021年 5月	第58回日本伝熱シン ポジウム	3次元畳み込みニューラルネットワ ークによる多孔質体の屈曲度ファクタの 推定	松井耀大、岸本将史、 岩井裕
37	2021年 7月	ECS Transactions	Recent Achievement of Degradation Analyses in Japanese National Project: High Efficiency and Dynamic Operation Effects on the Durability of SOFC Stacks	堀田照久

38	2021年 7月	ECS Transactions	Determination of Factors Governing Degradation of Anode-Supported Solid Oxide Fuel Cells as Influenced by Current Density and Humidity	Riyan Budiman、石山智大、Liu ShuSheng、山口拓哉、Katherine Develos Bagarinao、岸本治夫、山地克彦
39	2021年 7月	ECS Transactions	Determination of Partial Proton Conductivity in Fluorite-Type Oxides Using Electrochemical Technique	山口拓哉、石山智大、岸本治夫、Katherine Develos Bagarinao、山地克彦
40	2021年 7月	ECS Transactions	Conductivity Degradation of Transition Metal (Mn, Fe, Co) Doped Yttria Stabilized Zirconia by Phase Transformation	Wenrui Zhang、石山智大、岸本治夫、山地克彦
41	2021年 7月	第25回動力・エネルギー技術シンポジウム	SOFC 燃料極における二峰性空隙構造の定量化と透過率への影響	山崎皓平、岸本将史、岩井裕
42	2021年 9月	20th International Conference on Solid State Protonic Conductors (SSPC-20)	Effect of Dopant Concentration and Species on Proton Solubility and Diffusivity in Ceria	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
43	2021年 9月	公益社団法人 電気化学会 2021年電気化学秋季大会	過酷運転環境における固体酸化物形燃料電池の電気化学特性	清水律希、藤永智己、小関貴、室山広樹、松井敏明、江口浩一
44	2021年 9月	日本機械学会 M&M2021 材料力学カンファレンス	固有値直交分解による電気化学ポテンシャル解析の代理モデルの構築	○佐藤維美 1,2, 村松眞由 3, 寺田賢二郎 2, 川田達也 2 1 (株)メカニカルデザイン 2 東北大学 3 慶應義塾大学
45	2021年 9月	日本機械学会 M&M2021 材料力学カンファレンス	固体酸化物形燃料電池電極の三次元微細構造の熱変形・微小クラック生成解析	原祥太郎、鹿園直毅
46	2021年 9月	European Congress and Exhibition on Advanced Materials and Processes	Bimodal pore-size distribution in solid oxide fuel cell anode and its effect on gas permeability	Kohei Yamazaki, Masashi Kishimoto, Hiroshi Iwai

47	2021年 9月	Electrochimica Acta, 398, 139287 (2021).	Three-dimensional Optimization of La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O ₃ Cathode Microstructure with Particle Radius Constraint	An He, Junya Onishi, Jiaming Gong and Naoki Shikazono
48	2021年 10月	材料シンポジウム若手学 生研究発表会	機械学習を援用した SOFC テープ 成形体収縮挙動のその場観察	史寅龍, 鈴木聖矢, 原 祥太郎
49	2021年 10月	J. Power Sources, 516, 230670 (2021).	In-operando observation of patterned nickel - gadolinium doped ceria solid oxide fuel cell anode	小松 洋介, Anna Sciazko, 鈴木 寧彦, Zhufeng Ouyang, Zhenjun Jiao, 鹿園 直毅
50	2021年 11月	6th Asian SOFC Symposium and Exhibition	Status of NEDO Project on the Advanced Evaluation Methods for Durability of SOFC Cell-Stacks	堀田照久
51	2021年 11月	6th Asian SOFC Symposium and Exhibition	Degradation predictions of solid oxide cells through Electrochemical Impedance Spectra with Long Short- Term Memory Neural Network	Rena Yamagishi, Anna Sciazko, Yosuke Komatsu, Katsuhiko Nishimura, Naoki Shikazono
52	2021年 11月	6th Asian SOFC Symposium and Exhibition	3-D microstructures of Ni- YSZ anodes with carbon deposition	Anna Sciazko, 小松 洋介, Zhufeng Ouyang, 鹿園 直毅
53	2021年 11月	6th Asian SOFC Symposium and Exhibition	In operando observation of SOFC anode	Naoki Shikazono
54	2021年 11月	6th Asian SOFC Symposium and Exhibition	Gas Transport with Total Pressure Difference in Solid Oxide Fuel Cell Anode Substrate	Kento Sengoku, Masashi Kishimoto, Hiroshi Iwai
55	2021年 12月	第 30 回 SOFC 研究 発表会	高燃料利用率下での SOFC セルス タック耐久性評価	浅野浩一、今林拓海、井 戸彬文、森田 寛、山本 融、麦倉良啓
56	2021年 12月	第 47 回固体イオニクス 討論会	セリアへのプロトン溶解および拡散に おけるドーパントの効果	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

57	2021年 12月	第30回 SOFC 研究 発表会	SOFC アノードにおける Ni/酸化物 界面の相互作用	辻本浩晃, 室山広樹, 松井敏明, 江口浩一
58	2021年 12月	第30回 SOFC 研究 発表会	SOFC スタックの高度評価・解析技 術プロジェクトの進展	堀田照久
59	2021年 12月	第30回 SOFC 研究 発表会	反応分子動力学法に基づく水蒸気 環境下における Ni/YSZ 多孔質アノ ード材料の疲労シミュレーション	尾澤伸樹, 寺田弥生, 久 保百司
60	2021年 12月	第30回 SOFC 研究 発表会	テラヘルツ波による SOFC 内部欠陥 評価の可能性	佐藤一永(東北大), 渡辺 智(東北大), 八代圭司 (東北大), 田中順也 (DENSO CORPORATION, 東北 大), 川田達也(東北 大), 橋田俊之(東北 大)
61	2021年 12月	第30回 SOFC 研究 発表会	NiO Reduction Prediction with Unsupervised Image-to- Image Translation Network	Anna Sciazko, 小松 洋介, 鹿園 直毅
62	2021年 12月	第30回 SOFC 研究 発表会	Effect of Water Vapor on the Degradation of Solid Oxide Fuel Cell Cathode during Sulfur Poisoning	リヤン ブディマン, 石山 智 大, リュ シュシエン, 山口 拓哉, バガリナオ カテリ ン, 岸本 治夫, 山地 克 彦
63	2021年 12月	第30回 SOFC 研究 発表会	SOFC セルの劣化複合効果に関す る材料化学的分析	石山 智大, リヤン ブディ マン, リュ シュシエン, 山口 拓哉, バガリナオ カテリン, 岸本 治夫, 山地 克彦
64	2021年 12月	第30回 SOFC 研究 発表会	SOFC 燃料極支持体中のガス輸送 現象における全圧差の影響	仙石建斗, 岸本将史, 岩井裕
65	2022年 1月	Solid State Ionics	Proton Incorporation Behavior into Grain Boundaries of YSZ and GDC	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 (産総研)
66	2022年 1月	46th International Conference and Expo on Advanced Ceramics and Composites (ICACC2022)	Prediction of Microstructure Evolutions in Solid Oxide Cell Electrodes with Unsupervised Image-to-Image Translation Networks	Anna Sciazko, 小松 洋介, 鹿園 直毅

67	2022年 2月	J. Power Sources, 529, 231228 (2022)	Operando observations of active three phase boundary of patterned nickel - yttria stabilized zirconia electrode in solid oxide cell	Ouyang, Z., Komatsu, Y., Sciazko, A., Onishi, J., Nishimura, K. and Shikazono, N.
68	2022年 3月	公益社団法人 電気化学 学会 2022年電気化学 学会第89回大会	過酷運転環境における固体酸化物 形燃料電池の電気化学特性 (2)	清水律希, 藤永智己, 小関貴, 室山広樹, 松 井敏明, 江口浩一
69	2022年 3月	電気化学学会第89回大 会	高温赤外分光法に基づくセリア中の プロトン拡散機構の推定	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
70	2022年 3月	日本セラミックス協会 2022年年会	ペリダイナミクス法を用いた多孔体クラ ック生成の統計的性質評価	原祥太郎 (千葉工業大 学)、鹿園直毅 (東京 大学)
71	2022年 3月	日本セラミックス協会 2022年年会	深層学習を援用した積層テープ材の そり変形挙動のその場観察	史寅龍, 原祥太郎
72	2022年 3月	日本機械学会関西学 生会 2021年度学生 員卒業研究発表講演 会	機械学習を用いた SOFC 燃料極に おける交換電流密度のモデル化	千田滉也, 岸本将史, 岩井裕
73	2022年 3月	日本機械学会関西学 生会 2021年度学生 員卒業研究発表講演 会	SOFC 多孔質燃料極支持層の微 細空隙構造がガス輸送特性に及ぼ す影響	高木亮輔, 岸本将史, 岩井裕
74	2022年 5月	241st ECS Meeting, Vancouver, Canada	Operando measurement of redox-originated stress in anode supported SOFC	Kento Oshima, Takumi Komaya, Yutaro Morishita, Satoshi Watanabe, Keiji Yashiro and Tatsuya Kawada (Tohoku University)
75	2022年 5月	241st ECS Meeting, Vancouver, Canada	Synthesizing Electrode Microstructures with Predefined Spatial Gradients by Conditional Generative Adversarial Networks	山岸 鈴奈, Anna Sciazko, 小松 洋介, 鹿園 直毅
76	2022年 5月	FCDIC 第 29 回 燃料 電池シンポジウム	固体酸化物形燃料電池スタックの高 度評価・解析技術の進展	堀田照久

77	2022年 5月	第59回 日本伝熱シン ポジウム	SOFC 燃料極における異なる分子 量を持つ気体の対向輸送に対する 全圧差の影響	岸本将史 仙石健斗 山 崎皓平 岩井裕
78	2022年 5月	第29回 FCDIC シンポ ジウム	SOFC スタック性能劣化解析(7) 高燃料利用率下での長期耐久試 験	浅野浩一、今林拓海、井 戸彬文、森田 寛、山本 融、麦倉良啓
79	2021年 4月	文部科学大臣表彰 科 学技術賞(研究部門)	燃料電池界面の反応可視化と物質 輸送機構解明に関する研究	堀田照久、山地克彦、岸 本治夫

課題番号（管理番号）： IP01

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／ 高分子形と酸化物形の技術融合による電極一体型次世代 PEFC の創製」

実施者： 国立大学法人九州大学

期間： 2020年9月～2025年3月

1. 研究開発概要

本研究「高分子形と酸化物形の技術融合による電極一体型次世代 PEFC の創製」は、PEFC と SOFC の両方の研究経験・知見を活かして、電極触媒層、マイクロポーラス層、ガス拡散層に分かれている PEFC 電極開発を一体で進め、安定性に優れる酸化物や金属を電極材料などに多用して、次世代セルを開発することを目指している。大学の研究チームの特長を活かして、将来の革新的なセル・スタック設計に発展させられる新規・代替材料を用いた電極一体型セルをサイエンスに基づいて開発し、それらのポテンシャルと技術課題を示すものである。

2022年6月までの中間目標として、高耐久性が材料レベルで期待される電極一体型（チタン系、スズ系、カーボン系）のプロトタイプセル作製とボタンセルレベルでの性能評価で、市販 Pt/C 標準触媒と市販 MPL/GDL を用いたセルと同等以上の性能（電流電圧特性）を新規材料利用で具現化することを掲げた。開発材料・セルをプラットフォーム機関に提供して評価を依頼し、データの再現性や客観性を相互確認した。まずは、多様な新規材料・代替材料を用いたセルでの

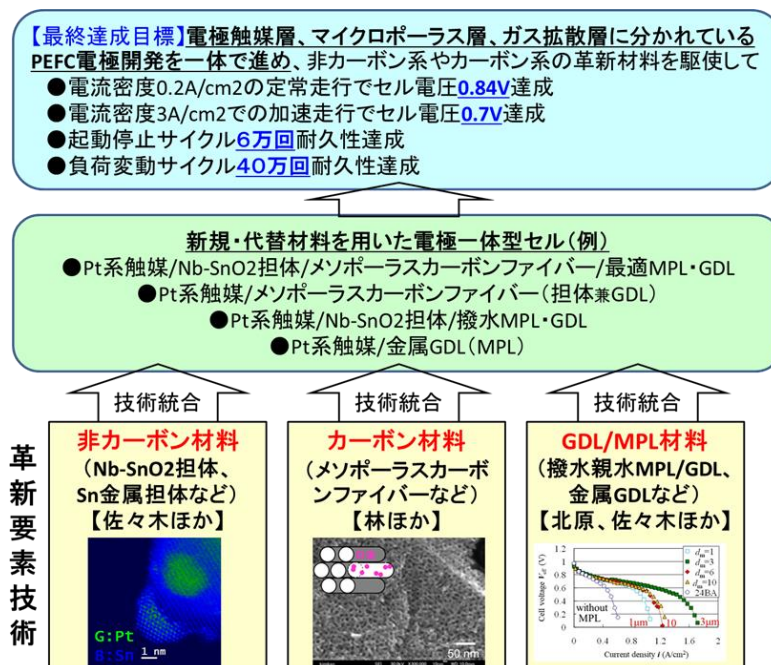


図1：本研究開発の全体像

性能・耐久性を、市販 Pt/C 標準触媒などと同一測定条件で客観的に比較評価し、各材料や各種プロトタイプセルの可能性と技術課題を明らかにした。特に昨年度からは GDL/MPL 研究を新たな研究開発テーマに位置づけたことで、触媒から担体、MPL、GDL までを一気通貫で一体的に開発し全体最適できる体制になった。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

○中間目標（2022年度6月）

2021年度末に耐久性が材料レベルで期待される電極一体型(チタン系、スズ系、カーボン系)のプロトタイプセル作製とボタンセルレベルでの性能評価で、市販 Pt/C 標準触媒と市販 MPL/GDL を用いたセルと同等以上の性能（電流電圧特性）を新規材料利用で具現化する。開発材料・セルをプラットフォーム機関に提供して、評価を依頼し、データの再現性や客観性を相互確認する。

【目標設定の考え方】

中間目標までの期間は極めて短いため、まず、ポテンシャルを有する多様なプロトタイプセルを並行して試作し、性能比較を行うことを中心に据える。まずは、多様な新規材料・代替材料を用いたセルでの性能・耐久性を、市販 Pt/C 標準触媒などと同一測定条件で客観的に比較評価し、各材料や各種プロトタイプセルの可能性と技術課題を明らかにし、プロトタイプセルの開発の優先順位付けを行う。

○中間目標（2022 年度）

FCCJ や NEDO が掲げてきた電位変動サイクルなどに耐える耐久性・ロバスト性を電極一体型セル（チタン系、スズ系、カーボン系のうちの少なくとも 1 種）で実現し、定常走行を想定する電流密度 $0.2\text{A}/\text{cm}^2$ でセル電圧 0.80V の達成に資する技術コンセプトを構築する。

○中間目標（2023 年度）

FCCJ や NEDO が掲げてきた電位変動サイクルなどに耐える耐久性・ロバスト性を電極一体型セル（チタン系、スズ系、カーボン系のうちの少なくとも 1 種）で実現し、定常走行を想定する電流密度 $0.2\text{A}/\text{cm}^2$ でセル電圧 0.84V の達成に資する技術コンセプトを構築する。

【目標設定の考え方】

4 年目目標では、最終目標で掲げる(i)高耐久性・高ロバスト性、(ii)電流密度 $0.2\text{A}/\text{cm}^2$ でのセル高性能、(iii) 電流密度 $3\text{A}/\text{cm}^2$ でのセル高性能の 3 つの最終目標のうち、前者 2 つの目標の達成に資するプロトタイプセルを試作する。

○最終目標（2024 年度）

高耐久性・高ロバスト性(6 万回の起動停止サイクル耐久性など)を示せる電極一体型 PEFC のプロトタイプセルを試作・開発し、2030 年ごろの産業界 FCCJ 目標である電流密度 $0.2\text{A}/\text{cm}^2$ の定常走行でセル電圧 0.84V と、電流密度 $3\text{A}/\text{cm}^2$ での加速走行でセル電圧 0.7V の出力の実現に資する革新技术コンセプトを構築するとともに、非カーボン系とカーボン系の材料・セルについて最終目標達成に向けて残された本質的な技術課題をメカニズムの理解を含めたサイエンスとして体系化して、更なる技術開発への指針を示す。

【目標設定の考え方】

本研究開発は、革新的な技術コンセプトの創生を主目的とする。そこでまず、ボタンセルレベルでの詳細な発電性能評価、過電圧分離評価、原子分解能電子顕微鏡を含む詳細な微構造観察などの基盤研究に集中的に取り組む。本研究グループは新規材料開発からセル作製、セル性能やセル耐久性評価を研究グループ内で一貫して日々実施することができる世界的にも数少ない大学研究室であるので、新規材料を用いた各種セルを自作して、セル性能を頻りに測定評価し、得られた知見を材料・セル開発に日々フィードバックして活かす。セル性能評価では、定常走行時の電流密度である $0.2\text{A}/\text{cm}^2$ でのセル電圧を電極活性の指標としてまず詳細に評価する。その上で、高活性が示されたセルについて $3\text{A}/\text{cm}^2$ 程度の高電流密度域までの電流電圧特性試験で FCCJ 目標への到達度を検証する。単なる表面的な数値目標の達成でなく本質的な課題を抽出することが大学の本来のミッションであるので、非カーボン系とカーボン系の各代替材料・モデルプロトタイプセルのメリットと課題を客観的に比較評価して技術コンセプトを明示することに重きを置く。極めて高いこの最終目標の達成に向けた根本的・本質的な技術課題が出てきた場合は、その課題を詳細に解析・評価することで、2030 年目標達成に向けて残された課題を明確化し、根本課題の明確化も含めて今後の研究開発の指針（サイエンス）として体系化する。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
(1)マイクロ支持構造体設計	金属系またはカーボン系のガス拡散層 (GDL) の多孔構造制御による最適支持構造体の作製、プロトタイプセルの多孔構造制御	接触抵抗を低減することで金属 GDL 使用 (厚さ 30 μ m 弱) で市販カーボン系 GDL 使用と同等以上の発電性能を達成。カーボン系では、カーボンファイバーを候補材として評価し、50 μ m 程度へ薄膜化し、電極との一体化を実施。	○	最適な金属 GDL 材料選択、安価な接触抵抗低減法の開発など
(2)GDL/MPL最適設計 【2021 年度から追加】	親水・撥水性を複合させた MPL 付き GDL を作製し、性能評価を行うとともに、GDL の一次物性・二次物性が発電性能に及ぼす影響を明確化	親水・撥水複合 MPL を考案し、従来の撥水 MPL 付き GDL と比較して高温条件下の酸素拡散抵抗を 15~28%低減できた。更なる低減に向けて親水・撥水性を最適化中。	○	酸素拡散抵抗の更なる低減と薄層化、今後のプラットフォーム機関での評価とそれを踏まえた更なる改良など
(3)ナノ支持構造体設計	超強酸中でも安定な Ti 系や Sn 系などの金属材料や多孔性炭素材料のナノ構造体を作製し、プロトタイプセルを作製・評価	メソポーラスカーボンのメソ孔内に Nb-SnO ₂ と Pt 触媒を調製することで、負荷変動サイクル耐久性が向上することを PF 機関で確認。メソポーラスカーボンファイバーを用いた一体型電極では、一体型電極の作製および Pt 担持方法の最適化に注力。	○	触媒活性向上と高電流密度域でのセル性能向上への材料設計と触媒調製法の開発・最適化など
(4)原子レベル触媒設計	一体型電極確立に向けたナノ支持体への触媒粒子担持、評価。実際の燃料電池作動環境下での安定性や耐久性、触媒活性を電極触媒およびプロトタイプセルで実測評価する。非カーボン系とカーボン系での比較を	Pt/メソポーラスカーボン触媒セルの 0.2A/cm ² でのセル電圧が 0.80V (2022 年末目標) にほぼ到達し、更に抵抗過電圧を低減できる Pt/メソポーラスカーボンファイバーサンプルの PF 機関への提出を準備中。	○	負荷変動サイクル耐久性向上に資するメソポーラス材料の微細構造最適化、調製条件最適化など

	行う。			
(5)セルの高温作動化の可能性検討と既存セルとの比較検討	高温作動性も含めた優位性と技術課題を調べ、作動温度に合わせた各種材料設計を掲示	110℃での OCV 保持試験で SnO ₂ 利用による化学劣化抑制を確認。NEDO プロトコルでの試験も開始。カーボン酸化劣化は 105℃で解析し、同時にナフィオンイオノマー劣化も起こる可能性を確認。触媒層内プロトン抵抗の測定準備中。	○	高温・加圧作動時の高電流密度域での性能向上、開回路保持時の化学劣化挙動の解明と長時間耐久性評価など

3.2 研究開発の詳細

(1) ミクロ支持構造体設計

実際の燃料電池システムへの本研究開発電極の実装には、セルスタックの主要部材（Ti 系や Sn 系、ステンレス系などの金属ベース、およびカーボンベースのガス拡散層）の基材上に直接、電極触媒層を製膜するなど、一体構造体として作れることが望ましい。そこで本研究開発テーマ(1)においては、良好なガス拡散性、生成水排出性、集電性を持つ多孔支持基材を開発し、多孔構造の制御・最適化で排水性とガス拡散性を十分に確保することを目指している。まずは、金属系のガス拡散層（GDL）の多孔構造制御による最適支持構造体の試作と評価を行った。具体的には、GDL 材料を変えて作製した燃料電池セルの電流電圧特性の測定や過電圧成分の分離解析を行い、材料（種類、厚さ、空隙率）やセル作製条件の依存性を調べた。金属 GDL 材料として Ti 繊維シートに加え、Ti 繊維シートに Sn 多孔体を担持させた Ti/Sn シート、Ti パンチングメタルシート、Sn パンチングメタルシートなどを用いた。金属 GDL は 30 μm 以下まで薄層化でき、濃度過電圧低減や体積出力密度向上が期待される。パンチメタルでは水詰まり、Ti 系シートでは抵抗過電圧低減の課題が明確化になった。「金属 GDL」という、将来の大幅な薄層化が可能な GDL 設計の可能性を開拓できたが、将来の量産化も考えてステンレスなどの汎用金属の使用の検討も進めている。最近の研究で、図 2 に示すように接触抵抗の低下によって既存の GDL/MPL 使用時を超える電流電圧特性が得られるようになってきた。高価な Au に替わるコーティング材料の開発を進めている。カーボン系では、カーボンファイバーを候補材として評価し、50 μm 程度への薄膜化に成功し、し、電極との一体化を実施している。

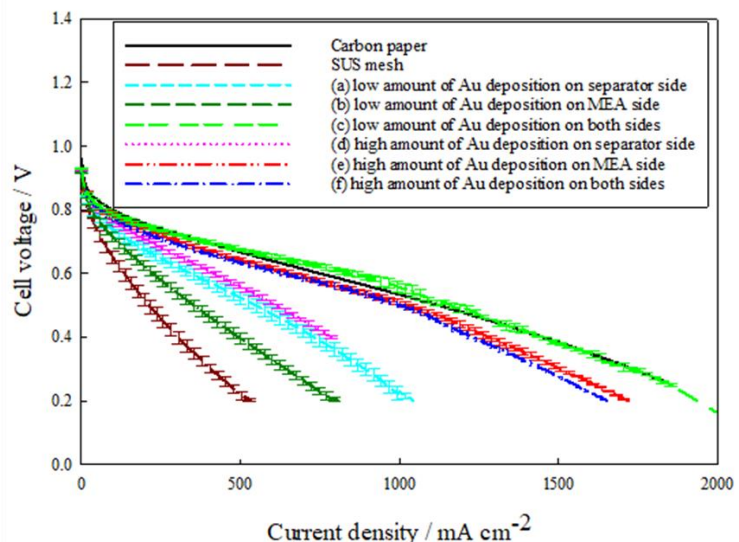


図 2：ステンレス製 GDL を用いたセルの電流電圧特性 (80℃)、ECS Transaction, in press (2022).

(2) GDL/MPL 最適設計

PEFC の耐ドライアップ性と耐フラッディング性を向上させる方策として、図 3 に示すようなカーボン系マイクロポーラ

ス層 (MPL) 付き GDL の試作と評価を行った。従来から一般に適用されている撥水 MPL 付き GDL の場合、耐ドライアップ性と耐フラッディング性を向上させるための設計指針が異なっており、耐ドライアップ性を高めた MPL は耐フラッディング性に劣ることが課題である。そこで厚さ 5 μm の親水層 (TiO₂ とカーボンブラックをナフィオンバインダーで結着) を撥水 MPL (カーボンブラックを PTFE バインダーで結着) の表面に塗布した親水・撥水 Double MPL 付き GDL を考案した。Double MPL を適用すると親水層により電極触媒層の保湿性が高まり耐ドライアップ性が向上する。一方、高加湿条件では電極触媒層の過剰な生成水が撥水 MPL 細孔内部へ導入されやすくなり排水性が高まるため、耐フラッディング性の向上も期待できる。Double MPL を適用すると市販 GDL (SGL22BB) と比較して常温・高湿度条件下での酸素拡散抵抗が 15% 低減することがわかった。さらに撥水 MPL を二層構造にして撥水性 (PTFE 量) に勾配を設けることにより排水性と耐フラッディング性が一段と向上する。市販 GDL と比較して酸素拡散抵抗が 30% 低減することがわかった。

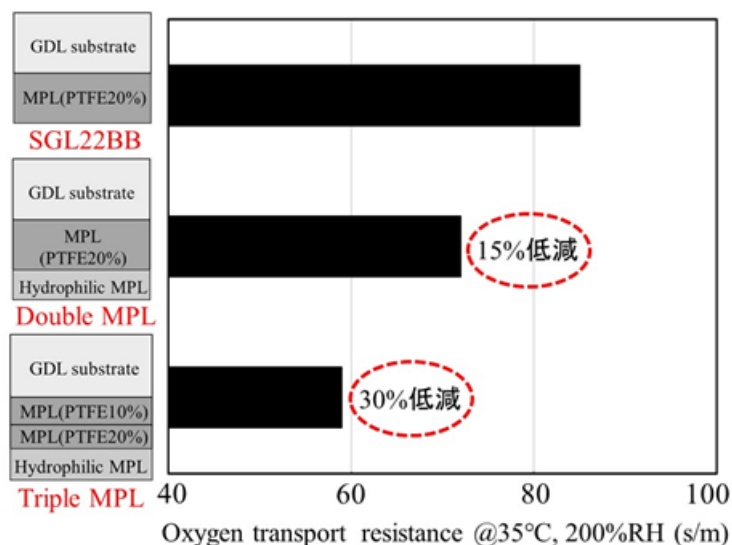


図 3 : 親水・撥水複合 MPL による酸素拡散抵抗の低減 (セル温度 35°C, 相対湿度 200%RH)

(3) ナノ支持構造体設計

熱力学的な安定性が耐久性やロバスト性の本質であり、燃料電池自動車の自家用車から大型車やトラック・バスなどの商用車への車種展開に向けた更なる高耐久化、さらに、将来の高温作動などの桁違いの過酷環境にも耐えるセルに進化させることが可能になる。そこで、本研究開発テーマ(2)では、熱力学的に安定な酸化物材料を担体表面層に用いたナノ支持構造体を作製し、セル性能とサイクル耐久性の向上を目指す研究を進めた。触媒サンプルをプラットフォーム機関にも提出し、評価結果を取得し、抽出された課題を研究開発に活かした。図 4 に示すように、触媒活性向上、高電流密度作動のための電極最適化 (GDL 含む) が必要であることが明らかになった。他方、酸化物担体の利用によって、起動停止サイクル耐久性は NEDO 目標 (6 万回) 達成目前になった。これらを踏まえて、

Pt₃Co/Nb-SnO₂/GCB カソードを用いたセルを開発し、ラボレベルで市販触媒と市販 GDL/MPL でのセルと比較しての同等の性能の中間目標は達成できた。研究開発テーマ(4)にも関わりますが、市販メソポーラスカーボンを用いた電極触媒などの開発も進め、メソポーラスカーボンを担体骨格に用いることで、負荷変動サイクル耐久性が向上することを確認できた。また、メソポーラスカーボンファイバーを用いた一体

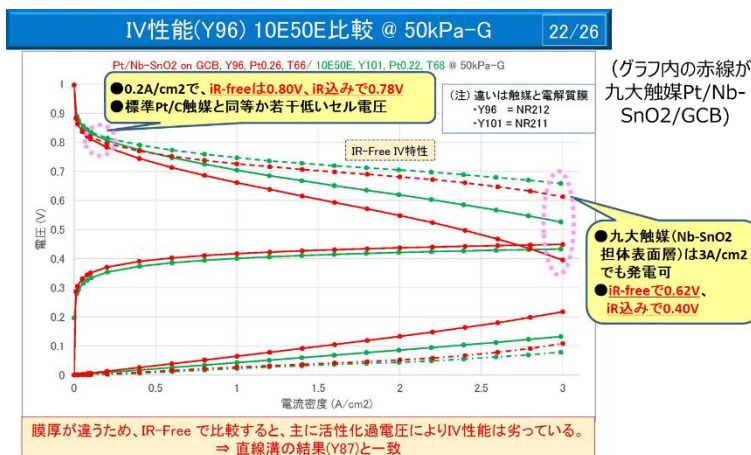


図 4 : プラットフォーム機関で測定された Pt/Nb-SnO₂/GCB 電極触媒を用いたセルの電流電圧特性 (2021 年 3 月試料提出)

型（GDL・触媒層）電極では、プロトタイプセルの性能評価を開始し市販 GDL との界面接合部の改善の必要性を課題として抽出し、GDL から一体的に電界紡糸で作製することで改善に取り組んでいる。

(4) 原子レベル触媒設計

活性化過電圧の低減、つまりは低電流密度域（ 0.2 A/cm^2 ）でのセル電圧向上においては、原子レベルでの触媒設計が重要となる。そこで、本研究開発テーマでは、メソポーラスカーボンバルクに Pt 触媒担持した触媒サンプルをプラットフォーム機関にも提出し、評価結果を取得し、抽出された課題を研究開発に活かした。図 5 に示すように、Pt/メソポーラスカーボン触媒は 0.2 A/cm^2 でのセル電圧が 0.80 V （2022 年末目標）にほぼ到達し、IV 特性は標準触媒使用セルを超える性能も得られていることから、中間目標を達成できたと判断できる。また、拡散過電圧に優れることが明らかになった一方で、抵抗過電圧が高くなる課題も明らかになった。抵抗過電圧の低減に向けては、メソポーラスカーボンをファイバー化することで克服できる見通しが立った。ファイバー化した粉末のボールミル条件の検討を行っている。並行して、Pt/メソポーラスカーボンファイバー触媒サンプルのプラットフォーム機関への提出に向けて準備している。非カーボン系では担体骨格の高表面積化による担体表面層の薄層化と触媒の高分散化を実現し、研究開発テーマ(3)とも関わるプロトタイプセルの性能と耐久性を評価している。

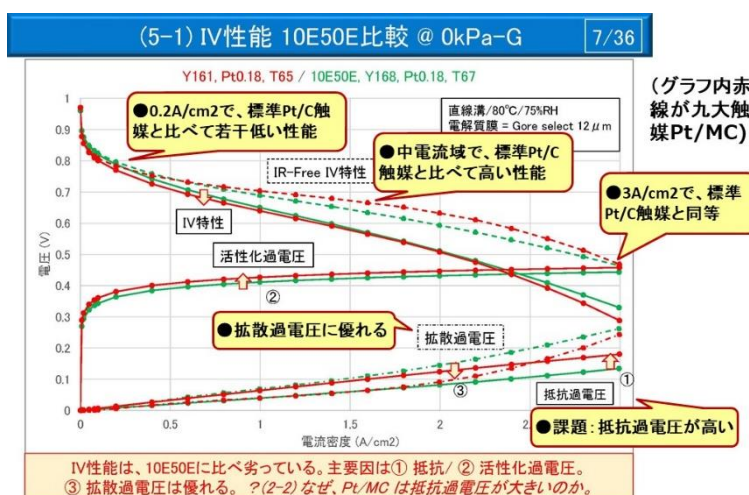


図 5：プラットフォーム機関で測定された Pt/メソポーラスカーボン電極触媒を用いたセルの電流電圧特性(2021 年 9 月 試料提出)

(5) セルの高温作動化の可能性検討と既存セルとの比較検討

自動車等で使われる固体高分子形燃料電池（PEFC）には、超強酸（ $\text{pH}=0$ ）・高温・高電位の条件下で、10 年以上の間、使い続けられる安定性が求められる。しかし、燃料電池自動車用セルの化学的耐久性の研究において、GM からの研究論文（J. Zhang et al., J. Electrochem. Soc., 168, 024520 (2021).）に報告されているように、 TiO_2 を用いると膜劣化が燃料電池の高耐久化を妨げる要因になるとの研究結果も報告されている。そこで本研究開発テーマにおいては、 SnO_2 などの酸化物担体を用いたセルにおける化学劣化について調べた。触媒担体としてカーボンブラック、Nb ドープ SnO_2 、Nb ドープ TiO_2 を用いたセルを作製した。Pt/C 標準触媒には田中貴金属製 TEC10E50E を用いた。電解質には厚さ $50\mu\text{m}$ の Nafion 膜を用いた。

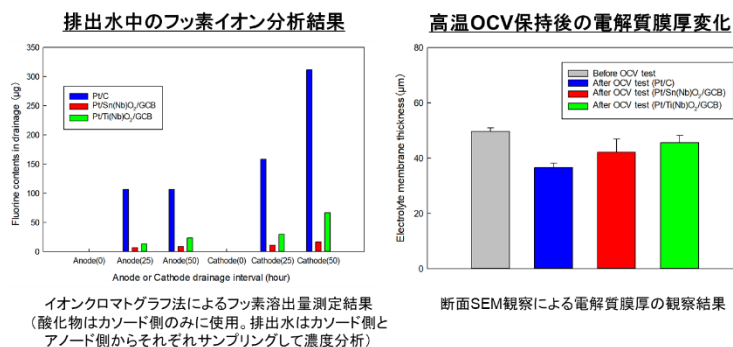


図 6：非カーボン系触媒の高温（ 110°C ）作動時の劣化解析（化学劣化の有無の確認）

110℃における 50 時間までの OCV 保持耐久試験結果を図 6 に示す。Pt/C 標準触媒を用いたセルでは、電解質膜の薄層化が見られた。排出水のイオンクロマトグラフ分析で、溶出フッ素イオンも検出された。それに対し、酸化物である Nb-SnO₂ や Nb-TiO₂ をカソード担体に使ったセルでは、相対的に薄膜化が緩やかになる傾向が 50 時間までの耐久試験では見られた。少なくとも SnO₂ をカソードに用いることでの化学劣化の加速は見られず、むしろ化学劣化が抑制される結果となった。引き続き、排出水中のフッ素イオンの定量分析結果なども踏まえて、各種酸化物がセルの化学劣化に及ぼす影響について詳細に調べる。

【中間目標】(2022年6月)

●2021年度末に耐久性が材料レベルで期待される電極一体型(チタン系、スズ系、カーボン系)の**プロトタイプセル作製とボタンセルレベルでの性能評価**で、市販Pt/C標準触媒と市販MPL/GDLを用いたセルと同等以上の性能(電流電圧特性)を新規材料利用で具現化する。

●**開発材料・セルをプラットフォーム機関に提供して、評価を依頼し、データの再現性や客観性を相互確認**する。

- カーボン系、スズ系、チタン系で**触媒からGDLまでを一体的に制御した電極をそれぞれ作製済**
- ラボレベル**で、市販MPL/GDLを使って、市販Pt/C(TEC10E50E)と同程度の**電流電圧(IV)特性を新規材料利用(Nb-SnO₂など)で達成**
- 自作GDL/MPLでは市販材料より**酸素拡散抵抗を数割低減済**
- Nb-SnO₂を担体表面層に用いた触媒、自作メソポーラスカーボン(MC)を担体に用いた触媒を**PF機関に提出済**
- MC利用セルで市販材料と同等か一部超えるIV特性**を得て、0.2A/cm²で0.80Vの2022年度末目標を**ほぼ達成**
- SnO₂系セル**でも0.2A/cm²で0.77~0.78Vまで到達(50kPaG)し、2022年度末目標の**0.8V達成目前**

図 7 : 中間目標 (2022 年 6 月) 時点での研究進捗

また、105℃作動時には、カーボン酸化の他に、ナフィオンイオノマー劣化も起こる可能性を確認し、プロトン抵抗変化の定量測定を試みている。

以上の継続可否審査で報告した他の研究結果も含めた成果(本年6月の中間目標時点)を図7にまとめる。2022年6月までの中間目標を予定通り達成しており、現在、最終評価に向けて研究開発を加速させている。特許性がある研究開発成果は順次特許出願しており、今年10月開催のElectrochemical Society Meetingで開催される固体高分子形燃料電池シンポジウムで成果発表するTransactionも8月にアクセプトされている。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

実施計画書に沿って、以下の各研究課題について取り組みを着実に進めて、最終目標を達成する。

(1) ミクロ支持構造体設計

Pt/金属 GDLセルの開発においては、均一性、集電性、高機械的強度、低接触抵抗を満たす金属基材を比較検討する。撥水性の付与・制御も行って、性能・耐久性をセルレベルで検討し、金属基材を用いた一体型電極の作製・評価につなげる。カーボンファイバーGDLの開発については、カーボンファイバーGDLの厚さや空壁率や PTFE 添加量を最適化して、開発する要素技術を一体型電極に適用する。

(2) GDL/MPL 最適設計

親水撥水 MPL セルの開発を着実に進める。親水・撥水複合 MPL 付き GDL の性能評価、GDL/MPL の一次物性・二次物性と発電性能の関係の明確化(一次物性:細孔径、接触角、厚さ、空隙率、屈曲度など。二次物性:空気透過性、透水圧、液水・水蒸気透過性、相対ガス透過性など)、GDL/MPL の薄膜化(基材レス化)と親水・撥水制御で市販 GDL より酸素拡散抵抗を半減させる。さらに、高電流密度域での抵抗過電圧の増大抑制と濃度過電圧の低減により 2024 年度目標の加速走行(0.7V@3A/cm²)を達成するための高耐久 GDL/MPL 設計指針を確立する。

(3) ナノ支持構造体設計

Pt/酸化物系の触媒・セル開発に向けては、触媒作製条件最適化（材料組成、作製手法、温度・雰囲気、前処理条件など）による触媒活性向上、セル作製条件最適化（イオンマー添加比率、酸化物に合ったMPL・GDL 選択など）でセル性能を向上させる。最適 GDL/MPL 利用で電極の一体設計と最終目標の性能・耐久性を達成する。一体型 Pt/MCF（メソポーラスカーボンファイバー）セルの開発と連携して、酸化物系触媒と融合した一体型電極開発につなげる。

(4) 原子レベル触媒設計

メソポーラスカーボンを用いた一体型電極触開発に向けて、電極部分として、カーボンメソ細孔径、細孔容積の最適化、ナフィオン添加量の最適化、PtCo などの合金担持を検討する。また、GDL 部分として、厚さや空壁率の最適化を検討する。その他の各種要素技術を一体型電極に適用して最適化し、酸化物材料と融合した一体型電極開発にもつなげる。

(5) セルの高温作動化の可能性検討と既存セルとの比較検討

非カーボン系材料の高温使用時の化学劣化挙動を解明し（SnO₂ や TiO₂ などの酸化物材料使用時の化学劣化、金属 GDL からの溶出イオンによる劣化など）、カーボン系においては特にイオンマーや Pt 劣化挙動の解析、高温作動時の開発材料のセル性能評価を行う。高温作動時の開発セルの耐久性評価、触媒層全体の構造変化（劣化）の解析、100℃を超える高温作動の可能性と課題をカーボン系・非カーボン系で検討する。開回路電圧保持時の化学劣化に対する長時間耐久性については加速予算で導入する自動測定装置を用いて、他の研究グループのサンプル評価も行き、共通基盤的な知見を得る。

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

本事業は 2030 年以降の実用化を目指す革新技术を開発する「水素利用等高度化先端技術開発」であるので、既存の材料の枠にとらわれず、不可能を可能にするブレークスルーとなる革新技术開発に集中的に取り組むものである。図 8 に示すように、MEA の性能を左右する触媒から触媒層、MPL、GDL 全体を俯瞰して、電極を一気通貫で一体的に開発する取り組みである。

開発目標の位置づけ：産業界ニーズに対応

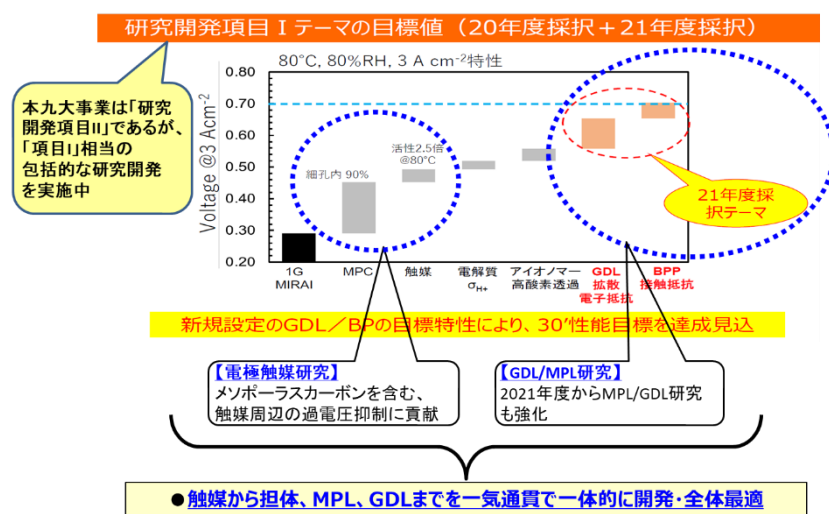


図 8：産業界ニーズに沿って、触媒から GDL までの電極全体を一気通貫で包括的に開発する本研究開発の取組

本事業においては、図9に示すように、定常走行、加速走行、起動停止、負荷変動、高温作動の5項目を同時に達成するセルの開発を目指しており、各要素技術の研究を進めながら、最終的にはそれらを統合した次世代セルの創製に結実させる。

それらの個々の技術開発を進めながら、2030年までの産業界目標を前倒して達成する。それとともに、将来の商用化を目指して、以下のような産学連携に関わる取り組みを着実に進めて、2030年以降の次世代セルのコンセプトを包括的に提案して、将来の実用化につなげる。

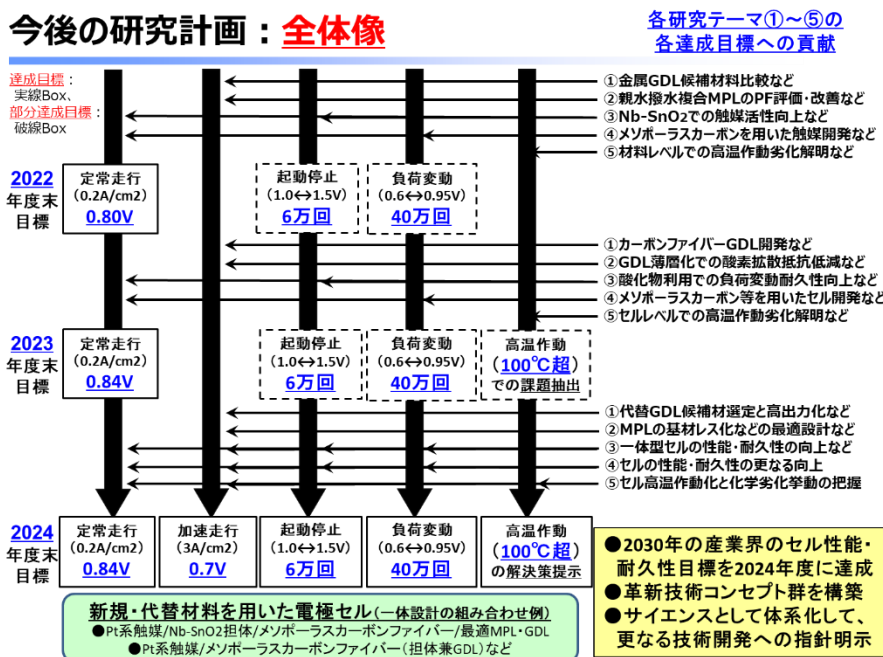


図9：今後の研究計画の全体像とアウトプット・アウトカム

- 革新技術開発を目指す「項目 II」の取り組みとして、各要素革新技術の開発に注力しながら、成果を産業界と幅広く共有する。
- 産業界からのフィードバックを革新技術開発に活かす。
- 2030年の産業界目標のみならず、ロードマップ改訂の議論もいち早く考慮して、2030年以降に必要な革新要素技術を生み出す。
- 本事業の成果については、個別技術の可能な橋渡し・ランセンシングは順次開始する。
- 最終開発セル（一体設計したセルなど）の研究成果も産業界と幅広く共有し、「開発技術＋物質特許＋新規出願を含めた知財群」のパッケージでのランセンシングを目指す。
- 関心表明企業を含めた産業界との連携については、オープン戦略（連携企業群への成果発表）とクローズ戦略（個別企業とのMOUを結んで上での情報交換）を並行して進める。
- 次世代燃料電池産学連携研究センターに2022年4月から「産学ジョイントベンチャー部門」を設置しており、本NEDO事業を活かして水素燃料電池業界の革新技術創成拠点的な機能を持たせることで、継続的な社会実装を行う。
- 九大水素拠点において、知的財産を戦略的・積極的に取得・維持・展開するための「水素燃料電池知財特区」（代表者：佐々木教授＝産学官連携担当副学長を兼務）を2021年11月に設置しており、この知財特区を核に、積極的な知財戦略を進める。

これらを進めて、実施計画書に明記するように、将来の革新的なセル・スタック設計に発展させられる新規・代替材料を用いた電極一体型セルをサイエンスに基づいて開発し、それらのポテンシャルと技術課題を示す。多様な酸化物や金属材料などをセル材料に用いることで、高分子形と酸化物形の技術融合にもつなげる。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2022.03.19	2022-044763	多孔金属ガス拡散層、及びこれを備えた固体高分子形燃料電池、水電解装置	国立大学法人九州大学
2	2022.03.14	2022-039083	電極材料、並びにこれを使用した電極、膜電極接合体及び固体高分子形燃料電池	国立大学法人九州大学
3	2022.01.10	2022-001995	燃料電池用電極材料、並びにこれを使用した燃料電池用電極、膜電極接合体及び固体高分子形燃料電池	国立大学法人九州大学

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021年10月	240th ECS Meeting	PEFCs Using Metallic Ti and Sn Electrocatalyst Supports	Teppey IKEHARA, Zhiyun NODA, Junko MATSUDA, Masamichi NISHIHARA, Akari HAYASHI, Kazunari SASAKI
2	2021年10月	240th ECS Meeting	PEFCs Using Metallic Ti and Sn Gas Diffusion Layers	Kotaro YAMAMOTO, Zhiyun NODA Junko MATSUDA, Masamichi NISHIHARA, Akari HAYASHI, Kazunari SASAKI
3	2021年10月	240th ECS Meeting	Preparation of PEFC electrocatalysts using SnO ₂ thin layer support	Yusuke INOUE, Zhiyun NODA, Junko MATSUDA, Masamichi NISHIHARA, Akari HAYASHI, Kazunari SASAKI
4	2021年2月	45th International Conference and Expo on Advanced Ceramics and Composites (ICACC'21 Virtual)	Plenary Speaker Award	Kazunari SASAKI
5	2021年2月	日本機械学会	日本機械学会フェロー	佐々木 一成

6	2021年 3月	九大水素モーターショー	「九大水素モーターショー」 開催による水素燃料電池 の普及啓発活動（2021 年3月19日、九大伊都 キャンパス・水素ステーショ ン前で開催）	九州大学
7	2021年 6月	日本セラミックス協会	日本セラミックス協会フェロ ー	佐々木 一成
8	2021年 度	ECS Transactions	PEFCs Using Metallic Ti and Sn Electrocatalyst Supports	Teppei IKEHARA, Zhiyun NODA, Junko MATSUDA, Masamichi NISHIHARA, Akari HAYASHI, Kazunari SASAKI
9	2021年 度	ECS Transactions	PEFCs Using Metallic Ti and Sn Gas Diffusion Layers	Kotaro YAMAMOTO, Masahiro YASUTAKE, Zhiyun NODA Junko MATSUDA, Masamichi NISHIHARA, Akari HAYASHI, Kazunari SASAKI
10	2021年 度	ECS Transactions	Preparation of PEFC Electrocatalysts using SnO ₂ Thin Layer Support	Yusuke INOUE, Zhiyun NODA, Junko MATSUDA, Masamichi NISHIHARA, Akari HAYASHI, Kazunari SASAKI
11	2022年 3月	電気化学会第89回大 会（オンライン開催）	PEFCの電極内プロトン抵 抗測定手法の開発	水田 陽介, 永山 まゆみ, 佐々木 一成, 林灯
12	2022年 3月	電気化学会第89回大 会（オンライン開催）	SnO ₂ 担体を用いたセル の高電流密度域での発電 性能に関する研究	小川 泰知, 井上 裕介, 山本 浩太 郎, 安武 昌浩, 野田 志云, 西原 正通, 松田 潤子, 林 灯, 佐々木 一成
13	2022年 3月	電気化学会第89回大 会（オンライン開催）	メソポーラスカーボン担体か らなる触媒層の性能および 構造評価	安福大智, 永山まゆみ, 佐々木一 成, 林灯
14	2022年 3月	電気化学会第89回大 会（オンライン開催）	固体高分子形燃料電池 のPt-酸化物ナノコンポジット 電極触媒の研究	西泉亮佑, 井上裕介, 安武昌浩, 野田志云, 西原正通, 松田潤子, 林灯, 佐々木一成
15	2022年 3月	電気化学会第89回大 会（オンライン開催）	酸化物を用いた固体高分 子形燃料電池の化学劣 化に関する研究	高木 謙斗, 野田 志云, 井上 裕 介, 安武 昌浩, 西原 正通, 松田 潤子, 林 灯, 佐々木 一成

課題番号（管理番号）：IP02

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発/カーボンフリー白金合金ナノ粒子連結触媒とポリフェニレン系細孔ファイリング電解質膜の開発および高電圧・高出力 MEA への展開」

実施者：国立大学法人 東京工業大学（株式会社 リタケカンパニーリミテド、一般財団法人 高度情報科学技術研究機構）

期間：2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

固体高分子形燃料電池普及拡大のために、水による白金(Pt)酸化被毒を抑制し酸素還元反応(ORR)活性が高く、極薄触媒層となるカーボンフリー白金系ナノ粒子連結触媒と高温低湿度運転を可能とするポリフェニレン系高温低湿度用細孔ファイリング電解質膜を設計・開発し、高電圧・高出力密度運転を実現する。2022年6月までは白金系ナノ粒子連結触媒、電解質膜の材料開発を実施し、2022年7月以降は触媒開発の継続と、開発した触媒・電解質膜を用いた膜電極接合体(MEA)での実証を実施する。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

○中間目標（2022年度6月末）

白金系ナノ粒子連結触媒において、水によるPt酸化被毒を抑制できること、高い活性が発現することを実証する。電解質膜としては、低湿度環境において量子化学計算から予測されるスルホン酸基の高密度構造の有効性、高いプロトン伝導性を実証する。数値目標としては、以下である。

- ① 高表面積カーボンフリー白金系ナノ粒子連結触媒の開発・評価
 - ・ 酸素還元反応(ORR)に対する触媒表面比活性 $3 \text{ mA/cm}^2\text{-Pt}$ 以上
 - ・ 触媒電気化学表面積(ECSA) $30 \text{ m}^2/\text{g-Pt}$ 以上
 - ・ 異なる構造の白金系ナノ粒子連結触媒が開発できることを実証
- ② 高温低湿度対応ポリフェニレン系細孔ファイリング電解質膜の研究開発
 - ・ 電解質膜として、ガラス転移温度 150°C 以上の材料で、プロトン伝導抵抗が 30%RH において $100 \text{ m}\Omega\text{cm}^2$ 以下
 - ・ 電解質膜として、 80°C のフエントン試験 2 時間後にプロトン伝導度 90%以上を維持
- ③ ナノ粒子連結触媒を用いた MEA の研究開発
 - ・ 開発したナノ粒子連結触媒および電解質膜を用い、MEA としての燃料電池運転から材料開発に情報をフィードバックできることを実証

○最終目標（参考）（2024年度末）

燃料電池実用化推進協議会(FCCJ)から提案されている 2040 年目標を目指すため、高電圧および高出力密度を実現するカソード触媒、さらにそれらを利用した MEA のコンセプトをメカニズムベースで構築し、そのための設計法を確立する。

数値目標は、カソード触媒の ORR 表面比活性 $3.5 \text{ mA/cm}^2\text{-Pt}$ 以上、ECSA $60 \text{ m}^2/\text{g-Pt}$ 以上とする。また、触媒層酸素拡散抵抗 2.7 s/m 以下、起動停止サイクル 6 万回後に ECSA 70%以上、ロードサイクル 40 万回後に ECSA 50%以上とする。2023 年度までに明確になった MEA 化したときの課題に対して、その対策の効果を実証し、触媒の実用上の課題を解決する。

上記は、NEDO ロードマップ 2017 における FCCJ 推定の 2040 年目標を達成するために、2024 年度末時点で達成すべき目標とした。特に、メカニズムをベースにしたコンセプト構築および設計法の確立は大切と考えている。

目標値としては、2019 年 6 月に発表された FCCJ の「2030/2040 年に向けたチャレンジ～課題と対応～」の数値を参考に、2024 年時点で達成する高い数値とした。2024 年度の最終目標の ORR 表面比活性と ECSA を達成すると、質量活性は 2100 A/g-Pt となり、FCCJ 2030 年の目標値の 600~1200 A/g-Pt よりも高い値である。Pt/C 触媒層では酸素拡散抵抗 10~20 s/m である。カーボン担体フリー触媒の MEA への展開例は少ないため、高出力化に向けたカーボンフリー触媒層の酸素輸送現象を理解し、設計指針を獲得する。触媒層酸素輸送抵抗は、FCCJ 2030/2040 年の目標値の 2.7 s/m を基に設定した。耐久性に関しては、FCCJ の最終目標を基に、起動停止 6 万回後に ECSA 50%以上、ロードサイクル 40 万回後に ECSA 50%以上を設定した。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
①高表面積カーボンフリー白金系ナノ粒子連結触媒の開発・評価	<ul style="list-style-type: none"> ・ORR 表面比活性 3 mA/cm²-Pt 以上 ・ECSA 30 m²/g-Pt 以上 ・異なる構造の白金系ナノ粒子連結触媒を開発 	<ul style="list-style-type: none"> ・超格子 Pt₃-Co₁ ナノ粒子連結触媒において、ORR 表面比活性 3 mA/cm²-Pt 以上を達成 ・Pt コアシェルナノ粒子連結触媒において、ECSA 30 m²/g-Pt 以上を達成 ・中空カプセル状やファイバー状の Pt 系ナノ粒子連結触媒を開発 	△	別々の材料で ORR 表面比活性と ECSA の中間目標は達成した。今後は、中間目標までに得られた知見に加えて、量子化学計算とデータ科学を駆使して、水由来の Pt 酸化被毒を抑制し、さらに高い触媒活性と高表面積を両立するナノ粒子連結触媒の開発を進める。
②高温低湿度対応ポリフェニレン系細孔フィリング電解質膜の研究開発	<ul style="list-style-type: none"> ・ガラス転移温度 150℃以上、30% RH でのプロトン伝導抵抗 100 mΩ cm² 以下 ・80℃のフェントン試験 2 時間後にプロトン伝導度 90%以上を維持 	<ul style="list-style-type: none"> ・開発したポリフェニレン系電解質膜は、ガラス転移温度 175℃、分解温度 300℃以上を達成 ・130℃、30%RH でのプロトン伝導抵抗は約 40 mΩ cm² であり、中間目標を超える性能 ・80℃、2 時間でのフェントン試験において、プロトン伝導性は 90%以上保持 	○	中間目標までに、高温低湿度対応・高耐久電解質膜を開発したため、今後は、得られた電解質材料や技術を MEA 開発に展開した取り組みを実施する。

③ ナノ粒子連結触媒を用いた MEA の研究開発	・開発した触媒および電解質膜を用い、MEA としての燃料電池運転から材料開発に情報をフィードバック	・開発した Pt _x -Co ₁ ナノ粒子連結触媒を用いたカーボンフリー触媒層の MEA を評価し、触媒層構造設計に関する知見を獲得	○	開発したナノ粒子連結触媒と高温低湿度対応電解質膜を利用した MEA を評価・解析し、さらに、燃料電池セル特性計算モデルも用いて、高電圧・高出力密度を実現する MEA の設計法を確立する。
--------------------------	---	--	---	---

3.2 研究開発の詳細

(1) 高表面積カーボンフリー白金系ナノ粒子連結触媒の開発・評価 (東京工業大学、再委託：株式会社リタケカンパニーリミテド、一般財団法人 高度情報科学技術研究機構)

本グループは、従来の触媒である Pt 系ナノ粒子担持カーボンとは異なる発想で、カーボンフリー Pt 系ナノ粒子連結触媒(図 1)の開発を行っている。この触媒は、Pt 系ナノ粒子が連結した数珠状ナノネットワークで形成される中空カプセル構造を持つ。金属ナノ粒子連結ネットワークは高い導電性を持つため、従来の触媒で用いる導電性カーボン担体を必要としない。本事業の開始前に、Pt-Fe 合金ナノ粒子連結触媒を開発し、高い ORR 表面比活性、カーボンフリーによる優れた起動停止耐久性、薄い触媒層といったナノ粒子連結触媒の有用性を実証してきた。しかしながら、Fe の溶出はフェントン反応で OH ラジカルを生成し、電解質の劣化を加速させる懸念があった。

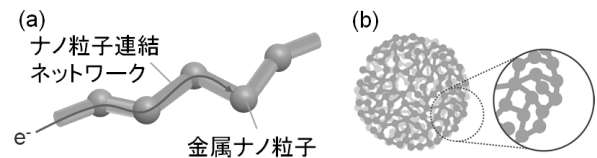


図 1. (a) ナノ粒子を連結した金属ネットワーク, (b) 中空カプセル状金属ナノ粒子連結触媒

本事業では、独自の触媒合成法を用いて、Fe 元素を含まないナノサイズのネットワークで構成される中空カプセル状の Pt_x-Co₁ ナノ粒子連結触媒を新たに開発し、触媒の金属組成や超格子化度の制御、電気化学前処理条件の検討を行い、中間目標(2022 年度 6 月末)の触媒表面比活性 3 mA/cm²-Pt 以上(市販 Pt/C の 10 倍以上、図 2)を達成した。この高活性は、評価解析プラットフォームにおいても再現している。開発した Pt_x-Co₁ ナノ粒子連結触媒は、ロードサイクル運転に対しても安定にネットワーク構造を維持できる。さらなる安定構造を探索するために、量子化学算を用いた Pt_x-Co₁ 合金の構造形成エネルギーを計算し、Pt₂-Co₁ レイヤー構造(Pt 2 層と Co 1 層が規則的に配列した構造)が最安定であることを明らかにした(図 3)。

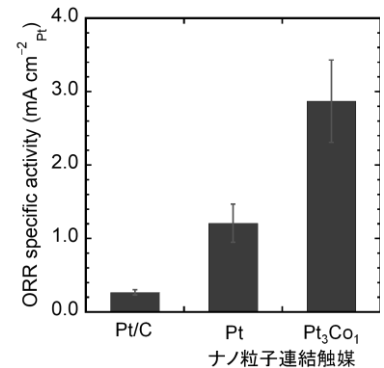


図 2. Pt 系ナノ粒子連結触媒の ORR 表面比活性

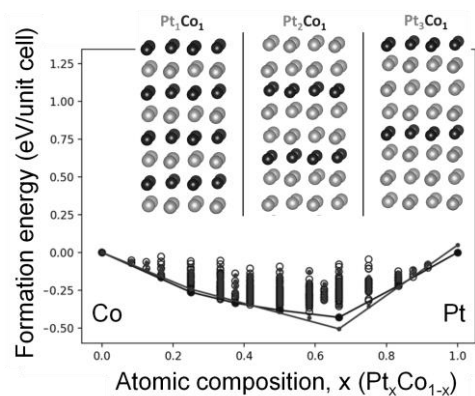


図 3. DFT 計算による Pt_x-Co_{1-x} バルクの構造形成エネルギー

ナノ粒子連結触媒の反応メカニズムを理解するために、純 Pt ナノ粒子連結触媒を開発した。Pt ナノ粒子連結触媒は、連結無し Pt ナノ粒子担持カーボンよりも高い ORR 表面比活性を有することを実験的に確認した(図 2)。高度情報科学技術研究機構と共同で量子化学計算を行い、Pt ナノ粒子連結構造は、連結無し Pt ナノ粒子と比較し、酸素・水共に吸着エネルギーが増加し、Pt 表面への吸着が弱まることを示した。粒子連結構造は、水による Pt 酸化被毒を抑制し、ORR 高活性化の重要因子である可能性が示唆された。

本事業は、Pt 系ナノ粒子連結触媒の高表面積化にも取り組んでいる。Pt_x-Co₁ ナノ粒子連結触媒は、合成時の高温処理で粒子の肥大化が生じ、10 nm 程度の Pt_x-Co₁ 連結ネットワークを形成する。高表面積化を図るために、リタケカンパニーリミテッドと共同で高温処理を用いないナノ粒子連結触媒の合成法を新たに確立した。開発した触媒は、非 Pt の細いナノ粒子連結ネットワーク上に Pt シェル層を形成したコアシェル型のナノ粒子連結触媒(図 4)であり、これまでの Pt_x-Co₁ ナノ粒子連結触媒よりも数倍高い ECSA を達成した。

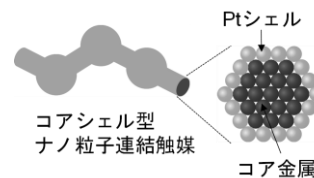


図 4. コアシェル型ナノ粒子連結触媒

また、現状の PEFC 高出力化の問題として、カソード触媒層での燃料である酸素の拡散抵抗が挙げられる。ナノ粒子連結触媒はテンプレートとなるシリカ粒子のサイズや形状を変更することで、任意にナノ粒子連結触媒の構造体のサイズや形状を制御できる(図 5)。この点は他グループのカーボンフリー触媒と比べて大きなアドバンテージである。本事業では、サイズの異なる中空カプセル状 Pt_x-Co₁ ナノ粒子連結触媒やファイバー状の Pt ナノ粒子連結触媒の開発に成功した。これらの触媒を MEA に用いることで、カーボンフリー触媒層構造と酸素輸送抵抗の関係性を解明でき、これまでに展開例の少ないカーボンフリー触媒の MEA に新たな知見を提供できる。

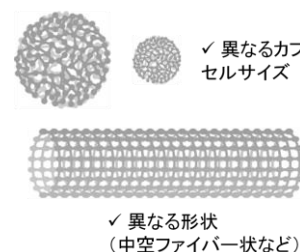


図 5. 構造体のサイズ・形状の異なるナノ粒子連結触媒

この様に、本グループの独自技術であるカーボンフリー白金系ナノ粒子連結触媒を用いて、高電圧、高出力密度運転が可能な触媒・触媒層を開発するために、原子・ナノ・マイクロレベルで材料機能を系統的に設計し、研究開発を進めている。

(2) 高温低湿度対応ポリフェニレン系細孔フィリング電解質膜の研究開発 (東京工業大学)

自由水の少ない高温低湿度でプロトン伝導性に優れた電解質膜を開発するためには、水分子の拡散を伴わないプロトンホッピングを積極的に利用する事が重要となる。本グループは量子化学計算の結果から、プロトン交換基が高密度に集積された膜を作ることが、ホッピングに基づいたプロトン伝導機構を起こすのに重要であることを見出している。電解質膜中のプロトン交換基密度(イオン交換容量)が高い材料が候補となるが、通常このような材料は含水時に膨潤し、膨潤時のプロトン交換基密度および機械的強度が低くなる。通常の電解質膜は、水への溶解や膨潤を抑えるために、イオン交換容量(IEC)は 1~2 meq/g である。

本事業は、高温低湿度下で高いプロトン伝導性を実現するために、高い IEC と水への低い膨潤度を両立するポリフェニレン系電解質膜(図 6)を開発した。開発した膜は高い IEC(4.5 meq/g)であるにもかかわらず、ポリフェニレン骨格のπ-πスタッキングにより、水中でも良好な機械的強度を示した。この膜は、現在広く用いられるパーフルオロスルホン酸ポリマー膜(ガラス転移温度 130℃程度)よりも高いガラス転移温度(175℃)を有し、熱的耐性にも優れている。120℃および 130℃、低湿度(30% RH)でのプロトン伝導抵抗は各々 67、39 mΩ cm² であり、中間目標を超える性能を得た。開発した膜は、高い IEC かつπ-πスタッキングによる膨潤抑

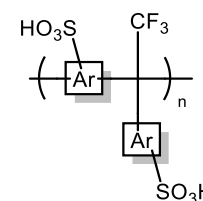


図 6. 開発した膜の分子構造 (Ar: 芳香環部位)

制を有するため、スルホン酸基密度が高く、水分子を介さないプロトンホッピングが起こり易く、高温低湿度でも低いプロトン伝導抵抗を実現したと考えられる。開発したポリフェニレン系電解質膜は主鎖に分解の起点となるエーテル等のヘテロ元素を含まないため、80℃、2 時間での化学劣化加速耐久性試験(フェントン試験)においてもプロトン伝導性を 90%以上保持し、優れた化学的耐久性(酸化ラジカル耐久性)を実証した。

さらに、膜厚 10 μm と薄く(従来膜は 25 μm 程度)、耐熱性のあるポリイミド多孔質基材(関心表明企業が提供)を用いた細孔ファイリング薄膜の開発に取り組んだ。細孔ファイリング膜は本グループが初めて提案したコンセプトであり、プロトン伝導ポリマーを多孔質基材細孔中に充填することで、膜膨潤を抑制し、薄膜化や機械的強度の高い膜を開発できる(図 7)。電解質膜を薄膜化することで水の拡散距離を縮め、カソードで生成した水をアノードでも使い、膜全体を湿潤するため、高温低湿度運転でもプロトン伝導抵抗を低減させることが可能である。本事業は、ポリイミド基材の表面を処理し適切な表面状態とすることで、電解質ポリマーを充填でき、均一な細孔ファイリング薄膜を作製することに成功した。開発した膜は 120℃以上の高温運転に対応できる有望な電解質膜である。

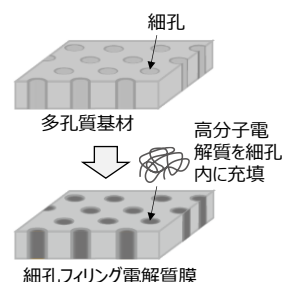


図 7. 細孔ファイリング電解質膜

この様に、本事業は、中間目標を全て達成した高温低湿度対応・高耐久電解質膜を開発した。中間評価以降は、上記で得られた電解質材料や技術を MEA 開発に展開した取り組みに注力する。

(3) ナノ粒子連結触媒を用いた膜電極接合体(MEA)の研究開発 (東京工業大学)

PEFC の高出力化にあたっては、電極中の酸素拡散に影響する触媒層構造について制御が必要となる。Pt 系ナノ粒子連結触媒を用いたカーボンフリー触媒層は、従来の触媒層内の体積を大きく占めるカーボン担体を用いないため、同一の白金担持量で従来の Pt/C を用いた触媒層厚みの 1/5 以下となる。その空孔率はアイオノマー体積を含めても 70%以上であり、物質移動に有利な極薄で高空効率の触媒層を構築できる。本事業は、開発した中空カプセル状の Pt_x-Co_1 ナノ粒子連結触媒の表面上に均一にアイオノマー層を形成するオートクレーブ処理を用いて、カーボンフリーカソード触媒層(図 8)を作製した。カーボンフリー触媒層を用いた MEA での発電性能を評価し、アイオノマーの薄層化によって酸素の拡散抵抗が低減する可能性を示した。この結果を触媒材料開発にフィードバックし、(1)の項目で記したように、カプセルサイズやファイバー状のナノ粒子連結触媒の開発を行い、カーボンフリー触媒層のさらなる構造制御に着手している。

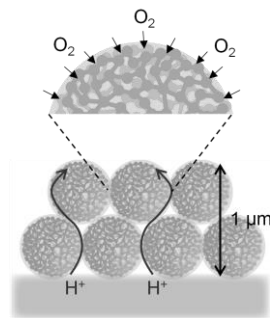


図 8. ナノ粒子連結触媒を用いたカーボンフリー触媒層

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 高表面積カーボンフリー白金合金ナノ粒子連結触媒の開発・評価

本事業は中間評価までに高い ORR 表面比活性を示す Pt_3-Co_1 ナノ粒子連結触媒を実現し、高表面積化が可能なコアシェル型ナノ粒子連結触媒の作製法を確立した。高い活性を示す触媒構造を理解するために、評価解析プラットフォームにおいて、開発したナノ粒子連結触媒の原子レベルの構造解析を進めている。さらに、白金系金属触媒の高電位における水による Pt 酸化被毒を抑制するために、Pt/アイオノマー界面の制御・解析にも取り組んでいる。これらの知見を組み合わせることで、高い表面比活性と表面積を両立するナノ粒子連結触媒を開発できる。

一方で、水由来の Pt 酸化被毒抑制とさらなる高活性触媒の実現に向けて、Pt 系ナノ粒子連結触媒の構造

最適化を進める場合、構造パラメータは多数存在し、その組み合わせは膨大であるため、実験だけの探索では限界がある。本事業では、現在、量子化学計算を用いて、触媒構造と電圧が表面の電子状態や酸素種・水の吸着エネルギーに与える影響を調査している。本研究の特徴であるナノ粒子連結構造といったナノスケールの構造にも着目して研究を進めている。得られた実験・計算データはマテリアルズ・インフォマティクス技術の機械学習を利用し、触媒材料特性の予測および理論計算結果・実験結果と相関させた候補材料のスクリーニングを通して、最適な触媒の元素組成・構造を迅速に探索する基盤を構築する。

この様に、実験、量子化学計算、データ科学を用いることで、Pt 系ナノ粒子連結触媒における ORR メカニズムを理解し、高電圧および高出力密度を実現するカソード触媒の設計法を確立する。

(2) ナノ粒子連結触媒を用いた MEA の研究開発

Pt 系ナノ粒子連結触媒を用いた極薄・高孔隙率カーボンフリー触媒層の優位性と性能向上を実証するために、MEA での燃料電池性能の評価・解析および耐久性評価を行うとともに、高電圧および高出力密度運転を目指した検討を行う。高電圧作動については、水由来の酸素種被毒が少ない Pt 系ナノ粒子連結触媒を用いて、80~110℃での低湿度運転により高電圧作動を検証する。100℃以上の高温運転では、本グループが開発した高温低湿度対応極薄電解質膜を利用することで、膜面積あたりのプロトン伝導抵抗を低減し、水の移動を促進し、膜オーム損を抑制できる。触媒構造が水由来の酸素種被覆率や高電圧作動へ与える影響を明らかにし、得られた結果を触媒開発へフィードバックする。高出力密度作動では、反応に加えて電極内の酸素等の拡散、アイオノマーのプロトン伝導抵抗について解析し、燃料電池性能への影響が大きい電圧降下要因を明らかにする。カプセルサイズや形状の異なる Pt 系ナノ粒子連結触媒の使用やアイオノマー構造の制御により、カーボンフリー触媒層構造と酸素拡散抵抗の関係性を理解し、酸素拡散抵抗の低減を図る。

さらに、MEA の発電性能を短時間で効率的に向上させるために、実験と並行して燃料電池セル特性計算モデルに基づく MEA・触媒層の設計基盤の構築を行う。本グループは、燃料電池セル特性計算モデルとして、反応と構造、物性を別々に格納した計算モデルを構築済みである。構造とポリマー物性、触媒反応性を切り分けてモデル化しているため、本事業で開発した触媒・膜それぞれの影響評価や触媒層構造の影響評価、高温低湿度環境でのセル特性計算への展開も容易である。

この様に、MEA の発電性能および電気化学解析により得られる反応・プロトン伝導・拡散由来の過電圧の情報と、燃料電池セル特性計算モデルにもとづく計算結果をあわせて、ナノ粒子連結触媒・MEA の研究開発へフィードバックを行い、高電圧・高出力密度化に必要な設計指針を確立する。

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

本事業で開発したカーボンフリー白金系ナノ粒子連結触媒や高温低湿度対応電解質膜の実用化に向けた課題を抽出するために、MEA 試験の評価法や結果について、評価解析プラットフォームや産業界と意見交換を行い、実運転に向けた知見やアドバイスをいただく予定である。ナノ粒子連結触媒を用いた触媒層や高温低湿度対応膜の優位性と性能向上を企業でも確認するために、触媒、膜、それぞれにおいて企業とサンプル供与体制を構築中である。企業での評価を通して、MEA 化したときの課題を明確化し、その課題への対策を立案、効果の実証を行い、開発した触媒・膜の実用化に向けた課題を解決していく。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2020-11-12	膜シンポジウム 2020	高い耐久性とガス透過性を有する全芳香族プロトン伝導高分子の作製と膜物性評価	松多楓、宮西将史、山口猛央
2	2021-03-19	日本化学会第 101 春季大会	第一原理計算を用いたカーボンフリー Pt ナノ粒子連結触媒の酸素還元活性向上要因の解明	蒲田瑞希、黒木秀記、菅原勇貴、牛山浩、山口猛央
3	2021-03-22	化学工学会第 86 年会	DFT 計算によるカーボンフリー Pt ナノ粒子連結触媒の酸素還元活性向上要因の解明	蒲田瑞希、黒木秀記、菅原勇貴、牛山浩、山口猛央
4	2021-03-22	化学工学会第 86 年会	高電圧・高出力密度運転に向けた膜電極接合体内部の水に着目した PEFC の特性評価	大平啓志郎、黒木秀記、大柴雄平、山口猛央
5	2021-03-22	化学工学会第 86 年会	Structural effects on oxygen reduction activity and durability of connected Pt-Co catalysts	Liao Qiancheng、黒木秀記、田巻孝敬、山口猛央
6	2021-03-22	化学工学会第 86 年会	高いガス透過性を有する高耐久全芳香族プロトン伝導高分子の開発	松多楓、宮西将史、山口猛央
7	2021-5-27, 28	FCDIC 第 28 回燃料電池シンポジウム	Carbon-free connected Pt-Co catalysts with chemically ordered structures towards enhanced oxygen reduction performances for PEFCs	Liao Qiancheng、黒木秀記、田巻孝敬、山口猛央
8	2021-09-07	第 70 回高分子討論会	ねじれ構造の導入が全芳香族電解質高分子の電解質膜特性に与える効果	宮西将史、松多楓、山口猛央
9	2021-09-07	第 128 回触媒討論会	水素社会と燃料電池および水電解材料の展開	山口猛央
10	2021-09-30	高分子同友会第 50 回総合講演会	水素社会の必要性と燃料電池および水電解のための高分子電解質膜の展開	山口猛央
11	2021-11-18	公益社団法人新化学技術推進協会エネルギー・資源技術部会	水素社会に向けた燃料電池および水電解の新展開	山口猛央

		エネルギー分科会 勉強会		
12	2021-11-30	第 62 回電池討論会	Development of carbon-free connected Pt-Co catalysts towards enhanced ORR performances for PEFCs	Liao Qiancheng、黒木秀記、田巻孝敬、山口猛央
13	2021-11-30	第 62 回電池討論会	DFT 計算を用いたカーボンフリーPt ナノ粒子連結触媒の ORR 活性向上要因の解明	黒木秀記、蒲田瑞希、菅原勇貴、井村悠、牛山浩、山口猛央
14	2021-12-20	日本海水学会電気透析および膜技術研究会 第 50 回荷電膜コロキウム	水素社会のための水電解および燃料電池用電解質膜の設計・開発	山口猛央
15	2022-01-20	高分子学会 2021 東海シンポジウム	固体高分子形燃料電池およびアニオン交換膜型水電解への高分子電解質膜材料	山口猛央
16	2021-09-29	Physical Chemistry Chemical Physics	Suitable acid groups and density in electrolytes to facilitate proton conduction	Takaya Ogawa, Hidenori Ohashi, Gopinathan M. Anilkumar, Takanori Tamaki, Takeo Yamaguchi
17	2022-01-25	燃料電池(燃料電池開発情報センター)	機能材料システム設計に基づく燃料電池・水電解研究 -東京工業大学 山口・田巻研究室-	田巻 孝敬、山口 猛央
18	2022-03-23	International Journal of Hydrogen Energy	Issues of Using Inorganic Proton Conductor in the Electrodes of Polymer Electrolyte Fuel Cells	Takanori Tamaki, Hailin Wang, Takeo Yamaguchi
19	2022-03-28	Surface Science	Layered Pt-Co alloys: Bulk, surface and nanoparticle analysis, based on DFT	Maxim Shishkin, Takeo Yamaguchi
20	2022-06-16	第 11 回 JACI/GSC シンポジウム	Carbon-free connected platinum-cobalt catalysts with enhanced oxygen reduction performances for PEFCs	Liao Qiancheng、黒木秀記、田巻孝敬、山口猛央
21	2022-06-16	第 11 回 JACI/GSC シンポジウム	再生可能エネルギーからの水素製造と利用 水電解および燃料電池材料およびシステムの設計・開発	山口猛央

22	2022-09-16	化学工学会第 53 回 秋季大会	Core-shell type connected Pt-based catalysts with advanced oxygen-reduction performances	Chitra Sudheer Aparna, Gopinathan M. Anilkumar、黒木秀記、山口猛央
23	2022-09-16	化学工学会第 53 回 秋季大会	燃料電池 Pt 触媒の水による酸化被毒抑制に向けた Pt/アイオノマー界面の制御	北川智大、黒木秀記、菅原勇貴、山口猛央
24	2022-09-16	化学工学会第 53 回 秋季大会	固体高分子形燃料電池用ファイバー状金属ナノ粒子連結触媒の開発	秋本実乃里、黒木秀記、山口猛央

課題番号（管理番号）： IP03

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発/広温湿度作動 PEFC を実現する先端的材料コンセプトの創出」

実施者： 国立大学法人山梨大学（株式会社東レリサーチセンター（共同実施））、日本化学産業株式会社

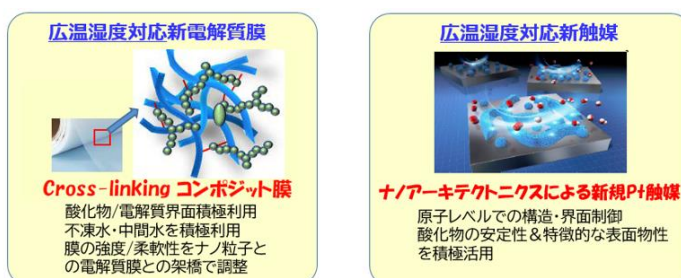
期間： 2020年7月～2025年3月（予定）

1. 研究開発概要

2030年以降の更なる燃料電池システムの低コスト、高性能、高耐久に資する水素貯蔵関連技術やその他多様な水素関連技術の高度化に資する技術開発し、技術成立性を提示する。また、燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業の研究開発項目 I の性能やコスト目標を凌駕する燃料電池の実現に資する革新的な要素技術の設計指針を確立するとともに、実用化に向けた課題を明らかにする。その中で、燃料電池の 2040 年以降に目指すべき目標性能を達成するための担体・触媒・電解質に関する過電圧低減と耐久性向上を達成させ、高効率・高出力・高耐久を両立した新たな電極・電解質材料を産業界と共に実用化につなげる。本プロジェクトにおいては、以下の 2 テーマを実施する。

A.「広温湿度作動 PEFC を実現する高分子電解質膜技術のコンセプト創出」

B.「広温湿度作動 PEFC を実現する触媒技術のコンセプト創出」



2. 研究開発目標と目標設定の考え方

○中間目標（2022年6月）

・100～120℃で作動する PEFC に寄与する主要メカニズム及び劣化のメカニズムを検討する。新規高分子電解質膜を用いた MEA にて、目標温度領域における高分子電解質膜の抵抗過電圧を 80 mV (@1 A cm⁻²)以下に、開回路電圧(OCV)が 0.98 V 以上になることを検証する。

・新規カソード触媒にて抵抗過電圧が 80 mV(@1 A cm⁻²)以下になると共に、100～120℃における負荷変動サイクルが標準触媒(MIRAI 仕様)の 6 倍の耐久性を MEA で検証する。新規アノード触媒にて広温湿度範囲における抵抗過電圧が 80 mV(@1 A cm⁻²)以下にすると共に、広温湿度範囲にて標準触媒(MIRAI 仕様)の 10 倍の水素枯渇に対する耐久性を MEA にて検証する。

○最終目標（2024年度）

・最高温度 120℃ + αで作動する PEFC に寄与する主要メカニズム及び劣化のメカニズムの全体像を把握し、新規高分子電解質膜を用いた MEA にて、目標温度領域における高分子電解質膜の抵抗過電圧を 60 mV (@1 A cm⁻²)以下に、開回路電圧(OCV)が 1.06 V 以上になることを検証する。

・新規カソード触媒にて抵抗過電圧が 60 mV(@1 A cm⁻²)以下になると共に、最高温度 120℃ + αにおける負荷変動サイクルが標準触媒(MIRAI 仕様)の 8 倍の耐久性を MEA で検証する。新規アノード触媒にて最高温度 120℃ + αにおける抵抗過電圧が 60mV(@1 A cm⁻²)以下にすると共に、最高温度 120℃ + αにて標準触媒(MIRAI 仕様)の 10 倍の水素枯渇に対する耐久性を MEA にて検証する。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

中間目標		成果	達成度	今後の課題
広温湿度作動 PEFC を実現する高分子電解質膜技術のコンセプト創出	広温湿度範囲で作動する PEFC に寄与する主要メカニズム及び劣化のメカニズムを検討する。新規高分子電解質膜を用いた MEA にて、目標温度領域における高分子電解質膜の抵抗過電圧を 80 mV (@1 A cm ⁻²)以下に、開回路電圧(OCV)が 0.98 V 以上になることを検証する。	120 °C 30 % RH から 80%RH における市販触媒でのセル性能評価と触媒の耐久試験を実施し、性能低下要因とそのメカニズムを明らかにした。新規電解質膜にて目標温度領域における高分子電解質膜の抵抗過電圧を 80 mV (@1 A cm ⁻²)以下に、開回路電圧(OCV)が 0.98 V 以上になることを明らかにした。	○	120℃ + αでの性能評価及び劣化メカニズム解明を解明する。必要に応じ、産官学での議論に参画し、ベンチマークデータの取得及び評価手法確立のための基礎データ取得も進める。

中間目標		成果	達成度	今後の課題
広温湿度作動 PEFC を実現する触媒技術のコンセプト創出	新規カソード触媒にて抵抗過電圧が 80 mV(@1 A cm ⁻²)以下になると共に、100～120℃における負荷変動サイクルが標準触媒(MIRAI 仕様)の 6 倍の耐久性を MEA で検証する。新規アノード触媒にて 100～120℃における抵抗過電圧が 80 mV(@1 A cm ⁻²)以下にすると共	新規カソード触媒にて抵抗過電圧が 80 mV(@1 A cm ⁻²)以下になると共に、100～120℃における負荷変動サイクルが標準市販触媒の 10 倍以上の耐久性を MEA で検証した。新規アノード触媒にて 100～120℃における抵抗過電圧が 80 mV(@1 A cm ⁻²)以下になることを確認すると共	○	120℃ + αでの性能評価及び劣化メカニズム解明を解明する。必要に応じ、産官学での議論に参画し、ベンチマークデータの取得及び評価手法確立のための基礎データ取得も進める。

	に、100～120℃にて標準触媒(MIRAI仕様)の10倍の水素枯渇に対する耐久性をMEAにて検証する。	に、120℃にて高電位での耐久性をMEAにて検証した。さらに、スカベンジング効果の付与にも成功し、セルの耐久性を高温にて大幅に向上させることに成功した。		
--	--	--	--	--

3.2 研究開発の詳細

(1)「広温湿度作動PEFCを実現する高分子電解質膜技術のコンセプト創出」(山梨大学、日本化学産業、東レリサーチセンター(共同実施))

燃料電池システムのCoolant出口付近での温度が120℃程度になる場合、MEA内では約140℃程度になると想定される。液水が少なく大気圧に限りなく近い背圧下にて、燃料電池を作動させるには新たなプロトン伝導機構を有する電解質膜の創製が必要である。本年度は、水酸基・吸着水を200℃近傍にて安定に保持し表面プロトン伝導性を示す酸化物ナノ粒子に注目し、市販電解質とのコンポジット膜の合成と物性評価する環境整備及びそれらを駆使して、無機/高分子コンポジット電解質膜の設計指針の見通しを得た。

酸化物ナノ粒子にはXOを選択した。合成したXOの結晶子径は14 nm (XRDによる解析)であり、互いに融着結合した連珠構造を形成することを確認した(図1(a))。XOとナフィオン分散液(DE2020)を混合した分散液をバーコータにて成膜(5 cm×5 cm)した。得られた膜は柔軟性を維持しており、その断面をSEMにて観察したところ酸化物ナノ粒子は概ね高分散していることを確認した(図1(b,c))。そのプロトン伝導度はNRE212の1.3倍(@80℃ 80%RH、図2(a))、100℃でも高いプロトン伝導度を保持した。さらに無機/高分子コンポジット電解質膜の120℃ 30%RHでの平均熱膨張率(vs.室温)は2.5%(@120℃)であり、NRE212の熱膨張率(3.8%,@120℃)より小さいことを見出した(図2(b,c))。高温作動時にガスケットとの接面にて(熱膨張等により)破膜を生じやすいことが高温作動での課題の一つであることも明らかにした。そして、無機/高分子コンポジット電解質膜にてプロトン伝導性の向上と共に、破膜に対する改善を見通すことができた。今後、機械強度等の検討や単セルでの性能評価を実施する。

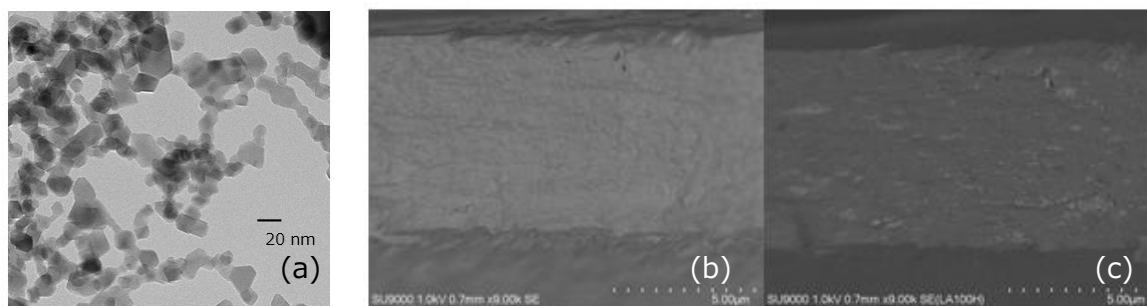


図 1 XO ナノ粒子の TEM 像(a), XO を分散した無機/高分子コンポジット膜の二次電子像(b)及び反射電子像(c)

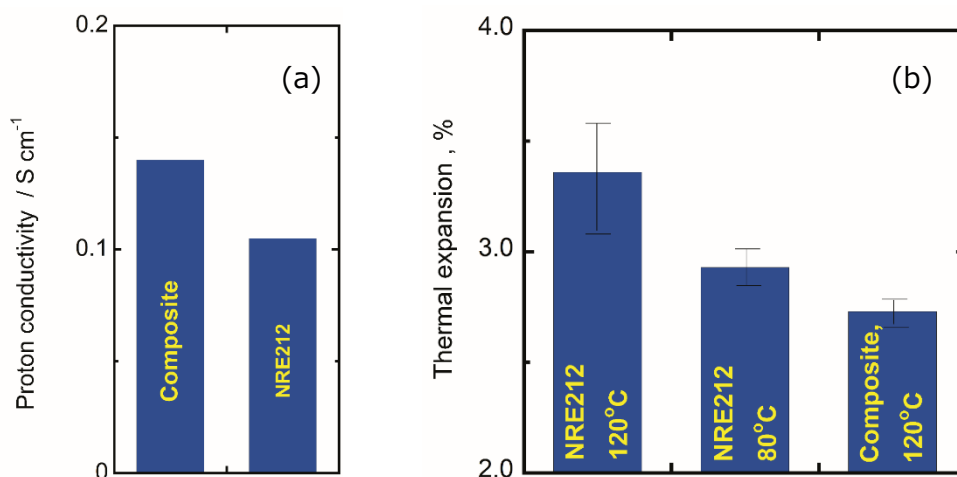


図 2 無機/高分子コンポジット膜及び NRE212 のプロトン伝導度(@80°C, 80%RH (a)) 及び熱膨張率(b)

(2) 「広温湿度作動 PEFC を実現する触媒技術のコンセプト創出」(山梨大学、日本化学産業、東レリサーチセンター(共同実施))

100°Cを越える温度にて PEFC を作動させる場合、カーボンの劣化や合金触媒の脱合金が加速的に生じてセル性能の低下を引き起こす。そのため高い耐久性と高い酸素還元活性を両立させる電極触媒の開発が重要となる。本年度は耐久性のある Nb-SnO₂ を担体にして Pt の担持状態を改良し、そのセル性能及び負荷変動耐久性を評価(120°C, 0.60 V ⇌ 1.0 V, 6 sec.)した。併せて、ベンチマークとして市販 Pt/CB(TEC10E50E)を用いたセルの高温での性能評価も実施した。120°C, 80%RH での単セル性能は Pt/Nb-SnO₂ をカソードに用いることで市販 Pt/CB の場合より(高電位での質量活性及び低電位での電流密度とも)向上することを確認した(図 3 (a,b))。

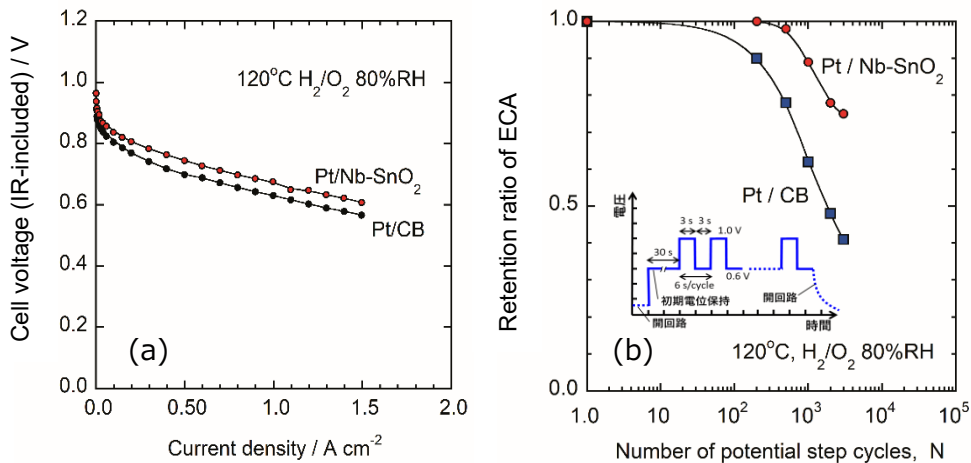


図 3 Pt/Nb-SnO₂を用いた単セルでの 120°Cでの発電試験(a)及び負荷変動耐久性(b)

活性と耐久性の更なる向上をめざし、ナノアーキテククスを駆使して新たな電極触媒の開発を行った。酸化物として MO に注目した。ドーパントを入れつつ 14-20 nm (XRD による解析)の結晶子と連珠構造を有する MO ナノ粒子を合成し、Pt ナノロッドを担持した (Pt/MO : 図 4(a))。Pt/MO は従来の Pt(nanoparticle)/Nb-SnO₂ より 2 倍以上高い電気伝導度(@室温)を示した(図 4(b))。Pt/MO をカソードに用いた単セルにて発電にも成功し、特に高温領域で市販 Pt/CB を用いた場合より高性能かつ、負荷変動耐久性(120°C, 0.60 V⇔1.0 V, 6 sec.)も Pt/Nb-SnO₂ よりさらに向上することを確認した。また、アノードでのスカベンジング効果も見出し、スカベンジャーとしての利用も可能であることを見出した。

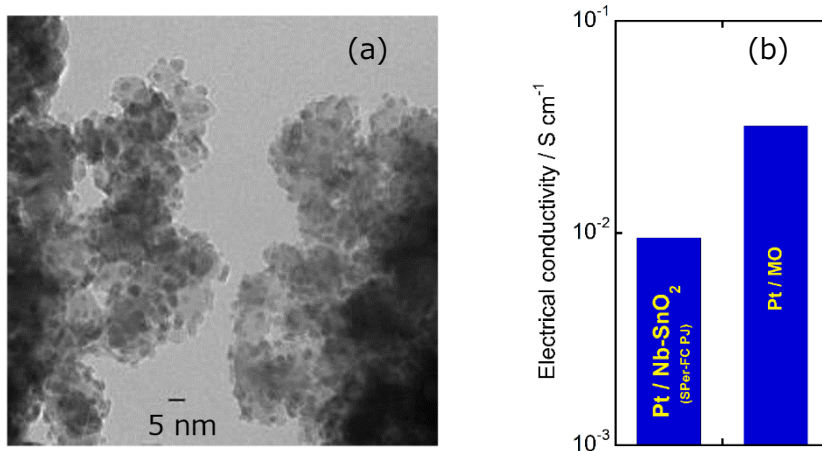


図 4 Pt/MO の TEM 像(a)と電気伝導度(b)

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 「広温湿度作動 PEFC を実現する高分子電解質膜技術のコンセプト創出」

無機ナノ粒子の組成・表面・微細構造を精密制御すると共に、フッ素系電解質との混合方法とダイコータ等による成膜方法を最適化することで最高温度 $120^{\circ}C + \alpha$ にて運転を可能にする高分子電解質コンポジット膜の創製を検討する。

(2) 「広温湿度作動 PEFC を実現する触媒技術のコンセプト創出」

セラミック担体の組成・表面・微細構造を精密制御すると共に、高度に構造規制された Pt・合金ナノ粒子・ナノロッドを担持しつつ、担体と触媒の固々界面を原子レベルで制御することで、広範囲の温度・湿度範囲にて耐久性と高活性を両立する新規セラミック担体・触媒を開発する。

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) 「広温湿度作動 PEFC を実現する高分子電解質膜技術のコンセプト創出」

無機ナノ粒子及び電解質膜の量合成を想定する作製工程における課題の抽出と対策を委託先メーカーと共に講じる。120℃ + αの運転温度を念頭に置いた新規耐久プロトコルの策定と性能評価手法の確立のため、産官学での議論に参画しつつ必要なデータ取得に協力する。関心表明企業による材料評価及び意見交換を継続的かつ積極的に行い、産業界の意向を材料設計の早期から取り込み、成果の実用化・事業家につなげる。

(2) 「広温湿度作動 PEFC を実現する触媒技術のコンセプト創出」

セラミックナノ粒子担体及びそのPt担持触媒の量合成を想定する委託先及び関心表明企業との積極的な議論を重ね、作製工程における課題の抽出と対策を講じる。120℃ + αの運転温度を念頭に置いた新規耐久プロトコルの策定と性能評価手法の確立のため、産官学での議論に参画しつつ必要なデータ取得に協力する。策定された評価手法・プロトコルにて触媒の活性と耐久性を評価しつつ、産業界の意向を材料設計の早期から取り込み、成果の実用化・事業家につなげる。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2021.12.23	PCT/JP2021/047977	担持金属触媒	国立大学法人山梨大学 日本化学産業株式会社
2	2021.1.4	特願 2021 000222	担持金属触媒	国立大学法人山梨大学 日本化学産業株式会社

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	Feb-21	日本材料科学会誌	耐久性と活性を両立させた固体高分子形燃料電池用 Pt セラミック触媒	柿沼克良、内田誠、飯山明裕
2	May-21	ACS Catal.,11(No.5)	Temperature Dependence of Oxygen Reduction Activity at Pt/Nb-Doped SnO ₂ Catalysts with Varied Pt Loading	G. Shi, T. Tano, D. A. Tryk, A. Iiyama, M. Uchida, K. Kakinuma

3	May-21	J.Electrochem. Soc.168(No.5)	Evaluation of Ionomer Distribution on Electrocatalysts for Polymer Electrolyte Fuel Cells by Use of a Low Acceleration Voltage Scanning Electron Microscope	K. Kakinuma, M. Kawamoto, K. Tamoto, M. Yamaguchi, S. Honmura, A. Iiyama, M. Uchida
4	Sep-21	Electrochim.Acta, 390	Enhanced Oxygen Reduction Electrocatalysis on PtCoSn Alloy Nanocatalyst Mediated by Ta-doped SnO ₂ Support for Polymer Electrolyte Fuel Cells	G. Shi, T. Hashimoto, D. A. Tryk, T. Tano, A. Iiyama, M. Uchida, K. Kakinuma
5	Jan-22	J. Electrochemical Soc, 2022 169	The Possibility of Intermediate-Temperature (120 °C)-Operated Polymer Electrolyte Fuel Cells using Perfluorosulfonic Acid Polymer Membranes	K. Kakinuma, H. Taniguchi, T. Asakawa, T. Miyao, M. Uchida, Y. Aoki, T. Akiyama, A. Masuda, N. Sato, A. Iiyama
6	Feb-22	J. Catal., 407	Pt nanorods oriented on Gd-doped ceria polyhedra enable superior oxygen reduction catalysis for fuel cells	G. Shi, T. Tano, D.A. Tryk, A. Iiyama, M. Uchida, Y. Kuwauchi, A.Masuda, K. Kakinuma
7	Oct-20	ECS PRiME2020	Activation of the Oxygen Reduction Reaction at Structurally Regulated Pt/Nb-SnO ₂ Catalysts	G. Shi, D. A. Tryk, A. Iiyama, K. Kakinuma
8	Oct-20	ECS PRiME2020	Highly Durable and Active Electrocatalysts using SnO ₂ Supports for Polymer Electrolyte Fuel Cells	K. Kakinuma, M. Uchida, A. Iiyama,
9	Dec-20	Charels Hatchett Award Hydrogen Webinar	Highly durable and active cathode catalysts for polymer electrolyte fuel cells using Nb-containing oxide supports	K. Kakinuma, C. Hatchett, A. H. Webinar

10	Oct-21	ECS,240th ECS Meeting	Highly Durable and Active Pt nanorod Electrocatalysts using SnO ₂ Supports for Polymer Electrolyte Fuel Cells	K. Kakinuma, G. Shi, T. Tano, H. Taniguchi, T. Asakawa, M. Uchida, A. Iiyama
11	Nov-21	Niobium Technology for Clean Energy	Highly Durable and Active Cathode Catalysts using Niobium for Polymer Electrolyte Fuel Cells	K.Kakinuma
12	Oct-20	電気化学会・関東支部主催セミナー	燃料電池とは？－基礎から最新研究動向まで	柿沼克良
13	Dec-20	電気化学会 燃料電池研究会 第 149 回セミナー	PEFC 用 Pt 担持セラミックス触媒の開発 ～耐久・活性の両立と高温作動への展開～	柿沼克良
14	Mar-21	表面技術協会第 143 回講演大会	活性と耐久性を両立させた PEFC 用 Pt 担持セラミック触媒の開発	柿沼克良
15	Mar-21	FCCJ SWG	固体高分子形燃料電池の研究開発動向に関する調査分析報告-触媒関連-	柿沼克良
16	Apr-21	技術情報協会	セラミック担体を用いた PEFC 用高耐久・高活性触媒の開発	柿沼克良
17	May-21	電気化学会・関東支部セミナー	燃料電池とは？－基礎から最新研究動向まで－	柿沼克良
18	May-21	FCDIC・第 28 回燃料電池シンポジウム	作動温度の高温化に向けた Pt 担持セラミック触媒の活性 と耐久性の向上	柿沼克良、太農哲朗、谷口均志、史国玉、山口美保、浅川孝之、鹿野優人、佐藤敬氏、内田誠、飯山明裕
19	Feb-22	2021 年度 モノづくり日本会議	高温化対応 PEFC(固体高分子形燃料電池)用革新的シナジー触媒の開発	柿沼克良
20	Mar-22	日本セラミックス協会 2022 年年会	水素社会実現にむけた燃料電池・水電解触媒の開発	柿沼克良
21	Mar-22	電気化学会第 89 回大会	Pt/Nb-SnO ₂ 系電極触媒における Pt の形状等の制御と性能との相関	柿沼克良、史国玉、太農哲朗、荒田知里、雨宮功、渡辺純貴、松本匡史、今井英人、内田 誠、飯山 明裕

22	Oct-20	日刊自動車新聞	環境対応、交通安全で最新成果披露	柿沼克良
23	Jun-21	朝日新聞	国産燃料電池初搭載	飯山明裕
24	Nov-21	読売新聞	水素燃料電池展望語る	飯山明裕
25	Dec-21	山日新聞	山梨大燃料電池寿命5倍へ	飯山明裕、 柿沼克良
26	Aug-20	イノベーションジャパン 2020	セラミック担体・触媒に関する展示	柿沼克良

課題番号（管理番号）： IP04

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／高性能・高耐久・低コスト MEA に向けた先端要素技術の研究開発」

実施者： 国立大学法人東海国立大学機構名古屋大学（株式会社名城ナノカーボン）

期間： 2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

2030年以降の燃料電池自動車（FCV）ならびに大型・商用モビリティ（HDV）の普及拡大に向けては、Pt 使用量の大幅な削減もしくは貴金属フリー化させた上で酸素還元反応（ORR）触媒の活性と耐久性の飛躍的な向上が鍵となる。また、触媒層においても、将来の高電流密度化、高温作動化、超長期の耐久性確保、という観点で従来の材料系とは異なる担体・触媒層のコンセプトが必要となる。我々は、カーボン・金属コアシェル触媒ならびにカーボンナノチューブ利用電極の2つのテーマと統合検証を通して、2040年のNEDO性能目標に到達するためのシーズ材料および構造を提案する。カーボン・金属コアシェル触媒では、非貴金属もしくは極少量Ptベースの金属コアをグラフェンシェルで覆い、金属コアとグラフェンシェルとの電子的相互作用により、高活性な触媒活性点を創出するとともに、グラフェンシェルにより金属イオンの溶出を抑制し、活性と耐久性の大幅な向上を狙う。その合成には、オリジナルな手法であるソリューションプラズマ法（SP法）を用いる。カーボンナノチューブ利用電極では、世界トップレベルの高純度・高結晶性の単層カーボンナノチューブ（SWCNT）を触媒担体として用いることにより、高温・高電位での耐酸化性の向上、ナノ繊維により形成される高多孔性に基づく触媒層での高酸素透過性を確保し、超高電流密度化を狙う。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

2.1 研究開発目標

項目	中間目標	最終目標
カーボン・金属コアシェル触媒の研究開発	・ORR 開始電位： 0.93Vvs.SHE 以上（貴金属フリー） or 質量活性 600A/g-Pt 以上@0.9V	・ORR 質量活性：1600A/g-Pt@0.9V 以上で、電位サイクル（0.6–1.0V vs. RHE、ハーフセル）試験方法での質量活性低下が20%となるサイクル数10,000回以上 ・ORR 活性支配因子および耐久性発現メカニズム解明 ・従来のPt系触媒に対する新規優位点の明確化
	・ORR 活性の発現メカニズムの解明	
カーボンナノチューブ利用電極の研究開発	・高純度・高結晶性 SWCNT へのカーボン・金属コアシェル触媒の担持プロセスの確立	・貴金属フリーもしくはPt担持量：0.03 mg-Pt/cm ² 以下で、I-V 性能 0.82V 以上@0.2A/cm ² 、0.67V で電流密度 3.7A/cm ² 以上の目処付け ・電位サイクル（起動停止、負荷応答）試験方法にて、効率点および出力点電圧での電流密度が50%となるサイクル数で30,000回以上の目処付け ・原理原則に基づく2040年NEDO目標への道筋提示
	・目標 I-V 性能および耐久性性能*の達成	

*I-V 性能：貴金属フリーもしくはPt担持量：0.06 mg-Pt/cm²（カソード）以下で、I-V 性能 0.80V 以上@0.2A/cm²、0.67V で電流密度 1.0A/cm² 以上、耐久性：電位サイクル（起動停止、負荷応答）試験方法にて、効率点&出力点電圧での電流密度が50%となるサイクル数で10,000回以上

2.2 目標設定の考え方

産業界ニーズである Pt 使用量の大幅な削減のための触媒活性向上、I-V 性能向上に加えて、将来の HDV や 2040 年以降に想定される高温、高電位、超長期における耐久性の大幅な向上を狙うための耐久性を含めた開発コンセプト並びに目標を設定した。また、カーボン・金属コアシェル触媒については、世界で研究開発が活発化するなど提案時から競争環境が大きく変化しており、独自の SP 法プロセスの特徴を引き出しながら、世界的にもトップレベルの活性と耐久性を RDE のみならず、SWCNT 触媒層を用いた電解質膜-電極接合体 (MEA) での達成を目指す。また、カソード触媒のみならずアノード触媒などの新規優位点 (例：クロスオーバー酸素による過酸化水素生成抑制、等) を明確化する。目標設定については、関心表明企業からもアドバイスを頂いた上で設定している。また、最終目標の達成だけでなく、原理原則を明らかにしつつ、これらの要素技術の将来的なポテンシャルを明確にし、2040 年 NEDO 目標に至る道筋を示すことも目標として設定している。なお、触媒ならびに MEA の目標値への到達度の評価は NEDO PEFC セル評価解析プロトコル 2022 年 3 月版に準拠して進める。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
カーボン・金属コアシェル触媒の研究開発	ORR 開始電位：0.93V vs. SHE 以上 (金属コアが貴金属フリーの場合) or 質量活性 600A/g-Pt 以上 @0.9V	SP 法により合成したカーボン・Pt 合金コアシェル触媒でカーボンシェル構造の形成確認、平均コア粒径 6.1nm で市販 Pt/C (平均 Pt 粒径：2.3nm) に対し 2.5 倍の質量活性 755A/g-Pt@0.9V を確認、中間目標を達成。	○	粗大粒子の生成抑制により平均粒径 2～3nm への小粒径化。コアシェル構造の最適化で活性と電位サイクル耐久性の各目標の達成。
	ORR 活性の発現メカニズムの解明	カーボン・金属コアシェル触媒のシンプルなクラスターモデルを用いた第一原理計算により、ORR 活性発現メカニズムの一端を解明。Pt 以上に ORR 活性を向上させうることを理論面から示唆。	○	構造解析・電気化学的な解析とも統合し、活性・耐久性発現機構を解明するとともに最適なコアシェル構造に対する指針導出。
カーボンナノチューブ利用電極の研究開発	高純度・高結晶性 SWCNT へのカーボン・金属コアシェル触媒の担持プロセスの確立	SWCNT 共存下での SP 法により、カーボン・金属コアシェル触媒の担持に成功、コアシェル触媒@SWCNT インク分散液のフィルタリング法による SWCNT 触媒層形成プロセスを開発。	○	SWCNT 触媒層に適合した触媒層組成および構造・プロセスの最適化。
	目標 I-V 性能および耐久性能の達成 (2.1 表参照)	MEA の I-V 性能は目標未達、カーボン・金属コアシェル触媒@SWCNT を用いた MEA で、起動停止電位 30,000 サイクル後も	△	現状の性能支配因子の解明ならびに構造・プロセスの最適化を通しての性能・耐久目標

	SWCNT 構造維持確認。		の達成。
--	---------------	--	------

3.2 研究開発の詳細

(1)カーボン・金属コアシェル触媒の合成：有機溶媒中で金属（Pt 電極、等）電極間でのグロー放電による SP 法により、カーボン・金属コアシェルナノ粒子を合成した。所定条件下で熱処理を行い、カーボン・金属コアシェル触媒とした。高分解能電子顕微鏡（STEM）により、ほぼすべての金属ナノ粒子の表面が数層のグラフェンシェルで被覆されていることを確認した(図 1)。他方、数 10nm 以上の金属コアからなり厚いグラフェンシェルで覆われた粗大コアシェル粒子も共存し、これらが質量活性を低下させる要因の一つであることを明らかにした。粗大粒子の生成は、金属ナノ粒子が生成するグロー放電によるスパッタリングのみならずアーク放電等のイレギュラーな放電により発生していると考えられ、現在、SP 電源回路ならびに SP 処理条件検討による粗大粒子の抑制検討を進めている。また、新規な SP 法として、カーボン電極と金属イオンを原料とするカーボン・金属コアシェル触媒の合成法も併せて進めている。

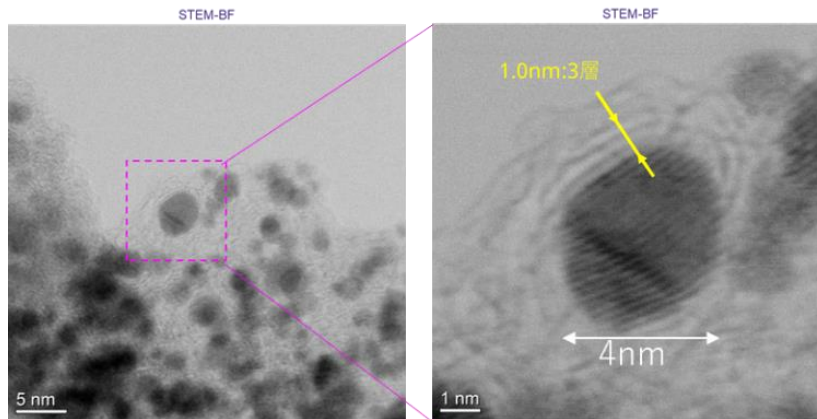


図 1 SP 法カーボンシェル・金属(Pt 合金系)コアシェル触媒（熱処理品）の STEM 写真

(2) カーボン・金属コアシェル触媒の ORR 活性：金属イオン、有機溶媒を原料としたカーボン電極 SP 法により合成、熱処理したカーボン・金属コアシェル触媒（担体：カーボンブラック；Pt コア粒子および Pt 合金コア粒子）について、RDE 法により質量活性を市販 Pt/C と比較しながら評価した（図 2 および表 1）。カーボン・Pt 合金コアシェル触媒（平均粒径：6.1nm）は市販 Pt/C（Pt 平均粒径：2.3nm）に対して約 2.5 倍の質量活性を確認し、中間目標を達成した。また、平均粒径をさらに下げることにより、活性向上させうることが示唆された。

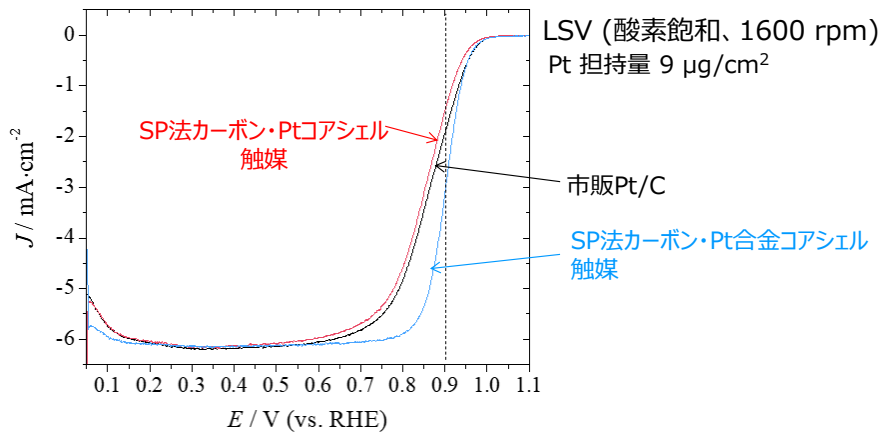


図 2 RDE 試験法による SP 法によるカーボン金属コアシェル触媒の LSV 曲線例

(25℃、酸素飽和、1600 rpm、0.1M HClO₄)

表 1 各種触媒の RDE 評価結果

サンプル	ECSA [m ² /g-Pt]	コア金属粒子径 by XRD [nm]	触媒活性@0.9 V(vs. RHE)	
			質量活性 [A/g-Pt]	SA [μA/cm ² -Pt]
市販Pt/C	84	2.3	297	353
SP法カーボン・Ptコアシェル触媒	62	8.1	225	361
SP法カーボン・Pt合金コアシェル触媒	50	6.1	755	1522

(3) クラスタモデルによる第一原理計算による活性発現機構解析：グラフェンクラスタモデルに Pt 原子をコンタクトさせると、Pt 原子の d 軌道とグラフェンのπ (パイ) 軌道との相互作用により、新たな HOMO、LUMO 軌道が形成され、カーボン表面への①吸着酸素の不安定化、②酸素還元反応・水の脱離の促進により、Pt と比較して ORR 活性が向上する機構が示唆された。これらの結果は、コア金属種とカーボンシエルの組み合わせによる d-π相互作用最適化により、酸素吸着力バランスを制御し、ORR 活性をさらに向上できる可能性を示すものと考えている。

(4) カーボン・金属コアシェル触媒の SWCNT への担持・触媒層形成：分散剤を用いて SWCNT を有機溶媒中に分散させた状態での SP 法により、カーボン・Pt 合金コアシェル触媒を形成、SWCNT 上への担持に成功した (図 3)。さらに、この分散液に Nafion 溶液を加えてコアシェル触媒@SWCNT インクをテフロン多孔体フィルターによりフィルタリングし洗浄することにより (フィルター法)、比較的均一な触媒層を形成することが可能となった。この触媒層をカソードに、市販の Pt/C をアノードに用いて Nafion212 膜上にホットプレスにより転写し、MEA を作製した。

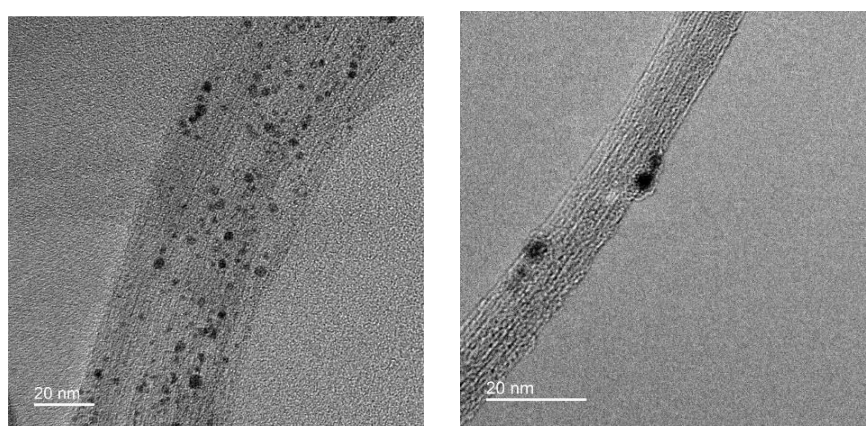


図 3 カーボン・Pt 合金コアシェル触媒担持 SWCNT の透過電子顕微鏡写真

(4) カーボン・Pt 合金コアシェル触媒@SWCNT 触媒層 MEA の I-V 特性・耐久試験：カーボン・Pt 合金コアシェル触媒を担持した SWCNT 触媒層 (Pt 目付量：107μg/cm²) から作製した MEA の I-V 特性ならびに起動停止電位サイクル (1.0-1.5V、NEDO プロトコル準拠) 耐久試験を、市販 Pt/C 触媒層 (Pt 目付量：365μg/cm²) から作製した MEA と比較しながら実施した。コアシェル触媒@SWCNT からなる

MEA は、初期にはあまり性能は出ず、むしろ 3,000 サイクル後にもっとも高い I-V 特性を示すなど、従来の MEA とは異なる挙動を示した (図 4)。SWCNT 触媒層の分散剤等の被毒による影響が考えられる。また、30,000 サイクル後には I-V 性能は大きく劣化したものの、耐久後も触媒層 SWCNT の構造を保持しており (図 5)、耐久前後でのラマンスペクトルでも大きな劣化は認められず、コアシェル触媒を担持した SWCNT 触媒層の耐酸化性の高さを示唆する結果を得た。

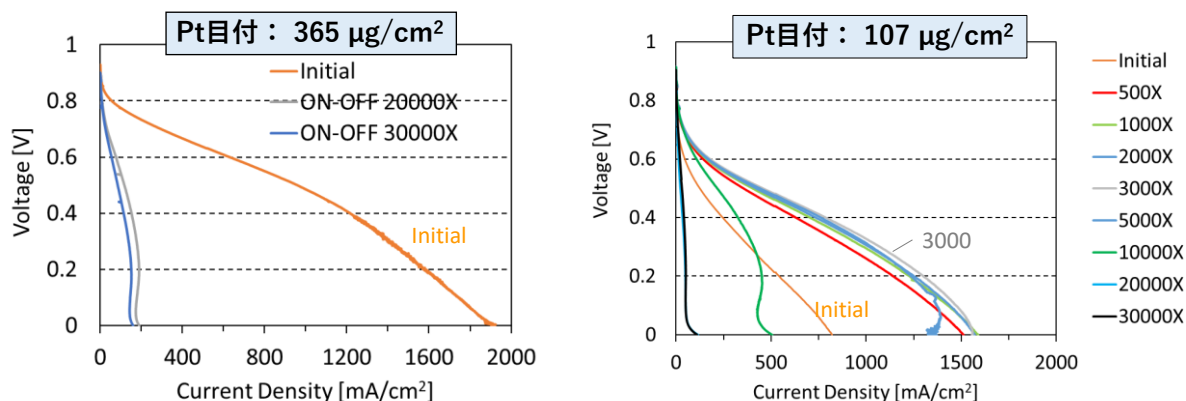


図 4 市販 Pt/C MEA 耐久試験 (左) およびカーボン・Pt 合金コアシェル触媒@SWCNT MEA 耐久試験 (右) の I-V 特性変化

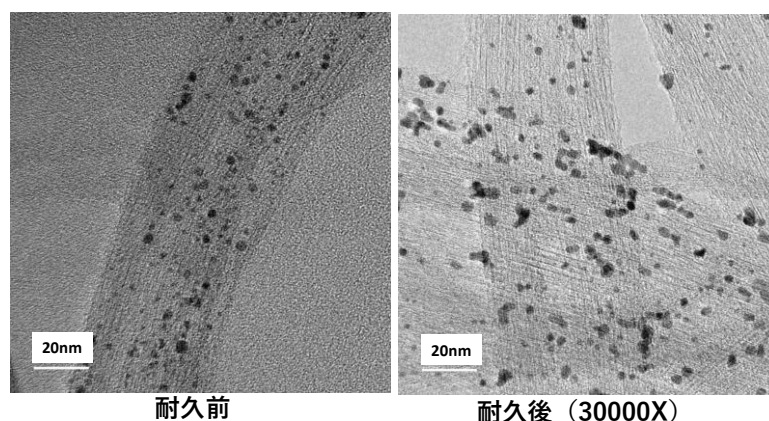


図 5 カーボン・Pt 合金アシェル触媒@SWCNT を用いた MEA での起動停止電位サイクル耐久試験前 (左) と 30,000 サイクル後 (右) の透過電子顕微鏡写真

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) カーボン・金属コアシェル触媒の研究開発： 活性向上に向けては、さらなる金属コアの平均粒径の低減 (2~3nm) に加えて、コア金属組成ならびにシェル構造の最適化 (積層数：2~3 層化、窒素ドーパ量適正化) を進めていく。この際、第一原理計算を活用し、金属系触媒の ORR 活性を支配する d バンドセンターの類推から、コア金属種/カーボンシェル組み合わせによる d-n相互作用を制御し、酸素吸着力と水の脱着力のバランスを整え ORR 活性を向上させる組み合わせの指針を導出する。耐久性については、カーボンシエルの被覆率、結晶性向上、エッジ等の欠陥低減がキーとなることから、コアシェル化プロセスの最適化に加えて熱処理プロセスの最適化も併せて進める。これらにはマテリアルズ・インフォマティクスも活用し、効率的な研究開発を進めていく。

(2) カーボンナノチューブ利用電極の研究開発： ①SWCNT 触媒層の空隙率の高さを生かし、②超高質量活性のカーボン・金属コアシェル触媒の充填量アップでラフネスファクターを上げつつ、高い空隙率を維持し、触媒層における濃度分極の低減を図る。起動停止耐久性については、構成要素である SWCNT とカーボン・金属コアシェル触媒のカーボン部位の結晶性ならびに欠陥低減で耐酸化性を向上させる。この際に触媒層構造、インピーダンス測定、過電圧分離による各解析を進め、劣化部位を特定しつつ、改良ならびに構造最適化を進める。インフォマティクスも活用して早期に最適化を図る。

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

量産性・品質確保を狙いとした量産プロセス開発ならびに中規模での生産能力の獲得が将来の事業化に向けた課題である。これらの検討に向けては、共同実施者である名城ナノカーボンで素材（カーボン・金属コアシェル触媒、SWCNT）ならびに触媒を担持した触媒層部材の量産プロセス開発を実施することを本事業後に計画している。これらをユーザー企業に供給し、MEA 開発等の実用化検討、スタックの性能・信頼性・寿命評価、等を経て、事業化検討を進めていく。2030 年度を目処として事業化可能な素材（カーボン・金属コアシェル触媒、SWCNT、等）および部材（触媒層、等）のサンプル供給から進めていく計画である。こうしたサンプル供給事業を通して市場でのフィードバックを得つつ、2040 年目標に向けた改良を進めて、将来の低コスト・高性能・高耐久性スタックに向けた素材、部材の本格的な製造販売事業につなげる。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021 年 9 月	Interfinish2020 (Nagoya)	Pt free-Based Core-Shell Catalysts for Oxygen Fuel Cell Electrodes by Solution Plasma Process	Duangkamol Dechojarassri, Junmu Park, Sangwoo Chae, Yasuyuki Sawada, Nagahiro Saito
2	2021 年 9 月	Interfinish2020 (Nagoya)	CNT Decorated by Graphene Covered Pt with Solution Plasma Method for the Oxygen Reduction Reaction	Yilai Wang, Duangkamol Dechojarassri, Junmu Park, Sangwoo Chae, Yasuyuki Sawada, Nagahiro Saito
3	2022 年 3 月	The 62nd Fullerenes-Nanotubes-Graphene General	Synthesis of Pt nanoparticles supported on Single-Walled Carbon Nanotubes and its	Miftakhul Huda, Tomoya Kawahara, Satoru Hashimoto,

		Symposium (NAGOYA)	performance for fuel cell application	Masaya Kawasumi, Yutaka Matsuo
--	--	-----------------------	--	-----------------------------------

課題番号（管理番号）：IP05

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／超高電位を目指した酸化物カソードの開発・超機能発現のための表面/界面解析と制御」

実施者：国立大学法人横浜国立大学・学校法人片柳学園東京工科大学・国立大学法人大阪大学
（熊本県産業技術センター）

期間：2020年8月～2022年6月

1. 研究開発概要

固体高分子形燃料電池(PEFC)の2030年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システムを実現するためには、カソード触媒の酸素還元反応(ORR)の触媒活性を向上させることが不可欠である。本課題では、理論電位を達成し、かつ大電流が得られる酸化物カソードの実現のために、質の高い有効活性サイトの高密度化を試みる。そのためには、酸化物触媒の活性サイトの高質化・高密度化と電子伝導パスの最適化が必要である。これらはORRが進行する触媒酸化物表面、及び触媒酸化物/導電担体界面が本質となる現象であるから、表面/界面に注目して研究開発を実施する。

本課題は、本課題をグループ②とし、「超高電位を目指した酸化物カソードの開発・理論起電力達成のための触媒合成（グループ①）」および「超超高電位を目指した酸化物カソードの開発・先端計測と理論解析による触媒能発現機構の解明（グループ③）」と連携しながら、この2つのグループによる触媒合成、解析、理論研究などのサポートを受けて、表面/界面を解析し、制御可能として、全事業として目標を達成することが目的である。革新的なカソード材料を見出すことは、エネルギー変換効率の向上によるシステムの軽量化などのメリットにつながり、PEFCの普及拡大につながるものである。世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立することを目的とする。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

2022年度6月までの酸化物事業全体の目標として、開回路電位の1.10 V RHE (25℃)への上昇、すなわち平衡電位からの過電圧として130 mVを掲げる。また、ORR電流値の増加を2020年3月時点の基準的なチタニアの10倍、すなわち0.45 A/g (0.9 V RHE)とした。これは、2024年度の開回路電位、電流密度は最終目標から案分して出した数値である。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
全体目標				
開回路電位	1.10 V _{RHE}	1.05~1.10 V _{RHE}	○	高電位におけるORR
ORR電流値	0.45 A/g (0.9 V _{RHE})	0.08 A/g (0.9 V _{RHE})	×	電流の獲得
表面/界面に注目した活性サイト生成と電子伝導パス形成の制御	活性サイトの定量的評価法の提案 ●評価サンプル数 200個以上	開回路電位 1.10 V _{RHE} 達成、ORR電流 0.08 A/g (0.9 V _{RHE})を達成。酸化物表面が機能するためには、異元素添加や還	△	表面準位のエネルギーレベルと密度の定量評価とそれらの酸素還元活性との相関の解明 高電位における電子

		元熱処理により、表面準位を形成することが必要であることを解明した。 電気化学評価サンプル数 1630 個、合成サンプル数 (粉末・薄膜モデル触媒) 1520 個		伝導パス形成
有効活性サイトと高効率導電パスを両立させたモデル触媒の創生	超高電位の実現にむけた電界紡糸法による活性サイト形成 ●合成サンプル数 50 個以上	ORR 開始電位 1.05V @-0.2 mA/g 達成 酸化チタンに対する Nb 及び Pd の添加効果を解明し、同時添加により高い開始電位を達成した。 合成サンプル数 120 個	△	高電位における電子伝導パス形成
分子化学的手法による酸化触媒機能の解明	酸化物表面積・有効表面積の定量評価方法の提案 ●評価サンプル数 100 個以上	触媒の酸化物チタン表面積の定量評価手法を確立し、100 個以上のサンプルの酸化物表面積の定量評価を行った。	◎	触媒の電気化学的に有効な酸化物チタン表面積の定量評価手法の確立と適用
触媒酸化物・導電担体の界面制御	モデル界面を用いた酸化物界面におけるキャリア移動メカニズムの解明 (モデル界面 2 種以上について解明)	電子伝導パスとして、①酸化物材料の構造乱れにより、バンドギャップ内全体に広がった準位を通るパス、②金属/酸化物界面により形成され、狭いエネルギー範囲に形成される準位を通るパスの 2 つの存在を、モデル材料を用いて解明した。 ORR 開始電位 1.08V @-1 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ 達成	○	②の方の電子移動パスが、ORR の開始電位に強く関連することが分かったが、1.23V という開始電位を達成するためには、この形成準位のさらなる正側での形成が必要

3.2 研究開発の詳細

(1) 表面/界面に注目した活性サイト生成と電子伝導パス形成の制御 (横浜国立大学)

酸化チタンナノ粒子を用いて、その表面が電気化学的に機能する条件を調査した。表面準位のない酸化チタンナノ粒子として平均粒子径 6 nm のアナターゼ[TiO₂(6 nm)と表記]を、表面準位を形成したナノ粒子として、水熱合成法でニオブ添加酸化チタンナノ粒子を作製し、4%水素を含むアルゴン気流下で、700 °C、10 分間の還元熱処理を行った[この試料は Nb 添加 TiO_xと表記]。それらの試料に導電補助剤として、カーボンブラックを添加し、0.1 M 硫酸溶液中、30 °Cで、電気化学挙動を評価した。図 1(a)に、それらの不活性雰囲気下

でのサイクリックボルタモグラムを示す。比較のために、カーボンブラックのみの場合も示した。電流値は、試料に含まれるカーボンブラックの質量で規格化した。電流値を試料に含まれるカーボンブラックの質量で規格化しているため、カーボンブラックのみよりも大きい場合は、共存する酸化物ナノ粒子の表面が電気化学的に機能していることを示す。図 1(a)より、 $\text{TiO}_2(6 \text{ nm})$ は粒子径 6 nm と非常に微細であるにもかかわらず、サイクリックボルタモグラムの大きさがほとんどカーボンブラックのみと変わらず、表面が電気化学的に機能していないことがわかる。一方、Nb 添加 TiO_x の場合は、顕著な増大がみられた。これは、Nb 添加と還元処理により、表面準位が形成され、カーボンブラックによる電子伝導パスの形成により、表面準位が電子電気化学的に機能するようになったことを示している。このように、単にナノ粒子化するのみでは酸化チタン表面は機能しないが、表面準位を形成することにより、カーボンブラックと同程度の表面積を機能させることが可能であることがわかった。また、X 線回折による結晶構造解析から、酸化物相の相転移が生じている遷移状態において、表面準位が多く形成されることも明らかにした。

$\text{TiO}_2(6 \text{ nm})$ と、Nb 添加 TiO_x の酸素還元分極曲線を、図 1(b)に示す。 $\text{TiO}_2(6 \text{ nm})$ は添加したカーボンブラックの活性を示しているだけであるのに対して、Nb 添加 TiO_x では、0.8 V 以上から酸素還元電流が観察され、質の高い活性サイトが形成されていることがわかる。一方で、この酸素還元電流は 0.6 V 付近でいったん飽和しているが、これは表面準位密度が少なく、その密度が律速になっていることを示している。このように、表面準位と導電パスの形成により、酸素還元触媒として機能することが分かった。

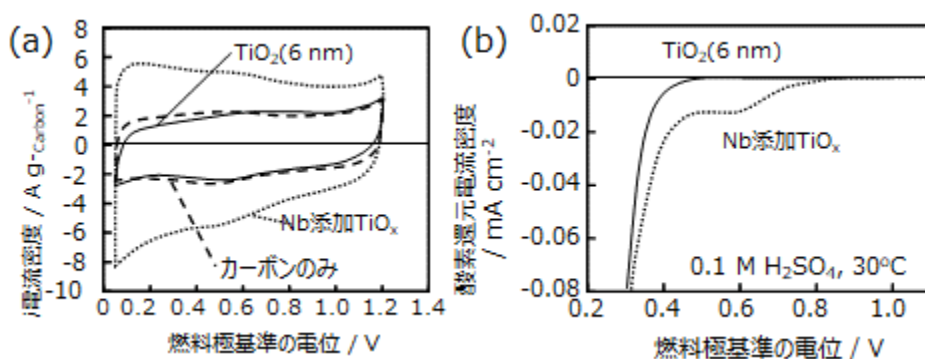
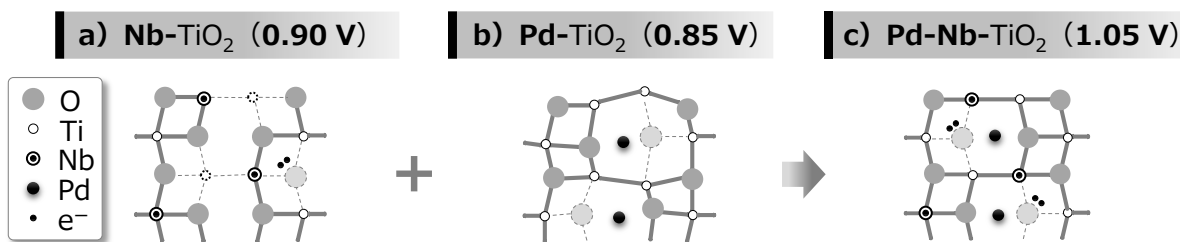


図 1 (a) 導電補助剤としてカーボンブラックを含む、平均粒子径 6 nm のアナターゼ [$\text{TiO}_2(6 \text{ nm})$]、還元熱処理を施した Nb 添加酸化チタンナノ粒子 [Nb 添加 TiO_x]、及びカーボンブラックのみのサイクリックボルタモグラム。電流値は、試料に含まれるカーボンブラックの質量で規格化した。(b) $\text{TiO}_2(6 \text{ nm})$ 、及び、Nb 添加 TiO_x ナノ粒子の酸素還元分極曲線。

(2) 有効活性サイトと高効率導電パスを両立させたモデル触媒の創生 (熊本県産業技術センター)
 超高電位を目指した酸化物カソードの開発を目指し、電界紡糸法によりパラジウム Pd やニオブ Nb を添加した酸化チタンナノチューブを得て、結晶構造や導電性等からドーピング効果を多角的に検証してきた。Nb 添加系(図 2(a)) では、高活性な触媒ほど、主相である TiO_2 アナターゼの Ti および酸素の欠陥量が多く、かつ、バルクの導電性が高かった。Ti および O の欠陥形成が導電性に寄与していると推定された。一方、Pd 添加系(図 2(b))では、Pd 添加量増加に伴い、酸素欠陥の量が増え、非晶質化が同時に進行した。Pd 添加系では添加量に関わらず絶縁体であった。Pd 添加系の活性が低く見えた要因は絶縁性にあると想定し、Nb と Pd の同時添加(図 2(c))による新たな欠陥準位形成を検討した。その結果、ORR 開始電位は 1.05 V vs. RHE と高活性であった。Pd と Nb の同時添加により、導電パスと活性サイトの両立の可能性が示唆された。



Ti欠陥 + O欠陥 ⇒ 導電性UP O欠陥 + 非晶質化 ⇒ 絶縁化 O欠陥 + 高い結晶性

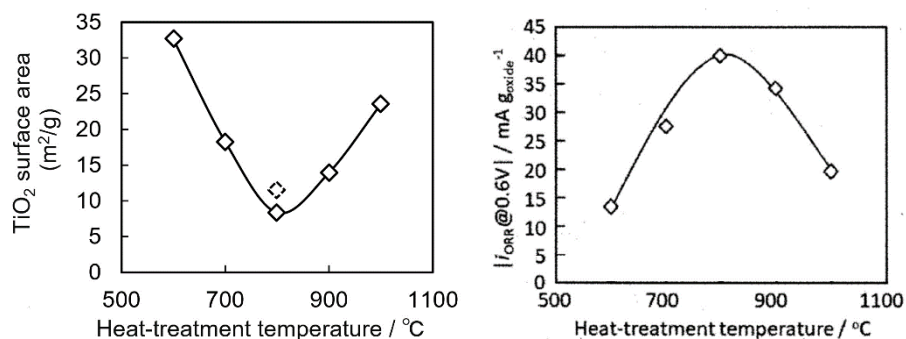
図2 Nb添加系(a)、Pd添加系(b)および、Pd-Nb同時添加系(c)における結晶イメージ。破線表示は欠陥を意味。図上部における括弧内はORR開始電位@-0.2mA/g。

(3) 分子化学的手法による酸化物触媒機能の解明 (東京工科大学)

燃料電池酸化物触媒では、触媒表面上の酸化物表面積および電気化学的に有効な表面積をそれぞれ定量評価する方法が確立されていないという致命的な問題点がある。そこで、この問題点の解決のために有効な有機分子を独自に設計・合成し、触媒設計指針の基本となるこれらの数値を求める手法を確立することにした。有機分子および実験条件の系統的な検討を行った結果、特定の2つの有機分子がカーボン存在下においても選択的に酸化チタンに吸着し、その吸着量が酸化チタンの表面積に比例する実験条件を見出し(表3)、カーボン存在下において酸化チタンの表面積を導出する手法として確立した。確立した手法を用いて本PJで開発された触媒を含む100個以上のサンプルの酸化物表面積の定量評価を行った。一例として、横浜国大で作製した触媒の定量評価に適用し、触媒調製条件と酸化チタン表面積の相関を明らかにした(図3)。本手法は、触媒性能の加速的な向上、および、酸化物触媒の活性サイト・触媒/酸化物担体界面の理論の確立に貢献すると期待される。

表3 種々のチタニアへのタイロンの吸着量と表面積との相関

結晶構造 粒子径 (nm)	Anatase 30	Anatase 100	Rutile 30	Rutile 100
比表面積 (m ² /g)	49	18	27	14
吸着量 (10 ⁻⁶ mol/g)	40	22	13	12
吸着量/比表面積 (10 ⁻⁶ mol/m ²)	0.82	0.71	0.80	0.87



Adachi, Y. et al., *Fuel Cell*, 2021, 21, 80.

図3 タイロンの吸着量から導出した Nb ドープ TiO₂ 触媒上の酸化チタン表面積 ORR 活性との相関

(4) 触媒酸化物・導電担体の界面制御 (大阪大学)

本プロジェクトでターゲットとする金属酸化物 ORR 触媒は、従来 ORR 触媒として用いられてきた金属系材料と比較すると、電子伝導メカニズムや空間的な経路が複雑である。ここでは、金属クラスターを埋め込んだ金属酸化物電極を用いて、格子間歪みや金属-酸化物界面における電子状態が、どのように電子パスに影響するかについて調べた。

ALD(TiO₂蒸着)とAPD(金属クラスター作成)を用いて図4上に示したような構造を持つ電極を横浜国立大学グループと共同で作製し、その半導体特性ならびに ORR 電気化学特性について調べた。その際の代表的な CV 曲線を図4に示す。0.4 V vs. RHE 付近と 0.9 V vs. RHE 付近に2カ所立ち上がりが見られる。前者は、アモルファス TiO₂-ALD 薄膜単体でも観察されることから、TiO₂ 膜内部の構造乱れによる準位によるものであると考えられる。一方で、0.9 V 付近に見られる立ち上がりは、Pd クラスターを埋め込んだときのみ観察されることから、Pd/TiO₂ 界面もしくは Pd 自体の準位を経由した立ち上がり電流である可能性が示唆され、これら2つのパスが電子伝導に寄与していることが明らかになった。また、さらなる実験から 0.9 V 近辺の電子準位形成に大きな寄与をしているのは、界面における結晶歪み等の構造的要因ではなく、直接的電子移動等が寄与していることが推測され、電子パス形成の空間的な広がりが 2nm 以下であることが分かった。

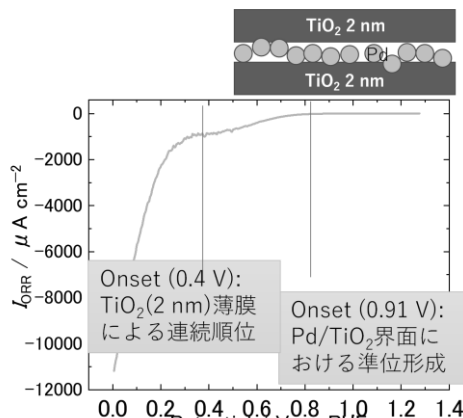


図4 上)金属クラスターを埋め込んだ金属酸化物電極。下) ORR 電流-電位曲線。

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) 本事業には関心を表明している企業が5社あり、2030年度前後に実用化、事業化に向けた取組を行う予定である。本事業は中間目標に未達であることなどから終了となったが、酸化物カソード触媒を開発することは将来の多様な固体高分子形燃料電池の社会導入には必須であり、固体高分子形燃料電池の社会導入が進めば、実用化、事業化検討に入る見通しは明るい。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2020年 10月	The 2nd Japan-China Forum on Power Batteries for New Energy Vehicles	Challenges of PGM- and Carbon-Free Cathodes Based on Metal Oxides for Future Advanced PEFCs	Akimitsu Ishihara

2	2020年 10月	ECS Transactions	Effect of Semiconducting Properties of Oxide-Based Compounds on Oxygen Reduction Activity in Acidic Media	Akimitsu Ishihara, Junji Hirata, Takaaki Nagai, Yoshiyuki Kuroda, Koichi Matsuzawa, Akihito Imanishi, Shigenori Mitsushima, Yoshio Takasu, Ken-ichiro Ota
3	2020年 10月	ECS Transactions	Factors Affecting ORR Activity of Nb-Added TiO _x Catalyst Using Carbon Support for PEFC	Yoshinori Adachi, Takaaki Nagai, Yoshiyuki Kuroda, Yoshiro Ohgi, Koichi Matsuzawa, Shigenori Mitsushima, Ken-ichiro Ota, Akimitsu Ishihara
4	2020年 10月	ECS Transactions	P-Doped SnO ₂ Powder as a Support for PEFC Cathode	Yuta Inoue, Koichi Matsuzawa, Yongbing MA, Yoshiro Ohgi, Takaaki Nagai, Yoshiyuki Kuroda, Shunya Yamamoto, Akimitsu Ishihara
5	2020年 12月	第40回水素エネルギー協会(HESS)大会	PEFC用NbドーブTiO _x カソード触媒のナノ粒子化と電子伝導パス形成による半導体特性への影響検討	足立吉徳、永井崇昭、大城善郎、黒田義之、松澤幸一、今西哲士、原賢二、光島重徳、石原顕光
6	2020年 12月	第40回水素エネルギー協会(HESS)大会	固体高分子形燃料電池用非白金カソード触媒の実用化に向けた酸化チタン系ナノ材料の安定性評価	北村祐仁、松澤幸一、永井崇昭、大城善郎、富中悟史、石原顕光
7	2020年 12月	第149回燃料電池研究会	酸化物の多様性を活かしたPEFC用新規カソード触媒の可能性	石原顕光
8	2021年 3月	日本経済新聞	燃料電池、白金使わず自動車普及へ素材代替	石原顕光
9	2021年 3月	Materials & Design	Control of Surface Area and Conductivity of Niobium-added Titanium Oxides as Durable Supports for Cathode of Polymer Electrolyte Fuel Cells	Yongbing Ma, Takaaki Nagai, Yuta Inoue, Kaoru Ikegami, Yoshiyuki Kuroda, Koichi Matsuzawa, Teko. W. Napporn, Yan Liu, Shigenori Mitsushima,

				Akimitsu Ishihara
10	2021年 3月	電気化学会第88 回大会	PEFC用カソード触媒としての貴 金属添加チタン酸ナノシート	竹内悠、松澤幸一、永井崇昭、 池上芳、黒田義之、門田隆二、 石原顕光
11	2021年 3月	電気化学会第88 回大会	カーボン担体を用いたPEFC用異 元素添加酸化チタンナノ粒子酸 素還元触媒の合成	渡辺啓太、松澤幸一、足立吉 徳、池上芳、大城善郎、永井崇 昭、門田隆二、石原顕光
12	2021年 3月	電気化学会第88 回大会	カーボン担持ジルコニア触媒の合 成とその酸性電解質中での酸素 還元能の評価	芹澤康平、永井崇昭、池上芳、 門田隆二、大城善郎、光島重 徳、石原顕光、黒田義之
13	2021年 3月	電気化学会第88 回大会	酸化チタンナノシートを用いた粉末 電極触媒の調製と酸性電解質 中での酸素還元能	中島督晴、石原顕光、光島重 徳、黒田義之
14	2021年 5月	第28回燃料電池 シンポジウム (FCDIC)	PEFC用カソード触媒に関する基 礎検討 (X X) ~~酸化物の半導体特性と酸 素還元触媒能~~	石原顕光、永井崇昭、池上芳、 門田隆二、黒田義之、松澤幸 一、光島重徳、久保田純、今西 哲士、富中悟史
15	2021年 5月	第28回燃料電池 シンポジウム (FCDIC)	貴金属添加チタン酸ナノシートを 用いた PEFCカソード極における酸素還 元触媒の開発	竹内悠、松澤幸一、永井崇昭、 池上芳、 黒田義之、門田隆二、石原顕 光
16	2021年 5月	第28回燃料電池 シンポジウム (FCDIC)	カーボン担体を用いたPEFCカソ ード用チタン酸化物系ナノ粒子触 媒の 高活性化	渡辺啓太、松澤幸一、足立吉 徳、池上芳、大城善郎、永井崇 昭、門田隆二、石原顕光
17	2021年 6月	2021年度触媒学 会西日本支部 第 12回触媒科学研究 発表会	ニトロソ化合物の合成と酸化チタ ンへの吸着挙動	木村将也、原賢二
18	2021年 6月	2021年度触媒学 会西日本支部 第 12回触媒科学研究 発表会	酸化チタンの表面積を定量評価 する手法の開発	商磊、原賢二
19	2021年 6月	International Conference on Green Chemistry and Engineering towards Sustainable	Synthesis and Adsorption Properties of Nitroso Compounds on Titanium Dioxides	Masaya Kimura, Kenji Hara

		Development – An Industrial Perspective		
20	2021年 6月	International Conference on Green Chemistry and Engineering towards Sustainable Development – An Industrial Perspective	Development of Quantitative Analysis Method to Determine TiO ₂ Surface Area	Lei Shang, Kenji Hara
21	2021年 7月	燃料電池	PEFC用CNT上に担持したNb添細TiO _x 触媒のORR活性影響因子の検討	足立吉徳、永井崇昭、大城善郎、黒田義之、松澤幸一、光島重徳、石原顕光
22	2021年 8月	触媒学会若手会第41回夏の研修会	酸化チタンの表面積を定量評価する手法の開発	商磊
23	2021年 8月	第30回電極材料研究会	酸性溶液中での4,5族酸化物系触媒への異元素添加が酸化物還元触媒能に及ぼす影響	渡辺啓太、松澤幸一、竹内悠、池上芳、大城善郎、永井崇昭、門田隆二、石原顕光
24	2021年 9月	日本セラミックス協会第34回秋季シンポジウム	PEFC用カソード触媒への適用を目指した酸性溶液中におけるTi系ペロブスカイト化合物の酸素還元活性	竹内悠、松澤幸一、永井崇昭、池上芳、黒田義之、門田隆二、石原顕光
25	2021年 9月	2021年電気化学会秋季大会	有機錯体を出発原料とした窒素・炭素含有酸化チタン触媒の酸素還元活性	竹内悠、松澤幸一、永井崇昭、池上芳、黒田義之、門田隆二、石原顕光
26	2021年 9月	2021年電気化学会秋季大会	PEFCカソード用4,5族遷移金属酸化物触媒の異元素添加による高活性化の検討	渡辺啓太、松澤幸一、竹内悠、池上芳、大城善郎、永井崇昭、門田隆二、石原顕光
27	2021年 9月	3rd Japan-China Clean Energy Forum	Challenges of High-Performance Oxide-Based Cathodes for Future Advanced Polymer Electrolyte Fuel Cells	Akimitsu Ishihara
28	2021年 10月	10th De Nora Symposium	Challenges of High-Performance Oxide-Based	Akimitsu Ishihara

			Cathodes for Future Advanced Proton Exchange Membrane Fuel Cells	
29	2021年 10月	240th ECS Meeting	Noble Metal-Added Titanate Nanosheets for PEFC Cathode	Yuu Takeuchi, Koichi Matsuzawa, Takaaki Nagai, Kaoru Ikegami, Yoshiyuki Kuroda, Ryuji Monden, Akimitsu Ishihara
30	2021年 10月	ECS Transactions	Noble Metal-Added Titanate Nanosheets for PEFC Cathode	Yuu Takeuchi, Koichi Matsuzawa, Takaaki Nagai, Kaoru Ikegami, Yoshiyuki Kuroda, Ryuji Monden, Akimitsu Ishihara
31	2021年 10月	日本化学会秋季事 業 第11回CSJ化 学フェスタ2021	有機分子の吸着による酸化チタン 表面積の定量評価手法の開発	商磊、原賢二
32	2021年 10月	日本化学会秋季事 業 第11回CSJ化 学フェスタ2021	ニトロソ化合物の合成と酸化チタ ンへの吸着挙動	木村将也、原賢二、小林玲也
33	2021年 11月	第41回水素エネル ギー協会大会	固体高分子形燃料電池の非白 金カソード触媒の ための炭窒素含有 4,5 族酸化 物の異元素添加に よる酸素還元触媒能の向上	渡辺啓太、松澤幸一 、竹内悠、池上芳、 大城善郎、永井崇昭 門田隆二、石原顕光
34	2021年 12月	第62回電池討論 会	電界紡糸法によるPEFC用 TiO ₂ 系触媒の高活性化	大城善郎、富中悟史、門田隆 二、石原顕光
35	2021年 12月	第31回日本MRS 年次大会	固体高分子形燃料電池の非白 金カソードとしてのFe,Ni,Zn添 加酸化チタン酸素還元触媒の開 発	小幡もも、松澤幸一、竹内悠、 大城善郎、池上芳、永井崇昭、 門田隆二、石原顕光
36	2021年 12月	第31回日本MRS 年次大会	4族金属酸化物とPdの相互作 用が酸性溶液中での酸素還元 反応に与える影響	渡辺友理、松澤幸一、永井崇 昭、池上芳、門田隆二、今西哲 士、山本春也、石原顕光
37	2022年 1月	燃料電池	PEFCカソード用酸化物担体とし てのPドーピングSnO ₂ の適用性評 価	井上裕太、永井崇昭、大城善 郎、黒田義之、松澤幸一、石原 顕光
38	2022年 3月	電気化学会第89 回大会	PEFC白金代替カソード触媒のた めのピラジニカルボン酸を用いた炭 窒素含有 4 族酸化物への異元	渡辺啓太、松澤幸一、竹内悠、 池上芳、大城善郎、永井崇昭、 門田隆二、石原顕光

			素添加が酸素還元触媒能に及ぼす影響	
39	2022年 3月	電気化学会第89回大会	PEFC 非白金カソード触媒としてのCNT担持炭窒素含有4族酸化物の酸素還元活性の向上	小幡もも、松澤幸一、竹内悠、大城善郎、池上芳、永井崇昭、門田隆二、石原顕光
40	2022年 3月	電気化学会第89回大会	4族酸化物薄膜の物性が酸性溶液中での酸素還元反応に与える影響	渡辺友理、松澤幸一、永井崇昭、池上芳、門田隆二、今西哲士、山本春也、石原顕光
41	2022年 3月	電気化学会第89回大会	アークプラズマ蒸着白金量を制御したPt/Nb-Ti4O7触媒の劣化解析	馬永炳、梶間博敬、永井崇昭、黒田義之、石原顕光、光島重徳
42	2022年 3月	日本化学会第102春季年会	有機分子の吸着により触媒表面上の酸化チタンの表面積を求める手法の開発	商磊、石原顕光、原賢二
43	2022年 5月	第29回燃料電池シンポジウム(FCDIC)	PEFC用カソード触媒に関する基礎検討(X XI)～酸化物触媒における酸素還元触媒能に及ぼす影響因子の解明～	石原顕光、永井崇昭、池上芳、門田隆二、黒田義之、松澤幸一、光島重徳、久保田純、今西哲士、富中悟史
44	2022年 5月	第29回燃料電池シンポジウム(FCDIC)	4族金属酸化物薄膜の酸性溶液中での酸素還元反応に影響する電気化学特	渡辺友理、松澤幸一、永井崇昭、池上芳、門田隆二、今西哲士、山本春也、石原顕光
45	2022年 5月	第29回燃料電池シンポジウム(FCDIC)	PEFC白金代替カソードのためのピラジニカルボン酸を用いた炭窒素含有4族酸化物への異元素添加が酸素還元活性に及ぼす影響	渡辺啓太、松澤幸一、竹内悠、池上芳、大城善郎、永井崇昭、門田隆二、石原顕光
46	2022年 5月	第29回燃料電池シンポジウム(FCDIC)	酸性電解質中における4族酸化物ベース触媒への鉄添加による酸素還元活性の向上	小幡もも、松澤幸一、竹内悠、大城善郎、池上芳、永井崇昭、門田隆二、石原顕光
47	2022年 5月	241st ECS Meeting	Effects of Foreign Elements Added Oxide-based Electrocatalyst for Oxygen Reduction Reaction as Non-precious Metal Cathodes	Koichi Matsuzawa, Momo Obata, Yuu Takeuchi, Yoshiro Ohgi, Kaoru Ikegami, Takaaki Nagai, Ryuji Monden and Akimitsu Ishihara
48	2022年 5月	ECS Transactions	Effects of Foreign Elements Added Oxide-based Electrocatalyst for Oxygen Reduction Reaction as	Koichi Matsuzawa, Momo Obata, Yuu Takeuchi, Yoshiro Ohgi, Kaoru Ikegami, Takaaki Nagai,

			Non-precious Metal Cathodes	Ryuji Monden and Akimitsu Ishihara
49	2022年 7月	Chemistry Letters	Enhancement of Oxygen Reduction Activity of Fe-added Zirconium Oxide Electrocatalysts without Conductive Supports in Sulfuric Acid	Yuu Takeuchi, Keita Watanabe, Koichi Matsuzawa, Takaaki Nagai, Kaoru Ikegami, Ryuji Monden, Akimitsu Ishihara
50	2022年 7月	12th International Conference on Environmental Catalysis (ICEC2022)	Synthesis and Adsorption Properties of Nitroso Compounds on Metal Oxides aiming for Evaluation of PEFC Oxide Catalysts	Masaya Kimura, Kenji Hara
51	2022年 8月	第31回電極材料研究会	原子層堆積法による酸化ジルコニウム薄膜が持つ電気化学的特性の基礎検討	渡辺友理、松澤幸一、永井崇昭、池上芳、門田隆二、石原顕光
52	2022年 8月	第31回電極材料研究会	酸性電解質中における4族酸化物ベース触媒の酸素還元能に影響する因子の検討	小幡もも、竹内悠、松澤幸一、大城善郎、池上芳、永井崇昭、門田隆二、石原顕光

課題番号（管理番号）： IP06

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／超高電位を目指した酸化物カソードの開発・理論起電力達成のための触媒合成」

実施者： 学校法人福岡大学・国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・国立大学法人九州大学・国立大学法人宇都宮大学・高知県公立大学法人高知工科大学（再委託：国立大学法人千葉大学・国立大学法人大阪大学・国立大学法人大分大学）

期間： 2020年9月～2022年6月

1. 研究開発概要

固体高分子形燃料電池(PEFC)の 2030 年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システムを実現するためには、カソード触媒の酸素還元反応(ORR)の触媒活性を向上させることが不可欠である。酸化チタンや酸化ジルコニウムを基とした酸化物カソードに異種元素をドーピングや酸素空孔制御、結晶構造制御、ナノ形態制御を行うことにより、飛躍的に高い開回路電位と ORR 電流値をもつ酸化物カソード触媒を合成する。これと同時にカーボンナノチューブや導電性酸化物など担体の高性能化にも取り組む。具体的には、スパッタリング法、金属錯体架橋高分子合成法、量子ビーム、放射線反応場、液相プロセスを用いた低次元構造制御、酸化物触媒/炭素担体の構造制御などを駆使する。本課題は、本課題をグループ①とし、「超高電位を目指した酸化物カソードの開発・超機能発現のための表面・界面解析と制御（グループ②）」および「超超高電位を目指した酸化物カソードの開発・先端計測と理論解析による触媒能発現機構の解明（グループ③）」と連携しながら、この 2 つのグループによる分析、解析、理論研究などのサポートを受けて実際の触媒材料の開発を行うものである。革新的なカソード材料を見出すことは、エネルギー変換効率の向上によるシステムの軽量化などのメリットにつながり、PEFC の普及拡大につながるものである。世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立することを目的とする。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

2022 年度 6 月までの目標として、開回路電位の 1.10 VRHE (25℃)への上昇、すなわち平衡電位からの過電圧として 130 mV を掲げる。また、ORR 電流値の増加を 2020 年 3 月時点の基準的なチタニアの 10 倍、すなわち 0.45 A/g (0.9 VRHE)とした。これは、2024 年度の開回路電位、電流密度が最終目標から案分して出した数値である。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
開回路電位 ORR 電流値	1.10 VRHE 0.45 A/g (0.9 VRHE)	0.90~0.93 VRHE 測定不可	×	各機関とも短期間で 0.90~0.93 VRHE の開回路電位をもつ触媒を見出していて、継続的に研究開発を進めることにより、目標の達成を見込める。

導電性担体上の酸化物触媒ナノ粒子への異元素ドーピング法の開発と活性点発現機構の解明	Zr 架橋高分子に Ni, Fe, Co などの遷移金属をドーブした M:ZrO ₂ /C 触媒を構築し、炭素担持酸化物ナノ粒子触媒に対する異元素ドーブ技術を確立し、活性支配因子の解明に役立つサンプルを合成し、グループ③に供給する。	Zr 架橋高分子からの ZrO ₂ /C 触媒に Ni, Fe, Co などの遷移金属元素をドーブし活性が向上することを見出した。しかし上昇が限定的だったため高分子の添加法や CNT 利用を検討し、開回路電位 0.93V _{RHE} の ZrO ₂ /CNT を見出した。	△	現状では ZrO ₂ 粒子が十分微細でなくのナノ粒子化により更なる活性向上が見込める。
単結晶モデル電極を用いた酸化物触媒の活性点解明及び界面制御	Nb ドーブ二酸化チタン単結晶電極への Ag の打ち込みにより、構造欠陥、界面準位を導入し、グループ②の酸化物界面におけるキャリアパス解明に資する。	1%Nb:TiO ₂ (110)単結晶の ORR が最も活性化する Ag 注入条件を決定した。ORR 活性化が予測されている Pd を注入後、800℃熱処理、24 h HF 化学研磨すると ORR 活性は w/o Pd TiO ₂ (110)の 5.5 倍に増大し、さらにメラミン修飾で w/o Pd TiO ₂ (110)の 10 倍活性化した。	○	振動分光法を用いて、Nb ドーブ TiO ₂ 単結晶電極の表面吸着種および吸着水の構造を明らかにし、ORR 活性化因子を決定するとともに、理論計算グループの計算モデル作成と連携する。
量子ビームを利用した活性点形成技術及び界面制御技術の開発	二酸化チタン等の酸化物粉末試料および単結晶基板に量子ビームを照射したサンプルを合成、グループ②及び③に供給し、触媒酸化物-導電担体の界面制御技術を開発する。	TiO ₂ 粉末/ポリアクリロニトリル/カーボンナノチューブへの電子線照射・焼成により、活性点(酸素空孔)と導電パスを同時に形成する技術を開発した。	△	酸素空孔の導入量最大化・安定化技術の開発、導電パスの設計・最適化が課題である。
放射線反応場による異種金属がドーブされた酸化物触媒の合成	放射線反応場を利用して新たに Nb ₂ O ₅ ナノ粒子などを調製し、酸化物表面積・有効表面積の解明に役立つモデル触媒を合成し、グループ②及び③に供給する。	放射線反応場を利用して合成した NbO _x /C 触媒への PAN 修飾条件の検討過程において、NbO _x の一部が窒化することを見出し、開回路電位：0.90 V を得た。PAN 修飾が導電パスの確保だけでなく、窒素ドーブにも有効である	△	複数元素の同時照射により元素ドーピングを行うことで、さらなる活性の向上が期待される。

		ことを見出した。		
高性能金属酸化物/CNT ハイブリッド触媒の開発	Rh や Pd などドーブした TiO ₂ (および ZrO ₂) を CNT あるいは窒素ドーブ CNT に高分散担持した新規触媒を開発し、中間目標を達成するカソード触媒のデザインを探索する。ここで TiO ₂ に欠陥を導入する方法を探索し、グループ③にサンプルを供給し、電池性能向上に対する効果を検証する。また、安価な金属（鉄、ニッケル、マンガンなど）に硫黄をドーブした新しいカソード触媒の開発に関する基礎検討を開始する。	目標とした種々のナノ金属ドーブ触媒の合成に成功し、ナノ構造を明らかにした。しかし OCV=0.89V 程度であり、ORR 活性は Pt/C に及ばなかった。また、Fe/Ni-層状水酸化物/CNT 硫黄ドーブ触媒は、アルカリ中では、高い ORR を示したが、酸性中での安定性の改善が必要であった。	△	デザインした触媒において、金属ナノ粒子 TiO ₂ 、ポリマー被覆 CNT (あるいはグラフェン) の最適な組成や酸素欠陥部位の導入が必要と思われる。
酸化物ナノ粒子担持炭素の合成と酸化物触媒の耐久性の解明	液相析出法による酸化物/炭素触媒の合成と活性点注入による新規カソード触媒を合成、酸化物有効表面積と触媒活性支配因子解明のモデル触媒として、グループ②及び③に供給する。	液相析出法による酸化物/炭素触媒の合成では、酸化チタンナノ粒子担持ケッチェンブラックの合成方法を見出し、現行の PEFC 用触媒に近い形態の触媒合成に成功した。活性点注入による新規カソード触媒の合成では、パラジウム添加酸化チタンの OCV が 0.9 V 程度であることを見出した。	△	液相析出法による酸化物/炭素触媒の合成方法を確立できたが、活性点注入による新規カソード触媒の取り組みで OCV の目標値に達しなかった。改善策として、他種の炭素材料の使用や活性点注入の最適化などが考えられる。
液相プロセスに基づく触媒能高度化/最適化のための精密合成手法の開拓	酸化物表面積・有効表面積の定量評価法開発のために、酸化物-カーボン比を変化させた酸化物・カーボンコンポジット触媒を合成し、グループ②へ供給する。	液相合成プロセスを活用し、酸化物前駆体に有機高分子を複合化し熱分解、炭化させることで酸化物とカーボンを複合化する手法を開発した。特に有機高分子にフェノール樹脂を用いることで酸化物-カーボン比を自在に制御できるようになった。	△	酸化物粒子内カーボン（マイクロ導電パス）と粒子間カーボン（マクロ導電パス）の効果を切り分けるための試料調製を行うとともに、欠陥導入量や窒素複合化量の独立制御を実現するための手法に関しても引き続き開発を進める必要がある。
導電性酸化物担	金属酸化物球状多孔体	SnO ₂ 球状多孔体、P	○	異元素ドーブ SnO ₂ 多

体の合成、及び触媒 – 導電性酸化物の界面構造最適化	合成技術である一段階ソルボサーマル合成法を改良し、酸化物カソード触媒の担体として十分な「高比表面積」と「導電性」と「細孔率」を有する導電性酸化物担体の合成法を提案する。	ドープ SnO ₂ 多孔体の合成法を確立した。比表面積 180 m ² /g、1次粒子径 3.3nm 以下、導電率 1.08×10 ⁻³ 、細孔率 57.6%を達成した。	孔体の合成法確立 導電率の改善
----------------------------	--	--	--------------------

3.2 研究開発の詳細

(1) 導電性担体上の酸化物触媒ナノ粒子への異元素ドーピング法の開発と活性点発現機構の解明（福岡大学）

福岡大学では炭酸ジルコニウムアンモニウムで架橋した水溶性高分子を架橋高分子前駆体としてカーボンブラック担体に担持することによって ORR 活性をもつ ZrO₂/CB 触媒を調製する手法を有していたため、この方法を用い、Fe などの異元素を導入した触媒の検討を進め、Fe 添加が ORR 電流上昇の効果があることを見出した。しかしながら開回路電位は 0.85 V_{RHE} から上昇しなかった。また、RF マグネトロンスパッタリングを用いた粉末炭素担体上への ZrO₂ ナノ粒子を担持させた ZrO₂/CB 触媒について、ターゲット材料に Fe を添加し、その効果も検討したが開回路電位は 0.85 V_{RHE} 以上に上昇しなかった。

そこで、炭酸ジルコニウムアンモニウムの担持法から検討し直し、炭酸ジルコニウムアンモニウムの CNT 担体上への直接担持後にポリアクリロニトリル(PAN)のジメチルホルムアミド(DMF)溶液を添加し、窒素下および水素下での所定の温度で熱処理することにより開回路電位は 0.93 V_{RHE} が得られる ZrO₂/CNT 触媒の合成に至った。高分子を前駆体とした炭素修飾による導電性向上と、窒素下および水素下での所定の温度で熱処理による欠陥制御により ORR 活性の高い ZrO₂/CNT 触媒が得られることを見出された。

(2) 単結晶モデル電極を用いた酸化物触媒の活性点解明及び界面制御（千葉大学）

千葉大学は 2020 年度に量研機構と共同で TiO₂ 単結晶電極に Ag 注入することにより ORR 活性を増大させる注入条件を決定した。2021 年度は、TiO₂ 単結晶電極に Pd を注入後、さらに有機物修飾することにより ORR を活性化する因子を検討した。

加速電圧 50 keV、注入量 10¹⁵ atoms cm⁻² で 1%Nb ドープ Rutile TiO₂ 単結晶電極に Pd を注入した。その後、800℃アニールを 12 時間、フッ化水素酸による化学研磨を 24 時間行ってから電気化学測定を実施した。酸素飽和した 0.1 M HClO₄ 中で回転電極を用いて LSV を測定し、0.20 V(RHE)の電流密度で ORR 活性を評価した。有機物の効果は 0.1 μM のメラミンを添加した 0.1 M HClO₄ 中で検証した。Pd 注入後の酸素空孔欠陥密度に面依存性がないことを XPS 測定で確認した。

50 keV の加速電圧で Pd 注入した TiO₂(110)電極の ORR 活性は、Pd 注入していない TiO₂(110)と比較して 5.5 倍増大した。一方、TiO₂(100)電極は Pd 注入により失活した。量研機構の断面 TEM 像による

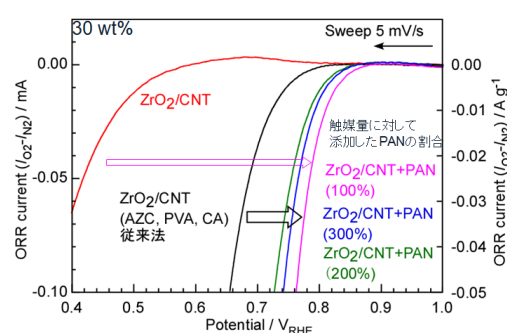


図 1 PAN 修飾 ZrO₂/C を焼成して得られた ZrO₂/C 触媒の ORR 特性

と、TiO₂(110)、TiO₂(100)電極のどちらでも表面から深さ25~50 nm 付近で Pd は 2 nm サイズにナノ微粒子化していた。Pd ナノ微粒子上で ORR が起こり活性化している可能性がある。しかし、TiO₂(100)で ORR が失活したことから、注入した Pd 上で ORR が進行している可能性は否定される。

インピーダンス測定から求めたキャリア密度、フラットバンド電位と ORR 活性の間には明確な相関がなく、TiO₂ 単結晶電極のORR 活性は、吸着物を含めた最表面構造により決定されていることが示唆される。

メラミンの添加により、Pd 注入した TiO₂(110)電極のORR 活性は、Pd 注入無し・メラミン修飾無しの TiO₂(110)と比較して 10 倍増大した。メラミン修飾で TiO₂(110)電極のORR が大きく活性化したことから、活性化因子には表面構造と吸着水の寄与が大きいと考えられる。

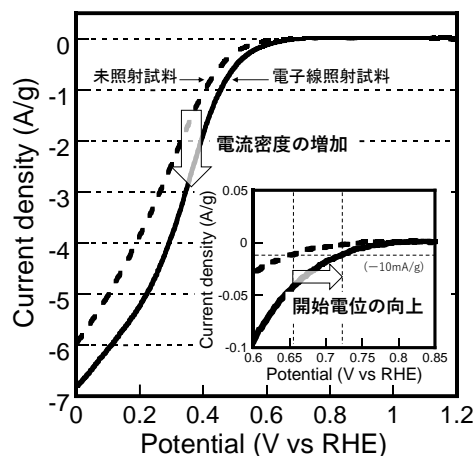


図 2 本研究で合成した TiO₂ 系触媒の ORR 活性(0.5M H₂SO₄, 回転電極法)

(3) 量子ビームを利用した活性点形成技術及び界面制御技術の開発 (量研機構)

TiO₂等の酸化物セラミックスへ酸素空孔を導入する方法として、真空中における電子線照射を検討した結果、照射によって酸素空孔の形成が可能であることが分かったが、照射後、空气中に曝露した時に酸素空孔が消失し、酸素還元(ORR)活性を示さなかった。導電パス不足も要因の一つと考え、これらを同時に解決する方法として、TiO₂ 粉末/ポリアクリロニトリル/カーボンナノチューブへの電子線照射・焼成を検討した。その結果、図-1 に示すように、電子線照射試料において、ORR 電流密度が増加するとともに、ORR 開始電位が向上した。以上のことから、電子線照射・焼成によって活性点 (酸素空孔) と導電パスを同時に形成する技術を開発した。酸素空孔の導入量の最大化・安定化、および導電パスであるカーボン相の設計・最適化が、今後の高活性化のための課題である。

一方、TiO₂ 系モデル薄膜にイオン照射による酸素空孔を導入した場合に、ORR 活性が向上することを確認した (千葉大、横浜国大、大阪大と協力)。

(4) 放射線反応場による異種金属がドーブされた酸化物触媒の合成 (大阪大学)

放射線反応場を利用した手法により、酸化物ナノ粒子触媒を合成した。Nb、Ti、Zr、Sn を対象元素として、導電性カーボンナノ粒子担体表面に酸化物ナノ粒子の分散担持を狙った。溶媒として超純水、還元補助剤として、2-プロパノールを用いた。ガラス製のバイアル瓶 (容量: 100 mL) 中に担体カーボン、水溶性金属塩、2-プロパノール、超純水を加えた。酸化物の担持量が 10~40 wt.%になるように、金属塩濃度および加えるカーボン量を調整した。溶液内の溶存酸素を除去するために、Ar バブリングを 15 分間行った後、容器を密閉し、コバルト 60 ガンマ線を照射した照射後の溶液から吸引濾過により試料を回収し、大気中で乾燥させることで粉末状のカーボン担持ナノ粒子を得た。活性点およびマイクロ導電パスの導入を目的として、熱処理時間・温度、ガス雰囲気、ポリアクリロニトリル (以下、PAN と表記) の添加有無をパラメータとして、追加熱処理を行った。代表的な結果の例として、NbO_x/Carbon 触媒で得られた成果を要約する。放射線照射後に担体であるカーボン表面に多数のナノ粒子が担持析出しており、またそれらを熱処理した試料でも粒成長はほとんど見られなかった。Nb 酸化物の結晶構造は特に熱処理温度の影響を強く受け、800℃で Nb₂O₅、1000℃で NbN であることが示された。900℃では、熱処理時間によって異なり、NbO_xN_y または NbO₂ であることが示された。こ

これらの結果は、PAN に含まれる窒素原子が Nb_2O_5 中にドーピングされたことを示唆しており、活性点の導入および導電パスの形成が両立できることが示唆された。担体として MWCNT を用いて Nb 系触媒を合成したところ、放射線法で得られた粒子の中では最高活性（開回路電位：0.90 V）が得られた。ナノチューブ担体の適用によりマクロ導電パスが確保されたことに加え、担体上での Nb の化学状態が変化しより高活性を示す状態となっているものと推測される。今後、複数元素の同時照射により元素ドーピングを行うことで、さらなる活性の向上が期待される。

(5) 高性能金属酸化物/CNT ハイブリッド触媒の開発（九州大学）

カーボンナノチューブ(CNT)やグラフェン(GP)は、極めて優れた導電性を持ち、高電位域でのカーボン酸化に対する耐久性が他のカーボンに比べて、はるかに優れているという大きな特長を持つナノ導電材料である。ここでは、これらを導電材料として用いた。Pd や Ph などドーピングした TiO_2 （および ZrO_2 ）を CNT あるいは窒素ドーピング CNT や GP に高分散担持した新規触媒を開発し、Pt/C に迫るカソード触媒のデザイン、合成し、それらのナノ構造解析及び酸素還元触媒能を精査した。また、安価な金属（鉄、ニッケルなど）に硫黄をドーピングした新しいカソード触媒の開発に関する検討を行った。

具体的には、Pd, Ir, Nb, Ph, あるいは Ag ナノ粒子を TiO_2 /ポリベンズイミダゾール(PBI)被覆 CNT(あるいは GP) に担持した新規触媒を合成した（図 1）。図 2 は、GP-ベース触媒の酸素還元能(ORR)を示している。ORR 活性は $\text{Pd} > \text{Ph} > \text{Nb} > \text{Ag} > \text{Ir}$ の順であった。CNT-ベースの触媒でも、また、窒素ドーピング CNT-ベースの触媒でも同様であった。また、Pd-ベースの触媒では、 $\text{OCV} = 0.89\text{V}$ であり、これらの ORR 活性は Pt/C に及ばなかった。一方、Fe/Ni-層状水酸化物/CNT に硫黄をドーピングした新しい触媒は、アルカリ中では、高い ORR 及び酸素発生能を示したが、酸性中での安定性の改善が必要であった。

(6) 酸化物ナノ粒子担持炭素の合成と酸化物触媒の耐久性の解明（国立大学法人大分大学）

中間目標である開回路電位 1.10 V、ORR 電流 0.45 A/g を得られる酸化物カソードの合成を目指して、まずは液相析出法による酸化物/炭素触媒の合成と活性点注入による新規カソード触媒を合成し、酸化物有効比表面積と触媒活性支配因子解明のモデル触媒としてグループ②及び③に供給することに取り組んだ。液相析出法で、酸化物として酸化チタン、炭素としてケッチェンブラックからなる、酸化チタン/ケッチェンブラック触媒を合成し、現行の PEFC 用触媒の類似の形態の触媒を得ることに成功した。

次に、活性点注入による新規カソード触媒の合成では、グループ③に参画の東京大学【Y. Yamamoto, S. Kasamatsu, and O. Sugino, J. Phys. Chem., 123, 19486-19492 (2019).】の論文を参考に、パラジウム、ニッケル、ルテニウム添加酸化チタンの作製と開回路（OCV）測定を実施した。一部については、

Metal(Pd, Ir, Nb, Rh, or Ag)-doped TiO_2 /ポリマー被覆CNT (or Graphene)ハイブリッド触媒の開発（水熱合成法）

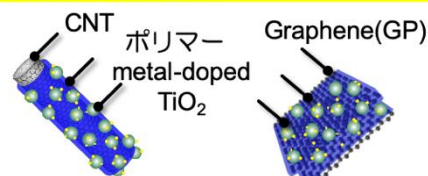


図 3 金属ナノ粒子担持 TiO_2 /CNT（もしくはグラフェン）/PBI 触媒の模式図

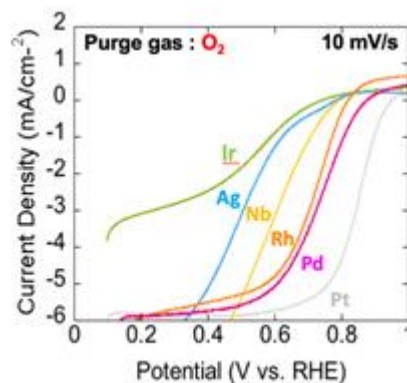


図 4 金属ナノ粒子担持 TiO_2 /グラフェン/PBI 触媒の ORR 活性

回転ディスク電極法による酸素還元反応活性の測定も実施した。

酸素飽和硫酸水溶液中で測定した OCV 値については、パラジウム添加酸化チタンで 0.91 V と最も高くなったが、目標値である 1.10 V には達しなかった。また、酸素還元反応についても 0.85 V でその質量活性が 0.81 mA/g であり、目標値には達しなかった。

目標値には達しなかったが、酸化物触媒の合成方法およびその酸素還元反応の評価について、民間企業から注目を受けており、他種の炭素材料の使用や活性点注入の最適化などによる改善研究を続けていく。

(7) 液相プロセスに基づく触媒能高度化/最適化のための精密合成手法の開拓 (宇都宮大学)

a) 液相合成プロセスを活用し、酸化物前駆体に有機高分子を液相で複合化した後、熱分解、炭化を行うことで酸化物に電子伝導パスとしてのカーボン複合化する手法を新たに開発した。このような複合化を行うことで、酸素還元 (ORR) 電流を電気化学的手法にて観測できるようになった。有機高分子にポリスチレン (PS) を用いた場合は、熱分解過程で有機高分子の分解揮発が生じ、複合化カーボン量は最大で 4 wt.% 程度であった。一方、複合化有機高分子として三次元架橋ポリマーであるフェノール樹脂 (PF) を適用し、前駆体であるレゾールとジルコニア前駆体を液相で複合化した後、熱分解と三次元架橋を同時に行うことで、複合化カーボン量を 72 wt.% にまで向上できた。また複合化カーボン量の増大に伴い、電気化学的特性 (還元電位、還元電流値) が大幅に向上した (図 5①)。

b) 複合化する有機高分子を炭素源 (電子伝導パス) としてだけでなく、窒素源としても活用するために、含窒素有機高分子であるポリビニルピロリドン (PVP) を複合化したところ、複合化カーボン量が 25 wt.% にまで低下したにも関わらず、約 3 wt.% の窒素が複合化されたことで電気化学的特性が向上した (図 5②)。炭素量とは独立に窒素を複合化できる試薬として、トリエタノールアミンを新たに見いだした。炭素源として(1)中で示した PF を用い、窒素源としてトリエタノールアミンを用いることで、複合化炭素量と複合化窒素量を独立かつ自在に制御できるものと考えられる。

c) 有機高分子である PVP に加え、カーボンナノチューブ (CNT) を同時に複合化したところ、電気化学的特性がさらに向上した (図 5③)。有機高分子が酸化物粒子内部にカーボン由来の電子伝導パス (マイクロ導電パス) を作るのに対し、CNT は酸化物粒子内間を繋ぐ電子伝導パス (マクロ導電パス) を作るものと考えられ、電気化学特性の向上にはこれら双方を適切な配分で導入することが重要であるものと考えられる。

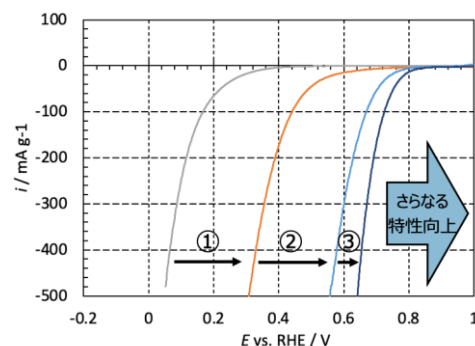


図 5 複合化試料の電気化学的評価 (LSV)

(8) 導電性酸化物担体の合成、及び触媒 - 導電性酸化物の界面構造最適化 (高知工科大学)

SnO₂ および P-SnO₂ 多孔体をソルボサーマル合成し、それらの導電率を測定した。その結果、空気中、400 °C で 1 時間 焼成した SnO₂ 多孔体 (焼成前の比表面積 224 m²/g) は、市販の S-2000 と比較し、遜色ない低い体積抵抗率を示した。また、触媒活性点に ZrO₂、導電性担体に SnO₂ からなるオール酸化物触媒の合成法を確立した。

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) 本事業には関心を表明している企業が 5 社あり、2030 年度前後に実用化、事業化に向けた取組を行う予定である。本事業は中間目標に未達であることなどから終了となったが、酸化物カソード触媒を開発することは将来の多様な固体高分子形燃料電池の社会導入には必須であり、固体高分子形燃料電池の社会導入が進めば、実用化、事業化検討に入る見通しは明るい。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021.3	第 5 回 構造ナノ化学研究会 (オンライン)	4,5 族遷移金属化合物による固体高分子形燃料電池の非白金カソード触媒	久保田純
2	2021.3	電気化学会第 88 回大会(オンライン)	金属ドーブ TiO ₂ 単結晶電極上の酸化還元反応の活性化因子	亀田菜摘、中村将志、出崎亮、山本春也、星永宏
3	2021.3	日本化学会第 101 春季年会	放射線を用いたカーボン担持 SnO ₂ ナノ粒子の合成	新吉 直樹、清野 智史、上垣 直人、藤枝 俊、中川 貴、山本孝夫
4	2021.3	第 127 回触媒討論会 (オンライン)	炭酸ジルコニウムで架橋されたポリビニルアルコールを用いて調製した固体高分子形燃料電池のカソード触媒	亀山直幹、Rexiti Rukeya、久保田純
5	2021.8	Journal of the Hydrogen Energy Systems Society of Japan	非貴金属酸化物ベース酸素還元触媒	石原 顕光、富中悟史、久保田純
6	2021.11	2021 年日本化学会中国四国支部大会 高知大会	球状 SnO ₂ 多孔体の単工程ソルボサーマル合成	谷口彩乃、柳原宗果、大谷政孝、小廣和哉
7	2021.12	QST 高崎サイエンスフェスタ 2021	量子ビームを利用した金属酸化物系触媒の開発	出崎亮、山本春也

8	2021.12	MRM2021 Materials Research Meeting	Developments of Carbon-supported Zirconia Catalysts as Non-platinum Cathode Catalysts for Polymer Electrolyte Fuel Cells	J. Kubota, R. Rukeya, R. Hayashi, N. Kameyama
9	2022.1	電気化学会第89回大会 (オンライン)	PdドーブTiO ₂ 単結晶電極上におけるORR活性化因子	恩田 拓実, 山本 春也, 出崎 亮, 中村 将志, 星 永宏
10	2022.3	化学工学会第87年会	SnO ₂ 系複合材料の単工程ソルボサーマル合成とその物性評価	谷口 彩乃、大谷 政孝、小廣 和哉
11	2022.3	2021年 電気化学会第88回大会	貴金属を使わないFe/Ni/S系高性能酸素還元・酸素発生触媒の構築と応用	Aleksandar Staykov, Naotoshi Nakashima
12	2022.3	QST Takasaki Annual Report 2020	Development of metal oxide-catalysts utilizing quantum beam irradiation technique	出崎亮, 山本春也
13	2022.7	第59回化学関連支部合同九州大会	パラジウム添加酸化チタンの作製と酸素飽和硫酸水溶液中でのOCV評価	三原康平、横溝 英子、衣本 太郎
14	2022.8	RSC Advances - The Royal Society of Chemistry	Insights into Solvothermal Reaction for Synthesizing Tin(IV) Oxide Porous Spheres	Ayano Taniguchi, Rei Miyata, Masataka Ohtani, Kazuya Kobiro

課題番号（管理番号）：IP07

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／超高電位を目指した酸化物カソードの開発・先端計測と理論解析による触媒能発現機構の解明」

実施者：国立研究開発法人物質・材料研究機構、国立大学法人東京大学（国立大学法人山形大学）、株式会社日産アーク

期間：2020年8月～2022年6月

1. 研究開発概要

燃料電池は、燃料の化学ポテンシャルを直接電気エネルギーに変換可能なシステムであり、理論的には内燃機関などと比べ高い効率を有する。現在までに運輸用途の燃料電池としては、高分子電解質膜を用いる固体高分子形燃料電池が実用化され、2050年にカーボンニュートラルを目指す宣言のもと、二酸化炭素排出抑制の1つのキーデバイスと考えられている。その本格的な普及を目指し、我が国を含む先進国が中心となり精力的な研究が進められているが、理論効率に近づけるためには材料の開発が必須である。特にカソード性能が効率低下の最大の要因であり、酸素還元触媒の飛躍的な性能向上が求められている。

このような背景の中、本事業では非貴金属酸化物を用いて白金を凌駕し、理論効率に近い触媒開発を目指して研究を行ってきた。そのような白金を凌駕する電位を、「超高電位」と定義し、既存の考えとは異なる視点での研究を行ってきた。これまでの人類の研究では、白金および白金合金触媒が最も良い触媒ではあるものの、数十年に渡り世界中で研究がされてきたが、理論起電力と比べ20～30%近いロスを生んでいる。その根本原因は、近年の理論研究においてスケーリング則による制約としてまとめられ、白金を含むほとんどの材料でこの制約を受けている可能性が議論されている。

酸化物触媒の開発を行ってきた我々のチームでは、東京大学の杉野らが酸化物触媒においてはスケーリング則脱する可能性があるという理論予測を報告しており、横浜国立大学の石原らが開発してきた酸化物触媒が非貴金属触媒のみならず、白金を凌駕する可能性を秘めていることが分かってきた。本事業を含む「超高電位を目指した酸化物カソードの開発」事業では、そのような酸化物表面の可能性に着目し、スケーリング則脱する可能性を科学的に明らかにし、セレンディピティに立脚した開発ではなく、科学的に着実な研究開発が行える段階に引き上げることが目的である。

本事業では放射光などの先端計測技術と理論解析を密に連携し、触媒能発現機構を理解し、触媒設計や合成指針を提案することをアウトカムとしている。また、そのための計測・解析の方法についても、酸化物触媒のみならず、燃料電池カソード触媒の研究全体への波及効果も期待できるため、プロトコルとしてまとめることを狙いとした。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

本事業を含む「超高電位を目指した酸化物カソードの開発」事業の目標設定に際して、酸化物触媒の課題の定量的理解のために、2017年に横浜国立大学が発表した酸化ジルコニウム触媒の発電性能について（ACS Omega, 2, 678–684, 2017）、電流-電圧曲線の回帰分析からパラメータ分離を行った。図1のように、80℃の発電性能は高い電位域では第一世代MIRAIと比較しても大きな遜色はなく、高負荷時の性

能の低さが課題と言える。この原因は様々なものが考えられるが、触媒活性の低さを触媒量で補うため、触媒層内のイオンや物質移動の抵抗が主な原因と考えられた。また、酸化物触媒は金属伝導性ではなく、担体との界面の抵抗も大きいと懸念されている。0.1M 硫酸中の回転ディスク電極での試験結果のパラメータと上記の実測データ内部抵抗を用いて、電流-電圧曲線を予測からは、酸化物触媒では、50℃の差や硫酸溶液中の試験とガス拡散電極との差が大きい。反応の活性化エネルギーの議論や、水の吸着の影響についても議論や解析を開始している。

これらのデータおよび他のシミュレーションをもとに、超高電位を目指すために、スケーリング則を脱した証明として、白金触媒では到達しえない電位域での酸素還元活性の確認を主な共通目標として設定し、科学に基づき着実に性能を上げる目標を設定した。また、科学的には、福岡大学が代表の事業では、合成法の探索を軸に高活性な触媒合成を検討した。横浜国立大学が代表の事業では、担体との界面や表面の抵抗の理解を軸に研究を進めた。物質・材料研究機構が代表の本事業では、活性発現機構の解明を軸に研究を進めた。

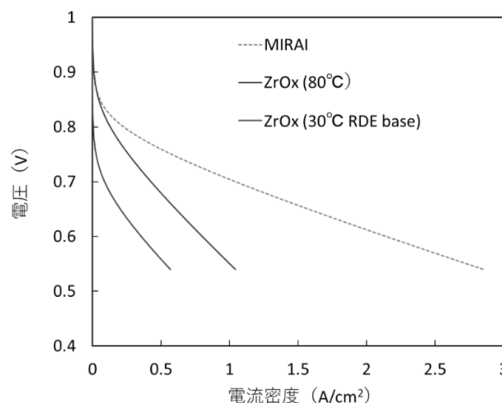


図1 酸化ジルコニウム触媒の発電性能と初期MIRAIの比較。プロットの方法：(1) MIRAI：公開されているIV性能からデータを読み取り、Pt触媒のTafel勾配とセルの内部抵抗の情報を加味して、読み取りデータ点を再現するように回帰分析を行った。(2) ZrO_x (80℃)：発表論文のIV性能からデータを読み取り、ハーフセルのTafel勾配を用いて同様の回帰分析を行った。(3) ZrO_x (30℃)：RDE試験の質量活性と80℃の発電性能評価時のパラメータ(担持量など)を用いて回帰分析を行った。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
計測と理論の包括的な議論 (全機関)	ジルコニア系触媒に関して、活性サイトや界面のより詳細な理解を目標とする。 具体的には、酸素空孔量(欠損)の量とORR活性の相関を明確化することを目標とする。	酸素空孔が安定な酸窒化物結晶構造を作ると活性が観測された。理論的にも表面に酸素空孔が安定に存在すると予測された。一方、酸素空孔は活性サイトではない可能性が理論予測された。酸素空孔は間接的に活性の観測に寄与している可能が世界で初めて明らかになった。	◎	本成果に基づき、更に詳細を理解するための材料合成と、現実系を再現する大規模計算が次の課題である。
先端構造解析に基づく活性サイトの原子配置の解	ジルコニア系触媒の活性の起源の解明を目標とする。分子技	酸素空孔の理解：実験操作として、窒素ドーピングについて結晶構造の観点か	○	電子移動が律速の場合、構造と活性の相関が不確かになるた

<p>明 (物質・材料研究機構)</p>	<p>術を用いてモデル試料を合成し、放射光解析や電気化学計測を行い、実験操作と触媒活性の相関を明らかにする。</p>	<p>ら細かく調査した。ジルコニウム酸窒化物の結晶相(β相)が得られる時に触媒活性が発現した。相とORRに相関があることは明白である。理論チームとの議論を通じて、計算予測に繋げた。</p>		<p>め、確実な導電性が得られるサイズや界面構造を有する材料の合成を行い、原子配置などの構造と活性の相関をより明確にする。</p>
<p>理論解析に基づく材料設計指針の確立 (東京大学、山形大学【再委託】)</p>	<p>ジルコニア系触媒について欠損などの活性に与える影響を理解する。また欠損分布やポテンシャルプロファイルの予測をする。</p>	<p>ジルコニウム酸窒化物などについて真空表面および金属との界面における酸素欠陥、窒素、ドーパントの濃度プロファイルを計算し、組成や温度、酸素ポテンシャルに依存した偏析挙動を予測した。組成比の異なるジルコニウム酸窒化物からなる電極界面のモデリングを行い、酸素空孔は活性サイトではない可能性が示された。別の理由で活性が発現している(間接的な効果)の可能性が高いことを意味している。</p>	<p>○</p>	
<p>先端計測に基づく材料合成指針の確立 (日産アーク)</p>	<p>酸化物プロジェクト全体で合成されるサンプルについて放射光や電子顕微鏡分析結果から ORR 活性、電子伝導性に寄与する構造情報を抽出し、活性点構造解析の方法論と界面構造解析の方法論を確立する。</p>	<p>種々のモデル触媒について、電子顕微鏡観察やHAXPESを中心とする先端計測を用いて解析を実施した。得られた結果を合成担当機関にフィードバックを行った。</p>	<p>△</p>	<p>酸化物触媒の活性点は非常に複雑であり、その構造の特定には、カーボン系の不純物、窒素由来の不純物や複数の活性点が混在しない形のモデル触媒、モデル電極が必要である。上記のような解析に適したサンプルの作製、提供が課題である。</p>

3.2 研究開発の詳細

(1) 計測と理論の包括的な議論（全機関）：酸化物触媒に限ったものでないが、より高度に設計した触媒を生み出すには、実験と理論の密な議論と包括的な理解が不可欠であるため、そのために実験と理論の距離を近くして議論を重ねるために設定した課題である。

以下の課題(2)において、酸素空孔が安定に存在する結晶構造の場合に ORR 電流が観測されるという事実は得ており、課題(3)において実験を模した大規模計算により、材料の表面に酸素空孔が安定に存在可能であるという予測を得ている。これらは酸化物触媒でこれまで議論されてきた酸素空孔が活性サイトであるという仮説を示唆するように考えられる。しかし、さらに酸素空孔は活性サイトを形成しないことが理論的に予測された。これらの知見は、酸素空孔が間接的に活性の観測に寄与していることを示しており、世界で初めて得た知見である。

この理解に基づき、酸素空孔が電子移動に寄与している仮説について課題(2)と課題(4)で検討を進め、酸素空孔が表面の吸着水構造に影響を及ぼす可能性を課題(3)で検討を行った。いずれも中間目標を超えた検討の範囲であり、成果はまとまり次第、別の機会に報告する。

(2) 先端構造解析に基づく活性サイトの原子配置の解明（物質・材料研究機構）：実材料の理解を深めるためには、科学的な狙いを持った合成と計測・解析が必要なため、精緻な合成と解析を組み合わせる必要があるために設定した課題である。

酸化ジルコニウム系触媒の活性の起源を明確にするために、実験としてモデル物質を大量に合成し、酸素還元活性が観測される触媒と結晶構造の相関を念入りに調べた。材料はプリカーサーを純度の高い錯体の結晶を合成し、それを制御した雰囲気下で熱分解することで合成した。試料はラボ装置でのスクリーニングと詳細を SPring-8 やあいち放射光で構造解析を丁寧に行った。その結果、蛍石構造タイプの結晶相の中で、N ドープによってできる安定な酸素欠損サイト（Bevan クラスタ構造）、特に酸窒化ジルコニウムの結晶相（ β 相）が得られる時に活性が観測されることが分かった。この事実は直ぐに理論チームに展開し、議論を行い、課題 4 の山形大の仮想実験、その後課題 3 での活性予測へと連携した。

その後、酸化物触媒で議論されているカーボンの添加効果について議論するために、グラッシーカーボン電極上に横浜国立大学でアークプラズマ法を用いて酸窒化物薄膜を形成した。本検討は計画の前倒しの部分であり、30 サンプル程度の予備的な研究ではあるが、概要を報告しておく。超薄膜の場合、一般的には絶縁体となる酸窒化物や酸化物も電極として作動することが確認でき、触媒・担体界面の抵抗は超薄膜化で低減できるものの、触媒の応用は難しい $k\Omega$ レベルの抵抗が残った。そこで表面に比活性の酸化グラフェンをのせ、還元処理をすることで大幅な改善が見られることまでは研究を進めた。本件は酸化物触媒の高次構造の最適化という点で実応用を考えた場合に必要な技術になると考えている。

(3) 理論解析に基づく材料設計指針の確立（東京大学、山形大学）：実材料内部を理解するための計算（仮想実験）を行い、実験との比較を行いつつ、計算化学を用いて酸化物表面での酸素還元反応について理論的な見地から理解を深めるために設定した課題である。

本研究の目的は、第一原理計算および第一原理計算に基づく機械学習モデルを用いた計算を行い、ジルコニウム酸窒化物電極界面の原子構造及び酸素還元反応(ORR)活性を解明することにある。具体的には、(a) 酸窒化物の結晶構造及び表面構造を得るためのモンテカルロ仮想実験、さらに(b)得られた表面上での ORR 活性を予測するための ORR 中間体網羅計算を行うのが目的となる。

(a)：オリジナルな計算プログラム abICS を用いた第一原理モンテカルロ法を行うことにより、電荷分布等に関

する実験と相補的な情報を得ることができる。計算を行った結果、実験的に存在が示唆されている Bevan クラスター構造が β 相($Zr_7O_8N_4$)中に形成されること、表面スラブモデルにおいては、結晶内部から表面第 1 層まで、Bevan クラスター構造に見られる酸素欠損の規則的な配置が維持されることが示された(図 2)。さらに窒素不純物は表面第 2 層より深い位置に酸素原子を置換する形で配置することもわかり、水溶液中でなぜ置換窒素が安定に存在するかの説明が与えられた。さらに、得られた格子欠陥の分布(偏析)を用いて、界面に誘起される静電ポテンシャルの変調を求めた。この変調により、ショットキー障壁の変調による導電性の変化や、活性の電位依存性に影響を及ぼす可能性がある。実際、表面から 5 Å 程度の領域で 0.5 V 程度の変

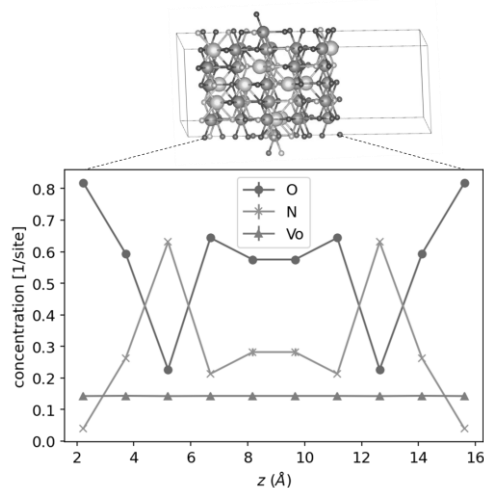


図 2 $Zr_7O_8N_4$ (β 相)表面スラブ中での欠陥分布

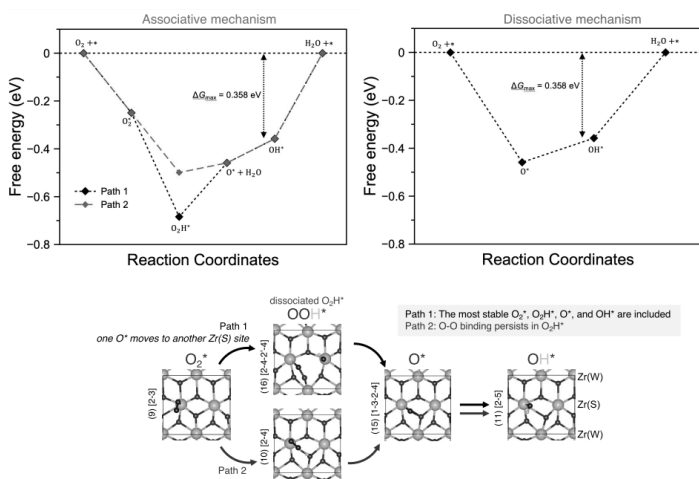
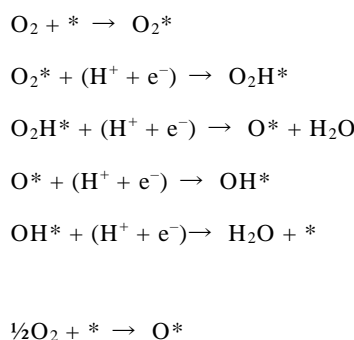


図 3 酸化ジルコニウム(ZrO_2)触媒の表面上で起こる酸素還元反応(ORR)の反応自由エネルギー(上)と反応中間体の構造(下)。上左図は associative 機構(反応式 1-6)、上右図は dissociative 機構(反応式 7,4-6)に対応する。

調が起きるといふ結果を得た。これは活性を決める重要なパラメータの 1 つであると考えられるが、その影響の定量化には至っていない。ORR 全面解明に向けて残された課題の 1 つであるといえる。

(b) : モンテカルロ計算で得られた構造を用いて、酸素還元反応(ORR)中間体の構造網羅的計算を次に行った(図 3)。計算からは、酸素分子は表面で乖離吸着する傾向があること、水酸化物(OH^*)の吸着が強くそれが還元されて水分子になる過程が ORR を律速すること(すなわち OH 被毒する傾向にあること)なども示唆された。律速過程の反応自由エネルギーは、酸窒化物でも酸化物(ZrO_2)でも同様な値を示すことから、欠陥導入によって変化するのは活性ではなく、むしろ導電性であろうという推論に行き着いた。



また、本プロジェクトでは、触媒表面の水分子の吸着・脱着のしやすさが高活性を得る上で重要なのではないかと、いう実験的な示唆が得られている。そこで、当初予定していなかった取組として、機械学習分子動力学計算を開始した（図 4）。第一原理計算を再現するポテンシャルを機械学習によって構築し、そのポテンシャルを用いた大規模・高速計算によって酸化物表面近傍の水溶液や吸着水分子の構造を得るのが狙いである。信頼性を有するポテンシャル構築のために、深層学習の方法を用いた結果、十分高精度なポテンシャルの構築に目途が立った。格子欠陥や不純物が水分子の吸着構造に及ぼす影響について、本事業内で可能な範囲でまとめる方針である。

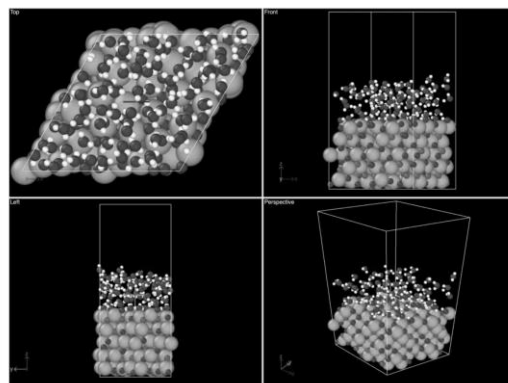


図 4 水/ $Zr_7O_8N_4$ 界面の構造

(4) 先端計測に基づく材料合成指針の確立（日産アーク）：実材料の計測・解析を通じた理解を深め、その方法論を確立するために設定した課題である。放射光解析（主として、硬／軟 X 線光電子分光、X 線吸収分光法）や電子顕微鏡を用いた、高活性サイトの構造、および、良好な電子伝導を実現する界面構造をより高精度に解析する方法論の確立を進め、また、前プロジェクトも含めこれまでに構築した分析・解析手法も活用し、活性サイト／界面の詳細構造解析、および、これに基づく新規触媒材料の材料合成指針の提案を目指した。福岡大学が代表の事業から提供される高活性サイト構造や界面構造解析に適したモデル触媒の提供に遅れが生じたため、横浜国立大学が代表の事業、および、本事業によって触媒表面・界面の電子伝導性の制御を主目的に作製された薄膜触媒サンプルについて、角度分解 XPS/HAXPES を用いた電子状態分析を中心に実施した。

① TiO_2 系および ZrO_2 系薄膜モデル触媒の分析：大阪大学が作製した TiO_2 薄膜ならびに ZrO_2 薄膜は、いずれもアモルファス的な構造を有すると予想され、構造の乱れから生じるギャップ内準位により触媒表面の電子伝導性を担保しようとする狙いがある。熱処理の有無によるギャップ内準位の変化、膜構造の変化を AR-HAXPES および TEM により調べた結果、 TiO_2 薄膜ではアニールによりアモルファスから結晶へ変化する一方、ギャップ内準位の消失や Ti^{3+} 成分の減少が確認された。 ZrO_2 薄膜でもアニールにより Zr 低価数成分の減少が見られている。さらに大阪大学、横浜国立大学で作製した $TiO_2/Pd/TiO_2$ サンドイッチ触媒薄膜では、 TiO_2 の構造乱れに加え Pd の電子状態や Pd/ TiO_2 界面準位が伝導性に影響すると予想されている。こちらについても AR-XPS によりギャップ内準位や TiO_2 価電子帯の状態変化といった Pd の効果が確認されている。

② $ZrON$ 系薄膜モデル触媒の分析：物質・材料研究機構、横浜国立大学で作製したジルコニウム酸窒化物薄膜では、触媒の構造や電子状態、電子伝導機構が担体のグラッシーカーボンの影響を受けていることが考えられる。この試料について AR-HAXPES 分析を行い、ギャップ内に準位が存在すること、ジルコニウム酸窒化物/グラッシーカーボン界面がショットキー接合であるという結果が得られている。

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

超高電位酸化物の 3 事業では、研究の学術的な議論を交わす開発会議に加え、知財を移転するための拡大会議（関心表明企業向けの説明会）を当初から計画し、それぞれ NDA を結び、事業の運営を行ってきた。これは極力、学術的な議論は制約なく活発に行い、かつ知財を企業に橋渡ししていくための戦略である。知財に関しては製法特許よりも物質特許を合成チームには検討して進めてきた。本事業は基本的には計測と解析

を担当しており、知財に注力はしていないが、物質・材料研究機構の材料に関しては、物質特許にすべきかの判断が終わるまでは発表を控え、情報管理をしながら進める戦略をとった。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021.6	Journal of the Hydrogen Energy Systems Society of Japan	非貴金属酸化物ベース酸素還元触媒	石原 顕光、富中悟史、久保田純
2	2022.10	Journal of the American Chemical Society	Symmetric Breakage-Induced Semimetallic State: Polymorphism in Ruthenate Nanosheets	Kazutaka Sonobe, Satoshi Tominaka, and Wataru Sugimoto
3	2021.11	IWAMSN 2021	Structural analysis of nanomaterials for fuel cells by using pair distribution functions	Satoshi Tominaka
4	2021.12	第 62 回電池討論会	電界紡糸法による PEFC 用 TiO ₂ 系触媒の高活性化	大城善郎、富中悟史、門田隆二、石原顕光
5	2021.4	第 28 回燃料電池シンポジウム(FCDIC)	PEFC 用カソード触媒に関する基礎検討 (X X) ~酸化物の半導体特性と酸素還元触媒能~	石原顕光、永井崇昭、池上芳、門田隆二、黒田義之、松澤幸一、光島重徳、久保田純、今西哲士、富中悟史
6	2022.3	日本物理学会	ニューラルネットワークポテンシャルを用いたジルコニウム酸窒化物の水分子吸着構造解析	笠松秀輔、中西章尊
7	2022.3	「富岳」電池課題 第 2 回公開シンポジウム (成果報告会)	新型燃料電池のための第一原理物質科学シミュレーション	杉野修

課題番号（管理番号）：IP08

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／十四員環型活性点の高活性化・高密度化による革新的非白金触媒の研究開発」

実施者：国立大学法人東京工業大学、旭化成株式会社、国立大学法人熊本大学、国立大学法人静岡大学

期間：2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

本事業では、東京工業大学が実施してきた NEDO 固体高分子形燃料電池利用高度化技術開発（H27-R01 年度）、および東京工業大学、静岡大学、熊本大学、旭化成株式会社が実施してきた NEDO エネルギー・環境新技術先導研究プログラム／革新的非白金触媒のビルドアップ的作製方法の研究開発（H30-R01 年度）の研究内容を発展させ、図 1 左に示す研究体制の下、非白金触媒の酸素還元触媒活性を飛躍的に向上させることを目的とする。酸素還元非白金触媒について、図 1 右に示すような十四員環型活性点に着目し、合成化学的に活性点構造を制御することによって高活性化を図る。さらに活性点の高次構造制御やこれまで開発してきた熱処理型触媒とのハイブリッド型触媒の開発を行い、これまでの熱処理型触媒を大幅に上回る活性点密度を確保し、革新的非白金の作製法を確立する。

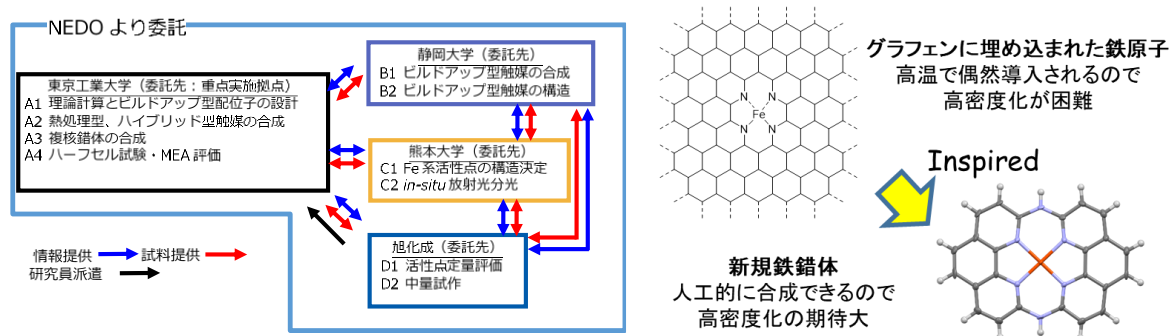


図 1. 本事業の研究体制（左）と研究内容の概念図（右）

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

事業全体の目標を以下に示す。各実施項目の中間目標は 3.1 に示す。

○中間目標（2022年6月）

RRDE ボルタンメトリーで 1 mA cm^{-2} を与える電位が、2020 年型熱処理触媒に対して 60 mV 以上向上していること。

○最終目標（参考）（2024 年度）

・25℃での酸素還元 RRDE ボルタンメトリーにおいて、0.9 V の質量比活性が 1 A g^{-1} を超えていること。

目標設定の考え方は以下の通りである。これまでの検討や産業界へのヒアリングの結果から、2020 年型熱処理触媒の 30 倍の触媒活性を確保すれば定置用で、200 倍以上の触媒活性を確保すれば移動体用で、非白金触媒を実用化できると考えている。2040 年までにこのような触媒活性を実現するために、本事業の 5 年間はまず 2020 年型熱処理触媒の 10 倍の触媒活性を確保することを目標とした。2020 年型熱処理触媒の Tafel 勾配は約 120 mV dec^{-1} であるので、120 mV の電位向上が 10 倍の触媒活性に相当する。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
A-1.理論計算による十四員環型非白金触媒の設計指針の構築	先導研究で試作したビルドアップ型触媒数種類について理論計算を行い、配位子の違いが酸素還元触媒活性に及ぼす影響を理論的に明らかにすること。	先導研究で試作した触媒を含め数種類の活性点構造に関して計算を完了。	○	安定性を向上させる触媒設計の指針を示すこと。
A-2.熱処理型触媒の高性能化とハイブリッド型触媒の開発	直径 50 nm 以下のポリイミド微粒子の作製方法、さらにその炭素化法による熱処理型触媒の作製方法を確立していること。	50 nm 以下のポリイミド微粒子を作製。その上に十四員環 Fe 錯体を担持して熱処理することにより、A-4 での最高活性を達成した。	○	活性点密度を向上させる方法を見出すこと。
A-3.十四員環型複核錯体の合成	少なくとも 1 種類の複核錯体の合成法を確立し、A-4 に提供を完了していること。	1 種類の合成を完了。触媒活性は向上しなかったが、理論計算を踏まえて設計を見直した配位子の合成に着手。	○	A-1 で安定性が高い活性点構造を見出した上で、これを複核化する。
A-4.十四員環型非白金触媒の触媒活性評価	RRDE ボルタンメトリーで 1 mA cm ⁻² を与える電位が、2020 年型熱処理触媒に対して 60 mV 以上向上していること。	724 mV → 787 mV で 63 mV 向上。中間目標を達成。2021 年の DOE Annual Merit Review の報告を上回る触媒活性。	○	MEA の評価。
B-1.十四員環型非白金触媒の合成	異なる「芳香環のサイズ」と「芳香環上の官能基」を持つ複数種の新規十四員環型配位子を合成していること。また、それらの配位子と金属塩との反応から、複数種の単核錯体型非白金触媒を合成していること。	種々の金属中心を導入した新規 14 員環錯体の合成、単離に成功。	○	触媒活性、耐久性の向上に繋がる新規錯体を合成すること。
B-2.十四員環型非白金触媒の結晶構造解析	項目 B-1 で合成する新規十四員環型配位子あるいは単核錯体型非白金触媒について、少なくとも一種類の化合物について単結晶 X 線構造解析に成功していること。	新規 14 員環配位子を有する金属錯体の結晶構造解析に成功。このような多数の 14 員環錯体の結晶構造の解明は世界で初めて。	○	さらに多くの新規錯体の単結晶を解析する。

C-1. 熱処理型、ハイブリッド型触媒の構造解析	新規に開発された熱処理型およびハイブリッド型触媒の可視化と活性点の価数及び局所構造を明らかにし、錯体および図2のAからCに示す従来型触媒との比較が完了していること。	熱処理した14および16員環 Fe 錯体触媒の構造を解析した。	○	スピンに関する考察を進める。
C-2. In-situ 放射光分光による十四員環触媒の安定性評価	In-situ 放射光実験によって十四員環触媒の安定性を評価するためのプロトコルを作成すること。また、これに基づき、少なくとも1種の新規非白金触媒の劣化挙動を観察し、図4のAからCに示す従来型触媒との違いを明らかにしていること。	熱処理によって14員環 Fe 錯体触媒の Fe 溶出に対する耐性が向上することを明らかにした。	○	さらに安定性が向上した触媒の測定。
D-1. 十四員環型非白金触媒の活性点定量評価	D-2 で試作した十四員環型非白金触媒（ないしは試作した十四員環配位子を基に合成された十四員環型非白金触媒）について、電気化学的に活性な金属サイト数を解析し、金属サイトの利用率の見積もりが完了していること。	東工大提供 14,16 員環錯体/C や熱処理型ハイブリッドの測定を完了した。	○	活性点密度がさらに向上した触媒の定量評価。
D-2. 十四員環型非白金触媒の中量試作	A-3、B-1 で見出された十四員環配位子ないしは十四員環型非白金触媒の内、少なくとも2種類について中量合成を行い、試料を必要とする他機関に提供を完了していること。提供する化合物の合計量は1g以上を目安とする。	十四員環配位子前駆体6種の中量合成（全て15g以上合成）を行い、各機関に配布した。	○	本項目は2022年6月に終了した。

3.2 研究開発の詳細

(A1) 十四員環 Fe 錯体の高活性化のメカニズムを明らかにするために、密度汎関数法 (DFT 計算) による吸着エネルギーの計算を行った (図 2)。その結果、熱処理により軸配位子の脱離が進行し、酸素種の吸着エネルギーが変化し、酸素還元反応が促進されることが明らかとなった。

(A2) カーボンブラックに十四員環 Fe 錯体を担持し、熱処理を施したところ、図 3 左および中に示すように、酸素還元活性が向上することを見出した。さらに前年度に作製法を確立した、直径 50 nm 以下のポリイミド微粒子から得られた熱処理型触媒に対して錯体を担持し、さらに熱処理を施したところ、図 3 右に示すような触媒活性が得られた。

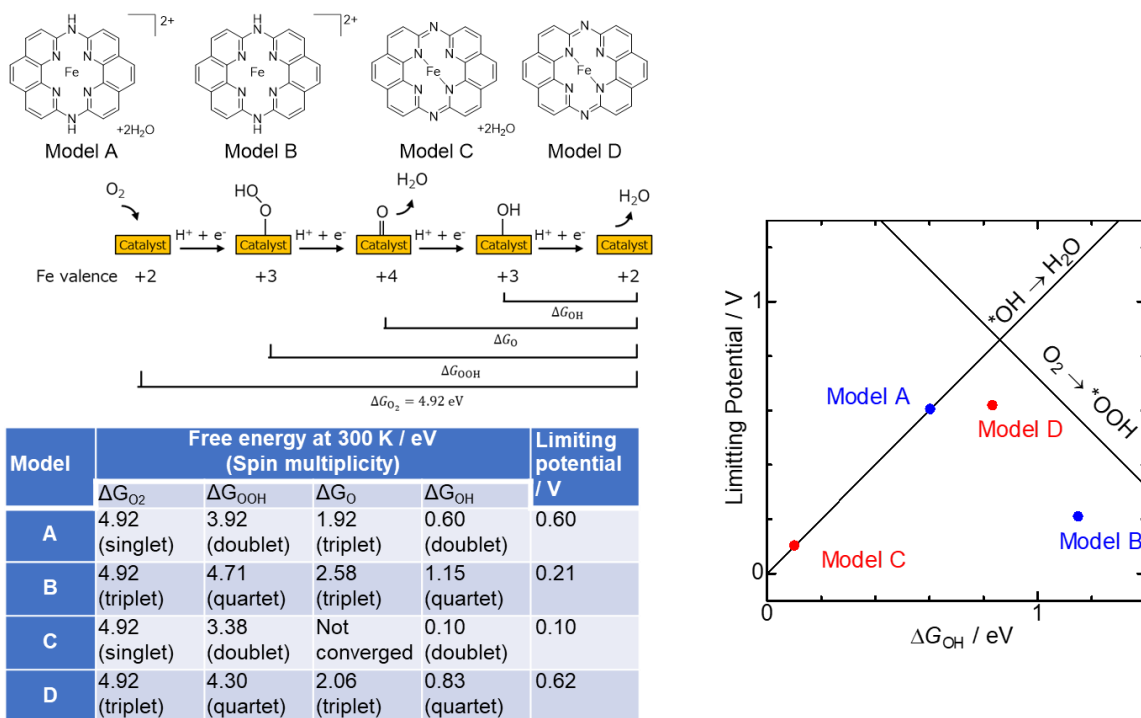


図 2. 十四員環 Fe 錯体上での酸素還元に関する DFT 計算

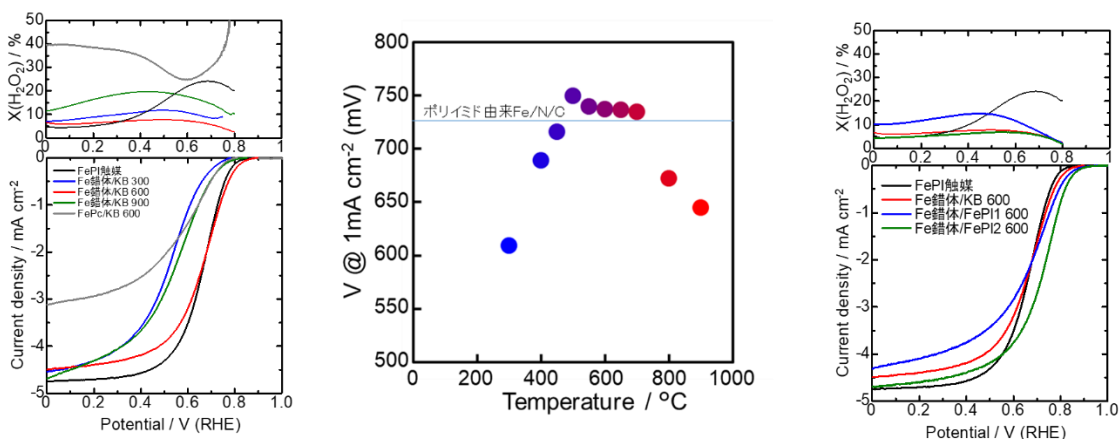


図 3. 炭素に担持した十四員環 Fe 錯体の熱処理による高活性化

(A3) 1 種類の新規二核錯体について、合成と触媒活性評価を完了した。

(A4) 図 3 右に示す RRDE ボルタンメトリーによって、中間目標を達成した。これは 2021 年の DOE Annual Merit Review の報告を上回る触媒活性である。

(B1) 鉄以外の金属中心を有する新規錯体の合成を目的として、種々の金属塩と十四員環型配位子との反応を検討した。その結果、コバルト、ニッケル、銅、マンガンを中心金属として有する新規十四員環型錯体の合成に成功した。

(B2) B-1 で得た新規錯体の単結晶 X 線構造解析を行った。種々の金属中心を有する 10 種類以上の十四員環型錯体について結晶構造解析を実施し、結合長や結合角などに関する詳細な構造パラメーターを得ることに成功した。十四員環錯体に関してこのような多数の結晶構造が明らかとなったのは世界で初めてである。

(C1) X 線吸収分光法、X 線光電子分光法、昇温脱離法などによってカーボン担持十四員環 Fe 錯体の熱処理後の触媒活性中心である Fe の価数および局所構造を評価した。その結果、480℃から 600℃の熱処

理によって錯体が図 4 のように変化し、十四員環 Fe 錯体の特徴であるコンパクトな FeN₄ 活性点中心を維持することが示唆された。これに対し、従来型十六員環型 Fe 触媒である Fe フタロシアニンは構造が崩壊した。

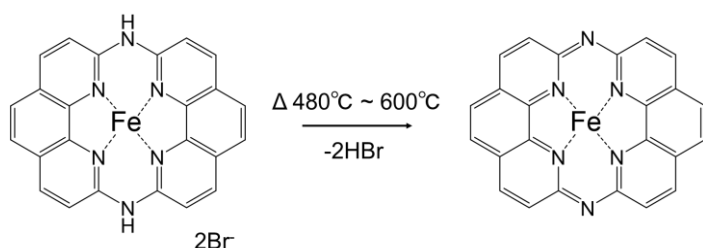


図 4. 熱処理によるカーボン担体上での十四員環 Fe 錯体の構造変化

(C2) 図 5 に示すような、in-situ 放射光分光によって、Fe の溶出挙動を評価することに成功した。十四員環 Fe 錯体は、十六員環 Fe 錯体よりも中心金属の安定性が高いことが明らかとなった。

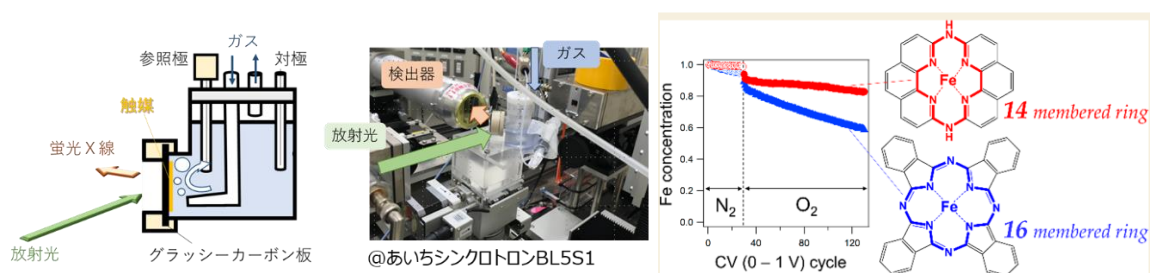


図 5. In-situ 放射光分光による十四員環触媒の安定性評価

(D1) 他機関から提供された触媒 6 種について、電気化学的に活性な金属サイト数を解析し、金属サイトの利用率の定量評価を行った。

(D2) 十四員環配位子前駆体 6 種の中量合成（全て 15g 以上合成）を行い、各機関に配布した。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 中間目標を計画通りに達成しており、最終目標も十分に達成可能であると考えている。

(2) PL との意見交換に基づき、最終目標の指標を 0.9 V の質量活性（RRDE）に変更する。2020 年型熱処理触媒の 10 倍の触媒活性、という考え方は維持する。

(3) これまでの開発で TOF が 5 倍程度に向上した。今後活性点密度を 2 倍以上に向上させれば最終目標が達成可能である。

4. 成果の実用化・事業化に向けた取組及び見直しについて

(1) 初期性能 0.3 A/cm² at 0.75 V & 80°C（常圧）を達成する MEA の見直しを得た時点で、定置用での実用化を想定した劣化対策に注力し、サンプルワークの準備を行う。

(2) 車載用には性能目標を達成するための触媒開発を継続し、2020 年型触媒の 200 倍以上の触媒性能を目指す。車載用の目標性能を見通せた時点で、自動車会社へのサンプルワークを進められるよう、生産体制の強化を進める。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2021/8/19	特願 2021-134165	含窒素炭素材料及びその製造方法、並びに、酸素還元電極触媒	東京工業大学、静岡大学、熊本大学、旭化成株式会社
2	2021/8/19	特願 2021-134181	含窒素炭素材料及びその製造方法、並びに、酸素還元電極触媒	東京工業大学、静岡大学、熊本大学、旭化成株式会社

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2020/11/5	材料表面	炭素表面が関わる触媒反応	難波江裕太
2	2021/4/10	触媒年鑑 触媒技術の動向と展望 2021	固体高分子形燃料電池用非白金触媒の開発動向	難波江裕太
3	2021/9/20	JACS-Au	High Durability of Fourteen-Membered Macrocyclic Fe Complex in Acidic Oxygen Reduction Reaction Conditions	Junya Ohyama, Moriya, Ryo Takahata, Kazuki Kamoi, Shin Kawashima, Ryoichi Kojima, Teruaki Hayakawa, Yuta Nabae
4	2021/6/1	水素エネルギーシステム	Fe系非白金カソード触媒の最新動向	難波江裕太
5	2022/1/31	車載テクノロジー	鉄系非白金触媒の研究開発動向	難波江裕太
6	2022/3/26	CSJ カレントレビュー	非白金酸素還元触媒	難波江裕太, 石原顕光
7	2022/4/10	クリーンエネルギー	燃料電池の非白金化を目指した新規物質の探究	難波江裕太, 大山順也, 守谷誠
8	2021/3/30	2020年度名古屋大学シンクロトン光研究センターシンポジウム	放射光を用いた非白金触媒の解析について発表する	大山順也, 守谷誠, 河島晋, 小島綾一, 難波江裕太
9	2021/9/18	第126回触媒討論会	十四員環 Fe 錯体の合成と安定性について発表する	難波江裕太, 高浜諒, 鴨井一樹, 守谷誠, 大山順也, 河島晋, 小島綾一, 岡田真理子, 早川晃鏡

10	2021/7/3	第 58 回化学関連支部 合同九州大会	14 員環 Fe 錯体触媒（熱処理 なし FeHAPP）の耐久性につい て発表する	FENG ZHIQING, 守 谷誠, 難波江裕太, 芳 田嘉志, 町田正人, 大 山順也
11	2021/9/15- 17	第 128 回触媒討論会	放射光を用いて解析した 14 員 環 Fe 錯体触媒（熱処理なし FeHAPP）の溶出挙動について 発表する	大山順也, FENG ZHIQING, 芳田嘉志, 町田正人, 守谷誠, 河 島晋, 小島綾一, 難波 江裕太
12	2021/6/26- 27	第 18 回ホスト-ゲスト・超 分子化学シンポジウム	十四員環配位子を用いた三核 鉄錯体の合成について発表す る。	守谷誠、高浜諒、鴨井 一樹、大山順也、早川 晃鏡、難波江裕太
13	2021/9/15- 17	第 128 回触媒討論会	カーボンブラックに担持した FeHAPP を熱処理した触媒	難波江裕太、永田信 輔、三好真美、野津英 男、早川晃鏡、守谷 誠、大山順也
14	2021/5/27- 28	燃料電池シンポジウム	十四員環 Fe 錯体の合成と安定 性について発表する	難波江 裕太、守谷 誠、大山 順也、小島 綾一、河嶋 晋、早川 晃鏡
15	2021/6/3	第 3 8 回国際フォトポリマ ーコンファレンス	ポリイミドにメソ細孔を導入する手 法について報告する。	駒村貴裕、難波江裕 太、早川晃鏡
16	2021/6/3	第 70 回高分子討論会	ポリイミド微粒子の炭素化によつて 得られた N ドープカーボンの触媒 活性について報告する。	難波江裕太、Wu Yun、永田信輔、堀和 滋、早川晃鏡
17	2021/11.30- 12.2	第 62 回電池討論会	放射光を用いて解析した 14 員 環 Fe 錯体触媒（熱処理なし FeHAPP）の溶出挙動について 発表する	難波江裕太, 大山順 也, FENG ZHIQING, 芳田嘉志, 町田正人, 守谷誠
18	2021/12/3	第 10 回グリーンサステイ ナブル研究会	非白金触媒の開発状況と放射 光の利用例を紹介する	難波江裕太
19	2022/3/28	第 129 回触媒討論会	カーボンブラックに担持した FeHAPP を熱処理した触媒の詳 細	難波江裕太、野津英 男、永田信輔、三好真 美、早川晃鏡、後藤良 太、市原健生、小島綾 一、守山誠、大山順也
20	2022/7/24	TOCAT9	放射光を用いて解析した 14 員 環 Fe 錯体触媒（熱処理なし FeHAPP）の溶出挙動について 発表する	難波江裕太

21	2022/5/26	燃料電池シンポジウム	カーボンブラックに担持した FeHAPP を熱処理した触媒の詳細	難波江裕太
22	2021/12/10	ポリイミド会議	評価解析プラットフォームを利用して測定している掲題の研究について紹介	樽谷仁志、難波江裕太、早川晃鏡
23	2022/5/30	石油学会 第 64 回年会	十四員環 Fe 錯体の熱処理による構造の変化と酸素還元反応性能の変化を発表する	FENG ZHIQING・本田創太郎・大山順也・芳田嘉志・町田正人・守谷誠・難波江裕太
24	2022/6/28	第 3 9 回国際フォトポリマーコンファレンス	ポリイミド微粒子の作製法について議論する.	樽谷仁志、難波江裕太、早川晃鏡
25	2022/8/23	RadTech Asia 2022	ポリイミド微粒子の作製法と小角 X 線散乱について報告する	樽谷仁志、難波江裕太、早川晃鏡
26	2022/6/9	燃料電池用触媒セミナー	非白金触媒の開発状況と十四員環錯体について紹介する	難波江裕太
27	2022/7/2	第 59 回化学関連支部合同九州大会	熱処理したカーボン担持 14 員環 Fe 錯体触媒の触媒性能と活性点構造の変化について発表する	本田創太郎、守谷誠、難波江裕太、芳田嘉志、町田正人、大山順也
28	2022/9/22	第 130 回触媒討論会	熱処理したカーボン担持 14 員環 Fe 錯体触媒の触媒性能と活性点構造の変化 (XPS) について発表する	FENG ZHIQING、本田創太郎、守谷誠、難波江裕太、芳田嘉志、町田正人、大山順也
29	2022/9/26	第 130 回触媒討論会	熱処理したカーボン担持 14 員環 Fe 錯体触媒の触媒性能と活性点構造の変化(XAFS)について発表する	本田創太郎、守谷誠、難波江裕太、芳田嘉志、町田正人、大山順也
30	2022/9/22	第 130 回触媒討論会	掲題の触媒の活性評価と理論計算を紹介	難波江裕太
31	2022/9/26	第 130 回触媒討論会	新規十四員環化合物の合成法を紹介する	岡野幹生、難波江裕太、早川晃鏡

課題番号（管理番号）： IP09

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／PEFC 用イオン液体含侵型 Pt/MPC 高活性・高耐久カソード触媒合成技術の研究開発」

実施者： 奈良工業高等専門学校 和歌山工業高等専門学校

期間： 2020年7月～2024年3月

1. 研究開発概要

本プロジェクトでは、第5次エネルギー基本計画や水素・燃料電池戦略ロードマップ等で定めるシナリオに基づき2030年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システム（水素貯蔵タンク等を含む）を実現するためのユーザーニーズに基づく協調領域の基盤技術を開発することにより、世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立することを目的とする。

本研究の目的は、イオン液体（ILs）をメソポーラスカーボン（MPC）担体のメソ孔に含侵したイオン液体含侵 Pt/MPC（Pt/MPC-SCILL）カソード触媒の酸素還元（ORR）活性と耐久性を評価し、触媒層内の水分子を管理・制御する技術を開発することで、Pt ナノ粒子触媒の活性と耐久性を最大限に引き出すための触媒設計指針を得ることにある。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

現在、MPC のメソ孔内に Pt を担持することで Nafion[®]による触媒被毒が抑制されることが提唱されている。本申請では、これに加えて、100℃以上の H₂O 分子が極端に少なくなる環境下でもイオン伝導パスが確保され、Pt 触媒の活性を向上させる効果を持つイオン液体をメソ孔内に含侵させた触媒の評価を行う。本研究では比較的イオン液体のカチオン構造が三次元的にデザインしやすい4級オニウム塩系(図1)に注目し、メソ孔内へのイオン液体量の最適化を行いながら、イオン液体を構成する中心カチオン種とその構造およびアニオン種が ORR 活性や耐久性に及ぼす影響について主に検討する。

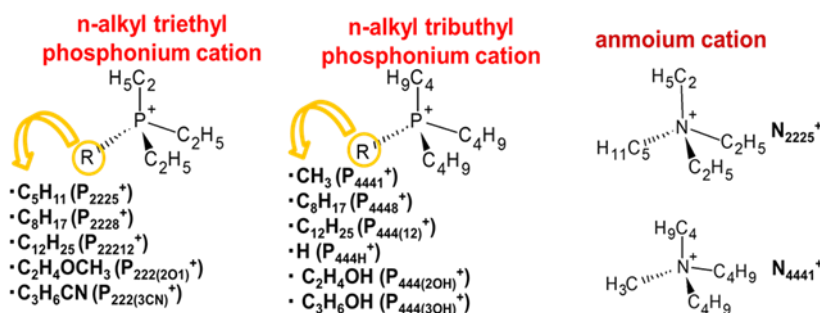


図1 4級オニウム塩のカチオン構造とその表記例

4級オニウム塩の中でもホスホニウムイオン液体は一般的に研究されているアンモニウム液体よりも高い熱分解体制を持つ。また、共同申請者の綱島らによって開発された低粘性ホスホニウム液体は同構造のアンモニウム液体よりもイオン伝導度が高く、疎水性も高い傾向がみられている。Pt 触媒の活性向上には H₂O を由来とする Pt-OH の形成、所謂 OH 被毒を低減し、ORR の理論起電力に近づける必要がある。

一方で、このような非水電解質中では電位上昇により Pt の直接的な電気化学溶解反応が進行しやすい可能性があるが、市販 Pt/C 触媒にイオン液体を含侵した Pt/C-SCILL において優れた耐久性が報告されている。

このような効果について本申請では電気二重層モデルおよびイオンの輸率の効果をモデルとして新たに提案し、Pt/MPC-SCILL の耐久性を評価するとともに、その高耐久メカニズムについて検討する。

また、疎水性イオン液体と H₂O 分子の相互作用について検討するために、誘電特性について評価する。電極界面で形成される電気二重層の緩和時間および誘電率と誘電損失がインピーダンス挙動に与える影響について電気化学的に評価する。一方、テラヘルツ周波数領域でみられるイオン間相互作用の変化については再委託先である大阪産業技術研究所 和泉センターにて評価を行う。これにより、電気二重層構造やイオン液体中への H₂O 分子の影響を明らかにする。これらの評価は、ORR 活性にも密接に関係しているため、各評価で得られた測定結果について総合的に考察する。

本申請の最終目標は 120℃における Pt/MPC-SCILL の ORR 質量活性を常温時での Pt/C の 5 倍向上させ、80℃における ADT10,000 サイクル後の質量活性維持率を 80%まで底上げすることにある。触媒劣化の速度は粒径依存もあるため速度式であらわすことは難しいが、通常、より微小粒子の消失が急激に進行した後、10,000 サイクル後にはその劣化速度が非常に遅くなる。そこで、劣化率がサイクル数に対して指数関数的に変化すると仮定した場合、市販 Pt/C においてはそう大きな誤差とはならない。過去発表された NEDO の技術開発目標では乗用車で 5,000 時間作動、6 万回の起動停止が設定されており、6 万回後の質量活性維持率を常用対数を用いて予測すると 76%程度と見積もることができる。従って、120℃において市販触媒の 5 倍の質量活性を達成した場合、十分に Pt 量を減ずることが可能であると考ええる。

100℃以上での触媒活性や ADT 評価法については現段階では見通しが立っていないため、PEFC 評価解析プラットフォームとの連携により検討していきたいと考えている。そこで、ラボレベルでは常温での Pt/MPC-SCILL の ORR 質量活性を Pt/C の 4 倍向上させることを目標とする。

2021 年度の継続可否審査までに開発済み資料に加えて新規カチオンの合成とその評価を行い、常温で市販 Pt/C 触媒の 2 倍の質量活性を有する Pt/MPC-SCILL 触媒を開発した。同触媒の耐久性については FCCJ の ADT プロトコルを用いて 80℃で 10,000 サイクル後に 40%程度の質量活性維持率も達成している。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
① イオン液体の含侵効果(Pt 触媒活性への影響)の検討	Pt/C の 2 倍の質量活性	・イオン液体のカチオン構造の影響について、最大で 1.5 倍程度の活性増大を確認 ・H ⁺ の影響について、最大で 1.3 倍程度の活性増大を確認 ⇔MA= 2.0 (1.5×1.3) 倍を達成	○	非プロトン型イオン液体において酸素溶解度依存性を確認した。一方で耐久性については厚みを厚くする必要がある。このため、酸素輸送に加えてプロトンの物質輸送経路を設計する必要があることがわかった。
② イオン液体のキャラクタリゼーション	開発済みのイオン液体のキャラクタリゼーション	・酸素溶解度および拡散係数についてカチオン構造やアニオン構造の影響を検	○	特になし。

		<p>討</p> <p>⇔ 酸素溶解度が活性に影響している可能性が示唆。</p> <p>・分光測定法の確立</p> <p>⇒ 配向分極とイオン分極を検討</p>		
③ イオン液体の含侵効果(耐久性への影響)の検討	80°C 耐久試験 40%程度の質量活性維持率達成	・80°C 耐久試験において 40%以上の質量活性維持率を達成	○	① にまとめた
④ 四級ホスホニウム型イオン液体の合成と特性評価	・イオン液体合成 (奈良高専への提供) ・開発済みのイオン液体のキャラクタリゼーション	・開発済みイオン液体を合成し、奈良高専へ提供 ・開発済みのイオン液体のキャラクタリゼーションを実施。カチオン構造およびアニオン構造が密度や粘度、イオン伝導度に及ぼす影響を調査した。	○	特になし。
⑤ 高耐久カーボド触媒向けに特化したイオン液体のデザインと創製	新規官能基を有するイオン液体合成経路の模索	新規官能基を有するカチオンの合成に成功 ⇒ P444Y 系イオン液体 2 種類を新規開発	◎	酸素還元活性評価を実施していく。触媒活性向上の機能層の付与を検討する必要がある。
⑥ 高活性カーボド触媒向けに特化したイオン液体のデザインと創製	高活性イオン液体合成経路の模索	イオン液体カチオン母構造の新規開発	◎	母構造によって酸素溶解度が増加。(水由来のプロトン輸送が困難)
⑦ パルス磁場勾配 NMR 法 (PGSE-NMR) を用いたイオン液体の評価	開発済みイオン液体の自己拡散係数の計測	これまでに開発済みのイオン液体について測定を実施 ⇒ ORR 反応機構について①の結果から考察していく。	○	特になし。
⑧ テラヘルツ分光法によるイオン液体イオン間相互作用の解析	ラマン分光法と合わせてイオン間相互作用について検討	開発済みイオン液体について分光測定を実施。 ⇔ 低周波ラマン分光測定については奈良で実施 ⇒ ORR 反応機構につい	○	特になし。

		て①の結果から考察していく。		
--	--	----------------	--	--

3.2 研究開発の詳細

上記目標の達成に向けて、本年度は(1)①回転ディスク電極(RDE)法によるイオン液体含浸 Pt/C (Pt/C-SCILL) 触媒の調製と ORR 活性評価、(2)②分光法によるイオン液体のキャラクタリゼーションについて再委託先の大阪産業技術研究所の⑦ パルス磁場勾配 NMR (PGSE-NMR) 測定や⑧テラヘルツ分光測定結果と合わせて検討し、(3)和歌山高専で進める環境制御型 Pt/C 触媒である Pt/C-SCILL 用イオン液体合成(④-⑥)の設計指針を考察し、数種類の新しいイオン液体合成に成功した。以下にそれぞれの取り組みについて記載する。

(1) イオン液体の含浸効果の検討

2021 年度の間目標として RDE 法を用いて 0.1 M 過塩素酸中常温で Pt/C 触媒の 2 倍の質量活性を有する Pt/MPC-SCILL 触媒の設計指針を得た。得られた触媒設計指針として i) イオン液体カチオン構造による酸素溶解度制御、ii) プロトン伝導サイトの設計、iii) 疎水性制御を 3 つの柱とした。

以下に根拠となった結果を記す。i)分子サイズが大きい(=イオン液体の酸素溶解度が大きい)と活性が増大した。新規開発イオン液体で市販触媒よりも質量活性、面積比活性がそれぞれ最も高くなった。ii)プロトンを混合した P444(12)-TFSA は市販触媒に対して質量活性で 1.74 倍、面積比活性で 1.93 倍の活性向上を確認した。またプロトン未混合の P444(12)-TFSA と比較しても 1.3 倍程度活性が増大した。iii) P444(16)-TFSA について、膜厚 0.4 nm での条件では 10k サイクル後に ECSA の維持率が ca. 50%となり、耐久性がわずかに向上した。イオン液体を電解質として利用する場合、カチオン構造を極限まで低分子量にすることでイオン伝導度を高めることが主流であった。一方、燃料電池用途では酸素輸送を優位にし、活性を高めながらも、セル外へのウォッシュアウト耐性も高める必要がある。これらを満たす母構造として新規イオン液体の優位性を確認したため現在特許申請に向けて手続きを進めている。

(2) イオン液体のキャラクタリゼーション

分光法によるイオン液体の評価として、高周波インピーダンス測定とラマン分光測定を実施した。高周波インピーダンス測定では、一般的なインピーダンス装置では測定が困難な 100 MHz までの広い周波数領域で誘電特性を評価した。得られた複素誘電スペクトルにはイオン伝導の寄与に加え、配向分極に起因する緩和成分が現れた。これは、あるイオンが周囲のイオンとの局所的な相互作用や構造変化によって輸送されるというイオン伝導メカニズムを示唆する結果である。このようなカチオン・アニオンのマイクロな分子運動をより詳細に解明するため、次にラマン分光法によるイオンの振動構造解析を行った。その結果、アンモニウムカチオンとホスホニウムカチオンでは、TFSA アニオンのコンフォメーションが、僅かに異なることが分かった。これはアンモニウムイオン液体の方がカチオン-アニオン間の相互作用が強く、エネルギー的に不利なシス体が若干安定化されたためと考えられる。

テラヘルツ分光法を用い、イオン液体の分子間相互作用の評価を行い、イオン間の相互作用を詳細に解析する。本解析法のイオン液体への適用は少なく、その解析には多くの検討が必要であったが、2021 年度の継続可否審査までに同構造のアンモニウム系とホスホニウム系イオン液体の比較検討結果より、ホスホニウムイオン液体の方がアニオンとの相互作用が弱くイオン伝導度が高くなる可能性を見出した。

(3) 四級ホスホニウム型イオン液体の合成と特性評価

2021年度の継続可否審査までに新規母構造を有するイオン液体カチオンを中心として3種類の酸素溶解度を高める新規カチオン合成に成功した。本イオン液体構造において酸素還元活性の増大も確認した。また、Pt溶解を抑制する可能性のあるイオン液体として機能性官能基をカチオンに修飾したイオン液体を新たに創製した。機能性官能基の導入によって、吸電子性の付与によりイオン液体の物理化学特性（輸送特性など）を改良できることに加えて、金属イオンへの配位または包接の形成も十分に考えられるため、触媒特性の制御に有効に機能することが期待される。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

2021年度の継続可否審査までにすべての項目について中間目標を達成した。

(1) Pt/MPCの合成

MPCの一種であるCNovel[®]を担体としPtナノ粒子を担持したPt/CNovel触媒を調製する。CNovel[®]は数 μm 程度の粒子径を持つため、MEAの作成を視野に入ると、粒子径を小さくする必要がある。加えて、触媒合成において濡れ面積が不十分となり、Ptナノ粒子が細孔に取り込まれ難いことが予測される。同様に、イオン液体も有効に細孔が利用できない可能性がある。MPCの粒子サイズの影響は無視できないため粉碎や親水化など前処理条件を最適化し、Ptナノ粒子の細孔内への担持法やイオン液体の導入条件について検討が必要である。このような背景から、遊星ボールミルによるMPC粉碎条件について最適化を行ってきた。MPCの最適粒径については、先駆的なNEDO内の研究成果も踏まえ、引き続き検討していきながらPt/MPC触媒の合成技術を確立する。ORR活性についてホスホニウム系およびアンモニウム系イオン液体のMPC細孔への含浸効果を検討していく。

(2) イオン液体中の水およびプロトンの影響

イオン液体は疎水性が高いが、極少量の H_2O 分子が系内に侵入する可能性がある。系内に取り込まれた H_2O 分子がホスト分子へ配向することでどのように酸素還元活性に影響を与えるかについては知見がないため、電気化学的手法（RDE法、交流インピーダンス法）および機器分析（⑦PGSE-NMR法、⑧テラヘルツ分光法、ラマン分光法）により、イオン液体への水分子の影響についても検討していく。加えて、中間目標までの指針として得られたプロトン伝導についても同様の手法で検討を進める。

(3) イオン液体のデザインと創製

高いORR活性が得られている新規カチオン構造をベースに、酸素溶解度をさらに高めることができるカチオンの合成が進行中である。高活性対称部位の設計に加えて、和歌山高専における予備的検討において、四級ホスホニウムカチオンのアルキル鎖の末端に種々の置換基を導入することにより、それらの物理化学特性をコントロールできることを見出している。この方法論によれば、置換基（Y）導入により単に物理化学特性を変えるだけに留まらず、触媒に用いた場合に金属イオンとの特異な相互作用を生起させる可能性があり、触媒設計のレンジを大幅に広げることができると考えられる。グライム修飾型からさらに踏み込んで、より高機能な部位を修飾したイオン液体の設計と合成を試みる。触媒中の金属イオンとの特異な相互作用が生起される可能性があり興味深い。開発したイオン液体合成法について奈良高専と共有し、両機関でイオン液体およびイオン液体のカチオン誘導体について合成可能な協力体制を整備する。また、人的・技術的交流を加速させてPt/MPC-SCILL触媒の開発について効率的に実施する。

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) 想定される研究開発成果

- PEFC カソード触媒用新規イオン液体
- Pt/MPC-SCILL 触媒

上記が成果物として想定される。特に、イオン液体についてサプライヤーとして関心表明企業である日本化学工業を想定している。本年度中に同社と奈良-和歌山高専の3機関でNDAを締結し、同社の協力も得ながら、イオン液体カチオンの開発を進める。特に、量産化に向けて重要な量産に適したイオン液体のデザインについて2021年度の継続可否審査までに検討した。現状では、電池研究で一般的に用いられる低粘性イオン液体とは異なり、合成が容易なカチオンにおいて触媒活性向上の優位性が示されている。これは大量生産では望ましい傾向であり、本構造の発展や、優れた官能基の探索をすることでこれまでにない新しい燃料電池用途のイオン液体をデザインし、性能向上を目指すとともに日本化学工業において燃料電池グレードでの市販化を目指す。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021年 8月	第5回FC-Cubic オープンシンポジウム	燃料電池におけるイオン液体研究ネットワークの取り組み	山田裕久
2	2022年 3月	電気化学会第89 回大会	Pt表面上のイオン液体カチオン構造が酸素還元反応に及ぼす影響	山田裕久
3	2022年 3月	電気化学会第89 回大会	インピーダンスおよびラマン分光法を用いた4級ホスホニウムイオン液体の誘電特性解析	山田裕久
4	2022年 8月	IUMRS- ICYRAM2022	Tetra-alkyl Phosphonium Based Ionic liquid; Impact of Cation Structure for Oxygen Reduction Reaction	山田裕久 (招待講演)
5	2022年 9月	2022年 電気化学 秋季大会	疎水性イオン液体を修飾した白金ナノ粒子上での酸素還元反応	岡田拓也 (予定)
6	2022年 9月	2022年 電気化学 秋季大会	ラマン分光法を駆使したイオン液体の構造解析：4級ホスホニウムカチオンがアニオンのコンフォメーションに与える影響	松本充央 (予定)
7	2022年 10月	242nd ECS Meeting	Rotating Ring-Disk Electrodes Studies on Oxygen Reduction Reaction at Hydrophobic Ionic Liquids Layer Modified Pt/C Catalyst	岡田拓也 (予定)
8	2022年 10月	242nd ECS Meeting	Dielectric and vibrational spectroscopic study on asymmetric quaternary phosphonium- based ionic liquids	松本充央 (予定)

課題番号（管理番号）：IP10

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／イオン液体構造を有するアイオノマーによる革新的低白金技術の研究開発」

実施者：鶴岡工業高等専門学校

期間：2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

PEFC のカソード電極触媒として一般的に Pt/C 触媒が用いられており様々な取り組みが近年行われている。特に Pt 粒子を担持するカーボンの比表面積や細孔構造が出力特性や耐久性に与える影響度は非常に大きいことが分かってきている。現在、耐久性やアイオノマー被毒の観点からメソポーラスカーボンが注目されている一方で、細孔内へのプロトン輸送抵抗や酸素輸送抵抗が増加することで、高電流密度域での出力が低下してしまうことが課題となっている。出力と耐久性の高いレベルでの両立をめざす上で、触媒だけでなく、ナフィオンに代表されるパーフルオロスルホン酸アイオノマーに替わる革新的なプロトン伝導体の開発が急務である。この社会的要請に応えるべく、本研究ではイオン液体を基本構造とする新たなアイオノマー材料の開発を目的とする。

近年、低白金化と高活性の観点から、触媒粒子をメソポーラスカーボンの細孔内部に担持させることでアイオノマーの吸着を抑制し、高い質量活性が得られることが報告されている。しかし、同時に触媒粒子が細孔内部に存在するためプロトン輸送抵抗や酸素輸送抵抗が増加し十分な出力を引き出せないことも事実である。先行研究において、白金/メソポーラスカーボン触媒（関心表明企業提供サンプル）で、イオン液体のスクリーニングを実施した結果、疎水性且つアニオンの種類によって質量活性（MA）および白金有効面積（ECSA）に変化があることが見出せている。本申請では、電極に含浸したイオン液体のウォッシュアウトを防止するための電極表面への固定化と、イオン液体の疎水性と酸素透過率を制御することを技術的課題として、イオン液体構造を含有するアイオノマーを設計・合成する。さらに、イオン液体の含浸方法を検討することで、より内部に存在する白金粒子なども利用可能となる。以上から、イオン液体を用いた革新的な触媒層構造によって、新しい低白金技術を提案する。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

○中間目標（2022年度6月）

白金担持メソポーラスカーボン触媒の回転電極（RRDE）評価において、質量活性を2倍に向上可能なイオン液体構造を有するアイオノマーを開発する。

<目標設定の考え方（2022年度6月まで）>

最終目標値達成には触媒の活性を向上させるイオン液体を模索し、ポリマー化することでその基本構造を有するアイオノマーを開発しなければならない。触媒の活性向上に寄与するイオン液体型ポリマーの評価に関してはRRDEでの評価が最適であり当該目標設定の目安とした。

<評価方法（2022年度6月まで）>

白金担持メソポーラスカーボン触媒とイオン液体構造を有するアイオノマーを組み合わせた触媒層を回転リングディスク電極上に作製し、RRDE測定を行う。

○中間目標（2023 年度）

MEA の単セル試験において初期性能 0.05g-pt/kW、RH20%と RH100%の白金利用率の差（現状 70～80%程度）を 40%以内に抑制可能なメソポーラスカーボン及びイオン液体を用いた革新的な触媒層構造を開発する。

○最終目標（2024 年度）

MEA の単セル試験において初期性能 0.05g-Pt/kW、RH20%と RH100%の白金利用率の差を 15%以内に抑制可能なメソポーラスカーボン及びイオン液体を用いた革新的な触媒層構造を開発する。

<目標設定の考え方（2023～2024 年度）>

RRDE では無視できるような、物質輸送特性が MEA では大きく性能に寄与し、生成水によるウォッシュアウト等の新たな課題も見出されると予想される。RRDE で確認した酸素還元活性を促進するポリマー構造とウォッシュアウトや物質輸送特性を改善する構造をもつポリマー構造を複合化することで MEA 条件における最適なアイオノマーの合成が可能であると考えられる。従って、ポリマー構造の最適化を行い MEA での評価を目標設定の目安とした。

<評価方法（2022～2024 年度）>

イオン液体構造を有するアイオノマーと白金担持メソポーラスカーボン触媒を組み合わせた MEA を作製し、燃料電池評価装置によって I-V 性能を評価する。セルの RH を変えたときの性能も評価し、RH 特性の検討を行う。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
プロトン性イオン液体の合成	プロトン性イオン液体成分を担持し、ラジカル重合性を有するイオン液体をの合成（アニオン性・カチオン性の 2 種類）	・プロトン性イオン液体成分を担持し、ラジカル重合性を有するイオン液体をの合成（ポリアニオン性）に成功 ・ホスホニウムカチオンを担持したイオン液体型モノマー合成に成功 （奈良高専／和歌山高専との連携課題）	○	ポリカチオン性のプロトン性イオン液体型モノマーの合成
イオン液体型ポリマーの合成	リビングラジカル重合によるプロトン性イオン液体型ポリマーの合成条件を確立（PDI < 1.2）	・プロトン性イオン液体成分ならびにホスホニウムカチオンを担持したイオン液体型モノマーの精密重合に成功（PDI < 1.2）	○	ポリカチオン性のプロトン性イオン液体型モノマーの制御ラジカル重合条件の探索

ブロックポリマーの設計と合成	ブロック共重合によるプロトン性イオン液体型ポリマーを含有するブロックポリマーの合成 (DP < 20 かつ PDI < 1.2)	・パーフルオロ構造メタクリレートポリマーとイオン液体型ポリマー (プロトン性イオン液体成分担持ポリアニオン型) のブロック共重合体の試作品を評価解析 PF に提供完了 (3 種類、各 100 mg)	○	プロトン性イオン液体成分担持ポリカチオン型のブロック共重合体の合成
新規アイオノマーの電気化学的評価	ブロックポリマーを担持したメソポーラスカーボン触媒の RRDE による質量活性評価技術の確立	・RRDE による触媒活性評価のための設備導入と装置校正を完了 ・関心表明企業と連携して、メソポーラスカーボン触媒における活性向上を確認	◎	マテリアルズインフォマティクス (MI) 解析の併用による、最適なアイオノマー組成の探索

3.2 研究開発の詳細

(1) プロトン性イオン液体の合成

<研究開発の内容>

イオン液体を PEFC に応用する試みは、国内外にて様々なアプローチで行われてきた。詳細なメカニズムに関しては議論の余地があるものの、プロトン性カチオンを有するイオン液体において、電解質としてプロトン伝導性の発現を示唆する研究事例が多く報告されている。さらに疎水性や高い酸素透過性を有するイオン液体を用いることで物質輸送特性の改善によって酸素還元活性を促進することが報告されており、白金/メソポーラスカーボンの Pt 利用率を向上する電解質材料として応用が期待できる。

<研究開発の成果>

回転電極 (RDE) による電気化学測定に基づいた、触媒活性の向上に有効なイオン液体構造のスクリーニングを行った。具体的には、数種類のプロトン性カチオンとアニオンの組み合わせのイオン液体の質量活性を比較し、有用なイオン液体の絞り込みを行った。その結果、特定のプロトン性カチオンを含有するイオン液体において高い質量活性を示した。アニオンに関しては疎水性の高くなるに従って、質量活性が高くなる傾向を示した。上記のスクリーニングの結果より高い効果を発現すると期待されるプロトン性カチオンを担持し、ラジカル重合性を有するアニオン性イオン液体型モノマーに関して、合成工程の最適化を行い、1 回あたり数十グラムのモノマーを合成することが可能となった。さらに、奈良高専/和歌山高専との連携研究を推進するべく、ホスホニウムカチオンを担持したイオン液体型モノマー合成も行った。具体的には、アルキル鎖長の異なる 3 種類について、ポリアニオン型のイオン液体型モノマーの合成に成功した。今後は、ポリカチオン型のプロトン性イオン液体型モノマーの合成を行い、モノマー構造の最適化を図る予定である。

(2) イオン液体型ポリマーの合成

<研究開発の内容>

酸素還元活性を促進するイオン液体のスクリーニングを行い、有効成分となるプロトン性カチオンに重合性官能基を導入したイオン液体型モノマーを新規に合成する。合成したイオン液体型モノマーは新規モノマーであるため、制御重合の条件を探索し、構造の明確なイオン液体型ポリマーへの合成経路を確立する。

<研究開発の成果>

合成したイオン液体型モノマーの制御ラジカル重合（CRP）条件の最適化に取り組んだ。最初に、コスト・プロセスの観点から最も実用性のある CRP 技術の一つである原子移動ラジカル重合（ATRP）を試みたが、良好な CRP 特性は確認されなかった。原因としては、強塩基性の遊離カチオンであるプロトン性カチオンが ATRP の酸化還元平衡に悪影響を及ぼしていることが考えられ、根本的な解決が難しい事象であった。そこで次の方策として、可逆的交換連鎖移動反応（RAFT）による CRP を試みたところ、イオン液体型モノマーポリマーは、ゲル透過クロマトグラフィーにより算出される、分子量分布指数（ M_w/M_n ）が 1.3 以下であり、合成したモノマーが良好な CRP 特性を有していることが明らかとなった。

(3) ブロックポリマーの設計と合成

<研究開発の内容>

イオン液体の電極活性で及ぼす影響は、官能基のプロトン性の有無だけでなく、イオン液体自体の親水性にも左右されることが知られているため、系統的に最適構造を探索するためには、イオン液体の構造制御因子（アニオン／カチオンの化学構造）だけではトレードオフの状態になることが予測される。ここに、イオン液体型ポリマーの構造制御因子（分子量／共重合するモノマーの化学構造）を加えることで、触媒層への固定化及び親水性の影響を排した最適なプロトン性カチオンの構造の検討が可能となる。イオン液体をポリマー化する手法として CRP を用いる予定であるため、任意の化学構造を有するブロック共重合体の合成が可能である。また、重合度も数量体から数千量体に至るまで、精密に制御が可能となる。

本研究で用いるアイオノマーとして、細孔径に対して十分に小さい分子量のイオン液体型ポリマーの合成を行う。具体的には、 M_n をモノマーユニットの分子量で除した値が重合度 DP となり、この値から算出される分子鎖長がメソポーラス細孔径以下となるように、重合条件の最適化を行う。最初のターゲットとして、一般的なメソポーラスカーボンの細孔に侵入可能と考えられる、オリゴマー領域のイオン液体型ポリマーを合成する予定である。このように、細孔径と分子サイズの関係に注意することで、ポリマー溶液の真空含浸によって細孔内部までアイオノマーが行きわたると考えられる。

<研究開発の成果>

当研究室において確立したイオン液体型モノマーの RFFT 重合系を用いて、パーフルオロ型の側鎖を有する吸着ブロックとイオン液体型の側鎖を有するイオン伝導ブロックから成るブロック共重合体の合成を行った。その結果、両ブロックの合計重合度が 20 以下で、分子量分布指数が 1.2 以下のブロックポリマーを合成することに成功した。これは、一般的なメソポーラスカーボンの細孔（50 nm 以下）に比べても十分に小さい分子サイズであり、本プロジェクトで掲げる触媒設計が十分に実現可能であることを裏付ける結果となった。さらに、プロトン伝導部と疎水部のブロック組成比が異なる 3 種類のブロックポリマーの合成にも成功し、それぞれ数 100 mg 程度の評価用サンプルを評価解析 PF に供することができた。

(4) 新規アイオノマーの電気化学的評価

<研究開発の内容>

合成したイオン液体型ポリマーの特性評価には、イオン液体のスクリーニングと同様に、RDE などによる電気化学測定を活用する。ここで、カチオンをポリマーにすることによる電気化学的挙動の変化の有無を確認しながら、望

ましいイオン液体の機能を残しつつ、イオンの流出を防ぐためのアンカーとなるブロックポリマー成分の付与を行い、メソポーラスカーボンへの応用に特化したアイオノマーを開発する。

RDE 測定結果より得られる活性向上に資するメカニズムを、MEA においても発現させるためには、イオノマーとイオン液体のイオン交換によるプロトン伝導性の低下を抑える必要があるが、この部分において特にイオン液体のポリマー化が重要な役割を担うものと考えられる。具体的には、イオン液体のポリマー化によってイオン交換が抑制され、低 Rh 環境下においても高い Pt 活性を発現するメソポーラスカーボン系 MEA を実現するものと期待される。

<研究開発の成果>

合成したブロックポリマーに関して、評価解析 PF では中実カーボン系 (TEC10V30E) での RDE 測定、本研究プロジェクトへの関心表明企業にはメソポーラスカーボン触媒系での RRDE 測定を実施して頂いた。その結果、双方の検討において質量活性が約 50% 程度上昇することが明らかとなった。今後は、RAFT 重合過程で末端に付加される被毒因子であるチオカルバネートの除去、マテリアルインフォマティクスの導入によるブロックポリマーの組成比の最適化、ホスホニウムカチオンの導入による酸素透過性能の向上など検討することで活性向上を試みる。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 本研究プロジェクトで開発するアイオノマー材料をメソポーラスカーボン触媒に導入することにより、質量活性に関しては現時点で約 50% の増大が確認されている。

そこで今後は、以下の 3 点に焦点を当てて更なる性能の向上を目指す。

①ポリマー末端に被毒要素になる可能性の高いチオカルバネートが残存している状況であるため、これを除去したアイオノマー材料とすることで性能の向上を狙う。

②アイオノマー材料のブロック共重合比率は現状では 1:1 としているが、異なる比率での質量活性評価を行い、その結果を評価解析 PF のマテリアルズインフォマティクス (MI) 解析に供することで、最適な組成が導かれると考えている。

③現状のプロトン性カチオンの構造はスクリーニングの結果より得られたものを第一候補として進めているが、奈良高専/和歌山高専の研究成果も取り入れ、ホスホニウムカチオンの導入も検討する。

上記 3 点の改善を行うことで、質量活性を 2 倍 (100% 増) 以上とすることが可能となり、最終目標を達成することができると考えている。

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

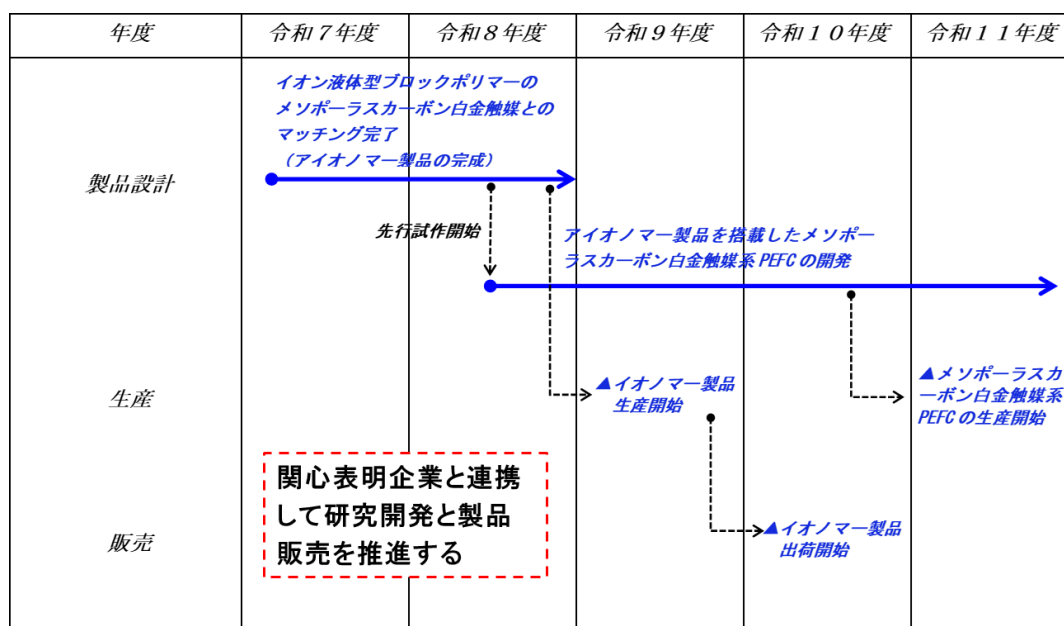
(1) 実用化・事業化を行う製品・サービス等の概要

本申請課題において開発された新規アイオノマー材料は、低白金かつ高性能の PEFC 部材として製品に実装される予定である。特に、メソポーラスカーボン系白金触媒との相乗効果の高い設計になることが予測されるため、高出力が要求される PEFC に高い需要が期待される。将来的には、次世代触媒が開発され、その触媒の性能を最大限引き出すキーマテリアルとして、様々なバリエーションを伴い広く普及する見通しである。特に、イオン液体型ポリマーを主成分とするため高い耐熱性を有している点に優位性があり、中高温・無加湿駆動型の PEFC 部材として採用された場合は、産業界からの要請に応えるヘビーデューティー用途に加え、加湿・冷却システムを

省いた低価格帯燃料電池自動車への展開も期待される。

(2) 実用化・事業化に向けた計画等

メソポーラスカーボン白金触媒とのマッチングが十分に検証されたアイオノマー材料の製品化を目指す。実験レベルで PEFC 用アイオノマーとして有効なイオン液体型ポリマーの構造と製造プロセスが確立された後に、工業生産を目指した製造装置の設計、製造を関心企業と共同で実施する予定。製品のマーケティングと営業も担当する予定である。



5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2020年12月	荘内日報(令和2年12月17日)	本プロジェクトについての記事	森永 隆志
2	2020年12月	第30回日本MRS年次大会	PEFC用窒素ドーパグラフェンへのPSiP添加による3D構造の設計	本間 海斗, 伊藤 滋啓, 森利之, 鈴木 彰, 佐藤 貴哉, 森永 隆志, 山本 春也
3	2020年12月	第30回日本MRS年次大会	PEFC用電解質への応用に向けたプロトン性イオン液体型ポリマーの合成と電気的特性評価	佐藤 瑠星, 正村 亮, 伊藤 滋啓, 森永 隆志, 佐藤 貴哉

4	2020年 12月	第30回日本 MRS年次大会	遊離カチオンを有するイオン液体型アニオンポリマーの合成と特性評価	森永 隆志, 前田 奈央也, 本間 彩夏, 正村 亮, 佐藤 涼, 佐藤 貴哉
5	2020年 12月	Polymers	In Situ Surface-Initiated Atom- Transfer Radical Polymerization Utilizing the Nonvolatile Nature of Ionic Liquids: A First Attempt	Ryo Satoh, Saika Honma, Hiroyuki Arafune, Ryo Shomura, Toshio Kamijo, Takashi Morinaga and Takaya Sato
6	2021年 8月	第5回 FC- Cubic オープンシ ンポジウム	鶴岡高専 K-ARC での取り組み	森永 隆志
7	2021年 12月	第31回日本 MRS年次大会	PEFC 用電解質への応用に向けたプロト ン性イオン液体型ポリマーの合成および電 氣的特性評価	佐藤 瑠星, 柴田 紘, 正村 亮, 伊藤 滋啓, 森永 隆 志, 佐藤 貴哉
8	2021年 12月	第31回日本 MRS年次大会	リチウムイオン含有アニオンポリマーの合成と 特性評価	前田 奈央也, 牧 和敬, 佐 藤 涼, 正村 亮, 森永 隆 志
9	2021年 12月	第31回日本 MRS年次大会	イオン液体の Kamlet-Taft パラメータ: 分析手順の開発と温度依存性の研究	菅原 琉花, 森永 隆志, 佐 藤 涼
10	2021年 12月	第31回日本 MRS年次大会	新規アニオン性イオン液体型ポリマーの合 成と固体高分子型燃料電池用電解質へ の応用	柴田 紘, 佐藤 瑠星, 正村 亮, 伊藤 滋啓, 本間 彩 夏, 森永 隆志
11	2021年 12月	第31回日本 MRS年次大会	微粒子積層型電解質におけるイオン伝導 メカニズムの解明	井上 拓巳, 本間 彩夏, 佐 藤 涼, 森永 隆志
12	2022年 8月	IUMRS- ICYRAM2022	Synthesis and Characterization of Polymer Electrolyte using Ionic Liquid-type Polyanions Containing Mobile Cations	Takashi MORINAGA, Ryo SATO, Saika HONMA, Takaya SATO
13	2022年 8月	IUMRS- ICYRAM2022	Elucidation of the Ion Conduction Mechanism in Solid-state Polymer Electrolyte of Colloidal Crystal decorated with Ionic Liquid Polymer Brush	Takumi INOUE, Saika HONMA, Ryo SATO, Takashi MORINAGA

課題番号（管理番号）： IP11

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／機能性ナノファイバーフレームワークを基本骨格とする低コスト・高耐久性電解質複合膜の研究開発」

実施者 東京都立大学法人東京都立大学（委託先），日本バイリーン株式会社（再委託先）

期間：2022年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

本事業は、120℃高温下の低加湿、無加湿下において高いプロトン伝導性を示し、かつガスバリア性、膜強度さらにはラジカルクエンチ能を有する機能性ナノファイバーフレーム（NfF）を合成、それを基本骨格として NfF にフッ素系高分子形電解質あるいは炭化水素系高分子形電解質などの高分子マトリックスを組み込んだ新規 NfF 含有電解質複合膜を開発することを目的としている。その結果、開発した NfF 電解質膜で燃料電池開発ロードマップ 2030 年目標値を達成し、さらに超薄膜化(5 μm 程度)とスリットダイコーター方式を用いた製造法による低コスト化,ラジカルクエンチ能による電解質膜の高耐久性を目指す。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

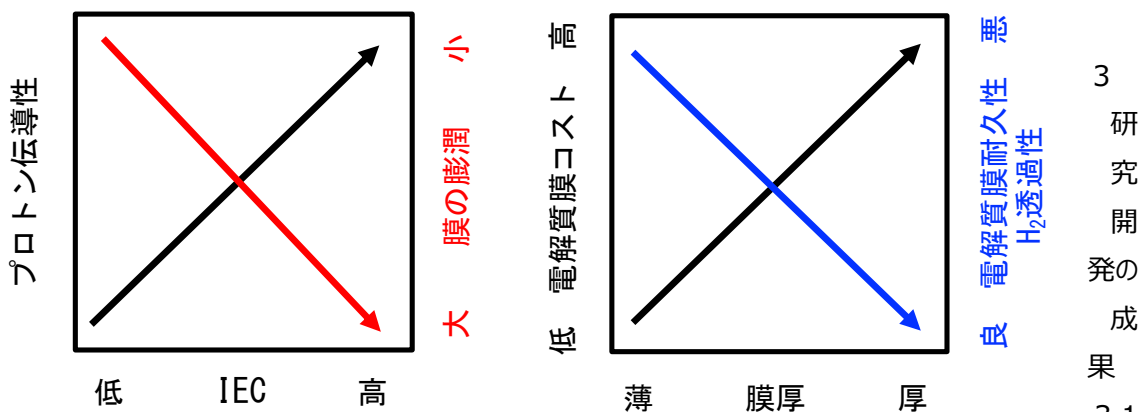
燃料電池の本格的な普及には、電池性能向上、コストダウン、高耐久化を同時に満たす必要がある。しかし、それぞれの項目毎（電池性能向上、コストダウン、高耐久化）で目標が達成できても、下記の間には Trade-off の関係が成り立つため、最終的に全ての目標値を同時に到達することは極めて困難である。

(1) 電池性能向上とコストダウン

(2) 電池性能向上と高耐久性

(3) コストダウンと高耐久性

従って、材料設計のコンセプトから(1),(2),(3)を共に満たすことを考慮した電解質膜設計を行う必要がある。申請者らは(1),(2),(3)を同時に満たすことを目指し、「プロトン伝導性ナノファイバーフレームワーク（NfF）」を基本骨格とする高分子電解質複合膜の研究を進めてきた。申請者らが開発した NfF に電解質用高分子マトリックスを流し込んで製膜することで、燃料電池用複合膜の超薄膜化（2 μm 程度）が可能となり、さらに Trade-off の関係にある電解質膜特性（プロトン伝導性やガスバリア性など）の改善にも寄与できると考えている。



中間目標に対する成果と達成状況

研究開発テーマ	中間目標 (2022年6月末)	成果・進捗概要	達成度	今後の課題
(1) 120°C低湿度下でのプロトン伝導性	複合膜の性能が高分子電解質単独膜 (Recast-Nafion) を超える	新規NfF含有複合膜はRecast-Nafionに比べ20倍以上、NR211に比べ4倍程度高いプロトン伝導性を示した	○	特に120°C, 30%RHで目標値を超える
(2) 120°C低湿度下でのガス透過性	複合膜の透過性が高分子電解質単独膜より抑制される	新規NfF含有複合膜はRecast-Nafion、NR211に比べ酸素透過性は1/2程度となり透過性を抑制した	○	酸素透過性をNR211の1/10程度まで抑制する
(3) MEAの発電特性	複合膜の性能が高分子電解質単独膜を超える	FC-Cより測定頂いた複合膜の膜耐久性は、Recast-Nafionに比べ3倍以上の結果であった	○	ロードマップで示されたIV曲線を実現する
(4) ラジカルエンチ剤の開発	ラジカルエンチ剤の合成とその評価	新規ラジカルエンチ剤を合成、そのラジカル消去能などの評価を行なった	○	ラジカルエンチ剤をNfFに固定した新規NfNの開発
(5) 薄膜化NfF複合膜	ラポレラで5μm複合膜の作製	従来のNfF含有複合膜では既に5μm複合膜の作製に成功していたが、新規ブレンドNfF含有複合膜でも5μm複合膜の作製に成功、120°CでそのMEAは発電可能でありNR211より優れた発電性能を示した	○	ダイコーターでNfF複合膜を連続製造できる製膜条件を確立する

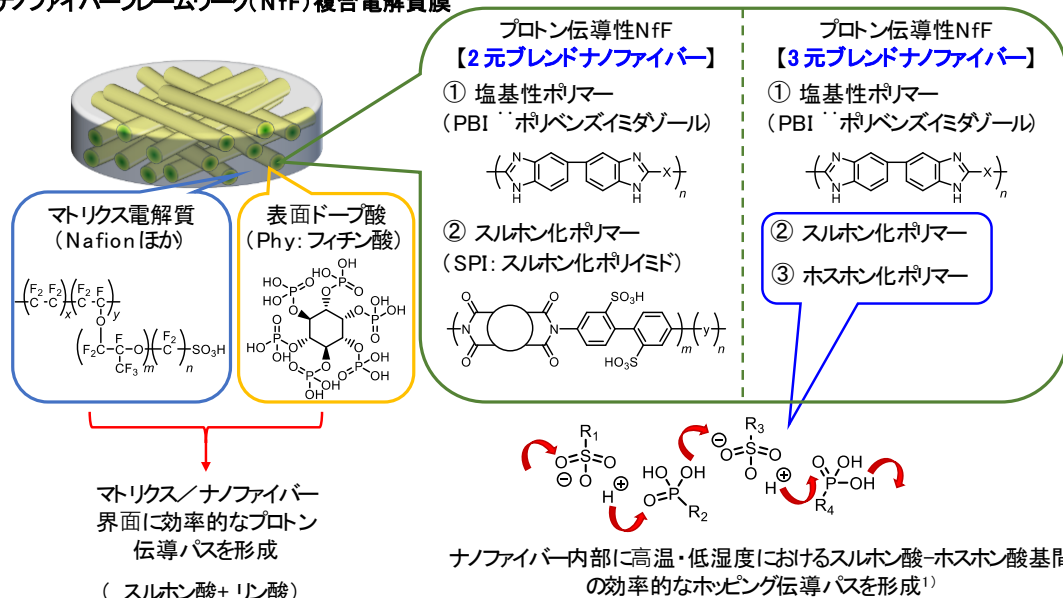
3.2 研究開発の詳細

(1) 新規 NfF を含有する複合膜の開発

従来は表面修飾型 NfF を開発してきたが、今後要求されるプロトン伝導性の高性能化を考えると、ナノファイバー内部もプロトンが輸送できる新規 NfF の開発が不可欠である。そのため、従来の塩基性 PBI とスルホン化ポリマーからなる 2 元ブレンドナノファイバーと、塩基性 PBI とスルホン化ポリマー、ホスホン化ポリマーからなる 3 元ブレンドナノファイバーを開発し、NfF 表面・内部をプロトンが輸送できる材料開発を行った。

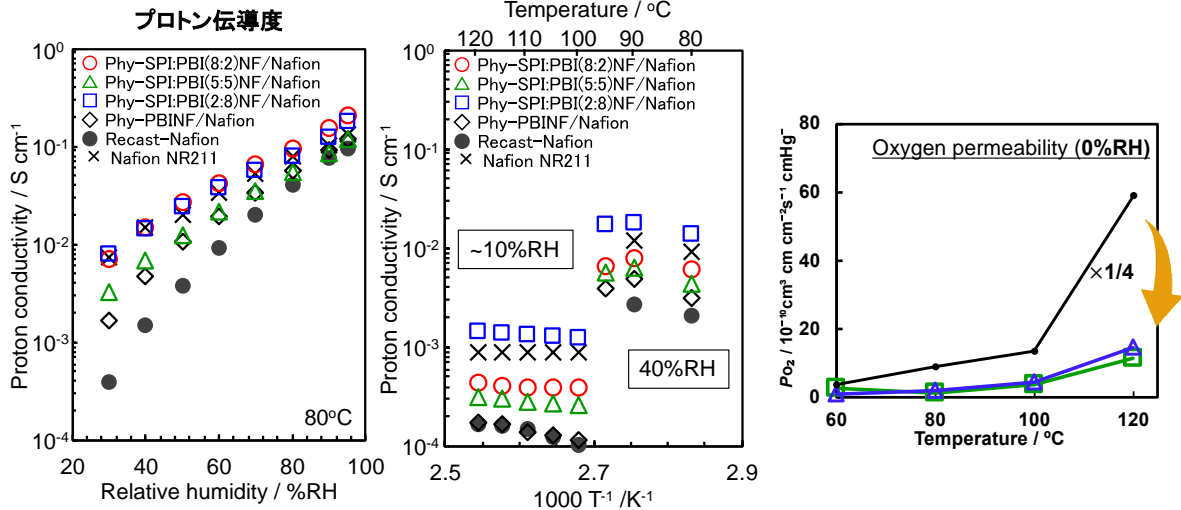
(2) 2 元ブレンドナノファイバー複合膜のプロトン伝導性とガスバリア性

ナノファイバーフレームワーク(NfF)複合電解質膜



2 元ブレンド NfF 複合膜の 120°C低湿度下でのプロトン伝導性は、Recast-Nafion の約 10 倍、NR211 の約 2 倍となり、当初目標を達成した。2 元ブレンド NfF 複合膜のプロトン輸送はスルホン酸量よりフィチン酸修飾量に依存性することも分かった。2 元ブレンド NfF 複合膜の 120°C無加湿下での酸素透過率は NR211 の約 1/4 となり、概ね当初目標を達成した。

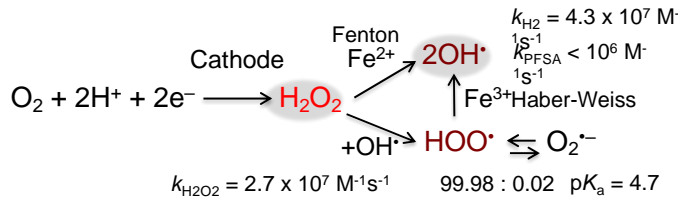
2元ブレンドNfF複合膜



(1) ラジカルクエンチ剤の開発

対象とするラジカルは H₂O₂ とし、H₂O₂ を触媒的に消去する新規 H₂O₂ 触媒を開発することを目的としている。現在の用いられている酸化セシウムは膜内で容易にイオン化され膜外に放出されてしまうため、新規クエンチ剤を NfF へ固定化法する手法を検討した。また、クエンチ剤の NfF からの除法や NfF への再結合同も検討し、長期膜耐久性の実現も検討する。

電解質膜内で起きるラジカル反応



3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 203x 年開発目標の電解質膜：発電特性と製膜プロセス

203x 年電解質膜材料はフッ素系ポリマーが有力であると考えられるので、我々が開発する NfF にそのポリマーを導入することで、電解質膜のプロトン伝導性とガスバリア性の向上が期待でき、さらに膜厚も 10mm 以下に低減しかつ機械的強度等も向上するため、目標とする電池特性に到達する可能性がある。今後は候補となる電解質膜材料を用いた NfF 含有複合膜の評価が必要となる。また電解質膜の性能は製膜方法に著しく依存するため、実際の製造に関わる再委託先日本バイリンとの情報共有が重要となる。また NDA や知財に関しては、関連企業や研究機関（大学を含む）と連携して、Open-close 戦略的で取り組んでいく。

(2) 203x 年開発目標の電解質膜：クエンチ剤開発

現在の電解質膜はラジカルクエンチ剤を多量に添加し膜の耐久性を高めているが、一方でクエンチ剤導入により初期プロトン伝導性は著しく低下するため、膜本来が持っているプロトン伝導性が大きく損なわれている。我々が開発する新規ラジカルクエンチ剤は、過酸化水素の 2 電子還元を目指す触媒で、そのもの自体がプロトン伝導性を有するため、電解質膜材料が持つプロトン伝導性への影響を極力抑制でき、その効果だけでも電解質膜のプロトン伝導性に大いに貢献できる。さらに新規クエンチ剤は NfF に固定化されるためその移動や流出は抑えられ、膜の長期耐久性への貢献も大いに期待されている。その実現に向け、特に触媒活性の向上と触媒の固定化が大きな課題であり、これらに重点的に取り組む。

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

課題	開発内容	2022年度	2023年度	2024年度
新機能的NfF原料の紡糸条件と大面積化	連続紡糸条件の最適化		→	→
ラジカルクエンチ剤のNfFへの導入	クエンチ剤導入手段の検討	→	→	→
膜厚10μm複合膜の作製と大面積化	Nafion及び新規電解質樹脂(AGC)で複合膜作製		→	→
120℃発電性能	複合膜の発電性能測定	→	→	→

2030年、203x'年を見据えた電解質膜材料には、低温加湿状態から140℃無加湿状態まで幅広い範囲で稼働できる電解質膜の開発が求められている。目的達成のためのNfF研究の方向性としては、高温低加湿下で稼働するホスホン酸と、低温高加湿下で稼働するスルホン酸を空間的に精密に制御したNfFを開発する必要がある。

今後は、140℃でも耐えられる耐熱性ポリマーからなる電解質材料を合成できる縮合系合成を専門とする岩手大学（芝崎研究室）、秋田大学（寺境研究室）も加わり、新規ホスホン酸系ポリマーやスルホン酸系ポリマーを合成、それらからなる新規NfFや新規高分子マトリックスを開発するなど新材料創生に注力し、2030年目標に加え203x'年目標の達成も目指す。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2021/10/22	特願 2021-173069	ナノファイバー、不織布および複合体	東京都立大学

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021/1/1	Membranes	Fabrication and Electrolyte Characterizations of Nanofiber Framework-Based Polymer Composite Membranes with Continuous Proton Conductive Pathways	Takeru Wakiya, Manabu Tanaka, Hiroyoshi Kawakami
2	2021/5/1	Journal of Photopolymer Science and Technology	Fabrication and Characterizations of Polymer Electrolyte Composite Membranes Consisted of Polymer Nanofiber Framework	Takahiro Ogura, Kazuto Suzuki, Manabu Tanaka,

			Bearing Connected Proton Conductive Pathways	Hiroyoshi Kawakami
3	2020/9/1	化学と教育	水素エネルギー社会の実現に貢献する化学	田中 学, 川上 浩良
4	2021/9/1	電気化学	高分子ナノファイバーを用いた PEFC 用電解質膜の開発	田中 学, 川上 浩良
5	2020/12/1	(招待講演)第 28 回日本ポリイミド・芳香族系会議(桐生)	芳香族系高分子ナノファイバーの燃料電池応用	田中学
6	2021/10/1	(招待講演)岩手大学特別講演会	2030 年以降で求められる燃料電池用電解質膜の開発	川上浩良
7	2022/3/1	(招待講演)第 7 回 FC-Cubic オープンシンポジウム	燃料電池技術開発ロードマップ	川上浩良
8	2022/6/1	(招待講演)2022 年繊維学会年次大会	電池の高性能化に寄与する電界紡糸ナノファイバーの電解質膜応用	田中学, 川上 浩良
9	2022/9/1	(招待講演)第 71 回高分子討論会	高分子材料の進化が“脱炭素”を実現する	川上浩良
10	2020/9/1	第 69 回高分子討論会	水素エネルギーの利用拡大に寄与するイオン伝導性高分子ナノファイバーの電池応用	田中学, 西澤基貴, 松田優, 落合美月, 川上浩良
11	2020/11/1	膜シンポジウム 2020	ポリビニルホスホン酸含有ナノファイバー複合膜の作製と燃料電池特性評価	西澤 基貴, 田中学, 川上 浩良
12	2021/5/1	第 70 回高分子学会年次大会	高温低加湿燃料電池作動を志向した酸/塩基ブレンド高分子ナノファイバー複合電解質膜の作製と評価	鈴木千翔, 田中学, 川上浩良
13	2021/5/1	第 28 回燃料電池シンポジウム	幅広い温度と低加湿での燃料電池作動を目指した高分子ブレンドナノファイバー複合電解質膜の作製と評価	鈴木千翔, 田中学, 川上浩良
14	2021/6/1	2021 年繊維学会年次大会	高温低加湿での燃料電池作動を目指した酸ドーブ型ブレンドナノファイバー複合電解質膜の作製と評価	鈴木千翔, 田中学, 川上浩良
15	2021/6/1	第 38 回国際フォトポリマーコンファレンス	連結したプロトン伝導パスを有するナノファイバーフレームワーク複合電解質膜の作製と燃料電池特性評価	小椋 隆廣, 鈴木千翔, 田中学, 川上浩良

16	2021/12/1	第 62 回電池討論会	高温低湿下でプロトン輸送をアシストする機能性ナノファイバー補強層, (神奈川・オンラインハイブリッド開催), 3C03 (2021 年 12 月)	鈴木千翔, 田中学, 倉持政宏, 山内俊, 宮口典子, 川上浩良
17	2021/12/1	第 59 回高分子と水に関する討論会	新規プロトン伝導性 PVA 架橋型ナノファイバーの作製とそのプロトン伝導性評価	桑原康太, 小峰一将, 川上浩良
18	2022/5/1	第 71 回高分子学会年次大会	架橋 PVA ナノファイバーフレームワークを用いた燃料電池電解質膜の作製とその特性	桑原康太, 小峰一将, 中江豊崇, 川上浩良
19	2022/5/1	第 29 回燃料電池シンポジウム繊維学会年次大会	高温低加湿下におけるプロトン伝導性向上を目指した酸/塩基ブレンドナノファイバー複合電解質膜の作製と燃料電池特性評価	稲原遼太, 鈴木千翔, 田中学, 川上浩良
20	2022/6/1	2022 年繊維学会年次大会	広い温度範囲での作動を目指した燃料電池用スルホン酸/ホスホン酸基含有高分子ナノファイバー複合電解質膜の作製とその評価	稲原遼太, 鈴木千翔, 田中学, 川上浩良
21	2022/6/1	2022 年繊維学会年次大会	その場重合によるナノファイバー表面への酸官能基導入と複合電解質膜の作製	岩崎皓太, 田中学, 川上浩良
22	2022/6/1	2022 年繊維学会年次大会	燃料電池応用を指向した酸官能基付加ポリドーパミン修飾ナノファイバーの作製と特性評価	岩崎皓太, 田中学, 川上浩良
23	2022/9/1	第 71 回高分子討論会	次世代燃料電池に向けた広い温度範囲で作動するナノファイバー含有高分子電解質膜の開発	中江豊崇, 鈴木千翔, 桑原康太, 田中学, 川上浩良
24	2022/9/1	第 71 回高分子討論会	プロトン交換膜性能の向上に向けた高分子ナノファイバー複合膜の成膜法の最適化	達川あかり, 中江豊崇, 川上浩良
25	2021/5/1	(優秀ポスター賞) 第 70 回高分子学会年次大会	高温低加湿燃料電池作動を志向した酸/塩基ブレンド高分子ナノファイバー複合電解質膜の作製と評価	鈴木千翔, 田中学, 川上浩良

課題番号（管理番号）： IP12

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／150℃運転可能な高耐久超薄コンポジット電解質膜／電極接合体の研究開発」

実施者： 豊橋技術科学大学・兵庫県立大学・豊田通商株式会社

期間： 2020年7月～2022年6月

1. 研究開発概要

従来、中温型燃料電池電解質膜としてリン酸をドーブしたポリベンゾイミダゾール（PBI）が検討されているが、リン酸の溶出が課題となっている。本研究課題では、プロトン酸を固定化した高耐久超薄コンポジット電解質膜を開発し、150℃以上の中温領域における燃料電池高出力発電を実証する。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

本研究では、第5次エネルギー基本計画や水素・燃料電池戦略ロードマップ等で定めるシナリオに基づき2030年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システムを実現するためのユーザーニーズに基づく協調領域の基盤技術を開発することにより、世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立することを目的とする。

本研究は、2024年度開発目標を0.8V@1A（触媒白金使用量0.1mg/cm²以下）が見通せる技術開発とされている。これは、NEDO水素・燃料電池材料研究会資料に示す、スタック体積当たりの出力密度6kW/Lの実現に大きく寄与するものである。これを達成するために、以下の研究開発項目に取り組む。

A: 高耐久超薄コンポジット電解質膜/電極接合体の開発（担当：豊橋技術科学大学）

B: プロトン酸導入 PBI系高分子およびアイオノマー複合型電極触媒の開発（担当：兵庫県立大学） C: 高温 PEM 形 MEA 技術のベンチマーク（世界）ならびに実用化・事業化に向けた資材から燃料電池までのサプライチェーンの研究開発（担当：豊田通商株式会社）

これらの研究開発項目に対して、下記の間目標と最終目標を設定している。

中間目標（2022年6月）

1. MEAの研究開発

150℃無加湿環境下 10⁻²S/cm以上の導電率を維持する膜厚 10μm程度の電気化学的に安定な高耐久超薄コンポジット電解質膜とその電解質膜/電極接合体の構築

2. 高温 PEM 技術ベンチマークとサプライチェーン研究開発

①高温 PEM 技術のベンチマーク（世界）の取り纏め

②実用化・事業化に向けた資材～燃料電池までのサプライチェーンにおける実用化の方法論、体制、スケジュールの策定に関する実施計画書の作成

最終目標（2025年3月）

1. MEAの研究開発

0.8V@1Aとスタック体積当たりの出力密度6kW/L（触媒白金使用量0.1mg/cm²以下）が見通せる技術開発

2. 高温 PEM 技術ベンチマークとサプライチェーン研究開発

①高温 PEM 形燃料電池技術のベンチマーク（世界）結果に基づく、次期開発への提案書の作成

②実用化・事業化に向けた資材～燃料電池までのサプライチェーンにおける実用化の方法論、体制、スケジュール

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
開発項目 A: 高耐久超薄コンポジット電解質膜電極接合体の開発 (担当: 豊橋技術科学大学)	1. MEA の研究開発 150℃無加湿環境下 10^{-2} S/cm 以上の導電率を維持する膜厚 10 μ m 程度の電気化学的に安定な高耐久超薄コンポジット電解質膜/電極接合体の構築	<ul style="list-style-type: none"> ・新規プロトン伝導性ナノファイバーを合成し、特許出願を行った。 ・ポリマー、ナノファイバー、補強材ファイバの検討・選定を行った。 ・コンポジット膜で 10^{-2}S/cm@150℃を達成した。 ・酸化チタンで被覆された Pt 微粒子や Pt 微粒子を担持した CNT の調製と評価を行い、高い ECSA 維持率を確認した。 ・リン酸基やスルホン酸基を含む PBI 用のモノマー合成に成功した。 	○	<p>プロトン酸導入 PBI 系高分子の開発を行うことで、電解質膜の抵抗過電圧を低減する。</p> <p>Pt@TiO₂/CNT/アイオノマー開発を行うことで、リン酸被毒を低減し、電極活性化過電圧を低減する。</p>
開発項目 B: プロトン酸導入 PBI 系高分子およびアイオノマー複合型電極触媒の開発 (担当: 兵庫県立大学)				
開発項目 C: 高温 PEM 形 MEA 技術のベンチマーク (世界) ならびに実用化・事業化に向けた資材から燃料電池までのサプライチェーンの研究開発 (担当: 豊田通商株式会社)	<p>①高温 PEM 技術のベンチマーク (世界) の取り纏め</p> <p>②実用化・事業化に向けた資材～燃料電池までのサプライチェーンにおける実用化の方法論、体制、スケジュールの策定に関する実施計画書の作成</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・PBI/リン酸系ベンチマーク設定: H₂/Air、0.6V@1A/cm²、600mW/cm² を 246kPa-abs の Air 供給で達成をベンチマークとして定めた。 ・リン酸代替としてのイオン液体 IL 調査、米国動向調査 DOE-AMR2021 (IL の固定化)、第 240 回米国電気化学会における高温 FC 関連技術調査 (高温アイオノマー)、高温 FC の業界動向調査 (Blue World Technologies, SerEnergy, Advent) 	○	<p>高温 PEM 形燃料電池技術のベンチマーク (世界) 設定を実施し、目標値の妥当性と競争力を検証する</p>

3.2 研究開発の詳細

(1) 開発項目 A: 高耐久超薄コンポジット電解質膜 電極接合体の開発 (担当: 豊橋技術科学大学)
豊橋技科大は、①プロトン酸固定無機ナノファイラーの開発、②高耐久性超薄コンポジット電解質膜および膜/電極接合体の開発を担当する。

①プロトン酸固定無機ナノファイラーの開発:

フュームドシリカ (SiO_2 : 粒径 10nm) と化合物 X を Ar 雰囲気下のドライな条件でメカニカルミリング処理したところ、新規物質が得られることがわかった。得られた $40\text{SiO}_2\text{-}60\text{ X}$ (mol%) は、 $90\sim 150^\circ\text{C}$ の温度領域で無加湿で 10^{-2} S/cm 以上の極めて高いプロトン導電率を有することがわかった。これにより、目標の新規無機ファイラー導電率 $> 10^{-2}\text{ S/cm@}150^\circ\text{C}$ を達成することができた。

②高耐久性超薄コンポジット電解質膜および膜/電極接合体の開発:

メカニカルミリングで作製した $40\text{SiO}_2\text{-}60\text{ X}$ を PBI のジメチルアセトアミド DMAc 溶液に添加してコンポジット電解質膜を作製した。複合体を 5wt% 添加したものは、Pure PBI よりも高い導電率を示し、新規導入した JARI セルを用いた発電試験において 150°C 無加湿条件 (リン酸ドープレベル PADL=8、膜厚約 $50\mu\text{m}$) で最大電力密度 520 mW/cm^2 を達成し、安定して連続発電が可能であった。

溶液法で得られた前駆体を焼結して TiP_2O_7 および SnP_2O_7 微粒子を調製した。これらのピロリン酸塩を PBI のジメチルアセトアミド DMAc 溶液に添加してコンポジット電解質膜を作製した。 TiP_2O_7 を 1wt% 添加したものは 160°C 無加湿で $6.5\times 10^{-3}\text{ S/cm}$ 、 SnP_2O_7 を 2wt% 添加したものは 160°C 無加湿で $1.2\times 10^{-2}\text{ S/cm}$ を示し、いずれも Pure PBI よりも導電率が高く、当初予定の目標の膜導電率 $> 10^{-2}\text{ S/cm@}150^\circ\text{C}$ を達成した。 TiP_2O_7 1wt% 添加 PBI 膜および SnP_2O_7 2wt% 添加 PBI 膜は、 160°C 無加湿条件 (PADL=8、膜厚約 $50\mu\text{m}$) で最大電力密度 500 mW/cm^2 および 373 mW/cm^2 をそれぞれ達成した。

ガラスファイバ (直径 $0.1\sim 0.3\mu\text{m}$) に静電吸着複合法を用いてポリジアリルジメチルアンモニウム PDPA を被覆することで、静電反発によって PBI 溶液中での分散性が向上し、約 $15\mu\text{m}$ の PBI 膜を作製することが可能になった。

(2) 開発項目 B: プロトン酸導入 PBI 系高分子およびアイオノマー複合型電極触媒の開発 (担当: 兵庫県立大学)

兵庫県立大は、①プロトン酸導入 PBI 系高分子の開発、②新規アイオノマー合成、③CNT/アイオノマー/プロトン酸固定無機ナノファイラー/Pt 電極触媒の作製を担当する。

①プロトン酸導入 PBI 系高分子の開発:

高温で動作する固体高分子形燃料電池 (PEFC) 実現のため、リン酸をプロトン伝導体に用いる。しかし、リン酸が膜などから溶出すると、白金触媒を被毒することで発電効率が低下してしまうことが知られている。そこで、リン酸の溶出を防ぐため、プロトン酸を共有結合で PBI に導入することを本研究の目的とした。PBI のベンゼン環に直接酸基を結合すると、容易に分解するため、本研究では、ベンジル位にプロトン酸基を導入する設計を行った。目的のプロトン酸導入型 PBI を重合するため、モノマーとして、5-ホスホン酸メチルイソフタル酸および、5-スルホン酸メチルイソフタル酸の合成を行った。具体的な合成法は、ホスホン酸導入モノマーの場合、まず 5-ブロモメチルメチルイソニレートのプロモ基にホスホン酸を導入して、カルボン酸を保護していたメチル基を外すことで 5-ホスホン酸メチルイソフタル酸を合成した。また、スルホン酸を導入したモノマーも同様に合成を行った。合成の確認は、 ^1H 、 ^{13}C 、 ^{31}P NMR、赤外分光 (IR) などで行った。これらのキャラクタリゼーションの結果、目的物の合成を確認した。今後 3,3',4,4'-テトラアミノビフェニルと縮合することで、目的のプロトン酸基を導入した PBI

を合成する。

②新規アイオノマー合成：

最近、リン酸をプロトン伝導体に用いて、高温で使用すると、リン酸間の脱水縮合により二量化が進行して発電効率が低下することが示された。ポリ（パーフルオロベンゼンホスホン酸）（PWN70）を用いると、高温でのリン酸の脱水反応を抑制できることがロスアラモス研究所から報告された。そこで PBI の側鎖にパーフルオロベンゼンホスホン酸を導入できないか検討した。まずは、PWN70 を合成法について調べて、実際に合成を行った。文献にしたがって、パーフルオロスチレンのラジカル重合を行い、その後、側鎖のパラ位をホスホン酸化することで、目的の PWN70 を合成することに成功した。得られたポリマーについて、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）、 ^1H 、 ^{13}C 、 ^{19}F 、 ^{31}P NMR から合成を確認した。この合成で得られた PWN70 はそのまま、カーボンナノチューブ（CNT）と白金のバインダーなどに利用できると期待される。さらにパーフルオロベンゼンのパラ位をホスホン化する方法を確立したため、今後 PBI の側鎖にパーフルオロベンゼンホスホン酸を導入した分子設計に展開する。

③CNT/アイオノマー/プロトン酸固定無機ナノファイバー/Pt 電極触媒の作製：

酸化チタンで被覆された Pt 微粒子や Pt 微粒子を担持した CNT の調製と評価を行い、高い白金有効利用面積（ECSA）維持率を確認した。

(3) 開発項目 C：高温 PEM 形 MEA 技術のベンチマーク（世界）ならびに実用化・事業化に向けた資材から燃料電池までのサプライチェーンの研究開発（担当：豊田通商株式会社）

豊田通商では、中温型燃料電池に分類され、本開発項目のターゲットとなる高温 PEM 形燃料電池技術のベンチマークを、文献、WEB 調査および学会への WEB 参加によって行い、最新の研究開発動向と課題を取りまとめた。以下にその要点をまとめる。

① 高温 PEM 技術のベンチマーク（世界）の取り纏め：

最近になって高温 PEM 形燃料電池に関して注目すべき新技術が複数報告されている。一つは 2016 年に広い温度範囲での作動と耐久性が確認されているイオンペア膜（Quaternary ammonium-biphosphate ion-pair-coordinated polyphenylene; QAPOH）を用い、触媒層バインダーにペンタフルオロフェニルホスホン酸を固定化した高分子(PWN)を用いた MEA に関する論文[1]であり、この組み合わせで高い出力と耐久性が得られることが報告された。さらに本技術の続報として 2022 年 3 月に公開された論文[2]では、触媒層バインダーに PWN と Nafion を混合して用いることで、さらなる高出力化($780\text{mW}/\text{cm}^2$ 、 $1.7\text{A}/\text{cm}^2@0.43\text{V}$)を実証した。当グループがベンチマークとしていた PBI/PA 系電解質膜を用いた場合、同じ作動条件 (H_2/Air 、背圧 148 kPa 、 160°C) における電池性能は、 $510\text{mW}/\text{cm}^2$ 、 $1.2\text{A}/\text{cm}^2@0.43\text{V}$ であるのに対し、約 1.5 倍の出力改善であることに加え、これまでにリン酸系電解質が苦手としてきた低温熱サイクル試験 ($40\text{-}160^\circ\text{C}$) でも高い耐久性が確認された。いずれも米エネルギー省（DOE）が長年に亘って支援してきたロスアラモス研を中心とする高温膜プロジェクトの成果である。

上記新技術から得られる知見は 2 点である。一つは触媒層バインダーの重要性であり、これは低温 PEM 型燃料電池で注目されている低被毒あるいは高酸素透過アイオノマーの有用性と共通するものである。新技術のコアとなる PWN は膜化することが困難な材料なので、さらなる幅広い材料探索により、より優れた触媒層バインダーが見いだされる可能性がある。もう一点は、電解質膜にドーブしたリン酸の溶出抑制の重要性である。当初から課題との共通認識はあったものの、原理的に完全には溶出抑制が困難なイオンペア膜であっても電池特性を大幅に改善できることが示された点が重要である。さらなるリン酸抑制が実現すれば一層の電池特性の改善が期待される。これらの 2 つの知見に重点を置いた粘り強い研究開発を継続す

べきである。

また、これらの新技術に対して当グループでは迅速な対応を行っており、兵庫県立大学で QAPOH および PWN の合成を行い、材料合成における課題を抽出することができている。今後、豊田通商ではサプライチェーンの視点で兵庫県立大学の知見を活用し、これらの新材料のコスト分析を既存材料と比較して進める予定である。

他方、産業界でも動きがあり、2021 年 12 月に、長年高温 PEM 形燃料電池を事業としてきたデンマークの SerEnergy 社を米国の Advent 社が買収した。Advent 社はドイツの化学大手の BASF 社と提携して高温 PEM 膜の量産を計画しており、また DOE の高温膜プロジェクトのメンバーであることから、上記の新技術が早期に市場に導入される可能性がある。他方で、SerEnergy 社からスピンアウトした同じデンマークの Blue World Technology 社も、8500m² の大規模なスタック工場の稼働を目指す一方で、2021 年秋の米国電気化学会でも開発状況を公開してプレゼンスを高めている。

このような産業界の動きは、高温 PEM 形燃料電池の作動温度と改質温度が近いこと、組み合わせの相性の良いメタノールが、バイオ技術や e-fuel 技術の利用によって得られるカーボンニュートラル燃料の一つとして再評価される中で、非常用電源だけでなくモビリティを含めて多用途に実用化する動きを反映したものと考えられる[3]。基礎研究と用途開発の双方の十分なベンチマークは、今後も継続的に実施する必要がある。

[1] Atanasov, V. et al., Nature Mater. **20**, 370–377 (2021).

[2] Lim, K. et al., Nature Energy **7**, 248–259 (2022)

[3] <https://www.methanol.org/wp-content/uploads/2020/04/Methanol-Fuel-Cell-Powering-the-Future-webinar-presentation.pdf>

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

終了事業につき割愛

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

●現時点で A 社および B 社から正式に関心表明書が提出されている。

●2028 年の事業化に向けては、豊田通商を介したサプライチェーンの確保と、継続した協業を考えている。また、本検討の事業化は 2030 年以降と想定している。本事業期間は要素技術開発を進め、その後、大学ではさらなる要素技術のレベルアップを、製品形態での開発では関心表明を頂いた A 社との協業を中心として、さらに、材料/部材開発において、これまでの協業実績のある B 社をはじめ、豊田通商の幅広いネットワークを利用してファイバーメーカー、樹脂メーカー、成膜メーカー、MEA メーカー、試作メーカー等の参画も得て、技術開発を進めたいと考えている。

●さらに、C 社、D 社など高度な分析技術を持つ企業や F 社など FC 技術開発に経験を持つ企業との連携も重要になっている。今後、ある程度の技術見通しが得られた段階で、これらを統括できる電池メーカーあるいは自動車メーカーへの移管を検討したい。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2021/10/8	特願 2021-166482	*****	豊橋技科大

－研究発表・講演、文献等、その他－

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021年10月	Langmuir	pH-Responsive Association Behavior of Biocompatible Random Copolymers Containing Pendent Phosphorylcholine and Fatty Acid	兵庫県立大学 遊佐・岡他
2	2022年1月	Polymer Journal	Development of pH-responsive polymers and their application	兵庫県立大学 遊佐
3	2022年2月	Chemistry Letters	Association Behavior of a Homopolymer Containing Choline Phosphonate Groups in Aqueous Solutions	兵庫県立大学 遊佐・Thi Lien Nguyen 他
4	2022年4月	Langmuir	Preparation of Biocompatible Poly(2-(methacryloyloxy)ethyl phosphorylcholine) Hollow Particles Using Silica Particles as a Template	兵庫県立大学 遊佐・藤井他
5	2021.3.11	兵庫県立大学 遊佐、水素エネルギー共同研究センター（兵庫県立大学）	燃料電池用アイオノマーの設計と合成	兵庫県立大学 遊佐
6	2021.8.20	第5回 FC-Cubic オープンシンポジウム	高温化に向けて技大―高専連携	豊橋技術科学大学 松田
7	2021.9.1-3	2021年日本セラミックス協会秋季シンポジウム	中温無加湿燃料電池に向けた PBI/Glass fiber コンポジット電解質膜の作製および評価	豊橋技術科学大学 永井・松田他
8	2021.9.8-9	2021年電気化学会秋季大会	中温無加湿燃料電池の高性能化に向けた酸化チタン添加 PBI コンポジット電解質膜の作製と評価	豊橋技術科学大学 前川・松田他
9	2021.11	兵庫県立大学、産学連携マッチングセミナー	産官学連携研究を推進する兵庫県立大学水素エネルギー共同研究センター	兵庫県立大学 遊佐

10	2021.11.27	日本セラミックス協会東海支部学術研究発表会	SYNTHESIS AND CHARACTERIZATION OF Pt@TiO ₂ CORE-SHELL NANOPARTICLES AS ELECTROCATALYST FOR APPLICATION IN PEMFCS	豊橋技術科学大学 Liyana、松田他
11	2021.11.27	日本セラミックス協会東海支部学術研究発表会	中温無加湿 PEFC の高性能化に向けた無機-有機コンポジット型新規プロトン伝導体の作製と評価	豊橋技術科学大学 文野、松田他
12	2021.11.30-12.2	電池討論会	複素環式化合物強酸塩をベースとするプロトン伝導性無機-有機複合体の合成と中温無加湿燃料電池への応用	豊橋技術科学大学 前川・松田他
13	2021.12.9-10	International Symposium on Advanced Materials and Nanotechnology (iSAMN2021)	Advanced Materials for Next Generation Power Source and Storage	豊橋技術科学大学 松田 (Keynote Lecture)
14	2021.12.13-16	14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM14)	Development of Proton Conductive Materials and Application for Next-Generation Medium Temperature Fuel Cells	豊橋技術科学大学 松田(Invited talk)
15	2022.1.8	日本セラミックス協会基礎科学討論会	中温無加湿燃料電池の高性能化に向けた PBI/無機 ファイバ 複合電解質膜の作製および評価	豊橋技術科学大学 永井、松田他
16	2022.3.15-3.17	2022 年 電気化学会第 89 回大会	複素環式化合物強酸塩をベースとするプロトン伝導体の合成と中温無加湿燃料電池への応用	豊橋技術科学大学 前川・松田他
17	2022.7.17-7.22	23rd International Conference on Solid State Ionics (SSI-23)	Proton-conducting inorganic-organic composites based on strong acid salts of heterocyclic compounds and their application to medium-temperature anhydrous fuel cells	豊橋技術科学大学 前川・松田他
18	2020.10.19	豊橋技術科学大学ニュースリリース	次世代燃料電池用電解質膜の研究開発プロジェクトがスタート	豊橋技術科学大学 松田

課題番号（管理番号）：IP13

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／高伝導無水系電解質膜の研究開発」

実施者：国立大学法人 東海国立大学機構

期間：2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

＜本事業を実施する目的＞

本プロジェクトでは、第5次エネルギー基本計画や水素・燃料電池戦略ロードマップ等で定めるシナリオに基づき2030年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システム（水素貯蔵タンク等を含む）を実現するためのユーザーニーズに基づく協調領域の基盤技術を開発することにより、世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立することを目的としている。

＜本事業を実施する背景、及び本事業の位置づけや意義、必要性＞

グリーンな発電システムとして大きな期待が寄せられている燃料電池（FC）は、水の電気分解とは逆の原理を用い、水素と酸素を電気化学的に反応させることで電気エネルギーを生じさせている。特に高分子電解質膜を組み入れた固体高分子形燃料電池（PEFC）はトヨタ自動車のMIRAIやホンダ技研工業のCLARITY FUEL CELLなどの燃料電池自動車（FCV）で利用されている。

PEFCは膜/電極接合体（MEA）を基本構成パーツとしている。MEAは高分子電解質膜と呼ばれるプロトン伝導性の膜を、ガス拡散層（GDL）と触媒層からなるガス拡散電極（GDE）ではさみ込むことで得られる。電解質膜でプロトンが適切に移動しないとFC反応が生じず、優れた発電特性（高出力）が得られないため、高いプロトン伝導率（0.1 S/cm以上）もしくは低いプロトン輸送抵抗（0.1 mmの膜厚で、 $100 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ 以下）を示す高分子電解質膜を用いることが重要であり、電解質膜は燃料電池において最重要パーツの一つとされている。現在、市販のFCVで利用されている電解質膜の素材にはパーフルオロスルホン酸ポリマー（たとえばDuPont社が開発したNafion®）が用いられており、70～90℃において膜を湿らすことでプロトンが水分子を伝って移動し、高いプロトン輸送能（プロトン伝導率 $> 0.1 \text{ S/cm}$ ）を実現している（図1a）。しかし加湿がなければプロトン伝導率はほぼ0 S/cm（図1b）となるため、PEFCを作動（発電）させることはできなかった。

加湿するためにはPEFCシステム中に加湿器（または加湿システム）を組み込む必要がある。水の沸点は100℃であるため、温度・湿度の両方の調節が必要になり、複雑な温度・湿度制御システムを組み込むこととなり、それによりPEFCシステムが全体として大型化し、高コストとなってしまう。また、触媒上でのFC反応（アノード： $\text{H}_2 \rightarrow 2\text{H}^+ + 2\text{e}^-$ 、カソード： $1/2\text{O}_2 + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2\text{O}$ ）を高効率化（つまり高価かつ希少

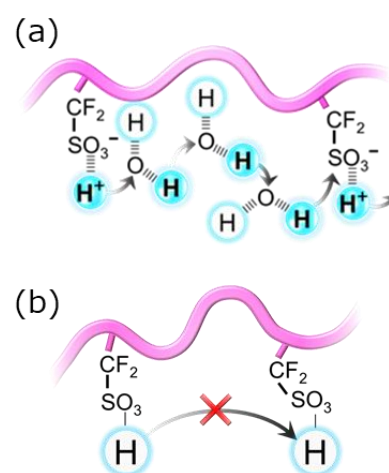


図1. ナフィオン膜内でのプロトン伝導の様子（模式図）. (a) 低温（ $< 100^\circ\text{C}$ ）・高加湿、(b) 高温（ $> 100^\circ\text{C}$ ）・低加湿条件.

な触媒の使用量の低減) させるには、高触媒活性が期待できる 100℃よりも高温 (この温度域を中温域とも呼ぶことにする)、具体的には 120~150℃程度で PEFC を作動させるのが適当であるが、電解質膜の加湿を前提とすると、100℃未満で使用せざるを得なくなり、FC 反応の高効率化や触媒使用量の低減は望めなくなってしまう。簡易な PEFC システムの開発、そして FC 反応の高効率化 (高価な触媒の使用量の低減) による PEFC の低コスト化は、PEFC の普及に不可欠なものであり、これらの実現のためには、無加湿で発電可能な PEFC (図 2)、すなわち無加湿 (=無水環境) もしくは低加湿下で高プロトン伝導率を示す電解質膜の開発が不可欠であり、産業界においても新たなニーズとなり始めている。たとえば NEDO においても中温域、無加湿下で稼働する電解質膜の開発が PEFC の普及に不可欠なものであるとして、「燃料電池・水素技術開発ロードマップ」(2017 年 12 月改訂) の 2040 年以降に達成すべき目標値 (究極目標) の一つとして 120℃作動の電解質膜の開発が掲げられている。

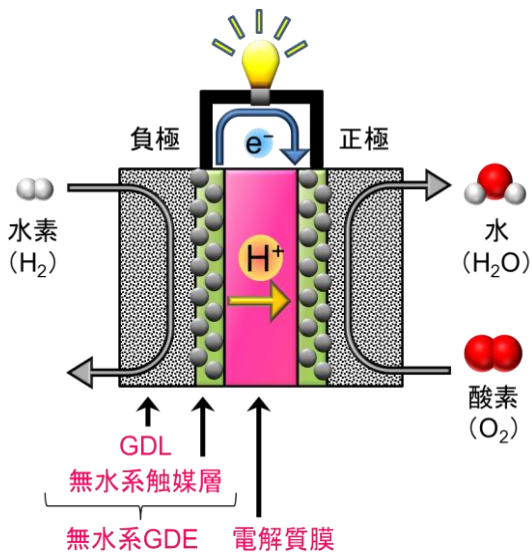


図 2. 無水系 GDE と無水系電解質膜からなる無水系 MEA を組み込んだ PEFC.

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

○中間目標 (2022 年度 6 月)

<目標>

下記物性値を示す無水系電解質膜の創出。

- ・プロトン伝導率 0.1 S/cm 以上 @ 120~150℃の中温域、無加湿下 (低プロトン輸送抵抗 (0.1 mm の膜厚では 100 mΩ・cm² 以下))
- ・ヤング率 5 MPa 以上
- ・引張強度 10 MPa 以上
- ・破断ひずみ 100 %以上
- ・強酸性液体 (低分子電解質) の溶出低減・抑制基盤技術の組み込み、検証

<目標設定の考え方>

120~150℃の中温域、無加湿下で発電可能な PEFC、すなわち中温域、無加湿下で 0.1 S/cm 程度の高プロトン伝導率を示す電解質膜へのニーズが目標設定の考え方のベースとなっている。

力学特性 (機械特性) についての目標を定めたのは、無加湿下で高プロトン伝導率 (0.1 S/cm 以上) を示す電解質膜が、低ヤング率 (<1 MPa)、低引張強度 (<1 MPa) では長期にわたって自立膜として扱うことができないためである。

また、溶出抑制基盤技術開発に取り組むことに関する目標を定めたのは、無水系電解質膜が液水に触れた際に低分子酸 (低分子電解質) が溶出していかないような対策 (溶出抑制対策) を高伝導率、高力学特性 (高機械強度) に関する課題とセットで行っていくことが重要なためである。実際、溶出抑制対策を行うことの重要性を産業界の有識者等から強く助言されている。

○中間目標（2023 年度）

<目標>

- ・以下 3 項目を同時に成立させるため、無水系電解質膜設計に関する指針だしと検証を行う。
- ①機械強度：補強層を組み入れた状態で、PEFC の通常運転条件下でガス分離膜としての使用に耐える
- ②溶出抑制：90℃の水中に 6 時間浸漬、および 90℃100%RH で 3 時間加湿しても伝導率変化が 10% 以内
- ③伝導率：0.1 S/cm @ 120℃、40%RH
- ・無水系電解質膜を評価解析プラットフォームに提出して MEA 作製・評価をしてもらうことで、性能の検証を行う。また、機械強度確保、溶出抑制、伝導率発現の同時成立に関わるメカニズムも明らかにする。

<目標設定の考え方>

実用に耐えうる無水系電解質膜の開発を進めていくうえで、水への電解質（特に低分子電解質）の溶出に対する対策は致命的課題となりうるものであり、産業界からも早期に対応（溶出抑制）を進めることが期待されており、その強いニーズを踏まえて溶出抑制に関する目標を設定。なお、伝導率変化（減少幅）については測定精度誤差を含め、10%以内とした。

最終目標が、高温での継続使用に耐えうる無水系電解質膜（十分な機械強度を有し、十分に溶出抑制（120℃50%RH の加湿 6 時間で伝導率変化 10%以内）がなされ、100℃以上の低加湿で高伝導率（0.1 S/cm @ 120℃、20%RH）を実現）の開発であることを踏まえて①～③の目標を設定している。

○最終目標（2024 年度）

<目標>

現状の加湿系 PEFC が実現できる出力密度（～1 W/cm²）以上を、中温域（120～150℃）、無加湿下で達成し、発電性能面において、無水系 PEFC が加湿系 PEFC に匹敵し、代替しうるものであることを実証する。

<目標設定の考え方>

「燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業」基本計画の研究開発項目Ⅱ「水素利用等高度化先端技術開発」では、研究開発項目Ⅰの性能やコスト目標を凌駕する燃料電池の実現に資する革新的な要素技術の設計指針を確立するとともに、実用化に向けた課題を明らかにすることが最終目標として掲げられていることを踏まえ、研究開発項目Ⅰの基本計画に示されている各研究開発項目の大目標「最高運転温度 100℃以上」を凌駕する値として、中温域、最大出力密度（～1 W/cm²）以上を設定。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
中温域、無加湿下で高プロトン伝導率を示す無水系電解質膜の開発	下記物性値を示す無水系電解質膜の創出。 ・プロトン伝導率 0.1 S/cm 以上 @ 120	・塩基性官能基を有するブロックポリマーをベースとした電解質膜（低分子酸含有）の調製： 0.091 S/cm @125 °C	○	・溶出抑制技術開発 ・溶出抑制と高伝導率を両立する技術開

	<p>～ 150 °C の中温域、無加湿下</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ヤング率 5 MPa 以上 ・引張強度 10 MPa 以上 ・破断ひずみ 100 % 以上 <p>・強酸性液体（低分子電解質）の溶出低減・抑制基盤技術の組込み、検証</p>	<p>& 無加湿 (関連特許 1 件出願)</p> <ul style="list-style-type: none"> ・補強層と複合化したブロックポリマーベースの電解質膜（低分子酸含有）の調製： 中程度のヤング率（30 MPa）、引張強度（10 MPa 弱）、破断ひずみ > 100 %、0.06 S/cm @95 °C & 無加湿 ・ホスホン酸基含有ブロックポリマーの合成、及び塩基性ポリマーとの複合化による膜作製： 水（60°C）浸漬有でも伝導率（0.0024 S/cm @80°C & 80%RH）を維持。 (関連特許 4 件出願) 	<p>発</p> <ul style="list-style-type: none"> ・溶出抑制、高伝導率、高機械強度を同時に成立する技術開発
--	---	--	---

3.2 研究開発の詳細

ポリ（t-ブチルスチレン）-b-ポリビニルピリジン-b-ポリ（t-ブチルスチレン）ブロックポリマーと硫酸からなる電解質膜を調製した。膜中の硫酸含有量が 70 wt% のとき、140°C までずり弾性率の変化はなく、膜形状を維持しており、125°C での伝導率は 0.091 S/cm（図 3）であり、目標のプロトン伝導率 0.1 S/cm 以上 @ 120～150 °C の中温域、無加湿下、をほぼ達成した。関連する研究内容の論文発表を 1 件（RSC Advances, 2021, 11, 19012-19020.）行った。また関連する試料について、評価解析プラットフォームでの構造解析評価も行った。

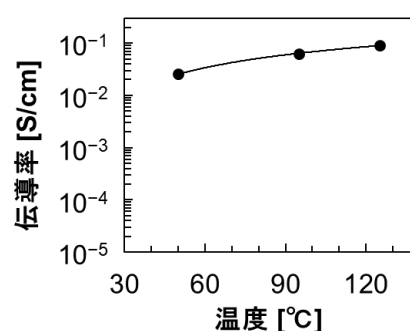


図 3. ポリ（t-ブチルスチレン）-b-ポリビニルピリジン-b-ポリ（t-ブチルスチレン）ブロックポリマーと硫酸からなる電解質膜の無加湿下での伝導率.

ポリ (t-ブチルスチレン) -b-ポリビニルピリジン-b-ポリ (t-ブチルスチレン) ブロックポリマーと硫酸とポリプロピレン製の補強層からなる電解質膜も調製した。膜中の硫酸含有量が 70 wt%のとき、室温での引張特性は、補強層を持たないものでは引張強度が 0.2 MPa 程度、破断ひずみも 10%ほどとほとんど強度を示さないが、補強層を有するものでは中程度のヤング率 (30 MPa)、引張強度 (10 MPa 弱)、破断ひずみ > 100 % であり、目標のヤング率 5 MPa 以上、引張強度 10 MPa 以上、破断ひずみ 100 % 以上をほぼ達成した (図 4 a)。

また、伝導率については、補強層を有さない場合も有する場合も、95℃@無加湿でそれぞれ 0.062 S/cm、0.061 S/cm と、補強層がある場合もない場合も同程度の伝導率を維持しており (図 4 b)、補強層組み込みによる伝導率低下はほとんど見られず、もっぱら機械強度向上の効果が見られることが分かった。

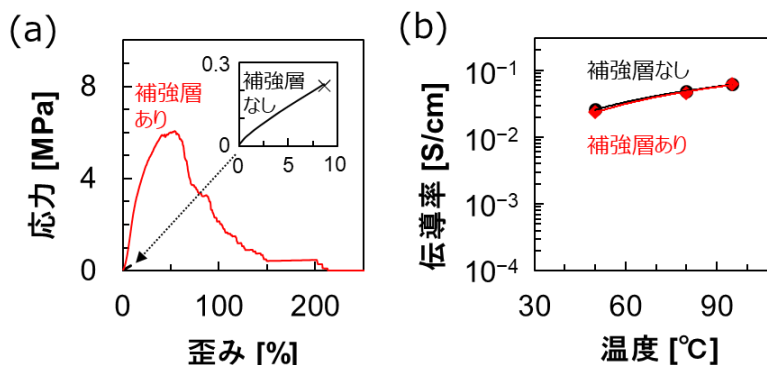


図 4. ポリプロピレン製の補強層を有する電解質膜と補強層を持たない電解質膜の (a) 応力-歪み曲線と (b) 無加湿下での伝導率。

ホスホン酸含有ブロックポリマー (図 5) を新規に合成し、塩基性ポリマーと複合化することで複合電解質膜を得た。水 (60℃) への浸漬 (3 時間) が有る場合でも無い場合でも伝導率 (0.0024 S/cm @80℃ & 80%RH) はほぼ同一で、水に対して膜から溶出物が生じていないことが推測される。溶出抑制は、無水系電解質膜開発において世界的にも未解決の致命的課題であり、産業界からの課題解決への要望も大きかった。本事業実施により、本課題解決への道筋が付いたという点で、無水系電解質膜研究開発における大きな進展といえる。

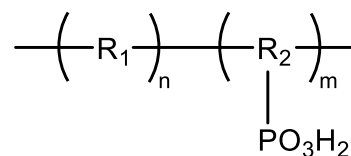


図 5. ホスホン酸含有ブロックポリマーの化学構造式。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

従来型の電解質膜、すなわち Nafion 膜 (加湿系膜の代表例) は、低温 (< 100℃) ・高加湿下で 0.1 S/cm 程度の高伝導率を示し、PEFC 用の膜として加湿下で用いた場合に 1 W/cm² 以上の高い出力密度を実現する。一方で、高温 (> 100℃) ・低加湿下で使用すると十分な伝導率は発現しない。そこで、無加湿系膜として、リン酸ドーパポリベンズイミダゾールが開発されており、高温・低加湿下で伝導性を示すことも確認されているが、通常、低分子酸を大量に含有 (80~90 wt%以上) しており、燃料電池反応で生じる水に接触するとこの低分子酸は溶出してしまふ。また、我々が開発してきた塩基性官能基を有するブロックポリマーをベースとした無加湿系電解質膜も、高温・低加湿で高伝導率を発現することが確認されてはいるものの、水との接触で低分子酸が溶出することが確認されている。水と接触しても溶出物が生じないような膜開発は、産業界からの強い要望ともなっており、これまでで取り組んできた溶出低減・抑制基盤技術の組み込み、検証をさらに発展させることで、普遍的な溶出抑制技術を開発できると考えている。また、最終目標達成のためには、溶出抑制実現に加えて、高伝導率、高機械強度を同時に成立した無水系電解質膜の開発が求められる。高伝導化のためには酸基の高密度化、また高強度化のために補強層組み込みを行うことで、溶出抑制、高伝導率、高強度を同時に成立させることができると考えている。

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

本研究開発の計画がうまく進めば、5年間の研究開発の末に、100℃未満、高加湿下で作動させてきた従来型のPEFCと同様の発電特性を、中温域、低加湿下で示す無水系PEFCが開発できることになる。この研究開発で得られる無水系電解質膜、無水系PEFCは、従来型の加湿系PEFCでは実現できなかった、PEFCの低コスト化、簡易なPEFCシステムの開発、そしてFC反応の高効率化（高価な触媒の使用量の低減）に直接的につながるものであり、PEFC普及を大きく後押しする技術内容である。

しかし、実用で用いていくためにはさらに高発電特性を示すような電解質膜・MEA作製のための最適化、高耐久性を担保させる等様々な工夫が必要ともなるため、事業期間後すぐでの実用化・事業化は難しいと考えている。実用化のためにはさらなる最適化、高耐久性を担保させる等様々な課題の解決が必要とはなるが、これらを解決できれば、産業界に及ぼす波及効果は極めて大きいものになると考えている。

ゆえに、実用化・事業化のためには長期にわたった（10年以上）研究開発が必要と考えられ、長期的視野に立っての研究開発が望まれる。具体的には2024年度までの事業期間中に関心表明を示した企業と事業期間後も協力し、成果移転、さらなる共同開発を行い、2030年代で実用化・事業化にこぎつけたいと考えている。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2021/3/30	特願 2021-056359	100℃以上で使用可能なプロトン伝導膜及び燃料電池	東海国立大学機構
2	2021/12/24	特願 2021-211001	強酸性官能基を高密度で有するブロックポリマーをベースとした高分子電解質膜	東海国立大学機構
3	2022/3/30	特願 2022-055156	ホスホン酸ポリマーベースの電解質膜	東海国立大学機構
4	2022/7/25	特願 2022-118212	酸性官能基を高密度で有するブロックポリマーをベースとした高分子電解質膜	東海国立大学機構
5	2022/7/25	特願 2022-118214	酸ポリマーベースの電解質膜及び複合ポリマー電解質膜	東海国立大学機構

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021年5月	RSC Advances	Acidity effects of medium fluids on anhydrous proton conductivity of acid-swollen block polymer electrolyte membranes	Takato Kajita, Atsushi Noro, Takahiro Seki, Yushu Matsushita, Naoki Nakamura
2	2021年5月	日本ゴム協会 2021年 年次大会	ブロック共重合体をベースとした無水系電解質膜の調製	梶田貴都、野呂篤史、関隆広、松下裕秀、中

				村直樹
3	2021年5月	日本ゴム協会 2021年 年次大会優秀発表賞 (若手優秀発表賞)	ブロック共重合体をベースとした無水 系電解質膜の調製	梶田貴都、野呂篤史、 関隆広、松下裕秀、中 村直樹
4	2021年9月	第70回高分子討論 会	ブロック共重合体をベースとした無水 系電解質膜のプロトン伝導率に及ぼ す酸性度の影響	梶田貴都、野呂篤史、 関隆広、松下裕秀、安 藤雅樹、中村直樹

課題番号（管理番号）： IP14

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／多機能 OCT を用いた金属異物非接触マイクロ断層検出システムの開発」

実施者： 名城大学

期間： 2020年9月～2024年3月

1. 研究開発概要

水素・燃料電池戦略ロードマップを鑑みると、2025年に累計20万台、2030年に累計80万台、6年間で60万台の生産が必要であり、2030年には20万台/年の生産能力が要求されている。燃料電池自動車における膜電極接合体（MEA）の生産プロセスでは金属コンタミが比較的高い頻度で発生する。これは燃料電池の性能を著しく低下させ、その品質保証の根幹に関わるため、金属コンタミの検出を低コスト・高効率に実現し、生産ライン上での実装を目標とする。特に、バスやトラックなどの高温下での運転の場合、異物金属の混入はパフォーマンスの低下だけでなく、品質保証にも大きな問題となる。

本事業では、電磁場誘起ユニットと検出器をハイブリッド化した異物金属検出システムを開発する。これは電磁場誘起ユニットによって MEA 内（カーボン多孔質体）に荷重誘起し検出するシステムであり、これにより金属コンタミ（Fe や SUS）の非接触マイクロ識別検出を可能とし、MEA の耐久性等の品質保証を実現する。本研究開発で掲げている最終目標は、①検出粒子径 100 マイクロ以下、②検出時間 1cell/sec 程度、③コストを X 線検査装置の 10 分の 1、としている。全ての仕様項目において凌駕しており、世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立することが可能となる。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

燃料電池自動車（FCV）の普及には燃料電池の生産プロセスの確立が必要不可欠であるが、膜電極接合体（MEA）の生産において金属異物（Fe コンタミ等）の混入が問題視されており、生産ライン上での検出評価の最適化が産業界のニーズとなっている。水素・燃料電池戦略ロードマップを鑑みると、2025年に累計20万台、2030年に累計80万台、6年間で60万台の生産が必要であり、2030年には20万台/年の生産能力が要求されていると考えられる。この数値を基に1日の生産台数を833台/日と試算すると、1台に搭載セル数（250～280cell/台）、生産ライン稼働時間（16Hr/日稼働）を考して、3.6～4cell/secの生産速度が要求されることになる。このように、普及台数予測から生産速度の試算として、1cell/sec程度の生産速度が要求されていることから、MEA生産ラインに導入する異物金属検査システムの構築は産業界ニーズとの合致している。特に、バスやトラックなどの高温下での運転の場合、異物金属の混入はパフォーマンスの低下だけでなく、品質保証にも大きく問題になる。現状では、高解像度レントゲン（X線）装置2台を生産ラインに導入し、0.15cell/sec程度にて異物検査が実施されている。実際には、ロボットマニピュレータを用いたX線装置へのサンプル移動時間も加わるため、更に検査時間は要している。X線装置の異物金属粒子の検出空間分解能は、100マイクロを限界とされており、X線装置2台のコストは約8000万円となり、生産技術におけるボトルネックとなっている。

そこで本研究開発では、金属異物を低コストで高速に非接触検出するシステムを構築する。これは電磁場誘起ユニットによって MEA 内（カーボン多孔質体）に荷重誘起し検知するシステムであり、これにより磁性の異なる金属コンタミ（Fe や SUS）の非接触マイクロ識別検出を可能とし、MEA の耐久性等の品質保証を実現す

る。

本研究開発で掲げている最終目標として、以下の 3 項目、①検出粒子径 100 マイクロ以下、②検出時間 1cell/sec 程度、③コストを X 線検査装置の 10 分の 1、を掲げている。提案する「電磁場誘起ユニットと検出器をハイブリッド化した異物金属検出システム」の仕様項目を検討すると、全てにおいて凌駕しており生産ライン導入に期待が持てる。実際に、最新のニーズに基づく使用環境・条件で致命的な弱点が確認されていないことから、将来の産業界ニーズに対応していると考えている。また、関心表明書の自動車メーカーとの連携に基づき、燃料電池膜電極接合体 (MEA) および標準サンプルにて実証試験を実施し、生産ラインへの導入も含め検証体制を整えている。更に、電磁場照射によって MEA 内 (カーボン多孔質体) に混入する異物金属検出システムは、世界初の革新的な技術である。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
① 電磁誘起 Doppler OCT プロトタイプ 1 号機の試作と異物金属の検出試験	<p>現有の Doppler-OCT 装置 (1300nm 帯・時間領域 OCT) に交流磁場を発生させる簡易デバイス (PZT アクチュエータ型を導入したプロトタイプ 1 号機の試作を行う。異物金属検出と元素同定の計測原理を実証するため、Fe および SUS 金属コンタミ箇所を断層可視化できるサンプルを作成し適用する。</p>	<p>保有している時間領域 Doppler-OCT に、PZT アクチュエータによる磁場変動システム (プロトタイプ) を導入し、Fe 粒子を混入させた多孔質繊維材料に適用した。Fe 粒子による Doppler 信号の検出を確認した。Fe 粒子 1 粒 (径 100 マイクロ) であっても、Doppler 信号に変化が発生することを確認した。</p>	◎	無し
② 磁場誘起システムの改良設計	<p>電磁場誘起デバイスの性能向上を計るため、カーボン多孔質材料中の異物金属粒子の運動をマルチフィジクス・シミュレーションする。特に、4 号機の電磁磁場照射デバイスの最適設計に注力する。異物金属コンタミの検出精度および検出速度を向上させる生産技術について検討する。</p>	<p>電磁場誘起デバイス、GDL 内に Fe 粒子および SUS 粒子を混入したサンプルのマルチフィジクス・シミュレーションを実施し、検出信号から異物混入の検出が可能であることを確認した。更に理論モデルを構築し、理論的に異物金属粒子が検出可能性であること証明した。</p> <p>更に、安価かつ高速検査および生産ラインへの導入を鑑みた簡易システムを考案し (新 4 号機)、その数値実験を実施し、実現可能であることを確認</p>	○	<p>多孔質 GDL の導電率の空間的ばらつきへの考慮が残されている。今後、本提案システムの最適設計を数値実験にて継続実施し、最適設計として「電磁場配向」を考慮した最適設計を達成し、実機に反映させる。</p>

<p>③ 電磁誘起ドップラ OCT2 号機の開発 + 新 4 号機の開発</p>	<p>新規フーリエ領域ドップラ OCT (SD-OCT) の市販システム (1300 nm 帯) を購入し、既存のドップラ速度検出システムおよびロックイン増幅システムを導入する。これに交流磁場誘起デバイス (電磁石) を組み込むことによって、電磁誘起ドップラ-OCT2 号機を構築する。2号機を金属異物が混入した GDL に適用し、交流磁場によって励起される振動を用いた金属異物の検出を実証する。</p>	<p>した。 ドップラ検出信号から、異物 (径 100 マイクロ) 混入有無の検査が可能であることを実証した。しかし、電磁石型の交流磁場誘起デバイスおよび OCT システムのコストが大きいこと、100mm × 200mm の MEA の OCT 検査時間の問題などが課題であることが分かった。そこで、安価かつ高速検査および生産ラインへの導入を鑑みた簡易システムの構築に方針を切り換えた (新 4 号機)。新 4 号機は、異物 (径 100 マイクロ) 混入有無を、100 ミリ秒にて検出できること、多点計測にて 100mm × 200mm の検査が可能なこと、提案デバイスは安価に構築でき、多点計測システムの構成であってもコストは 500 万円程度 (単価) まで抑えられること、など多くの利点が判明した。</p>	<p>○</p>	<p>プロトタイプの新 4 号機をたたき台に、委託先企業と協力して、電磁場誘起デバイスの最適設計を達成し、実機構築を進める。特許申請 (国内、海外) の明細書作成中の段階にある。</p>
<p>④ 電磁誘起ドップラ OCT2 号機 + 新 4 号機を用いた異物金属混入 EMA サンプルへの適用評価</p>	<p>トヨタ自動車 (株) が構築および提供予定である標準試験 MEA サンプル (金属 Fe コンタミ有り無し) を 2 号機に適用する。その検出性能 (空間分解能、検出感度、検出速度) を評価する。更に、関心表明を示す自動車メーカーと共に、一般に用いられる X 線検査装置に対する有効性 (操作性、利便性) について検討する。</p>	<p>プロトタイプの新 4 号機をメインに、異物金属混入 EMA サンプルへ適用評価した。特に、100mm × 200mm の実機 MEGA シートを利用した定量的な検証を達成した。その結果、①検出粒子径 100 マイクロ以下、②検出時間 1cell/sec 程度、③コストを X 線検査装置の 10 分の 1 の目標達成の目処が立った。また、メーカー提供の標準サンプルへの適用によって、検出粒子径 40 マイクロの検出も達成した。</p>	<p>○</p>	<p>現状の交流磁場誘起デバイスからアップデートされた最適化システムが実機導入に不可欠である。</p>

⑤ 電磁誘起ドップラー-OCT3号機の開発	MEAの断層可視化の奥行き検出ダイナミックレンジを上げるため、1700nm帯SD-OCTをベースとするドップラー-OCTを別途組立て、電磁誘起ドップラー-OCT3号機を開発する。	SD-OCTの生産ライン導入には検査時間およびコストの問題により現実的でないため、プロトタイプの新4号機の開発に研究をシフトした。	△	生産ラインへの導入は不可能であっても、MEA内部のマイクロ断層可視化はMEAの研究開発には欠かせない装置になりうるポテンシャルは消えないため、本事業とは別に開発を継続する予定である。
-----------------------	---	---	---	---

3.2 研究開発の詳細

(1) 電磁誘起ドップラー-OCTプロトタイプ1号機の試作と異物金属の検出試験

電磁場照射によるカーボン多孔質体内の異物検査法は、世界初の技術であり、カーボンを利用した新規材料の検査手法のみならず、カーボン利用材料の駆動制御、例えば宇宙機器への産業利用にも繋がる先端技術である。とくに、ドップラー-OCTを用いた断層可視化による検査法は、例が無いため別途産業利用の価値があると考えている。

(2) 交流磁場誘起システムの改良設計

電磁場照射によるカーボン多孔質体内における異物検査法の原理検証、および最適設計のために、マルチフィジクス・シミュレーションとして電磁場解析&構造解析を実施し、実現象を再現することに成功した。このような電磁場照射によるカーボン多孔質体の構造解析例は世界初で実施された。この数値実験結果より、異物金属の有無による物理的変化を捉えることができたため、メカニズムの解明がなされた。従って、電磁場照射による理論モデルを構築し、理論数学的に異物金属粒子の検出可能性を証明することができた。このメカニズムに基づいて計測原理を構築し、安価かつ高速検査および生産ラインへの導入を鑑みた簡易システムを考案し（新4号機）することが可能となった。実際にその数値実験を実施し、数値的に実証された。電磁場照射によるカーボン多孔質体内の異物検査法は、世界初の技術であり、カーボンを利用した新規材料の検査手法のみならず、カーボン利用材料の駆動制御、例えば宇宙機器への産業利用にも繋がる先端技術である。

(3) 電磁誘起ドップラー-OCT2号機の開発+新4号機の開発+新4号機を用いた異物金属混入EMAサンプルへの適用評価

電磁場照射によるカーボン多孔質体内の異物金属検出は、ドップラー-OCTの断層可視化センサーにて捉えることは証明されたが、実機MEAのサイズを考慮した検査時間の問題が課題として上がった。更に、電磁場照射デバイスとOCTデバイスの両者のコストも、産業技術的に大きな問題となった。そこで、数値実験結果および理論解明結果による知見を基に、より安価かつ高速検査および生産ラインへの導入を鑑みた簡易システムの構築に方針を切り換えることができた（新4号機）。新4号機は、異物（径100マイクロ）混入有無を、交流磁場印可から100ミリ秒程度にて検出できること、多点計測で100mm×200mmのMEAの検査が可能なこと、電磁場誘起デバイス自体も安価に構築でき、多点検出システム構成であってもコストは500万円程

度（単価）まで抑えられること、など多くの利点が判明に導くことができた。このような簡易システムであっても、電磁場照射によるカーボン多孔質体内の異物検査法は可能であることが、数値実験および実機実験によって証明された。これは、世界初の技術であり、カーボンを利用した新規材料の検査手法のみならず、カーボン利用材料の駆動制御、例えば宇宙機器への産業利用にも繋がる先端技術である。更に、関心表明書企業より提供された、異物金属混入 EMA 実機サンプル（100mm × 200mm）および標準サンプルを、新 4 号機に適用を試みた。その結果、①検出粒子径 100 マイクロ以下、②検出時間 1cell/sec 程度、③コストを X 線検査装置の 10 分の 1 の目標達成の目処が立った。更に、標準サンプルの粒子径 40 マイクロの異物検出も可能であることから、検出粒子径の向上にも期待が持てることが判明した。

(4) 電磁誘起ドップラー-OCT3 号機の開発

SD-OCT の生産ライン導入には検査時間およびコストの問題により現実的でないため、プロトタイプの新 4 号機の開発に研究をシフトしたことから、計測装置の組み立て途中にて中止した。ただし、生産ラインへの導入は不可能であっても、MEA 内部のマイクロ断層可視化は MEA の研究開発には欠かせない装置になりうるポテンシャルは消えないため、本事業とは別に開発を継続する予定である。特に、MEA の断層可視化は、MEA 開発には利用価値が高く、関心表明書企業からの要望も高いことから、世界的に需要が高いと考えられる。カーボンを利用したナノテク材料の検査技術として産業利用にも繋がる先端技術である。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 電磁場誘起デバイスの最適設計

この最適設計を成し遂げるタスクは、電磁場磁場配向を最適にする設計指針に基づいている。これは数値実験を先行させて実証すると共に、追従して実験検証を繰り返していくことになる。理論解明の結果から、現状の新 4 号機（静磁場が鉛直方向）と異なる電磁場配向に変更することが最適と考えられている。このデバイスを設計するため、数値実験および実験にて証明を行う。提案デバイスによって、検出感度を 10 倍程度上げる科学的効果が可能と考えており、最終目標①検出粒子径 100 マイクロ以下を更に向上可能と考えている。

(2) 異物金属位置の検出アルゴリズム

この位置検出アルゴリズム構築のアプローチは、新 4 号機における電磁場照射デバイスを、多点配置しラスタ走査することによって達成する。位置検出を信号時間差から科学的に実現可能であり、最終目標とする異物金属粒子（Fe）の有無だけでなく、その位置の検出の最終目標を達成できると考える。

(3) MEA 生産ライン導入方法（導入工程など）の最適化

この最適設計を成し遂げるタスクは、新規電磁場誘起デバイスと検出器のハイブリッドシステム（新 4 号機）が、MEA サンプルの移動工程（ロール固定）上に設置するだけで機能することを実証することである。このアプローチ法として、移動工程（ロール固定）上でのサンプル自由振動（固有振動）における、交流磁場誘起振動の位相差の違いを実証する必要がある。移動工程（ロール固定）上での設置は、マニピュレータ移動をせずに異物金属検出が可能となることから、X 線検査装置と異なり実用化のメリットがさらに向上する。また、現在 100 ミリ秒の検査時間の短縮が期待でき、最終目標②検出時間 1cell/sec 程度を達成できると考える。

(4) 検出感度・精度の向上および検証

これを成し遂げるタスクは、電磁場誘起デバイスと検出器のハイブリッドシステム（新 4 号機）が有する検出感

度・精度の向上に加え、その検証を継続するという検査装置開発のルーチンワークである。例えば、「粒子径の限界検討」や「検出確度（分散）」、「生産ライン上でのノイズに対するロバスト性」などは、実用化において避けては通れない。それぞれ、実機 MEA を用いて、生産ラインと同条件下にて検証を実施していくことになる。一方、検出感度・精度の向上については(1)電磁場照射デバイスの最適設計がメインではあるが、新たな手法の導入も考慮している。例えば、「異物粒子径」の推定に関しては、振幅や位相等の判別物理量との関係性を追求する余地がある。また、振動信号にディープラーニングを適用するなど、IOT の積極的活用による検討も必要となると考えられる。ただし、いずれにせよ IOT を含め信号解析には標準化 MEA サンプルが必要となることから、メーカー企業との密な相談の上で実施していくことが重要である。

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) 提案システムの実機導入を見据えた製作・適用評価

安価かつ高速検査および生産ラインへの導入を鑑みた簡易システムの新 4 号機は、異物（径 100 マイクロ）混入有無を、電磁場照射から 100 ミリ秒にて検出できること、検出器の多点計測で 100mm×200mm の MEA の検査が可能なこと、永久磁石とコイル動磁場による交流磁場誘起デバイスは安価に構築でき、多点計測システム構成であってもコストは 500 万円程度（単価）まで抑えられること、など多くの利点が判明した。このため、研究進捗を踏まえた上で、新 4 号機を叩き台にして、MEA の生産プロセスにシームレスに導入可能な検査システムの製作を再委託先にて行う。これまでに提案新 4 号機によって、当初の目標値を達成する結論が得られている。先に記した達成目標（①電磁場誘起デバイスの最適設計、②異物金属位置の検出アルゴリズム、③MEA 生産ライン導入方法（導入工程など）の最適化、④検出感度・精度の向上および検証、）は研究進捗を踏まえており、課題は定量的であり、その解決方法も具体化されている。この 4 課題に対して対策は科学的根拠に基づいており、その取り組み計画は論理的であり具体的かつ明確になっている。

ただし、MEA 生産ライン導入システムは別途設計製作の期間が必要と考えている。本開発システムを実際の燃料電池生産ラインに実装化するため、関心表明を示す自動車メーカーと共に、実際の MEA のサイズおよび生産ラインとの整合性を鑑み、実機システムの設計について出口を見据えた実践的な検討を行う。特に、実証のためには実機 MEA（MEGA シート）を検証用に用いる必要があるため、企業との連携開発体制が不可欠であり、実用化に向けた体制を維持していく。開発装置は非常に安価であることから、自動車メーカーの MEA 生産ラインへの導入だけでなく、MEA 材料メーカー（サプライア）への波及展開も重要であり、多角的な波及方針展開を活発化させる必要がある。また、車載用 PEFC だけでなく、家庭用燃料電池コージェネレーションシステムなど、地上固定用 PEFC の生産技術への展開も重要となるため、多角的な波及方針を展開する。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

なし

課題番号（管理番号）： IP15

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／「湾曲グラファイト網面」をプラットフォームとする革新的カーボンアロイ PEFC カソード触媒の研究開発」

実施者： 国立大学法人群馬大学・日清紡ホールディングス株式会社・国立大学法人千葉大学

期間： 2021年6月～2025年3月

1. 研究開発概要

低コスト化と高性能・高耐久を満たすカソード触媒を、「湾曲グラファイト網面」に活性化元素を埋め込んだ構造を持つ革新的カソード触媒の開発を目的とする。本研究では、「湾曲グラファイト網面」生成法の開拓、同プラットフォーム上に添加する元素の量子化学的シミュレーションによる推定と実証を、「湾曲グラファイト網面」の構造解析、活性発現および劣化のメカニズム解明を行うことで、NEDO ロードマップに適合した触媒調製の材料工学的道筋を明らかにし、その実現に結びつける研究を進める。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

研究開発目標：

《最終目標》「湾曲グラファイト網面」をプラットフォームとする革新的カソード触媒の研究開発を実施する。2022年度末までには、「湾曲グラファイト網面」の効率的生成法の開拓、同プラットフォーム上に添加する元素の量子化学的シミュレーションによる推定と実証を行う。これらの研究成果に立脚し、2024年度終了時には、NEDO ロードマップ 2017（2030年 FCCJ 推定）の発電性能 $0.84V$ $0.2A/cm^2$ 、 $0.66V$ $3.8A/cm^2$ を達成するための材料工学的な道筋を明らかにする。

《中間目標》

上記設定の最終目標を達成するために、下記の間目標（2022年度末）を設定した。

- ① 高活性化の指針の提示と検証
 - 「湾曲グラファイト網面」の効率的生成法として提案する *in-situ* ナノテンプレート法の有効性の確認とその適用方針の策定
 - 量子化学シミュレーションによる活性化元素の選定と、その湾曲グラファイト網面への導入を行い、実触媒の活性と理論活性を比較
- ② 耐久性向上の指針の提示と検証
 - 高電位下の劣化要因をカーボン構造解析と合わせることによる、耐久性向上指針の提示
- ③ 炭素構造ビジュアル化による実構造検証
 - XRD パターンから得られる 1次元構造とシミュレーションの 1次元構造との適合率 70%以上を実現する（従来の構造モデルによるシミュレーションから得られた結果は 50%以下）。
 - 「湾曲グラファイト網面」の構造を模擬した原子座標位置を特定するシミュレーションを用いて活性サイト（5員環など）の指標を立て、活性サイトの評価手法を確立する。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
①高活性化の指針の提示と検証	<ul style="list-style-type: none"> ● <i>in-situ</i> ナノテンプレート法の適用方針の明確化 ● 反応速度解析からの触媒の特徴付け ● 活性化元素の選定と湾曲網面への組み込み。 	<ul style="list-style-type: none"> ● 炭素化雰囲気制御とナノテンプレート導入の湾曲網面構築に対する有効性 ● 温度可変測定系構築と活性の温度依存性評価 ● 量子計算からの3種類の活性化元素選択 	○ ○ ○	<ul style="list-style-type: none"> ● より有効なテンプレート原料と炭素原料の選択 ● 反応次数解析、活性化エネルギーの算出 ● 実材料の調製方法の確立
②耐久性向上の指針の提示と検証	<ul style="list-style-type: none"> ● 高電位条件下の劣化要因の特定と、耐久性向上指針の提示 	<ul style="list-style-type: none"> ● バインドレスサンプルホルダー付き電解セル作成と、劣化試験の実施 	○	<ul style="list-style-type: none"> ● 高電位印加試験とキャラクタリゼーションの実施、それに基づく耐久性向上指針の確立
③炭素構造ビジュアル化による実構造検証	<ul style="list-style-type: none"> ● XRD とシミュレーションの適合率 70% 以上の実現 ● 原子座標特定プログラムの開発と活性サイト評価手法の確立 	<ul style="list-style-type: none"> ● シミュレーションプログラムの作成 ● 最適な炭素原子数の決定 ● 電子線回折シミュレーションプログラムの開発 	○	<ul style="list-style-type: none"> ● バルク構造を扱えるモデルの構築。 ● シミュレーションから得られた炭素構造解析法の確立 ● 電子線回折シミュレーションプログラムのデバッグ

3.2 研究開発の詳細

(1) 高活性化の指針の提示と検証

① ORR 開始電位を上げるための材料設計と触媒調製に関する研究

プラットフォームとして取り上げる材料に含まれるグラファイト網面の湾曲の程度は、因子 1 と因子 2 の複合で表される。この項目の研究では、因子 1 向上には炭素化条件の制御を、因子 2 向上にはナノテンプレート法の適用を取り上げ検討した。

2021 年度は、カーボン原料とそれに適した炭素化雰囲気ガスの選定など、因子 1 を向上させる新たな炭素化方法を確立した。2022 年度は、ナノテンプレートとカーボン原料の選択を中心に因子 2 を向上させる調製法の検討に取り組んでいる。図 1 は、ナノテンプレート法の有効性を示す TEM 像とそのイメージ像である。テンプレートの導入により、湾曲グラファイト網面が効率的に導入できていることが確認された。

本研究により、湾曲グラファイト網面を自在に制御する技術の

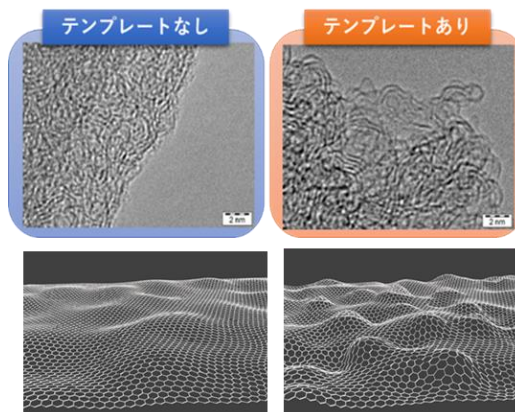


図 1. 生成した湾曲網面

可能性が示された。この技術を用いることで、平面状の網面とは異なる電子状態や化学活性を持つ湾曲構造を構築でき、そこに活性化元素を埋め込むことで、さらなる活性向上が期待される。

② 反応温度高温化により引き起こされる高電位条件下での反応挙動の解析

燃料電池の高効率化のために、現行よりも高温での運転が期待されている。カーボンアロイ触媒の活性は Pt/C 触媒に比べて顕著な温度依存性を持っている。そこで、カーボンアロイ触媒の反応速度論的解析を行うことで、この材料の特色を明らかにすることを目的とする。

2021 年度は、温度可変測定系を構築し、酸素反応次数や活性化エネルギーなどの反応速度論パラメーターの決定を実施する準備をした。2022 年度は、この測定系を用いて、開発した触媒に関する検討を進め、現在図 2 に示す反応温度と溶存酸素量を変化させたデータを得る段階にある。

この装置を用いることで、物質移動以外の触媒自体の活性の把握が可能になる。こ

れは、実セルの MEA 設計やシミュレーションにおいて有用な知見となるものと期待される。

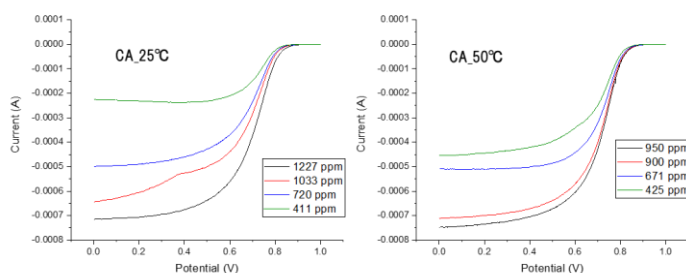


図 2. 反応温度と溶存酸素量を変えて得た ORR ボルタモグラム

③ FeCu レス新規活性化元素の創出

非白金触媒の代表である FeNx 表面錯体触媒に含まれる Fe が活性酸素を生成することから、Fe を含まない触媒の開発が望まれている。本研究では、量子化学シミュレーションにより活性化元素を選び出し、それを湾曲網面に組み込み活性を評価することを目的とした。

2021 年度は、既存の計算スクリプトに、最適な初期構造を選択するための改良を施し、高活性化をもたらす 3 種類の候補元素を選定した。そして、それを湾曲グラファイト網面に埋め込んだ触媒の調製に着手した。2022 年度は、選定した元素を数種の方法で湾曲グラファイト網面に組み込むための方法の開拓、ならびに埋め込まれた元素の化学構造の解明と触媒活性の評価を進めている。

本研究の成果は、従来の触媒でスタンダードとして用いられてきた Fe に変わる元素を選定することで、燃料電池の性能と耐久性の向上を図ることを可能にするものである。

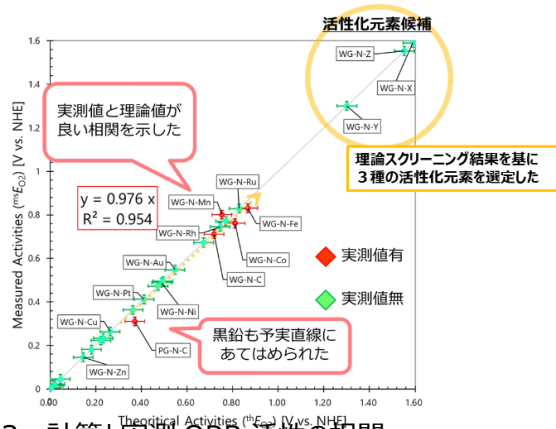


図 3. 計算と実測 ORR 活性の相関

(2) 耐久性向上の指針の提示と検証

高電位印加試験に伴い変化する触媒活性とカーボンアロイ触媒の構造変化を解析する。これにより、触媒の劣化の化学的本質の明確化と触媒設計指針提示を行い、高活性と耐久性を兼ね備えた材料の商業的製造法に関する検討を行うことを目的とした。

本研究課題は、2022 年度より開始する計画になっている。本年度は、バイングレスでサンプルを保持し、電気化学的処理を可能にするセルを作製し、温度を変えた時の酸素還元ボルタモグラムを得た。この手法を、開発触媒に適用し、劣化処理触媒の解析より、劣化の化学的本質を明確にして行く予定である。

ここで得られる成果は、高活性に加え高い耐久性を持つ触媒を設計する際に有用な情報となる。

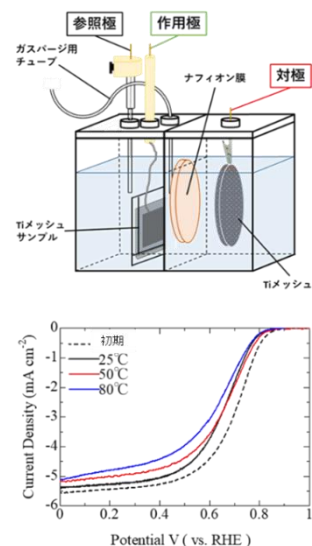


図 4. バイングレス電解装置と ORR ボルタモグラム

(3) 炭素構造ビジュアル化による実構造検証

① X 線回折測定結果に基づいた触媒の構造評価

原料と材料の構造、そして構造と特性の 2 つの相関は、材料開発において極めて重要であり、精密構造解析は、材料開発において必要不可欠な技術である。本研究では、高度シミュレーションと実材料解析を照合することで、カーボンアロイ触媒の構造をビジュアル化する技術開発を目的とした。

2021 年度は、分子動力学とリバース分子動力学シミュレーションプログラムを組み合わせたハイブリッドリバース分子動力学 (HRMD)シミュレーションプログラムを作成し、カーボン材料の 3 次元構造を再現する検討した。計算のコストと精度の観点から、シミュレーションに最適な炭素原子数を 50,000 個と決定した。今年度は、作成したプログラムの改良、バルク物性を再現できるモデル系の構築に関する研究を進めている。

本成果により、複雑な混合物でありかつ非結晶性である本プロジェクトの触媒構造決定が可能になる。そして、この技術により、材料合成と触媒活性の間の相関が確立され、より効率的な触媒開発が促進される。

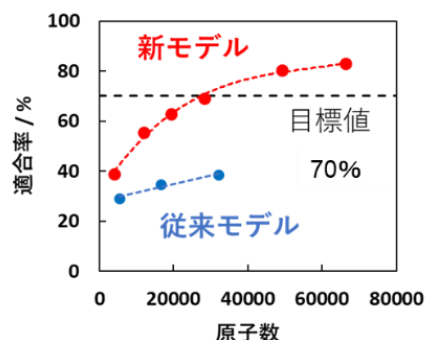


図 5. HRMD 法の適合率とモデル炭素原子数の関係

② 電子線透過・回折測定結果に基づいた触媒の構造評価

①では X 線回折データとシミュレーションを照合することで実空間における原子配置を探ることを目的とした。本研究項目では、X 線回折に代わり、電子線回折を用い、より局所的な原子配置、つまり活性点周辺の構造の選択的な解析を行う。

2021 年度は電子線回折データを用いたシミュレーションプログラムを開発した。X 線回折データと比べ、S/N 比が悪く、データ数も少ない電子線回折データから、精度の良いシミュレーションを行うために、これまで開発したプログラムの改良を行った。

本研究項目では、湾曲網面に組み込まれている活性化元素を中心に、その炭素原子および異種原子の配置を与えることが期待され、これは活性点構築のための炭素構造構築手法の開拓を促し、本研究の進展に大いに寄与するものである。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 高活性化の指針の提示と検証

触媒構造や電子的性質の観点からキャラクターゼーションを行い、設計指針のさらなる精密化を行う。量子化学的シミュレーションから推定した活性化元素を湾曲網面に導入する方法の開拓、そしてその存在状態の解明を行う。これらにより、我々のコンセプトに基づく触媒の実現を進める。

(2) 耐久性向上の指針の提示と検証

反応速度論解析とカーボン触媒構造解析を行い、劣化の化学的本質を明確にする。そして、これに基づいた触媒設計指針を提示するための研究を進める。さらに、高活性と耐久性を兼ね備えた材料の商業的製造法に関する検討も進めていく。

(3) 炭素構造ビジュアル化による実構造検証

触媒構造や電子的性質の観点からキャラクターゼーションを行い、設計指針のさらなる精密化を行う。

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) 事業化戦略

日清紡ホールディングスにより 2035 年の実用化・事業化を目指す。本プロジェクトで得られた設計指針に基づき開発を継続し、高出力、高耐久性の燃料電池触媒および触媒担体の製品開発を 2030 年までに完了させ、2035 年の実用化・事業化を目指す。開発拠点は千葉県千葉市の中央研究所とし、本プロジェクトから継続して群馬大学・千葉大学との共同研究にて実施していく。製品設計が完了した 2030 年以降は月産数十 kg の生産能力に対応するスケールアップ検討を開始する。製造拠点は、既存のカーボンアロイ触媒のパイロットプラント（月産数十 kg 対応）がある千葉県旭市とし、新規に必要な試作装置を追加で導入する。また、当該触媒の活性・劣化評価に必要な装置を併せて導入する。その後、パイロットプラントを用いた試作条件の検討を行った上で、ユーザへのサンプルワークを行い、パイロットプラントを用いた量産試作と、ユーザとの共同開発の期間とする。

これらを通じて 2035 年には実用化を達成し、量産試作から量産に移行する。月産数十 kg を超える生産能力が必要な場合は、本格量産拠点を含めた増産投資を行う。

(2) 材料のキャラクターゼーションと設計

群馬大学は、湾曲グラファイト網面の調製とそのキャラクターゼーションを行うことで、高活性と高耐久性をもたらす要因解明を行い、プラットフォームとしての湾曲グラファイト網面の材料設計指針を確立する。同時に、その指針を満足する実験室レベルの製造方法を日清紡に提供することで、日清紡の高性能カーボンアロイ触媒の実現に寄与する。

千葉大学は、複雑なカーボンアロイ触媒の構造をビジュアル化することで、群馬大学が実施する湾曲グラファイト網面構築法の開発に関する研究の効率的な推進を可能にする。また、新たに開拓する局所構造解析手法を、本プロジェクトで開発される触媒に適用し得られた情報を提供することで、より強力な構造を含めた特許取得に貢献する。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021年12月	Langmuir	Water Adsorption Control by Surface Nanostructures on Graphene-Related Materials by Grand Canonical Monte Carlo Simulations	Takamatsu, Hiroki; Ohba, Tomonori

課題番号（管理番号）： IP16

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発/金属酵素インスパイアド非白金電極触媒の研究開発」

実施者： 北海道大学、日本原子力研究開発機構

期間： 2021年6月～2025年3月

1. 研究開発概要

固体高分子形燃料電池(PEFC)のコスト削減のために、Pt 使用量の低減化が求められている。2040 年以降においては白金族元素を含まないアノード触媒の使用が求められると予想される。カソード触媒に関しては、世界中で非白金酸素還元反応触媒の開発が勢力的に進められているのに対し、アノード触媒に関しては、酸性条件下で駆動する非貴金属水素酸化反応 (HOR) 電極触媒の報告例は、論文を調べる限りでは 10 例にも満たないほど極めて少なく、非白金アノード触媒の開発は全く進んでいないのが現状である。本研究開発では、自然界で HOR 活性を示すことが知られている金属酵素ヒドロゲナーゼの酵素活性部位が白金を含まない多核金属錯体から構成されていることに着目して (図 1)、酸性条件下で HOR 活性を示す新規非白金アノード触媒を開発する。得られた非白金アノード触媒に関しては、HOR 活性だけでなく、酸素-水素共存雰囲気下での過酸化水素発生抑制能や硫黄被毒耐性に関しても白金含有触媒と比較し、非白金アノード触媒の優位性を明らかにする。最終的には、酸性水溶液中で機能する既存の非白金 HOR 触媒を上回る活性をハーフセルで達成し、新規非白金アノード触媒を用いた単セル発電において、既報の非白金カソード触媒を用いた単セルと同等レベルの発電特性の達成を目指す。

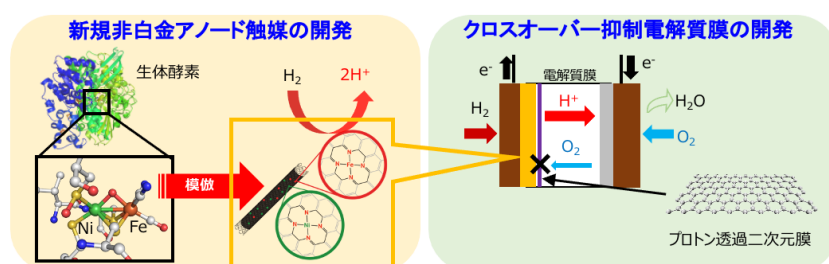


図 1. 研究概要

また、燃料電池の動作時において、空気極からのクロスオーバーした酸素の一部が燃料極の Pt 触媒との反応で副成する H_2O_2 が、金属イオンなどの不純物と接触、生成した OH ラジカルが電解質膜を劣化させてしまうことが課題の一つとなっている。抑制法の一つとして、電解質膜にラジカルクエンチャーを加える方法があるが、クエンチャーの電解質膜内への移動による抑制効果の低下、過剰のクエンチャーによる燃料電池の出力性能の低下といった課題があった。本研究開発では、プロトンは透過するが酸素は透過しないグラフェンなどの単原子層の二次元薄膜を電解質膜に組み込んだ積層電解質膜を開発して過酸化水素生成の根本原因である燃料極への酸素供給を抑制し、電解質膜の高寿命化を実現する (図 1)。二次元薄膜と電解質膜からなる積層電解質膜を作製する技術を開発したのち、新規に開発したアノード触媒や二次元薄膜積層電解質膜からなる MEA を作製する技術の開発と単セルでの燃料電池発電性能の定量評価を行い、最終目標値を達成する発電性能をもつ MEA を開発する。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

(1) 金属酵素インスパイアド非白金アノード触媒の開発に関しては、金属酵素で HOR 活性を示す[NiFe]ヒドロゲナーゼの活性サイトに倣い、Ni、Fe、N をカーボンにドーブした(Ni,Fe)-N-C 触媒を合成する。合成と並行して、HOR 触媒活性評価方法を種々の Pt 含有電極触媒を用いて確立し、その後、新規(Ni,Fe)-N-C 触媒の HOR 活性評価を行う。2023 年 3 月の目標値として、ハーフセル(回転ディスク電極)を用いた新規 HOR 触媒の活性試験において、 $0.2 \text{ mA cm}^{-2}@0.05 \text{ V vs. RHE}$ に匹敵する HOR 活性の達成を目指す。この目標値は、数少ない既報の非白金 HOR 触媒のうちの 1 つである Ni-MoO₂ 触媒 [H. Zeng *et al.*, *ACS Energy Lett.*, **5**, 1908–1915 (2020)] が報告している値 $0.4 \text{ mA cm}^{-2}@0.05 \text{ V vs. RHE}$ の半分の値として設定した。最終目標値としては、非白金アノード触媒開発においては、酸性中で世界最高活性を示す非白金 HOR 触媒の開発を目指し、 $0.4 \text{ mA cm}^{-2}@0.05 \text{ V vs. RHE}$ 以上の HOR 活性の達成を目指す。

(2) プロトン透過二次元膜を利用した酸素クロスオーバー抑制膜の開発に関しては、これまで、電解質膜の劣化要因である OH ラジカルの生成ラジカルを抑制する為にラジカル捕捉剤(Ce 化合物)を添加していた。このラジカル捕捉剤の過剰添加による出力低下、捕捉剤の膜内移動による抑制効果の低下が発生する。プロトンを透過するが、酸素は不透過である特徴を持つ単層グラフェンといったプロトン透過二次元膜を電解質膜との複合膜とすることで、酸素のカソードからの酸素クロスオーバーを抑制する事で OH ラジカルの生成を抑制し、電解質膜の高寿命化を実現する。電流密度の低いアイドル状態において、ラジカル補足剤を用いた場合では、用いて無い場合と比べ膜劣化速度が 1/7 程度になることが報告されている[参考資料：NEDO 水素・燃料電池プロジェクト評価・課題共有ウィーク、第 1 部 PEFC メーカー等からの現在の課題の提示 スライド 16 ページ (2019.6.20)]。膜劣化速度が、ラジカル生成、すなわち H₂O₂ 生成の基となる酸素のクロスオーバー量に比例する仮定のもと、2023 年 3 月の目標値は、Nafion211 もしくは Nafion212 電解質膜の酸素透過能を基準として二次元膜を用いることによりその酸素透過能を 1/4 以下に抑えることを目指す。最終的には、酸素透過能を 1/7 以下へと抑制することを目指す。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
(1) 金属酵素インスパイアド非白金アノード触媒の開発	非白金アノード触媒を開発し、HOR 活性 $0.2 \text{ mA cm}^{-2}@0.05 \text{ V vs. RHE}$ の達成	FC プラットフォームを活用し、白金含有アノード触媒の最適化および HOR 測定条件最適化を実施。非白金アノードを開発し、HOR 活性 0.04 mA cm^{-2} を達成	×	硫黄被毒耐性の評価条件最適化および非白金アノード触媒の HOR 活性向上。
(2) プロトン透過二次元膜を利用した酸素クロスオーバー抑制膜の開発	電解質膜の酸素透過能を 1/4 以下に抑制	二次元薄膜であるグラフェンと Nafion 膜からなる積層電解質膜を作製し、酸素透過能を 1/2 へ抑制。	△	再現性の高い積層膜作製技術の確立および酸素透過能の抑制と発電性能の両立

3.2 研究開発の詳細

(1) 白金含有アノード触媒を用い、回転ディスク電極および回転リングディスク電極を用いたハーフセルにおいて HOR 活性評価方法、酸素還元反応に伴う過酸化水素発生量の定量方法、硫化ナトリウムを用いた硫黄被毒耐性評価方法を確立した。また、白金量低減における HOR 活性への影響を調べるために、FC プラットフォームを活用したデータ駆動による白金含有多元合金触媒の HOR 活性最適化を実施しており、非白金アノード触媒の開発へ向けて白金量の低減を続けている。金属酵素インスパイアードアプローチにより新規非白金アノード触媒も開発しており、Fe 錯体と Ni 錯体をカーボン担体表面に吸着させることにより、酸性水溶液中での HOR 活性を確認し、 $0.04 \text{ mA cm}^{-2}@0.05 \text{ V vs. RHE}$ を達成している。

(2) プロトンは透過するが酸素の透過抑制能が期待できる二次元薄膜の一つである単層グラフェンを電解質膜からなる積層電解質膜の作製開発を行った。単層グラフェンは化学気相蒸着法(CVD 法)で合成した Cu foil 上に成長したグラフェン/Cu foil(Gr/Cu)を、固体電解質膜には Nafion211(N211)を用いた。Gr と N211 の接着過程における Nafion 分散液の有無による被覆状態の顕微鏡像とラマンスペクトルの観察を実施した結果、積層電解質膜作製過程において Gr と N211 の接合にはアイオノマーを介しての接合が均一な Gr 被覆のために重要であることが分かった。以上、Nafion 分散液やの使用や作製プロトコルを最適化したことにより、N211 上に均一に Gr が被覆された積層電解質膜(Gr 被覆 N211)を再現性良く作製する技術を確認した。作製した積層電解質膜の酸素透過能の評価を、四重極質量ガス分析装置を用いて行った。ホットプレスしたアイオノマー被覆 N211 と比べ、Gr 被覆 N211 はおよそ半分程度の酸素抑制能を有することを明らかになり、Gr 被覆によってさらなる透過能の低減が観察された。理論的には Gr 膜は酸素に対して不透過能を示すが、現状では Gr 被覆による酸素透過抑制効果は 1/2 程度であり積層膜作製過程での Gr 膜の破れが抑制効果を低減してしまっているものと考えられる。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) FC プラットフォームを活用したデータ駆動により、白金含有多元合金触媒の HOR 活性および白金量の低減を進め、最終的には、非白金アノード触媒を開発する。また、得られた触媒に関しては、酸素-水素共存雰囲気下での過酸化水素発生抑制能や硫黄被毒耐性に関しても白金含有触媒と比較し、非白金アノード触媒の優位性を明らかにする。金属酵素インスパイアードアプローチによる非白金アノード触媒開発においては、更なる HOR 活性向上へ向けて、500-900℃での高温加熱焼成による Fe、Ni、N を共にドーブしたカーボン触媒の合成および合成条件最適化を進め、その後、膜/電極接合体 (MEA) を用いたセル発電性能評価へと移行する予定である。

(2) 積層電解質膜の作製プロトコルを改良し、破れを最小限に抑えた Gr を被覆する技術の開発や、より強度を持つ多層化 Gr や酸化グラフェン等のその他の二次元薄膜材料の利用の検討を行う。また、現状では積層電解質膜を用いることによる酸素透過抑制と発電性能が両立できていないため、それらを両立する技術開発を進める。

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

関心表明企業との連携を進めており、新規触媒および積層電解質膜が開発出来次第、知財化を進める。その後、量産化へ向けた触媒合成条件や積層電解質膜作製条件の改良を進める。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021/9/1	第 128 回触媒討論会	酸素還元反応に対する鉄と銅サイトの異種金属協働効果	加藤優、藤林那月、阿部大樹、保田諭、八木一三
2	2021/11/1	第 62 回電池討論会	Pt-Ni ナノワイヤーの酸素還元活性と構造変化	加藤優、井口誼美、李天馳、加藤優太、庄宇、八木一三
3	2021/12/1	The 9th International Symposium on Surface Science (ISSS-9)	Synthesis of Platinum-Nickel Alloy Nanowires with Different Compositions as Oxygen Reduction Reaction Catalysts	Yu Zhuang, Masaru Kato, Ichizo Yagi
4	2021/12/1	The 9th International Symposium on Surface Science (ISSS-9)	Improving Oxygen Evolution Reaction Performance and Durability using Rhombic Dodecahedral Pt ₃ (Ni, X) Nanoparticles with Metal Oxide Supports	Colin Tadgell, Masaru Kato, Ichizo Yagi
5	2021/12/1	Pacificchem 2021	Improving Electrochemical Activity of Rhombic Dodecahedral Ternary Alloy Nanoparticles using Transition Metal Additions	Colin Tadgell, Masaru Kato, Ichizo Yagi
6	2022/1/1	化学系学協会北海道支部 2022 年冬季研究発表会	銅・鉄含有 MOF から合成したカーボン触媒の酸素還元活性	佐藤舜、謝思齊、加藤優、八木一三
7	2022/1/1	化学系学協会北海道支部 2022 年冬季研究発表会	Effects of metal co-presence on the oxygen reduction activity and selectivity of Fe-N-C electrocatalysts	Siqi Xie, Daiki Abe, Natsuki Fujibayashi, Masaru Kato, Ichizo Yagi

8	2021/12/1	ACS Catalysis	Structural Transformation of Pt–Ni Nanowires as Oxygen Reduction Electrocatalysts to Branched Nanostructures during Potential Cycles	M. Kato, Y. Iguchi, T. Li, Y. Kato, Y. Zhuang, K. Higashi, T. Uruga, T. Saida, K. Miyabayashi, I. Yagi
9	2022/5/1	第 29 回燃料電池シンポジウム	金属酵素に学ぶ電極触媒の設計と開発	加藤優

課題番号（管理番号）： IP17

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発/触媒担体表面の化学修飾技術によるPEFC超高機能界面の創出」

実施者： 国立大学法人大分大学

期間： 2021年6月～2025年3月

1. 研究開発概要

産業界からのニーズが高く、共通課題である固体高分子形燃料電池（PEFC）の反応場の“三相界面”を、PEFCの構成部材で主に触媒の担持体として取り扱われてきた「担体」に化学修飾を施して、三相界面の構造を制御する機能を付与することで超高機能界面を創出し、PEFCの出力性能を飛躍的に向上させる技術を開発する。超高機能界面とは、2030年そしてそれ以降のPEFC出力目標を達成するような高触媒活性、高酸素透過率および高耐久を実現する三相界面と定義する。

本研究開発はPEFCの性能決定因子である三相界面の高機能化を目的としていることから、その成果は、他プロジェクトなどで取り組まれている先進触媒などの三相界面の構成部材に関わる研究成果と連携させることが可能で、融合・連携ワークを進めることで、それらの成果をボトムアップさせることも期待でき、PEFCの飛躍的高性能化と本格普及の加速に繋げる。

担体の化学修飾によるPEFCの高性能化例として、ベルリン工科大学の研究例があるが、本研究開発はそれに比べて、(a) 酸化工程がなくカーボン材料の構造を毀損しづらい、(b) 導入する含窒素化合物の構造を選択・制御できる、(c) 触媒担持後修飾にも可能性がある点で優位性がある。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

最終目標として、1) 回転ディスク電極法（RDE）法、アイオノマー存在条件、白金単身として酸素還元反応（ORR）の質量活性（MA）が1400 A/g以上、2) PEFC発電試験で、0.84 Vで0.2 A/cm²かつ0.7 Vで3.0 A/cm²以上を目指している。PEFCの2030年目標として、FCCJの資料ではORRのMAが800～1200 A/g相当と掲げられており、それを上回る1400 A/g以上を目標としており、産業界のニーズに合致している。本研究開発では、PEFC分野の共通課題で産業界のニーズである“三相界面の高機能化”を目的としており、関心表明企業との意見交換も通して、その成果や構成部材の最新技術と融合させて、2040年の性能目標への基盤にすべく20,000 A/g以上を目指したいと考えている。

中間目標として、1) RDE法、Nafion アイオノマー存在条件、0.9 Vで、白金単身触媒のORR質量活性が800 A/g以上の白金担持含窒素化合物修飾メソポーラスカーボン（Pt/N-MPC）の合成と2) 耐久性がPt/MPC（未修飾品）の2倍以上を目指している。ここでは、ベンチマークをPEFCの最新担体として期待されているMPCとした。目標の達成度については、白金を担持した際のORR活性と耐久性が、化学修飾によって向上することをRDE法や加速劣化試験などの方法で検証する。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
触媒担体表面の化学修飾技術に	RDE法、Nafion アイオノマー存在条	MPCに窒素を含む化合物による化学修飾を行	○	開発技術の展開には、触媒担持後の化

よる PEFC 超高機能界面の創出	件、0.9 V で、白金担持触媒の ORR 質量活性が 800A/g 以上の白金担持含窒素化合物修飾 MPC (Pt/N-MPC) の合成。	い、白金触媒を担持後に、RDE 法で ORR 活性を評価して、質量活性が 865 A/g であることを実証して、目標を達成した。また、PL からの指示により、市販のカーボンブラックへの含窒素化合物修飾も実施した。		学修飾が求められるため、そのための化学修飾技術の開発が必要。今後も PL 意見交換会等を通して得られる産業界のニーズに対する本技術の適用の検討を進めていく。
	耐久性が Pt/MPC の 2 倍以上。	加速劣化試験として、電位パルス試験を行い、電気化学的有効比表面積 (ECSA) の半減期が、化学修飾で 2 倍以上となることを実証して目標を達成した。	△	耐久性についても産業界のニーズを把握しながら評価を進めていきたい。

3.2 研究開発の詳細

中間目標達成のために 2022 年度までに実施する事業内容として、(1) 含窒素化合物修飾 MPC 担体の合成と物性把握、(2) 含窒素化合物修飾 MPC への触媒担持と触媒活性評価、(3) MEA の製造と PEFC 発電試験を計画し、実施している。

(1) 含窒素化合物修飾 MPC 担体の合成と物性把握

メソポーラスカーボン(MPC)は高電流密度域での性能に優れた特性を示すカーボン担体の一つである。本研究開発では、MPC へ含窒素化合物修飾を行い、化学修飾前後の MPC の化学状態や細孔構造、水や Nafion アイオノマーの吸着状態を解明することに取り組んでいる。

含窒素化合物修飾 MPC 担体を作製し、元素分析ならびに X 線光電子分光によって、窒素の導入を確認した。化学修飾による MPC の細孔構造の変化を、分子プローブを用いて調べた。MPC の細孔構造は PEFC の高性能化に資するため、化学修飾による変化を明らかにすることは重要である。

その知見を得るために、分子プローブを用いて細孔構造の評価を行った (図 1)。窒素分子を用いた 77 K での評価において、MPC を含窒素化合物で修飾すると、BET 比表面積およびマイクロ細孔容量が共に 1/3 程度に減少したが、メソ細孔容量は 2/3 と減少割合が小さかった。一方、水分子をプローブとして 298 K で評価したところ、修飾の有無にかかわらず中相対圧までほぼ吸着しないことから、修飾後も細孔は疎水の性質を示すと考えられた。しかし、高相対圧領域において水の吸着量が急増しており、修飾により吸着量も増加していることから、ある種の含窒素化合物で化学修飾すると、より保水性の高いメソ細孔が形成されることが明らかとなった。

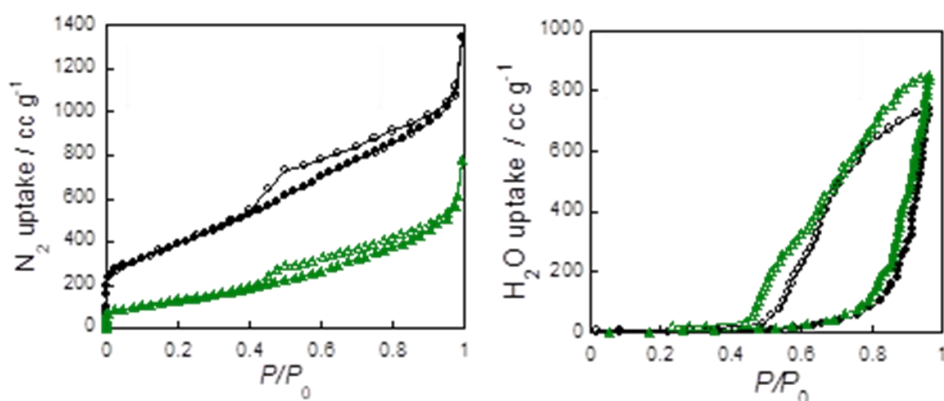


図1. 含窒素化合物修飾前後の MPC の (左) 窒素および (右) 水吸着の一例。黒が修飾前、緑が修飾後。

また、PL からの指示により、市販のカーボンブラックへの含窒素化合物修飾も実施した。構造イメージと成果は以下②の図2内に示す。

(2) 含窒素化合物修飾 MPC への触媒担持と触媒活性評価

作製した含窒素化合物修飾 MPC 担体に白金を担持して、ORR 活性を RDE 法で評価した結果、面積比活性と質量活性は、未修飾より高くなり、質量活性は 800 A/g を超え、中間目標「0.9 V で、白金単身触媒の ORR 質量活性が 800A/g 以上」を達成した。

耐久性については加速劣化試験で行うこととし、60°Cの 0.1 M 過塩素酸水溶液中で、上限を 1.0 V、下限を 0.6 V とする電位パルス試験で調べた。所定のパルス回数後に電気化学的有効表面積(ECSA)を測定し、その半減期を求めた結果、未修飾の白金担持 MPC では約 5,600 パルス後であったのに対し、含窒素化合物修飾 MPC では2倍以上となることを明らかにした。この結果、白金触媒の耐久性として、中間目標とした「耐久性が Pt/MPC の2倍以上」を達成できた。一方、耐久性については、担体自身の耐久性も求められることもあり、これについても評価、検討していく予定である。

以上に加えて、PL からの指示により、含窒素化合物修飾ケッチェンブラック (KB) を開発し、その白金担持品の ORR 活性と耐久性も調べた。図2に実施結果例を示す。

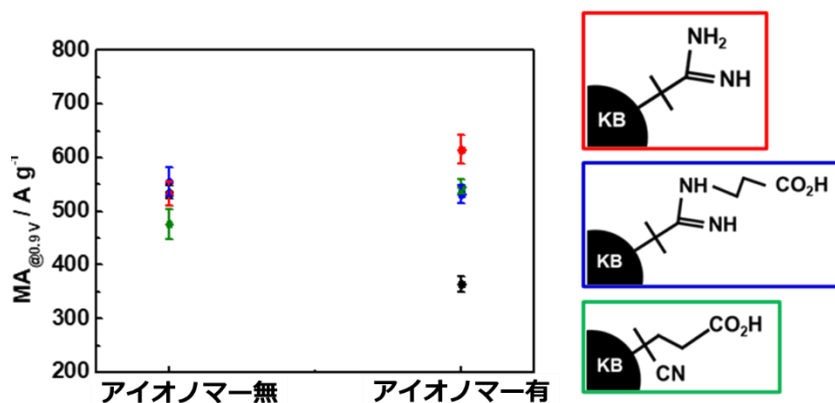


図2. (右) 含窒素化合物修飾ケッチェンブラックの ORR への質量活性。横軸はアイオノマーの有無で、黒が未修飾、赤、青、緑は含窒素化合物修飾ケッチェンブラックを担体として用いた場合の結果で、各色の修飾物のイメージを右に示している。例えば、赤の結果は赤枠のイメージである。

アイオノマーがない場合の ORR 活性は、いずれの担体でも同等程度であったが、ケッチェンブラックではアイオノマーがある場合には低下した。一方、含窒素化合物修飾ケッチェンブラックでは低下しづらく、特に、赤の含窒素化合物（2-メチルプロピオンアミジン）修飾ケッチェンブラックにおいてはむしろ向上した。この理由の一つとして、アイオノマーと含窒素化合物とのインタラクションによる効果を考えている。耐久性についても未修飾よりもいずれの含窒素化合物修飾ケッチェンブラックを用いた場合の方が、高いこともわかり、今後、市販触媒への適用と表面構造を推定することで活性向上要因を考察し、担体表面の化学修飾によりもたらされる超高機能界面について検討を進める。

（3）MEA の製造と PEFC 発電試験

含窒素化合物修飾品や未修飾品の白金担持触媒を作製して、評価解析プラットフォームに提出して MEA 製造と PEFC 発電試験を実施した。得られた結果を評価解析プラットフォームチームの方々と議論し、今後の開発指針などのフィードバックを得て実施している。

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

実用化・事業化の見通しとして、移動体・定置用 PEFC の MEA としての実用化を目論み、事業化想定機関としては、共同実施先、関心表明企業および燃料電池関連企業を想定している。それには、外部へ向けた成果の発信、知財戦略、共同実施先や関心表明企業などとの連携が必要になってくるので、成果の段階に応じ、弊学の産学官連携コーディネーターも加わって、事業化想定機関への橋渡しを行う。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演・文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021年8月	記者会見	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「燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業」に本学申請課題が採択	衣本太郎
2	2021年9月	大分合同新聞	燃料電池性能向上へ素材開発	衣本太郎
3	2021年11月	第62回電池討論会	カーボン担体への含アミジン基分子修飾による白金の ORR 活性と耐久性への影響	高橋達大, 待鳥晃司, Olu Pierre-Yves, 松岡美紀, 衣本太郎, 中澤太一

4	2022年5月	第29回燃料電池シンポジウム	カーボン担体の含窒素分子修飾による白金触媒への効果	高橋達大, Olu Pierre-Yves, 松岡美紀, 衣本太郎, 中澤太一
5	2022年5月	第29回燃料電池シンポジウム	優秀ポスター賞	高橋達大
6	2022年8月	第11回大分市水素利活用協議会	大分大学工学部衣本研究室での“水素”に関わる研究のご紹介	衣本太郎

課題番号（管理番号）：IP18

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／～1-nm白金系触媒の構造・組成制御に基づくPEFCカソード触媒の高活性化」

実施者：学校法人東京理科大学（東京都公立大学法人東京都立大学・国立大学法人北海道大学）

期間：2021年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

固体高分子型燃料電池（PEFC）の広範な普及のためには、現在のシステムの改良、量産化対応と併せて、それらのカソード触媒の一層の高活性化、それによるシステムの低コスト化を実現することが不可欠である。NEDO 燃料電池・水素技術ロードマップの2030年目標を達成し、それにより、PEFCの普及拡大を実現するためには、白金（Pt）系触媒についてはその活性を5～10倍高めることが求められている。本事業では、Pt系触媒について、1）1nm程度まで粒径を微細化することで高活性Pt原子を高比率にて表面露出させるとともに、2）ニッケルとの合金化によりPtと反応物及び生成物の結合エネルギーを最適化する。また、3）Pt系触媒の露出面制御にも取り組む。これらを達成することで、Pt系触媒の活性を2030年目標である5～10倍まで向上させることは勿論のこと、2040年目標である360倍まで向上させることを目指す。ここで、例えば10倍程度の活性向上とは、田中貴金属工業株式会社が取り扱っている市販のPtナノ粒子（Pt NP）/CB（46.9 wt%；CB = カーボンブラック；質量活性 = 0.195 A/mg）の活性を1/10のPt使用量（4.69 wt%）にて創出することを意味する（質量活性が10倍となる）。また、こうした取り組みと並行して、Pt NCs/CB（Pt NCs = ナノクラスター）の耐久性も向上させる。これらの研究は、2030年以降の目標達成に向けて現時点では不足している要素を補う研究であるとともに、さらにそれ以降の目標をも達成し得る研究である。本事業の実現は、2030年の目標はいうまでもなく、2040年の目標達成にも大きく貢献し得ると期待される。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

2.1 最終目標値

PEFCカソードPt系触媒の活性を360倍向上させる。ここで、例えば10倍程度の活性向上とは、田中貴金属工業株式会社が取り扱っている市販のPtナノ粒子（Pt NP）/CB（46.9 wt%；質量活性 = 0.195 A/mg）の活性を1/10のPt使用量（4.69 wt%）にて創出することを意味する（質量活性が10倍となる）。

2.2 目標設定の考え方

(1) カソード白金系触媒の活性向上を目標とした理由

燃料電池実用化推進協議会が提示した2020–2025年に取り組むべきテーマのうち、白金系触媒の高活性化については過去に採択された課題ではカバーし切れてはいない。申請者らは1nm程度の微細なPt NCs（以降、～1-nm Pt NCs）の構造制御を得意としているため、申請者らであればこの課題を十分に実現し得ると考え、カソードPt系触媒の活性向上を本事業の目標に設定した。

(2) 目標値を360倍程度とした理由

研究開発項目Ⅱにて目指すべき2030年以降の達成目標を考慮に入れ、本事業では360倍程度の活性

向上を目標値とした。

(3) 360倍の活性向上が可能と判断した理由

白金上における酸素還元反応（ORR）速度は、Pt触媒のサイズ、組成、及び構造に大きく依存する。これまでの研究により、 ~ 1 -nm Pt NCsは、現在使用されているカーボンブラック（CB）上の2-3 nmのPt NPsよりも、6倍高い活性を有していることが他グループの実験により示されている[1]。また、ニッケル（Ni）との合金化によりPtと反応物及び生成物の結合エネルギーを最適化すれば、その6倍の活性をも創出し得ると見積もられている。さらに、Pt₃Ni(111)面はPt(111)と比べて10倍高い活性を示すことが明らかにされている[2]。これらのことから、サイズ、組成、及び構造の全てを制御し得れば、白金系触媒の活性を最大で360倍向上させられると判断した。

[1] B. Garlyyev, et al, *Angew. Chem., Int. Ed.*, 58, 9600 (2019).

[2] V. R. Stamenkovic, *Science*, 315, 493 (2007).

2.3 中間目標値

PEFC カソード Pt 系触媒の活性を 5～10 倍向上させる。

2.4 中間目標設定の考え方

本研究では活性向上実現に対して三つの手段を併用している：1) 粒径の微細化；2) Ni との合金化；及び 3) 露出表面の制御。1) については、2 年間にて確実に達成し得る課題であり、また、2) についても達成の見込みがある。これらのことから、最初の 2 年間にて、5～10 倍程度の活性向上が可能であると判断し、中間目標値を上述のように設定した。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
① ~ 1 nm Pt NCs の精密合成法の確立	高活性 Pt NCs のサイズ選択的合成法の確立	高活性 Pt 51 量体 (Pt ₅₁) NCs を 80% の収率にて合成する技術を確立	◎	より高活性が期待される Pt ₁₇ NCs に対する選択的合成法の確立
② ~ 1 nm Pt 系合金 NCs の精密合成法の確立	Pt 系合金 NCs の精密合成法確立	Pt-Ni 合金 NCs の合成法を確立	△	現状では精密さに欠けるため、今後は原子精度での精密さでの合成を実現
③ ~ 1 nm Pt 系 NCs の精密担持法の確立	Pt 系合金 NCs の精密担持法の確立	Pt-Ni 合金 NCs の担持法を確立	◎	担持された Pt NCs の凝集抑制法の確立
④ ~ 1 nm Pt 系 NCs の質量活性及び安定性の	上記技術による 5-10 倍の活性向上	NEDO プロトコルを習得し、Pt ₅₁ NCs 及び Pt ₁₇ NCs は、市販触媒と比べ	△	原子精度での精密さにて合成した Pt-Ni 合金 NCs の質量活性

評価		それぞれ、2.1 倍及び 4.5 倍程度高い質量活性を有していることを解明		及び安定性の解明
⑤~1 nm Pt 系 NCs の幾何構造の実験的評価	Pt 系 NCs の高活性化要因を実験的に解明	Pt ₅₁ NCs の高活性化要因の解明に成功	○	より高い活性を有する結晶面に対する検討
⑥~1 nm Pt 系 NCs の幾何構造の理論的評価	Pt 系 NCs の高活性化要因を理論的に解明	Pt ₁₇ NCs の高活性化要因の解明に成功	◎	より高い活性を有する結晶面に対する検討

3.2 研究開発の詳細

(1) 高活性 Pt_n NC/CB の簡便かつサイズ選択的調製 (関連項目①④)

大気中での簡便な操作にて、~1 nm 程度の粒径を有する一連の配位子保護~1 nm Pt_n NCs ($n = \sim 35, \sim 51, \text{及び} \sim 66$) を狭い Pt 原子数幅 ($\pm \sim 4$ 原子) にて、サイズ選択的に合成する方法を確立することに成功した。この方法により、各配位子保護~1 nm Pt NC (Pt_{~35}、Pt_{~51}、及び Pt_{~66}) は比較的高い収率にて得られた。Pt_{~66} と Pt_{~51} については、80%程度 of 収率で得る方法を確立した。また、各配位子保護~1 nm Pt NC をほぼそのままの大きさにて CB 上に吸着させ、焼成により Pt NC 表面から配位子の大半を除去

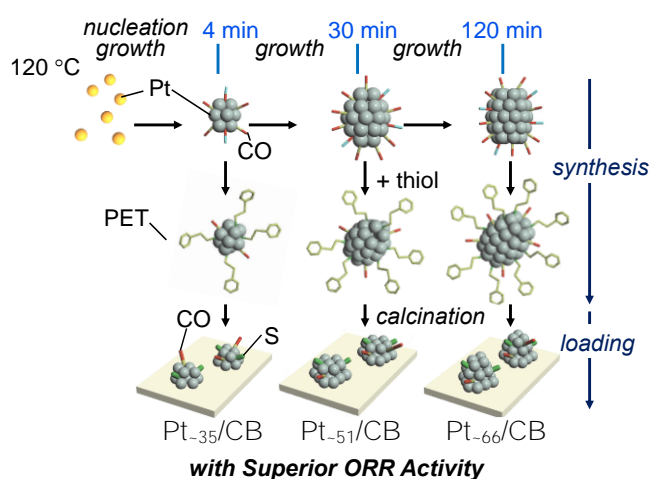


図 1. 簡便かつ高収率での Pt_{~51} の合成法の確立とそれらを用いた高活性 ORR 触媒 (Pt_n NC/CB) の創製。 [3,4]

することにも成功した。得られた Pt_{~35} NC/CB、Pt_{~51} NC/CB、及び Pt_{~66} NC/CB はそれぞれ、酸素還元反応 (ORR) に対して、2-3 nm の Pt NPs が担持された市販の Pt NPs/CB に比べて 158、211、及び 156%の質量活性を有していることを明らかにした (図 1)。なかでも、Pt_{~51} NC/CB は、とりわけ高い ORR 質量活性を示し、また市販の Pt NPs /CB と比べて遜色のない耐久性を示した。これらの研究により、研究項目①を実現するとともに、④を部分的に実現した。

[3] Y. Negishi, et al, *Nanoscale* 13, 14679 (2021).

[4] Y. Negishi, et al, *Bull. Chem. Soc. Jpn*, 94, 2853 (2021).

(2) 高活性Pt_n NC/CBの探索に向けた NEDOプロトコルに基づく質量活性測定技術の獲得 (関連項目④)

上述の研究では、市販のPt NPs/CB (TEC10E50E) については、文献 (J.

Greeley, et al., *Annu. Rev. Phys. Chem.* 53, 319 (2002)) と同等の質量活性を得ることはでき

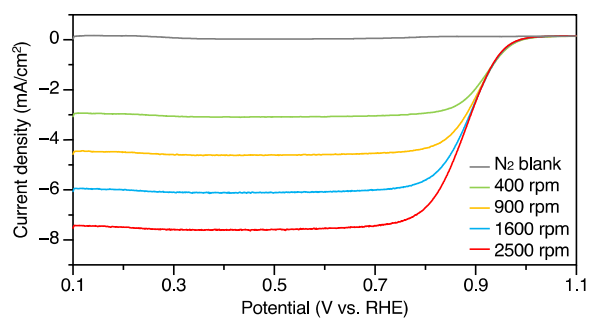


図 2. 東京理科大学にて得られた Pt NPs/CB (TEC10E50E) の LSV カーブ。

てはない。そこで、本プロジェクトの研究費を活用し、(株)JFEテクノリサーチより、トヨタ自動車やホンダ自動車等にて使用されている、NEDOプロトコルに基づきリニアースイートボルタンメトリー (LSV) 測定技術を購入した。その結果、市販のPt NPs/CB (TEC10E50E) について、文献 (J. Greeley, J. K. Nørskov, M. Mavrikakis, *Annu. Rev. Phys. Chem.* 2002, 53, 319) と同等な活性を得ることに成功した (図 2)。これにより、研究項目④の実現が可能となった。

(3) Pt₁₇/CB の調製と密度汎関数理論に基づくその高活性化メカニズムの解明 (関連項目④⑥)

配位子保護 Pt NCs として、Pt₅₁ NCs よりも小さな Pt₁₇ NCs を合成し、それらを前駆体に用いることで、市販の Pt NPs/CB (TEC10E50E) よりも 4.5 倍高い ORR 活性を有する Pt₁₇ NCs/CB 触媒を創製することに成功した。また、密度汎関数理論 (DFT) 計算により、1) CB 上の Pt₁₇ においては様々な電子状態密度の Pt 原子が混在していること、2) Pt NC 表面には O₂ が吸着し易く、また Pt NC 表面では OOH を形成することなく、O と OH への解離が生じること (図 3)、3) 1) と 2) により、Pt₁₇/CB においては、Pt(111)面よりも、ORR に適切な表面 Pt 原子が発生し得るため、Pt₁₇/CB は高い質量活性を示すこと (図 4)、が明らかとなった。これらの知見は、微細な Pt NCs を用いた高活性な実用 ORR 触媒の創製、それによる PEFC における Pt 使用量削減に関する今後の研究において明確な設計指針を与えると期待される。これらの結果により、研究項目⑥が実現されるとともに、④についてもほぼ実現された。この研究成果については現在論文投稿中である。

(4) 高角度環状暗視野走査透過型電子顕微鏡観測と in situ X 線吸収微細構造解析に基づく Pt_n NCs の幾何構造の解明 (関連項目⑤⑥)

高角度環状暗視野走査透過型電子顕微鏡 (HAADF-STEM) を用いた研究により、Pt_{~35}/CB、Pt_{~51}/CB、及び Pt_{~66}/CB では CB 上にて Pt_n NCs が半球状の幾何構造を有していることが示された。HAADF-STEM 像に基づく、Pt_{~35}/CB、Pt_{~51}/CB、及び Pt_{~66}/CB においては、Pt_n NCs は多層構造を有し

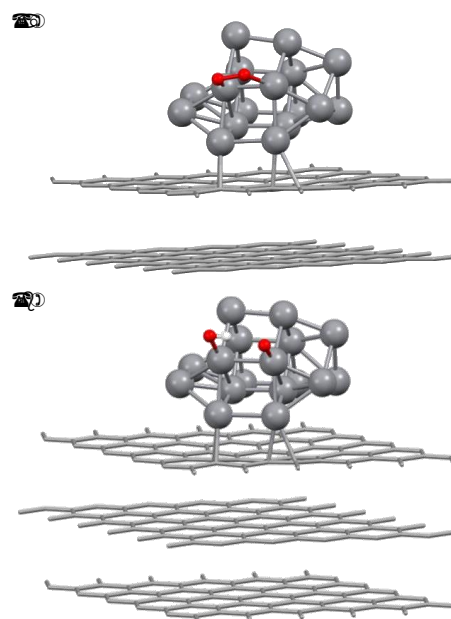


図 3. DFT 計算により得られた反応中間体の幾何構造: (a) Pt₁₇ + O₂; (b) Pt₁₇ + OH + O。

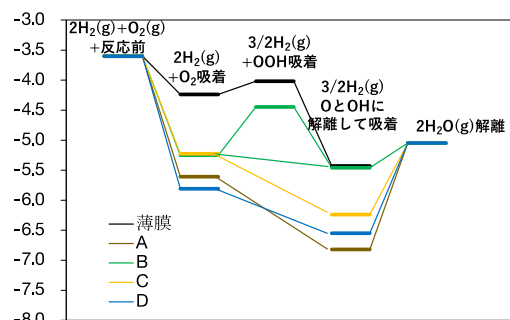


図 4. DFT 計算により得られた Pt₁₇ NC 表面における 4 つのサイトにおける ORR 反応の進行経路。

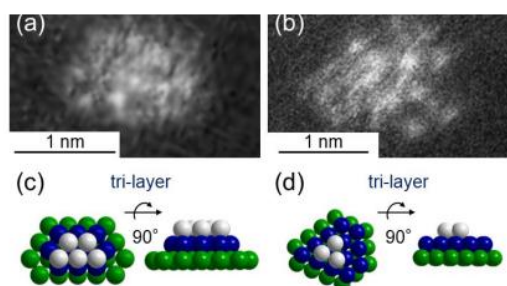


図 5. Pt_{~51}/CB の (a,b) HAADF-STEM 像と予想される構造 (c,d)。

ていると解釈される。これらの粒径は、前駆体である配位子保護 Pt_n NCs の粒径とほぼ同じであることから、200 °C での焼成では Pt_n NCs は CB 上にて殆ど凝集しなかったと解釈される。HAADF-STEM EDX 元素マッピングの結果により、減圧下、200 °C での焼成では一部の配位子が Pt_n NCs 表面に残存していることが明らかとなった。恐らく、このことが要因の一つとなり、200 °C での焼成では Pt_n NCs の凝集が顕著に抑制されたと推測される。Pt₁₇ についても同様に、担体上では二層もしくは三層構造を有していることが HAADF-STEM 像より示された。in situ X 線吸収微細構造 (XAFS; 図 6) 解析により、これら Pt_n NCs/CB 表面では、市販の Pt NPs/CB (TEC10E50E) と比べて、O₂ が吸着し易いことが示された。この結果は、(3) の結果を実験的に実証しており、研究項目⑤と⑥の実現に繋がっている。

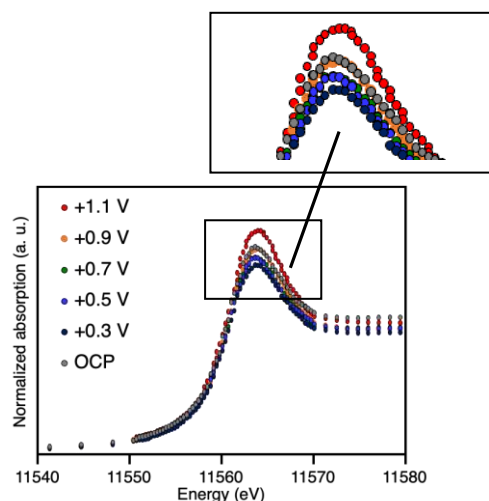


図 6. Pt_n NCs/CB の in situ XAFS 解析。Pt_n NCs/CB では、酸化及び還元反応が起き易く、このことは、Pt_n NCs/CB には、分子が吸着されやすい Pt 原子が多く含まれていることを示している。

(5) Pt-Ni 合金 NCs の合成法の確立 (関連項目②-④)

Pt₅₁ NCs の合成法スキームを改良することで、約 1nm の Pt-Ni 合金 NCs を得ることに成功した。得られた約 1nm の Pt-Ni 合金 NCs/CB は、上述の Pt₅₁ NCs/CB よりも、1.5 倍程度高い比活性を有していることを明らかにした。これらの結果は、研究項目②-④の実現に向けた足がかりになると期待される。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 一つの触媒における①-⑤の実現

3.1 と 3.2 にて記載したように、我々は 6 つの研究項目を並行して進めることで、1) 微細な Pt_{~51} NCs の担持された Pt_{~51} NCs/CB を簡便かつ高効率にて調製する方法の確立、2) それらにおける高活性化の起源解明、3) 触媒を Pt₁₇ NCs まで微細化すると、質量活性がさらに向上する事実 (市販触媒の 4.5 倍の活性) の発見、及び 4) Ni との合金化を行うと、質量活性がさらに向上する事実の発見、に成功している。これらの知見に基づくと、Pt₁₇ NCs の一部の Pt を Ni にて置換した Pt_{17-x}Ni_x NCs の NCs を精密に合成し、それらを前駆体を用いて Pt_{17-x}Ni_x NCs/CB 触媒を作製すれば、市販触媒と比べて 1/10 の白金使用量にて同等の活性を創出し得ると期待される。すなわち、中間目標値を達成し得ると期待される。そこで、我々は今後、Pt_{17-x}Ni_x NCs/CB 触媒の作製に全力を注ぐ予定である。闇雲に合成条件を探索したのでは、目的達成に時間がかかってしまうことが危惧されるため、合成条件の探索においては、マテリアルズインフォマティクス (MI) を有効利用する。MI については、我々は既に、NIMS の袖山先生により Zoom を通した直接的な指導を受けており、また、我々自身にて実際に MI を活用することで、Ni を含まない Pt₁₇ NCs/CB については、合成において最も効果的なパラメーターの発見に成功している (図

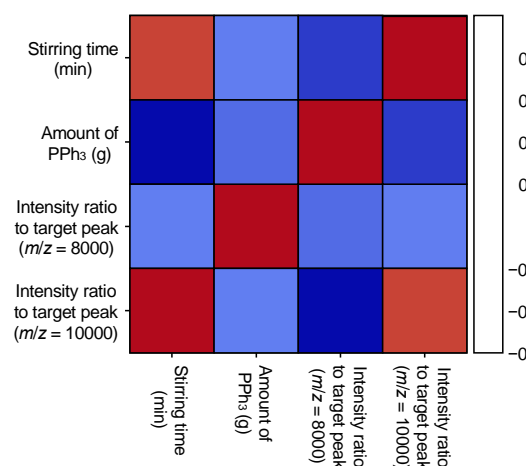


図 7. MI により得られたヒートマップ。この図は、合成条件の探索結果を示している。

7) 。こうした MI を今後は、Pt_{17-x}Ni_x NCs/CB 触媒の作製においても最大限有効活用する。

(2) 他サイズの Pt_{n-x}Ni_x NCs/CB に関する研究

本プロジェクトでは、市販触媒と比べて、1) サイズの微細化により 6 倍、2) ニッケルとの合金化によりその 6 倍、3) 面選択によりさらにその 10 倍、の質量活性の向上を実現することにより、最大で 360 倍向上させることを目指している。1) については目的をほぼ実現（実際は 4.5 倍）しており、2) についても足がかりとなる結果が既に得られている（3.2 (5)）。従って、本プロジェクト終了時には、中間評価時の目標を超えた、市販触媒の 1/20 程度の白金使用量にて市販触媒と同等の活性を創出することも期待し得る。

一方、プロジェクトリーダー会議にて推奨された 360 倍の高活性化を実現するためには、3) に掲げた Pt_{n-x}Ni_x NCs/CB の構造制御が不可欠である。これまでの 1 年間の研究により、Pt_{n-x}Ni_x NCs/CB 表面にある特定の電荷状態の Pt 原子を創出すると、Pt(111)面の場合とは異なる反応経路が誘起され、それにより、Pt(111)面よりも高活性が創出され得ることが明らかとなった。今後は、こうした知見を生かし、まずは DFT 計算により高活性 Pt_{n-x}Ni_x NCs/CB を設計し、それらを実際に作製することで、更なる高活性化を実現したいと考えている。DFT 計算においては、1) Pt(111)面より適切な電荷状態の明確化、及び 2) 1) に該当する表面 Pt をできるだけ多く含む Pt_{n-x}Ni_x NCs/CB の探索、に重点を置く。目的の触媒作製に必要な前駆体 Pt_{n-x}Ni_x NCs の調製は、配位子の設計により実現する。このように、Pt 系合金 NCs の構成原子数を 17 個に限定することなく研究を展開して行くことで、中間評価時の目標（1/5～1/10 の白金使用量）を遙かに超えた、1/360 の Pt 使用量にて市販触媒と同等の活性を創出することを実現する。

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

実用化・事業化については、2024 年度以降には企業と連携しながら実用化に取り組み始めることを想定している。具体的には、得られた技術及び触媒を企業と共有（連携）することで実用化・事業化することを想定している。連携先としては、現在共同研究を行っている三菱マテリアル株式会社を想定しているが、得られた成果の産学間での取り扱い方については、今後、両者にて話し合うことで決定してゆきたいと考えている。

また、得られた成果については、まず国内特許を取得した後、アメリカ、EU、中国、韓国等、今後多くの燃料電池の使用が見込まれる国にて国際特許の出願をする。申請者は、国内外どちらの特許出願についても経験を有している。特許出願については、本学の URA（当研究室の担当者：宮本健太郎）と協力しながら進める。特許申請後には、得られた成果を学術論文として纏めることを想定している。

定置用燃料電池については、2035 年には 0.5 兆円の市場規模が見込まれている（水素・燃料電池戦略ロードマップの目標値と富士経済の市場予測から NEDO が推定）。本研究が実現すれば、Pt 系触媒が実現すべき目標について、2030 年はいうまでもなく、それ以降の目標値をも達成し得る。このことから、本事業は、定置用燃料電池の市場拡大、それに基づく日本経済の成長に大きく貢献し得るものと期待される。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2019.09.12	Nanoscale Advances	γ -Alumina-supported Pt17 cluster: controlled loading, geometrical structure, and size-specific catalytic activity for carbon monoxide and propylene oxidation	Yuichi Negishi, Nobuyuki Shimizu, Kanakano Funai, Ryo Kaneko, Kosuke Wakamatsu, Atsuya Harasawa, Sakiat Hossain, Manfred E. Schuster, Dogan Ozkaya, Wataru Kurashige, Tokuhisa Kawawaki, Seiji Yamazoe and Shuhei Nagaoka
2	2021.08.03	Nanoscale	Simple and high-yield preparation of carbon-black-supported \sim 1 nm platinum nanoclusters and their oxygen reduction reactivity	Tokuhisa Kawawaki, Nobuyuki Shimizu, Kanakano Funai, Yusuke Mitomi, Sakiat Hossain, Soichi Kikkawa, D. J. Osborn, Seiji Yamazoe, Gregory F. Metha and Yuichi Negishi
3	2021.09.23	Bulletin of the Chemical Society of Japan	Supported, \sim 1-nm-Sized Platinum Clusters: Controlled Preparation and Enhanced Catalytic Activity	Tokuhisa Kawawaki, Nobuyuki Shimizu, Yusuke Mitomi, Daichi Yazaki, Sakiat Hossain, and Yuichi Negishi

4	2022	投稿中	Pt17 Nanocluster Protected by Phosphine and Carbon Mono-oxide: Electronic Structure and Application for Highly-Active Oxygen-Reduction Reaction Electrocatalysts	Tokuhisa Kawawaki, Yusuke Mitomi, Naoki Nishi, Ryuki Kurosaki, Kazutaka Oiwa, Hinoki Hirase, Sayuri Miyajima, Yoshiki Niihori, Arpan Samanta, Keitaro Sodeyama, Kenji Iida and Yuichi Negishi
5	2021	化学と工業	金属クラスターの構造制御とエネルギー・環境触媒での応用	根岸雄一
6	2022.03.05	電気化学	金属クラスター研究における電気化学測定法	川脇徳久、根岸雄一
7	2021.05.20-05.22	ナノ学会第 19 回大会	高活性かつ実用的な白金クラスター触媒の創製	川脇徳久
8	2021.05.20-05.22	ナノ学会第 19 回大会	サイズ制御した Pt クラスターの簡便な合成と ORR 触媒活性評価	三富優介
9	2021.06.04	第 12 回 触媒科学研究発表会	サイズ制御された白金クラスターの燃料電池カソード電極触媒への応用	三富優介
10	2021.06.16	量子・デバイス研究会「革新的材料の創出とデバイス応用」	高活性酸素還元反応活性を有した微細白金クラスターの調製	根岸雄一
11	2021.09.03-09.05	Indo-Japan virtual workshop on "Cluster science by interdisciplinary approach: Emerging materials and phenomena"	Application of Atomically Precise Metal Clusters in Energy and Environmental Field	川脇徳久
12	2021.09.15-09.21	第 72 回 コロイドおよび界面化学討論会	原子精度で制御されたチオラート保護金クラスターの電極触媒活性	川脇徳久
13	2021.09.15-09.21	第 72 回 コロイドおよび界面化学討論会	サイズ制御された Pt クラスターの簡便な合成と ORR 触媒活性	三富優介

			評価	
14	2021.09.18-09.21	第 15 回 分子科学 討論会	チオラート保護金クラスターの電 極触媒活性	川脇徳久
15	2021.09.18-09.21	第 15 回 分子科学 討論会	サイズ制御された白金クラスター の簡便な合成と ORR 触媒活性 の評価	三富優介
16	2021.12.13-12.15	第 31 回 日本 MRS 年次大会	サイズ選択的な Pt クラスターの 合成とその ORR 活性	川脇徳久
17	2022.03.03	第 26 回光触媒シン ポジウム	微細白金クラスターを前駆体とし た白金担持アルミナ触媒の創製 とそれらの酸化能の評価	西直樹
18	2022.03.10	東京理科大学総合 研究院「物性と離散 幾何」ワークショップ	金属クラスターの精密合成と構 造・物性の解明	根岸雄一
19	2022.03.12	Composite Materials Congress, Advanced Materials Lecture Series	Structure Control of Metal Clusters and Their Application in Energy and Environmental Catalysts	根岸雄一
20	2022.03.05-03.12	第 4 回ナノ材料化 学・応用研究会	金属クラスターの構造制御と機 能創発	根岸雄一
21	2022.03.23-03.26	日本化学会第 102 春季年会 (2022)	金属クラスターの構造制御とエネ ルギー・環境触媒での応用	根岸雄一
22	2022.05.20	ナノ学会第 20 回大 会	サイズ選択的かつ高収率な白金 ナノクラスターの合成法の確立と その酸素還元電極触媒活性	西直樹
23	2022.06.16	第 12 回 JACI/GSC シンポジ ウム	高収率かつ単分散な白金ナノク ラスター合成法の確立と酸素還 元活性	西直樹
24	2022.09.20	第 73 回 コロイドおよ び界面化学討論会	燃料電池用電極触媒としての白 金クラスターとその反応機構解明	三富優介
25	2022	第 130 回触媒討論 会	白金クラスターの燃料電池触媒 への応用と in situ 電気化学 X 線吸収微細構造解析による考 察	三富優介
26	2022	第 32 回日本 MRS 年次大会	Size-selective synthesis of ~1 nm Pt nanoclusters	三富優介

			and their ORR activity	
27	2021.08.27	日刊工業新聞	東京理科大学・根岸雄一教授 「現象理解が重要」	根岸雄一
28	2021.10月 号	教育系情報誌 「Dream Navi」誌	「大学の勉強ってこんなにおもしろ い！ : ナノテクノロジーのゲンバ : 最小の金属材料をつかって次世 代エネルギー社会に貢献」	根岸雄一

課題番号（管理番号）：IP19

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／燃料電池高温低加湿運転に向けた炭化水素系およびガラス系無機電解質膜の研究開発」

実施者：国立研究開発法人産業技術総合研究所、国立研究開発法人物質・材料研究機構（国立大学法人東北大学多元物質科学研究所）

期間：2021年8月～2025年3月

1. 研究開発概要

本研究開発は、燃料電池の100℃以上での高温運転を可能にする新規電解質膜の開発を行う。具体的には100～120℃の範囲での運転を見据えた炭化水素系高分子膜（HC膜）と200℃以上での運転を視野に入れたガラス系無機膜（ガラス膜）の開発を並行して行う。それぞれの膜開発、MEA作製と評価に当たっては、産業技術総合研究所（AIST）と物質・材料研究機構（NIMS）が役割を分担し、共同で研究開発を遂行することで相互の強みを生かした融合研究に取り組む。さらにガラス膜開発については、これまでAISTと共同で開発を進めてきた東北大学多元物質科学研究所を再委託先に加え、バックアップ体制を整える。

本研究開発は、各大項目（1.および2.）として上記2種類の膜開発を設定し、その中でAISTとNIMSが分担する項目を各小項目（サブテーマ）とした。研究開発全体の構成と担当研究機関は、下記の通りである。

1. 高温対応炭化水素系膜（HC膜）の開発および実システム条件下でのセル性能評価
 - 1-1. 高温対応炭化水素系電解質膜合成法の開発【NIMS】
 - 1-2. 実システム環境下におけるセル性能評価【AIST】
2. ガラス系無機膜の機能向上及び作動温度域拡大に関する研究開発
 - 2-1. 低温作動化ガラス膜の作製および評価【AIST、東北大学（再委託）】
 - 2-2. 高温用複合化アイオノマーの開発【NIMS】
 - 2-3. アイオノマーガラス複合化電極開発による出力密度向上【AIST、東北大学（再委託）】

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

1. 高温対応炭化水素系膜（HC膜）の開発および実システム条件下でのセル性能評価

- 1-1. 高温対応炭化水素系電解質膜合成法の開発【担当：物質・材料研究機構】

本テーマでは工業用エンジニアリングプラスチック（エンプラ）であるPPSUを出発物質として、これにスルホン化と架橋を施すことで、高プロトン伝導性と高い機械的強度を有する高温対応プロトン交換膜の開発を目指す。中間目標としては、電解質膜の特性において現行のNafion膜と同等以上の性能に設定し、最終目標については、それを上回る特性とした。

【2021年度末目標】

- ・ PPSUポリマーを用いたスルホン化度約2のSPPSUポリマー合成条件と架橋化条件の検討

【2022年度末目標】

- ・ 120℃、RH30-50%で6～30mS/cm以上の大面積HC膜開発

【2024年度末目標】（参考）

- ・ 前期の高温 PEM 評価結果を踏まえた架橋膜の改善と、PPSU ポリマーを用いてスルホン化度が 2 以上の SPPSU ポリマー合成条件と架橋化条件の確立と PEM テスト用大面積膜の作製
- ・ 120℃、RH30 -50%で 2.0~10mS/cm 以上の伝導度を有する架橋膜の開発と高温 PEM テスト用大面積架橋膜の作製

1-2 実システム環境下におけるセル性能評価【担当：産業技術総合研究所】

本項目では、NIMS の開発した HC 膜をセルに組み込み、高温条件での発電性能評価を行う。セル発電性能目標は、NEDO が策定する HDV 用ロードマップに準ずるものとする。

【2021 年度末目標】

- ・ 現行 HC 膜におけるセルベンチマーク性能（基準性能）の取得

【2022 年度末目標】

- ・ 基準性能に対して 120℃、RH35%で、セル電圧 0.60V となる電流密度を 20%以上向上させる

【2024 年度末目標】（参考）

- ・ 基準性能に対して 120℃、RH35%で、セル電圧 0.60V となる電流密度を 40%以上向上させる

2. ガラス系無機膜の機能向上及び作動温度域拡大に関する研究開発

2-1 低温作動化ガラス膜の作製および評価【担当：産業技術総合研究所、東北大学(再委託)】

燃料電池用電解質膜としてのガラス膜の開発においては、従来作動温度 300℃近辺を想定した開発に注力してきたが、ガラス膜の用途拡大を図るうえで低温特性向上が必要である。そこで中間目標としては、従来 300℃で得られている特性と同等性能を 250℃で達成するガラス膜を開発することに設定し、最終目標としては、さらにこれを上回る性能を有するガラス膜を開発することとした。

【2021 年度末目標】

- ・ 従来ガラス膜よりも 250℃におけるプロトン伝導度を向上するため組成改良の指針を得る

【2022 年度末目標】

- ・ 250℃において $2 \times 10^{-3} \text{ Scm}^{-1}$ 以上のプロトン伝導度を有するガラス膜の開発

【2024 年度末目標】（参考）

- ・ 低温作動化ガラス膜のプロトン伝導度の安定性評価および特性向上
- ・ MEA 化および電極複合化に適するガラス組成への改良

2-2 高温用複合化アイオノマーの開発【担当：物質・材料研究機構】

従来 200℃を超える温度領域で十分に機能を発揮できるアイオノマーは存在せず、本項目では未開拓素材の開発に挑むことになる。中間目標としては、200℃以上で十分な性能を有するアイオノマーを開発することとし、最終目標としてはさらに作動温度域を広げ、100℃以上で機能するアイオノマーを開発することとした。

【2021 年度末目標】

- ・ イオン性液体と固体酸との複合体の合成やペレットの作製と 300℃まで伝導度を評価可能な測定システムの構築

【2022 年度末目標】

- ・ 複合体電解質により 200℃以上、無加湿、交流インピーダンス手法で 1mS/cm 以上の伝導度実現【2024 年度末目標】（参考）
- ・ 100℃以上、無加湿、2 電極交流インピーダンス手法で 1mS/cm 以上の伝導度を発揮する複合体の開発

2-3 アイオノマーガラス複合化電極開発による出力密度向上【担当：産業技術総合研究所、東北大学（再委託）】

ガラス膜を用いたセル出力密度についてもガラス膜同様、従来 300℃で得られているセル性能と同等性能を 250℃で達成するセルを開発することに設定し、最終目標としては、さらにこれを上回る性能を有するガラス膜燃料電池セルを開発することとした。

【2021 年度末目標】

- ・ 複合電極用のガラス微粉化プロセスの構築

【2022 年度末目標】

- ・ 微粉化ガラス、触媒、既存アイオノマー材料を用いた複合スラリーを用いて 250℃にて従来作動温度と同程度の電極面積抵抗 50Ωcm² を発電作動時のオーム損を除いたセル電位変化量から確認する。
- ・ 低温化ガラス膜の薄板化条件の選定

【2024 年度末目標】（参考）

- ・ 新規の高温用複合化アイオノマーなどを用いた電極スラリーの調整および MEA 最適化
- ・ 200℃程度の温度で 50mWcm⁻² の出力密度を達成する MEA の開発

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
1-1 高温対応炭化水素系電解質膜合成法の開発	120℃、RH30%で 0.3mS/cm 又は RH50 % で 3mS/cm 以上の伝導度を有する改良架橋 HC 膜の開発	120℃、RH30% で 3mS/cm 又は RH50% で 10mS/cm の伝導度達成ができた。PEFC 分析解析プラットフォームへのサンプル提供を行った。	◎	更なる伝導度の向上化
1-2 実システム環境下におけるセル性能評価	基準性能に対して 120℃、RH35% で、セル電圧 0.60V となる電流密度を 20%以上向上させたセル性能の実現	種々の電解質膜を用いた高温条件でのセル性能評価を実施し、ベンチマークを設定した。	○	NIMS 製 CSPPSU を組込んだセル性能評価と性能改善に資する MEA 開発
2-1 低温作動化ガラス膜の作	250℃において 2×10 ⁻³ Scm ⁻¹	250℃において 1.1×10 ⁻³ Scm ⁻¹ のプロトン伝導	○	追加の組成改良で伝導度向上の傾向を確

製および評価	以上のプロトン伝導度を有するガラス膜の開発	度を有するガラス膜を開発した。		認、検討中。
2-2 高温用複合化アイオノマーの開発	複合体電解質により 200℃以上、無加湿、2 電極交流インピーダンス手法で 1mS/cm 以上の伝導度実現	240℃、無加湿条件下で 10mS/cm 以上の伝導度達成	○	再現性と 240℃以下の伝導度の向上
2-3 アイオノマーガラス複合化電極開発による出力密度向上	微粉化ガラス、触媒、既存アイオノマー材料を用いた複合スラリーを用いて 250℃にて従来作動温度と同程度の電極面積抵抗 50Ωcm ² を発電作動時のオーム損を除いたセル電位変化量から確認する	微粉化ガラス、Pt 担持カーボン触媒、SPPSU 系アイオノマー材料の複合電極で、250℃にて、電極面積抵抗 90Ωcm ² を確認。	○	アイオノマー種、触媒種、およびそれらの配合比の検討により抵抗低減を検討中。

3.2 研究開発の詳細

1. 高温対応炭化水素系膜（HC 膜）の開発および実システム条件下でのセル性能評価

1-1. 高温対応炭化水素系電解質膜合成法の開発【担当：物質・材料研究機構】

エンブラである PPSU (Polyphenylsulfone) を用いて硫酸中で温度と時間によるスルホン化依存性を調べた。スルホン化度はおおそ繰り返しユニット当たり 2 個のスルホン基がポリマーの分解なしで合成することに成功した。一方、スルホン化度は同じであるが低温合成ほど分子量が増加する傾向を示した。これらのスルホン化 PPSU を用いて熱処理温度により熱架橋化条件を最適化した。また、大面積(16cm x 20cm)の膜を作製し、特性評価を行った。架橋膜の最大伝導度は中間目標値より 10 倍高い 120℃、RH30%で 3mS/cm を得た。また、引張強度はフッ素系より高く、引張伸びはフッ素系に匹敵する値を得た。

1-2 実システム環境下におけるセル性能評価【担当：産業技術総合研究所】

NIMS で開発した HC 膜を組み込んだセルの性能評価を実施するのに先立ち、最初に標準的 CCM の仕様検討を行った。CCM 作製方法に関する予備検討の結果、HC 膜を用いた CCM 作製においては、転写法の適用が困難であることが予想されたため、電解質膜への触媒インクの直接塗布による CCM 作製を標準仕様とした。

セル性能評価については、最初に JARI 標準セルを用いた性能評価に取り組み、Nafion および Aquivion を電解質膜とアイオノマーに用いた標準仕様の CCM を JARI に組み込み、実システムでの高温運転を想定した低加湿条件下での性能評価を実施した。その結果、電解質膜およびアイオノマーに Nafion を用いたセルが最

も良い性能を示したため、この性能をベンチマークとして設定することとした。

2. ガラス系無機膜の機能向上及び作動温度域拡大に関する研究開発

2-1 低温作動化ガラス膜の作製および評価【担当：産業技術総合研究所、東北大学(再委託)】

2021 年度には、東北大学の機械学習による予測結果からプロトン伝導特性の低温化に最も効果の見込まれる、ナトリウム成分（プロトン成分）を現状ガラス膜よりも増大したガラス組成による検討を進めた。その他、ガラス補強に用いているホウ素濃度のプロトン伝導特性への影響を調査した。ナトリウム濃度の増加によりプロトン置換後のガラスの最高耐熱温度は低下するものの低温域でのプロトン伝導度の向上が可能であることを確認した。また、ホウ素濃度に関しては、濃度増加により耐熱性向上に引き換えにプロトン伝導度を低下させる効果を生じさせることが明らかとなり、低温特性向上に資する指針を得ることができた。

2-2 高温用複合化アイオノマーの開発【担当：物質・材料研究機構】

200℃～300℃用高温アイオノマーは超プロトン伝導体であるCDPとイオン性液体の複合体の作製により検討を行った。複合体はボールミルと乳鉢により作製し、ペレット化により伝導度特性を調べた。また、ボールミルの条件やペレットの条件などを調べた。伝導度特性ではボールミル条件や乳鉢による依存性はそれほど大きくないことが分かった。一方、イオン伝導度は超プロトン伝導性を示す240℃近傍で10mS/cmを得た。

2-3 アイオノマーガラス複合化電極開発による出力密度向上【担当：産業技術総合研究所、東北大学(再委託)】

2021 年度は、複合化電極作製にあたりプロトン伝導性ガラスの微粉化処理方法の検討と微粉化したガラスを用いた電極インクの作成および塗布条件の検討などを行った。通常のボールミル法などではガラスの微細化および均一な微粉化処理は困難であったが、高圧処理を利用した高精度ガラス微粉化装置（スギノマシン製スターバースト minomo）を導入することで複合化用ガラスの良質な微粉化プロセスを構築することができた。微粉化ガラスと Pt 担持カーボン触媒およびアイオノマー成分を混合した電極スラリーの試作を行い、電極性能評価を実施した結果、微粉化ガラスを含む複合化により一定の抵抗低減に寄与することを確認できた。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

1. 高温対応炭化水素系膜（HC 膜）の開発および実システム条件下でのセル性能評価

PPSU ポリマーを用いて多様な合成条件によりポリマーが壊れなくスルホン化度 2 のスルホン化 PPSU の合成ができた。また、これらにより架橋化膜の作製条件の最適化により伝導度に関しては中間目標が達成できた。しかし、更なる伝導度の向上や安定性の向上が必要であり、ナノ粒子であるスルホン化 POSS(シルセスキオキサン)との複合体を検討している。スルホン化された POSS が SPPSU に導入されることにより架橋膜のイオン交換容量の増加とポリマーとナノ粒子との共有結合又はイオン結合により伝導度の向上や機械的特性の向上を期待している。

セル性能評価においては、NIMS で開発された CSPPSU の性能を最大限引き出すための MEA 仕様最適化を行う。具体的には、CCM 作製法、GDL 仕様などが、従来の PFSA の場合の最適仕様とは異なる可能性があると考え、HC 膜高温運転に適したセル仕様を特定し、性能向上を図る。

2. ガラス系無機膜の機能向上及び作動温度域拡大に関する研究開発

ガラス電解質の低温域のプロトン伝導度は、これまでに確認したナトリウム濃度やホウ素濃度の影響を加味した

組成改良により順調に向上できる見込みである。電極開発に関しては、ガラス・触媒・アイオノマーの複合および電極形成方法を構築したので、今後、電極用の材料種の組み合わせ検討により性能向上は見込まれる。高温用アイオノマーとして検討しているイオン性液体は TG の熱分析により 300℃までは安定していることから CDP との複合体は 200℃～300℃までは高イオン伝導性を示すことが可能であると推測されるので、これら材料を候補として開発を進める。ガラス電解質をホットプレスにより薄板化したセルに電極形成を行い、最終目標の出力密度の達成を目指す。

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. 高温対応炭化水素系膜（HC 膜）の開発および実システム条件下でのセル性能評価

本プロジェクトにより PPSU のスルホン化技術や架橋化技術は最適化が期待でき、更なる低コスト化を目指す。また、企業には技術の提供やサンプルの提供を、企業からは事業化に向けた助言を受け取りながら、本研究の成果(特性)を改善していき、使える材料化(実用化)を進めていく。

セル性能評価においては、実システムでの運転条件を考慮した幅広い温度および湿度条件下での評価を行い、その結果を詳細に考察し、膜開発へのフィードバックを行う。このような膜開発とセル性能評価のサイクルを効率的に回していくことで、HC 膜のスピーディな実用化開発をサポートする。

2. ガラス系無機膜の機能向上及び作動温度域拡大に関する研究開発

成果の実用化に向けては、単に性能が高だけでなく、性能安定性も当然評価および改良する必要がある。ガラス電解質のプロトン伝導度向上が完了した後は、その熱的安定性向上に向けての添加元素の調整を進める必要がある。また、現在試験的に用いている Pd 箔に変わるコスト的に現実的な構成となるセル化の際の支持体構造の検討が必要となる。電極開発に関しては、従来 PEFC よりも作動温度が 100℃以上高くなる利点を生かして、最終的には脱 Pt 系の触媒の開発を目指すとともに、高温イオン伝導体アイオノマー材料として求められる特性や安定性などの情報を企業側に提供することで企業の事業化への検討ができる橋渡しの役割をしながら、材料特性を改善し、使える材料の開発を続けていく。これらの燃料電池単セルレベルでの材料開発に一定の目途が得られた時点で、ガラス電解質の量産化技術などで材料メーカーと事業化に向けての検討が開始できるものと想定される。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2022 年 3 月	電気化学会第 89 回大会	リン酸塩ガラス系プロトン伝導体の新規開拓と中温作 動電気化学デバイスへの展開	石山 智大

課題番号（管理番号）：HS01

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／CFRP 製水素タンクのマルチスケール設計・評価解析技術の研究開発」

実施者：国立大学法人 東京大学、国立大学法人 筑波大学、学校法人日本大学 日本大学理工学部理工学研究所、（八千代工業株式会社）

期間：2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

本研究開発では、燃料電池車の水素貯蔵システムを軽量・安全に設計するための設計解析・評価手法の構築を行い、業界標準となる設計手法を構築する。また、そのために必要な設計解析ツール（強度解析や寿命評価）も整備することで、燃料電池車の普及を促すことを目指す。具体的には、ミクロな材料構成や複雑な破壊モードを考慮可能なマルチスケール解析を援用した設計・評価手法を CFRP 水素タンクに適用し、不可避な初期不整（ポイド、繊維交差、繊維うねり）などを考慮しながら、損傷蓄積・寿命シミュレーション技術を構築することで、軽量化や定量的な安全性の担保を実現する。

本研究提案で実現する設計解析手法と寿命・残留強度推定ツールにより、水素タンクの安全性の担保や残存強度・寿命を予測できる技術基盤を確立する。また、本提案は FW（フィラメントワインディング）製 CFRP タンクの設計に必要な実験評価・解析技術をセットとしたマルチスケール型の設計解析手法を実現することで、水素タンクの強靱化・低コスト化に貢献する。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

CFRP 水素タンクの疲労寿命を 50%以内の精度で予測することを最終目標としている。そのため、中間目標としてクーポンレベルの剛性低下を誤差 10%以内で予測することを設定した。

従来はタンクの応力解析（損傷を考慮しないモデル）と材料の S-N 線図（応力とサイクル数（寿命）の関係を示した線図）データから疲労寿命を予測するのみであり、現状では疲労寿命のオーダー予測すらできない状況であり、バッチ毎の確認試験で水素タンクの安全性を担保しているのみである。高精度寿命予測、特に損傷進展を考慮した剛性低下を考慮した予測が可能になれば CFRP タンクの軽量化や低コスト化（燃料電池車の航続距離増大やシステムコストの低減）、環境性能向上（交換・廃棄回数の低減）に大きく資する。この問題点と解決に向けた取り組みを産業界（関心表明企業）との議論しながら実施している。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
[1] ミクロ・メゾスケール解析技術の開発	ミクロモデルを構築し、メゾ特性を誤差 10%以内で予測する。	ミクロ構造（繊維／樹脂）、積層構造を考慮したメゾ特性を予測するモデルを構築（完了）。実験との検証から非線形部を含め 10%以内の誤差での予測を達成。	○	実際のタンクの巻き角やポイドを考慮した解析手法の構築とばらつき評価

[2] 高精度評価技術の開発	クーポン試験片により初期不整データやメゾ特性を取得する。	ミクロ物性（繊維／樹脂特性）の取得完了。 FW 製クーポン試験片の特性・初期不整データ（繊維含有率、ポイド等）の取得完了。	○	要素試験片や実際のタンクの初期不整データと特性取得
[3] CFRP タンク構造の寿命予測技術の開発	クーポンレベルの剛性低下を誤差 10%以内で予測する。	FW 製クーポン試験片の製作完了。 メゾスケールモデルによる剛性低下シミュレーションを構築完了。剛性低下だけでなく最終強度を 10%以内の誤差での予測を達成。	◎	疲労損傷モデル開発とタンク構造への適用。

3.2 研究開発の詳細

(1) ミクロ・メゾスケール解析技術の開発

CFRP 水素タンクを構成するフィラメントワインディング CFRP (FW-CFRP) について繊維／樹脂やポイドなどのミクロ構造を反映したマルチスケール解析手法を構築し、積層スケールの応力ひずみ応答（非弾性変形含む）を予測し、ミクロ構造の違いによる力学的特性のばらつき予測を可能とする解析技術の構築を行っている。繊維や樹脂の特性を入力し、クーポン試験片の引張負荷における応力ひずみ線図を予測し、誤差 10%以内での予測が可能であることを確認した。また、実際の CFRP 水素タンクに関する FW における各種形状パラメータを参考に、繊維交差ずれを考慮したモデルを用いた解析も実施し、応力ひずみ応答のばらつき予測を試行することにも成功した。

(2) 高精度評価技術の開発

製作した CFRP 試験片について、断面観察や X 線 CT により繊維うねり量やポイド分布の測定を実施した。また、クーポン試験片の引張試験、引張負荷除荷試験、2 軸引張試験を実施し、シミュレーションに必要な材料特性（弾性特性や損傷・塑性特性、強度特性）の取得を行った。

(3) CFRP タンク構造の寿命予測技術の開発

CFRP 水素タンクの損傷・疲労強度予測を可能とする、損傷力学ベースのメゾスケール解析手法を構築し、静的な損傷進展解析を実施するとともに、疲労モデルへの拡張検討を実施した。製作したクーポン試験片について、項目（2）で取得したパラメータを用い、3 点曲げ試験の荷重変位応答を予測し、実験データとの比較により、静的な弾性応答・非線形応答（剛性低下）・強度特性に関する精度検証を実施した。当初目指していた剛性低下だけでなく、強度特性も含めて良い一致（誤差 10%以

内) が確認でき、中間目標を達成していることを確認した。これまで、CFRP タンク構造では損傷進展やそれに伴う剛性低下を考慮した解析が適用されてきておらず、精度の高い疲労損傷進展モデルを構築するための基盤としての静的なモデル構築を完了した。なお、疲労モデルの定式化は完了しており、そのコーディングの試行まで実施した。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 最終的にはCFRPのタンク構造の性能予測を目指している一方で、中間目標ではクーポン試験片での高精度予測を掲げ、その達成を確認した。タンク構造とクーポン試験片では、製造条件が異なるため、実際にはタンク構造での実証が求められる。そのため、タンクの代表的な要素構造であるシリンダ/ドーム構造を模擬する試験片（要素試験片や2軸試験片）を製作し、シミュレーションの精度検証を段階的に実施するアプローチをとり、最終的にタンク構造での精度検証を進める計画である。

(2) CFRPの詳細な損傷累積過程をモデル化し、高精度な剛性低下予測（誤差10%以内）を可能とするシミュレーションを評価・検証手法とセットで構築し、疲労モデルに展開することで、高精度疲労寿命予測（寿命誤差50%以内）を実現する。同時に、製造パラメータなどによる特性のバラツキ要因をミクロスケール解析を用いて突き止め、定量的に把握することで設計・製造へのフィードバックを可能とする仕組みをつくる。

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) 本プロジェクト終了時（2024年度終了）後、プロジェクトの成果をツールとして関心表明企業を中心に提供し、設計時に試用し実用化検討・事業化検討を進める。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021年3月	第12回日本複合材料会議	CFRP水素容器のマルチスケール設計解析技術について	横関智弘
2	2021年8月	第63回構造強度に関する講演会	曲がり梁ENF試験によるCFRPのモードII層間破壊靱性評価手法について	酒匂凌太、横関智弘
3	2021年9月	7th International Conference on Mechanics of Composites	Analytical evaluation of mode I and II fracture toughness of CFRP curved beams	酒匂凌太、横関智弘
4	2022年1月	Composite	Analysis of mode II strain	Ryota Sako, Ryoma Aoki,

	月	Structures 281(2022) 115038	energy release rates in end-notched flexure tests of carbon fiber-reinforced plastic curved beams	Ryo Higuchi, Masahito Ueda, Yuta Urushiyama, Tomohiro Yokozeki
5	2022年3 月	第13回日本複合 材料会議	ファイラメントワインディング成形によ る高圧水素タンク用 CFRP の製 造条件の差異による損傷累積 挙動への影響	楊 海涯, 上田 政人, 岩瀬 航, 森田直樹, 松田 哲也, 横関 智弘
6	2022年3 月	第13回日本複合 材料会議	高圧水素貯蔵容器用 FW- CFRP の非弾性スリ-スケール 均質化解析	高橋知也, 松田哲也, 森田 直樹, 上田政人, 横関智 弘, 岩瀬航
7	2022年3 月	第13回日本複合 材料会議	CFRP 製水素タンクのマルチスケ ール設計・評価解析技術の研 究開発	横関智弘
8	2022年3 月	FC-EXPO	CFRP 製水素タンクのマルチスケ ール設計・評価解析技術の研 究開発	八島晃宏
9	2022年5 月	Composite Structures 281(2022) 115038	Experiments on the mode II fracture toughness in ENF tests of CFRP curved beams	Ryota Sako, Ryoma Aoki, Ryo Higuchi, Masahito Ueda, Yuta Urushiyama, Tomohiro Yokozeki
10	2022年5 月	日本機械学会誌	CFRP 製高圧水素タンクの設計 革新にむけて	横関智弘
11	2022年8 月	15th World Congress on Computational Mechanics	Multiscale inelastic analysis of FW-CFRP for high-pressure hydrogen tanks	Tomoya Takahashi, Tetsuya Matsuda, Naoki Morita, Masahito Ueda, Tomohiro Yokozeki, Wataru Iwase

課題番号（管理番号）：HS02

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／低コストと高性能を両立した炭素繊維の研究開発」

実施者：東海国立大学機構、九州大学

(京都工芸繊維大学、東京工業大学、産業技術総合研究所)

期間：2020年10月～2025年3月

1. 研究開発概要

現行の水素貯蔵タンクに採用されている市販炭素繊維と同等の力学物性を有しつつ（引張弾性率:290 GPa、引張強度：5.8 GPa）、10 US\$/kgの製造コストを実現する「炭素繊維の研究開発」を進める。原料コストの観点から炭素繊維の原料を抜本的に見直し、

加えて炭素化収率の増大、製造プロセスの簡略化の観点から取り組む。また、その原料から目標物性値を達成するために必要となる補完的要素技術開発にも取り組む。さらに、物性発現機構の解明にも取り組み、開発する炭素繊維の製造条件の最適化に有益な情報を取得しながら、市販品とは異なる原料、プロセスから市販品同等の力学物性を有した炭素繊維の開発を達成する。本研究のアウトプットイメージを図1に示す。目標達成後には、水素タンク製造コストの大幅削減が見込まれるほか、副次的効果として低コスト化による他用途展開により、新エネルギー産業や省エネルギーへの貢献も期待できる。

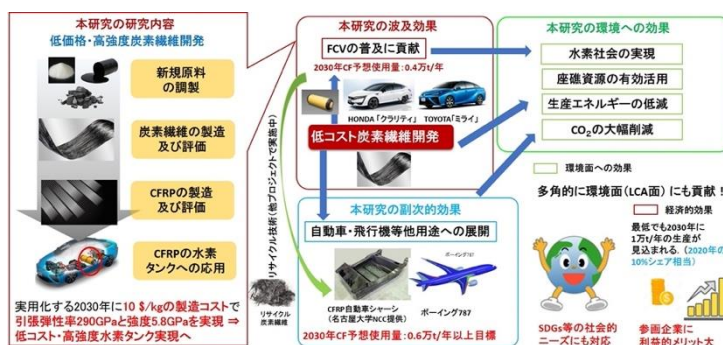


図1：本研究開発のアウトプットイメージ

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

2022年6月時点で、将来的に10 US\$/kg以下（他国でも前例がない挑戦的なコスト目標）での製造を想定した原料から、引張弾性率170 GPa、強度1.7 GPaを有する炭素繊維を製造することを中間目標値とした。米国のオークリッジ国立研究所が、自動車ボディ用炭素繊維に必要な物性として設定した国際的な一つの開発指針である。2023年3月には、同230 GPa、3.5 GPa（ポリアクリロニトリル（PAN）系炭素繊維の汎用グレード相当）、プロジェクト終了時点で同240 GPa、4.8 GPa（航空機用途レベル中級グレード相当）を達成し、水素タンクとして実用化する2030年には、現行使用品同等の同280 GPa、5.8 GPaを実現することを目標とする（表1）。また、炭素繊維強化プラスチック（CFRP）として使用する際の重要物性である界面官能基量（XPS：O/C値）、樹脂との界面接着力（フラグメンテーション試

表1：本研究開発の中間・最終目標

開発項目	年度					
	本研究開発期間	2022-2023			本研究開発(終了)以降	
	2020-2021 現在地	2022-2023	2024	2025-2027	2028-2029	2030
本研究開発 名大開発品 九大開発品 特徴 名大・九大技術融合 or 取捨選択	(バッチプロセス)ラボスケールでの試作 名大: 本管・異形 九大: 高伸度品 目標達成 弾性率: 170GPa 強度: 1.7GPa	(連続プロセス)小規模工業スケールでの試作と検討 達成目標 弾性率: 230GPa 強度: 3.5GPa	達成目標 弾性率: 240GPa 強度: 4.8GPa	次々世代の検討		達成目標 弾性率: 290GPa 強度: 5.8GPa FCV水素タンクとして本格実用
他事業との連携 「CFRP製水素タンクのマルチスケール設計・評価 解析技術の研究開発」との連携		データの共有・設計側からのフィードバック CFの設計指針獲得 水素タンク設計チームとのシナジー加速	小型タンクの試作			
・炭素繊維メーカーによる実用化開発 ・自動車メーカーによる水素タンク開発	関心表明 CFメーカーより 関心表明書2件	技術譲受 小規模ラインでの生産 ※ベンチャー企業を 活用する可能性	設計完了 水素タンク生産を開始			

験：界面剪断強度）についても現行品比較で、相対値として8割（中間目標）と10割（最終目標）を達成することも目標設定した。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
①等方性原料前駆体炭素繊維の開発	10 US\$/kg 以下での製造を可能とするコンセプトで想定される原料から、引張弾性率 170 GPa、強度 1.7 GPa を達成する炭素繊維を得る。	中間目標値は 3 月時点で既に達成した。既に次期中間目標に向け、連続炭素繊維製造装置を用いた実験にも着手した。	○	定めた目標物性値達成のためには、随時の物性向上が必要。また、水素タンク製造に向けた CFRP での評価の必要性もあり、パイロットスケールでの生産も進める必要がある点は課題である。
②炭素資源抽出物前駆体炭素繊維の開発	同上	中間目標値は 3 月時点で既に達成した。マルチホール型前駆体繊維紡糸装置の稼働準備中であるに取り掛かり中である。物性も随時更新中。	○	同上 特に、性能は①より先行している一方で、CFRP として評価可能な設備、体制構築は①より遅れている点が課題である。
③CFRP への応用を想定した基礎検討	官能基状態、樹脂との界面接着力について開発品と水素タンクに使用されている市販炭素繊維で比較を行い、相対値として 8 割を達成する。	中間目標値は 3 月時点で既に達成した。水素タンク用 CFRP の設計チームとの情報共有体制も構築した。アドバイザー企業の協力を得て、CFRP としての実用化を目指した研究体制も構築した。	◎	アドバイザー企業の協力を得て、CFRP としての試作評価も開始する計画であるが、試作に資する物性を持った炭素繊維を同時に一定量生産する必要がある。
④配向促進剤の分散・相溶技術開発	①、②で実施する炭素繊維開発を支援する。目標は、①、②と同様。	特に①との共同開発として配向促進効果のある前駆体原料添加剤の生産を本格化した。	○	湿式紡糸を行えるための配向促進効果のある前駆体原料の高分子量化が求められる。
⑤物性発現機構の解明	①、②で実施する炭素繊維開発を支援する。目標は、①、②と同様。	②を補完するための炭素化メカニズムに関するシミュレーションや、①、②で開発する炭素繊維の到達可能強度測定による開発品	○	②と連動し、シミュレーション結果を元にした原料設計を行い、具現化する点が課題である。また、ポテンシャル

		のポテンシャル評価が実施され、開発を支援した。	評価の精度を高め、市販品同等のポテンシャルを示す。
--	--	-------------------------	---------------------------

3.2 研究開発の詳細

(1) ①等方性原料前駆体炭素繊維の開発では、ラボレベル（バッチ式）での炭素繊維試作を繰り返し取り組んだ。従来の製造プロセスの簡略化の観点から低コスト化への貢献が期待される汎用的な高分子に④で開発中の配向促進剤を添加させることによって、炭素繊維の長さ方向に炭素網面を配向させることが課題である。

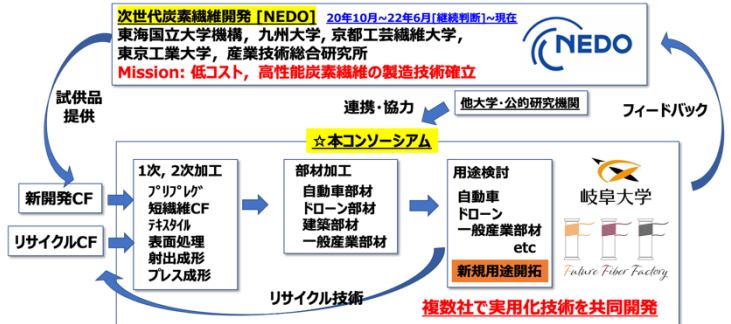


図2：本事業と連携したコンソーシアム実施体制

その課題に対して、配向度は依然と市販品に劣るものの、2021年3月時点で、引張弾性率 182 GPa、強度 1.8 GPa まで到達し、中間目標物性値を達成した。また、含酸素官能基量の指標である XPS 測定で求めた O/C 値、樹脂との界面接着力の指標であるフラグメンテーション試験で求めた界面剪断強度は、比較対象市販品のそれぞれ 8 割を達成した。なお、従来の炭素繊維製造で必須でありながら生産性の増大、コスト低減の障壁であった耐炎・不融化处理を省いた工程で製造した中で、同様のコンセプトでこの数値データを実現した報告は国内以外ではない。2022年度から、アドバイザー企業の協力の下で、CFRP への実用化を想定した連携体制（コンソーシアム）を岐阜大学 Future Fiber Factory（FFF）内に構築した。③で示した CFRP での実用化を目指したの開発項目の推進を図る（図2、プレスリリース：

https://www.gifu.ac.jp/about/publication/press/20220719_2.pdf）。

(2) ②炭素資源抽出物前駆体炭素繊維の開発では、天然資源からの炭素繊維原料の抽出技術を盤技術として、抽出された原料の溶融紡糸、バッチ式での炭素繊維試作とその物性評価を実施した。価格の安い原料（天然資源）を用いて、しかも低コストプロセスでの原料抽出技術とともに、炭素繊維の前駆体として適した調整技術開発を進めた。低価格原料であっても異方性がある炭素繊維が得られることを明らかにし、中間目標物性値を達成した（2021年3月時点で、引張弾性率 170 GPa、強度 2.3 GPa）。今後は、⑤で実施中の分子動力学シミュレーションと連動し、のような原料（分子）を抽出するのが適切、最適なのかを明らかにしながら、さらなる物性の飛躍向上を目指す。

(3) 項目⑤では、物性発現機構の解明の観点から、①と②で実施中の炭素繊維開発をサポートしている。具体的には、実験的評価として、開発中の炭素繊維を用いて広角 X 線回折測定による結晶性評価、小角 X 線散乱測定によるポイド評価あるいは単繊維に切れ込み（ノッチ）を導入したノッチ入り炭素繊維の引張試験で評価される到達可能強度（炭素繊維のポテンシャル評価）測定を進めた。開発品の中には、市販品同等の到達可能強度を示すものがあることを明らかとした。さらに、到達可能強度には直径依存性が認められ、今後開発する炭素繊維の直径制御が課題であることも明らかとした。2022年度中には、炭素繊維の焼成工程中の放射光を用いた広角・小角 X 線測定によって結晶構造、ポイドの形

成機構を明確にしていく計画である。また、理論的評価として、特に②の開発をサポートするため、分子動力学シミュレーションを用いた重質炭化水素分子からの複雑な混合物の凝集挙動のモデル化を進めている。その結果、②で開発している炭素繊維製造過程における化学構造変化に関して、凝集・反応・配向挙動を再現する反応力場-分子動力学計算手法の有効性を示した。

引き続き、以上の評価技術を駆使して、①と②で実施中の炭素繊維開発における物性向上の指針を得ていく計画である。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) これまでの開発で見てきた目標達成に向けたアプローチとして、紡糸時の延伸倍率や焼成時の張力付与条件の最適化が重要である。その最適条件の探求における次ステップとして、スケールアップしたパイロット製造ラインを本格稼働開始することが重要であり、スケールアップこそが物性の最大化に最も影響を与える因子となると期待される。

比較対象となる PAN 系炭素繊維の開発の歴史として、1961 年に発明者である進藤博士（大阪工業試験所

（現産総研）がバッチ式 1400 °C の条件で製造した炭素繊維の力学物性が引張弾性率 120 GPa 未満、強度 1.0 GPa 未満である一方で、わずか 3 年後に米国の Watt らによって、張力付与した連続プロセスの製造で同 230 GPa 以上、強度 3.0 GPa 以上を達成した記録が残されている（E. Fitzer, Carbon, 72, 621-645, 1989）。重要なポイントは、繊維を数千本束にすることによって、高張力に対して均一化して破断させることなく、焼成することが可能となることであり、焼成時に発生するポイドの焼締め効果と高配向した炭素繊維が得られる。また、炉中の滞在時間も短縮できることによって、過大な熱処理による損傷も低減される。本研究開発では、2022 年 6 月までは、前駆体の設計に注力しており、試作種類を多数実施可能なバッチ式で、原料候補の選別を優先してきた。2022 年度 7 月以降は、図 3 で示したパイロットスケールの炭素繊維製造装置の稼働を本格化させ、選別された原料を使用し、炭素繊維の製造条件の最適条件を探索することによって、PAN 系炭素繊維がわずか 3 年で達成した歴史を再現し、物性の最大化を達成する計画である。

(2) 項目②では、オリジナルな分子抽出・ブレンディング技術を駆使して、安価な原料から安価な工程を経て高性能な炭素繊維を製造するのがミッションである。本技術開発においては、ピッチ系炭素繊維の開発における半世紀にわたる「経験」を存分に活用して進める。経験に基づいた、トライアンドエラー方式的な手法も必要ではある中で、少しでも効率的にトライをすることが、開発の加速には重要である。



図 3 : パイロット炭素繊維製造ライン

項目⑤で実施中である理論的評価において、分子モデルを用いた分子シミュレーション精度が向上しており、どんな原料が最適な原料になり得るのか、またその原料を選択的に抽出する技術開発を同時連携で進めていくことで、物性向上を達成する。



図4：炭素資源前駆体炭素繊維開発

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

本研究で開発した炭素繊維は表2で想定したスケジュールにおいて、炭素繊維として、および水素タンクとして事業化に向けて取り組む計画である。

(1) 炭素繊維としての実用化（製品化）

アドバイザー企業として、炭素繊維製造企業にも参画を頂いている中で、既に開発状況（進捗）を共有する機会を設けている。研究開発の終了時期までにそうした民間企業への技術移転を目指した共同開発体制を構築し、水素貯蔵タンク用炭素繊維の試供品として製造を開始する計画である。技術移転に際して、共同開発体制を構築し、潤滑に遂行する際に必要がある場合にはベンチャー企業の活用も想定する。また、開発する炭素繊維は、自動車ボディーなどの他用途への展開も可能である。既にそうした用途展開も想定した連携体制も構築済みであり、3.2でも紹介したFFF内コンソーシアムを活用し、関連する川上企業から川下企業の一気通貫の体制で、他の用途展開の可能性についても調査を本研究開発の終了時期までに開始する。

(2) 水素タンクとしての実用化（製品化）

現行の水素貯蔵タンクに採用されるPAN系炭素繊維と同等の力学物性を2030年には達成できるというポテンシャルが見出され、さらに10 US\$/kgの製造コストを達成する製造技術として目処を2023年までに示す。その後、直ちに水素貯蔵タンクとして実用化を検討するアドバイザー企業（自動車製造企業）と水素貯蔵タンクとして実用化する上での設計等に着手する。本研究開発期間終了時期ごろには、生産される試供品を使用して、水素貯蔵タンクの試作を開始できる体制を目指す。安全性、耐久性の評価および量産化技術の確立を本プロジェクト終了後に3年程度行い、2030年に自動車企業からの水素貯蔵タンクとしての製品化を目指す。

なお、社会背景としてサステナビリティに対する要求がますます高まっており、材料分野に至ってはサーキュラーエコノミーなど本プロジェクト開始時期には想定していなかった新たな潮流が生まれている。水素タンクにおいてもリサイクルを意識した開発は避けられないため、国内のリサイクル開発企業とも情報共有を進めながら実用化に取り組む計画である。

課題番号（管理番号）： HS03

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／車載機器用高圧水素適合性高分子材料評価法およびデータベースの確立」

実施者： 国立大学法人九州大学、公立大学法人滋賀県立大学、国立研究開発法人量子科学技術
研究開発機構

期間： 2020年7月31日～2025年3月31日

1. 研究開発概要

本プロジェクトでは、第5次エネルギー基本計画や水素・燃料電池戦略ロードマップ等で定めるシナリオに基づき、2030年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システム(水素貯蔵タンク等を含む)を実現するためのユーザーニーズに基づく協調領域の基盤技術を開発することにより、世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立することを目的とする。

本プロジェクトで検討の対象とする車載用水素貯蔵タンクについて、タイプ4タンクを用いた水素貯蔵システムの現状のコスト約70万円を半分以上の30万円程度まで削減するためには、炭素繊維の使用量低減が求められるとともに、水素バリア・シール機能が要求されるライナー樹脂材料やバルブ・減圧弁などのシール部材の開発が不可欠である。本プロジェクトは、水素透過特性と様々な機械的特性・物理的特性との相関について検討し、様々な汎用樹脂材料系、ブレンド・アロイ、放射線架橋材料などについて水素透過特性、機械的特性、物性を計測・整理し、水素透過特性と特に低温における機械的特性の両立が求められるタイプ4タンク用樹脂材料の設計指針を策定することを目的とする。本プロジェクトは以下の2項目について検討を進める。

サブテーマ(1) 水素樹脂物性の選定および樹脂物性データベースの作成

水素貯蔵システムに適用する樹脂材料に対する要求特性を整理し、必要となる特性のデータの取得を行う。集積したデータおよび既存データを整理し、データベースとしてまとめるとともに、計測に用いた樹脂の各種構造解析を実施し、水素透過特性および各種樹脂物性と樹脂の構造との相関を調査する。

サブテーマ(2) ポリマーアロイ・ブレンド技術、架橋技術の位置付け評価

サブテーマ(1)のデータベースを基準となるデータとして、ポリマーアロイ・ブレンド技術、架橋技術などを用いた汎用樹脂の変性による水素透過特性と各種樹脂物性への影響を検討する。また、本研究で明らかになった樹脂材料系およびその変性技術についての位置付け・方向性を考慮し、新規に開発される水素貯蔵システムに適用される樹脂材料の開発・選定を行う。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

○中間目標(2022年度6月)

サブテーマ(1)

- ・一般社団法人日本ゴム協会との連携による検討ワーキンググループの設立
- ・高圧水素適合性材料データベースの仕様策定
- ・ベースとなる汎用高分子材料系の絞り込み
- ・高圧水素透過特性、機械的特性評価方法の確立
- ・ポリマーブレンド材の水素透過特性および低温力学特性に対する放射線照射の効果検証【2021年度加速】

サブテーマ (2)

- ・ポリマーアロイ・ブレンド技術検証のベースとなる汎用高分子材料系絞り込み
- ・放射線照射用ポリマーブレンド材の作製およびポリマーブレンド材の高次構造、自由体積に対する放射線照射の効果検証【2021 年度加速】
- ・放射線架橋技術検証のベースとなる汎用高分子材料系の絞り込み
- ・ポリマーブレンド材に対する放射線照射条件の設定および評価用照射材の作成およびポリマーブレンド材の界面構造に対する放射線照射の効果検証【2021 年度加速】

○最終目標 (参考) (2024 年度)

- ・下記物性を満足する水素適合性高分子材料開発のための材料設計指針の策定

$$\text{降伏伸び (@-70}^{\circ}\text{C)} \geq 10\%$$

$$\text{水素透過係数 (@ 55}^{\circ}\text{C)} \leq 0.15 \times 10^{-10} [\text{cm}^3(\text{STP}) \cdot \text{cm}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{cmHg})]$$

- ・2030 年における FCV 水素貯蔵システムのコスト 30 万円に資する樹脂材料・樹脂部材の方向性決定

2021 年 10 月、OEM より多様な用途・製品への展開を目的とする車載用タイプ 4 タンクライナー材の目標値が提示された。現在上市されている乗用車に搭載されている直径 300 mm 程度の中径タンク、今後の市場拡大が予想される大型車等に搭載される直径 800 mm 程度の大径タンクの場合、ライナー厚 2 mm 程度が想定されているのに対して、乗用車の設計自由度を向上させる目的で検討されている直径 100 mm 程度の小径タンクの場合、水素貯蔵の体積効率の観点からライナー厚は 0.5 mm 程度が想定されている。このため、小径タンクへの適用を想定した場合、中径・大径タンクより小さい水素透過係数が求められる。0.5 mm 厚のライナー材によりタイプ 4 タンクの水素透過量の規格である 46 cm³/L/h を満足するライナー材の要求特性として、55℃において水素透過係数 0.15 × 10⁻¹⁰ [cm³(STP)・cm/(cm²・s・cmHg)]以下となることが設定された。水素透過係数の目標値は 55℃で設定されているが、測定の簡便性、および 30℃でデータが蓄積されている既存データの活用の観点から熱可塑性樹脂の水素透過係数の温度依存性に基づいて、30℃の値に換算し、目標値を 0.08 × 10⁻¹⁰ [cm³(STP)・cm/(cm²・s・cmHg)]以下として検討をすすめることとした。また、機械的特性の目標値としては、急減圧による温度低下を想定した際の-70℃におけるライナーの主応力とライナー材のヤング率より算出されるライナー材の降伏伸びとして設定され、-70℃において降伏伸び 10%以上となることが求められる。これらの値を、最終的な目標値として想定し、水素適合性高分子材料開発のための材料設計指針を策定することを本プロジェクトの目標として設定した。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
サブテーマ (1) 水素樹脂物性の選定および樹脂物性データベースの作成	a. 一般社団法人日本ゴム協会との連携による検討ワーキンググループの設立 b. 高圧水素適合性材料データベースの仕様策定	a. LOI 提出企業を構成メンバーとする高圧水素適合性高分子材料検討ワーキンググループ (WG) を設置し、4 回の WG 会合を開催した。	○	データベースに収載したモデル材の範囲では脂肪族ポリアミドである PA11、PA12、半芳香族ポリアミド PA9T 等低温降伏伸びの目標値 10%を超える材料が見

	<p>c. ベースとなる汎用高分子材料系の絞り込み</p> <p>d. 高圧水素透過特性、機械的特性評価方法の確立</p> <p>e. ポリマーブレンド材の水素透過特性および低温力学特性に対する放射線照射の効果検証【加速】</p>	<p>b. 昇温脱離ガス分析法を用いた水素特性評価結果、-70℃における引張試験結果を集約することとした。</p> <p>c. WG での議論によりポリオレフィン系樹脂、脂肪族ポリアミドに絞り込み、評価のためのモデル材料系を構築した。</p> <p>d. 高圧水素透過測定と昇温脱離ガス分析法の比較を行い、簡易法である昇温脱離ガス分析法を用いた水素特性評価法、-70℃における引張試験システムを構築し機械的特性評価法を確立した。</p> <p>e. PE/PA11 ブレンド系をモデルとして効果検証中。高圧水素曝露の際、ブレンド中の樹脂界面の剥離、クラックの生成が見られたが、放射線照射により剥離、クラックが抑制されることが判明した。</p>	<p>出されたが、これらの軟質ポリアミド系材料は水素透過係数が目標値より1桁大きい。軟質ポリアミド系材料についてフィラーの添加などの方法水素透過係数低減の可能性を探索する。</p> <p>小径タンクの目標値として設定されている水素透過係数目標値 0.15 Barrer (55℃)を達成可能な樹脂系の選定が必要となった。文献データを教師データとする AI を用いた探索を実施した。樹脂材料の他のガス種についての透過特性の文献情報を教師データとして水素透過特性を予測する AI 解析モデルを作成し、水素透過係数 0.15 Barrer となる候補材としてエチレン・ビニルアルコール共重合体 (EVOH) およびポリケトン (POK) 系材料が選定された。これらの高圧水素透過性のデータを取得し、データベースの拡充が必要である。</p>
<p>サブテーマ (2) ポリマーアロイ・ブレンド技術、架橋技術の位置付け評価</p>	<p>a. ポリマーアロイ・ブレンド技術検証のベースとなる汎用高分子材料系絞り込み</p> <p>b. 放射線照射用ポリマーブレンド材の作製およびポリマーブレンド材の高次構造、自由体積に対する放</p>	<p>a. タイプ 4 タンクライナーとして使用実績のある汎用樹脂として PE および脂肪族ポリアミド系樹脂 (PA11) を選定。</p> <p>2021 年 10 月の目標値提示に伴い、AI を用いた調査を行った結果、水素透過係数の目標値を満</p>	<p>○</p> <p>OEM 提案による極めて低い水素透過係数目標値を設定した場合、1検体あたりの水素透過係数計測時間が 200～300 時間程度必要になるため、計測設備の増強または樹脂材料のスクリーニングのための代</p>

	<p>射線照射の効果検証【加速】</p> <p>c. 放射線架橋技術検証のベースとなる汎用高分子材料系の絞り込み</p> <p>d. ポリマーブレンド材に対する放射線照射条件の設定および評価用照射材の作成およびポリマーブレンド材の界面構造に対する放射線照射の効果検証【加速】</p>	<p>足する樹脂系として EVOH および POK を選定.</p> <p>b. PE/PA11 系モデルブレンド材により、ブレンドの効果として低温での降伏伸びについて数%の向上が可能であることが判明した。モデル材料に加え、EVOH および POK についてもブレンドの効果検証を推進中。</p> <p>c. タイプ 4 タンクライナーとして使用実績のある汎用樹脂として PE および PA11 を選定。2021 年 10 月の目標値提示に伴い、AI を用いた調査を行った結果、水素透過係数の目標値を満足する樹脂系として EVOH および POK を選定。</p> <p>d. PE 系、PA 系モデル樹脂に放射線照射することにより 10%程度の水素透過係数の抑制が可能であることが判明した。モデルブレンド材に対する放射線照射により、高圧水素曝露の際の発生するブレンド中の樹脂界面の剥離、クラックの生成が放射線照射により抑制されることが判明した。</p>	<p>替特性の検討が必要となる。また、POK、EVOH は降伏伸びが 3～5%程度と想定され、ブレンド・放射線照射等の変性技術により降伏伸び 10%を超える材料を探索する。</p> <p>EVOH 系・POK 系材料探索において、設計したブレンド系材料の水素透過係数を作成した AI モデルで予測し、水素透過係数が 0.15 Barrer を超えない範囲のブレンド材を選定する。これらの選定材の評価結果に基づいて、低温降伏伸びについても AI 解析を実施し、低温降伏伸びおよび水素透過特性を両立する樹脂材料系設計ツールとしての活用を検討する。</p> <p>ブレンド材の課題である高圧水素曝露時の界面剥離、クラックの発生などについては放射線照射による変性が有効であることが判明している。EVOH 系・POK 系材料についての適用を検討する。</p>
--	---	---	--

3.2 研究開発の詳細

サブテーマ (1) 水素樹脂物性の選定および樹脂物性データベースの作成

本プロジェクトのステアリング委員会の位置付けとして、ステークホルダーである自動車メーカー、タイプ 4 タンクメーカー、自動車機器メーカーおよび材料メーカーなど 16 社が参加する「車載用高圧水素適合性高分子材料検討ワーキンググループ」を「一般社団法人日本ゴム協会水素機器用エラストマー材料研

究分科会」内に設置した。これまで4回のワーキンググループ会議を実施し、水素貯蔵システムの低コスト化に必要な樹脂材料開発の方向性について検討を行い、対象とする高分子材料および計測すべきデータについて議論し、決定した。また、得られたデータ、知見について共有した。

水素貯蔵システムに適用する樹脂材料に対する要求特性を整理し、必要となる特性のデータの取得を目的として、「水素利用技術研究開発事業」にて作成し、現在「超高圧水素インフラ本格普及事業」にて拡充を進めている「水素機器用ゴム・樹脂材料水素特性データベース」に収載された水素特性データを整理し、相関を検討すべき物性および対象となる材料を明確化した。前述のワーキンググループでの議論を踏まえ、計測すべき高分子材料40種、高密度ポリエチレン（HDPE）、低密度ポリエチレン（LDPE）、超高分子量ポリエチレン（UHMWPE）等ポリエチレン（PE）系材料、ポリプロピレン（PP）、ポリアミド6（PA6）、ポリアミド11（PA11）、ポリアミド12（PA12）、半芳香族系ポリアミド（PA9T）、ポリイミド（PI）、ポリエーテルエーテルケトン（PEEK）、ポリフッ化ビニリデン（PEVD）、ポリパーフルオロアルコキシアルカン（PFA）などを選定し、計測した結果について、データベースとしてまとめた。

選定した材料に関して、高圧水素曝露試験による水素侵入量測定、拡散係数測定の結果、および既存データを整理し、データベースの構築を開始した。また、極低温陽電子寿命測定、示差走査熱量測定、X線回折を用いて、選定した材料について自由体積、結晶化度、材料の成形加工条件決定に必要な熱特性の計測を実施した。

2021年10月、自動車メーカーより次世代タイプ4タンクの設計について提示があり、タイプ4タンクライナー材についての目標値が示された。水素透過係数については、タンクの設計、特にタンクの径により異なる要求値が設定されている。径300mm程度の中径および800mm程度の大径のタイプ4タンクライナー材についてはライナー厚2mm程度が想定されており、55℃における水素透過係数 1.05×10^{-10} [$\text{cm}^3(\text{STP}) \cdot \text{cm} / (\text{cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{cmHg})$]以下、-70℃における降伏点伸度10%以上が示された。また、径100mm程度の小径タンクはライナー厚0.5mm程度を想定し、55℃における水素透過係数 0.15×10^{-10} [$\text{cm}^3(\text{STP}) \cdot \text{cm} / (\text{cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{cmHg})$]以下、-70℃における降伏点伸度10%以上が示された。これらの目標値に対してこれまでに取得してきたデータの整理および変性材の位置付けを検討した。

サブテーマ（2）ポリマーアロイ・ブレンド技術、架橋技術の位置付け評価

サブテーマ（1）の計測結果に基づいて作成されたデータベースを基準となるデータとして、ポリマーアロイ・ブレンド技術、架橋技術などを用いた汎用樹脂の変性による水素透過特性と各種樹脂物性への影響を検討するために選定した4種の材料、HDPE2種、LDPEおよびPA11について、放射線照射による架橋導入に関する予備的な検討を実施した。照射量は10、25、50、100、500、1000kGyとした。照射後の材料についてゲル分率の測定を実施し、放射線照射による架橋の生成を確認した。

得られた放射線照射による変性高分子材料は、90MPaまでの高圧水素に曝露した。変性高分子材料の高圧水素曝露後の水素侵入量および拡散係数は、水素曝露後の昇温脱離ガス分析法により測定した。水素曝露後の変性高分子材料の光透過による損傷分析も実施した。1000kGy照射したHDPEおよびLDPEの水素拡散係数は、未照射の材料の水素拡散係数と比べ10%減少した。これに対して、PA11に放射線照射を行った変性高分子材料は高照射量での変性材について拡散係数の上昇、水素侵入量の低下が見られたものの、水素侵入量、拡散係数に対する明確な影響は見られなかった。放射線を照射したPEの水素拡散係数の低下は、光透過による損傷分析の結果との相関が見られた。また、陽電子消滅法によりこれらの変性材料について自由体積測定を行った結果、HDPEおよ

び LDPE 放射線照射変性材は照射量が大い場合に自由体積が低下するのに対して PA11 放射線照射変性材は自由体積がほぼ一定となり、照射量の影響が小さいことが判明した。これらの結果は、変性材料の放射線照射により生成した架橋点による架橋点間分子量、水素侵入量、拡散係数として計測された水素透過特性と相関する可能性があることが示唆された。

これらの予備的な結果に基づいて、データベース用の汎用高分子材料を変性する際の放射線照射条件は、PE 系材料について、10、100 および 1000kGy、PA11 については 300 または 500、1000、2500 kGy と決定し、放射線照射を実施した。この結果、1000 kGy を照射した HDPE および LDPE の 90MPa での水素透過係数および拡散係数は未照射材に比べ 10%減少した。放射線照射により変性したポリマーの水素透過係数と拡散係数の低下は、陽電子消滅法により測定した自由体積測定と相関することが確認された。

PA11 に HDPE をブレンドしたモデルポリマーブレンド系を設定し、90MPa 水素による透過特性評価、減圧時の損傷評価試験を行った。PA11/HDPE モデルブレンド材料は PA11 に比べ、若干の水素侵入量・拡散係数の低下が認められた。また、相容化剤の添加により高圧水素曝露後の損傷の低減が確認され、高圧水素耐性の向上および降伏点伸度の改善が可能であることも判明した。また、ブレンド材を 90 MPa 水素曝露した際、ブレンドにより形成されたモルフォロジーの界面において剥離が発生することが確認された。ブレンド材の水素曝露後のクラック発生状況を光透過法により確認した結果、試験片内部に発生したクラックの散乱による光透過率の低下が大きく、ブレンド材の課題として、形成されたモルフォロジーの界面におけるクラック生成の抑制が必要であることが判明した。このため、PA11/HDPE ブレンド材に放射線照射を実施した結果、モルフォロジー界面の剥離が抑制されることを見出され、ブレンド材の高圧水素耐性向上に資することが判明した。以上の結果をデータベースとしてまとめ、車載用高圧水素適合性高分子材料検討ワーキンググループを通じて関係者と共有した。

図 1 にデータベース収載データについて、30℃における水素透過係数と-70℃における降伏伸びをプロットした結果を示す。丸のプロットが透過法による結果、菱形のプロットが TDA 法による結果を示す。縦軸に示す-70℃の降伏伸びについては透過法、TDA 法のデータとも同じ値が示されている。左上に赤で示す領域が本プロジェクトの目標値を満足する領域であるが、これまで評価した汎用樹脂材料および PA11、HDPE、LDPE をモデル材料として実施した放射線照射、ポリマーブレンドとも目標値を満足する

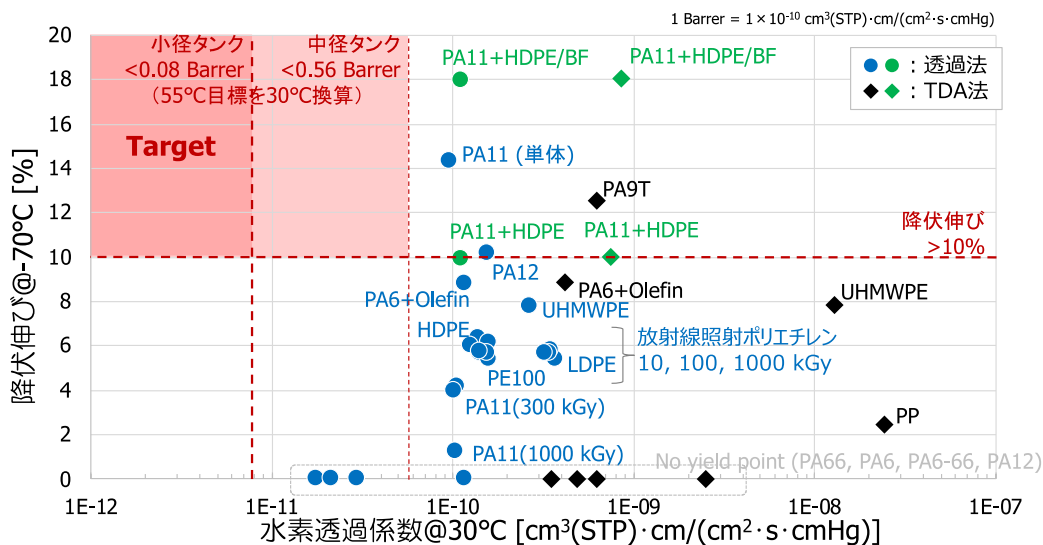


図 1 データベース収載樹脂材料の 30℃における水素透過係数と-70℃における降伏伸びの相関

変性材は得られていない。水素透過特性に対する放射線照射の効果は 10%程度であり、これまで評価した汎用の樹脂材料の水素透過特性を小径タンクライナー材の目標値のレベルまで大幅に向上させることはできなかった。放射線照射、ブレンドによる変性材の評価結果から、大径タイプ 4 タンクライナー材の降伏点伸度および水素透過係数の目標値に対して、PA11 の 2 種が有望な材料であることが判明した。PA11 の放射線照射、フィラーの配合等による改善により達成する可能性があることが判明した。また、PA11 のブレンドによる降伏伸びの改善の可能性も示唆されており、中径タンク用候補材として検討を進めることとした。小径タイプ 4 タンクライナー材について、水素透過係数の目標値を達成する可能性がある低水素透過性樹脂材料について、文献調査と機械学習分析を行った。低水素透過性材料としてエチレンビニルアルコール共重合体 (EVOH) 、ポリケトン (POK) およびそれらのブレンド材料を選定した。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

データベース収載材として選定されたモデル材の範囲では PA11、PA9T、PA12 等低温降伏伸びの目標値 10%を超える材料が見出された。これらの軟質ポリアミド系材料は低温降伏伸び 10%以上となるものの水素透過係数が目標値より 1 桁大きい。軟質ポリアミド系材料の水素透過係数低減の可能性を探索する。例えば、フィラーの添加などの方法で高圧水素透過特性を抑制する可能性について検討する。

小径タンクの目標値として設定されている水素透過係数目標値 0.15 Barrer (55℃)に対して、最も小さい水素透過係数を示す PA11、HDPE においても、およそ 1 桁大きい。これらの結果から、提示された水素透過係数を達成可能な樹脂系の選定が必要となった。文献データを教師データとする AI を用いた探索を実施した結果選定された EVOH 系材料および POK 系材料が選定された。しかしながら、これらの高圧水素透過に関する基礎データは調べられていない。これらについてデータ取得し、データベースの拡充が必要である。しかしながら、OEM 提案による極めて低い水素透過係数目標値を測定するためには 1 検体あたりの水素透過係数計測時間が 200~300 時間程度必要になり、計測設備の増強または樹脂材料のスクリーニングのための代替特性の検討が必要となるが、本プロジェクトにおいては実施できない。また、POK、EVOH は降伏伸びが 3~5%程度と想定され、ブレンド・放射線照射等の変性技術により降伏伸び 10%を超える材料を探索が必要である。これらの状況を踏まえ、EVOH 系・POK 系材料探索において、設計したブレンド系材料の水素透過係数を作成した AI モデルで予測し、水素透過係数が 0.15 Barrer を超えない範囲のブレンド材を選定する。これらの選定材の評価結果に基づいて、低温降伏伸びについても AI 解析を実施し、低温降伏伸びおよび水素透過特性を両立する樹脂材料系設計ツールとしての活用を検討する。

水素透過係数が小さい材料について、ブレンドにより降伏伸びの改善を図った場合、ブレンド材の課題である高圧水素曝露時の界面剥離、クラックの発生などについては放射線照射による変性が有効であることが判明している。EVOH 系・POK 系材料に対する適用を検討する。

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について

一般社団法人日本ゴム協会に設置された「水素機器用エラストマー材料研究分科会」において、水素ステーション等の水素インフラに使用されるバルブ、緊急離脱カップリング、高圧水素ホースなどに使用される 90 MPa クラスの高圧水素バリア材、シール材として使用されるゴム、樹脂材料の高圧水素特性評価結果など研究開発に関する関連企業との情報交換を実施している。当該分科会には本提案で対象とするタイプ 4 タンクライナー材、高圧水素機器用シール材に関するステークホルダーである素材メー

カー、部材メーカー、機器メーカー約 50 社が参加している。車載機器への展開を目指す社も参加しており、車載用の高圧水素機器として使用される前提で素材メーカー、部材メーカー、機器メーカーと情報共有しながら具体的な開発を展開できる素地があり、現段階で製作・実施に関する想定される制約はない。

本提案の実施により策定された材料設計指針に基づいて材料メーカーにおいて開発されたタイプ 4 タンクライナー材、高圧水素機器用シール材は、それぞれのタイプ 4 タンクメーカーや高圧水素機器メーカーに向けて販売されることが想定される。これらの開発材を用いたタイプ 4 タンク、高圧水素機器は、最終的に車載機器として FCV への搭載を目指して開発を進める予定である。素材開発段階、機器開発段階それぞれのフェーズの開発に際して、作成したデータベースおよび評価法が活用されることが考えられる。

(2) 成果の実用化・事業化に向けた見通しについて

本提案では、2030～2040 年ごろに上市される FCV への搭載を目指し、車載用高圧水素タンク、バルブ等の高圧水素機器のシール部材として適用される高分子材料を開発するための材料設計指針を提案するものである。このため、5 年間で想定する本提案の研究期間の後半では材料を絞り込んだうえで企業と連携し、検討を進める材料設計指針に基づく材料開発を進め、研究期間終了後、本提案の成果として策定された開発方針を活用し、具体的な開発を進める際には、関係する企業、機関と協議の上、共同研究開発、あるいは守秘契約などにより必要な体制を構築して推進する予定である。

2030～2040 年ごろに上市される FCV に搭載される高圧水素タンク、各種高圧水素機器への適用を目指した材料開発を、各開発フェーズに応じて材料メーカー、機器メーカー、車両メーカーと連携の上進める予定である。

5. 特許・研究発表等

— 特許等 —

なし

— 研究発表・講演、文献等、その他 —

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021 年 3 月	第 1 2 回日本 複合材料会議 (JCCM12)	車載機器用高圧水素適合性高分子材料	西村伸
2	2022 年 9 月	第 70 回高分子 子討論会	耐高圧水素材料の開発を目指した放射線架橋によるポリエチレンの改質	藤原広匡, 澁谷光夫, 西村伸, 出崎亮, 廣木彰博, 長谷川伸, 前川康成, 竹下宏樹, 徳光勝久
3	2021 年 9 月	第 70 回高分子 子討論会	放射線架橋ポリエチレンの高圧水素特性	出崎亮, 藤原広匡, 廣木彰博, 長谷川伸, 澁谷光夫, 竹下宏樹, 前川康成, 徳光勝久, 西村伸
4	2021 年 10 月	第 6 2 回高圧 討論会 (主 催: 高圧学 会)	圧力加減速度制御システムを使用して評価した高圧水素に曝された樹脂の破壊挙動	藤原広匡, 小野皓章, 西村伸

5	2021年 12月	QST 高崎フェスタ 2021	量子ビームを利用した水素適合性高分子材料の開発	出崎亮, 廣木章博, 長谷川伸, 前川康成, 藤原広匡, 澁谷光夫, 西村伸, 竹下宏樹, 徳光勝久
6	2022年 3月	QST Takasaki Annual Report 2020	Modification of polymeric materials by quantum beam irradiation	出崎亮, 廣木彰博, 長谷川伸, 前川康成

課題番号（管理番号）：HS04

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／移動式FC用水素源アンモニアボランの社会実装に向けた先端技術開発」

実施者：琉球大学、ハイドラボ株式会社、崇城大学、株式会社ピューズ（2022年6月末まで）、I-PEX（2022年7月から）、昭和飛行機工業株式会社（2022年7月から）

期間：2020年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

本事業はこれから到来するであろう移動式1kW級FC給電機に不可欠な水素タンクについて、2030年以降の更なるFCシステムの低コスト・高性能・高耐久化に貢献する。具体的には、高密度水素貯蔵材料であるアンモニアボラン（ NH_3BH_3 ）を水素源とした水素供給タンクの製品化とアンモニアボランのサプライチェーン構築に必要な不可欠な以下の技術開発を行う。

- ・10円/gで供給能が10kg/日以上アンモニアボラン（純度90%以上）合成法開発
- ・17L/minの流量を安定供給する熱分解・加水分解技術を用いた水素発生容器
- ・大量輸送技術および輸送容器

製品のターゲットは法律やスペース・重量の問題で高圧水素タンクや水素吸蔵合金が使いがたい場所や長期保存が必要となる緊急時・災害時利用などの市場を想定している。将来的には本事業の成果を足掛かりに、小型・大型へ技術を応用するとともに、化成品（還元剤、半導体）など水素貯蔵以外にもアンモニアボランのマーケットを広げ、大量生産を可能とする。これにより他の新産業振興・活性化も促進し、結果的にアンモニアボラン価格（＝水素価格）を下げることに繋がる。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

○最終目標

①アンモニアボラン合成技術

- 10kg/日で製造した場合、原価10円/gとなる合成法の確立
- 純度90%以上・10kg/日で製造可能な低コストシステムの確立

根拠：市販乾電池程度のエネルギー単価と同等にす。従来法では1万トン/年生産すれば約1円/gにできると試算しているが、短期的にはそこまでの需要は見込めないため、やや価格を上げている。

位置づけ：試薬が2000円強/gなので、まずはその価格を大幅に下げれば現在進められている化成品利用の研究開発が進むことが期待される。高圧を必要としない水素エネルギー利用という点で他社との差別化が得られており、利用方法の選択肢を広げる位置づけとなっている。それゆえドローンや災害対策等高付加価値の市場であれば、ある程度競争力が得られる可能性があり、現在複数の企業から問い合わせが来ているため、潜在的なニーズは現状でも多数存在すると考えられる。

②加水分解・熱分解技術

- 熱分解・加水分解共に放出水素中のアンモニア濃度が常時0.1ppm以下
- 熱分解の水素放出量が60℃以下・1時間で7質量%以上
- 1kWh分の加水分解型水素発生容器を7.5L・10kg以下となる技術の確立
- 熱分解技術で水素圧82MPa以上を達成

v) 定格 17 L/MIN の水素流量を 1 時間安定的に供給可能な水素発生システム確立と実際の用途に応じた性能を有するシステム構築

根拠： i) アンモニア濃度は FCV 用水素の規格 (ISO/TS14687-2) によって 0.1ppm と定められている。ii) 熱分解の 7 質量%以上は容器等込みで高圧水素の 5 質量%以上とするためである。iii) 加水分解の体積・重量は人が持ち運べる程度に設定している。ただしこれは最低限の仕様であり、実際に関心を持つ企業の FC 製品へ搭載する場合は更にコンパクトな仕様で製品化を行う予定である。iv) 水素圧 82 MPa は水素ステーションの供給圧と同等で、移動式水素ステーションへの利用を狙っているためである。v) 1 kW 級 FC の多くは要求される水素流量が最大 12 L/MIN 程度であるが、余裕をもって 17 L/MIN とする。

位置づけ：現状の製品（高圧タンク）と競争力を持たせるための製品化へ最低限必要な仕様であるため、ユーザー企業からの要求（特に水素密度）はより高い性能となっている場合もある。加水分解の一部の技術や熱分解は事業終了後も開発を継続する必要があるが、上記目標が達成できれば事業終了後の研究開発でユーザー企業の要求を満たせる仕様を達成できると考えている。

③リサイクル技術（熱分解・加水分解の水素放出残渣の再生技術）

- i) 加水分解後の生成物から廃棄物等を用いてアンモニアボランに戻す（再生）技術の確立
- ii) 熱分解の再生技術確立と 10%の低コスト化

根拠： i) 加水分解後の試料はホウ酸になるため、 NaBH_4 をこれから合成し、通常のアンモニアボラン合成ラインに乗せることができれば新たなプラント製造がほぼ不要となり、低コスト化につながる。また廃棄物を利用すれば更にコストが下がるため。ii) 熱分解の再生技術は未確立であるため、まずは再生技術を確立し、低コスト化の道筋を立てることが必要であるため。

位置づけ： i) 加水分解の再生は、アンモニアボランの原料である NaBH_4 調達元と想定している企業との連携を考慮しており、同企業との協議の上現実的な再生ラインを構築していくこととなる。上記はそのために必要な技術となる。ii) アンモニアボラン単体の熱分解物質を再生するにはアンモニアとヒドラジンが必要である。ヒドラジンは高価であるため、これの利用を少なくするか、使用しない方法を確立することで安価にできると考えている。また、想定する熱分解反応はイオン液体などを混合しているため、これらを分離・再生する工程も必要であることから、これを確立・簡略化することも必要となっている。

④輸送技術（品質保証・安全性の検証および法令関係への対応含む）

- i) 着火試験・生物毒性など未解明の主要基礎物性を解明
- ii) 3 年の経時変化で劣化（分解）率 10%以下となる固体・水溶液両方の保存方法の確立
- iii) 大量・高密度輸送技術および輸送容器の開発

根拠：製品化した場合、安全データシート（MSDS）や取扱いのガイドラインなどを設定する必要があるため。また、品質保証や輸送のためのデータが必要であるため。

位置づけ：上記を達成することで、消費者や取扱い業者への情報提供が可能となる。

○中間目標（2022 年度 6 月末）

①アンモニアボラン低コスト合成法の研究開発

目標：10 kg/日で製造した場合、原価 10 円/g となる合成法の確立

②加水分解・熱分解技術の研究開発

②-1：アンモニア放出抑制技術の開発

目標：放出水素中のアンモニア濃度が常時 0.1ppm 以下

②-2：熱分解速度向上技術の開発

目標：熱分解の水素放出量が 60℃以下・1 時間で 7 質量%以上

②-3：流量安定化技術の開発

目標：一定流量の水素を 1 時間安定的に供給可能なシステムの確立

③アンモニアボランリサイクル技術の研究開発

目標：加水分解後の生成物から廃棄物を用いてアンモニアボランに戻す技術の確立

④：アンモニアボラン輸送技術の研究開発

目標：着火試験・生物毒性など未解明の主要基礎物性の明確化

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
(1) アンモニアボラン低コスト合成法の研究開発	10 kg/日で製造した場合、原価 10 円/g となる合成法の確立	バッチ式の連続工程を採用した小型合成装置にてコストを試算。材料代、変動費の低減により目標達成の可能性あり	◎	電気代等の変動費を低減する為の方式・材料に対する技術開発。大量合成での純度・収率に対する問題点への措置。
(2-1) アンモニア放出抑制技術の開発	アンモニア放出濃度常時 0.1ppm 以下	<ul style="list-style-type: none"> ・加水分解（触媒）：水素中のアンモニア濃度を 1000ppm 以上からアンモニアボラン水溶液への pH 緩衝剤添加で 2ppm 以下に抑制した。高濃度でも 16%から 80ppm まで低減した。 ・加水分解（犠牲試薬）：試料混合方法・比率を検討し、安定的に 0.1ppm 以下となった。 熱分解：アンモニア濃度が毎回異なる（260～1000ppm 以上）ため、アンモニア生成メカニズムを解明している段階である。 ※上記はアンモニア除去フィルターを用いれば達成可 	△	<ul style="list-style-type: none"> ・加水分解（触媒）：アンモニアボラン水溶液に添加する pH 緩衝剤やフィルター剤によりシステム全体の重量が増加するため、添加剤の種類や割合を最適化し、軽量化を図る。 ・加水分解（犠牲試薬）：初期のアンモニア放出を抑える技術の確立が必要 ・熱分解：アンモニア放出メカニズム解明を行い、対策を立てる必要がある。

(2-2) 熱分解速度向上技術の開発	60℃以下・1時間で7質量%以上	LiH：イオン液体：アンモニアボラン = 250：250：1（モル比）で11質量%以上を達成	◎	水素放出速度制御技術、アンモニア濃度低減技術、システム化、リサイクル
(2-3) 流量安定化技術の開発	水素一定流量を1時間安定的に供給可能なシステムの確立	犠牲試薬（クエン酸）を用いたAB加水分解のシステムの検討とシミュレーションモデルの構築	○	・検討したシステムの原理試作機の製作と実験・シミュレーションモデルとの結果の比較 ・安定供給に必要なパラメータの検討 ・システムの簡略化の検討
(3) アンモニアボランリサイクル技術の研究開発	加水分解後の生成物から廃棄物を用いてアンモニアボランに戻す技術の確立	加水分解の水素放出後に生成するホウ酸からある条件でNaOHを混合することで処理工程を1つ短縮に成功	○	犠牲試薬および緩衝剤とホウ酸を分離
(4) アンモニアボラン輸送技術の研究開発	着火試験・生物毒性など未解明の主要基礎物性の明確化	・固体、アンモニア・水に溶解した状態でのアンモニアボランの基礎物性（溶解度、比重、長期保存性）を解明 ・アンモニアボラン水溶液の毒性、着火性、を解明 ・アンモニアボラン水溶液への浸漬試験での耐腐食材料の選定	○	長期保存・大量輸送に向けた技術開発 大量輸送用の容器開発

3.2 研究開発の詳細

(1) アンモニアボラン低コスト合成法の研究開発

新規低コスト合成法として水中でAB合成に成功した（特願 2022-030533）が、最高収率 16%にとどまった。その他複数の検討し、既報合成法の改良が最も低コストと試算された。更に 10g スケールのバッチ式小型連続工程の合成装置で大量製造時のコスト評価を行った（図 1 左）。今回の製造方法で乾固法の最適化、水素化ホウ素ナトリウム(SBH：NaBH₄)のリサイクル品導入等により原価 10 円/g の合成が可能となる事が確認された（図 1 右）。また、AB の販路拡大やメカニズム解明のために必要な重水素化物である ND₃BH₃ や ND₃BD₃ 合成技術を獲得した。特に ND₃BH₃ は簡便な方法で D 置換率 84.6%を達成した。ND₃BH₃ については、ハイドロラボから発売開始した。

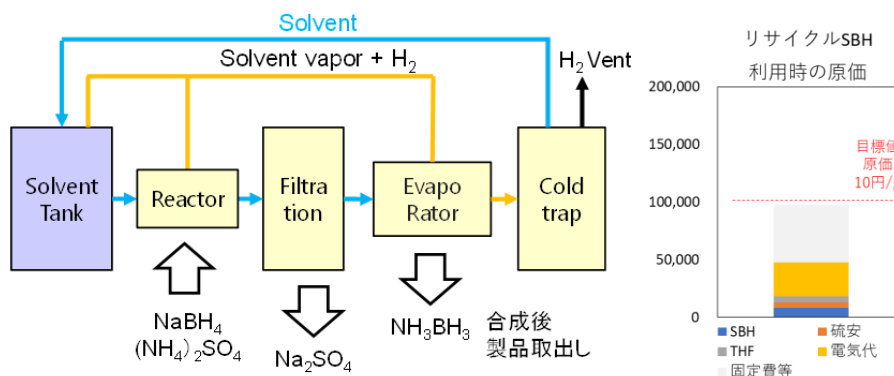


図 1. (左) 10g スケール アンモニアボラン小型合成装置、(右) 大量合成時の予想原価

(2) 加水分解・熱分解技術の研究開発

(2-1) アンモニア放出抑制技術の開発

・加水分解反応（触媒）：

アンモニアボラン水溶液に pH 緩衝剤を添加することにより、加水分解反応時に放出される水素中のアンモニア濃度が劇的に低減されることを見出した（特願 2022-17569）。放出されるアンモニアの濃度は、アンモニアボラン水溶液の濃度が高くなる程上昇する傾向にあり、pH 緩衝剤を添加していない場合においては、反応開始時のアンモニア濃度が高く、かつ反応時間の経過に伴ってアンモニア濃度がさらに上昇し続けることが分かった。一方で、pH 緩衝剤を添加した場合においては、アンモニア濃度が常に低く一定に保たれることを見出した。飽和濃度（10 mol/L）のアンモニアボラン水溶液において、触媒を用いて加水分解反応を行うと、pH 緩衝剤無添加の場合、水素中のアンモニア濃度が 16%（160000ppm）以上であるのに対し、pH 酸緩衝剤を添加した場合は、80 ppm 程度にまで低減されることが分かった。ただしアンモニアボラン濃度 3 mol/L 程度では緩衝剤無しの場合は 1000ppm 以上に対し、緩衝剤ありの場合は 2ppm 以下になった。

アンモニアボラン水溶液と触媒が入った容器をアンモニア除去フィルター（吸着剤）に接続し、フィルターを通過した後の水素中のアンモニア濃度を pH 緩衝剤添加の有無で比較した結果、pH 緩衝剤が無い場合では 3 ppm 程度のアンモニアが残存するのに対して、pH 緩衝剤を添加した場合はアンモニアが全く検出されなかったことから、目標値（0.1 ppm 以下）を達成できたことが分かった。pH 緩衝剤を添加しない、すなわちアンモニア除去フィルターのみでアンモニアを除去する場合は、アンモニア濃度を 0.1 ppm 以下にするのは現状技術では困難であるため、フィルターユニットの大容量化や、長いフィルター長（フィルター剤と生成ガスの接触距離）が必要になると考えられる。フィルターユニットの大型化はシステム全体の重量増加や大容量化につながるだけでなく、フィルター部分で圧力損失を生むため、水素供給速度の低下を招くため好ましくない。一方で、アンモニアボラン水溶液に pH 緩衝剤を添加することで、アンモニア放出濃度が常に低く一定に保たれるため、アンモニア除去フィルターとの併用により容易に目標値（0.1 ppm 以下）を達成でき、フィルター部分の小型化・長寿命化、水素供給速度の維持が見込まれる。また、フィルター剤が失活した場合において、燃料電池ユニットが高濃度のアンモニアに暴露されるのを防ぐことができるため、発電ユニットの保守管理面においてもメリットがあると考えられる。

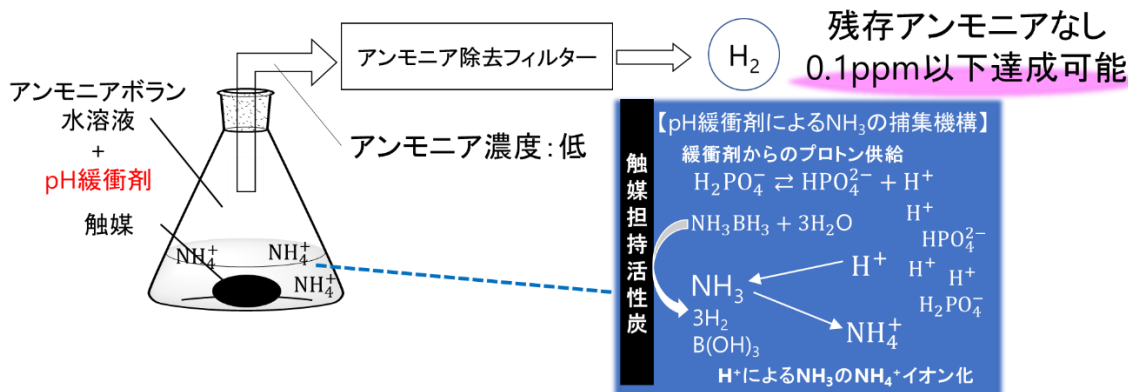


図 2. pH 緩衝剤とフィルターを併用した触媒型加水分解の概要

・加水分解（犠牲試薬）

クエン酸による犠牲試薬型を検討し、アンモニアボランとクエン酸および水のモル比を 1:2:100 に固定し、混合形態を変えて水素放出速度およびアンモニア濃度を定量した。いずれの場合もアンモニア検知管を用いて水素放出後にアンモニア濃度を測定した。アンモニア濃度は全て 1 ppm 以下であり、特にクエン酸が固体の場合は検知管の検出限界（0.02ppm）以下

となった（表 1）。ただし上記はクエン酸とアンモニアボランの飽和溶液に近い濃度となるよう水の量を調整していたため重量水素密度が低い。更に重量水素密度を高めるため AB の飽和水溶液をクエン酸固体に投入したところ、水素放出後のアンモニア濃度が検知管の検出限界以下であった。繰り返し実験でも再現性が得られており、安定してアンモニア濃度 0.1ppm 以下を達成した。この結果は水素放出開始から終了までの平均濃度であるため、常時 0.1ppm は確かめられていない。しかし上記技術を用いた燃料電池での発電およびスマートフォン充電実験は成功しているため、十分に低いアンモニア濃度であると考えられる。加えてシステムは蓄圧型を想定しているため、現状でも問題は無いが、アンモニア連続定量測定によりアンモニア放出濃度の経時変化を追う予定である。

表 1. 犠牲試薬型加水分解の NH_3 濃度

方法	アンモニア濃度(ppm)
混合粉末に水投入	0.34
AB固体にクエン酸水溶液投入	0.26
クエン酸固体にAB水溶液投入	<0.02
クエン酸溶液にAB溶液を投入	0.38

・熱分解

アンモニアボランの熱分解における水素中のアンモニア濃度は約 25000ppm である (T. Nakagawa, et al., RSC Adv. 4 (2013) 609-614.)。これまでわれわれは水素化リチウム (LiH) : アンモニアボラン (AB) : イオン液体 (IL) の混合により水素放出速度を飛躍的に向上させ、60 °C・1 時間で 5.5 質量%の水素を放出させることに成功した。その際に用いた比率 LiH : AB : EmimCl=9 : 9 : 1 の熱分解 (EmimCl= 1-ethyl-3-methylimidazolium chloride) では、アンモニア濃度が 200ppm まで低減された。しかし ISO 規格で定められた燃料電池のアンモニア許容濃度は 0.1ppm であるため、更なる改善として LiH がアンモニア吸収能を有すること (Miyaoka, et al., Int. J. Hydrogen Energy 40 (2015) 14911-14915.) から、LiH のモル比を 2 倍としたところ、3.8ppm まで低減されたが、更なる改善が必要となった。後述する LiH : AB : EmimCl=250 : 250 : 1 では毎回アンモニア濃度が異なり、多い場合は 1000ppm 以上を示す場合もあった。そのため現在はアンモニア放出メカニズム解明を行った上で改善する予定である。

(2-2) 熱分解速度向上技術の開発

上記のように LiH-AB-EmimCl の混合により 60 °C・1 時間で 5.5 質量%の水素を放出させることに成功したが、放出可能な水素を有していないイオン液体の重量が水素密度低下につながっているため、イオン液体の比率を減らすことで重量密度増加を図った。その結果、LiH:AB:EmimCl=250:250:1 で 11 質量%以上の水素を 60 °C・1 時間で放出することに成功した (図 3)。更なる解析により、上記反応は反応初期に激しい反応熱で 150 °C以上に達することで水素放出速度が促進されたことが明らかになった。そのため上記反応においては、反応熱を逃がさないための熱マネジメントや混合方法などが重要になると考えられる。

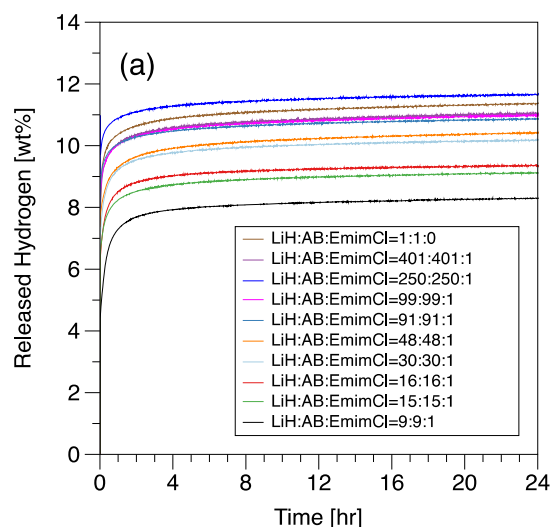


図 3. 犠牲試薬型加水分解の NH₃ 濃度

(2-3) 流量安定化技術の開発

アンモニアボランの水素発生において、アンモニアガス発生を低減が期待できる犠牲試薬を用いた加水分解方式にて、簡易なシステムの構築と、その動作に関するシミュレーションのできるモデルを構築した。今回検討したシステムは、反応における余剰生成物（ホウ酸、余剰水など）を輸送可能な容器に蓄えることができ、リサイクルを考慮した構成を特徴としている。図 4 に、システム構成の概略図を示す。

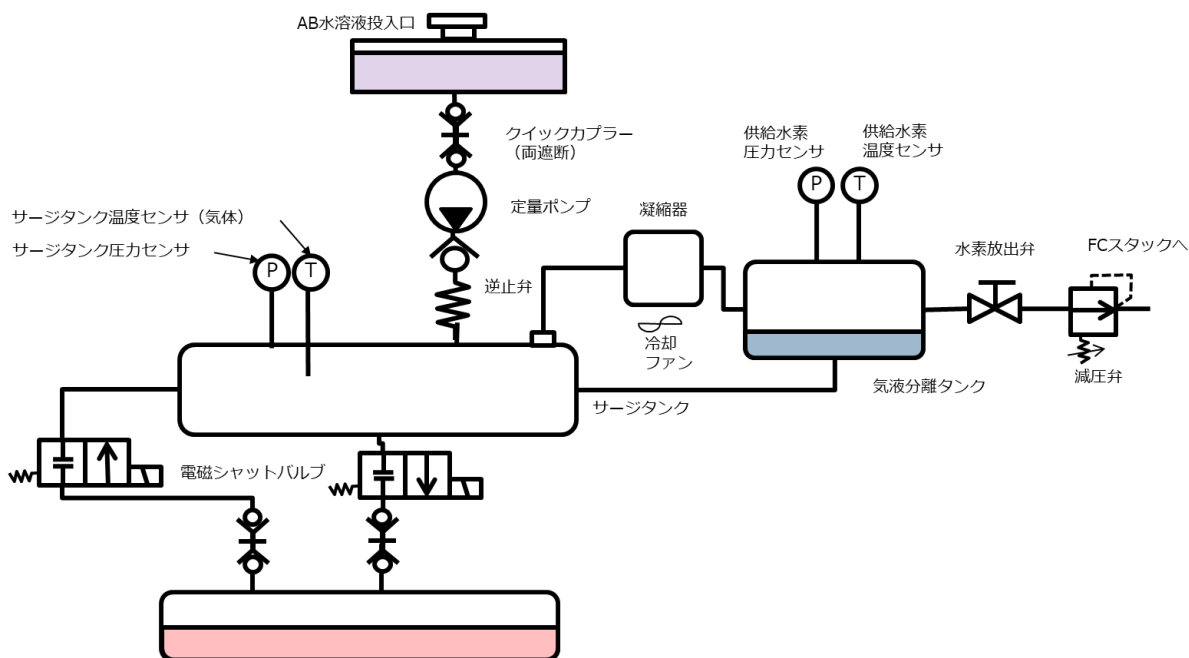


図 4 犠牲試薬を用いた加水分解方式のシステム構成図

水素発生シミュレーションモデルにおいては、前述のシステム構成図における各要素の容積や、アンモニアボラン水溶液の濃度や投入速度、水素消費速度などのパラメータを使用し、水素発生速度や各時点での生成物の積算量などが計算可能である。図 5 にシミュレーションの計算結果の一例を示す。

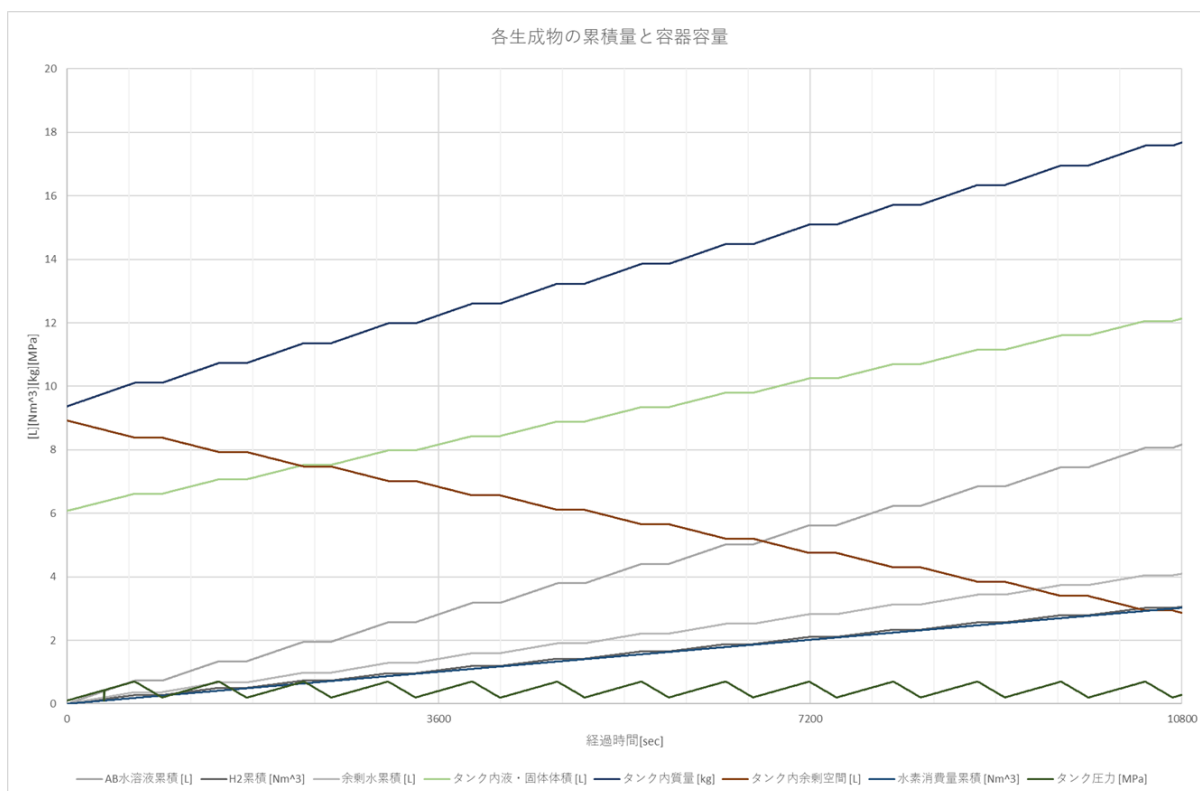
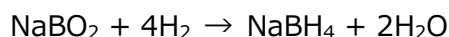
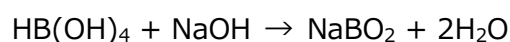


図5 犠牲試薬を用いた加水分解方式の水素発生シミュレーション結果

上記によりアンモニアボラン水溶液の投入速度に対する水素発生速度を把握できたため、今後は小型試作機を製作して問題点を把握・改良していく予定である。

(3) アンモニアボランリサイクル技術の研究開発

AB加水分解後の生成物はホウ酸が発生する。これをアンモニアボランの原料である NaBH_4 に戻すためには、以下のステップを踏む必要がある（ただし2段目の反応は還元剤を要する）。



使用済み燃料であるホウ酸溶液を乾燥せず NaOH を投入し、 $700\text{ }^\circ\text{C} \cdot 1$ 時間保持すると1段目の反応が進行したため1段工程を短縮できた。しかし高温で保持する必要があるためコスト増となることから、更なる改良を検討し、乾燥したホウ酸と NaOH をボールミリング処理することで NaBO_2 一水和物が、ホウ酸溶液に NaOH を投入し、 $100\text{ }^\circ\text{C}$ 以下で加温しながら真空脱水すると NaBO_2 二水和物が得られた。 NaBH_4 合成プラントには原料の脱水工程が含まれるため、上記で得られた試料は脱水工程から NaBH_4 製造ラインに投入でき、コスト低減に成功した。今後は加水分解後に pH 緩衝剤や犠牲試薬とホウ酸を分離する技術開発を行う。

(4) アンモニアボラン輸送技術の研究開発

(4-1) アンモニアボランの基礎物性測定

外注によりアンモニアボラン飽和水溶液の安全性試験を行ったところ、以下の結果が得られた。

- ・急性毒性試験（経口）：半数致死量（LD50）は 50 mg/kg 以下
- ・急性経皮毒性試験：LD50は 2g/kg 未満

- ・皮膚刺激性試験：皮膚に対して腐食性を有する（GHS 分類：区分 1）と判定
- ・眼刺激性試験：重篤な損傷性／眼への不可逆的作用を持つ（GHS 分類：区分 1）と判定
- ・Ames 試験（菌の培養）：陽性（発がん性の可能性あり）
- ・急性吸気毒性試験：GHS 区分 4 以下
- ・皮膚感作性試験：GHS 有害性区分（皮膚感作性）非該当

以上により毒物・発ガン性の可能性があるが、アンモニア水や NaBH₄ のような目や皮膚の刺激はあまり無く、体内に入らない限り危険性は低いと考えられる。

また、外注によりアンモニアボラン水溶液及び固体アンモニアボランについて引火点・発火点試験を行ったところ、アンモニアボラン水溶液の引火点測定温度が 56.5 °C、発火点測定温度が 129 °C であった（第 4 類第二石油類相当）。固体アンモニアボランは引火点測定温度 84.0 °C で可燃性固体（容器等級 II）に該当することがわかった。そのためアンモニアボランは固体・水溶液共に可燃物ではあるが危険物ではなく、NaBH₄ よりも安全性が高いと考えられる。さらに、アンモニアボラン水溶液についての基礎物性評価を行った。水への溶解エンタルピーは 17.1 kJ/mol と、塩化カリウム（17.22 kJ/mol）と同程度であった。また、水溶液の濃度別密度測定結果から、アンモニアボラン粉末の嵩密度が真密度の約 70% 以上であれば 1 mol/L のアンモニアボラン水溶液よりも、約 85% 以上では 2～8 mol/L のアンモニアボラン水溶液よりコンパクトに運搬できることがわかった。凝固点曲線と溶解度曲線、熱分析を行い、得られた結果をもとに状態図を作成したところ、アンモニアボランと水の共晶組成・温度が 2.75 mol/L、-5 °C であった。以上の結果を踏まえて、アンモニアボラン水溶液の取り扱いの指標の一部を策定することができた。

アンモニアボランについて、アンモニアへ溶解させた状態での密度、圧力等温線、粘度等の基礎物性測定を実施。エネルギーキャリアとしてのアンモニアボランの優位性を示した。

アンモニアボランは還元剤にも利用されるため、その水溶液は容器を腐食する可能性がある。そこでアンモニアボラン水溶液への材料浸漬試験を実施し、各種材料の使用可否判定表を作成した。このデータを基に、今後は水素発生および輸送容器の選定を行う。

(4-2)長期保存

固体アンモニアボランは解放・密閉容器に関わらず 1 年間全く劣化しなかった。0.1 mol/AB 水溶液は大気暴露容器、アルミ袋、市販プラスチック容器（複数）を用いて計 5 種類について最大 374 日間の純度の経時変化を調査した。大気暴露容器では 60 日目で純度低下が始まり、160 日目で純度 75% となった。一方、アルミ袋・市販プラスチック容器による密閉状態での保存では 90 日目までは純度低下は確認できず、374 日目で純度は 67～73% となった。また、8 mol/L AB 水溶液の加温中の保存試験を行った。30 °C では 24 時間で 0.009 当量の水素を放出し、40 °C では 24 時間で 0.09 当量の水素放出を確認した。この結果から、アンモニアボラン水溶液は 40 °C 以下で保存すべきと結論づけた。

アンモニアボラン-NH₃ 飽和溶液は密閉状態で 8 ヶ月まで保存し、90% 以上の純度を維持することを確認した。アンモニアボラン-NH₃ 飽和アンモニア溶液を 60 °C で保持した場合、3 時間までは純度 99% を維持していたが、その後アンモニアボランの減少に伴い分解物が増加した。ただし 2 週間でもごく微量しか生成しなかったため、60 °C においても 2 週間程度であれば十分保存可能であると考えられる。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) アンモニアボラン低コスト合成法の研究開発

大量製造用の合成装置については、最適化・効率化にてコストの低下、純度・収率の向上により目標達成を進める。特に大型化すると収率が下がる問題と、冷却トラップに電力を多く消費する問題がある

ため、コスト削減には乾燥方法を含めた各工程改良する必要がある。そのため、別途小型合成装置を製作し、溶媒や合成法全体を材料面での技術開発を行うことで解決を目指す。

(2) 加水分解・熱分解技術の研究開発

・加水分解反応（触媒）：水素中のアンモニア濃度を常時 0.1 ppm 以下に保ち、17 L/min 以上の速度で 1 時間以上安定的に水素を供給するため、水素供給ユニットの心臓部として多孔質なバルク体の触媒ユニットの開発を行う。2022 年度では、この触媒ユニットのプロトタイプを作製し、0.5 L/min での水素生成を目指す。2023 年度および 2024 年度において、それぞれ目標値を 1.0 L/min および 17 L/min に拡張し、スケールアップによるアンモニア放出量や水素生成ユニット全体の諸問題について検討する。また、アンモニアボランの加水分解反応によって生成するホウ酸が触媒の表面で析出し、反応を阻害することも懸念されるため、ホウ酸の析出挙動をコントロールする条件を検討する。

・加水分解（犠牲試薬）：現在最も製品化に近い水素放出方法であるため、昨年度までに検討したシミュレーション等の知見を用い、水素発生容器を製作・試運転して改良を行い、実際に 1 kW 級燃料電池を用いて発電実験を行う。一方でアンモニア濃度常時 0.1ppm 以下を検証するために連続ガス定量装置を導入してリアルタイム分析を行う。ただし現状クエン酸を用いた場合には体積密度・重量密度が高圧タンクに比べて若干不利であるため、引き続き軽い犠牲試薬や触媒との併用を検討する。

・熱分解：水素放出速度は目標値を大幅にクリアしたが、水素中のアンモニア濃度が著しく高い。そのため今後は高い水素密度を維持しつつアンモニア濃度を低減する技術の開発を行うとともに、実際の使用時に水素放出速度をコントロールする機構を考案する予定である。

(3) アンモニアボランリサイクル技術の研究開発

加水分解においては、水素放出後に pH 緩衝剤や犠牲試薬とホウ酸を分離する技術開発を行う。公知技術である程度解決できると考えているが、コスト効率を考慮して取捨選択していく。熱分解においてはイオン液体などアンモニアボラン以外の使用済み物質を分離し、再生する必要があるが、未確立である。そのためこれらの技術を確立し、より低コストのリサイクル技術を検討する。

(4) アンモニアボラン輸送技術の研究開発

これまでの事業で得られた成果より、大量輸送、長期保存が可能な方式を選定し、これ可能とする容器開発を進める。また、保存試験も継続し、3 年以上保存できる形態を模索する。固体が最も長期保存可能であるという結果があるため、粉体保存以外にもペレットなど形状を変化してコンパクトかつ簡便に輸送・保存できる方法を検討する。基礎物性（毒性・着火性・腐食性を含む）はこれまで得られたデータから取り扱いガイドラインや MSDS を作成し、ニーズ調査を行う過程でユーザーが必要とする基礎物性が新たに出れば、随時埋めていく予定である。

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

ある程度のアンモニアボランの製造が可能となった時点で、試薬での販売を開始すると同時に、社会への広報活動としてアンモニアボランを燃料とした小型発電機のデモ機を無料開放し、新たなエネルギー利用方式としてアンモニアボランの認知度を広める。事業終了後目標を達成した場合、大量合成プラントを導入するパートナー企業を探しつつ、当面はハイドラボにおいて燃料用アンモニアボランおよび水素発生装置（初期は犠牲試薬型）の販売を行う。本システムは高圧水素の発電システムとの差別化できるため、送電インフラがない場所への設置による電力供給事業、燃料、電力供給装置の一式を含めた高付加価値

値の市場へ向けたレンタル事業を展開していく。水素放出方法も加水分解の犠牲試薬型から触媒型（またはハイブリッド）、更には高密度である熱分解型へ徐々に換装（または共存）していく予定である。輸送容器も小型から大型へ展開し、アンモニアボランの需要が増えた場合に備えて大量輸送可能な体制を構築しておく。その他、試薬販売事業者への重水素に置き換えたアンモニアボラン（ ND_3BD_3 、 ND_3BH_3 、 NH_3BD_3 ）試薬の供給事業を展開する。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2022/3/1	特願 2022-030533	アンモニアボランの合成法	琉球大学
2	2022/6/20	特願 2022-17569	水素製造方法、水素製造装置、燃料電池及び発電システム	琉球大学

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2020.11	兵庫県立大学水素エネルギー共同センターシンポジウム 2019	アンモニアボランを水素源とした分散型電源開発の最前線	中川鉄水
2	2021.8	琉球大学公開講座	水素のチカラ	中川鉄水
3	2021.9	第 15 回水素若手研究会	アンモニアボラン水溶液の溶解度曲線と状態図	清水 吉大、中川 鉄水
4	2021.9	水素エネルギー利用拡大に向けた最新技術動向	分散型燃料電池システム水素源としてのアンモニアボラン	中川鉄水
5	2021.9	日本エネルギー学会「えねるみくす」特集記事	分散型電源の水素源としてのアンモニアボラン	中川 鉄水
6	2021.1	水素エネルギーシステム「若手研究者の声」	私にとっての水素貯蔵材料と TEM の世界	清水 吉大
7	2021.11	第 7 回水素化物に関わる次世代学術・応用展開研究会	アンモニアボラン水素放出時におけるアンモニア放出抑制法の開発	中川 鉄水
8	2021.11	第 7 回水素化物に関わる次世代学術・応用展開研究会	実用化に向けたアンモニアボラン溶液に関する基礎物性評価	清水 吉大
9	2021.11	第 41 回水素エネルギー協会大会	水素化リチウム-アンモニアボラン-イオン液体混合物の熱分解挙動と濃度依存性	清水 吉大
10	2022.1	沖縄県地球温暖化防止活動推進センター Zoom オンラインセミナー	次世代エネルギー「水素」の可能性について	中川 鉄水

11	2022.3	アンモニアボラン加水分解反応においてアンモニアの放出を抑制する反応場の検討 日本セラミックス協会 2022 年年会	アンモニアボラン加水分解反応においてアンモニアの放出を抑制する反応場の検討	高田大喜、井野川人姿
12	2022.3	日本化学会第 102 春季年会 (2022)	アンモニアボランの加水分解反応におけるアンモニア放出の抑制	井野川人姿、高田大喜
13	2022.6	23rd World Hydrogen Energy Conference	Evaluation of Basic Physical Properties of Ammonia Borane Stored in Liquid Ammonia	Fangqin Guo, Yufeng Wang, Tomoyuki Ichikawa, Hiroki Miyaoka, Yoshihiro Shimizu, Shuji Takamine, Tessui Nakagawa, Takayuki Ichikawa
14	2022.5	2022 年 TICC	Recent development of ammonia borane for fuel cell system	Tessui Nakagawa, Yoshihiro Shimizu, Shuji Takamine, Ko Kishimoto, Yuri Unten, Reiya Tamaki, Hina Shinjo, Ankit Kumar Tripathi,
15	2022.7	第 5 9 回化学関連支部合同九州大会	アンモニアボランの加水分解反応における pH 緩衝剤の添加効果	高田大喜、井野川人姿、前田笑伽
16	2022.9	日本金属学会 2022 年秋季(第 171 回)講演大会	The investigation of basic properties of ammonia borane-ammonia system	Fangqin Guo, Yufeng Wang, Tomoyuki Ichikawa, Hiroki Miyaoka, Yoshihiro Shimizu, Shuji Takamine, Tessui Nakagawa, Takayuki Ichikawa
17	2022.9	第 16 回水素若手研究会	触媒無添加アンモニアボラン水溶液の水素放出反応における速度論解析	清水 吉大、中川 鉄水

18	2022.9	第 16 回水素若手研究会	アンモニアボラン加水分解時におけるアンモニア放出速度の評価	宮城 愛征、清水 吉大、Ankit Kumar Tripathi、中川 鉄水
19	2020.10	第 1 回エコテックグランプリ (損保ジャパン賞)	軽量・小型・安定なアンモニアボランで水素社会へ!	中川 鉄水
20	2020.10	第 1 回エコテックグランプリ (三井化学賞)	軽量・小型・安定なアンモニアボランで水素社会へ!	中川 鉄水

課題番号（管理番号）：HS05

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／革新的低コスト燃料電池自動車用高圧水素容器の健全性を保証するための非破壊検査，オンラインモニタリング，損傷許容技術の開発」

実施者：国立大学法人東京工業大学、東京都公立大学法人東京都立大学、国立大学法人東北大学、国立大学法人東京大学、学校法人明治大学、国立研究開発法人物質・材料研究機構、国立大学法人 東海国立大学機構名古屋大学、国立大学法人東海国立大学機構岐阜大学

期間：2021年7月～2025年3月

1. 研究開発概要

本プロジェクトでは、燃料電池自動車用の高圧水素容器の低コスト化と長寿命化を目指し、接合技術および接合部の健全性保証技術と、コネクティッドカーでの高圧水素容器の利用を想定した容器の新しい健全性保証の考え方で行う非破壊検査、オンラインモニタリング技術および損傷許容技術の確立と、関連する国内規格のドラフト作成を目的とし、次に示す A から D のテーマに取り組む。

A: 高圧水素容器の炭素繊維使用量の低減に向けた、接合型容器の接合方法の確立
B: 高圧水素容器の炭素繊維使用量の低減と容器を 25 年を超えて使用可能とすることを目指した、損傷許容設計技術と非破壊検査技術を組み合わせた構造健全性保証の考え方の確立
C: 余寿命予測技術、容器が破裂する前に検知可能なオンラインモニタリングシステムの開発
D: 将来的に世界統一基準（GTR）に取り込みが可能な国内規格のドラフト（目次と項目）の開発

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

本研究プロジェクトは、上述した A～D の 4 つの項目の達成に向け、それぞれの参画機関がサブテーマを設けて取り組んでいる。各機関が設けているサブテーマ①～⑪の目標とその設定の根拠は、3. 研究開発の成果の中で示す。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
サブテーマ①非破壊検査とオンラインモニタリングに基づいた健全性保証を可能とする損傷許容高圧水素容器を実現するための要素技術	容器内部の応力状態を模擬可能な十字型試験片を使った簡易試験法の開発	十字型試験を行わずとも、実証すべき内容を検討可能な代替案を考案した。特定方向の応力が模擬できることを示した	△	代替案についての詳細の決定と、実験装置の作成と実証
	板厚の 10% の繊維が破断しても急速破壊しないような積層構成を考え、簡易試験法を使って実証	損傷許容となる積層構成を検討する方法を考案し、中間目標を十分に達成できる積層構成を見出した。実証試験については計画から遅れている	△	損傷許容だけではなく、NDT で検出しやすいように損傷を制御する方法を考案する。実証試験をする

	容器の円筒部の外表面から GFRP 層を介して超音波を伝搬させ、底面で反射した超音波を検出	加圧履歴のある容器については場所は限定されるものの、中間目標を達成するための超音波探傷方式を見出すことができた	○	すべての部位で安定して底面エコーを検出できるようにするとともに、層間剥離を検出できるようにする
②高圧水素複合圧力容器の非破壊検査および健全性保証に関する成果の国内規格のドラフト案策定	必要に応じて海外から関係者を招聘するなどし、必要情報を収集。関連規格の調査を完了	規格の調査は順調に進んでいる。海外の有識者の招聘案も具体化している	△	新型コロナウイルス感染症の流行（昨年度の海外有識者招聘予定は延期となり遅れている）
	定期的に会合を開いて国内規格について審議し、目次案の作成を完了	予定通りの頻度で会合を開催している。様々な視点から容器の健全性を保証する方式を議論した	△	国内規格の目次案の作成を進める
③余寿命予測技術、容器が破裂する前に検知可能なオンラインモニタリングシステム	余寿命予測に必要なエポキシ樹脂と CFRP の繊維直交方向の繰り返し荷重に対する S-N 線図を $N = 10^6$ 回分取得	エポキシ樹脂および CFRP の繊維直交方向の S-N 線図を取得中。得られた結果から一方向材の疲労寿命を横方向ひずみから予測する手法を検討中	○	模擬容器を用いた試験で妥当性検証
④容器内面の CFRP 層の健全性を保証するための渦電流試験法の開発	容器内面の CFRP 層の健全性を保証するための渦電流試験法の開発	ライナと同じ厚さの樹脂板を介して容器内側の CFRP の第 1 層の繊維の可視化に成功した	○	繊維破断は評価可能であるが、繊維配向の可視化の精度を向上させる
⑤運用中の過剰ひずみモニタリングのための埋込型ナノ複合材料センサ	設定したひずみに対して $\pm 20\%$ 以内の範囲のひずみで電気抵抗が大きくなる CNT センサの実現と実証	CNT ペーストセンサでは、厚さと濃度の調整で感度を制御でき、CNT プリプレグセンサでは、感度と再現性がさらに向上した	△	CNT プリプレグの濃度を調整することで、任意の設定ひずみに対して高い再現性で応答できるセンサを構築
⑥容器内面における CFRP の樹脂割れ密度および深さ方向分布の評価法	容器左右の口金間で、CFRP 容器を介して、超音波を 6dB 以上の SN 比で送受信	MIRAI 容器を縦に切断した試験片を用いて信号処理等を行わずに目標値である 6dB 以上の信号の送受信に成功した	◎	各種模擬損傷を試験体に導入し、受信した信号から損傷の有無を判定する方法を開発する
⑦容器のクリティカルな損傷蓄積を充填時に確実に検出する非破壊的手法	CFRP 積層板の特定層近傍まで欠陥が進展すると、埋め込んであるマーカー物質から AE が発生し、検	高ひずみで AE を多発させるマーカー材料を選定できた。マーカーを挟んだ部分がはく離する際に急激に AE が多数検出されはじめ	△	マーカー材料無し試験片との AE 発生量の比較、はく離面積と AE 発生量の相関などを求める。また、はく離以外

	知できることを実証	ることを確認した		の欠陥で調査する
⑧革新的低コスト容器を実現可能にする分割型高圧水素容器の要素技術	損傷が発生しても不安定破壊しない接合構造を提案するとともに、不安定破壊する前に NDT で検出	接合方式としてスカーフ継ぎ手を選択し、これにオーバーレイを施すことにより、十分な強度を有する接合方式を開発した	○	模擬容器を用いて接合容器の成立性を実証
	継手の一部に損傷がはいった場合の応力を計算可能にする。解析結果が、実験値に対し±20%以内に入るよう調整	接着剤と CFRP の損傷を考慮した数値解析手法を開発した。単純形状の試験片の実験値に対して±10%未満の誤差で強度予測できることを示した	○	模擬容器の試験により健全性の保証を実証
⑨CFRP およびプラスチックライナ接合状態の非破壊評価技術	ライナ接合部を模擬した試験片の接着状態を評価。完全未接着部が存在した場合に検出可能にする	プラスチックライナ接合試験片について、接合強度によってテラヘルツ波の偏光度に差がでることを明らかにした。CFRP については、測定を断念した	△	サンプル数が少ない。加えて、反射測定による評価法も確立する必要がある。
⑩分割型高圧水素容器の強度評価シミュレーション	分割型高圧水素容器（接合方式）の数値シミュレーション結果に基づき、構造最適化を行い、少なくとも1つの候補モデルを作成	分割型高圧水素容器構造の応力状態を模擬可能な有限要素モデルを作成し計算した結果、分割方式が成立しうる可能性を示した	○	接合部の強度向上手法の検討。容器の全体構造の損傷進展や健全性、破壊機序のシミュレート。模擬容器の実機試験による妥当性評価
⑪CFRP 層およびCFRP 接合部疲労破壊過程の解明と余寿命予測技術	CFRP スカーフ継手の疲労破壊過程を把握。スカーフ角度が疲労強度や疲労破壊機構に与える影響を把握	疲労寿命をスカーフ角度によらず予想するためのパラメータを見出した。継手表面のひずみ変化と疲労損傷の間に相関があることを示した	○	当て板など、接合部の強度向上を試みた継手の強度評価。内部疲労損傷の経時的変化を NDT を通して観察する

3.2 研究開発の詳細

(1) サブテーマ① 非破壊検査とオンラインモニタリングに基づいた健全性保証を可能とする損傷許容高圧水素容器を実現するための要素技術（担当：東京工業大学）

<目標とその設定根拠>

【2022 年度中間目標】：板厚の 10% の繊維が破断しても急速破壊しないような積層構成を簡易試験法で実証。容器の円筒部の外表面から超音波を伝搬させ、底面で反射した超音波を検出

【2024 年度最終目標】：損傷許容設計技術と非破壊検査技術を組み合わせた構造健全性保証の考え方

の確立

【設定根拠】：高圧水素容器の詳細検査法は世界的にみても確立しておらず、現状は、使用期間中の健全性を検査なしで保証できるように容器の安全率を大きくって設計しており、容器の高価格化に繋がっている。損傷が発生した場合にそれを検出・検知するための非破壊検査・モニタリング法と、損傷が検出・検知可能な寸法となるまで損傷を許容できる損傷許容設計技術を組み合わせた構造健全性保証の考え方が確立できれば、高圧水素容器の価格を大幅に下げることが可能になると考えた

<研究成果>

内圧を受ける任意の積層数および積層構成のCFRP製高圧水素圧力容器に対し、各層に生じる三次元応力分布を計算できる

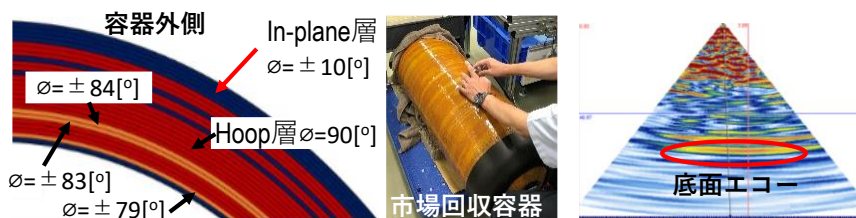


図1 損傷許容性を考えた積層構成 図2 市場回収容器の底面エコーを捉えた例

ようにした。また、この計算式を使用しながら、積層数一定の条件で、容器の損傷許容性を最大化する方法を開発し、実際に特定条件下での積層構成最適化を行った（図1）。高圧水素圧力容器の肉厚方向の超音波減衰率は一般的なCFRP板の減衰率よりも大きく、一般的な超音波探傷法は適用できないことを明らかにした。現状では測定可能な場所は限定されているものの、本研究で検討をしている特殊な超音波探傷方式を用いることにより、新品の容器だけではなく、市場から回収した使用済み容器（市場回収容器）も含めて、図2のように底面エコーを観察できるようになり、容器外表面から内部を検査できる可能性を示すことができた（図2）。

<意義>

容器の円筒部について、損傷が発生してもすぐには不安定破壊しない積層構成を検討できるようになった。また、不安定破壊する限界の破壊状態についても議論できるようになった。一般的な方法では不可能だった高圧水素容器外表面からの超音波探傷を実現できる可能性を示せた。

(2) サブテーマ② 国内規格のドラフト案策定（担当：全参加機関、取りまとめ：東京工業大学）

<目標とその設定根拠>

【2022年度中間目標】：海外の関連規格の情報収集と国内規格の目次案の作成を完了

【2024年度最終目標】：将来的に世界統一基準（GTR）に取り込みが可能な国内規格のドラフト（目次と項目）の開発

【設定根拠】：本研究プロジェクトで想定しているような、高圧水素複合圧力容器の健全性保証と非破壊検査に関わる規格は世界的に見ても存在しない。燃料電池自動車用の高圧水素容器は、各国の規格よりも上位規格となる世界統一基準（GTR）をベースとして設計・製造される。我が国の燃料電池技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立するために、将来的にGTRに取り込みが可能な国内規格を世界に先駆けて策定することが望ましい。本プロジェクトで規格のドラフト（目次と項目）を策定できれば、関連学協会にこれを提供することで、その後、学協会が規格・基準策定を円滑にすすめることができると考えた

<研究成果>

国内規格の目次案作成に向けた会合が予定通りの頻度で開催できた。非破壊検査分野の海外規格に関わっている海外の有識者をリストアップし、招聘に向けた協議を進めている。

<意義>

規格ドラフト策定拡大委員会の開催に向けた準備が進んだ。

(3) サブテーマ③ CFRP の余寿命予測法の開発（担当：東京都立大学）

<目標とその設定根拠>

【2022 年度中間目標】：余寿命予測に必要なエポキシ樹脂と CFRP の S-N 線図を $N = 10^6$ 回分取得

【2024 年度最終目標】：残存寿命（余寿命）の予測技術開発

【設定根拠】：非破壊検査で異常を検知した際にその結果をもとに容器の余寿命を推定する技術が必要

<研究成果>

エポキシ樹脂および CFRP の繊維直交方向の疲労試験を行い、図 3～4 に示すように 10^6 回までの S-N 線図を取得しており、寿命のばらつきを考察するため、データ数を増やしているところである。疲労試験中には AE 計測を同時に行っており、AE 挙動から余寿命予測が可能か検討を行っている。また、一方向材の疲労寿命を横方向ひずみから予測する手法を検討中であり、本検討から試験片つかみ部の影響が大きいことを確認してい

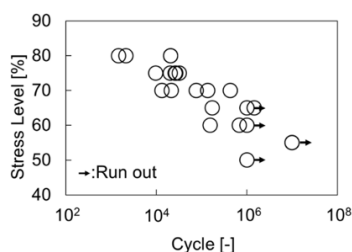


図 3 繊維直交材の S-N プロット

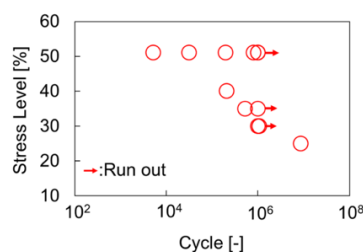


図 4 エポキシ樹脂材の S-N プロット

る。

<意義>

容器を構成する CFRP 積層材の余寿命予測法を開発するための必要不可欠な基礎データを取得した。

(4) サブテーマ④ CFRP 層の健全性を保証するための渦電流試験法の開発（担当：東北大学）

<目標とその設定根拠>

【2022 年度中間目標】：容器ライナと同じ厚さの樹脂板を介して CFRP 試験片の繊維分布状態を確認

【2024 年度最終目標】：容器内にプローブを挿入し内面を試験した場合の、渦電流試験法による欠陥検出の可能性を示す

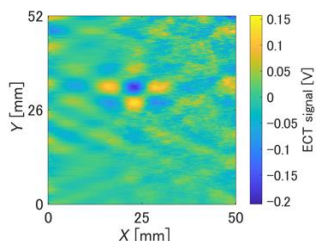
【設定根拠】：容器解放検査における容器内面からの非破壊検査において、許容限界欠陥の検出を確認

<研究成果>

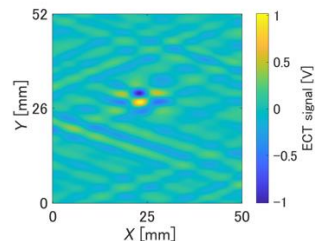
図 5 に示す切断した水素容器の内面について X-θスキャナを用いた渦電流探傷試験を行った。円形励磁差動型プローブを用いて、50 mm × 50 mm の矩形領域にて探傷を行った。水素容器内面には繊維破断を模擬した直径 3.0 mm、深さ 3.2mm のドリル穴を導入した。探傷後に空間 FFT フィルタリングを行い、



図 5 水素容器とスキャナにとりつけたプローブ



(1) ライナを介しての測定



(2) ライナを外しての測定

図 6 渦電流探傷信号の分布

特定の繊維方向の情報を抽出した。その結果、図 6 に示すようにライナを介しても破断を模擬した欠陥の指示信号と、繊維配向を確認することができた。

<意義>

当初、CFRP 平板を用いて実証する予定であった研究項目について、半割にした実際の水素容器を用いてほぼ達成することができた。実際の高圧水素容器に対する渦電流探傷法の適用可能性を示すことができた。

(5) サブテーマ⑤ 運用中のモニタリングのための埋込型ナノ複合材料センサの開発 (担当：東京大学)

<目標とその設定根拠>

【2022 年度中間目標】：設定したひずみに対して±20%以内の範囲の感度を持つ CNT センサの実現

【2024 年度最終目標】：容器の内外表面に CNT センサを分散して配置し、センサネットワークを形成

【設定根拠】：運用中に発生した衝撃損傷等による過剰ひずみを検知するため

<研究成果>

CNT ペーストを塗布する際に CNT コーティングの厚さと CNT 密度を変えながらセンサを形成し、ひずみに対する電気抵抗変化を計測した結果を図 7 に示す。厚さを小さく、濃度を低くするほど、ひずみ感度が向上していることがわかる。次に、CNT プリプレグを硬化させて形成したセンサにより計測した結果を図 8 に示す。低いひず

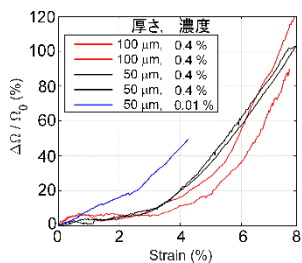


図 7 CNT ペースト製 CNT センサのひずみに対する電気抵抗変化

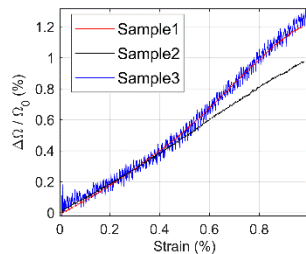


図 8 CNT プリプレグ製 CNT センサのひずみに対する電気抵抗変化

みレベルから安定して電気抵抗が増加しており、センサの感度と再現性がさらに向上している。

<意義>

高圧水素容器に一体化させた CNT センサで、過剰ひずみの発生がモニタリング可能になる。

(6) サブテーマ⑥ CFRP の樹脂割れ密度および深さ方向分布の評価法の開発（担当：明治大学）

<目標とその設定根拠>

【2022 年度中間目標】：SN 比 6dB 以上でガイド波を送受信可能にする

【2024 年度最終目標】：容器に発生している樹脂割れの密度及び深さ分布を推定できるようにする

【設定根拠】：伝搬したガイド波のパラメータを解析が可能な限界値は SN 比 6dB 程度である

<研究成果>

容器のスクリーニング技術として、図 9（左）に示すような全体を一度の計測で評価できるガイド波を用いた評価手法を開発した。CFRP 製容器は超音波の減衰が非常に大きいと予想されることから、容器を伝搬するガイド波の特性を調べた。結果、図 9（右）のように低周波成分であれば信号処理などを行わなくても 6dB 以上の信号の送受信が可能であった。

<意義>

容器全体のスクリーニング検査が可能となる。

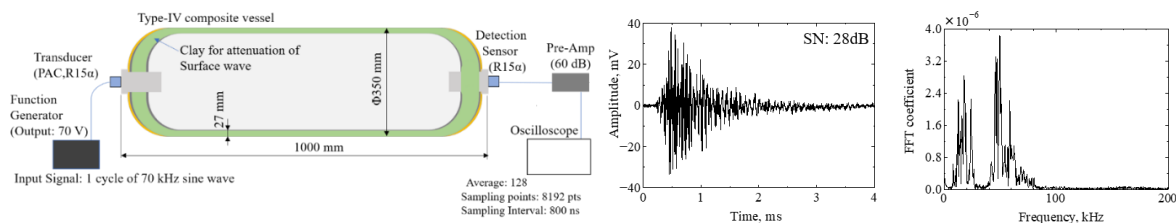


図 9 実容器を用いたガイド波透過試験装置図（左）と検出波及び周波数スペクトル（右）

(7) サブテーマ⑦ 容器のクリティカルな損傷蓄積を充填時に確実に検出する非破壊的手法の開発（担当：国立研究開発法人 物質・材料研究機構）

<目標とその設定根拠>

【2022 年度中間目標】：CFRP 積層板の特定層近傍まで欠陥が進展すると、特定層に埋め込んであるマーカー物質から AE が発生し、これを検知できることを実証する

【2024 年度最終目標】：余寿命予測技術、容器が破裂する前に検知可能なオンラインモニタリングシステム

【設定根拠】：期間前半に AE 計測のみで完結する要素技術を完成させ、期間後半はできあがった各要素技術を複合させてオンラインモニタリングシステムとして完成させることに注力する

<研究成果>

AE を多発させるマーカー材料を選定し、これを特定の層間に挟み込んだ短冊状の試験片の四点曲げ試験を行ったところ、マーカー材料を挟んだ部分がはく離する際に、図 10 のように AE 事象が多数発生することを確認した。このような多数の AE は、NIMS が独自に開発しているデッドタイムの無い AE 計測装置「Continuous Wave Memory」を用いることで、正確にカウントができることが確認できた。

<意義>

高圧水素容器の劣化が設計想定以上に進行し、マーカー材料を埋め込んだ箇所まで内部損傷が進展した場合、水素ステーションでの水素充填時に発生する圧力変動によってマーカー材料から大量の AE が発生し、損傷の発生を検知できる可能性が示された。NIMS 開発の「CWM」は IoT 機器を用い、水素ステーションの現場に組み込みやすい機器構成も可能である。

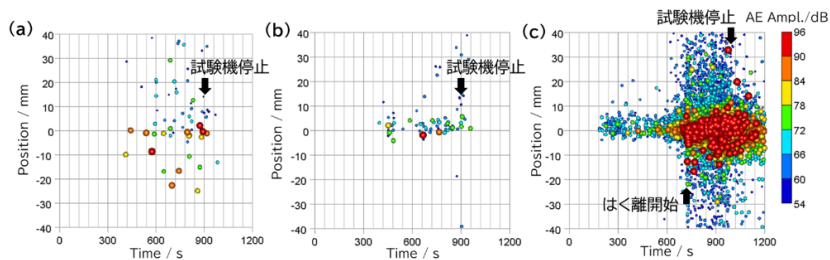


図 10 マーカー材料入り短冊状試験片の四点曲げ試験で検出された AE の発生時刻・振幅・位置標定
 (a) 切り欠き無し、(b) ノッチ深さ約 0.5 mm・はく離無し、(c) ノッチ深さ約 1.0 mm・はく離有り

(8) サブテーマ⑧ ドーム部と円筒部の接合を用いた容器の開発 (担当：東京都立大学)

<目標とその設定根拠>

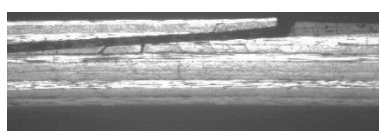
【2022 年度中間目標】：接合構造の確立。有限要素法による解析結果が、実験値に対して±20%以内に入るように、解析パラメータを調整

【2024 年度最終目標】：炭素繊維使用量低減：現状比 30% 削減可能とする

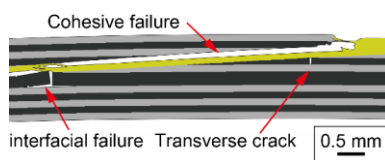
【設定根拠】：ドーム部と円筒部を別々に作成し、これらを接合することで容器を作ることができれば、余分な炭素繊維の使用を減らすことが可能

<研究成果>

接合方式としてスカーフ継手を選択し、接合部にオーバーレイを施すことにより、接手強度が飛躍的に向上することを単純形状の試験片で確認した。接着剤と CFRP の微視的損傷を考慮した数値解析手法を開発するとともに、接着剤単体や CFRP 接着構造の試験で解析に使用する材料パラメータを決定した。その結果、おおむね実験で観察された損傷形態を再現することができた (図 11)。有限要素法により単純形状の試験片 (スカーフ継手) の実験値に対して目標値を下回る±10%未満の誤差で強度予測できることを示した (図 12)。また、CFRP 製高圧水素容器の繰返し使用後における残存強度予測を想定し、疲労試験 (項目⑪)



(a) 実験



(b) 数値解析

図 11 実験と数値解析の破壊形態の比較

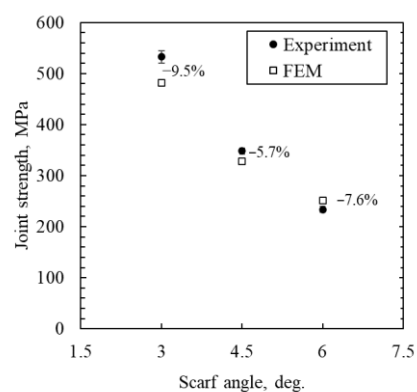


図 12 実験と数値解析の破壊形態の比較

で観察された損傷を参考に、初期欠陥を事前にモデル化した数値解析モデルの強度評価を行い、初期欠陥を有する場合には、損傷がない場合と比較して継手強度が 28%低下することを解析的に示した。

<意義>

提案手法を用いた数値解析により継手強度を精度よく予測できることが明らかになった。これにより、継手形

状や積層構成の検討、補強方法様式の検討を実験によることなく行うことができ、研究開発を加速できる。

(9) サブテーマ⑨ 接合状態の非破壊評価技術の開発（担当：東京大学）

<目標とその設定根拠>

【2022 年度中間目標】：ライナ接合部を模擬した試験片の接着状態を評価。完全未接着部が存在した場合に検出可能にする

【2024 年度最終目標】：ライナ接合部の接合状態の反射型測定による定量評価

【設定根拠】：容器内部のライナ接合部を評価する場合、反射型測定が好適である

<研究成果>

樹脂ライナ溶着試験片および CFRP スカーフ接着継手試験片に対し、テラヘルツ時間領域分光法 (THz-TDS) を利用して、接合部近傍および接合部外の吸収係数の偏光依存性を評価した。樹脂ライナ試験片に関しては、接合試験片のバージン材、引張後試験片（残留ひずみ

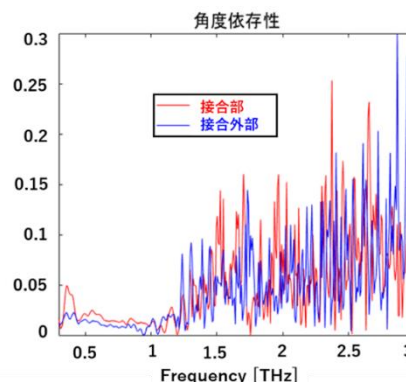


図 13 引張後試験片における THz 偏光

約 1.8%)、及び疲労試験後の試験片の THz-TDS 透過測定を行った。吸収係数の偏光度を評価したところ、図 13 に示すようにバージン材と比べて他の 2 試験片（低接合強度）においては 0.5~1THz 近傍における偏光度が接合部とそれ以外で大きく変化した。接合強度低下によって高分子配向の異方性が生じたことが示唆される。加えて、より簡便な偏光測定を行うため、安価な CW 差周波光源を利用して THz 偏光測定システム（適用周波数 0.3~3 THz）を構築した。CFRP 試験片については、計測を断念した。

<意義>

THz 偏光度測定により、樹脂ライナ接合強度評価の実現可能性が定性的に示された

(10) サブテーマ⑩ 分割型高圧水素容器の強度評価シミュレーション（担当：名古屋大学）

<目標とその設定根拠>

【2022 年度中間目標】：分割型高圧水素容器（接合方式）の数値シミュレーション結果に基づき、構造最適化を行い、少なくとも 1 つの候補モデルを作成する

【2024 年度最終目標】：容器接合構造の最適化

【設定根拠】：分割型高圧水素容器実現のためには、高強度かつ信頼性のある容器接合構造が必要となるため

<研究成果>

鏡部と円筒部を別々に成形し、その後接合して圧力容器とする分割型高圧水素容器の実現に向け、有限要素解析を元にした分割構造の成立性検討と課題の洗い出しを行った。高圧水素容器構造の応力状態を模擬可能な有限要素モデルを作成し、このモデルを用いて、突き合わせ接合、スカーフ接合（図 14）を対象として、分割部にかかる応力を計算し、これを東京都立大が実施しているスカーフ継手の検討結果と比較した。内圧を付加して解析を実施した結果、突き合わせ接合では接着面の垂直応力が過大となり、この方法での接合は成立しないことがわかった。一方、スカーフ接合については、東京都立大で測定されたスカーフ接合強度の 1.14 倍程度の応力が発生することがわかった。接合強度よりも高い応力が発生しているためスカーフ接合方式でも設計は成立しないものの、接合方式に改良を加えることによって、分割方式が成立しうる可能性が示された。

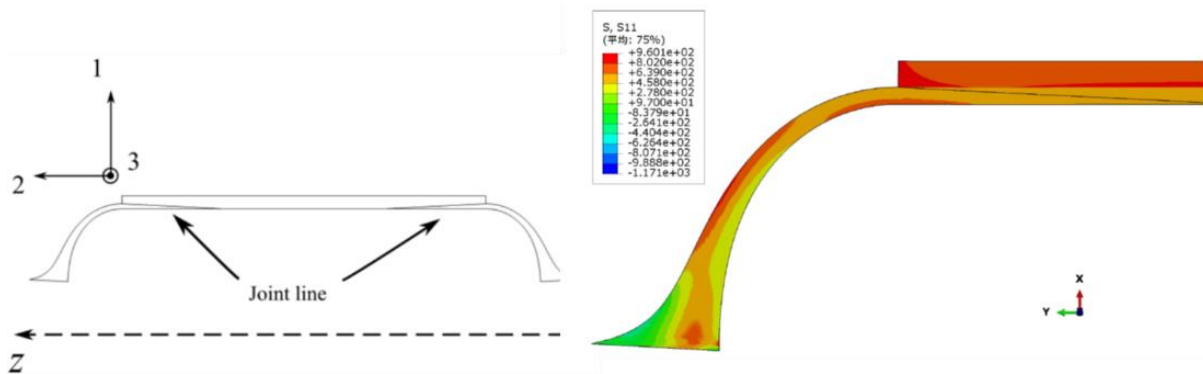


図 14 スカーフ接合の分割方式容器の応力解析結果

<意義>

分割型水素容器の強度解析について、基本的なモデル化手法を作成した。また、これにより、分割型高压水素容器の実現に向けた技術課題（接合方式の改良）を抽出するとともに、分割方式が成立しうる可能性を示した。

(11) サブテーマ⑩ 疲労破壊過程の解明と余寿命予測技術の開発（担当：岐阜大学）

<目標とその設定根拠>

【2022 年度中間目標】：スカーフ角度が疲労強度や疲労破壊機構に与える影響を把握

【2024 年度最終目標】：容器接合構造の余寿命評価

【設定根拠】：余寿命評価方法を確立することにより、接合部の疲労設計が可能となる

<研究成果>

スカーフ角度と積層構成が異なる継手を用いて疲労試験を行い、図 15 に示すように、負荷される公称応力を引張り強さで正規化した場合、スカーフ角度や積層構成によらず疲労強度は狭いバンドに収まり、疲労寿命設計曲線として一般化できることがわかった。またスカーフ継手の中央部に添付したひずみゲージ出力は荷重の繰返しに伴い徐々に変化することを示すとともに、μCT スキャンによる内部損傷計測で、スカーフ角度が 4.5°と 6°の場合では疲労破壊過程に相違がないことを明らかにした。

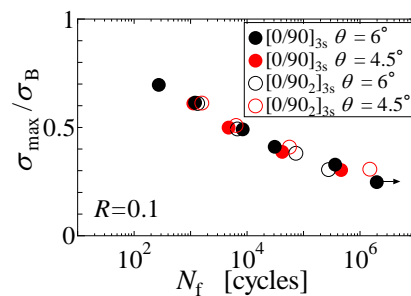


図 15 引張り強さで正規化した S-N 線図

<意義>

スカーフ角度や積層構成によらず、CFRP スカーフ継手の疲労強度を予測可能であることを示した。また、継手中央部のひずみは荷重繰返しに伴って経時的に変化する場合があり、疲労寿命予測に利用できる可能性を示した。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

各サブテーマの最終目標達成に向けたアプローチは以下の通りである。

サブテーマ①：最終目標である「損傷許容設計技術と非破壊検査技術を組み合わせた構造健全性保証の考え方の確立」を達成するために、2023 年度までに損傷許容および損傷モードを制御可能とする積層構成等

の検討を終え、2024 年度にはそれを実証するための容器を作り、破壊試験を実施する予定である。また、破壊試験の最中には本プロジェクトで開発する損傷のオンラインモニタリング、ガイド波を用いたスクリーニング試験、超音波・渦電流による詳細非破壊検査を実施する予定である。

サブテーマ②：最終目標である「将来的に世界統一基準（GTR）に取り込みが可能な国内規格のドラフト（目次と項目）の作成」を実現するために、プロジェクトの研究成果を規格に落とし込むための議論をさらに活性化する。必要に応じて規格に詳しい有識者の方々に助言を乞う。国内の関連事業者および、国内外の GTR 関係者との情報交換を積極的に行う。

サブテーマ③：最終目標では圧力容器の余寿命予測法の開発を目標にすることから、直交積層板などのより実用構造に類似した積層板の疲労試験を行い、同時に AE を取得し、破壊過程を詳細に観察する。少なくとも繊維方向の寿命は樹脂の耐久性に依存していることが、これまでに明らかとなっていることから、フーリエ変換赤外分光法なども用いて寿命予測を検討する。最終的には開発した寿命予測法を模擬容器に対する圧力サイクル試験時で評価する。

サブテーマ④：容器内面の曲率やライナによるリフトオフノイズの低減が課題となり、これを解決するためのプローブの最適化と信号処理法を検討する。

サブテーマ⑤：センサの作製方法を途中で CNT ペーストから CNT プリプレグに変更したため、中間目標まで達成できていないが、CNT プリプレグの場合も厚さと濃度を調整することで、任意の設定ひずみで電気抵抗が急増するようにセンサを作製できると考えており、現在、その検証準備を進めている。CNT センサ自体の長期耐久性と CFRP との高い接合性が重要となるため、腐食劣化や剥がれが生じる金属は用いずに、現在、CNT フィルムで電極を形成し、エポキシフィルムを介してセンサを CFRP に接合することを試みている。今後は、リード線自体も CNT バンドルで形成する予定である。

サブテーマ⑥：人工的に樹脂割れを発生させた試験片を作成し、樹脂割れの密度と伝搬するガイド波のパラメータの関連性を評価する予定である。ただし、これまでのグループ間会議やワークショップによる情報交換において、樹脂割れ密度以外にも容器の評価において重要な損傷形態があるという知見が得られたことから、ステージゲート通過後に樹脂割れ以外についても評価を行う必要性について検討し、最終目標の修正を検討する予定である。

サブテーマ⑦：マーカ材料の有無のみが異なる曲げ試験での AE 発生量の比較を行う、はく離面積と AE 発生量の相関を求めるなどの試験を行い、マーカ材料の効果を検証する。また、マーカ材料の導入量について下限を推定する。これらの AE 計測単独で完結する要素技術を完成させたのち、研究期間後半は他課題で出来上がった各要素技術を複合させてオンラインモニタリングシステムとして完成させることに注力する。

サブテーマ⑧：最終目標では容器接合構造の最適化を目標にすることから、当て板やクラックアレスタなどの接合部における破壊の抑制手法を検討する。種々の破壊抑制手法について有限要素解析を用いて検証するとともに、数値解析によって特に有効と考えられるものについては実験によりその有効性を検証する。中間目標までに精度の高い予測技術を確立できたことから、最適な継手構造の提案を行うことが可能である。容器全体の構造を検討している項目⑩と連携し、接合容器構造にした際の健全性をシミュレーションにより検証するとともに、その妥当性を模擬容器で評価する。

サブテーマ⑨：樹脂ライナの透過測定においては定性的な評価ができつつあるものの、反射測定に関しては実現に至っていない。最終目標として、容器の内側からライナ接合状態を非破壊的に評価する技術を確立したいため、反射型 THz 偏光測定技術を確立させることが急務である。幸い、反射測定に向かない THz 時間領域分光装置ではなく、透過・反射測定が可能な THz 偏光システムの構築が終わったため、当該装置を利用して反射測定を確立し得る。そのためには素性の良い（接合強度の分かった）接合試験片を多数そろえることが

急務であるため、他のメンバの協力を仰ぎながら試験片を揃えて測定技術を実現する。最終的には容器内側から測定可能な計測装置のプロトタイプ構築を予定している。

サブテーマ⑩：項目⑧と連携しつつ、当て板やクラックアレスタの追加等により、接合部の強度向上手法を検討する。また、項目⑧で試験片レベルでの接合の高精度な破壊解析手法を研究することから、これと連携し、本項目では圧力容器の全体構造解析に項目⑧の成果を組み込み、容器全体構造の損傷進展シミュレーションを可能とする。またこれを用いて、接合容器構造の健全性、破壊機序をシミュレートする。また、数値シミュレーションの妥当性を模擬容器の実証試験により評価する。

サブテーマ⑪：スカーフ角度、積層構成、当て板など強度向上についてはデータが不足していることから、項目⑧、⑪と連携しつつ、疲労寿命の予測手法や寿命向上のメカニズムについて検討する。また、疲労試験中にひずみ計測を経時的に行っているが、μCT スキャンによる内部損傷計測が経時的でないため、これを行ってひずみと内部損傷の相関を把握し、疲労寿命の予測手法を提案する。

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

成果を実用化・事業化するためには、関連事業者および関係省庁、さらには国際的な認証機関の賛同を得る必要があるため、本研究の成果を、水素関連および非破壊検査関連の関係者に向けて積極的に発信するとともに人脈作りをしている。具体的には、次のような取組をしている。

- ・関連事業者との定期的な情報交換、意見交換
- ・関連省庁からの意見聴取
- ・学協会等への研究/開発成果の積極的な発表
- ・GTR（水素・燃料電池自動車の世界統一基準）に関係する海外の技術者との情報交換

本プロジェクトで想定している最終的なゴールを実現するためには、技術開発以外に、①非破壊検査、オンラインモニタリング、状態監視(水素充填回数等)の情報を水素貯蔵容器の健全性評価に使用することについての国の法規制を整備し、また、②コネクティッドカーの通信機能を用いて収集したデータをどのように管理するかを決める必要がある。このためには、産学官の連携をさらに強化する必要があるが、本プロジェクトで想定している最終ゴールを国を挙げて実現しようという機運となれば、十分に実用化・事業化する見込みがあると考えている。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021/9/15	日本機械学会 M&M2021 材料力学カンファレンス	5G 時代における燃料電池自動車用高圧水素容器の設計と健全性保証	水谷義弘
2	2021/11/4	AE コンファレンス（東京）	AE/AU 法を用いた損傷許容型 CFRP 製水素タンクの健全性保証の構想	水谷義弘, 松尾卓摩, 伊藤海太

3	2022/3/7-9	第13回日本複合材料 会議（大阪）	CFRP スカーフ継手における損傷 挙動の実験的評価と数値解析	大島草太・小林訓 史
4	2021/11/26	産総研 FIoT コンソーシア ム応力発光技術分科会	高圧水素用肉厚 CFRP 容器の 設計・非破壊検査	水谷義弘
5	2022/3/7	日本複合材料学会 JCCM-13	FCV 用高圧水素容器の健全性 を保証するための非破壊検査, 損傷許容技術の開発	水谷義弘
6	2022/3/28	日本非破壊検査協会 安全・安心な社会を築く 先進材料・非破壊計測技 術 ミニシンポジウム	複合材料製高圧水素容器に適 用可能な超音波探傷技術の開発	乗川大凱, 水谷義 弘
7	2022/4/22	日本ゴム協会 第40回 水素機器用エラストマー材 料研究分科会	高圧水素損傷許容接合タンク の実現に向けた技術的課題と取 組み	水谷義弘
8	2022/5/18	AEWG（米国）	R&D Trends of Non Destructive Testing of CFRP High Pressure Hydrogen Tanks in Japan	水谷義弘, 松尾卓 摩, 伊藤海太、鈴 木裕晶、宅間正則

課題番号（管理番号）： HS06

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／非 FW／分割プリフォームおよび新規樹脂（REDOX 硬化型樹脂）による高圧水素タンクの革新的ハイレート製造プロセスの開発」

実施者： 学校法人金沢工業大学（国立大学法人東京農工大学、学校法人日本大学、ミズノテクニクス株式会社）

期間： 2021年6月～2025年3月

1. 研究開発概要

本事業は、産業界ニーズに対して、工程を分割することでサイクルタイム5分を達成することにより生産性を向上させ、最適な繊維配向により炭素繊維の使用量を削減することにより低コスト化を実現させるために、以下の3項目において、設計技術、製造技術及び材料開発を実施している。

1. 1 非 FW／分割プリフォームによる高圧容器構造設計手法の開発

分割プリフォーム方式に適した構造様式を提案するために、小型部分モデルタンクを対象として種々のアイデアに基づく構造解析を実施、各構造のトレードオフスタディーも実施し、構造解析結果を踏まえ、分割構造方式による小型モデルタンクの試作を行い、破壊試験等で妥当性の評価を行う。

1. 2 低圧 RTM(分割プリフォーム、2 段階含浸)による高圧容器の超ハイサイクル製造技術の開発

シリンダー部/ドーム部の分割プリフォームに関して、分割コンセプトのプリフォームの製作手法を検討、シリンダー部は炭素繊維使用量が最も低減できると考えられる±55°巻き角、ドーム部はランダムシート、長繊維積層シートを加熱、真空引きシリコンメンブレンによる加圧賦形による、プリフォームの作製プロセスを確立する。低圧 RTM（2 段階含浸）による樹脂流動、注入方式の検討、評価は、試験装置の開発を行い、2 段階含浸時の樹脂の流動性評価を実施する。

最終的には既存材料により分割コンセプトの実証タンクを試作、破壊試験による評価を実施する。

1. 3 REDOX 硬化型樹脂と RTM プロセスによるコンポジット材料の開発

REDOX 硬化型樹脂は、現行のエポキシ樹脂材料に対して性能は同等以上を確保した上で、トウプリプレグの生産性、タンクの製造サイクル5分を達成させる必要があり、全体的なバランスを取りながら、革新的な樹脂開発を2022年度中に完成する。

トウプリプレグの製造に関して、REDOX 硬化型樹脂の開発と並行して、炭素繊維トウへの樹脂含浸方法、繊維の予備加熱方法、樹脂の含浸速度の評価を行いながら、将来的な製造ラインの検討を実施。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

2030 年度以降の燃料電池システムの低コスト化、高性能化、高耐久性化に資する水素貯蔵関連技術として、高圧水素タンク製造の課題となっている「生産性」と「コストパフォーマンス」を飛躍的に向上させる技術確立に取り組む。

「非 FW 製の分割プリフォーム、低圧 RTM 成形製造プロセスとプロセスに適合する樹脂を開発」により飛躍的な生産性向上と低コスト化を実現する。従来の FW 法（1 時間/1 タンク程度）に対して、タクトタイムを

約 5 分に短縮する。また、最適な積層設計により繊維使用量を削減、コスト低減も実現する。更に、分割プリフォームの一体化プロセスの成立性を数値解析及びスケールモデルタンクの耐圧試験により実証する。

分割コンセプトに関しては、外国における事例においても、炭素繊維の使用量を削減させる効果が報告されており、新規開発の樹脂により、分割部位の高い接合強度が得られる。

本事業の内容に関しては、関心表明企業とも分割コンセプト、新規開発樹脂、目標設定等、議論を重ねて設定したものである。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
(1) 非 FW / 分割プリフォームによる高圧容器構造の開発	<ul style="list-style-type: none"> ●ドーム/シリンダー分割プリフォーム構造様式によるタンクの構造解析手法の妥当性が実験によって検証されていること。 	<p>小型モデルタンク（4 体）の応力解析・設計・試作・破裂試験を実施し、技術課題を抽出した。</p> <p>ドーム/シリンダー結合部の構造様式に関する特許を出願した。</p>	○	<p>ドーム/シリンダー分割プリフォーム構造方式タンクに関して、構造解析手法を高度化するとともに、実験による妥当性検証を進める。</p>
(2) 低圧 RTM（分割プリフォーム、2 段階含浸）による高圧容器の超ハイサイクル製造技術の開発	<ul style="list-style-type: none"> ●シリンダー部/ドーム部の分割プリフォーム製造と一体化のプロセスについて、アルミライナーと既存材料による小型モデルタンクの製造により、成立性を検証すること。 ●平板金型によるプリフォームへ低圧 RTM 成形条件が明らかになっていること。 	<p>CFRTP テープ（熱可塑性トウプリプレグ）を用いて、シリンダー部プリフォームの試作、ドーム部の製造プロセスの評価を完了した。</p> <p>CFRTP テープの平板積層基材に対して樹脂流動及び注入方式の評価用装置を製作、樹脂流動検証を実施、低圧注入が、可能であることを確認した。</p>	○	<p>プリフォーム製造時の繊維配向の精度向上に関して、3D 解析等を含め試験により検証を進める。</p> <p>平板成形実験を基に、3D 形状の小型モデルタンクの樹脂注入プロセスを決定する。</p> <p>小型モデルタンクの最適仕様決定を項目(1)と合わせて行う。</p>
(3) REDOX 硬化型樹脂と RTM プロセスによるコンポジット材料の開発	<ul style="list-style-type: none"> ●トウサイズと、含浸特性、静的引張特性の関係検証の完了。 ●REDOX 樹脂+2 段階含浸で静的基礎データ取得の完了。 ●熱可塑性樹脂 A 含浸トウプリプレグで 	<ul style="list-style-type: none"> ●機能の合理化・最適化の結果、樹脂 A を UV+ REDOX 重合で熱可塑性ポリマー化する組成物にコンセプト変更した。 ●酸素による重合阻害を回避する処方確立した。 ●重合前の樹脂 A を CF トウに含浸させる装置を考 	○	<ul style="list-style-type: none"> ●樹脂および FRP 積層板の諸特性に関するデータ収集を行なう。 ●項目(2)での評価を行なうのに必要な数量のトウプリプレグを連続的に製造できる装置を組み立てて、装置コンセプトの妥当性を実証する。

	形成したプリフォームと、低圧 RTM により注入される樹脂 B との接触により、80℃ /3 分以内に完全硬化することの実証。	案した。 ● 樹脂およびトウプリプレグに関する特許出願の準備を開始した。		
--	---	---	--	--

3.2 研究開発の詳細

(1) 非 FW / 分割プリフォームによる高压容器構造の開発

- 分割プリフォーム方式に適した構造様式を提案するために、小型部分モデルタンクを対象として種々のアイデアに基づく構造解析を実施し、各構造のトレードオフを実施した。その結果、図 1 に示すようなドーム・シリンダー結合部の内側および外側に補強層を配置する構造様式を第 1 案とすることとした。結合部のせん断応力を低減させる可能性のある構造設計方法に関する知見が得られたため特許を出願した。
- 構造解析結果を踏まえ、市販のアルミライナー、CFRP プリプレグ、およびフィルム接着剤を用いて、分割構造方式による 4 体の小型モデルタンク (φ160×500、35 MPa 級) を設計・試作した。破裂試験後の様子を図 2 に示す。破裂圧力は 4 体とも約 50MPa であり、ドーム・シリンダー接着部や、シリンダーと外側補強層との接着部等におけるはく離の逐次進展により、タンクの破裂に至った可能性が推定された。

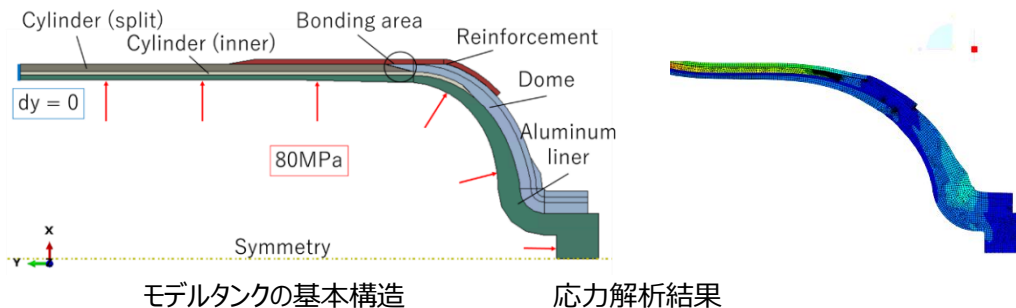


図 1 分割プリフォーム構造モデルタンクの有限要素法 (FEM) による構造解析 (φ160×500、35 MPa 級)

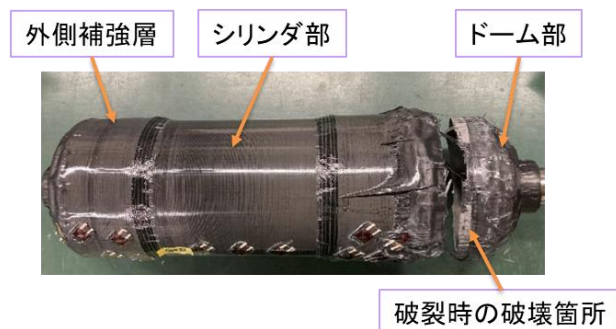


図 2 設計・試作・破裂試験を行った分割成形型圧力容器 #4 (破裂圧力 50.3 MPa) (アルミライナー、プリプレグ+オートクレーブ成形)

(2) 低圧 RTM (分割プリフォーム、2段階含浸) による高圧容器の超ハイサイクル製造技術の開発

CFRTP テープ (熱可塑性トウプリレグ) を用いて、周方向と軸方向の強さの比が 2 : 1 となる巻き角度 $\pm 55^\circ$ のシリンダー部プリフォームの試作を行った。さらに、低圧 RTM 時における樹脂の流動性を向上させるために、FW 装置で単層巻き ($+55^\circ/-55^\circ$) プリフォームを成形するためのプログラムを作成し、図 3 のように試作を行った。また、シリンダー部プリフォームの端部に切り込みを入れて、図 4 に示すように真空成形法でドーム形状への加工を実施した。

ドーム部プリフォームは、平面上にプログラム制御による CFRTP テープを用いたランダムシート及び長繊維を積層した長繊維積層シートの 2 種類 (図 5) を準備、積層シートを加熱、半球形状金型に対して、真空引きシリコンメンブレンによる加圧賦形 (図 6) を実施した。また、半球状に成形したプリフォーム (図 7) の形状特性を評価し、半球形状プリフォームを作製する基本プロセスを検証した。



(a) 成形時の様子

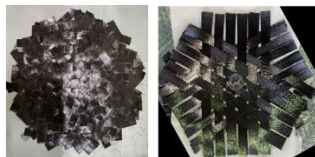


(b) 脱型後

図 3 単層巻き ($+55^\circ/-55^\circ$) のシリンダー部プリフォーム

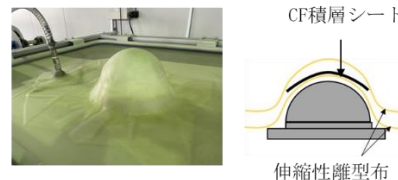


図 4 シリンダー部プリフォームの真空成形



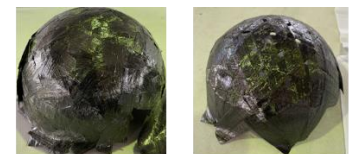
ランダム積層シート 長繊維積層シート

図 5 積層シート



真空引きシリコンメンブレンによる加圧賦形

図 6 ドーム部成形方法



ランダム積層シート 長繊維積層シート

図 7 ドーム部プリフォーム

図 8 に CFRTP テープの平板積層基材への樹脂流動の様子を示す。中央の樹脂注入ポートからほぼ円形に流動していることが確認できる。樹脂注入時の各型内圧センサの挙動を図 9 に示す。これより、各方向の流動が均一で、また型内圧のバラツキも小さいことが確認できる。図 10 の樹脂注入後の成形品断面から、層間に樹脂が充填され、大きなボイドがないことが確認できる。以上により、熱可塑性トウプリレ

レグの平板積層基材のわずかな隙間への樹脂注入が、0.1MPa 程度の低圧で可能であることを実証できた。現在は、平板積層基材への樹脂注入実験を基に、3D形状の小型モデルタンクへの均一な樹脂流動を実現するために、プロセス検討（樹脂注入ポートの位置、型治具構成、副資材構成等）、および成形システムの設計を進めている。

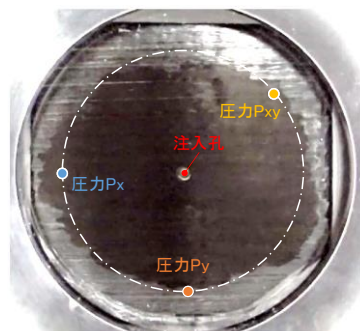


図 8 平板積層基材の樹脂流動

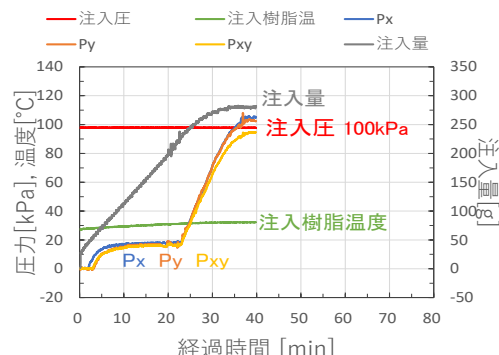


図 9 型内圧の挙動



図 10 平板成形品の断面動

(3) REDOX 硬化型樹脂と RTM プロセスによるコンポジット材料の開発

当初志向していた i) プリプレグ製造工程、ii) プリフォーム製造工程、および iii) RTM 工程の全ての工程でそれぞれ要望されるレオロジー特性および反応性を 1 つの材料（樹脂 A）で一度に満足させることはあまりにも機能の詰め込み過ぎであり、達成が困難であることが判明した。従って、樹脂 A の処方としては i)、ii) を満足させるものとし、iii) の工程では樹脂 B との界面で溶解一体化によりコキュアを達成させるようコンセプトに若干の変更を加えた。これにより、量産も意識した実現性の高いシステムとなった。

また、空气中で薄膜をラジカル重合させる場合に必ず問題となる「酸素による重合阻害」についても克服できる処方を確立し、レオメーターによるレオロジー特性データから、この樹脂を用いてトウプリプレグを連続的に製造する装置も考案することができた。

「樹脂組成、それを含浸させたトウプリプレグおよびプリフォーム、それをを用いた RTM 工法」に新規性があることから、特許出願することを予定している。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 小型モデルタンクによる解析・設計・評価により、ドーム/シリンダー分割プリフォーム構造様式では、繊維の不連続部や、補強層との接着部などによる多重破壊により、タンクが破裂に至った可能性が示唆された。今後は、繊維不連続部、補強層との接着部などの実験データを蓄積するとともに、得られたデータに基づき確度の高い設計・解析手法の確立をめざす。また、実験による妥当性検証も同時に進める。

(2) ドーム/シリンダー分割コンセプトの妥当性を検証するために小型モデルタンクを設計/製作/耐圧試験

を実施する。具体的には、既存の材料を用いて、ドーム/シリンダー分割プリフォームの最適な組立形態を考慮した成形方法の確立、低圧 RTM 成形による成形手法の実証を行う。また、(1)と並行して、材料の基礎特性、分割接合部の機械特性を取得、小型モデルタンクの最適設計を行い、耐圧試験を実施する。更に、本研究開発で開発する新規樹脂を用いて、実証タンクの最適設計を行い、低コスト（ドーム/シリンダー分割様式の最適設計を行い、炭素繊維の使用量を削減する。）、生産性向上（サイクルタイム 5 分の実現）の実証を行う。

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) ミズノテクニクス 事業化戦略から

本研究は車載水素タンクの大きなコストを占める炭素繊維の使用量を低減し、効率的な巻き付け等に関する研究開発である。その成果として、2030 年度以降の燃料電池自動車用水素タンク用トウプリプレグ生産を当社で担う。すでにトヨタ自動車向け燃料電池車「1 代目ミライ」「2 代目ミライ」共に当社のトウプリプレグが採用されている。現在、トウプリプレグ用の繊維、および、樹脂の購買、協力工場での生産など、国内におけるサプライチェーンは構築済である。また、品質管理、生産管理、開発など事業体制も整っている。日本においては、現在の販売ルートである樹脂生産を兼ねる商社（ナガセグループ）が候補となり、商社を通じて自動車メーカーへの販売と考える。日本企業（海外生産）の場合、本研究品の TPP は常温で半固体であることから、少なくとも冷凍は不要である。よって、運送が容易になるため、国内生産が可能と考える。海外工場への販売は、プリプレグ輸出経験を有する伊藤忠商事などが候補となる。以上により、当社での製造体制の構築、販売方法を確立できるネットワークを有する当社において、2030 年以降の企業活動（表 1）が具現化できるものとする。

表 1 ミズノテクニクス トウプリプレグ販売予測

トウプリプレグ	国内市場 規模台数 (万台)	申請者シェア (%)	申請者売上 (億円)
プロジェクト終了 (25年度)	20	15	33
量産開始 (30年度)	80	20	80
31年度	90	25	113
32年度	100	30	150
33年度	110	35	193
34年度	120	40	240

(2) 本研究開発の成果から

製品（高圧水素タンク）の製造は、水素・燃料電池戦略ロードマップに合致するよう 2030 年 80 万台（10～20 万円/台）に向け製造を担う自動車 OEM 又はパートナー企業への特許等の実施許諾、技術移管により事業化を行う。

尚、量産開始に向けて、本研究開発の成果を事業化する際に想定される課題は、研究開発はミニチュアモデルで行うが、実物サイズでの検証が必要であり、量産に合わせて製造プロセス標準化が必要となる。また、実サイズの製品に応じた品質要求への対応や設備の増設等、技術移管する企業と十分な議論を行い、課題を移管前に解決するように双方努力して事業化を進める。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2022年6月 24日	2022-095983	複合圧力容器	東京農工大学、金沢工業大学、日本大学

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2022年3月	日本複合材料学会・ 第13回日本複合材 料会議（JCCM- 13）	非FW／分割プリフォームおよび 新規樹脂（REDOX硬化 型樹脂）による高圧水素タンク の革新的ハイレート製造プロセス の開発	鶴澤潔（金沢工業大学）
2	2022年9月	日本複合材料学会 第47回複合材料シ ンポジウム	FCV用分割成形CFRP高圧 水素タンクの応力解析	内野（東京農工大学）、 小笠原、鶴澤（金沢工業 大学）、平山（日本大 学）、坂田
3	2022年9月	日本複合材料学会 第47回複合材料シ ンポジウム	ドーム／シリンダ分割構造CFRP タンクの試作と内圧破壊挙動	小笠原（東京農工大 学）、内野、勝間田、鶴澤 （金沢工業大学）、平山 （日本大学）、坂田
4	2022年9月	日本複合材料学会・ 第47回複合材料シ ンポジウム	REDOX反応を用いた高圧容 器製造用トウプリプレグの開発	西田裕文（金沢工業大 学）
5	2022年12 月	第55回（令和4 年度）日本大学生産 工学部学術講演会	CFRTPテープを用いた圧力容 器の真空成形（予定）	川瀬翔希（日大・院）、 坂田憲泰（日大）、平山 紀夫（日大）、鶴澤潔 （金沢工大）、中島正憲 （金工大）、小笠原俊夫 （東京農工大）
6	2023年3月	日本複合材料学会・ 第14回日本複合材 料会議（JCCM- 14）	CFRTPテープを用いた圧力容 器の成形と耐圧特性（予定）	川瀬翔希（日大・院）、 坂田憲泰（日大）、平山 紀夫（日大）、鶴澤潔 （金沢工大）、中島正憲 （金工大）、小笠原俊夫 （東京農工大）

課題番号（管理番号）：HS07

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／水素貯蔵効率向上に向けた水素タンクの研究開発」

実施者：豊田合成株式会社

株式会社アツミテック

期間：2022年6月～2025年3月

1. 研究開発概要

本プロジェクトでは、第5次エネルギー基本計画や水素・燃料電池戦略ロードマップ等で定めるシナリオに基づき2030年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システム（水素貯蔵タンク等を含む）を実現するためのユーザーニーズに基づく協調領域の基盤技術を開発することにより、世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立することを目的とする。

燃料電池車のシステム技術開発において、航続距離の延長と車室空間拡大の両立の課題解決のため、水素タンクのさらなる小型化が必要である。そのため、水素タンクにおいて単位体積当たりの水素貯蔵量増大が求められている。

水素タンクとして圧縮水素70MPaの水素貯蔵量は、現状39.5g/Lであり、本事業では2030年には現状の2倍となる79g/Lを目指す。そのため、2024年度最終目標として、市場環境での水素貯蔵性能、および耐久品質評価をおこない、水素貯蔵密度59g/Lを目標とする。

水素タンクは、水素貯蔵タンク本体、タンク併設もしくはタンク内蔵の冷却器等、および水素貯蔵材料の主な3つのコンポーネントより構成される。本事業では、そのうち水素貯蔵タンク本体と関連補機、特に冷却器に関する研究開発、および水素貯蔵材料に関する研究開発の2つのサブテーマ以下A、Bに分けて行い、2つの研究サブテーマごとに目標を設定する。

サブテーマA 貯蔵材対応水素タンクの研究開発

- ① タンクの冷却技術開発
- ② 冷却システム開発（2023年度より実施予定）
- ③ タンク実証（2024年度より実施予定）

サブテーマB 水素貯蔵材料の研究開発

- ① 貯蔵材料の性能向上
- ② 貯蔵材料の高密度化
- ③ 貯蔵材料の細孔径分布改善
- ④ 水素貯蔵材料と触媒金属・水素吸蔵合金との組合せによる水素貯蔵量向上
- ⑤ 水素貯蔵材料の大量生産化プロセス開発、およびプロセス実証（2023年度より実施予定）
- ⑥ 架橋剤の大量生産化プロセス開発、及びプロセス実証を合わせて実施（2023年度より実施予定）

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

- 中間目標（2022年度末）

サブテーマB①～③に加え、サブテーマB④水素貯蔵材料と触媒金属・水素吸蔵合金と組み合わせによる水素貯蔵量向上実施により、材料での水素貯蔵量圧縮水素比 1.5 倍(60g/L)を目指し、そのための課題と対策を立案する。材料として貯蔵量 79 g/L の見通しづけをする。具体的には、高圧試験によって材料としての水素貯蔵量を測定し、その値からタンクに水素貯蔵材料を充填した場合のタンクとしての水素貯蔵量を算出する。

サブテーマA④ ラボでの水素タンクの貯蔵性能、および温度制御の可能性を実証することにより、貯蔵材入りタンク構造設計の成立性を目途付ける。具体的には、水素タンクの水素貯蔵密度 47 g/L（圧縮水素比～1.2 倍@70MPa）において、貯蔵材料の要求仕様にあわせ 85℃以下の温度制御の可否を実証する。

水素タンクの水素貯蔵密度 79 g/L 達成にて想定される貯蔵材料性能にあわせ、85℃以下の温度制御が可能な設計指針を提示する。

水素貯蔵材料のベンチマーク、および燃料電池車の水素タンクのベンチマークを行う。そのうえで、貯蔵材料に対して重量及びコストのガイドラインを設ける。また貯蔵タンクに対して重量効率の見通しを立てる。

○最終目標（参考）（2024 年度末）

サブテーマB④水素貯蔵材料と触媒金属・水素吸蔵合金と組み合わせによる水素貯蔵量向上実施により、材料での水素貯蔵量圧縮水素比 2 倍(79g/L)を目指し、そのための課題と対策を立案する。サブテーマB⑤水素貯蔵材料の大量生産化プロセス開発、およびプロセス実証により、実タンク 1 個分である材料生産量 20kg/月を見通しづけ、貯蔵量評価、発熱冷却熱分布が可能な実証試験に即応できる原理を確立する。

サブテーマA③ラボでの水素タンクの貯蔵性能、および耐久品質評価により水素タンクの水素貯蔵密度 59 g/L（圧縮水素比～1.5 倍@70MPa）を実証する。

水素ステーション等でタンク実証し、車載への適用可否見極める。水素ステーションでの実証から車載への適用は、水素貯蔵タンクとして課題の洗い出しにより設計方針を明確化し、車載への適用可否を示す。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
サブテーマA 貯蔵材対応水素 タンクの研究開 発	・水素タンクでの水素 貯蔵密度 1.2 倍 (47g/L) ・85℃以下の温度 制御の可否検証	・冷却構造の解析に向け た物性測定 ・貯蔵材温度実測実施	△	・解析と実測の合わせ こみ ・解析を活用し、 タンクの冷却構造検討
サブテーマB 水素貯蔵材料の 研究開発	・材料での水素貯蔵 量圧縮水素比 1.5 倍(60g/L) ・材料として貯蔵量 79 g/L の見通しづ け	・材料としての水素貯蔵 量 (空タンク比) 1.3 倍を達 成	△	・水素貯蔵材料の細 孔径改善により水素 吸着量の向上 ・70MPa に適した水 素吸蔵合金の探索

3.2 研究開発の詳細

(1) サブテーマ A 貯蔵材対応水素タンクの研究開発

豊田合成ではトヨタ MIRAI に搭載されている高圧水素タンクの製造を行っているが、車に搭載できるスペースは限られているため、更なる水素貯蔵量アップには体積貯蔵効率を上げる必要がある。本研究開発では水素貯蔵材料をタンクに入れて水素貯蔵密度の向上を目指す。水素タンクに水素貯蔵材料を搭載する際には、水素貯蔵材料を入れることで新たに課題がある。水素貯蔵材料は水素を吸着すると発熱し温度が上昇する。温度上昇は水素貯蔵材料の性能低下につながるため、タンク内温度を一定温度以下に保つための冷却構造の検討が必要となる。

① 貯蔵温度の試算

水素タンク内に水素貯蔵材料を搭載して水素充填時の温度上昇量の試算を行なった。貯蔵材が水素吸着時の発熱量と圧縮熱を考慮し試算結果 120℃ほど貯蔵材の温度が上昇することが分かった。冷却構造として必要なエネルギー除去量(kJ)の試算温度まで試算を完了。



図 3.2.1.1 温度上昇模擬図

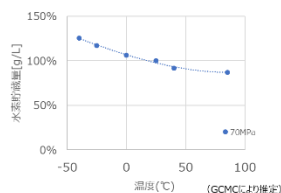


図 3.2.1.2 貯蔵材温度特性

② 高圧時の貯蔵材温度の実測実施

小型モデルで作製したタンクにペレット化した貯蔵材を搭載し 70MPa までの貯蔵材温度特性の実測することで試算結果の確からしさの検証を行なった。この結果を元に最適なタンクの冷却構造を設計し貯蔵性能向上を目指す

(2) サブテーマ B 貯蔵材料の研究

高圧での水素貯蔵量を向上するためには、高圧でも形状の変化が少ない水素貯蔵材料が望ましい。アツミテックでは水素貯蔵材料として炭素系材料を用いた取り組みを行っている。水素貯蔵材料には水素を吸着する際に重要な役割を果たす細孔と呼ぶ孔があり、水素吸着に適した細孔容積が多いことが望まれる。これを定量的にはかる手段として比表面積測定という手法がある。水素貯蔵材料の水素貯蔵性能向上を目的として、水素貯蔵材料の単位重量当たりの比表面積およびペレット化した際の密度向上、細孔径分布の改善、さらに水素貯蔵材料と水素吸蔵合金と組み合わせによる水素貯蔵量向上を行った。

① 水素貯蔵材料と水素吸蔵合金と組み合わせによる水素貯蔵量向上

移動体にも用いられる高圧化での水素貯蔵の需要を鑑み、水素貯蔵材料ペレットの水素貯蔵量および水素貯蔵材料と水素吸蔵合金を組み合わせた材料の水素吸着量を水素圧力 100MPa まで測定した。水素タンクに水素貯蔵材料と水素吸蔵合金をタンク容積の 100%入れると想定したときの水素タンクの水素貯蔵量を図 3.2.2.1 に示す。比較して、水素貯蔵材料ペレットを入れたタンクは水素貯蔵材料ペレットをタンクに入れていないとき(圧縮水素のみの水素タンク)の水素貯蔵量を上回る結果となった。さらに水素貯蔵材料と水素吸蔵合金を組み合わせた材料は、水素圧力が上昇するにつれ水素貯蔵量も増加しており、高圧においても水素貯蔵材料と水素吸蔵合金のそれぞれの貯蔵に対して阻害することはなかった。70MPa では水素貯蔵材料ペレットをタンクに入れていないとき(圧縮水素のみの水素タンク)と比較して、水素貯蔵材料ペレットを入れたタンクは 70MPa 時に 1.3 倍の水素

を貯蔵が可能であることが示唆される (図 3.2.2.2)。水素貯蔵材料および水素吸蔵合金それぞれの水素貯蔵量を向上させ、組み合わせた際により多くの水素を貯蔵できる材料を目指す。

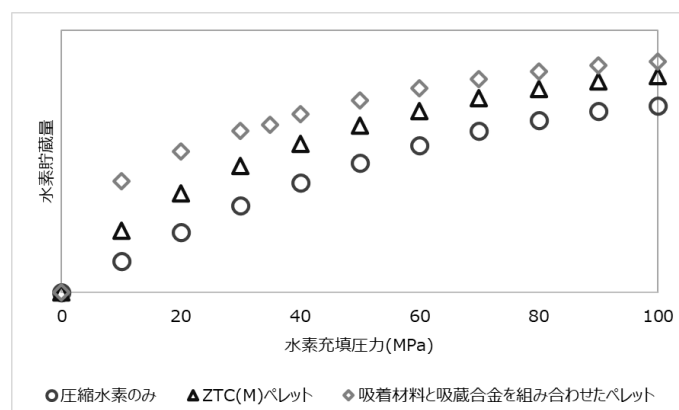


図 3.2.2.1 水素貯蔵材料と水素吸蔵合金を組み合わせた材料の水素貯蔵量

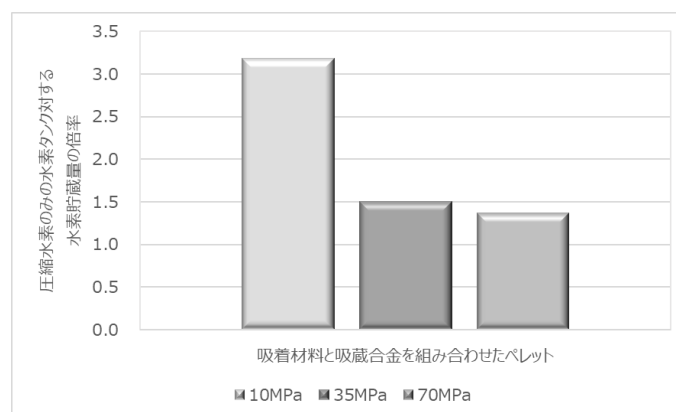


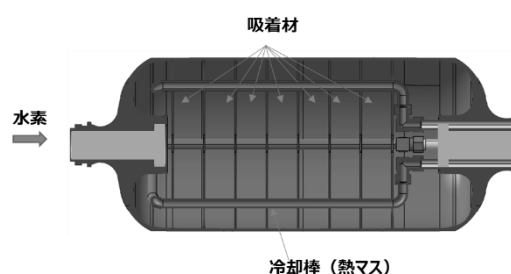
図 3.2.2.2 圧縮水素のみの水素タンクに対する水素貯蔵倍率

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) サブテーマ A 貯蔵材対応水素タンクの研究開発

本研究開発では、貯蔵材タンク内温度の実測と伝熱関連の材料物性特性の結果を元に冷却解析との合わせ込みを行ない数値解析からモデルのあたり付けを行う。具体的には冷却構造の体積が最小となるよう冷却構造として冷却棒(熱マス)の径、経路やフィン必要性等最適化する。

また同時に水素貯蔵密度 47g/L 以上、耐圧・シール性を満たすことを検証する。水素貯蔵材料のベンチマーク、および燃料電池車の水素タンクのベンチマークを行う。そのうえで、貯蔵材料に対して重量及びコストのガイドラインを設ける。また貯蔵タンクに対して重量効率の見通しとして現行タンク(5wt%)以上を一つの判断材料とする。



(2) サブテーマB 貯蔵材料の研究

本研究開発では、水素貯蔵材料の性能向上面と高密度化による体積効率向上の2点を中心に行いつつ、上述の事業で得られた知見をもとに、スピルオーバー水素、水素吸蔵合金との組み合わせによる水素貯蔵量のさらなる向上について研究開発を実施する。

① 水素貯蔵材料の比表面積向上

具体的には、ゼオライト鑄型炭素の鑄型であるゼオライトは三次元的に連結して規則配列した細孔構造を有している。この細孔はスーパーゲージと呼ばれる空洞で連結しているためこの空洞容積（長さ）がさらに長い構造を持つ鑄型などの探索と、炭素源の鑄型細孔内への充填を行うことで比表面積の向上を達成する。

② 水素貯蔵材料の高密度化

吸着材の高密度化、及び高密度化した際の比表面積の減少が水素貯蔵に大きく影響する。高密度化については、①項の比表面積を向上した炭素系吸着材の粒子滑りによる圧縮時の荷重損失を減少するため、吸着材粒径の影響調査、粒径の異なる炭素系吸着材を組み合わせることで得られる粒子隙間の減少、架橋材料の最適化を行っていく。

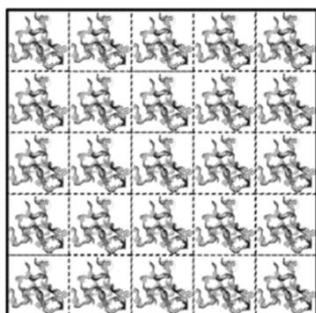


図 3.3.2.1 粒径がそろった ZTC の場合

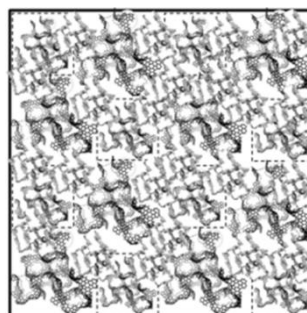


図 3.3.2.2 粒径を変えた ZTC の場合

③ 水素貯蔵材料の細孔径分布改善

①項で述べたように、連結したスーパーゲージ内部に炭素源を効率よく充填することにより、スーパーゲージ構造の忠実な転写を行うため、最適な炭素源、含浸条件、重合条件を見出していく。

④ 水素貯蔵材料と触媒金属・水素吸蔵合金と組み合わせによる水素貯蔵量向上

炭素系吸着材の表面に触媒金属を担持させることでスピルオーバー効果により水素の化学吸着も期待できることを確認している。このスピルオーバー効果に加え、触媒金属（例えばニッケルなど）との合金で構成される水素吸蔵材料と炭素系吸着材の組み合わせを行うことにより、水素貯蔵量を向上させる。その際には、吸着・吸蔵による水素充填時の発熱量も変化するため、発熱量も測定し、豊田合成社のタンク内熱交換検討にフィードバックを行っていく。

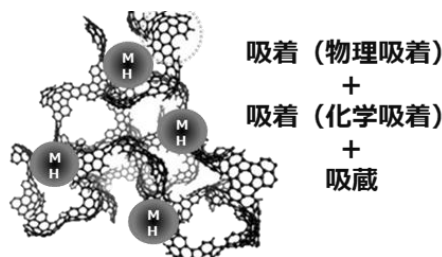


図 3.3.2.3 触媒金属・水素吸蔵合金と組み合わせ

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) 水素貯蔵材料の性能向上により、水素タンクの小型化を可能とし燃料電池車の航続距離の延長と車室空間拡大の両立の課題解決に貢献する見通しができた。モビリティ向け水素タンクの貯蔵材料として、乗用車/商用車 FCV への搭載を視野に事業化展開を行なっていく。さらに材料開発において実証されてきた、35MPa での 1.5 倍の水素貯蔵量の製品展開（海外向け・フォークリフト等の移動体）や 10MPa～20MPa での 3 倍の水素貯蔵量の製品展開（定置用ポンペ等）を併せて事業化して取り組んでいく。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2021.11.1 2	2021- 185156	高压タンク	豊田合成株式会社
2	2022.03.1 8	2022- 044491	ガス容器の組立方法及びガス容器	豊田合成株式会社
3	2022.03.1 8	2022- 044481	ガス容器	豊田合成株式会社
4	2022.03.1 8	2022- 044472	ガス容器	豊田合成株式会社
5	2022.03.1 8	2022- 044454	ガス容器	豊田合成株式会社
6	2022.03.1 8	2022- 044439	ガス容器	豊田合成株式会社
7	2022.03.1 8	2022- 044422	ガス容器	豊田合成株式会社
8	2022.03.1 8	2022- 044416	ガス容器	豊田合成株式会社
9	2022.03.1 8	2022- 044392	ガス容器	豊田合成株式会社
10	2022.03.1 8	2022- 044369	ガス容器	豊田合成株式会社

—研究発表・講演、文献等、その他—

なし

課題番号（管理番号）： HS08

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／機械学習を用いた高圧水素複合容器の最適設計技術に関する理論検討及び実証研究」

実施者： 株式会社 SUPWAT、（東京大学 生産技術研究所）

期間： 2021年6月～2025年3月

1. 研究開発概要

2050年カーボンニュートラルを実現するための牽引役として高圧水素燃料電池自動車が位置付けられており、その普及拡大のためには最も高価な主要機器である高圧水素容器の低価格化が必須である。高圧水素容器の安全性を確保しつつ、飛躍的コストダウンを実現するためには、高度な設計手法が必要である。そこで、これまで個々の企業に蓄積されたノウハウに基づく設計の問題点を抜本的に解決し、今後世界規模で加速するであろう高圧水素容器の開発競争に日本独自の手法により楔を打ち込むため本研究開発を実施する。その成果により高圧水素容器の低価格化が進み、日本製燃料電池自動車の普及拡大を通じて日本経済への貢献を目指すものとなっている。

CFRPの強度をフルに活用し使用量を低減し、ひいては低コスト化につながり得るタイプ4容器は、高密度ポリエチレン製ライナーの全面に炭素繊維強化プラスチック(Carbon Fiber Reinforced Plastic, CFRP)を巻き付けて成形した容器であるため、口金近傍の構造は他の種類と比較すると各段に複雑であり、またCFRP層の材料特性は繊維の巻き方向や厚みの影響を受けるため、材料特性のモデリングや従来の破壊力学的手法に基づく解析が非常に困難である。一方、ここ数年におけるディープラーニングなどの機械学習技術の飛躍的発展に伴い、形状やワインディングパターンだけでなく、樹脂・炭素繊維の材料特性を含めたより広範かつ大規模なパラメータに対し、限定的ではあるが設計最適化に適応できる解が導出可能となっている。そこで本研究開発では、既の実績のあるタイプ4容器に関する有限要素解析技術のさらなる高度化を推進しつつ、多数の最適解候補の系統的創出と破裂シミュレーション結果を入力データとし、機械学習を用いた革新的なタイプ4容器の最適設計技術を確立する。また機械学習に用いたデータを蓄積し大規模データベース化することにより、データの相互利用により開発スピードを促進するシステムの開発を行う。本研究開発では、最適設計の実現可能性検証まで含めて、株式会社 SUPWAT および東京大学の2者により以下の研究開発を実施する（図1）。

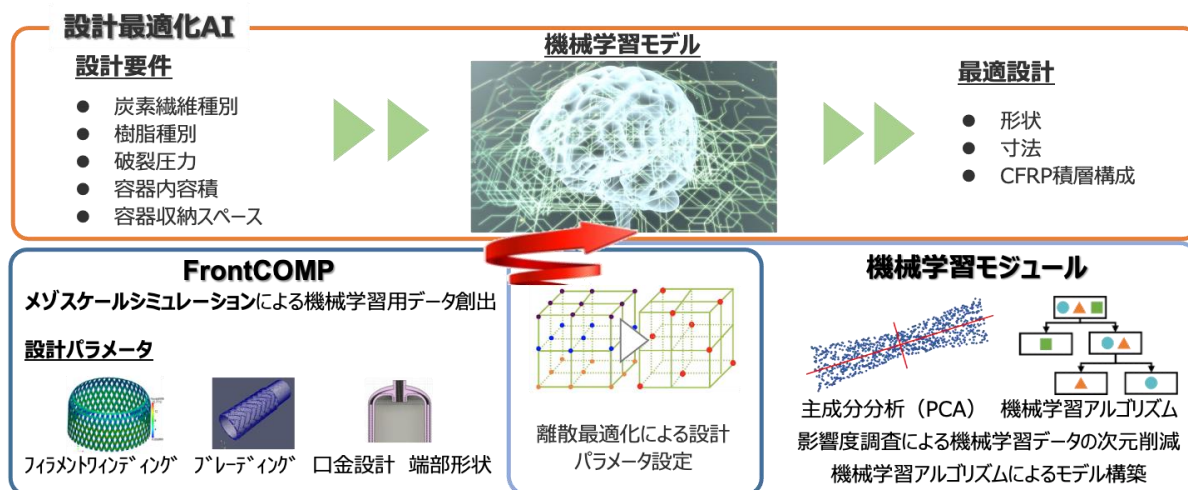


図1. 設計最適化 AI の構築

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

(1) 目標設定

①中間目標（2022 年度末）

- 一般事象データ（材料に関する一般的なデータ）と 100 ケース程度の設計パターンに関するメゾスケール有限要素解析の結果から設計を支配する力学応答を自動的に抽出し、最適設計のコアとなる機械学習モデルの構築が完了する。
- 破裂圧力、容器内容積、容器収納寸法、材料種別などの設計要件を入力とし、炭素繊維使用量が最小となる最適設計候補を創出する設計最適化 AI を構築し、最適設計候補を 3 例以上提示する。

②最終目標(参考)（2024 年度末）

- 大規模データベースを入力データする機械学習によるタイプ 4 容器の最適設計技術を確立。破壊圧力規準でタイプ 4 容器で炭素繊維量を約 35%削減し、0.7 万円/L の目標を達成する。

(2) 目標の設定の考え方

①現在の開発目標が設定された背景

形状や容器個数なども考慮に入れた自由度の高い設計や、大型車両や産業車両さらには鉄道やドローンなどに搭載するより多様な容量と耐圧性能の要求に応える最適容器設計システムがマーケットニーズとして存在する。それらに加え、今後は国内の多くの事業者が高圧水素容器の開発に参入しやすくするため、最適設計技術の汎用化が求められている。

②ベンチマーク（国内外）結果との比較

上市実績のある新型トヨタ MIRAI 比で、より軽量の容器設計を導出することを目標とする。

③産業界等のニーズに対する研究開発目標レベルの妥当性

2025 年頃に FCV を HV 並の価格競争力へ価格差低減とする水素・燃料電池戦略ロードマップをもとに、本事業期間で実現可能な目標を設定（参考：水素貯蔵システム 約 70 万円→30 万円）した。国内容器メーカーの参入により国内全体の生産規模が拡大することによる価格低減も見込んでいる。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
①有限要素解析による学習データの蓄積ならびに最適設計機械学習モデルの構築	有限要素解析結果から設計を支配する力学応答を自動的に抽出し機械学習データを生成するスキームを確立。	全収集データについて FE モデルの作成が完了。またそれらをベースに大量の FE モデルを生成し有限要素解析を実施し機械学習の入力データとして蓄積。	○	なし
②タイプ 4 容器に関する最適設計探索システムの構	炭素繊維使用量が最小となる最適設計候補を創出する設計	1 万件の有限要素解析結果をもとにした、破裂圧力の予測モデルを開発完	○	製造した容器実機の破裂試験結果や製造工程を考慮した、最適

<p>築</p>	<p>最適化 AI を構築。 最適設計候補を 3 例以上提示。</p>	<p>了。現在モデル精度の向 上に取り組んでいる。 並行して有限要素解析モ デルにボイドに代表される 製造欠陥の影響を組み 込むため、容器実機のボイ ドデータおよび製造条件の ばらつきデータを入手し、モ デル化の手法を検討中。</p>	<p>設計探索プログラムの 開発および改良。</p>
----------	---	---	--------------------------------

3.2 研究開発の詳細

(1) 有限要素解析による学習データの蓄積ならびに最適設計機械学習モデルの構築

国内外の容器設計データから積層構成を自動的に変更し、さらに有限要素解析結果から設計を支配する力学応答を自動的に抽出し機械学習データを大量に蓄積するプログラムの開発が完了した。またそれら大量のデータから破裂規準となる CFRP 層の最大繊維方向ひずみを予測する機械学習モデルの開発が完了している。現時点では予測精度の指標となる決定係数は 0.7 程度のため、今後は容器設計データのバリエーションを拡大して入力データ数を 100 万程度まで増加させて精度向上を図る。

(2) タイプ 4 容器に関する最適設計探索システムの構築

先述の機械学習モデルをベースとし、破裂部位についても考慮しつつ、軽量かつ破裂規準を満たすパレート最適化を導出するアルゴリズムを開発中であり、1 万件以上の有限要素解析結果をもとに最適設計候補を探索するプログラムが運用開始できる状態となった。容器実機の破裂起点との整合性を取るべく、破裂規準の精緻化を実施中。

(3) ボイド等の製造ばらつきに関する調査およびモデル化

製造時の不確定変動要因に対しロバスト性の高い容器最適設計への拡張のため、主要因と考えらえる製造欠陥であるボイドの生産品での発生状況を調査。その結果、鏡部/肩部/胴部といった部位ごとの変形モードを考慮する必要性が明らかになり、得られたボイドの特徴量（位置、大きさなど）をもとに、ボイドによる容器破裂圧低下メカニズム解明のための CFRP メソスケール解析に着手している。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) タイプ 4 容器に関する最適設計探索システムの構築

製造現場のノウハウも取り込んだ容器実機を忠実に再現する有限要素モデルを構築する手法を確立し、開発が完了した大量の有限要素解析結果を入力データとする最大繊維方向ひずみ予測技術を開発する。具体的には、すでに入手した実容器のボイドデータおよび製造条件のばらつきデータから、機械学習モデル等を用いて製造ばらつき要因を調査し、ボイドの影響を反映させたメソスケールズーム解析を行い、ボイドによる局所的強度低下を考慮した最適設計クライテリアを構築し、最適設計探索システムに盛り込むことで、製造ばらつきを考慮した最適設計候補の導出を行う。最終的には容器実機の破裂試験との比較を通じて最適設計手法の妥当性を示す。

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) ビジネスモデルの構築および初期検証

本事業の実用化・事業化に向けたビジネスモデルについては、容器設計データ100万件以上を蓄積したデータベースをもとに AI・機械学習による最適設計候補の導出が可能なプラットフォームを開発/提供する。サブスクリプション型によるメーカー各社へのアカウント発行とし、容器販売価格10数万円/個のうち数%程度をレベニューシェアすることで売上創出を図る。まずはすでに連携している自動車 OEM 殿との初期検証を進めつつ、国内外新興容器メーカーでの利用も想定し情報交換を実施している。

(2) 知財戦略

AIや機械学習に供した入力データ、および設計候補として導出された出力データにそれぞれについて、知財戦略を策定中である。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

なし

課題番号（管理番号）： IS01

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発/可逆動作可能な固体酸化物燃料電池の開発とエネルギー貯蔵システム」

実施者： 国立大学法人九州大学、国立大学法人北海道大学、特殊技研金属株式会社

期間： 2020年9月～2022年6月

1. 研究開発概要

本プロジェクトでは、第5次エネルギー基本計画や水素・燃料電池戦略ロードマップ等で定めるシナリオに基づき2030年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システム（水素貯蔵タンク等を含む）を実現するためのユーザーニーズに基づく協調領域の基盤技術を開発することにより、世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立することを目的とする。

燃料電池は化学燃料から電力への高効率な変換装置と考えられているが、逆動作した電解も、高効率な電解装置として期待される。とくに高温での水蒸気電解は、環境熱(T・S)を利用することで、投入電力を減少できるので、高効率な電解装置として実用化が期待されるとともに、環境熱に中低温排熱を用いると、水素という形で時空を超えての排熱の運搬を実現できる。そこで、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とともに、太陽電池で起動可能な1kW程度の小型の蓄エネルギー型電源への応用を視野に、水素で蓄エネルギーを行う新しい電源分野へのSOFCの応用の現実性を示すことを目的とする。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

発電と電解を可逆動作可能な低温作動型 Solid Oxide Reversible cell(SORC)の開発を、ガスシールの容易な小型円筒型セルについて検討し、SOFCの新しい応用分野になるエネルギー貯蔵への検討を行う。具体的な目標として

作動温度 600℃において、長さ 50mm のセルで、セルホルダーを用いて

- ・SORC 単セル発電性能：100mA/cm²時に 0.8V の端子電圧の達成
- ・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 0.4A/cm²を達成
- ・SORC 単セル発電耐久性：繰り返し 100 サイクルでの発電、電解性能の劣化率 5%以下

目標設定の考え方

従来の研究での 20mm の長さのセルの性能から、50mm の中尺セルにてほぼ同じ性能を達成するとして目標を設定した。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
①高効率発電および水素製造を両立する SORC 電極・電解質の	・作動温度 600℃において、長さ 50mm のセルでセルホルダーを用いて	・長さ 50mm のセルの作製を行い、セルホルダーを用いて起電力 1.05V を達成。長さ 50mm のセル	○	長尺化に伴い初期特性が低下しているので、初期特性の向上が依然として課題となっ

研究開発	<ul style="list-style-type: none"> ・SORC 単セル発電性能 : 100mA/cm² 時に 0.8V の端子電圧の達成 ・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 0.4A/cm² を達成 	<p>では 0.8V 時に 80mA/cm², 1.3V 時に 100mA/cm² を達成した。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・長さ 10mm のセルにおいて、Ni, Ce のインフィルトレーションを行うと、ほぼ理論起電力と 0.8V 時に 0.4A/cm², 1.3V 時に 0.35A/cm² を達成した。そこで、今後、50 mm のセルにおいても、集電方法を工夫することで、ほぼ目的とした性能を達成できると考えている。 ・燃焼合成法にて空気極材料の合成に成功。 ・燃焼合成条件、およびその後の熱処理条件の検討により、高比表面積化が行えた。 		<p>ている。インフィルトレーションする酸化物の種類と濃度の最適化が必要である。</p> <p>初期特性の向上のために、LSGM 電解質の膜厚の低下を行う必要がある。</p>
②新規SORC用LaGaO ₃ 電解質の湿式法による成膜と小型セルの高性能化、組セル化（シール技術の開発）	<ul style="list-style-type: none"> ・作動温度 600℃において、長さ 50mm のセルで、セルホルダーを用いて ・SORC 単セル発電耐久性 : 繰り返し 100 サイクルでの発電、電解性能の劣化率 5%以下 	<ul style="list-style-type: none"> ・長さ 10mm のセルにおいて、Ni, Ce の逐次 100 サイクル後に SOEC 0.5%、SOFC1.5%の劣化率を達成。 	○	<p>50mm 以上の長さのセルにおいて、セルホルダーへの接続の抵抗の低減が必要</p> <p>○ 繰り返し特性をさらに向上させる必要がある。</p>
③小型システムの試作と評価（水素貯蔵システム設計）	<ul style="list-style-type: none"> ・小型組セルのための基礎技術の確立 ・低温作動SORCの安定作動に資する蓄熱システムの基礎設計の達成 	<ul style="list-style-type: none"> ・50mm の中尺セルにて小型組セル基礎技術の確立として、Ag ペーストとガラスペーストを使用することでシールが出来る事を確認した。また 2 本の並列スタック化を検討した。 ・小型システムの試作と評価においては水素活性部・水素貯蔵部・再生可 	○	<p>Ag ペーストの塗布に関し、接続抵抗の低減が必要。</p> <p>更なる品質の向上が必要。</p> <p>水蒸気電解をする際、水蒸気と酸化防止用水素だけで運転できるか検討の必要があり、</p>

		<p>能エネルギーを利用した水生成部・セルの熱環境部には蓄熱材(MEPCM)を用いたシステム設計を行った。また、駆動中のセル内部の圧力を考慮し、水素貯蔵部の詳細仕様の設計を行なった。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・スタンドアローン型、SORC スタックへの組み込み型の二つの設計概念を見出した。 ・両設計に必須となる500~600℃に作動する潜熱蓄熱マイクロカプセルの開発に成功した。 ・スタンドアローン型における熔融塩、組み込み型における空気極・燃料極と、開発した蓄熱材の良好な熱・化学的安定性を確認した。 	<p>さらなる繰り返し評価が必要。</p>
--	--	--	-----------------------

3.2 研究開発の詳細

①高効率発電および水素製造を両立する SORC 電極・電解質の研究開発

従来から検討してきた小型円筒型セルの電解および発電性能を向上できる電極、電解質の開発を検討した。図 1 には、作成したセルの構成図を示した。従来の検討では電極として、燃料極の

抵抗が大きいことから、燃料極の抵抗を削減するために、図 1 に示すように、Ni-YSZ 多孔質基板上へ Ni 系の導電層の作成を行った。図 2 には Ni-SDC, Ni および Ni-Fe をコートしたセルの発電特性を示す。NiO をディップコートしたセルに比べ、Ni-SDC サーマット層を導入したセルでは、出力特性はむしろ低下した。これは、還元時の SDC の膨張により、部分的な剥離を生じたためと考えている。一方、Ni-Fe は通常のディップコート法で行い、作成後に 1000℃で焼成した。その結果、Ni-Fe 層を導入したセルでは図 2 に示すように、出力密度は

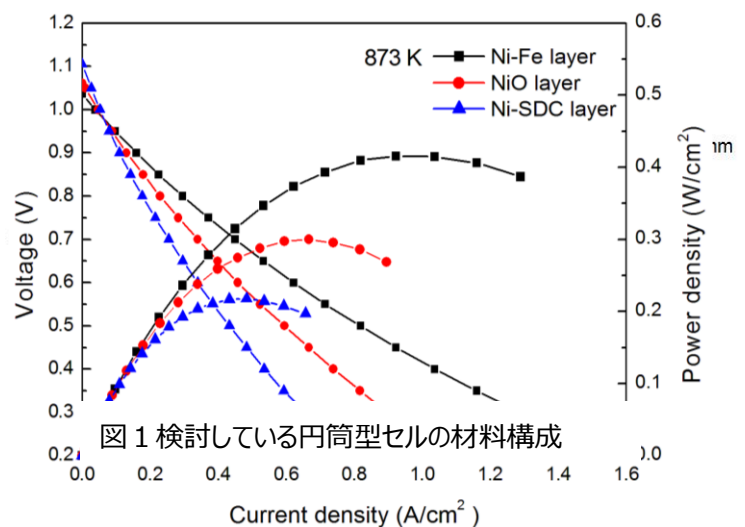


図 1 検討している円筒型セルの材料構成

大きく増加し、873K で $0.4\text{W}/\text{cm}^2$ を凌駕する結果を得ることができた。内部抵抗をインピーダンス測定したところ、IR 損が低下するとともに、過電圧を表す円弧の大きさが減少したことから、電気伝導の高い Ni-Fe 層の導入により、集電効果を上げることが可能となり、また電極の活性が向上したので、過電圧が低減できたと考えている。

一方、低温作動に向けては依然として、濃度過電圧が大きいことから、燃料極の電極過電圧の低減を目的に、図 3 に示すように Ni-YSZ 多孔質基板管への CeO_2 のインフィルトレーションを検討した。その結果、電極の IR 損および過電圧が大きく低減でき、出力密度が向上できることが分かった。開回路起電力はインフィルトレートした Ce 量の増加とともに、低下し、出力密度は増加することが分かった。しかし、Ce 量が多くなると起電力が 1V 程度まで低下することから、セルとしてスタック化を考えると望ましくなく、本研究では最適の Ce 量として 2M でインフィルトレートした条件と考えられる。この条件では作成したセルでは 600°C において開回路起電力 1.1V、最大出力密度 $0.75\text{W}/\text{cm}^2$ を

達成した。これは従来のセルと比べても十分、大きな出力密度と考えられる。内部抵抗は、依然として IR 損が大きく、電極過電圧もまだ、大きいので、Ni-YSZ 多孔質基板の電極性能や電導度の向上により、出力の向上が行えると期待される。

$\text{Ce}(\text{NO}_3)_3$ の NiO-YSZ 基板へのインフィルトレーションにより、初期発電性能が向上することを見出した。そこで Ce に加えて、もう一元素の共インフィルトレーション効果を検討した。その結果、Ni を Ce と一緒に共インフィルトレーションすると 600°C での発電特性は向上するとともに、繰り返し特性が向上できることを見出した。図 4 には Ni と Ce を共インフィルトレーションしたセルの SOFC/SOEC 繰り返し特性を示す。図に示すように共インフィルトレーションにより、繰り返し特性が大きく向上し、100 サイクル後の劣化率は、SOFC 側で 4.5% から 1.5% に低下し、SOEC 側で 3.5% から 0.5% に低減できた。初期の電解、発電特性も 550°C 以上では向上するが、温度低下とともに IR 損が大きくなり、電解特性および発電特性が低下することが分かった。現在までにインフィルトレーションが大きな性能向上を生じることはわかっているが、その発現機構は十分解明できていないので、本研究では、その機構について、ラマン分析により検討した。その結果、 CeO_2 の酸素欠陥が通常の CeO_2 に比べて大きく向上していることが示された。そこで、 CeO_2 の

図 2 Ni-Fe 層を導入したセルの発電特性

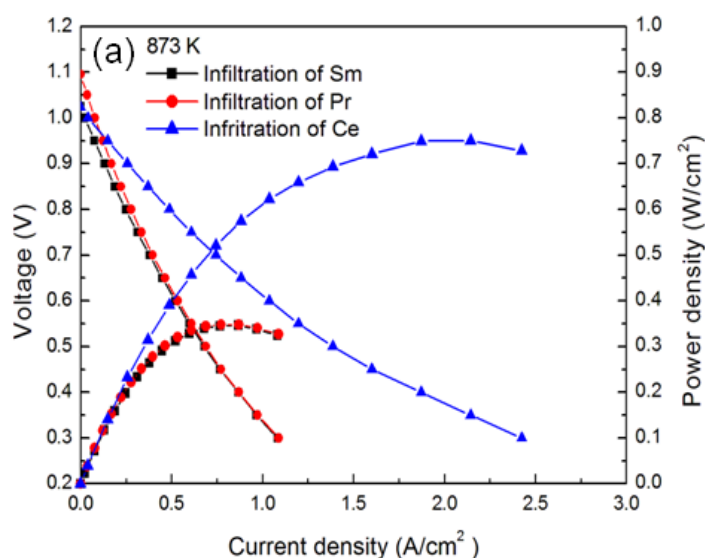


図 3 Ce をインフィルトレートした Ni-YSZ を基板とする SOFC の発電特性

インフィルトレーションでは、 Ce^{3+} 量が大きく増加し、表面への酸素欠陥の濃縮が低温まで、優れた電極性能を維持していることが分かった。一方、Ni-YSZ 基板では水蒸気電解中に Ni が再酸化され、凝縮や、

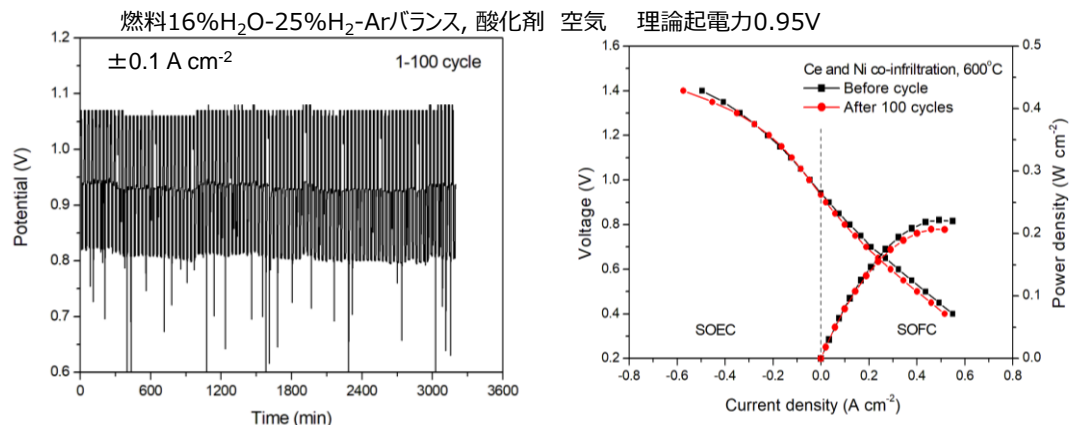


図4 Ce, Ni を共インフィルトレーションした Ni-YSZ 管を用いるセルの 100 サイクル繰り返し測定の結果(左) 繰り返し運転、(右)100 サイクル前後の I-V 極性 (10mm セル)

界面での濃度低下を生じることが分かった。Ni の成分を増加することで、Ni の消失や凝集による再酸化が抑制でき、繰り返し特性が向上できたと考えられる。Ni を他の元素に置換することで、活性と安定性を同時に達成可能な組み合わせがあると期待できる。

北海道大学では、燃焼合成法により電極・電解質の合成およびその微粉化および高比表面積化を検討した。本研究では、液相燃焼合成法を用いて SORC 電極材料である LSF の合成と高比表面積化を検討した。具体的には、硝酸塩を出発物質とし、液相燃焼に必要な燃料の

(種類グリシン or 尿素) および燃料比が LSF の比表面積に及ぼす影響を調査した。表 1 は各種条件で合成した LSF に対して BET 比表面積を測定した結果を示す。燃料としてグリシンを利用した場合において、燃料比 $\Phi=2$ の燃料過剰条件において、極めて高い比表面積の値を達成した。これらの結果をもとに焼成条件や燃焼プロセスをより詳細に検討することにより、所望の比表面積、粒子サイズの電極材料合成が期待できる。

表 1 液相燃焼合成製 LSF の BET 比表面積測定結果

燃料	燃料比(Φ)	比表面積(m^2/g)
グリシン	0.5	16.39
	1	7.869
	2	24.14
尿素	0.5	2.515
	1	4.598
	2	1.133

②新規 SORC 用 LaGaO₃ 電解質の湿式法による成膜と小型セルの高性能化、組セル化

作動温度 600℃において、セルホルダーを用いた長さ 50mm セルの作製を目標に、新規 SORC 用 LaGaO₃ 電解質の湿式法による成膜において性能の向上として Ce のインフィルトレーションを行い、熱衝撃性の向上として、NiFe の塗布、LSGM の多孔質膜の塗布をセル製作プロセスに組み入れ確立した。また、セルの塗布において 1 方向の塗布においては上部と下部で 30 μm と 60 μm と膜厚の差が出てしまうため、電解層塗布の中間回数あたりで上下の方向を逆にする塗布方法を確立した。結果膜厚の差は 10 μm 程度に抑える事ができ、ある程度均一な膜厚のセルを作製することが出来たので、セル製作プロセスに組み入れる事とした。

30mm のセルにおいて Ce インフィルトレーションを行い従来の物との発電特性比較を行い、Ce インフィルトレーションが有効であることを確認した。電極面積はそれぞれ 1.66 cm^2 と 1.52 cm^2 と差はあるが、ほとんど同じと判断し、700℃での還元時もインフィルトレーションしていないもので 1.0597V、インフィルトレーションしたもので 1.0556V であり、これも 10mm セルとほぼ同じと考える。0.2V 時点での電流密度を見ると 600℃においては

0.1A/cm²と13.5%向上しており、550℃では0.11A/cm²と33%向上し、500℃では0.066A/cm²で51.6%向上しており、Ce(NO₃)₃のインフィルトレーションの有用性を長尺セルでも確認した。図5にI-V曲線を示す。

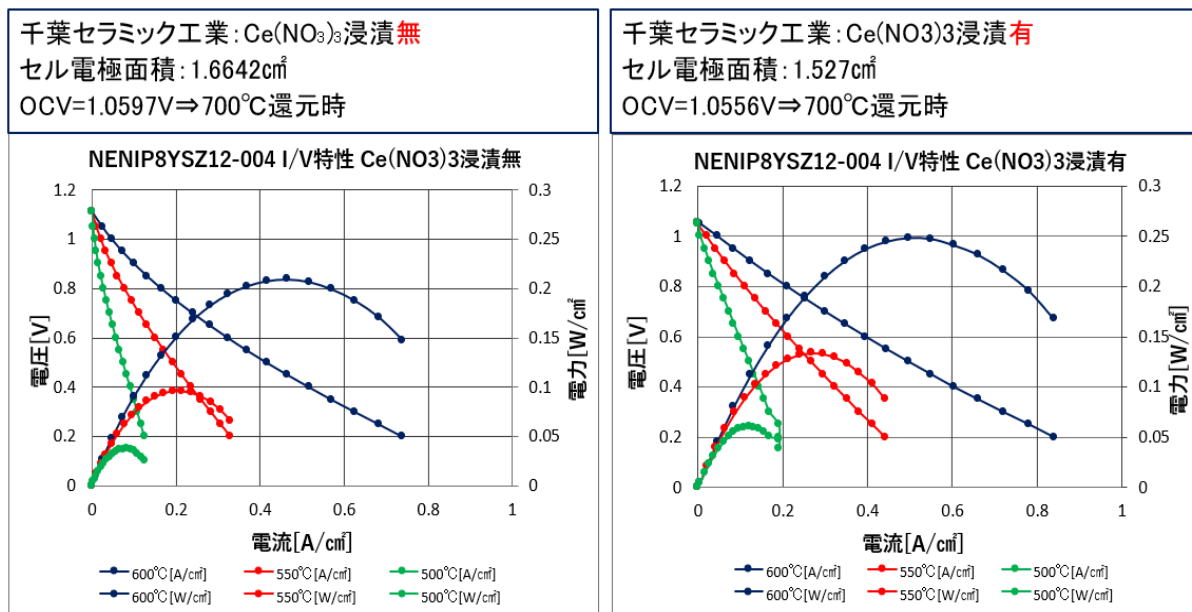


図5 Ce(NO₃)₃をインフィルトレーション有、無しの50mmセルの発電特性の比較

また、50mmの中尺セルにてほぼ同じ性能を達成するとして、作動温度700℃～500℃において、長さ50mmのセルを作製し、セルホルダーを用いてのI/V特性の測定を行った。図6にI-V曲線を示す。SORC単セル発電耐久性の測定を行い、単位面積当たりの出力は低下するものの、発電と電解を行うことが可能であった。繰り返し100サイクルでの発電、電解も行い、性能劣化率5%以下を達成できることがわかった。小型組セルの基礎技術の確立として、50mm中尺セルにAgペースト・ガラスペーストを使用する事でシールが出来る事を確認した。

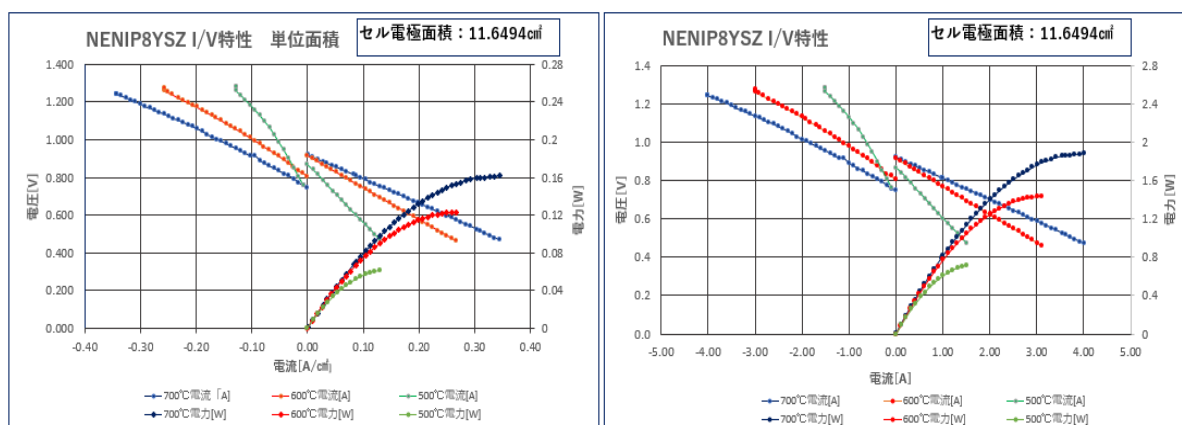


図6 作動温度700℃～500℃において、長さ50mmのセルのSORC特性(ホルダー付き)

(3) 小型システムの試作と評価 (水素貯蔵システム設計)

小型システムの試作と評価においては水素活性部・水素貯蔵部・再生可能エネルギーを利用した水生成部・セルの熱環境部には蓄熱材 (MEPCM) を用いたシステム設計を行った。水精製部は水道水より水を供給しフィルターを通し純水とした。水蒸気を発生させるための電力は太陽光パネルを利用し発電した電力を想定し、送液ポンプ送る設計にした。所定の温度に維持したオープンにて水蒸気を生成し、ほととモジュールに送入して水蒸気電解を行うシステムの設計を行った。熱の維持を目的に、セルの周辺を蓄熱材 (MEPCM) で囲むことで、500℃の温度で駆動するシステムの設計を行った。図7に本研究で検討しているシステムの概念図を示す。

水素貯蔵部は前段に気液分離器を設置し水素貯蔵装置に水素を送るシステムとして、1次タンク・2次タンクの容量・圧力、水素昇圧ポンプの詳細なシステム設計を行い、ホットモジュールと気液分離器の試作を行った。

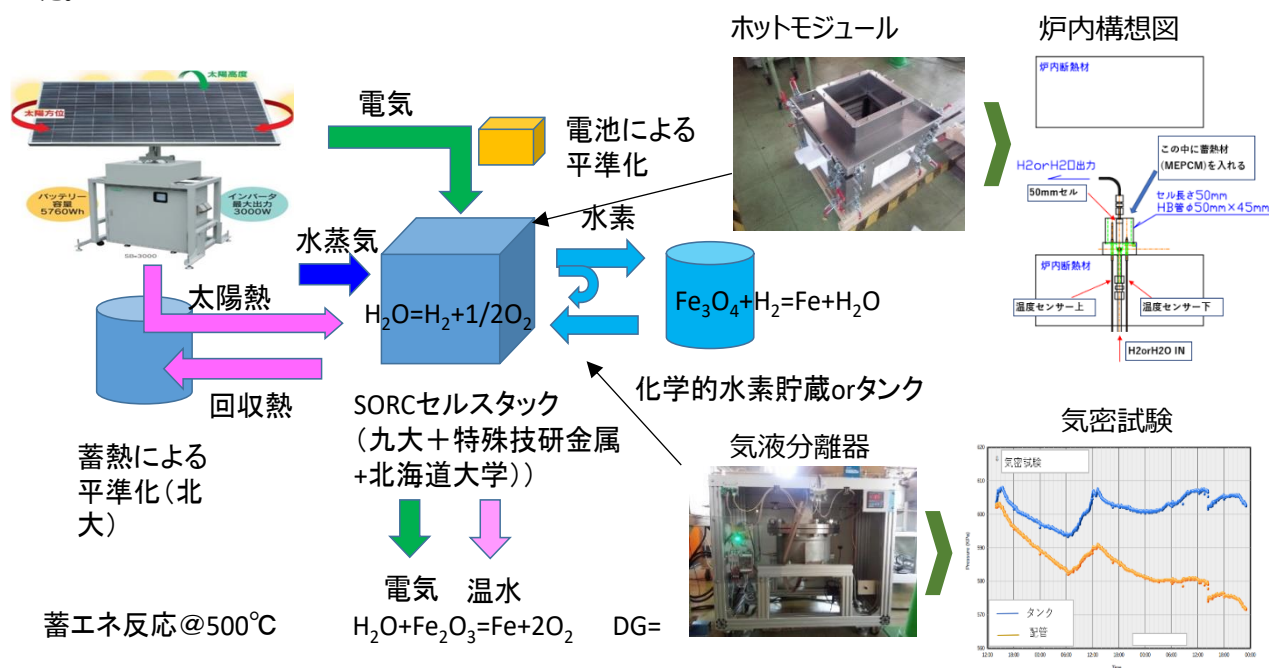


図7 本研究で検討しているシステムの概念図と試作した各装置の写真

一方、本システムでは熱の平準化を目的に蓄熱システムの導入を検討している。北海道大学では、不安定な熱源である排熱や太陽熱などの再生可能エネルギーを回収、マネージメントし、500～600℃程度の水蒸気を安定にSORCへ供給できる蓄熱システムを検討する。本研究では、新たに見出したSORCの作動温度500～600℃程度に適応可能な潜熱蓄熱材（相変化物質：Phase Change Material: PCM）候補であるAl-Cu-Si系（共晶温度：520℃）、Al-Cu系（共晶温度：548℃）、およびAl-Si系（共晶温度：577℃）のうち、特に本プロジェクトのターゲットである500℃近傍に融点を持つAl-Cu-Si系PCMに焦点を絞り、マイクロカプセル

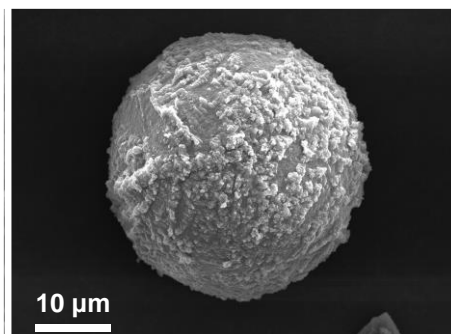
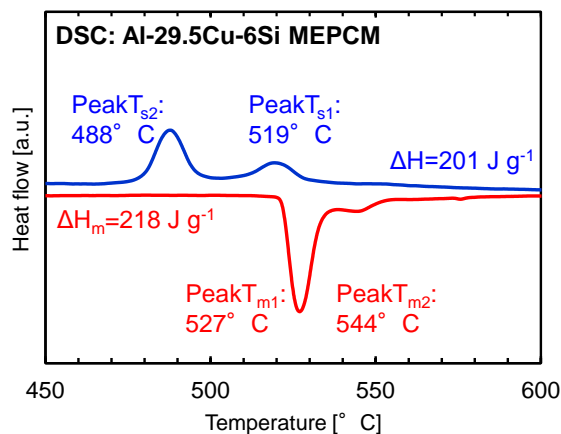


図8 作成した Al₂O₃ をシェルとし Al-Cu-Si 系合金を PCM とするマイクロカプセル PCM

化を主に検討した。その結果、図 8 に示すように、湿式法による前駆体形成と熱・酸化処理を組み合わせることで、主に Al_2O_3 をシェルとし Al-Cu-Si 系合金を PCM とするマイクロカプセル PCM の (MicroEncapsulated PCM: PCM) の開発に成功した。図 9 には作成した PCM の吸熱と発熱量の測定結果を示すが、この MEPCM は 520°C で作動し、蓄熱密度は約 0.7 GJ m^{-3} と極めて高い値を示した。さらに、空気雰囲気下 300 サイクルの耐久性と水蒸気雰囲気下での安定性を確認することができた。



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

現在、 CO_2 の排出量の削減を目的に、世界的な規模での太陽光などの再生可能エネルギーの導入が進んでおり、その蓄積と平準化の観点から水蒸気電解装置(SOEC)の開発が期待されている。一方、このような目的の SOEC による水素製造では、合成した水素からの電力の高効率な回生が必要であり、トータルで効率に優れた可逆動作型セル (SORC) の開発が重要である。本研究では、従来から開発してきた小型円筒型 SOEC セルを用いて、SOEC/SOFC のいずれにも優れた効率を示す SORC の開発に取り組む。

再生可能エネルギーを水素として蓄エネして使う際の最大の課題は、電力の供給が安定して、常にあるわけではなく、電力が提供されなくなった際には、作製しておいた水素を用いて発電を行い、再生可能エネルギーの低下した電力を補うことができるので、SORC は再生可能エネルギーの普及には無くてはならないデバイスと考えられるが、電解と発電時の温度バランスを取る必要があり、蓄熱機能が必要になる。またある程度の装置の待機時間が発生すると考えられるが、装置が待機している間の作動温度での維持が必要になり、SOFC モード時の熱エネルギーを蓄熱して、待機時の装置の温度維持を行うことができれば、装置のエネルギー効率が大きく向上できると期待される。

そこで、繰り返し特性に優れた 550°C 程度の蓄熱材を取り込んだ SORC スタックは理想的であり、現実の社会実装に適したセルになると考えている。日本の再生可能エネルギーは太陽電池が中心で、エネルギー発生時の時間変化が大きいので、今回提案し、開発する蓄熱機能を有する SORC は、再生可能エネルギーの普及とともに重要性が高まると期待される。

一方で、合成した水素の貯蔵ではタンクへの貯蔵のコストが高いことに加え、蓄圧のためのエネルギー効率が良くないことである。そこで、本研究では、従来より検討してきた水素の蓄圧方法については Fe の酸化と組み合わせるような化学的な貯蔵方法も検討し、SOFC での低温排熱を有効利用する新しい蓄エネ方法も視野に入れて開発を行う。Fe は酸化・還元($3\text{Fe} + 4\text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{Fe}_3\text{O}_4 + 4\text{H}_2$)により、約 5.5wt%の水素を貯蔵できるので、新しい水素の貯蔵媒体として期待されているが、酸化・還元には高温が必要なことと、酸化還元により焼結が進み、貯蔵量が低下することが課題であった。しかし、 350°C という低温での酸化還元を繰り返し安定に示すことのできる Fe 粉体の作成に成功しており、今回は、この Fe 粉体を、単純な蓄圧タンクに加えて用いることで、水素の蓄積容積と圧力を低減する予定である。水素の貯蔵を 10 気圧以下で行えるようにする意義は、装置の小型化や低コスト化において有用であり、化学蓄積との併用を行うことは有効である。

今回開発する SORC の実用化への計画は次の通りである。N E D O プロジェクト期間中にキーとなる、SORC の材料およびディップコート法による円筒型薄膜の長尺セル、スタック化、蓄熱材などの性能向上に見通しを立てる。連携する企業と共同で、小型組セル(100W 程度)を試作し、小型組セルを用いて蓄熱機能を

有するSORCに向けた基礎実験を行い、予測した効率や安定性に対して、課題を抽出し、実用化に向けた見通しを立てる。なお、本格的な実用化の時期は2035年頃を見込んでいる。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2020.2	J. Phys Energy, 2(2), 024004	Effect of Ni-based cathodic layer on intermediate temperature tubular electrolysis cell using LaGaO ₃ based electrolyte thin film	Zhe Tan, Tatsumi Ishihara
2	2021.1	Journal of Materials Chemistry A, 9(3), 1530-1540	Infiltration of cerium into a NiO-YSZ tubular substrate for solid oxide reversible cells using a LSGM electrolyte film	Zhe Tan, Jun Tae Song, Atsushi Takagaki, Tatsumi Ishihara
3	2021.6	太陽エネルギー, 46巻、6号 15-20 (2021)	カーボンニュートラルエネルギー社会の実現に向けた取り組みとCO ₂ 利用に向けた高温電解技術	石原達己
4	2021.12	セラミックス 56 (2021) No. 12	セラミックスをシェルとする中高温用相変化マイクロカプセルの開発	能村貴宏
5	2021.12	月刊省エネルギー Vol.73 No.12 2021	高温・高密度・高熱伝導率を可能にする潜熱蓄熱技術の可能性	能村貴宏
6	2020.12	第29回 SOFC 研究発表会	Ni-Fe fuel electrode layer for steam/CO ₂ electrolysis on Ni-YSZ supported tubular cell using LSGM electrolyte film	Zhe Tan, Tatsumi Ishihara
7	2020.9	日本鉄鋼協会第180回秋季講演大会	高温用 Al-Cu-Si 三元系合金相変化物質のマイクロカプセル化	川口貴大, 長俊介, 坂井浩紀, 能村貴宏, 秋山友宏
8	2020.9	化学工学会第51回秋季大会	500℃級 Al-Cu-Si 三元系相変化マイクロカプセルの耐久性向上	川口貴大, 長俊介, 坂井浩紀, 能村貴宏

9	2021.2	ICACC2021	Nano CeO ₂ into NiO-YSZ Tubular Substrate for Solid Oxide Reversible Cell Using LSGM Film	Zhe Tan, Tatsumi Ishihara
10	2021.3	INDO-ITALIAN Workshop	Effect of Nano-Ce Cations Modified NiO-YSZ Tubular Substrate on Solid Oxide Cell using dip-coated LSGM Electrolyte(Invited)	Zhe Tan, Tatsumi Ishihara
11	2021.5	FCDIC 第 28 回燃料電池シンポジウム	可逆動作のための小型円筒型固体酸化物燃料電池セルの開発	石原達己、Tan Zhe JunTae Song 高垣敦
12	2021.5	第 58 回 日本伝熱シンポジウム	高温熱エネルギー貯蔵のための Al-Ni 合金系相変化マイクロカプセル	清水 友斗, 石田 良介, 川口 貴大, 坂井 浩紀, KURNIAWAN Ade, 能村 貴宏
13	2021.7	SOFC-XVII	Redox Stability of Tubular Solid Oxide Cell Using LaGaO ₃ Electrolyte Film Prepared by Dip-Coating	Zhe Tan and Tatsumi Ishihara
14	2021.9	化学工学会 第 52 回秋季大会	潜熱蓄熱の新たな技術展開 (依頼講演)	能村貴宏
15	2021.9	化学工学会 第 52 回秋季大会	Al-Si 合金系相変化マイクロカプセルにおける過冷却の抑制	坂井浩紀・董凱欣・川口 貴大・Ade Kurniawan・能村貴宏
16	2021.9	化学工学会 第 52 回秋季大会	中温熱源利用のための Zn-Al 系合金相変化マイクロカプセルの開発	川口貴大・坂井浩紀・Ade Kurniawan・能村貴宏
17	2021.9	化学工学会 第 52 回秋季大会	高温用 Al-Si 合金系相変化マイクロカプセルの表面形態制御	味戸大祐・川口貴大・坂井浩紀・董凱欣・Ade Kurniawan・能村貴宏
18	2021.11	ACTSEA2021	Tubular Type Solid Oxide Reversible Cell Using LaGaO ₃ Electrolyte Film Prepared by Dip-coating Method	Tatsumi Ishihara, Tan Zhe

19	2021.11	6th Asian SOFC Symposium and Exhibition	Co-infiltration of Ce and Ni for Ni-YSZ Tubular Substrate for Solid Oxide Fuel Cell Using LSGM Film	Tatsumi Ishihara, Zhe Tan
20	2021.12	第 47 回固体イオニクス討論会	Coinfiltration によるチューブ型可逆動作固体酸化物形燃料電池の性能向上	劉彬, 丹羽栄貴, 高垣敦, 石原達己
21	2021.12	第 30 回 SOFC 研究発表会	CeO ₂ のインフィルトレーションによる LSGM 膜を用いる円筒型 SORC の可逆性向上	石原達己, Tan Zhe, 平田昌久, 能村貴宏
22	2022.3	電気化学会第 89 回大会	Ce と Ni の co-infiltration によるチューブ型可逆動作固体酸化物燃料電池の安定性向上	劉彬, 譚喆, 丹羽栄貴, Juntae Song, 高垣敦, 石原達己

課題番号（管理番号）： IS02

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発／高効率・高耐久・可逆作動 SOFC の研究開発」

実施者： 国立大学法人山梨大学（共同実施 株式会社リタケカンパニーリミテド）

期間： 2020年9月～2025年3月

1. 研究開発概要

可逆作動 SOFC は 1 つのセルで高効率な発電と、余剰電力を利用した水蒸気電解（SOEC）が可能であり、再生可能電力の平準化や高効率な電解能力を活かした Power to Gas への需要も見込まれている。これにより SOFC の稼働率が向上し、コストダウンへの貢献が期待できる。国内外で従来型 SOFC と同じ構成のセル・スタックを用いた試験も進められているが、SOEC モードのみに発現する Ni ロス等による劣化現象が解明されていない。そこで、本研究開発では、基礎に立ち返った耐久性向上と高効率化のコンセプトを確立し、企業と連携して可逆作動 SOFC の高効率・高耐久・低コスト化に取り組む。

本研究により、SOFC システム稼働率の向上による市場拡大とコスト低減効果が期待できる。さらに、開発ガスシール材料は通常型 SOFC にも適用可能であり、燃料利用率向上による発電効率の向上への波及効果が期待できる。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

中間目標

- 山梨大学開発セルでの水素極安定化現象を定量的に解析し、水素極材料開発指針を明確にする。
- 従来型 SOFC 単セル（協力企業提供）の可逆運転での課題を抽出し、課題解決の指針を提示する。
- 可逆作動 SOFC の運転環境（700～800℃、広範囲の水蒸気分圧）で水素リーク量（He リーク量で測定）が 1% 以内のガスシール材料を開発する。また、得られた成果を国際学会等で報告し、国内外に技術アピールを行う。関連特許 1 件の出願を目標とする。

最終目標

- アドバンス型セルの各種運転モード（電流変動、高電流密度、交互運転等）での劣化機構を解明する。劣化機構解明に基づき、可逆作動 SOFC の高耐久化運転指針を確立する。
- ガスシール材料および高性能水素電極材料の開発を行い、可逆作動 SOFC で実用的に使用可能な材料を創出する。電極材料およびガスシール材料について可逆 SOFC モードで評価し、初期 1000 時間の劣化率 1% 以下の見通しを得る。

開発目標設定の背景と産業界等のニーズ

従来型の固体酸化物形セルは、SOFC 作動モードで 9 万時間の耐久性見通しが得られているが、逆作動の SOEC や可逆運転で SOFC 劣化率の 10 倍以上の顕著な劣化が報告されている。プロジェクト提案時に設定した初期劣化率の目標（1%/kh）は、これよりずっと先行している。また、ガラスシール材料の開発目標は、極めて高いレベルである。

本研究開発目標は、産業界（SOFC スタックメーカー、ガス会社とシステムメーカー）との議論を経て提案したものであり、ニーズに合致している。スタックメーカーとガス会社は協力機関として関心表明書を提出し、定期的に技術協議連絡会に参加して最新の研究開発の方向性についても議論してきた。また、2021 年度からシステ

ムメーカーと NDA を締結した上で、技術交流会を開催して実用化への問題点も含めた議論を進め、2022 年 3 月からは協力機関に参画いただいた。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
A.可逆作動 SOFC 電極の高性能・高耐久化	山梨大学開発セルでの水素極安定化現象を定量的に解析し、水素極材料開発指針を明確にする。	<ul style="list-style-type: none"> ・SOFC/SOEC 可逆交互運転により、Ni-Co 粒子下部が SDC によって被覆され安定化することを初めて明らかにした。 ・Ni 面積分率と気孔率を触媒層の厚さ方向に分析し、可逆交互運転により、両者の変化が抑制されることを定量的に解析できた。 ・Ni-Co と SDC の相互作用により凝集が抑制され、有効反応領域が確保されと考えられる。この指針をもとに開発したアドバンス型水素極は、簡便な製法で従来と同等以上の初期性能を示した。 	○	解明された水素極安定化機構を活かした実用的製法の水素極の性能・耐久性向上。
	協力企業から提供される従来型 SOFC 単セルの可逆運転での課題を抽出し、課題解決の指針を提示する。	従来型（水素極支持）SOFC のコインサイズ単セルが可逆交互運転で劣化することを明らかにした。電気化学インピーダンスの DRT 解析により、水素極の劣化を示した。	○	運転条件の効果を解明。
B.水素電極材料およびガスシール材料の研究開発	可逆作動 SOFC の運転環境（700～800℃、広範囲の水蒸気分圧）で水素リーク量（He リーク量で測定）が 1%以内のガスシール材料を開発する。	<ul style="list-style-type: none"> ・従来の候補ガラス B-1(800～900℃)に加えて、低温シール（700～800℃）用ガラス材料 D-1 を開発し、大気雰囲気下での長時間の耐熱性を確認できた。 ・各ガラスをペーストやシートに安定的に形態加工できるプロセスを開発した。 ・各ガラス形態の高温、大気雰囲気下、長時間曝露による金属との接合に関する耐久性（接合強度など）を評価中。 	○	<p>水素電極材料：中量試作（数百グラム/ロット）プロセスの確立。</p> <p>ガスシール材料：可逆 SOFC 運転環境（運転温度、水蒸気分圧）における耐久性の明確化。</p>

		・開発した各ガラスシートを SOFC コインセルに適用し、可逆作動運転環境(700~800°C、Max 50%加湿 H ₂)での発電・電解時のガスリーク率が検出限界(1%)以下になることを確認できた。	
	得られた成果を国際学会等で報告し、国内外に技術アピールを行う。関連特許 1 件の出願を目標とする。	特許出願を準備中。	△ 可逆 SOFC 向けガラスシール材の特許出願。

3.2 研究開発の詳細

(1) Ni-Co ナノ粒子を混合伝導性サマリドープセリア (SDC) に高分散した水素極を有する山梨大学セルを種々の条件で運転し、微細構造の変化の観察とともに、FIB スライス加工して Ni-Co ナノ粒子の面積分率と気孔率の変化を YSZ 電解質界面から距離 L の関数として定量した。調製直後 (Pristine) は $L=2\sim 6\ \mu\text{m}$ で Ni はほぼ均一に分布していた (図 1)。SOEC 連続運転後には、触媒層の全域で Ni 面積分率が顕著に低下しており、これがオーム抵抗とオーム損を除去した過電圧上昇の原因と考えられる。他方、可逆交互運転により Ni の減少が抑制され、劣化が最も抑制された 1:1 運転で Ni の残留率が最も高くなっていた。YSZ 電解質界面付近の微細構造観察により、可逆交互運転後には Ni-Co ナノ粒子の下部が SDC 薄膜によって覆われて安定化していることを明らかにした (図 2)。

さらに、セルのコンディショニングとして、初期に可逆交互運転または SOFC 運転することにより微細構造が安定化され、その後の SOEC 運転時の劣化を抑制できることを初めて明らかにした。可逆作動 SOFC の柔軟な運転を可能にする重要な指針が得られた。

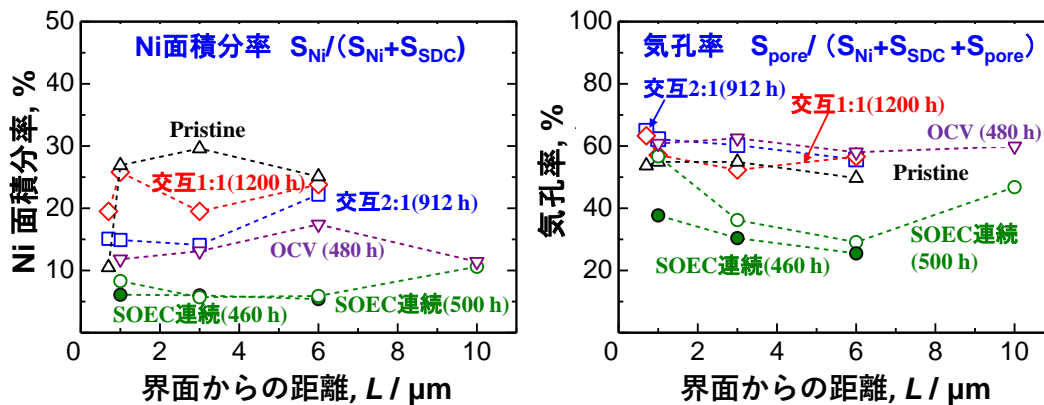


図1 Ni-Co高分散SDC水素極のNi面積分率と気孔率の変化. 2:1, 1:1はSOEC:SOFC運転時間の比.

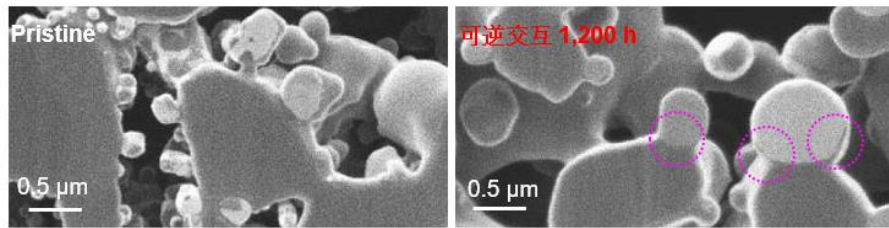


図2 Ni-Co高分散SDC水素極の微細構造の変化（Ni-Co微粒子の安定化）。

(2) 協力企業から提供された従来型（水素極支持）SOFCのコインサイズ単セルを上記の山梨大学開発セルと同じ運転条件で1:1可逆交互運転した。約900時間後からオーム抵抗の上昇と過電圧（オーム損除去）の増大が観測された。電気化学インピーダンスのDRT解析により水素極の劣化が示された。すなわち、可逆交互運転のみでは従来型水素極の劣化を抑制できないと考えられる。

(3) リタケが開発した均一粒径（約50 nm）のNi粒子をSDC粉末、増孔剤、溶媒と混合してペースト化した。これをYSZ電解質に塗布、焼結して水素極触媒層を調製した（アドバンス型Ni-SDC）。触媒層上にNi-YSZ集電層を取り付けた二重層構造とした。Ni-Coナノ粒子を含浸法でSDC表面に高分散していた従来法と比べ、非常に簡便な方法で触媒層中へのNiの均一分散に成功した（図3）。その初期分極特性は、Ni-Co高分散SDC水素極（従来法）と同等以上であった。

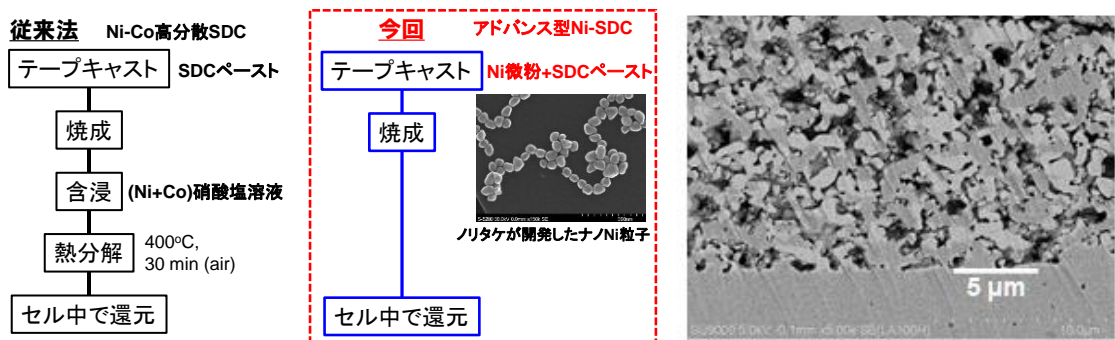


図3 アドバンス型Ni-SDC水素極触媒層の調製法とSEM(BSE)像。濃い灰色：Ni，明るい灰色：SDC，黒：気孔。

(4) ガラスシール材として高温域用B-1（800～900℃）と、低温域用D-1（700～800℃）を開発した。B-1は850℃、2000時間、D-1は800℃、500時間まで大気雰囲気下での耐熱性を確認できた（試験続行中）。また、各ガラスをペーストやシートに安定的に形態加工できるプロセスを開発できた。

開発した各ガラスシートを可逆作動SOFCコインセルに適用し、運転環境（700～800℃、3%または50%加湿H₂）での発電・電解前後で、中間目標（ガスリーク率1%以下）をクリアする封止性があることを確認できた（表1）。

表1. 大気雰囲気下、セル雰囲気（酸素極：酸素、水素極：水素+水蒸気）におけるガスリーク率。

シール材	ガラス B-1		ガラス D-1	
雰囲気	大気	セル	大気	セル
測定温度(℃)	850	800	750	700
ガスリーク率*	ND	ND	ND	ND

*ND: 検出限界(1%)以下。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 山梨大学開発セルの Ni-Co 高分散 SDC 水素極の安定化機構解析結果 (Ni-Co ナノ粒子と SDC の相互作用) と、従来の水素極支持型セルの劣化解析をもとにして、リタケカンパニーリミテドが開発中の粒径が揃った Ni ナノ粒子と SDC を混合焼結した水素極を有するアドバンス型セルを調製している。粒径が均一な Ni 系ナノ粒子材料の開発は、可逆作動 SOFC の効率と耐久性の向上に重要な課題であり、リタケカンパニーリミテドで高分散ナノ材料の創出とスケールアッププロセスを構築する。さらに、協力機関のシステムメーカーと可逆作動 SOFC の予想される運転モードを議論し、可能な限り幅広い運転モードでの性能と耐久性向上を目指す。

(2) 可逆作動 SOFC では SOEC 運転時の初期劣化率が高い。本研究プロジェクトでは、初期 1000 時間の劣化率 1%以下を目標としている。その後の安定化により放物線則で劣化速度を低下できれば、平均電圧劣化率として 0.5%/kh 以下を見通すことができると考えている。

(3) SOEC での高効率水素製造にはガスシール技術の確立が必要不可欠である。さらに、SOFC での燃料利用率向上による発電効率向上への効果も期待できる重要課題である。耐久性の基礎評価を進め、実用可能性を確認する。中間評価の時点で、水素極材料の第一候補と、700~800°Cの大気雰囲気及び可逆作動 SOFC 雰囲気でガスリーク率 1%以下の目標を達成している。今後、アドバンス型セルでの性能と耐久性の評価結果をフィードバックし、シール材と水素極材のベストチョイスにより、最終目標に到達可能と考えている。

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) 本プロジェクトには、材料メーカーのリタケカンパニーリミテドが共同実施で参画している。そして、スタックメーカー (森村 SOFC : 2020~2021 年度) とユーザー企業に想定されるガス会社 (東邦ガス : 2020 年度~) が協力機関として参加してきた。森村 SOFC が提供した従来型 SOFC ボタンセルを用いて、可逆運転した場合の課題を抽出した。本 PJ で定期的に開催している技術協議連絡会には、山梨大学と共同実施のリタケカンパニーリミテド、NEDO の担当主査に加え、上記協力企業からの登録委員等が参加し、活発に意見交換している (NDA 締結済み)。常に最新の研究開発の方向性を確認して、研究を進めている。

(2) 本研究では、可逆作動 SOFC で実用的に使用可能な材料の創出とともに、劣化機構解明に基づいた可逆作動 SOFC の高耐久化運転指針の確立を目標としている。プロジェクト終了後 5 年間の計画は以下のように考えている。2025 年度から、材料メーカー (リタケカンパニーリミテド) で水素極と封止材の量産プロセスを検討し、量産の目処を立てる。スタックメーカーはその量産試験品を用いて性能実証を進める。2028 年度から材料メーカーは水素極および封止材の量産品のフィールド展開を開始する。スタックメーカーは実機サイズセルの性能と耐久性実証を進めつつ、システムメーカーと共に製品開発を進める。2028 年度にはシステムメーカーがガス会社等と共同で実証運転を開始する。山梨大学は、材料メーカー、スタックメーカー、システムメーカー、ガス会社等との技術協議などを通じて、事業化を支援する。

(3) 2022 年 3 月からは、協力機関として東芝エネジーシステムズが参加した。早い段階からシステムメーカーが入ることにより 3 年程度の開発期間前倒しが期待できると考えている。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2020年 10月	Journal of the Electrochemical Society	Remarkably Improved Durability of Ni-Co Dispersed Samaria-Doped Cerium Hydrogen Electrodes by Reversible Cycling Operation of Solid Oxide Cells	H. Uchida, H. Nishino, P. Puengjinda, K. Kakinuma
2	2021年 2月	Journal of the Ceramic Society of Japan	Depth-Direction Analysis of Nickel Depletion in a Ni- Gadolinia-Doped Cerium Hydrogen Electrode after Steam Electrolysis Operation	H. Uchida, M. E. Brito, H. Nishino
3	2021年 7月	ECS Transaction	Changes in Microstructure of NiCo-Dispersed SDC Hydrogen Electrodes for the Improvement of Durability via Reversible Cycling Operation Between SOEC and SOFC-Modes	H. Uchida, H. Nishino, Eman H. Da'as
4	2020年 10月	Solid State Ionic Device 13 in PRiME2020	Improvement of Durability of NiCo-Dispersed SDC Hydrogen Electrodes via Reversible Cycling Operation Between SOEC and SOFC-Modes (招待講 演)	H. Uchida, H. Nishino, K. Kakinuma
5	2021年 3月	第88回電気化学会	固体酸化物形セル用 Ni-Co 高 分散 SDC 水素極の可逆交互運 転による微細構造の変化	西野華子, Eman H. Da'as, 内田裕之

6	2021年 7月	SOFC XVII	Changes in Microstructure of NiCo-Dispersed SDC Hydrogen Electrodes for the Improvement of Durability via Reversible Cycling Operation Between SOEC and SOFC-Modes	H. Uchida, H. Nishino, Eman H. Da'as
7	2021年 5月	FCDIC 第28回燃料電池シンポジウム	SOFC/SOEC 可逆交互運転による Ni-Co 高分散 SDC 水素極の耐久性向上機構の解析	内田裕之, 西野華子, Eman H. Da'as, Peiling Lv
8	2021年 11月	6th Asian SOFC Symposium and Exhibition	Enhanced Durability of NiCo-Dispersed SDC Hydrogen Electrodes for Reversible Solid Oxide Cells (招待講演)	H. Uchida, H. Nishino, Eman H. Da'as
9	2021年 12月	第30回 SOFC 研究発表会	高効率・高耐久・可逆作動 SOFC の実用化に向けた研究開発	内田裕之, 西野華子, Eman H. Da'as, Peiling Lv (山梨大学), 山田祐貴, 高橋洋祐 (ノリタケカンパニーリミテド)
10	2022年 1月	ASEC-2 公開シンポジウム 2022	可逆作動固体酸化物形セル (R-SOC) の研究開発 (招待講演)	内田裕之

課題番号（管理番号）：IS03

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発/可逆動作型プロトン伝導セラミック燃料電池の新規な健全性評価・解析技術の開発」

実施者：学校法人日本大学 日本大学理工学部理工学研究所

：（パナソニックホールディングス株式会社）

期間：2021年6月～2025年3月

1. 研究開発概要

本研究開発で用いるプロトン伝導セラミック燃料電池（PCFC）は原理的に高い発電効率の実現が可能であるだけでなく、電気化学的に逆反応（PCEC）としても可逆的に利用することができ、リバーシブル固体酸化物セル(reversible-SOC,以下 r-SOC)としても動作可能である。この r-SOC を用いれば、再生可能エネルギー等の余剰電力が生じた場合には、高温水蒸気電解 PCEC により高効率な水電解を行い、CO₂フリー水素の製造ができ（Power to Gas）、電力が不足した場合にはクリーンで高効率な PCFC 発電を行うことができる。電力系統から見た場合、この r-SOC は電力需給調整可能な可変負荷として寄与することができ、かつ燃料電池システムから見た場合、システムの高い設備稼働率が期待できることになる。さらに、PCFC セル開発メーカーからは、「SOFC でこれまでに実績を挙げてきた性能表示式の知見を最大限活用することにより、PCFC の性能決定要因を明らかにし性能や耐久性を向上するための指針を示すこと」、「FC/EC モードにおける抵抗分離を行うことにより、セルの技術的課題を明確にすること、特にホール伝導が発電特性に与える影響を明らかにすること」、「非破壊検査を行うことによりセル内部のクラックを明らかにし、セルの機械的強度に関する課題を明確にしたいため、そのための評価方法を確立すること」の三つの要望が求められている。

以上のことからメーカーの要望事項ならびに、現状の研究開発背景として PCFC 材料研究からセル製造技術が確立しつつある現状を踏まえると、2025 年以降の先行的な研究ステージは PCFC セルの大型化や積層化（スタック化）した場合の「セルスタックの健全性評価」として、システム運転時の健全性評価技術や製造品質管理としての非破壊検査技術の確立が重要な研究開発となる。さらに PCC 性能評価については将来的にはシステム中におけるセルの健全性評価技術として、IoT を活用した遠隔自己診断機能として組み込むことを想定し、拡張可能な形へ性能の定式化を行っていく必要がある。そこで、本研究開発では、燃料電池の高効率化と高効率な水素製造技術に寄与する可逆動作型プロトン伝導セラミック燃料電池の健全性評価・解析技術の基盤技術開発を行なうことを目的としている。具体的には、①「ボタンセルを対象とした PCFC を用いた r-SOC セル健全性評価技術の確立」、②「PXR を用いたボタンセル非破壊検査による内部欠陥の検出技術の開発」の 2 つの研究開発項目に取り組んでいる。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

2.1 最終目標（2024 年度末）

本研究開発では、PCFC セル開発に取り組んでいるパナソニックおよび東京ガスのボタンセルを対象として可逆動作させた最大 1,000 時間程度の運転を行い、性能評価手法の構築と健全性評価式の構築を行うものである。先行する他の SOFC/PCFC プロジェクトとの連携を意識しつつ、PCFC/PCEC の技術的課題の抽出と r-SOC 実現可能性の見極めを行うため、表 2-1 に示す項目を実施することにした。

表2-1 本研究開発の最終目標

項目	目標
ボタンセルを対象としたPCFCを用いたr-SOCセル健全性評価技術の確立	<ul style="list-style-type: none"> ・r-SOCでの1,000時間までの耐久試験の実施による健全性評価手法による性能決定要因の導出 ・r-SOC運転時の技術的課題の抽出とそれによるr-SOC実現性の見極め
PXRを用いたボタンセル非破壊検査による内部欠陥の検出技術の開発	<ul style="list-style-type: none"> ・内部欠陥位置情報の特定 ・実ボタンセルにおけるX線イメージング像の取得と、評価技術としての提案

2.2 目標設定の考え方

本研究開発は、PCFCが次世代の燃料電池として2030年以降の実用化を目指して取り組むものであるのに対し、r-SOCとしては2040年以降の実用化を目指して取り組むものと想定した。従って最終目標の設定はPCFCモードについては、今後のセルサイズの大型化、高積層化および高耐久化研究へ向けた性能評価ツールとしての適用を、PCECモードやr-SOC動作時の技術的課題の抽出については先行的な研究としての位置づけを想定した。また、PXRを用いたボタンセル非破壊による内部欠陥の検出技術の開発についてはX線イメージング解析によって実験的に明らかになれば、燃料電池の製品開発において性能向上に資する有益な情報を提供できるツールとなるため設定した。

2.3 中間目標（目標設定の考え方を含む）

中間目標（2022年度末）を表2-2に示した。PCFC/PCECセルを対象とした性能決定要因を分離可能な抵抗分離式は世界中で未だ開発されていないためPCFC/PCECモードそれぞれ個別の評価式の構築が必須である。特にPCFCモードでの抵抗分離式を導出し、劣化要因を切り分けることが可能になれば、先行する他のPCFCプロジェクトとの連携によりPCFCセル開発を加速する効果が期待できることから最も優先すべき事項として設定した。

表2-2 本研究開発の中間目標（2022年度末）

項目	目標
ボタンセルを対象としたPCFCを用いたr-SOCセル健全性評価技術の確立	<ul style="list-style-type: none"> ・PCFCモードの運転データより、燃料極、空気極およびオーム損の各抵抗成分のガス組成、運転温度に対する依存性を明らかにする。さらにPCFC時の抵抗分離式を導出し、実測出力電圧を±5mVの精度で予測可能にする。 ・PCECモードの運転データより、燃料極、空気極およびオーム損の各抵抗成分のガス組成、運転温度に対する依存性を明らかにする。さらにPCEC時の抵抗分離式を導出し、実測出力電圧を±5mVの精度で予測可能にする。
PXRを用いたボタンセル非破壊検査による内部欠陥の検出技術の開発	<ul style="list-style-type: none"> 燃料極単層を対象としたイメージング画像の抽出と適用範囲の明確化（解析手法の確立） 燃料極単層において、イメージング内部欠陥位置に関する情報の取得

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
ボタンセルを対象としたPCFCを用いたr-SOCセル健全性評価技術の確立	<ul style="list-style-type: none"> ・PCFC 運転データより、燃料極、空気極およびオーミック損の各抵抗成分のガス組成、運転温度に対する依存性を明らかにする。 ・PCFC 時の抵抗分離式を導出する。 	<ul style="list-style-type: none"> ・PCFC モードでの抵抗分離式を導出 ・運転温度の低下に伴い空気極過電圧の低下が著しい ・東京ガスセルでは耐久試験を行い、オーミック損と燃料極過電圧の増大が劣化主要因 	◎	<ul style="list-style-type: none"> ・パナソニックセルでの耐久試験で劣化の主要因となる部位の明確化 ・パナソニック/東京ガスセル 600℃以下の低温域での抵抗分離式の導出
ボタンセルを対象としたPCFCを用いたr-SOCセル健全性評価技術の確立	<ul style="list-style-type: none"> ・PCEC 運転データより各抵抗成分のガス組成、運転温度に対する依存性を明らかにする。 ・PCEC 時の抵抗分離式を導出する。 	<ul style="list-style-type: none"> ・東京ガスセル PCEC モードでの抵抗分離式を導出 ・EC モードでは燃料極側過電圧が空気極過電圧よりも大きい ・セル全体ではオーミック損が占める割合が大きい 	△	<ul style="list-style-type: none"> ・パナソニックセル PCEC モードの試験方法の確立と抵抗分離式の導出 ・東京ガスセル EC モードでの耐久試験で劣化の主要因となる部位の明確化
PXR を用いたボタンセル非破壊検査による内部欠陥の検出技術の開発	燃料極単層を対象としたイメージング画像の抽出と適用範囲の明確化（解析手法の確立）	<ul style="list-style-type: none"> ・燃料極単層のサンプルを作製し X 線透過像の取得に成功 ・X 線エネルギーの適用範囲として Si (400) 基板を導入し 40.0keV のエネルギーの X 線放出に成功 ・燃料電池ボタンセルの厚さに関する適用範囲について、1mm 程度のサンプルへ照射したところ高い透過力を確認。 	○	<ul style="list-style-type: none"> ・厚さ何 mm までのサンプルが測定可能か具体的な適用範囲を検証、ないしは非破壊検査（切削無し）が可能か検証。 ・2022 年度導入した X 線カメラによって空隙等の内部欠陥の検査と、分解能について明確化
PXR を用いたボタンセル非破壊検査による内部欠陥の検出技術の開発	燃料極単層において、イメージング内部欠陥位置に関する情報の取得	<ul style="list-style-type: none"> ・燃料極単層Φ18mm サンプルにおいて、クラック位置に関して測定に成功 ・40 keV の X 線において、サンプル-検出器間の距離を 2m とすること 	○	<ul style="list-style-type: none"> ・空隙等の内部欠陥位置の測定 ・非破壊検査（切削無し）の測定 ・Ce の K 殻吸収端 (40.4keV) を利用し、

		で、25%の拡大像を取 得に成功		Ceの分布を観測
--	--	---------------------	--	----------

3.2 研究開発の詳細

(1) ボタンセルを対象とした PCFC を用いた r-SOC セル健全性評価技術の確立

2021年度～2022年度（2022年7月現在）においては、パナソニック株式会社および東京ガス株式会社製の PCFC ボタンセルを用いて様々なガス組成、温度、電流密度条件において FC モードでの運転試験を行ない、PCFC では参照極を用いずガス組成の変化のみのデータから抵抗分離式を初めて導出し、分析結果を企業へフィードバックすることでセルの改良研究に貢献した。

① パナソニック製セル

性能決定要因分析の基本式となる PCFC 抵抗分離式を導出した。式の導出にあたっては、これまで SOFC で開発してきた導出手順を適用した。具体的には燃料極ガス組成や空気極ガス組成、運転温度を因子として

開路電圧、出力電圧、内部抵抗をそれぞれ実測し、各条件における出力電圧を表すことができる燃料極(R_a)や空気極(R_c)のガス分圧依存係数と頻度係数を導出した。その結果、運転温度 600℃～700℃の範囲において $R_a \propto P(H_2)^{-0.25} \times P(H_2O_a)^{-0.1}$ 、 $R_c \propto P(O_2)^{-0.25}$ を仮定することで実測出力電圧を精度よく（実測電圧±5mV）予測することが可能となった。この抵抗式を複数のセルや温度依存性解析に適用したところ図 3.2-1 に示すように 700℃ではオーミック損が性能決定主要因であるが、600℃では空気極と燃料極の過電圧が共に大きく増加すると推定される結果を得た。一方で、実測開路電圧と理論開路電圧には大きな差異（ Δ OCV）が見られ、今回導出した解析方法はリーク電流を考慮していない。このため、今後はこのリーク電流分を考慮した新たな解析手法の検討に取り組むと共に、1,000 時間の耐久試験による健全性評価を実施していく。

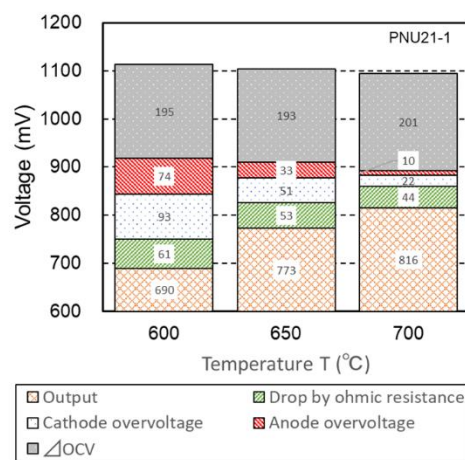


図 3.2-1 温度依存性解析(PCFC)

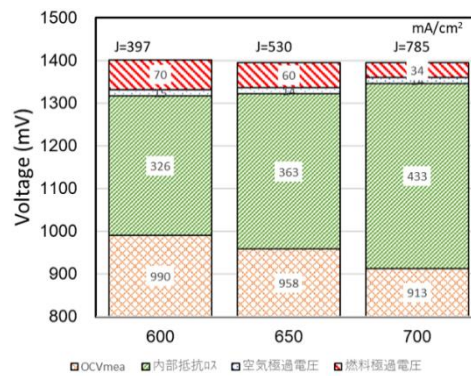


図 3.2-2 温度依存性解析(PCEC)

② 東京ガス製セル

性能決定要因分析の基本式となる PCFC および PCEC の抵抗分離式を導出した。運転温度 600℃～700℃の範囲において PCFC 側では $R_a \propto P(H_2)^{-0.5}$ 、 $R_c \propto P(O_2)^{-0.5 \sim -1.0}$ を、PCEC 側では $R_a \propto P(H_2)^{-0.1}$ 、 $R_c \propto P(O_2)^{-1.0} \times P(H_2O_c)^{0.5}$ を仮定することで実測出力電圧を精度よく予測することが可能となった。導出した式を用いて性能解析を実施したところ、PCFC モードではオーミック損と空気極過電圧が性能決定要因であるのに対し、PCEC モードでは図 3.2-2 に示すようにオーミック損と燃料極過電圧が性能決定要因と推定される結果を得た。また、PCFC モードで 600℃一定条件のもと 1,000 時間の耐久試験を実施した結果、図 3.2-3 に示

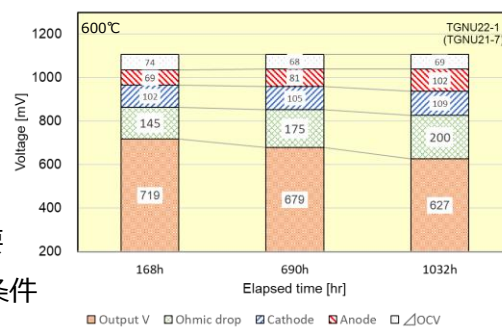


図 3.2-3 1,000 時間運転(PCFC)

す通り、劣化主要因はオーミック損と燃料極過電圧の増大が主要因であることを明らかにした。

(2) PXR を用いたボタンセル非破壊検査による内部欠陥の検出技術の開発

日本大学電子線利用研究施設(以下 LEBRA)のパラメトリック X 線源(以下 PXR 線源)を用いた、ボタンセル非破壊検査の技術開発に取り組んだ。X 線位相コントラストイメージングや高エネルギー単色 X 線イメージングなどの、加速器光源以外では困難な手法を駆使して撮像試験を実施し、着実に進捗している。

① 回折強調イメージング(DEI)による観測

PXR 線源は Si 単結晶に 100MeV の電子ビームを照射することによって発生するエネルギー可変単色 X 線を利用した X 線源である。空間コヒーレンスにも優れた X 線源であるため、X 線が試料物質を透過する際に受ける、数 μrad オーダーの屈折や散乱を画像のコントラストとして観測することができる。DEI はそれを実現する高感度な手法の一つである。

X 線エネルギー 25.5keV で DEI による撮像をした結果の一例を図 3.2-4 に示すが、このエネルギーの X 線では透過力に制約があるため、試料としては空気極や電解質層を切削し 0.5mm 厚程度にした試験的なものを用いた。試料の密度差に敏感で境界の視認性の良い位相コントラスト像では、アクリル製ホルダーの傷等は明瞭に現れたが、ボタンセル中にはクラック等は認められなかった。また、試料中の微細構造の有無や異方性に感度のある小角散乱像では若干のコントラストのムラが観測されたが、今回の試料は試験的なもので劣化の程度が不明であるため、画像のコントラストとセルの劣化との相関を議論するためには、劣化の進行した試料での測定を今後行っていく必要がある。

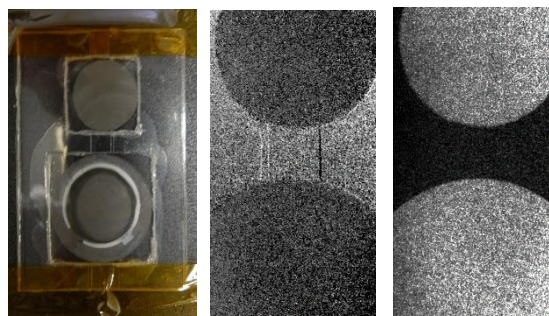


図 3.2-4 (左) 試料写真 (中) 位相(屈折)コントラスト像 (右) 小角散乱像

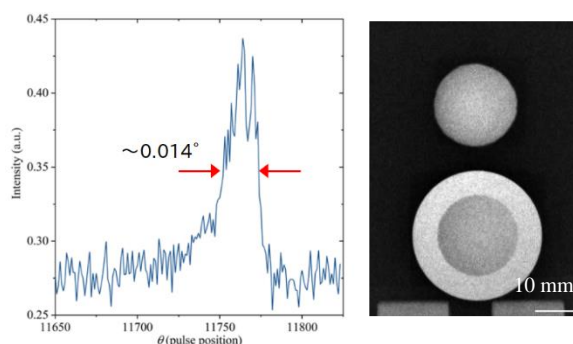


図 3.2-5 (左) 第 2 結晶回折曲線 (右) 40keV の PXR ビームを用いた PBI 法での撮像

② Si(400)結晶の導入による PXR 線源の高エネルギー化

既存の PXR 線源は X 線の放射源として Si(220)結晶を用いていたが、発生可能な X 線エネルギーの上限は 34keV であった。燃料電池のように重元素を含む試料に対しては 40keV 以上のエネルギーの利用が有利であるため、高次の結晶面を用いた PXR の高エネルギー化を検討した。理論計算により Si(400)の利用が有望であったため、PXR 放射源用と X 線ビーム反射・輸送用結晶を用意し、Si(220)結晶と交換で PXR 線源に導入した。Si(400)で PXR ビーム発生実験を行い、PXR 線源第 2 結晶での回折曲線として、図 3.2-5(左)のように理論と整合するものが測定され、ヨウ素吸収端の観測などにより予定通り高いエネルギーの単色 X 線ビームが得られたことを確認した。Si(400)の使用により、9.1~47.4keV の範囲での単色 X 線の発生が可能となる。特に 40keV 領域の X 線の生成が可能となったことから、Ce の K 殻吸収端(40.4keV)を利用し、Ce の分布を観測することも期待できる。Si(400)を用いる場合、現状では分光結晶を用いる DEI 実験の実施は困難であるため、伝搬法(PBI)と呼ばれる位相コントラストイメージングを試みたのが、図 3.2-5(右)である。エネルギー 40keV の X 線を用いたため、透過力が向上し、試料-検出器間距離を 2m にすることで約 25%の拡大像が得られている。劣化が進行した試料を観測した場合は、クラックが X 線の干渉により強調され、

視認性の良い像が得られると期待できる。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) ボタンセルを対象とした PCFC を用いた r-SOC セル健全性評価技術の確立

パナソニックセル：

- a. 実測開路電圧を基準とした PCFC モードにおける抵抗分離式を導出し、燃料極・空気極・オーミック損の分離評価が可能となった。しかしながら、新たな課題として、PCFC 特有のリーク電流を考慮した評価方法の確立が望まれている。このため、新たに定格負荷時におけるリーク電流を推定する手法の開発に取り組むと共に、初期の計画に示した温度をパラメータとした長時間運転時の劣化要因を定量的に評価する。
- b. PCEC モードについては、600℃以下の条件で高電解電流時に起因すると想定されるセルの破損現象が見られた。このため、電解電流を下げた状態や運転温度を上げた状態での基本特性の把握と抵抗分離式を導出する方向へ再考したため、やや時間がかかる傾向となる。式の導出後は温度をパラメータとした長時間運転時の劣化要因を定量的に評価する。
- c. r-SOC モードについては、共同実施者と連携を取りながら適切な評価プロトコルを検討し、最終年度に長時間運転時の劣化要因を定量的に評価することで r-SOC 運転時の技術的課題の抽出と実現可能性の見極めを行う。

東京ガスセル：

- a. PCFC/PCEC モードにおける抵抗分離式は導出したが、パナソニックセル同様にリーク電流を考慮した評価方法の確立が望まれている。このため、新たに定格負荷時におけるリーク電流を推定する手法の開発に取り組むと共に、計画通り両モードにおける長時間運転時の劣化要因を定量的に評価する。
- b. r-SOC モードについては、パナソニックセルと同条件の評価プロトコルを適用し、長時間運転時の劣化要因を定量的に評価することで r-SOC 運転時の技術的課題の抽出と実現可能性の見極めを行う。

(2) PXR を用いたボタンセル非破壊検査による内部欠陥の検出技術の開発

- a. 40keV の PXR ビームを用いて PBI 法による劣化ボタンセルの撮像を試み、微細もしくは浅く軽微なクラックを高感度に観測するための条件（試料—検出器距離）をしらべる。
- b. PBI 法による X 線像の測定に新規に導入した X 線画像検出器を用い、S/N を向上させるための条件などを洗い出し、空間分解能 10 μ m での撮像を試みる。X 線干渉の結果として生じるエッジ強調効果により、微細なクラックが視認可能となるか検証する。
- c. Ce の K 殻吸収端前後の X 線エネルギーで撮像した画像の差分を取ることで、Ce の元素マップの取得を試みる。電解層の Ce 濃度の不均一性の進行と、燃料電池としての劣化の相関を検証する。
- d. 40keV の高エネルギー X 線を用いた DEI の可能性について検討する。これが可能となると、燃料層あるいは電解層媒質の粒度変化を非破壊にモニターし、劣化との相関を検証することが可能となる。

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

本事業後は研究開発のフェーズ 2 として「大型・スタックへの適用性評価」、「実用サイズの非破壊検査手法の開発」、「三次元検査手法の開発」への移行を想定している。実用化に向けては、研究開発により得る知財の権利を確保したうえで、「セルの健全性評価技術」は燃料電池メーカーや測定機器企業へ技術移転・共同開発を推進し、IOT を活用した遠隔自己診断機能や定式化したセル性能を組み込んだ解析装置を新規システムに搭載することで実用化を目指す。また、「非破壊検査技術」については、特定の X 線のエネルギーを発生さ

せる X 線源の開発や機器の小型化が必要となるため X 線源の開発を得意としている企業や関連機器企業との共同開発を推進し、当該技術の移転を目指す。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No	年月	発表先	題目	発表者
1	2021/10/30	「燃料電池」, Vol.21, No.2, 燃料電池開発情報センター	【研究室紹介】日本大学工学部吉川研究室	吉川将洋（取材形式）
2	2022/8/9 (コロナ感染拡大による延期)	第19回日本加速器学会年会 (2022年8月8日~11日, 北九州国際会議場)	日大 LEBRA-PXR 線源による 40keV 単色 X 線の生成とその特性 (ポスター発表: TUPS029)	早川 恭史, 早川 建, 野上 杏子, 境 武志, 高橋 由美子, 田中 俊成, 胡桃 聡, 住友 洋介, 吉川 将洋

課題番号（管理番号）： IS04

研究開発テーマ名：「水素利用等高度化先端技術開発 / 低温作動水素透過膜支持型燃料電池の研究開発事業」

実施者： 国立大学法人北海道大学

期間： 2021年11月～2025年3月

1. 研究開発概要

SOFC の作動温度を 700°C から 400°C まで低減することができれば、船・大型車両の駆動用 FC など、SOFC の用途を拡大することができる。しかしながら、400°C で実用上必要とされる $10^{-2} \text{ S cm}^{-1}$ 以上のイオン伝導率を満たす電解質材料は未だ得られておらず、また 400°C でカソード分極抵抗を十分低減する手法が未開拓であるため、その温度域で作動する燃料電池の開発は停滞している。これに対し、近年プロトン伝導性 $\text{BaZr}_{1-x-y}\text{Ce}_x\text{M}_y\text{O}_{3-\delta}$ ($\text{M}=\text{Y}, \text{Yb}, \text{Sc}, \text{In}$ etc; BZCM) 電解質を用いた水素透過膜支持型燃料電池 (HMFC) は、その特徴的な欠陥分布形成により、400°C で 1 W cm^{-2} に迫るピーク出力を生むことが分かってきた。従来の HMFC は水素透過アノード基板に、希少金属である Pd 合金を大量に使用しており、大規模な社会実装は難しい。本研究では Pd 合金以外の水素透過材料を固体燃料極基板とした HMFC について、400°C 以下にて 0.5 W cm^{-2} ピーク出力を達成することを目標とする。これに対し水素透過アノード/酸化物電解質-接合界面でのプロトンポンピング効果を、最大化するための材料開発を行う。具体的には、① プロトンポンピング最大化を指向した高酸素欠損電解質の材料最適化、② 空気極機能層の開発とカソード分極抵抗低減、③ 非 Pd 系水素透過固体アノードへの成膜技術、および④ その発電性能実証、ならびに⑤ 多孔質アノード支持型セルによるプロトンポンピング効果の確認、以上 5 研究項目について検討を行う。具体的な研究目標は以下のとおりである。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

駆動用 FC への適用： HMFC は一種のメタルサポート型セルといえる。同型の SOFC は、従来のサーメット支持型セルに比べ熱衝撃性に優れると期待されており、駆動用 SOFC として検討されている。

出力密度： Pd 水素透過合金箔アノードと $\text{BaCe}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$ 電解質薄膜からなる HMFC は、400°C で最も高い出力 1 W cm^{-2} を達成している。一方で現在の SOFC 平板スタックは、750°C にて $0.8 \text{ V}-0.25 \text{ A cm}^{-2}$ で運用される。この場合、線形な電流-電圧関係を仮定するとピーク出力は 0.3 W cm^{-2} 程度と予想される。従って Pd 理想セルの半分程度の出力を達成できれば、十分な値と考えた。

作動温度： 駆動用 FC は繰り返し起動・停止が必要であり、よって作動温度は低いほうが望ましい。一方温度低下と共にプロトン固体電解質のイオン伝導率は著しく低下してしまい、実際先行研究で行った実験では 300°C まで低温になると、{cathode | $\text{BaCe}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$ | Pd}-HMFC の OCV は 1.0 V 以下まで低減し、効率的な発電はできないことがわかった。更に非 Pd 水素透過材料の有力候補である、遷移金属水素透過合金の使用温度上限が約 350°C であることを考慮し、作動温度を 400°C 以下とした。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成	今後の課題
----	------	----	----	-------

度				
① 高酸素欠損電解質の材料最適化	②で選定されたカソード機能層材料と組み合わせて、400°C 以下で電解質抵抗 $0.2 \Omega \text{ cm}^2$ 、およびカソード分極抵抗 $0.6 \Omega \text{ cm}^2$ 以下を達成する。	$\text{BaZr}_{0.5}\text{Sc}_{0.5}\text{O}_{3-\delta}$ (BZSc55) 薄膜と②で作成した $\text{Ba}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Fe}_{0.8}\text{Zn}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$ カソード機能層 (BLFZ-CFL; 150 nm) を組み合わせた HMFC で、400°C でオーム抵抗 $0.15 \Omega \text{ cm}^2$ および分極抵抗 $0.5 \Omega \text{ cm}^2$ を得た。	△	BZSc55 薄膜は、低温で製膜すると、非常に大きな抵抗を示すことが分かった。今後は低温製膜でも、低い抵抗を持つ材料を探索する。
② 空気極機能層の開発とカソード分極抵抗低減	上記①で選定された電解質材料と組み合わせて、400°C 以下で電解質オーム抵抗 $0.2 \Omega \text{ cm}^2$ 、およびカソード分極抵抗 $0.6 \Omega \text{ cm}^2$ 以下を達成する。	カソード機能層(CFL)として最適な材料に求められる条件は、高いプロトン伝導性、比較的小さな酸化物イオン伝導性および酸素還元活性、以上3点を兼ね備えることとわかった。	○	目標を達成したので、今後は高酸素欠損電解質の開発に注力する。
③ 非 Pd 系水素透過固体アノードへの成膜技術	水素吸蔵合金を酸化させない条件で金属酸化物薄膜を製膜する。	遷移金属水素吸蔵合金箔上に 50 nm の $\text{Pd}_{0.5}\text{Ag}_{0.5}$ 保護層を用いることで、真空蒸着法により、電解質薄膜を製膜可能。この場合 Pd の使用量は $4 \text{ g} / 100\text{kW}$ であり、自動車排ガス触媒量の $1/4$ 。	○	上記①で新たに開発する電解質薄膜についても、検討していく。
④ 非 Pd 系水素透過膜燃料電池の発電実証。	400°C 以下で、 0.7 V 定格出力で 0.5 A cm^{-2} 以上の出力を 100h 以上安定に取り出す。	VNi 合金アノードを用いたセルで、 0.6 V 定格で、 0.15 A cm^{-2} を達成した。また新たに開発した H^+/e^- 混合伝導性水素透過セラミクス $\text{BaZr}_{0.5}\text{In}(\text{II})_{0.5}\text{O}_{2.25}\text{H}_{0.5}$ (H-BZI) を使い、500°C にて 0.7 V 0.45 A cm^{-2} を達成した。	△	合金支持型セルに関し、①および③の成果をフィードバックし、新たな電池を試験する。H-BZI を用いたセルに関し、400°C での出力向上を図るとともに H^+ イオンの還元力を活用し、 $\text{N}_2\text{-H}_2\text{O}$ および $\text{CO}_2\text{-H}_2\text{O}$ 共電解への応用も検討していく。
⑤ 多孔質アノード支持型セル	従来の多孔質サームット支持型セル	$\text{BaZr}_{0.6}\text{Ce}_{0.2}\text{Yb}_{0.1}\text{Y}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$ (BZCY6211) 電解質から	×	水蒸気雰囲気非常に安定な BaZr_{1-}

<p>ルによるプロトン汲み上げ効果の確認</p>	<p>ルにおいて、アノード水分圧制御により、HMFC と同様なプロトン汲み上げ効果を実証。</p>	<p>なるサーメット支持型セルでは、アノード水蒸気分圧上昇に伴うプロトン汲み上げ効果、即ち抵抗減少は観察できなかった。</p>	<p>$x\text{In(III)}_x\text{O}_{2.75-x/2}(\text{BZI})$ 系電解質で再度検討する。</p>
---------------------------------	---	---	---

3.2 研究開発の詳細

(1) 高酸素欠損相電解質の材料最適化

HMFC が比較的高い出力を生む原因は、水素透過固体アノードと電解質の界面で、酸化物イオン伝導が阻害されることで蓄積し、さらに電気中性条件のため対カチオンであるプロトンが蓄積して、プロトンキャリアが増加することによる（プロトン汲み上げ効果； 図 1）。これにより従来構造セルと比較し、バルク抵抗とカソード界面反応抵抗を大きく減少することができる。この原理に基づくと、多くの酸素欠損をもつ電解質材料を用いることで、より顕著な出力向上が期待できる。

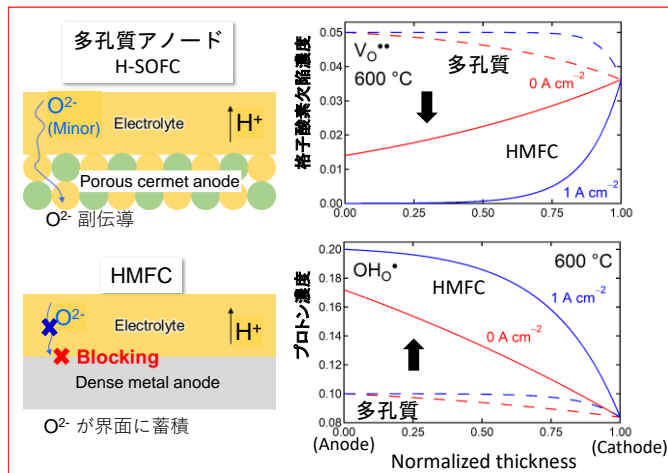


図 1 HMFC における O^{2-} 副伝導のブロッキングによって生じるプロトン汲み上げ効果の概念図

比較的多くのアクセプター- M^{3+} カチオンを有する $\text{BaZr}_{1-x-y}\text{Ce}_x\text{M}_y\text{O}_{3-\delta}$ ($y \geq 0.2$; $\text{M} = \text{Y}, \text{Yb}, \text{Sc}, \text{In}$ 等)を対象に、様々な組成の薄膜をパ

ルスレーザ堆積法により Pd 基板上に蒸着して HMFC を作製し、 400°C 付近で小さなオームおよび反応抵抗をもつ BZCM 材料を探索した。その結果、State-of-the-art H^+ 伝導体である $\text{BaZr}_{0.1}\text{Ce}_{0.7}\text{Yb}_{0.1}\text{Y}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$ (BZCYYb1711)と比較し $\text{BaZr}_{0.5}\text{Sc}_{0.5}\text{O}_{3-\delta}$ (BZSc55)がより小さなオーム抵抗を生むことがわかった。 700°C で製膜した BZSc55 薄膜 (800 nm)と(2)で作成した $\text{Ba}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Fe}_{0.8}\text{Zn}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$ (BLFZ)カソード機能層を組み合わせた HMFC で、 400°C にてオーム抵抗 $0.15 \Omega \text{ cm}^2$ および分極抵抗 $0.5 \Omega \text{ cm}^2$ を得た。この値は中間目標値以上である。

(2) カソード機能層による分極抵抗の低減

近年プロトンセラミックス燃料電池(PCFC)において、カソード/電解質界面に $\text{H}^+/\text{O}^{2-}/\text{e}^-$ トリプル伝導性酸化物薄膜を導入すると、カソード分極抵抗およびオーム抵抗が半減することが報告されている。これに基づき、低温でのカソード反応抵抗低減を目指し、カソード界面機能層(CFL)の開拓を行った。 $\text{BaZr}_{0.6}\text{Ce}_{0.2}\text{Y}_{0.1}\text{Yb}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$ (BZCYYb6211)電解質薄膜(15 μm)からなる多孔質アノード支持セルに、様々な O^{2-}/e^- 二重伝導体:および $\text{H}^+/\text{O}^{2-}/\text{e}^-$ 三重伝導体の薄膜(約 150 nm)を CFL として適用し、材料スクリーニングを行った。その結果 $\text{Ba}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Fe}_{0.8}\text{Zn}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$ (BLFZ) を導入することにより、 500°C で OCV が 1.08 から 1.12 V へ、またピーク出力は 60 から 330 mW cm^{-2} へ 5 倍に増加した。この値は、熱力学的安定相である Zr リッチ組成電

解質を用いた既報のベンチマーク(1.05 V – 300 mW cm⁻²)を超える値である。

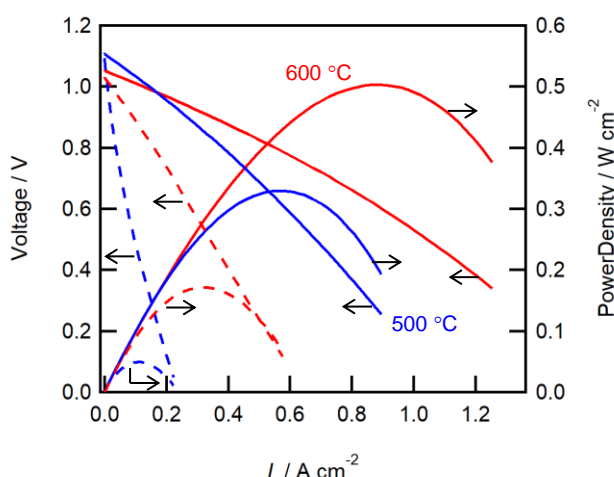


図 2 600 および 500°C における、BZCYYb6211 薄膜セルの電圧 – 電流 – 出力曲線。実線および破線は、それぞれ BLFZ-CFL 有および無の場合を示している。

(3) 非 Pd 系水素透過アノードへの電解質製膜形成技術開発

V_{1-x}Ni_x および Ti_{1-x}Ni_x 水素透過合金箔(～100 μm)をアノード基板として、様々な電解質薄膜の蒸着を試みた。その結果 Pd_{0.6}Ag_{0.4} 被覆(～50 nm)を施した V_{1-x}Ni_x(x=0.05-0.15)合金箔を用いた場合、300°C および酸素分圧 20 Pa にてパルスレーザー堆積法又はスパッタ法により、表面を酸化させず製膜できることがわかった。

(4) Pd 代替水素透過アノードを用いた HMFC の発電実証

(4a)合金箔アノードセル： BZSc55 は Ni_{0.06}V_{0.95} 箔アノード(100 μm)、BaZr_{0.1}Ce_{0.7}Y_{0.1}Yb_{0.1}O_{3-δ} (BZCYYb1711)電解質膜(500 nm)および La_{0.5}Sr_{0.5}CoO_{3-δ}(LSC) CFL(150 nm)を用いた HMFC により、350°C で OCV およびピーク出力、それぞれ 1.08 V および 0.12 W cm⁻² が得られた。更に同セルは、350°C、0.6 V 定電圧条件にて、150 h の間約 140 mA cm⁻² の安定した電流を示した。試験後のセルは電解質/合金界面においてシャープな接合を維持しており、合金の酸化や剥離などの問題は起こらないことが確認された。しかしながら、ピーク出力の目標値を達成するには至っていない。

(4b) H⁻伝導セラミックスアノードセル： 水素透過合金膜を用いたセルは、電解質膜作製温度を 300°C 以下に、また作動温度を 350°C 以下に限定される。我々はヒドライドイオン(H⁻)と電子の混合伝導による水素透過性酸水素化物 BaZr_{0.5}In(II)_{0.5}O_{2.25}H_{0.5}(H-BZI)を独自に開発してきた。H-BZI は H⁺電解質材料 BaZr_{0.5}In(III)_{0.5}O_{2.75}(BZI)を水素過熱することによって形成できる。従って BZI を電解質としたサーメットアノード支持型セルを作製し、それをカソード側だけ水素還元することで、BZI 電解質膜と H-BZI 水素透過膜アノードの接合からなる H⁺/H⁻イオニックヘテロ接合型 HMFC を簡単に形成できる(図 3a および b)。このようなセルで、500°C で 0.43 W cm⁻² のピーク出力を示し(図 3b)、これはプロトンセラミックス燃料電池のベンチマーク(0.5 W cm⁻²@500°C)に近い値である。

本研究で得られた H⁻/H⁺ヘテロ接合型燃料電池は、H⁻イオン伝導体をセラミックスセルに活用した世界初の成果である。400°C におけるピーク出力は目標値には到達していないが、一方予想外の結果として、このセルは

水蒸気電解モードにおいて非常に優れた性能を示すことが分かった。H⁺イオンの高い還元力(-2.5 V vs NHE)を考慮すると H₂O-N₂ 共電解セル、および H₂O-CO₂ 共電解セルなどへの応用も期待できる。

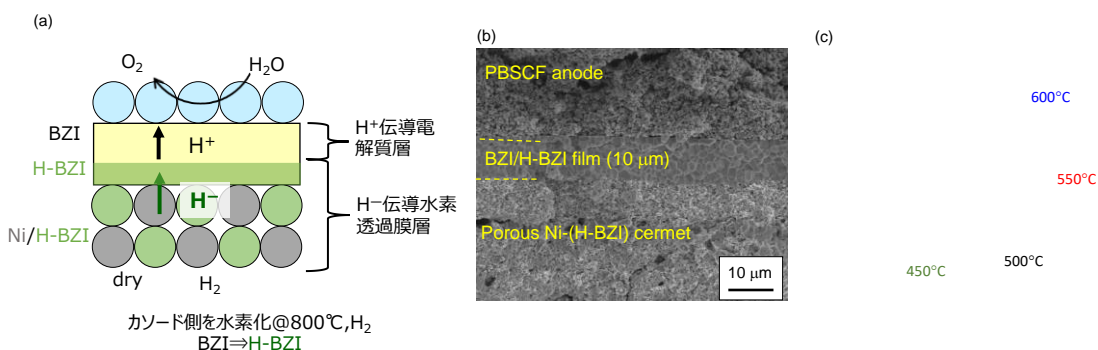


図 3 H⁻/H⁺ - イオンックヘテロ接合セル{Ni-サーメット/H-BZI(H⁻) | BZI(H⁺) | PBSCF}の(a)模式図および(b)断面 SEM 像。(c)各温度における電流 - 電圧 - 出力曲線。実線および破線は、それぞれ電流 - 電圧および電流 - 出力曲線を示している。

(5) 疑似 HMFC 効果の検証

上述の通り HMFC のプロトン汲み上げ効果は、酸化物イオン伝導のプロッキングに伴う水ポテンシャルの上昇が原因である (図 1)。従って通常のプロトンセラミックス燃料電池セル、即ち多孔質サーメットアノード支持型薄膜セルにおいても、アノード側の水蒸気分圧を増加させることで、同様な効果が現れると考えられる。高水蒸気雰囲気強い BZCYb6211 電解質からなるサーメット支持型薄膜セルについて、アノード加湿によるオーム抵抗および反応抵抗減少を検証した。その結果水蒸気分圧増加により、明らかな抵抗増加が起り、プロトン汲み上げ効果は確認できなかった。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 高酸素欠損相電解質の材料最適化

低温で製膜した場合でも①材料最適化、③非 Pd 系水素透過アノードへの低温製膜および④発電性能試験を同時に進め、低温で製膜しても高いプロトン伝導率をもつ BZCM 材料を探索する。非 Pd 系 HMFC の構成として、Ni_{0.06}V_{0.95} 箔アノード、BLFZ-CFL および PBSCF カソードを採用し、これらと新規電解質膜の組み合わせで、中間目標値(350°C で 0.5 W cm⁻² のピーク出力)を達成する。

(2) Pd 代替水素透過アノードを用いた HMFC の発電実証

3.3(1)の通り、合金箔セルに関しては、CFL および合金箔アノードに材料を、それぞれ BLFZ および Ni_{0.06}V_{0.95} 合金に固定し、(1)の電解質開発の成果と組み合わせセル出力向上を図る。

H-BZI セラミックス水素透過膜セルに関し、自己組織的に形成される BZi/H-BZI-ヘテロ構造セル {PBSCF/BLFZ | BZi | H⁻BZi}の主な抵抗成分は、BZi のオーム抵抗であることがわっている。BZi 層の膜厚最適化を行い目標値を達成する。同時に水蒸気電解モードの評価も行っていく。

(3) 疑似 HMFC 効果の検証

BZCYb6211 に代わり、より大きな酸素欠損量を有する電解質材料のセルで、再度検証する。具体的には水蒸気雰囲気安定な Ce フリー-BZCM 相、BaZr_{1-x}In_xO_{3-δ} や BaZr_{1-x}Ga_xO_{3-δ} などを検討する。

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) 低温作動水素透過膜支持型燃料電池

現在メタルサポート SOFC による駆動用 FC への適用が検討されている。HMFC は一種の金属サポート支持型電池であり、さらに従来の O^{2-} 伝導電解質タイプよりも低温で高い出力を生むことができる。特に 400°C 付近まで作動温度を低下できると、ステンレス薄板や熱耐久性ポリマー（ポリイミド樹脂）などを部材に使用することができ、セルスタックの熱衝撃耐久性やガスシール性のさらなる向上に加え、モジュールの簡素化が可能となる。

以上の利点に基づき、SOFC メーカーと協力し、大面積化を図る。

(2) H^-/H^+ イオニックヘテロ接合型セル

本研究で得られた H^-/H^+ ヘテロ接合型燃料電池は世界初の試みである。 H^- イオンの高い還元力 (-2.5 V vs NHE) を考慮すると H_2O-N_2 共電解 NH_3 製造セル、および H_2O-CO_2 共電解 CH_4 製造セルなどへの適用が期待できる。このような可逆動作が可能になれば、発電余剰時の電力を直接 NH_3 または CH_4 液体燃料に転換して貯蔵・運搬し、電力不足時は両燃料を直接利用した燃料発電を行うことができる。

水電解による水素製造は、自然エネルギーからの発電量平準化技術として期待されているが、製造した水素を貯蔵・運搬するためには、再びエネルギーを使って水素キャリアへ転換する必要があった。本成果で得られた H^-/H^+ ヘテロ接合型セルは、電解と水素キャリア生成を同時に行うことができ、また電力不足時は、それらを直接燃料電池発電に供することもできると期待される。

アンモニア製造を例にとると、共電解プロセス (N_2 濃縮 + 共電解 1.3 V) および触媒プロセス (天然ガス改質 + H_2 および N_2 濃縮 + ハーバーボッシュ) による製造エネルギーは、それぞれ 24 および 29 GJ/ton と計算され、既存プロセスに対し、共電解システムは低炭素およびエネルギー消費の観点から有利といえる。

以上より、可逆動作可能な直接アンモニア系燃料電池への展開も見据え、コンセプト実証を進めていく。このようなシステムは水蒸気を生成するための低級排熱が十二分に存在する、プラントでの活用が理想的であり、ゼロエミッション工場の運用に大きく貢献すると期待できる。プラントメーカーと協力し、社会実装を検討していく。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	委託機関名
1	2022/3/29	特願 2022- 54376	プロトンセラミックスセルの性能およびファラデー効率を向上させるための空気極機能層を備えたセル	北海道大学

—研究発表・講演、文献等、その他—

なし

課題番号（管理番号）：MU01

研究開発テーマ名：「研究開発項目Ⅲ 燃料電池の多用途活用実現技術開発／ MEA 高速生産技術および検査技術の開発」

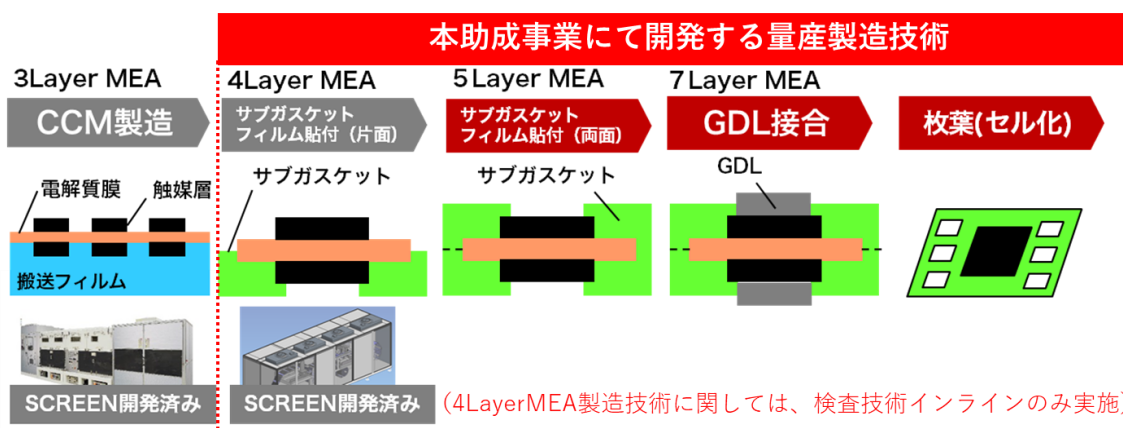
実施者：株式会社 SCREEN ファインテックソリューションズ

期間：2020年8月～2023年3月

1. 研究開発概要

燃料電池の更なる普及拡大のためには、大量生産による低コスト化に直結する燃料電池スタックの製造工程時間を低減させる製造技術の開発が必要である。これまで当社においては、NEDO 助成事業に参画し、CCM および CCM の片面にサブガasketフィルムを貼合する新たな生産技術の開発を実施し製造工程時間を従来比 1/10 以下を達成してきた。

しかしながら、サブガasketなどのシール部材や GDL 貼合までを含めた MEA 製造工程においては量産製造技術の確立が必要な状況である。その為、本事業では CCM 両面にサブガasketフィルムを貼り合わせる生産技術ならびに GDL を電極両面に貼り合せ、セル毎に切り出しを行う高速生産製造プロセスを開発すると共に MEA の品質管理を可能とする検査技術を製造工程にインライン化する技術を開発する事で今後の MEA の本格量産に貢献する事を目指す。



本事業に関連する燃料電池の生産技術開発においては、各国で様々な取り組みが政府機関主導で実施されている。米国・欧州では政府機関が主導して主要研究機関を中心とした産学官連携による生産技術の開発プロジェクトを推進、中国では FC コンポーネントの海外依存からの脱却を目指し、国内のサプライチェーン強化に舵が切られている。

FC生産技術で注目されるドイツの動向

Fraunhofer

ドイツ連邦運輸・デジタルインフラ省は、Fraunhofer の『燃料電池生産のための国家行動戦略』に対して8000万ユーロの資金調達を発表



【出典】 <https://www.rokhy.de/>

HyFaB

独・環境省が総額790万ユーロ、経済・労働・住宅省が1000万ユーロの資金提供、プロジェクトの期間は2020~2030年を予定。現在、生産技術研究施設を建設中



【出典】Research factory for fuel cells and hydrogen, <https://www.youtube.com/watch?v=esePQ3z03j8>

また、国内においてもMEA量産製造技術は、FCV課題共有フォーラム、FC-CUBICオープンシンポジウム等でも継続的な研究・開発が必要と明記されている。

3. 目標達成に向けたアプローチ案 量産性向上

① 触媒調合・混練	② Roll to Roll	③ 枚葉加工	④ エージング・検査
<ul style="list-style-type: none"> ▽大バッチ生産から連続生産への転換...B ・粗材かみ不良撲滅 ・材料比率再現性の確保 	<ul style="list-style-type: none"> ▽薄物高速搬送と高速塗工加工...A ・塗工位置制御精度向上 ・塗工厚さ精度向上 ▽材料歩留率向上...C ・塗工面/非塗工面比率最大化 ・副資材リサイクル使用 	<ul style="list-style-type: none"> ▽薄物高速搬送...A ・搬送位置精度向上 ・Roll to Roll工程への移行 <p>枚葉加工縮小</p> <p>Roll to Roll加工拡大</p>	<ul style="list-style-type: none"> ▽エージング時間短縮...A ・エージングメカニズムの解明 ▽検査工程の集約・廃止...A ・機能保証パラメータの絞込み ・検査時間短縮 ・オフライン抜き取り検査での保証→全数検査廃止
<p>生産能力向上の切り口</p> <ul style="list-style-type: none"> A:加工点速度を上げる B:無駄な時間をなくす C:捨てるものを少なくする 			
<p>Roll to Rollへの集約とエージング・検査簡素化を目指す</p>			

出典：2019.1.22 FCV課題共有フォーラム資料より抜粋

MEA+サブガasket貼付工程

ありたい工程の姿 ■目標C/T: 0.5sec/セル ■現状C/T: 20sec/セル

Roll to Rollの一気通貫でMEA形状まで加工

MEA貼付 サブガasket貼付

搬送/位置決め/加工の高速化

検査レス

現状とのギャップ、課題

- 集約 集約による一機化
- 搬送/位置決め 搬送/加工+加工適用
- 枚葉加工 型-力による幅削り形状へのカット
- 加熱硬化に時間がかかる
- 高速化→取捨不着不良
- 材料ロス
- 非連続搬送
- 高速ハンドリング時のワークの保持確保
- パターンの形状など材料ロスの方策
- 品質検査 欠陥検査、設備検査、設備稼働率
- 設備投資額大
- 検査レスを含む検査方法案

高速化・材料ロス・検査低減に向けた材料・設備・品質保証の技術革新が必要

出典：2021.12.10 第6回FC-CUBICオープンシンポジウム(課題共有フォーラム2021)資料より抜粋

これら状況から燃料電池のキーコンポーネントで有るMEAを国内で量産製造する技術を確立する事は、燃料電池・水素製造技術の国際的競争力の維持・向上を行う上で重要な意義が有ると考えられる。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

本事業の開発目標は、以下の通りである。

(1) MEA製造工程時間短縮(現行の1/10以下)

GDL貼合迄を含めた実用化レベルのMEA(電極面積250cm²)を1セル辺り7秒以下でMEAにする連続生産技術の確立

(2) 品質管理技術、インライン検査技術の確立

工程毎にMEA欠陥、寸法検査を実施しMEA製造品質をインライン検査する技術の確立

(3) 事業目標

本事業で開発した量産技術を用いての国内でのMEA製造・販売

製造工程時間(サイクルタイム)目標は、2019年FCV課題共有フォーラムにおいて示された全世界での水素モビリティ予測台数から単年度辺りのFCV生産台数、MEA必要枚数からMEA生産に必要な生産ライン数から設定した。現状のMEA製造工程時間150秒/枚(枚葉加工)の場合の必要装置台数で有り2025年時点で237ライン必要(FCV8万台/年、MEA3000万枚/年)であり大きな課題である。その為、本事業ではMEA製造工程時間を現行の1/20以下の7秒/枚に設定した。この場合、2025年での必要ライン数は全世界で11ラインとなり製造工程として十分成立する数値であると考えている。尚、この事業でMEA高速生産技術を確立する事で2030年度には1枚辺りのMEA加工時間を1~2秒

以下とする技術の布石になると考えている。

尚、サイクルタイムは処理する MEA サイズに依存するため検証に用いる CCM、MEA 条件は以下の様に
 実用化レベルの条件にて実施する事とした。

◆CCM 条件

- 電解質膜 : 厚み 8~12um フッ素系電解質膜
- 電極触媒 : Pt 担持量 カソード 0.3mg/cm²、アノード 0.05mg/cm²
- 電極面積 : 100×250mm、セル間 15mm (搬送方向の CCM セル間 : 115mm)

◆MEA 条件

- サブガasket : 外周サイズ 120×300mm (搬送方向の MEA セル間 : 125mm)
- GDL : 104×254mm
 厚み 150~220um (内 : MPL 層 40~80um 相当品)

目標設定における妥当性は、当社にて各国のシステムメーカーにヒアリングを実施する事でも確認した。

ヒアリングした顧客は、以下のとおりである (~2021 年 6 月)

- 欧米 : 9 社
- アジア : 日本 3 社、その他 4 社
- 合計 : 16 社

妥当性ヒアリング結果

- ・目標設定は妥当 : 15 社
- ・目標設定は不十分 : 1 社

この目標設定は、十分に妥当性があると 15 社から回答を頂いた。

この目標設定では不十分と回答頂いたメーカーからは、2025 年以後に想定している生産量を賅うには本開
 発装置 1 ラインでは対応できないので更なる向上を期待しているとの意見を得た。

これらヒアリング結果から本目標値が妥当であると当社は判断した。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
4Layer MEA 製造装置の開発	① 生産性 7 秒/枚以下 ② 検査データと製造品質 整合完了 ③ 良品率 99%以上	① 5 秒/枚以下 ② 完了 ③ 良品率 97%	○	・生産性の更なる向上 ・良品率向上に向けて 貼合機構の改善
5Layer MEA 製造装置の開発		① 4 秒/枚以下 ② 完了 ③ 良品率 96%	○	・生産性の更なる向上 ・良品率向上に向けて 貼合機構等の改善
7 Layer MEA 製造装置の開発		① 7 秒/枚以下	△	・生産性の更なる向上

		② 検証中 ③ 検証中		・検査データと製造品質 整合検証 ・良品率検証
電池性能の確認	① GDL 高速貼合(1.5 秒 /枚)接着剤開発完了 ② 電池性能確認完了	① 完了 ② 完了	◎	—

3.2 研究開発の詳細

(1) 4Layer MEA 製造装置の開発

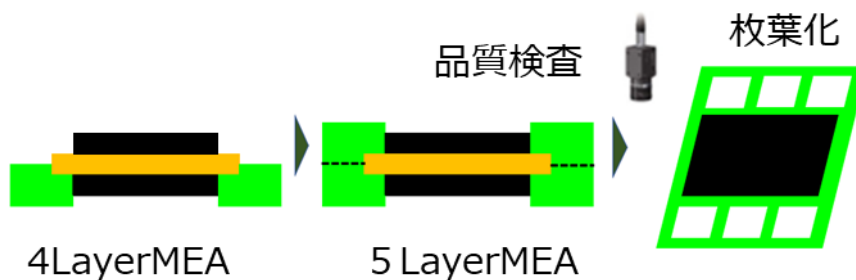
CCM にサブガasketフィルムを高速貼合する装置に MEA 品質管理技術を組み込み MEA 製造品質を検査する技術開発を実施



本検査では、電極部の触媒欠陥、CCM とサブガasketフィルムの貼合精度を主に検査する。検査システム自体の検査精度は、 $\pm 0.1\text{mm}$ 以下とした。CCM とサブガasketフィルムとの貼合精度は、 $\pm 0.25\text{mm}$ 以下(検査誤差含む)として検証を実施し現時点での良品率は 97%以上である。良品率低下の主要因は、貼合時にサブガasketフィルム側の蛇行補正量が多い場合に貼合精度が低下する事に起因する事が判っており現在、対策部品等を設置しての検証を継続中である。尚、サイクルタイムは現時点で 5 秒/枚以下と目標達成済みである。

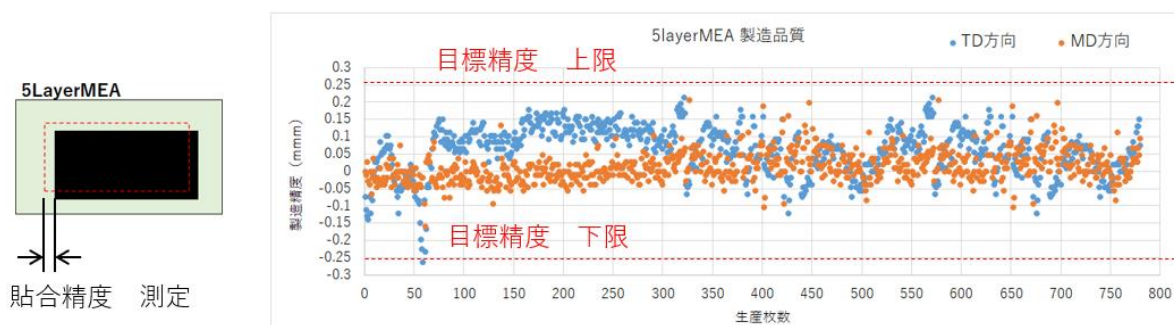
(2) 5 Layer MEA 製造装置の開発

CCM の両面にサブガasketフィルムを連続的に貼り付けた 5LayerMEA の高速製造技術および 5LayerMEA を最終的に枚葉化する高速製造技術の開発を実施



5LayerMEA の製造に関しては、サイクルタイムは目標値の 7 秒/枚以下を達成している。サイクルタイム短縮のネックは、枚葉化した後のハンドリング工程が 1 枚ずつの処理となる事に起因している。こ

の短縮に向けては、現在速度パラメータの最適化と共に MEA ハンドリング機構(保持機構)の見直しを継続中である。製造品質と検査精度に関しては、貼合精度、枚葉化精度それぞれ $\pm 0.25\text{mm}$ (検査誤差含む)として検証を実施している。下図は、5LayerMEA 装置での CCM とサブガスケットとの貼合精度の製造品質実証データを示したものである。本貼合工程での良品率は既に 99%以上を達成済みである。しかしながら、枚葉化工程での良品率は、96%相当であり今後良品率低下要因を分析して良品率 99%以上の達成に向けて改善を継続する。



(3) 7 Layer MEA 製造装置の開発

本開発は、5LayerMEA の両面電極部に GDL を貼合する装置の開発である。



この 7LayerMEA 製造技術は、以下の 2 種類の製造構成で開発を実施中である。

① GDL 貼合 前処理装置

GDL メーカーにて製造されたロール状の GDL に MEA と接着させる結着材を付与し GDL を所定のサイズに枚葉化する装置

② 7LayerMEA 製造装置 (GDL 高速接合)

5LayerMEA の電極両面に対して GDL を連続貼合する装置

本開発においては、サイクルタイムは現状目標の 7 秒/枚以下を達成しているが流品数が少ないので今後流品数を増やしての実証確認が必要である。また、検査データと製造品質との整合検証ならびに良品率検証を事業終了までに完遂させるべく継続実施する。

(4) 電池性能の確認

本開発では、GDL 貼合検討プロセスが量産適応可能であることを電池特性から評価する事で確認した。主な検証項目と達成状況は以下の通りである。

尚、本事業開発プロセスとの比較基準 MEA は、GDL をスタック組込時に挿入しただけの MEA とした。

確認項目	目標	成果	達成度
GDL 高速貼合	貼合時間 1.5 秒/枚以下	貼合時間 1.5 秒/枚	◎
電池性能			
コンディショニング	処理時間影響無き事	影響無し	◎
IV 測定(低/高加湿)	性能差無き事	性能差無し	◎
耐久試験(起動停止/負荷応答)	性能差無き事	性能差無し	◎

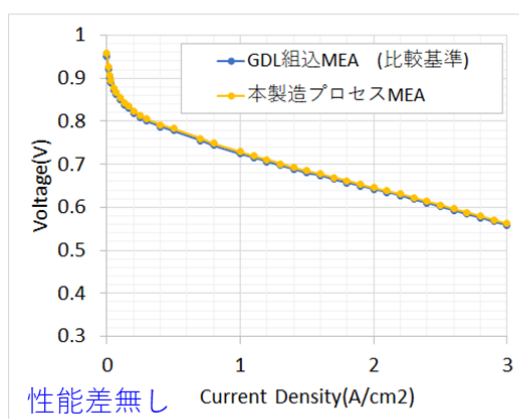
本検証は、以下の条件にて実施した。

- ・評価セル : JARI セル (5×5cm)
- ・評価プロトコル : NEDO セル評価プロトコル (平成 24 年度版)

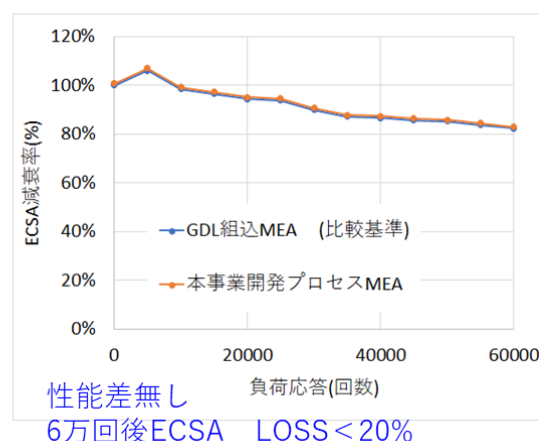
下図は、IV 特性、負荷応答試験での確認結果の一例である。

IV 特性においては、電圧差は全て 10mV 以内であり性能差は無い事が確認された。6 万回の負荷応答試験での ECSA 減衰率も数%以内で有り性能差は無い事が確認されている。

I-V特性



負荷応答試験でのECSA減衰率



3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

設定目標は、すべて予定通り進捗中である。現在は、実証検証（サイクルタイム向上、検査データと品質整合、良品率 99%以上）および本技術で製造した MEA をシステムメーカーとの検証を実施している。これら製造技術の実証は、2023 年度 3 月末迄の事業完遂に向けて予定通り進捗中。システムメーカーとの検証においては、今後は性能向上検討ならびに品質認証所得にむけた QMS 活動を強化していく。

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

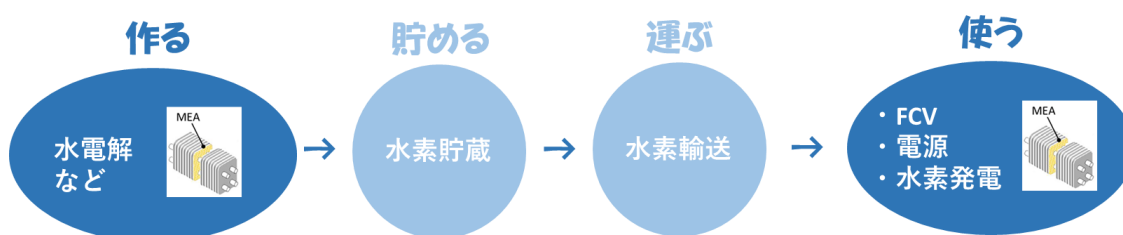
(1) 当該研究における製品

本事業で開発した設備で製造販売する MEA 形態は以下の通りである。

	構造	販売形態
3LayerMEA (CCM)	 触媒 電解質膜	ロールシート
5LayerMEA	 サブガasket	シート
7LayerMEA	 GDL	シート

(2) 社会的利用

本助成事業で開発した MEA は、FC 向けのみならず水電解向け MEA としての利用も可能である。



(3) 企業活動

開発中の MEA は、現在システムメーカーとの検証を実施中であり商業契約に向けて日々性能向上・品質向上に向けて取り組んでいる。

また、当初は燃料電池向けとして開発した本事業の MEA 製造技術を今後は、水電解などの水素製造向け MEA への展開活動も積極的に実施予定である。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	助成機関名
1	2020/11/10	20206647.8	サブガasket付膜電極接合体の製造装置および製造方法	株式会社 SCREEN ホールディングス
2	2020/11/10	20206666.8	サブガasket付膜電極接合体の製造方法および製造装置、サブガasket付膜電極接合体	株式会社 SCREEN ホールディングス
3	2020/11/13	202011268505.8	サブガasket付膜電極接合体の製造装置および製造方法	株式会社 SCREEN ホールディングス

			造方法	
4	2020/11/13	202011271281.6	サブガasket付膜電極接合体の製造方法および製造装置、サブガasket付膜電極接合体	株式会社 SCREEN ホールディングス

－研究発表・講演、文献等、その他－

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021 年 5月26日	ニュースリリース	東京ガスと SCREEN、低コストグリーン水素製造に向けた水電解用セルスタックの共同開発に合意	東京ガス株式会社 株式会社 SCREEN ホールディングス
2	2022 年 4月6日	ニュースリリース	脱炭素・水素社会に向け、燃料電池部材「MEA」の量産事業を開始	三菱商事 RtM ジャパン株式会社 株式会社 SCREEN ファインテックソリューションズ

課題番号（管理番号）： MU02

研究開発テーマ名：

「燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業／燃料電池の多用途活用実現技術開発／高出力燃料電池搭載内航船舶の実用化に向けた実証」

実施者：（日本郵船(株)、東芝エネルギーシステムズ(株)、川崎重工業(株)、ENEOS(株)）

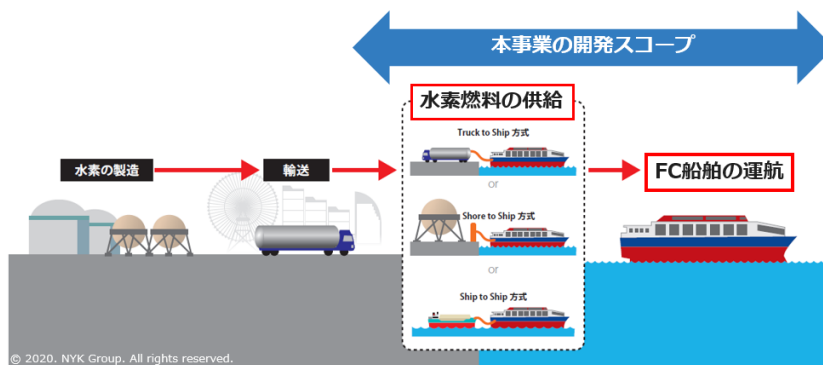
期間：2020年9月～2022年6月

1. 研究開発概要

＜事業内容＞

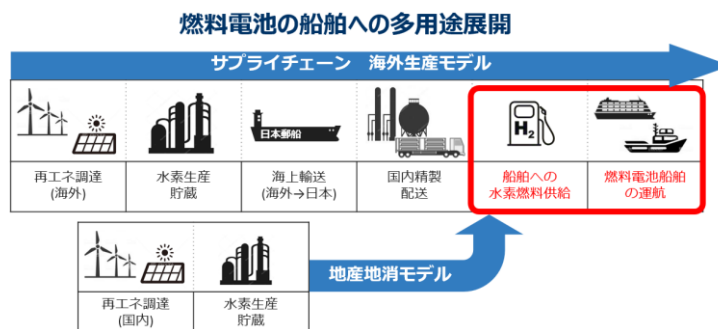
本事業の実証は、新たに建造する内航船舶(総トン数 150 トン相当)を対象に、船舶バリューチェーン全体(水素機器開発・船体設計及び建造・運航・燃料供給)を実証の範囲とし、船用 FC に係る技術開発に取り組む。

具体的には、船舶向けの高出力化且つ閉空間で使用可能な燃料電池の開発、船内水素燃料供給システム・機器の開発、燃料電池と蓄電池を組み合わせたエネルギーマネジメントシステムの開発、船陸間水素燃料供給システムの技術開発、船舶への適用設計開発などが挙げられる。



＜事業目的＞

本事業により、燃料電池(以下、「FC」)の多用途展開に向けて、実用性のある FC 搭載船舶の運航と船舶向け水素燃料供給運用を実現する。



**船舶における燃料電池の活用拡大を目指す。
需要(船舶運航)と供給(燃料供給)の両面から取り組む。**



2. 研究開発目標と目標設定の考え方

<全体目標>

『高出力燃料電池搭載船舶による船陸間の水素燃料供給を含めた実証運航』

<中間目標（2020年度～2021年度）>

- ・ 2020年度～2021年度 Q1 の Feasibility Study を通じて以下の目標を達成する。
 1. 各開発テーマの課題とその解決する方向性の明示
 2. 実用性の高い実証船舶の要件・仕様の策定
 3. 液化水素に係る技術的課題と解決方法の方向性の明示
 4. 「③事業による効果」に係る具体的検討（災害に対するレジリエンス強化、国際連携、等）
- ・ 2021年度には、各課題の解決方法を踏まえた基本設計を完了する。
- ・ 同じく2021年度には、法制度整備・許認可取得への対応を確認し実証運航の実現性を確認する

<目標設定の考え方>

上記目標については、本公募のアウトプット目標およびアウトカム目標より設定を行った。

（アウトプット目標）

研究開発項目Ⅲ「燃料電池の多用途活用実現技術開発」

2030年までの燃料電池ユニット等の多用途展開を目指して、エネルギーマネジメント要素も含めた実証事業等を行い、自家用車以外で3種類以上の用途の適用可能性を提示する。

（アウトカム目標）

我が国が強みを有する燃料電池分野の市場拡大に貢献する。具体的には、パリ協定に示される温室効果ガス排出26.0%減（2030年）及び80%削減（2050年）に、市場規模としてFCVの2035年約3.4兆円、2040年約12.6兆円、定置用燃料電池の2035年約0.5兆円、2040年約3兆円、FCV・定置用燃料電池以外の新規システムの2035年約0.5兆円、2040年約0.9兆円に寄与する（水素・燃料電池戦略ロードマップの目標値と富士経済の市場予測からNEDOが推定）。

本事業は移動体向けに開発された高出力の燃料電池を搭載して、バッテリーとのエネルギーマネジメントも含め、船舶のバリューチェーン全体(機器開発→本船建造→運航+燃料供給)を対象とするこ

とにより、多用途展開及び商用化の実現性向上へつながるため、アウトプット目標の適用可能性を提示出来る。

また、船舶向けは従来の移動体よりも出力の高い燃料電池が必要になる。船舶向けの燃料電池が製品化することで、鉄道や建機等の大型モビリティへの多用途展開が可能になる。すなわち、燃料電池技術の多用途展開を目指す水素ロードマップに合致する。

<目標達成度の判断>

Phase1 と Phase2 のそれぞれ下記 2 時期において、判断要件や判断内容を明記する。

Phase1 : Feasibility Study 完了後 (2021 年度 Q1)

Phase2 : 基本設計完了後の事業継続判断 (2022 年度 Q4)

① Phase1 : Feasibility Study 完了後 (2021 年度 Q1)

(ア) 仕様の策定 :

各開発テーマの課題とその解決する方向性を明確にし、実証後に実用性の高い実証船の仕様を策定する。

(イ) 燃料方式の選定 :

液化水素の技術的課題を明確にし、また、その課題解決に取り組む。判断のポイントを下記に示す。

- 2021 年度の基本設計期間において、船内水素供給システム及び船陸間水素供給システムの設計が可能であると考えられる。
- 2022 年初めに行う事業継続判断の前段階として、機器製作・据付が助成事業申請時に想定していた研究開発資金内に収まる。

② Phase2 : 基本設計完了後の事業継続判断(2022 年 1-3 月 : NEDO 継続可否評価と同時期)

(ア) 研究開発に関連する機器製作・据付が助成事業申請時に想定していた研究開発資金内に収まる。

(イ) ①において抽出した課題を解決し、策定した実証船の仕様・要件を満足する。

(ウ) 該当の法整備・許認可スケジュールが、本事業計画に沿っている。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
1.船舶向け燃料電池の搭載技術	船舶に搭載する燃料電池システムに求められる要求仕様を FS により確認する。	船舶搭載において必要となる燃料電池モジュールの特性や取合い条件と調査し、研究開	○	燃料電池船のガイドラインは制定されたがまだ実証の実績は限定的である。ガイドラインに

	船舶搭載に向けた燃料電池システムの取合い（搭載方法、ガス、冷却水、電気、制御等）について基本仕様を決定。	発項目Ⅰ「大型モビリティに適應する多用途型燃料電池モジュールの研究開発事業」の開発仕様に反映した。 リスクアセスメントを実施し、基本仕様を決定、及び基本設計を完了した。 燃料電池の認証に向けた基本方針を策定した。		適合することを証明する検査方法・手順が確立されていない。
2. 船内水素供給システム（水素貯蔵含む）	船内の水素貯蔵容器から燃料電池に大流量の水素を供給するシステムを開発する。	小型船舶に適した船内燃料供給システムコンセプトを確立した。 確立したコンセプトに基づく基本設計が完了した。	○	特になし
3. エネルギーマネジメントシステム	対象船舶の様々な運航パターンや状況に適した、発電モードで燃料電池と蓄電システムからの発電量をコントロールする船用パワーマネジメントシステムを開発する。	様々な運航パターンや状況に適した船用パワーマネジメントシステムコンセプトを確立した 確立したコンセプトに基づく基本設計が完了した。	○	特になし
4. 燃料電池搭載船の設計	詳細設計にあたっての課題解決方法を踏まえ、基本設計を完了する。	基本仕様を確定し、基本設計を完了した。 規則面では、国交省発行“水素燃料電池船の安全ガイドライン”に準拠することを前提に、ガイドライン上で規定されない項目については、“代替設計”として整理し、国交省海事局殿と対応につき検討中。	○	低温水素ガスの大気放散挙動：液化水素タンクまたは、燃料系統配管から、ベンマストを通して、低温ガスを大気放散した場合の拡散挙動を考慮した安全範囲の同定および、ベンマスト高さの最適化。暴露部防爆対応必要範囲の絞り込み。

5. 本船運航マニュアル	フィージビリティスタディとリスク評価を踏まえたうえで、搭載機器を確定させ、運航マニュアルの策定に取り掛かる。	運航想定シナリオの策定のうえ、それを前提にリスクアセスメントを実施。 国交省海事局殿と水素燃料電池船の船員資格についての協議を開始した。	○	特になし
6. 船陸間水素燃料供給システム（ハード面）	船陸間水素燃料供給システムの基本設計を完了する。	船陸間水素燃料供給システムの仕様検討・基本設計を完了。	○	特になし
7. 海上における水素供給に係る法令/規則	水素供給方式を確定させ、国交省殿作成の水素燃料電池船ガイドラインに従って確認プロセスを進める。	国交省発行“水素燃料電池船の安全ガイドライン”に準拠することを前提に、ガイドライン上で規定されない項目については、“代替設計”として整理し、安全性を検証。	○	特になし
8. 船陸間水素燃料供給運用	陸からの燃料供給に際し、船側および陸側法令規則の対応につき、関係官庁と確認プロセスを進める。	LNG 燃料タグボートのマニュアルを参考に作成中。うち、液体水素燃料のバンカリングを含む、取扱い手順書及び安全性評価について実施完了。	○	特になし

3.2 研究開発の詳細

(1) 船舶向け燃料電池の搭載技術開発

フィージビリティスタディ：船舶搭載 FC の取合い仕様、FC 周辺機器構成

- 船舶の安全システム(ESDS)、エネルギーマネジメントシステム(EMS)、水素供給システム、船舶主回路とFC間の連携仕様を検討。水素供給圧、主回路電圧、各システムとの通信構成を決定した。
- FC 周辺機器の仕様を検討し、決定した。

基本設計：リスクアセスメント(HAZID)結果を織り込み基本仕様を固めた

- リスクアセスメントにおいて、FC モジュールに関連する許容できないリスクは確認されなかった。
- FC モジュールに関連する 3 件の ALARP 領域のリスクについて、追加対策を検討し、対策を決定した。

燃料電池船の安全ガイドラインに対応する搭載仕様検討

- 燃料電池船の安全ガイドラインに対応した搭載仕様を検討。FC 室を ESD 保護機関区域とし、緊急時に燃料・電源遮断ができる構成とする。また、FC 室全体をまとめて排気方式で換気する方針とした。
- 推進システムとしての冗長性を担保した最適設計を実施。FC モジュールと蓄電池の併用によって冗長性を担保する方針とした。

(2) 船内水素供給システム（水素貯蔵含む）

フィージビリティスタディ：船内燃料供給システムのコンセプトを固めた。

- 燃料供給方式：配置スペース、電力、振動/騒音の観点から自己加圧方式を採用。

基本設計：リスクアセスメント(HAZID)結果を織り込み基本仕様を固めた。

(3) エネルギーマネジメントシステム

フィージビリティスタディ：エネルギーマネジメントシステムのコンセプトを固めた。

- 燃料電池・蓄電システム電力系統について冗長性を考慮した 2 系統配置とする。
- 船内配電盤の主系統は直流配電系統として進める方針とする。
- 推進動力/船内電力を踏まえて冗長性コンセプトを考慮したうえで蓄電システムの容量を決定

基本設計：リスクアセスメント(HAZID)結果を織り込み基本仕様を固めた。

(4) 燃料電池搭載船の設計

フィージビリティスタディ/基本設計：各搭載機器と併せて本船の基本仕様を策定した。

- リスクアセスメント(HAZID)の結果を踏まえた要対応項目の抽出：“フォローアップアクションシート”を作成し、要対応項目の消し込みを継続中。
- 国交省発行“水素燃料電池船の安全ガイドライン”にて規定されない項目(=代替設計となる項目)の抽出：“代替設計に係る同等性評価実施要領”を作成し、国交省海事局殿と協議を開始した。

(5) 運航マニュアルの策定

フィージビリティスタディ/基本設計：設定したプロファイルを基に基本設計を策定中。

<現状>

現時点では液化水素を燃料とする船に対する船員資格の規定がない。

ご参考までに、LNG 燃料船においては、以下の 2 つの資格・講習が必要。

1. 危険物取扱責任者（低引火点燃料） ⇒船員法施行規則
2. 低引火点燃料船安全担当者講習 ⇒船員労働安全衛生規則

<課題>

液化水素を燃料とする船舶に乗り組む船員資格について法整備が必要。また、従来の主機関と

は異なる燃料電池を取り扱うことから、資格取得のために必要な講習内容についても検討が必要である。

<解決方法>

上記必要な船員資格と、その資格取得に必要な講習や乗船経験について、国土交通省海事局海技課殿と協議して法整備を進めるよう働きかけていく

(6) 船陸間水素燃料供給システム

フィージビリティスタディ：以下を検討し、基本仕様を策定した。

- 高圧水素と液化水素の比較
供給に要するスペース等を検討し、液化水素を採用した。
- 水素供給方式
岸壁所有者と調整し、Truck to Ship 方式を採用した。

基本設計：リスクアセスメント(HAZID)結果を織り込み基本設計を完了した。

(7) 海上における水素供給の法令 / 規則

船陸間水素燃料供給システム（ソフト面）の検証の際は、「水素燃料電池船ガイドライン」と比較して安全検証が必要な箇所を洗い出し、2021 年度 Q4 より手順書・安全性検証に着手。

(8) 船陸間水素燃料供給運用

2021 年度実施リスクアセスメントにてバンカリング装置の基本仕様を定め、緊急シナリオ想定・手順書の作成に着手。

(例) 火災シナリオ時の緊急対応事例(ドラフト)

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ **(事業終了のため割愛)**

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

事業計画の変更により、詳細設計/建造/実証運航へは進まず、2022 年 1 Q にて事業を完了した。そのため、各社がそれぞれ本事業で培った技術知見を基に、水素燃料電池の多用途展開に向けた検討・取組を継続する。

また、水素燃料や燃料電池を活用した事業に対して必要な政策について、政府/公的機関への提言を適宜行う。

項目		FY2020	FY2021	FY2022	FY2023	FY2024
共通	フィージビリティスタディ					
船側 (本船、FC、EMSなど)	基本設計					
	詳細設計					
	製作・建造・据付					
陸側 (水素燃料供給システム)	基本設計					
	詳細設計					
	製作					
共通	実証運航・運用					

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021/9	日本マリンエンジニアリング学会 第 91 回学術講演会	船舶からの排出ガス削減に向けて -船舶推進システムの電動化・ハイブリッド化-	川崎重工業・小野寺達也 他
2	2020/9	プレスリリース	高出力燃料電池搭載船の実用化に向けた実証事業を開始	5 社コンソ企業
3	2021/2	プレスリリース	横浜市と高出力燃料電池搭載船（水素 FC 船）実証事業に関する包括連携協定書を締結	横浜市・5 社コンソ企業
4	2021/7	一般社団法人燃料電池開発情報センター機関誌「燃料電池」	海運分野における脱 CO2 への日本郵船の取り組み	日本郵船・川越ほか
5	2021/5	東芝レビュー-76 巻 3 号 P31-35	水素社会実現に向けた燃料電池システムの最新技術	東芝エネルギーシステムズ 山下
6	2021/6	(一財) 大阪科学技術センター エネルギー技術対策委員会 燃料電池・F C H 部会第 271 回定例研究会	燃料電池船の実用化に向けた取組状況	東芝エネルギーシステムズ 大橋
7	2022/3	技術開拓未来塾 2021-2022 第 3 回講座	水素エネルギーを活用したカーボンニュートラルに向けた取組	東芝エネルギーシステムズ 杉本

課題番号（管理番号）： MU03

研究開発テーマ名：「燃料電池の多用途活用実現技術開発／低コスト高効率化技術を用いた燃料電池システムによる多用途活用技術開発」

実施者：株式会社 デンソー / (東邦ガス 株式会社)

期間：2020年9月～2025年3月

1. 研究開発概要

SOFCは高効率な発電システムであることから国策にも掲げられており、一次エネルギー削減やCO₂低減機器として期待されている。更に、PV(太陽光発電)等の再エネの不安定さをカバーする調整力としても活用できることから、再エネ普及を後押しするポテンシャルも秘めていると考えられる。

しかしながら、まだ思うように業務用市場の拡大が図られていないのが現状であり、これは価格が高く十分な経済性が確保されていないことが、要因の一つであると考えている。

そこで、燃料電池システムのコストダウンと更なる高効率化技術開発を実施。その上で、市場拡大(多用途展開)を図るためのシステムやインターフェース等の開発、およびエネマネ等を含めた実証検討を行う。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

SOFCの更なる普及拡大を目的とし、コストダウン&高効率化技術開発を実施することで、更なるCO₂削減ができ、且つ経済性も確保した自立普及可能なSOFCシステムを開発する事を目標とする。

- ・コストダウン：ユーザ取得価格 50万円/kW 以下
(水素・燃料電池戦略ロードマップ H31年3月12日同等。但し、台数前提あり)
- ・発電効率：65%以上(同上)
- ・多用途活用の為の実現技術開発：実証研究により、適用可能性、CO₂低減効果等を実証

発電効率65%の位置付けは、横軸に発電出力、縦軸に発電効率を取った図1に於いて、小型の発電システムでは断トツの発電効率であり、また、国内火力発電の平均効率に対し+20%、更に、国内発電所、最高効率であるJERA名古屋西発電所の63%をも上回る。

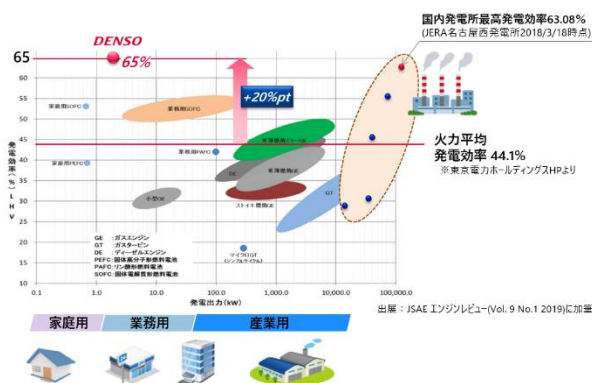


図1. 発電効率比較

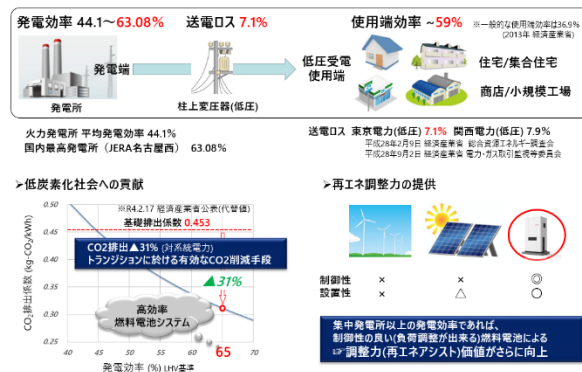


図2. 高発電効率の意義

また、図2に示ように、発電所発電効率は発電端での効率であり、使用端までには送電ロス等があり、実際の低圧使用端では、現状では60%を超えることはないのに対し、SOFCは分散電源であり、使用端で65%を

発揮できるのは、大きな強みであり、とても意義のある事と考えられる。この発電効率 65%により、現状の系統電力から約 30%低炭素化でき、トランジションに於ける有効な CO2 削減手段となり、更に、系統電力を大幅に下回るの CO2 排出量であれば、出力可変など制御性の良い SOFC は、再エネ調整力、即ち、再エネアシストとしての価値がさらに向上すると考えられる。

研究開発のスケジュールは、下記を計画している。

2020 年度：コストダウンを目指した基礎技術開発

2021 年度：コストダウン実用化開発と発電効率向上目途付け

2022 年度：65%超を狙った高効率化技術基礎開発、及び多用途展開基本構想立案

2023 年度：高効率化技術の実用化検証、多用途実証課題明確化

(2024 年度：システム量産化課題抽出と対応、及び多用途実証研究による適用可能性明確化)

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
(1)低コスト化技術開発	(2023 年度までの開発期間は試作段階のため目標設定から除外)	セルスタック配置の最適化により燃料電池モジュール素材費半減の目途付けを完了。製造工法開発に於いて、溶接溶融部の状態値より部材の熱変形予測が出来るようになった。	○	溶接技術シミュレーション精度向上とロバスト性のある良品条件明確化と AI 融合に依る完全検査レス化。
(2)高効率化技術開発	発電効率 62%	燃料リサイクルの高精度化により発電効率 63%を達成し、65%の可能性を見出した。	○	アシスト調整弁による F/B 制御構築を燃料電池モジュール、及びシステムでの検証。センサの初期劣化、経時変化を想定した精度保証方法構築。
(3)多用途活用実証	有望な実証構想立案(23 年度末まで継続)	電力ビジネス適用他検討し適用技術課題概要の明確化実施、その他の展開構想継続検討中。	○	用途展開構想を継続検討、技術課題、制度課題、コラボ体制の明確化。最有力展開候補選定し 24 年度より実証検証に移行。

3.2 研究開発の詳細

(1) 低コスト化技術開発

低コスト化の課題の一つは、燃料電池モジュールが大型で高コストである事である。従来では、図 3 に示すように、CS を縦積み配置していたため、全高が高く大型になり、構成部材の SUS 材や断熱部材の

使用量が多く、材料費が高いと云った課題に対して、新構造では小型化と熱マネ技術の両立を考慮し、CSを平面に配置し、配管などの付属部品をCS隙間に集約することで、スペース効率を最大限に生かすこと、更に、燃料処理系の高さ低減と熱ロス最小化を実施した。これらにより大幅なコストダウンの目途付けを実施した。

■低コスト化技術開発

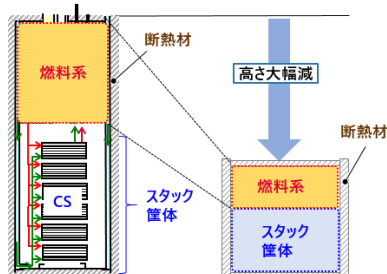
・セルスタックレイアウト最適化による低コスト化

- ・高さ低減し、コスト高いSUS素材+外断熱材費を削減
- ・機能を統合し部品点数を削減（溶接長削減）

<達成手段>

- ・スペース効率を最大限に生かすCS配置
- ・CS全面から輻射放熱経路を確保しCSを均温化
- ・構成部品の一体化を進め、溶接長や溶接部位を削減

従来：CS縦積み配置 新CSレイアウト（平面配置）



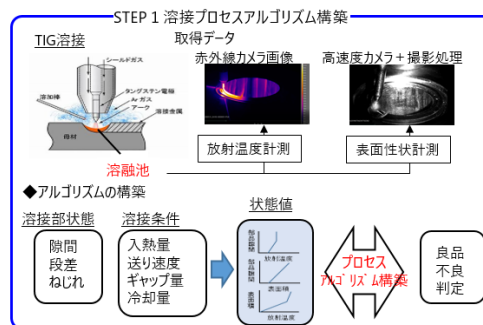
セルスタック配置の最適化により素材費半減の目途付けを完了

・工法革新による低コスト化

- ・組立工数の大半を占める溶接工程改善、リーク検査レス化

<達成手段>

- ・溶接速度向上：欠陥をださない溶接状態定量化
→入力エネルギーと速度限界値の最適化
- ・検査レス化：溶接中の視覚検査とAIの融合によるリークレス保証



溶接溶融部の状態値より部材の熱変形予測を可能とした

図 3. 低コスト化技術開発

更に、工法革新による低コスト化アプローチでは、燃料電池モジュールの構造体接合の殆どが溶接である事から、溶接工程改善と、検査レス化することで低コスト化を目指し、Step1として、溶接プロセスアルゴリズムを構築し、Step2で完全検査レス技術の開発を計画している。

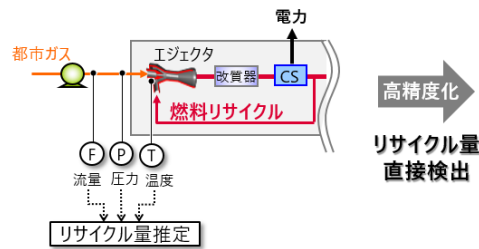
現時点、溶接プロセスアルゴリズム構築に於いて、溶接部の健全性確保に向け、未知であった溶融池の状態計測と、実験&CAE検証から、熱変形の計算目途を得ている。

(2) 高効率化技術開発

現在エジェクタに依る燃料リサイクル技術を採用しているが、燃料リサイクル量の最適化に付いては、現状、複数のセンサでの推定制御であり、また、エジェクタ吸引量の調整手段がなかったことで、限界発電効率を狙った燃料利用率制御が困難となっている。

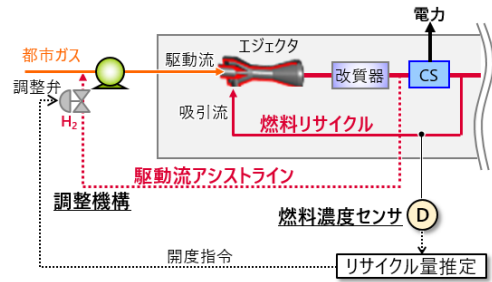
■高効率化技術開発

・従来の燃料リサイクル（エジェクタ方式）



課題：固定絞りエジェクタで燃料リサイクル成り行き
 ※複数状態量からリサイクル量を推定
 →リサイクル量調整が難しく、複数センサでの推定制御で
 限界燃料利用率制御が困難

・新構想リサイクルF/B制御（調整機構と濃度センサ活用）



・濃度センサによるリサイクル/CS状態の直接検出
 ・駆動流アシストによるエジェクタ調整機構で高精度化

→リサイクルF/B制御による高効率化が可能
 ※経時的な変化も捉えられ、信頼性向上にも寄与

リサイクルF/B制御の要素技術での発電効率63%を確認、65%の可能性を見出したシステムでの発電効率65%の実現に向けて、信頼性検証、システム化検討を実施中

図 4. 高効率化技術開発

そこで、燃料利用率の直接検知の為、自動車用の排気ガスセンサを、燃料濃度センサとして、燃料リサイクルライン上に設置し、更に、エジェクタ調整機構として、駆動流アシストラインと流量調整機構を設置、リサイクル F/B 制御の高精度化で、燃料利用率の向上を図ることで、発電効率向上を目指した。

現時点、リサイクル F/B 制御の要素技術検討で初期性能(62%)検証済みであり、今後、燃料電池モジュールおよびシステムでの発電効率 65%超の実現に向けて、システム化検討を実施中する計画である。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 低コスト化技術開発

工法革新による低コスト化で、薄板の熱変形を抑制する溶接法の選定と、溶接の加工バラツキの低減と云った課題に対し、入熱を狭くできるレーザー溶接等で、構築したプロセスを活用し、ロバスト性のある良品条件の明確化や、熔融池のモニタリング技術を開発し、生産時のインライン化で常時監視し検査レス化を計画していく。

(2) 高効率化技術開発

要素評価から実システムでのセンサ値を用いたリサイクルガス調整、効率 65%の実証、及びセンサの信頼性確認と云った課題に対して、アシスト調整弁による F/B 制御構築、及びセンサ経時変化に対する補正手法構築を進めていく計画である。

(3) 多用途活用実証

前述の構想以外にも、変動する電力エネルギー環境を捉えた用途展開を継続検討、技術課題、制度課題、コラボ体制の明確化を進める。最有力展開候補選定し 24 年度より実証検証に移行模索していく。

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

・業務用展開と多用途展開での市場創出で、生産・販売・施工・メンテナンス等、各バリューチェーンで雇用確保が可能である。更に本技術は国外にも適用可能と考える。

また、電力システムの調整力電源等としての可能性も秘めていることから、再生可能エネルギーの不安定性をカバーすることで、更なる再エネの普及アシスト（結果的にCO2削減に貢献）、国内における電力システムのアンシラリーサービスの一翼を担う可能性を秘めていると考えられる。分散化電源としてスマートシティ・スーパーシティ等での調整力、レジリエンス効果の提供等の活用と云った展開にも期待が出来る。

・要素部品からシステムまでの一貫した開発、製造を行う事で、各々の部品の性能向上、コスト削減を最大限に発揮できるように開発していく。更に自動車用の部品・製造装置等を流用しながら、モノづくりの改善や信頼性を引き継いで余分な構成を排除することで価格競争力を確保する方針である。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	助成機関名
1	2020/12/1	特願 2020-199653	燃料電池モジュール	株式会社デンソー
2	2021/7/16	特願 2021-118225	燃料電池モジュール	株式会社デンソー
3	2021/2/23	特願 2021-026888	燃料電池用ホットモジュール	株式会社デンソー
4	2022/4/5	特願 2022-063125	燃料電池モジュール	株式会社デンソー
5	2022/4/7	特願 2022-064017	燃料電池システム	株式会社デンソー
6	2022/4/15	特願 2022-067748	脱硫器	株式会社デンソー

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2022年3月	デンソーテクニカルレビューVol.26	デンソーにおける SOFC システムの開発状況と今後の展開	長田 康弘

課題番号（管理番号）： MU04

研究開発テーマ名：「燃料電池の多用途活用実現技術開発／
用途拡大を見据えた薄型・高効率 SOFC システムの実用化開発」

実施者： 株式会社アイシン

期間： 2020年9月～2022年6月

1. 研究開発概要

脱炭素社会に向けたステップとして、低炭素社会での定置式 SOFC コージェネ（エネファーム）の更なる普及には既築集合住宅や狭小地設置の開拓、電力・給湯需要が比較的小さい世帯への普及が必要である。新市場の開拓には、省エネ高効率給湯器（エコジョーズ）並みの薄型機器の開発、また、前記世帯向けには低出力でも高い発電効率が得られる効率ブーストアップ技術の開発を目指す。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

表 1 に示すとおり、新市場の開拓には省エネ高効率給湯器（エコジョーズ）並みの薄さ（奥行）を目指す。効率向上には、低出力で最新のエネファームと同等以上の発電効率を目指す。

表 1. 本事業における目標設定

技術項目	最終目標	中間目標	現状
発電効率の ブーストアップ (送電端効率、LHV)	55%以上 @AC500W 相当	54%以上 @AC500W 相当	54% @AC700W
本体サイズの 薄型・小型化	奥行 240mm	ホットモジュール(HM)体積 32.5L 以下	奥行 330mm

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
発電効率向上	54%以上 @AC500W 相当	54.4%	○	HM 放熱低減 HM 熱バランス改善
小型化	ホットモジュール(HM)体積 32.5L 以下	27L	○	HM 構造簡素化 HM 薄型化

3.2 研究開発の詳細

(1) 発電効率向上：

HM のホットモジュール(HM)の熱交換器追加や小型化による放熱低減を反映した HM 試作機を製

作した（写真1）。燃料利用率 83%の発電条件においても HM 内部の熱バランスが改善し、効率 54.4%を達成した（表2）。

写真 1. ホットモジュール試作機外観



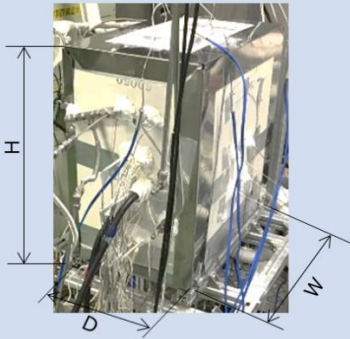
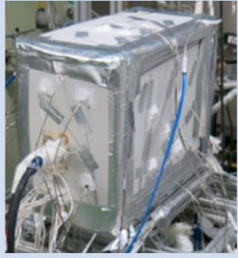
表 2. 試験結果

項目		中間 目標値	20年度 要素試作機	21年度 HM試作機
発電 性能	AC出力換算値 [W]	500	590	506
	AC効率換算値 [% ,LHV]	≥54	44	54.4
発電 条件	燃料利用率 [%]	≥80	79	83

(2) HM 小型化：

(1) の発電効率向上に必要な HM 小型化に関して、HM 内部構造を改良したを検討した結果、HM 試作機の体積は 27 L となり、中間目標値を達成した。

表3. HM 小型化検討結果

項目	中間目標値	20年度試作機	21年度試作機
外観			
幅W[mm]	—	466	390
奥行D[mm]	—	282	221
高さH[mm]	—	400	314
体積[L]	32.5以下	52.6	27

4. 成果の実用化・事業化に向けた取組及び見直しについて

- (1) 中間目標を達成したが、現状のホットモジュール(HM)設計では構造が複雑かつ高価となり、市場投入を見通すことができない状況である。
- (2) HM 構造を見直し、将来の市場投入を目指した開発を継続する。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	助成機関名
1	2022/2/28	特 願 2022-029830	燃料電池システム	株式会社アイシン
2	2022/3/24	特 願 2022-047959	燃料電池システム	株式会社アイシン

—研究発表・講演、文献等、その他—

なし

課題番号（管理番号）： MU05

研究開発テーマ名：「燃料電池の多用途活用実現技術開発」

高信頼性炭化水素系補強電解質膜の低コスト・革新的生産技術開発

実施者： 東レ株式会社

期間： 2020年9月～2022年6月

1. 研究開発概要

我が国の第6次エネルギー基本計画（2021年10月策定）やNEDOロードマップに基づく燃料電池自動車における、2030年以降の自立的普及拡大に向け、高効率、高耐久、低コストの燃料電池システムを実現するための基盤技術の開発とともに、現時点で年間数百～数千台規模の製造から、更に生産性を向上するためには、高品質の燃料電池を短タクトで大量生産可能な新たな製造プロセス技術や品質管理技術の確立・導入が不可欠である。燃料電池には特有の材料や構造等があり、従来、短タクトの製造プロセスには用いられていないそれらの材料や構造等の特性、特徴を十分に考慮した生産技術、品質管理等の技術開発を行うことが必要である。

特に、燃料電池スタック、膜電極接合体（MEA）の性能を決める重要なMEA構成材料である電解質膜に関して、大量普及に見合った生産を可能とするプロセスを実用化する技術、品質管理方法・検査方法を成立させる実用化技術（短タクトのプロセスに対応した装置、プロセス制御・品質管理等のためのセンサー・センシング技術、高精度の検査手法等）の開発が必須である。

東レは、2013～2014年度NEDO次世代技術開発事業で高信頼性炭化水素系電解質膜を開発した。2015～2017年度のNEDOプロセス実用化技術開発事業で、高信頼性炭化水素系電解質膜の発電性能と耐久信頼性を維持しながら、電解質膜10万m²/年以上を供給可能とする広幅・高速化製造プロセス技術と検査技術を開発し大量供給の足掛かりを作った。更に、2018～2019年のNEDOプロセス実用化技術開発事業において、更なる生産性向上と、燃料電池の運転に影響を与える不純物低減を両立できるプロセス技術開発により、電解質膜20万m²/年以上の高品質・高信頼性の炭化水素系電解質膜を開発した。

これら基本技術を用いて、本事業においては自社研究開発にて新たに開発した高信頼性炭化水素系補強電解質膜の大量供給のための製造プロセス技術を構築し、燃料電池市場の拡大を図ると共に、わが国の燃料電池分野の競争力を強化していくことが可能と考える。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

自社研究開発で新たに開発した低ガス透過で、機械的および化学的耐久信頼性に優れ、高温作動化が期待される高信頼性炭化水素系補強電解質膜を少量試作ベースから普及拡大を見据えた供給量を達成し得る製造プロセス技術開発およびその検査・品質管理技術開発を目標とする。

なお、目標設定の裏付けとしては、2019年1月にFCCJ主催のFCV課題共有フォーラムでは、実用化に向けた電解質膜の開発・技術実証として、化学劣化抑制、HC膜（機械耐久向上、水素バリア性向上）、低コスト・高ロバスタな電解質膜量産技術の確立があげられている。

具体的な開発目標は、2020年度以降の市場導入拡大及び2030年の自立的な普及拡大期を見据え、燃料電池スタックの製造に必要な工程時間として、現行の1/10以下を見通す技術を確立

する（現行と比較して10倍以上の生産性向上）という前プロセス実用化技術開発事業目標を基本とし、前事業と同等の20万m²/年以上の高信頼性炭化水素系補強電解質膜を供給可能とする製造プロセス技術と検査・品質管理技術を開発し、その電解質膜の性能を実証することを目標とした。また、2035年以降の大量普及期に求められる達成性能レベルを念頭におき、高温発電性能と耐久信頼性のポテンシャル検証を進めことを目標と定めた。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

表1に2022年6月までの目標達成状況を示す。開発項目1は、最終目標：20万m²/年の生産性について目標を達成した。開発項目2は、ポリマー及び製膜スケールアップを達成した実証膜で、初期発電性能、化学耐久性、機械耐久性ともに、最終目標を達成した。開発項目3は、高温作動化、高温化学耐久性ともに、基準フッ素膜と比較し炭化水素系補強電解質膜の優位な可能性を示すポテンシャルを確認した。

表1 研究開発項目の達成結果

項目	中間目標 (2022/6月末)	成果	達成度	今後の課題
開発項目1 低コスト・革新的 生産技術の開発・ 実証	補強膜生産性：>20万/m ² ①ポリマー生産技術 重合10倍スケールアップ ②製膜生産技術 補強製膜10倍スケールアップ	①、②とも目標の スケールアップが完了し、 目標生産性を達成	○ ○ ○	なし なし なし
開発項目2 発電性能と 耐久信頼性の両立	①初期発電性能 基準フッ素膜以上 ②化学的耐久性 基準フッ素膜対比6倍以上 ③機械的耐久性 基準フッ素膜目標の6倍以上	①～③の全ての項目で 生産性実証膜において 最終目標を達成	○ ○ ○	なし なし なし
開発項目3 高温発電性能と 耐久信頼性の ポテンシャル検証	①高温作動化 基準フッ素膜以上 ②高温化学的耐久性 基準フッ素膜対比6倍以上	①～②の項目で 生産性実証膜において 最終目標を達成	○ ○	なし なし

3.2 研究開発の詳細

(1) 開発項目1：低コスト・革新的生産技術の開発・実証

①製造プロセス技術（ポリマー生産技術）開発

製造プロセス技術（ポリマー生産技術）開発は、研究開発項目の日程を前倒し目標達成した。具体的には、精密重合/精製設備に関する設備設計・据付が完了し、導入設備において、スケールアッププロセス条件を構築し、スケールアップ前後での諸物性が基準内であることを確認し、目標（生産性：20万m²/年の供給能力）を達成した。

②製造プロセス技術（製膜生産技術）開発

製造プロセス技術（製膜生産技術）開発は、研究開発項目の日程を前倒し目標達成した。

具体的には、東レの製膜技術、精密塗布技術を駆使し、広幅・増速の設備設計・据付が完了し、導入設備において、スケールアッププロセス条件を構築した。また、スケールアップ前後での諸物性が基準内である事を確認し、目標（生産性：20万m²/年の供給能力）を達成した。

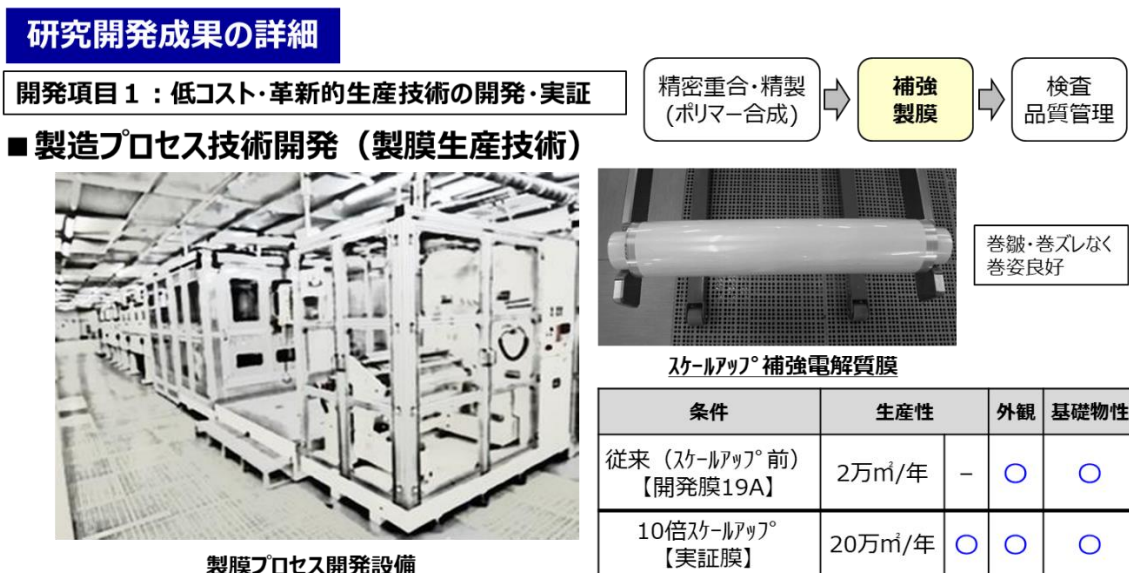


図1 製造プロセス技術（製膜生産技術）開発結果

③検査品質管理技術開発

検査品質管理技術開発は、研究開発項目の日程を前倒し達成した。

具体的には、炭化水素系補強電解質膜の品質管理強化に向けインライン膜厚計の検討・導入を実施した。導入したインライン膜厚計を用いて、生産性10倍のスケールアップ製膜条件を適用した炭化水素系補強電解質膜の膜厚をインラインで計測する事が可能となり、そのスケールアップ生産条件の工程能力が十分であることを実証した。

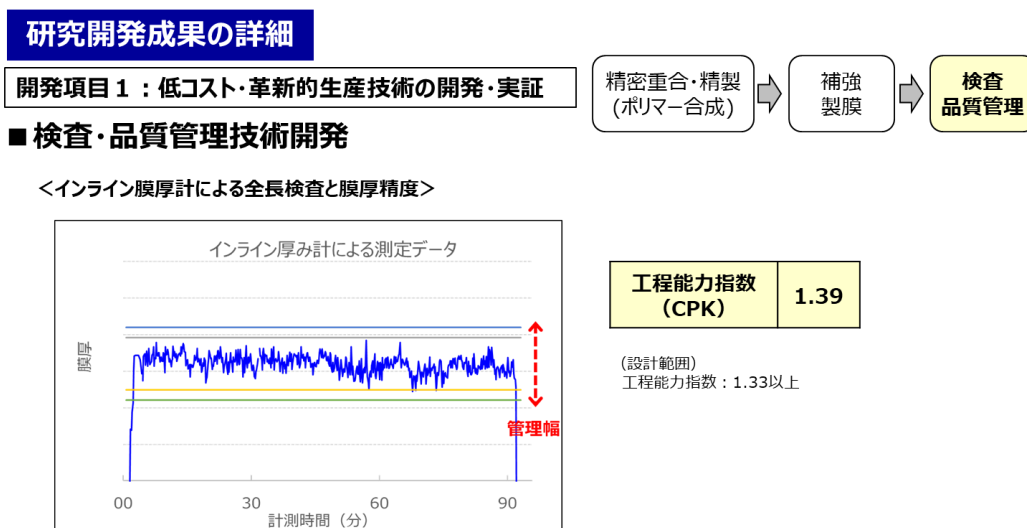


図2 検査品質管理技術開発結果

(2) 開発項目 2 : 発電性能と耐久性の両立

初期発電性能について、東レ実証膜は、基準膜である NafionHP (0.24V@0.9A/cm²) 以上の発電性能を示し、目標を前倒し達成した。(図 3)

機械的耐久性については、東レ実証膜【補強膜】は、過酷な乾湿サイクル評価 (FCCJ プロトコル対比 4 倍加速評価) にて、前事業開発膜【無補強膜】の 3 倍以上の 3 万回 (FCCJ プロトコル換算 12 万回、NafionHP 目標の 6 倍) を示し、目標を前倒し達成した。(図 4)

化学的耐久性について、東レ実証膜は、基準膜 (NafionHP : 225 時間) の 6 倍である、1350 時間以上の化学耐久性を示し、目標を前倒し達成した。(図 5)

上記結果から本事業にて生産性実証膜はいずれの評価項目において目標を達成した。

開発項目 2 : 発電性能と耐久信頼性の両立

<初期発電性能>

■ 発電性能

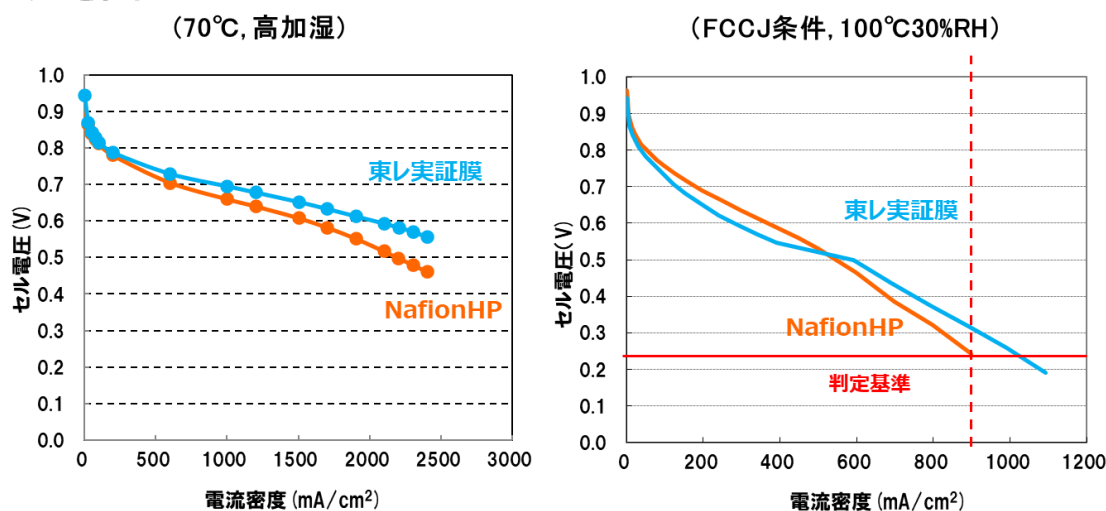


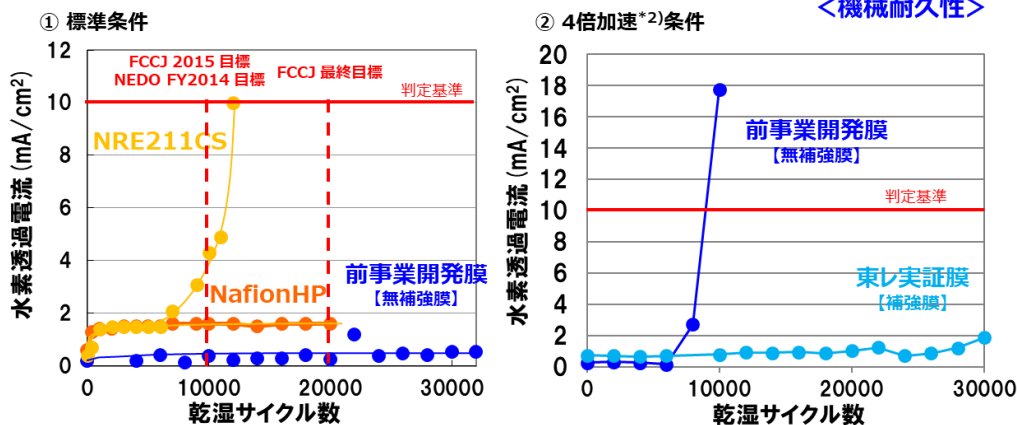
図 3 初期発電性能結果

開発項目 2 : 発電性能と耐久信頼性の両立

■ 機械的耐久性*1) (FCCJプロトコル)

・乾湿サイクル評価 : 80°C 0%RH, 2min ⇔ 150%RH, 2min

<機械耐久性>



*1) 「固体高分子形燃料電池の目標・研究開発課題と評価方法の提案」(H23年1月FCCJ発行)15頁記載の最終目標条件参照
*2) HC無補強膜をベースに加速倍率を設定

図 4 機械的耐久性結果

開発項目 2 : 発電性能と耐久信頼性の両立

■ 化学的耐久性* (NEDOプロトコル)

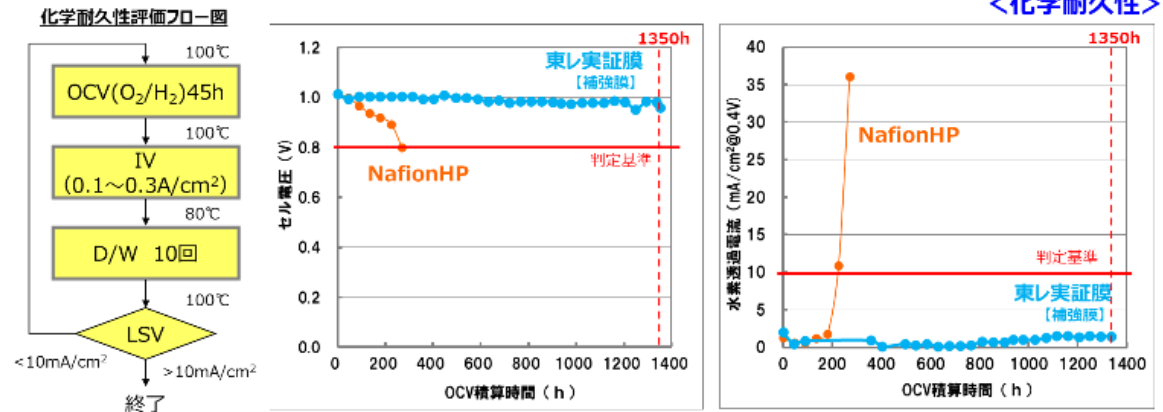


図 5 化学的耐久性結果

(3) 開発項目 3 : 高温発電性能と高耐久信頼性のポテンシャル実証

高温発電性能について、東レ実証膜は、基準膜以上の高温発電性能を示し、目標を前倒し達成した。高温化学的耐久性についても、東レ実証膜は、基準膜 (NafionHP : 150 時間) の 6 倍である、900 時間の高温化学的耐久性を示し、目標を前倒し達成した。(図 6)

開発項目 3 : 高温発電性能と耐久信頼性のポテンシャル検証

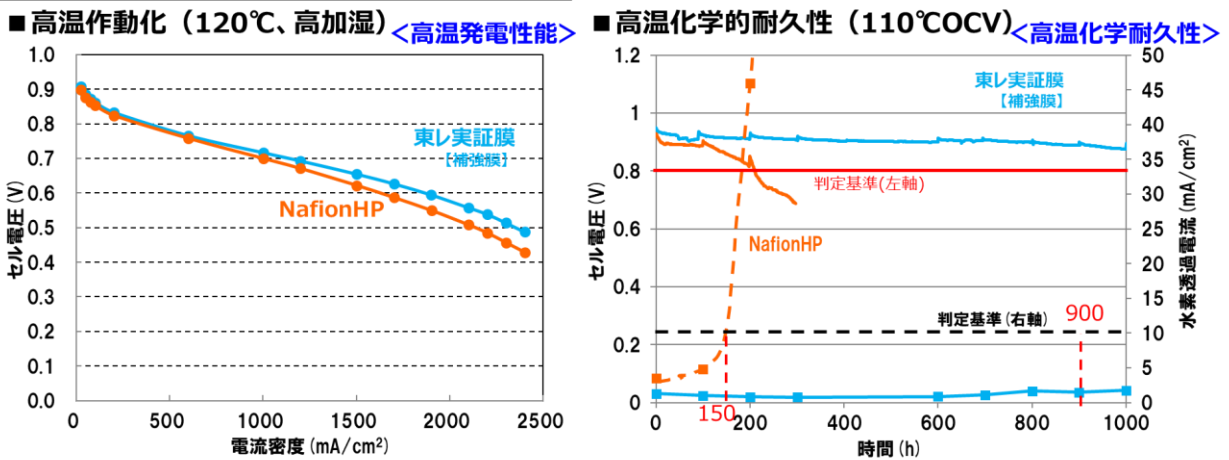


図 6 高温発電性能と高耐久信頼性のポテンシャル実証結果

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

東レ G では、水素製造、輸送・貯蔵、利用 (本事業) の全てで、幅広く基幹素材を開発し、カーボンニュートラル社会を実現していく計画である。市場展望は、今後は、乗用車用途だけでなく、大型・商用モビリティ (HDV : トラック、船舶、航空機用途等) への展開に向けて、電解質膜の更なる耐久性の向上、2030 年以降の高温作動化への対応が必要になると考えており、東レ 100% 子会社のドイツ・Greenerity 社 (MEA メーカー) も含めて、本事業の研究開発成果を燃料電池用途への販売を積極的に進めていく計画である。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

なし

以上

課題番号（管理番号）： MU06

研究開発テーマ名：「**燃料電池の多用途活用実現技術開発／
車載用燃料電池セパレータの大量普及時に向けた品質担保手法の開発**」

実施者： 日清紡ケミカル株式会社

期間： 2020年9月～2022年6月

1. 研究開発概要

固体高分子形燃料電池を搭載した燃料電池車の普及促進のためには軽量で安価なカーボンセパレータが必要である。

本助成事業では、2020年度までのNEDO助成事業で実証してきた車載向けカーボンセパレータの機能及び性能を維持しつつ、大量生産時に品質及び信頼性を担保するための検査技術を構築する。

具体的には、現在目視確認により選別を行っている形状異常等の外観不良を、画像解析を適用して検査精度の向上と検査時間の短縮を目指す。さらには、この手法と他の検査手法のデータを組み合わせ、AIを適用した解析技術により判定精度の向上を図り欠陥検査技術の信頼性を向上させる。これらの技術を用いることで、顧客ニーズを満たすカーボンセパレータの品質規格を明らかにし大量生産時の品質を担保することが可能となる。

本開発によって、安価で信頼性の高い燃料電池セパレータを提供、燃料電池車の普及拡大に寄与する。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

フルサイズセパレータの検査項目の一つである形状異常などの外観不良の検出精度を向上させる開発、およびこの技術とほかの手法を組み合わせるAIを用いた解析技術により判定精度を向上させる開発を行う。

具体的には、2019年度時点で目視検査で対応している欠陥検査に画像解析技術を適用することによって、現在20秒/枚かかっている検査時間を、2019年度までに開発した欠陥検出自動化機と同期できる9秒/枚まで短縮させる。

更に、取り込んだ画像データとほかの欠陥検査データを組み合わせ、AIを用いた解析技術を確立し、検出漏れゼロ、過検出による良品の誤判定率2%以下を目指す。

当社は2025年時点の自動車用途普及期に必要なセパレータ数量(数百万枚～数千万枚/年)の生産を想定した量産試作設備を開発している。この量産試作設備は検査工程も組み込む計画であることから、検査タクトの目標を成形工程を含めた前工程と同じ9秒/枚とした。

中間目標(2022年6月)としては、以下の2点を挙げる。

- ・画像解析技術を用いた9秒/枚の検査タクトを達成する技術の開発
- ・画像解析技術では検出できない欠陥の見極めとそれらを検知する技術の開発

さらに、2022年度末には複数検査結果を組み合わせ、データをAIを用いて解析する技術を確立させる。さらに、本研究開発の新しい検査技術で合否判定されたセパレータ単体について、耐久性等の評価を行うことで判定精度の妥当性の確認を行う。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
画像解析技術を用いた欠陥検出手法の開発	画像解析技術を用いた9秒/枚の検査タクトを達成する技術の開発	<p>・画像解析技術を用いた外観検査装置を導入し 目標タクトで検出できる欠陥を特定した。</p> <p>・撮像した画像の欠陥判断の精度確保の手法として、従来の閾値判定とA I 推論での比較を行い、A I 推論の方が繰り返し精度の面で優位であると判断した。</p>	△	<p>・本検査手法による信頼性の担保（信頼性を保証するために必要なN数が未決定）</p> <p>・複数品種への展開（本検査手法の汎用性有無、個別品種特有の仕様および発生する欠陥に対する適用可否）</p>
欠陥検出手法の組み合わせによる欠陥検査の最適化と判定手法の確立	画像解析技術では検出できない欠陥の見極めとそれらを検知する技術の開発	<p>・画像検査装置で目標タクト内では検出できない微小欠陥を見極め、検出する機構を構築した。</p> <p>・単一検査手法では判定精度が低い欠陥に対して、複数のデータを用いてA I で判定することで判定精度を向上できる可能性を見出した。</p>	△	<p>・A I 適用に関する課題（欠陥位置特定作業の精度向上）の解決</p> <p>・複数画像の推論結果を組み合わせた総合判定システム構築に向けた取組み</p>

3.2 研究開発の詳細

(1) 画像解析技術を用いた欠陥検出手法の開発

① 研究開発の内容

撮像、ライティング、画像解析といった技術を組み合わせて、カーボンセパレータに対して最適な条件を見出し、画像解析手法で検出できる欠陥の明確化と合否判定手法の検証を行う。

② 研究開発の進捗

外観検査で検出している欠陥の種類及びサイズにより、検出手法を分類することとした。（マクロ

サイズ (0.05 mm以上)・マイクロサイズ (0.05 mm未満))

a. マクロサイズ：セパレータを左右裏表に4分割し、4台のラインセンサーで撮像を行う検査装置を作成し、撮像された画像から欠陥の検出手法について検証を行った。(図1参照)

本装置を用いて、9秒/枚での撮像が可能であることを確認した。

b. マイクロサイズ：セパレータを平置きすると「閉じて」しまいマイクログラフでも撮像が不可能なワレ欠陥に対して、ワークを湾曲させることにより閉じたワレを「開いて」検出を容易にする搬送システムを開発し、ラインセンサーと組み合わせた撮像装置を構築し、検証した。(図2参照)

撮像した画像の欠陥判断の精度確保の手法として、従来のルールベース(閾値判定)とディープラ

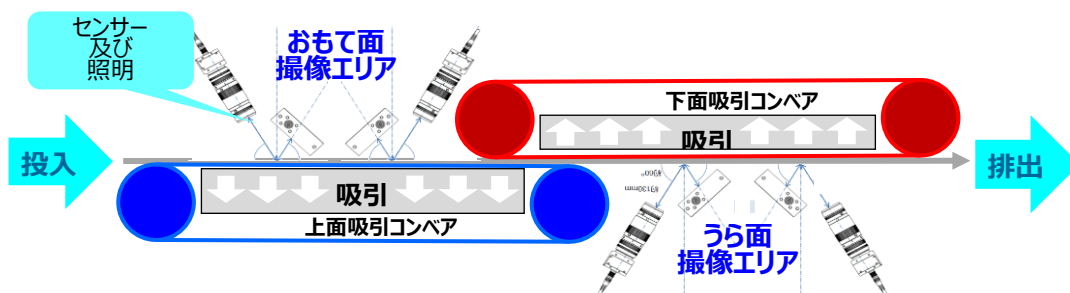


図1. マクロ検査装置の両面撮像機構

ーニングを用いたAI推論の比較を行ったところ、検査を行う1枚の画像サイズが大きく(8,190×6,700 pixel)、検出サイズ(5 pixel)が非常に小さいため、ルールベースによる判定の場合に標準で装備される位置補正では補完しきれなかった。また、撮像の流れ方向が長いため、ワークの投入角度により検出の再現性にバラツキが発生することから、AI推論が優位と判断した。

一方で、学習工程の品質により推論精度は100%保証されるものではない。そこで、欠陥検出手法の組み合わせによる欠陥検査の最適化と判定手法の確立を目指し、複数の画像を組み合わせた「AI総合判定システム」の検討を行った。

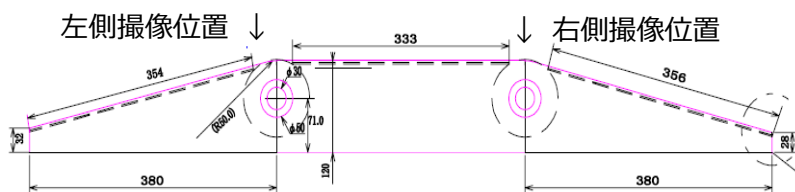


図2. 搬送システム(山型チャンバ)

(2) 欠陥検出手法の組み合わせによる欠陥検査の最適化と判定手法の確立

① 研究開発の内容

- a. 画像解析方式とは異なる方式の欠陥検出手法を調査し、特に画像解析方式では検出できない欠陥の検出可否を検討する。
- b. 複数の欠陥検査データを組み合わせたAIを用いた解析技術により、目視検査や画像解析方式単体では検出が困難な欠陥の検出の実現と検査結果の再現性向上をめざす。

② 研究開発の進捗

- a. 画像解析方式とは異なる方式の欠陥検出手法の検討

- ・ 赤外線欠陥検出装置の精度向上

高精度カメラによる撮像試験を実施し、検出精度向上と繰り返し測定における安定した欠陥検出が可能な仕様を見つけることができた。(図3参照)




検討内容	現行装置	検討内容(狙い)
カメラ性能比較 分解能と距離 撮影方法比較 3台2回撮影 ⇒1台1回撮影	 サーモカメラ3台 2回撮影	 冷却式高感度 サーモカメラ1台 1回撮影
ランプ種類 水冷⇒空冷 サイズは開発要	 水冷式キセノンランプ(熱源) ※2回連続でフラッシュさせる為水冷式採用	 空冷式キセノンランプ(熱源)

図3. 高性能カメラへの変更

- ・ X線による内部欠陥検出手法

画像解析技術以外の欠陥検出手法として、X線検査装置の適用可否検討を行った。現時点のX線の線源及びラインセンサーの精度や解像度では、インライン検査への適用は難しいと判断したが、透過X線撮像とX線CTの両手法が画像解析装置及び赤外線欠陥検出装置で検出された欠陥の内部構造分析に適用できることが分かった。(図4参照)

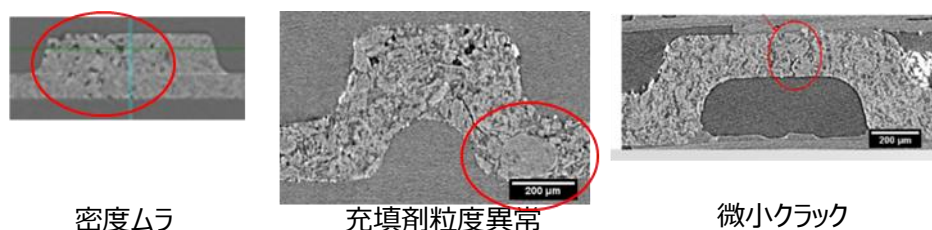


図4. セパレータ内部の欠陥例(赤丸部が該当)

これにより、画像解析装置及び赤外線欠陥検出装置での検出手法による合否判定結果の妥当性確認に適用させる。

b. AI総合判定システム構築に向けた課題

これまでに得られた各種画像データにて検出された欠陥のうち目視検査が難しい「疎」に関して、取得画像に対する特異な座標位置の相関関係を精査することで、検出精度を高めるアルゴリズムの検討を行った。その結果、80%程度の推論確率をもって「疎」を判定できることを確認した。今後の欠陥検出精度向上のため、画像中の欠陥の位置検出精度とアノテーション精度を向上させて、個々の画像に対するAI推論モデルの精度向上を実現させる。そのうえで、複数画像の推論結果を組み合わせた総合判定システムの構築を目指す。

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) 事業化のスケジュール

図5に、事業化に向けた具体的な取組みを示す。

年度	2023年度	2024年度	2025年度	2026年度	2027年度
品質規格決定	顧客と自動外観検査装置を用いた規格を合意する				
品質管理 生産技術	安定した品質を確保するための生産技術検討				
設備投資	市場及び顧客要求事項に合わせた設備投資		必要に応じて追加投資		
生産・販売					
収益発生			収益発生		
	2024年度に市場規模等を勘案し続行/中断を判断				

図5. 事業化に向けた具体的な取組み

(2) 市場規模

表1に、市場規模（現状と将来見通し）を示す。

表1. 市場規模（現状と将来見通し）

		自動車用国内市場 規模(百万円)	自動車用海外市場 規模(百万円)	日清紡グループの シェア
1年目	2023年度	1,044	8,707	15.0%
年目	2024年度	1,440	11,780	12.0%
3年目	2025年度	2,053	15,995	10.0%
4年目	2026年度	2,742	21,564	8.0%

5年目	2027年度	3,784	29,176	8.0%
-----	--------	-------	--------	------

市場規模算出の根拠：

「2020年版 燃料電池関連技術・市場の将来展望」（出版：富士経済）より

シェア見通しの根拠：

販促活動・顧客での評価結果により、売り上げそのものは増加するものの、市場に対するシェアは新興企業(特にアジア圏)の増加を受けて一定割合に落ち着くものと推察している。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

なし

課題番号（管理番号）： MU07

研究開発テーマ名：「燃料電池の多用途活用実現技術開発／高耐久空冷式燃料電池システムの開発」

実施者：日清紡ホールディングス株式会社

期間：2020年9月～2024年3月

1. 研究開発概要

日清紡ホールディングスは本事業を通して、利便性が高く高耐久な空冷式燃料電池システムを開発し2030年までの燃料電池の多用途展開に貢献することを目的としている。

水素社会実現のためのキーデバイスとして固体高分子型燃料電池（PEFC）があり、PEFCは燃料電池車や燃料電池フォークリフトに使用される等、すでに実用例がある。しかし、何れの用途も比較的ハイパワーなシステムであり、冷却系の補器が多い水冷式燃料電池を採用している。燃料電池をさらに多様な用途に普及させるためには、より簡素で小型な低コストの燃料電池システム、すなわち空冷式の燃料電池システムが必要であると考えます。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

本事業では、2022年度に試作する空冷式燃料電池プロトタイプシステムBを用い、「実運転に対して10倍の加速耐久サイクル試験」3,000サイクル（20,000時間相当）後の発電性能で初期値の60%を維持することを目標とする。

現在の空冷式燃料電池は耐久性に課題があり、電源システムを維持するために燃料電池を頻りに交換することを要求され、経済性が悪く、普及が進まない要因となる。北米等で導入が進んでいる小型フォークリフトに使用される燃料電池システムでは、耐久時間は約6,000時間と短く（当社調べ）、車体寿命（約10年）の間に2回から3回の燃料電池の交換を余儀なくされている。本事業では、現状の空冷式燃料電池の約3倍の耐久性である20,000時間を目標に設定した。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
高耐久空冷式燃料電池システムの開発	・2021年度に試作する空冷式燃料電池プロトタイプシステムAを用い、「実運転に対して10倍の加速耐久サイクル試験」の3,000サイクル（20,000時間相当）後の発電性能を測定し、その評価結果から耐久性の実力値の把握と課題抽出、改善策の策定までを実施する。	・計画通り進捗しており、2021年12月までに1kW級プロトタイプシステムAの組立を完了した。 ・2022年3月より、プロトタイプシステムAの耐久性評価を開始しており、900サイクルまでの評価を完了した。20,000時間相当の耐久性が見込まれる。	○	・耐久試験について、3,000サイクルまでの評価を実施する。 ・プロトタイプシステムBの開発について、部品調達に長期間要するものも判明しているため、設計および先行手配を進める。

3.2 研究開発の詳細

(1) プロトタイプシステム A の設計・試作

プロトタイプシステム A について、図 1 のシステムブロック図の構成にて設計検証・試作を完了した。外部電池との通信を行うマイコンについてはプロトタイプシステム B にて対応する。

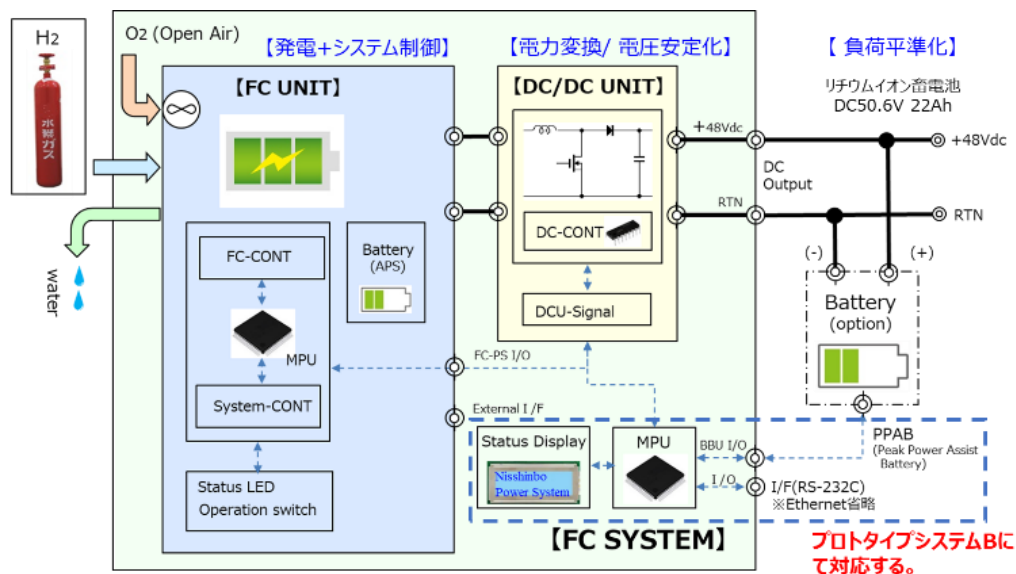


図 1 機能検証用プロトタイプシステム A のシステムブロック図

試作したプロトタイプシステム A を用いて小型移動体用途、非常用電源用途での活用を想定し、それぞれ実証を行い、システムが問題なく動作することを確認した（図 2）。小型移動体用途は 500L 水素吸蔵合金ポンプ 3 本使用し、60～70km 程度の走行が可能である。非常用用途は PC やディスプレイ等、合計 250W 程度の負荷に対し、7m³ 水素ポンプ 1 本で 36 時間の運用が可能である。

小型移動体用イメージ



非常用イメージ



図 2 プロトタイプシステム A を用いた用途イメージ

(2) 実運転に対して 10 倍の加速耐久サイクル試験

機能検証を目的としたプロトタイプシステム A を用いて 2022 年 3 月より耐久性試験を開始し、900 サイクルまで評価を完了した。スタック単体と比較し、システムで電力を消費する分の電圧差（損失）はあるが、スタックと同等の劣化推移を確認し、20,000 時間相当の耐久性を見込む。（図 3）

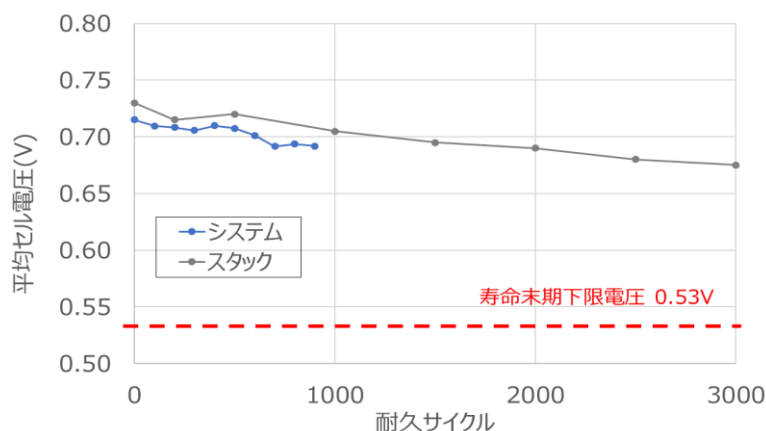


図 3 実運転に対して 10 倍の加速耐久サイクル試験の進捗

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 最終目標（2024 年 3 月）

2022 年度および 2023 年度では、より具体的な製品化を目的とし、表 1 に示す現段階での開発目標を目指し、空冷式燃料電池システムのプロトタイプシステム B を開発する。プロトタイプシステム B を用いて「実運転に対して 10 倍の加速耐久サイクル試験」3000 サイクル後の発電性能を測定し、初期値の 60%以上の発電性能維持（製品寿命 20,000 時間以上に相当）を達成する。

なお、表 1 の開発目標は、以下（1）および（2）の実施結果を受けて見直すこととする。

（1）用途ターゲットを明確にする。

（2）明確にした用途向けにプロトタイプシステム B の目標製品仕様を確立する。

用途ターゲットの明確化について、顧客ニーズと実現性に基づき適用用途を評価する。試作品を用いて自社グループ内及び外部へのヒアリングを実施し、顧客のニーズを確認する。各ニーズの中で最も実現性のある用途分野を絞り込み、ニーズに基づいた重量、体格等の要求事項を開発にフィードバックし、仕様を策定する。

表 1 プロトタイプ B の現開発目標および 2021 年度成果・進捗概要

システム	最終目標	2021年度成果	2022年度実施事項
定格出力	1kW	1kW	—
重量	約15kg	約40kg	機能の統廃合による軽量化を図る
体格	W430×D360×H470mm	W490×D420×H580mm	機能の統廃合による小型化を図る
負荷平準化用蓄電池との通信・制御	蓄電池との電力分配機能の搭載および動作確認	非搭載	通信・制御用マイコンを搭載する
耐久時間（サイクル数）	20,000時間（3,000サイクル）	20,000時間（3,000サイクル）	「実運転に対して10倍の加速耐久サイクル試験」3000サイクル後の発電性能で初期値の60%を維持すること

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) 事業化に向けた取り組みと見通し

2022 年度以降に開発するプロトタイプシステム B では、顧客ニーズと実現性とを評価軸として適用用途を決定する。本開発品は、移動体、非常用、可搬型用途のいずれかへの展開が可能と考えており、各用途における事業規模や将来性を判断基準として用途を評価・決定し、事業化を目指す。

(2) 事業化に向けた見通し

図 4 に 2024 年以降の事業化スケジュールを示す。2030 年の本格普及に向けて製品開発の完了及び顧客獲得を目指す。

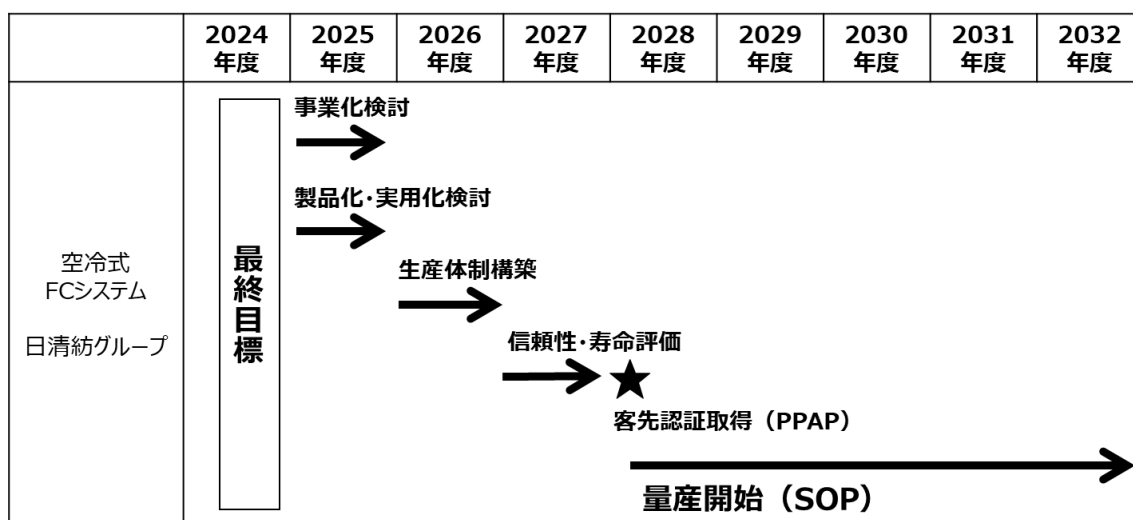


図 4 事業化スケジュール

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

なし

課題番号（管理番号）： MU08

研究開発テーマ名：「燃料電池の多用途活用実現技術開発／

多用途展開可能なクラウド対応型燃料電池(FC)発電モジュールの開発」

実施者：（株）豊田自動織機

期間：2021年8月～2025年3月

1. 研究開発概要

世界的なCO2削減の流れを受けて、大出力(100kW以上)の燃料電池(FC)システムは、燃料電池車向けに世界各国の自動車メーカーによって積極的に開発/市場投入が進められている。これに対し、中低出力(50kW以下)のFCシステムは、個別の市場規模が自動車市場に比較して小さいため、各関連企業による開発は、開発費用と製品の高価格化が予想されるため、積極的には行われにくい状況であり、燃料電池の多用途活用が進まない原因となっている。

そこで、「クラウド対応型燃料電池(FC)発電モジュール」を開発することにより、FC製品をもたないメーカーもFC発電部分の新規開発が不要となり、開発費用を大幅に削減できる。またクラウド対応機能(通信機能)により、FC発電モジュール状態を遠隔で監視、適切なメンテナンス(故障未然防止等)に役立て、さらには、製品の付加価値を向上させる新たなサービスへの展開などが行えることとなり、中低出力領域でのFCシステムの多用途活用に寄与できる。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

2.1 研究開発目標

【最終目標（2025年3月末）】

移動体及び定置型としてアプリケーションに組み込み実証試験を実施し、FC発電モジュールとしての性能、機能の確認を行い多用途活用における課題の洗い出しを実施、量産機開発につなげる。

<主要機能・性能>

FC発電モジュール構成：クラウド対応あり、冷却系、蓄電装置、水素タンク別体型

システム出力：50kW

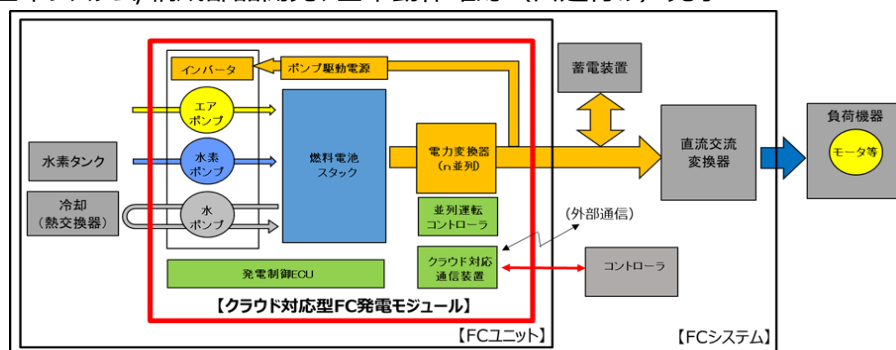
発電電圧：DC300V～400V

最低動作温度：-20℃

寿命：20000H

【中間目標（2023年3月末）】

基本システム/構成部品開発、基本動作確認（目途付け）完了



<基本システム構成図>

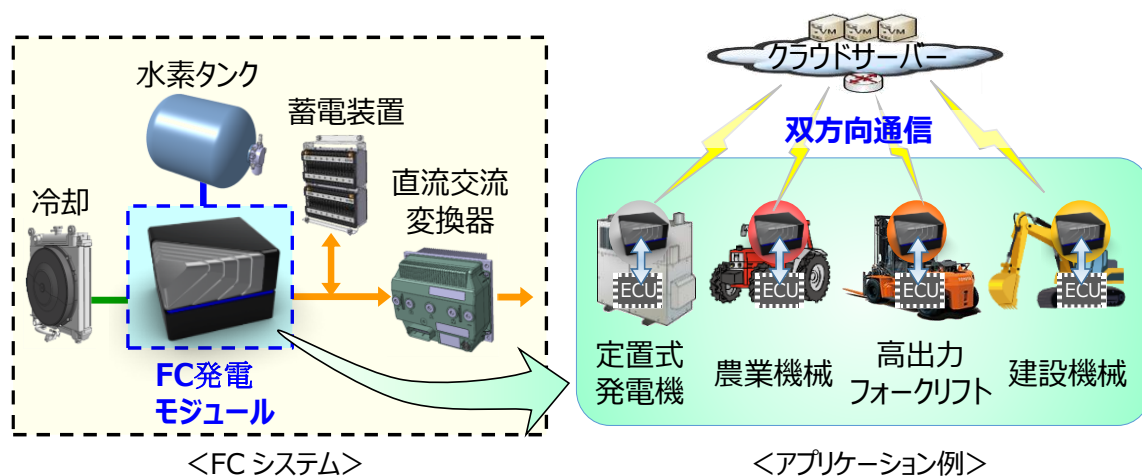
2.2 目標設定の背景・根拠

多用途活用を進めるためには、既存市場にある発電装置構成を最大限活用できる FC 発電モジュールが必要である。そこで、FC 発電モジュールは汎用性を持たせた最低限の構成とすることとした。

あわせて、既存市場に製品を供給する事業者が安心して自社製品を FC 化できるようクラウド対応機能を付加し、保守管理のために、発電などの動作状況のモニタリングや遠隔からの FC 発電装置起動ができる機能を付加することとした。

FC 発電モジュールの出力電圧としては、電動車両として普及がはじまっている蓄電装置の電圧及び、定置型発電装置の負荷機器の電圧（単相 200V または 3 相 200V）を考慮し、DC300V～400V に設定した。

最低動作温度及び寿命に関しては、既存の FC システムをベンチマークし決定した。



3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

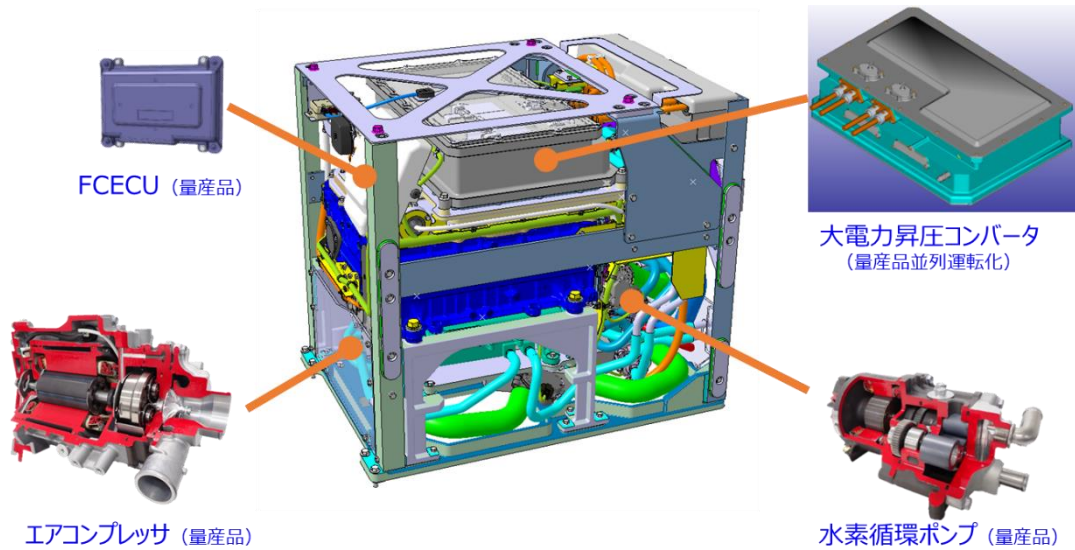
中間目標（2022 年度末）：基本システム/構成部品開発、基本動作確認（目途付け）完了

項目	中間目標	成果（2022 年 8 月時点）	達成度	今後の課題
基本 FC 発電 モジュール 開発	構想検討	・モジュール内の必要ユニット検討を実施。FC 発電モジュール基本構成を決定。合わせて、移動体への搭載要件をヒアリングし、基本 FC 発電モジュールの構想図作成を完了。	○	・FC 発電モジュールを製作/発電制御用ソフトを組み込んで、想定される様々な負荷変動等に対する安定挙動を確認する。
	部品開発	・大電力変換器（昇圧コンバータ）の試作機を開発。必要連続出力目途付けを完了。	○	
	基本動作確認	・発電制御ソフト基本構成検討完了。 ・クラウドからの FC 発電モジュール起動シーケンス検討完了	◎	

3.2 研究開発の詳細

(1) 構想検討

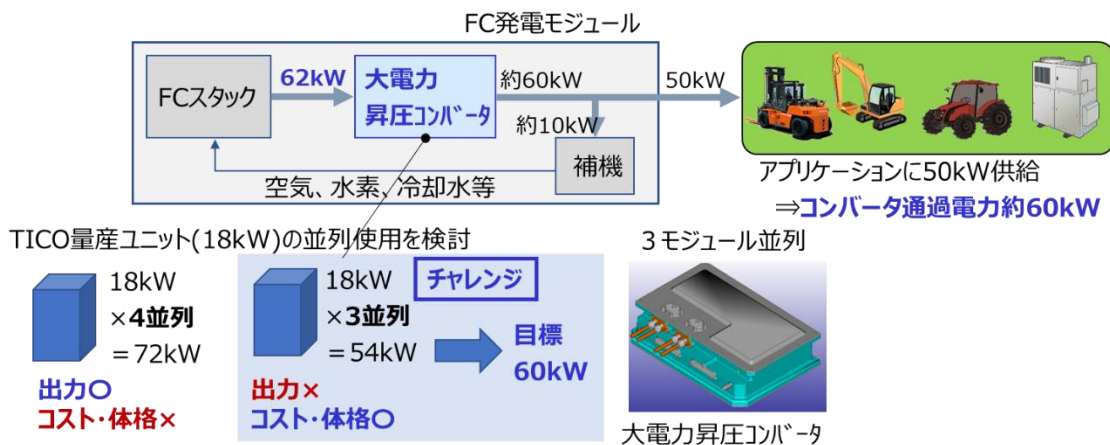
移動体、定置用それぞれの必要仕様から、FC 発電モジュールに要求される性能検討を実施した。この検討結果に基づき、基本動作確認用 FC モジュール構成を決定し搭載構想図の作成を完了した。



<クラウド対応型 FC 発電モジュール構想図>

(2) 部品開発 (大電力昇圧コンバータ)

システム出力 50kW の FC 発電モジュールに必要な大電力変換器は、水素ポンプ、エアポンプ等、FC スタックが発電するために必要な補機電力も合わせて出力する必要があり、約 60kW の出力が必要となる。多用途活用のための低コスト化を考えて、自社にて量産済みの安価な電動車両向け電力変換器を並列運転することにより大電力化を図ることとし、必要並列数の検討を実施した。自社の電動車両向け電力変換器を FC 発電モジュールの動作条件で使用した場合の出力電力限界を調査したところ約 18kW/台であったため、60kW の出力を得るためには 4 並列化が必要との結果が得られた。ここで、小型、低コスト化のために並列数削減の検討を実施した。使用予定の電力変換器の出力電力限界を決めている構成部品の洗い出しを実施、その冷却能力を UP させることで、20kW/台まで出力を向上させることに成功し、3 並列化実現の目途付けを完了した。



<昇圧コンバータ並列数削減検討>

この結果を受け、電動車両向け電力変換器を3並列化した大電力変換器を試作した。

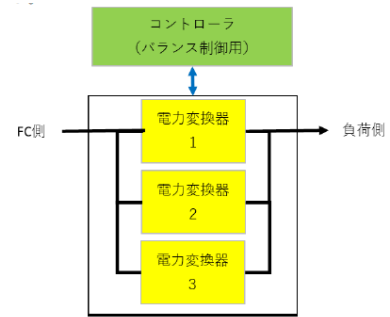
3並列での運転制御に関しては、並列運転バランス制御用コントローラを新たに開発し、各電力変換器の出力バランスが十分に保たれていることを確認した。システム出力に関しても、最高使用温度を想定した連続運転動作にて50kWまでの出力を確認し、60kWでの連続運転動作の目途付けを完了した。

変換効率に関しては、想定通りの値が得られており、FCスタックと組み合わせた場合の総合効率も最終目標を達成できる見込みである。

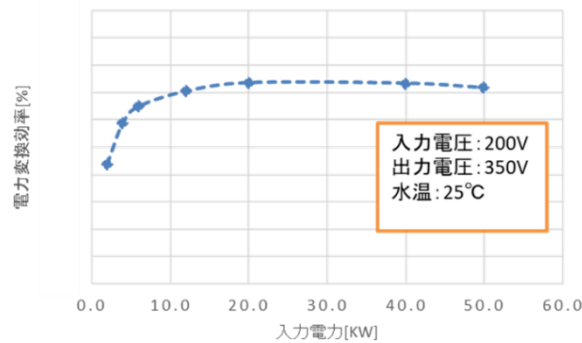
今後、大電力評価用試験用設備を導入し、出力60kWでの連続運転動作を確認していく。



<試作機外観>



<内部構成概要>

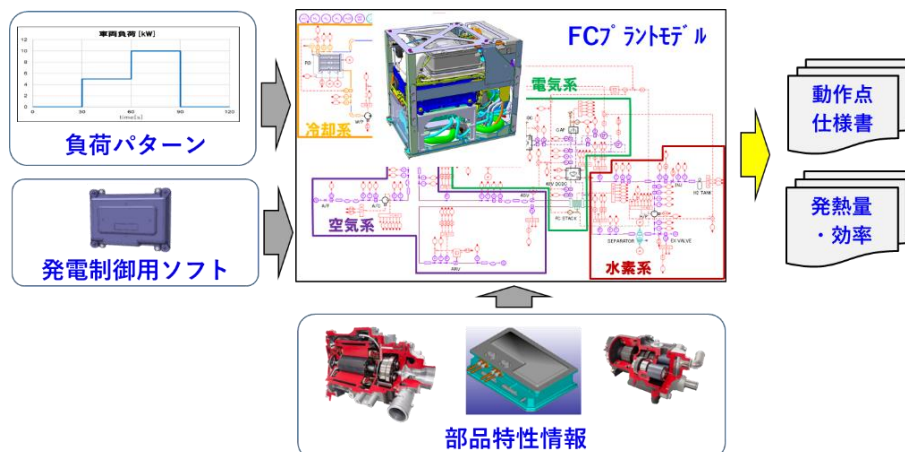


<変換効率測定結果>

(3) 基本動作確認

基本動作確認を実施するため、FCフォークリフトで用いられている制御をベースとし、FCプラントモデルを作成、シミュレーションを活用して発電制御用ソフトの基本構成検討を実施した。

開発したソフトを昇圧コンバータ、高電圧FCスタック、発電に必要な補機（エアコンプレッサ、水素ポンプなど）等を搭載した基本FC発電モジュールに実装し、動作を確認していく。



<FCプラントモデル概要>

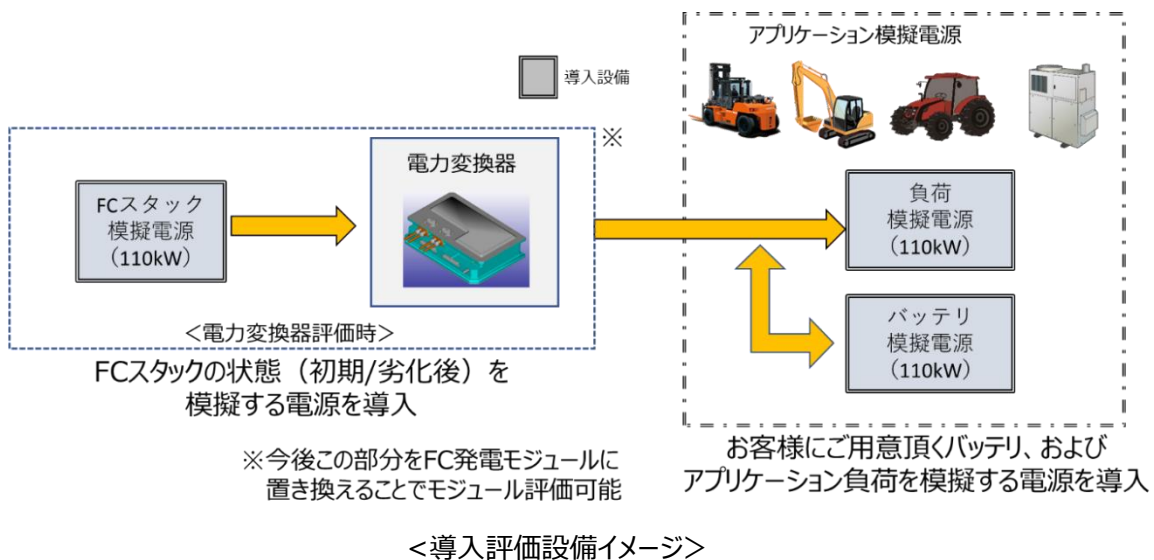
3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

各種アプリケーションの想定使用シーンをシミュレートできる負荷模擬電源を導入し早期に課題を抽出、対策を織りこみながら開発を進めていく。加えて、基本 FC 発電モジュールを改造（通信機能付与）し、クラウドからの起動、動作データの取得などの制御シーケンスを開発する。

また、実証試験にご協力いただけるメーカー様に先行して供給・使用していただくことで想定使用シーンの妥当性を確認し、製品化に向けた課題の洗い出し及び改良を実施していく。

<全体日程>

		年度	2021	2022	2023	2024
				現在	中間目標	最終目標
			構成部品/FCモジュール製作		課題検証/ 改良	動作確認/ 実証実験
基本 FC発電 モジュール 開発	構想検討		→			
	部品開発		→			
	基本動作確認			→		
	検証 & 対策				→	
	耐久試験					→
クラウド 対応型 FC発電 モジュール 開発	検討・試作				→	
	動作確認					→
	実証実験1					→
	実証実験2					→



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

クラウド対応型 FC 発電モジュールを開発することにより、各装置メーカーに低価格、高信頼の FC 発電モジュールを供給できると考える。また、クラウド対応により、装置の動作状態や保守メンテ情報を各装置メーカーが取得することが可能となり、自社製品の FC 化へのハードルを下げることができると考える。

事業化に関しては、当初計画どおり 2026 年度からまず国内の非常用電源市場向けに供給を開始し、2028 年度から産業車両（フォークリフト・農機等）へ用途を広げ海外市場に投入する予定である。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2022年7月	NEDO 水素・燃料電池報告 会 2022	多用途展開可能なクラウド対応型 燃料電池（FC）発電モジュール の開発	昆沙賀 徹

課題番号（管理番号）： MU09

研究開発テーマ名：「燃料電池の多用途活用実現技術開発／燃料電池システムを搭載した油圧ショベルの研究開発と実証検証」

実施者： コベルコ建機株式会社

期間： 2021年8月～2023年2月

1. 研究開発概要

経産省の掲げるグリーン成長戦略の中で、建設施工分野においても 2050 年カーボンニュートラルの目標が掲げられており、その目標達成には動力源を電気、水素、バイオ燃料等に置き換えた革新的建設機械の導入、普及が必要とされている。小型の油圧ショベルにおいては既にバッテリーを搭載した電動化ショベルが市販されているが、中大型については長い稼働時間を満足する大容量バッテリーの重量増加および充電時間の長さがネックとなる。そのため、当社では中大型ショベルに関しては水素を燃料とする燃料電池ショベルを開発、量産することで建設施工現場のカーボンニュートラルに貢献することを目標とする。

一方、主な建設機械の台数比率において 64%が油圧ショベルであるため、油圧ショベルの燃料電池化が進むことで建設施工現場における水素供給インフラの整備も進み始めると、建設機械全般の燃料電池化を容易にし、加速する可能性があると考えられる。よって、油圧ショベルの燃料電池化は、建設施工現場のカーボンニュートラルにおいて果たす役割が大きいと言える。また、本事業の成果は、新たな燃料電池の多用途活用の可能性を提示するものであり、NEDO の基本計画にも合致したものである。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

【2022 年度末目標】

* ベンチ評価設備を用いては、動力源を燃料電池としたときの起動停止や緊急停止、および出力や燃料電池とバッテリーとのハイブリッド制御の確認を行う。一方、燃料電池ショベル機能試験機を用いて、油圧ショベルに求められる掘削等の基本性能を確認する。

【2023 年度末目標】

* 燃料電池ショベル実証機の長時間の連続掘削試験において、同じ出力クラスの現行エンジン式ショベルとの比較において、同じ出力クラスのエンジン式ショベルと同等性能であることを確認する。

連続掘削を評価することで、オーバーヒートすることなく作業可能であること、作業時の振動により搭載機器が損傷しないことを確認する。これらの確認を行うことにより、水素充填インフラ設備さえ整っていれば、燃料電池ショベルにより土木建築現場で要求される長時間稼働が可能となる。

加えて本事業では、負荷条件、冷却システム、防振の主な課題を解決する基盤技術を獲得することで、事業後の量産開発を可能とする。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
燃料電池ショベルの基本特性把握	機能試験機による性能確認	ベンチ試験装置活用し燃料電池システムの確立	○	信頼性、安定性及び安全性の検証

と制御システム開発		と事前評価実施		
機能試験機による油圧ショベル基本性能の確認	機能試験機による性能確認	機能試験機の基本設計終了	○	信頼性、安定性及び安全性の検証

3.2 研究開発の詳細

(1) ベンチ試験設備による燃料電池特性把握と制御システムの開発

実機搭載前に、燃料電池ユニットを稼働させて動力・発熱特性の把握と制御システムの開発を行うため、高圧水素を扱うベンチ試験設備を弊社内で初めて構築した。

このベンチ試験設備を用いて、燃料電池ユニットによる発電を行い、指示通りの出力を発生させられること、発電した電力を油圧ポンプにて吸収できることを確認した。これにより、今後実機を模擬した様々な負荷条件について燃料電池ユニットの出力・発熱特性を取得可能となり、また動力・制御システムの開発が可能となる。

(2) 機能試験機の開発

燃料電池を動力源として、油圧ショベルに求められる掘削持上げ、旋回、排土と走行の基本動作を実現すること。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 基本性能の確立

掘削、走行等の基本性能を、環境や様々な稼働条件を想定して、安定して発揮できるよう制御システムを開発する。

(2) 冷却性能設計

燃料電池ショベルが稼働すると想定される様々な環境において、オーバーヒートせずに安定して性能が発揮できるよう冷却系機器の選定、レイアウト設計を行う。

(3) 耐振動搭載設計

燃料電池ショベルが稼働する様々な環境で、掘削や走行を行っても燃料電池ユニットを始めとするパワエレ系機器が問題なく動作するようマウント選定を行う。

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) 事業化に向けた取組み

水素供給インフラや法規の整備状況に合わせて製品設計を行い、それらに適合した製品を提供して行く。

(2) 事業見通し

事業として成立性については、燃料システムコストの低減、水素インフラの整備、ゼロエミッション規制の厳格化等、弊社の企業努力の範疇を超えた環境変化による部分もあるが、昨今の各分野でのカーボンゼロ関連のマイルストーンや数値目標から判断すると、将来的に事業として収益貢献できる商品に成長していく可能性は十分にあると考える。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

No.	出願日	出願番号	発明の名称	助成機関名
1	2022.3.11	特願 2022-038377	冷却装置	コベルコ建機株式会社
2	2022.5.13	特願 2022-079501	熱交換装置	コベルコ建機株式会社

—研究発表・講演、文献等、その他—

なし

課題番号（管理番号）： MU10

研究開発テーマ名：「燃料電池の多用途活用実現技術開発／商用運航の実現を
可能とする水素燃料電池船とエネルギー供給システムの開発・実証」

実施者： 岩谷産業株式会社、関西電力株式会社、
(株式会社 名村造船所)、(国立大学法人 東京海洋大学)

期間： 2021年8月～2025年3月

1. 研究開発概要

政府方針として温暖化ガスの排出を2050年までに「実質ゼロ」とする目標が掲げられ、この目標達成に向けて、船舶分野においてもゼロエミッションの船が社会的に要求されている。なかでも水素燃料電池船が注目を集めているが、現時点で事業化、商用運航している水素燃料電池船は我が国に存在していない。

本事業では、多様なエネルギーミックスの試験が可能な水素燃料電池とリチウムイオン二次電池のハイブリッド船の開発を行うが、水素燃料電池船に関して確立した設計・安全基準が不備であること、船舶に水素燃料を供給するバンカリングも設計・安全基準が無く、エネルギー供給インフラ等が十分整っていないことが挙げられる。また、その他の要因として、建造コスト、運航費など経済性が成立しないことも課題となっている。つまり、水素燃料電池根幹に関わる基盤技術に関して我が国は高い水準の技術があるものの、それを取り巻くシステム全体の未成熟が、とりわけ水素燃料電池船の普及の上でハードルになっていると言える。

また、商用化、普及を目指す上では複数隻の運航を想定する必要がある。特にバンカリング設備の少ない導入期においては、複数隻に対して燃料供給（補給）をタイミング良く行なうこと、それにより各水素燃料電池船が絶え間なく運航できることが重要であるが、そのための仕組み（例えば本事業で開発する、船舶・バンカリング設備間での通信を含むトータルエネルギーマネジメントシステム）が整っていないのが現状である。

以上を踏まえて、本事業では、1)トータルエネルギーマネジメントシステムの開発、2)エネルギー供給インフラの開発、3)船体構造開発を三位一体で行ない、4)実証運航を行うものとする。

対象となりうる船舶は船種・船型により多岐に亘るが、2050年までの中短期的視座で捉えたとき、エネルギー積載量および国際標準の観点から、水素燃料電池船のボリュームゾーンは国内で運航される内航船と考えられるため、本事業では内航船を主な対象とし、商用化にかかる課題を解決し、水素燃料電池船普及に貢献することを目的とする。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

本事業では、水素燃料電池船の普及促進を図るため、経済性が成立する商用運航の実現を目標とする。本目標を達成するために以下4項目の開発を進める。これらの開発を通して、NEDOの基本計画における船舶分野での実証を推し進める。なお、便宜上開発項目は分けているが、それらは互いに関係するため、適宜フィードバックを行い本目標の実現を目指す。

1) トータルエネルギーマネジメントシステムの開発

現状と中間目標（2021年度・2022年度）

水素燃料電池船は必要エネルギー量が自家用車に対して10倍以上、バスに比べても数倍以上にのぼる。一方で旧来の化石燃料と比して体積エネルギー密度は低いことから、ユーティリティ性を考慮するとエネルギー積載量が限られる。また、中短期の普及期においてはバンカリング施設あたりの隻数が限

られるため、必要とされる水素蓄圧器容量・圧縮機能力などを自動車用施設から単純に拡大しただけでは不経済である。また、バンカリング施設におけるエネルギー消費も看過されがちで、系統負荷や電気の市場価格などを考慮しないと、実質的な水素燃料費が上昇する。加えて、再生可能エネルギーの導入拡大を受けて、将来的な電力価格の変動も考慮する必要がある。そこで、当初 2 ヶ年においては、陸側バンカリング施設で消費する電力エネルギーの需給状況を可視化するシステムの構築と検証を行い、陸側バンカリング施設のエネルギーマネジメントにおける基盤を確立するとともに仕様書を作成する。仕様書は、エネルギーマネジメントに係る主要 4 項目（電力・船舶・水素・トータルエネルギーマネジメントシステム）、通信システムに係る主要 3 項目（通信仕様、SCADA システム、船陸間通信）を中心に整備を行う。また、船側のエネルギー消費を遠隔で監視する仕組みを構築し、東京海洋大学の実験船を使い、試験データの取得と運航実績からの必要エネルギー量推測手法を検討する。この推測手法の推測精度は、一般的なシーマージンである 20% 程度の誤差を目指す。

最終目標（2023 年度・2024 年度）【参考】

当初 2 ヶ年で開発した成果を基に、実証運航で使用されるバンカリング施設への実装を行う。その上で、実証試験を通じてデータの取得とエネルギー使用量の最適化を行う。具体的には、運航実績からの需要予測と運航予定に従い、その目標値に対しての水素エネルギー：電気エネルギー配分値の決定、複数隻数での運用も考慮した水素バンカリング量の計画と水素圧縮機の運転サイクル最適化、船側電池への充電時間の効率化を目指し、商用運航時の運用コスト試算と今後の課題点整理を行う。その上で、今後の水素燃料電池船の普及に向けたアクションプラン（開発や投資の具体案）の提示を行う。

2) エネルギー供給インフラの開発

水素燃料電池船には燃料電池に水素を供給する水素タンクとリチウムイオン二次電池が搭載されており、本事業では陸上から水素を充填、電気を充電するインフラ施設を開発する。水素と電気を共にバンカリング可能な施設は国内にはなく、エネルギーの最適供給システムの開発が必要である。既に導入拡大が進み始めた自動車分野と異なり、船舶分野においてはその運航に必要なとされるエネルギー量が 10 倍以上になる。従って、大容量のエネルギーを効率良く短時間でバンカリングするインフラの確立が必要となる。以下に水素と電気のバンカリング技術それぞれの現状と中間目標、それらを併せた最終目標について記す。

現状と中間目標（2021 年度・2022 年度）

イ. 水素バンカリング技術：

国内で運航実績のある水素燃料電池船として東京海洋大学の実験船「らいちょう N」が挙げられるが、その水素バンカリングは市販の圧縮水素ボンベを交換することで行っている。大型船舶を用途とする液化水素のバンカリング技術開発が進んでいるが、本事業が目標とする船型では、停泊時における管理や数名の限られた乗組員での安全な扱いは未だハードルが高く、中短期的な普及期においては圧縮水素の利用が導入容易性に優れると考えられることから、本事業では圧縮水素のバンカリングを採用する。なお、充填圧力については、先行する海外の事例では 35MPa の利用例が多いものの、燃料電池自動車市場と同様に船舶分野でも今後充填圧の高圧化が今後進んでいくことを想定し、また車両用水素ステーションとの主要機器の共有化も視野に入れ、70MPa を採用する。

圧縮水素のバンカリングについては、国内ではこれまでに水素燃料電池車や燃料電池フォークリフトへ

の水素充填技術は確立されているが、陸上から海上の船への圧縮水素のバンカリング技術については開発が進められていない。そのため、船特有の揺動・沿岸環境を踏まえた機器の評価を行なう。また、水素燃料電池車向けの 70MPa 以上での充填に際しては冷凍機によるプレクールを行なっているが船舶向けの充填は長時間に及ぶ可能性があることから低温での長時間充填によるノズルやホースへの影響も新たに検証する必要がある。またエネルギーマネジメントシステムを採用した水素供給設備はなく、設備全体の通信との連動性や追従性の確立および制御技術の開発も必要である。

事業の当初 2 ヶ年では、船特有の揺動・沿岸環境に対応した充填機器の設計と性能評価試験を行い、安全使用条件の評価と運用マニュアルの策定を行う。運用マニュアルは最終年度での完成に向け、関係省庁への照会、改善点のリストアップまでを当初 2 ヶ年で実施する。また、試験運航に向けた各種規制対応を進める。その上で、バンカリング施設の圧縮機、ディスペンサー等の機器や、供給配管、フィルター等配管システムの仕様を検討し、詳細設計を完了する。

ロ. 電気バンカリング技術：

限られた停泊時間で大容量の充電を安全に行うには、適切な急速充電技術を適用する必要がある。同上「らいちょう N」においては、自動車分野で開発された急速充電規格 CHAdeMO プロトコルを採用し、市販の普及型急速充電器を用いた電気バンカリングにより高信頼性を獲得している。最新の規格では 100 kW 超の大出力が可能であるが、一方系統負荷という観点では瞬間的な電力使用ピークは電力契約費用上も好ましくない。

事業の当初 2 ヶ年では、陸側大容量蓄電池によるロードバランシングの導入検討を行い、その仕様確定を行う。また、水素バンカリング施設との位置関係を含めた最適化を検討する。これらの検討結果は基本仕様書に示す。なお、電気バンカリング施設については、後述するエネルギーマネジメントシステムを組み込める構成とする。

最終目標（2023 年度・2024 年度）【参考】

当初 2 ヶ年で開発を行った技術を基に設計した水素・電気のバンカリング施設を 2023 年度に建設し、2024 年度においては後述する実証試験を通じて課題を抽出するとともに対策を施し、バンカリング施設の最終仕様を確定させ、最終仕様書、運用マニュアルを完成させる。また、後述のエネルギーマネジメントシステムとの有機的結合を行うことで、商用運航における経済性の実現に寄与する。そのために、（NEDO ロードマップにおける 2030 年時点でのエネルギー費等を考慮した上で、）現状の船舶に対して本事業のエネルギーマネジメントを行なうことで運用コストが重油を用いた現状とほぼ同等に近づく運用案等を示す。

3) 船体構造（コンポーネント）の開発

現状と中間目標（2021 年度・2022 年度）

国際海事機関（IMO）において、ガス燃料及び低引火点燃料を使用する船舶の安全に関する国際規則（IGF Code）の策定が行われ、水素燃料についてもその範疇であるが、かかる規則が大型船を念頭においていること、液化天然ガス（LNG）を中心に設計されているため水素燃料に関してはその物理的特性の違いがあるなど、蓋し準用に適さないと考える。内航船については、国土交通省・海事局における所掌であるが、2020 年度末の段階では 19 総トン未満の「小型船舶」を対象とした安全ガイドラインが策定されていたものの、「小型船以外の内航船」については明確な安全基準が定められてい

かった。2021年8月には小型船以外の内航船にも拡張された「水素燃料電池船の安全ガイドライン」が公表され一定の指針が示されたものの、現時点（2022年8月時点）では当該ガイドラインに従って建造された船舶はなく、また、定量的な数値基準が定まっていない要求事項もあることから、具体的な設計については個船ごとに検討や審査が必要な状況である。また、同等安全証明（安全評価）した場合は適用基準の緩和が可能であるとされているが、内航ゼロエミッション船の建造実績が少ない中、内航船建造の小型造船所が同等安全証明を行うのは困難といった状況がある。このため、過剰設計となり建造コストが上昇する要因にもなる。そこで、本事業においては、まず水素燃料電池自動車の安全基準を参考にしながら、特に燃料電池の搭載に係る部分を中心に船用に適した船体構造の配置検討および設計を行い、一般船へも容易に搭載可能なコンポーネント（主には、水素燃料格納部および燃料電池部）を開発する。また、規制監督庁との綿密な確認も欠かさず行い、上記の配置検討および設計などに関して、規制監督庁の確認を取った基本設計図書を作成する。必要に応じて、東京海洋大学における実験船に組み込み、部分的な検証実験などを進める。

最終目標（2023年度・2024年度）【参考】

当初2ヶ年で開発した構造を船体に組み込み、100総トンクラスの内航旅客船を建造するとともに、装備配置や設計、図面等の詳細設計図書を作成する。建造した船舶は実証試験に供し、その運航を通じて開発したコンポーネントの課題点抽出および改良設計を行う。その上で、経済的な観点からも合理的な設計を提示し、水素燃料電池船の建造費低減に資する。なお、水素燃料電池船の普及促進に寄与すべく、本事業におけるこれらの有形、無形の成果については、学会発表等により積極的に公知化を図るとともに、知的財産を東京海洋大学に集約することなどによって、よりオープンに利用（一般ユーザーでの水素燃料電池船の建造検討）が進むような環境創りを行う。

4) 実証運航

本開発項目は事業全体を総括する位置づけであるため、他の開発項目の目標を一部包含する。

現状と中間目標（2021年度・2022年度）

東京海洋大学における実験船で得られた知見を明確化して、実際の実証運航にフィードバックする。実験船では、①安全ガイドラインに則って搭載した機器の出力特性や冷却性能の確認、動作の評価、②システムの適合性、③バンカリングの評価、④通信などの検証を行なうことにより、実証運航に対する試験項目の整理と課題点の抽出を進め、船体設計へ反映させる。

最終目標（2023年度・2024年度）【参考】

建造した船を用いて試験運航を行い、運航データの取得を行う。また、システム全体の統合およびユーザービリティの向上を行い、円滑に商用フェーズに移行できるようにする。一般的に船種毎に運航パターンは異なるため、本事業では少なくとも4種の船種を例示し、それぞれを模擬した運航を行い、最適なエネルギーマネジメントが行えるか検証を行う。また、普及後の流通水素コスト利用時と旧来型化石燃料利用時と比較した上で運航コスト及び事業全体としての経済性評価を行い、商用運航時の運航費を含めた課題点の整理を行う。これらを行う事で、水素燃料電池船の建造及び経済的運航を実現するための指針を示し、少なくとも上記4種の船種に対するエネルギー出力配分・エネルギー搭載量配分

等モデルケースの提案を行う。このことにより、水素燃料電池船導入へのハードルを格段に下げ、飛躍的拡大を目指し、ひいては船舶分野における低炭素化に資する。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標（2023年3月末までの目標）に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
実施項目1) トータルエネルギーマネジメントシステムの開発（関西電力、東京海洋大学）				
①陸側のエネルギーマネジメントシステムの仕様書作成	消費エネルギーを可視化するシステムの構築と検証を行う。陸側バンキング施設のエネルギーマネジメントにおける基盤を確立し仕様書を作成する。	可視化のため、各構成機器の消費電力量を調査し、陸側蓄電池の充放電を含む運用スケジュールを整理。船舶・陸上・中央監視室の各構成機器間での情報・データ連携、通信規格を整理し、機能仕様書の敲き台を作成した。	○	船側からの推奨電気・水素消費比率や運航スケジュール等を踏まえた最適な取得データの選別、取得方法、運用方法等に関する詳細検討・設計。充電設備、蓄電池、ならびに水素圧縮設備について、実運用を踏まえたピークカットを可能とする最適な運用方法の検討。
②船側の必要エネルギー消費量の推測手法の検討	エネルギー消費量を遠隔監視する仕組みを構築し、実験船を用いて試験データの取得と必要エネルギー量推測手法を検討する。	東京海洋大学の実験船「らいちようN」にて、機器選定・システム設計を行なった上で、燃料電池を搭載し、試験運航を開始した。 また本船の馬力推定を行ない、水素・電気の消費量、充填・充電の必要時間などを試算した。	△	定常・スリーブ運転試験や風速・波高などの環境要因による燃料電池・LIBハイブリッド船の運航性能、燃料消費などのデータ取得、必要エネルギー量推測手法の検証。
実施項目2) エネルギー供給インフラの開発（岩谷産業、関西電力、東京海洋大学）				
①水素バンキング技術	船特有の揺動・塩害に対応した充填機器の設計と性能評価試験を行ない、運用マニュアルの策定を行なう。各種規制対応を進めるとともに、詳細設計を完了する。	揺動・塩害を考慮し、バンキングシステムのコンセプト案を整備し、仕様書を作成した。 70MPa 採用に伴う安全性評価試験や、塩害対策の評価試験、揺動試験などバンキングの要素試験を開始した。 規制対応については、一般高圧ガス保安規則について関係省庁等との意見交換を実施中。	△	船体構造に干渉しないアームの設計、アームを用いた船舶への充填方法の確立、係留方法を踏まえた揺動の想定、護岸使用等の許可、バンキング運用マニュアルの策定、大容量の水素充填における課題の抽出、エネルギーマネジメントシステムから受け取る信号への各機器の対

				応、船舶用圧縮水素スタンドに係る法規整備の方向性の検討。
②電気バンカリング技術	陸側蓄電池によるロードバランシングの導入検討を行ない、仕様を確定する。コネクタ接合部の仕様、充電器設置位置などを検討し、基本仕様書に示す。	運用スケジュールを基に必要な電気設備（トランス容量、幹線容量、蓄電池等）の検討を行ない、仕様書を作成した。水素圧縮機の駆動電力などを中心に、ピーク電力を平準化できるシステム案を構築した。	△	実運用を踏まえた各設備の詳細設計、将来的な水素燃料電池船展開における電気バンカリング技術に関する課題の抽出。
実施項目3) 船体構造の開発 (岩谷産業、名村造船所、東京海洋大学)				
① 本船の基本設計・詳細設計	船用に適した船体構造の配置検討及び設計を行ない、規制監督庁の確認を取った基本設計図書を作成する。	消費エネルギー量や機器配置等を考慮し、主要目及び一般配置候補を作成。燃料電池等の主要機器の仕様に基づき、電気推進システムの機器選定・システム設計を固めつつある。22年7月段階での設計情報に基づき Pre.HAZID を実施し、設計の方向性に問題ないことを確認した。 国土交通省との面談を複数回実施した。	△	国土交通省との安全ガイドラインに係る継続的な情報交換、安全ガイドラインにおける代替・緩和設計等の具体的検討、バンカリング設備側を考慮した船体設計の調整、船体の詳細設計を考慮したHAZIDの再実施。
② 実験船への燃料電池等の搭載と予備試験の実施	東京海洋大学の実験船に組み込み、部分的な検証実験を進める。	東京海洋大学の実験船「らいちょうN」にて燃料電池の性能確認を完了し、JCI 認証も得た上で、大学港外での試験運航を開始している。 本船の機器選定・システム設計へのフィードバックも見据え、検査や安全評価に向けた各所との連携を進めており、(実験船の)安全ガイドラインへの対応状況・関係省庁の見解などの整理も実施した。	◎	風速・波高などの環境要因による燃料電池・LIB ハイブリッド船の運航性能、燃料消費などの影響評価、燃料電池の出力（冷却性能に起因）に不利な夏場の試験運航、燃料電池へのユーティリティ(水・Air)の供給量・供給能力の確認。
実施項目4) 実証運航 (岩谷産業、関西電力、東京海洋大学)				
① 実験船での予備試験の実施	東京海洋大学の実験船の予備試験を通じ、	東京海洋大学の実験船「らいちょうN」にて、燃料電池の搭	△	上述1) ②、3) ②を通じ、2024年度の試験項

	2024 年度の試験項目の整理と課題点の抽出を進め、船体設計へ反映させる。	載、試運転を完了した。		目の整理と課題点の抽出。
②本船での運航データの取得、複数船種を模擬したエネマネの検証	(2024 年度以降に実施)	(2024 年度以降に実施)	—	運航データから得られたエネマネに資するデータ項目の抽出、ならびに最適運用方法の検討。
③経済性評価、モデルケースの提案	(2024 年度以降に実施)	(2024 年度以降に実施)	—	

3.2 研究開発の詳細

1) トータルエネルギーマネジメントシステム (TEMS) の開発 (関西電力、東京海洋大学)

中間目標 (2021 年度・2022 年度) に対する進捗

①電力エネルギーの需給状況の可視化、エネルギーマネジメントの仕様書作成 (関西電力、東京海洋大学)

陸側バンキング施設の構成設備等を設定することを目的に、水素圧縮に要する電力や船舶への必要充電量等について消費する電力エネルギーを可視化するため、各構成機器の消費電力量を調査し、陸側蓄電池の充放電を含む、設備運用スケジュールを整理し細かな議論を実施した。また、エネルギーマネジメントとして、必要な取得データの抽出や上記スケジュールから想定されるピーク電力等を踏まえ、仕様検討を行なうこととした。

その上で、船舶・陸上設備・中央監視室の各構成機器間での情報・データ連携、通信規格を TEMS システム構成図として整理した。船陸間での情報連携に当たって、水素のタンク内圧力・温度・SOC、燃料電池への供給流量などに関しては、データ形式、演算処理方法などの議論を進めている。これらの内容を基に機能仕様書 (敲き台) を作成した。

②船側の必要エネルギー消費量の推測手法の検討 (関西電力、東京海洋大学、(岩谷産業))

東京海洋大学の実験船「らいちょう N」に燃料電池を搭載するための周辺機器選定、システム設計を行なった上で、配置設計、改造工事を進め、2022 年 3 月末までに燃料電池の搭載・試運転を完了した。大学港内での燃料電池性能確認は完了し、並行して進めていた日本小型船舶検査機構による認証 (以下「JCI 認証」という) も得て、8 月より大学港外での試験運航を開始している。試験運航では、起動・停止・緊急停止等をはじめとする基本的な手順・安全確認はもちろん、定常・スリーブ運転試験や風速・波高などの環境要因による燃料電池・リチウムイオン二次電池 (LIB) ハイブリッド船の運航性能、燃料消費などのデータ取得を、検討中の遠隔監視システムを用いて行ない、エネルギー量推測手法の検証を行なう。

なお、2024 年建造予定の水素燃料電池船 (以下、「本船」という) については、一般財団法人日本造船技術センター (SRC) のデータベースを用いた馬力推定や、燃料電池の出力効率などから、

運航に必要な水素・電気の消費量、充填・充電にかかる必要時間などをシミュレーションした。今後、実験船での予備試験により必要エネルギー量の推測手法を確立した後に、上述のシミュレーションの妥当性について再度検証していく。

2) エネルギー供給インフラの開発（岩谷産業、関西電力、東京海洋大学）

中間目標（2021年度・2022年度）に対する進捗

①水素バンカリング技術：（岩谷産業、東京海洋大学）

水素バンカリングについては「水素ステーション」と「バンカリングシステム」に分けて検討している。「水素ステーション」については、陸側のエネルギーマネジメントも考慮して圧縮機などの機器選定を進めており、特に、圧縮機、冷凍機、蓄圧器、ディスパンサー等のバンカリングシステムの主要構成機器については、2時間程度で船内タンクへの水素充填が可能となるよう機器仕様選定を行い、充填プロトコル等の課題整理を行った。今後は、シミュレーション等により、船舶への充填技術を確立させることを目指す。さらに、船舶での水素消費量を算出し、水素トレーラーの留め置きスペースの検討やバックアップ目的の移動式水素ステーション接続ラインといった仕様を決め、こういった情報を基に「水素ステーション」としての仕様書を作成した。

バンカリング設備の候補地については、大阪湾の南港某所（契約締結手続中のため詳細は示さず）にて検討しており、大阪市港湾局や海上保安庁との情報交換を進めている。敷地内の全体の配置は、水素のバンカリングシステムと電気の充電器および管理事務所との離隔距離、護岸の上載荷重制限、トレーラーの留め置き位置、船舶の充填口・充電口の位置から概略の配置を決定している。なお、「水素ステーション」および「バンカリングシステム」の建設に当たっては一般高圧ガス保安規則（一般則）6条で建設する予定だが、将来的に7条の3への移行、または船舶用の条項の新設などを見据えて設備検討や関係省庁等との意見交換を行なっている。

「バンカリングシステム」については、船特有の揺動・沿岸環境に対応した充填機器の検討を行なった。通常の重油燃料船のバンカリング設備の視察やメーカーにヒアリングを行ないながら、水素充填用バンカリングシステムのコンセプト案を整備した。船舶と車両（従来の燃料電池自動車）の取り合いの違いも考慮し、充填方法、充填アームの仕様や、塩害対策のためのノズルや収納ボックス等に係る設備案を検討し、これらを基に「バンカリングシステム」の仕様案を決めた。

充填圧力 70MPa を採用するに当たり、アーム可動部の機器選定や、ホース等の高圧・低温（プレクール）・長時間充填における安全性の評価が必要となる。アームについては、ローディングアームのように内部を水素ガスが流通するもの、アーム外部にホース等を這わせ水素ガスを流通するものが考えられるが、前者は可動部の 70MPa 対応品の新規開発が必要となり事業期間内に完成しない可能性が高いことから、後者にて設計・開発を進めることとした。高圧・低温・長時間充填については、岩谷産業の所有する耐爆チャンパー内で試験を行ない、低温一定あるいは低温⇔高温スイング条件で水素ガスを流通させても水素漏洩が発生しないことを確認した。

また、上記のコンセプト案を整備した上で、揺動対策や、バンカリングシステムの構成装置の塩害対策に係る試験計画を検討した。塩害対策については水洗・乾燥、研磨、材質変更といった対策を講じたテストピースを用いた塩水噴霧試験を実施し、対策の効果を確認した。これと合わせて、実環境中での長期曝露試験を進めており、今後、試験結果に基づき、必要に応じてバンカリングシステムの仕様・設備案の内容を改良していく予定である。

目標に掲げている運用マニュアルについては、国土交通省が昨年 8 月に公表した安全ガイドラインを参考に、本助成事業で建設予定の定置式水素ステーション・バンキングシステムに係る運用マニュアルの内容検討を開始している。2022 年度中に国土交通省・海事局への照会を進め、さらにバンキングシステムの改良や実証運航による知見などを反映しながら、2024 年度での完成を目指す。

②電気バンキング技術：（関西電力、東京海洋大学）

現在までに、想定した電力使用スケジュールや充電時間、ピーク電力の発生時刻等から、必要な電気設備（トランス容量、幹線容量、蓄電池等）の検討を行ない、設置スペース等を考慮した上で仕様書を作成した。また、船舶側の受電設備仕様も考慮し、充電仕様の調査・検討を進めている。仕様書案については、予算等にも配慮しつつ設備構成の詳細を検討していく。

バンキング設備全体のロードバランシングの検討においては、各構成機器の電力消費量のスケジュールリングを行なっている。船舶およびバンキング設備内蓄電池への充電はもちろん、水素圧縮機の駆動動力が最も電力を消費する部分の 1 つであり、ここを中心に電力消費を平準化できるシステム案を構築した。

3) 船体構造（コンポーネント）の開発（岩谷産業、名村造船所、東京海洋大学）

中間目標（2021 年度・2022 年度）に対する進捗

①本船の基本設計について

本事業で建造する本船（水素燃料電池船）について、燃料電池や水素タンク、LIB などの配置を検討した結果、主要目等は以下の通りとなった。

長さ（全長）	： 約 31.5m	幅(型)	： 約 8m
深さ(型)	： 約 2.3～2.8m	計画喫水	： 約 1.2m
総トン数	： 約 110～130ト		
旅客定員	： 約 150 名	航海速力	： 約 10 ノット以上

本船については、前述の通り、SRC のデータベースを用いた馬力推定を行ない、船速 10 ノット走行時の波や風、潮流の影響を考慮しない条件下で必要となる駆動用電動機出力を確認した。さらに商用運航では減速・停船が生じることを考慮し、航路を通じた消費エネルギーの平均出力値を求め、本船が持つべき総推進エネルギー量を決定した。

船体構造の配置検討は、2021 年 8 月に国土交通省・海事局より公表された「水素燃料電池船の安全ガイドライン」をベースに検討を進めている。特に重要な燃料電池ユニット、水素タンクユニットについては、複数の配置案を検討し、安全ガイドラインを考慮しながら、水素配管等の安全性（特に高圧部）や実現可能性、経済性を評価して検討を進めている。加えて、各ユニットのサイズや内部構成・周辺機器、モニタリング箇所、通信内容などの仕様に係る検討・協議も開始している。それらユニットの搭載については、国土交通省・海事局の検査測度課との連携が不可欠なため、綿密な確認を行ないながら進めている。

2021 年度末までに、これらの検討を経て本船の基本設計（上述の配置案）の候補を 3 案考案した。これら全 3 案に対しリスク評価を行なっていくが、高圧配管の安全面やコストなどを基準に、本船へ

の適用を決定していく。なお、その内の1案をもって建造する候補の造船所の1つへの製作検討の依頼を行ない、現在、造船所との調整を進めている。

燃料電池、LIB、モーターなどで構成される電気推進システムについては、主に燃料電池の仕様確認を進めながら機器選定・システム設計が固まりつつある。燃料電池出力および各種機器の動作電圧に応じて、全体設計、LIBを用いた電池システムの仕様（電圧、容量）を検討した。これらの機器・仕様の妥当性や安全対策については、次項に示すらいちょうN予備試験も活用しながら検討することとした。

なお、基本設計の1つである安全性評価（HAZID）については、2022年7月にPre.HAZIDを実施した結果、リスクランクがHighに該当するハザード事象は確認されなかった。本HAZIDは、詳細設計段階で大幅な設計変更を生じさせないために、基本設計段階で事前に大きなリスクが無いことを確認する目的で実施したものであり、燃料電池や水素に係る事項を中心に、らいちょうNでの実態も勘案しながら議論を行なった。なお、現時点では詳細設計前であるが故に、機器や設備仕様の情報不足からPendingとしたハザード事象は、詳細設計段階で行う次回のHAZIDで議論を行う。

②らいちょうN予備試験について

東京海洋大学の実験船「らいちょうN」に燃料電池を搭載するための周辺機器選定やシステム設計を行なった上で、配置設計、改造工事を進め、2021年度末までに主要機器への通電とシステムデバッグ作業、燃料電池の搭載・試運転を完了した。大学港内での燃料電池の性能確認は完了し、並行して進めていたJCI認証（臨時航行検査）も得て、8月より大学港外での試験運航を開始している。

試験運航では、起動・停止・緊急停止等をはじめとする基本的な手順・安全確認はもちろん、定常・スweep運転試験や風速・波高などの環境要因による燃料電池・LIBハイブリッド船の運航性能、燃料消費などのデータ取得を行ない、エネルギー量推測手法の検証を行なう。加えて、冷却性能や、ガス供給・ベント、反応生成液水等の安全性の確認や安全対策・処理方法などを検討する。予備試験を通じて、本船にも転用できるようデータ取得・システム改良を行なっていく。

らいちょうN予備試験では、本船と同じ燃料電池を搭載し、日本小型船舶検査機構および国土交通省・海事局とも連携しながら進めている。これにより、予備試験で得られる成果・知見などを本船建造に有効活用し、リスクの低減、期間の短縮、コストの低減を図っていく。

4) 実証運航（岩谷産業、関西電力、東京海洋大学）

本開発項目は事業全体を総括する位置づけであるため、他の開発項目の目標を一部包含する。

中間目標（2021年度・2022年度）に対する進捗

前述1)3)の通り、2021年3月にらいちょうNへの燃料電池の搭載を完了し、8月より大学港外での試験運航を開始しており、2022年度に実験船で得られた知見を船体設計に反映させていく。なお、目標に記載した「①安全ガイドラインに則って搭載した機器の出力特性や冷却性能の確認、動作の評価」については国交省との連携を行ないながら、燃料電池の特性・動作の評価に加え、排熱・排気・排水なども本船の設計に向けて確認を行なっていく。また「②システムの適合性」、「③バンクングの評価」、「④通信」については「らいちょうN」のシステム・知見を活用し、本船の機器選定・設計を行なうこととし、電気推進システムについては基本的な内容・機器構成に関する仕様書を作成完了した。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

実施項目 1) ~ 4) に対し、以下のように計画推進し、2024 年度末の最終目標達成に繋げる。

1) トータルエネルギーマネジメントシステムの開発 (担当：関西電力・東京海洋大学)

旧来型化石燃料を利用する船舶は搭載エネルギー量が多いため、単純な配船表で管理が可能であった。一方、水素エネルギー・電気エネルギーを用いた水素燃料電池船では頻繁なバンキングを要することから、上述の通りバンキング施設と併せて運用を行う必要があり、スマートなマネジメントが必要となる。そこで、本事業で開発する水素燃料電池船ではコネクティッド化 (船陸間通信) を行い、また、バンキング施設に関しても制御を組み込んだトータルエネルギーマネジメントシステムを構築する。具体的には、それぞれのエネルギー需給状況を可視化する仕組みを導入し、運航実績と運航予定から需給予測を算出する手法を開発する。そして、それぞれの蓄電池残量等を考慮した水素充填圧縮機のマネジメントや充電量の制御を可能とする。今後、本事業にて燃料電池を搭載した東京海洋大学「らいちょう N」を用いてその実証を行い、試験データを取得しながら、それを基にした水素・電気価格に関する感度解析を含めたシミュレーションを進め、実証運航への準備を進める。

実証運航においては、開発するシステムでバンキングの制御を行い、運航中のエネルギー配分目標値の決定とその妥当性評価を行い、商用運航時の運用コストの最適化手法を検討する。この配分に関するコストの影響の計算検討例を以下に示す。

NEDO ロードマップを基に 2030 年時点でのエネルギー費を電気：15 円/kWh-e、A 重油：65 円/L、水素：550 円/kg-H₂ とした上で、200 kW の出力で 1 日 5 時間航行するケースを考える。

a) 化石燃料 (A 重油)

ディーゼル機関の熱効率を 35% とした際に必要エネルギーは 2,860 (kWh) = A 重油 283 (L) となる。これに暖冷機とアイドリング分 2 割を加味して $283 (L) \times 65 (円/L) \times 1.2 = 22,000 (円)$

b) 水素燃料のみ

モーター駆動の場合、暖冷機とアイドリング分がないため、必要エネルギーから水素量は 60 kg となる。従って、水素燃料費は $60 (kg) \times 550 (円/kg-H_2) = 33,000 (円)$

c) 水素と電気のハイブリッド

同様に水素比率 40%、50% のケースで試算した結果を示す。

- ・40%・・・ 水素 $60 (kg) \times 550 (円/kg-H_2) \times 40 (\%) = 13,200 (円)$
電気 $1,000 (kWh-e) \times 15 (円/kWh-e) \times 60 (\%) = 9,000 (円)$
合計 (水素 40%時) : $13,200 (円) + 9,000 (円) = 22,200 (円)$
- ・50%・・・ 水素 $60 (kg) \times 550 (円/kg-H_2) \times 50 (\%) = 16,500 (円)$
電気 $1,000 (kWh-e) \times 15 (円/kWh-e) \times 50 (\%) = 7,500 (円)$
合計 (水素 50%時) : $16,500 (円) + 7,500 (円) = 24,000 (円)$

現状の NEDO ロードマップに従った場合では、2030 年時点の試算では水素比率 40% 程度で A 重油並みの経済性が実現することが見込まれる。一方で、電気と水素のバンキングに要する時間も異なる上、今後のエネルギー費変動などに伴い、この最適水素比率は変化することが想定されるため、持

続的に事業者が水素燃料電池船を運航するには、ハイブリッド化による最適エネルギー比率選定が有効であることが示唆される。本事業では、これらの想定を踏まえながら、実証を通して、水素燃料電池船の商用運航性を評価する。

2) エネルギー供給インフラの開発（担当：岩谷産業・関西電力・東京海洋大学）

イ. 水素バンカリング技術（担当：岩谷産業・東京海洋大学）

①バンカリング施設（ハードウェア）

水素バンカリング施設は、圧縮機、蓄圧器、冷凍機、ディスペンサー等で構成されている。トータルエネルギーマネジメントシステムを導入することで、普及が進んでいる水素ステーションとは異なり、エネルギーの需給状況に合わせた水素充填技術の確立が必要である。実証運航を通じて、圧縮機の制御技術や蓄圧器の圧力調整技術の開発、またディスペンサー内流量計などの構成機器や充填ホース長さ・内径、船との接続継手等の最適化を行う。

また船舶への水素充填は、陸上での燃料電池自動車（FCV）への充填と異なり、船が波で揺動することによる水素充填ホースと船との接続部からの水素漏れや、その接続部や充填ホースが海水または海水成分を含む空気に暴露されることによる塩害腐食が懸念される。揺動対策としては、船が大きく揺れても機器が破損せず水素が漏れないよう、充填ホースの長さや波高、周波数をパラメータとした評価試験を実施する。試験場所は大学等の波条件を設定できる試験水槽の使用を検討する。充填ホースと接続部である充填カプラとレセプタクルへの水素封入圧力は、船への充填圧力の最大値である70MPaとする。水素の漏れは、岩谷産業所有の耐爆チャンバーを用いて漏洩確認試験を行ない、高感度水素センサーによる検知等で判断する。漏洩確認試験の一部は開始しており、今後、さらに揺動（往復運動機構）と組み合わせた試験も実施する。

特に70MPa充填とするため、新たに圧縮機・冷凍機の挙動・動力の確認およびエネルギーマネジメントの検証、船舶への充填方式の検証、充填に向けた機器の検証を行う必要がある。これまでに充填時の水素供給流量・昇圧速度・温度の推移や、蓄圧器の復圧まで踏まえた消費電力の試算等を行っているが、引き続き2022年度末までに机上検討を進め、2023年度以降に実機を用いた検証を行う。

次に塩害腐食に関しては、塗装や材質の異なる充填ホース、カプラおよびレセプタクルを数種類、メーカーと協力して試作し、通常品との比較評価を実施することにより最適な塩害対策品を見極める。試験は、試験機関での実施を検討し、直接塩水を噴霧し暴露する加速条件にて腐食評価を実施する。テストピースでの試験は完了しており、今後、実際のホース、カプラなどを用いた試験を実施し、実際のバンカリング施設で起こり得る問題点の把握と対策検討を行っていく。

具体的な計画は、2021年度にメーカーと連携し、充填ホース、カプラおよびレセプタクルの仕様を検討し、2022年度から2023年度にかけて、評価試験により最終仕様を決定し、設計に反映させる。

②水素燃料バンカリングに関わる規制対応（ソフトウェア）

水素のバンカリング設備は、一般高圧ガス保安規則及びコンビナート等保安規則や消防法などに規定されている。これらの規則で課題となるのが離隔距離である。離隔距離を確保すると、約900m²ほどの土地を確保する必要があり、設置できる場所が限られ、普及のハードルである以外にコストアップ要因ともなる。またFCV用水素スタンド向けの法整備は進んできているが、対象がFCVとなっているため、船舶や鉄道に対する充填は適用されない。また、水素の高圧容器の種類によっては、充填速度など具

体的な取り決めがなく、都道府県庁へその都度相談して決めているような状況である。

船舶用のバンキング施設に関しては、現状の FCV 向け法令を船舶等、他の水素を燃料とする FC モビリティへ適用範囲を拡大できないかといった協議を関係官庁と実施してきたが、本事業期間内で、例えば一般則 7 条の 3 への移行、または船舶用の条項の新設といった対応を完了させることは難しく、バンキング施設の建設は一般則 6 条に基づき行なう予定である。本事業期間内では、具体的には、関係官庁などと協議の上、一般則 6 条で建設したバンキング施設を用い、陸から船への水素バンキング施設の安全な運用が可能であることを検証し、上述の移行または新設といった規制整備の方向性を示す。

ロ. 電気バンキング技術（担当：関西電力・東京海洋大学）

本事業では、自動車分野で開発された急速充電規格 CHAdeMO プロトコルの高出力版を採用する予定であり、充電仕様は CHAdeMO の Ver2.0 準拠 電圧 450V 電流 200A の機器を設置する想定である。なお、2 口同時充電対応を検討しており、仮に、船側の蓄電池を 1,000 kWh とし、夜間に電力のバンキングを行うと想定した場合、単純に夜間のみで片側充電なら 90kW 約 11 時間、両側充電なら 180 kW 約 6 時間の電力使用となる。これに加えて、水素充填圧縮機により蓄圧器に高圧水素を貯蔵する電力を電気バンキングと同時に使用した場合においては、系統電力の使用負荷（ピーク電力）が増大。基本料金増が運航コストへの大きな負担となる。そのため、陸側大容量蓄電池を備えた電気バンキング技術の開発を行い、ピークカットや電力量の削減が可能な仕組みを開発する。加えて、これら電力使用に関してオンデマンド制御（エネルギーマネジメント）が可能な仕組みの導入を行う。

今後、水素・電気バンキング施設の開発・設計状況や、水素圧縮機による水素充填等主要設備の詳細な稼働状況等に応じた最適な充放電スケジュール等を考慮に入れ、開発を行った技術の改良を進める。その技術を基に設計した水素・電気のバンキング施設を 2023 年度に建設し、2024 年度に後述する実証試験を通じて課題を抽出するとともに対策を施し、バンキング施設の最終仕様を確定させる。

3) 船体構造（コンポーネント）の開発（担当：名村造船所・東京海洋大学）

研究開発目標の項でも述べた通り、2020 年度末の段階では 19 総トン未満の「小型船舶」を対象とした安全ガイドラインが策定されていたものの、本事業で対象となる 100 総トンクラスの内航船（小型船以外の内航船）については明確な安全基準が定められていなかった。2021 年 8 月には小型船以外の内航船にも拡張された「水素燃料電池船の安全ガイドライン」が公表され一定の指針が示されたものの、現時点（2022 年 8 月時点）では当該ガイドラインに従って建造された船舶はなく、また、定量的な数値基準が定まっていない要求事項もあることから、具体的な設計や適用基準の緩和措置については個船ごとに検討や審査が必要な状況である。そこで、担当の名村造船所と東京海洋大学が日本造船技術センターなどの機関と連携しながら、本船の一般配置図（案）などをベースに、関係省庁との議論を進めてきた。具体的に検討してきた点として、危険場所・離隔距離・火災対策・燃料タンクの配置が主な点として挙げられ、今後は水素の拡散シミュレーションなどを行ない、その結果を踏まえ、緩和措置の適否などの協議を行なっていく予定である。

なお、本開発にあたっては、一般船に容易に搭載可能な汎用コンポーネントとして作ることで、合理的な構造と配置による建造コストの低減、水素燃料電池船普及に貢献するものとする。必要に応じて、東京海洋大学における実験船に組み込み、部分的な検証実験などを進める。

この開発に並行して、実証に用いる水素燃料電池船の設計を進める。建造する水素燃料電池船は、

総トン数 100 総トンクラスの双胴船（カタマラン）、定員：100～150 名の旅客船を計画している。また出力は水素とバッテリー併用で 400 kW、速度 10 kt、最大航行距離は 130 km 程度を検討している。

4) 実証運航

①バンカリング設備の設計と設置（担当：岩谷産業・関西電力）

上記までの成果に基づき、実証運航に供する水素燃料・電気バンカリング施設の建設を行う。本事業で開発するエネルギーマネジメントシステムやバンカリング技術、機器を活用し、規制にかかわる関係官庁との折衝を行いながら最適かつ商業的に実用的な水素船へのバンカリング設備を設計、設置する。また、実証運航を通じてバンカリング設備のハードウェア全体の性能確認、安全性検証を行う。また本事業で開発した水素充填システムの揺動対策および塩害腐食防止の効果を見極め、必要に応じて改良を行い、設備の最適化を図る。

②運航データの取得と水素燃料電池船の経済性評価（担当：岩谷産業・関西電力・東京海洋大学）

設計段階においては、東京海洋大学の「らいちょうN」を用いて実証運航に対する試験項目の整理と課題点の抽出を進め、船体設計へ反映させる。その上で、建造した船を用いて試験運航を行い、運航データの取得を行う。また、①のハードウェア面と同時にソフトウェア面についてもシステム全体の統合およびユーザビリティの向上を行う。

本事業で主に対象とする 100 総トンクラスの内航船の船種は、主に旅客船、貨物船、そして、小型船舶に分けられる。また、運航形態としては定期船・不定期船に分かれる。また、運航形態によってはバンカリングにかかる時間・タイミングを削減することなども考えられるため、時間のかかる電気のバンカリングを避けるべき場合などもある。以上のことから、船の種類によって求められる航行速度や航行スケジュールなどは大きく異なるため、それぞれに最適なソリューションが存在するものと考えられる。そこで、本事業では実証実験のなかで、上記の異なる船舶を模擬した運航をいくつか行い、最適なエネルギーマネジメントが行えるか検証を行い、水素燃料電池船のモデルケースを検討する。その上で、我が国のロードマップに従った水素価格などを考慮しながら、運航コスト及び事業全体としての経済性評価を行い、課題点の整理を行う。

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

本 NEDO 事業の成果をもとに、大阪・関西万博での水素燃料電池船及び船舶用バンカリング施設の実用化を行なう。大阪・関西万博では未来へのショーケースとして水素燃料電池船を運航し、世界各国からの来場者に水素エネルギーの可能性を PR し、将来的な海上輸送分野でのゼロエミッション化への貢献を図る。さらに、来場者に利用・乗船してもらうことを通じて、商用運航に向けた、エネルギーマネジメントシステム等のより深い実証を進めていく。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

－研究発表・講演、文献等、その他－

No.	年月	発表先	題目	発表者
1	2021/7/21	ニュースリリース	水素燃料電池船と船舶用ステーションの開発を開始 NEDO 助成事業に採択、大阪・関西万博等での商用化を目指す	岩谷産業
2	2021/7/21	ニュースリリース	水素燃料電池船と船舶用ステーションの開発を開始	東京海洋大学
3	2021/7/27	環境ビジネスオンライン	岩谷産業、水素燃料電池船・船舶用ステーションの開発に着手	－
4	2021/7/28	日刊水産経済新聞	水素船、「万博」で運航へ	－
5	2021/7/29	ニュースリリース	水素燃料電池船と船舶用ステーションの開発を開始 NEDO 助成事業に採択、大阪・関西万博等での商用化を目指す	名村造船所
6	2021/7/29	日本海事新聞ニュース	岩谷産業・名村造船など、水素燃料電池船を開発、NEDO 助成事業に採択	－
7	2022/9/30	名村テクニカルレビュー	最新技術への取り組みの紹介	名村造船所

課題番号（管理番号）：MU11

研究開発テーマ名：「燃料電池の多用途活用実現技術開発／燃料電池搭載農業用トラクタの実用化に向けた実証研究」

実施者：株式会社 Kubota

期間：2021年8月～2025年3月

1. 研究開発概要

水素・燃料電池を搭載した農業用トラクタを開発し、実作業による実証試験にて適合性を明確化するとともに、農村部における、水素の運搬・供給方法を検討し、そこでの水素利活用のあるべき姿を提案する。本研究により、モビリティ以外での燃料電池利用の可能性を示せるとともに、農村部などの地方での水素需要の創出と、それら地域の2050年カーボンニュートラル社会の実現に寄与できる。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

2050年のカーボンニュートラル実現の為に、様々な脱炭素化への取り組みが必要であり、農業生産では機械の脱炭素化が非常に重要となる。

農業機械の脱炭素への取組として、小型クラスの農業機械ではフル電動(バッテリー)製品の開発が各社で行われている一方、中・大型クラスの機械ではバッテリーサイズや充電時間の問題から、フル電動化には多くの課題があり製品化の情報はない。また、燃料電池自動車で用いられている燃料電池システムは、非常に高価かつ、開発に高度な技術が必要であったため、これまで燃料電池を採用したトラクタの製品化に向けた動きは、国内外を含め見られなかった。しかし、近年、自動車メーカーを中心に燃料電池システムの技術開発が更に進み、また、それらシステムの外販の動きなどから、他の産業分野での採用例が出てき始めている。

そこで本事業では、農業機械分野で他社に先駆けて、本格的なトラクタ作業(耕耘、肥料散布、草刈、軽土木作業など)で使用できる燃料電池トラクタを開発し、実証試験を通して製品化の道筋を具体的に提示することを事業目標とする。

本研究開発の中間目標および最終目標は以下の通りである。

○中間目標（2023年3月）

- ・車載向けシステム設計完了
- ・各要素機器の開発完了
- ・燃料電池トラクタの搭載設計完了
- ・台上評価設備の構築完了

<設計根拠>

燃料電池搭載農業用トラクタの開発は、自社、他社含め初めての取組である。その為、まず燃料電池トラクタ(中・大型クラス)に最適な、燃料電池システムの検討、要素機器開発、および搭載設計を実施、完了することを中間目標とした。また、それと並行して、要素機器および燃料電池システムを評価するための台上試験設備を新規で構築することも目標項目に入れ、システムの動作検証、制御機能の早期作り込みを行う。

○最終目標（2025年3月）

- ・国内圃場の実作業で燃料電池トラクタの実証試験実施と、国内農業への適合性評価完了
- ・製品化に向けた課題抽出と対策立案、および、実証試験結果の報告完了

<設計根拠>

農業用トラクタは、様々なトラクタ作業(耕耘、肥料散布、草刈、軽土木作業など)で使用されるが、地域や作業ごとに負荷特性や作業時間、作業環境など大きく異なる。その為、複数の地域で実際の作業を行い、作業ごとに適合性評価を行うことが重要であり最終目標とする。

更に、製品化に向けては、例えば、農村部での水素燃料供給方法の確保や、それに関する法規制などの明確化、そしてその対応策検討が不可欠である。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
(1)燃料電池トラクタの仕様・搭載検討	燃料電池トラクタの搭載設計完了	ベーストラクタ選定完了。 詳細設計も 2022 年度内に完了予定。	○	
(2)燃料電池トラクタのシステム設計	トラクタ搭載システム設計完了	システム構成(機器構成)を決定。	○	
(3)燃料電池トラクタ用要素機器の設計	・各要素機器の開発完了	・要素機器の要求仕様を決定 ・それぞれの協力メーカー・サプライヤを決定 ・要素機器は2022年度内に納入完了予定。	○	コロナの影響により、要素機器の納入が遅れる可能性がある
(4)燃料電池トラクタの制御ソフト開発	・台上評価設備の構築	台上評価設備の要求仕様を決定。2022 年度内にシステム完成予定。	○	コロナの影響により、台上評価設備の納入が遅れる可能性がある

3.2 研究開発の詳細

(1) 燃料電池トラクタの仕様・搭載検討

本事業で開発する燃料電池トラクタは中大型クラスのトラクタとする。その選定の理由は、GHG 排出割合、完全電動化の困難さ、普及・販売台数、そして燃料電池システムの成立性である。

また、搭載レイアウト検討については、各電装機器の概略の外形サイズを検討・決定し、それを基に3D-CADにて搭載検討を実施した。

(2) 燃料電池トラクタのシステム設計

燃料電池トラクタにおいて必要となるシステム構成を、出力性能や電力マネージメントを考慮し、以下の通り決定した。

- ①水素タンクシステム、②FCモジュール、③電源(LIB)システム、④モータ/インバータ、
- ⑤補機システム、⑥トラクタ側既存システム構成

(3) 燃料電池トラクタ用要素機器の設計

システム検討で必要と判断した各要素機器に関して、要求仕様を決定した。また、それら機器開発の協力メーカーやサプライヤを調査、決定した。

(4) 燃料電池トラクタの制御ソフト開発

制御ソフト開発に必要な台上評価設備の機器構成並びに要求仕様を決定した。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

残された課題としては、①実証試験先が決まっていないこと、②試作機開発や圃場でトラクタ作業を行う際にそれらに関するルールや基準が十分に整っていない懸念があることである。

それら課題に対し、現在、事務局に専任スタッフを派遣し積極的に活動に係わっている「水素バリューチェーン推進協議会(JH2A)」とうまく連携を取りながら、例えば、参加企業・団体への実証試験協力のお願いや水素供給協力の打診、さらに委員会を通じた規制調査などを行うなど、実証試験を実施できるようにアプローチを続けている。

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

交付申請書内の「企業化計画書」に記載した事業化計画から変更はない。また、3.3 項内の JH2A の各委員会に参画し、燃料電池トラクタの実用化に向けた具体的方策を、参加企業と一緒に検討していく。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

なし

課題番号（管理番号）： MU12

研究開発テーマ名：「燃料電池の多用途活用実現技術開発／港湾荷役機器ラバータイヤ式門型クレーンの水素駆動化（水素燃料電池の採用）開発事業」

実施者：株式会社三井E & Sマシナリー

期間：2021年8月～2023年3月

1. 研究開発概要

今日、国際貨物物流の多くを海上コンテナ輸送に頼っており、コンテナターミナル（以下、CT）では、コンテナ船に積み込むまでの間、あるいはコンテナ船から荷揚げした後に荷主が引き取りにくるまでの間、一時的にコンテナを蔵置している。現在、CTにおけるコンテナ蔵置作業にはラバータイヤ式門型クレーン（以下、RTGC；Rubber Tired Gantry Crane）が広く使用されている。従来のRTGCは機上にディーゼルエンジン発電機セットを搭載し軽油を燃焼して電力に替え、荷役を行う為の各種電動モータを駆動している。RTGCは、ラバータイヤ式の走行装置を有しているため機動性が高く、作業の繁忙度に応じて必要な蔵置エリアに配置出来る為、より少ない基数で効率的なCTの運営が可能となる。機動性を維持するため、RTGCの機上にディーゼルエンジン発電機セットを搭載し軽油を燃焼して電力に替え、荷役を行う為の各種電動モータを駆動している。

以前より、CTにおいてRTGCを含む港湾荷役機器から排出される二酸化炭素やディーゼル排気ガス中の有害物質が問題視されており、ディーゼルエンジンの排出ガス規制適用品やディーゼルエンジン発電機セット及び蓄電池を用いたハイブリッドシステムの採用による省燃費化で対応してきた。更に近年では、海外においては米国ロサンゼルス（以下、LA）・ロングビーチ（以下、LB）港にて2030年には港湾の排出ガスをゼロにするクリーン・エア・アクション・プラン（ゼロエミッション化）が推進されており、国内では国土交通省が水素等を活用したカーボンニュートラルポート（以下、CNP）の形成を推進している。これらの実現には、港湾荷役機器のゼロエミッション化が不可欠である。中でもCTにおける排出ガスの最も大きなウェイトを占めているRTGCを、従来のディーゼルエンジン発電機セットによる軽油駆動から、水素燃料電池（以下、FC；Fuel Cell）、補機類、水素タンク、制御盤等で構成される電源装置であるFCパワーパックを搭載し水素駆動化することが重要である。現状では水素駆動RTGCは市場に存在しておらず、早期に開発し市場投入する必要がある。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

2.1 最終目標

港湾荷役で広く利用されているRTGCは、年間1機あたり約206トンのCO₂を排出している。従来ディーゼルエンジン発電機セットで駆動していたRTGCをFCによる電力で駆動する構成に変換し、従来RTGCと同等の荷役能力を発揮出来ることを実証することで、港湾の脱炭素化を図ると共に、従来の自家用車や家庭用とは異なる分野においてFCを多用途展開する。

2.2 中間目標

水素駆動のRTGCが従来のディーゼル発電機セットで駆動するRTGCと同等の荷役能力を発揮出来ることを試験環境の整った自社試験ヤードで実証するため、22年6月末までに以下の目標を達成する。

- ・ FCメーカーの市場調査を完了
- ・ RTGCの機械設計及びシステム設計を完了

- ・ FC、補機類等の FC パワーパックの機器、部品の調達を完了

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
従来と同等の荷役能力を発揮出来ることを実証する	FC メーカーの市場調査を完了する	RTGCの機上に搭載可能な FC 候補を選定した	○	なし
	RTGCの機械設計及びシステム設計を完了する	従来よりも蓄電池を大容量化することで FC パワーパックを小型化、FC パワーパックと蓄電池のエネルギーバランスが最適となるシステム設計を完了	○	実証試験による設計の評価
	FC パワーパックの機器、部品を調達する	FC パワーパックの機器、部品を調達した。応募時に入手が困難であった高圧水素タンクを調達し、RTGC に最適化したパッケージングを行った。	◎	FC、高圧水素タンクの量産化によるコスト低減、荷役機器の運用に即した規制基準の整備

3.2 研究開発の詳細

- (1) FC メーカーの市場調査を行い、寸法的制限と要求能力を同時に満足する、RTGC の機上に搭載可能な FC 候補を選定した。
- (2) 従来のハイブリッドシステムよりも蓄電池を大容量化することで FC パワーパックの小型化を目指し、RTGC 上への FC パワーパック搭載検討を行った。また、FC パワーパックの小型化には蓄電池との負荷バランスを考慮する必要がある為、FC パワーパックと蓄電池のエネルギーバランスが最適となるようなシステム設計を実施した。
- (3) FC は量産化によるコストダウンが期待されるトヨタ自動車製 Type-2 型、出力 60kW を選定した。また、応募時に入手が困難であった高圧水素タンクはトヨタ自動車製の高圧水素タンクシステム G2L-1 4 本組を選定した。このタンクシステムは約 36kg の水素を貯蔵することが可能であり、FCV の 6 倍を超える水素貯蔵量となる。FC Type-2 型と高圧水素タンクシステム G2L-1 の組み合わせはトヨタ自動車としても初めての組み合わせとなる。荷役機器、農機、建機など大容量の水素が必要となる産業機械への水素普及の礎を築く取り組みと考える。

高圧水素タンクは FC パワーパックの原価に占める割合が大きく、市場拡大による量産化や調達先拡大によるコストダウンが今後の課題となる。そのためには、高圧ガス保安法を始めとする規制基準の整備が不可欠である。本事業から得られる知見は、荷役機械に対する国内初の取り組みであり、規制基準の整備の基礎資料になると期待している。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

- (1) 調達した FC や補機類等の機器や部品は FC パワーパックに仕立てる。FC パワーパック単体の試験運転を実施し、FC や補機類が正常に稼働することを確認する。
- (2) 自社で所有する試験用 RTGC に FC パワーパックを搭載し、実際の CT での荷役を模した試験（実荷役に用いられているコンテナ、トラック・シャーシを使用）を行い、水素駆動 RTGC が従来のディーゼルエンジン発電機セットを搭載した RTGC と同等の下表の荷役能力発揮を達成する。

項目	荷役能力
定格	40.6 トン
巻上速度(コンテナ吊)	23m/min(0.38m/sec)
巻上速度(空荷)	52m/min(0.86m/sec)
横行速度	70m/min (1.16m/sec)
走行速度	90m/min(1.5m/sec)
環境温度	0℃～40℃

- (3) 荷役作業に伴い、RTGC はコンテナを吊って巻上る時に放電し、巻下る時に充電するサイクルを繰り返すが、照明や運転室及び電気室内の空調装置、制御装置のように消費するのみのエネルギーがあるので、FC パワーパックからの給電がなければ、蓄電池の充電率は荷役回数と共に徐々に減ってゆく。一方、FC パワーパックからの給電があったとしても、荷役と荷役の間隔（インターバル）が短い場合、蓄電池に対して十分な電力量を供給できず充電率が徐々に低下し、荷役が連続的に行えなくなることも考えられる。RTGC における荷役の頻度は、CT の繁忙度により異なるが、1 時間あたり 12～20 サイクルである。試験では、荷役サイクルを平均的な 1 時間あたり 16 サイクルのペースで連続的に繰り返し、充電率が一定範囲で安定的に推移していることを検証すると共に、その間の水素消費量を確認する。

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) 米国 LA・LB 港では 2030 年には排出ガスをゼロにするクリーン・エア・アクション・プラン（ゼロエミッション化）が推進されており、2030 年以降、ディーゼルエンジン発電機セットを搭載した RTGC の使用が禁止される予定である。同規制を踏まえ実施した LA・LB 港の港湾運営者との意見交換においても、各社水素駆動 RTGC の導入の検討を開始しており、今後水素駆動 RTGC の需要が見込まれる。RTGC のゼロエミッション化には、水素駆動化とは別途 RTGC を電動化する技術はあるものの、LA・LB 港では給電設備を設置するスペースに制約があり、系統電源設備の能力不足を解消するための投資が巨額になったりするという問題を抱えている。このため、水素駆動の荷役機器が進められており、既にトップリフターやヤードトラクタでは水素駆動化の実証実験が始まっており、RTGC の水素駆動化も早期に実施されることが見込まれる。

2030 年の RTGC のゼロエミッション化の規制到来に伴い、2027 年度以降は LA・LB 港において、従来のディーゼルエンジン発電機セットを搭載した RTGC の水素駆動化 RTGC への代替需要が加速すると考えられる。LA・LB 港では現在、ディーゼルエンジン発電機セットを搭載した RTGC が約 180 機程度稼働している。発注台数や仕向地（輸送距離）にもよるが、水素駆動化 RTGC の受注から引き渡しまでのリードタイムを考慮すると、2030 年の規制到来までに RTGC を水素駆動化する為には、2027 年度以降に発注が増加すると考えられ、2027 年度に 50 機、2028 年度に 60 機、2029 年度に 70 機の販売を見込んでいる。加えて、LA・LB 港以外の米国港湾においても、LA・LB 港に追随して RTGC の水素駆動化が進むと想定される為、2030 年度以降も各年度 40 機の販売を見込む。

(2) 国内においては日本政府の2050年カーボンニュートラル宣言を受け、国土交通省は令和2年12月、CNPの形成を公表した。当初6港が選出され、そのうち大規模なCTを有する神戸港、横浜港、名古屋港の港湾関係者と意見交換を行ってきたが、CNPの実現の為、各港湾関係者にも水素駆動RTGC導入の検討を始めている。現在は多くの港湾でCNP検討会が開催されているが、水素駆動RTGCの紹介依頼が多く、水素駆動RTGCへの関心が非常に高い。

CNP形成の促進に伴い大規模CTを有する神戸港、横浜港、東京港等の主要港のCTを中心に2027～2029年度には年間20～30機程度の水素駆動RTGCの発注を見込んでいる。2030年度以降においても、同港における他のCTにおいてRTGCの水素駆動化が促進されると考えており、年間40機程度の販売を見込む。

(3) 米国及び国内におけるRTGCの水素駆動化の実績を持って、諸外国におけるRTGCの水素駆動化の需要を掘り起こし、販売台数の拡大に繋げていく。当面の2030～2031年度は年間30機の販売を見込む。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

—研究発表・講演、文献等、その他—

No	年月	発表先	題目	発表者
1	2021年 8月	名古屋港CNP検討会	三井E&Sマシナリーにおける脱炭素化社会への取組みのご紹介	川嶋克昌
2	2021年 9月	新潟港CNP検討会	三井E&Sマシナリーにおける脱炭素化社会への取組みのご紹介	市村欣也
3	2021年 9月	港湾荷役システム協会 機関誌「港湾荷役」	水素駆動RTGの開発と荷役機器の脱炭素化	市村欣也、浅見織音
4	2021年 10月	沿岸技術研究センター 機関誌「CDIT」	水素駆動型RTGの開発と課題	市村欣也、浅見織音
5	2022年 1月	日本港湾協会 機関誌「港湾」	水素駆動型RTGの開発と課題	市村欣也、浅見織音
6	2022年 2月	大阪みなとCNP検討会	三井E&Sマシナリーにおける脱炭素化社会への取組みのご紹介	浅見織音
7	2022年 6月	TOC Europe 2022(コンテナ業界最大の国際展示会)	PROJECT FOR HYDROGEN SUPPLY AND USE IN PORT EQUIPMENT AT THE PORT OF LOS ANGELES	Troy Collard

8	2022年 6月	PORT OF LOS ANGELES AND NAGOYA PORT AUTHORITY MOU SECOND-YEAR ANNIVERSARY ENVIRONMENTAL AND OPERATIONAL EFFICIENCY VIRTUAL CONFERENCE	MITSUI-PACECO® Zero- Emission TRANSTAINER®	浅見織音
9	2022年 7月	日本クレーン協会 機関誌「クレーン」	水素駆動 RTG の開発と荷役機械の脱炭素化	市村欣也、浅見織音
10	2022年 8月	北九州港 CNP 協議会	水素燃料電池搭載 RTG(ZE-TT)のご紹介	高橋和男

課題番号（管理番号）： MU13

研究開発テーマ名：「燃料電池の多用途活用実現技術開発／高圧水素タンク及び M E A の全数高速検査を実現する革新的 X 線検査技術の開発」

実施者： 東レ株式会社、（国立研究開発法人産業技術総合研究所）

期間： 2021 年 8 月～2023 年 3 月

1. 研究開発概要

第 5 次エネルギー基本計画や N E D O ロードマップに基づき、2030 年以降の自立的普及拡大に向けて、F C V においては安全、高効率、高耐久の燃料電池システムを実現するための基盤技術の開発とともに、高品質の水素タンクや燃料電池を短タクトで大量生産可能な製造プロセス技術や品質管理技術を確立し、生産性を向上させることが必要である。本事業では、生産ラインに実装可能なインライン X 線検査技術（高速、自動判定等）の開発を行い、水素社会構築に貢献する。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

FCCJ 主催の FCV 課題共有フォーラムで示されているロードマップ、2030 年までの FCV 普及台数(累計 80 万台)および以降の自立的普及拡大期を見据え、検査処理能力を設定した。欠点検査対象は水素タンクライナーおよび M E A / 構成部材 C P（カーボンペーパー）であり、自動車メーカー様、部材メーカー様のヒヤリングを通して設定した。ヒヤリング時点で、目標の検査能力を有する設備がなく、X 線検出器の高解像度化に寄与できる当社独自のシンチレータパネル技術（セル方式シンチレータ）を進化させ、目標達成を目指すこととした。

対象異物の検出要望サイズは、他の技術動向により変更される可能性があり、情報を入手次第目標設定の見直しを実施する。

【開発項目 1】：水素タンク接合部ボイドのインライン高解像度、高速検査技術の開発

目標) 300×50μm 以上のボイドを 6 分/本(1 接合部)で検査

【開発項目 2】：M E A / C P 欠陥検出のためのインライン高解像度、高速検査技術の開発

目標) 30μm 以上の金属異物を 1 秒/cell(速度換算 25m/min)で検査

中間目標：2022 年度末（当助成事業終了予定）

開発した要素技術を基に実証機製作し実証開始（開発項目 1, 2）

最終目標：2023 年度末（参考）

実証機でデータ取得・改良を経て、製造ラインに実装可能な設計完了（開発項目 1, 2）

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
①-1 高解像度 X 線シンチレータパネルの開発	・隔壁細幅化(10μm 以下)の基礎技術構築 ・適した蛍光体発光	・隔壁幅 10μm 以下の基礎技術を構築。 ・高速搬送撮像に適した残光特性を持つ蛍光	○	・実センサーサイズでの隔壁細幅化作製。 ・設計したシンチレータパネルの作製プロセス

	(残光)特性見極め、 導入プロセス検討 ・連続稼働を想定した X線耐性向上	体材料を数種に絞った。 ・シンチレータパネルの輝 度劣化を1 / 3 以下と なる技術を確立。		完成、サンプル作製
①-2 小型検出 器の開発 ①-3 屈折イメー ジングによる検出 技術の開発	・タンクライナー検査用 にΦ30mm 以下の小 型検出器設計・試作 ・得られた画像を用い て屈折イメージングの 適性を確認する。	・小型検出器(センサ ー)の設計完了・試作品 作製。 ・セル方式シンチレータ とのアセンブリ・画像取得 準備開始。	○	・屈折イメージングの適 用可否検討。
②高速処理シス テムの設計開発 ③実証機設計と 開発	・想定システム・装置 構成の原理検証	上記項目に続き、計画 通り、順次着手。タンク ライナー検査の原理検 証開始し、タンク内検出 器挿入の効果を確認。	△	・要素技術を用いた実 証機器類を準備、検 証開始。 ・購入部材、借用部 材の滞りない入手

3.2 研究開発の詳細

目標とする検査構築において、X線検出器の高解像度化に寄与できる当社独自技術のセル方式シンチレータの進化に加え、線源の選定、画像処理、診断システム、検査手法開発を進める。

(1) 高解像度X線シンチレータパネルの開発 (3.1の①-1)

・隔壁細幅化 (10μm 以下) の基礎技術構築

既存技術のガラス系材料の隔壁は焼結することで完成するが、焼成工程で一定程度ダレが発生するため、細幅化が難しかった。フォトリソ加工で隔壁の3次元構造を形成する基本コンセプトは変更せず、構造を形成・維持するために、主な組成物をガラス系から樹脂系に大幅変更することで達成を試みた。その他、フォトリソ加工に必要な反応添加剤も設計変更し、焼成工程無しで隔壁形成可能とした。これら組成開発・プロセス開発を進めることで、隔壁幅 10μm 以下、高さ 100μm の隔壁形成の基礎技術を構築できた (図1)。想定しているX線エネルギー帯に対応した高さ 50-100μm が形成可能となった。細幅化された隔壁に蛍光体材料を充填し、シンチレータパネルの発光輝度を 20% 以上の大幅向上に成功した。

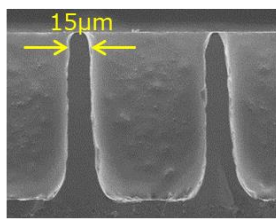
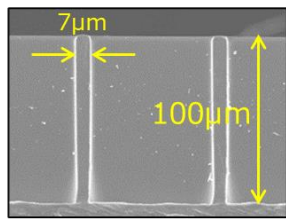
	既存技術	開発技術
隔壁断面 画像		
線幅	15μm	7μm
相対輝度	100%	120~125%

図1. 隔壁細幅化（セル方式シンチレータパネル断面画像、蛍光体材料充填前）

・検査装置に適した蛍光体発光(残光)特性見極め、導入プロセス検証

MEA 検査ライン速度 25m/min において、主要構成物 CP（カーボンペーパー）を用いた画像検証を実施した。高速化における画像のボケから、残光 Decay time 25μsec 以下が好ましいことを見極めた。蛍光体の改良や入手性を考慮し、蛍光体種を GOS:Pr（プラセオジウム賦活酸硫化ガドリニウム）、CsI（ヨウ化セシウム）、GAGG（ガドリニウム・アルミニウム・ガリウム・ガーネット）を選定した。選定した蛍光体のセル方式シンチレータへの充填方法を検討実施中。

・連続稼働を想定した X 線耐性向上

助成先(東レ)にて使用実績が多数ある GOS を用いた系で有機成分の劣化を抑制する技術開発を実施。既存技術では、蛍光体層に含まれる有機成分が X 線により劣化・着色し、蛍光体材料で発光した光がセンサーに到達するのを阻害し、シンチレータパネルの輝度劣化・センサーの出力低下を引き起こしていた。そこで、X 線による変質の生じにくい有機成分の設計、コンタミ成分の混入制御を行い、蛍光体層の組成設計を行った。シンチレータパネルを作製し、大量 X 線照射後の輝度推移を確認した。図 2 の通り輝度劣化を 1 / 10（目標 1 / 3）と大幅に抑制できる技術を確立できた。組み合わせる検出器の設計にも依存するが、市販 X 線検出器でシンチレータを当開発品に置き換えて X 線照射試験を実施したところ、出力低下が小さくなり寿命が 3 倍以上を示す結果を得ている。劣化による検出器交換頻度が 1 / 3 以下となることを示す結果であり、連続稼働に貢献できる技術を構築できた。

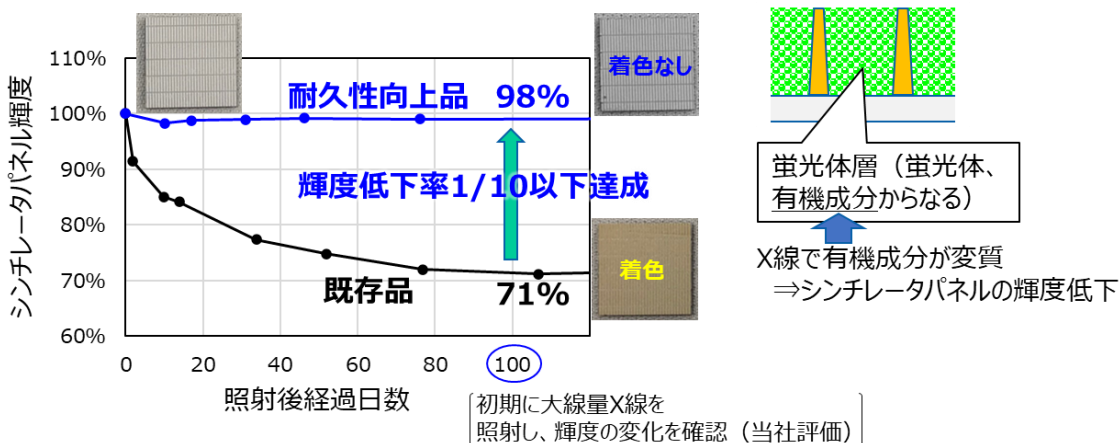


図 2. シンチレータパネル輝度劣化試験

(2) 小型検出器の開発、屈折イメージングによる検出技術の開発（3.1 の①-2、①-3）

タンクライナー検査向けに、X 線検出器の小型化に取り組んだ。タンクライナー検査では、タンク内に検査機を挿入することで、高速高解像度対応を目指す。タンク内に検出器を挿入する装置構成に対応すべく、検出器はΦ30mm 以下とする必要がある。受光部、回路部の配置検討し、検出器を設計・試作した（図 3）。

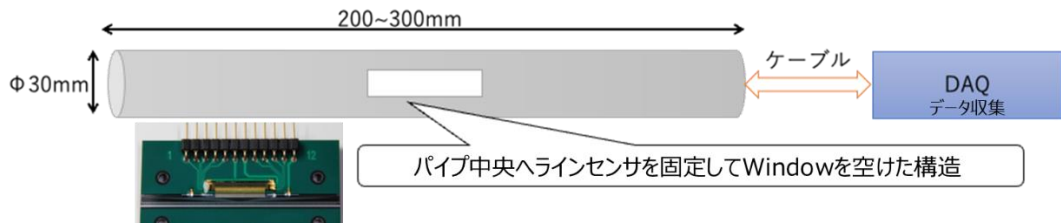


図3. 小型検出器システム概要図

セル方式シンチレータとの組み合わせ、撮像条件検討後、上記を用いて画像取得し、屈折イメージングによる欠点検出に適した画像であるかを確認する。適していると判断した場合、画像処理ソフトの設計を進める。

(3) 高速処理システムの設計開発、実証機設計と開発 (3.1の②③)

・タンクライナー接合部検査、検査システム原理検証

タンクライナー接合部検査は、原理検証としてタンク内に検出器を挿入して撮像するシステムにて不要な構造物の映り込みを抑制できること・高いS/Nを得やすく欠点検出に有利であることを確認できた。

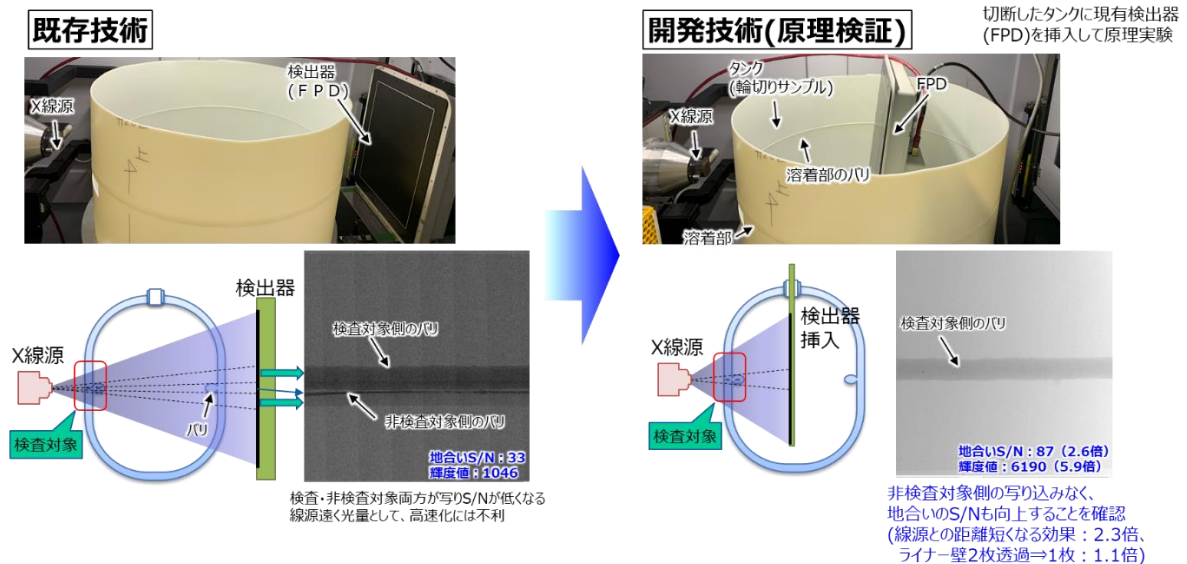


図4. タンクライナー接合部検査 原理検証試験の様子

・MEA/CPの金属異物検査、検査システム原理検証

検査システム・構成の異なる2方式を考案、原理検証を開始。新規システムは特許出願実施。

要素技術開発が進み、適したX線源の選定テストも実施しており、計画通り、これら組み合わせた実証機器類の準備を開始している。

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) 2023年度の最終目標は実証機でデータ取得・改良を経て、製造ラインに実装可能な設計を完了することであり、2022年度中間目標では開発した要素技術を基に実証機器を用いて実証開始することとしている。中間目標に向かって、各要素技術の開発を進めており、実証機器類を準備して2022年度末には検証を開始する予定である。現時点概ね計画通りの進捗となっている。

ただし、計画段階では実証機器類を購入の予定であったが、納期が読めないものも多くあり（新型コロナウイルスの影響で長納期化し）、大部分の機器類の新規購入を断念した。各メーカー様のご好意により、テスト機やデモ機を借用でき、かつ、国立研究開発法人産業技術総合研究所様（産総研）の実験室（X線防護室）をお借りすることで、実験を重ねることができている。実証機器類も産総研様の実験室にて検証を実施することで、計画通り検証に着手できる。

2022年度末から2023年度にかけての実証機器類を用いた検証では、X線源種類、X線検出器/シンチレータ最適組み合わせ、検出対象とX線源の距離、検出対象と検出器の距離の適正化など、撮像試験を繰り返しながらパラメータの合わせ込みを進める。加えて、画像処理・診断システム設計も合わせて、実用化に向けた検査装置の基本設計を完了させる。

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

国内・外の自動車会社もしくは開発連合への提案・販売を計画する。

(1)水素タンクライナー検査は、自動車メーカー、開発連合、樹脂提供メーカー（東レ含む）への販売、展開を想定。国内自動車メーカーには、既に当社既存技術のPRを実施しており、連携が始まっている。本助成事業の取り組みも報告している。既存技術に加え、本助成事業で獲得する技術を用いて、タンクライナーの設計開発や製造プロセス検討におけるボイド欠点の発生状況を提供する。また、製造ラインへの導入について提案する。

(2)MEA/CP検査は、同自動車会社、開発連合、部材供給メーカーへも販売可能。東レグループでは、水素社会構築に向け関連材料開発・製造を行っている。CP（東レ）、MEA（東レグループ：Greenerity GmbH（独））があり、まず早期に社内展開を図る。特にCPについては、東レ国内工場に、本助成事業と目標を同じくする検査装置の導入を渴望されている。工場に実装する検査設備の設計提出は23年度中に期限を設けており、導入に向けた取り組みを社内CP開発・製造部署と連携して具体的に進めている。また、CP開発・製造部署は自動車メーカー様とも連携しており、自動車メーカー様からの要望事項が出た場合は、必要に応じて検査装置開発目標に反映し、柔軟に対応していく。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

出願日	出願番号	発明の名称	助成機関名
2021/12/6	特願 2021-197589	シンチレータパネル、X線検出器およびX線透視装置	東レ株式会社
2022/1/28	特願 2022-011570	シンチレータパネル、X線検出器およびX線透視装置	東レ株式会社
2022/3/15	特願 2022-039891	シンチレータパネルおよび放射線検出器	東レ株式会社
2022/3/31	特願 2022-058034	検査装置及び検査方法	東レ株式会社

－研究発表・講演、文献等、その他－
なし

課題番号（管理番号）： MU14

研究開発テーマ名：「燃料電池の多用途活用実現技術開発／高性能SOFCスタックおよびエネルギーマネジメント連携によるドローン等実用化技術開発」

実施者： 日産自動車株式会社、株式会社アツミテック、株式会社プロドローン、インテグレーションテクノロジー株式会社、（国立大学法人九州大学）、（国立研究開発法人産業技術研究所）

期間： 2021年8月～2025年3月（2023年3月までが正式決定）

1. 研究開発概要

ドローン市場は、2022年に様々な標準化や法規制の改革が行われ、実用化元年と言われており、2020～25年の年間平均成長率は8.3%、このうち、民需のドローン/ドローンサービスが28%と見込まれる。一方、ドローン普及に向けては、制度改革に加え、ドローン自体の技術要素である信頼性、通信技術、パワーソースのキー技術の課題解決が不可欠である。本事業では、高効率、燃料利便性に優れる固体酸化物形燃料電池（SOFC）により、パワーソースの技術課題解決に取り組む。具体的には、①起動停止が容易であり、かつ高出力密度なメタルサポート型SOFCセル/スタック技術の確立、②ドローン実飛行データをもとにしたエネルギーマネジメントモデルの構築を通じ、長時間・高ペイロード飛行を実現するSOFCドローンの実用化に向けた基盤技術を構築することを目指す。

2. 研究開発目標と目標設定の考え方

研究開発目標の前提とする本事業の共同提案の全体イメージを示す（図1）。

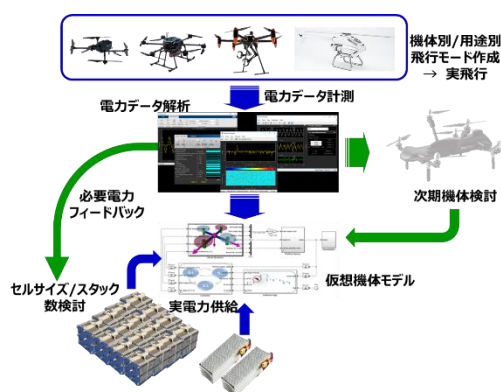


図1 事業全体像

ドローンについては、現段階で必要電力を事前に検討するための飛行モードが定まっていないため、まず種々のドローンの飛行モードを定め、ドローンの各モード、機体別の電力消費、瞬間必要電流などのデータを得るとともに（プロドローン）、測定された電力データの解析を通じ瞬間必要電流からセルサイズ、必要電力からスタック数を検討し、燃料電池仕様を決定し、メタルサポートセル試作、評価を行う（日産、アツミテック）。燃料電池仕様は、計算モデルも使用しながら、早期にバッテリーとの併用検討、バッテリーの必要電力、仕様を決定することとし、ドローンの飛行データから得られた情報をもとに仮想機体モデルを作成し、電力マネージメントの検討を行う（インテグレーションテクノロジー）。同様に飛行データから得られた情報をもとに、最適な機体設計の検討を行い、仮想機体モデルへの機体仕様をフィードバックする（プロドローン）。機体情報も含めた仮想機体モデルに、実際に作成した燃料電池スタックと実バッテリーを用い、電力を供給し電力マネージメントの有効性、仮想機体の飛行時間に必要な燃料量などの試験を行う。以上が、本事業の実施内容である。

具体的な年度目標について、SOFC 開発、およびエネルギーマネジメントに分けて、以下に示す。

SOFC 開発については、1 年目は、ドローン用途に必要な最低限のサイズのメタルサポートセルを試作、評価完了後に、100W 級モジュールを試作する。目標値は、セル面積 10cm² 以上、性能 200mW/cm² 以上（前プロジェクト同等以上性能）を目指す。2 年目は、セル数量を増大し、500W 級モジュールを試作し、LPG を燃料としたときのセル/スタック性能を明らかにする。目標値は、単セル面積 20cm² 以上()、セル当たり出力 20%増（前プロジェクトに対し）を目指す。3、4 年目は、1kW 超級のスタック試作し、実用化に向けた課題確認を完了する。セル面積、性能目標は、エネルギーマネジメント側と合わせて、設定していく。

エネルギーマネジメントモデル開発については、1 年目は、SOFC 搭載ドローンの最終形態（離陸重量、構造、用途など）を想定し、フライトパターン（物流、警備、点検等）を規定するとともに、エネルギーマネジメントロジックをシミュレーションで評価するために必要なドローンおよび SOFC スタックモデルを構築する。2 年目は、実際に電力消費を計測、モデル化し、ドローン評価基準を作成するとともに、エネルギーマネジメントモデルを完成させ、本計画内で策定した飛行モードに従った飛行シミュレーションを実施する。そして、3、4 年目に、電源系統 HIL シミュレータおよびドローン HIL シミュレータをそれぞれ準備し、ドローン自体の性能検討や本計画内で策定した飛行モードに従って各対象における実時間のシミュレーション（Hardware in the Loop Simulation; HILS）を実施することにより、最も実機に近い環境が再現された状態での SOFC スタックの搭載検討を通じて、実用化にむけた課題確認を完了する。

3. 研究開発の成果

3.1 中間目標に対する成果と達成状況

項目	中間目標	成果	達成度	今後の課題
(1) メタルサポートセル試作	単セル面積 20cm ² 以上のメタルサポートセル試作 LPG 燃料での直接改質発電の実証	基準セルとして 10cm ² サイズのメタルサポートセルを試作、供給を完了した。アツミテック社のスタック構成にあわせ 1 層あたり 10cm ² × 2 枚とし、20cm ² の反応面積を実現した。 基準セルの評価で、LPG 内成分であるブタン直接改質発電評価が可能であることを実証した。	○	LPG の部分酸化改質反応活性および耐久性向上に向けた改質触媒の材料、活性金属の担持量および微細構造の最適化 耐久と性能を両立する運転範囲の明確化
(2) メタルサポートスタック試作	メタルサポートセルを搭載した 500W~1kW 級スタックの試作、性能実証 開発したシール構造採用のスタックを試作、LPG 燃料でのセル/スタック性能実証	・100%水素ガスにて、モジュール（セル 32 枚搭載）での発電試験を実施。 ・モジュールの状態にて 105W の発電が確認でき、検証試験の実施に向けてのガス流路構造やスタック構造、シール構造に大きな問題がなく、試験が継続可能である見通しがあった。	○	性能向上：ガスの流し方、電気的な接合方法、シール構造の課題を抽出・整理し、対策を検討する。 ブタンガスへの適用性：ガス流路・シール構造を検討し、モジュール設計に反映すると同時に内部改質効果の確認、及

				び最適化を行っていく。
(3) ドローン飛行データ取得およびSOFC搭載性検討	SOFCをパワーソースとするドローンの最終形態(離陸重量、構造、用途など)を想定した電力消費のモデル化	燃料電池スタックを搭載するドローンについて、1：燃料電池スタックの性能を仮定し、2：出力対重量比を想定し、3：妥当な出力モデルを規定、4：規定した燃料電池スタックに適切なバランスの機体を仮定し、モデル化を完了した。また、これらをもとに計測モードとフライトパターンの規定案を作成し、実機による計測試験を実施した。一部、計測用の機体設計および計測アプリケーションの作成などにも踏み込むことができた。	○	想定されるスタック出力・軽量化を前提に、仮想ドローンを設計するための実計測を実施する。この際、熱設計と重心設計および強度設計について検討を行う。
(4) エネルギーマネジメントモデル開発	エネルギーマネジメントロジックモデルの構築とMILシミュレーションによる検証	<ul style="list-style-type: none"> ・エネルギーマネジメントロジックの構造設計 ・MILS用全体モデルの構築と動作確認 	○	MILSモデルのパラメータフィッティング 実装想定エネルギーマネジメントロジックモデル構築 シミュレーション評価とロジック修正

3.2 研究開発の詳細

(1) メタルサポートセル開発

アツミテック社のスタックモジュール設計に適合させるために、10cm²のメタルサポートセルを試作し、供給を完了した(図2)。1層あたり、10cm²のセルを2枚配置する構成であり反応面積は計20cm²/層となる。さらに、両側にメタルサポート層を配置し、両極対称構造とすることでセル内の残留応力をバランスさせ、将来のスタック積層の際に適した平坦度を実現した(図3)。本構造は、スタックの積層枚数を増やした際にもセルの反りを矯正する荷重が不要であり、構造上の大きな利点となると考えられる。

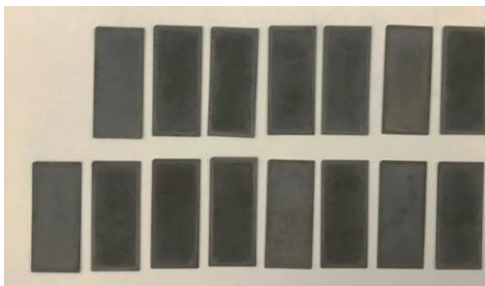


図2 スタックに提供したメタルサポートセル



図3 メタルサポートセルの平坦度

また、本プロジェクトでは、燃料の易入手性からカセットコンロ等で用いられるボンベの適用を想定しており、該燃料はプロパンとブタンの混合物である。受託研究先である九州大学にて、プロパンよりカーボンナンバーが高く

ーキングの可能性が高いブタン燃料を用いた直接改質発電試験が可能な評価系を構築し、発電試験を実施し、運転温度としては比較的低温な 650℃において直接改質運転が可能であることを確認した（図 4）。

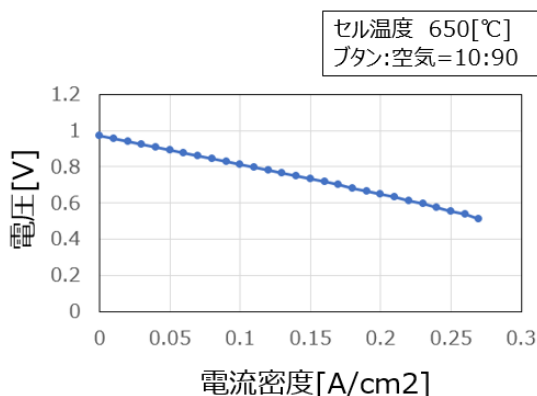


図 4 ブタン燃料を用いた直接改質発電試験

(2) メタルサポートスタック試作

100W 級モジュールの試作に先立ち、スタック時の構造上の課題を抽出する必要があるため、単セル及び 3 段スタックの状態での発電可能な試験ジグを製作し、モジュールの構造を検討していくこととした。

① 発電試験用ジグの製作

シール構造、スタック構造、ガス流路構造などの課題を切り分けて検証するため、単セル及び 3 段スタックの状態での発電可能な試験ジグを製作した（図 5）。



図 5 発電試験用ジグ

② 単セル発電試験

モジュールの構造そのものの評価を行うため、内部改質の必要がない 100%水素にて発電試験を実施し、構造の課題を抽出した。次の 3 段スタック発電試験にむけて、ガス流路構造やシール構造に問題がないことを確認した（図 6）。

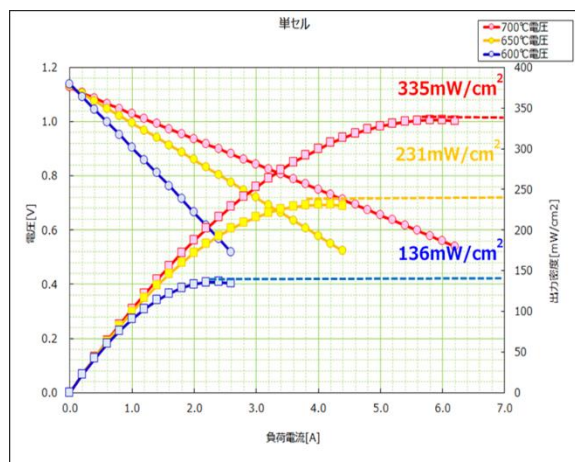


図 6 単セル発電試験結果

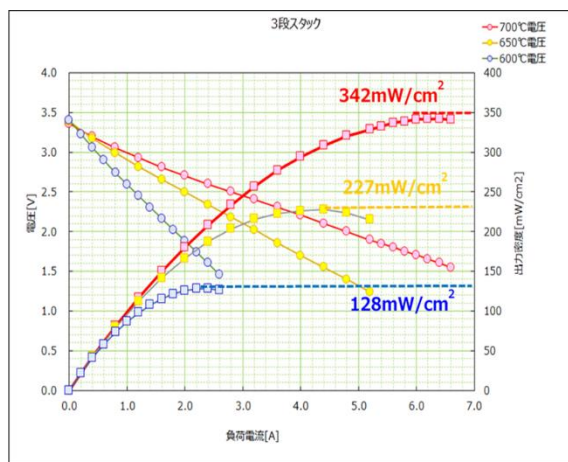


図 7 3 段スタック発電試験結果

③ 3 段スタック発電試験

100%水素ガスにて発電することを確認した。セルを積み重ねたスタックの構造でも、同様の発電性能が得られることを確認した（図7）。

④ 100W 級モジュールの発電試験

100W 級モジュールを試作し、発電試験を実施し、100%水素ガスにて発電することを確認した。（図8）モジュール構造でも、単セル、3 段スタックと同様の出力密度が得られることを確認した。モジュールの状態にて105W の発電が確認でき、検証試験の実施に向けてのガス流路構造やスタック構造、シール構造に大きな問題がなく、試験が継続可能である見通しがついた（図9、10）。

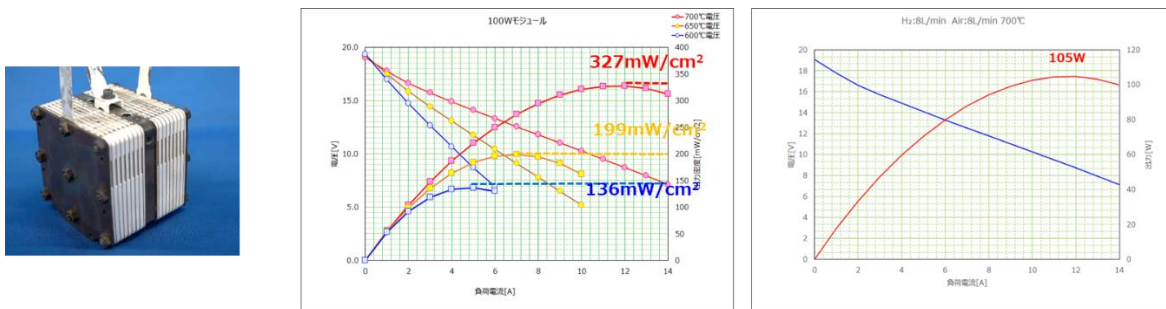


図8 100W モジュール 図9 モジュール発電試験結果 図10 モジュール発電試験結果

(3) ドローン飛行データ取得および SOFC 搭載性検討

①ドローンのモデル化

燃料電池スタックを搭載するドローンについて、1：燃料電池スタックの性能を仮定し、2：出力対重量比を想定し、3：妥当な出力モデルを規定、4：規定した燃料電池スタックに適切なバランスの機体を仮定することで、モデル化を行なった。この結果、長時間撮影に特化した中型の機体、および比較的少量の物流を担う大型機を対象としてモデル化した。

機体タイプ	機体概要
小型機：対象外	燃料電池スタックとして 2kg、500W 程度を想定した場合、プロペラが小径化して効率が低下すること、およびタンクと補機の重量が燃料重量に比例して軽くならないため飛行が困難となることが想定さる。
撮影用長時間運行機体（中型機）	ペイロードとしては最大でも 2kg 程度、通常 1kg 程度のカメラのみを想定し、長時間運用のために燃料電池スタックを搭載するドローン 燃料電池スタック：5kg 1300W ペイロード：1kg 巡航可能離陸重量：11.5kg（うち、タンクと補機 1.5kg）
物流用機体（大型機）	ペイロード 8kg 程度を想定し、長距離の物流用途を想定するドローン 燃料電池スタック：12kg 3300W ペイロード：8kg ドローン離陸重量：30kg（うち、タンクと補機 2.5kg）
超大型：対象外	実装は適切ではないと判断した

②検証用機体設計

今回の研究開発では機体の開発を含まないため、既存機体を計測可能な状態にするための作業を行なった。通常のドローンではLiPo（リチウムポリマー）電池での運用が多く、その電圧で容量を管理しているものが多い。フライト管理するには十分な精度であり、また 20kg 程度のドローンでは 2000~3000W の電力（標準的な電池電圧で 90~130A 程度の電流）を消費するため、消費電流を計測する仕組みが大掛かりとなってしまうことも理由として、中型以上のドローンでは電流計測機能が標準で装備されていない。このため、こうした計測の仕組みを搭載した。

③計測モードとフライトパターンの規定

以下は今回規定した計測モード案の一部である。通常のドローンはホバリング（対地速度 0km/s）状態よりも 8~10m/s 程度でフライトしている際の電力が小さく、中型以上のドローンではおおむねこのあたりの速度で電力の極小値を取ることが分かっている。また、2022 年現在中型から大型のドローン、特にマルチコプターの巡航速度は 10~15m/s 程度であるため、こうした技術的な状況を踏まえ、以下の定義を行なった（図 11）。

計測モード案						
		経過時間	高度	水平速度	垂直速度	補足
基本1：ホバリング	地上（離陸）		0	0	任意	
	上空静止開始	0	15	0	0	
	上空静止終了	30	15	0	0	
基本2：定速移動	地上（離陸）		0	0	任意	
	上空静止		15	0	0	
	加速開始		15	0>8	0	
	定速到達	0	15	8	0	
	減速開始	15	15	8>0	0	
	上空静止		15	0	0	
	地上（着陸）		0	0	任意	
MODE 点検	地上（離陸）	0	0	0	任意	
	上空静止	15	15	0	0	
	移動開始	15	15	8	0	
	計測点到達	30	15	8	0	
	静止	60	15	0	0	
	微速移動（往路）	90	15	3	0	
	微速移動（復路）	120	15	3	0	
	移動開始	150	15	8	0	
	離陸地点到達	165	15	8	0	
地上（着陸）	180	0	0	任意		
MODE 運搬 ペイロードは50%と100%	地上（離陸）	0	0	0	任意	
	上空静止	15	15	0	0	
	移動開始	15	15	0	0	
	中間点到達	45	50	0	任意	
	静止	75	50	0	0	
	移動開始	75	50	0	任意	
	着陸地点到達	105	15	0	0	
地上（着陸）	120	0	0	任意		
MODE 物流 ペイロードは50%と100%	地上（離陸）	0	0	0	任意	
	上空静止	20	30	0	0	
	移動開始	20	30	0>15	0	
	中間点1到達	50	30	15	0	
	中間点2到達	80	50	15	任意	離陸地点、中間点1、中間点2、中間点3、着陸地点の配置についてはT.B.D.
	中間点3到達	110	50	15	0	
	着陸地点到達	140	30	15>0	任意	
地上（着陸）	160	0	0	任意		
MODE 監視	地上（離陸）	0	0	0	任意	
	上空静止	15	30	0	0	
	移動開始	15	30	0>8	0	
	中間点1到達	45	30	8	0	
	中間点2到達	75	30	8	0	
	中間点3到達	105	30	8	0	
	着陸地点到達	135	30	8>0	0	減速の定義は必要？
地上（着陸）	150	0	0	任意		
MODE 高速監視	地上（離陸）	0	0	0	任意	
	上空静止	15	30	0	0	
	移動開始	15	30	0>20~50	0	
	監視地点到達	75	30	?	0	
	静止	105	30	0	0	
	移動開始	75	30	0>20~50	0	
	着陸地点到達	135	30	0	0	<減速が課題
地上（着陸）	150	0	0	任意		

図 11 計測モードおよびフライトパターン案

④検証用アプリケーション作成

前記で規定したフライトプランを実行するためのアプリケーションを作成し、規定した計測モードに応じたフライトプランを簡単に実行できる仕組みを作成した。その画面例を示す（図 12）。

⑤実計測

検証用機体をセットアップし、フライトテストを行なった。下記はフライト実験の様子である。電力を外部から供給し細かな計測ができるようにしている（図 13）。

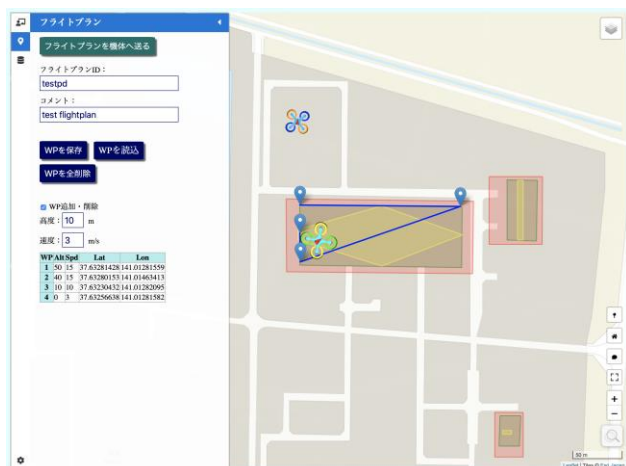


図 12 検証アプリケーション



図 13 フライトテスト

(4) エネルギーマネジメントモデル開発

① エネルギーマネジメントロジックの構造設計

SOFC ドローンのエネルギーマネジメントロジックに対する分析～構造検討に関して、内容の一部を表す（図 14）。本項目では、ドローンの使われ方を想定しながら、エネルギーマネジメントロジックに対する要求を抽出し、要件としてまとめた。また、当該ロジックの構造設計も実施した。図内のユースケース抽出に際しては、下図と同様のプロセスにて SOFC ドローンそのものが利用される状況を想定して要求シーンを定義したものを準備した上で、エネルギーマネジメントロジックのユースケース抽出を行った。以降は、図示したプロセスに従って、ユースケース抽出から内部構造の検討までを実施した。検討済み機能は、航続時間推定、各種状態判定（発電要求／給電要求／充電要求）とし、それぞれの関係性や必要な入出力情報を合わせて構造化している。なお、詳細な内部構造についてはロジックモデル構築のプロセスにて実施しており、調整を行いながら開発を進めている。

② MILS 用全体モデルの構築と動作確認

ドローン MILS モデル構築と制御対象側のモデル動作確認に関する状況を示す（図 15）。本項目では、エネルギーマネジメントロジックモデルをシミュレーションで検討するためのモデル構築の検討、モデルの構築、一部モデルの動作確認を実施した。モデル構築の検討では、既存のドローンに関して要素部品等の構造調査を行い、モデル設計へ反映した。また、現実空間ではドローンは 6 自由度の運動を行うが、航続距離のエネルギー消費を検討する目的に応じた構造とするため、現時点では、鉛直面を運動する 3 自由度のモデルを準備している。これは、自動車の燃料消費量を検討するためのモデルと同様の構造である。SOFC を実装する電気回路は、ハイブリッド自動車の構造を参考に検討を行った。SOFC をはじめとする燃料電池では、力学的エネルギーを介さずに電気的エネルギーを発生するため、いわゆるパラレルハイブリッドの構造を採用することが出来ない。したがって、本開発では、シリーズハイブリッドの構造を参考に回路を検討している。構築したモデルに関して動作確認を実施した。プロドローン社が検討を進めたフライトパターンの案を入力情報として動作確認を行い、現時点までに

構築したモデルにて飛行可能であることを確認した。

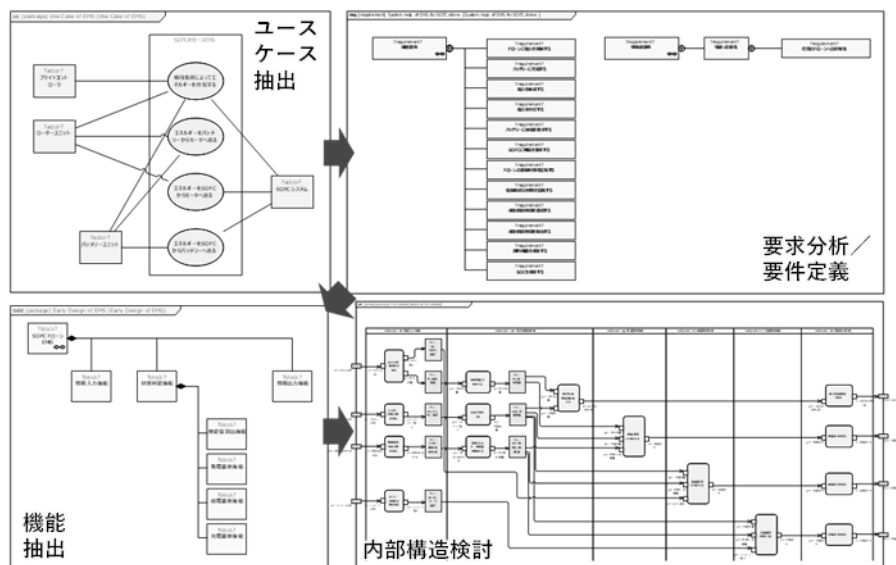


図 14 SOFC ドローン エネルギーマネジメントロジック 分析～構造検討

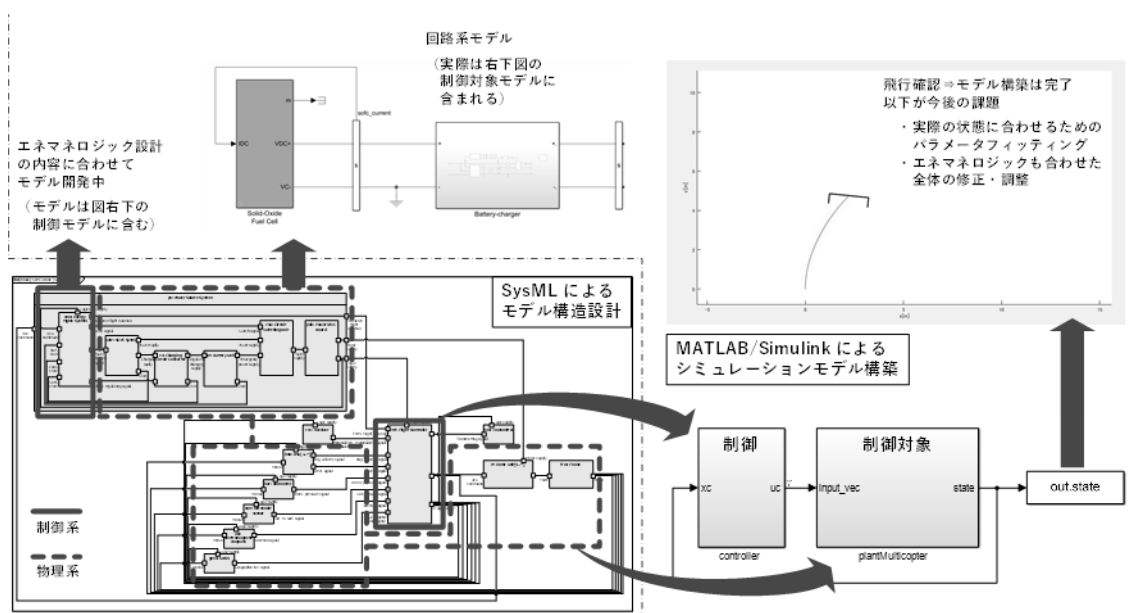


図 15 ドローン MILS モデル構築と動作確認

3.3 最終目標達成に向けたアプローチ

(1) メタルサポートセル開発

実施計画書に記載のように、最終目標（4年目完了時点）では、1kW 超級スタックを実現するためのセル試作・評価が必要である。スタック設計にあわせて、セルサイズとしては 20~100cm² までのものを焼成し提供できる準備を整備する。前述のように、セルの厚み方向の構造としては両極対称のため大面積化時の平坦度確保は可能と考えられるが、大面積化時にはセル焼成時の炉内温度分布均一化の実現がより重要と考えており準備を進めていく。

また、セルとしても面積あたりの出力密度向上が必要であり、各層の厚み最適化や材料の変更に取り組んで

いく。具体的には、含浸触媒が担持される電極セラミクス骨格層は電子伝導度が低く、結果として抵抗過電圧の要因となっている。セラミクス骨格層の厚み低減をしながらもセルとしての構造体を維持するような取り組みを推進していく。

(2) メタルサポートスタック試作

① ブタンガスへの構造の適用性検討

実際の燃料として使用するブタンガスに適したガス流路構造、シール構造及びシール塗布条件を検討し、モジュールの設計に反映していく。

② ブタンガス使用時の課題抽出

ブタンガスの使用時に懸念されるカーボン析出への課題を抽出し、対策を検討する。具体的には、モジュールのガス流路構造、内部改質効果の確認、及び最適化を行っていく。

③ モジュールに要求される仕様の検討

ドローンの仕様に基づいたシミュレーション解析結果からモジュールに要求される項目を検討し、モジュールの仕様を設定する。具体的には、モジュールの重量、発電電力、電圧、電流などを設定し、モジュールの設計要件に反映させる。

(3) ドローン飛行データ取得および SOFC 搭載性検討

来年度以降は実際のフライト試験を行い、モードの妥当性の検証を行う予定である。

(4) エネルギーマネジメントモデル開発

最終目標では、エネルギーマネジメントロジックを組み込みマイクロコントローラに実装する。電源系統 HIL シミュレータおよびドローン HIL シミュレータをそれぞれ用いて、実装したコントローラの実時間でのシミュレーション (Hardware in the Loop Simulation; HILS) を実施する。最も実機に近い状態でのシミュレーションにおいて、飛行目標時間の 2 時間が実現可能であることを検証する。上記に向けて、MILS モデル構築の段階から実時間シミュレーションを想定した構成にて、モデルの構築を実施している。現状、概ね計画に沿った実行が出来ているため、上記に挙げた MILS モデルのパラメータフィッティング、実装想定エネルギーマネジメントロジックモデル構築、シミュレーション評価とロジック修正などの課題を解決しながら、継続して開発を進める。

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

2023 年までの成果をもとに、2024,2025 年の 2 年間で、電源系統 HIL シミュレータおよびドローン HIL シミュレータをそれぞれ準備し、ドローン自体の性能検討や本計画内で策定した飛行モードに従って各対象における実時間のシミュレーション (Hardware in the Loop Simulation; HILS) を実施することにより、最も実機に近い環境が再現された状態での SOFC スタックの搭載検討を通じて、実用化にむけた課題確認を完了する。その後は、今回提案する助成事業で開発した SOFC スタック技術を活用し、ドローンへの適用へつなげるために、助成期間終了後 5 年間は、市場とユースケースに応じたドローンおよびドローンシステムのリファインを継続することを考えている。ここには、SOFC スタックの改良に伴いドローンの構成変更なども含まれる。

5. 特許・研究発表等

—特許等—

なし

－研究発表・講演、文献等、その他－

なし

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

(1) 「実用化・事業化」の考え方

本事業における「実用化・事業化」の考え方（定義）は、以下のとおり。

『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 いう』

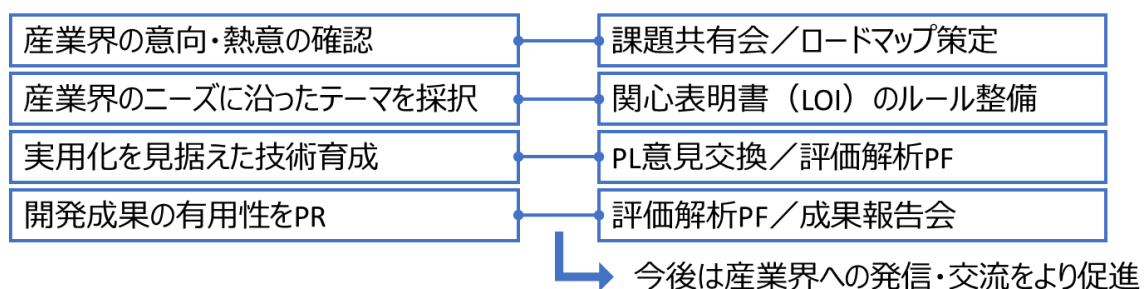
「実用化」が前半の、『当該研究開発に係る試作品、サービス等の社会的利用(顧客への提供等)が開始されること』に該当し、「事業化」は後半の、『当該研究開発に係る商品、製品、サービス等の販売や利用により、企業活動(売り上げ等)に貢献すること』に該当する。

ただし本事業は、燃料電池の2030年以降の社会実装と2030年以降の更なる革新的な要素技術の設計指針の確立および実用化に向けた課題を明らかにすることを最終目標としていることから、2030年以降の最終成果（あるべき姿）としての考え方（定義）である。

(2) 成果の実用化・事業化に向けた取組及び見通しについて

2章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」に示す通り、公募・採択、研究開発の進捗管理、継続可否評価まで一貫して実用化・事業化を意識したマネジメントを推進している。

なお、各テーマにおける成果の実用化・事業化に向けた取組および見通しは3章2. 「研究開発項目毎の成果」で示す。



また、本事業では関心表明書（LOI）を取り入れ、研究開発項目Ⅰは提案まで、研究開発項目Ⅱは継続可否判断までに、各テーマの技術の実用化・事業化に関心を有する企業の提出を義務付けている。単に提案時に関心を示してもらっただけではなく、各テーマの推進に当たっては、開発方針や目標設定、知財戦略などの意見交換や関心表明企業へのサンプル提供・評価フィードバックなどを実施することとしている。NEDOは、関心表明企業から受けた協力事項の報告を求めて状況を把握するとともに、PL意見交換会等で実用化・事業化に沿った取り組みとなっているかフォローしている。

研究開発項目 I は、2030年頃の社会実装を目指していることから、製品化のタイミングから逆算し、材料開発テーマに関しては、本事業中に材料として概ね仕上げ、終了後はユーザーへの供試、材料の生産プロセス検討へ移行する必要があると考えており、そのレベルに達するよう後半年度は進捗管理を行う。また、成果は努めてユーザー企業に発信し、実用化・事業化への課題をすり合わせつつ、研究開発を推進していく。

実用化・事業化に当たっては、海外の燃料電池関連技術との競合優位性や燃料電池以外の技術との競合優位性にも留意することが肝要である。今後もロードマップの改訂作業や産業界との対話を通して、技術動向を調査し、適時柔軟に目標値や実施内容の見直しも見直していく。

また、燃料電池の多用途展開（助成事業）においては、製品開発、システム開発だけではなく、実フィールドでの実証や水素の供給から貯蔵までを含めた利活用モデルの検討などが社会実装のためには必要となる。NEDOは、本事業の他にも複数の水素・燃料電池技術開発プロジェクトを推進しており、地域での水素利活用モデルの検討や技術開発も実施中である。これら事業とも連携し、本事業で得られた成果を着実に社会実装へとつなげていけるよう図っていく。

欧米では、燃料電池の高性能化に向けた研究開発だけではなく、低コスト化に向けた生産技術や燃料電池標準モジュールの検討などにも多様な取り組みを進めている。また燃料電池の逆反応である水電解に関する技術開発が加速化している状況である。NEDOは、2022年度以降も引き続きロードマップ改訂に関する議論を産業界・アカデミアと密に進め、海外の状況も捉えながら柔軟にプロジェクトを運営していく方針である。

プロジェクト用語集

課題番号： PE01「高温低加湿作動を目指した革新的低白金化技術開発」

読み方	用語	解説
ADT	ADT	加速劣化試験:燃料電池実用化推進協議会(FCCJ)で定められた白金系触媒の加速劣化試験法。FCVでの負荷変動試験に対応し、電位変化に伴う白金触媒の比表面積低下を指標として、耐久性を評価する。RDE法とMEA法があるが、RDE法ではGC電極上に塗布した触媒に対し、ポテンシヨスタットを使用して0.6Vと1.0Vの矩形波を各3秒間印可し、ECSAの減少率を測定する。温度は標準では60℃であるが、先進低白金化技術開発プロジェクトではFCVでのスタック作動温度である80℃で試験を行っている。
APD	APD	Arc-Plasma Deposition:アークプラズマ蒸着法 真空中におけるアーク放電を利用しナノ粒子や薄膜を堆積する方法。
ECSA	ECSA	電気化学的比表面積:白金の比表面積を水素の吸着量から求めた値(単位は m^2/g)。粒子径2.8nmの市販Pt/C触媒では約 $75 m^2/g$ である。白金モノレイヤーコアシェル触媒の理論値は $180 m^2/g$ である。ADTにおける劣化度の目安としても使用される。
I/C比	I/C比	触媒層形成時のイオノマー重量/担体カーボン重量比。発電特性に大きく影響を及ぼし、触媒毎に最適化が必要なパラメーター。
MBE	MBE	Molecular Beam Epitaxy:分子線エピタキシー法 超高真空中において金属を蒸発させて単結晶基板上に分子流として照射し、エピタキシャル薄膜を作製する方法
MEA	MEA	膜電極接合体。PEFCに使われるアノード触媒層+電解質膜+カソード触媒層を一体化したもの。PEFCセル評価で作成、使用。
[MTBD][beti]	[MTBD][beti]	プロトン伝導性イオン液体の一種で、プロトン付加した7-メチル-1,5,7-トリアザビシクロ[4.4.0]デカ-5-エンカチオンとビス(ペンタフルオロエタンルホニル)イミドアニオンからなるイオン液体。米国 Snyder らの

		グループで Pt 系触媒の活性向上に効果があることが見いだされた。
RDE	RDE	回転ディスク電極。触媒の活性評価に用いる。
SECM	SECM	走査電気化学顕微鏡。マイクロ電極を試料基板電極表面に対してマイクロオーダーの距離まで近づけ 2 次元掃引して、試料基板電極表面の電気化学的異方性を観察する走査プローブ顕微鏡の一種。マイクロ電極 – 試料基板電極間距離や両電極への印加電位を独立制御して電気化学反応を変化させることにより、HOR 活性および H ₂ O ₂ 生成挙動についても評価可能。
UHV	UHV	Ultra-high Vacuum: 超高真空 一般に 10 ⁻⁷ Pa 以下の真空
THA ⁺	THA ⁺	アルキル鎖の炭素数が 6 の四級アルキルアンモニウムカチオン tetra-n-hexylammonium cation の略称
インプレーンエクスパールディー	インプレーン XRD	X 線を基板(薄膜)に対してすれすれ入射し、同一面内で回折 X 線を測定することにより基板表面法線方向の結晶構造や格子面間隔に関する情報を得る XRD 測定
オクチルメラミン	オクチルメラミン	メラミンの N-オクチル誘導体であり、IUPAC 名は 2,4-Diamino-6-octylamino-1,3,5-triazine。オクチル基の効果によって、メラミンモノマーに比べて水溶性が低下し、有機溶媒への溶解性が高くなっていることが特徴である。
コアシェルショックバイ	コアシェル触媒	白金以外の金属のコア粒子上に白金シェルを形成した触媒。米国ブルックヘブン国立研究所で開発された。白金シェル層がモノレイヤーであれば白金の利用率は 100%となるが、前プロジェクトでは 3 モノレイヤー程度の白金シェルが活性と耐久性の両立に必要なことが示されている。下地粒子金属を適切に選択すれば電子的相互作用によって白金シェル層の ORR 面積比活性が向上することが知られている。前プロジェクトより活性と耐久性の観点から Pd をコア金属に選択して開発を進めている。PtCo などの合金系触媒も使用時には表面の Co が酸化溶出して表面に Pt シェル層が形成し、実質的にはコアシェル触媒の形態になっていることが知られている。

コウエントロピーゴウキン	高エントロピー合金 (High entropy alloy; HEA)	一般に 5 元系以上の等モル組成比を有する固溶体合金を指し、高温における構造安定性や化学的耐性に優れる。とくに Cr-Mn-Fe-Co-Ni(各 20 at.%)5 元系合金は Cantor alloy(カンター合金)とも呼ばれ、面心立方構造をとる代表的な高エントロピー合金である。Pt-HEA は Pt と HEA からなる合金である。
コウカッセイカプロトコル	高活性化プロトコル(HAP)	HAP(高活性化プロトコル)は Pt/Pd/C コアシェル触媒を高活性化する手法として開発された。グラシーカーボン電極上に塗布した極微量の触媒(数十 μg)に対し、ポテンシオスタットを用いて 0.05~0.6 V の低電位と 1.0 V の高電位を各 5 分間印可し、このサイクルを数十サイクル行うものである。これにより ECSA を低減させずに、Pd コアの溶出とそれに伴う Pt シェル原子の再配列を行わせ、高活性化が可能となる。
コウシスウメン	高指数面	原子レベルで平坦なテラスと単原子高さの段差であるステップから構成される単結晶面
コウソウキセイデンキョク	構造規整電極	原子レベルで表面原子配列を規整した単結晶電極と形状を制御したナノ微粒子の両方を指す。
シンドウブンコウホウ	振動分光法	赤外スペクトル, ラマンスペクトル, 和周波分光スペクトルなどの分子の振動を検出して, 分子情報を得る分光法。
ステップ	ステップ	原子レベルで平滑なテラスの上に周期的に現れる単原子の段差
チョクセツチカンホウ	直接置換法 (Direct Displacement Reaction, DDR)	Pd/C コアと Pt シェル前駆体である K_2PtCl_4 を不活性雰囲気下、酸性溶液中で直接置換反応させることにより Pt/Pd/C コアシェル触媒を合成する方法。従来の改良型 Cu-UPD/Pt 置換法に比べて簡便で高い Pt シェル被覆性が得られる特徴がある。
ポリメラミンスルホンサン	ポリメラミンスルホン酸	メラミンポリマーの一種。モノマーユニットにスルホ基を持つ。コンクリートの減水剤として大量に使用されるので、安価に調達が可能
メソポーラスカーボン	メソポーラスカーボン (Mesoporous carbon: MPC)	多孔質炭素担体の一種で、孔径 2~50 nm のメソ孔を有する多孔性炭素担体。
レンゾクソウガタハンノウキ	連続槽型反応器(CSTR)	Continuous Stirred Tank Reactor:層型反応器を直列でつなぐことで滞留時間(反応時間)を制

		御することができ、原料を供給し続けることで目的生成物を連続的に取り出すことができる。
--	--	--

課題番号： PE02 「未踏合金カソード触媒の創製」

読み方	用語	解説
MEA	MEA	Membrane Electrode Assembly：膜電極接合体の略。電解質膜に 2 つの電極（触媒層とガス拡散層）を接合した固体高分子形燃料電池の膜電極接合体。
PDF 解析	PDF 解析	二体相関関数解析の略。短距離から長距離までの物質の秩序構造を解析することができる。
アイオノマー被毒	アイオノマー被毒	アイオノマーのスルホ基が Pt 表面に特異吸着して、反応を阻害すること
コアシェルコウゾウ	コアシェル構造	二種類の化学種の一方が核（コア）を、もう一方がその周囲を取り囲む殻（シェル）を形成する構造。コアシェル構造形成の目的は、シェル形成によるコア構造の安定化、コアによるシェル部分の高機能化、コアおよびシェル部分のそれぞれの性質の同時利用などが挙げられる。
ヒヘイコウソウ	非平衡相	熱的、力学的、化学的平衡のいずれかが満たされていない不安定な相。

課題番号： PE03 「高効率・高出力・高耐久 PEFC を実現する革新的材料の研究開発事業」

読み方	用語	解説
CeO _x ケイタンタイショクバイ	CeO _x 系担体触媒	Pt ナノ粒子を担持した酸化セリウム系ナノ粒子触媒のことである。
ePTFE	ePTFE	延伸ポリテトラフルオロエチレンの略。電解質の補強材として用いられる。
ES ホウ	ES 法	電極触媒インクに高電圧を付与し帯電させた触媒インク液滴をスプレーする塗工方法
IEC	IEC	Ion exchange capacity：イオン交換容量のこと。プロトン伝導性を担うスルホン酸基の密度として定義され、 $IEC (meq/g) = 1000 / EW$ で算出される。なお「EW (equivalent weight, 等価質量)」は乾燥したナフィオン（プロトン型）1 グラム当たりのスルホン酸基のモル数である。

MEA	MEA	Membrane Electrode Assembly:膜電極接合体のこと。燃料極(負極)、固体高分子膜(電解質)、空気極(正極)を貼り合わせて一体化した燃料電池システムの最少構成単位である。
Pt(111)メン	Pt(111)面	Pt の結晶面の一つであり、六方細密充填した原子配列をした面である。
Pt/Nb-SnO ₂ ショクバイ	Pt/Nb-SnO ₂ 触媒	Nb をドーブした酸化スズに Pt ナノ粒子を担持した触媒のことである。
Pt センタクタンジホウ	Pt 選択担持法	担体のナノ孔 (2nm~10nm 前後の担体一次粒子に形成された細孔) 内部に選択的に Pt 粒子を担持する手法である。
Pt ナノロッド	Pt ナノロッド	アスペクト比のある微細構造を有する Pt ナノ粒子のことである。一般に数個の Pt ナノ粒子が連結することで形成される。
QP	QP	キンケフェニレンの略称
RDE	RDE	触媒活性を評価するための装置及び方法の事であり回転ディスク電極 (rotating disk electrode) の略である。
SPP	SPP	スルホン酸化ポリフェニレンの略称
SPP-QP	SPP-QP	スルホン酸化ポリフェニレン-キンケフェニレンの略称
アイオノマー/イオノマー	アイオノマー/イオノマー	高分子において、その疎水性の主鎖の一部に少量の親水性のイオン基 (カルボン酸、スルホン酸などの塩) が置換されたもの。
アクセシブルカーボンタンタイショクバイ	アクセシブルカーボン担体触媒	触媒担体ナノ孔中の活性金属粒子への物質移動を妨げずにイオノマー特異吸着による活性阻害を抑制する細孔 (アクセシブルポア) を有するカーボン担持触媒のことである。
アクセシブルポアショクバイ	アクセシブルポア触媒	触媒担体ナノ孔中の活性金属粒子への物質移動を妨げずにイオノマー特異吸着による活性阻害を抑制する細孔構造を有する触媒のことである。
イガタホウ	鋳型法	界面活性剤分子の自己集合組織等を鋳型としてナノ孔構造等を形成する担体の合成手法である。
オペランドカイセキ	オペランド解析	材料を合成する環境や機能が発現する環境と同等の状況にて、材料等を解析することである。
カーボンタンタイ	カーボン担体	カーボンで形成され、Pt 粒子等を担持するため大きな比表面積を有するナノ粒子である。
カーボンたんたいしょくばい	カーボン担体触媒 (Pt/OMC)	規則的に配列したナノ細孔を有するカーボン担体 (ordered mesoporous carbon: OMC) に

(Pt/OMC)		Pt 粒子を担持した触媒である。
カーボンレック ／カーボンフシク	カーボン劣化／カーボン腐食	触媒のカーボン担体の酸化による消失
ガストウカリツ	ガス透過率	単位体積・時間あたりに膜中を透過するガス(酸素や水素)の体積量。電解質膜においては、ガス透過(クロスリーク)に伴う副反応により触媒劣化が予想されるため、より低いガス透過率が望まれる。
カデンアツカイゼンチ	過電圧改善値	燃料電池セル出力電圧の理論的電圧からの損失として、活性化過電圧、濃度過電圧、抵抗過電圧があるが、材料や構造の改善によって得られる過電圧の減少度合いを、ある電流密度でセル電圧に換算した値のこと。それぞれの材料や構造のセル性能改善効果を表す指標として、目標値や到達レベル評価として活用される。
キソクテキメソポーラス カーボン タンタイ (OMC)	規則的メソポーラスカーボン担体 (OMC)	規則的に配列したナノ細孔を有するカーボン (ordered mesoporous carbon: OMC) 担体のことである。
コウサンソトウカイオノマ ー	高酸素透過イオノマー	高分子骨格の一部に酸素透過能や拡散能を向上させた部位を付与し、触媒層中に添加した場合に触媒への酸素供給能を向上させた高分子電解質
コウヒヒョウメンセキカー ボンタンタイショクバイ	高比表面積カーボン担体触媒	賦活処理等により表面積を増大させたカーボン担体に触媒を担持したもの
サンソカンゲンカッセイ	酸素還元活性	燃料電池の空気極側における化学反応の活性であり、一般に 0.85V から 0.90V での反応電流を触媒 1g 当たりに換算した値で表記される。
シツリョウカッセイ	質量活性	触媒 Pt 1g あたりの電流値。本件では、可逆水素電極基準で 0.85 V における白金 1g あたりの電流量とした。
スカベンジャー	スカベンジャー	一般に腐食・分解等の化学反応を停止させる化学物質の事であり、固体高分子形燃料電池では電解質膜を劣化させる OH ラジカルの分解もしくは発生を抑制する材料を意味する。
セツショクテイコウ	接触抵抗	粒子同士を接触させた際、固体同士の接触界面が形成される。その接触界面にて電流が流れる際の抵抗の事である。
セラミックタンタイ	セラミック担体	酸化物や炭化物などのセラミックで形成され、Pt 粒子等を担持するため大きな比表面積を有するナノ粒子である。

ダイコータ	ダイコータ	塗工液を加圧して注ぎ口（スロットオリフィスダイ）から押し出し、支持体を直接コーティングする塗工機のことである。触媒層や電解質膜の作製に用いる。
タンカスイソケイデンカイシツマク	炭化水素系電解質膜	デュポン社の Nafion に代表される含フッ素系電解質と対照的に、フッ素をほとんど（または全く）含まず、炭素、水素、酸素、窒素、硫黄などを主な構成元素とする電解質膜。一般的には優れた耐熱性および機械特性を有する芳香族炭化水素高分子、例えばポリイミド、ポリエーテル、ポリフェニレンなどが用いられる。
テイクウカデンアツ	抵抗過電圧	開回路電圧からの電圧の低下において、抵抗に起因する電圧の事である。
デンキデンドウド	電気伝導度	材料に 1V の電圧を印加した際、単位体積・時間あたりに流れる電流の事である。
ドーパント	ドーパント	酸化物を構成する陽イオンもしくは陰イオンサイトに導入された（構成成分とは異なる）元素のことである。
ヒステリシス容積	ヒステリシス容積	窒素吸着法による細孔径分布測定における窒素圧力上昇と降下での吸着量の差より細孔容積を算出したもの
プロトンデンドウセイ	プロトン伝導性	プロトン（H ⁺ ）の伝導しやすさ。プロトンの比抵抗率の逆数で表す。
ブンサンザイ	分散剤	Pt 等の活性金属粒子のサイズやその分布を制御するために添加する界面活性剤や親水性高分子のことである。
ホキョウマク	補強膜	物理的・化学的に強靱な多孔材で補強した電解質膜
メソコウ	メソ孔	IUPAC の分類で、2nm～50nm の範囲にある細孔のことである。
モルフォロジー	モルフォロジー	形態のこと。高分子膜においては、その親水部・疎水部等によりミクロな相分離構造が形成され、その形態のことを指す。
ユウチャクレンジュコウノウ	融着連珠構造	最近接するナノ粒子同士が接触界面にて融着して形成した房状の（カーボンと類似した）微細構造のことである。

課題番号： PE04「大型モビリティに適応する多用途型燃料電池モジュールの研究開発」

なし

課題番号： PE05 「ラジカル低減機能と燃料欠乏耐性を有するアノード触媒の研究開発」

読み方	用語	解説
CFDE ホウ	CFDE 法	Chanel Flow Double Electrode : チャンネルフロー二重電極の略。薄い流路（チャンネル）に電解液を層流で流して、反応種（HOR では溶存水素）の供給速度を制御し、底面に埋め込まれた作用極（アノード触媒）で電極反応を起こさせる。その下流に検出極を設置して生成物（本研究では過酸化水素）の発生速度を電流で検出する。回転電極法と同様に、対流ボルタモグラムが測定できるが、密閉系のため高温まで測定できる。
CFDE ホウキョウツウシケン	CFDE 法共通試験	一度に 4 種類の触媒を全く同じ実験条件で測定可能なマルチ CFDE を使い、プロジェクト内開発触媒を同じ測定プロトコルで試験すること。
GAB	GAB	Graphitized Acetylene Black の略で、高温熱処理によりアセチレンブラック（中実構造が多い）表面を黒鉛化した炭素担体。
GCB	GCB	Graphitized Carbon Black の略で、高温熱処理によりカーボンブラック（中空構造が多い）表面を黒鉛化した炭素担体。
HOR	HOR	Hydrogen Oxidation Reaction : 水素酸化反応の略。固体高分子形燃料電池では、Pt あるいは Pt 合金ナノ粒子を炭素担体に高分散したアノード触媒上で進行する。水素分子が水素原子に解離吸着し、プロトンに酸化されて電子が放出される。
in situ XAFS	in situ XAFS	in situ はその場測定（本研究では電解液中、電位制御下）のこと。XAFS は X-ray Absorption Fine Structure の略で、ビームラインで照射した強力な X 線の吸光度の微細構造（X 線エネルギーに対する吸光度のスペクトル）。
MEA	MEA	Membrane Electrode Asseby : 膜電極接合体の略。電解質膜に 2 つの電極を接合した固体高分子形燃料電池の心臓部。
on-top キウチャク	on-top 吸着	1 つの触媒原子（この場合は Pt）の最上部に吸着すること。atop とも呼ばれる。Pt への水素吸着の場合は、低電位側で on-top 吸着が増加し、これが酸素と反応して H ₂ O ₂ 発生すると考えられている。

OPD スイツ	OPD 水素	一般に、可逆水素電位より負側電位で on-top 吸着した (Overpotentially Deposited) 水素原子のこと。Pt 触媒では水素原子との相互作用により、0.04 V (対 可逆水素電極) 付近から観測されている。
UPD スイツ	UPD 水素	可逆水素電位よりも正電位で吸着した (Underpotentially Deposited) 水素原子のこと。Pt触媒では水素原子との相互作用により、0.4 V (対 可逆水素電極) 付近から観測されている。
PEM	PEM	燃料電池の高分子電解質膜 (Polymer Electrolyte Membrane) またはプロトン交換膜 (Proton Exchange Membrane) の略称。
Pt/GCB _{HT} ショクバイ	Pt/GCB _{HT} 触媒	GCB 担体に白金を高分散した触媒をさらに熱処理 (Heat Treatment) して、安定化した市販の触媒。
カアツ OCV シケン	加圧 OCV 試験	高分子電解質膜の化学劣化を加速する試験法。電解質膜に電極を取り付けた MEA を単セルに組み込み、水素と空気を加圧して一定流速で流しつつ開回路状態に保って、開回路電圧 (OCV : Open Circuit Voltage) の経時変化や排水中に含まれる電解質膜分解生成物のフッ素発生速度を調べる。定期的に、空気極側に窒素ガスを流して水素ガスのリーク速度も測定される。
スピルオーバーコウカ	スピルオーバー効果	固体表面科学の分野では、一般に、固体触媒において 2 種以上の成分の間で、反応性の化学種が表面拡散により移動すること。本研究では、Pt の近傍に WO ₃ などのブロンズ形成酸化物が接していると、Pt に吸着した原子状水素が酸化物へ移動し、H _x WO ₃ (ブロンズ) が形成される現象。Pt が不在状態と比較し、Pt から WO ₃ に水素が溢れ出て、ブロンズ形成が促進されることからスピルオーバー効果と称される。
ダイイチゲンリケイサン	第一原理計算	シュレディンガー方程式に基づき、経験的なパラメータを使用せずに原子・分子の電子状態を計算する手法。
タイサンカセイ	耐酸化性	燃料電池を長時間停止すると、カソード側の酸素が高分子電解質膜を透過して、最終的にはアノード側が空気で満たされたような状態となる。それゆ

		え、アノード触媒には空気電位（約 1 V）に対する耐性が必要である。
ネンリョウケツボウタイセイ	燃料欠乏耐性	転極耐性とも呼ばれる。燃料電池スタックの一部のセルで燃料欠乏が起こると、アノードでは本来のHOR が進行する代わりに炭素担体の酸化が起こる（転極）。ごく短時間の燃料欠乏でも従来のPt/C アノード触媒は致命的なダメージを受ける。そのため、過剰に燃料を供給して燃料欠乏を回避するほかに、個々のセルやブロック毎の電圧モニター等の劣化抑制機器を必要としている。燃料欠乏耐性アノード触媒により、効率の向上とシステムの簡略化による低コスト化が可能になる。
ラジカルテイゲンキノウ	ラジカル低減機能	燃料電池のカソード側に供給される酸素の一部が高分子電解質膜を透過してアノード触媒に達すると、Pt 系触媒表面に吸着した水素原子と反応して、過酸化水素が発生する。過酸化水素が鉄イオンなどの不純物と反応すると、OH ラジカルが生成して、高分子電解質膜や触媒層アイオノマーを化学分解する。これを抑制するための機能が、ラジカル低減機能であり、過酸化水素発生速度自体の低減、あるいはラジカルを捕捉する機能が研究開発されている。

課題番号： PE06 「高耐久性を目指したラジカルクエンチャーの研究開発」

読み方	用語	解説
OCV タイキウセイシケン	OCV 耐久性試験	NEDO プロトコルの高電位(OCV)保持試験方法に準拠(ガス流量は 200 mA/cm ² での利用率 5%相当の流量)して、90℃、30%RH で行った。
OH ラジカル	OH ラジカル	OH ラジカルとは、OH に不対電子を有する活性酸素の一種。酸化力が強く、電解質膜を分解する。
アンテイラジカル	安定ラジカル	不対電子を持つ活性種はラジカルと呼ばれ、通常、化学的に活性が高く、分解反応を含む様々な化学反応を引き起こす。安定ラジカルとは、単離できるほど安定なラジカルのこと、酸化反応の触媒やラジカル捕捉剤などとして化学の分野で幅広く用いられている。化合物としては、N-オキシルラジカル類、フェノール類がある。

エネルギーブンスンガタ X センブコウ	エネルギー分散型 X 線分光	電子線を照射して、発生する蛍光 X 線を直接、半導体検出器で測定する。そのため、蛍光 X 線より重元素の検出に欠点があり、測定深度も低い。
ケイコウ X セン	蛍光 X 線	照射した X 線が物質の原子の内殻電子を外殻にはじき、空孔となったところに外殻電子が移動する際に蛍光 X 線を発生する。この蛍光 X 線は、元素固有のエネルギーを持っているので、そのエネルギーから定性を、強度から定量分析ができる。
フェントンシケン	フェントン試験	過酸化水素と鉄触媒の混合溶液からなるフェントン試薬を用いて OH ラジカルを発生させ、それに試料を浸漬することで試料のラジカル安定性を検証する試験方法。
フラレノール	フラレノール	フラレンは、炭素のみがサッカーボール状に構成された分子であり、フラレノールは、フラレンに複数の OH 基を付加した化合物。当研究では、C60 を用いている。
ホスホニウムキ	ホスホニウム基	四級化したリンのすべての置換基が炭化水素からなるカチオン性置換基。化学構造は、 $-P^+R_3$ で表される。
ラジカルクエンチャー	ラジカルクエンチャー	発電中に発生する OH ラジカル等の活性ラジカルを分解または消去するために用いる物質群。

課題番号： PE07 「配位高分子を用いた中温作動燃料電池の研究開発」

読み方	用語	解説
AFM	AFM	原子間力顕微鏡。微細な探針で試料表面を走査し、ナノスケールの凹凸形状を三次元的に計測する装置
アイオノマ	アイオノマ	高分子膜の主鎖およびイオン交換基をイソプロピルアルコールなどの溶媒に溶解させた溶液。乾燥させると高分子膜と近い性状を持つことになる。 電極を作成する際、触媒粒子の結着剤(バインダ)として用いられることが多い。
CO チカンホウ	CO 置換法	CO (一酸化炭素) が電極触媒 (Pt) 上に吸着したアイオノマーと置換する際の電流を観測することで、Pt へのアイオノマーの吸着性 (被毒性) を評価する手法
CO ストリッピングホウ	CO ストリッピング法	CO ストリッピング法は CO 置換法と対を成す方法で、電極触媒 (Pt) に吸着した CO (一酸化炭素) を電気化学的に酸化除去する際の電流値を

		観測することで Pt の電気化学活性（三相界面長）を評価する手法
PDF カイセキ	PDF 解析	PDF 解析：Reduced Pair Distribution Function、簡約二体相関分布関数) X 線散乱データをフーリエ変換すること、原子ペアの距離と密度の情報を見出す手法
パルスジバコウバイ NMR	パルス磁場勾配 NMR	パルス磁場中で核スピンの共鳴現象を観測し核スピンの位置情報を得ることで、試料の分子構造や運動状態を計測する手法

課題番号： PE08「硫黄化合物等の吸着脱離メカニズム解明と被毒予防・回復技術開発」

なし

課題番号： PE09「二次元反応場制御によるナノシート触媒/触媒層の高耐久化技術開発」

読み方	用語	解説
ECSA	ECSA	Electrochemically Active Surface Area の略であり、電気化学活性表面積のこと。一般に、Pt 上に原子状に吸着した水素の量から求める。
IV セイノウ	IV 性能	電流-電位性能のこと。
MEA	MEA	Membrane Electrode Assembly の略であり、膜電極接合体のこと。
RDE	RDE	Rotating Disk Electrode の略であり、回転ディスク電極のこと。三電極測定系において用いられる、対流ボルタンメトリーに用いる作用電極。測定中に電極を回転させることにより、電極へ向かう分析種の流束を作り出す。
STEM	STEM	Scanning Transmission Electron Microscope の略であり、走査透過電子顕微鏡。電子顕微鏡の一種。集束レンズによって細く絞った電子線プローブを試料上で走査し、各々の点での透過電子を検出することで像を得る。
TEM	TEM	Transmission Electron Microscope の略であり、透過型電子顕微鏡のこと。電子顕微鏡の一種。被検体に電子線を照射し、透過した電子線の強さより、被検体の形状を観察する。

オストワルトセイチョウ	オストワルト成長	粒成長の一種である。分散粒子が時間とともに成長する現象のこと。
キンゾクナノシート	金属ナノシート	Pt に代表される金属原子のみから構成されるナノシート。球状ナノ粒子と異なり、配位不飽和原子が少ないため、ナノシートは熱力学的に安定である。また、露出した結晶面に応じた優れた触媒作用を示す。
グラフェン	グラフェン	炭素原子から構成されるナノシートで、層状のグラファイトの剥離で生成する。
コアシェルナノシート	コアシェルナノシート	金属ナノシートをコアとし、その周りに Pt を 2 次元的に成長させたコアシェル構造のナノシート
サンカグラフェン	酸化グラフェン	エポキシド基や水酸基などの官能基を有するグラフェン。グラフェンを酸化することで生成する。
ナノシートコク	ナノシート黒	ナノシート触媒のうち、担体を用いないナノシート触媒のみからなる触媒のこと。白金黒の類語として用いている。
ノドカデンアツ	濃度過電圧	電気化学反応の過電圧のうち、反応物質の濃度が電極付近で低くなることで生じる過電圧。燃料電池カソードの場合、反応物は酸素ガスであり、酸素ガスの供給が不十分なときに生じる。

課題番号： PE10 「アナターゼ型 TiO₂ 薄膜を活用した低接触抵抗・高耐久性セパレータ表面処理技術の開発」

読み方	用語	解説
TNO	TNO	アナターゼ型 Nb ドープ TiO ₂ 。電気抵抗は室温で 10 ⁻⁴ Ω cm 台を示し、その温度依存性は金属的である。さらに、非常に高い化学的安定性を示し、燃料電池用としての耐腐食性試験では十分な性能を有することを確認している。
ガスカクサンソウ	ガス拡散層	反応ガスをセパレータから電極へ均一に供給するための多孔質体。基本的機能は、上記の電極への均一なガス供給、電子伝導性、表面平滑性、対腐食性、電気化学的安定性、物理的強度が求められる。
スパッタホウ	スパッタ法	物理気相成長法の一つで、真空中でプラズマを用いる成膜プロセス。ターゲットに高エネルギーのアルゴンイオンをぶつけることで、叩かれて飛び出してく

		る原子を付着させて成膜する。
セパレータ	セパレータ	それぞれのセルを分割し、燃料ガスと酸素を分離する役割を果たす。材料には、導電性、耐食性、ガス不透過性などが求められる。
ミスト CVD	ミスト CVD	化学気相成長法の一つで、霧状にした前駆体溶液の基板上での化学反応によって目的物を堆積する大気圧下での成膜プロセス。

課題番号： PE11 「高効率・高出力・高耐久 P E F C を実現する G D L 一体型フラットセパレータの研究開発」

読み方	用語	解説
CCM	CCM	Catalyst Coated Membrane の略。電解質膜と触媒層で構成されている。
Cl ⁻	Cl ⁻	塩化物イオン。耐食試験において塩害を想定して硫酸に添加される場合がある。
F ⁻	F ⁻	フッ化物イオン。フッ素は最大の電気陰性度を持つ元素であり、耐食試験の加速のため添加される場合がある。
GDL	GDL	Gas Diffusion Layer の略。燃料電池に供給される酸素ガスや水素ガスを触媒へ拡散させる役割を持つ。
GDL イッタイガタフラットセパレータ	GDL 一体型フラットセパレータ	本研究開発テーマにおける開発品名。流路を付与させた GDL とフラットなセパレータを一体化させ、客先でのアセンブリ工程の簡素化を目指した部品。
MEA	MEA	Membrane Electrode Assembly の略。電解質膜と触媒層とガス拡散層で構成されている。
MPL	MPL	Micro Porous Layer の略。GDL の片面に付与され、水の滞留を防ぎ、ガスの拡散を助長させる役割を持つ。
SGL 24BC	SGL 24BC	SGL とはドイツのカーボンペーパーメーカーであり、24BC とはカーボンペーパーの型番である。市販されている汎用 GDL。

ガスリュウロ	ガス流路	水素や酸素を触媒へ供給するための溝。一般的にはセパレータに金属プレス加工や切削加工により形状を付与させ、その上に配置された GDL との隙間の事をいう。
カデンアツ	過電圧	それぞれのエネルギー損失要因により過分に必要となるエネルギーを電圧としてあらわしたもの。燃料電池においては、活性化過電圧、拡散過電圧、抵抗過電圧に分極される。
キエキニソウリュウドウノジクウカンヘンドウカイセキ	気液二相流動の時空間変動解析	気体と液体の二相の流動性について、時間による変動を解析すること。
キョウセイフクリュウガス	強制伏流ガス	ガス流路形状により、強制的に多孔体内部を流れるガス。
クシガタリュウロ	楕型流路	ガス流路形状の一つ。ガス入り口側から楕状に形成されたガス流路と、ガス出口側から楕状に形成されたガス流路が互いに入り込んだガス流路形状。
サーペンタインリュウロ	サーペンタイン流路	ガス流路形状の一つ。ガス入り口側とガス出口側を1本で繋いだ溝が形成されたガス流路形状。
サンソブンアツ	酸素分圧	全気体のうち酸素が占める圧力。
ショウセイコウテイ	焼成工程	原料を高熱で焼いて性質に変化を生じさせること。カーボンペーパーの場合、一般的に千数百℃で加熱して製造される。
ショクバイリヨウリツ	触媒利用率	使用された触媒量に対する発電量の比率。触媒は非常に高価なため、出来るだけ触媒量を少なくすることで利用率を上げることが望ましい。
ストイキ	ストイキ	利用されるガスに対し、供給されるガスの比率。ストイキ 2.0 の場合は、供給されるガスの半分が発電に使用され、残りの半分は排出される。
セパレータ	セパレータ	燃料電池の各セル間のアノードガスとカソードガスを遮断する役割を果たす板状の部品。一般的には凹凸のガス流路が形成され、燃料ガスや空気を燃料電池内に送り込む機能を担う。
チュウセイシイメージン グ	中性子線イメージング	中性子を用いて燃料電池の内部構造を観察する方法。中性子は水への感度が高いため、燃料電池内部の滞留水の分布の観察に適している。

ナンエックスセンイメージング	軟 X 線イメージング	軟 X 線を用いて数秒オーダーの高時間分解能、数 μm の高精度な反応メカニズムを解析する方法。
ミズマネジメント	水マネジメント	PFEC の発電により、カソード側で生成された水の挙動メカニズムを解明し管理すること。

課題番号： PE12 「高耐食性・低接触抵抗性を発現する P E F C ステンレスセパレータコーティング技術の研究開発」

読み方	用語	解説
インヒター	インヒター	その少量を環境物質中に加えることによって金属の腐食速度を効果的に減少させられるような化学物質。
カイザイツ	介在物	ステンレス鋼の精錬の過程で必ず導入される不純物元素の微粒子。特定成分とサイズの条件を満たす介在物は、健全な不働態皮膜の形成を阻害し、局所的な皮膜の破壊と腐食を誘発する。
ジョウチャクマク	蒸着膜	スパッタ法や抵抗加熱、電子ビーム蒸着などで形成される任意の組成の材料の薄膜。組成や膜厚などの自由度が高い。
ソクシンシケン	促進試験	塩水噴霧条件やこれに湿潤条件、乾燥条件を組み合わせたことで、腐食反応の進行を大幅に促進する加速試験。実環境で数年を要する腐食を数日～数週間で模擬することができる。
デンキカガククリーニング	電気化学クリーニング	ステンレス鋼表面に露出した腐食誘発性の介在物のみを選択的に除去可能な、本テーマで開発する表面処理。腐食誘発性介在物のないステンレス鋼表面は、本来の耐食性を発揮する。
ヒョウメンショリ	表面処理	主として普通鋼の表面に防食の目的で施される化成処理・めっき・塗装などの処理。
フドウタイヒマク	不働態皮膜	ステンレス鋼の表面に自然形成する数ナノメートル程度の保護性の酸化皮膜。この皮膜が形成する合金は優れた耐食性を発揮するが、特定の環境因子により皮膜の一部が破壊され、局所的に集中的な腐食が生じる場合もある。

課題番号：PE13「導電性ナノファイバーネットワークによる自立 MPL の研究開発」

読み方	用語	解説
GDL	GDL	ガス拡散層。通常炭素繊維からなるカーボンペーパーを基材として表面に MPL 層がコーティングされている
MPL	MPL	触媒層に接する炭素材料等から構成される材料を、コーティングによって形成された、電子電導性かつガス拡散性を有する薄層。酸素あるいは水素ガスを触媒層に輸送しかつ電子電導性を有する。通常はカーボンペーパー表面に塗工される
ジリツ MPL	自立 MPL	電子電導性の繊維からなる厚さ数 10 μ m の単独で取り扱い可能な MPL
セイデンボウシ	静電紡糸	繊維となる高分子を水や有機溶剤に溶解し、細いノズル先端から押し出しながら溶液に数キロボルトから数十キロボルトの高電圧を印加することで、静電気力により細く引き伸ばし繊維を作成する方法
レーザーケンビキョウ	レーザー顕微鏡	レーザー光を試料の特定の範囲に焦点を合わせ、像を検出するもので、微細形状、凹凸形状を高精度にスキャンできる。

課題番号：PE14「燃料電池スタックシール用高速架橋エラストマー材料の研究開発」

読み方	用語	解説
1,4-ぶたんじおーる	1,4-ブタンジオール	化学式 C ₄ H ₁₀ O ₂ 、分子量 90、ヒドロキシ基（-OH）を両末端に持つグリコールであり、本研究ではヒドロキシ基にグリシジル基を導入し、脂肪族エポキシの原料として使用。
1-えちりでんしくろへきさん	1-エチリデンシクロヘキサン	化学式 C ₈ H ₁₄ 、分子量 110 の環状炭化水素化合物。本研究では一般的に EPDM のジエンとして用いられているエチリデンノルボルネンのエチリデン基のモデルとして使用。
k ぶんかつこうさけんしよ うほう	k 分割交差検証法	AI モデル作成手法の一つ。データを k 個に分割し、k-1 個のデータを学習用、1 個を評価用として訓練したモデルを k 個作成し、最終的な予測値は k 個のモデルの平均値とする。主に訓練データが少ない場合に用いられる。
TR10	TR10	エラストマー材料の低温弾性回復試験における 10%回復温度を示す。低温弾性回復試験は、

		試験片を伸長させた状態で低温におき凍結させ、温度上昇に伴う伸長前の初期試験片長さへの回復挙動を測定する手法である。TR10 はエラストマー材料の低温における使用可否の指標となる。測定法の詳細は JIS K 6261 に記述されている。
あっしゅくえいきゅうひずみ	圧縮永久ひずみ	エラストマー材料のへたりの指標となる試験法であり、所定のエラストマー材料の試験片を圧縮変形した状態で所定の温度・環境条件で保持したのちに残留する永久ひずみを示す。測定法の詳細は JIS K 6262 に記述されている。
あにおんじゅうごう／かちおんじゅうごう	アニオン重合／カチオン重合	重合は多数のモノマーを結合させ長鎖状分子を合成する反応を示し、その反応を開始させる起点となる化学種が陰イオン（アニオン）であるものをアニオン重合、陽イオン（カチオン）であるものをカチオン重合と呼ぶ。
あみんこうか	アミン硬化	エポキシ樹脂中のエポキシ基と多官能アミン中のアミノ基との付加反応により架橋構造を形成させ、樹脂硬化物を得る硬化方法。
えちれんぷろピレンごむ	エチレンプロピレンゴム	エチレンとプロピレンの共重合体の合成ゴムである。加硫反応のための少量のジエンモノマーを含む三元共重合体を使用される。略号として EPDM（または EPT）が使用される。
えぼキシじゅし	エポキシ樹脂	分子中のエポキシ基の反応により架橋構造を形成する熱硬化性樹脂の総称である。
えらすとまー	エラストマー	「ゴム弾性」を示す高分子材料の総称。弾性：Elasticity と高分子：Polymer を組み合わせた造語である。
おきせたん	オキセタン	酸素ひとつ含む四員環の環状エーテル化合物を示す。
かーぼんぶらっく	カーボンブラック	工業的に生産された数 nm から数百 nm 程度の大きさの炭素の微粒子を示す。粒径や凝集状態、表面構造などによりさまざまなグレードがある。
かいかんじゅうごう	開環重合	環式化合物を開環して付加重合体を得る方法。通常は、炭素以外のヘテロ原子 O, N, S などを含む複素環式化合物をイオン重合することが多

		い。本研究では O を一つ含む三員環および四員環の開環重合を主に使用。
かきょう	架橋	直鎖状の高分子鎖間に形成された化学結合。
がらすてんいおんど	ガラス転移温度	長鎖状高分子材料を構成する単位構造（セグメント）が熱運動（ミクロブラウン運動）しゴム様の特性を示す状態であるゴム状態から熱運動が停止している固化したガラス状態への遷移温度を示す。
かりゅう／いおうかりゅう ／かさなかぶつかりゅう	加硫／硫黄加硫／過酸化 物加硫	直鎖状高分子である生ゴムに硫黄を用いて分子鎖間に化学結合を導入する化学反応。現在では加硫反応に硫黄による架橋反応のほか過酸化物による架橋反応も用いられる。この場合、架橋に用いる化学反応を明確化するため、硫黄加硫、過酸化物加硫という用語を用いる場合もある。
きょうしでーた	教師データ	AI の教師あり学習の最適化プロセスに用いられるデータ。
くりっくはんのう	クリック反応	簡単かつ高効率で、2 分子間に目的の化学結合を構成する反応の総称である。2001 年に Sharpless らにより提唱された概念。
こんびなとりあるほう	コンビナトリアル法	多数の実験パラメーターを変数とした実験を多数同時に行うことで、データを効率的に取得する手法。本研究では、エポキシエラストマーの Tg 予測 AI 用学習データの取得を目的として実施する。
じえん	ジエン	1 分子中に炭素-炭素二重結合を 2 個持つ炭化水素系化合物の総称である。
しばうぞく	脂肪族	ベンゼン環を含む炭素化合物の総称である「芳香族」に対し、ベンゼン環を含まない非芳香族炭素化合物の総称である。
じゅうてん／みじゅうてん	充てん／未充てん	ゴム、樹脂材料などにフィラーを配合した組成を「充てん」、フィラーを配合していないものを「未充てん」と呼ぶ。
すたっくしーるぶざい	スタックシール部材	燃料電池スタックを構成する際にセル間に構成される積層構造体の端部を封止するための部材。
そはんのう	素反応	目的の物質を合成する際の化学反応を構成する要素となる反応過程を示す。

だいたいとくせい	代替特性	目的とする特性の評価が困難である際に、目的とする特性と相関がある他の容易に評価が可能な特性を示す。主に材料のスクリーニングなどに用いられる。
だんせいりつ	弾性率	弾性変形における応力とひずみの比例係数を示す。
にとりる N-おきしど	ニトリル N-オキシド	炭素-窒素-酸素から構成されるアレン型 1,3-双極子であり、無触媒でアルケン、アルキン、シアノ基などの不飽和結合と環化付加反応が起こる官能基である。本研究では EPDM のジエンとの反応により EPDM 分子鎖間の架橋構造を形成する官能基として使用。
ねおぺんちるぐりこーる	ネオペンチルグリコール	化学式 C ₅ H ₁₂ O ₂ 、分子量 104、ヒドロキシ基 (-OH) を 2ヶ所のメチル基に持つグリコールであり、本研究ではヒドロキシ基にグリシジル基を導入し、脂肪族エポキシの原料として使用。
ねんりょうでんちすたっく	燃料電池スタック	燃料電池の最小の発電単位であるセルを積層させた構造体。積層によりセルを直列に接続され、高電圧を得ることができる。セル間にセパレータを介して積層された構造体には水素ガス、酸素ガス、冷却水の流路が設けられる。
はいごうせつけい	配合設計	ゴムや樹脂材料が実用的な特性を満たすために数種類の材料や添加剤、フィラーを添加して組成物を作ること、その組成物の内容の設定を言う。
はだんきょうど	破断強度	試験片を破断させるために必要な引張応力を示す。
はだんしんど	破断伸度	引張試験において、破断時の試験片の伸び量を試験前の標線間距離で除した数値を百分率で表す。
びにるしくろへきさん	ビニルシクロヘキサン	化学式 C ₈ H ₁₄ 、分子量 110 の環状炭化水素化合物。本研究ではビニルノルボルネンをジエンとして用いた EPDM のビニル基のモデルとして使用。
びにるのるぼるねん	ビニルノルボルネン	化学式 C ₉ H ₁₂ 、分子量 120 の二環式炭化水素化合物。複数の原子を共有する二つの環状構造を持つ炭化水素であるノルボルネンにビニル基を

		導入した化合物。EPDM のジエン成分として使用。
ふいらー	ファイラー	ここではゴムや樹脂材料などの高分子材料に添加する粉体状の無機化合物や炭素化合物を示す。
ぼりぷろびれんぐりこーる	ポリプロピレングリコール	酸素を含む三員環構造を持つプロピレンオキシドの開環重合により得られる重合体であり、重合体の両末端にヒドロキシ基が残留する。本研究ではグリシジル基を導入し、柔軟性骨格を持つエポキシの原料として使用。
まてりあるいんふおまていくす	マテリアルズインフォマティクス	デジタル化された材料の情報を、統計解析や AI によって処理することで新規材料を探索する手法。化学構造や組成のみに焦点を当てたものは「ケモインフォマティクス」、材料作成時の加工条件に関するものは「プロセスインフォマティクス」として言及される。
むーにーねんど	ムーニー粘度	加硫反応前のゴムの塑性を評価する指標である。試料をローター間に挟んで加熱し、所定の条件で計測したローターのトルクより評価する。

課題番号： PE15「燃料電池セパレータ用ラミネート金属・高分子ナノコンポジット(NC)フィルムの研究開発」

読み方	用語	解説
ピールキョウド	ピール強度	基材とコーティング材料との密着性を表す物性値。今回の系では、NC フォルムを基盤に対し垂直に引張した場合の強度 (kgf/cm) を評価数値とした。
アックウセイケイ	圧空成形	圧空成形は、圧縮空気つまり「プラスの空気圧」を樹脂に加えて成形します。今回は NC フィルムを圧力でセパレータに圧着します。

課題番号： PF01「共通課題解決型基盤技術開発/評価解析プラットフォームマネジメント」

読み方	用語	解説
Fuel Cell Vehicle	FCV	燃料電池自動車
Gas Diffusion Layer	GDL	燃料電池セルを構成する部材であり、触媒層とセパレータの間に位置し、電気を通す機能や化学反応に必要な空気と水素を効率よく導く機能を持つ。
Heavy-Duty	HDV	大型/重量車

Vehicle		
Model based development	MBD	試作部品を製作することなく、くコンピューター上で再現した「モデル」を活用し実験に代用することで、部品試作やテストにかかわる時間の短縮、及び開発全体のコストを低減させる開発手法
Membrane Electrode Assembly	MEA	燃料極（負極）、固体高分子膜（電解質）、空気極（正極）を貼り合わせて一体化した燃料電池システムの最少構成単位。
Micro Porous Layer	MPL	ガス拡散層と触媒層の間に位置し、ガス拡散層の一部として物質移動の調整に利用されている層。
Operando	Operando	測定対象が実環境中でその機能を発現している過程を直接観測する技術。
polymer electrolyte fuel cell	PEFC	固体高分子形燃料電池
Proton exchange membrane（電解質膜）	PEM	燃料極/空気極のガスを分離し絶縁を確保しつつ、電気化学反応に必要な水素イオンを燃料極から空気極に伝達する機能を有した高分子膜。
Platform	PF	ここでは、PEFC 評価解析プラットフォームの略として用いている
X-ray Absorption Fine Structure（X線吸収微細構造）	XAFS	X線吸収スペクトル上でX線の吸収端付近に見られる固有の構造、XAFS解析によってX線吸収原子の電子状態やその周辺構造などの情報を得ることができる。
アイオノマー/イオノマー（Ionomer）	アイオノマー	高分子膜の主鎖およびイオン交換基をイソプロピルアルコールなどの溶媒に溶解させた溶液。乾燥させると高分子膜と近い性状を持つことになる。電極を作成する際、触媒粒子の結着剤（バインダ）として用いられることが多い。
シール	シール	流体の漏れまたは外部からの異物の侵入を防止するために用いる装置の総称であり、PEFC スタックでは水素、酸素などの気体や冷却水などの液体が外部にもれないように発電部の周辺に配置される部材。
ショウカクエックスセンサー	小角X線散乱 Small Angle X-ray Scattering (SAXS)	X線を物質に照射して散乱したX線のうち、 $2\theta < 10^\circ$ 以下の低角領域に現れるものを測定し、物質の構造を評価する分析手法。 数 nm～数十 nm 程度の大きさの構造を評価でき、ナノスケールでの周期構造・配向性の評価、粒子の空孔分布を評価することが可能

ショックバイ	触媒	電極の電気化学反応の速度を促進させる触媒。
セパレータ	セパレータ	バイポーラプレート（BPP）とも呼ばれる。燃料電池セルを積層する際の各セルの間に配置された電極版でガス流路、冷却水流路等がそれぞれ遮断された形で使用される部材。
マテリアルインフォマティクス	マテリアルインフォマティクス Material informatics (MI)	多種の実験データによる統計分析などを活用したインフォマティクスの手法により、有望条件の導出と、実験数絞り込みにより材料開発を高効率化する手法。
メタデータ	メタデータ	データについてのデータという意味で、あるデータが付随して持つそのデータ自身についての付加的なデータを指す。
ラジカルスカベンジャー	ラジカルスカベンジャー (Radical scavenger)	運用中に発生するラジカル（遊離基）と反応して安定な化合物に変化させることで電解膜の化学的劣化を抑制する物質、ラジカルクエンチャーとも呼ばれる。

課題番号： PF02「長寿命化・高性能化達成のための設計シミュレーターの開発」

読み方	用語	解説
FIB-SEM	FIB-SEM	集束イオンビーム（focused ion beam）による試料加工と走査電子顕微鏡（scanning electron microscope）による試料観察を交互に行うことができる装置。試料の断面画像を連続的に取得することで、試料の三次元構造の計測が可能である。
Gas Diffusion Layer(GDL)	Gas Diffusion Layer (GDL)	燃料電池セルを構成する部材であり、触媒層とセパレータの間に位置し、電気を通す機能や化学反応に必要な空気と水素を効率よく導く機能を持つ。
MATLAB	MATLAB	アメリカの MathWorks 社が開発している数値解析ソフトウェアであり、その中で使うプログラミング言語の名称。
MBD (Model Based Development)	MBD (Model Based Development)	モデルベース開発。シミュレーションモデルを用いた事前評価を取り入れた開発。
MD (molecular dynamics)	MD	分子動力学法。原子ならびに分子の物理的な動きのコンピューターシミュレーション手法。
Membrane Electrode Assembly (MEA)	Membrane Electrode Assembly (MEA)	固体高分子膜（電解質）の両側に触媒層を貼り合わせて一体化した燃料電池用膜電極接合体。

Micro Porous Layer (MPL)	Micro Porous Layer (MPL)	ガス拡散層と触媒層の間に位置し、ガス拡散層の一部として物質移動の調整に利用されている層。
MIRAI	MIRAI	トヨタが開発した燃料電池自動車。現在第二世代まで販売されている。
Oxygen Reduction Reaction (ORR)	Oxygen Reduction Reaction (ORR)	カソードで生じる反応で、酸素とプロトンと電子から水が生じる。
Péclet スウ	Péclet 数	対流による物質輸送と拡散による物質輸送の比を表す無次元数。対流流速と拡散係数の比に比例する。
PEM	PEM	proton exchange membrane の略称で、イオン伝導性を有する高分子膜。スルホン酸基を持ったフッ素系ポリマー-Nafion が一般的に用いられる。
Polytetrafluoroethylene (PTFE)	Polytetrafluoroethylene (PTFE)	テトラフルオロエチレンの重合体で、フッ素原子と炭素原子のみからなるフッ素樹脂。テフロン® (Teflon®) の商品名で、化学的に安定で耐熱性、耐薬品性に優れる。
Scanning Electron Microscope (SEM)	Scanning Electron Microscope (SEM)	走査電子顕微鏡。真空中に置かれた試料の表面を 1~100nm 程度に絞った電子線で 2 次元走査を行い、試料表面から発生する二次電子や反射電子を検出して試料表面の顕微鏡像を得る手法。光学顕微鏡に比べて焦点深度が 2 桁以上深く、nm スケールの分解能が得られる。
Thiele スウ	Thiele 数	反応と拡散の速さを表す無次元数。
アイオノマー	アイオノマー	高分子膜の主鎖およびイオン交換基をイソプロピルアルコールなどの溶媒に溶解させた溶液。電極を作成する際、触媒粒子の結着剤(バインダ)として用いられることが多い。
アイシーヒ	I/C 比	触媒層中のアイオノマーとカーボンの重量比。
イチジサイコウ	一次細孔	触媒担体内に存在する直径数 nm の孔。
カイカイロデンアツ (OCV)	開回路電圧 (OCV)	電流を取り出さない状態で生じる電圧。
ケツチエン	ケツチエン	多孔質のカーボン担体。
コタイコウブンシガタネンリョウデンチ (PEFC)	固体高分子型燃料電池 (PEFC)	電解質に固体のプロトン交換膜を用いる燃料電池で、電解質としてパーフルオロエチレンスルホン酸系膜などを用いる。電池作動温度は、常温~80℃である。
コウジコウゾウ	高次構造	高分子において高分子鎖を構成する単位の種類とその配列順序を一次構造と呼ぶのに対する、個々の高分子鎖の立体配置 (二次構造) や折

		り畳み構造（三次構造）などの空間配置構造。
コウシミツドハンカンスウ ホウ	格子密度汎関数法	多孔体内部などの空間を格子に区切り、隣接する格子間の流体の相互作用を考えることで、与えられた相対湿度における流体の密度分布を求める方法。多孔体内部の毛管凝縮を再現することができる。
ジョウタイリョウ	状態量	系の状態だけで一意的に決まる物理量。温度、圧力等。
ショクバイインク	触媒インク	白金触媒、炭素担体、アイオノマーと溶媒で構成され、インクを塗布乾燥することで触媒層を作製する。
ショクバイソウ (CL)	触媒層 (CL)	触媒、担体、アイオノマーで構成され、触媒による化学反応が生じている層。
シンスイ・ソスイブ	親水・疎水部	水分子と親和性の良い部たとえばスルホン酸基などを親水部、一方水との親和性が悪い（一般には油との親和性が良い）部を疎水部と呼ぶ。
スタック	スタック	最小の発電単位であり、一般には平板状のセルを積層させた構造体。
ソウサデンシユウデンリ ツケンビキョウ	走査電子誘電率顕微鏡	誘電率を用いて画像を検出する高分解能顕微鏡。
ソクサ	側鎖	鎖式化合物の分子構造で、最も長い炭素原子の主鎖から枝分かれした部分。
ソシカブンシドウリキガク ホウ(CGMD)	粗視化分子動力学法 (CGMD)	分子動力学法の一つ。いくつかの分子をまとめて1つの粒子として扱うことで計算時間の短縮を図り、より大規模・長時間のシミュレーションを可能にする。
タイリュウイオンユソウケ イスウ	対流イオン輸送係数	水分子が1つ動くときにCeイオンを何個引き連れていくかを表した係数。
タイリュウジカンブンプ	滞留時間分布	物質が装置の入口から出口まで流れるのに要する時間が滞留時間で、時刻0に流入した物質のうち時刻tまでに流出した割合のこと。
タンタイ	担体	触媒層でナノオーダーの白金触媒を保持する。
デンキシントウケイスウ	電気浸透係数	Ceイオンが1つ動く時にオキシニウムイオンを何個引き連れていくかを表した係数。
ナフィオン	ナフィオン	フッ素系電解質の代表的なイオン交換膜。
パーフルオロスルホンサ ンポリマー	パーフルオロスルホン酸ポリマ ー	フッ素樹脂系のイオン交換膜。プロトン導伝性が高いのが特徴。

バルカン	バルカン	中実のカーボン担体。
ハンノウブンシドウリキガクホウ	反応分子動力学法	化学反応を取り扱える力場に基づく分子動力学法。
フクリユウ	伏流	流路をまたいでガスが流れること。GDL への潜り込みを指す。
ミズクラスター	水クラスター	高分子膜の中に存在する水分子のかたまり。この連結性が高分子膜の性質(物質輸送特性、機械特性)に大きく影響する。
メソポーラス	メソポーラス	1nm から数十 nm の大きさの孔 (メソポア、meso-pore) を多数持つ材料。
ユウコウカクサンケイスウ	有効拡散係数	細孔構造の影響を含む拡散係数。均一相での拡散係数と細孔の体積分率に比例し細孔の屈曲度に反比例する式で表されることが多い。
ユウコウケイスウ	有効係数	実際の反応速度と物質輸送抵抗がない場合の反応速度の比。触媒層に対して定義される。触媒有効係数とも呼ばれる。
ユウコウデンドウド	有効伝導度	三次元構造の影響を含む伝導度。均一相での伝導度と電解質の体積分率に比例し電解質の屈曲度に反比例する式で表されることが多い。
ユニット	ユニット	ポンプ、バルブ等、燃料電池卵を構成する装置のうち物理的に操作できるもの。
ラジカルカクシユ	ラジカル化学種	不対電子を持つため極めて活性が高く反応性の高い化学種。

課題番号： PF03「プラットフォーム材料の解析及び解析技術の高度化の技術開発」

読み方	用語	解説
3D-TEM	3D-TEM	電子線トモグラフィーともいう。試料を傾斜させながら連続的に TEM または STEM 像を撮影して得られたデータをコンピュータで再構成して 3 次元データを取得する。通常の TEM, STEM ではわからない 3 次元的な形状や分布の情報が得られる。
HR-XANES	HR-XANES	エネルギー高分解能(HR)X 線吸収端近傍構造(XANES)。エネルギー高分解能蛍光検出 XANES(HERFD-XANES)のことを指す。着目する電子の寿命幅を超えたエネルギー分解能で蛍光 X 線を検出して XANES を測定する方法。Pt L _{III} 吸収端の蛍光 XANES を得るために、BL36XU において試料からの発光 X 線を 8 枚の Ge(660)球面湾曲結晶によって分光・集光し、二次元検出器

		によって検出。元素間の結合、吸着などを反映する電子状態情報が得られる。
SAXS	SXAS	試料中に数 10 nm スケールで形成された周期構造を X 線散乱現象に基づき評価する測定法
STEM	STEM	走査透過電子顕微鏡。0.1 nm 以下にまで収束した電子プローブを試料に照射・走査し、原子による散乱を利用して原子像を取得する電子顕微鏡法。原子分解能像の取得、また各検出器を取付けることで、組成分析等が可能。
WAXS	WAXS	試料中に数 Å から数 nm スケールで形成された周期構造を X 線回折現象を利用して評価する測定法。SAXS よりも小さな領域の構造評価に用いられる。
XAFS	XAFS	X 線吸収微細構造。各元素に固有の吸収端近傍において X 線吸収スペクトルを計測することで、元素別の局所構造や化学状態に関する情報が得られる。
X センジュウデンシレーザー	X 線自由電子レーザー	フェムト秒オーダーの極短パルスの超強力な X 線領域のレーザー。加速器を用いて光速近くまで加速した電子を、アンジュレータと呼ばれる磁石列により蛇行運動させて発生させる。
クライオ TEM	クライオ TEM	水分を含む試料を急速凍結して TEM 観察する手法。触媒インクや触媒層について、膨潤したアイオノマの分布、被覆状態、厚さの情報が得られる。
ケイコウ X センブンセキ	蛍光 X 線分析	X 線を物質に照射した際に発生する、元素ごとに固有のエネルギーの蛍光 X 線を利用して、物質の構成元素や元素濃度を分析する手法。
コヒーレント X センカイセツ	コヒーレント X 線回折	コヒーレント X 線を用いた、試料の結晶性に依らない回折現象。コヒーレント X 線回折データに位相回復計算を適用することにより、ナノレベルの試料像が得られる。
コンプトンサンラン	コンプトン散乱	X 線が物質によって散乱される現象のひとつ。散乱後の X 線のエネルギーが散乱前より低くなっている散乱現象をコンプトン散乱という。この現象は、物質電子 1 個と X 線光子 1 個の衝突による散乱として説明される。物質透過能の高い高エネルギー X 線を用いるため、コンプトン散乱 X 線を計測するこ

		とにより、燃料電池内部の物質挙動を直接観察できる。
チュウセイシイメージング	中性子イメージング	中性子ビームを用いた非破壊での内部可視化技術。中性子は高い物質透過能力と、水素などの軽元素に対しても高い感度を持つため、非常に厚い金属板で拘束されている車載用燃料電池セルの内部に生成された水の挙動を直接観察することができる。
チュウセイシコントラストホウ	中性子コントラスト法	異なる原子核が異なる中性子散乱長を持つことを利用して、試料の構造や物性を変えることなくコントラストのみを変化させる中性子散乱法。アイオノマが吸収する水の軽水・重水混合比を変え、アイオノマの状態を解析するのに利用される。
ラジカルクエンチャ	ラジカルクエンチャ	電解質膜を劣化させる過酸化水素由来のラジカル種を捕捉する物質。主にセリウムが用いられている。

課題番号： PF04 「電気化学的特性測定技術の研究開発」

読み方	用語	解説
1Dモデル	1Dモデル	燃料電池セルを構成する部材の特性（損失の発生要因と部位）を解析するために開発した1次元のモデル。
AST	Accelerated Stress Testing	加速耐久試験
BPP	Bipolar Plate	セパレータともいう。燃料電池セルを積層する際の各セルの間に配置された電極版でガス流路、冷却水流路等がそれぞれ遮断された形で設けられている。
CL	Catalyst Layer (CL)	触媒、担体、アイオノマーで構成され、触媒による化学反応が生じている層。
DOE	Department of Energy	アメリカ合衆国エネルギー省
EW	EW (equivalent weight)	「EW (equivalent weight, 等価質量)」は乾燥したナフィオン（プロトン型）1グラム当たりのスルホン酸基のモル数である。 プロトン伝導性を担うスルホン酸基の密度として定義され、 $IEC (meq/g) = 1000 / EW$ で算出される。

FCV	Fuel Cell Vehicle	燃料電池自動車
GDL	Gas Diffusion Layer (GDL)	燃料電池セルを構成する部材であり、触媒層とセパレータの間に位置し、電気を通す機能や化学反応に必要な空気と水素を効率よく導く機能を持つ。
HDV	Heavy-Duty Vehicle	大型車
HOR	Hydrogen oxidation reaction (HOR)	水素酸化反応
IPC-MS	Inductively Coupled Plasma -Mass Spectrometry	プラズマ (ICP) をイオン源として使用し、発生したイオンを質量分析部 (MS) で検出する。
IEC	Ion Exchange Capacity (IEC)	プロトン伝導性を担うスルホン酸基の密度として定義され、 $IEC (meq/g) = 1000 / EW$ で算出される。なお「EW (equivalent weight, 等価質量)」は乾燥したナフィオン (プロトン型) 1グラム当たりのスルホン酸基のモル数である。
IV	IV 性能	燃料電池の電流-電圧特性。
MEA	Membrane Electrode Assembly (MEA)	燃料極 (負極)、固体高分子膜 (電解質)、空気極 (正極) を貼り合わせて一体化した燃料電池システムの最少構成単位。
MPC	Meso Porous Carbon	1nm から数十 nm の大きさの孔 (メソポア、meso-pore) を多数持つ炭素材料。触媒担体として用いられている。
MPL	Micro Porous Layer (MPL)	ガス拡散層と触媒層の間に位置し、ガス拡散層の一部として物質移動の調整に利用されている層。
OCV	Open Circuit Voltage	開回路電圧
ORR	Oxygen Reduction Reaction (ORR)	酸素還元反応。 カソード側触媒で生じる反応で、燃料電池の損失で最も大きい。
PF	Platform	ここでは、PEFC 評価解析プラットフォームの略として用いている
PEFC	polymer electrolyte fuel cel	固体高分子形燃料電池
PTFE	Polytetrafluoroethylene (PTFE)	テトラフルオロエチレンの重合体で、フッ素原子と炭素原子のみからなるフッ素樹脂。テフロン®

		(Teflon®) の商品名で、化学的に安定で耐熱性、耐薬品性に優れる。
アイオノマ	アイオノマ ionomer	高分子膜の主鎖およびイオン交換基をイソプロピルアルコールなどの溶媒に溶解させた溶液。乾燥させると高分子膜と近い性状を持つことになる。 電極を作成する際、触媒粒子の結着剤(バインダ)として用いられることが多い。 PEFCの触媒層において、触媒(担体)を結着するための電解質。バインダー、イオノマーと表現されることが多い。電解質膜とは異なる特性も求められる。
アノード	アノード	PEFCの水素極
カソード	カソード	PEFCの空気極
セパレータ	セパレータ	バイポーラプレートともいう。燃料電池セルを積層する際の各セルの間に配置された電極版でガス流路、冷却水流路等がそれぞれ遮断された形で使用される部材。
ナフイオン	ナフイオン	デュポン社の商標で、フッ素系電解質の代表的な膜として使用されている。
フェントン反応	フェントン反応	過酸化水素が、遊離した Fe ²⁺ 等によって還元され、ヒドロキシルラジカル(・OH)を生成する反応。PEFC内では電解質膜の劣化の主要因とされている。
ラジカル	ラジカル化学種	不対電子を持つため極めて活性が高く反応性の高い化学種。
デンキョクショックバイ	電極触媒	電極の電気化学反応の速度を促進させる触媒。

課題番号： PF05 「マテリアルズ・インフォマティクスによる燃料電池材料の研究開発」

読み方	用語	解説
アクティブラーニング	アクティブラーニング	欲しい目標特性値を得るために、データを連続的に更新していく解析手法。機械学習モデルと既知のデータを使って目標値を予測し、次に取得すべきデータの条件(実験条件や組成情報)をベイズ最適化などの手法によって提案する。提案条件を実験し、新規に得られた実験データは既知データと合わせて機械学習による予測に利用し予測精度を

		向上させる。このサイクルを欲しい目標値に到達するまで繰り返す手法。
--	--	-----------------------------------

課題番号： SO01「超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発

(WP1 革新的高性能電極・部材の開発)」

読み方	用語	解説
BCPY	BCPY	$BaCe_{1-x-y}Pr_xY_yO_{3-\delta}$ で示される複合酸化物
BCY	BCY	Y_2O_3 を添加 (Zrの一部を置換)した $BaCeO_3$ (バリウムセレート)
BCZYYb	BCZYYb	$BaZrO_3$ (バリウムジルコネート) と $BaCeO_3$ [(バリウムセレート) の中間組成で、Zr,Ceの一部を Y, Yb で置換した材料
BGLC	BGLC	$BaGd_{1-x}La_xCo_2O_{6-\delta}$ で示される複合酸化物
BLC	BLC	$Ba_{1-x}La_xCoO_{3-\delta}$ で示される複合酸化物
BSGC	BSGC	$(Ba,Sr)_6RE_2Co_4O_{15}$ (RE は希土類元素) で示される複合酸化物
BZ	BZ	$BaZrO_3$ (バリウムジルコネート) の略、PCFC の電解質に用いられる
BZY	BZY	Y_2O_3 を添加 (Zrの一部を置換)した $BaZrO_3$ (バリウムジルコネート)
BZYb	BZYb	Yb_2O_3 を添加 (Zrの一部を置換)した $BaZrO_3$ (バリウムジルコネート)
DPB	DPB	Double Phase Boundary (二相界面) の略
EIS	EIS	Electrochemical Impedance Spectroscopy (インピーダンス)解析) の略
GDC	GDC	$(Gd,Ce)O_2$ (ガドリニウム添加セリア) の略
IR	IR	Internal Resistance セルの内部抵抗のうち、オーム抵抗
LSC	LSC	$(La,Sr)CoO_3$ の略、空気極に用いられるペロブスカイト型複合酸化物
LSCF	LSCF	$(La,Sr)(Co,Fe)O_3$ の略、空気極に用いられるペロブスカイト型複合酸化物
OCV	OCV	Open Circuit Voltage (開回路電圧) の略
オーアールアールカッセイ	ORR 活性	Oxygen Reduction Reaction (酸素還元反応) に関する活性
PCEC	PCEC	Protonic Ceramic Electrololysis Cell (プロトン伝導セラミック電解セル) の略
PCFC	PCFC	Protonic Ceramic Fuel Cell (プロトン伝導セラミック燃料電池) の略

PNC	PNC	PrNi _{1-x} Co _x O ₃ で示される複合酸化物
SDC	SDC	(Sm,Ce)O ₂ (サマリア添加セリア) の略
SOEC	SOEC	Solid Oxide Electrolysis Cell (固体酸化物形電解セル) の略
SOFC	SOFC	Solid Oxide Fuel Cell (固体酸化物形燃料電池)の略
TPB	TPB	Triple Phase Boundary (三相界面) の略
YSZ	YSZ	Y ₂ O ₃ -ZrO ₂ (イットリア安定化ジルコニア) の略
アノード	アノード	燃料極 (燃料電池運転モード)
カソード	カソード	空気極 (燃料電池運転モード)
コンゴウデンドウタイ	混合伝導体	プロトンや酸化物イオン等のイオンと電子の両方が伝導する材料
コンポジット	コンポジット	複数の異なる性質を持った材料を組み合わせた複合材料
サンソウカイメン	三相界面	電極反応場となる正極/電解質/ガスの3相が接する部分
シュツリョクミツド	出力密度	セルの電極単位面積当たりの出力、SOFCの性能を示すパラメータ
スタック	スタック	燃料電池セルを大容量化のため複数積層したもの
ダイイチゲンリケイサン	第一原理計算	電子状態理論を使って電子分布を決め、物質の諸性質を決める計算方法
デンシリーク	電子リーク	セルが内部短絡して電流が流れること。燃料を余分に消費して効率低下につながるため抑制する必要がある
ドーパント	ドーパント	機能性を発現させるため化合物中の元素の一部を置換する元素
ハーフセル	ハーフセル	燃料極/電解質/空気極から構成され、完成したセルに対して燃料極/電解質で構成され、空気極を成膜していない未完成のセル
ニソウカイメン	二相界面	電極反応場となる正極/ガスの2相が接する部分
ブンキョクテイコウ	分極抵抗	電極のオーム抵抗以外の電気抵抗

課題番号： SO02「高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発
(WP2 高効率・高出力密度セルの開発)」

読み方	用語	解説
BCZYYb	BCZYYb	BaZrO ₃ (バリウムジルコネート) と BaCeO ₃ [(バリウムセレート) の中間組成で、

		Zr,Ceの一部を Y, Yb で置換した材料
BZ	BZ	BaZrO ₃ (バリウムジルコネート) の略、PCFC の電解質に用いられる
BZY	BZY	Y ₂ O ₃ を添加 (Zr の一部を置換) した BaZrO ₃ (バリウムジルコネート)
BZYb	BZYb	Yb ₂ O ₃ を添加 (Zr の一部を置換) した BaZrO ₃ (バリウムジルコネート)
BZYbCo	BZYbCo	Co を添加 (Zr の一部を置換) した BZYb、空気極として用いる
DRT	DRT	Distribution of Relaxation Time (緩和時間分布) の略、インピーダンス解析で素反応過程の分離評価に用いられる
EIS	EIS	Electrochemical Impedance Spectroscopy (インピーダンス) 解析) の略
GDC	GDC	(Gd,Ce)O ₂ (ガドリニウム添加セリア) の略
Gradient Boosting	Gradient Boosting	回帰や分類のための機械学習の計算手法の 1 つ
IR	IR	Internal Resistance セルの内部抵抗のうち、オーム抵抗
LSCF	LSCF	(La,Sr)(Co,Fe)O ₃ の略、空気極に用いられるペロブスカイト型複合酸化物
OCV	OCV	Open Circuit Voltage (開回路電圧) の略
PCEC	PCEC	Protonic Ceramic Electrololysis Cell (プロトン伝導セラミック電解セル) の略
PCFC	PCFC	Protonic Ceramic Fuel Cell (プロトン伝導セラミック燃料電池) の略
SDC	SDC	(Sm,Ce)O ₂ (サマリア添加セリア) の略
SOEC	SOEC	Solid Oxide Electrolysis Cell (固体酸化物形電解セル) の略
SOFC	SOFC	Solid Oxide Fuel Cell (固体酸化物形燃料電池) の略
YSZ	YSZ	Y ₂ O ₃ -ZrO ₂ (イットリア安定化ジルコニア) の略
アノード	アノード	燃料極 (燃料電池運転モード)
カソード	カソード	空気極 (燃料電池運転モード)
キカイガクシュウ	機械学習	データから「機械」(コンピューター) が自動で「学習」し、データの背景にあるルールやパターンを発見するデータ分析手法。本事業では、学習した結果に基づいて材料物性を予測、新規材料探索に用いる

シュツリョクミツド	出力密度	セルの電極単位面積当たりの出力、SOFC の性能を示すパラメータ
スタック	スタック	燃料電池セルを大容量化のため複数積層したものの
ダブルカラムナー	ダブルカラムナー	異種材料をナノサイズで接合し、柱状に成長させた構造で、導電性とガス透過性を両立した構造
デンシリーク	電子リーク	セルが内部短絡して電流が流れること。燃料を余分に消費して効率低下につながるため抑制する必要がある

課題番号： SO03「超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発

(W P 3 セル評価・アプリケーション研究)」

読み方	用語	解説
BCZYYb	BCZYYb	BaZrO ₃ （バリウムジルコネート）と BaCeO ₃ 〔（バリウムセレート）の中間組成で、Zr,Ce の一部を Y, Yb で置換した材料
BZ	BZ	BaZrO ₃ （バリウムジルコネート）の略、PCFC の電解質に用いられる
BZY	BZY	Y ₂ O ₃ を添加（Zr の一部を置換）した BaZrO ₃ （バリウムジルコネート）
BZYb	BZYb	Yb ₂ O ₃ を添加（Zr の一部を置換）した BaZrO ₃ （バリウムジルコネート）
BZYbCo	BZYbCo	Co を添加（Zr の一部を置換）した BZYb、空気極として用いる
DRT	DRT	Distribution of Relaxation Time（緩和時間分布）の略、インピーダンス解析で素反応過程の分離評価に用いられる
EIS	EIS	Electrochemical Impedance Spectroscopy（インピーダンス）解析の略
EPMA	EPMA	表面の組織及び形態の観察とマイクロオーダーの局所元素分析を行う分析機器
GDC	GDC	(Gd,Ce)O ₂ （ガドリニウム添加セリア）の略
Gradient Boosting	Gradient Boosting	回帰や分類のための機械学習の計算手法の 1 つ
IR	IR	Internal Resistance セルの内部抵抗のうち、オーム抵抗
LSCF	LSCF	(La,Sr)(Co,Fe)O ₃ の略、空気極に用いられるペロブスカイト型複合酸化物
OCV	OCV	Open Circuit Voltage（開回路電圧）の略

PCEC	PCEC	Protonic Ceramic Electrolysis Cell (プロトン伝導セラミック電解セル) の略
PCEC	PCEC	Protonic Ceramic Electrolysis Cell (プロトン伝導セラミック電解セル) の略
PCFC	PCFC	Protonic Ceramic Fuel Cell (プロトン伝導セラミック燃料電池) の略
SDC	SDC	(Sm,Ce)O ₂ (サマリア添加セリア) の略
SEM	SEM	電子線を用いて、数 10 倍～100 万倍程度の表面の拡大像を取得できる顕微鏡
SOEC	SOEC	Solid Oxide Electrolysis Cell (固体酸化物形電解セル) の略
SOFC	SOFC	Solid Oxide Fuel Cell (固体酸化物形燃料電池) の略
YSZ	YSZ	Y ₂ O ₃ -ZrO ₂ (イットリア安定化ジルコニア) の略
アノード	アノード	燃料極 (燃料電池運転モード)
カソード	カソード	空気極 (燃料電池運転モード)
キカイガクシュウ	機械学習	データから「機械」(コンピューター) が自動で「学習」し、データの背景にあるルールやパターンを発見するデータ分析手法。本事業では、学習した結果に基づいて材料物性を予測、新規材料探索に用いる
ケツゴウエネルギー	結合エネルギー	イオン間の化学結合の結合強度の尺度
コストエンジニアリング	コストエンジニアリング	材料物性や反応機構に基づくデバイス・システムの考案と設計、および製造プロセスやシステム等の経済性分析を含む包括的な評価手法
サイクル解析	サイクル解析	熱交換器やセル・スタック等のシステムの要素・過程を考慮し、エネルギーシステム全体の効率などを熱力学的に導出する手法
シュツリョクミツド	出力密度	セルの電極単位面積当たりの出力、SOFC の性能を示すパラメータ
スタック	スタック	燃料電池セルを大容量化のため複数積層したもの
スタック	スタック	単セルを直列接続したもの
セキソウデンカイシツ	積層電解質	中間層と電解質の 2 層を組み合わせた電解質
セルスタック	セルスタック	セルとスタックの総称
ダイイチゲンリケイサン	第一原理計算	電子状態理論を使って電子分布を決め、物質の諸性質を決める計算方法
ダブルカラムナー	ダブルカラムナー	異種材料をナノサイズで接合し、柱状に成長させた構造で、導電性とガス透過性を両立した構造

チュウカンソウ	中間層	空気極と電解質の反応を防いだり、リーク電流を抑制したりする層
デンカイシツ	電解質	電荷を運ぶことができる正イオンと負イオンで構成されているおり、
デンカイシツシジガタセル	電解質支持形セル	電解質を強度部材に用いたセル
デンキカガクインピーダンスソクテイ	電気化学インピーダンス測定	対象とする電極に微小な正弦波交流を与え、その伝達関数としてインピーダンス(またはアドミタンス)を求めることにより電極反応機構などを解析する非定常測定法の一つである。
デンシリーク	電子リーク	セルが内部短絡して電流が流れること。燃料を余分に消費して効率低下につながるため抑制する必要がある
ドーパント	ドーパント	機能性を発現させるため化合物中の元素の一部を置換する元素
ネンリョウキョクシジガタセル	燃料極支持形セル	燃料極を強度部材に用いたセル
マルチフィジックス	マルチフィジックス	複数の物理現象、具体的には熱輸送、物質拡散、対流、電気化学反応、電荷移動などを同時に扱うこと
モジュール	モジュール	スタックを電氣的に接続したもの
リークデンリュウ(タンラクデンリュウ)	リーク電流(短絡電流)	電解質中を流れる電流。PCFC の場合はホールが空気極から燃料極に輸送されることで生じる
リバーシブルトクセイ	リバーシブル特性	発電特性と電解特性の両特性
デンリュウコウリツ(ファラデーコウリツ)	電流効率(Faraday 効率)	電気化学反応において、通過電気量から計算される理論生成量に対する目的生成物量の実測値の百分率
ネツチュウリツデンアツ	熱中立電圧	電解セルにおいて発熱量と吸熱量が釣り合う電圧
ブンキョクテイコウ	分極抵抗	電極のオーム抵抗以外の電気抵抗

課題番号： SO04「固体酸化物形燃料電池強靱化技術の開発」

読み方	用語	解説
FIB-SEM	FIB-SEM	集束イオンビーム – 走査型電子顕微鏡(Focus ion beam-scanning electron microscope)。集束イオンビームで材料を見リングしながら複数枚の SEM 像を取得することで、電極微構造等を三次元的に再構築することができる。

カイカイロデンアツ	開回路電圧	外部回路に電流が流れていない時の電圧。OCV(Open Circuit Voltage)とも呼ばれる。イオン輸率が1で緻密性が高い(ガス透過性がほとんどない)電解質を用いた固体酸化物形燃料電池(SOFC)では、理論起電力とほぼ同等の電圧が得られる。
シッシキホウ	湿式法	電解質や電極等の粉末を溶媒に分散させ、スクリーン印刷やディップコーティング等の方法で成膜する方法。製造プロセスの低コスト化が見込まれる。
デンシリーク	電子リーク	イオン導電率の他に電子またはホールの導電率を有することでイオン輸率が1を下回り、電解質内を電子またはホールが伝導することで内部短絡が起こること。この場合、開回路電圧が理論起電力を下回る。
リロンキデンリョク	理論起電力	作動温度と燃料極、空気極の酸素分圧を用いてネルンストの式から求められる理論起電力
ヨウシャホウ	溶射法	金属やセラミックス、サーメットなどを様々な熱源を用い溶融噴射し、基材表面に材料を噴きつけて機能皮膜を成膜する方法。

課題番号： SO05「固体酸化物形燃料電池スタックの高度評価・解析技術の研究開発」

読み方	用語	解説
CFD ケイサン	CFD 計算	Computational Fluid Dynamics の略で、数値流体力学のことを言う。流体力学をコンピュータシミュレーションで再現するもので、多くの分野で活用されている。
DRT カイセキ	DRT 解析	Distribution Relaxation Time 分析のこと。交流インピーダンスでの緩和時間分布解析を指す。インピーダンス測定データを変換することで得られ、抵抗成分の分離に利用。
FIB-SEM	FIB-SEM	集束イオンビーム－走査型電子顕微鏡(Focus ion beam-scanning electron microscope)。集束イオンビームで材料を見リングしながら複数枚の SEM 像を取得することで、電極微構造等を三次元的に再構築することができる。

GAN	GAN	Generative Adversarial Network (GAN) は、Generator と Discriminator の2つのネットワークから構成される機械学習手法であり、実データの特徴を学習することで、その特徴を有する非実在データを生成できる。
PCFC セル	PCFC セル	Proton Conducting Fuel Cell の略で、セラミックス燃料電池の中でも固体電解質のイオン伝導担体がプロトン(H ⁺)のもの。
SIMS プンセキ	SIMS 分析	Secondary Ion Mass Spectrometry (2次イオン質量分析計) による分析のことで、一次イオンでスパッタした表面から叩き出される2次イオンを質量分析計で測定するもので、質量数の分解精度によって軽元素から重元素、同位体まで測定可能で、深さ方向にナノレベルの微量成分分析が可能である。
U-net	U-net	U-net は、畳み込みニューラルネットワークの一種であり、局所的特徴と大局的情報を統合して学習させることで、高精度な識別が可能である。
セイトクセイ	静特性	システム内の状態量は、システム指令の変化に伴い、時間遅れを伴う非定常変化をするが、システム指令が一定時間以上変化しない場合、システム状態量の変動が落ち着き、整定した値(定常状態)に落ち着く。この時のシステム各種状態量や流量等の値を静特性と呼ぶ。
セイノウヒョウジシキ	性能表示式	燃料電池発電システムを考える場合、システム設計者は熱物質収支をとりながらシステム設計していく。このため、燃料電池の温度や圧力、電流、ガス条件が変化した場合、セルスタックの電圧・電流を予測する必要がある。 燃料電池の出力電圧(性能)を決定する要因を「ネルンストロス」、「内部抵抗」、「カソード反応抵抗」、「アノード反応抵抗」に分類評価し、それぞれを温度や各種ガス分圧の関数として表したのもの。
ダイリモデルホウ	代理モデル法	負荷の大きな計算で得た結果を適切に内挿する数理モデルによって、任意のパラメータに対する計算を簡便に実施する手法。
テラヘルツハカイセキ	テラヘルツ波解析	THz 前後の周波数帯の電磁波がセラミックスを透過することを利用し、SOFC の内部構造の観察や欠陥の検出を可能にする手法。

ドウトクセイ	動特性	熱流体システムにおいては、システム指令に従い、システム内部の状態量（温度、圧力）や作動流体の流量が変化するが、これらの値は、熱容量や機器の容積、制御などの影響を受け、システム指令に対して時間遅れをもつ。この時間遅れを含んだシステム指令の変化に対するシステム内部の各種状態量、流量等の非定常変化特性を動特性と呼ぶ。
ブンシドウリキガクホウ	分子動力学法	系を構成する原子・分子に対する運動方程式を解くことで、原子・分子の動的な挙動を求めるコンピュータ・シミュレーション手法。
ラマンブンコウブンセキ	ラマン分光分析	物質にレーザー光などを照射し、ラマン散乱光を測定することで、物質内の短周期の結晶構造を検出することができる。X線回折では数ミリオオーダーの試料面の平均結晶構造情報を得られるのに対し、この方法では顕微ラマン光分析などを使うと、結晶構造のナノ～ミクロンレベルの変化を検出することができる。

課題番号： IP01 「高分子形と酸化物形の技術融合による電極一体型次世代 PEFC の創製」

読み方	用語	解説
ジーディーエル	GDL	Gs Diffusion Layer（ガス拡散層）の略で、空気や水素ガス、水蒸気などが拡散性に優れた導電性を有する多孔部材。撥水性を有し、カーボンファイバーなどで作られることが多い。
アイブイ	IV	電流電圧特性
メソポーラスカーボンファイバー	MCF	数～数十ナノメートル程度のメソ細孔を有する多孔炭素材料をファイバー状に作製した材料
マイクロポーラスレイヤー	MPL	電極触媒層とガス拡散層の間の層で、特に乾燥や水詰まりを防ぐために適度な水管理を行うための層
ニオブドープサンカスズ	Nb-SnO ₂	導電性酸化物である酸化スズ（SnO ₂ ）に価数が高い5価のニオブイオンを固溶させた材料
オーシーブイ	OCV	開回路電圧を意味する Open circuit voltage の略
ピーティエフイー	PTFE	テフロンなどの撥水性のフッ素樹脂

課題番号： IP02 「カーボンフリー白金合金ナノ粒子連結触媒とポリフェニレン系細孔フィリング電解質膜の開発および高電圧・高出力 MEA への展開」

読み方	用語	解説
ECSA	ECSA	電気化学的活性表面積 (Electrochemical surface area の略号)。Pt 重量当たりの触媒の表面積を表す。
IEC	IEC	イオン交換容量 (Ion exchange capacity の略号)。高分子電解質に含まれる、プロトン伝導性を担うスルホン酸基の密度を表す。
MEA	MEA	膜電極接合体 (Membrane-electrode assembly の略号)。電解質膜とそれに接合された電極(触媒層+ガス拡散層)が一体化した、燃料電池システムの中核部。
ORR	ORR	カソード触媒層で起こる、酸素を還元して水を生成する酸素還元反応 (Oxygen reduction reaction の略号)
ハッキンサンカヒドク	Pt 酸化被毒	高電位において、Pt 表面で水由来の酸素種吸着や酸化物形成が起こり、酸素還元反応を阻害する。従来の Pt/C 触媒では、0.7~0.8 V 以上の高電位で Pt 酸化被毒が生じ、PEFC の高電位運転を実現する上で大きな課題となっている。
パイ-パイスタッキング	π - π スタッキング	芳香環同士が強く相互作用し、芳香環を積み重なった状態(スタッキング)で安定化すること。
アイオノマー	アイオノマー	触媒層において、触媒担持粒子同士を結着させるバインダーとなる電解質材料のことで、反応時に必要となるイオンを反応サイトに供給する役割も担う。
カーボンフリーショックバイソウ	カーボンフリー触媒層	導電性カーボンを含まない、触媒とアイオノマーで構成される触媒層。
ガラスステイオンド	ガラス転移温度	高分子材料がガラス(固化)状態からゴム状態になる温度。
キドウテイシサイクル	起動停止サイクル	MEA カソード電極の担体(主にカーボン)の劣化を加速させる起動停止模擬電位サイクル。
サイコウファイリングデンカイシツマク	細孔ファイリング電解質膜	多孔質基材の細孔内に電解質ポリマーを充填した電解質膜。
チョウコウシコウゾウ	超格子構造	2 種以上の異なる原子で構成される合金金属における結晶構造の一つで、結晶格子が規則的に配列した、熱力学的に安定な構造。
ナリユウシレンケツショクバイ	ナノ粒子連結触媒	金属ナノ粒子同士が連結した、ナノサイズのネットワークで構成される触媒。金属ネットワークは高い導電性を有するため、導電性カーボン担体を必要

		としない。
ヒョウメンヒカッセイ	表面比活性	Pt 表面積あたりの酸素還元反応活性であり、触媒の反応性を示す指標。
フェントンシケン	フェントン試験	燃料電池運転時に生じる酸化ラジカルによる電解質材料の化学的劣化を加速する耐久性試験。
ポリフェニレンケイデンカイシツマク	ポリフェニレン系電解質膜	側鎖にスルホン酸基を有し、主鎖に分解の起点となるエーテル等のヘテロ元素を含まない、高耐久なプロトン伝導性膜。
ロードサイクル	ロードサイクル	MEA カソード電極の白金触媒の劣化を加速させる負荷応答模擬電位サイクル。

課題番号： IP03 「広温湿度作動 PEFC を実現する先端的材料コンセプトの創出」

読み方	用語	解説
MEA	MEA	Membrane Electrode Assembly:膜電極接合体のこと。燃料極(負極)、固体高分子膜(電解質)、空気極(正極)を貼り合わせて一体化した燃料電池システムの最少構成単位である。
Pt/Nb-SnO ₂	Pt/Nb-SnO ₂	Nb をドーブした酸化スズに Pt ナノ粒子を担持した触媒のことである。
ハッキンナノロッド	Pt ナノロッド	アスペクト比のある微細構造を有する Pt ナノ粒子のことである。一般に数個の Pt ナノ粒子が連結することで形成される。
スカベンジャー	スカベンジャー	一般に腐食・分解等の化学反応を停止させる化学物質の事であり、固体高分子形燃料電池では電解質膜を劣化させる OH ラジカルの分解もしくは発生を抑制する材料を意味する。
セラミックタンタイ	セラミック担体	酸化物や炭化物などのセラミックで形成され、Pt 粒子等を担持するため大きな比表面積を有するナノ粒子である。
ダイコータ	ダイコータ	塗工液を加圧して注ぎ口（スロットオリフィスダイ）から押し出し、支持体を直接コーティングする塗工機のことである。触媒層や電解質膜の作製に用いる。
ドーパント	ドーパント	酸化物を構成する陽イオンもしくは陰イオンサイトに導入された（構成成分とは異なる）元素のことである。

		ある。
ピサイコウゾウ	微細構造	形態のこと。高分子膜においては、その親水部・疎水部等によりミクロな相分離構造が形成され、その形態のことを指す。
サンソカンゲンカッセイ	酸素還元活性	燃料電池の空気極側における化学反応の活性であり、一般に 0.85V から 0.90V での反応電流を触媒 1g 当たりに換算した値で表記される。
シツリョウカッセイ	質量活性	触媒 Pt 1g あたりの電流値。本件では、可逆水素電極基準で 0.85 V における白金 1g あたりの電流量とした。
デンキデンドウド	電気伝導度	材料に 1V の電圧を印加した際、単位体積・時間あたりに流れる電流の事である。
レンジコウゾウ	連珠構造	最近接するナノ粒子同士が接触界面にて融着して形成した房状の（カーボンと類似した）微細構造のことである。

課題番号： IP04 「高性能・高耐久・低コスト MEA に向けた先端要素技術の研究開発」

読み方	用語	解説
RDE	RDE	回転ディスク電極（英：Rotating Disk Electrode, RDE）法はディスク電極を回転させることによつての物質移動速度を制御し、電極触媒の活性を再現性良く定量的に解析できる手法である。
SWCNT	SWCNT	単層カーボンナノチューブ（英：single-walled carbon nanotube）は、炭素によつて作られる六員環ネットワーク（グラフェンシート）が単層の同軸管状になった物質であり、非常に高い導電性、熱伝導性・耐熱性・機械的強度を有する。
カーボン・キンゾクコアシェルショクバイ	カーボン・金属コアシェル触媒	金属ナノ粒子の表面をグラフェンや窒素ドーピンググラフェン等のカーボンシェルで被覆したコアシェル触媒であり、近年、酸素還元触媒、水素発生触媒への応用を目指した研究が盛んに行われている。
ソリューションプラズマホウ	ソリューションプラズマ法	溶液中に対抗した針電極にパルス型の高電圧を印加することにより、溶液中にグロー放電によるプラズマ場を形成し、金属ナノ粒子やヘテログラフェンの

		合成、金属ナノ粒子やカーボンナノチューブへのグラフェン被覆などのナノ材料の合成手法として注目されている。
サンソカンゲンハンノウ	酸素還元反応	酸素還元反応（英：oxygen reduction reaction, ORR と略記）は、固体高分子形燃料電池（PEFC）のカソード反応であり、酸素が電子とプロトンを受け取り、水に還元される反応である。通常、Pt 系の触媒が用いられるが、活性が不十分であり、大きな過電圧の一因となっている。このため、合金触媒、コアシェル触媒、カーボンアロイ触媒、等の様々な触媒の研究開発が行われている。

課題番号：IP05「超高電位を目指した酸化物カソードの開発・超機能発現のための表面/界面解析と制御」

読み方	用語	解説
エーエルディー	ALD	Atomic Layer Deposition(原子層堆積法)の略、前駆体となる化合物を真空チャンバー内で反応させ、目的材料を一層一層積層させていく蒸着法。
エーピーディー	APD	Arc Plasma Deposition(アークプラズマ蒸着法)の略。アークプラズマ放電を利用し、ターゲット材料を基板の上に蒸着していく方法。
オーアールアール	ORR	Oxygen Reducaion Reaction の略。
アールエッチイー	RHE	Reversible Hydrogen Electrode(可逆水素電極)の略。この電極の電位を標準の電位として使うことが多い。燃料電池では、燃料極の電位に相当する。
サイクリックボルタモグラム	サイクリックボルタモグラム	ある一定の走査速度で、作用電極の電位を上下に走査させて場合に観察される電流とそのときの電位をプロットしたグラフ。不活性雰囲気中で測定すると、電気二重層容量や触媒の酸化還元特性が評価できる。
カデンアツ	過電圧	実際に観察される電位と、平衡電位との差。
カイカイロデンアツ	開回路電位	電解液を酸素でバブリング、飽和させたときに触媒が示す電位。理論的には、RHE 基準で 25 °C で、1.23 V となる。
サンソカンゲンカイシデンイ	酸素還元開始電位	酸素還元反応が始まる、もっとも高い電位。極微小な酸素還元電流を基準にとり、その電流が流れ

		始める電位として定義する。
サンソクウコウ	酸素空孔	酸化物の結晶構造において、本来、酸化物イオンが存在すべき位置に、酸化物イオンがない場合、それを酸素空孔と呼ぶ。
ヒョウメンジュンイ	表面準位	異元素添加や還元熱処理によって、酸化物粒子の表面に生じる欠陥が示すエネルギー準位のこと。
ヘイコウデンイ	平衡電位	電極反応が平衡状態にある場合に示す電位。酸素還元反応の平衡電位は、RHE 基準で 25 °C で、1.23 V となる。
ユウコウカッセイサイト	有効活性サイト	酸素還元反応が進行しうる活性サイトであっても、電子が連続的に供給されなければ、実際には酸素還元反応は継続的に進行しない。活性サイトの中で、電子供給が行われて、実際に機能する部分を、有効活性サイトと呼んでいる。

課題番号： IP06 「超高電位を目指した酸化物カソードの開発・理論起電力達成のための触媒合成」

読み方	用語	解説
TEM	TEM	透過型電子顕微鏡。薄膜試料およびナノ微粒子の形状や原子配列を観測する。
XPS	XPS	X 線光電子分光法。試料表面に X 線を照射して生成する光電子のエネルギーを測定し、表面から数 nm 深さまでの構成元素とその電子状態の平均的な情報を得る。
イオンビーム	イオンビーム	イオンビームは、イオンで構成される数十 keV～数百 MeV までのエネルギーを持つ荷電粒子ビームの一種である。数十～数百 keV のイオンビームを無機材料に照射すると、材料表面において、原子のはじき出し効果による酸素空孔等の欠陥や原子置換による異種元素のドーピングが可能である。
カキョウコウブンシゼンクタイ	架橋高分子前駆体	高分子鎖を金属錯体で架橋した前駆体を用い、金属酸化物の微粒子を合成したり、担体へ担持したりする手法。
グレイ	Gy	吸収線量の国際単位(SI 単位)であり、物質 1kg 当たりにエネルギーが 1 ジュール(J)吸収された時の吸収線量が 1 グレイ(Gy)である。吸収線量とは、放射線の照射によって物質の単位質量あたりに与えられたエネルギー量のことである。放射線照射利用分野では、単に「線量」とも言う。

ソルボサーマルゴウセイ	ソルボサーマル合成	高温の溶媒を反応媒体とする合成反応。沸点以上の高温溶媒を用いることもある。無機ナノ粒子合成においては、ナノメートルスケールの粒子の合成が可能である。
タンサンジルコニウムアンモニウム	炭酸ジルコニウムアンモニウム	$(\text{NH}_4)_2\text{ZrO}(\text{CO}_3)_2$ で表されるジルコニウム化合物で、水溶性ポリマーやセルロースなどを架橋することから、これらの改質剤として工業的に多用され、安価で多量に流通している。ジルコニウム化合物には珍しく水溶液として取り扱える。
デンシセン	電子線	電子を電場により数十 keV～数十 MeVまで加速した荷電粒子ビームであり、放射線の一種である。1 秒当たりの線量を数万 Gy 程度までに制御可能であるが、貫通できる材料深さが数 cm 程度であるため、膜等の薄い試料の処理に適している。電子線が無機材料に照射すると、弾性散乱や非弾性散乱により、原子中の電子をはじき出す。はじき出された電子が、周りの原子をイオン化・励起することにより、空孔や格子間原子等の欠陥が導入される。
フラットバンドデンイ	フラットバンド電位	電位を変化させることで半導体のショットキー障壁が低くなりバンドが水平になるときの電位。
ホウシャセンハンノウバ	放射線反応場	放射線照射により誘起される活性種を利用した化学反応場。放射線が透過する限りにおいては、極めて均一かつ同時多発的に化学反応を進行させることができる。医療器具の滅菌施設等に利用されている照射施設の利用により、工業的スケールアップも対応可能。
リョウシビーム	量子ビーム	光や電子、原子などミクロの波や粒子が細いビームの形状になったものである。イオンビームや電子線、中性子線、レーザー、放射光等が含まれる。

課題番号： IP07 「超高電位を目指した酸化物カソードの開発・先端計測と理論解析による触媒能発現機構の解明」

読み方	用語	解説
チョウコウデンイ	超高電位	白金などのスケーリング則で制約を受けている触媒では到達しない理論限界に近い電位（ネルンスト電位近傍）

課題番号： IP08 「十四員環型活性点の高活性化・高密度化による革新的非白金触媒の研究開発」

読み方	用語	解説
DOE	DOE	米国エネルギー省。
in-situ ホウシャブンコウ	in-situ 放射光分光	大型放射光施設で X 線を照射し、電気化学反応中の触媒の状態を分析する手法。
MEA	MEA	Membrane and Electrode Assembly の略。膜電極接合体。
RRDE	RRDE	回転リング・ディスク電極。電極触媒活性を電解液を用いたハーフセルで測定する際に用いる電極。作用極となるディスク電極に加えて、Pt 製のリング電極を配することによって、酸素還元によって副生した過酸化水素を定量できる。
コウバイ	Tafel 勾配	電流値の対数を過電圧に対してプロットした Tafel プロットにおける、直線部分の勾配。律速段階に関わる反応電子数に関して知見を得ることができる。
タンケツショウ X センコウゾウカイセキ	単結晶 X 線構造解析	化合物の単結晶に様々な角度から X 線を照射し、えられた回折パターンから 3 次元的な結晶構造を決定する方法。結合距離などを極めて正確に評価できる。
ミツドカンスウホウ	密度汎関数法	DFT 計算とも呼ぶ。第一原理計算の一種。

課題番号：IP09「PEFC 用イオン液体含浸型 Pt/MPC 高活性・高耐久カソード触媒合成技術の研究開発」

読み方	用語	解説
OHヒドク	OH 被毒	Pt 表面での水との副反応によって生成する Pt-OH の形成による触媒能の低下現象。
Pt/C-SCILL	Pt/C-SCILL	イオン液体で表面修飾した Pt/C 触媒。
イオンエキタイ	イオン液体	常温付近でイオンのみからなる液体。
テラヘルツブンコウホウ	テラヘルツ分光法	テラヘルツ波を利用した比較的新しい分析手法で、分子間に働く弱い相互作用を調べることが可能。
パルスジバコウバイ NMRホウ	パルス磁場勾配 NMR 法	物質にパルス磁場勾配をかけることで、核スピンの位置の時間変化に関する情報を得ることができる手法。液体中に混在する多種類の物質の拡散係数を同時に測定することが可能。
メソポーラスカーボン	メソポーラスカーボン	多孔質炭素のうち、メソ孔を多く持つ炭素材料。

		鑄型テンプレートに炭素源を導入後炭化して作製する。
ユリツ	輸率	注目しているイオンによって流れた電気量の割合
ラマンブコウホウ	ラマン分光法	物質に光を照射した際に発生するラマン散乱光の性質を調べることで、物質の分子構造や結晶構造などを評価する手法。同じく分子の振動エネルギーを調べる赤外分光法とは相補的な関係にある。
コウシュウハインピーダンスソクテイ	高周波インピーダンス測定	一般によく用いられるインピーダンス装置より1-2桁程度高いメガヘルツ帯の周波数まで測定可能なインピーダンス装置を用いた測定のこと。

課題番号： IP10 「イオン液体構造を有するアイオノマーによる革新的低白金技術の研究開発」

読み方	用語	解説
イオンエキタイガタポリマー	イオン液体型ポリマー	イオン液体の構造を側鎖に担持したポリマーであり、高分子電解質であるにも関わらずガラス転移温度を有しており、薄膜などへの成形も容易である点の特徴である。アニオンがポリマーとなるポリアニオン型とカチオンがポリマーとなるポリカチオン型が存在する。
イオンエキタイガタモノマー	イオン液体型モノマー	イオン液体のアニオンまたはカチオンに、重合可能な官能基を有するイオン液体であり、ラジカル重合などによりイオン液体の構造を側鎖に有するポリマーを合成することが可能となる。
セイギョラジカルジュウゴウ	制御ラジカル重合	ラジカル重合において可逆的な活性化と不活性化のサイクルを組み込むことにより、長さが揃った高分子の合成を可能とした技術である。重合条件を制御することで、分子量の長さを調節することも可能である。
プロトンセイイオンエキタイ	プロトン性イオン液体	融点が低く、室温付近で液体となるオニウム塩の総称であり、酸塩基反応の媒体となり得るイオン液体群を指す。

課題番号： IP11 「機能性ナノファイバーフレームワークを基本骨格とする低コスト・高耐久性電解質複合膜の研究開発」

読み方	用語	解説

ガスクロスリーク	ガスクロスリーク	互いに分離されているべき燃料電池の反応ガスである水素ガスと酸素ガスが、電解質膜を通り抜け異なる電極側に行くこと。電解質膜の不十分なガスバリア性や、電解質膜の劣化によるピンホールの形成などが原因となる。ガスクロスリークがおこると電圧の低下をもたらす他に、酸素と水素との反応により過酸化水素の発生の要因となる。
スリットダイコーターホウシキ	スリットダイコーター方式	塗工法の一つであり、隙間（スリット）の開いたダイ（die, 口金）から塗工液を押し出し供給しながら塗工する方式。塗工液を供給し続けることで、安定に大面積への均一な塗工が可能であるなど、工業化に適した塗工方法の1つである。
ナノファイバー	ナノファイバー	数ナノメートルから数百ナノメートルの直径と、直径の100倍以上の長さをもつ繊維状の物質。その極めて大きなアスペクト比に由来する超比表面積や、超分子配列効果、高空隙率、ナノサイズ効果などの特徴的な性質を有する。
ラジカルクエンチザイ	ラジカルクエンチ剤	ヒドロキシラジカルやヒドロペルオキシラジカルを消去（クエンチ）するための物質。ヒドロキシラジカルやヒドロペルオキシラジカルは、プロトン交換膜型燃料電池においてガスのクロスリークが起こった際に発生する過酸化水素の分解によって生成すると考えられており、電解質膜の化学的劣化の主要因とされている。ラジカルクエンチ剤を電解質膜に導入することで、電解質膜の長寿命化が期待される。

課題番号： IP12 「150℃運転可能な高耐久超薄コンポジット電解質膜/電極接合体の研究開発」

読み方	用語	解説
CNT	CNT	カーボンナノチューブ（CNT）は、炭素によって作られる六員環ネットワークが単層あるいは多層の同軸管状になった物質。炭素の同素体で、フラーレンの一種に分類されることもある。単層のものをシングルウォールナノチューブ、多層のものをマルチウォールナノチューブという。
ECSA	ECSA	白金有効利用面積(ECSA)とは、白金 1g あたりの活性有効表面積のことで電荷量やカーボンに付着している白金量から算出し、その値が大きくなるほど触媒の性能が良好となる数値。

GPC	GPC	GPC (Gel Permeation Chromatography) とは、細孔を有するカラムを用いることによって、分子サイズが小さい溶質ほど細孔の奥まで入り込むため、溶出が遅くなり、分子サイズが大きいと溶質が細孔深部に入ることができず、溶出が早くなる現象を利用して、測定対象物を分子サイズの違いで分離する手法。主に高分子化合物の分子量決定に用いられる。
IR	IR	赤外 (IR) 分光法とは、測定対象の物質に赤外線を照射し、透過光を分光することでスペクトルを得て、対象物の特性を知る方法。
MEA	MEA	Membrane Electrode Assembly の略で、触媒層と電解質膜とガス拡散層、場合によってはシーリングも備えた燃料電池用膜電極接合体を示す。
NMR	NMR	核磁気共鳴 (NMR) は外部静磁場に置かれた原子核が固有の周波数の電磁波と相互作用する現象を利用して、主にプロトンやカーボンを含む化合物の化学構造を決定する。
PADL	PADL	PADL (Phosphoric Acid Doping Level) は、ベンゾイミダゾール単位に対する添加したオルトリン酸モル比を表す。
アイオノマー	アイオノマー	高分子膜の主鎖およびイオン交換基をイソプロピルアルコールなどの溶媒に溶解させた溶液。乾燥させると高分子膜と近い性状を持つことになる。 電極を作成する際、触媒粒子の結着剤(バインダ)として用いられることが多い。
デンカイシツマク	電解質膜	燃料極で生成したプロトン空気極へと移動する働きを持つ。燃料極側では水分が徐々に失われてしまうので、燃料には水分を含ませる必要がある。この「水を使用する」という条件から、フッ素系は 0℃以下、または 100℃以上での使用が出来ないのが欠点である。そのため、無加湿・中高温条件において、使用可能な高分子膜の開発が急務である。
ポリベンゾイミダゾール	ポリベンゾイミダゾール	ポリベンゾイミダゾール (PBI) は、分解温度が非常に高い合成繊維。融点を示さず、熱的および化学的安定性に優れており、発火しにくい。燃料電池における電解質膜としての利用が期待される。

ミリングシヨリ	ミリング処理	ミリング処理は、円筒状のポットへ硬質ボールをともに挿入し、ポットを適当な回転数で回転することで攪拌する操作である。各種粉体の粉碎、造粒、混合等の操作に用いられる。
---------	--------	---

課題番号： IP13「水素利用等高度化先端技術開発/高伝導無水系電解質膜の研究開発」

エンキセイカンノウキ	塩基性官能基	酸と反応する特定の化学構造を持つ基、原子団。たとえばアミノ基、イミダゾイル基、ピリジル基など。
コウブンシデンカイシツマク	高分子電解質膜	高分子（ポリマー）でできた電解質（陽イオンと陰イオンとに電離する物質）からなる膜。電解質膜、と呼ぶときは通常高分子電解質膜のことを指す。加湿下でプロトン伝導性を発現する。
コタイコウブンシガタネリョウデンチ	固体高分子形燃料電池	高分子電解質膜を電解質として用いている燃料電池。Polymer Electrolyte Fuel Cell (PEFC)。
シュツリョクミツド	出力密度	単位質量、単位容積、単位面積当たりで電池から取り出せるエネルギー量。単位は W/kg、W/L、W/cm ² など。
テイブンシサン	低分子酸	低分子量の酸。揮発性の低い低分子酸としてはリン酸や硫酸などの無機酸が挙げられる。
パーフルオロスルホンサンポリマー	パーフルオロスルホン酸ポリマー	ポリマー主鎖、側鎖上の炭素原子に直接結合している水素原子を全てフッ素原子に置き換えたポリマーで、かつスルホン酸基を有するポリマー。
ハダンヒズミ	破断ひずみ	材料を単純に引っ張ったときの、材料が破断するときのひずみ（変形前の形状に対してどれだけ変形したかを表す値、比率）。最大ひずみ。
ヒツパリキョウド	引張強度	材料を単純に引っ張ったときに発生する最大の応力（材料断面積あたりにかかる力、単位はMPa）。
ブロックポリマー	ブロックポリマー	異なる種類のポリマーをブロック的に共有結合でつないだ複合ポリマー。
プロトンデンドウリツ	プロトン伝導率	プロトンの伝導、輸送のされやすさ。実用の PEFC では 0.1 Scm ⁻¹ (S/cm) 程度の高伝導率を示す電解質膜を使用することが求められる。

ホキョウソウ	補強層	膜の機械強度を補強するために組み込まれる、高強度で多孔質な薄層。不織布等も補強層として使用可能。
ホスホンサンキ	ホスホン酸基	"-P(=O)(OH) ₂ "で表される、リン原子、酸素原子、水素原子からなる酸性の官能基。
ポリ (t-ブチルスチレン)	ポリ (t-ブチルスチレン)	ガラス転移温度が 150℃程度の疎水性のポリマー。
ポリビニルピリジン	ポリビニルピリジン	ピリジル基を有する塩基性ポリマー。
ポリベンズイミダゾール	ポリベンズイミダゾール	エンジニアリングプラスチックの一種。イミダゾール骨格を有し、塩基性ポリマーとみなせる。
マク/デンキョクセツゴウタイ	膜/電極接合体	PEFC の 基 本 構 成 パ ー ツ 。 Membrane Electrode Assembly (MEA)。プロトン伝導性の高分子電解質膜を、ガス拡散層 (GDL) と触媒層からなるガス拡散電極 (GDE) ではさみ込むことで得られる。
ムスイケイデンカイシツマク	無水系電解質膜	無加湿下、もしくは低加湿下で伝導性を発現する高分子電解質膜。
ヤングリツ	ヤング率	材料を単純に引っ張ったときの、ひずみ (変形前の形状に対してどれだけ変形したかを表す値、比率) に対する応力 (材料断面積あたりにかかる力、単位は MPa) の初期勾配。
ヨウシュツヨクセイ	溶出抑制	電解質膜が水とが接触したときに生じる溶出物の量を抑制すること。その技術。

課題番号： IP14 「多機能 OCT を用いた金属異物非接触マイクロ断層検出システムの開発」

読み方	用語	解説
エスディーオーシーティ	SD-OCT	光干渉断層画像法 (OCT) の一つ。干渉光を分光器にてスペクトルとして検出し、逆フーリエ変換を用いてマイクロ断層可視化することができる。時間領域 OCT と異なり、光遅延走査が必要ないため、ドップラー検出には最も有効である。
オーシーティー	OCT	光干渉断層画像法の意味。一般に生体組織のマイクロ断層可視化装置として、臨床 (特に眼底検査など) に実用化されている。低コヒーレンス干渉計の分野であり、奥行き分解能は数マイクロまで向

		上可能である。生体組織への医療用途としては、生体の散乱特性から一般に近赤外光を用いる。
キンゾクコンタミ	金属コンタミ	MEAの内部に、特に最も厚いガス拡散層辺りに金属粒子が混入してしまう現象。生産プロセスでは金属コンタミが比較的高い頻度で発生する。これは燃料電池の性能を著しく低下させ、その品質保証の根幹に関わるため、金属コンタミの検出を低コスト・高効率に実現し、生産ライン上での実装が不可欠である。特に、バスやトラックなどの高温下での運転の場合、異物金属の混入は金属イオンの漏出が発生し、パフォーマンスの低下だけでなく、品質保証にも大きな問題となる。
コウカイゾウドレントゲン	高解像度レントゲン	MEA における金属コンタミの検出のため、現状の生産ラインにて用いられている検出器。金属片の検出のため、X 線（レントゲン）を用い画像計測している。ただし、100 マイクロ程度の金属粒子の検出が必要であるため、高解像度のレントゲンが用いられ、コストが掛かっている。さらに、検出時間も掛かるため、その短縮も大きな課題である。
ドップラーオーシーティー	ドップラーOCT	光干渉断層画像法（OCT）によって検出される低コヒーレンス干渉信号におけるドップラー変調量を検出する装置。すなわち、サンプル内部の運動をドップラー速度としてマイクロ断層可視化することができる。
マクデンキョクセツゴウタイ	膜電極接合体	燃料電池のコア部であり、Membrane Electrode Assembly (MEA) と呼ばれる。再表面にはガス拡散層としてカーボン繊維が両極に用いられ、中心に電解質膜を挟んで触媒層が両側に存在している。

課題番号： IP15 「『湾曲グラファイト網面』をプラットフォームとする革新的カーボンアロイ PEFC カソード触媒の研究開発」

読み方	用語	解説
-----	----	----

<i>in-situ</i> ナノテンプレート法	<i>in-situ</i> ナノテンプレート法	湾曲グラファイト網面を形成するために提案した方法。グラファイト網面を形成する温度領域でナノメートルオーダーの構造を出現させ、グラファイト網面成長をそれに沿って行わせるための鋳型（テンプレート）として作用する。グラファイト網面はこれに沿って進行するため、湾曲グラファイト網面が形成する。本プロジェクトで初めて提案した方法である。
MEA	MEA	Membrane Electrode Assembly の略で、燃料電池で用いられる触媒層と電解質膜とガス拡散層からなる膜電極接合体をいう。
カーボンアロイショックバイ	カーボンアロイ触媒	炭素原子からなるカーボン材料に、異種元素、細孔空間や sp ² 混成軌道以外の混成軌道を持つ炭素原子を加えることで、従来のカーボン材料にはない特性を得る材料設計の方法。これを応用した非白金カソード触媒をカーボンアロイ触媒と尾崎により命名された。
カソードショックバイ	カソード触媒	固体高分子形燃料電池（PEFC）のカソードでは酸素分子の還元反応が、アノードでは水素分子の酸化反応がそれぞれ進行する。そのカソードで起こる反応の速度は、アノードの 100 万分の 1 になるとも言われており、それを補うため、カソードにはアノードよりも多くの白金触媒が用いられてきた。このことは PEFC のコスト高をもたらすため、より安価かつ高活性な非白金カソード触媒の開発が望まれている。
カッセイカゲンソ	活性化元素	本プロジェクトでは、湾曲網面に埋め込む元素を指す。従来型の FeN _x 触媒では、Fe がそれに該当する。
ケイサンスクリプト	計算スクリプト	理論計算を実行する際に、主にメインルーチンとして動作するプログラム。計算スクリプトから各入力ファイルの作成や計算の実行を行う。また、入力ファイルの作成にルールを与え、一意的に計算を行うことを目的とする場合もある。
スナップショット	スナップショット	計算によって得られた構造を描画したもの。ここではグラファイト網面構造を描画している。

バインダレス	バインダレス	触媒とするカーボンは粉末状で提供されるため、これを導電性を持つ電極とするために、通常はナフィオンや PTFE などをバインダ（結着剤）として用いる。ところが、本プロジェクトで実施する劣化試験においては、これらのバインダ成分も反応してしまう可能性があり、解析が困難になる。そこで、バインダレスで電極形成可能なサンプルホルダを考案し、これを有する電解装置を開発し用いている。
ハンノウソクドロンカイセキ	反応速度論解析	化学反応速度を支配する反応次数および活性化エネルギーを、主に反応速度の温度および反応物分圧（濃度）依存性から解析する手法を指す。
ブンシドウリキガク	分子動力学	分子間相互作用から計算される分子にかかる力を求めることで、分子の動きを Newton 方程式に基づいて得る方法である。ここでは、グラファイト網面の構造を炭素原子の力場を考慮することで、安定構造を求めるために用いている。
リバースブンシドウリキガク	リバース分子動力学	実験結果から構造を推定する手法であり、分子動力学法に基づいて分子を実験結果に合うように動かす手法である。ここでは、実験から得られた X 線、または電子線回折パターンに即してグラファイト網面構造を構築するために用いている。
ワンキョクグラファイトモウメン	湾曲グラファイト網面	グラファイト網面は通常六角網目構造からなる平面である。これを一枚取り出したものがグラフェンである。湾曲グラファイト網面は、平面構造を持つ網面に幾何学的な変化を加えることで、その n 電子状態を変え、平面グラファイト網面にはない特性、ここではカソード触媒活性もしくは、この材料の面内に埋め込まれた元素の活性化、をもたらすことを期待して導入された概念である。このような構造は、日清紡ホールディングスが世界初で実用化したカーボンアロイ触媒にも含まれている。湾曲網面を構成する炭素原子の混成状態は完全な sp ³ とは異なると考えられ、この意味においてもカーボンアロイ触媒の一種と言える。

課題番号： IP16 「金属酵素インスパイアド非白金電極触媒の研究開発」

なし

課題番号： IP17 「触媒担体表面の化学修飾技術による P E F C 超高機能界面の創出」

なし

課題番号： IP18 「～1 – nm白金系触媒の構造・組成制御に基づくPEFCカソード触媒の高活性化」

読み方	用語	解説
HAADF-STEM	HAADF-STEM	細く絞った電子線を試料に走査させ、透過電子のうち高角に散乱したものを環状の検出器で検出する方法
XAFS	XAFS	X線吸収端近傍のエネルギーで吸収スペクトルにおいて観測される振動構造
サンソカンゲンハンノウ	酸素還元反応(ORR)	酸素を還元し水にする反応。これにより水素と酸素より電流を取り出せる。
シツリョウカッセイ	質量活性	白金(Pt)1原子辺りのORR活性
ハッキンナノクラスター	白金ナノクラスター(Pt NC)	白金(Pt)原子が凝集した1 nm程度の凝集体
ハッキンナノリュウシ	白金ナノ粒子(Pt NP)	白金(Pt)原子が凝集した2-5 nm程度の凝集体
マテリアルズインフォマテイクス	マテリアルズインフォマテイクス	計算科学や情報科学の力で材料開発のスピードをアップさせる試みであり、原子配列のような物性の特性をコンピューター上で計算させたり、あるいは過去のシミュレーションデータや論文データを機械学習によって分析させたりすることにより、材料探索を進める。

課題番号： IP19 「燃料電池高温低加湿運転に向けた炭化水素系およびガラス系無機電解質膜の研究開発」

読み方	用語	解説
CCM	CCM	表面に触媒を塗工した電解質膜 (catalyst coated membrane)。
CDP	CDP (CsH ₂ PO ₄)	室温で単斜晶系に属する水素結合型結晶体。約 230℃近傍で立方晶構造へ相転移することにより、超プロトン伝導性を示す。
CSPPSU	CSPPSU	スルホン化ポリフェニルスルホンのスルホン基同士が重合により結合(-SO ₂ -)しているものである。熱的・化学的特性が向上する。
HC マク	HC 膜	炭化水素系膜
HDV	HDV	Heavy Duty Vehicle。トラックやバスといった高負荷車両を指す。
MEA	MEA	膜 – 電解質膜接合体 (membrane-electrode assembly)。

POSS	POSS(シルセスキオキサン)	一辺が 0.3nm のシリカの立方体構造を中心に、各頂点に有機官能基を持つ物質。
PPSU	PPSU	ポリフェニルスルホン樹脂。スルホニル基(-SO ₂ -)を含むポリマーである。 スルホン(-SO ₂ -)、エーテル(-O-)鎖で結合した芳香基（フェニレン）から構成される。スーパーエンブラともいわれる。
RH	RH	相対湿度 (relative humidity)
SPPSU	SPPSU	ポリフェニルスルホンの芳香基（フェニレン）にスルホン基(-SO ₃ H)が結合しているものである。有機溶媒などに溶かして成膜できる。プロトン電解質膜になる。
アイオノマ	アイオノマ	高分子膜の主鎖およびイオン交換基をイソプロピルアルコールなどの溶媒に溶解させた溶液。乾燥させると高分子膜と近い性状を持つことになる。 電極を作成する際、触媒粒子の結着剤(バインダ)として用いられることが多い。
イオンコウカンヨウリョウ	イオン交換容量(IEC)	イオン交換反応により保持できる最大のイオン量。イオン交換容量は伝導度と関係あり、イオン交換容量が高いと伝導度も高い傾向になる。
イオンセイエキタイ	イオン性液体	液体として存在する塩（アニオンとカチオンで構成される）
ガラスケイムキマク	ガラス系無機膜	リン酸塩ガラス中のアルカリイオン（ナトリウムイオンなど）をプロトンへ電気化学的に置換する方法を用いてプロトン伝導性付与した電解質膜
スルホンカド	スルホン化度	単位ポリマー当たりのスルホン基数。

課題番号： HS01 「CFRP 製水素タンクのマルチスケール設計・評価解析技術の研究開発」

読み方	用語	解説
シーエフアールピー	CFRP	炭素繊維強化プラスチック（Carbon Fiber Reinforced Plastics）。炭素繊維を樹脂で固めた材料。軽量ながら高い力学的特性・強度特性を発現するため、水素貯蔵タンク用の構造材料として用いられている。
FW（フィラメントワインディング）	FW（Filament Winding）	炭素繊維束に樹脂を含浸したものをマンドレル（樹脂ライナを利用）に巻き付けてCFRPタンクを製造する。トヨタのMirai搭載のCFRPタンクなど、水素タンクの標準的な製造方法。

エックスセン CT	X 線 CT	X 線の透過量の差異を用いて、材料内部構造を観察し、コンピュータトモグラフィ技術を用いて可視化する観察手法。密度の差異を可視化できるため、ポイド観察や繊維うねりなどの観察に利用可能である。
マルチスケールカイセキ	マルチスケール解析	繊維/樹脂のようなマイクロスケールから実大タンクのマクロスケールをつなげる構造材料解析手法
マイクロスケールカイセキ	マイクロスケール解析	繊維と樹脂を別々にモデル化し、微視スケールの応力解析を行う手法
メゾスケールカイセキ	メゾスケール解析	繊維と樹脂を含む材料を平均的な力学応答を用いて、CFRP の 1 つの層を均質材料としてモデル化し、積層構造などの応力解析を行う手法

課題番号： HS02 「低コストと高性能を両立した炭素繊維の研究開発」

読み方	用語	解説
O/C	O/C	XPS 測定で得られる O1s ピークと C1s のピーク面積比として得られる値。含酸素官能基量の指標である。
XPS	XPS	X 線光電子分光測定の略語
サーキュラーエコノミー	サーキュラーエコノミー	これまで経済活動のなかで廃棄されていた製品や原材料などを「資源」と考え、リサイクル・再利用などで活用し、資源を循環させる、新しい経済システムです。
サステナビリティ	サステナビリティ	持続可能な社会構成のこと
しつきぼうし	湿式紡糸	原料高分子を溶剤に溶かし、その溶液を貧溶媒中に突出して、溶剤を脱溶媒して高分子を繊維状に析出させる紡糸方法
ぜんくたい	前駆体	原料と同義語
たんそせんい	炭素繊維	有機繊維のプレカーサーを加熱炭素化処理して得られる、質量比で 90%以上が炭素で構成される繊維。
たんそせんいきょうかプラスチック	炭素繊維強化プラスチック	プラスチックを炭素繊維で強化した複合材料。Carbon Fiber Reinforced Plastic の略語として CFRP と略される。
たんそもうめん	炭素綱面	黒鉛結晶を構成する炭素原子 6 個で構成された六角形の広がりて構成されたシート。いわゆるグラフェンシートである。
とうたつかのうきょうど	到達可能強度	その材料が構造的にどこまで強くなるかの指標。
とうほうせい	等方性	材料の強さや構造に方向依存性がない状態。対

		義語は異方性
トライアンドエラー	トライアンドエラー	課題に対して、思いつく方法を次々に試みて失敗を重ねていくうちに、解決するに至る開発手法。
はいごう	配向	材料に異方性を与えること。
ひっぱりだんせいりつ・きょうど	引張弾性率・強度	引張試験で得られる応力-歪み曲線の初期傾きと破断時の応力から得られる数値。剛直性および強さの指標。炭素繊維の場合、JIS R 7606 で測定方法が規格化されている。
フラグメンテーションしけん	フラグメンテーション試験	単繊維が埋没した樹脂を引っ張り、界面を通じて繊維に応力が伝達され、埋没された繊維が細断化させる。細断化した繊維の長さを計測して、界面剪断強度を求める試験
ポリアクリロニトリル	ポリアクリロニトリル	高分子の一つ種類。衣服にも使われるが、炭素繊維の原料高分子の一つとして有名である（通称 PAN 系炭素繊維と呼ばれる）。市販される炭素繊維の 90%以上は PAN 系炭素繊維である。
マルチホール	マルチホール	多数の穴が空いた状態。マルチホール紡糸というと、多数の穴から同時に樹脂を押し出すことで、繊維を束で製造することを意味する。
かいめんせんだんきょうど	界面剪断強度	炭素繊維と樹脂間の剪断破壊する応力。炭素繊維と樹脂の接着力の指標。
こうかくエックスせんかいせつ	広角 X 線回折	X 線を試料に照射して、結晶構造の規則性に起因して、回折像が得られる。解析することによって、結晶サイズや結晶化度など求めることができる。通常、回折像が 10-90 度で観察されることから「広角」と言われる。
じゅうしつたんかすいそ	重質炭化水素	高分子までは分子量はないものの、炭素と水素で構成される分子量が大きい分子のこと。おおよそ分子量が数百から 1000 程度である。
しょうかくエックスせんさんらん	小角 X 線散乱	「広角」と区別しておおよそ 10 度以下の領域の試料に X 線を照射して構造を評価するための試験。結晶のような規則正しいものでなく、ポイドなどの周期性で得られる散乱像を用いて解析することが多い。ポイド量やサイズを評価できる。
たいえん・ふゆうかしより	耐炎・不融化处理	炭素化熱処理によって、前駆体が燃えたり溶けたりしない状態にするための処理。
ぶんしどうりきがく	分子動力学	物質の状態やさまざまな物理現象を、分子または原子の微視的なふるまいから考察すること。

課題番号： HS03「車載機器用高圧水素適合性高分子材料評価法およびデータベースの確立」

読み方	用語	解説
Gy	Gy	吸収線量の国際単位(SI 単位)であり、物質 1kg 当たりにエネルギーが 1 ジュール(J)吸収された時の吸収線量が 1 グレイ(Gy)である。吸収線量とは、放射線の照射によって物質の単位質量あたりに与えられたエネルギー量のことである。放射線照射利用分野では、単に「線量」とも言う。
カキョウ	架橋	高分子主鎖の間に化学結合を形成すること、または形成された結合のことを示す。
ガンマセン	ガンマ線	最も波長の短い電磁波であり、放射線の一種である。工業用ガンマ線源として、コバルト 60 が広く用いられている(半減期：5.27 年)。1 時間当たりの線量は数百から 1 万 Gy 程度であるが、貫通できる材料深さは数 m であるため、少ない線量域で架橋処理できる試料や大きな構造体の照射に適している。
ゲルブリンツ	ゲル分率	ゲル分率とは一般的に高分子材料の硬化の度合い、すなわち架橋度を表す指標である。高分子材料が可溶性溶媒を用い、溶媒に浸漬する前の試料の質量 M1 を測定し、浸漬・乾燥後の質量 M2 を測定する。ゲル分率 (%) = $M2/M1 \times 100$ として表す。
コウフクビ	降伏伸び	材料に弾性変形の限界を超える外力を加えた際、塑性変形が発生する。塑性変形の開始を降伏と呼び、降伏が始まる際の伸度を降伏伸びと呼ぶ。
スイソトウカケイスウ	水素透過係数	水素を含むガスの透過量をガスの試験片両面の圧力差、試験片の面積・厚さ、時間により規格化した量である。ガスの透過係数は透過量(標準状態での体積、モル量など)に厚さを乗じ、圧力差、面積、時間で除した値である。cm ³ (STP)・cm/(s・cm ² ・cmHg)などの単位が用いられる。

デンシセン	電子線	電子を電場により数十 keV～数十 MeVまで加速した荷電粒子ビームであり、放射線の一種である。1 秒当たりの線量を数万 Gy 程度までに制御可能であるが、貫通できる材料深さが数 cm 程度であるため、高線量の照射が必要な場合や、膜材等の薄い試料の架橋処理に適している。
ポリオレフィンケイジュシ	ポリオレフィン系樹脂	オレフィン分子中に炭素-炭素二重結合を持つ炭化水素の総称であり、オレフィンを単量体として重合したものをポリオレフィンと呼ぶ。ポリオレフィン系樹脂は炭化水素系樹脂の総称である。
ポリマーアロイ	ポリマーアロイ	複数の高分子材料（ポリマー）をブロック共重合やグラフト共重合などの手法により混合、改質することにより、新しい特性を示すプラスチック材料を示す。
ポリマーブレンド	ポリマーブレンド	複数の高分子材料（ポリマー）を混練など物理的なプロセスにより混合、改質することにより、新しい特性を示すプラスチック材料を示す。
カキョウテンカンブンシリョウ	架橋点間分子量	高分子主鎖の間に形成された化学結合による架橋の間の分子鎖の長さ、すなわち分子量を架橋点間分子量という。
シボウゾクポリアミド	脂肪族ポリアミド	ポリアミド分子中にフェニル基、フェニレン基などの芳香族系官能基を持たないものの総称である。
ジユウタイセキ	自由体積	高分子材料の非晶領域を構成する分子鎖が凝集した状態で生成する間隙の体積を言う。ゴム状態では分子鎖は熱振動（ミクロブラウン運動）しているため、自由体積は常に変化している。一般的に自由体積が大きい材料はガス透過性が高くなり、破断伸びが大きくなる。
ショウオンダツリガスブンセキホウ	昇温脱離ガス分析法	測定対象ガス（ペネトラント：浸透分子）により飽和された試験体を一定温度、または昇温過程に置き、脱離する浸透分子の量の経時変化をキャリアガス中の濃度としてガスクロマトグラフィにより定量する方法。本研究では、高圧水素ガスに曝露することで水素により飽和した樹脂試験片を減圧後、アルゴン気流下定温で保持し、アルゴンガス

		中の水素濃度の経時変化測定を実施した。
ヨウデンシヨウメツホウ	陽電子消滅法	高分子材料や金属、半導体中のサブ nm オーダーの空隙のサイズを評価する方法である。電子と質量が同じで電荷がプラスとなる電子の反粒子である陽電子(Positron)を材料に照射すると、材料中のサブ nm オーダーの空隙にトラップされ、材料を構成する分子の電子との相互作用により消滅する。陽電子が消滅するまでの時間を計測することで、材料中の空隙体積の評価が可能となる。

課題番号： HS04 「移動式 F C 用水素源アンモニアボランの社会実装に向けた先端技術開発」

読み方	用語	解説
エフシー	FC	燃料電池の略。
イオンネキタイ	イオン液体（略称：IL）	100 °C 以下に融点を持つイオン性化合物。多くはカチオンまたはアニオンが分子量の大きな有機物である。
カスイブンカイ	加水分解	水素貯蔵材料が水と反応し、水素を放出する現象
ネツブンカイ	熱分解	広義では加熱により分解し別の化合物となる現象であるが、ここでは加熱や化学反応により水と反応せず水素を放出する現象を指す。
ヨウカイエンタルピー	溶解エンタルピー	物質が液体に溶ける際にやり取りするエネルギー。基本的に溶解熱と同じである。

課題番号： HS05 「革新的低コスト燃料電池自動車用高圧水素容器の健全性を保証するための非破壊検査、オンラインモニタリング、損傷許容技術の開発」

読み方	用語	解説
AE(アコースティック・エミッション)	AE	材料中に微小欠陥が発生した際、同時に弾性波（超音波帯の微小振動）が放出される現象
AE(アコースティック・エミッション)ホウ	AE 法	AE を材料表面に取り付けた圧電素子や光ファイバなどのセンサで検出することにより、AE 源となった材料中の微小欠陥の発生時刻・位置・大きさ・モード(方向)などを知る非破壊検査手法
CFRP	CFRP	Carbon Fiber Reinforced Plastic (炭素繊維強化プラスチック) の略。CFRP の構成要素は強化材である炭素繊維、母材であるプラスチック

		(樹脂)、およびそれらの界面である
CNT	CNT	Carbon Nanotube (カーボンナノチューブ) の略
CNT センサ	CNT センサ	CNT を分散させて固定したフィルムで、ひずみが変わると CNT 同士の接触点や距離が変化し、フィルム全体の電気抵抗が変化する。その電気抵抗変化を利用することでひずみセンサとなる
CNT プリプレグ	CNT プリプレグ	CNT を未硬化の樹脂中に分散させたフィルムで、加熱して硬化させると、CNT 強化プラスチック複合材料となる
CNT ペースト	CNT ペースト	CNT を液体中に分散させた導電性のペーストで、導電性添加剤として使用できる
CW	CW	Continuous Wave (連続波) の略
GFRP	GFRP	Glass Fiber Reinforced Plastic (ガラス繊維強化プラスチック) の略。高圧水素容器の外表面に用いられているため GFRP 層を介して内側の CFRP 層の検査を行う必要がある
NDT	NDT	Non-Destructive Testing (非破壊検査) の略
S-N センズ	S-N 線図	負荷応力と寿命の関係を表す線図
エスエヌ比	SN 比	検出される信号振幅と装置自体に生じているノイズ振幅の割合
テラヘルツハ	THz 波	波長 30 μm ~1 mm の遠赤外光。樹脂や紙、半導体などに高い透過性を持つ。高分子の振動スペクトルを多数含むため、高分子配向などに特に敏感である。
マイクロ CT スキャン	μCT スキャン	X 線撮影を 360°全方位から行い、物体の内部を高解像度で計測する技術
オーバーレイ	オーバーレイ	接合時の当て板
ガイドハ	ガイド波	板などの薄肉部材を伝搬する弾性波の総称
スカーフツギテ	スカーフ継手	突合せ継手において、接合部の面積を大きくして継手の強度を高めるために、部材の接合面を互いに斜めにそいで接合する継手
スカーフカド	スカーフ角度	スカーフ継手の接合面が、継手の長手方向と成す角度。
トランスバースクラック	トランスバースクラック	CFRP の樹脂内に、荷重に方向に対して 90°方向に発生する割れ

ライナ	ライナ	複合圧力容器の構成要素であり、容器の気密性を保たせるために用いられる。容器の強度は、ライナの上に巻き付けた強化繊維が負担する。MIRAIに用いられている高圧水素タンクでは、樹脂製のライナが使用されている
リフトオフ	リフトオフ	プローブ下面と試験対象との間の距離
ウズデンリュウシケン	渦電流試験	電磁誘導現象による誘導電流を検出コイルなどにより測定することにより、対象物におけるきずなどを検出する試験法。CFRPに適用する場合は、導体である炭素繊維に関するきずを検出対象とする
キュウシュウケイスウ	吸収係数	光が媒質に入射した際にどの程度を吸収されるのかを示す定数。入射光強度が $1/e$ になるまでに光が進む距離の逆数で表される。
ジュシワレ	樹脂割れ	CFRPの母材となるプラスチックの割れ

課題番号： HS06 「非 FW／分割プリフォームおよび新規樹脂（REDOX 硬化型樹脂）による高圧水素タンクの革新的ハイレート製造プロセスの開発」

読み方	用語	解説
FW	FW	フィラメントワインディング（Filament Winding）の略語で、FW は、液状の樹脂を含浸した繊維トウををマンドレルに巻き付けた後、加熱硬化させる成形法。樹脂槽に繊維トウを浸しながら巻き付ける方法と、あらかじめトウを樹脂に含浸させたトウプリプレグを巻き付ける方法がある。水素タンクの成形の多くに用いられる方法。
REDOX コウカガタジュシ	REDOX 硬化型樹脂	アクリレートやメタクリレート等のラジカル重合性不飽和結合含有モノマーを、有機過酸化物を開始剤としてラジカル重合させる熱硬化性樹脂システムにおいて、第三成分として有機金属化合物や第3級アミン化合物を添加または接触させることにより、有機過酸化物が本来有する活性化温度よりも遥かに低い温度で有機過酸化物を強制的に還元分解させ（REDOX 反応）、ラジカルを発生させることによりモノマーのラジカル重合を開始させる仕組みを利用した熱硬化性樹脂システム。還元剤との混合が分子レベルでなくてもラジカルがある程度の距離伝播して重合が均一に行われること、また比較的低温でも素早い硬化ができることが特長。

プリフォーム	プリフォーム	立体的な製品形状に予備賦形された状態の中間基材。本課題では、高圧水素タンクをドーム部とシリンダー部で分割、プリフォーム化するコンセプトを採用。
テイツ RTM	低圧 RTM	RTM (Resin Transfer Molding) は、オス/メス金型による密閉型内 (クローズドモールド) に、繊維基材からなるプリフォームを設けて、マトリクス樹脂を加圧注入/含浸する FRP 成形プロセスである。RTM の中で、注入圧力が 1MPa 程度以下の低圧を用いるプロセスを低圧 RTM (Low Pressure RTM) に分類される。低圧 RTM の場合は、型に樹脂型、FRP 型、フィルムバックなど金属型以外を適用可能である。

課題番号： HS07 「水素貯蔵効率向上に向けた水素タンクの研究開発」

読み方	用語	解説
Sv ち	Sv 値	単位体積当たりの比表面積。単位は m^2/cm^3 。
ZTC	ZTC	Zeolite Templated carbon ゼオライトを鋳型とした炭素。水素吸着材料。
さいこうけい	細孔径	多孔質や多孔質材料が持つ微細な空孔の大きさ。
スーパーゲージ	スーパーゲージ	ゼオライトの Si-O 骨格で取り囲まれたほぼ球状の空間。
スピルオーバー	スピルオーバー	金属と担体からなる固体触媒で、金属や金属化合物の表面に吸着された水素などの物質が、拡散によって触媒表面上や触媒の担体の表面上などを移動し、炭素や金属酸化物、固体酸などの担体へと移動する現象。
ひひょうめんせき	比表面積	単位質量あたりの表面積または単位体積あたりの表面積のことである。界面に関する学問、界面化学やコロイド化学、あるいは触媒化学などで主に使われる指標である。触媒を用いたガス吸着など、表面の物理的な活性が重要となるものにおいては表面の多さがその活性と直結する。

課題番号： HS08 「機械学習を用いた高圧水素複合容器の最適設計技術に関する理論検討及び実証研究」

読み方	用語	解説
-----	----	----

CFRP	CFRP	炭素繊維強化プラスチック（Carbon Fiber Reinforced Plastic）の略称。プラスチックを母材とし、そこに炭素繊維を強化材として加えたもの。軽量、高強度、腐食しないといった特徴を有している。
FCV	FCV	燃料電池自動車（Fuel Cell Vehicle）の略称。
FE モデル	FE モデル	有限要素（Finite Element）モデルの略称。
HV	HV	ハイブリッド自動車（Hybrid Vehicle）の略称。
クチガネ	口金	タイプ4 水素容器の端部に設置されバルブ等を接続する金具。
タイプフォーヨウキ	タイプ4 容器	CFRP 製高圧水素容器の一種別。タイプ4 容器は高密度ポリエチレン製ライナーの全面に CFRP を巻き付けて成形した容器を指す。
ポイド	ポイド	材料内部に生じた空隙状の欠陥。本プロジェクトでは CFRP に生じる空隙を指す。
メゾスケールズームング カイセキ	メゾスケールズームング解析	メゾスケールモデルを用いて詳細解析を行う手法。CFRP を連続体として解析を行い、その一部分について適切なメゾスケールモデルを設定してズームングして解析を行う手法。
メゾスケールユウゲンヨ ウソカイセキ	メゾスケール有限要素解析	炭素繊維束とマトリクス樹脂を区分するメゾスケールモデルを用いて CFRP 層の正確な破壊解析を有限要素方にて行う手法。
ユウゲンヨウソカイセキ	有限要素解析	解析的に解くことが難しい微分方程式の近似解をコンピュータシミュレーションにて得る方法。本プロジェクトにおいてはタイプ4 高圧水素容器をコンピュータ上でモデリングし、破裂圧力を予測することに用いる。
ライナー	ライナー	水素ガスを遮蔽するための内槽。
ワインディングパターン	ワインディングパターン	炭素繊維束を巻き付けてタイプ4 容器を成形するフィラメントワインディング手法で、炭素繊維束を巻きつけていく経路のパターン。

課題番号： IS01 「可逆動作可能な固体酸化物燃料電池の開発とエネルギー貯蔵システム」

読み方	用語	解説
-----	----	----

LSGM	LSGM	La _{0.9} Sr _{0.1} Ga _{0.8} Mg _{0.2} O ₃ のこと。ペロブスカイト型酸化物で純酸素イオン伝導を示す高酸素イオン伝導体
PCM	PCM	相変化における潜熱を利用して蓄熱、放熱を行う蓄熱材のこと
SORC	SORC	燃料電池と水蒸気電解のいずれにも優れた可逆性を示すセルのこと
インフィルトレーション	インフィルトレーション	修飾物の水溶液を用いて
コアシェル	コアシェル	卵の殻のように外部と内部で組成などが異なる材料のこと
スイジョウキデンカイ	水蒸気電解	酸化物イオン伝導体を電解質とする 100℃以上での電解セルのことをさし、少ない電力で電解を行うことが可能で、高効率電解の達成が期待される。
ディップコート法	ディップコート法	スラリーに多孔質基板を浸漬することで、薄膜を作成する手法で、簡便な装置である都度の膜厚の薄膜を作成できる。
マイクロカプセル	マイクロカプセル	マイクロサイズのカプセル状物質のこと

課題番号： IS02 「高効率・高耐久・可逆作動 SOFC の研究開発」

読み方	用語	解説
DRT カイセキ	DRT 解析	DRT は Distribution of Relaxation Times の略で、緩和時間分布解析法である。周波数を掃引して測定した電気化学インピーダンススペクトルを逆フーリエ変換することにより求められる緩和時間分布関数（DRT スペクトル）を用いて、分極抵抗成分を分離する手法。
FIB	FIB	Focused Ion Beam（集束イオンビーム）の略。一般に、電子顕微鏡で観察するために真空チャンバー中で収束した Ga イオンビームを試料に照射して加工すること。
Ni ロス	Ni ロス	Ni を含有する水素極から、移動や飛散などにより電解質界面付近から Ni が失われる現象。特に、SOEC で観測されている。
Power to Gas	Power to Gas	電力（Power）をガスに変換して貯蔵すること。P2Gとも略される。一般に、再生可能電力で水電解して水素を貯蔵することを意味する。

SDC	SDC	Samaria Doped Ceria : 酸化サマリウムをドーピングした酸化セリウムの略。本研究では $(\text{CeO}_2)_{0.8}(\text{SmO}_{1.5})_{0.2}$ の組成であり、高温で空気等の酸化雰囲気では酸化物イオン伝導性、水素を含む還元雰囲気では、酸化物イオン伝導性と電子伝導性の混合伝導性を示すため、可逆 SOFC の水素極材料に適している。
SOEC	SOEC	Solid Oxide Electrolysis Cell の略で、SOFC を逆作動させた固体酸化物形電解セルまたは水蒸気電解セルとも呼ばれる。
アドバンスガタセル	アドバンス型セル	本研究プロジェクトで開発する、これまでよりも高効率で高耐久な新型セル。
カギャクサドウ SOFC	可逆作動 SOFC	固体酸化物形燃料電池 (SOFC : Solid Oxide Fuel Cell) は、水素や天然ガス等の燃料を供給して高効率な発電が可能であるが、逆作動させて水蒸気を供給して電解する SOEC として高効率に水素を製造できる。SOFC/SOEC 両方のモードで作動可能なセルを可逆作動 SOFC と呼ぶ。
ガスシールザイリョウ	ガスシール材料	SOFC や SOEC で、水素や燃料等の可燃性ガスを供給・排出する箇所でガスが漏れないように封止する材料。SOEC で水素製造する際に、水素がリークすると効率ロスになるので特に重要視されている。
デンキカガクインピーダンス	電気化学インピーダンス	電位あるいは電流制御下で、交流信号を重畳して測定したインピーダンス。

課題番号 : IS03 「可逆動作型プロトン伝導セラミック燃料電池の新規な健全性評価・解析技術の開発」

読み方	用語	解説
DEI	DEI	回折強調イメージング(diffraction-enhanced imaging)の略称で、試料を透過した X 線を画素毎に単結晶分光器で回折曲線を測定することに相当する。得られた画像を処理することにより、通常の吸収コントラスト像に加え、X 線位相コントラスト像、SAXS 像が得られる。一般にはシンクロトロン放射光源のような加速器光源を用いて行われる。
IP	IP	イメージングプレートの略で、積分型の X 線撮像装置。従来の X 線フィルムと同様に、X 線・放射線を

		照射後にスキャナー装置で X 線像を読みだす。フィルムと異なり、繰り返し使用が可能。
レブラ	LEBRA	日本大学電子線利用研究施設(Laboratory for Electron Beam Research and Application)の略称。125MeV 電子リニアックを基盤とする加速器光源施設であり、近赤外自由電子レーザー(FEL)、PXR によるエネルギー可変単色 X 線源、コヒーレント放射によるテラヘルツ光源を学内利用者を中心に共同利用研究に供している。
PBI	PBI	Propagation-based imaging の略で、伝搬法とも呼ばれる X 線位相コントラストイメージング手法の 1 種である。試料境界で異なる屈折を受けた X 線がある程度の距離(数 10cm~数 10m)飛行したところで干渉し、エッジが強調された画像となる。DEI に比べ、X 線の位相シフト(屈折)に対する感度は低いが、簡単な実験セットアップで測定可能。
PXR	PXR	パラメトリック X 線放射(parametric X-ray radiation)の略称で、相対論的荷電粒子(電子)と結晶媒質の相互作用で発生する X 線放射現象。単色でエネルギー(波長)が連続的に可変という特徴がある。
サックスイメージング	SAXS イメージング	X 線が試料物質を透過する際に生じる X 線小角散乱の程度をコントラストとするイメージング手法。物質の密度には依存せず、微細構造の有無やその異方性に敏感である。シンクロトロン放射光源のような加速器光源を用いないと困難な手法である。
ウルトラサックス(ユーサックス)	USAXS	超小角領域の X 線小角散乱現象(small-angle X-ray scattering)のこと。試料媒質中にサブミクロン~数ミクロンの粒子状/繊維状構造があると、透過する X 線は 10~100 μ rad 程度の散乱を受ける。

X せんいそうコントラスト	X 線位相コントラスト	X 線が試料物質を透過する際に生じる X 線の波動としての位相シフトを利用して形成する画像のコントラスト。実際的には境界面で生じる X 線の屈折を利用する手法が多い。物質の密度差や境界を高感度に画像化できるという特徴がある。
リニアック	リニアック	線形加速器のことで、強力なマイクロ波が導体空洞共振器内に形成する高周波電場を用いて荷電粒子を加速するタイプが主流である。
PCFC	PCFC	プロトン伝導セラミック燃料電池の略称で大ぐりでは SOFC の一種。電解質中を水素イオンが移動する燃料電池を指す
PCEC	PCEC	プロトン伝導セラミック電解セルの略称で電気をセルに通電し高温で水蒸気を電解し、水素やメタンなどを生成する
アール-エスオーシー	r-SOC	リバーシブル固体酸化物セルの略称で発電と電解を一つのセルで動作させることのできるセル
ピーシーシー	PCC	プロトンセラミックセルの略称で、SOC のうち特にプロトン伝導セルを指す。発電・電解を区別しない場合に用語として用いた
ボタンセル	ボタンセル	商用時のセルは大面積であるのに対し、試験的に特性評価を行うときに用いるΦ20mm 程度のコイン型セルを指す
オーミックテイコウ	オーミック抵抗	オームの法則が成り立つような電解質のイオン抵抗や電極の電子導電性に起因する抵抗分。電流遮断法を用いた場合には電流を遮断した際に、急激に変化する電圧上昇分を遮断電流で除した抵抗値を指す。また、交流インピーダンス法を用いた場合にはナイキスト線図において虚数成分（容量・インダクタンス）が 0 となる実数軸との交点の値を指す。
オーミックソン	オーミック損	電流×オーミック抵抗で表されるオーミック抵抗分によって低下する電圧降下分。
ネンリョウキョク	燃料極	発電（FC）モードではアノードと呼ばれ、電解（EC）モードではカソードと呼ばれるため、本事業の中では H ₂ の消費/発生する電極を燃料極と呼

		ぶ。
クウキキョク	空気極	発電（FC）モードではカソードと呼ばれ、電解（EC）モードではアノードと呼ばれるため、本事業の中では O ₂ の消費/発生する電極を空気極と呼ぶ。

課題番号： IS04 「低温作動水素透過膜支持型燃料電池の研究開発事業」

読み方	用語	解説
BLFZ	BLFZ	Ba _{0.95} La _{0.05} Fe _{0.8} Zn _{0.2} O _{3-d} の略称。H ⁺ /O ₂ ⁻ /e ⁻ 三重伝導性酸化物で、カソード機能層材料。
BZCM	BZCM	プロトン伝導性 BaZr _{1-x-y} Ce _x M _y O _{3-d} (M=Y, Yb, Sc, In etc) の略称。プロトン伝導性セラミックス電解質の総称。
BZCY1711	BZCY1711	BaZr _{0.1} Ce _{0.7} Yb _{0.1} Y _{0.1} O _{3-d} の略称。プロトン電解質材料。
BZCYYb6211	BZCYYb6211	BaZr _{0.6} Ce _{0.2} Yb _{0.1} Y _{0.1} O _{3-d} の略称。プロトン電解質材料。
BZI	BZI	BaZr _{0.5} In _{0.5} O _{3-d} の略称。プロトン電解質材料。
BZSc55	BZSc55	BaZr _{0.5} Sc _{0.5} O _{3-d} の略称。プロトン電解質材料。
CFL	CFL	カソード機能層。電解質とカソードの間に形成する酸化物薄膜(~150 nm)。
H-BZI	H-BZI	BaZr _{0.5} In _{0.5} O _{2.25} H _{0.5} という組成のペロブスカイト型酸水素化物であり、ヒドライドオン(H ⁻)および電子の混合伝導性による水素透過性を示す。BZI を 800 度水素中で加熱して得られる。
HMFC	HMFC	水素透過膜支持型燃料電池の略称。水素透過固体基板をアノード都市、その表面にプロトン伝導性電解質薄膜を積層した構造を持つ。
LSC	LSC	La _{0.5} Sr _{0.5} CoO _{3-d} の略称。
Ni-サーメット	Ni-サーメット	Ni とイオン伝導性セラミックスの多孔質複合体。一般的なセラミックス燃料電池のアノードに使用される材料。
PBSCF	PBSCF	PrBa _{0.5} Sr _{0.5} Co _{1.5} Fe _{0.5} O _{5+d} の略称。H ⁺ /O ²⁻ /e ⁻ 三重伝導性酸化物で、カソード材料。

課題番号： MU01 「MEA 高速生産技術および検査技術の開発」

読み方	用語	解説
3LayerMEA	3LayerMEA	電解質膜の表裏面に触媒が形成された物 CCM と同様の物であり、一般的には CCM と称す 事が多い MEA は、Membrane Electrode Assembly の 略称
4LayerMEA	4LayerMEA	CCM の片面の電極周囲にサブガスケットが取り付けられた物
5LayerMEA	5LayerMEA	CCM の両面の電極周囲にサブガスケットが取り付けられた物
7LayerMEA	7LayerMEA	5LayerMEA の電極部の両面に GDL が取り付けられた物
CCM	CCM	電解質膜の表裏面に触媒が形成された物 CCM は、Catalyst Coated Membrane の略称
GDL	GDL	ガス拡散層の事 GDL は、Gas Diffusion Layer の略称
サブガスケット	サブガスケット	電解質膜とガスケットの間に入る膜（樹脂）であり、接着層を有することで、ガスケット単体で使うよりもガス漏れを防ぐ効果がある。
シヨクバイインク	触媒インク	白金触媒、アイオノマーを水、溶剤などでスラリー化させたインクの事。この触媒インクを塗工・乾燥させた物が触媒層となる。

課題番号： MU02 「高出力燃料電池搭載内航船舶の実用化に向けた実証」

読み方	用語	解説
ALARP リウイキ	ALARP 領域	ALARP 領域は、そのリスクが許容されるわけではないが、ある便益を確保するためには、リスクが適切に制御されているという条件の下で、そのリスクを伴う生活を受容する（我慢する）領域である。
ESDS	ESDS	Emergency Shut Down System の略。緊急時（＝非常時）に停止するシステムのことを指す。
HAZID	HAZID	Hazard Identification Study の略。プラントやシステムなどにおける安全性評価手法の一つであり、潜在的なハザード項目（＝リスク）の洗い出しとそのリスクの大きさの評価を行うもの。
バンカリング	バンカリング	船舶への燃料供給を行う行為。
ベントマスト	ベントマスト	船舶の上部に配置された排気口。

リスクアセスメント	リスクアセスメント	安全性の評価を行うこと。
-----------	-----------	--------------

課題番号： MU03 「低コスト高効率化技術を用いた燃料電池システムによる多用途活用技術開発」

読み方	用語	解説
セルスタック	CS	セラミックス製の構造部材の表面に、発電反応を行う素子（燃料極/電解質/空気極の積層体）を形成したものの。
LHV	LHV	Lower Heating Value 燃料の燃焼によって生成された水蒸気の蒸発潜熱を除いたもの
SOFC	SOFC	Solid Oxide Fuel Cell 固体酸化物形燃料電池
VVP	VPP	バーチャルパワープラント 需要家側エネルギーリソース、電力系統に直接接続されている発電設備、蓄電設備の所有者もしくは第三者が、そのエネルギーリソースを制御することで、発電所と同等の機能を提供すること
アンシラリーサービス	アンシラリーサービス	瞬時瞬時の需給バランスを維持することにより、高品質かつ安定した電力の使用を可能とする機能
オフガスバーナー	オフガスバーナー	反応に使用されなかった燃料を燃焼させるバーナー
コージェネ	コージェネ	熱源より電力と熱を生産し供給するシステム
ネンリョウデンチモジュール	燃料電池モジュール	セルスタックの他、改質器、予熱器等の補器類を含んだ高温筐体

課題番号： MU04 「用途拡大を見据えた薄型・高効率SOFCシステムの実用化開発」

読み方	用語	解説
ホットモジュール	Hot Module (HM)	SOFC スタック、改質器、熱交換器、断熱材などで構成される発電装置。この発電装置に外部から燃料ガスと空気を供給する。燃料ガスは都市ガスやLPG を、空気は装置周辺の大気を用いる。燃料ガスは装置内部の改質器で水素や一酸化炭素を生成し、スタックへ供給して発電反応に使用する。発電で使用されなかったガスは装置内部で燃焼させ、装置内部の暖機に用いており、外部からの熱供給をしなくても装置内部の温度を保持することができる。

ネンリョウリヨウリツ	燃料利用率	燃料ガスを発電反応に利用する比率。 発電反応の理論上は燃料利用率 100%が可能であるが、実機ではホットモジュールの温度を維持させるため、一部を燃焼させる必要がある。発電効率を向上させるためには、燃料利用率を高めることが重要である。
------------	-------	---

課題番号： MU05「高信頼性炭化水素系補強電解質膜の低コスト・革新的生産技術開発」

読み方	用語	解説
FCCJ	FCCJ	Fuel Cell Commercialization Conference of Japan 燃料電池実用化推進協議会
MEA	MEA	Membrane Electrode Assembly 膜電極複合体
Nafion	Nafion	パーフルオロカーボン材料として、耐久性と化学安定性に優れる、イオン交換能を有する電解質ポリマー。疎水性のテフロン骨格と親水性のスルホン基を持つパーフルオロ側鎖から成る。
	エッジシール	電解質膜の発電性能を評価する際に、膜端部からのガスリーク防止や固定を目的として設けるシール部材。
ガストウカセイ	ガス透過性	水素ガスが電解質膜中を分子状態で拡散して透過する性状。ガス透過量は、電気化学的にリーク電流として検出される。
フツソケイデンカイシツマク	フッ素系電解質膜	フッ素系電解質ポリマーを用いた電解質膜。一般に、疎水性のパーフルオロアルキレン基からなる主査部分と、スルホン基を有する親水性のパーフルオロ側鎖部分とから成る。代表的なポリマーとして Nafion が市販されている。
カガクテキタイキユウセイ	化学的耐久性	過酸化水素やそれから生成するラジカル種によって生じる電解質膜の化学劣化耐久性を評価するため、電圧印加で強制的に過酸化物を発生させる定められた促進条件で求めた耐久性。
キカイケキョウド	機械的強度	引っ張り弾性率、引っ張り破断強度、破断伸度など、電解質膜の機械的強度特性。
キカイトキユウセイ	機械的耐久性	ドライ・ウェットの状態を繰り返すことで強制的に電解質膜の膨張収縮を発生させて行う劣化促進条件での耐久性。

ショキハツデンセイノウ	初期発電性能	電解質膜の発電性能を評価するため、定められた手順で実施する電解質膜／触媒の発電性能。
タンカスイソケイホキョウ デンカイシツマク	炭化水素系補強電解質膜	炭化水素系電解質ポリマーと補強材からなる電解質膜。低ガス透過性と機械耐久性に優れる。
タンカスイソケイデンカイ シツマク	炭化水素系電解質膜	炭化水素系電解質ポリマーからなる電解質膜。低ガス透過性に優れる。
デンカイシツマク	電解質膜	水素を燃料として発電する燃料電池の構成部材であり、燃料電池セルに求められる機能のうち、水素ガスを通さず、電子と水素イオンを分離して水素イオンだけを通す機能を持つ。

課題番号： MU06 「車載用燃料電池セパレータの大量普及時に向けた品質担保手法の開発」

読み方	用語	解説
A I スイロン	A I 推論	今回採用した AI は、ディープラーニング技術を用いたニューラルネットワーク（深層学習）を用いた機械学習手法を採用している。教師データとして登録した画像から、推論計算を行い、欠陥の種類・場所を推論する事を、ここでは AI 推論と記している。
S/N ヒ	S/N 比	信号（Signal）と雑音（Noise）の比であり、信号対雑音比（Signal to noise ratio）の略。
コンパウンド	コンパウンド	原料のカーボンと樹脂を混合したもの（成形前の材料の状態）。
ディープラーニング	ディープラーニング	脳の神経回路を模試したニューラルネットワークを多層に重ねる事で、AI 推論の学習能力を高めた機械学習のアルゴリズムの事となる。第 3 次 AI ブームの火付け役となっている。
ニューラルネットワーク	ニューラルネットワーク	脳の神経回路の一部を模試した数理計算モデル。
ラインセンサー	ラインセンサー	撮像素子が 1 列に並んだセンサーを差す。従って撮像するには物体またはカメラが一定の速度で移動する必要がある。コピー機などが代表的な装置となる。対義語にエリアセンサーがあり、これは一眼レフカメラなどに使用される。
ルールベース	ルールベース	閾値の事。AI 推論の対義語として使用される。

課題番号： MU07 「高耐久空冷式燃料電池システムの開発」

読み方	用語	解説
-----	----	----

AGV	AGV	「Automated Guided Vehicle」の略。無人搬送車。
APS	APS	「Auxiliary Power Supply」の略。燃料電池スタックが発電を始める前にシステムを起動する電力を供給する。
DC-CONT	DC-CONT	DC/DC コンバータユニットの電圧、電流、入出力保護等の制御及びセンシングを行う機能。
DCDC コンバータ	DCDC コンバータ	DC（直流）で電圧を変換する装置・部品。
Drone	Drone	遠隔操作又は自律制御によって飛行する無人航空機。
FC-CONT	FC-CONT	燃料電池スタックの発電に直結する補機類（バルブ、FAN 等）の制御及びセンシングを行う機能。
I/F	I/F	「Interface」の略。本システムでは電圧の High/Low のみを伝えるものではなく、通信を用いる接続を指す。
I/O	I/O	「INPUT / OUTPUT」の略。本システムでは電圧の High/Low を用いた入出力信号を指す。
PEFC	PEFC	「Polymer Electrolyte Fuel Cell」の略。固体高分子型燃料電池を指し、電解質として固体高分子膜を用いる燃料電池の方式。
RTN	RTN	「RETURN」の略。+48Vdc のリターン配線。ゼロ V。GND。
SOC	SOC	「State Of Charge」の略。蓄電池の充電率または充電状態を表す指標。
System-Cont	System-Cont	燃料電池システム全体の制御項目（出力リレー、DC/DC ユニットの出力、異常表示等）の制御及びセンシングを行う機能。
ウンテンプロトコル	運転プロトコル	システムの制御動作を表す、電源や出力の ON/OFF タイミング等、信号の電氣的規則、通信における送受信の手順などを定めたもの。
カソクタイキウサイクルシケン	加速耐久サイクル試験	試験時間短縮を図るため、実際の運転パターンと同等の負荷となるように、電圧、電流、温度、時間等を調整した耐久サイクル試験。
クウレイシキネンリョウデ ンチ	空冷式燃料電池	発電時に発生する熱をファン等による気流で強制冷却する方式を特徴とする燃料電池。
プロトタイプ	プロトタイプ	燃料電池システムの機能検証や製品化検討のための試験、デモ等に供される試作品。
マイコン	マイコン	電子機器などの組み込みシステムに使われる集積回路のひとつ。電子機器の制御用に最適化された

		コンピュータの一種。
--	--	------------

課題番号： MU08 「多用途展開可能なクラウド対応型燃料電池（FC）発電モジュールの開発」

読み方	用語	解説
FC システム	FC システム	FC 発電モジュールに接続して使用される水素タンク、冷却装置、蓄電池、電力変換器などを組み合わせた全体システム 蓄電装置、直流交流変換装置、モータなどにより構成される。
FC 発電モジュール	FC 発電モジュール	燃料電池セルから電力を取り出すための装置であり、FC スタック、水素ポンプ、エアポンプ、電力変換器などにより構成される。
FC プラントモデル	FC プラントモデル	FC 発電モジュールの構成をシミュレートするためのコンピュータモデル。 このモデルにより期待性能を満足するための制御開発を実施できる。
アプリケーション	アプリケーション	FC システムが組み込まれた製品。（定置型発電装置、フォークリフト等）
クラウド対応	クラウド対応	ネットワークを介して、FC 発電モジュールの状態を外部に送信する機能及び、外部からネットワークを介して FC 発電モジュールを起動させる機能を持つ
昇圧コンバータ	昇圧コンバータ	FC スタックが発生した電圧を、目的の電圧となるよう上昇（昇圧）させるための電圧変換器
並列運転バランス制御用コントローラ	並列運転バランス制御用コントローラ	複数台の昇圧コンバータを同時に制御し、それぞれが出力が同じになるよう制御するためのコントローラ

課題番号： MU09 「燃料電池システムを搭載した油圧ショベルの研究開発と実証検証」

読み方	用語	解説
アーム	アーム	油圧ショベル前部に付く掘削作業を行う機構の一部。ブームとバケットの間に位置する
アームシリンダ	アームシリンダ	アームをブームとの連結部を中心に回転させる油圧シリンダ
ガード	ガード	旋回フレームに搭載した各種機器を覆う意匠カバー。
カウンタウエイト	カウンタウエイト	掘削時に、バケット、アーム、ブームを伝わる掘削反

		力と釣り合いバランスを取るための重り
カクシンテキケンセツキ カイ	革新的建設機械	動力源を水素、電気、バイオ燃料等に置き換える ことで、ゼロエミッションを実現する建設機械
カブフレーム	下部フレーム	旋回フレームを支え、走行を司るフレーム。走行モ ータ、シューを含む。
シュー	シュー	無限軌道のこと。鉄製のプレートをリンクにより連結 して構成する。
センカイフレーム	旋回フレーム	運転台やブーム、各種動力系・冷却系機器、カウ ンタウエイト等を搭載するフレーム。下部フレームに 対してベアリングを介して旋回可能に連結される。
センカイモータ	旋回モータ	下部フレームに対して旋回フレームを回転させる油 圧モータ
ソウコウモータ	走行モータ	シューを前後に回転させて、油圧ショベルを走行さ せる油圧モータ。左右に1個ずつあり、それぞれの 回転方向、速度を変えることで、前後進、方向転 換を可能とする。
ネンリョウデンチ	燃料電池	水素と空気中の酸素を反応させることにより発電す る装置。副生成物として水しか生成しないため、ゼ ロエミッションの動力源として使用
ネンリョウデンチユニット	燃料電池ユニット	水素と酸素を反応させるスタックと呼ばれる部位を 中心に水素と空気を取り込み電力を出力するため に必要な機器を組み込んだ装置
バケット	バケット	油圧ショベル前部に付く掘削作業を行う機構の一 部。先端部に位置し、直接地盤(土砂)に接触し 土砂をすくう、削る等を行う。
バケットシリンダ	バケットシリンダ	バケットをアームとの連結部を中心に回転させる油 圧シリンダ
ブーム	ブーム	油圧ショベル前部に付く掘削作業を行う機構の一 部。油圧ショベルの旋回フレームに繋がる
ブームシリンダ	ブームシリンダ	ブームを本体との連結部を中心に回転させる油圧 シリンダ
ベンチヒョウカセツビ	ベンチ評価設備	燃料電池ユニット、電動モータ、インバータ、油圧ポ ンプ、補助バッテリーを設置し、実機を模擬して燃料 電池ユニットを稼働させる試験設備。

マウント	マウント	燃料電池や電動モータ、油圧ポンプ等の搭載機器を支持する部分に取付け、支持部より伝わる振動を緩和する装置。
------	------	--

課題番号： MU10「商用運航の実現を可能とする水素燃料電池船とエネルギー供給システムの開発・実証」
なし

課題番号： MU11 「燃料電池搭載農業用トラクタの実用化に向けた実証研究」

読み方	用語	解説
GHG	GHG	Greenhouse Gas を略した環境用語で、温室効果ガスのことを指す。
LIB	LIB	リチウムイオン二次電池（Lithium-ion battery）の略称。正極と負極の間をリチウムイオンが移動することで充電や放電を行う二次電池を指す。

課題番号： MU12 「港湾荷役機器ラバータイヤ式門型クレーンの水素駆動化（水素燃料電池の採用）
開発事業」

読み方	用語	解説
CNP	CNP	カーボンニュートラルポートの略語で、国交省が推進する港湾エリアの脱炭素の取組
CT	CT	コンテナターミナル
FC	FC	水素燃料電池
FC パワーパック	FC パワーパック	FC、補機類、水素タンク、制御盤等で構成される電源装置
LA・LB コウ	LA・LB 港	ロサンゼルス・ロングビーチ港
RTGC	RTGC	ラバータイヤ式門型クレーン（Rubber Tired Gantry Crane）の略語で、CT におけるコンテナ蔵置作業に使用されている。

課題番号： MU13「高圧水素タンク及びM E Aの全数高速検査を実現する革新的X線検査技術の開発」

読み方	用語	解説
エックスセンケンシュツキ	X線検出器	シンチレータパネル／受光センサー／回路などからなる検出器で、受けたX線の濃淡を画像にするための電子情報を出力する。
クツセツイメージング	屈折イメージング	僅かなX線屈折率差を利用して、欠陥の輪郭を強調させた画像を取得する方法。高分解な計測

		によることで屈折によるコントラストが観察可能になる。
シンチレータパネル	シンチレータパネル	放射線（本助成事業では X 線）があたると発光するシンチレータ材料を、受光センサーに合わせて板状に成形したパネル。
スイソタンクライナー	水素タンクライナー	FCV などの高圧水素タンクで用いられる樹脂のライナー。通常 2 ～ 3 のパーツで成形されたものを、レーザーや IR などで溶着・接合してタンク形状にされる。接合部分にボイドなどの欠陥が入ることがある。
セルホウシキシンチレータ	セル方式シンチレータ	1 次元または 2 次元に配列された受光センサーの画素に相当する隔壁を有したシンチレータパネル。東レの独自技術。センサーの画素と画素の間を仕切るように隔壁を設けることで、X 線でシンチレータが発光した可視光が広がることなく、各センサー画素に到達するため、画像のボケを防ぐことができる。
フォトリソカコウ	フォトリソ加工	感光性材料を塗布した板材等に、所望のパターンを紫外線などを照射し、必要なパターン形成を行う加工。

課題番号：MU14 「高性能 S O F C スタックおよびエネルギー管理連携によるドローン等実用化技術開発」

読み方	用語	解説
HILS	HILS	Hardware In the Loop Simulator あるいは Simulation のことであり、シミュレーションモデルと実物(ハードウェア)を使用したシミュレーションであり、電気信号レベルの検証が可能です。
LPG	LPG	Liquefied Petroleum Gas の略で、液化石油ガスを意味する。プロパンなどの混合物で、常温・常圧では気体だが、加圧で容易に液化し、液状で貯蔵されます。家庭で利用されるカセットガスが有名。
MILS	MILS	Model In the Loop Simulator あるいは Simulation のことであり、モデルで記述した仕様書をプラントモデルと結合して動作させるシミュレーション環境のことです。

「燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業」

基本計画

スマートコミュニティ・エネルギーシステム部

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

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、回転や摺動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。

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、2014年4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産学官の有識者検討会議である水素・燃料電池戦略協議会は「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産学官で共有するためのアクションプランを提示した。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。

上記の多様な水素政策を実現するため、2018年にNEDOは、2040年以降に達成すべき究極の目標値を含めて技術的課題を時系列に整理した「NEDO燃料電池・水素技術開発ロードマップ」（以下、「NEDO技術マップ」という。）を策定した。水素社会の実現のためには、水素・燃料電池分野の技術開発について産学官が長期的視野を共有し、NEDO技術マップで目標設定された燃料電池システム等の高性能や低コストに向けた技術開発に取り組むことが重要である。

さらに2020年には2050年にカーボンニュートラルを目指すことが宣言された。2021年10月に第6次エネルギー基本計画が策定され、この中で水素は、電力分野の脱炭素化を可能とするだけでなく、運輸部門や電化が困難な産業部門等の脱炭素化も可能とする、カーボンニュートラルに必要な二次エネルギーと位置づけられている。水素社会実現に向けた取組の抜本強化が掲げられ、燃料電池トラックや燃料電池も活用できる船舶、燃料電池鉄道車両等への用途拡大に向けた技術開発や実証とともに、水素製造技術として燃料電池の逆反応となる水電解装置の技術開発の必要性が示されている。日本の競争優位を維持し、燃料電池のコスト低減を通じた社会実装を実現する観点から、①基礎研究を含む要素技術の研究開発強化、②多用途展開支援及び設備

投資促進に伴う供給能力強化を通じた規模の経済の活用、③協調領域での標準化を含むFCメーカー等の更なる協力関係構築といった取組を官民一体となって取り組んでいくことが重要である。

② 我が国の状況

我が国では、2009年に固体高分子形燃料電池（以下、「PEFC」という。）ベースの家庭用燃料電池（エネファーム）を世界で初めて商品化された。2011年には固体酸化物形燃料電池（以下、「SOFC」という。）ベースでも商品化され、2019年11月にはPEFCとSOFCを合わせて累計30万台を突破した。2017年にはSOFCベースの業務・産業用燃料電池の商品化も達成している。

2014年には世界に先駆けてFCVを量販され、2019年には国内メーカーのFCVは海外販売実績を含めて累計1万台を超えている。加えて、水素ステーションについても2019年11月末時点で110箇所が整備されている。

このように、長年に渡る産学官の研究成果は着実に実用化に繋がっており、現時点では我が国が長い歴史の中で蓄積した燃料電池技術の競争力は、諸外国に比べて高い。しかし、水素社会の実現に向けた燃料電池の更なる大量普及のためには、低コスト化に直結する発電効率や耐久性の向上、現状で年間数百台程度しかないFCVの生産性向上等の課題の解決や、従来の家庭向けの熱電併給や自動車用等とは異なる新たな市場を切り拓く用途拡大の取組を推進する必要がある。

③ 世界の取組状況

米国では、DOEが中心となってPEFCが2025年に達成すべき目標値として定置用燃料電池で耐久時間80,000時間、製造コスト\$1,000~1,500/kW、車載用燃料電池で耐久時間5,000時間以上、製造コスト\$40/kWと設定し、盛んに研究が展開されている。SOFCの分野ではNETL (National Energy Technology Laboratory) が主導しつつ材料開発からセルスタック及びシステムまで一貫した開発が推進されるとともに、ユーザー企業が参画した実証事業も行われている。さらに米国では、FCフォークリフトが累計25,000台を突破している他、ZEV規制の追い風もあり、我が国の2倍を超える7,000台以上のFCVが販売され、港湾エリアの大気汚染の緩和を目的とした大型FCトラックの実証も本格化している。

欧州では、主にFCH-JU (fuel cells and hydrogen-joint undertaking) が燃料電池の研究開発や実証事業を担っている。定置用燃料電池では、SOFCにおいて家庭用を指向した小型システムから業務用のマイクロ熱電併給システム (micro-CHP)、更には火力発電代替としての数MW級までの開発及び実証事業が進められるとともに、セルスタック性能劣化の診断技術の開発も進行中である。移動体用燃料電池では、PEFCの非白金触媒等の材料開発、セル評価手法の標準化や周辺機器の改良、大量生産を見据えた新たな製造プロセスの構築等も取り組まれている。さらに欧州では、従来用途としての車載用だけでなく鉄道や船舶、航空機等の多用途展開も志向している点が特徴的である。

中国では、中国汽车工程学会が2016年10月に「省エネルギー車と新エネルギー車の技術ロードマップ」を発表し、FCVの普及目標を2020年頃に5千台、2025年頃に5万台、20

30年頃には100万台と設定した。また、将来的には商用車の耐久性を100万km以上とするとともに乗用車耐久性も30万km以上を目標とした。製造コストについては2030年に乗用車で250万円（1人民元＝16.5円で換算）以下、商用車で1,000万円以下に設定するなど、NEDO技術マップの数値目標と同等レベルの目標を掲げた。さらに、中国では中央政府の他に地方政府も活発に燃料電池の技術開発や普及政策を推進しており、燃料電池バスやトラック等の商用車を中心に、FCVの更なる普及拡大へ向けた動きが本格化している。これまでに4,500台以上が生産され、2020年頃の普及目標を確実に達成する勢いである。

日本と同様に燃料電池自動車の量産を開始した韓国では、政府が2019年に「水素経済活性化ロードマップ」を策定した。この中では、2040年までにFCVを620万台（輸出分を含む）、水素ステーションを1,200箇所といった目標に加えて、2040年に年間43兆ウォンの付加価値の創出を謳っている。

このように世界各国において、政府が主導して燃料電池の開発や普及に関する政策が強化されつつある状況下、現時点では一日の長がある我が国の国際競争力を更に強化等させて、当該分野で世界をけん引する位置づけを確保することが肝要である。

④ 本事業のねらい

本事業は、第6次エネルギー基本計画や水素・燃料電池戦略ロードマップ等で定めるシナリオに基づき2030年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システム（水素貯蔵タンク等を含む）を実現するためのユーザーニーズに基づく協調領域の基盤技術を開発するとともに、従来以外の用途に展開するための技術開発並びに大量生産を可能とする生産プロセス又は検査技術の取組を助成することにより、世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立する。

(2) 研究開発の目標

① アウトプット目標

研究開発項目 I 「共通課題解決型基盤技術開発」

2030年以降のFCVや業務・産業用燃料電池への実装を目指した技術を開発する。具体的には、PEFCにおいては航続距離800km以上、最大出力密度6kW/L以上、最大負荷点0.6V以上、耐用年数15年以上、最高運転温度100℃以上、燃料電池システムコスト<0.4万円/kWに貢献する要素技術を確立する。SOFCにおいては、発電効率65%超（低位発熱量）、耐久時間13万時間以上に貢献する要素技術を確立する。また、耐久時間13万時間の業務・産業用燃料電池システムの劣化モデリング技術等を確立する。なお、上記目標値の実現に資する要素技術の確立が本事業の最終目標であり、開発された各要素技術を組み合わせた燃料電池システムの構築および目標値の達成検証は民間独自で実施すべき事項であることから本事業では対象としない。

共通事項として、上記目標値に貢献する高精度性能予測技術、燃料電池システム劣化予測技術、高精度計測技術（高温下までのMEAセル／部材構造／特性評価手法、高精度計量観察技術）および低コスト化技術等を確立する。

研究開発項目Ⅱ「水素利用等高度化先端技術開発」

2030年以降の更なる燃料電池システムの低コスト、高性能、高耐久に資する水素貯蔵関連技術やその他多様な水素関連技術の高度化に資する技術を開発し、技術成立性を提示する。また、研究開発項目Ⅰの性能やコスト目標を凌駕する燃料電池の実現に資する革新的な要素技術の設計指針を確立するとともに、実用化に向けた課題を明らかにする。

研究開発項目Ⅲ「燃料電池の多用途活用実現技術開発」

2030年までの燃料電池ユニット等の多用途展開を目指して、エネルギーマネジメント要素も含めた実証事業等を行い、自家用車以外で3種類以上の用途の適用可能性を提示する。また、燃料電池システムのコスト低減を実現するために革新的な生産技術を開発する。

② アウトカム目標

我が国が強みを有する燃料電池分野の市場拡大に貢献する。具体的には、パリ協定に示される温室効果ガス排出26.0%減(2030年)及び80%削減(2050年)に、市場規模としてFCVの2035年約3.4兆円、2040年約12.6兆円、定置用燃料電池の2035年約0.5兆円、2040年約3兆円、FCV・定置用燃料電池以外の新規システムの2035年約0.5兆円、2040年約0.9兆円に寄与する(水素・燃料電池戦略ロードマップの目標値と富士経済の市場予測からNEDOが推定)。

③ アウトカム目標達成に向けての取組

FCVに関係する企業及び研究機関等の中で協調領域の技術情報や課題を共有する。また、継続的に貴金属の使用量低減等に向けた技術を開発する。さらに、水素貯蔵システムの炭素繊維の使用量低減等に向けた技術も開発する。将来の商用車への搭載を想定して耐久性向上に向けた技術を開発する。

定置用燃料電池のマイクログリッドでの活用を想定し、早期にグリッドパリティを実現すべく、より高耐久かつ高効率な性能を発現させるための開発を行う。

燃料電池システムの市場拡大や大量生産による低コスト化等を推進するため、燃料電池システムの従来以外の用途活用の技術開発を行う。

なお、アウトプット目標やアウトカム目標については、水素基本戦略や水素・燃料電池戦略ロードマップ等の議論を踏まえ、必要に応じて見直しを行う。

(3) 研究開発の内容

以下の研究開発項目について、【別紙1】の研究開発計画及び【別紙2】の研究開発スケジュールに基づき研究開発を実施する。

なお、研究開発項目Ⅰ「共通課題解決型基盤技術開発」および研究開発項目Ⅱ「水素利用等高度化先端技術開発」は、技術成熟度が低い基礎的なフェーズかつ業界の協調領域であるとともに未だ黎明期の燃料電池市場において民間独自での取組は困難であることから委託事業とする。また、研究開発項目Ⅲ「燃料電池の多用途活用実現技術開発」は実用化に向けて民間がリスクを取りつつ推進される

べき事業であることから、助成事業とする（NEDO 負担率：1/2 助成）。

研究開発項目Ⅰ「共通課題解決型基盤技術開発」

- (1) 高効率発電技術開発
- (2) 高負荷運転技術開発
- (3) 高耐久起動停止等技術開発
- (4) 極限環境下劣化防止等技術開発
- (5) 課題横断型技術開発

研究開発項目Ⅱ「水素利用等高度化先端技術開発」

- (1) 革新的な水素貯蔵関連技術の開発
- (2) 革新的な燃料電池技術の開発
- (3) その他多様な水素関連技術の高度化のための技術開発

研究開発項目Ⅲ「燃料電池の多用途活用実現技術開発」

- (1) 燃料電池の多用途展開加速実証
- (2) 低コスト・革新的生産・システム化技術開発

また、委託事業としてⅠ～Ⅲの研究開発項目に係わる燃料電池システム等の普及拡大に関する各種調査を行う。

2. 研究開発の実施方式

(1) 研究開発の実施体制

プロジェクトの進行全体の企画・管理や、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ため、プロジェクトマネージャー（以下、「PM」という。）にNEDOスマートコミュニティ・エネルギーシステム部 後藤 謙太を任命する。

NEDOは研究開発実施者を公募する。研究開発実施者は、企業又は大学等の研究機関等（以下、「団体」という。）のうち、原則として日本国内に研究開発拠点を有する者を対象とし、単独又は複数で研究開発に参加するものとする。ただし、特別な研究開発能力や研究施設等の活用又は国際標準化推進の観点から必要に応じて、国外の団体を研究開発に参加させることができるものとする。なお、本事業を推進するにあたり必要に応じてプロジェクトリーダー（PL）、サブプロジェクトリーダー（SPL）を置く。

(2) 研究開発の運営管理

NEDOは、研究開発全体の管理及び執行に責任を負い、研究開発の進捗のほか、外部環境の変化等を適時に把握し、必要な措置を講じるものとする。運営管理は、効率的かつ効果的な方法を取り入れることとし、次に掲げる事項を実施する。

① 研究開発の進捗把握・管理

PMは、経済産業省、PL、SPL、研究開発実施者と緊密に連携し、研究開発の進捗状況を把握する。また、外部有識者で構成する技術検討委員会等を組織し、積極的にユーザーニーズの把握に努めると共に、定期的に技術的評価を受け、目標達成の見通しとこれに対する課題等を常に把握

することに努め、研究進捗把握等のマネジメントを行う。

② 技術分野における動向の把握・分析

PMは、プロジェクトで取り組む技術分野について、内外の技術開発動向、政策動向、市場動向等について調査し技術の普及方策等を分析、検討する。なお、業務効率化の観点から、当該調査は事業の中で委託することができることとする。

③ テーマ継続可否評価

各研究開発テーマについて、別途テーマ毎に定める期間で外部有識者による評価を実施し、テーマの継続可否を判断する。

3. 研究開発の実施期間

本研究開発の期間は、2020年度から2024年度までの5年間とする。

4. 評価に関する事項

NEDOは技術評価実施規程に基づき、技術及び政策的な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、プロジェクト評価を実施する。

評価の時期は、中間評価等を2022年度、事後評価を2025年度とし、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。

また、中間評価結果を踏まえ、必要に応じてプロジェクトの加速・縮小・中止等の見直しを迅速に行う。

5. その他重要事項

(1) 研究開発成果の取扱い

① 共通基盤技術の形成に資する成果の普及

研究開発実施者は、研究成果を広範に普及するよう努める。NEDOは、研究開発実施者による研究成果の広範な普及を促進する。また、研究開発成果のうち共通基盤技術に係るものについては、プロジェクト内で速やかに共有した後、NEDO及び実施者が協力して普及に努めるもの。

② 標準化施策等との連携

先端分野での国際標準化活動を重要視する観点から、NEDOは、必要に応じて研究開発成果の国際標準化を検討する。

③ 知的財産権の帰属、管理等取扱い

研究開発成果に関わる知的財産権は、「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・産業技術業務方法書」第25条の規定等に基づき、原則として、全て委託先に帰属させる。

なお、研究開発実施者は、研究開発成果の事業化を見据えた知財戦略を構築して知財創出に努

め、適切に知財を管理する。なお、PMおよびPLならびにSPLからの指示があった場合はそれに従う。

④ 知財マネジメントに係る運用

本プロジェクトは、「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。
(研究開発項目Ⅰ及びⅡのみ。但し調査を除く)

⑤ データマネジメントに係る運用

本プロジェクトは、「NEDOプロジェクトにおけるデータマネジメントに係る基本方針」を適用する。(研究開発項目Ⅰ及びⅡのみ。但し調査を除く)

⑥ 研究開発テーマ間の連携

本プロジェクトの成果最大化のため、PMおよびPLならびにSPLが主導し、研究開発テーマ間及び本プロジェクト外の企業等との連携の枠組みを構築する。研究開発実施者は、必要に応じて秘密保持契約や共同研究契約を締結し、密接な連携を図る。

(2) プロジェクト基本計画の見直し

PMは、PL、SPLと共に外部の情報を収集すると共に、当該研究開発の進捗状況及びその評価結果、社会・経済的状況、国内外の研究開発動向、政策動向、研究開発費の確保状況等、プロジェクト内外の情勢変化を総合的に勘案し、必要に応じて目標達成に向けた改善策を検討し、達成目標、実施期間、実施体制、プロジェクト基本計画を見直す等の対応を行う。

(3) 根拠法

本プロジェクトは、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号及び第9号に基づき実施する。

(4) その他

特になし。

6. 基本計画の改訂履歴

2020年 2月 策定

2022年 3月 改訂 研究開発項目ⅡおよびⅢにて、水電解セルスタックの生産技術および周辺機器含めたシステム技術の高度化に資する研究開発を実施内容に追加。

【別紙 1】 研究開発計画

研究開発項目 I 「共通課題解決型基盤技術開発」

1. 研究開発の必要性

F C V用 P E F Cの開発は、運輸部門でのCO₂排出量の大半（約85%）を占める乗用車等の低炭素化に貢献するものである。このため、2015年～2019年度に「固体高分子形燃料電池利用高度化技術開発事業」を実施し、2030年頃のF C Vのコスト削減を目的とした貴金属使用量削減技術に関して一定の成果を挙げてきた。他方、産学官の有識者と議論を重ねて策定したN E D O技術マップにおいて2030年以降に目指すべき値として設定された「航続距離：800km以上」、「スタック出力密度：6kW/L以上」、「最大負荷点電圧：0.6V以上」、「作動最高温度：100℃以上」及び「燃料電池システムコスト<0.4万円/kW」を実現するためには、更なる研究開発が必要となっている。また、世界に先駆けて我が国の自動車メーカーがF C Vの量産を開始したことを受け、自動車メーカーの当初想定とは異なる新たな課題が明確になりつつあり、前述の事業では取り組んでこなかった新たな共通課題が顕在化してきた。これまでの成果と、新たな課題を踏まえ、車載用燃料電池の本格的普及を実現する為に、新たな共通課題を解決することが必要となる。

また、原理的に発電効率の高いS O F Cにおいては、これを分散型電源に利用することでCO₂排出量の削減が期待される。従来のコジェネレーション型ではなく、今後のモノジェネレーションでの利用を見越して、これまでとは全く異なる発想の高効率燃料電池の研究を進めるとともに、急激な出力変動や起動停止を可能とする高強靱・高耐久なセルスタックを開発することが肝要である。

2. 研究開発の具体的内容

(1) 高効率発電技術開発

貴金属使用量を低減させた高活性触媒や高プロトン伝導性電解質等の開発によるセル電圧の向上、燃料利用率の高いモノジェネレーション技術など、高効率発電を実現するための技術を開発する。

(2) 高負荷運転技術開発

貴金属使用量を低減させた高活性触媒、高酸素透過性アイオノマの開発等、電解質膜やアイオノマのプロトン伝導性向上、G D L（ガス拡散層）やM P L（微細多孔質層）のガス・電子・熱の物質移動向上、セパレータの接触抵抗化低減や排水性向上など、高負荷運転を実現するための技術を開発する。

(3) 高耐久起動停止等技術開発

高電位やその繰り返しに高い耐性を有する貴金属使用量を低減させた触媒・担持体や電解質等の開発、新規の耐熱構造・材料の開発など、電位や熱衝撃に安定な、起動停止に耐久性を有する技術を開発する。

(4) 極限環境下劣化防止等技術開発

白金触媒溶出及び凝集の抑制、安定な非白金触媒、ORR（酸素還元反応）活性が低くかつHOR（水素酸化反応）活性が高い触媒、高耐久な電解質及びセパレータ、ガスリーク抑制、高温・高圧運転に耐えうる材料、被毒耐性の高い触媒など、高温・高電位・低pH等の厳しい環境下における劣化防止技術を開発する。

（5）課題横断型技術開発

ユーザーニーズに基づく基盤技術を開発するために必要な横断型の材料等の評価、解析プラットフォームを構築し、革新的な分析・評価技術の高度化、加速劣化プロトコル、迅速評価技術、劣化モデル解析手法、温度分布解析手法、各種シミュレーション技術、高温下での共通評価手法、機械学習を適用した情報整理手法、MI（マテリアルズ・インフォマティクス）による材料開発手法等を（1）～（4）の研究開発と緊密に連携して開発する。

3. 達成目標

（1）中間目標

最終目標に達するための中間段階の目標値を個別テーマ毎に別途定め、達成度合いは当該技術のユーザー企業に意見を照会して肯定的な意見を得る。

（2）最終目標

2030年以降のFCVや業務・産業用燃料電池への実装を目指した技術を開発する。具体的には、PEFCにおいては航続距離800km以上、最大出力密度6kW/L以上、最大負荷点0.6V以上、耐用年数15年以上、最高運転温度100℃以上、燃料電池システムコスト<0.4万円/kWに貢献する技術を確立する。SOFCにおいては、発電効率65%超（低位発熱量）、耐久時間13万時間以上に貢献する技術を確立する。また、耐久時間13万時間の業務・産業用燃料電池システムの劣化モデリング技術等を確立する。なお、上記目標値の実現に資する要素技術の確立が本事業の最終目標であり、開発された各要素技術を組み合わせた燃料電池システムの構築および目標値の達成検証は民間独自で実施すべき事項であることから本事業では対象としない。

共通事項として、上記目標値に貢献する高精度性能予測技術、燃料電池システム劣化予測技術、高精度計測技術（高温下までのMEAセル／部材構造／特性評価手法、高精度計量観察技術）および低コスト化技術等を確立する。

個別の目標値はテーマ毎に定め、達成度合いを当該技術のユーザー企業に意見を照会して肯定的な意見を得る。

研究開発項目Ⅱ 「水素利用等高度化先端技術開発」

1. 研究開発の必要性

F C Vの普及拡大に向けては燃料電池の高性能化、高耐久化、低コスト化のみならず、燃料電池システム全体、特に水素貯蔵タンクなどの水素貯蔵システムの更なる低コスト化が求められている。しかし、水素・燃料電池戦略ロードマップ等に掲げられる挑戦的なコスト目標を達成するためには、現状長時間を要する水素タンクの製造工程や高価な材料等に関する技術の革新が必要である。これら水素貯蔵技術の高度化が進めば、F C V以外の燃料電池を用いる移動体への適用拡大も期待される。

また、2030年以降を見据えた燃料電池の大量普及および水素社会の実現に向けては、燃料電池に関しても研究開発項目Ⅰで掲げる以上の性能、コストを狙う必要があり、従来の延長線上にない革新的ブレークスルーのアイデアを幅広く創出していくことが求められる。以上を踏まえ、「貯蔵」から「利用」に至るまで燃料電池の本格普及に資する革新的な技術の開発、新たなコンセプトの創出を図る。

さらに、2030年以降の水素社会実現のためには、水素関連技術の高度化に資する研究開発が不可欠である。特に水素社会の実現に欠かすことのできない水電解技術に関しては、燃料電池の逆反応となることから、燃料電池の研究開発と連携して研究開発に取り組むことで、相互の技術力向上が期待される。このため、従来の水素利活用を越えた新規産業を創出するための水素関連技術の高度化に資する技術開発が期待される。

2. 研究開発の具体的内容

(1) 革新的な水素貯蔵関連技術の開発

水素貯蔵タンク等の低コスト化や強靱化に資する革新的な水素貯蔵技術を開発する。

(2) 革新的な燃料電池技術の開発

今後の研究開発の指針を得るために、飛躍的な性能向上やコストダウンに資する燃料電池の材料やデバイスのコンセプトを探索する。

(3) その他多様な水素関連技術の高度化のための技術開発

将来的に大きなコストダウンに資する、新たな燃料電池システムの活用技術、性能向上や稼働率向上を実現するため燃料電池システムの革新的なコンセプトを探索する。また、従来の水素利活用を越えた新規産業を創出するため、燃料電池の逆反応となる水電解などの水素関連技術の高度化に資する技術を開発する。

3. 達成目標

(1) 中間目標

最終目標に達するための中間段階の目標値を個別のテーマ毎に定め、達成度合いは当該技術のユーザー企業に意見を照会して肯定的な意見を得る。

(2) 最終目標

2030年以降の更なる燃料電池システムの低コスト、高性能、高耐久に資する水素貯蔵関連技術やその他多様な水素関連技術の高度化に資する技術を開発し、技術成立性を提示する。また、研究開発項目 I の性能やコスト目標を凌駕する燃料電池の実現に資する革新的な要素技術の設計指針を確立するとともに、実用化に向けた課題を明らかにする。

個別の目標値はテーマ毎に定め、達成度合いを当該技術のユーザー企業に意見を照会して肯定的な意見を得る。

研究開発項目Ⅲ 「燃料電池の多用途活用実現技術開発」

1. 研究開発の必要性

燃料電池は、水素を活用した高効率発電デバイスとしてその応用範囲は広く、多様な用途へ展開させることは環境負荷低減に加え、量産効果による燃料電池自体の低コスト化にも直結することから、燃料電池ゴミ収集車、燃料電池トローリングトラクター、鉄道車両等への導入が検討されている。しかし、いずれも燃料電池開発の知見を有するごく少数事例のテストに過ぎないため、今後の低炭素化が困難であった船舶、マイクログリッドにおける発電システム用途等々、従来の自動車用や家庭用とは異なる用途展開を図るためには、多様な燃料電池サプライヤーとユーザーの連携による実証事業を助成し、市場規模、CO₂削減効果等を見極め、特に費用対効果の大きい分野を見極めることが重要である。また、燃料電池を多用途展開するためにその構成素材からシステムまでの大量生産を実現させることが肝要である。

さらに、燃料電池で蓄積してきた技術や知見を燃料電池の逆反応である水電解システムに展開し、研究開発を推進することで水電解の低コスト化につながると期待される。抜本的な低コスト化および普及拡大に向けては、水電解セルスタックの生産技術から周辺機器含めたシステムの高度化まで総合的な取り組みが重要である。

2. 研究開発の具体的内容

(1) 燃料電池の多用途展開加速実証

従来の自動車用や家庭用とは異なる用途展開を図るため、燃料電池デバイスやシステム、システムのインターフェイス等の開発およびエネルギーマネジメント等を含めた実証を行う。

(2) 低コスト・革新的生産・システム化技術開発

燃料電池システムおよび水電解システムのコスト低減を実現するために革新的な生産技術や周辺機器、これらを含めたシステム化技術等の研究開発を行う。

3. 達成目標

(1) 中間目標

最終目標に達するための中間段階の目標値を個別のテーマ毎に別途定め、達成度合いは当該技術のユーザー企業に意見を照会して肯定的な意見を得る。

(2) 最終目標

2030年までの燃料電池ユニット等の多用途展開を目指して、エネルギーマネジメント要素も含めた実証事業を行い、自家用車以外で3種類以上の用途の適用可能性を提示する。また、燃料電池システムおよび水電解システムのコスト低減を実現するために革新的な生産技術等を開発する。

個別の目標値はテーマ毎に定め、達成度合いを当該技術のユーザー企業に意見を照会して肯定的な意見を得る。

【別紙2】 研究開発スケジュール

2020年度	2021年度	2022年度	2023年度	2024年度
	▽継続可否評価 ▽公募	▽継続可否評価 ▽公募	▽継続可否評価 ▽公募	▽継続可否評価 ▽公募
研究開発項目Ⅰ「共通課題解決型基盤技術開発」	(1) 高効率発電技術開発	中 間 評 価		
	(2) 高負荷運転技術開発			
	(3) 高耐久起動停止等技術開発			
	(4) 極限環境下劣化防止等技術開発			
	(5) 課題横断型技術開発			
研究開発項目Ⅱ「水素利用等高度化先端技術開発」	(1) 革新的な水素貯蔵関連技術の開発			
	(2) 革新的な燃料電池技術の開発			
	(3) その他多様な水素関連技術の高度化のための技術開発			
研究開発項目Ⅲ「燃料電池の多用途活用実現技術開発」	(1) 燃料電池の多用途展開加速実証			
	(2) 低コスト・革新的生産・システム化技術開発			

水素 燃料電池戦略ロードマップ

水素・燃料電池戦略ロードマップ～水素社会実現に向けた産学官のアクションプラン～（全体）

- 基本戦略等で掲げた目標を確実に実現するため、
 - ① **目指すべきターゲットを新たに設定(基盤技術のスペック・コスト内訳の目標)、達成に向けて必要な取組を規定**
 - ② **有識者による評価WGを設置し、分野ごとのフォローアップを実施**

	基本戦略での目標	目指すべきターゲットの設定	ターゲット達成に向けた取組	
利用	モビリティ	FCV 20万台@2025 80万台@2030	2025年 <ul style="list-style-type: none"> ● FCVとHVの価格差 (300万円→70万円) ● FCV主要システムのコスト (燃料電池 約2万円/kW→0.5万円/kW) 水素貯蔵 約70万円→30万円) 	● 徹底的な規制改革と技術開発
		ST 320か所@2025 900か所@2030	2025年 <ul style="list-style-type: none"> ● 整備・運営費 (整備費 3.5億円→2億円) 運営費 3.4千万円→1.5千万円) ● ST構成機器のコスト (圧縮機 0.9億円→0.5億円) 蓄圧器 0.5億円→0.1億円) 	● 全国的なSTネットワーク、土日営業の拡大 ● ガリスタド/コビエ併設STの拡大
		バス 1200台@2030	20年代前半 <ul style="list-style-type: none"> ● FCバス車両価格 (1億500万円→5250万円) ※トラック、船舶、鉄道分野での水素利用拡大に向け、指針策定や技術開発等を進める	● バス対応STの拡大
供給	化石+CCS 再エネ+水素	商用化@2030	2020年 <ul style="list-style-type: none"> ● 水素専焼発電での発電効率 (26%→27%) ※1MW級ガスタービン 	● 高効率な燃焼器等の開発
		グリッドパリティの早期実現	2025年 <ul style="list-style-type: none"> ● 業務・産業用燃料電池のグリッドパリティの実現 	● 熱スタックの技術開発
		水素コスト 30円/Nm3@2030 20円/Nm3@将来	20年代前半 <ul style="list-style-type: none"> ● 製造：褐炭ガス化による製造コスト (数百円/Nm3→12円/Nm3) ● 貯蔵・輸送：液化水素タンクの規模 (数千m³→5万m³) 水素液化効率 (13.6kWh/kg→6kWh/kg) 	● 褐炭ガス化炉の大型化・高効率化 ● 液化水素タンクの断熱性向上・大型化
		水電解システムコスト 5万円/kW@将来	2030年 <ul style="list-style-type: none"> ● 水電解装置のコスト (20万円/kW→5万円/kW) ● 水電解効率 (5kWh/Nm3→4.3kWh/Nm3) 	● 浪江実証成果を活かした地域実証 ● 水電解装置の高効率化・耐久性向上 ● 地域資源を活用した水素サプライチェーン構築

アクションプランのポイント① <水素利用（モビリティ）>

赤字は新規目標等

‘25年～の本格普及期に向けたコスト大幅削減のため、量産技術の確立、徹底的な規制改革

目指すべきターゲット		ターゲット達成に向けた取組
水素利用（モビリティ）	FCV	<ul style="list-style-type: none"> 関係企業・研究機関等との協同領域の技術情報や課題の共有 貴金属の使用量低減等に向けた技術開発 水素貯蔵システムにおける炭素繊維の使用量低減等に向けた技術開発
	水素ST	<ul style="list-style-type: none"> 徹底的な規制改革と技術開発の一体的な推進（2020年初期以降に無人化の実現、低コスト鋼材の使用等） 全国的な水素ステーションネットワーク構築の検討 営業時間・土日営業の拡大 ガソリンスタンド/コンビニ併設ステーションの拡大
	バス	<ul style="list-style-type: none"> 燃費・耐久性向上に向けた技術開発 路線バス以外への車種展開 バス対応ステーションの整備促進
	フォークリフト	<ul style="list-style-type: none"> 燃料電池ユニット等の多用途展開 簡素で運用が容易な充填設備の整備促進
※上記の他に、トラック、船舶、鉄道分野での水素利用拡大に向け、指針策定や技術開発等を進める		

アクションプランのポイント② <水素サプライチェーン>

赤字は新規目標等

将来の水素大量消費社会に向けた技術の確立のため、研究開発・技術実証を加速化

目指すべき水素供給社会

- 2030年頃に30円/Nm³、将来的に20円/Nm³を目指す
- LNG価格の推移を考慮して従来エネルギーと遜色ない水準まで低減
 (LNG価格10\$/MMBtuの熱量等価での水素コストは13.3円/Nm³ (環境価値含まない))



- 資源国等との政府間レベルでの関係構築による水素供給網の拡大
- 水素コスト低減に向け、製造、貯蔵、輸送まで一貫通貫の基盤技術の開発

目指すべきターゲット

- 2030年頃の水素供給コスト30円/Nm³の実現に向け、日豪褐炭水素プロジェクトの成果を踏まえ、2020年代前半に達成すべき基盤技術の目標を設定
 - <製造>
 - ✓ 褐炭ガス化による水素製造コストの低減 (褐炭水素PJでの製造コスト数百円/Nm³→12円/Nm³)
 - <貯蔵・輸送>
 - ✓ 水素液化効率の向上 (褐炭水素PJでの液化原単位13.6kWh/kg→6kWh/kg)
 - ✓ 液化水素タンクの大規模化 (褐炭水素PJでのタンク容量数千m³→5万m³)
 - <CCS>
 - ✓ CO₂分離回収コスト低減 (日本でのコスト4,200円台/t-CO₂→2,000円台/t-CO₂)

ターゲット達成に向けた取組

- 褐炭ガス化炉の大規模化・高効率化に向けた技術開発
- 高効率な水素液化を可能とする革新的な液化機構造（非接触軸受）の開発
- 高い断熱性を備えたLNG並の大規模タンクが製造可能となる技術の開発
- 低コストなCO₂回収技術(物理吸収法等)の開発
- 福島浪江での実証成果を活かした、社会実装に向けたモデル地域実証の展開
- 水電解装置の高効率化、耐久性向上に向けた技術開発
- 地域資源を活用した水素サプライチェーン構築

化石燃料+CCS
水素サプライチェーン
再エネ水素

水素利用先の拡大のため、市場の開拓・深掘り／グローバルな水素社会実現のため、日本リードの国際連携

目指すべきターゲット

ターゲット達成に向けた取組

水素利用	発電	<ul style="list-style-type: none"> ● 2030年頃の水素発電の商用化に向けた技術の確立 ✓ 既設火力発電での水素混焼発電の導入条件明確化 ✓ 2020年までに水素専焼発電での発電効率向上 (26%→27%) <small>※1MW級ガスタービン</small> 	<ul style="list-style-type: none"> ● 限界混焼率、事業性等に関するFS調査の実施 ● 高効率な燃焼器等の開発
	産業	<ul style="list-style-type: none"> ● 将来的なCO2フリー水素の活用 ● 経済合理性の見通しが得られたプロセスから順次CO2フリー水素の利用を検討 	<ul style="list-style-type: none"> ● 各産業プロセスにおけるCO2フリー水素の活用・供給ポテンシャル調査の実施 ● カーボンリサイクル技術の実用化に向けた検討
水素利用	定置用燃料電池	<p>エネファーム</p> <ul style="list-style-type: none"> ● 2020年頃の自立化、2030年までに530万台 ● 2020年頃までにPEFC型80万円、SOFC型100万円を実現 ● 2030年頃までに投資回収年数を5年とする <p>業務・産業用燃料電池</p> <ul style="list-style-type: none"> ● 2025年頃に排熱利用も含めたグリッドパリティの実現 (低圧：機器50万円/kW、発電コスト25円/kWh) (高圧：機器30万円/kW、発電コスト17円/kWh) ● 発電効率、耐久性の向上 (2025年頃に55%超→将来的には65%超) (9万時間→2025年頃に13万時間) 	<ul style="list-style-type: none"> ● 既築・集合住宅などの市場の開拓 ● 電気工事の簡素化に向けた規程整備の検討 ● セルスタックの高効率化・高出力密度化等の技術開発 ● セルスタック等の劣化原因の解消に向けた技術開発
	グローバル水素社会実現・国民理解等	<ul style="list-style-type: none"> ● 水素閣僚会議で発表した東京宣言の実現を図る ✓ 基準や規制の標準化やハーモナイゼーションの促進 ✓ 国際的な共同研究開発の推進 ✓ 水素利用のポテンシャル調査 ✓ 水素受容性向上のための教育・広報活動の推進 	<ul style="list-style-type: none"> ● 米・独・仏等との規制の比較、事故情報の共有 ● 日本のサプライチェーン実証の成果共有による資源国の巻き込み ● 2020年オリパラ、2025年大阪万博等のあらゆる機会を捉え、最先端水素技術を発信 ● 革新的な技術開発の実施

2019 年度事前評価結果

研究評価委員会において 2020 年度 NEDO 新規案件の事前評価を実施しました。結果は以下の通りです。

当該評価結果は、今後基本計画等に反映してまいります。

2019 年 9 月

案件名	革新的プラスチック資源循環プロセス技術開発
推進部署	環境部
総合コメント	国際問題化しているプラスチックの資源循環の確立は、我が国にとって緊急性が高い課題の一つであり、NEDO が実施する意義は大きい。一方で、資源循環は技術開発のみならず、それが成立する産業社会の制度設計が重要となるので、国が推進しているリサイクル全体の政策の中での本プロジェクトの位置付けを明確にすべきである。また、既にあるリサイクルの産業フローの中で、個別の開発要素をシステムとしてどう繋げていくかを研究開発項目として盛り込み、横串を通すマネジメントが必要である。さらに、アウトプットからアウトカムに繋げる道筋も不明確であるので、それを含めた更なる検討が望まれる。

案件名	CCS 研究開発・実証関連事業／CO2 分離回収技術の研究開発／先進的二酸化炭素固体吸収材の石炭燃焼排ガス適用性研究
推進部署	環境部
総合コメント	回収した CO2 を貯留することは重要な開発課題であり、国が実施する意義は大きい。一方で、回収した CO2 の活用法も大きな課題であるため、CO2 削減に関する国の上位の政策プログラムの中での本プロジェクトの位置付けを明確にする必要がある。アウトプット目標、アウトカム目標、費用対効果は明確に示されているものの、その裏付けが不明確であるので、算出根拠の提示と不断の見直しを期待する。また、事前に研究開発全体の展望をどれだけ詳細に検討しているかがプロジェクトの成果に反映されるため、パイロット設備によるシミュレーションの検証も含めて、アウトプットからアウトカムさらにはインパクトに繋がる道筋を明確にすることが望まれる。

案件名	次世代複合材創製・成形技術開発
推進部署	材料・ナノテクノロジー部
総合コメント	複合材料開発は、今後、我が国が保持・展開する技術として適切なものであり、競争力を維持するために必要なプロジェクトと考えられ、国による支援は欠かせない。本プロジェクトは、材料開発を中心としているが、材料としての性能クリアを目指すだけでなくその発現機能を明確にして、成果をアウトカムへと確実に繋げることを期待したい。また、一連の開発プロセスを

	<p>一体的に進めるためには、シミュレーション技術の取り込みをより重視する必要があると考える。さらに、本技術は国際展開が重要であるため、国際競争力をどのように確保していくかを明確にするとともに、実施者間の相互連携やユーザー企業と協力して技術開発を行う体制の構築を期待したい。</p>
--	---

案件名	炭素循環社会に貢献するセルロースナノファイバー関連技術開発
推進部署	材料・ナノテクノロジー部
総合コメント	<p>炭素循環社会に貢献するセルロースナノファイバー関連技術は我が国にとって重要な技術であり、国が推進する意義は大きい。そのため既に研究開発を実施している他省庁との連携を図りながら、産業化を目指す NEDO の事業として技術開発を推進していくことが望ましい。一方、アウトカムは CO2 削減のみが目標とされているが、高付加価値材への適用も視野に入れた用途開発による新産業創生や市場拡大を目標に加えることを検討すること、及び高いポテンシャルの技術をどこに応用するかといった出口の精査をしていくことも必要である。また、スムーズに社会に浸透するためには川上から川下までの企業間連携が必要であるので、効果的に連携を推進するためのマネジメントを期待する。</p>

案件名	CO2 活用型海洋生分解性プラスチックの開発
推進部署	材料・ナノテクノロジー部
総合コメント	<p>海洋プラスチックごみ問題は地球規模の喫緊の課題であり、国が主導して実施することは妥当である。本プロジェクトは、適切なプラスチック循環システムの中で、やむを得ず海洋へ流出するものを対象としていることを踏まえ、海洋プラスチックごみ発生ゼロを目指す全体像の中での位置付けを明確にし、技術開発を推進すべきである。また、有効な技術開発が極めて重要であるので、対象とするプラスチックに対して、原料の特性を踏まえた開発内容の精査が望まれる。さらに、国際問題の解決策として先導的に国際市場を開拓するために、他機関との連携も含めた国際標準化の取組の推進を期待する。</p>

案件名	カーボンリサイクル実現を加速するバイオ由来製品生産技術の開発事業
推進部署	材料・ナノテクノロジー部
総合コメント	<p>バイオ資源を活用したものづくり産業の育成は、我が国において必要な課題であり、産業基盤となるバイオファンドリを構築することは、国際競争力向上の面からも重要であるため、本プロジェクト推進の意義は大きい。ただし、バイオファンドリを活用した産業創出のためには、具体的な出口戦略を描き、プロジェクト当初から想定ユーザーを巻き込んだ体制作りを行うこと</p>

	<p>が必要である。また、アウトカム目標については CO2 排出削減だけでなく、雇用などの産業創出に係る指標設定の検討も期待したい。さらに、バイオ×デジタルを実現する上で、データベースの構築及び活用が非常に重要であるため、それらを本プロジェクトのアウトプット目標の一つとして取り組み、構築したデータベースが大きな財産となることを期待する。</p>
--	---

案件名	IoT 社会実現のための革新的センシング技術開発
推進部署	材料・ナノテクノロジー部
総合コメント	<p>多くの社会的・経済的な問題の解決に繋がり、社会構造の変革・生活の改善に効果をもたらす可能性が高く、期待される取り組みであるため、本プロジェクトを行う意義は大きい。ただし、対象としている分野における問題解決のために、開発すべきセンサーの具体的な仕様を明らかにする必要がある。また、多数のセンサーから得られた情報を有効活用する技術及びシステムの開発にも取り組むべきである。さらに、新たなサービスの創出を目指した、ユーザー企業とのマッチングにも積極的に取り組むことを期待する。</p>

案件名	ヒトと共進化する次世代人工知能に関する技術開発事業
推進部署	ロボット・AI 部
総合コメント	<p>世界的にも益々AI の利用が活発化する中で、ユーザーニーズも高く、国が投資する必要があるプロジェクトである。社会的課題である人材不足解消、労働生産性向上に寄与し、AI の可能性を広げることが期待される。ヒトと共進化する信頼性の高いAI の開発には、質の良いデータを迅速に集約・整理することが重要であり、そのための着実な技術開発及び体制整備が必要である。アウトカム目標に労働生産性や RPA を入れた点は斬新である一方で、どのような分野・業種への応用展開を想定しているか等、その具体化が望まれる。また、AI 開発分野において人材が不足している現状に鑑み、若手研究者やスタートアップを技術開発に巻き込む等、人材育成や日本の AI 基盤の裾野開拓にもつなげることが期待される。</p>

案件名	クリーンエネルギー分野における革新的技術の国際共同研究開発事業
推進部署	国際部
総合コメント	<p>クリーンエネルギー分野の市場は国内だけでなく、海外にも大きな市場が開かれており、その開拓は全世界的な課題である。国際共同研究事業によって海外の優れた研究成果を発掘し、共同開発に繋げる意義は大きく、国が関与する必要性がある。制度設計にあたっては、各国のエネルギー関係機関や開発計画との連携等、国際共同研究を実施する上でのメリットを生かす工夫が必要である。また、重点的に扱う技術分野等の設定による</p>

	公募内容の具体化も望まれる。テーマ選定に当たっては、既存事業にはない、よりチャレンジングな案件の発掘も期待される。さらに、国際共同研究を進める観点を踏まえたアウトカム設定についても工夫が望まれる。
--	--

案件名	燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業
推進部署	次世代電池・水素部
総合コメント	水素社会を実現する上で燃料電池利用の拡大は極めて重要であり、その普及のためには更なる低コスト化・高効率化等の推進や自動車以外の用途開発が求められており、研究課題の設定は適切である。開発対象の自動車用や定置用の燃料電池に関して、実際にどのような場面や用途で活用するか等のアウトカムについては、ユーザーとの深い議論や国の政策等も踏まえた出口戦略を見据えて事業を進めることが必要である。また、開発技術の価値や信頼性を効果的に示すことで市場形成につなげる活動への積極的な取組を期待したい。あわせて、これらを実行できる具体的な推進体制を分かりやすく示すことが望まれる。本プロジェクトを通じ、燃料電池の技術開発を支える電気化学分野等の若手人材の育成への貢献が期待される。

案件名	多用途多端子直流送配電システムの基盤技術開発事業
推進部署	スマートコミュニティ部
総合コメント	信頼性の高い再生可能エネルギーの導入促進及びエネルギーの安定供給を確保するためのレジリエンスの向上を目的として、直流送電線の多用途多端子化、直流マイクログリッドの開発を国が支援することは必要である。また、直流送配電システムの社会実装には、送配電事業者の他、複数の事業主体との調整やエリア間の連携も重要であることから、NEDO が実施する意義がある。一方で、日本の電力供給ネットワークにおける本プロジェクトの位置づけについて再度整理し、わかりやすく示すとともに、アウトプット目標で達成されるシステム及び製品開発がアウトカム目標に結びつくまでの道筋の明確化が望まれる。また、開発体制、費用対効果、将来の海外展開の可能性についても再考が望まれる。

案件名	官民による若手研究者発掘支援事業
推進部署	イノベーション推進部
総合コメント	大学等の有為な若手研究者の研究支援を行い、マッチングサポート法人を伴走させた上で企業とのマッチングを促進する本事業は、今後の我が国の産業技術開発に向けた人材育成に対して極めて重要であり、本プロジェク

	<p>トの意義は非常に大きい。最新の政府方針の反映方法や、研究者と企業のマッチング率を向上させる仕組み等について、現実的な制度設計の再考が望まれる。また、研究開発テーマの選定にあたっては、最終目標が初期段階から想定可能なものが期待される一方、実用化が見通しづらいものにも着目し、新産業の創出や次世代のイノベーションにもつながる選定ができる仕組みが必要である。さらに、NEDO が実施する上では産業技術に向けたテーマが求められるが、それらに繋がる基礎研究も重要である。これらを踏まえ、発掘したい分野や人材等の、本事業の狙いについて検討し、それらを反映した詳細な制度設計が期待される。</p>
--	--

案件名	太陽光発電主力電源化推進技術開発
推進部署	新エネルギー部
総合コメント	<p>太陽光発電の技術開発は異分野展開による新市場開拓という新しい方向に向かっており、太陽光発電ルネサンスという意味でも日本の主力電源化に寄与する事業として国が推進していくことは適切である。対象が建物の壁面や車等への異分野展開であり研究課題が多岐にわたるため、それぞれのつながりを明確にする必要がある。また、各省庁との連携を含めたセクターカップリング推進のためのマネジメントが必要である。さらに、再生可能エネルギー関連の他のプロジェクトとの連携や、系統とのインテグレーションを含めた出口戦略の見直しを、プロジェクト推進中も不断に実施することが望まれる。</p>

案件名	バイオジェット燃料生産技術開発事業
推進部署	新エネルギー部
総合コメント	<p>バイオジェット燃料の製造技術及びそのためのサプライチェーンモデルの構築は、環境影響も考慮した挑戦的課題であり、市場形成に向けて国が主導する意義は大きい。技術開発内容は、抽象的な内容が見受けられるため、目標達成を見据えたより具体的かつ精緻なものにすることが望まれる。また、アウトプット・アウトカム目標がやや不明確であるため、コストの数値目標を示すなど、さらなる検討を期待したい。さらに、アウトカム達成のために、参入企業促進やベンチャー企業育成、サプライチェーンの構成、ジェット燃料以外への転用も含めた市場形成等も視野に入れて、技術開発を推進することを期待する。</p>

□

NEDO 燃料電池・水素技術開発ロードマップ□

	現在	2030年頃	2040年頃
普及シナリオ	<p>燃料電池HDVの初期導入段階</p> <ul style="list-style-type: none"> 国内はバス(約110台)・フォークリフト(約330台)で先行、トラック、鉄道、船舶で試験運転-技術実証の開始段階、海外でも幅広いHDVで実証段階、鉄道、フォークリフトは商用運転開始 国内運輸部門のCO₂排出量2.06億トン(全体の18.6%)の内、HDVで52.6%(トラック36.8%、バス1.9%、内航海運5.0%、鉄道3.8%、航空5.1%)*1 <p>FC技術開発の推進 ・多用用途に向けた技術実証の拡大</p>	<p>燃料電池HDVの本格普及開始段階</p> <ul style="list-style-type: none"> 国内外の主要国でトラックをはじめ、船舶、電車、建機・農機などのアプリケーションへの本格普及の開始 【参考】欧州:FCトラック累積最大10万台、米国:FCフォークリフト累積30万台 国内運輸部門のCO₂排出量1.46億トン(2019年度比▲約29%)*2、商用車の電動化は8トン以下で新規の20~30%、8トン超は2030年までに5千台の先行導入 	<p>HDV領域のカーボンニュートラル実現</p> <ul style="list-style-type: none"> 【2050年】燃料電池HDVによる運輸部門のカーボンニュートラル実現に貢献 FCトラックのグローバル累積導入台数最大1,500万台(市場規模300兆円)*3 <p>FC技術開発の推進により幅広いHDVアプリケーションへ本格普及、FCシステムの大量供給によるコスト低減が加速 ・水素供給価格の低下によるTCO低減</p>
製品目標	大型トラック(25トンクラス)を対象に目標を検討し、船舶(内航貨物船)、沿岸旅客船、鉄道(2両編成)、油圧ショベル(20トン/13トンクラス)、農業用トラクタ(50kWクラス)、フォークリフト(1-2トンクラス)の各アプリケーションに対して成立する共通目標として設定		
システム仕様	<p>FCシステム体積出力密度</p> <p>0.24 kW/L*4</p> <p>起動最低温度-30℃</p> <p>作動最高温度90~95℃(冷却水出口温度)</p>	<p>0.60 kW/L*5</p> <p>起動最低温度-30℃</p> <p>作動最高温度105℃(冷却水出口温度)</p> <p>入口加湿度 20%RH</p>	<p>技術開発課題と合わせて今後、目標値の具体化予定</p> <p>FCシステムの更なる効率向上・広温度作動対応</p> <p>冷却性能向上によるシステム小型化</p> <p>効率向上による燃費改善、出力密度向上によるFC小型化(耐久時間との両立が前提)</p>
スタック性能*6	I-V要求性能(1セル)	<p>【連続(熱)定格出力点】</p> <p>BOL: 0.77V@1.63 A/cm²</p> <p>EOL: 0.72V@1.76 A/cm²</p>	
耐久性	約4,100時間*8	50,000時間	
コスト*9	FCシステム FCスタック	<0.9万円/kW <0.45万円/kW	<p>更なるFCシステムコスト低減</p> <p>ディーゼルの代替FCシステムコスト達成</p>
Pt量		0.19 g/kW*10	<p>更なるPt量低減</p> <p>資源循環可能となるレベルへの低減*11</p>
達成すべき技術開発課題(スタックシステム)*12	5年	5年	5年
MEA	<ul style="list-style-type: none"> 広作動対応MEA(-30~120℃*13)開発 Pt目付量(0.24 mg/cm²)での性能向上・耐久性両立 アイオマーの被覆形態制御、触媒層構造最適化 	<ul style="list-style-type: none"> FCスタックの高性能化・高耐久化 広作動条件対応MEA(-30~120℃)の低コスト大量生産プロセス技術の確立 	<ul style="list-style-type: none"> FCスタックの更なる高性能化 更なる広作動条件対応、貴金属使用量低減、低コスト化
電解質材料	<ul style="list-style-type: none"> 広作動条件対応膜・アイオマー技術開発(-30~120℃) 膜耐久性向上技術開発(補強層、ランカドキシド、ガスバリア性向上) 低温・高加湿~高温・低加湿でのプロトン伝導性向上 アイオマーの酸素透過性向上、触媒への特異吸着緩和 	<ul style="list-style-type: none"> 広作動条件対応膜(-30~120℃)の大量生産プロセス技術の確立 高耐久化技術開発 	<ul style="list-style-type: none"> 更なる広作動条件対応、低コスト化
電極触媒	<ul style="list-style-type: none"> 広作動条件対応触媒技術開発(-30~120℃) 貴金属使用量低減(空気極0.2 mg/cm², 水素極0.04 mg/cm²) 空気極触媒活性、耐久性向上技術開発 カーボン担体劣化抑制、非カーボン担体材料技術開発 耐酸化性、H₂O生成抑制、不純物耐性水素極触媒技術開発 	<ul style="list-style-type: none"> 広作動条件対応電極触媒膜(-30~120℃)大量生産技術の確立 高耐久化技術開発 廃棄製品からの貴金属リサイクル技術確立 	<ul style="list-style-type: none"> 更なる広作動条件対応、貴金属使用量低減、低コスト化
セパレータ・GDL・シール等	<ul style="list-style-type: none"> ガス拡散抵抗低減技術開発 他部材との組合せによるGDL・MPLの機能最適化 高耐食性、接触抵抗低減セパレータ技術開発 広作動条件対応ガスケット・接着剤技術開発(-30~120℃、内圧・湿度変動を含む) 	<ul style="list-style-type: none"> セパレータ・GDL・ガスケット大量生産技術の確立(セパレータ製造スピード<1秒/枚) 高速接着技術の確立(サイクル時間<1秒/セル) 高耐久化技術開発 	<ul style="list-style-type: none"> 更なる広作動条件対応、低コスト化
実用化技術・周辺機器	<ul style="list-style-type: none"> 冷却性能の大幅向上 高温作動対応のエコプロブレマ、加湿器の開発 MEA、セパレータの高速・大量生産技術開発 	<ul style="list-style-type: none"> スタック大量生産技術の確立 	<ul style="list-style-type: none"> 高出力密度化による部材使用量大幅削減 システム簡素化(スタック高温作動域拡大による冷却系簡素化、等) エア系の過給によるスタックのダウンサイジングまたは常圧化による簡素化
基盤技術開発(継続的研究課題)	<ul style="list-style-type: none"> 性能、耐久性解析技術、セル評価技術の産業界での適用、実証 	<ul style="list-style-type: none"> 計測・解析技術、現象・機構説明に立脚したFCスタック設計の技術確立 	<ul style="list-style-type: none"> 原子、分子レベルでの燃料電池材料設計手法および革新的材料探索手法の確立

【備考】

*1 国土交通省「2019年度における運輸部門における二酸化炭素排出量」より引用

*2 経済産業省「第6次エネルギー基本計画 2030年におけるエネルギー需給の見通し」より引用

*3 Hydrogen Council「Hydrogen Scaling up」等に基づいた推計値

*4 現在の市販FCモジュールの「kg/kWh」値から算定(定格出力80 kW、システム容積約328 L)

*5 各アプリケーションのFC最大出力/FCシステム搭載スペースで算出し、最も厳しい値を設定(解説書2.3.2参照)

*6 各アプリケーションの使用環境「使われ方」・耐久性・冷却性能・搭載性を満たす共通の2030年頃のスタック目標を設定(解説書2.2.2, 2.2.3参照)

*7 DOE Hydrogen and Fuel Cells Program Record #20005, "Automotive Fuel Cell Targets and Status", Aug. 2020

*8 大型トラック年産10万台前提のコスト、水素貯蔵システム、二次電池、インバータ、モータ等の電動化部品を含まない(解説書2.3.1参照)

*9 Pt目付量0.24 mg/cm²(空気極0.2 mg/cm²、水素極0.04 mg/cm²)としてスタック1基あたりの定格出力114 kW、MEA面積273 cm²、330セルを前提条件とした数値

*10 2050年にはPtの資源循環可能レベルまでの低減が必要(解説書2.3.3参照)

*11 I-V要求性能を達成するための材料目標は別途記載(解説書1.4および解説書4.3, 2.4.5参照)

*12 FCスタックの冷却水出口温度に対して膜面の温度は最大で+10~15℃、広範囲な作動温度に対する材料開発が必要(解説書2.4.2, 解説書2.4.4参照)

凡例

- シース探索研究・基盤研究
- 要素技術開発
- 実用技術開発
- 基盤技術(評価・解析技術等)開発

NEDO 燃料電池技術開発ロードマップ

—HDV 用燃料電池ロードマップ（解説書）—

2022 年 3 月

目次

1. HDV 用燃料電池ロードマップの概要	1
1.1 ロードマップ策定の背景	1
1.2 製品目標	2
1.3 FC システム目標	3
1.4 材料目標	5
2. 目標の考え方と達成のための技術課題	7
2.1 各 HD アプリケーションの現状の課題と目標	7
2.1.1 各アプリケーションを取り巻く環境	7
2.1.2 使用環境	9
2.1.3 最大出力	9
2.1.4 耐久時間	10
2.1.5 搭載性	10
2.1.6 その他補足	11
2.2 要求 I-V 特性の検討	13
2.2.1 進め方	13
2.2.2 大型トラック	13
2.2.3 他のアプリケーションのシステム成立の検討	19
2.3 FC システムとしての技術目標	32
2.3.1 コスト	32
2.3.2 FC 体積出力密度	34
2.3.3 Pt 量（資源循環と将来目標@2050 年）	36
2.3.4 CN 対応に向けた水素 FC 以外の取り組み状況	38
2.4 材料目標	41
2.4.1 材料目標の考え方	41
2.4.2 要求 I-V 特性を満たすための材料初期物性の検討	41
2.4.3 主要材料の物性目標	48
2.4.4 現状の課題と目標達成に向けた開発の方向性	50
2.4.5 主要材料コストの目安	54
2.5 材料評価の考え方	57

1. HDV 用燃料電池ロードマップの概要

1.1 ロードマップ策定の背景

近年の世界におけるカーボンニュートラル（CN）実現に向けた水素関連施策の強力な推進には目を見張るものがある。2020年にはEUが7月に水素戦略を公表、ドイツ、フランス等の欧州主要国においても独自の国家水素戦略を策定し、11月には米国が水素プログラム計画を発表するなど、世界中で水素関連の技術開発および社会実装に向けた取組が進められようとしている。

さて、これら水素の利活用の最重要デバイスであり、高いエネルギー効率を有しつつ低炭素化に貢献できる燃料電池（Fuel Cell、以下FCと称す）システムに対しては、世界的な地球温暖化問題の解決に向けたキーテクノロジーとして更なる普及拡大が期待されている。このため、水素・燃料電池戦略協議会において策定された「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年改訂）」では、FCの普及拡大に向けた政府の骨太の方針や政策目標が示されるとともに、今後の市場規模の拡大を予想している。エネルギー・地球環境問題の解決、産業技術力の強化をミッションとするNEDOとしては、これら政府目標等を具現化するために取り組むべき技術的課題を明確化するとともに時系列に整理した「NEDO燃料電池・水素技術開発ロードマップ」（以後、「ロードマップ」という。）を2005年に策定し、過去に4度、最新の政策、市場及び技術動向等を反映させるために改訂してきた。前回の改定は2017年であったが、その後は世界的なSDGsの広がり、主要各国のCN宣言をはじめとした社会環境の変化が急速に進んでいる。そのなかで、運輸部門のCO₂排出量削減に向けて移動体の変革がその重要な役割の一つを担っており、2017年ロードマップに明示した乗用車（FCV）に加え、変革すべき移動体のカテゴリーが急速に広範囲化している。特にFCの移動体への活用は、世界各国で大型・商用モビリティ（HDV：Heavy Duty Vehicle）への拡大が顕著で、その代表的なカテゴリーがトラックへの適用であり、加えて電車・船舶への拡大も進んでいる。また、産業界も電動化への動きが活発化しており、従来のフォークリフトに加えて、建機、農機への拡大が見込まれている。これらの移動体の電動化の検討が進むにつれ、バッテリーからの電力供給では、通常稼働に十分なエネルギー供給が困難なケースが多く実在し、これをカバーするためにカーボンニュートラル燃料の有力候補としての水素活用からFCへの適用が検討されている。

このような背景のもと、2017年改訂時の乗用車に加え、FCのHDVへの適用において重要となる広作動温度への対応や耐久性向上に対し、産業界や大学・研究機関と議論を重ね、2030年頃の普及時に要求されるHDVの各アプリケーションの製品目標とそれらの製品要求を満足する共通仕様となるスタック性能を検討した上で、スタックを構成する材料目標と開発の方向性へブレークダウンし、新たにHDV用燃料電池ロードマップを策定した。本解説書は、ロードマップにおける製品目標に対する考え方、目標値の検討に活用したシミュレーションモデル等の前提条件と計算結果、材料目標と開発の方向性および材料特性の評価方法の方針についてまとめたものである。

1.2 製品目標

ここでは、前記カテゴリーに対応すべく、各製品の一般的な使用環境における要求仕様に基づき、これらを包含した目標を示す。ただし、世界全体を見渡した場合、製品によっては、そのカテゴリー独特の使用環境条件等の場合があるため、一部は検討を継続し今後追加する。

従来の乗用車（今回変更なし）に加えて、2030年頃にFCシステム活用が想定される移動体のカテゴリーとターゲットとすべきアプリケーションを示す。今回の移動体としてのカテゴリーは、トラック、鉄道、産業、建機、農機および船舶を包含した目標とすべく、以下に示すアプリケーションの仕様を想定して実施した。

- トラック：25トン以上（市場規模と運行エリアから最も水素消費量が大きく期待される）。
 - 船舶：内航貨物船、沿岸旅客船（長時間稼働を必要とする）
 - 鉄道：現有ディーゼル車両の代替え（電化が厳しい路線など）。将来的には一部電車にも適用視野。
 - 建機：現有ディーゼル機で搭載燃料が多い中大型車両
 - 工業（産業）：フォークリフト（長時間稼働を必要とする車両）
 - 農機：比較的大きな農地で連続的かつ長時間稼働を必要とする車両
- （＊）船舶における外航船や航空機については、水素ベースの燃料（合成燃料など）もしくはバイオフェューエル等への適正も考慮して今回は対象から除外した。

今回は、前記アプリケーションの一般的な使い方をFCシステムの動かし方に落とし込み、これをFCシステムへの要求として定義した。これにより、それぞれのアプリケーションの一般的な使い方に対応したFCシステムの目標値として設定した。

表 1.2-1 要求仕様の定義

要求仕様の項目	定義
システム最大/定格出力 [kW]	FCと2次電池合計の最大または定格出力
FCシステム定格出力 [kW]	FCシステムの定格出力(Net出力)
使用外気温 [°C]	製品を使用する外気温
耐久時間 [万 hr]	製品に要求される耐久時間
冷却性能 [kW/°C]	冷却能力=ラジエータの冷却能力/(冷却水温度-外気温) ここでは冷却水温度は105°C、外気温は45°Cとした
高度 [千 m]	製品を使用する最大高度
FCシステム許容搭載スペース [L]	製品に搭載可能なFCシステム許容スペース
FCシステム許容搭載重量 [kg]	製品に搭載可能なFCシステム許容重量

表 1.2-2 各アプリケーションの 2030 年頃の主な要求仕様一覧

アプリケーション	システム 最大/定格出力 [kW]	FC システム 定格出力 [kW]	使用 外気温 [°C]	耐久時間 [万 hr]	冷却 性能 [kW/°C]	最高使用 高度 [千 m]	FC システム 許容搭載 スペース [L]	FC システム 許容搭載 重量 [kg]
25 トンクラス 大型トラック	300	200	-30~50	5	3.5	3 5(性能減 を許容)	502	230
44 トンクラス 大型トラック	400	300	-30~50	5	7.0	3 5(性能減 を許容)	502	460
内航貨物船	600	600	-25~50	6	100	0.02	18,000	11,000
沿岸旅客船	480	480	-25~50	3	100	0.02	7,000	4,000
鉄道 2 両編成	800	400	-30~45	5	6	1.3	1,300	1,000
油圧ショベル 20 トンクラス	120	120	-30~50	1	1.27	5(出力を 制限)	1,300	1,000
油圧ショベル 13 トンクラス	70	70	-30~50	1	1.0	5(出力を 制限)	400	500
フォークリフト 1-2 トンクラス	30	8	-20~40	2	1.0	0.5	339	500
農業用 トラクタ	50kW~	50kW~	-30~45	1	1.14	2	125	250

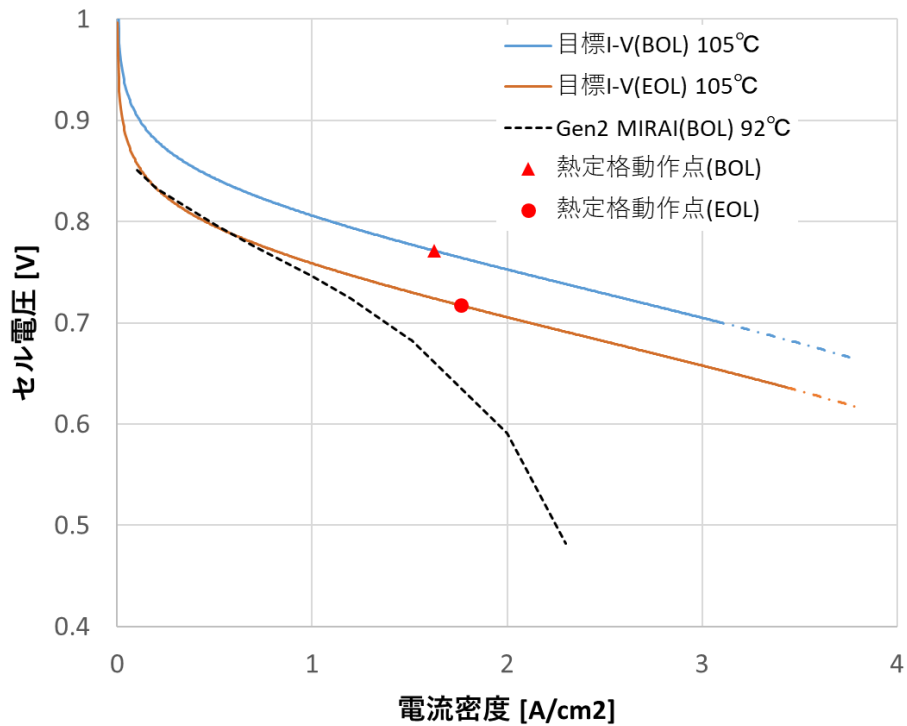
50kW クラスを想定

1.3 FC システム目標

前記の各アプリケーションの一般的な使い方から落とし込んだ要求仕様、さらに各アプリケーションの一般的な動作パターンを想定して、策定した 2030 年頃の性能目標 (I-V 特性、耐久時間、コスト、Pt 使用量、体積出力密度) を示す。この目標値は各アプリケーションの目標性能を包含したものである。

(1) 要求 I-V 特性 (BOL/EOL)

各アプリケーションでの FC システム仕様を想定、かつその耐久要件を満たすために必要な I-V 特性を図 1.3-1 に示す。なお、熱定格動作点については車両クラス毎に異なり、ここでは電流密度の最も大きい 25 トンクラスの熱定格動作点を示した。また、図中の I-V 特性上の一点鎖線は今回のシミュレーションで使われなかった領域を表しているが、アプリケーションや制御設計によって異なることを付記しておく。I-V 特性の導出方法については 2.2 節で述べる。



※1 BOL (Beginning of Life: 初期の性能)、EOL (End of Life: 耐久後の性能)

※2 WHVC 走行後の EOL I-V 特性、※3 熱定格動作点 (BOL) 電流密度 1.63A/cm²、電圧 0.77V、※4 熱定格動作点 (EOL) 電流密度 1.76A/cm²、電圧 0.72V、Pt 量 0.19g/kW 前提 (FCV と比較して長時間耐久性が要求されるため)

図 1.3-1 大型トラックの製品要件から導出された目標 I-V 特性

(2) その他 FC システム/スタックとしての技術目標

I-V 特性以外の FC システム/スタックとして重要となる目標一覧を表 1.3-1 に示す。

表 1.3-1 FC システム/スタック目標値

項目	目標値	備考
耐久時間 [h]	50,000	※2.2.2 項参照
FCシステムコスト[万円/kW]	0.9	※2.3.1 項参照
FCスタックコスト[万円/kW]	0.45	※2.3.1 項参照
Pt 目付量 [mg/cm ²]	0.24	※2.4.1 項参照 カソード:0.2mg/cm ² アノード 0.04mg/cm ²
Pt 使用量 [g/kW]	0.19	Pt 使用量は大型トラックの熱定格参照
FC システム体積出力密度 [kW/L] ※最大出力ベース	0.6	※2.3.2 項 25トン大型トラック参照
FC スタック体積出力密度 [kW/L] ※定格出力ベース	6.76	※2.3.2 項農業用トラクタ 50kW クラス参照 仮定を含むため暫定値とし、次年度以降改訂

1.4 材料目標

図 1.3-1 で示した初期の目標 I-V 特性を満たすための物性パラメータを根拠に、主要材料の物性目標の項目と目標値を表 1.4-1 のように定めた。また、参考のため、その各項目の現行材料からなる MEA での物性、特性値の実測値も併せ示した。

表 1.4-1 主要材料の物性目標 ★は、今後測定

要素	項目		2030 年頃の目標値		実測値			
			物性値	仕様・特性値	Gen2 MIRAI ※8	一般材料		
空気極触媒 (層)	PGM 目付量(mg/cm ²)			0.20	0.17	0.20	田中貴金属 Pt/C TEC10V30E ※9	
	ECSA (m ² /g)		60		48	61		
	質量活性 (A/g) @0.9V	at100°C、100%RH	1810		★	★		
		at80°C、100%RH	1740		500	95		
	触媒層厚さ(μm)			6.0	9.1	7.4		
	触媒層ガス拡散抵抗 (s/m)	at 80°C, 80%RH	10		9.1	18.1		
電解質	膜	膜厚 (μm)			8.0	8.5	25	Chemours Nafion™ NR211 ※9
		H ⁺ 伝導率 (S/cm) ※1	at 120°C, 30%RH	0.032		0.018	0.016	
			at 100°C, 40%RH	0.041		0.027	0.024	
			at 80°C, 80%RH	0.12		0.106	0.086	
			at -30°C, 0%RH※2	今後設定		★	★	
		水素透過性	※3	今後設定		★	★	
	酸素透過性	※4	今後設定		★	★		
	機械強度 ※5	(暫定) 引張最大強度(MPa) at 23°C, 50%RH		今後設定		50	30	
		(暫定) 引張破断伸び(%) at 23°C, 50%RH		今後設定		★	250	
	アイオノマ	H ⁺ 伝導率 (S/cm)	at 120°C, 30%RH	0.032		—	★	Chemours Nafion™ D2020 触媒層抵抗 ※9
			at 100°C, 40%RH	0.041		—	★	
			at 80°C, 80%RH	0.12		—	★	
空気極触媒層抵抗(Ωcm ²)		at 120°C, 30%RH		0.13	0.77	0.37		
		at 100°C, 40%RH		0.10	0.41	0.24		
	at 80°C, 80%RH		0.035	0.10	0.060			
GDL・流路・セパレータ	GDL 面積抵抗 (Ωcm ²)			0.0010	★	<0.01	SGL CARBON Sigracet® 22BB ※10 分子拡散抵抗 ※9	
	流路・GDL(分子拡散抵抗) (s/m) ※6	at 80°C, 80%RH		18	58.3 (並行流路)	60.8 (並行流路)		
		GDL/セパ、セパ/セパ等:接触抵抗合計 (Ωcm ²)			0.0065	★		—
	GDL 機械強度物性 ※7	(暫定)圧縮弾性率		今後設定		★		
(暫定)曲げ剛性 (N/mm)		今後設定		★	0.9 ~1.5			

※1：電解質膜の H⁺伝導率は、補強材込みの伝導率。クエンチャ添加など、耐久性を担保した状態での伝導率。

※2：低温起動性に影響する因子。スタックとしての要求仕様を集約したうえで設定。

※3、※4：耐久性、燃費に影響する因子。今後、設定。

※5：セルの構造・仕様により必要な物性値が異なると考えられることから、当面、指標となる物性項目は仮置き。目標値とともに今後の議論とする。ここでは、現行材料の物性を参考値として示す。

※6：GDL と流路の構造との組み合わせで決まる特性値。

※7：セルの構造・仕様により必要な物性値が異なると考えられることから、当面、指標となる物性項目は仮置き。目標値とともに今後の議論とする。ここでは、現行材料の物性を参考値として示す。

※8：第二世代 MIRAI の MEA を用いた実測値、解析結果。(FC-Cubic 測定)

※9：触媒：田中貴金属 TEC10V30E、カソード触媒担持量：0.2mg-Pt/cm²、アノード触媒担持量：0.1mg-Pt/cm²、アイオノマ：Chemours Nafion™ D2020、I/C:1.0、電解質膜：Chemours Nafion™ NR211、GDL：SGL-CARBON SIGRACET® 22BB からなる MEA で測定した値。（FC-Cubic 測定）

※10：メーカー公表値 <https://www.sglcarbon.com/en/markets-solutions/material/sigracet-fuel-cell-components/>

2. 目標の考え方と達成のための技術課題

2.1 各 HD アプリケーションの現状の課題と目標

2030 年頃に拡大が想定できるカテゴリーおよびその中心となることが想定される各アプリケーションの一般的な使い方を包含する目標を示したが、アプリケーション毎に考慮もしくは確認しておくべき状況や課題を示す。ここでは、大型トラック、船舶、鉄道、建機、フォークリフト、農機の 6 つのアプリケーションに関して整理した。特に、代表的な製品としてトラックからは 25 トンクラスと 44 トンクラス、船舶からは内航貨物船と沿岸旅客船、鉄道からは 2 両編成、建設機械では油圧ショベルの 20 トンクラスと 13 トンクラス、フォークリフトからは 1-2 トンクラス、農業用機械からは農業用トラクタ 50kW クラスを選定した。

2.1.1 各アプリケーションを取り巻く環境

(1) 2030 年頃の市場規模

各アプリケーションの代表的な製品の現状の（既存パワートレインと 2030 年に FC 製品として導入が予測される）市場規模（海外含む）について表 2.1.1-1 にまとめた。欧州では Hydrogen Europe の Strategic Research and Innovation Agenda では 2030 年頃までに累計 9.5 万台の FC トラックの普及、非電化区間における新規車両導入の 20%を FC 列車へ転換する[1]などの目標があり、米国では CA 州内で FC トラック導入 7 万台（2035 年頃）[2]、FC フォークリフトの累計販売台数 30 万台（2030 年頃）[3]などの目標がある。また、民間の市場レポート[4]においても 2030 年頃の FC トラック市場として累計 10 万台以上との試算も存在する。

一方、こうした世界的な市場規模はデータのソースにより差があり、また、地域によりクラス別の区分けが異なるため、ここでの値は市場調査の結果等に基づいた予測を含む参考値とする。

表 2.1.1-1 2030 年頃の市場規模(参考値)

アプリケーション	現状 [台/年] ※既存のパワートレイン	30 年予想 [台/年] ※FC 導入予想
25 トンクラス大型トラック	1,300,000	数万台
44 トンクラス大型トラック	240,000	数千台
内航貨物船	数万台	数百台
沿岸旅客船	数千台	数百台
鉄道 2 両編成	250	50
油圧ショベル 20 トンクラス	200,000	200~20,000
油圧ショベル 13 トンクラス	100,000	100~10,000
フォークリフト 1-2 トンクラス	380,000	5,000
農業用トラクタ 50kW~	数万台	—

(参考文献)

[1] Hydrogen Europe and Hydrogen Europe Research, “Strategic Research and Innovation Agenda”, Oct. 2020

[2] California Fuel Cell Partnership, “Fuel Cell Electric Trucks A Vision for Freight Movement in California and Beyond”, Jul. 2021

[3] Fuel Cell & Hydrogen Energy Association, “Road Map to A US Hydrogen Economy”

[4] Global Market for Hydrogen Fuel Cell Commercial Trucks, 2021

(2) 各アプリケーションに対して海外を含む 2030 年頃に適用が予測される規制

2030 年頃に各アプリケーションに対して海外を含めて施行されるゼロエミッションに関する規制について以下の表 2.1.1-2 のとおりにまとめた。

表 2.1.1-2 各アプリケーションに対する 2030 年頃に適用が予測される規制

アプリケーション	主な規制(予測含む)
大型トラック	<p>日本:</p> <p>8 トン以上の大型の車について 2020 年代に 5 千台(累計)の電動車両の先行導入を目指すとともに、水素や合成燃料等の価格低減に向けた技術開発・普及の取組の進捗も踏まえ、2030 年までに 2040 年の電動車の普及目標を設定(規制なし)</p> <p>米国:</p> <p>(CA 州+15 州)2030 年 Class7-8 の 30%、Class7-8 トラクタの 50%を ZEV 化することを義務付け、Class7-8 は 2045 年以降、コンテナ陸送用ドレージトラックは 2035 年以降、100%ZEV 化</p> <p>欧州:</p> <p>新車トラックの CO₂ 排出量を、2019 年に比べ 2025 年に 15%、2030 年には少なくとも 30%の削減を義務づけ</p> <p>タイ:</p> <p>(政府目標)2035 年までに新車販売 100%ZEV 化(BEV・FCV のみ)</p> <p>内商用車:2025 年 3.1 万台、2030 年 15.6 万台、2035 年 45.8 万台</p>
船舶	<p>2030 年までにゼロエミッションを目標に掲げている地域や、ゼロエミッションに向けての取り組みを実施している地域がある</p> <p>例)アムステルダム(オランダ)、ノルウェーのフィヨルド</p>
鉄道	<p>ヨーロッパの一部の国では既に新製又は大規模改修時に排ガス規制があるが、ゼロエミッションまでの規制の予定は無い</p>
建設機械	<p>ノルウェーの 7 都市(オスロ、ベルゲン、トロンヘイム、スタバングエル、ドラメン、トロムセー、クリスティアンサン)で 2030 年までに建設現場のゼロエミッション化の方針、C40 に参加する「オスロ、ブダペスト、ロサンゼルス、メキシコシティ」の 4 都市が 2030 年までに都市の建設プロジェクトからの CO₂ 排出量を半減させることを目指す”Clean Construction Declaration”を締結</p>
フォークリフト	<p>米国 CA 州 Clean Air Action Plan にて、LA 港、LB 港のフォークリフトを含む全ての荷役機器を 2030 年までにゼロエミッション化する計画が進行している</p>
農業用機械	<p>ディーゼル禁止規制</p> <p>例)パリ(フランス)2024 年以降</p>

2.1.2 使用環境

各アプリケーションが使用される外気温、高度、保管温度を以下の表に示す。2030年頃を想定した場合、水素の輸送や貯蔵は、遠隔地もしくは特殊地域への適用に先駆けて、都市部やその近郊地域への導入～拡大が想定されるため、今回は使用外気温については45℃とし、特殊地域として高度と保管温度については未考慮とした（検討は継続し、今後反映を計画）。

（*）フォークリフトの保管温度最高値が80℃と突出しているのは船で赤道直下付近を輸送中にコンテナ内に保管された状態を想定

表 2.1.2-1 各アプリケーションの使用環境

アプリケーション	使用外気温	使用高度	保管温度
25トンクラス大型トラック 44トンクラス大型トラック	-30～50℃	0～5,000m 3,000～5,000mは 出力減を許容し稼働	-30～50℃
内航貨物船	-25～50℃	0～20m	-25～50℃
沿岸旅客船	-25～50℃	0～20m	-25～50℃
鉄道 2両編成	-30～45℃	0～1,375m	-10～40℃
油圧ショベル 20トンクラス 油圧ショベル 13トンクラス	-30～50℃	0～5,000m 高地においては 出力減を許容し稼働	-30～50℃
フォークリフト 1-2トンクラス	-20～40℃	0～500m	-30～80℃
農業用トラクタ 50kWクラス	-30～45℃	0～2,000m	-30～45℃

2.1.3 最大出力

各アプリケーションにおけるFCシステムとして要求される最大出力を示す。ここでの最大出力は、一般的な使い方を想定した中で、時間制限なども含めた一時的にでも必要とされる出力を示す。ただし、最大出力はFCと2次電池のバランスや制御方法により変化する。（その他の出力には連続使用可能な最大出力としての連続定格、冷却能力によって影響される熱定格が存在）

表 2.1.3-1 各アプリケーションのFCシステム最大出力

アプリケーション	FCシステム最大出力 [kW]
25トンクラス大型トラック	303
44トンクラス大型トラック	461
内航貨物船	600
沿岸旅客船	480
鉄道 2両編成	400
油圧ショベル 20トンクラス	120
油圧ショベル 13トンクラス	70
フォークリフト 1-2トンクラス	30
農業用トラクタ 50kWクラス	51.5

2.1.4 耐久時間

要求耐久時間は、基本的には通常の使い方において劣化による性能低下によって、それぞれのアプリケーションの一般的な使い方に支障をきたさないことを前提に定めたものとした。

(先に示した目標 I-V 特性における、EOL の I-V 特性においても各アプリケーションの一般的な使い方に支障をきたさないための必要な稼働時間を示したもの)

表 2.1.4-1 各アプリケーションの要求耐久時間

アプリケーション	耐久時間 [hr]	耐久の定義(劣化後に必要な動力要件)
25トンクラス大型トラック 44トンクラス大型トラック	50,000	平均的な高速道路の坂を 90km/h で連続走行可
内航貨物船	60,000	600kW で 72 時間、200kW で 24 時間、 100kW で 24 時間の繰り返し出力可
沿岸旅客船	30,000	480kW で 30 分間、60kW で 15 分間 のパターンを 10 サイクル/日出力可
鉄道 2 両編成	50,000	勾配線区を想定し、400kW 連続運転可
油圧ショベル 20トンクラス 油圧ショベル 13トンクラス	10,000	連続掘削 4 時間継続、20 分の走行可
フォークリフト 1-2トンクラス	20,000	既定の作業サイクルパターン連続走行可能
農業用トラクタ 50kW クラス	10,000	50kW 連続運転可

2.1.5 搭載性

アプリケーション毎に搭載可能なスペースが異なる。従来のパワートレインシステムの跡地、電動化によって変化する各種部品を勘案し、FC システムの搭載スペースと重量を示す。この許容可能なスペース内に FC システムを搭載し、要求性能を満足することが必要となる。ただし、ここで示す許容可能と想定される容積と重量には、モータ、インバータ、2 次電池等の電動化転換に必要なとなる部品は含まれていない。

表 2.1.5-1 各アプリケーションに搭載可能な FC システム許容スペース

アプリケーション	体積 [L]
25トンクラス大型トラック	502
44トンクラス大型トラック	502
内航貨物船	18,000
沿岸旅客船	7,000
鉄道 2 両編成 ^{※1,2}	1,300
油圧ショベル 20トンクラス	1,300
油圧ショベル 13トンクラス	400
フォークリフト 1-2トンクラス	339
農業用トラクタ 50kW クラス	125

※1 : https://www.jreast.co.jp/press/2020/20201006_4_ho.pdf

※2 : <https://global.toyota.jp/newsroom/corporate/34799387.html>

表 2.1.5-2 各アプリケーションに搭載可能な FC システム重量

アプリケーション	重量 [kg]
25トンクラス大型トラック	230
44トンクラス大型トラック	460
内航貨物船	11,000
沿岸旅客船	4,000
鉄道 2両編成	1,000
油圧ショベル 20トンクラス	1,000
油圧ショベル 13トンクラス	500
フォークリフト 1-2トンクラス	500
農業用トラクタ 50kW クラス	250

2.1.6 その他補足

(1) 特殊環境

FC システムの用途拡大に伴い、それぞれのアプリケーションの特徴に応じた、特殊環境（稀にさらされる過酷な環境など）が必要となってくる。本格的な全面展開（燃料の輸送、貯蔵、供給体制が特殊地域への適用を済ませた状態）時に考慮が必要とされる特殊環境についても表 2.1.6-1 に明示する。

ただし、今回提示の目標は、各アプリケーションの共有とするコアの部分（大部分を占める一般的な使い方）と都市およびその近郊での稼働前提としたため、特殊環境は未考慮である。これらを考慮した場合の目標の在り方などは、アプリケーション毎に議論を継続し、必要に応じて展開を予定する。

表 2.1.6-1 各アプリケーション特有な環境

アプリケーション	特有な環境
25トンクラス大型トラック 44トンクラス大型トラック	地域によっては路面凍結防止剤による塩害、冠水路走行の必要な地域での渡渉
内航貨物船 沿岸旅客船	大気中の海塩粒子 船体の動揺、エンジン起因の振動
鉄道 2両編成	狭小トンネル走行時の安全性確認 ・吸気側圧力変動 ・温度変化 ・吸排気の短絡現象(温度、酸素濃度) ・異常時の水素タンク緊急放出弁(PRD)着火時の火炎の状況
油圧ショベル 20トンクラス 油圧ショベル 13トンクラス	湿地、粉塵、傾斜地(30度程度)、振動衝撃
フォークリフト 1-2トンクラス	冷蔵庫、冷凍庫内使用あり
農業用トラクタ	泥・埃環境

(2) 氷点下起動要件

各アプリケーション共に氷点下環境でも使用されることになるため、氷点下起動に関する要件を表 2.1.6-2 にまとめた。いずれのアプリケーションに対しても数分以上の暖気運転が許容される。

表 2.1.6-2 各アプリケーションの氷点下起動要件

アプリケーション	氷点下起動要件
25トンクラス大型トラック 44トンクラス大型トラック	氷点下でも速やかな起動が求められる -30℃以下となる厳寒環境では窓ガラスの視界確保、室内温度上昇のため 20分程度は暖機する -10℃程度の環境では起動後すぐ走行開始、走行と暖機を兼ねるのが一般的
内航貨物船 沿岸旅客船	ある程度の暖機は許容
鉄道 2両編成	暖気する時間は若干(10分程度)であれば許容される 極寒地を走行する現状のディーゼルカーも若干の暖気を行って起動する例から判断 極寒地での対応としてはFCの凍結により壊れないことも重要
油圧ショベル 20トンクラス 油圧ショベル 13トンクラス	数分から数十分の暖機運転を行う。
フォークリフト 1-2トンクラス	ある程度の暖機は許容
農業用トラクタ 50kWクラス	—

(3) 航続距離または連続運転時間

各アプリケーションに要求される航続距離または連続運転時間を表 2.1.6-3 に示す。

表 2.1.6-3 各アプリケーションの航続距離または連続運転時間

アプリケーション	1水素充填あたりの航続距離または連続運転時間または給油サイクル
25トンクラス大型トラック 44トンクラス大型トラック	将来的には1充填当たり航続距離は1,000km程度を目指したい
内航貨物船	100m ³ の重油を約9日間に一回給油
沿岸旅客船	少なくとも1水素充填あたり8時間の連続運転を目指したい
鉄道 2両編成	航続距離:500km/日(燃費:5km/kg 電車2両編成当たり) 給油サイクル 1回/日 現状:軽油 250L/両・回程度 将来的には1充填当たり航続距離は1,000km程度を目指したい
油圧ショベル 20トンクラス 油圧ショベル 13トンクラス	8~20時間 ディーゼル E/G の場合、 給油サイクル 約300Lを2~3日に1回給油
フォークリフト 1-2トンクラス	連続運転時間 約4時間30分 ※稼働率55%として工場1直稼働可能
農業用トラクタ 50kWクラス	8時間以上の連続運転

2.2 要求 I-V 特性の検討

2.2.1 進め方

提示する要求 I-V 特性は将来想定される各アプリケーションの製品要求を満足する共通仕様でなければならない。共通的な目標とする I-V 特性を導出するため、各アプリケーションでの FC スタックの使われ方が包含されると考えられる大型トラックを対象に目標値を算出し、その目標値が他のアプリケーションの製品要件を満たし得ることを確認（システム成立性検証）して共通目標 I-V 特性とすることにした。

2.2.2 大型トラック

(1) 大型トラックの製品要件とシステム構成

表 2.2.2-1 に大型トラックの製品要件を示し、表 2.2.2-2 に大型トラックのシステム構成を示す。これらは I-V 特性目標を算出するための前提条件となる。表 2.2.2-1 に示されるように大型トラックは耐久時間が 5 万時間と長く、かつ耐久走行後において高速坂路による高負荷走行条件での走破性が要求される。また、システムの搭載要件が厳しく、限られたスペースに搭載可能な FC スタックと 2 次電池、冷却系で製品要求を満たす必要があり、他のアプリケーションと比較しても厳しい要求となっている。

FC スタック数は、車両クラス毎に搭載スペースへのスタック搭載可能性の目安値として設定した。セル面積・枚数に関しては既存の FC スタックの値を用いている。2 次電池は、走行負荷に対し FC と 2 次電池で発電分担することで、FC の高温化や劣化を回避しながら高負荷走行の走破性を確保し、更に制動時のエネルギー回生を行いながらシステム効率を向上させるために用いられる。今回の計算前提となるシステム構成では、システム出力と FC 熱定格出力の差分の 100kW で 2 次電池の 40% のエネルギーを用いて約 20 分間アシスト可能な容量設定とした。また、冷却系に関しては、各車両クラスでの搭載性と動作環境での冷却必要量を考慮した冷却能力要求値の設定とした。

以上から大型トラックの代表的な 25 トンクラスと最大の 44 トンクラスを想定した場合、搭載制約と必要出力からスタック当たりの熱定格出力目標が 44 トンクラスでは 75kW であるのに対し、25 トンクラスでは 100kW とより大きな FC 出力密度が要求される。このような理由から 25 トンクラスにまず着目し I-V 特性の目標値を導出する。44 トンクラスについては、導出された I-V 特性目標値と表 2.2.2-2 のシステム構成で製品要求が満たされるか確認する。

表 2.2.2-1 大型トラックの製品要件（計算前提）

車種	システム出力 FC 熱定格出力	耐久走行パターン	動力性能要件	耐久要求時間
25 トンクラス	300kW 200kW	WHVC, JH25	耐久要求時間走行後、平均的な高速道路の坂を 90km/h で連続走行可	5 万時間
44 トンクラス	400kW 300kW	↑	↑	↑

表 2.2.2-2 大型トラックのシステム構成（計算前提）

車種	セル面積・枚数	FC スタック数	2 次電池容量	冷却系能力
25 トンクラス	273cm ² ・330 枚/スタック	2 基	90kWh	3.5kW/°C以内
44 トンクラス	↑	4 基	↑	7kW/°C以内

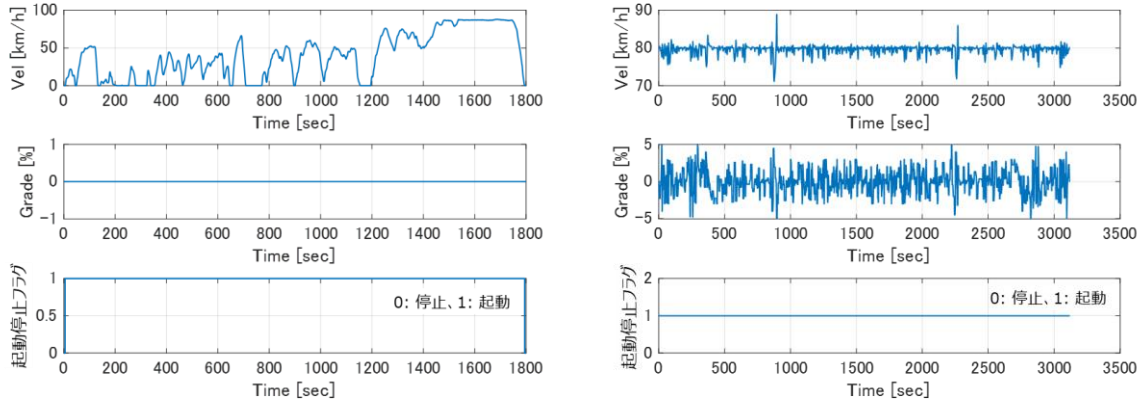


図 2.2.2-1 大型トラックの耐久走行パターン（左：WHVC／右：JH25）

(2) 要求 I-V 特性の導出

要求 I-V 特性の算出は、BOL I-V 特性の候補を複数仮定し耐久走行シミュレーションにより各 I-V 特性に対し性能低下を見積もり、性能低下後の EOL I-V 特性で動力性能要件を満たすものを抽出することによって行う。耐久走行シミュレーションでは、耐久走行パターンを耐久要求時間繰り返し走行した場合の触媒劣化による I-V 特性低下を予測する。動力性能要件は、EOL I-V 特性と所定の冷却能力で高速登坂条件（90km/h、平均的な高速道路の坂）を連続走行の可否により判定する。

耐久走行パターンは大型トラックの走行パターンである WHVC と JH25 を用いる。WHVC は市街地走行、JH25 は高速走行を想定しており、これらで標準的な走行パターンを一通り模擬すると考えられる。しかし、この他に山岳路や長距離輸送パターンなど、より高負荷・高温条件で使われるケースも考えられる。よってこれらの高負荷走行パターンを耐久パターンとして考慮することは今後検討の余地がある。

一方、電解質膜の耐久性に関しては、電解質膜が暴露される劣化ストレス条件から耐久性要求値を目標値として提示する。このため、耐久走行パターンの他、より高温条件となる高負荷走行パターンも含めてシミュレーションし、スタック電流・セル電圧・冷却水温度・空気極側湿度を劣化ストレス条件として提示する。

I-V 特性は、(1)式を用いて既存のベース I-V 特性に対し、活性・ガス拡散抵抗・オーム抵抗（以下ではこれらをまとめて MEGA 物性値と呼ぶ。）の各変化量を与え、I-V 特性の候補（サンプル）を複数設定する。各サンプルに対し EOL I-V 特性を算出し、動力性能要件を判定する。要件を満たす I-V 性能候補の集合の中から活性が最も低いサンプル、ガス拡散抵抗が最も高いサンプル、等を提示し目的に応じ取捨選択する。

$$V = V_{OCV} - R_{\Omega}I - \frac{RT_{cl}^{out}}{\alpha F} \log\left(\frac{I}{i_0}\right) - \frac{RT_{cl}^{out}}{\alpha F} \log\left(\frac{C_{ref}}{C_{O_2} - R_{gas} \frac{I}{4F}}\right) \quad (1)$$

ここで、 I は電流密度、 V はセル電圧である。活性を表す指標の交換電流密度を i_0 、ガス拡散抵抗を R_{gas} 、オーム抵抗を R_{Ω} とおいた。その他の記号は表 2.2.2-3 にまとめた。このように生成した I-V 特性候補の例を図 2.2.2-2 に示す。

表 2.2.2-3 式(1)中の記号

記号	定数名
V_{OCV}	開回路電圧
R	気体定数
T_{cl}^{out}	冷却水出口温度
α	バトラーボルマー式の移動定数
F	ファラデー定数
C_{ref}	基準酸素濃度
C_{O_2}	セル面内代表酸素濃度

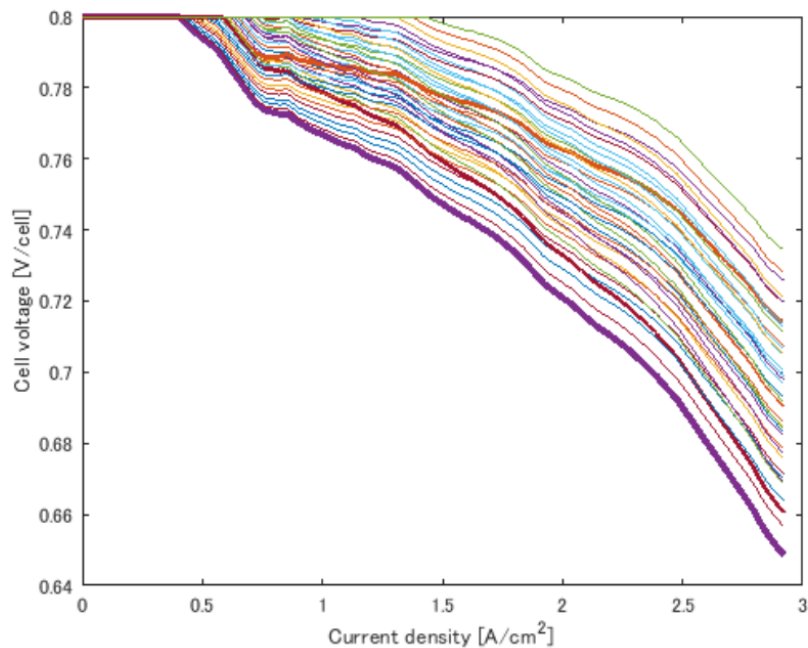


図 2.2.2-2 I-V 特性候補の例

(3) 動力性能要件

動力性能要件は所定の走行条件での車両走破性の要件を与えており、これにより FC の I-V 特性が規定される。I-V 特性は発電負荷 (\propto 走行負荷) の増加に伴い発熱量が増加する性質を有しているが、FC (主に触媒) の劣化により I-V 特性が低下した場合は、同一負荷条件でも発熱量が上昇する (図 2.2.2-3)。このとき、FC の発熱量がラジエータの放熱量を常に上回ると FC の水温上昇が抑えられなくなり走行不能となる。よって FC 車両の動力性能要件は、ラジエータ放熱能力

の制限の下で耐久後の EOL I-V 特性に対応させることができる。劣化シミュレーションにより BOL I-V 特性は EOL I-V 特性と対応づけられるため、耐久要件を満たす BOL I-V 特性が探索できる。

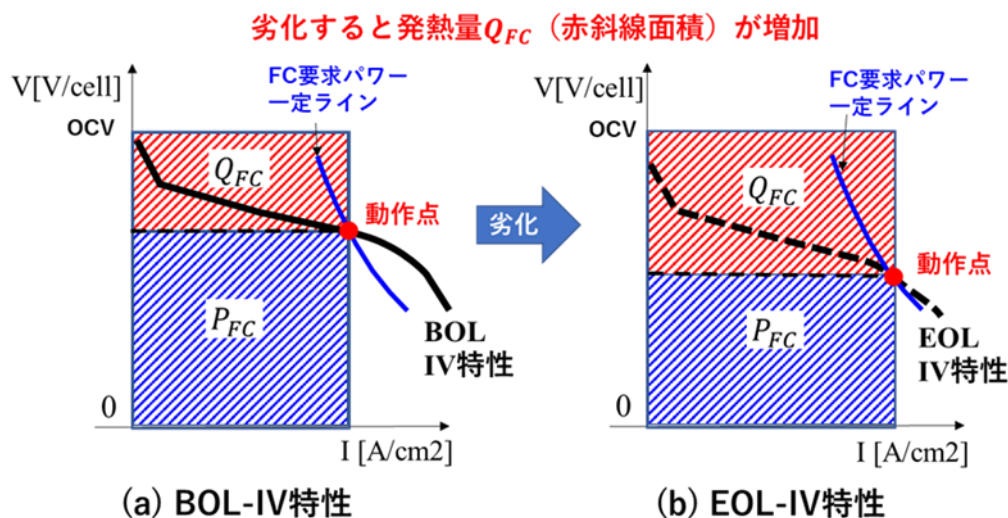


図 2.2.2-3 I-V 特性の低下に伴う発熱量増加

(4) 計算手順

以下に示す計算手順により、耐久性の要求値を満足する I-V 特性を探索する。

- ① 車両要求値（諸元、耐久時間、耐久走行パターン、動力性能要件）を設定。
- ② 活性指標である交換電流密度(i_0)、プロトン抵抗等の抵抗成分を含むオーム抵抗(R_Ω)、ガス拡散抵抗(R_{gas})をパラメータとして各上下限の範囲から抽出しその値の組み合わせから I-V 特性を式(1)に基づいて生成。
- ③ 初期 I-V 特性に対し、車両が耐久走行パターンを耐久時間繰り返し走行したときの FC 劣化による I-V 特性低下をシミュレーションで算出。
- ④ 耐久時間後の I-V 特性で車両が動力性能要件を満足するか判定。

(5) 要求 I-V 特性

計算結果を図 2.2.2-4 に示す。図 2.2.2-4 (a)の 3 次元平面上の各点は、耐久要求値を満たす MEGA 物性値（活性向上率、オーム抵抗低減代、ガス拡散抵抗低減代）の組み合わせを示している。各点が一本の I-V 特性に対応しており、図 2.2.2-4 (b)は耐久要求値を満たす I-V 特性の集合を表している。この結果から、要件を満たす I-V 特性は赤いラインのように「高活性、高抵抗なもの」から、青いラインのように「低活性、低抵抗なもの」まで複数存在することが分かる。これらの I-V 特性の候補から活性の最も低い I-V 特性を抽出し目標 I-V 特性とした(前節の図 1.3-1 を引用)。

目標 BOL I-V 特性に対し、25 トンクラスで WHVC と JH25 による繰り返し走行をそれぞれ耐久時間行った後の EOL I-V 特性を図 2.2.2-5 に示す。起動停止を含む耐久走行パターンの違いにより同一 BOL I-V 特性に対し EOL I-V 特性は異なる。各 EOL I-V 特性ライン上に、動力性能要件の 90km/h で平均的な高速道路の坂を走行するのに必要な動作点（熱定格動作点）を赤丸で示す。この中で劣化度合いが多い WHVC 走行後の熱定格動作点の電流密度が最も大きく、ラジエ

一タの放熱必要量も大きくなることが推察される。同様に 44 トンクラスで行った結果を図 2.2.2-6 に示す。また、図 2.2.2-5、図 2.2.2-6 中の I-V 特性上の点線は今回のシミュレーションで使われなかった領域を表しているが、アプリケーションや制御設計によって異なることを付記しておく。

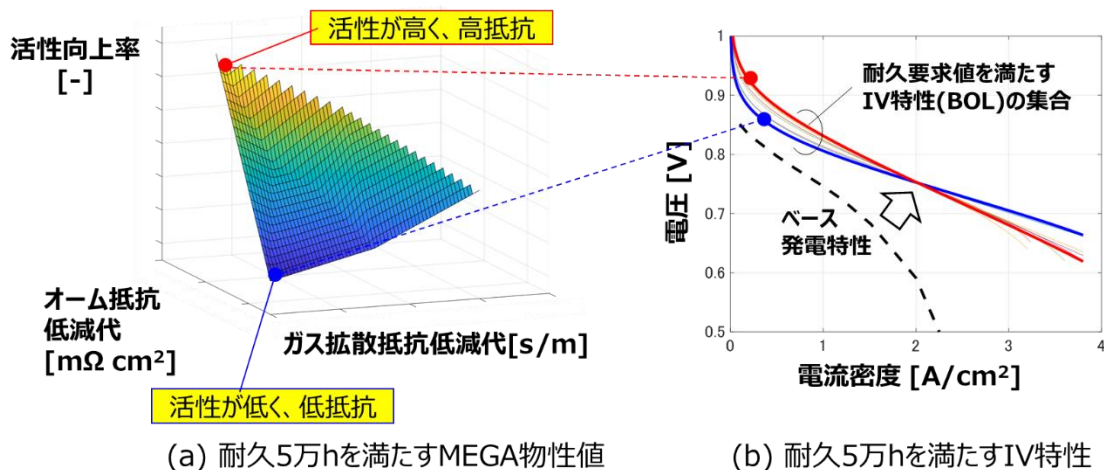


図 2.2.2-4 耐久 5 万 hr を満たす MEGA 物性値と I-V 特性

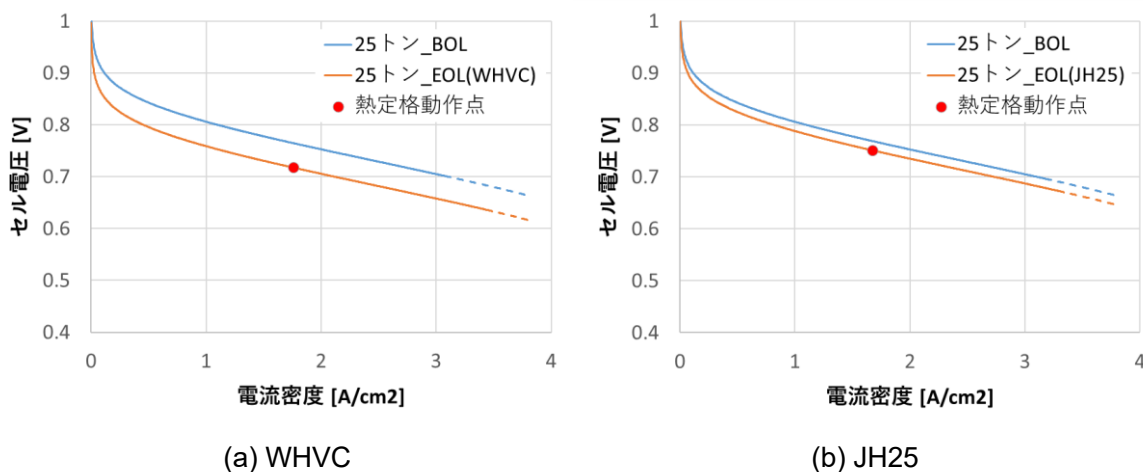


図 2.2.2-5 BOL I-V 特性と EOL I-V 特性 (25 トン)

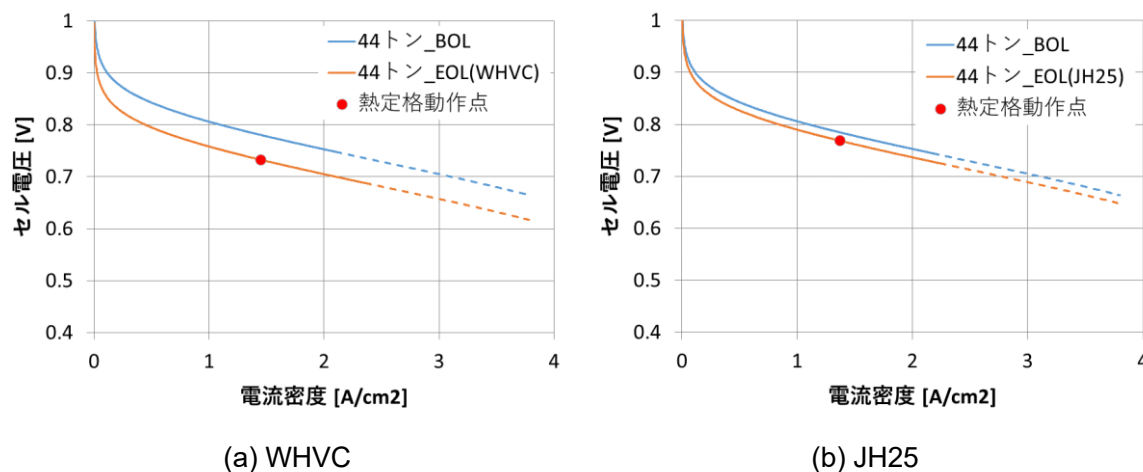


図 2.2.2-6 BOL I-V 特性と EOL I-V 特性 (44 トン)

目標 I-V 特性に対し WHVC を耐久目標時間繰り返し走行した後の EOL I-V 特性について、FC ネット出力に対する FC 発熱量を求めた結果を図 2.2.2-7 に示す。熱定格動作点での FC 発熱量は、25 トンクラスでは 210kW、44 トンクラスでは 336kW であり、それぞれに対応した FC 冷却能力が求められる。実際、外気温を 45°C と仮定した場合、FC 最大水温が 105°C においてラジエータ冷却能力として 25 トンクラスでは 3.5kW/°C、44 トンクラスでは 5.6kW/°C が求められる。これらは表 2.2.2-2 のシステム構成で想定した冷却能力の範囲内であることが確認できる。したがって、25 トンクラスの製品要求から導出された I-V 特性目標値が 44 トンクラスの製品要求を満たすことが確認できた。

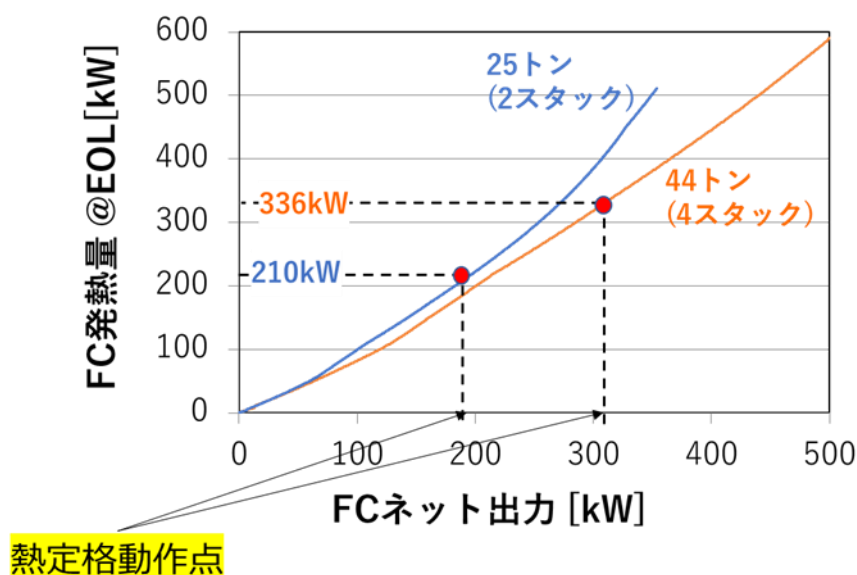


図 2.2.2-7 EOL I-V 特性(WHVC 耐久走行後)における熱定格動作点での発熱量

(6) 今後の課題

- 電解質膜の耐久性に関しては、(2) で述べた通りここまでの検討では考慮されていない。従って、耐久走行パターンをはじめ高負荷走行パターンでの電流、電圧、温度データにより電解質膜への耐久要件を示す必要がある。このため、耐久パターンの WHVC と JH25、高負荷走行パターンの山岳路と長距離輸送パターンでの走行シミュレーションにより求めた頻度分布データを次節に示す。
- 大型トラックは消防車等の特殊用途を含めると多様な形態での使用に応える必要があり、搭載要件は更に厳しい。これには 2 次電池の小型化も考慮しながら、出力密度向上による FC の小型化や、FC の運転温度を増加させるなど冷却性能向上によるラジエータを含めたシステム小型化にも取り組んでいく必要がある (2030 年以降の課題)。
- 大型トラックの代表マーケットの 1 つである EU における HD トラック (HDT) 販売シェアを図 2.2.2-8 に示すが、EU では HDT に占めるトラクタータイプの比率が年々増加しており、2014 年時点で約 45% とほぼ過半数を占める。また図 2.2.2-9 より、2014 年時点でトラクタータイプのエンジン出力の約 90% 以上が 300-400kW である。GVW40 トンを超えることもあるトラクタータイプでは、大出力の動力源が望まれていると思われる。図 2.2.2-7 に示すように、

動力源の出力増加に伴い発熱量も増加するため、特にトラクタータイプでは、FCシステムの高温作動化が強く望まれている（2030年以降の課題）。

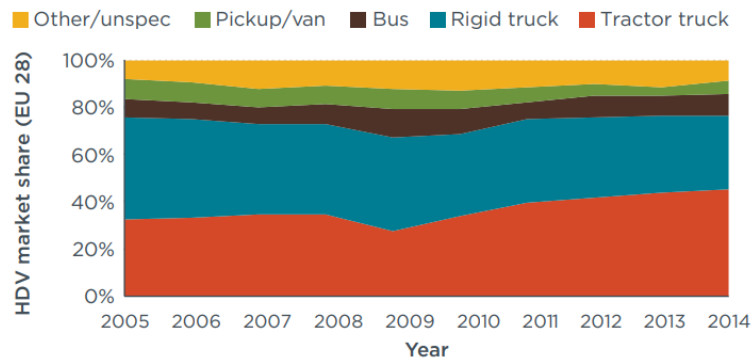


図 2.2.2-8 EUにおけるHDT販売シェア [1]

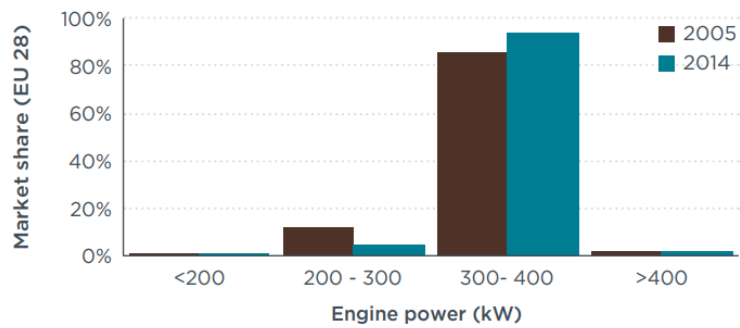


図 2.2.2-9 EUにおけるTractor truck用エンジン販売シェア [1]

(参考文献)

[1] ICCT, “Overview of the heavy-duty vehicle market and CO2 emissions in the EU” (2015)

2.2.3 他のアプリケーションのシステム成立の検討

ここでは、他のアプリケーションについて、2030年頃を想定したシステム構成で、2.2.2「大型トラック」で試算した目標 I-V 特性を用いた場合に、耐久要求を満足するかどうかについて、2.2.2と同様のシミュレーションを用いて試算する。進め方を図 2.2.3-1 に示す。

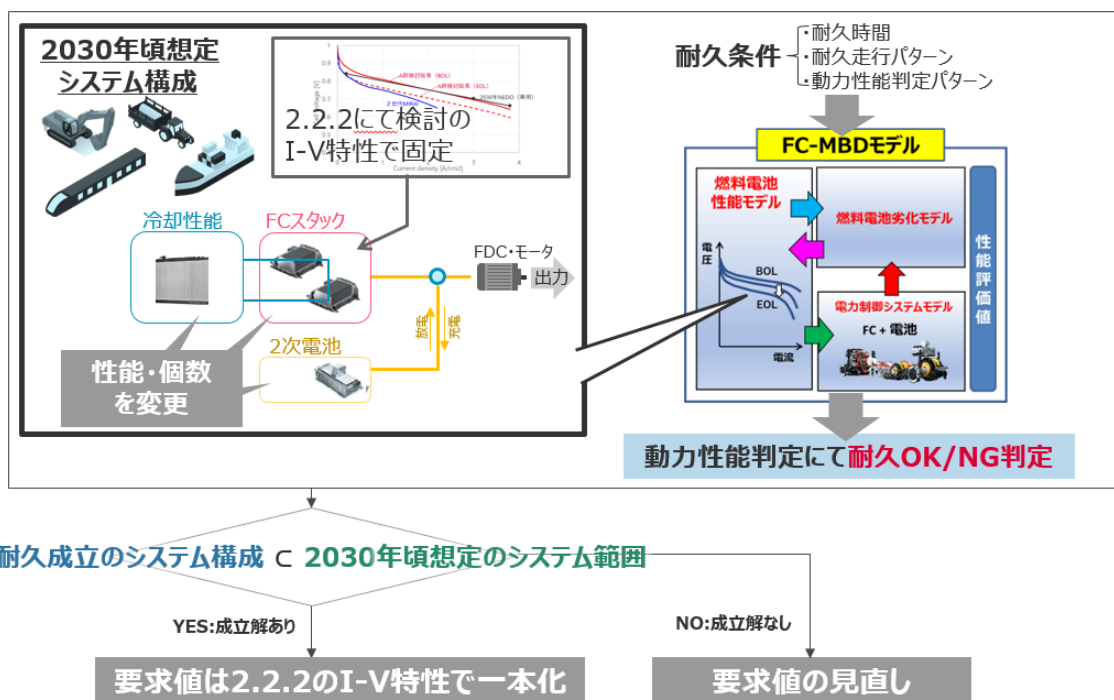


図 2.2.3-1 他のアプリケーションシステム成立性検討の進め方

(1) 各アプリケーションのシステム構成

今回試算では、表 2.2.3-1～表 2.2.3-3 に示す 2030 年頃を想定したシステム構成を前提とする。FC スタック数、冷却性能、2 次電池性能については、性能を振ってシミュレーションを実施し、表 2.2.3-1～表 2.2.3-3 に示す 2030 年頃の想定システム範囲内に、耐久性能を満足するシステム構成が存在するかを検証する。ただしフォークリフトについては、すでに第二世代の FC システムでも耐久要求にミートしているため、今回試算の対象外とする。

表 2.2.3-1 システム構成の試算条件と 2030 年頃のシステム範囲：スタック

アプリケーション	システム構成の試算条件			2030 年頃の想定システム範囲 想定搭載可能数
	FC スタック数	面積・枚数	I-V 性能	
内航貨物船	3～6 基	273cm ² 330 枚/基 ^{※1}	2.2.2 にて試算の I-V 特性	46 基以下
沿岸旅客船	2～5 基			18 基以下
鉄道 2 両編成	2～10 基			4 基以下
油圧ショベル 20 トンクラス	1～2 基			2 基以下
油圧ショベル 13 トンクラス	1 基			1 基以下
農業用トラクタ 50kW クラス	0.32～1 基			0.32 基以下

※1：Gen2 MIRAI のセル仕様を想定

表 2.2.3-2 システム構成の試算条件と 2030 年頃のシステム範囲：冷却性能

アプリケーション	システム構成の試算条件	2030 年頃の想定システム範囲
	冷却性能	想定冷却性能
内航貨物船	100 kW/°C ^{※2}	制限なし
沿岸旅客船	100 kW/°C ^{※2}	制限なし
鉄道 2 両編成	6~12 kW/°C	10 kW/°C以下
油圧ショベル 20トンクラス	1.27(現状)~2.55 kW/°C	1.82 kW/°C以下
油圧ショベル 13トンクラス	1.0(現状)~1.82 kW/°C	1.82 kW/°C以下
農業用トラクタ 50kW クラス	1.14(現状)~1.71 kW/°C	1.71 kW/°C以下

※2：海水を使うことで十分な冷却が可能。シミュレーションでは極端に大きい値を設定することで模擬

表 2.2.3-3 システム構成の試算条件と 2030 年頃のシステム範囲：2 次電池

アプリケーション	システム構成の試算条件	2030 年頃の想定システム範囲
	2 次電池性能	想定性能
内航貨物船	2 次電池なしを設定 ^{※3}	制限なし
沿岸旅客船	2 次電池なしを設定 ^{※3}	制限なし
鉄道 2 両編成	出力 800kW 容量 240kWh ^{※4}	-
油圧ショベル 20トンクラス	出力 75~225kW 容量 2.6~7.8kWh	出力 75kW 容量 2.6kWh
油圧ショベル 13トンクラス	出力 75~225kW 容量 2.6~7.8kWh	出力 75kW 容量 2.6kWh
農業用トラクタ 50kW クラス	出力 0~50kW 容量 0~5kWh	—

※3：船舶では回生はなく、内航貨物船と沿岸旅客船での 2 次電池のシステムにおける用途は、微小な変動吸収のみのため、耐久への寄与度は小さい。したがってシミュレーションでは、FC 要求出力を与え、2 次電池はなしの設定にて実施

※4：FC と 2 次電池の出力分配・回生制御は OEM にて実施、したがってシミュレーションでは、FC 要求出力を与え、2 次電池はなしの設定にて実施

(2) 各アプリケーションの耐久条件

各アプリケーションの通常の使われ方として、表 2.2.3-4~表 2.2.3-7 に示す耐久走行パターンを定義し、各アプリケーションの最も厳しい使われ方として、表 2.2.3-4~表 2.2.3-7 に示す動力性能判定パターンを定義する。

この耐久走行パターンを耐久時間分繰り返すことで市場での劣化を模擬し、そしてその劣化状態にて動力性能判定パターンを走破出来た場合に、耐久要求を満足できたと判定する。

表 2.2.3-4 耐久条件：船舶

	内航貨物船	沿岸旅客船
耐久時間	60,000 時間	30,000 時間
耐久走行パターン	<p>国内の貨物輸送を想定し、3 日航行+揚荷 1 日+積荷 1 日の計 5 日の作業パターン 起動停止は 1 回/1 作業パターン(5 日=120 時間)</p>	<p>国内の旅客輸送(例:島 to 島)を想定し、航行⇒乗/下船の停泊 を繰り返すパターン 起動停止は 1 回/1 日(7.5 時間)</p>
動力性能判定パターン	耐久走行パターンと同一	耐久走行パターンと同一

表 2.2.3-5 耐久条件：鉄道

	鉄道 2 両編成
耐久時間	50,000 時間
耐久走行パターン	<p>都市部近郊を想定し(駅間 3km 程度)、約 9 割が平坦線区、約 1 割が勾配線区となる路線 1 線区内では、一般的な電車での最高速である約 100km/h まで到達し、すぐに減速 起動停止は、2 回/1 日(=8 時間×2)</p>
動力性能判定パターン	耐久走行パターンと同一

表 2.2.3-6 耐久条件：建機

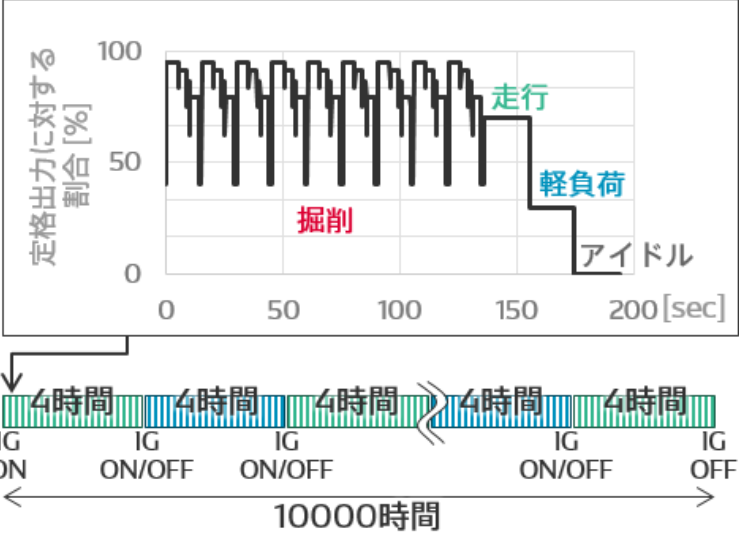
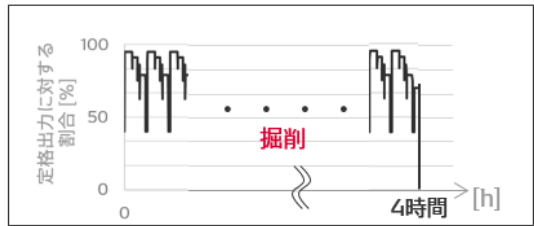
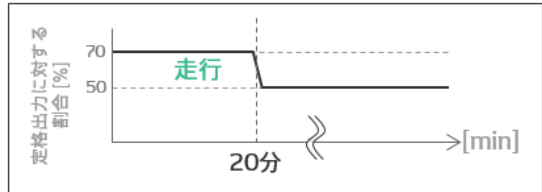
	油圧ショベル 20トンクラス	油圧ショベル 13トンクラス
耐久時間	10,000 時間	
耐久走行パターン	<p>10t ダンプにショベルで土砂などを積み込み(10回で満載) その後、走行・軽負荷作業・アイドルを実施。これを耐久時間分繰り返す。 起動停止は、2回/1日(=4時間×2)</p>  <p>The graph shows the percentage of rated output over time. It is divided into three phases: 掘削 (Excavation) at approximately 70% output, 走行 (Travel) at approximately 70% output, and 軽負荷 (Light Load) at approximately 30% output. Below the graph, a timeline shows a 4-hour cycle of IG ON, ON/OFF, and IG OFF, which is repeated 1000 times to reach a total of 10000 hours.</p>	
動力性能判定パターン	<p>A かつ B が成立すること A: 連続掘削 4 時間連続作業様様の休憩を考慮した、最悪想定</p>  <p>The graph shows a continuous excavation cycle over 4 hours, with the output percentage fluctuating between approximately 40% and 100%.</p> <p>B: 連続走行 国内で最長想定 of 20 分を高速で走破、その後は中速を維持</p>  <p>The graph shows a continuous travel cycle over 20 minutes. The output percentage starts at approximately 70% and then drops to approximately 50% after 20 minutes.</p>	

表 2.2.3-7 耐久条件：農機

農業用トラクタ 50kW クラス	
耐久時間	10,000 時間
耐久走行パターン	<p>負荷の高い耕うん作業について A・B を想定しそれぞれ実施 起動停止は、2 回/1 日 (=4 時間×2)</p> <div style="display: flex; justify-content: space-around;"> <div style="text-align: center;"> <p>A：短めの畑→旋回多く負荷変動多</p> </div> <div style="text-align: center;"> <p>B：長めの畑→高負荷が継続</p> </div> </div> <p>10000時間</p>
動力性能判定パターン	連続耕うんを想定し、50kW 連続運転で判定

(3) 耐久成立性の検討結果

2030 年頃を想定したシステム構成において耐久走行後に動力性能を満たせるかをシミュレートし、その結果が 2030 年頃想定システム範囲に対してどのような関係になっているかについて、図 2.2.3-2 に示すようにまとめた。その結果、今回対象とした全てのアプリケーションにて耐久性を満足する構成が存在することが分かった。各アプリケーションの結果を以下に示す。

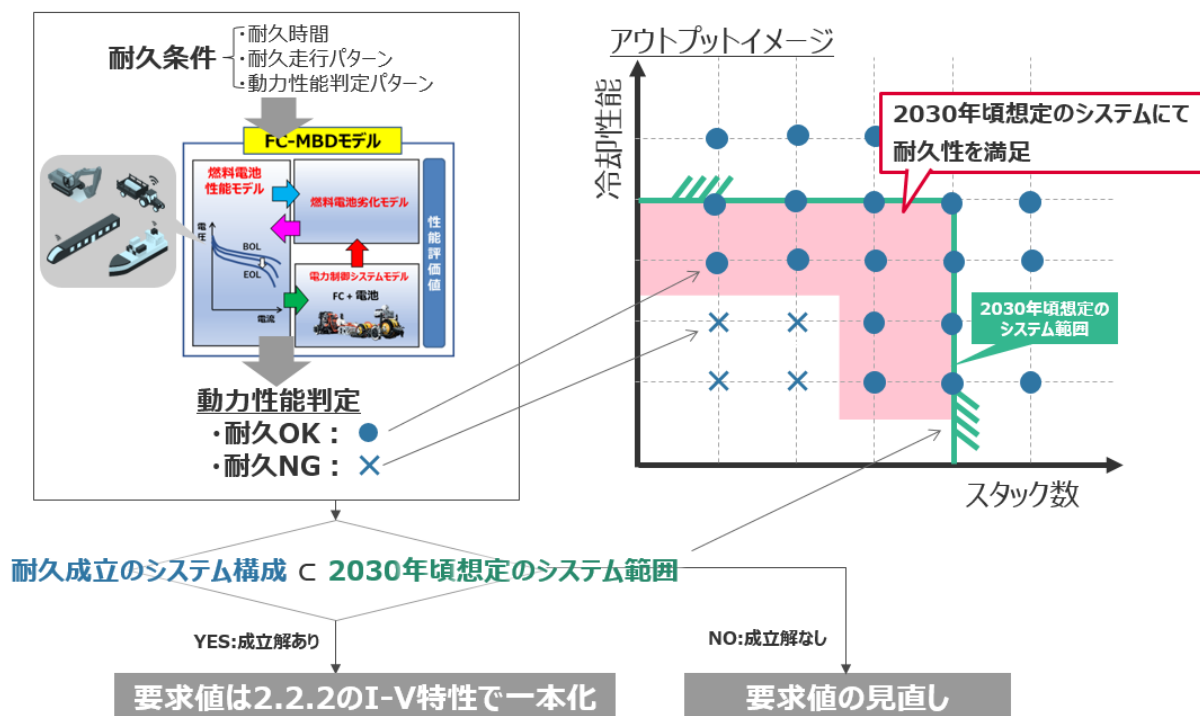


図 2.2.3-2 アウトプットイメージ

①船舶の検討結果

スタック数を振って検討し、図 2.2.3-3 の赤ハッチング部分にて 2030 年頃に想定されるシステム構成にて耐久を満足することが分かった。

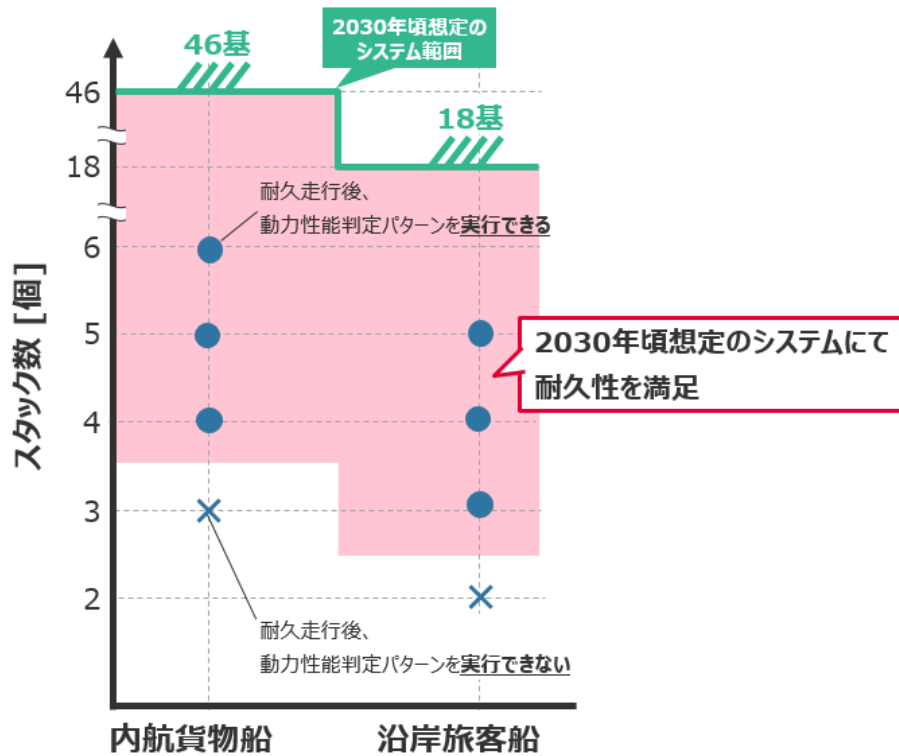


図 2.2.3-3 船舶の検討結果

②鉄道の検討結果

スタック数、冷却性能を振って検討し、図 2.2.3-4 の赤ハッチング部分にて 2030 年頃に想定されるシステム構成にて耐久を満足することが分かった。

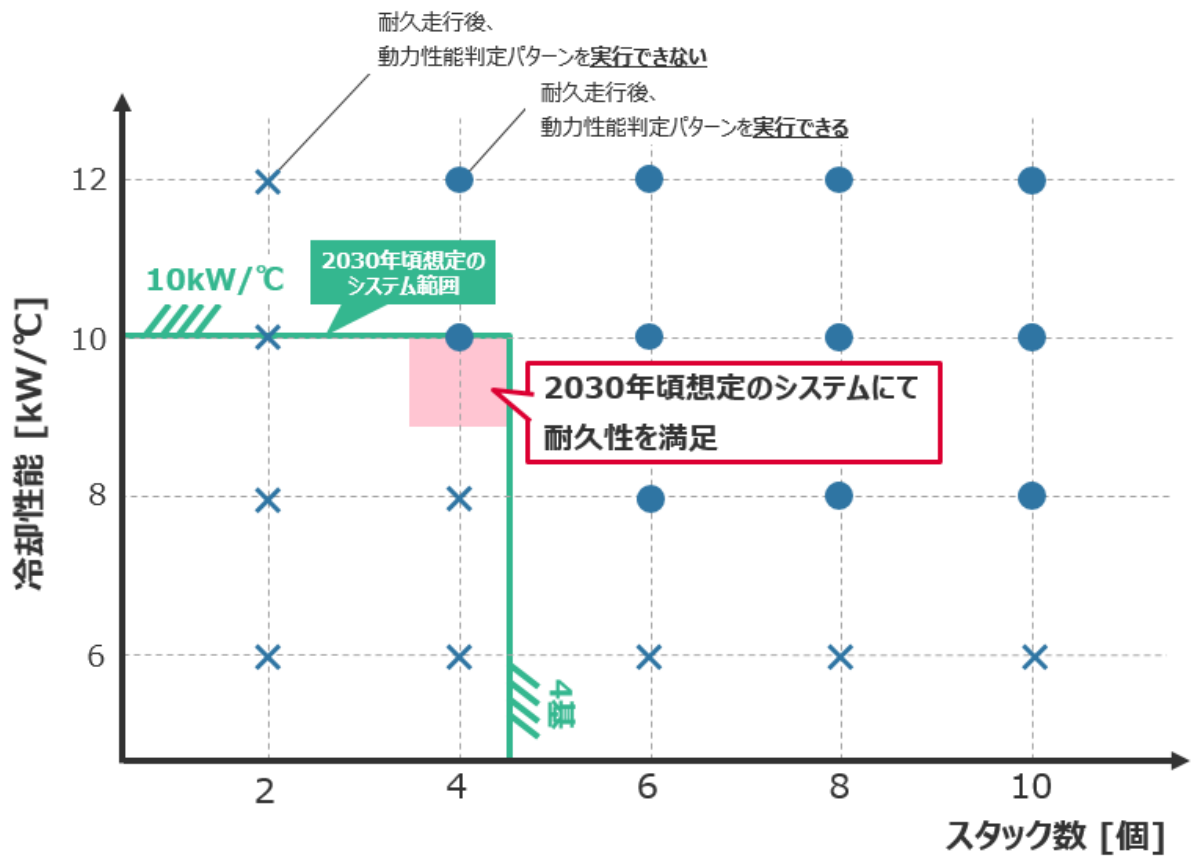


図 2.2.3-4 鉄道の検討結果

③建機の検討結果

スタック数、冷却性能、2次電池性能を振って検討し、図 2.2.3-5 および図 2.2.3-6 の赤ハッチング部分にて 2030 年頃に想定されるシステム構成にて耐久を満足することが分かった。

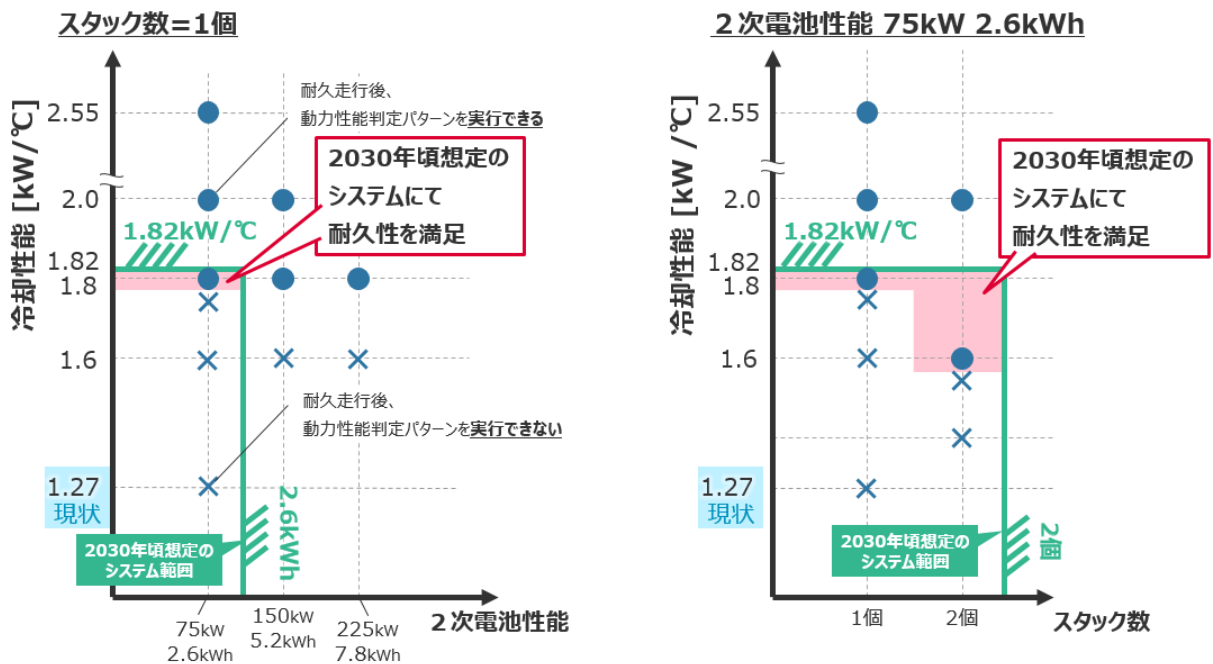


図 2.2.3-5 建機の試算結果 (油圧ショベル 20 トンクラス)

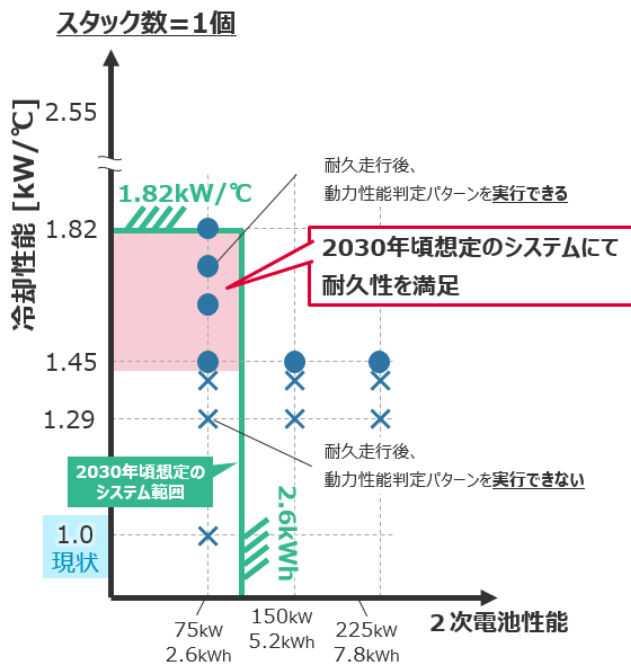


図 2.2.3-6 建機の試算結果 (油圧ショベル 13 トンクラス)

④農機の検討結果

スタック数、冷却性能、2次電池性能を振って検討し、図 2.2.3-7 および図 2.2.3-8 の赤ハッチング部分にて 2030 年頃に想定されるシステム構成にて耐久を満足することが分かった。

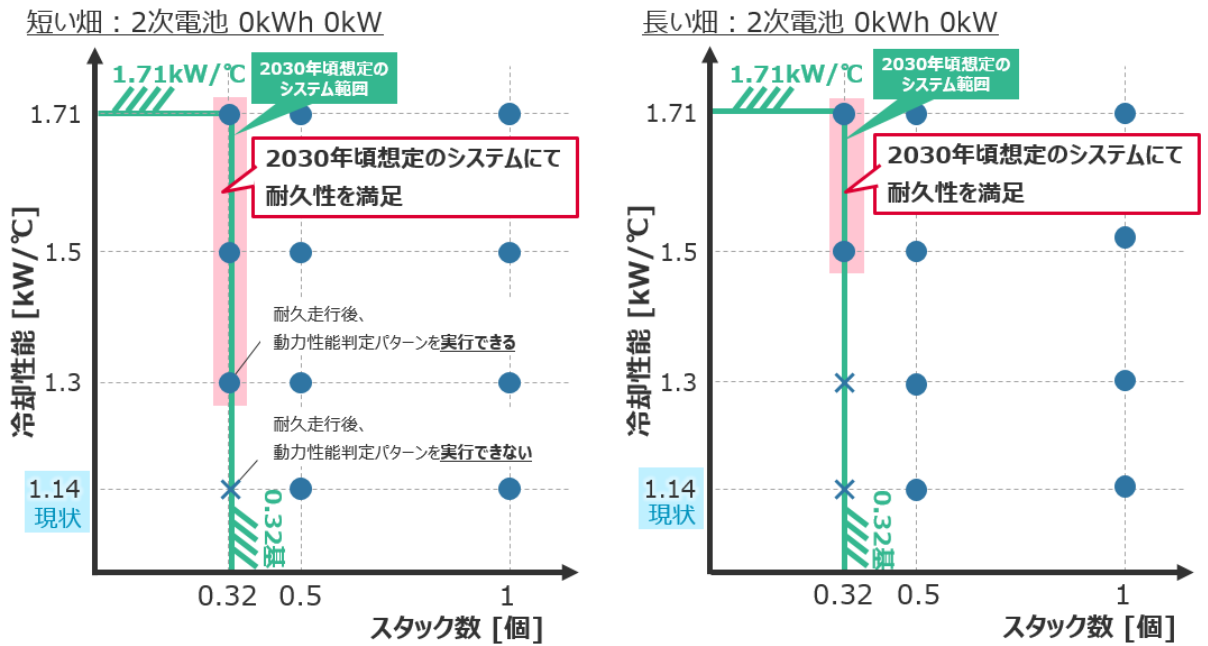


図 2.2.3-7 農機の試算結果（トラクタ 2次電池 0kW・0kWh）

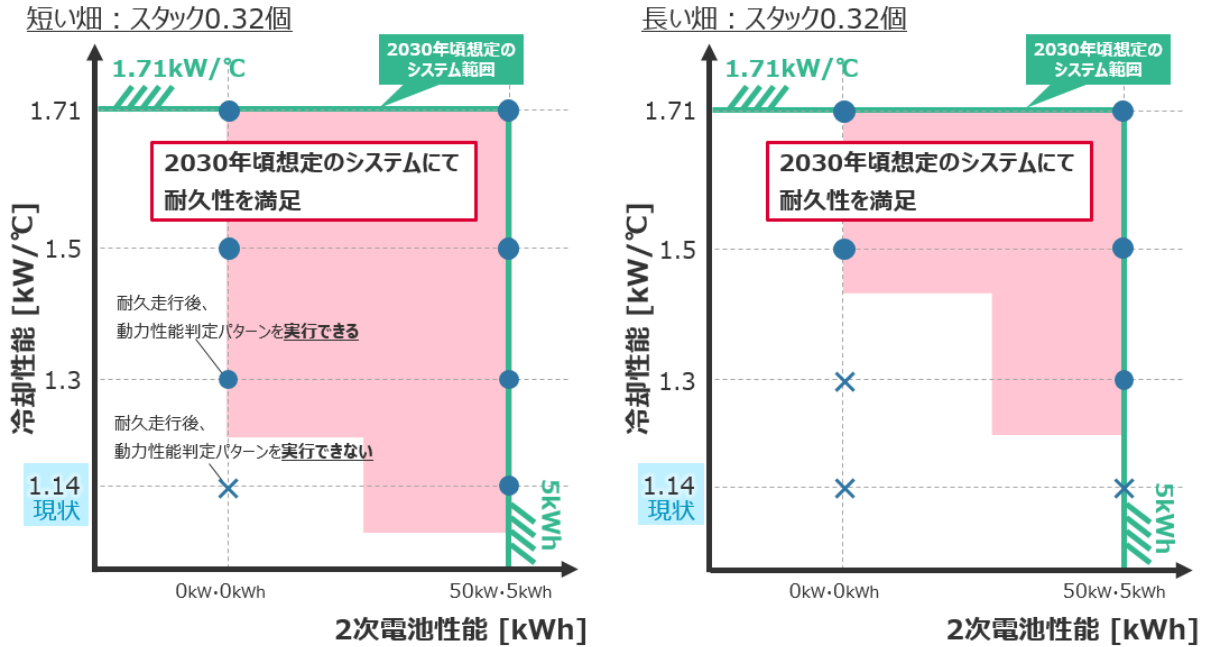


図 2.2.3-8 農機の試算結果（トラクタ 2次電池 50kW・5kWh）

(4) 各アプリケーションの使われ方

ここでは、材料開発における評価プロトコル検討の一助となるよう、各アプリケーションでの使われ方についてまとめる。

①対象システムの定義

(2) にて検討したシステム構成のうち、耐久を満足する以下を対象とする。

表 2.2.3-8 使われ方まとめの対象システム

アプリケーション	システム構成			走行パターン
	FC スタック数	冷却性能	2次電池性能	
25トンクラストラック	表 2.2.2-2 に記載のシステム			WHVC, JH25 山岳路, 長距離輸送
44トンクラストラック	表 2.2.2-2 に記載のシステム			WHVC, JH25 山岳路, 長距離輸送
内航貨物船	4 基	100kW/°C	-	表 2.2.3-4 耐久走行パターン
沿岸旅客船	3 基	100kW/°C	-	表 2.2.3-4 耐久走行パターン
鉄道 2 両編成	4 基	10kW/°C	-	表 2.2.3-5 耐久走行パターン
油圧ショベル 20 トンクラス	1 基	1.8kW/°C	75kW 2.6kWh	表 2.2.3-6 耐久走行パターン
油圧ショベル 13 トンクラス	1 基	1.45kW/°C	75kW 2.6kWh	表 2.2.3-6 耐久走行パターン
農業用トラクタ 50kW クラス	0.32 基	1.71kW/°C	—	表 2.2.3-7 耐久走行パターン

②スタックあたり出力の時間分布

各アプリケーションの耐久時間内における、各出力帯での総使用時間は図 2.2.3-9 に示すとおり

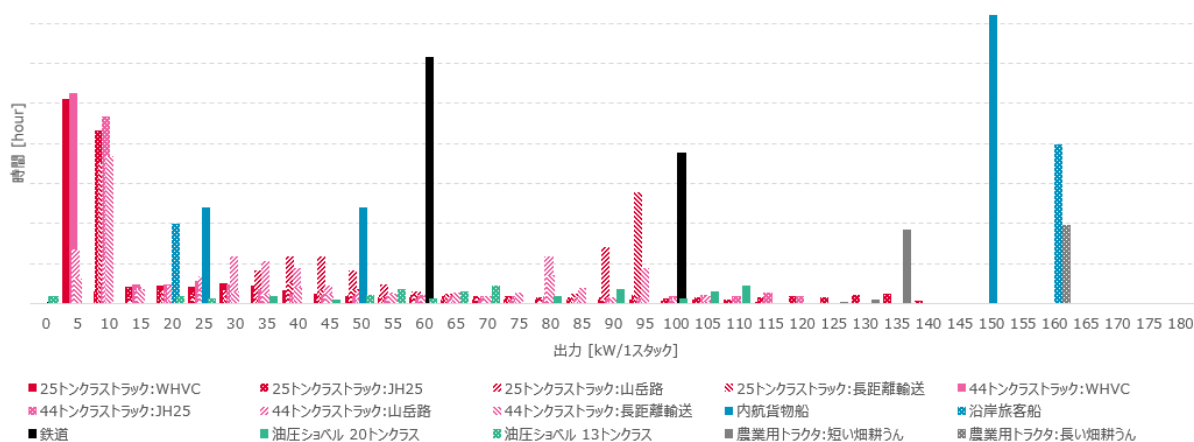


図 2.2.3-9 スタック 1 基あたり出力の時間分布

③電圧の時間分布

各アプリケーションの耐久時間内における、各電圧帯での総使用時間は図 2.2.3-10 に示すとおり

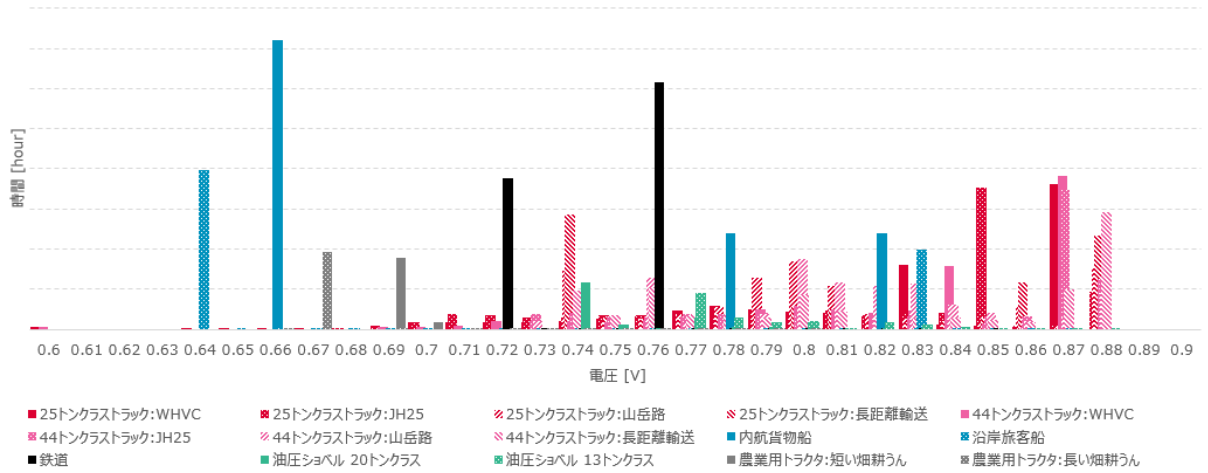


図 2.2.3-10 電圧の時間分布

④電流密度の時間分布

各アプリケーションの耐久時間内における、各電流密度帯での総使用時間は図 2.2.3-11 に示すとおり

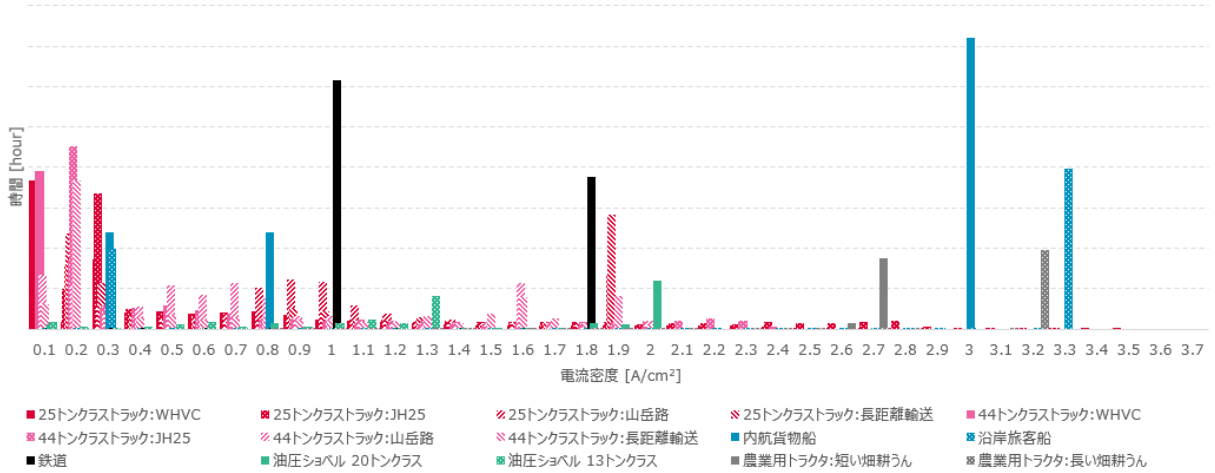


図 2.2.3-11 電流密度の時間分布

⑤FC 水温の時間分布

各アプリケーションの耐久時間内における、各 FC 水温帯での総使用時間は図 2.2.3-12 に示すとおり

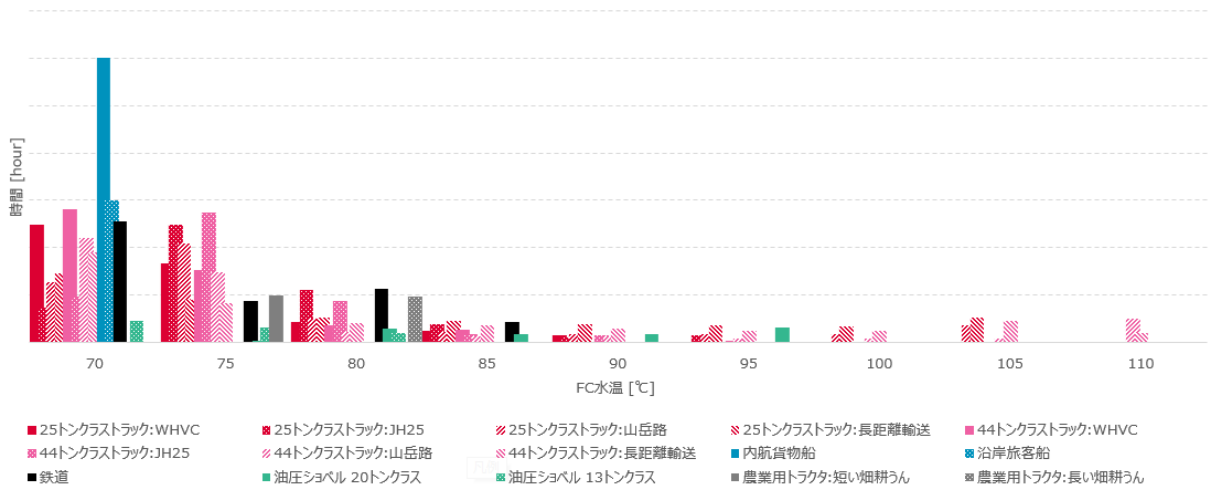


図 2.2.3-12 FC 水温の時間分布

⑤スタック内平均湿度の時間分布

各アプリケーションの耐久時間内における、各湿度帯での総使用時間は図 2.2.3-13 に示すとおり

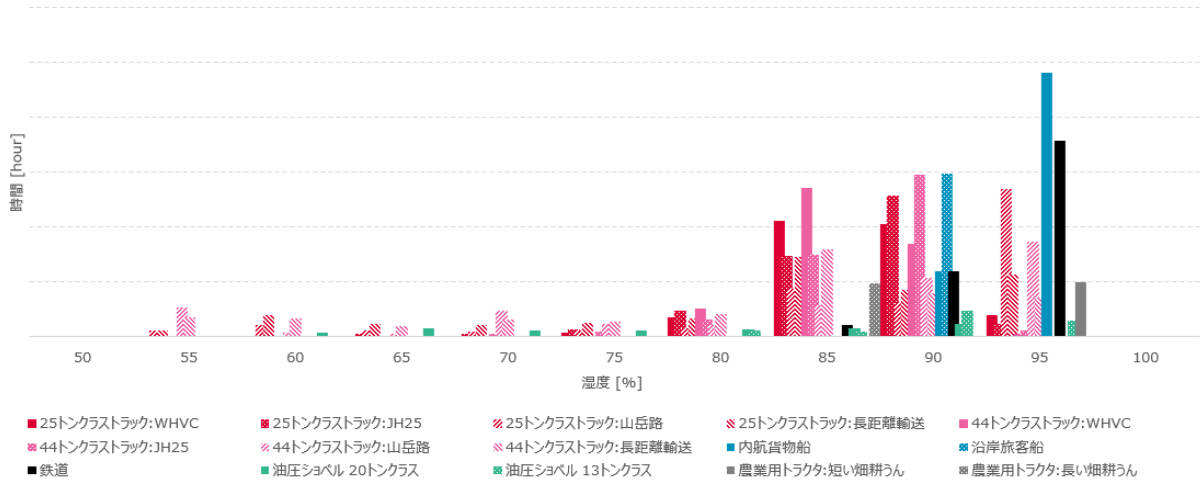


図 2.2.3-13 スタック内平均湿度の時間分布

⑥起動停止回数

各アプリケーションの耐久時間内における起動停止回数は表 2.2.3-9 に示すとおり

表 2.2.3-9 起動停止回数

アプリケーション	起動停止回数	走行パターン
25 トンクラストラック	100,000 回	WHVC
44 トンクラストラック	100,000 回	WHVC
内航貨物船	500 回	表 2.2.3-4 耐久走行パターン
沿岸旅客船	4,000 回	表 2.2.3-4 耐久走行パターン
鉄道 2 両編成	6,350 回	表 2.2.3-5 耐久走行パターン
油圧ショベル 20 トンクラス	2,500 回	表 2.2.3-6 耐久走行パターン
油圧ショベル 13 トンクラス	2,500 回	表 2.2.3-6 耐久走行パターン
農業用トラクタ 50kW クラス	2,500 回	表 2.2.3-7 耐久走行パターン

2.3 FCシステムとしての技術目標

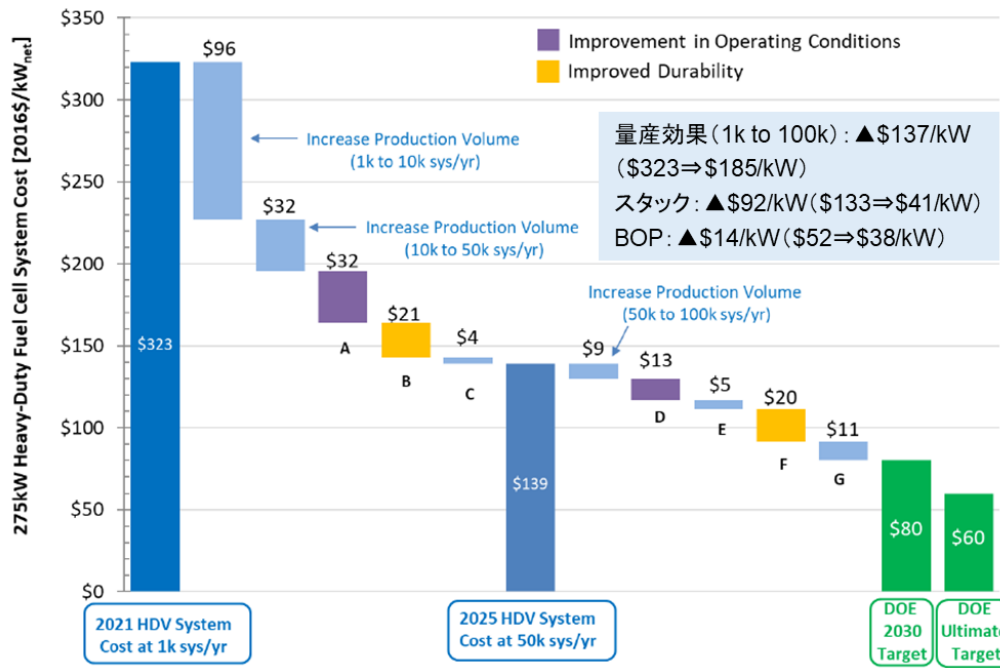
2.3.1 コスト

DOE が試算した 2030 年の HDV コスト目標[1]を参考にして、2030 年頃の FC システム目標 0.9 万円/kW、FC スタックコスト 0.45 万円/kW（年産 10 万台前提）を提案する。ただし、FC システムのコストについてはスタックと水素、エア供給系および冷却系システムの BOP を対象とし、水素貯蔵システム、2 次電池、DC/DC コンバータ等のパワーエレクトロニクス、モータを含まない。DOE のコストの考え方は、現在の class8（米国における車両総重量 15 トン以上）の大型トラックを対象として、ディーゼルエンジン（排ガス処理装置を含む）のコスト 2.5 万ドルと等価の FC システムコスト 60 ドル/kW（出力 390kW）を最終目標とし、図 2.3.1-1 に示すコスト低減シナリオ[2]に沿って、現在から技術進展で達成し得る 80 ドル/kW を 2030 年目標と設定している。

一方、HDV のコストを考える上で、乗用車が車両価格、燃費、消費者の嗜好性、利便性、環境意識などの幅広い基準で選択されることに対して、商用車では顧客（事業者）の事業の経済性の成立が最優先であり、車両の総保有コスト（TCO：Total Cost of Ownership）の考え方が重要となる。TCO は車両購入費と運用費（燃料費、メンテナンス費、高速道路料金、等）の合計であり、現状ではディーゼル車両と比べて車両価格・燃料費は高い。2030 年頃においても、FC システムコストがディーゼルエンジンと等価のレベルではなく、さらに水素貯蔵システム、2 次電池、他の電動化に必要な車両改造のコストも想定すると現行のディーゼル車両価格との差がある。

図 2.3.1-2 に大型 FC トラックにおける TCO 低減の考え方を示す。ディーゼル燃料に対する水素のパリティコストは約 600 円/kg-H₂（大型ディーゼルトトラックの平均燃費 4km、軽油価格 120 円/L、FC トラックの平均燃費 20km/kg-H₂を前提）であり、現状の 1,100 円/kg-H₂に対して高価であるが、将来的に水素供給価格がパリティコストを下回るようになれば、FC パワートレイン化による車両価格の差額をカバーできるようになる（試算例として、大型トラックの生涯走行距離 150 万 km とすると、水素供給価格がパリティコストから 100 円/kg-H₂下がれば約 750 万円分の TCO を圧縮）。したがって、2030 年以降は水素供給価格の低減を想定しつつ、更なる FC システムのコスト低減、システム効率向上による燃費改善などを進めていくことによって TCO でのパリティの早期成立を目指すことが重要である。

HDV 用 FC スタックを構成する主要材料のコストに関しても、DOE のコスト内訳比率を参考にして提案する。詳細は 2.4 節「材料目標」の 2.4.5 で解説するが、例えば、Pt 使用量は、DOE コスト試算では 0.326g/kW であるが、今回、我々が議論したところでは国内 2030 年頃の目標として約 0.2g/kW を提案した。このため、スタックコストのうち大部分を占める触媒層のコスト低減代があるが、高活性触媒や触媒利用率向上に対する MPC 担体、高酸素透過イオノマの採用などによるコスト上昇を想定して、DOE と同等レベルのコスト目標設定を提案している。電解質膜、GDL、セパレータ、ガスカートについては耐久性を確保するため FCV と比べて相対的に高いコストが想定される。



シナリオ	技術進展の内容	コスト低減代(\$/kW)	
		スタック	BOP
A	出力密度: 440 から 553mW/cm ² へ向上、EOL 電圧: 0.7 から 0.66V、冷却温度: 88°C から 94°C、Pt 目付量: 0.4 から 0.35mg/cm ² へ低減	32	-
B	オーバーサイジング低減(出力密度: 553 から 644mW/cm ² へ向上)、CVM のセンサーあたりのセル数増(4 から 8)、BOP 交換コストを 30% から 15% に削減	15	6
C	電解質膜: e-PTFE から代替の低コスト膜補強材料へ変更、膜厚を 20μm から 15μm に低減	4	-
D	出力密度: 644 から 708mW/cm ² へ向上、Pt 目付量: 0.35 から 0.3mg/cm ² へ低減	13	-
E	エア系: モーター・コントローラ効率を 85% から 92%、コンプレッサ効率を 72.5% から 75%、エキスパンダ効率を 72% から 75% へ向上	-	5
F	オーバーサイジング低減(出力密度: 708 から 921mW/cm ² へ向上)、BOP 交換コストを 15% から 8% に削減、不測のコスト(Contingency) を 10% から 5% に削減	17	3
G	スタック数を 4 から 2	11	-
合計		92	14

図 2.3.1-1 DOE のコスト低減シナリオ (class-8 の 275kW システムを前提)

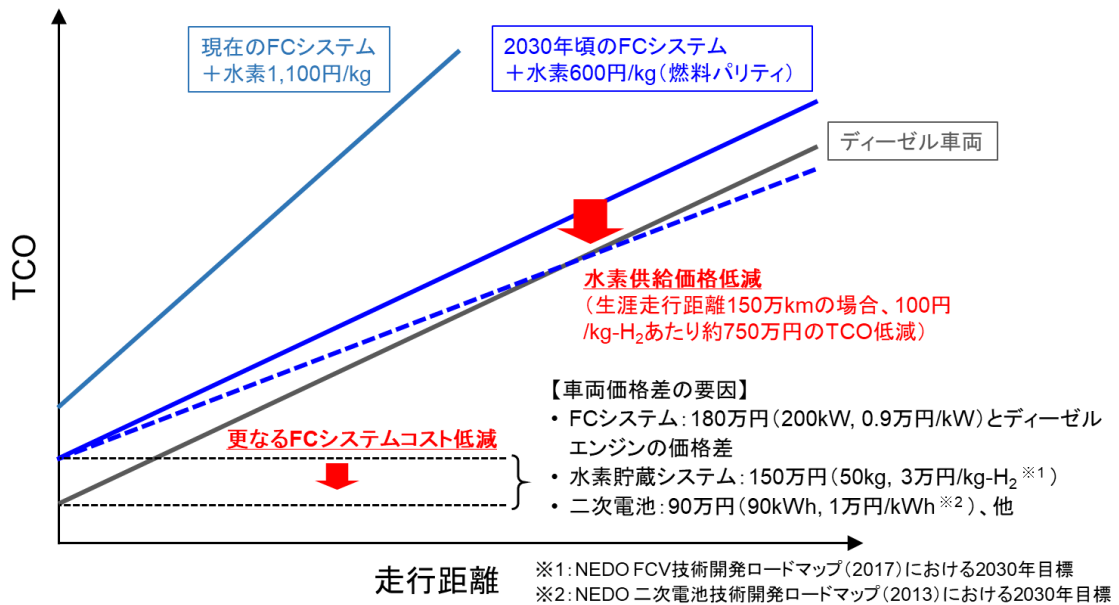


図 2.3.1-2 大型 FC トラックにおける TCO 低減の考え方

(参考文献)

- [1] “Hydrogen Class 8 Long Haul Truck Targets”, DOE Hydrogen and Fuel Cells Program Record #19006
- [2] B. D. James, “Fuel Cell Systems Analysis”, 2021 DOE Hydrogen and Fuel Cells Program Review Presentation

2.3.2 FC 体積出力密度

今回の検討を基に FC システム、FC スタックそれぞれの体積出力密度を算出した。算出の前提として出力を以下の表 2.3.2-1 のとおり定義した。

表 2.3.2-1 体積出力密度算出の定義

FC システム出力	FC システムの出力 (Net 出力) 2 次電池は含まない
FC スタック出力	FC スタック単独の出力 (Gross 出力) ※FC システムから補機損を除いた値
FC システム体積出力密度	FC システム出力/FC システム搭載スペースで算出 搭載スペースはモータ、インバータを除く値
FC スタック体積出力密度	FC スタック出力/FC スタック体積

大型トラックの場合の定格出力は熱定格動作点の値を代表とし、建機の場合は連続掘削の平均値とした。特に記載のないアプリケーションに関しては定格出力が最大出力となっている。

ここでは FC スタックの体積については各アプリの許容 FC システムスペースに係数 (トヨタ FC モジュール横型の FC スタック体積[1]/FC システム体積[2]の比率と仮定) を掛けて算出した。鉄道のみ実際の許容 FC スタック体積を記載している。

ここで、2030年頃は25トンクラスの大型トラックをメインターゲットとし、44トンクラスはその延長線の位置づけのため今回の値は参考値として目標値の対象外とした。

これらの結果、FCシステムの体積出力密度は最大出力ベースの場合は25tクラス大型トラックが0.60kW/L、定格出力ベースの場合は農業用トラクタ50kWクラスが0.41kW/Lと最も大きな値となった。また、FCスタックの体積出力密度は定格出力ベースの場合、農業用トラクタ50kWクラスが6.76kW/Lと最も大きな値となった。

スタック出力密度達成のためにはI-V特性の向上だけでなくセル厚みの低減、シールやマニホールド面積の低減に向けた開発も必要になる。また、本検討の結果から最大電流密度（最大電流）はEOLで3.44A/cm²（939A）となっており、補機部品に対しても本電流密度に対応する設計が必要となる。ただし、目標となる体積出力密度は搭載設計の前提によって大きく異なること、最大出力はFCと2次電池のバランスや制御方法により左右されること、補機とスタックの体積配分などこれらの値は仮定を含んでいるため今回は暫定値とし、乗用車の目標値も踏まえて来年度以降更新を実施する。

表 2.3.2-2 FCシステムの体積出力密度

アプリケーション	FCシステム 体積 [L]	FCシステム 最大出力 [kW]	FCシステム 定格出力 [kW]	FCシステム 体積出力密度 ^{※1} 最大出力ベース [kW/L]	FCシステム 体積出力密度 ^{※1} 定格出力ベース [kW/L]
25トンクラス大型トラック	502	303	187 ^{※2}	0.60	0.37 ^{※2}
(44トンクラス大型トラック)	(502)	(461)	(309 ^{※2})	(0.92)	(0.60 ^{※2})
内航貨物船	18,000	600	600	0.03	0.03
沿岸旅客船	7,000	480	480	0.07	0.07
鉄道2両編成	1,300	400	400	0.30	0.30
油圧ショベル 20トンクラス	1,300	120	101	0.09	0.08
油圧ショベル 13トンクラス	400	74	63	0.19	0.16
農業用トラクタ 50kWクラス	125	51.5	51.5	0.41	0.41

※1：体積出力密度＝FCシステム定格出力/FCシステム搭載スペースで算出、搭載スペースはモータ・インバータを除く値

※2：大型トラックの出力は熱定格動作点

表 2.3.2-3 FC スタックの体積出力密度と最大電流

アプリケーション	定格出力 [kW]	FC スタック 体積※1 [L]	体積出力密度 [kW/L]	EOL 最大電流密度 [A/cm ²]	EOL 最大電流 [A]
25 トンクラス大型トラック	228※3	36.72	6.21※3	3.44	939
(44 トンクラス大型トラック)	(383※3)	(36.72)	(10.43※3)	(2.36)	(644)
内航貨物船	723	1316.91	0.55	3.04	829
沿岸旅客船	578	512.13	1.13	3.30	900
鉄道 2 両編成	475	96.00	4.95	1.88	513
油圧ショベル 20 トンクラス	120	95.11	1.26	1.97	537
油圧ショベル 13 トンクラス	74	29.26	2.53	1.29	353
農業用トラクタ 50kW クラス	61.8	9.15	6.76	3.19	872

※1：高橋剛ほか，“新型 MIRAI の第 2 世代 FC システム概要”，TOYOTA Technical Review Vol. 66 Feb. 2021, p.12-15 (2021)

※2：<https://global.toyota.jp/newsroom/corporate/34799387.html>

※3：大型トラックの出力は熱定格点

2.3.3 Pt 量（資源循環と将来目標@2050 年）

モビリティ用途で消費する Pt 量は、図 2.3.3-1 より 2000 年以降ほぼ 100 トン/年となっており、将来にわたってモビリティ用途で消費できる Pt 量は 100 トン/年と仮定する。因みに、モビリティ用途でリサイクルされる Pt 量は、図 2.3.3-1 より約 40%である。

モビリティ用途内の内訳は、表 2.3.3-1 より小型ガソリン車向け（乗用車・小型商用車・2 輪車など）が約 19%、小型ディーゼル車向け（乗用車・ピックアップトラック・小型商用車など）が約 65%、大型車向けが約 15%、自動車以外の移動機器向けが約 1%である。今回の議論の対象である大型車が消費できる Pt 量は、将来に渡って 15 トン/年と仮定する。

大型車のグローバル生産台数は、図 2.3.3-2 より約 400 万台/年であり、この需要が、将来に渡って継続すると仮定する。将来の CN 社会（2050 年）において、大型車に占める FCEV の販売比率は、図 2.3.3-3 より約 30%と予測されており、FC 大型車の販売台数は約 120 万台/年（2050 年）と予測される。

以上から、2050 年に FC 大型車 1 台当たりが消費できる Pt 量は約 12.5g/台（=15 トン÷120 万台）となる。FC 本格普及期までには、FC 大型車 1 台当たり Pt 使用量 12.5g 以下の低 Pt 技術確立を目指すべきである。また Pt リサイクル率を更に高める取組も大変重要となる。

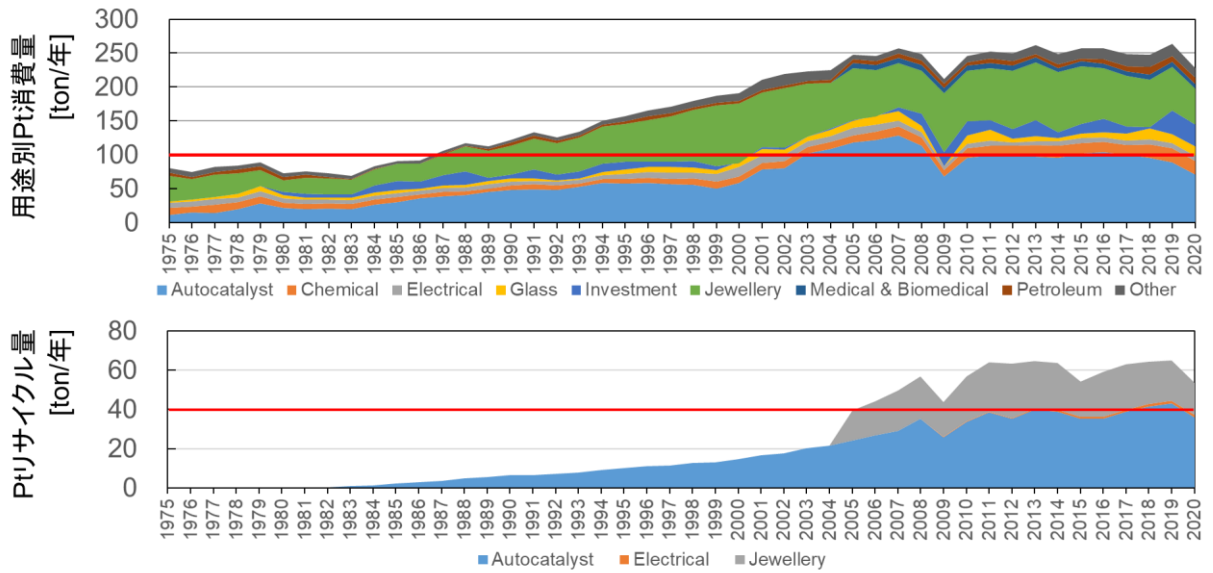


図 2.3.3-1 用途別 Pt 消費量とリサイクル量[1]

表 2.3.3-1 モビリティ向け Pt 需要の内訳[2]

車種	プラチナ需要:自動車触媒(単位:1,000 oz)		
	2010年	2011年	2012年
小型ガソリン車	640	545	620
小型ディーゼル車	2,025	2,105	2,020
大型車	400	490	500
自動車以外の移動機器	10	45	100

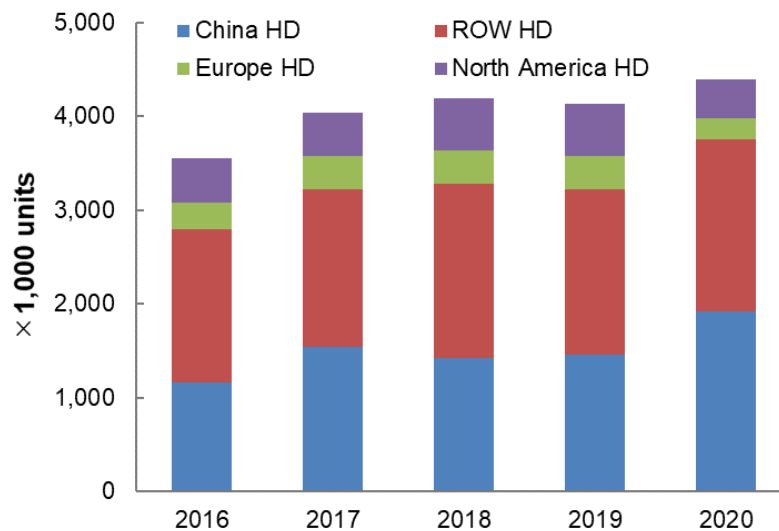


図 2.3.3-2 大型車のグローバル生産台数[3] (ROW : Rest of World の略)

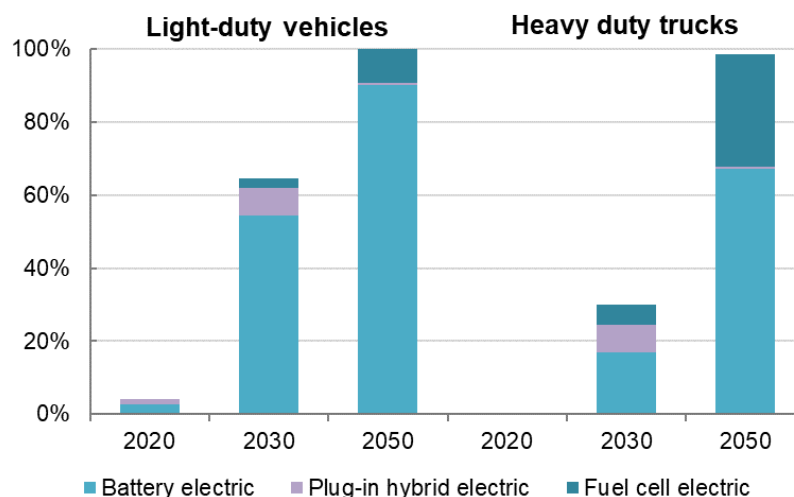


図 2.3.3-3 EV-PHEV-FCEV の販売比率予測[4]

(参考文献)

[1] Johnson Matthey ホームページ

[2] Johnson Matthey ホームページより当社作成

[3] World Platinum Investment Council, https://platinuminvestment.com/files/884932/WPIC_Platinum_Perspectives_August_2021_JA.pdf より当社作成

[4] IEA, “Net Zero by 2050 - A Roadmap for the Global Energy Sector”より当社作成

2.3.4 CN 対応に向けた水素 FC 以外の取り組み状況

CN の実現に向けては様々な技術が提案・発案され開発が進められている。単独の技術・対応だけではのCN実現は難しく、多くの技術をバランスよく開発していくことが重要と言われている。そのような状況で水素 FC が CN の対応で貢献していくためには、水素 FC が期待される製品・アプリケーションで同様に活用が期待されている他の技術の開発状況も常に把握して進むべき方向を配慮する必要がある。ここでは代表的な技術として水素エンジン・e-Fuel・2次電池（バッテリー）について考察を加え水素 FC の目指すべき開発について言及する。

(1) 水素エンジン

水素を活用するという事では FC 同様に大変期待できる技術である。また多くの製品・商用アプリケーションではエンジンが現在は使われているので適用が容易なことや内燃機関の既存サプライチェーンの活用などの優位性も多くある。近年、燃焼効率の改良も著しく高負荷域では FC の効率と肉薄している。排気対応や生成水のオイル混濁など製品化・普及に向けては解決しなければならない課題が FC 同様に多くあることと、本格的な開発が始まってからの時間が短く、将来の予測をすることは難しいが、公開情報を元に FC システムとの効率を比較した（図 2.3.4-1、図 2.3.4-2）。

図 2.3.4-1 は 2021 年の VIENNA Motor Symposium で発表された情報を参考に FC と水素エンジンを比較したものである。低負荷側では FC システムが有利で、高負荷では水素エンジン有利となっている、80kW 程度で両者の効率が拮抗している。

図 2.3.4-2 は、2.2.2 項で導出した 2030 年頃の FC の I-V 特性目標を元に FC システムの効率を

算出し、一方、水素エンジンの効率は Homogeneous Combustion/Saprk ignited→Diffusion Combustion/Diesel ignited で効率が 42→47%へ向上するとの予測を元に算出した効率で比較を行った。こちらでも高負荷域では拮抗した結果となっている。

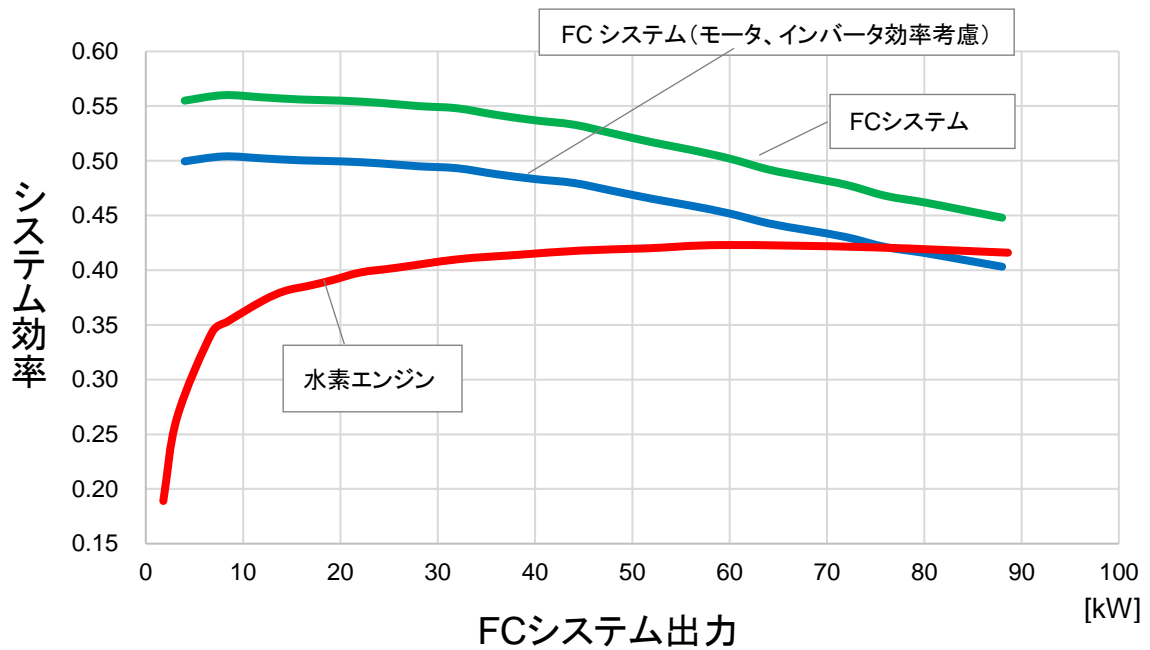


図 2.3.4-1 2020 年時点での FC と水素エンジンの効率比較

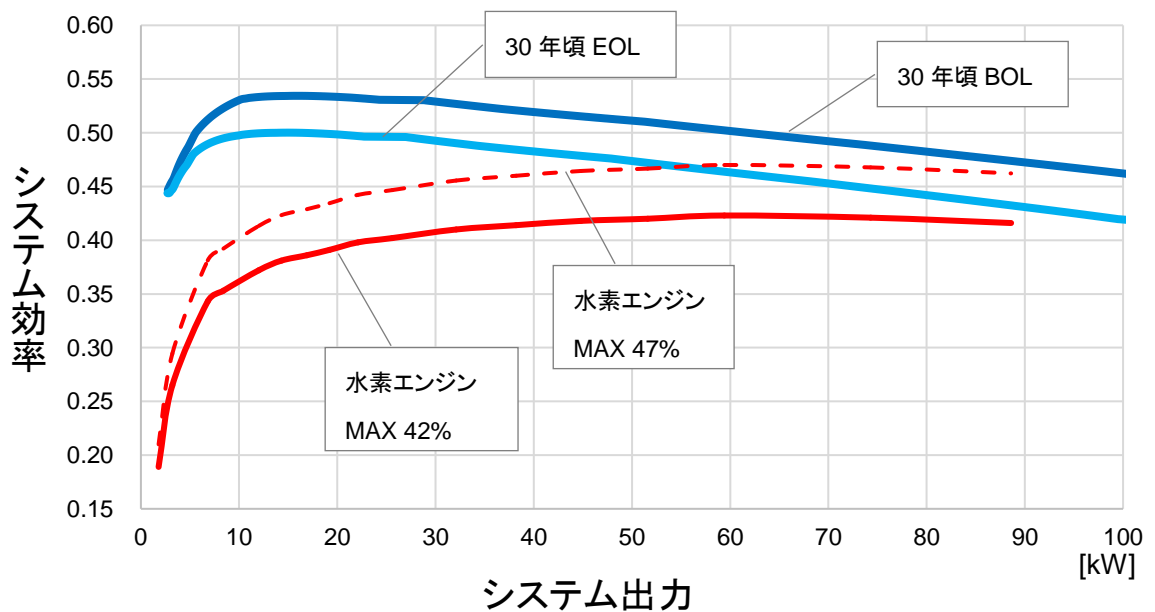


図 2.3.4-2 2030 年頃の FC と水素エンジンの効率比較

また、効率以外にも表 2.3.4-1 に示すような指標があり、●がある項目では FC システムの改良が必要な項目であり開発が必要である。

表 2.3.4-1 水素エンジンを参考にした FC で更なる開発を推進したい項目

ZEV		冷却性	●	メンテナンス	
効率	●	耐久性(性能低下)	●	ドライバビリティ	
燃費(含むトンキロ燃費)	●	燃料性状耐性	●	回生力	●
コスト・TCO	●	搭載(システム体積)	●	騒音	

(2) E-Fuel

水素エンジン同様に既存のシステムへの適用の容易さや燃料の搭載課題で e-Fuel に対する期待は大変大きい。ただし CN ではあるがゼロエミッションではないことや、燃料価格の課題で使用を限定する動きもある。効率の比較では水素エンジン同様に FC の効率も向上させる必要があると言える。

(3) 2次電池 (バッテリー)

FC と 2次電池 (バッテリー) はエネルギー密度とコストとエネルギー補給の 3 点で比較されることが多い。バッテリーパックの体積エネルギー密度の向上が進んでいる。製品に近いレベルで 200～300Wh/L というような意欲的な数値が公表されている (Tesla、CATL、ONE)。70MPa の高圧水素のタンク込みの体積エネルギー密度は 800Wh/L 程度である。FC システムの効率や FC システムの体積を含めた体積を考慮するとかなり拮抗した状況になっている。FC システムの効率向上や軽量コンパクト化は重要な開発要素である。

2.4 材料目標

2.4.1 材料目標の考え方

MBD シミュレーションにより、システム性能を成立させるのに必要な BOL および EOL の電流・電圧曲線（以下、電流・電圧曲線を I-V と呼ぶ）が提示された。この目標 I-V を成立させるのに必要な各要素の物性目標を提示する。物性目標の提示は 2 段階で行う。はじめに物性から定常状態の I-V を予測するシミュレータを用い、BOL の目標 I-V を満たす材料物性値を試算する。次にこの試算結果を参考に、実際の測定技術を加味して目標物性を設定する。

目標 I-V を満たす材料物性値を検討するための前提として Pt 目付量を決定する必要がある。米国では HDV 向け FC スタックの 2030 年における Pt 目付量を $0.3[\text{mg cm}^{-2}]$ （空気極 $0.25[\text{mg cm}^{-2}]$ 、水素極 $0.05[\text{mg cm}^{-2}]$ ）[1,2]、LDV（乗用車）向けでは $0.125[\text{mg cm}^{-2}]$ （空気極 $0.1[\text{mg cm}^{-2}]$ 、水素極 $0.025[\text{mg cm}^{-2}]$ ）[2]。一方、HDV 向けの FC スタックは LDV と比べて、高温領域での要求 I-V 特性を達成するための活性と長時間の耐久性の両立が求められることを鑑み、ここでは Pt 目付量の目標値として $0.24[\text{mg cm}^{-2}]$ （空気極 $0.2[\text{mg cm}^{-2}]$ 、水素極 $0.04[\text{mg cm}^{-2}]$ ）を提案する。

この目標値では、25 トンクラスの大型トラック（FC 定格出力 228kW）で約 43g/台となり、2.3.3 項で示した 2050 年目標の 12.5g/台に比べて約 30g 程度多いが、2.3.1 項で説明したように HDV では TCO のうち初期導入コストの割合が小さいこと（30g 程度では約 10 万円の材料コストアップ）、主要国の目標に対して高い競争力を有することを踏まえると、上記の目標設定は将来的な究極目標を達成するための中間目標として妥当であると考えた。

（参考文献）

[1] “M2FCT: Million Mile Fuel Cell Truck Consortium”, DOE Annual Merit Review and Peer Evaluation Meeting 2021, Project ID# FC339

[2] “Fuel Cell System Analysis”, DOE Annual Merit Review and Peer Evaluation Meeting 2021, Project ID# FC163

2.4.2 要求 I-V 特性を満たすための材料初期物性の検討

本項では、シミュレーションによる検討内容を説明する。シミュレーションには、図 2.4.2-1 に示すモデル[1]を用いる。セルの流路の長さは膜電極ガス拡散層接合体（以下、MEGA）の厚さよりも極めて長く、流路方向の物質の濃度分布は電解質膜に垂直方向のそれよりも無視できるほど小さい。この MEGA の性質に基づき、本モデルでは、熱および物質の輸送現象を流路方向と垂直方向とに分離して取り扱う、いわゆる 1+1D モデルを適用する。この近似では、流路方向のガス組成、流量、温度変化は、各所における流路と MEGA との間のエネルギーおよび物質の保存を考慮することにより計算される。垂直方向の熱および物質輸送は、各所の熱および物質輸送あるいは反応の垂直方向に対する支配方程式を解くことにより得られる。

流路方向のエネルギー・物質保存式は文献[1-4]の通りであるので説明を割愛する。垂直方向の物質輸送および反応に関わる方程式にも既往の文献[1-4]のものを適用しているが、いくつか本検討固有のモデルを使用しているため簡単に説明する。ガス拡散層（GDL）および触媒層中の圧力

差による移流ならびに濃度勾配によるガス拡散に対して Darcy 則・Stefan-Maxwell の式・質量保存則を、電解質やアイオノマ中のプロトン伝導に関しては電位勾配による伝導を表現する式、電解質中の水輸送に関しては拡散および電気浸透流を表現する式を使用する。そして触媒層中の電極触媒反応に対しては Butler-Volmer 式を適用する。図 2.4.2-1 には、これらの主要な方程式の概要も示している。計算結果を左右するのは、これらの式に現れる物性モデルならびにパラメータである。I-V 特性に特に強く影響する物性として、(1) 電解質のプロトン伝導率、(2) 空気極流路/GDL ガス輸送特性、(3) 空気極触媒層ガス輸送特性、(4) 空気極触媒活性、がある。加えてシミュレーションには、(5) 運転条件の前提が必要である。これらのモデルならびに運転条件の前提に関して以下に説明する。そして本項の最後に、(6) I-V 目標を満たすよう設定した物性を示す。

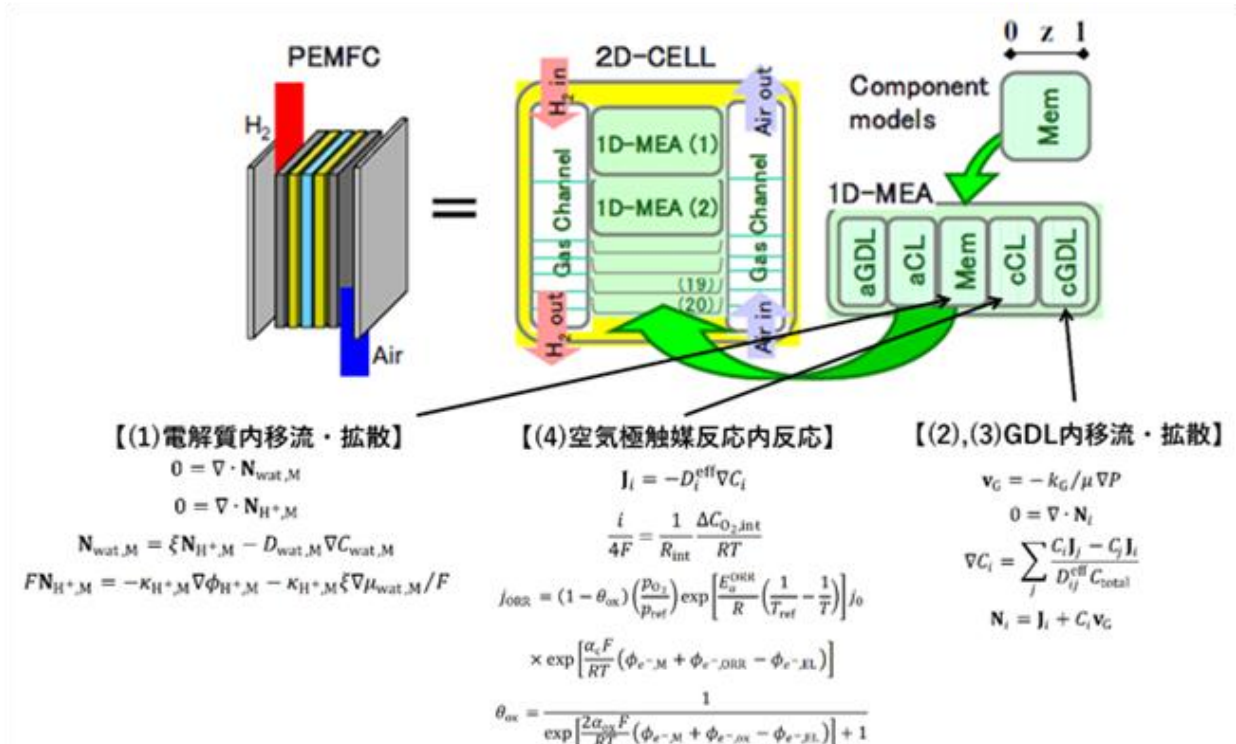


図 2.4.2-1 FC 発電モデルの概要

(1) 電解質のプロトン伝導率

電解質膜、アノード・カソードアイオノマのプロトン伝導率には、様々なフッ素系膜の性質をスルホン酸基 1 モル当たりの電解質重量 (EW: Equivalent Weight) の関数として統一的に表現する下記のモデル[4,5]を適用した。

$$\kappa = 0.5(f - 0.06)^{1.5} \exp \left[\frac{15000}{R} \left(\frac{1}{T_{\text{ref}}} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (2.4.1)$$

$$f = \frac{\lambda \bar{V}_0}{\bar{V}_m + \lambda \bar{V}_0} \quad (2.4.2)$$

$$\bar{V}_m = \frac{EW}{\rho_m} \quad (2.4.3)$$

$$\lambda = \frac{c_1 c_2 a_w}{1 - c_2 a_w} + \frac{c_1 c_2 (c_3 - 1) a_w}{1 + c_2 (c_3 - 1) a_w}, c_1 = 2.671, c_2 = 0.7677, c_3 = 7.269 \quad (2.4.4)$$

κ はプロトン伝導率、 \bar{V}_0 は水のもル体積、 \bar{V}_m は乾燥電解質のもル体積、 ρ_m は乾燥電解質の密度、 λ は電解質中のスルホン酸 1 もル当たりの含水もル量、 a_w は水の相対湿度である。(2.4.3)式に EW を入力すると伝導率が決まる形式となっている。本検討では、電解質膜の EW は補強層を含むものとする。またラジカルクエンチ剤によるプロトン伝導率の低下を加味しない。そして触媒層中の有効プロトン伝導率は、触媒層中のアイオノマ体積分率・屈曲率による低下を加味して電解質の伝導率の 1/3 とした。

(2) 空気極流路/GDL のガス輸送特性

リブにより流路形状が規定されたセパレータを使用する MEGA では、流路中のガスと接しないリブ下の GDL にはガスが供給されにくい等、MEGA 面内に流路形状に由来した不均一性が現れる。本モデルではこうした流路の幾何形状の影響を無視し、3D ファインメッシュのような多孔体流路のように、一様に流路から GDL へとガスが行き渡るものと仮定し、現象を単純化する。そして GDL 中の物質輸送に関しては、上述の通り下記の Darcy 則、Stefan-Maxwell の式、質量保存の式を組み合わせて定常解を得る。Stefan-Maxwell の拡散方程式で用いる物質 i と j との間の相互拡散係数 D_{ij}^{eff} は、GDL の空隙率 ε_{GDL} 、屈曲率 τ_{GDL} 、物質の相互拡散係数 D_{ij} を用いて、下記のように表現する。

$$D_{ij}^{\text{eff}} = \frac{\varepsilon_{\text{GDL}}}{\tau_{\text{GDL}}} D_{ij} \quad (2.4.5)$$

細孔径の大きい GDL では分子拡散が支配的であると、相互拡散係数 D_{ij} を下記の式により表現する。

$$D_{ij} = \frac{0.001T^{1.75}}{p(v_i^{1/3} + v_j^{1/3})^2} \sqrt{\frac{1}{M_i} + \frac{1}{M_j}} \quad (2.4.6)$$

ここで T は温度、 p は全圧、 v_i は拡散体積、 M_i は分子量である。各々の値に関しては文献[1-3]を参照されたい。

なお本検討で想定した流路/GDL のモデルは上述の通りであるが、目標 I-V を達成する流路/GDL はこれに限るものではない。(5)の運転条件の項で述べる通り、様々な流路/GDL の性能を一般化して測る物性指標として、本検討では分子拡散抵抗 R_{mol} を重視し、これよりも小さいか否かがガス拡散性の目標満たす流路/GDL であるか否かを左右すると考える。 R_{mol} の定義に関しては文献[6]を参照されたい。

(3) 空気極触媒層ガス輸送特性

現状の MEGA でよく使用される Pt 担持カーボンとのフッ素系のアイオノマとから成る多孔質体を前提としてシミュレーションを実施する。触媒層中での移流に対しても、GDL と同様に Darcy 則を適用する。触媒層中の拡散に関しては、細孔径の小さい触媒層では Knudsen 拡散が支配的であると考え、以下の Knudsen 拡散モデルを適用する。

$$\mathbf{J}_i = -D_i^{\text{eff}} \nabla C_i \quad (2.4.7)$$

GDL と同様に、有効拡散係数 D_i^{eff} を、触媒層の空隙率 ε_{CL} と屈曲率 τ_{CL} とを用い、下記のように表現する。

$$D_i^{\text{eff}} = \frac{\varepsilon_{\text{CL}}}{\tau_{\text{CL}}} D_i \quad (2.4.8)$$

拡散係数 D_i は下記により計算する。

$$D_i = \frac{2r_K}{3} \left(\frac{8RT}{\pi M_i} \right)^{1/2} \quad (2.4.9)$$

r_K は細孔半径であり本検討では 40 nm とする。 R は気体定数である。

空気極触媒層中のガス拡散でもう一つ重要な点は、アイオノマと触媒との界面に酸素透過抵抗の存在である[7,8]。本検討では、界面抵抗 R_{int} が触媒のラフネスファクタ RF に反比例するとする経験式[8,9]

$$R_{\text{int}} = \frac{560}{RF} (\text{s m}^{-1}) \quad (2.4.10)$$

を用い下記のように、界面抵抗による酸素濃度の低下 $\Delta C_{\text{O}_2, \text{int}}$ を表現する。

$$\frac{i}{4F} = \frac{1}{R_{\text{int}}} \frac{\Delta C_{\text{O}_2, \text{int}}}{RT} \quad (2.4.11)$$

F はファラデー定数である。

GDLと同様に、目標 I-V を満たす触媒層構造は、本検討で前提とした構造に限るものではない。本検討では、多様な触媒層構造のガス拡散性を一般化して測る指標として、分子拡散抵抗以外のガス拡散抵抗 R_{other} を重視し、これよりも小さいか否かがガス拡散性の目標満たす触媒層であるか否かを左右すると考える。 R_{other} の定義に関しても文献[6]を参照されたい。

(4) 空気極触媒活性

空気極触媒活性を規定する酸素還元反応モデルには、以下の酸化被膜による被毒効果を考慮した簡易モデル[1]を使用する。

$$i = (1 - \theta_{\text{ox}}) \left(\frac{p_{\text{O}_2}}{p_{\text{ref}}} \right) \exp \left[\frac{E_a^{\text{ORR}}}{R} \left(\frac{1}{T_{\text{ref}}} - \frac{1}{T} \right) \right] i_0 \exp \left[\frac{\alpha_c F}{RT} \eta_{\text{ORR}} \right] \quad (2.4.12)$$

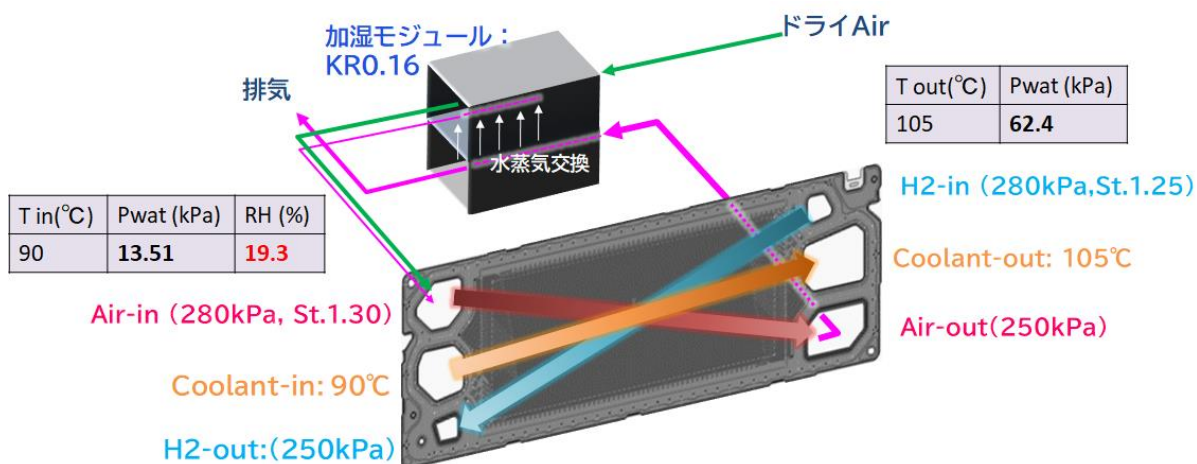
$$\theta_{\text{ox}} = \frac{1}{\exp \left[\frac{2\alpha_{\text{ox}} F}{RT} \eta_{\text{ox}} \right] + 1} \quad (2.4.13)$$

p_{O_2} は酸素分圧、 p_{ref} は基準圧力、 E_a^{ORR} は酸素還元反応の活性化エネルギー（ガス中の酸素を基準とする）、 i_0 は交換電流密度、 α_c は移動係数、 η_{ORR} は過電圧、 α_{ox} は酸化被膜形成の移動係数、 η_{ox} は酸化被膜形成の過電圧である。本検討では、 E_a^{ORR} に、文献[10]の電解質の酸素を基準とした有効活性化エネルギー 38 kJ/mol を、電解質中の溶存酸素濃度の実測値[11]で補正した活性化エネルギー 17 kJ/mol を用いる。また酸化物形成の η_{ox} を酸化物形成の平衡電位 0.75 V (RHE)として定義する。

(5) 運転条件

図 2.4.2-2 に運転条件の前提を示す。空気極出口から排気されるガス中の水蒸気量の 16 %を、空気極入口ガスへと交換する加湿システムを想定し、運転条件は、空気極入口全圧 280kPa（酸素濃度 20.8%）、空気極入口湿度 20%RH、空気極出口圧力 250kPa（2.0 A cm⁻²時）、燃料極入口全圧 280 kPa、燃料極入口無加湿、燃料極出口全圧 250 kPa、冷媒入口温度 90℃、冷媒出口温度 105℃とし、エジェクタによる水素循環を考慮する。水素循環は、燃料タンクからの水素ガスに対

する燃料極出口からのガスの質量流量比が5となるように設定する。セル構成は、面積273cm²、燃料極・空気極対向流とする。ただし出口の全圧は成り行きで決まるため、想定した圧力250kPaから±10kPa程度のずれがある。空気極および燃料極のストイキはそれぞれ1.3および1.25と設定する。上記の計算に加え、前述したGDLの分子拡散抵抗 R_{mol} と触媒層内の酸素輸送抵抗 R_{other} とを抽出するためのシミュレーションも行う。本計算では、実験での抽出法[6, 8]を参考に、電極面積を1cm²、セル温度80℃、相対湿度90%RH、燃料極流量1L/min、空気極流量2L/min（酸素濃度5%）とし、空気極の全圧を100~250kPaと変化させた際の限界電流密度から、酸素輸送抵抗を抽出する。



連続定格点 (105°C運転条件) / 水素循環あり			
電極面積	273 cm ²	Air 入圧 / 出圧	280 / 250 KPa
動作点電流	2.0A cm ⁻²	加湿モジュール出圧	240 KPa
H2 ストイキ比	1.25	水蒸気交換量	16 %
Air ストイキ比	1.30	セル入口冷却水温度	90 °C
H2 入圧 / 出圧	280 / 250 KPa	セル出口冷却水温度	105 °C

図 2.4.2-2 想定するシステム構成および運転条件

(6) 目標 I-V 満たすよう設定した物性ならびに I-V 曲線

MBD シミュレーションにより提示された BOL の目標 I-V を満足する物性パラメータを検討した。検討は、低電流密度域 (0.2 A cm⁻² 付近) での電圧を満たすよう交換電流密度 i_0 を調整、中電流域 (2 A cm⁻² 付近) での電圧を満たすよう電解質の EW を調整、高電流域 (3 A cm⁻² 以上) の電圧を満たすよう GDL・触媒層のガス拡散抵抗を調整する流れとした。表 2.4.2-1 に物性パラメータを示す。また図 2.4.2-3 にシミュレーションにより得た発電特性を示す。

表 2.4.2-1 シミュレーションで設定した物性値

要素	物性	物性値 (目標値)	備考
電解質膜	H ⁺ 伝導率@120°C, 30%RH	0.032 S cm ⁻¹	厚さ 8 μm の EW600(補強層込み)のフッ素系膜を想定し、普遍モデル[4, 5]を用いて算出。計算においてラジカルクエンチ剤による伝導率の低下は加味していない。なおモデル(2.4.1)~(2.4.4)式は実測されるプロトン伝導率よりも低い値を与える。実質的にはより高い EW により、本伝導率は達成されると推測される。
	H ⁺ 伝導率@100°C, 40%RH	0.041 S cm ⁻¹	
	H ⁺ 伝導率@ 80°C, 80%RH	0.117 S cm ⁻¹	
空気極 触媒層	Pt 目付量	0.2 mg cm ⁻²	電解液中の溶存酸素濃度変化を補正した速度定数の活性化エネルギーの実測値 (38 kJ mol ⁻¹) [10]と電解質への酸素溶解度[11]を用い、気相中の酸素を基準として算出した活性化エネルギー 17 kJ mol ⁻¹ を使用。
	ECSA	60 m ² g ⁻¹	
	質量活性@100°C, 100%RH, O ₂ 分圧 100 kPa _{abs} , 0.9 V	1810 A g ⁻¹	EW600 のフッ素系アイオノマを想定し、普遍モデル[4, 5]を用いて算出。括弧内の値は、触媒層中のアイオノマの有効プロトン伝導率 κ_1^{eff} (先の値の 1/7 と設定)と触媒層厚さ δ_{CL} とから、 $\delta_{\text{CL}}/\kappa_1^{\text{eff}}$ として算出。なおモデル(2.4.1)~(2.4.4)式は実測されるプロトン伝導率よりも低い値を与える。実質的にはより高い EW により、本伝導率は達成されると推測される。
	質量活性@80°C, 100%RH, O ₂ 分圧 100 kPa _{abs} , 0.9 V	1740 A g ⁻¹	
	アイオノマ H ⁺ 伝導率 @120°C, 30%RH	0.032 S cm ⁻¹ (0.129 Ω cm ²)	
	アイオノマ H ⁺ 伝導率 @100°C, 40%RH	0.041 S cm ⁻¹ (0.101 Ω cm ²)	Pt 目付量および ECSA から算出される RF より、DE2020 を想定した文献[9]の式を HOPI の界面抵抗[8]となるよう補正した式 $R_{\text{int}}=560/\text{RF}$ (s m ⁻¹)にて界面抵抗を定義。左記拡散抵抗値は図 2.3.3 (C)の切片より導出。
	アイオノマ H ⁺ 伝導率@ 80°C, 80%RH	0.117 S cm ⁻¹ (0.035 Ω cm ²)	
	電子伝導率	2.0 S cm ⁻¹	触媒層厚さが 6 μm となるよう空隙率を調整。
	触媒層内 O ₂ 拡散抵抗	10 s m ⁻¹	
	I/C	1.0	
触媒層厚さ	6 μm		
燃料極 触媒層	Pt 目付量	0.04 mg cm ⁻²	EW600 のフッ素系アイオノマを想定し、普遍モデル[4, 5]を用いて算出。なおモデル(2.3.1)~(2.3.4)式は実測されるプロトン伝導率よりも低い値を与える。実質的にはより高い EW により、本伝導率は達成されると推測される。
	アイオノマ H ⁺ 伝導率 @120°C, 30%RH	0.032 S cm ⁻¹	
	アイオノマ H ⁺ 伝導率 @100°C, 40%RH	0.041 S cm ⁻¹	
	アイオノマ H ⁺ 伝導率@ 80°C, 80%RH	0.117 S cm ⁻¹	例えば 3D ファインメッシュ等を想定し、GDL に一様にガスが行き届くと想定。ε _{GDL} =0.75, τ _{GDL} =7 と設定。分子拡散抵抗は、図 2.3.3 (C)の勾配より導出。
	電子伝導率	2.0 S cm ⁻¹	
	I/C	1.2	
	触媒層厚さ	2 μm	
Pt 担持率	20%	例えば 3D ファインメッシュ等を想定し、GDL に一様にガスが行き届くと想定。	
燃料極 流路/GDL	GDL 厚さ		150 μm
燃料極 流路/GDL	電子伝導率	2.7 S cm ⁻¹	セパレータ/セパレータ、セパレータ/GDL、全接触抵抗の合計値。
	セパレータ関係	接触抵抗	

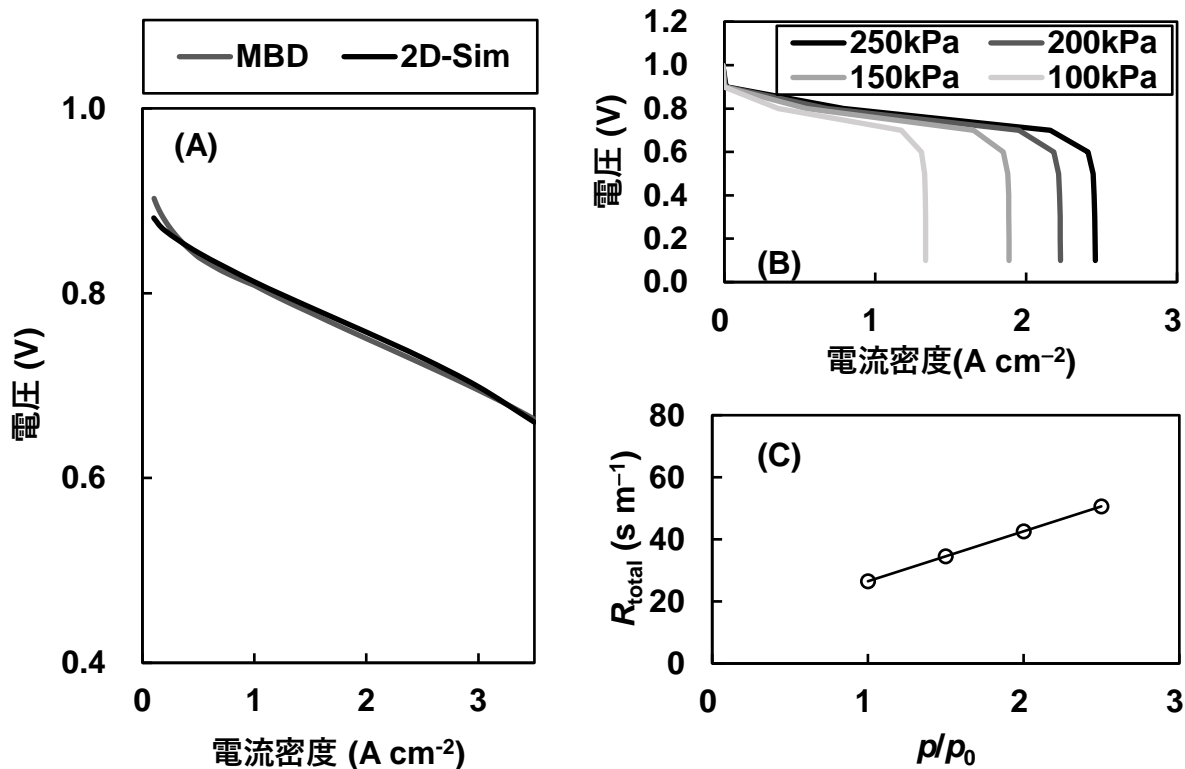


図 2.4.2-3 電流電圧曲線 (A)発電性能(MBD: MBD による目標 I-V, 2D-Sim.:本検討結果)、(B)および(C) ガス拡散抵抗抽出シミュレーションの結果、基準圧力 $p_0 = 100 \text{ kPa}_{\text{abs}}$ (C)の傾きおよび切片から R_{mol} および R_{other} を算出

(参考文献)

- [1] N. Nonoyama and Y. Ikogi, *ECS Trans.* **16** 13-21 (2008).
- [2] A. Z. Weber and J. Newman, *Chem. Rev.* **104** 4679-4726 (2004).
- [3] A. Z. Weber and J. Newman, *J. Electrochem. Soc.* **153** A2205-A2214.
- [4] A. Z. Weber and J. Newman *J. Electrochem. Soc.* **151** A311-A325 (2004).
- [5] S. Shi, A. Z. Weber and A. Kusoglu *Electrochim. Acta* **220** 517-528 (2016).
- [6] Y. Ono, T. Mashio, S. Takaichi, A. Ohma, H. Kanesaka and K. Shinohara *ECS Trans.* **28**, 69-78 (2010).
- [7] R. Jinnouchi, K. Kudo, N. Kitano and Y. Morimoto *Electrochim. Acta* **188** 767-776 (2016).
- [8] R. Jinnouchi, K. Kudo, K. Kodama, N. Kitano, T. Suzuki, S. Minami, K. Shinozaki, N. Hasegawa, A. Shinohara *Natur. Commun.* **12** 4956 (2021).
- [9] A. Kongkanand and M. F. Mathias, *J. Phys. Chem. Lett.* **7** 1127-1137 (2016).
- [10] H. Uchida, K. Izumi, and M. Watanabe *J. Phys. Chem. B* **110** 21924-21930 (2006).
- [11] Z. Zhu, Q. Liu, X. Liu, and J. Shui *J. Phys. Chem. C* **124** 3069-3079 (2020).

2.4.3 主要材料の物性目標

2.4.2 項で述べた初期の目標 I-V 特性を満たすための物性パラメータを根拠に、主要材料の物性目標の項目と目標値を表 2.4.3-1 のように定めた。また、参考のため、その各項目の現行材料からなる MEA での物性、特性値の実測値も併せ示した。

表 2.4.3-1 主要材料の物性目標 ★は、今後測定

要素	項目		2030 年頃の目標値		実測値			
			物性値	仕様・特性値	Gen2 MIRAI ※8	一般材料		
空気極触媒 (層)	PGM 目付量(mg/cm ²)			0.20	0.17	0.20	田中貴金属 Pt/C TEC10V30E ※9	
	ECSA (m ² /g)		60		48	61		
	質量活性 (A/g) @0.9V	at100°C、100%RH	1810		★	★		
		at80°C、100%RH	1740		500	95		
	触媒層厚さ(μm)			6.0	9.1	7.4		
触媒層ガス拡散抵抗 (s/m)	at 80°C, 80%RH	10		9.1	18.1			
電解質	膜	膜厚 (μm)			8.0	8.5	25	Chemours Nafion™ NR211 ※9
		H ⁺ 伝導率 (S/cm) ※1	at 120°C, 30%RH	0.032		0.018	0.016	
			at 100°C, 40%RH	0.041		0.027	0.024	
			at 80°C, 80%RH	0.12		0.106	0.086	
		水素透過性	※3	今後設定		★	★	
	酸素透過性	※4	今後設定		★	★		
	機械強度 ※5	(暫定) 引張最大強度(MPa) at 23°C, 50%RH		今後設定		50	30	
		(暫定) 引張破断伸び(%) at 23°C, 50%RH		今後設定		★	250	
	アイオノマ	H ⁺ 伝導率 (S/cm)	at 120°C, 30%RH	0.032		—	★	Chemours Nafion™ D2020 触媒層抵抗 ※9
			at 100°C, 40%RH	0.041		—	★	
at 80°C, 80%RH			0.12		—	★		
空気極触媒層抵抗(Ωcm ²)		at 120°C, 30%RH		0.13	0.77	0.37		
	at 100°C, 40%RH		0.10	0.41	0.24			
	at 80°C, 80%RH		0.035	0.10	0.060			
GDL・流路・セパレータ	GDL 面積抵抗 (Ωcm ²)			0.0010	★	<0.01	SGL CARBON Sigracet® 22BB ※10 分子拡散抵抗※9	
	流路・GDL(分子拡散抵抗) (s/m) ※6	at 80°C, 80%RH		18	58.3 (並行流路)	60.8 (並行流路)		
		GDL/セパ、セパ/セパ等:接触抵抗合計 (Ωcm ²)			0.0065	★		—
	GDL 機械強度物性 ※7	(暫定)圧縮弾性率		今後設定		★		
(暫定)曲げ剛性 (N/mm)		今後設定		★	0.9 ~1.5			

※1：電解質膜の H⁺伝導率は、補強材込みの伝導率。クエンチャ添加など、耐久性を担保した状態での伝導率。

※2：低温起動性に影響する因子。スタックとしての要求仕様を集約したうえで設定。

※3、※4：耐久性、燃費に影響する因子。今後、設定。

※5：セルの構造・仕様により必要な物性値が異なると考えられることから、当面、指標となる物性項目は仮置き。

目標値とともに今後の議論とする。ここでは、現行材料の物性を参考値として示す。

※6：GDL と流路の構造との組み合わせで決まる特性値。

※7：セルの構造・仕様により必要な物性値が異なると考えられることから、当面、指標となる物性項目は仮置き。目標値とともに今後の議論とする。ここでは、現行材料の物性を参考値として示す。

※8：第二世代 MIRAI の MEA を用いた実測値、解析結果。(FC-Cubic 測定)

※9：触媒：田中貴金属 TEC10V30E、カソード触媒担持量：0.2mg-Pt/cm²、アノード触媒担持量：0.1mg-Pt/cm²、アイオノマ：Chemours Nafion™ D2020、I/C:1.0、電解質膜：Chemours Nafion™ NR211、GDL：SGL-CARBON SIGRACET® 22BB からなる MEA で測定した値。(FC-Cubic 測定)

※10：メーカー公表値 <https://www.sglcarbon.com/en/markets-solutions/material/sigracet-fuel-cell-components/>

これら材料目標一覧に示されている特性の測定手法は、「NEDO PEFC セル評価解析プロトコル」にまとめられている。下記に現在、乗用車向けに決まっている評価手法について示す。

実際の測定手法に関しては、NEDO、FCCJ（燃料電池実用化推進協議会）、技術研究組合 FC-Cubic のホームページに掲載される「NEDO PEFC セル評価解析プロトコル」に記載されている。

表 2.4.3-2 材料特性の測定手法

部位・抵抗要素		項目	評価手法
空気極触媒		ECSA	C-2(Ⅲ-3-4)CV 評価方法(ECA 測定方法)
		質量活性(ORR 活性)※1	C-4(Ⅲ-3-2)ORR 活性評価方法
		ガス拡散抵抗(s/m)	C-6 酸素拡散抵抗(電極触媒層)
電解質	膜	H ⁺ 伝導率:膜単体※2	M-1(Ⅲ-1-1)プロトン伝導度測定方法
		H ⁺ 伝導率:MEA※2	M-5 プロトン輸送抵抗(電解質膜)
		水素透過性	M-6 ガス透過性測定方法(水素/酸素)
		酸素透過性	M-6 ガス透過性測定方法(水素/酸素)
		引張強度※3	
	アイオノマ	H ⁺ 伝導率※2	M-5 プロトン輸送抵抗
		空気極触媒層抵抗※2	C-7 プロトン輸送抵抗(触媒層)
GDL		ガス拡散抵抗(s/m)	G-1 酸素拡散抵抗(拡散層)
		面積抵抗(Ω cm ²)※3	
		圧縮弾性率※3	
		曲げ剛性(N/mm) ※3	

※1：現在、測定手法として記載されているのは 80℃の条件。100℃の測定手法は現在、検討中で今後、追加される予定。

※2：現在、測定手法として記載されているのは 80℃までを想定した手法。80℃より高い温度での測定手法については今後、追加される予定。

※3：現在、測定手法について検討中。今後、追加予定。

2.4.4 現状の課題と目標達成に向けた開発の方向性

図 2.4.2-3 では、FC 単セルを構成する各材料の物性（表 2.4.2-1）を積み上げ、図 2.4.2-2 で想定するセル・システム構成および運転条件での電流電圧曲線をシミュレーション（2D-Sim.）により予測した。同条件（連続定格点）のシミュレーションにおいて、セル面内環境分布を各パラメータ（電流密度 i 、相対湿度 RH、酸素分圧 P_{O_2} 、電解質膜面温度 T_{mem} ）に分離し、図 2.4.4-1 にそれぞれ示した。図中の横軸は、空気入口から出口までの相対距離を示している。特に電解質膜面温度 T_{mem} のセル面内における最高温度は、セル出口冷却水温度の+5~10℃となることが試算によって示された。2030 年に向けた材料の作動上限範囲を 120℃（セル出口冷却水温度 105℃）として、-30℃から 120℃に至る広範囲な温度条件で作動できることを材料要件として定めた。

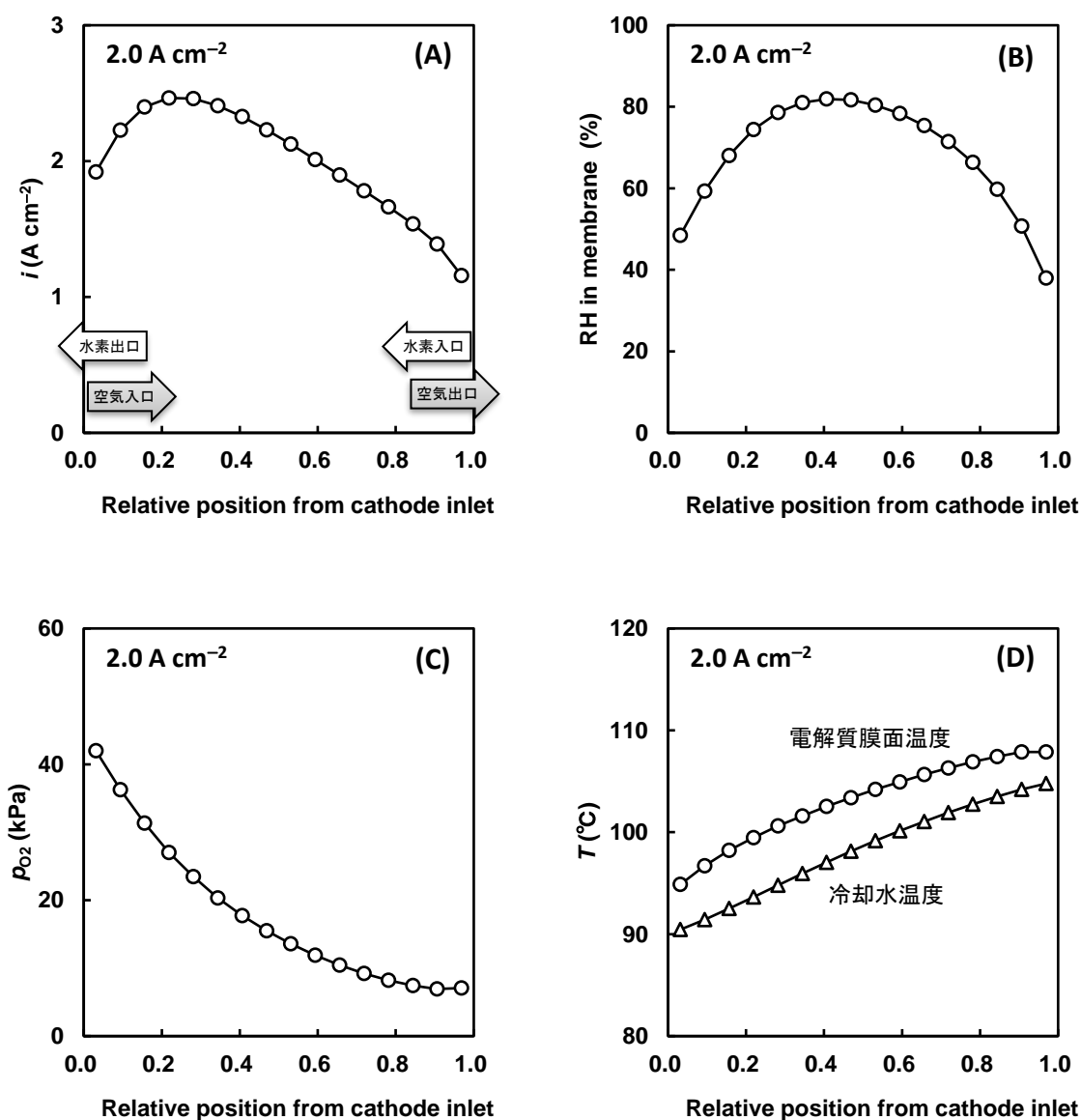


図 2.4.4-1 連続定格点運転（図 2.3.2-3 の 2D-Sim. 電流電圧曲線）における FC セル面内の (A)電流密度分布、(B)相対湿度分布、(C)酸素分圧分布、(D)温度分布、図中△は冷却水温度、○は電解質膜面温度

(1) - 1 電解質膜

電解質膜は、FC スタックの重要な構成要素であり、20%（ただし、氷点下環境は0%）から100%の相対湿度（RH）範囲、および-30°Cから120°Cの温度範囲で要求されるプロトン伝導性を実現し、かつ広範囲の作動条件に耐えうる耐久性が求められる。また、電解質膜のコストを考えると、膜の化学的耐久性、機械的耐久性に加え、膜の薄膜化も重要である。さらに、薄膜化は膜抵抗を決める重要な要因でもある。こうした課題を踏まえ、2030年頃の目標に対応する電解質膜として以下の開発が求められる。

1. 電解質膜には、80°C、80%RHの高加湿状態から、電解質膜面最高温度120°C、30%RHの低加湿状態においても要求されるプロトン伝導性を実現できる性能が求められる。
2. 電解質膜材料はフッ素系高分子、炭化水素系高分子などが考えられ、その膜には10 μ m以下の薄膜化が求められる。膜強度を高めて薄膜化を実現するには、補強層を組み込んだ電解質膜を開発する必要がある。
3. 電解質膜には化学的耐久性（主にラジカルによる膜の破損）が求められる。化学的耐久性の向上には、ガスバリア性の高い膜の開発が必要である。さらに、ラジカルクエンチ剤を電解質膜に導入することは必須であり、ラジカルクエンチ剤導入後もプロトン伝導性が影響を受けない電解質膜を開発する必要がある。
4. 電解質膜には機械的耐久性が求められる。膜には作動条件により変化する温度、湿度に対応できる弾性、剛性が求められる。

さらに、2.2.2項(6)の今後の課題で述べたように、2030年以降については最高温度120°Cをさらに超えた作動条件に対応することが必要である。

1. 電解質膜には、80°C、80%RHの高加湿状態から、電解質膜面最高温度>120°C、かつ極低加湿においても要求されるプロトン伝導性を実現できる性能が求められる。
2. 電解質膜は10 μ m以下の薄膜化が求められるため、補強層を組み込んだ電解質膜を開発する必要がある。
3. 電解質膜には化学的耐久性と機械的耐久性が求められる。

(1) - 2 アイオノマ（電極用）

電極となる触媒層内には、触媒とカーボン担体以外に触媒等とのバインダとして、また電解質膜との接着性機能も担うアイオノマが必要である。

1. アイオノマは、電解質膜との接着性を考慮して、フッ素系高分子、炭化水素系高分子などが用いられている。
2. アイオノマには、従来の作動条件を満たしつつ、-30°Cから120°Cの広範囲な作動条件において、要求性能を満たすプロトン伝導性と酸素透過性、およびPt系触媒への特異吸着の緩和が求められる。
3. アイオノマのプロトン伝導性、酸素透過性の向上は、アイオノマの使用量の最適化にもつながり、触媒表面の酸素輸送抵抗のみならず、触媒層の二次細孔内の酸素輸送抵抗（目標10 s m⁻¹以下）、プロトン伝導抵抗の低減にもつながる。
4. 触媒層全体への酸素拡散性向上のために、アイオノマの被覆形態の制御も求められている。

5. Pt系触媒へのアイオノマの特異吸着は触媒活性に影響し、その程度は生成水・湿度により変化する。この影響の緩和にはアイオノマの直鎖及び側鎖の分子構造の工夫と共に、添加物の利用も重要である。今後導入が予想されるホスホン酸基でも特異吸着の影響が予想されており、FCの作動環境下での安定性も加味しつつ、その緩和を検討する必要がある。

(2) - 1 空気極触媒

-30°Cから120°Cの広範囲な作動条件に適応し、性能と耐久を両立させる触媒開発が重要である。中期的にはHDVの要求性能に即した触媒活性と耐久性の更なる向上・新たな機能付与が必要と見込んでいる。従来のPt系ナノ粒子の原子配列制御（合金・スキン・コアシェル等）や形状制御（ナノワイヤ・ナノロッド・シート・連結等）は酸素還元に影響する反応分子種の表面吸着状態や電子状態を制御して律速反応を促進させている。これまでの多くの研究成果の積み上げにより触媒活性の向上に大きく貢献しており、今後は耐久性・触媒層設計・コストの観点など製品化を見据えた段階へフェーズシフトも視野に入れ、一部の先行研究を参考に作動条件下での安定性も加味しながら研究の加速が期待される。触媒活性の向上には組成、形態、修飾、相互作用の観点からの新たなアプローチも必要である。Pt系ナノ粒子とカーボン等担体にて構成される触媒微粒子に第三の添加物を加えることは、表面吸着、電子状態、移動凝集等に作用して、性能・耐久の向上が見込まれる。多くの試みは高い電気化学的活性表面積の維持や、FC環境下にて耐久性などの検証が必要であるものの、単に性能比較に留まらず性能向上の主要因と劣化抑制のメカニズム解明も並行して進め、新たなアイテムとして発展させるべきである。非貴金属触媒はPt使用量削減の観点も踏まえ、長いスパンで取り組む必要がある。Pt系触媒が発展した理由はいくつかあるが、Ptの高活性、カーボンの高電気伝導性と高比表面積の有する微細構造の制御等が上げられる。つまり、必要な機能を各材料要素へ分離して個々に性能向上を図り、それらの接合界面と分散性を制御しつつ融合を図る思想も非貴金属触媒の開発には必要と思われる。近年では高活性を示す非貴金属材料等の報告もあり、それらに親和性のある担体と電気伝導性と化学的安定性に配慮しながら組み合わせるなど、これまでの知見も積極的に活用した挑戦的な試みも期待される。担体に関してはカーボンを中心に研究が進み、表面微細構造から凝集形態、表面結晶性から吸着特性まで詳細に検討され、移動体用途に必要な触媒活性と物質輸送特性をもつ触媒層の開発まで進んでいる。速度論的要素や局所的な電位変動、転極等によりカーボンの劣化速度は大きく異なるが、劣化を抑制する新しい機能の付与もしくは運転条件の明確化により、HDV等にアプローチする必要がある。近年注目されているPtナノワイヤ・ナノロッドの活性向上要因が解明され、それらに適するカーボン微細構造を設計することも今後重要と思われる。非カーボン担体に関してはその化学的安定性、FCの作動環境下で安定な化学的組成・微細構造・合成条件などの議論が進みつつあり、種々の酸化物などの複合的な機能材料としての議論を踏まえて発展が求められる。電子伝導性、物質輸送特性、表面微細構造等、カーボンで具現化した重要な特性を非カーボン担体でもカバーすると共に、カーボン担体では求め難い機能（電子的相互作用・界面相互作用等）を積極的に利用した新たな触媒設計へ発展させる必要もある。

(2) - 2 水素極触媒

水素極触媒には、 -30°C から 120°C の広い温度範囲で、高い水素酸化反応 (HOR) 活性と耐久性の両立が求められる。また、停止時には電解質膜を透過した O_2 によって空気電位付近になるため、耐酸化性も必要である。それらに加え、電解質膜の耐久性向上に資する新たな機能も重要視されている。電解質膜を化学劣化する OH や OOH などのラジカルは主に水素極で発生する。まず、電解質膜を透過した O_2 が白金系水素極触媒上の吸着水素 H_{ad} と反応して H_2O_2 が生成し、これが金属イオン等と反応してラジカルが発生する。電解質膜の劣化抑制のためにラジカルクエンチ剤が膜に添加されているが、膜やアイオノマのプロトン伝導率の低下や空気極の性能低下が起こる。それゆえ、 H_2O_2 生成を抑制する水素極触媒や触媒層の開発が、電解質膜の耐久性と性能向上に重要である。これまでに Pt 合金触媒により H_2O_2 生成が抑制されることが報告されている。

天然ガス等を改質・精製した水素燃料には、極微量の CO (規制値 <0.2 ppm)、アンモニア (<0.1 ppm) や H_2S (<4 ppb) などの不純物が含まれている。水素極では、水素のみが消費されるため触媒層出口、特に燃料循環により不純物濃度が上昇する。触媒被毒を避けるために燃料パーズを頻繁に行うと、燃料利用率が低下する。それゆえ、不純物耐性が高い触媒の開発が重要である。被毒作用が大きいのは吸着力が強い CO と H_2S である。吸着 CO の一部は電解質膜を透過する O_2 によって酸化除去されることも見出されているが、やはり高い被毒耐性、HOR 活性と耐酸化性を有する触媒開発が望ましい。なお、CO を水素電位付近の低い電位で酸化除去する能力は必ずしも必要ではなく、CO 吸着を弱められれば HOR 活性は維持できる。他方、白金系触媒に H_2S は S として吸着し、空気を導入しても酸化除去できない。HDV の水素使用総量は乗用車の約 40 倍と見積られるので、S の蓄積を防ぐ対策として H_2S の吸着抑制や新しい除去法の開発が必要である。

触媒のロバスト性の観点から、燃料欠乏時の転極耐性も注目されている。セルを直列接続したスタックの一部で流路凍結などにより燃料欠乏が起こると、水素極では本来の HOR が進行する代わりに炭素担体の酸化が起こる (空気極よりも電位が高くなる：転極)。足場を失った Pt ナノ粒子は凝集・脱落する。ごく短時間の転極でも従来の Pt/C 触媒は致命的なダメージを受ける。そのため、燃料利用率を低くして転極を回避し、万一に備えて制御機器が組み込まれている。触媒に転極耐性があれば、効率の向上とシステムの簡略化による低コスト化が可能になる。

炭素担体の酸化を抑制するために、 IrOx 等の酸素発生反応 (OER) 触媒添加の有効性が報告されている。しかし、水素製造用高分子形水電解の実用化に伴って、埋蔵量が希少な Ir 価格が急騰しており、Ir 使用量の極小化、Ir 代替 OER 触媒の開発、炭素以外の耐酸化性担体 (燃料欠乏時に無害な酸化反応が必要) の開発が進められている。

(3) ガス拡散電極

高出力密度化を図る上で物質輸送性能の向上が不可欠である。そして I-V 特性の目標 (@2030 年) を達成するためには、とりわけ GDL、MPL の酸素拡散抵抗の低減が必要となる。これらの部材は高酸性雰囲気電子伝導性を保持する必要性から、主にカーボン多孔質体が用いられる。特に電解質膜や触媒層の安定保持のために高い剛性を有する必要があるため、GDL は炭素繊維から成る不織布構造が用いられる。また触媒層との良好な接触界面を有する必要があるため、MPL はカーボンブラックの粒子堆積構造が用いられている。拡散抵抗 [s m^{-1}] は部材厚み [m] を多孔体の

有効酸素拡散係数 $[m^2 s^{-1}]$ で割った値であり、この有効拡散係数は空隙率の正のべき乗で表される。またこのべき指数は多孔体の幾何形状に依存する。すなわち各部材を①薄くする、②空隙率を上げる、③幾何形状を工夫することが拡散抵抗低減に繋がる。しかし酸素輸送以外の機能（電子伝導、MEAの安定保持等）もGDL、MPLには求められており、つまり、如何にこれら他機能を損なうことなく①～③を進めることができるかが鍵となる。さらにリブチャネル構造を有する流路を用いた場合、リブ部（GDLと接触する面）直下に酸素を拡散させる必要があるが、GDLの薄層化はこの均一拡散を妨げることに繋がる。以上より、GDL、MPLの酸素拡散抵抗の低減を進める上で、他機能の損失緩和を常に念頭に置く必要がある。ただし電解質膜や触媒層などの各部材の特性によって、GDL・MPLに求める要件は変わる可能性がある。また流路もエンジERINGとして多様な形状が提案されており、これら他部材の組み合わせの上で、最適なGDL・MPLを検討する必要がある。なお多孔体の物質輸送性能の理論値は算出可能であるが、現状部材の酸素輸送性はその理論値よりも低く、つまり現状材料でも内部構造の工夫により、性能向上の余地はあると言える。そのためにも多孔構造が酸素拡散抵抗に及ぼす影響を明らかにすることも重要である。また触媒層も同様に酸素拡散抵抗（二次細孔内、触媒粒子近傍のアイオノマ内、多孔性担体内など）の低減が必要であるが、プロトン・電子輸送との両立に加え、電極触媒の有効利用率や安定性も考慮した構造設計が必要となる。

（４）膜電極接合体（MEA）

（１）～（３）までの部材を組み合わせるMEA（Membrane Electrode Assembly）とする際にも、その製造や構造制御が極めて重要となる。触媒層は、インク調整、分散、混練、塗布、乾燥、圧着を経て形成されるが、その各製造工程に依存して内部の微細構造が変化する。そして物質輸送性や有効触媒表面を左右し、発電特性が大きく変わる。したがってこれらの各工程の現象解明や新たな製造工程の検討も必要である。また電解質膜、触媒層、ガス拡散層、その他シール部材の組み合わせによって、各部材の必要特性も変わる。例えば電解質膜の力学強度次第で、それをサポートする他部材の必要剛性も変化する。

2.4.5 主要材料コストの目安

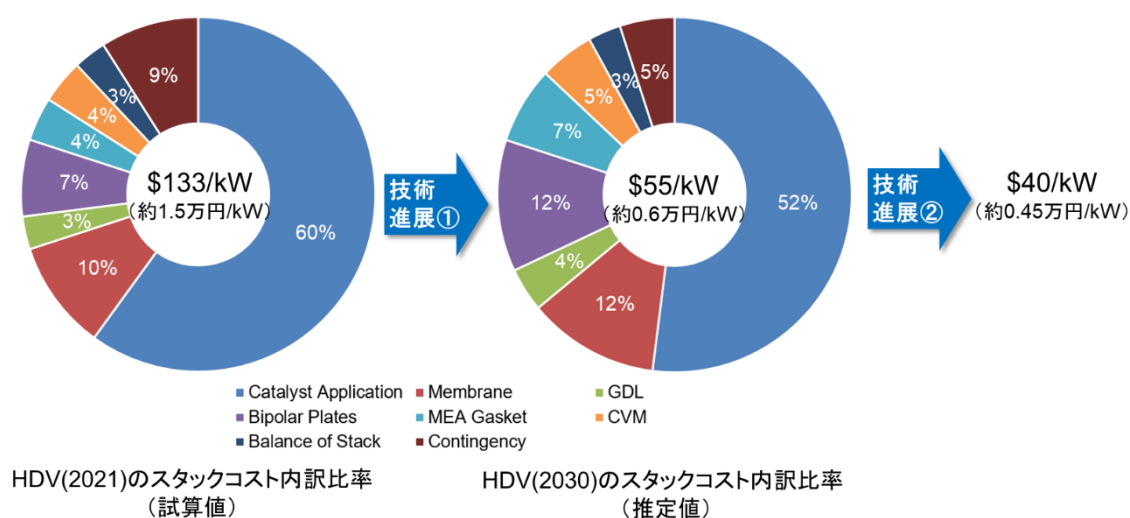
図 2.3.1-1 で示したとおり、HDV用FCスタックのコスト目標は0.45万円/kW（システムコストの50%）としたが、スタックを構成する主要部材のコスト目安について、DOEが公表した2021年におけるHDVのスタックコスト内訳に関する分析結果、および2030年に向けた技術進展によるコスト低減の考え方[1]に基づいて検討した。

スタックの年産10万台を前提とした、HDVのスタックコスト内訳比率に関する2021年の試算値、および技術進展による2030年の想定値を図 2.4.5-1 に示す。スタック総コストに対してMEAおよびGDLが占める割合は2/3程度となっている。Pt使用量の低減および出力密度向上による材料・部品使用量の低減を想定した場合、スタックコストは133ドル/kW（約1.5万円/kW）から55ドル/kW（約0.6万円/kW）となる（技術進展①による効果）。さらに上記のスタックのコスト目標を達成するために、低コスト材料の適用や大量生産プロセスの確立によるコスト低減が必要と考えられる（技術進展②による効果）。

これらのシナリオに基づいて、2030年頃のHDV用スタックに要求される主要部材のコストの

目安を表 2.3.5-1 のように設定した。部材別のコスト内訳比率については図 2.4.5-1 に示した 2030 年の推定値を前提とし、1 スタックあたりの出力 100kW、アクティブエリア面積 273cm²、セル数 330 枚（アクティブエリア面積の総和 9.0m²）として算出した。Pt 目付量は今回の目標値として空気極と水素極の合計で 0.24mg/cm² であり、DOE の 2030 年の目標値に対して少量であるため、さらに低コストを目指す考え方もあり得るが、DOE の電極触媒の前提材料が Pt/HSC と比較的安価であること、表 2.4.3-1 に示した触媒層に関する材料目標の達成に向けて、高活性触媒や高酸素透過性アイオノマ、触媒利用率向上のための MPC 担体の適用などによる材料コストアップも想定されることから、ここでは DOE と同等のコストを目安とした。

また、表 2.4.5-1 に DOE の乗用車 (FCV) のコスト試算結果[2]から算出された主要部材別のコスト内訳を併記しているが、触媒層、電解質膜、GDL については HDV としての耐久性確保のために FCV と比べて相対的に高いコストが想定される。セパレータについては、DOE の前提材料が含浸樹脂カーボン製のセパレータであるため FCV よりやや厳しい値となっているが、ここでは高耐食性、低接触抵抗のための表面コーティングを施した金属セパレータを前提として FCV と同等のコストを目安とした。



【技術進展①：材料・部品使用量の低減の考え方】

- Catalyst Application : Pt 量は 0.909g/kW (目付量 0.4mg/cm², 出力密度 440mW/cm²) から 0.326g/kW (0.3mg/cm², 921mW/cm²) に低減、担体・アイオノマ担持量も Pt 量に比例して低減(▲64%)
- Membrane : 安価な補強材の採用と膜厚減少で\$4/kW との試算の前提があるが、高温・耐久性向上のための材料コストアップを想定し、ここでは出力密度向上代だけ使用面積が減少することを想定 (▲52%)
- GDL : 出力密度向上代だけ使用面積が減少することを想定 (▲52%)
- Bipolar Plate/MEA Gasket : 出力密度向上代だけセル枚数が減少することを想定 (▲30%)
- CVM : セル電圧センサーあたりのセル数増加 (2 倍) で半減 (▲50%)
- Balance of Stack : スタック数減少 (4 スタックから 2 スタック) で半減 (▲50%)
- Contingency : 不測のコストは全体の 5%程度に低減

図 2.4.5-1 DOE のスタックコスト内訳と前提条件 (年産 10 万ユニット前提) [1]

表 2.4.5-1 スタック主要部材のコスト目安

主要材料	NEDO 2030 年頃		DOE 2030 内訳比率		材料コストの考え方
	HDV※1	FCV※2 (参考)	HDV	FCV (参考)※3	
触媒層	約 30,000 円/m ²	約 12,000 円/m ²	21.5 \$/kW	7.8 \$/kW	2030 年頃における HDV 用 FC の Pt 量の目標値(0.19g/kW)が DOE (0.326g/kW)と比べて少ないため、更なる低いコスト目標設定も考えられるが、高活性触媒、高酸素透過性アイオノマ、MPC 担体の採用等によるコストアップを想定して DOE と同等レベルに設定
電解質膜	約 4,000 円/m ²	約 1,600 円/m ²	4.8 \$/KW	1.7 \$/KW	耐久性確保のために FCV のコストレベルに比べて上昇
GDL	約 2,000 円/m ²	約 1,800 円/m ²	1.4 \$/kW	1.1 \$/kW	耐久性確保のために FCV のコストレベルに比べてやや上昇
セパレータ	約 120 円/枚	約 120 円/枚	4.9 \$/kW	5.3 \$/kW	DOE の HDV ではカーボンセパレータを前提しており、金属セパレータの FCV と比べて安価(約 100 円/枚)、ここでは FCV と同等レベルに設定

※1 : DOE 2030 の HDV スタック構成材料の内訳比率のデータをもとに、1 スタックあたりの出力 114kW、アクティブエリア面積 273cm²、セル数 330 枚を前提として試算

※2 : DOE 2030 の FCV スタック構成材料の内訳比率のデータをもとに、1 スタックあたりの出力 128kW、アクティブエリア面積 273cm²、セル数 330 枚を前提として試算

※3 : DOE の FCV スタックコスト (\$19/kW) および構成材料の内訳比率から算出 (年産 50 万台前提) [2]

(参考文献)

[1] “Fuel Cell System Analysis”, DOE Annual Merit Review and Peer Evaluation Meeting 2021, Project ID# FC163

[2] “Fuel Cell System Cost - 2017”, DOE Hydrogen and Fuel Cells Program Record #17007

2.5 材料評価の考え方

MEA、MEA 材料、セルに用いる材料の耐久性能については、実際の耐久時間まで走行して性能確認を行い、材料開発を進めることは時間的制約、必要な手間を考えると不可能であるため実際の耐久走行に相当する加速劣化試験条件を設定して性能確認を行うことが必要となる。

加速劣化試験法に関しても乗用車向けに下記の加速耐久手法が決められている。こちらの詳細の耐久手法についても「NEDO PEFC セル評価解析プロトコル」に詳細がまとめられている。

表 2.5-1 材料特性の測定方法

部位	評価手法
電解質膜	M-9(Ⅲ-3-1)高電位(OCV)保持試験方法
	M-11(Ⅲ-1-8)電解質膜の膨潤耐性評価方法(湿度サイクル試験)
電極触媒・電極触媒層	C-8(Ⅲ-3-3)電位サイクル(起動停止)試験方法
	C-9(Ⅲ-3-2)電位サイクル(負荷応答)試験方法
	C-10 水素欠乏に対する触媒耐性評価(アノード電位変動耐久) ※1
	C-11 水素欠乏に対する触媒耐性評価(水電解耐久) ※1

※1：現在、測定手法について検討中、今後、追加予定。

ここで記載されている内容も評価手法と同様に乗用車向け以外には、想定される耐久条件が異なってくるため、温度や加湿条件等を商用車向けに見直しを行い、設定を行う必要がある。

商用車向けの加速劣化試験条件の設定は以下の図 2.5-1 に示す手順で行う。

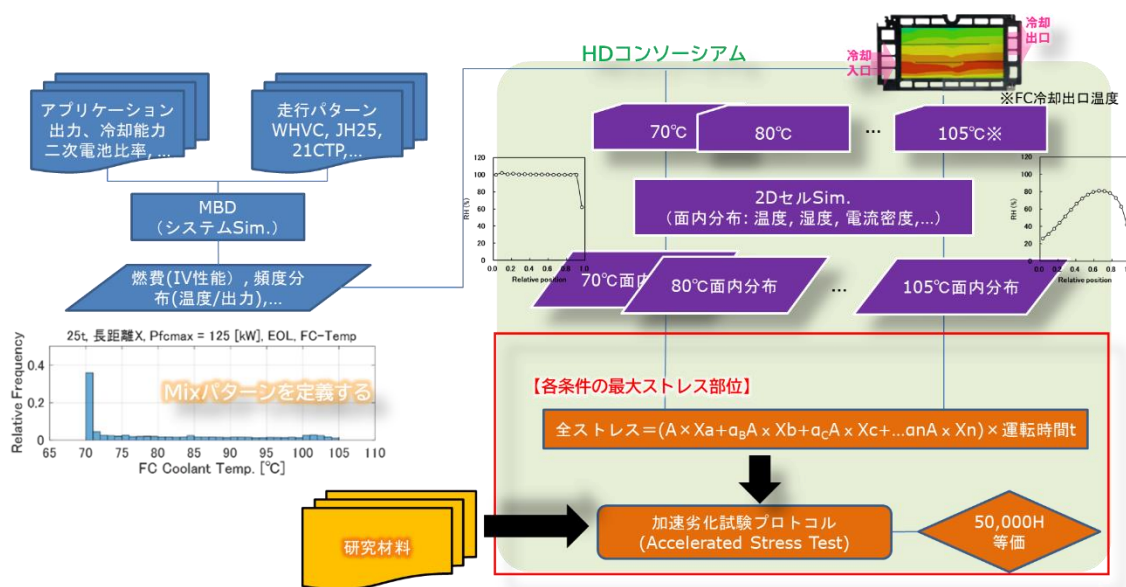


図 2.5-1 加速劣化試験条件の決め方のフロー

まず車や車以外のアプリケーションでの FC システムがどのような運転環境で使われるかの把握を行う。各アプリケーションでの FC の運転環境は、「2.2 要求 I-V 特性の検討」で説明されているように各アプリケーションでの要求性能等を満足する FC システムを想定し、そのシステムで各アプリケーションの運転モード条件での MBD シミュレーションを行うことにより推定でき

る。MEA、MEA 材料がそれぞれの運転環境にさらされる耐久時間の分布状態を示した温度環境が下図になる。

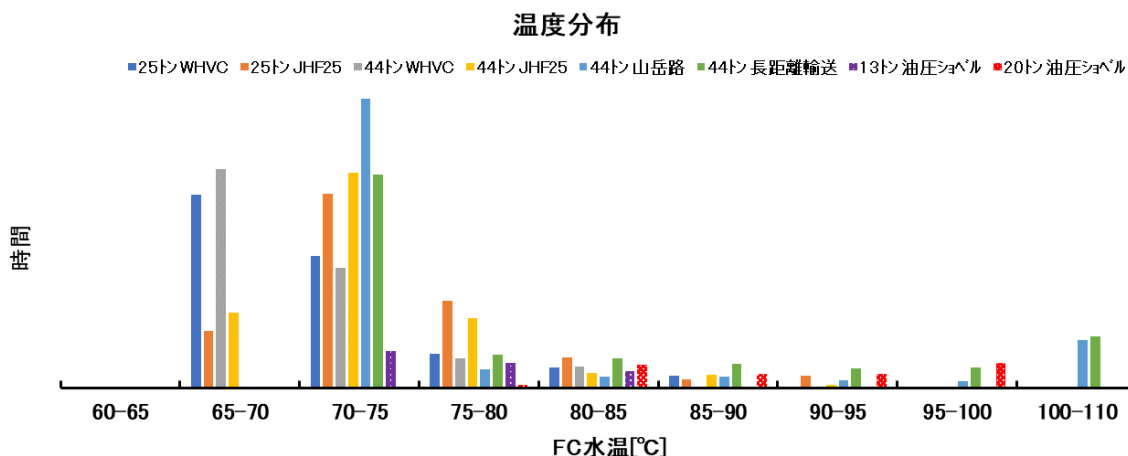


図 2.5-2 MBD シミュレーションから推定される FC システムの運転環境

湿度環境、電圧等の他の環境条件についても同様に耐久時間の分布状態として示すことができ、各アプリケーションで想定される FC システムの運転環境が推定できる。次に、求められた FC システムの運転環境の結果から、「2.4.4 現状の課題と目標達成に向けた開発の方向性」の項で示したようにシミュレーション (2D-Sim.) を用いて FC セル面内でのそれぞれの位置での運転環境を推定することができ、セル面内での運転環境分布を求められる (図 2.4.4-1)。

各アプリケーションでの耐久性能劣化は、性能劣化因子 (ストレス) について、セル面内での個々の運転環境でのストレスを要求される耐久時間分 (例えば大型トラックでは 50,000 時間)、積み上げた全ストレス (式①) が加わったことによる性能劣化として見積れる。

$$\text{全ストレス} = (A \times X_a + \alpha_b \times X_b + \alpha_c \times X_c + \dots + \alpha_n \times X_n) \times \text{運転時間} \quad \text{①}$$

$X_a, X_b, X_c, \dots, X_n$: それぞれの運転条件の頻度

$\alpha_b, \alpha_c, \dots, \alpha_n$: 標準運転条件 (式①の場合は A 条件) に対する劣化係数

種々の運転環境において実際に MEA、MEA 材料、セル材料がどの程度ストレスが加わり性能劣化するかは、小型単セルを用いて種々の運転条件で耐久実験を行いデータ取得することにより求める。それぞれの運転条件によるストレスは基準の標準運転条件に対する劣化係数を用いて表示できる。この実際に小型単セルで求めた実測のストレス量 (あるいは劣化係数×標準条件でのストレス量) とシミュレーションで推定される個々の運転環境の頻度データを掛け合わせ、さらに要求される耐久の運転時間を掛けて実際の耐久時間後の FC の性能劣化の推定を行うことができる。推定される性能劣化が要求される耐久後の性能を満たしていれば、耐久性能を満足することになり、この耐久性能を満足するときの全ストレス量が劣化量のクライテリアとなる。このクライテリアは、実際の使用条件で要求される耐久時間で要求性能を満足できる劣化状態以下となる必要があり、実際に市場で適用されている FC で要求耐久時間相当の劣化試料でのストレスを求

めることで得ることが可能である。加速劣化試験のクライテリアもこの実際の使用条件で要求されるストレスに対するクライテリアと同じ値を用いることになる。

加速劣化試験条件としては、劣化係数が高くかつ実験条件として安定的に実施可能な運転条件となる条件を選定し、耐久時間はこの加速条件によりストレス量がクライテリアに達するまでの時間として決めることになる。

電解質膜のストレス量としては分子量低下率を指標として、影響する因子としては温度、加湿条件、電流密度等になる。電極触媒のストレス量としては ECSA が指標として考えられ、影響する因子としては温度、電位変動幅、加湿条件等になる。今後、これらの因子等を振ってデータ蓄積を行い、加速耐久条件の選定を進めていく必要がある。

PE01：高温低加湿作動を目指した革新的低白金化技術開発

【研究開発の目標】

委託機関 学校法人同志社、石福金屬興業株式会社、国立大学法人東北大学、国立研究開発法人産業技術総合研究所、国立大学法人千葉大学

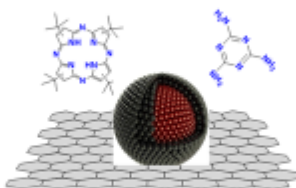
コアシェル触媒技術をベースとして、2030年以降に求められるFCV用スタック性能を実現可能な革新的高活性触媒を開発する。

- 回転ディスク電極：質量活性1500 A/g-PGM(@0.9 V)以上
- MEA評価：活性目標 0.84 V以上(@ 0.2 A/cm²)、出力目標 3 A/cm²(@0.6 V)、Pt/Cの3倍以上の耐久性(作動温度100°C以上、加圧条件1.5気圧以下)

【研究開発の概要】

触媒金属内部構造および表面修飾

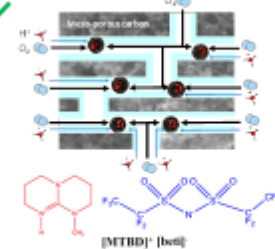
含窒素有機物修飾による高活性化
(産総研、千葉大学)



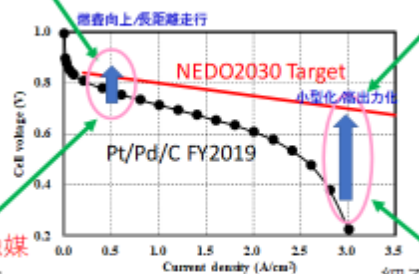
コアシェル触媒、合金系触媒による高活性化(東北大学、同志社大学、石福金屬)

カーボン担体中の物質移動促進

連通孔を有するカーボン担体による高速酸素輸送(同志社大学、石福金屬)



細孔内へのプロトン伝導性イオン液体含浸→高温低加湿対応(同志社大学、千葉大学)



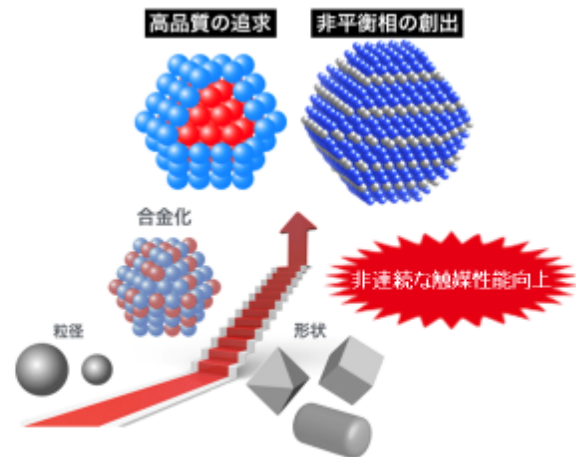
PE02:未踏合金カソード触媒の創製 (国立大学法人京都大学、岩手大学)

【研究開発の目標】

2030年以降のFCVの性能目標である0.84 V@0.2 A/cm²以上、エネファームの性能目標である発電効率40~55%以上、純水素燃料電池の性能目標である発電効率60%以上を実現するため、現行のPt合金触媒に対して10倍以上の活性と同等の耐久性を有する高活性カソード触媒と、同触媒の活性を最大限に引き出すMEA化技術を開発する。

【研究開発の概要】

2030年以降のスタック発電電圧目標達成に資する新規高活性カソード触媒の開発を目指し、構造均一性が高い非平衡合金相からなる未踏合金カソード触媒を創製する。同時に、触媒活性を最大限に引き出すMEA化技術を開発し、現行の触媒に対して10倍以上の活性を持つ触媒を創製する。2024年度末最終目標として、MEAで0.84 V@0.2 A/cm²以上、かつ、2019年度のパナソニックMEAに対して70 mV以上の電圧向上を目指す。



PE03: 高効率・高出力・高耐久PEFCを実現する革新的材料の研究開発事業

【山梨大学、Panasonic、田中貴金属工業、日本化学産業、日産アーケ、東北大学、大阪大学、(東レリサーチ・共同実施)、(日揮ユニバーサル、リガク、東京理科大学・再委託)】

【研究開発の概要】

燃料電池自動車の本格普及にむけて産業界がもつ共通課題を解決し、高効率・高出力・高耐久を実現する燃料電池を実用化するため、新たな電極触媒・高分子電解質、および触媒層を開発する。電極触媒・高分子電解質に新たな機能を付与し、機能発現・劣化メカニズムを解明し、産業界との密接な協力にて機能の有用性検証と各材料の量産を図る。本研究成果は2030年以降の燃料電池自動車の自立的普及及び用途拡大に貢献し、自家用車及び商用車、鉄道や船舶、定置型等へ市場拡大を図る。

研究内容

【研究開発の目標】

- 中間目標 (2022年6月)**
 - ・高活性・耐久性をもつ電極触媒、高プロトン伝導性・ガスバリア性をもつ電解質膜及びそれらを用いたセルにて、機能と劣化メカニズムを検証する。
 - ・現状比6倍の耐久性と1.5倍の活性を持つ電極触媒と1.6倍のプロトン伝導度とガスバリア性を持つ電解質を設計する。
- 最終目標 (2024年度)**
 - ・現状比10倍の耐久性と2.5倍以上の活性を有する電極触媒、2倍のプロトン伝導度とガスバリア性を持つ電解質を設計する。
 - ・産業界と協力し、上記機能を検証すると共に量産工程を確立する。

<p>高効率 <small>カーボン担体表面アクセシブルポア形成</small></p>  <p>有効な位置へのPt担持</p> <p>Ptの利用率を最大にする アクセシブルカーボン担体触媒</p>	<p>高耐久 <small>高伝導性連珠構造セラミックス担体</small></p>  <p>Pt触媒の電子状態・構造制御</p> <p>形状異方性・表面機能を積極利用した高耐久Pt担持セラミックス担体・触媒</p>	<p>高度解析 <small>最新計算科学</small></p>  <p>発電環境下での高度解析</p> <p>最新機器による材料・セル機能の高度解析</p>
<p>高出力 <small>電解質の主鎖・側鎖構造の高度制御 高プロトン伝導性</small></p>  <p>補強層の積極利用</p> <p>低ガス透過・高強度・高プロトン伝導性を有する革新的炭化水素系補強膜</p>	<p>PJ運営 <small>アカデミアの知恵</small></p> <p>材料設計 ▼ メカニズム解明</p> <p>課題の共有 ▼ 実用化へ加速</p> <p style="text-align:center">産業界との連携</p> <hr/> <p>成果</p>  <p>現在 ▶ 将来</p>	

PE04 研究開発テーマ名 大型モビリティに適應する多用途型燃料電池モジュールの研究開発

【研究開発の目標】

船舶や鉄道などの大型モビリティに適用可能な、コンパクト、軽量かつ高出力の200kW級純水素燃料電池のモジュールを開発することで、燃料電池システムの多用化を推進し、水素の活用を促進する

【研究開発の概要】

- ・ 高出力・連続運転・高耐久なモビリティ向け燃料電池システムを開発する。
- ・ 燃料電池システムをモジュール構成とし、複数組み合わせることが可能な構成とする。
- ・ 高負荷が求められる様々な大型モビリティに求められる搭載性を実現する。
- ・ 各モビリティでの運用を前提とした評価試験を実施する。

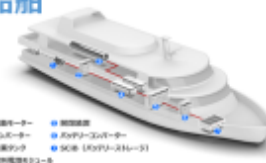
【研究開発の成果】

- ・ 本事業にて船舶用燃料電池モジュールのプロトタイプを開発し、性能試験により計画仕様を満たすことを確認した。今後船舶・鉄道・大型車両・建設機械に向けた展開と事業展開を検討する

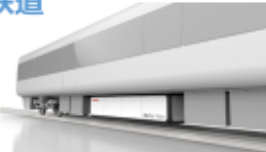
FCモジュール



・船舶



・鉄道



・大型車両,建設機械

研究開発テーマ名: PE05 ラジカル低減機能と燃料欠乏耐性を有するアノード触媒の研究開発

【研究開発の目標】

【山梨大学、岩手大学(再委託・弘前大学)、信州大学、東北大学】

○中間目標(2022年6月)

- ・高い水素酸化(HOR)活性を維持しつつ H_2O_2 抑制率が高い触媒と助触媒の開発指針を実験と計算科学で明確にする。
- ・0.02⇔1.5 Vの電位ステップサイクルにより、燃料欠乏耐性の高い触媒候補材料を明確にする。

○中間目標(2023年度)

- ・電解質膜の耐久性向上効果の大きい触媒をPEFC評価解析プラットフォームに提供し、第三者の評価を受ける。また、 H_2O_2 生成を抑制可能なPt合金ナノ粒子触媒の設計指針を計算科学的に提案する。
- ・燃料欠乏時の高電位に対する耐性の向上機構を実験と計算科学により明らかにする。

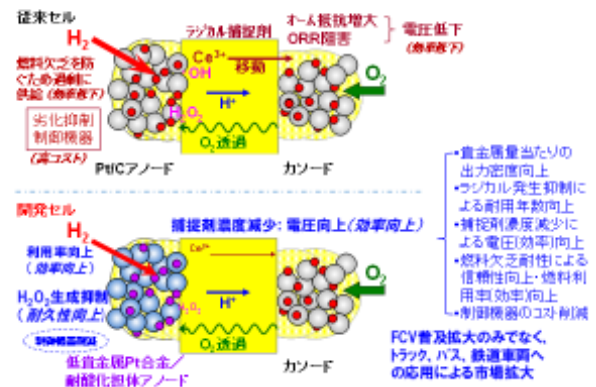
○最終目標(2024年度)

- ・HOR質量活性と H_2O_2 抑制率が市販触媒よりも高い触媒の量合成法を確立し、実機サイズセルで耐久性を実証する。
- ・燃料欠乏耐性が2倍以上で作用機構・劣化機構が明確な触媒を開発し、実機サイズセルで燃料欠乏耐性を実証する。
- ・これらアノード触媒を計算科学的に設計するためのシミュレーション技術を確立する。

【研究開発の概要】

2030年以降の高性能・高耐久性の固体高分子形燃料電池に実装され得るアノード触媒を開発する。低貴金属量で高い水素酸化(HOR)活性を維持しつつ、1) ラジカル発生による電解質膜およびアイオノマーの化学分解を抑制して耐久性を向上させる H_2O_2 発生抑制機能を有するアノード触媒と触媒層、2) 燃料欠乏時の高電位耐性を有するアノード触媒と触媒層を研究開発する。これら触媒の作用機構、劣化機構を解明するとともに、触媒の量合成法を確立する。

本研究成果はFCV、バスやトラック等の商用車、鉄道車両や定置用燃料電池等の市場拡大に貢献する。



PE06

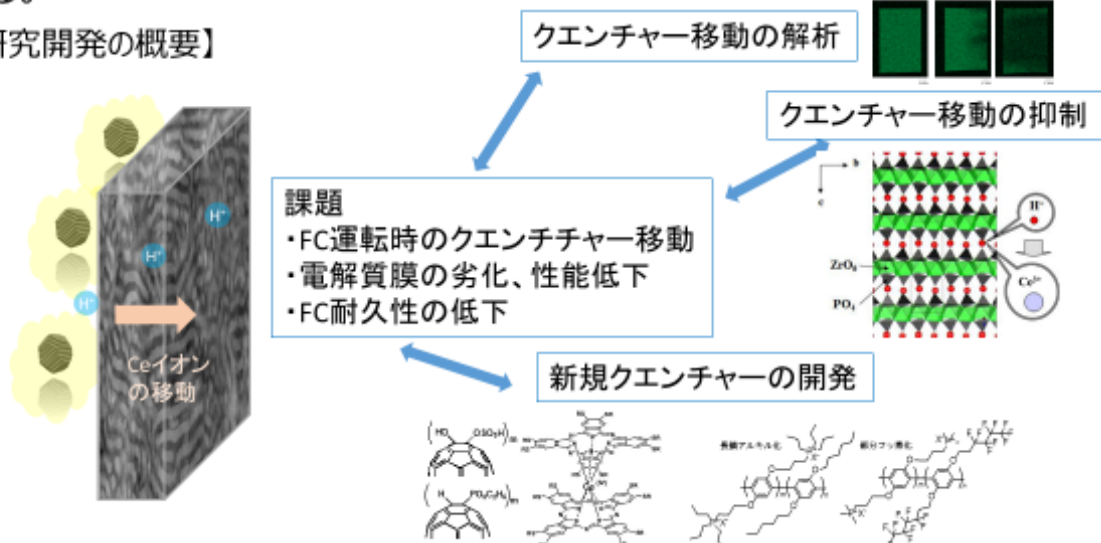
研究開発テーマ名 高耐久性を目指したラジカルクエンチャーの研究開発

【研究開発の目標】

上智大学

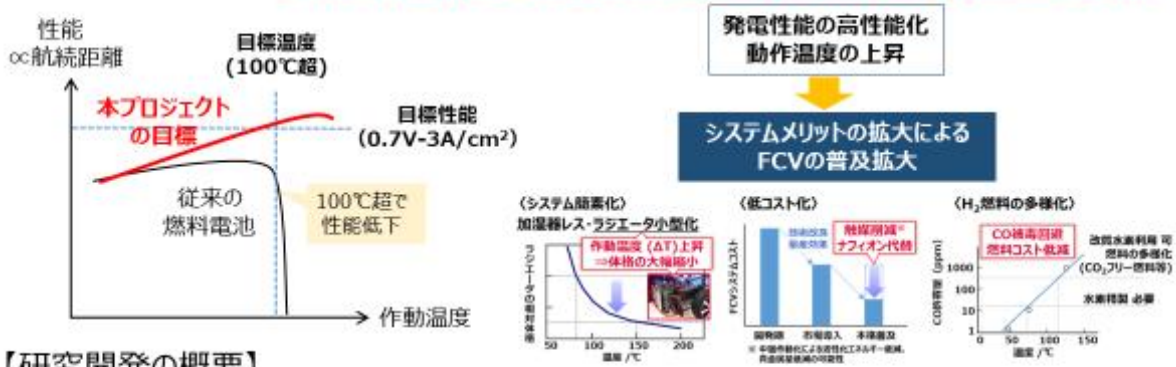
- ・2021年度末にFC起動時にセリウムイオンの移動速度を50%低減する技術を開発する。
- ・2023年度末にFC起動時に移動のないラジカルクエンチャーを開発する。

【研究開発の概要】



PE07：配位高分子を用いた中温作動燃料電池の研究開発

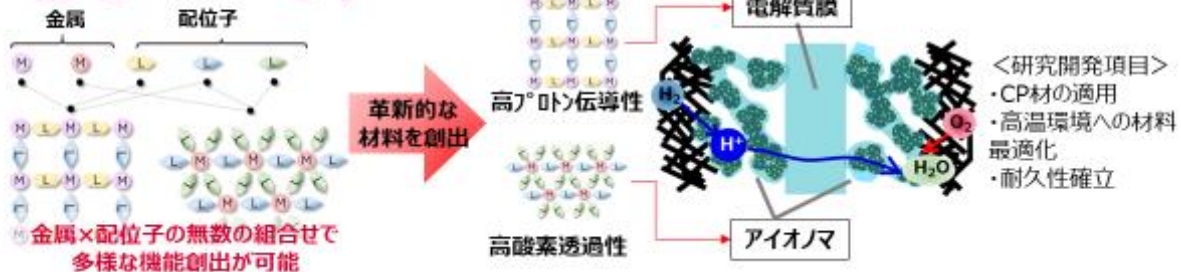
【研究開発の目標】 従来より高温作動・高性能な燃料電池を実現し、FCV普及拡大に貢献



【研究開発の概要】

配位高分子 (CP) 由来の新材料を適用

CP : Coordination Polymer



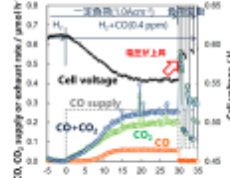
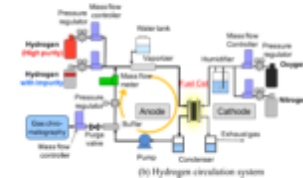
PE08：硫黄化合物等の吸着脱離メカニズム解明と被毒予防・回復技術開発

【目標】：被毒を抑制する（予防）・分解を促進する（回復）運転モードを立案

メーカーと緊密に連携：1Qに1度、関係者を招いた進捗報告会
三者（NIMS・JARI・メーカー）の連携によって基礎的知見を使える技術に



JARIセルを利用した実証・高感度ガス分析により物質収支把握

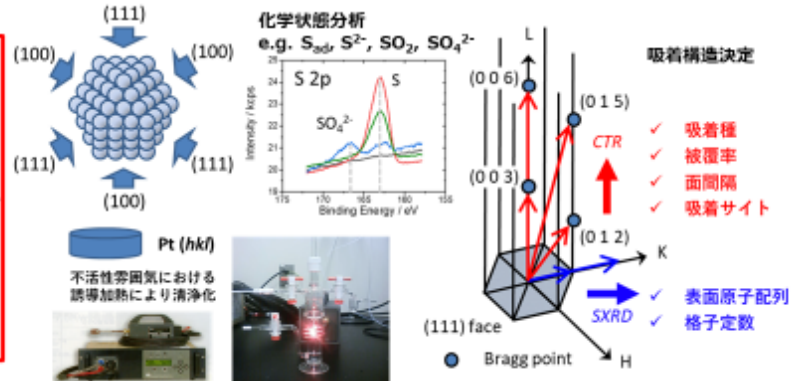
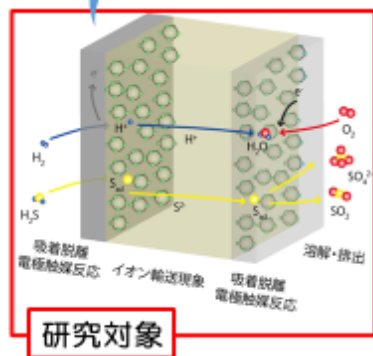


被毒研究に実績
負荷変動による
被毒制御

【研究開発の概要】



白金粒子触媒の各面方位における硫黄種の吸着・脱離現象を解明



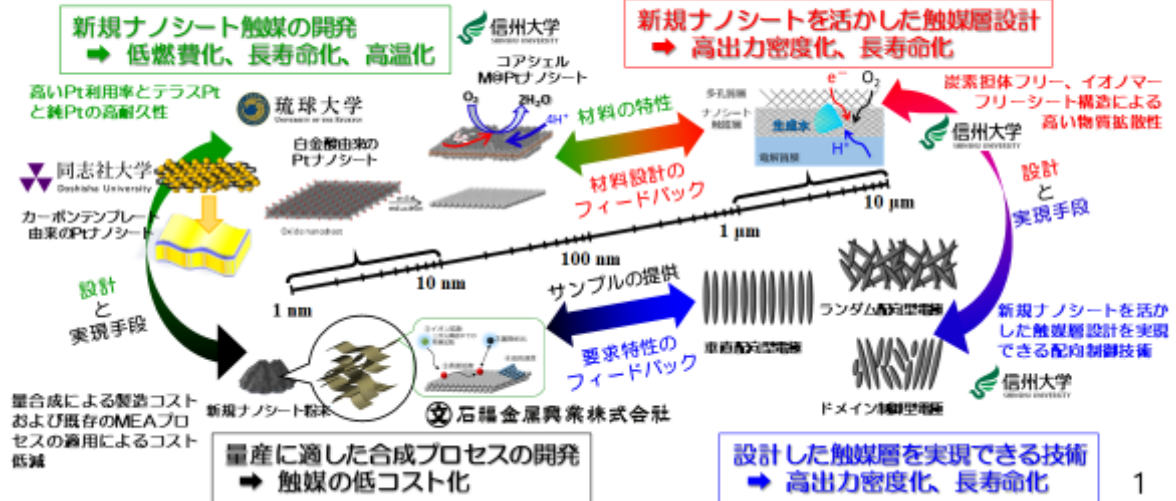
二次元反応場制御によるナノシート触媒/触媒層の高耐久化技術開発

【研究開発の概要】

高温・低加温などの**極限環境下でも使用可能**な高活性、高耐久な酸素還元（ORR）触媒を開発する。現行の炭素担持白金合金ナノ粒子の課題であるナノ粒子の不安定性と炭素担体の酸化消費を抑制した**新規ナノシート触媒**を開発し（信州大学（再委託：琉球大学）、同志社大学）、新規ナノシート触媒の性能を最大限に引き出す**触媒層・MEA化技術**を確立する（信州大学）。大学が開発した高性能触媒系は触媒メーカー（石福金属興業）と共同し、量合成プロセスを開発する。

【研究開発の目的】

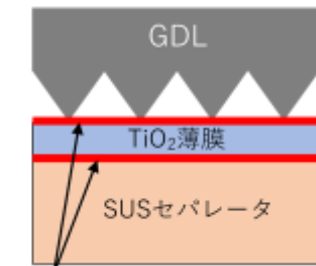
新規ナノシート触媒（炭素担持・無担持、多結晶・単結晶、純白金・コアシェル・合金）の開発により、2030年以降の燃料電池自動車に求められる低白金使用量で100℃以上の高温かつ低加温などの**極限環境下における耐久性を50 wt% Pt/C比で6倍**を見通せる触媒を開発し、新規ナノシートに適した触媒層・MEA化技術を開発し、PEFCの飛躍的拡大に貢献する。また開発した新規ナノシートの量産を見据えた合成プロセスの開発を実施する。



PE10 アナターゼ型TiO₂薄膜を活用した低接触抵抗・高耐久性セパレータ表面処理技術の開発

【研究開発の目標】

- ・ 金属セパレータに耐腐食性を備えるため、NbドープTiO₂(TNO)薄膜を保護層とする
- ・ ガス拡散層(GDL)とセパレータ間との**接触抵抗を5 mΩcm²以下とする**
- ・ 燃料電池セルを5-10%コスト削減



接触抵抗目標*：5 mΩ・cm²

*参考文献：表面技術 Vol.71 No.1 (2020)

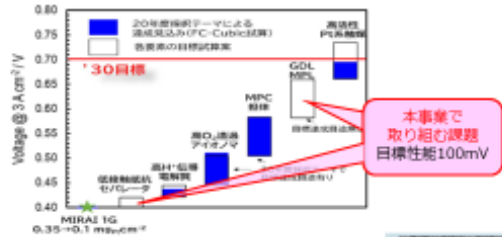
【研究開発の概要】

- ・ 高い電気伝導、耐食性を示すTNO薄膜に着目
- ・ ミストCVD法を採用し、低コストで高性能薄膜を作製
- ・ 多数のパラメータを最適化するため必要があるため、機械学習とロボット技術を活用
- ・ “自律的”に実験を進めるシステムを構築し、研究を高速化



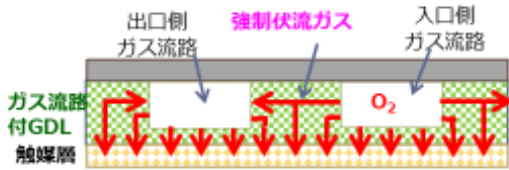
【研究開発の目標】

- ・燃料電池実用化推進評議会（FCC）より報告された「2030/2040年に向けたチャレンジ～課題と対応～」のGDL/MPL/セパレータにかかわる2030年目標を達成する。
- ・本デバイスにかかわる過電圧100mV@3Acm²の低減を検証し、GDL/MPL/セパレータ(表面処理)の産業界のニーズに対応する。

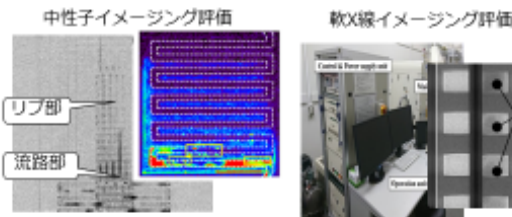


【研究開発の概要】

GDL一体型金属フラットセパレータ断面図



- > **流路付きGDL**
⇒ リブ下のガス供給&排水の改善、有効反応面積の飛躍的増大
- > **導電性耐食金属フラットセパレータ**
⇒ 安価な金属&炭素/樹脂複合コーティングによる高い導電性&耐食性
- > **ガス流路付きGDLとの組み合わせ**
⇒ セパレータへの流路プレス加工が不要、画期的製造コスト削減



エノモトの材料/構造設計/製造プロセス技術を、山梨大学や大阪大学の評価解析技術やシミュレーション技術、中性子&軟X線イメージング等の高度解析技術で多角的解析することにより、導電性・ガス拡散性、水マネジメント機能の性能発現/劣化メカニズムを解明、新材料技術を導入し次世代GDL/セパレータ技術を構築する。

【研究開発の目標】

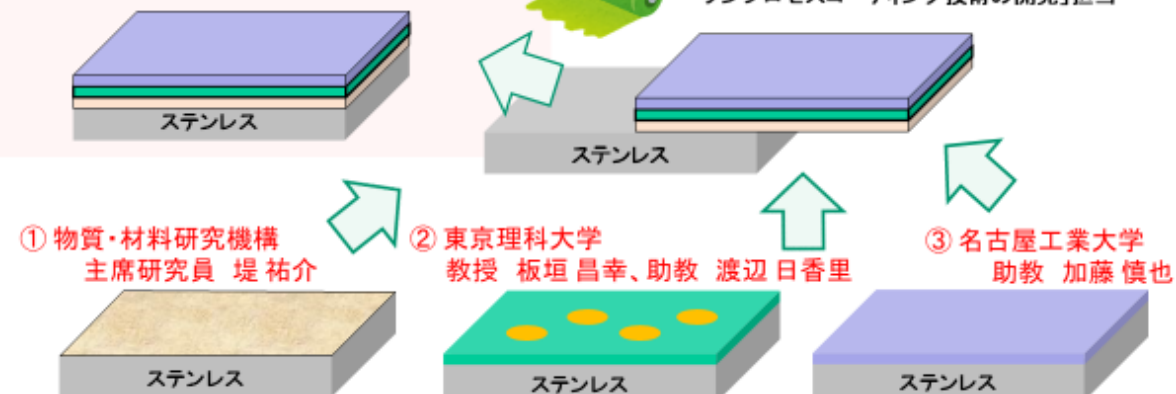
本研究開発では貴金属コーティングを使用しない高耐食性・低接触抵抗性を発現するPEFCステンレスセパレータのコーティング技術の研究開発を行う。この技術により燃料電池の低コスト化と高性能・高耐久の両立を実現する。

【研究開発の概要】

「高耐食・低接触抵抗 貴金属フリーコーティング」

- 低接触抵抗蒸着膜
- インヒビター含有めっき
- 腐食抑制ステンレス

名古屋工業大学 准教授 星 芳直
「研究項目①～③の技術融合によるワンプロセスコーティング技術の開発」担当



「組成制御による局所的な腐食を抑制するステンレスセパレータの開発」担当

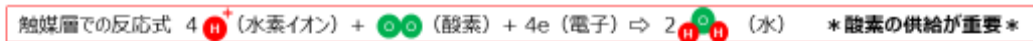
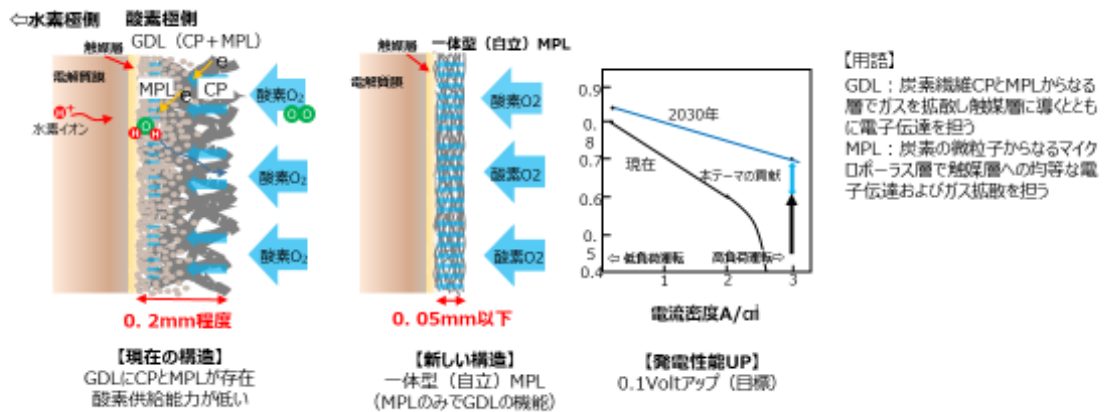
「腐食発生サイトを自己修復するインヒビター含有めっきの創成」担当

「低接触抵抗性を発現する蒸着膜の開発」担当

【研究開発の目標】

水素社会の実現に向けて燃料電池自動車の普及が叫ばれている。燃料電池性能は水素一回の充填で長距離の走行、燃料電池の出力において大幅な改善が求められている。本研究開発においては出力向上において重要な要素の一つであるガス拡散層の性能向上により出力特性向上に寄与することをめざす。

【研究開発の概要】



導電性ナノファイバーネットワーク (一体型MPL) により薄型で高い酸素ガス供給を低コストで実現する。
 ガス拡散層に求められる、反応で出来た水の排水性 (撥水性)、導電性、圧縮特性等も満たす構造とする

PE14 燃料電池スタックシール用高速架橋エラストマー材料の研究開発

(九州大学, 大阪大学, 横浜国立大学, 化学物質評価研究機構)

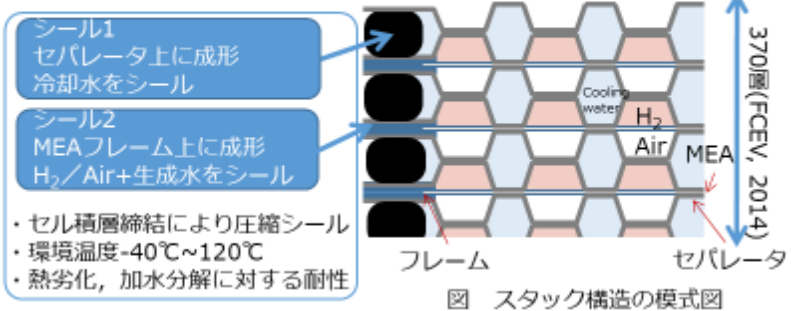
【研究開発の目標】

FCEV用燃料電池スタックに300個以上必要となるシール部材は加硫反応時間が長く、生産性が課題

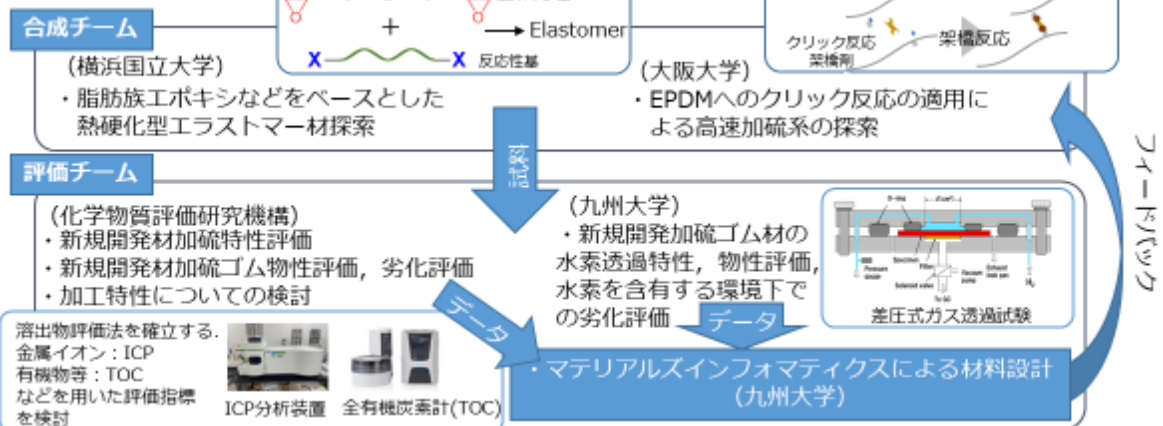
(目標)

現状の加硫時間の約1/10となる数秒程度で加硫可能な新規高速加硫型エラストマー材料によるスタックシール部材を提案

製造時間短縮によりスタック製造コスト低減



【研究開発の概要】

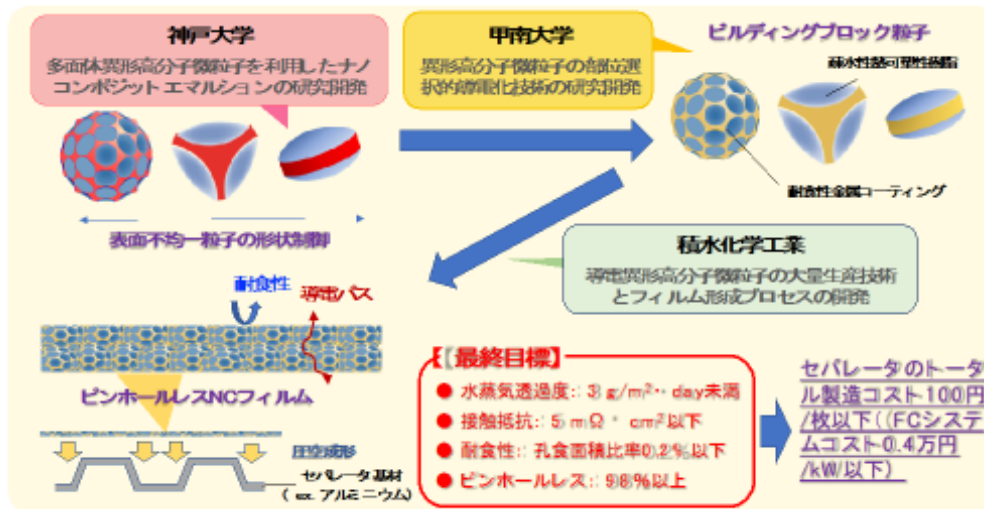


PE15：燃料電池セパレーター用ラミネート金属・高分子ナノコンポジット（NC）フィルムの研究開発

【研究開発の目標】

本事業では、新しいセパレーターラミネート用「ナノコンポジット（NC）フィルム」の合成技術の確立と、基材へのラミネートプロセスの開発を行う。このフィルムは金属セパレータの耐食性向上と高電気伝導性の両立および低コスト化を可能とする革新的材料である。これによりセパレータ基材として安価なアルミニウムの使用が可能となり、さらに製造コストを低減でき、燃料電池の爆発的普及に貢献できると期待される。

【研究開発の概要】

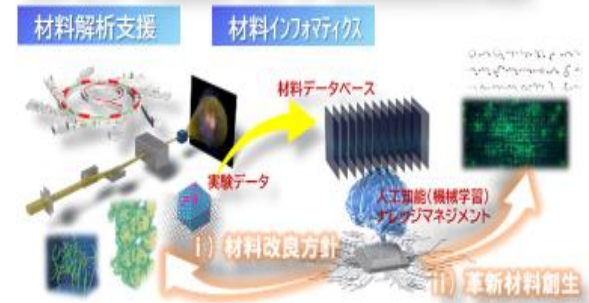


PF01 PEFC評価解析プラットフォーム『FC-Platform』の概要と目的⁰

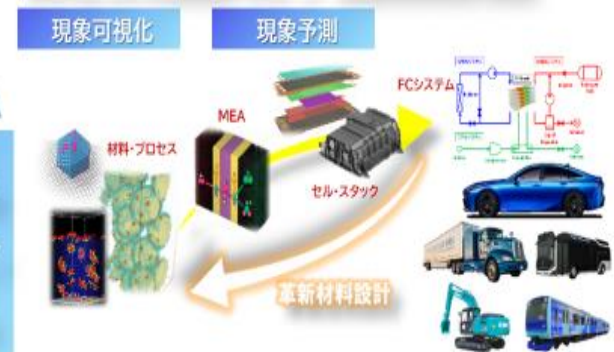


- 【FC-Platformの目的】**
- NEDO事業の材料研究テーマが開発した材料を共通のプロトコルで評価し、目標の達成に向けた**改良方針**をフィードバック【WP1】
 - 共通基盤となる**新しい計測解析・予測技術**を開発し、産業界・アカデミアへ普及・活用【WP2】
 - PFのサービスを広く提供することで、燃料電池に縁が薄かった材料研究者を振り起しPEFC研究開発への**新規参画を促進**

【WP1】データ駆動型アプローチ（材料開発研究に貢献）



【WP2】モデル駆動型アプローチ（基盤技術開発に貢献）



長寿命化・高性能化達成のための設計シミュレーターの開発

PF02 国立大学法人京都大学（国立大学法人東京農工大学）、国立大学法人東北大学、国立大学法人九州大学
国立大学法人東京大学、国立大学法人東京工業大学（国立研究開発法人産業技術総合研究所）

燃料電池 評価・解析プラットフォーム シミュレーショングループ



【研究開発の目標】

材料研究テーマの分析／解析支援、および、産業界におけるPEFC開発の課題解決を進めるためのシミュレーター開発支援とそのため解析技術の高度化を実施する。この確立した分析／解析技術を広く学术界・産業界に普及させ、PEFCの開発を加速する。

【研究開発の概要】



PF04 研究開発テーマ名 電気化学的特性測定技術の研究開発

【研究開発の目標】

電気化学的特性評価技術をフルに新規材料開発、シミュレーション開発に活用し、他のPF内グループと連携し、新材料創出および性能・耐久シミュレーションの有効化により産業界の燃料電池性能・耐久性向上につなげる。

【研究開発の概要】



PF05 マテリアルズ・インフォマティクスによる燃料電池の研究開発

【研究開発の目標】

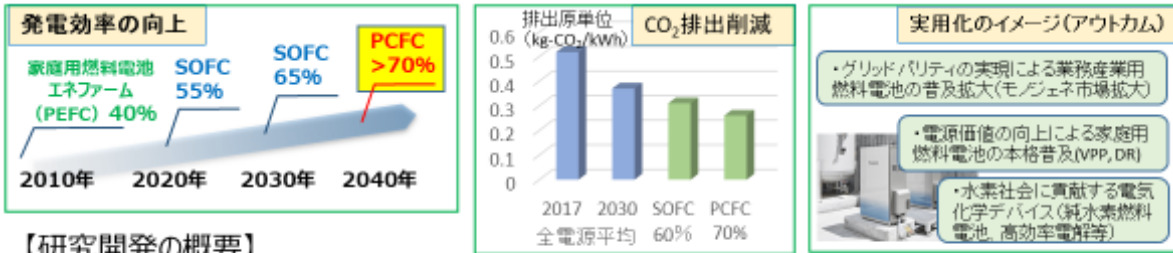
マテリアルズ・インフォマティクス(MI)を用いた新規材料設計および開発指針の提案を行う。そのために必要な品質が高いデータをPF内グループと連携して大量に集め、これをMIに利用しやすい共通フォーマットを整えた形でPEFCデータベースに格納する。MI解析結果を材料グループと共有し、新規PEFC材料およびシステム開発の指針を提案する。

【研究開発の概要】

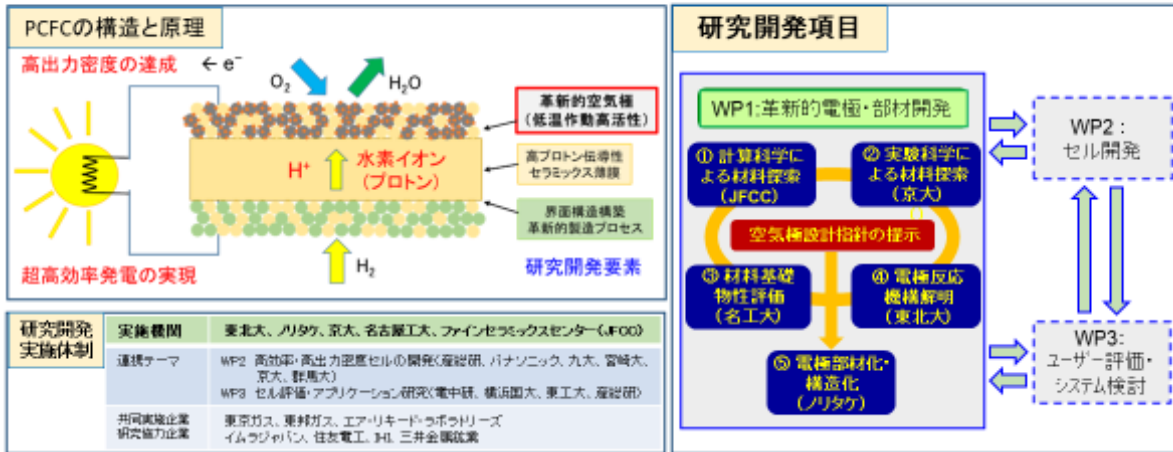


SO01 超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発 (WP1 革新的高性能空気極・部材の開発)

【研究開発の目標】 水素社会の実現と定置用燃料電池の本格的普及拡大を目指して発電効率70%を見通す画期的な「プロトン伝導セラミック燃料電池 (PCFC)」の実現に取り組む。

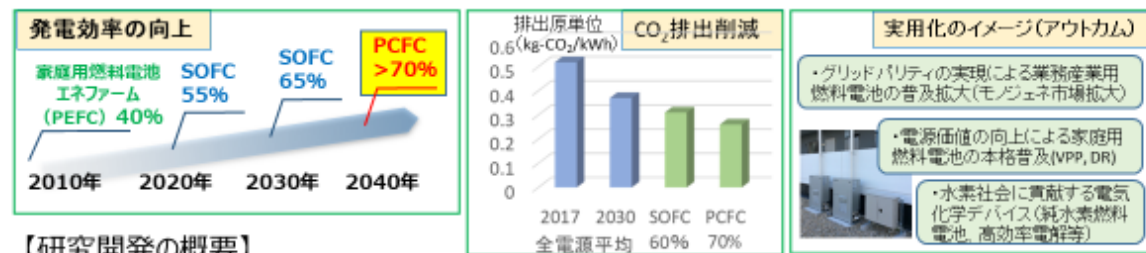


【研究開発の概要】

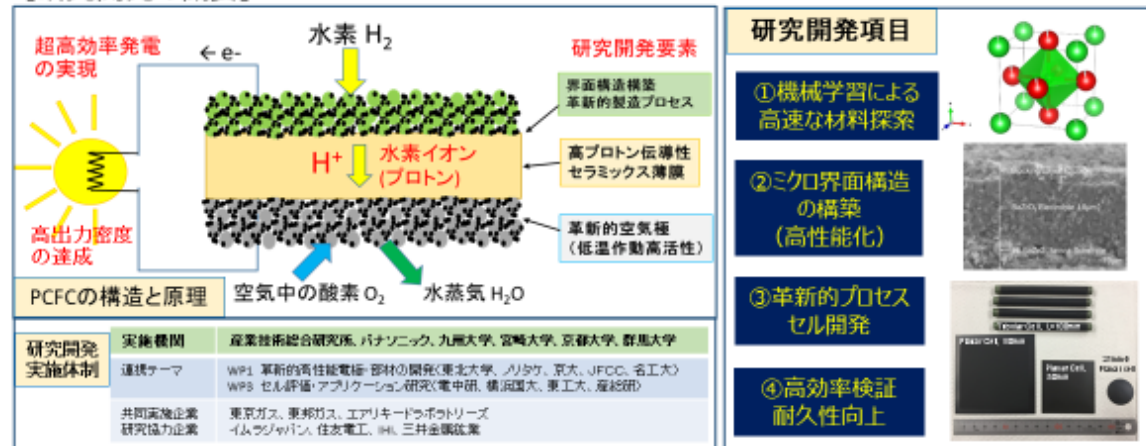


SO02 「超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発」 (WP2 高効率・高出力密度セルの開発)

【研究開発の目標】 水素社会の実現と定置用燃料電池の本格的普及拡大を目指して発電効率70%を見通す画期的な「プロトン伝導セラミック燃料電池 (PCFC)」の実現に取り組む。

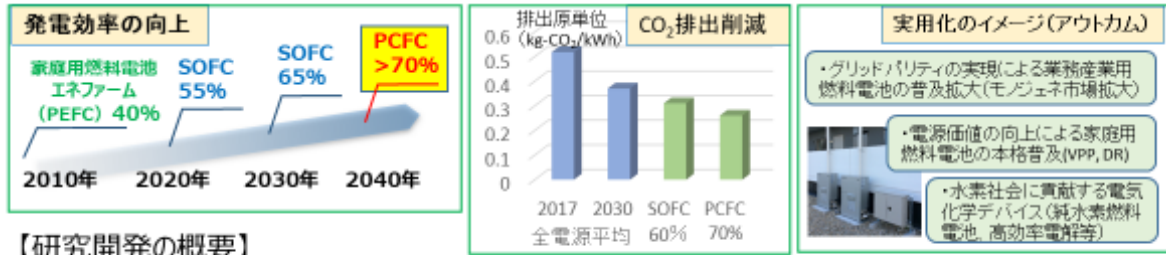


【研究開発の概要】

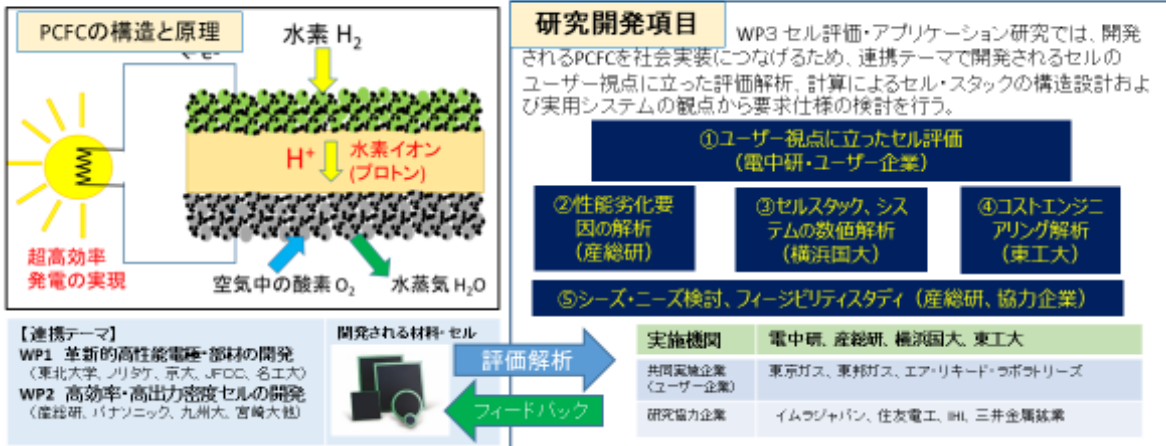


SO03 超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発 (WP3 セル評価・アプリケーション研究)

【研究開発の目標】 水素社会の実現と定置用燃料電池の本格的普及拡大を目指して発電効率70%を見通す画期的な「プロトン伝導セラミック燃料電池 (PCFC)」の実現に取り組む。



【研究開発の概要】



SO04 固体酸化物形燃料電池強靱化技術の開発

【研究開発の目標】

固体酸化物形燃料電池(SOFC)の起動時間の短縮化を実現するため、急速起動停止を含めた出力変動が容易な強靱性セルを開発する。具体的には、「開回路電圧改善」、「出力密度向上」、「低温作動化」、「急速起動停止特性向上」の各課題に取り組む。

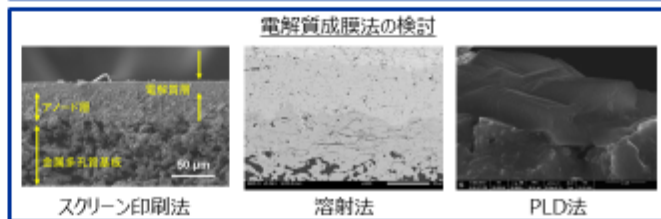
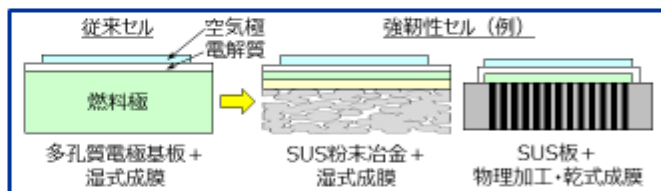
【想定されるアウトカム】

日間起動停止(DSS)運転によるピークカット電源、定置用以外への用途拡大、低コスト化による飛躍的普及拡大

【研究開発の概要】

スクリーン印刷等の湿式成膜法や溶射、PLD等の乾式成膜法を確立するとともに、電極性能を向上させるための低温焼結、電極微構造制御、電解質/電極界面制御等について検討し、急速起動に耐える強靱性セルを開発する。

目標	2022年6月	2024年度末
開回路電圧	従来電解質を用いて理論起電力と同等 (約1.1V)	新規電解質を用いて理論起電力と同等 (約1.1V)
出力密度	1.0W/cm ²	0.6W/cm ²
作動温度	700~750℃	600~650℃
急速起動特性	熱容量低減セル・スタック設計手法、健全性評価手法確立	急速起動に耐える強靱性セルの開発・実証



S005 研究テーマ名

固体酸化物形燃料電池スタックの高度評価・解析技術の研究開発

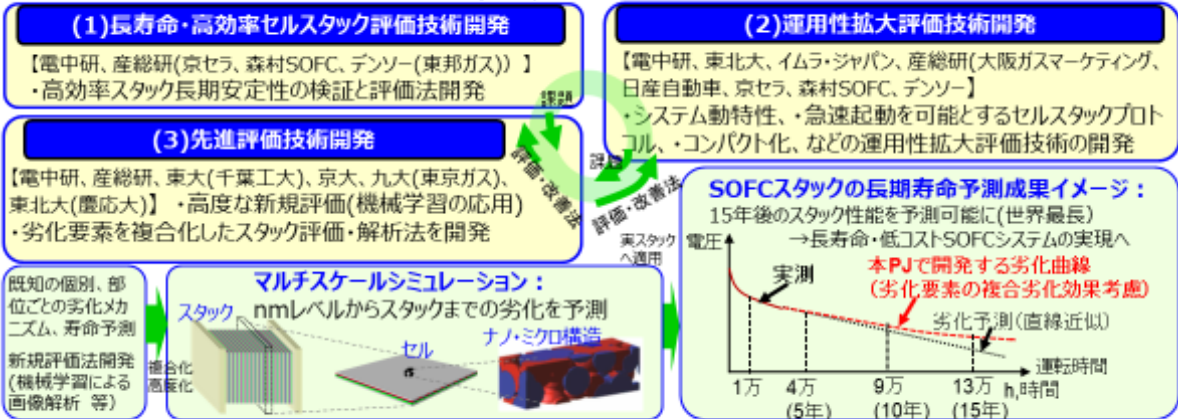
概要

固体酸化物形燃料電池(SOFC)の普及・適用性拡大に必要な、高度なスタック評価・解析技術を確立する。具体的には、SOFCスタックの13万時間超の長期寿命・運用、65%LHVを超える高効率運転、再生可能エネルギー変動電力の調整力応用としての負荷変動や急速起動など、スタック運用限界に近い状態を的確に評価し、長期寿命や運用性限界を予測する高度な評価・解析技術を開発・提供する。また、寿命予測や劣化診断ができる高度な評価技術を開発しSOFCの適用性拡大を図るとともに、本格普及を促進する。

研究開発項目として、次の3つのテーマを設定し、産学官連携で研究開発を推進する：

(1)高効率・長寿命スタック評価技術開発、(2)運用性拡大評価技術開発、(3)先進評価技術開発

本プロジェクトの3テーマ概要と連携・取組イメージ



IP01：高分子形と酸化物形の技術融合による電極一体型次世代PEFCの創製（九州大学）

【研究開発の目標】

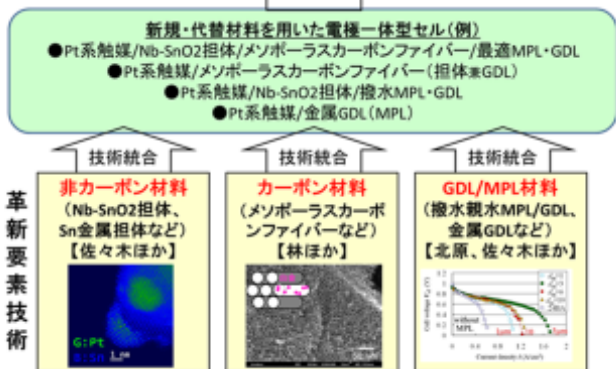
2021年度末に耐久性が材料レベルで期待される電極一体型(チタン系、スズ系、カーボン系)のプロトタイプセル作製とボタンセルレベルでの性能評価で、市販Pt/C標準触媒と市販MPL/GDLを用いたセルと同等以上の性能(電流電圧特性)を新規材料利用で具現化する。開発材料・セルをプラットフォーム機能でも評価し、再現性や客観性を相互確認する。

2024年度末までには高耐久性・高ロバスト性(6万回の起動停止サイクル耐久性など)を示せる電極一体型PEFCのプロトタイプセルを試作・開発し、2030年ごろの産業界目標である電流密度0.2A/cm²の定常走行でセル電圧0.84Vと、電流密度3A/cm²での加速走行でセル電圧0.7Vの出力の実現に資する革新技术コンセプトを構築する。非カーボン系とカーボン系の材料・セルについて知見を体系化し、更なる技術開発への指針を示す。これらの目標達成により、乗用車のみならず、更なる高耐久化が欠かせない商用車(トラック、バス、船舶)などへの用途拡大と本格普及につなげる。

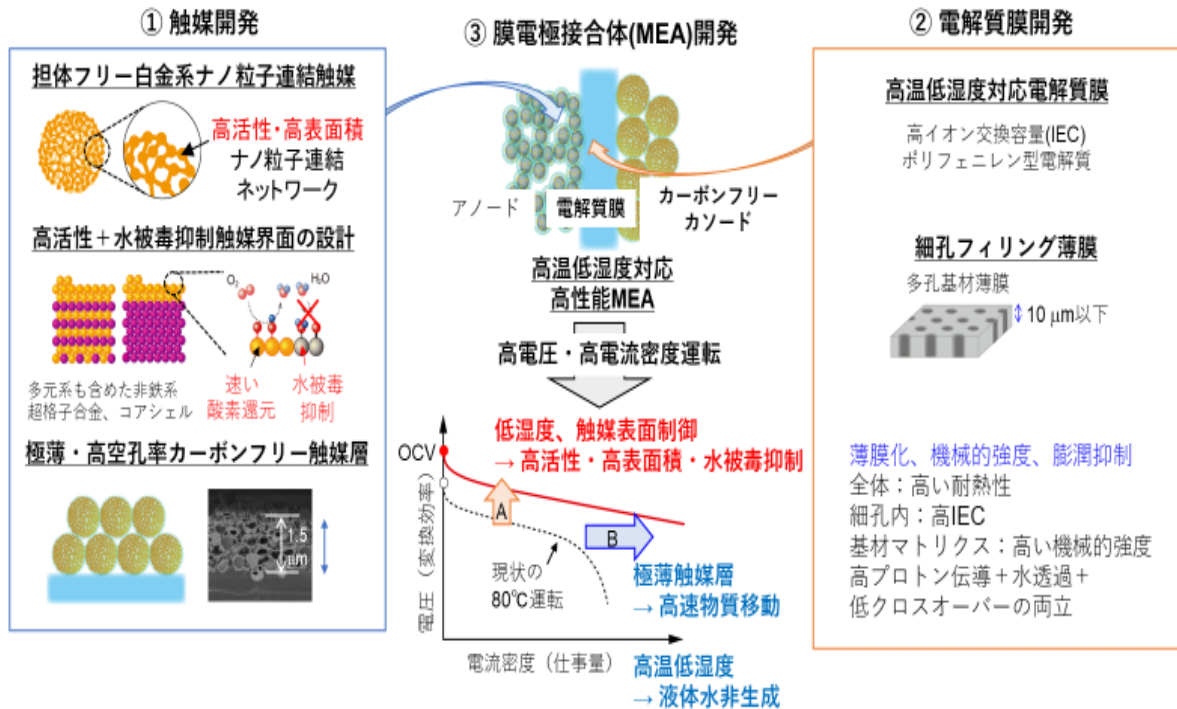
- 【最終達成目標】電極触媒層、マイクロポーラス層、ガス拡散層に分かれているPEFC電極開発を一体で進め、非カーボン系やカーボン系の革新材料を駆使して
- 電流密度0.2A/cm²の定常走行でセル電圧0.84V達成
 - 電流密度3A/cm²での加速走行でセル電圧0.7V達成
 - 起動停止サイクル6万回耐久性達成
 - 負荷変動サイクル40万回耐久性達成

【研究開発の概要】

本研究では、PEFCとSOFCの両方の研究経験・知見を活かして、電極触媒層、マイクロポーラス層、ガス拡散層に分かれているPEFC電極開発を一体で進め、安定性に優れる酸化物や金属を電極材料などに多用して、次世代セルを作製し、酸化物形と高分子形の燃料電池技術を融合させる。将来の革新的なセル・スタック設計に発展させられる新規・代替材料を用いた電極一体型セルをサイエンスに基づいて開発し、それらのポテンシャルと技術課題を示す。



IP02：カーボンフリー白金合金ナノ粒子連結触媒とポリフェニレン系細孔フィリング電解質膜の開発および高電圧・高出力MEAへの展開



高活性・極薄担体フリー触媒層と高温低湿度対応電解質膜による高性能MEAの開発

IP03 広温湿度作動PEFCを実現する先端的材料コンセプトの創出

【山梨大学、日本化学産業、(東レリサーチ・共同実施)】

【研究開発の概要】

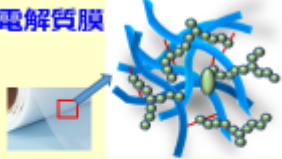
2030年以降の更なる燃料電池システムの低コスト、高性能、高耐久に資する水素関連技術の高度化に向けて、材料技術のさらなる革新及び技術成立性を提示し、2040年以降に目指すべき担体・触媒・電解質による過電圧低減と耐久性向上を図る。現状より高い温度にてPEFCを作動させる際の課題抽出及び産業界との綿密な議論を行い、新たな担体・触媒・電解質材料に求める性能の明確化・設計コンセプトの確立を図る。本研究成果は2040年以降の燃料電池自動車の飛躍的普及及び自動車以外への用途拡大に貢献し、自家用車及び一段高い耐久性と出力を必要とする商用車、鉄道や船舶、定置型等へ市場拡大を図る。

【研究開発の目標】

- **中間目標 (2022年6月)**
 - ・ 広温湿度範囲で作動するPEFCに寄与する主要メカニズム及び劣化のメカニズムを検討する。
 - ・ 上記温湿度領域にて、現状比6倍の耐久性と1.5倍の活性を持つ電極触媒・1.2倍のプロトン伝導度とガスバリア性を持つ電解質を設計する。
 - ・ 広温湿度作動PEFCの課題抽出を行い、産業界と議論を行う。
- **最終目標 (2024年度)**
 - ・ 現状比10倍の耐久性と2.5倍以上の活性を有する電極触媒・2倍のプロトン伝導度とガスバリア性を持つ電解質を設計・コンセプトを確立させる。
 - ・ 産業界と協力し、上記機能の目標の明確化を図る。

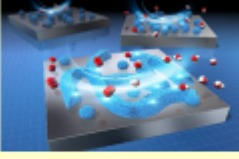
研究内容

新電解質膜



Cross-linking コンポジット膜
 酸化物/電解質界面の不凍水中間水を積極利用
 膜の強度/柔軟性をナノ粒子との電解質膜との架橋で調整

新触媒



セラミックス・ナノワイヤ触媒
 酸化物/触媒の結晶界面を原子レベルで制御
 酸化物の特徴的な表面物性を積極活用

PJ運営

アカデミアの智慧
 広温湿度作動課題抽出
 材料設計メカニズム解明

↓

産業界との連携・協議
 産業界の要望

2040年に向けた方向性の早期明確化

成果



燃料電池の汎用性拡大
 水素利活用の増加
 水素社会実現に貢献

2040年
 2030年
 現在

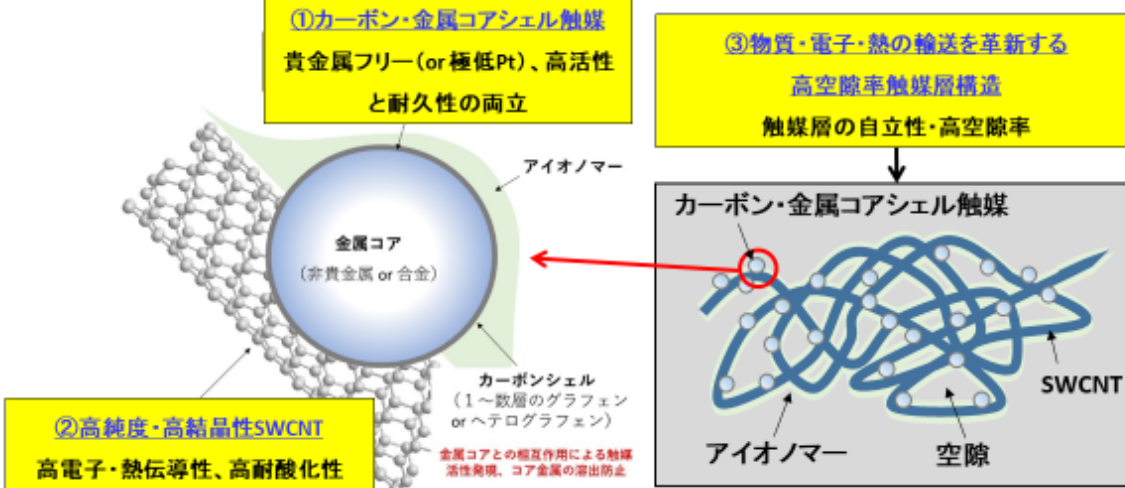
高耐久
 高出力

IP04：高性能・高耐久・低コストMEAに向けた先端要素技術の研究開発

【研究開発の目標】 PEFCの超低コスト化を狙い、先端要素技術開発と原理解明を行う

- (1) 将来の超低コスト化に向けた3つの要素技術の研究開発、およびそれらのMEAとして統合検証：①貴金属フリーもしくは極少量貴金属量で高活性・高耐久なカーボン・金属コアシェル触媒（カソード）、②高電子伝導性・高耐酸化性の高純度・高結晶性カーボンナノチューブ（SWCNT）触媒担体、③高出力化可能な高空隙率触媒層構造
- (2) 原理原則に基づくNEDO2040年目標に至る道筋の提示

【研究開発の概要】



①カーボン・金属コアシェル触媒
 貴金属フリー（or 極低Pt）、高活性と耐久性の両立

②高純度・高結晶性SWCNT
 高電子・熱伝導性、高耐酸化性

③物質・電子・熱の輸送を革新する
 高空隙率触媒層構造
 触媒層の自立性・高空隙率

カーボン・金属コアシェル触媒

SWCNT

空隙

アイオノマー

金属コア (非貴金属 or 合金)

カーボンシェル (1~数層のグラフェン or ヘテログラフェン)

金属コアとの相互作用による触媒活性発現、コア金属の露出防止

IP05：超高電位を目指した酸化物カソードの開発・横浜国立大学・東京工科大学・大阪大学・熊本県産業技術センター(再委託)
超機能発現のための表面/界面解析と制御

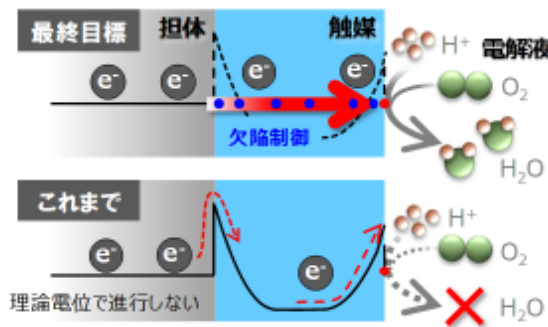
【研究開発の目標】

- ①表面・界面の解析・制御・最適化により、2025年に開回路で理論電位を達成しうる超高電位酸化物触媒を実現する。これにより、貴金属触媒では到達できない高い電位での燃料電池作動の可能性が示される。
- ②有効に機能する触媒酸化物の表面積を評価・解析し、触媒作製チームと連携して、有効表面積と活性点密度を増加させ、電流密度の増大を可能にする設計指を得る。これにより、酸化物触媒での燃料電池発電電流の値を着実に増大させるための基礎を構築する。

【研究開発の概要】

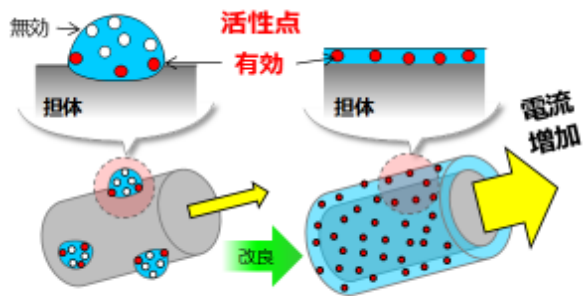
① 超高電位

原子・分子レベルの精密な解析と物理化学的な理解を通じて、表面・界面を制御しエネルギーロスとなっていた障壁の除去を可能にする。



② 電流増大

分子設計技術を駆使し、有効な酸化物表面積を定量し、触媒の活性点密度を増大に結び付ける。



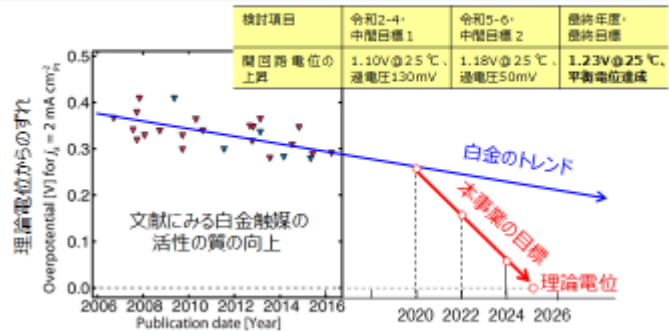
IP06：超高電位を目指した酸化物カソードの開発・理論起電力達成のための触媒合成

【研究開発の目標】

固体高分子形燃料電池(PEFC)の2030年以降の自立的普及拡大に資する高効率、高耐久、低コストの燃料電池システムを実現するために、飛躍的に高い開回路電位とORR電流値をもつ酸化物カソード触媒を合成する。

【研究開発の概要】

スパッタリング法、金属錯体架橋高分子合成法、量子ビーム、放射線反応場、液相プロセスを用いた低次元構造制御、酸化物触媒/炭素担体の構造制御など様々な手法を駆使し触媒開発を行う。「超高電位を目指した酸化物カソードの開発・超機能発現のための表面・界面解析と制御」および「超高電位を目指した酸化物カソードの開発・先端計測と理論解析による触媒能発現機構の解明」のグループと連携し実際の触媒材料の開発を行う。



IP07：超高電位を目指した酸化物カソードの開発・ 先端計測と理論解析による触媒能発現機構の解明

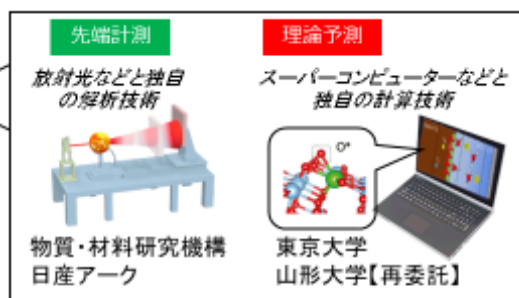
【研究開発の目標】

- 多様な構造を有する酸化物は貴金属触媒を凌駕する**理想的な触媒活性サイト**を形成する可能性が理論予測されているものの、現実の触媒の理解は充分ではなく、性能支配因子が不明である。
- 本研究開発では、**先端計測**と**理論解析**により、性能支配因子を理解し、理想的な活性サイトの設計図や合成法を提案することを目標とする。
- 目標達成により、どうすれば活性を上げられるかが明確になる。

【研究開発の概要】

- 先端計測**を用いた合成された触媒の解析
- 理論解析**に基づく理想的な触媒の提案

何をどうすれば性能が上がるのかを理解
(設計図や合成のレシピを提案)



我が国が誇る最先端計測と理論解析を連携し、サイエンスに根差した触媒設計を可能にする。それにより、理想的な触媒活性サイトの実現に繋げる。

IP08：十四員環型活性点の高活性化・高密度化による革新的非白金触媒の研究開発

【研究開発の目標】

本研究では、燃料電池の製造コストを削減するために、電極で用いられている白金触媒を代替できる、新規触媒材料の開発を行います。この新規触媒の開発に成功すれば、燃料電池自動車やエネファームがこれまで以上に普及し、水素エネルギーを活用する社会（水素社会）の実現に大きく貢献します。

【研究開発の概要】

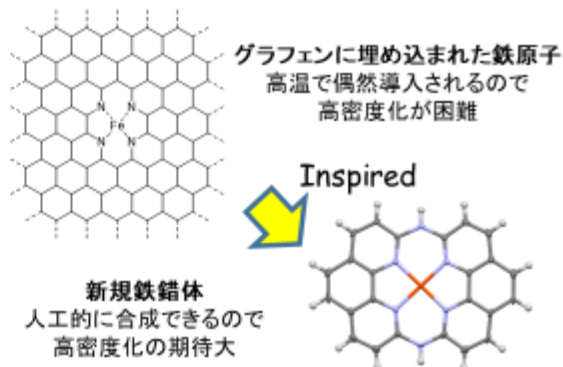
燃料電池：水素エネルギー社会に
必須のエネルギー変換デバイス



燃料電池自動車 MIRAI

燃料電池のコストを下げるためには、
触媒の非貴金属化が必要

高価な白金を全く用いない新規触媒の開発

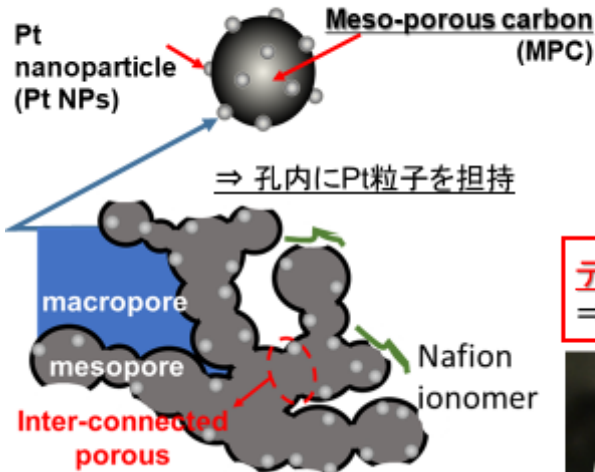


IP09: PEFC用イオン液体含侵型Pt/MPC高活性・高耐久カソード触媒合成技術の研究開発の研究開発事業

【研究開発の目標】

本研究ではイオン液体含侵Pt/MPC (Pt/MPC-SCILL)カソード触媒を開発する。2022年3月末までに常温で市販Pt/C触媒の2倍のORR質量活性を達成し、最終目標として2025年3月末までに、120°Cの高温作動条件下で質量活性を5倍引き上げ、かつ80%の高い質量活性維持率を有するPt/MPC-SCILL触媒に必要なイオン液体の技術開発を行う。

【研究開発の概要】



＜MPC担体メリット＞

- 黒鉛化度が高く、**腐食耐性が高い**。
- ⇒ Ketjen® 程度の高比表面積を持つ。
- ⇔ メソ孔径の**デザインが可能**
- ⇒ **Nafion®被毒の低減**

Pt/MPC触媒に注目

本提案

テラーメイドイオン液体をメソ孔内へ含侵
⇒ Pt/MPCの**高活性化、高耐久化**を目指す。



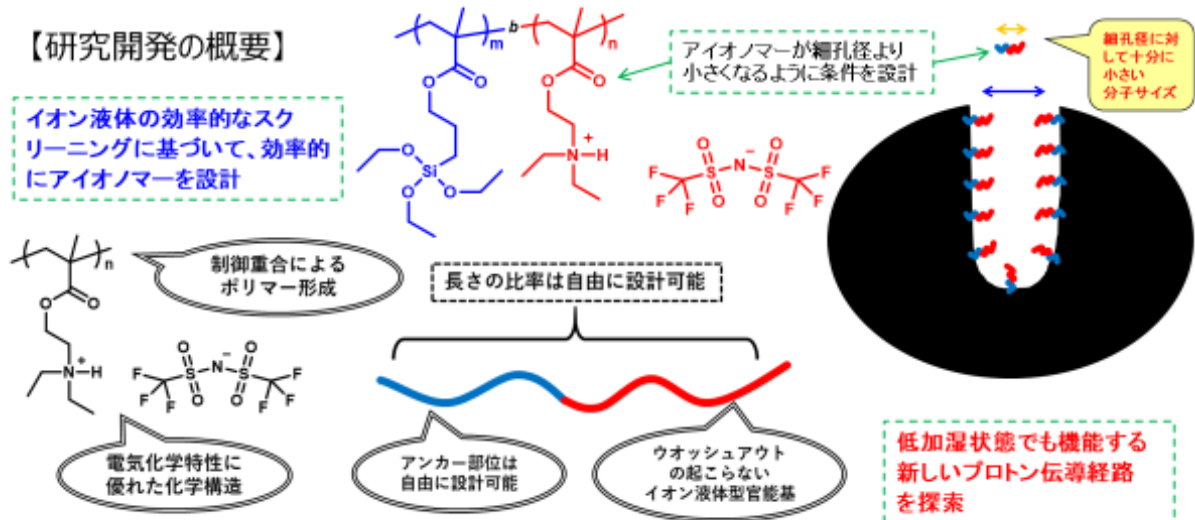
- ⇒ 新規ORR用イオン液体開発
- ・イオン液体の母構造
- ・高活性化・高耐久化を実現する官能基の探索

IP10: イオン液体構造を有するアイオノマーによる革新的低白金技術の研究開発

【研究開発の目標】

- ・低加湿状態（20%Rh）においても性能低下の起きないメソポラスカーボン触媒を実現するためのアイオノマー材料を開発します
- ・100°C以上の高温条件下において、加湿が十分に出来ない状況でも高い活性を発現する電極設計が可能となり、加湿器やラジエーターを必要としない、小型の燃料電池駆動モビリティの実現に貢献します

【研究開発の概要】

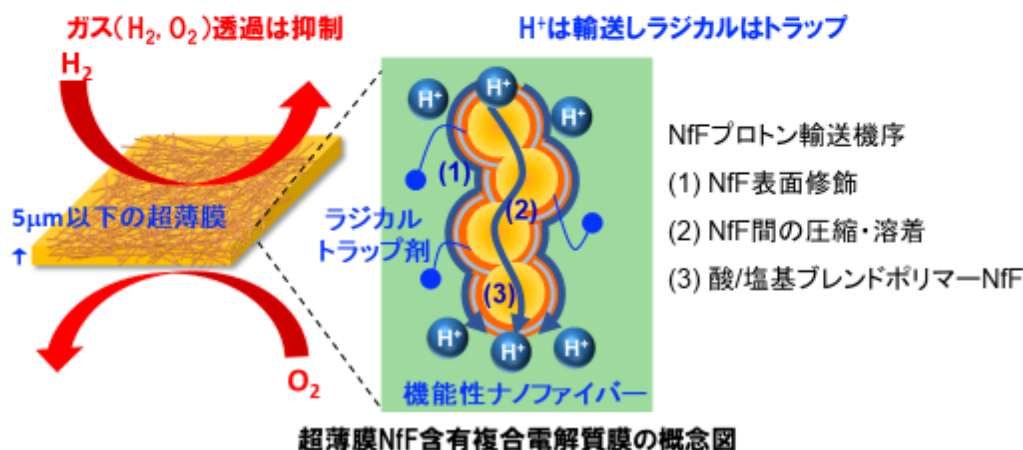


IP11：「機能性ナノファイバーフレームワークを基本骨格とする低コスト・高耐久性電解質複合膜の研究開発」

【研究開発の目標】

本研究開発テーマは、プロトン伝導性に加え、ガスバリア性、膜強度さらにはラジカルエンチ能を有する機能性ナノファイバーフレーム（NFF）を合成、それを基本骨格としてそのフレームにフッ素系高分子形電解質、炭化水素系高分子形電解質などの高分子マトリックスを組み込んだ新規NFF含有電解質複合膜を開発する。そして、その電解質膜で2030年燃料電池ロードマップ目標値の達成と、超薄膜化(5 μm 以下)とスリットダイコーター方式を用いた製造法による低コスト化、ラジカルエンチ剤による電解質膜の高耐久性を目指す。

【研究開発の概要】



IP12

150 $^{\circ}\text{C}$ 運転可能な高耐久超薄コンジット電解質膜/電極接合体の研究開発

【研究開発の目標】

既存技術延長線上にない、低温から無水150 $^{\circ}\text{C}$ 以上でも作動する固体高分子形燃料電池用の電解質膜/電極接合体（MEA）を開発し、**産業界の2040年目標：出力密度 9 kW/Lの実現に貢献する。**

【研究開発の概要】

■ 高耐久極薄コンジット電解質膜

スルホン酸基を導入したPBI (ホバソイミダソール)

リン酸基固定無機ナノ粒子 補強材ファイバー

- PBIと無機ナノ粒子にプロトン酸基を固定化して、酸浸出防止を実現！
- 補強材ファイバーの利用で膜厚 10 μm 以下

■ 膜/電極接合体(MEA)と三相界面

アイオノマーによる膜厚と少量のリン酸ドープ
 還元型酸化グラフェン (rGO) PI@TiO₂コアシェル触媒

または
 アイオノマーによる膜厚と少量のリン酸ドープ
 カーボンナノチューブ (CNT) PI@TiO₂コアシェル触媒

ガス拡散層 セパレーター 三相界面 (触媒層) 電解質膜

R = $-(\text{CH}_2)_n-$
 $\text{R} = \begin{matrix} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{S}-\text{OH} \\ \parallel \\ \text{O} \end{matrix}$ or $\begin{matrix} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{P}-\text{OH} \\ \parallel \\ \text{OH} \end{matrix}$
 S-PBI P-PBI
 アイオノマーの化学構造

- 三相界面の構造制御を行って、高耐久超薄MEA構築

IP13 研究開発テーマ名：高伝導無水系電解質膜の研究開発

(名古屋大学 大学院工学研究科 有機・高分子化学専攻 野田篤史)

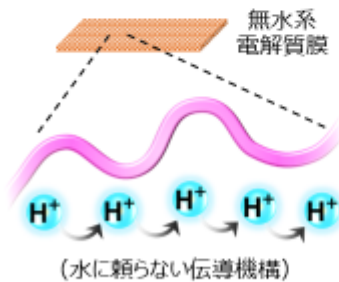
【研究開発の目標】

固体高分子形燃料電池（PEFC）の普及に向けて、その低コスト化が求められている。もし100℃以上の高温・低加湿下で0.1 S/cm程度の高プロトン伝導率を示す高分子電解質膜を開発できれば、用いる触媒量を低減させることができ、低コスト化につなげることができる。

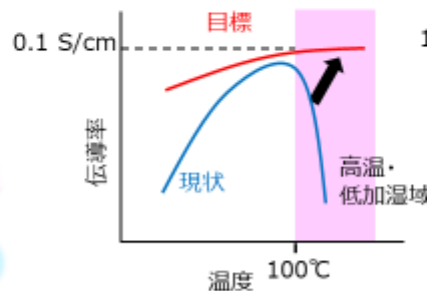
本開発テーマでは、120～150℃程度の温度域まで膜形状を維持し、かつ低加湿下で0.1 S/cm程度の高プロトン伝導率を示す無水系高分子電解質膜を創製する。さらに膜/電極接合体として発電試験を行うことで、現状の加湿系PEFCで実現する出力密度（～1 W/cm²）を100℃以上の高温、低加湿下で達成する。

【研究開発の概要】

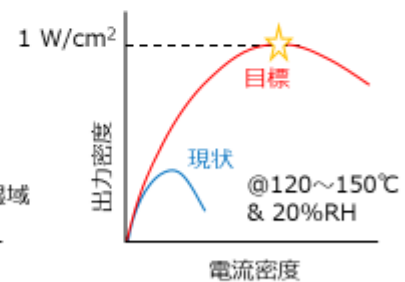
目指す膜：



高温（120～150℃）で利用可能な無水系高分子電解質膜を開発



目標：高プロトン伝導率（～0.1 S/cm）
@高温（120～150℃）、低加湿（0～20%RH）



目標：出力密度（～1 W/cm²）
@高温（120～150℃）、低加湿（0～20%RH）

IP14 多機能OCTを用いた金属異物非接触マイクロ断層検出システムの開発

【研究開発の目標】

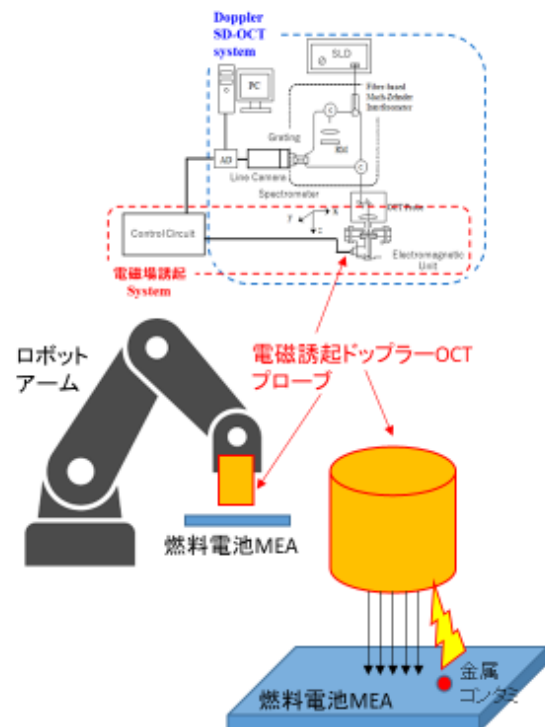
燃料電池自動車における膜電極接合体

（MEA）の生産プロセスでは金属コンタミが比較的高い頻度で発生する。これは燃料電池の性能を著しく低下させ、その品質保証の根幹に関わるため、金属コンタミの検出を低コスト・高効率に実現し、生産ライン上での実装を目標とする。これにより、世界に先駆けて市場導入を開始した我が国の燃料電池技術の競争力を強化し、世界市場において確固たる地位を確立することが可能となる。

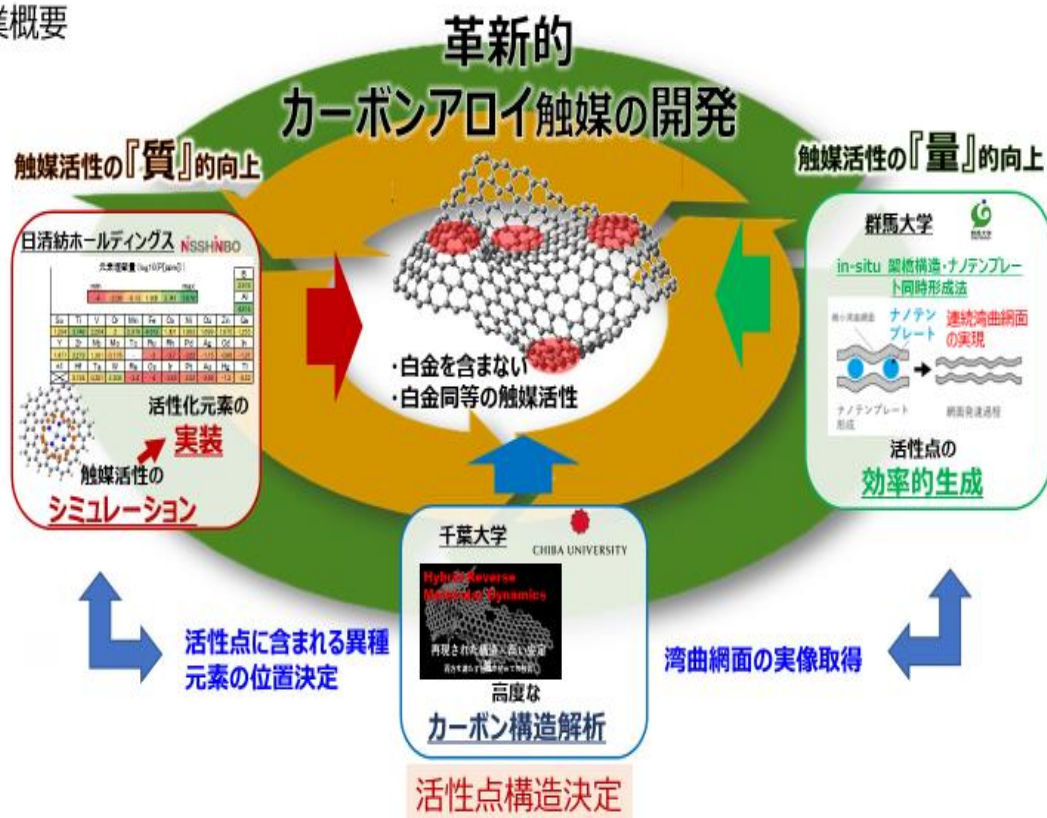
【研究開発の概要】

本研究では、光干渉断層可視化装置

（OCT）に微小速度検出機能を備え、電磁場誘起ユニットとハイブリッド化した電磁誘起ドップラーOCTを開発する。MEAに電磁場を照射し、MEAからの干渉信号の応答特性から金属異物の存在を非接触マイクロ断層可視化検出するシステムを構築する。



IP15 「湾曲グラファイト網面」をプラットフォームとする革新的カーボンアロイPEFCカソード触媒の研究開発
事業概要



IP16 金属酵素インスパイアド非白金電極触媒の研究開発

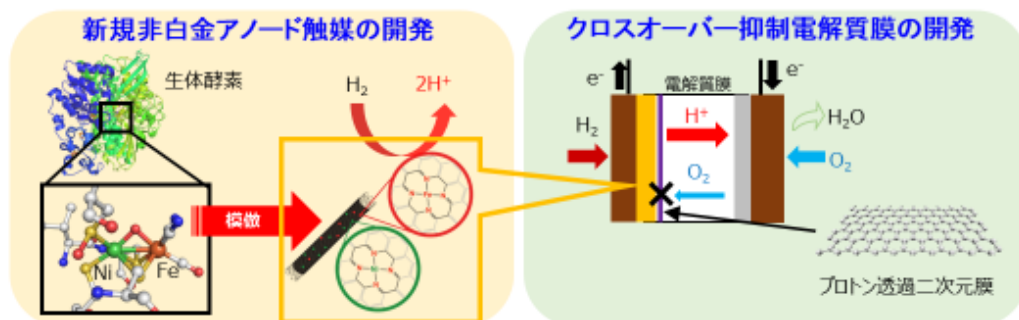
【研究開発の目標】

固体高分子形燃料電池(PEFC)のコスト削減のためにもアノードおよびカソード触媒のPt使用量の低減化が求められている。カソード触媒の非白金化に関する研究は数多く行われているが、非白金アノード触媒の開発例は極めて少ない。本研究では、金属酵素インスパイアドアプローチによる新規非白金アノード触媒を開発する。

また、PEFCの電解質膜の寿命向上によるコスト削減が求められているが、電解質膜を分解する活性酸素の生成を抑制することが課題となっている。本研究では、プロトンのみを透過する二次元膜を電解質膜に付与することで、活性酸素の生成源となっているカソードからの酸素クロスオーバーを根本的に抑制する、クロスオーバー抑制電解質膜の開発を行う。

これにより白金を用いない高耐久電解質膜からなる低コスト燃料電池の開発に貢献する。

【研究開発の概要】



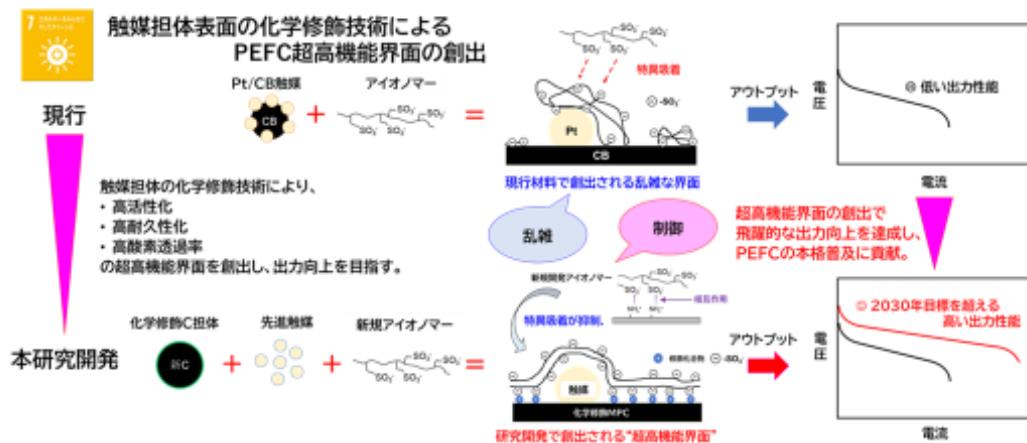
IP17 触媒担体表面の化学修飾技術によるPEFC超高機能界面の創出

【研究開発の目標】

産業界からのニーズが高く、共通課題である固体高分子形燃料電池（PEFC）の反応場の“三相界面”を、電極触媒担体に化学修飾をして、三相界面の構造制御機能を付与して超高機能界面を創出し、PEFCの出力性能を飛躍的に向上させる。

【研究開発の概要】

電極触媒担体を含む窒素化合物で化学修飾して、アイオノマーと組み合わせ、高触媒活性、高酸素透過率および高耐久の超高機能界面を創出する。本研究の成果は他のプロジェクトの研究成果と組み合わせ可能であり、融合・連携でPEFCの飛躍的高性能化と本格普及の加速に貢献する。



IP18 ~1-nm白金系触媒の構造・組成制御に基づくPEFCカソード触媒の高活性化

【研究開発の目標】

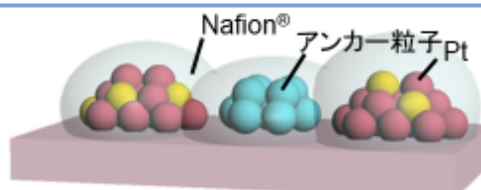
実用条件において、市販の白金電極触媒と比べて、1/360の白金使用量でそれらと同等のORR活性を示す白金カソード触媒の創出

【研究開発の概要】

白金及び白金系クラスター

活性向上のポテンシャル

- | | |
|---|--------------|
| 1) 原子精度でのサイズ選択的合成法の確立
(サイズ収束法の適用、収率の向上、構成原子数の自在制御、...) | 最大6倍程度 |
| 2) 高活性白金原子の高比率での表面露出方法の確立
(構成原子数と活性の相関解明、構成原子数と幾何/電子構造の解明、...) | ×
最大10倍程度 |
| 3) 合金クラスター合成法の確立
(異種金属との合金化の適用、合金割合の制御、構成合金原子数制御...) | ×
最大6倍程度 |
| 4) 凝集抑制方法の確立
(障害物/アンカー粒子の担持、担持量の抑制...) | ×
耐久性向上 |



高活性・高寿命白金系触媒の創出

【研究開発の目標】

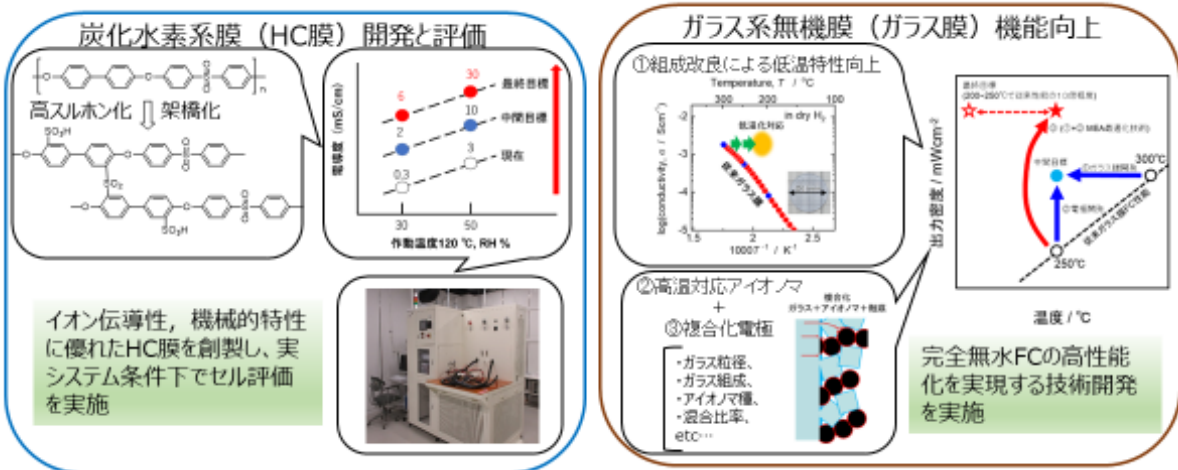
本研究開発は、燃料電池の高効率化、高出力密度化に資する100℃以上での高温運転を可能にするための新規電解質膜の開発を行い、その性能評価を行うものである。

1) 100~120℃の範囲での運転を見据えた炭化水素系膜（HC膜）

2) 200℃以上での運転を視野に入れたガラス系無機膜（ガラス膜）

の開発を産業技術総合研究所（AIST）および物質・材料研究機構（NIMS）の2研究機関が相互に協力しつつ並行して実施する。

【研究開発の概要】



HS01：CFRP製水素タンクのマルチスケール設計・評価解析技術の研究開発

【研究開発の目標】

材料特性や水素タンクの製造条件によるバラツキを反映し、CFRP製水素タンクの残存強度・寿命を予測できる技術基盤を確立します。従来はCFRP製水素タンクの寿命予測が実現できておらず、安全に運用するため、わずかな損傷であっても交換・廃却を必要とし、コストや環境性の問題点を有しています。本研究開発では、CFRP製水素タンクの安全性を保証し、寿命を管理可能なCFRPタンクの標準設計・解析手法の確立を目指します。高い安全性を有する貯蔵システムの開発を行うことで、低コストの燃料電池システムの実現に寄与し、我が国の燃料電池技術の競争力の強化により、燃料電池車の普及につなげます。

【研究開発の概要】

CFRPの材料構成や複雑な破壊モードを考慮可能なマルチスケール解析を援用した解析手法をCFRP水素タンクに適用します。製造上不可避な初期不整を考慮しながら、損傷蓄積による剛性低下を予測し、実試験とシミュレーションを連携させてCFRP製水素タンクの寿命予測技術を構築します。クーポンレベルから要素レベル、実タンクまでの設計・製造・シミュレーションがシームレスにつながる設計解析スキームを構築します。

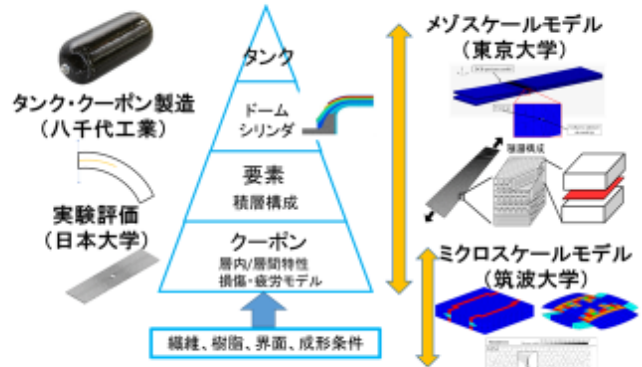


図. 本研究開発で実施するマルチスケール設計・評価解析技術

HS02：低コストと高性能を両立した炭素繊維の研究開発

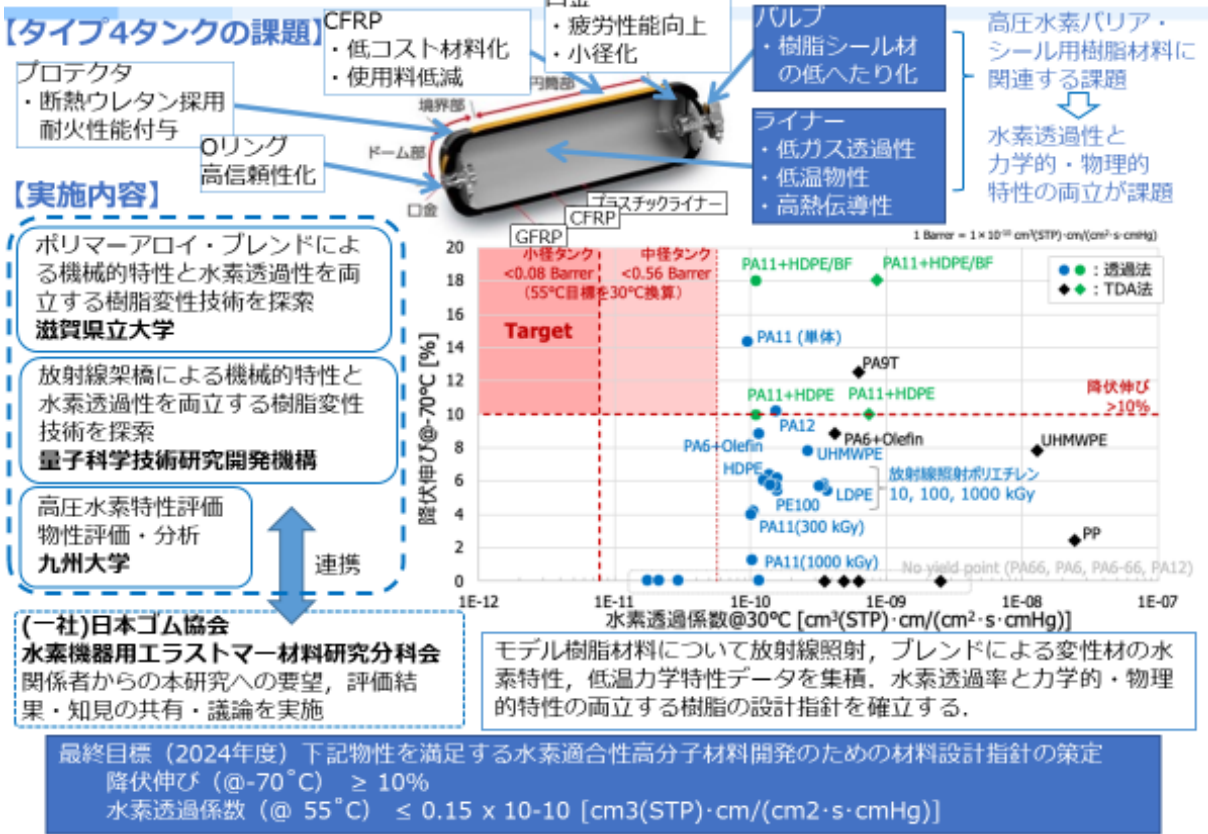
【研究開発の目標】

炭素繊維の低コスト化（すなわち、水素貯蔵タンクの低コスト化）によるFCVの普及への貢献を目的とし、本研究(炭素繊維開発)の最終目標10\$/kgの製造コストで実用化する2030年※に引張弾性率290GPaと強度5.8GPaを実現を目指す。目標達成後には、水素タンク製造コストの大幅削減が見込まれ、副次的効果として炭素繊維低コスト化による二酸化炭素大幅削減も期待できる。

【研究開発の概要】

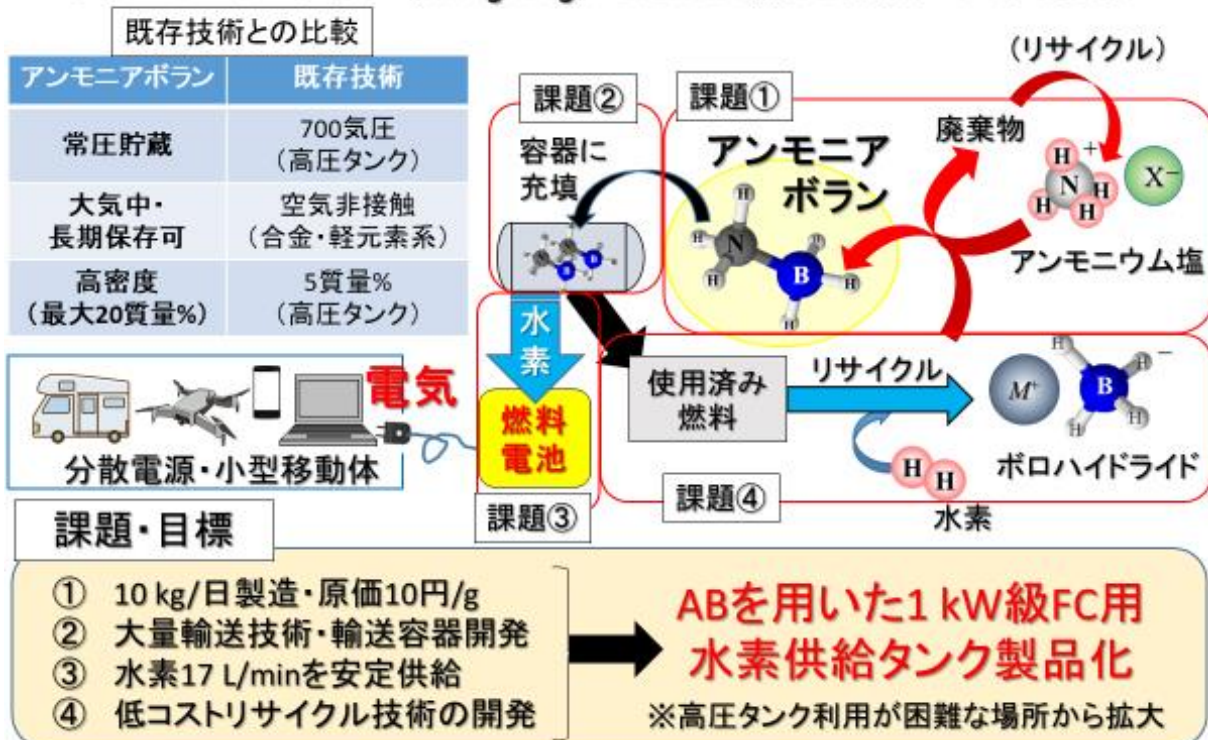


HS03：車載機器用高圧水素適合性高分子材料評価法およびデータベースの確立



HS04：移動式FC用水素源アンモニアボランの社会実装に向けた先端技術開発事業

アンモニアボラン(NH₃BH₃)で1 kW級FCを低コスト発電

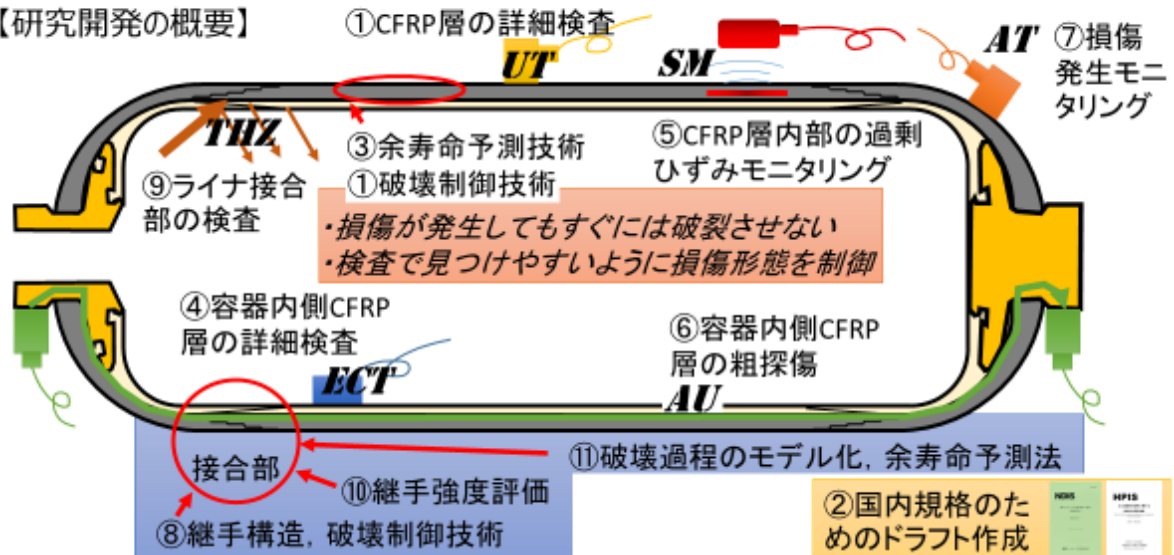


HS05：燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業／水素利用等高度化先端技術開発／革新的低コスト燃料電池自動車用高圧水素容器の健全性を保証するための非破壊検査，オンラインモニタリング，損傷許容技術の開発

【研究開発の目標】

燃料電池自動車用高圧水素貯蔵タンクの低コスト化に資する技術要素の開発を目標とする。具体的には、タンク価格の中で大きなウエイトを占めている炭素繊維使用量を削減可能な接合型容器と損傷許容型容器を実現するための技術要素の開発を目的とする。

【研究開発の概要】



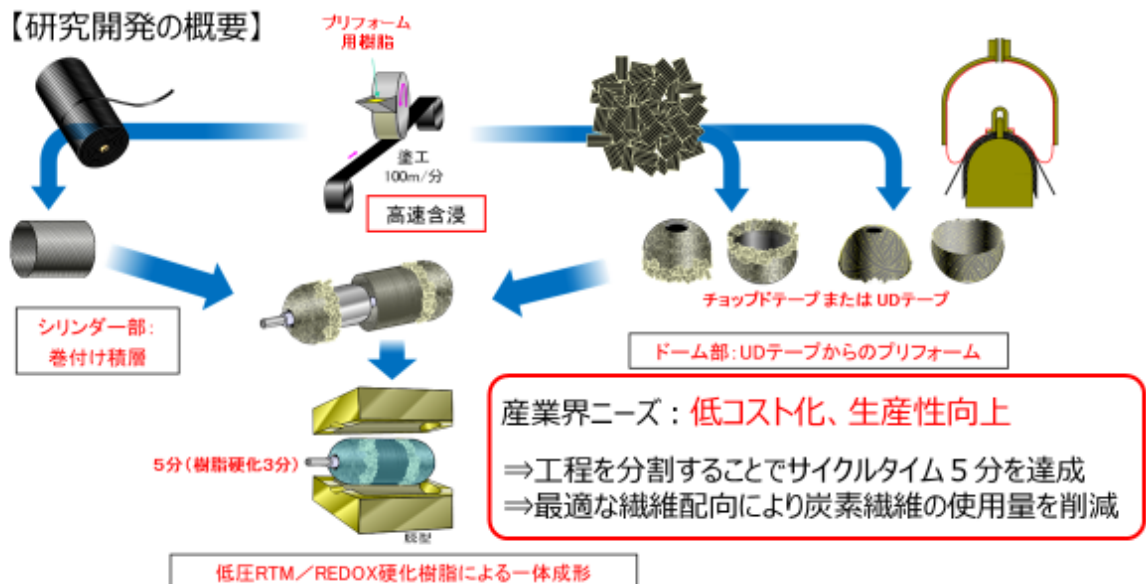
HS06 非FW／分割プリフォームおよび新規樹脂（REDOX硬化型樹脂）による高圧水素タンクの革新的ハイレート製造プロセスの開発

【研究開発の目標】

本開発では、ドーム部とシリンダー部で分割したプリフォームを製造し、低圧RTM 製造プロセスで一体化するプロセスを開発することで、成形時間を5分程度まで大幅に短縮を図る。

また、高速2段階含浸による接着剤無しの一歩化を可能にする、新規低粘度速硬化型REDOX樹脂を開発する。これにより革新的な高生産性と最適な積層設計による炭素繊維の使用量の削減により、大幅なコストダウンを実現する。

【研究開発の概要】



HS07: 水素貯蔵効率向上に向けた水素タンクの研究開発

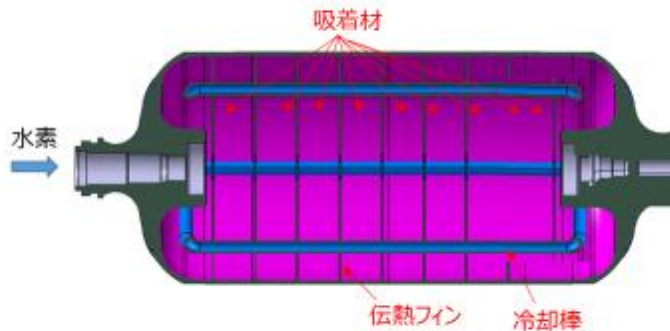
豊田合成株式会社、株式会社アツミテック

【研究開発の目標】

- ・ラボでの水素タンクの貯蔵性能、および温度制御評価により、水素タンクの水素貯蔵密度47g/L（圧縮水素比～1.2倍@70MPa）を検証（～22年度）
- ・ラボでの水素タンクの貯蔵性能、および耐久品質評価により、水素タンクの水素貯蔵密度59g/L（圧縮水素比～1.5倍@70MPa）を実証（～24年度）

【研究開発の概要】

概要：水素吸着材の性能向上と吸着材を使いこなすタンク構造検討



吸着材のポイント（アツミテック）

- ・吸着材性能向上
- ・比表面積向上
- ・高密度化
- ・細孔径分布改善

タンクのポイント（豊田合成）

- ・冷却構造
- ・耐圧強度・シール性
- ・吸着材充填率

HS08

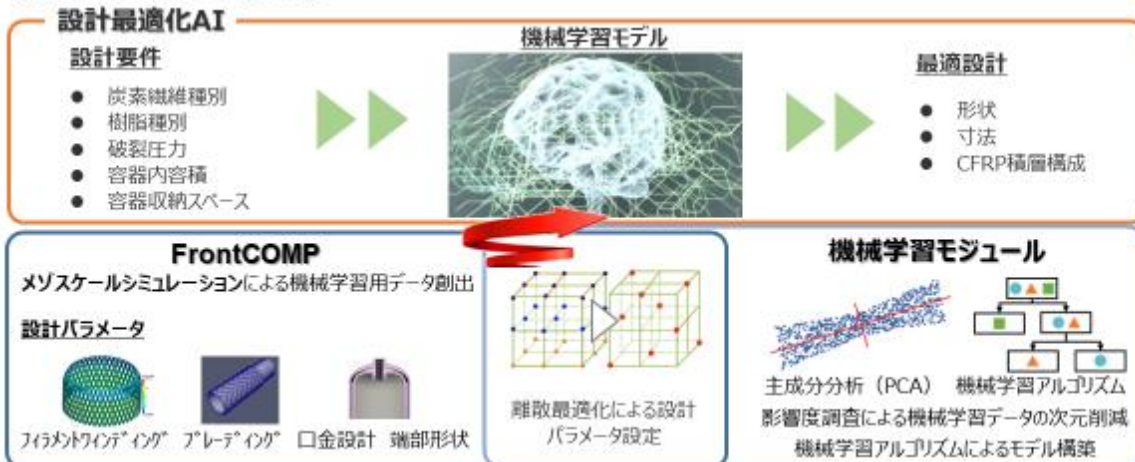
機械学習を用いた高圧水素複合容器の最適設計技術に関する理論検討及び実証研究

【研究開発の目標】

高度なシミュレーション手法と機械学習を用いて、高圧水素容器の設定破裂圧力に対し最適な設計パラメータを導出するシステムを開発する。製造誤差や材料強度のばらつきを不確定モデル化して機械学習に取り込み実用性の高いシステムとする。

【研究開発の概要】

正確な破裂圧力の予測が可能なメソスケールズーミング解析により、設計パラメータを適切に変化させて多数の学習データを創出する。それらをもとに設計要件を満たしかつ炭素繊維量を最小化する最適設計を出力する設計最適化AIを構築する。



IS01 可逆動作可能な固体酸化物燃料電池の開発とエネルギー貯蔵システムへの応用

【研究開発の目標】

本研究では、発電と電解を可逆動作可能な低温作動型Solid Oxide Reversible cell(SORC)を、ガスシールの容易な小型円筒型セルについて検討し、SOFCの新しい応用分野になる再生可能エネルギー貯蔵への応用を行う。

【研究開発の概要】

水素をエネルギーキャリアーとして、図1に示すような熱と電気をともに蓄エネするシステムの開発を行う。図2に示すようなガスのシール性に優れた円筒型デザインを採用し、効率よく水素製造と発電を行うことのできる可逆動作型セルの性能の向上を検討する。とくに水素製造と発電の繰り返し安定性の向上を行う。

図2に示す直列2セルの組セル化による作動を確認し、シール材とセル構造を検討した。Ni-YSZ基板へのNiとCeO₂のインフィルトレーションによる修飾を検討し、共インフィルトレーションにより、繰り返し安定性が図3に示すように大きく向上できた。また潜熱蓄熱マイクロカプセルを開発し、熱の平準化を行うセルの構造を提案した。

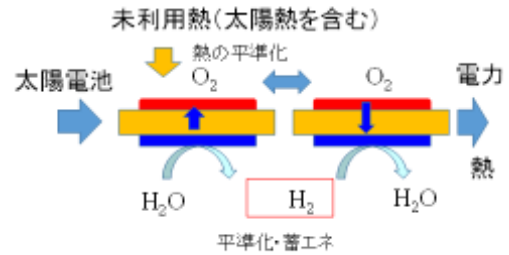


図1 本研究で検討するSORC蓄エネシステムの概念図



図2 開発した小型円筒型2直列SORCセル

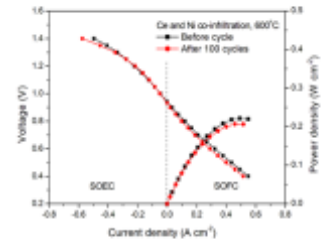


図3 作成したNiとCeO₂をインフィルトレーションしたNi-YSZ基板を用いるセルの初期と100サイクル後のI-V曲線

IS02 高効率・高耐久・可逆作動SOFCの研究開発

【山梨大学、共同実施・(株)ノリタケカンパニーリミテド】

【研究開発の目標】

○中間目標(2022年6月)

- ・協力企業から提供される従来型SOFC単セルの可逆運転での課題を抽出し、課題解決の指針を提示する。
- ・山梨大学開発セルでの水素極安定化現象を定量的に解析し、水素極材料開発指針を明確にする。
- ・可逆作動SOFCの運転環境で水素リーク量が1%以内のガスシール材料を開発し、国内外に技術アピールする。

○中間目標(2023年度)

- ・新規水素極材料を用いたアドバンス型ボタンセルにより可逆SOFC運転し、SOECモードの電流密度0.5 A cm⁻²で初期電圧効率98%以上の見通しを得る。
- ・各種運転モードでのアドバンス型ボタンセルの耐久性を明らかにする。
- ・ナノ材料制御による電極材料の高性能化により、可逆作動SOFCモードで初期1000時間の材料劣化率3%以下の見通しを得る。

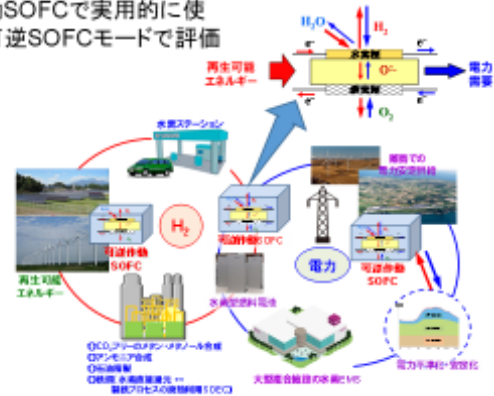
○最終目標(2024年度)

- ・アドバンス型セルの各種運転モードでの劣化機構を解明し、高耐久化運転指針を確立する。
- ・ガスシール材料および高性能水素電極材料の開発を行い、可逆作動SOFCで実用的に使用可能な材料を創出する。電極材料およびガスシール材料について可逆SOFCモードで評価し、初期1000時間の劣化率1%以下の見通しを得る。

【研究開発の概要】

可逆作動SOFCは1つのセルで高効率な発電と、余剰電力を利用した水蒸気電解(SOEC)が可能であり、再生可能電力の平準化や高効率な電解能力を活かしたPower to Gasへの需要も見込まれている。これによりSOFCの稼働率が向上し、コストダウンに貢献できる。国内外でスタック等の試験も進められているが、電解作動時のみに発現するNiロス等による劣化現象が解明されていない。

本研究開発では、基礎に立ち返った耐久性向上と高効率化のコンセプトを確立し、企業と連携して可逆作動SOFCの高効率・高耐久・低コスト化に取り組む。本研究成果はSOFCシステムの市場拡大による低コスト化に貢献する。



プロジェクト名 燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業／水素利用等高度化先端技術開発
事業名 可逆動作型プロトン伝導セラミック燃料電池の新規な健全性評価・解析技術の開発

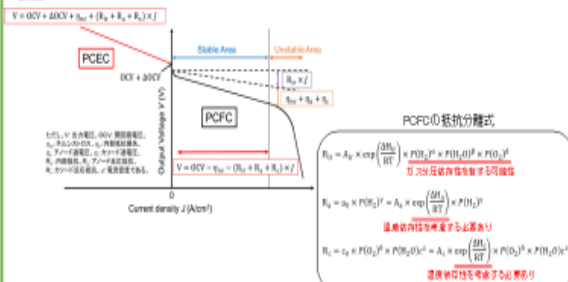
研究開発体制 NEDO委託：日本大学理工学部理工学研究所 /共同実施：パナソニック株式会社 /企業アドバイザー：東京ガス株式会社

研究開発目標と開発項目

- ① ボタンセルを対象としたPCFCを用いたr-SOCセル健全性評価技術の確立
 目標：PCFC/PCECモードの運転データより、燃料極、空気極およびオーミック損の各抵抗成分のガス組成、運転温度に対する依存性を明らかにする。さらにPCFC(発電)/PCEC(電解)時の抵抗分離式を導出し、実測出力電圧を±5mVの精度で予測可能にする
- ② PXRを用いたボタンセル非破壊検査による内部欠陥の検出技術の開発
 目標：燃料極面に特化した単色X線エネルギー（波長）を実験的に検証する。また、X線イメージング画像の抽出と適用範囲を明確化（解析手法の確立）する

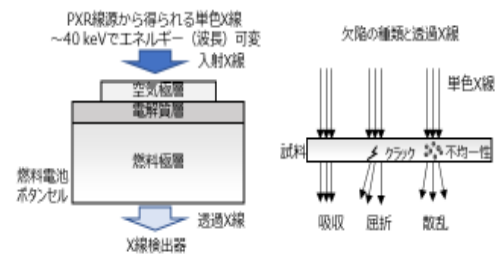
事業内容

① ボタンセルを対象としたPCFCを用いたr-SOCセル健全性評価技術の確立



パナソニック株式会社および東京ガス株式会社製のPCFCボタンセルを対象に様々なガス組成、温度、電流密度条件においてFCモードおよびECモードでの運転試験を行い、それぞれの抵抗分離式を開発し、セル性能決定要因を明らかにする

② PXRを用いたボタンセル非破壊検査による内部欠陥の検出技術の開発



- ・PXR線源からのX線は単色で空間コヒーレントに優れるため、試料の内部欠陥に依存して屈折・散乱した成分を抽出することが可能
- ・X線画像には屈折・散乱によるコントラストという形で内部欠陥の情報が含まれており、欠陥解析が可能
- ・本手法によって劣化した燃料電池ボタンセルの内部欠陥検出を試みる

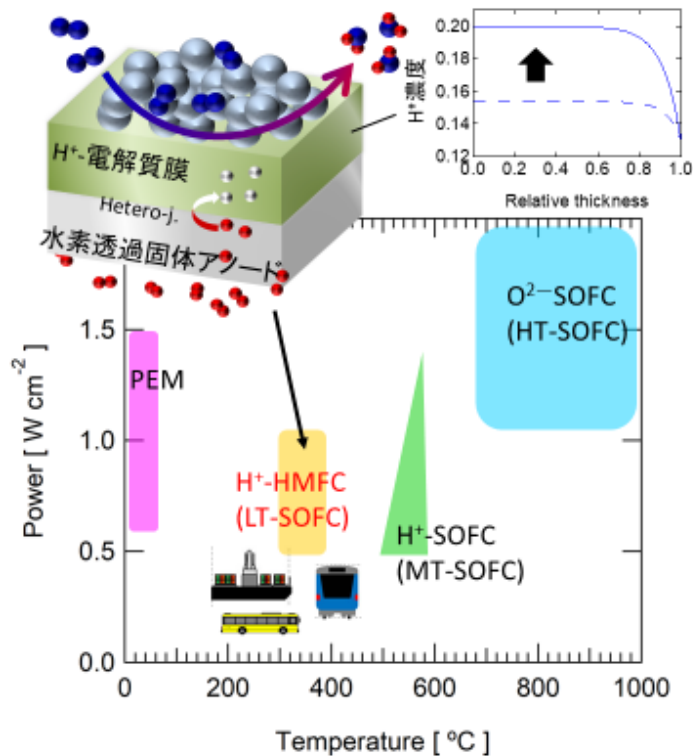
IS04 低温作動水素透過膜支持型燃料電池の研究開発 国立大学法人北海道大学 青木 芳尚

【研究開発の目標】

従来のSOFCの作動温度よりも低い、400℃以下の温度で作動する無機固体燃料電池を創出する。これにより、船舶、電車、バス・トラックなどの用途に必要な熱衝撃性に優れた駆動用SOFCを開発する。

【研究開発の概要】

水素透過固体アノード基板、およびプロトン伝導性酸化物電解質薄膜を特徴とした水素透過膜燃料電池(HMFC)に基づき、そのヘテロ界面で生じるプロトン汲み上げ効果を活用し、低温域でも十分オーム抵抗およびカソード分極抵抗を低減する。これにより単セル換算で400℃以下の温度で0.5 W cm⁻²の出力を達成する。



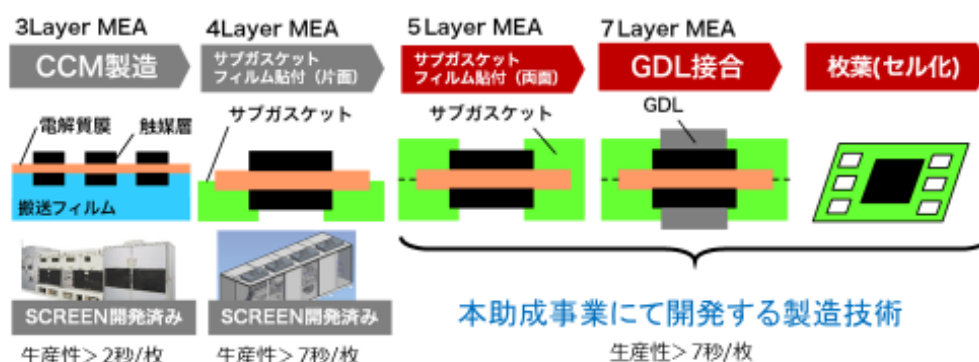
研究開発テーマ名：MU01 MEA高速生産技術および検査技術の開発

【研究開発の目標】

- 燃料電池スタックのCCMからMEAまでの製造工程においてMEAを高速生産する技術を確認する事でMEA製造工程時間を現行の1/10以下とする
- MEA製造工程毎に品質検査を可能とする技術を開発し装置に搭載する
- 本成果により、MEA量産性向上(現状比10倍以上)が可能となり燃料電池スタックの製造コスト低減・普及拡大が実現可能となる

【研究開発の概要】

これまで当社においては、CCMおよび4LayerMEA量産製造装置の開発を実施、本研究では、最終的な量産化技術を目指し7LayerMEA製造技術までを開発する



MU02 高出力燃料電池搭載船の実用化に向けた実証事業

【研究開発の目標】

高出力燃料電池(FC)搭載船舶を開発し、2024年には、水素燃料の供給を伴うFC搭載船の実証運航を目指します。FCを動力とすることによって航海中の温室効果ガス排出量を100%削減することが可能となります。

※事業計画変更により、2022年度1Qにて事業完了

【研究開発の概要】

新たに建造する内航船舶を対象に、船舶バリューチェーン全体(水素機器開発・船体設計および建造・運航・燃料供給)を範囲とし、以下の項目を中心に技術開発を行いました。

1. 船舶向けの高出力FCの実装と運用技術の開発
2. 船内水素燃料供給システム・機器の開発
3. FCと蓄電池を組み合わせたエネルギーマネジメントシステム(EMS)の開発
4. 船陸間水素燃料供給システムの開発
5. 船舶への適用、設計・開発



MU03:低コスト高効率化技術を用いた燃料電池システムによる多用途活用技術開発

【研究開発の目標】

SOFCは高効率な発電システムであることから国策にも掲げられており、一次エネルギー削減やCO2低減のエネルギー機器として期待されている。また、再生可能エネルギーであるPV(太陽光発電)の不安定さをカバーする調整力としても活用できることから、PV普及を後押しすることも期待できるポテンシャルを秘めている。

しかしながら、まだ黎明期とはいえ、思うように業務用市場の拡大が図られていないのが現状である。これはユーザ価格が高く十分な経済性が確保されていないことが第一要因であると考えている。

そこで、SOFCの更なる普及拡大を目的とし、コストダウン&高効率化技術開発を実施することで、更なるCO2削減ができ、且つ経済性も確保した自立普及可能なSOFCシステムを開発、また、その用途拡大により社会貢献する事を目標とする。

アウタム：一次エネルギー削減、CO2低減、PV等の再生可能エネルギー拡大アシストで、COP21等に掲げるCO2削減に貢献(2030年▲26%等)

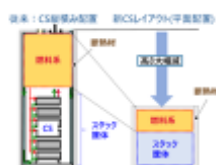
【研究開発の概要】

①コストダウン技術開発

自立普及させるためには、ユーザ取得価格はNEDOロードマップ目標の50万円/kW以下が必要。※台数削減有り

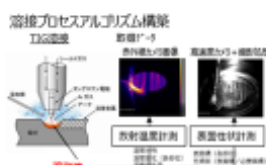
<レイアウト最適化による低コスト化>

モジュールの高さ(体積)を大幅に減少させ、材料コストの低減を図る
→コンポレイアウトと内部熱マネジメント最適化技術開発



<工法革新による低コスト化>

・溶接速度向上：
欠陥を出さない溶接状態の定量化
・検査レス化：
リアルタイムでの溶接健全性把握
→溶接中の視覚検査による
リークレス保証技術開発



②高効率化技術開発

更なる高効率化で、CO2削減効果&経済性向上

<センサ活用による高効率化>

センサを用い燃料利用率の高精度化で発電効率向上
→センサ適合技術/制御技術開発



→リサイクル材の制御による高効率化が可能
※燃料の燃焼も促される、信頼性向上にも寄与

③多用途活用技術開発

新たな視点での用途展開による新市場創出(多用途活用)検討

実証研究により、適用可能性、CO2削減効果等を実証

MU04：用途拡大を見据えた薄型・高効率SOFCシステムの実用化開発

株式会社アイシン
大阪ガスマーケティング株式会社

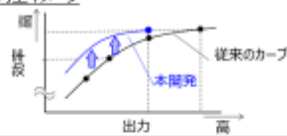
【研究開発の目標】

脱炭素社会に向けたステップとして、低炭素社会でのエネファームの更なる普及を目指す

①既築集合住宅や狭小地設置の開拓として、
潜熱回収型ガス給湯器(エコジョーズ)並みの薄型機器の開発を目指す

②電力・給湯需要が比較的小さい世帯への普及を狙い
低出力でも高い発電効率が得られる効率ブーストアップ技術の開発を目指す

【研究開発の概要】

	新市場への拡大	新たな用途展開
求められるスペック	設置性向上対応(薄型、小型)	低出力帯での効率向上
開発すべき技術	熱マネジメント技術 安定運転制御技術 	左記に加え、希薄燃焼技術 燃料還流式高効率化技術 効率向上イメージ 
期待される効果	<ul style="list-style-type: none"> ・PV設置が難しい既築集合住宅のCO₂削減ソリューション ・地震、台風などの被害発生時のレジリエンス対応可能な世帯の増加 	

○事業概要

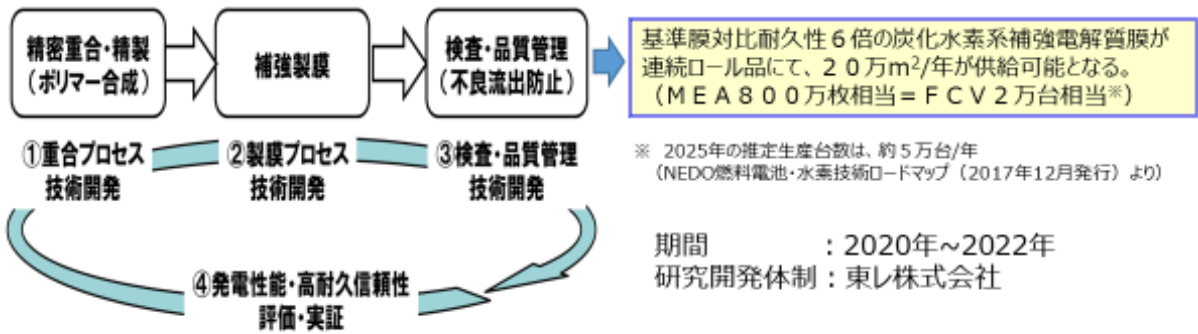
膜電極接合体(MEA)を構成する電解質膜の重合・製膜を主とする製造プロセス技術開発と、検査・品質管理技術開発、発電性能・耐久信頼性の評価・実証を進め、電解質膜20万m²/年以上（MEA800万枚相当）の補強電解質膜を供給可能とする革新的生産技術を開発・検証する。また、実証膜による高温作動化のポテンシャル検証を実施する。

○開発目標

新たに開発した低ガス透過で、機械的および化学的耐久信頼性に優れ、高温作動化が期待される高信頼性の炭化水素系補強電解質膜（自社開発膜）を小量試作ベースから普及拡大を見据えた供給量を達成し得る製造プロセス技術開発およびその検査・品質管理技術開発を目標とする。

（研究開発フロー）

（本事業におけるアウトカム）



MU06

車載用燃料電池セパレータの大量普及時に向けた品質担保手法の開発

【研究開発の目標】

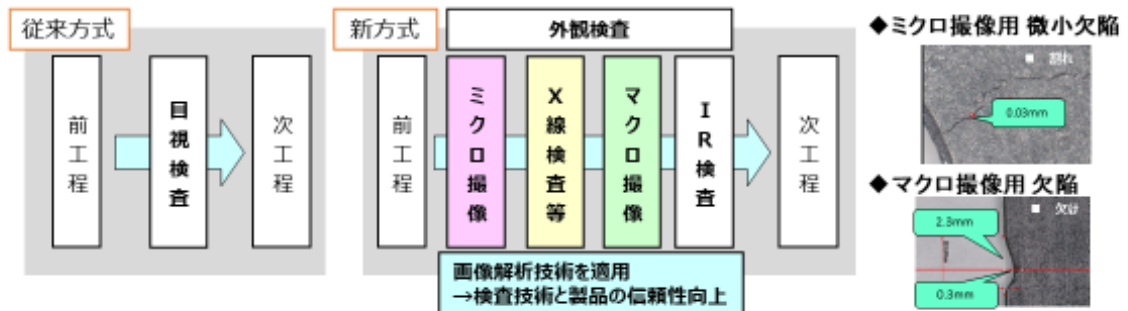
車載用燃料電池セパレータの大量生産時における品質及び信頼性を担保するための検査技術を開発する。

- ・車載用燃料電池セパレータの形状異常等を検査する欠陥検査に画像解析技術を適用し、検査精度向上と検査時間短縮を目指す。
- ・複数の欠陥検査データをAIを用いて判定する技術を開発し、検査技術と製品の信頼性向上を実現させる。

本開発により、信頼性の高い燃料電池セパレータを安価に提供し、燃料電池車の普及拡大に寄与する。

【研究開発の概要】

従来目視確認により選別を行っている形状異常等の欠陥検査に画像解析技術を適用し、検査精度向上と検査時間短縮を目指す。さらに、複数の欠陥検査データをAIを用いて判定する技術を開発し、検査技術と製品の信頼性向上とコストダウンを実現させる。

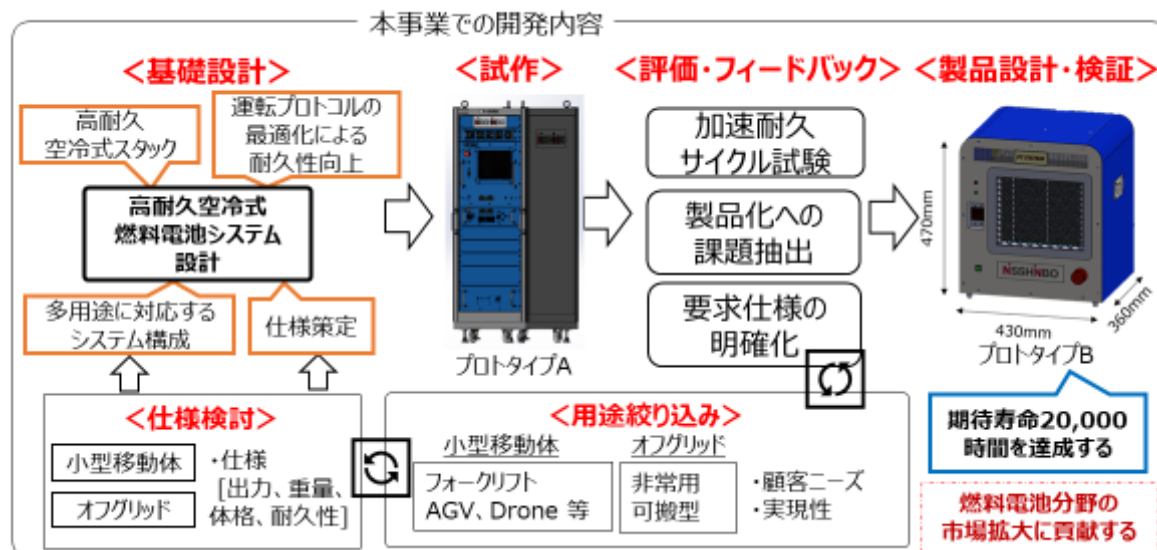


【研究開発の目標】

簡素かつ小型で高耐久な空冷式燃料電池システムを開発することにより、来る水素社会に向けた燃料電池の多用途化および普及促進に貢献する。

【研究開発の概要】

空冷式燃料電池システムの有望用途を特定し、外部蓄電池との併用を考慮した動作制御を確立することにより、用途に合った高耐久空冷式燃料電池システムの製品開発を行う。



MU08:

多用途展開可能なクラウド対応型燃料電池(FC)発電モジュールの開発

【事業者】 株式会社豊田自動織機

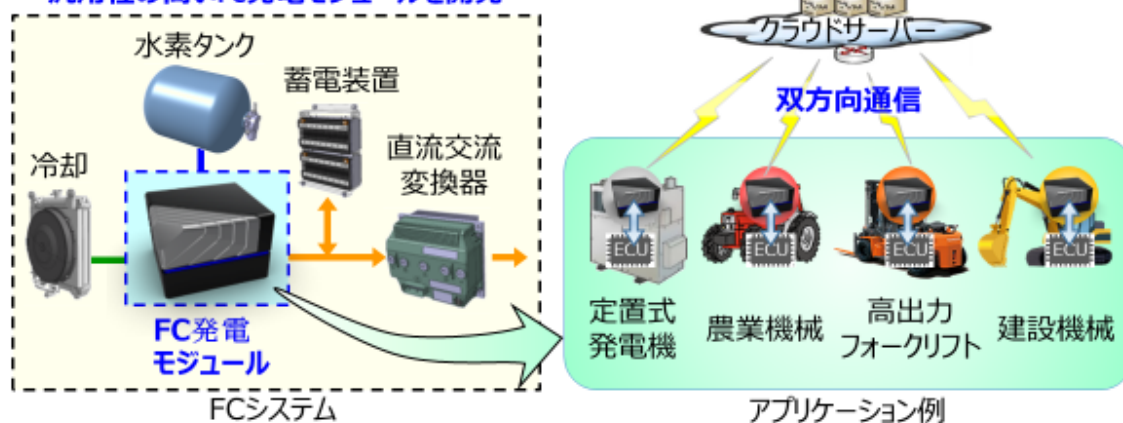
【研究開発の目標】

- ①長寿命・低コストな出力50kWクラウド対応型FC発電モジュール開発
- ②様々なアプリケーションへ多用途展開

【研究開発の概要】

- ①FCV、FCフォークリフト技術を活用し、コンパクトな汎用FC発電モジュールを開発
- ②双方向通信が可能なクラウド対応型通信システムを搭載

汎用性の高いFC発電モジュールを開発



MU09：燃料電池システムを搭載した油圧ショベルの研究開発と実証検証

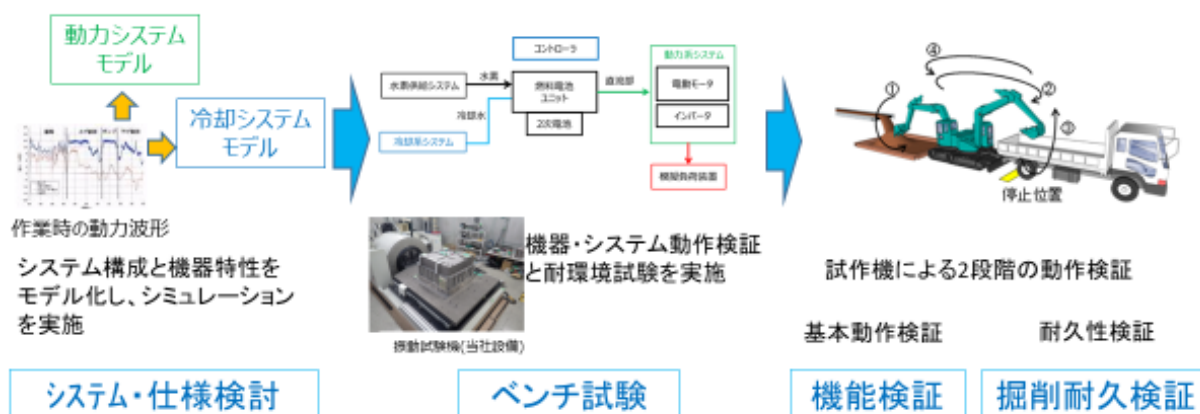
【研究開発の目標】

1. 燃料電池を動力源とした油圧ショベルの動作確立
2. 動力変動に追従した動力制御システムの確立
3. 燃料電池化に適した冷却システムの確立
4. 油圧ショベルの耐振性を考慮した実装技術の確立

2050年の建設施工におけるカーボンニュートラル達成に向け、建設機械の中でも台数比率が高く、使用環境が厳しい油圧ショベルにて実証検証を行い、将来的に建設機械全体への適用に寄与する。

【研究開発の概要】

燃料電池ショベルの動作性能、耐久性について事前検証を行い、従来の油圧ショベルと同等以上の掘削作業が可能であることを検証する。



MU10 商用運航の実現を可能とする水素燃料電池船とエネルギー供給システムの開発・実証

【研究開発の目標】

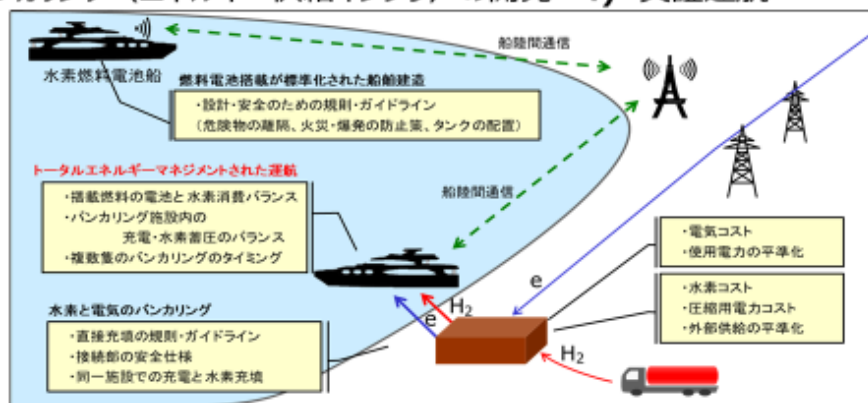
Iwatani 関西電力

- ・ 本事業では、水素燃料電池船の普及促進を図るため、実証運航を通じて経済性が成立する商用運航を実現する。

【研究開発の概要】

本目標を達成するために以下の4項目の改発・実証を進め、水素燃料電池船の普及の鍵となる課題を解決することを目指す。

- 1) トータルエネルギーマネジメントシステムの開発
- 2) バンカリング（エネルギー供給インフラ）の開発
- 3) 船体構造の開発
- 4) 実証運航



MU11：燃料電池搭載農業用トラクタの実用化に向けた実証研究（株式会社クボタ）

【研究開発の目標】

水素・燃料電池を搭載した農業用トラクタを開発し、実作業による実証試験にて適合性を明確化するとともに、農村部・農作業における、水素の運搬・供給方法を検討し、そこでの水素利活用のあるべき姿を提案することを目標とする。

本目標の達成により、モビリティ以外での燃料電池利用の可能性を示せるとともに、農村部での水素社会、つまり、カーボンニュートラル社会の実現に寄与できる。

【研究開発の概要】

- (1)燃料電池搭載農業用トラクタ開発
 - ・トラクタ特有の負荷特性や搭載環境に対応した、燃料電池・電動システムを新たに開発する。
 - ・それらシステム機器を搭載した、ディーゼル機と同等性能を有する燃料電池トラクタを開発する。
- (2)農村部での実証試験の実施
 - ・本格的なトラクタ作業(耕耘、肥料散布、草刈、牽引・運搬など)を通して、作業適合性を評価する。
 - ・農村部での水素供給方法や必要なインフラなどを、経済性や法規制なども含めて検討・提案する。



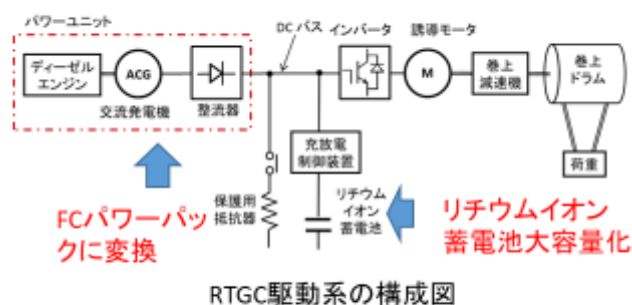
MU12 港湾荷役機器ラバータイヤ式門型クレーンの水素駆動化（水素燃料電池の採用）開発事業

【研究開発の目標】

港湾荷役で広く利用されているラバータイヤ式門型クレーン(RTGC)は、年間1機あたり約206トンのCO₂を排出している。従来ディーゼルエンジン発電機セットで駆動していたRTGCを水素燃料電池(FC)による電力で駆動する構成に変換し、従来RTGCと同等の荷役能力を発揮出来ることを実証することで、港湾の脱炭素化を図ると共に、従来の自家用車や家庭用とは異なる分野においてFCを多用途展開する。

【研究開発の概要】

水素駆動RTGCを実用化するため、FCパワーパックとハイブリッドシステム(リチウムイオン蓄電池容量)の出力バランスを最適化し、出力、寿命、設置スペースの全てにおいて、要求を満たすドライブシステム(駆動系)の技術開発を行う。加えて将来の港湾荷役において、水素駆動RTGCの普及に向けた課題を洗い出す為の実証を行う。21年度は技術開発を行い、22年度に当社工場の実証設備を用いて実証を行う。



RTGC駆動系の構成図



三井E&Sマシナリー大分工場内の実証用RTGC

RTGC; Rubber Tired Gantry Crane、 FC; Fuel Cell

MU-13

高圧水素タンク及びMEAの全数高速検査を実現する 革新的X線検査技術の開発 - FCV普及拡大に向けて -

【研究開発の目標】

燃料電池車（FCV）関連部材の安全性や耐久性の品質向上と低コスト化に貢献できる検査システムを開発し、水素社会構築を牽引する先導的役割であるモビリティの普及拡大に貢献する

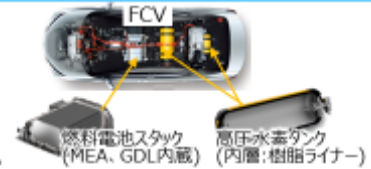
【研究開発の概要】

■ 解決したい具体的技術開発課題

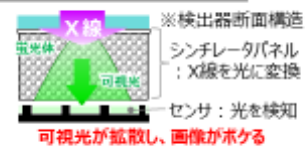
○水素タンクライナー接合部のポイド欠陥検出のためのインライン高解像度、高速検査技術の開発
○MEA(及びCP、GDL等)の欠陥検出のためのインライン高解像度、高速検査技術の開発

■ 解決手段

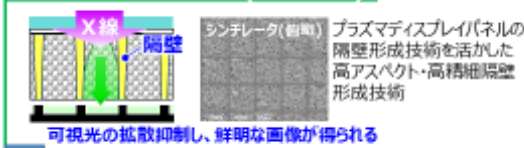
主に医療用X線検出器(2次元)向けに開発した高解像度X線シンチレータパネル技術を活かし、インライン検査に適した検出器を開発することで、検査技術を構築する。具体的には(1)~(3)を開発。



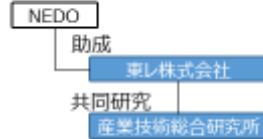
従来方式シンチレータパネル



セル方式シンチレータパネル(高解像度化)



■ 開発体制



(1) 高速高解像度インライン検出器開発

- ①画素小サイズ、検出器小型化開発
 - ②高速高解像度シンチレータ開発
- インライン検出器に適したセル方式シンチレータの開発
- ・高速対応のための発光量UP開発 ⇒ 隔壁細幅化(材質変更)
 - ・インライン(長時間X線照射)に対する耐久性向上 ⇒ シンチレータ輝度劣化10分の1に低減
 - ・高速応答の蛍光体材料適用 ⇒ 残光：10分の1に低減。(現状1ミ秒)

(2) 高速画像処理診断システムの設計開発

- ①画像処理技術を設計開発
- ②高速で自動診断するためのAI技術を開発

(3) 実証機設計と開発

- ①水素タンクライナー接合部検査装置(高速X線ステレオ撮像)
 - ②MEA欠点検査装置検査装置(高速X線撮像)
- 高速高解像度インライン検出器
同接合部FCV以外のMEA/CP/GDLにも適用可能

■ 実用化による効果

FCV累計台数2030年80万台*
規模の水素タンクライナー、MEAの検査が可能となる。
*NEDO「水素・燃料電池戦略ロードマップ」
品質向上と低コストの両立で、モビリティの普及拡大に貢献し水素社会構築に資する。

MU14 研究開発テーマ名

「高性能SOFC スタックおよびエネルギーマネジメント連携によるドローン等実用化技術開発」

【研究開発の目標】

- 長時間・高ペイロード飛行を実現するSOFCドローンの実用化に向けた基盤技術を構築する。
- 本事業により、SOFCスタックの共通基盤技術が構築でき、ドローン用途をはじめとするSOFC多用途展開のための実用化に資する判断を可能とする。

【研究開発の概要】

1. 高出力密度セルスタックを開発する
2. エネマネモデリング技術を構築する
3. 高性能ドローン実用に向けた搭載検討を行う

