

発表No.A-31 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

/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

(発表者、委託先)

堀田照久 (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

(共同実施先) 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

2022年7月28日

連絡先：堀田照久
国立研究開発法人産業技術総合研究所
(E-mail: t.horita@aist.go.jp, TEL: 029-861-9362)

1. 期間

開始 : 2020年8月
終了（予定） : 2025年3月

2. 最終目標

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 時間超の長期寿命・運用、65%を超える高効率運転、再エネ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。

3. 成果・進捗概要

固体酸化物形燃料電池（SOFC）スタックの高効率運転下（燃料利用率85%）での2万時間もの長期耐久を達成し、その抵抗増大成分を解明した。スタックの長期寿命を予測するため、各部材や材料の劣化メカニズムの時間依存性や複合効果を整理し、総合的な評価のための基礎データを集積した。スタック劣化を総合的に示すためのシミュレーション技術の総合的取組を開始した。さらに、急速起動や負荷変動に対応するための基礎データを収集し、スタック評価プロトコル構築のための準備を進めた。新たな取り組みとして、画像解析に機械学習の適用を取り入れ、燃料極微構造の変化やその性能変化を予測するための基礎検討・データを集積した。

1. 事業の位置付け・必要性

1) 事業の背景と目的：

- 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・耐久などの性能向上が必要。
- 電源設備としての耐久年数15年、分散電源としての最高効率65%以上を同時に満たし、負荷変動や起動停止などの運用性を向上させる必要。
- 上記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・解析法はまだない。そのため、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。
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。

2) 事業の意義・必要性：

- SOFC先進スタック(耐久年数15年、最高効率65%以上、負荷変動、急速起動などの運転可能)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。
- 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。
- 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・市場拡大、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. 研究開発マネジメントについて

1) 研究開発の目標と目標設定の考え方（根拠）

脱炭素に向けたトランジェント及び水素利用への高効率発電として、SOFCが重要。

電力設備としての定置用燃料電池の寿命は15年以上が必要、また集中火力の大型ガスタービンの効率は65%程度で、その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。

長寿命・高効率SOFCスタックを評価するための高度評価・解析法はまだなく、共通課題として進め、評価法・解析法を確立する。

2) 研究開発のスケジュール

2020年～2021年： 評価・解析法構築のための基礎データの収集・解析

2021年～2023年： 長寿命・高効率スタックの寿命予測法、診断法などの基礎技術開発、基盤完成

2024年： 開発技術の検証、知財・標準・規格への展開検討

3) 研究開発の実施体制

産学官連携の総合的なプロジェクト体制：実スタック、評価・解析、改良のサイクルを回す

7 委託機関（2研究機関、4大学、1企業）、7共同実施（スタック開発企業、ユーザ）、

2再委託（2大学）

4) その他：

研究開発進捗は、テーマごと及び個別技術課題に対応するワーキンググループで推進

全体会議を3か月ごとに開催し、進捗と技術開発の向上を図っている。

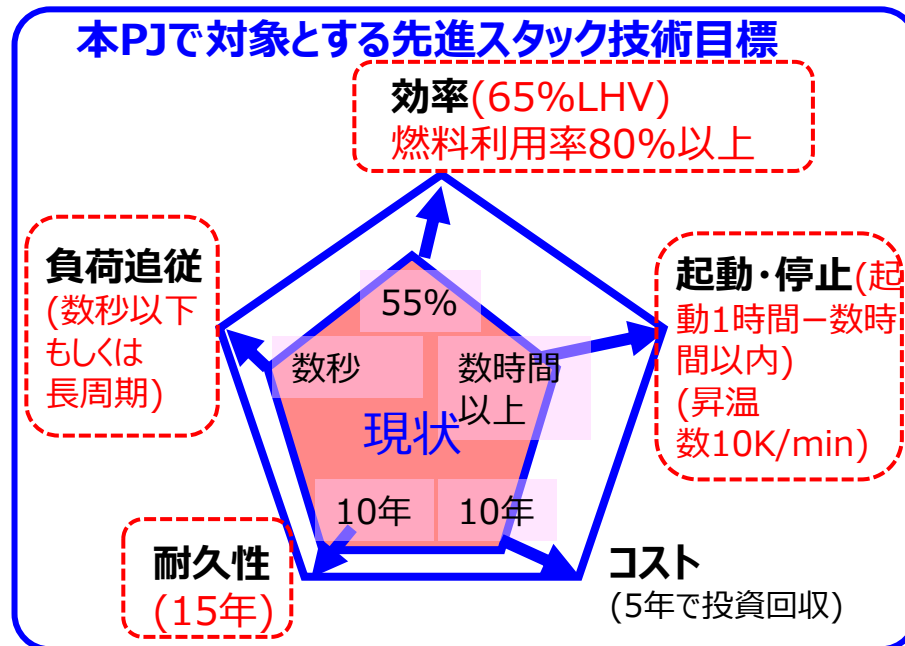
研究データ・知財管理の知財運営委員会で新規発表などを管理して研究データの適正管理

2. 研究開発マネジメント (1) 目標と設定根拠

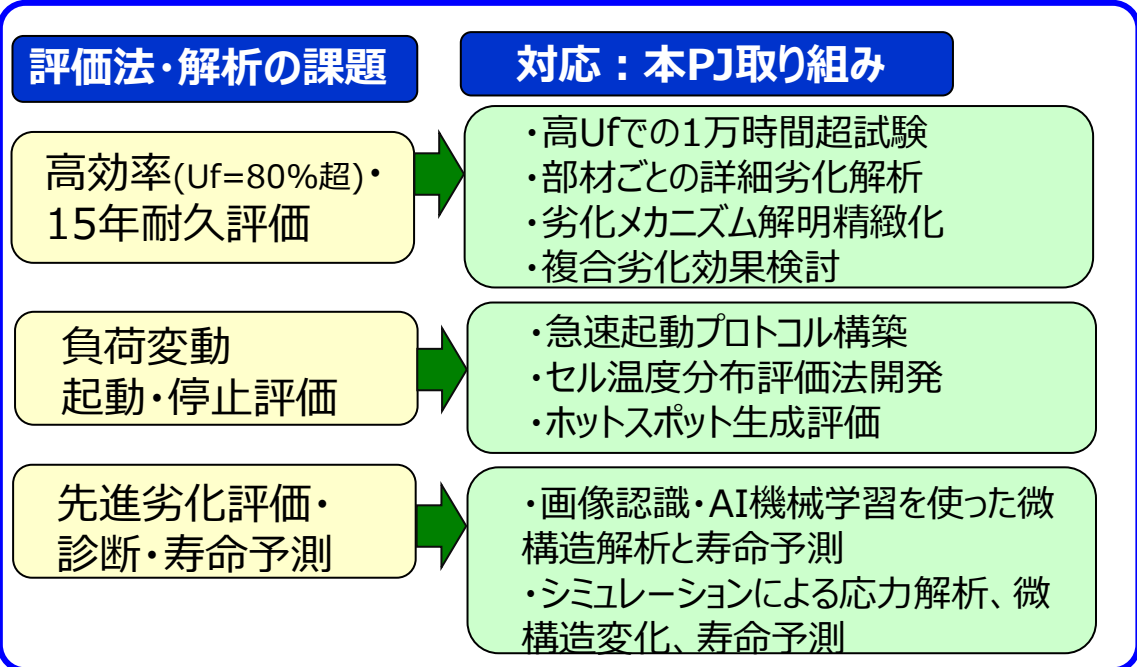
目標：スタック開発企業が使える劣化評価・解析法の確立 (13万時間耐久、急速起動)

- 燃料電池ユーザーニーズ：カーボンニュートラルに向けたトランジェントでの低炭素化、高効率発電が必要
- SOFC開発企業ニーズ 1：高効率・長寿命スタックの高効率・長期運転時の耐久評価法が必要
- SOFC開発企業ニーズ 2：先進スタックの動特性や負荷変動、急速起動などの運用性に関する評価法・新規劣化診断法が必要
- これまでの取り組み：部材ごとの劣化機構解明、9万時間耐久予測法の確立 各部材・要因の劣化機構解明、スタック運転で劣化10%の見通し
- **中間目標(2022年6月)**：ニーズを満たす先進スタックに適用するための評価法の基礎データ収集
- **最終目標(2024年度末)**：ニーズを満たし、先進セルスタック開発に寄与できる高度な評価・解析法の確立

(現状)世界で実現しているSOFCシステム：
システム効率55~60%以上、耐久10年

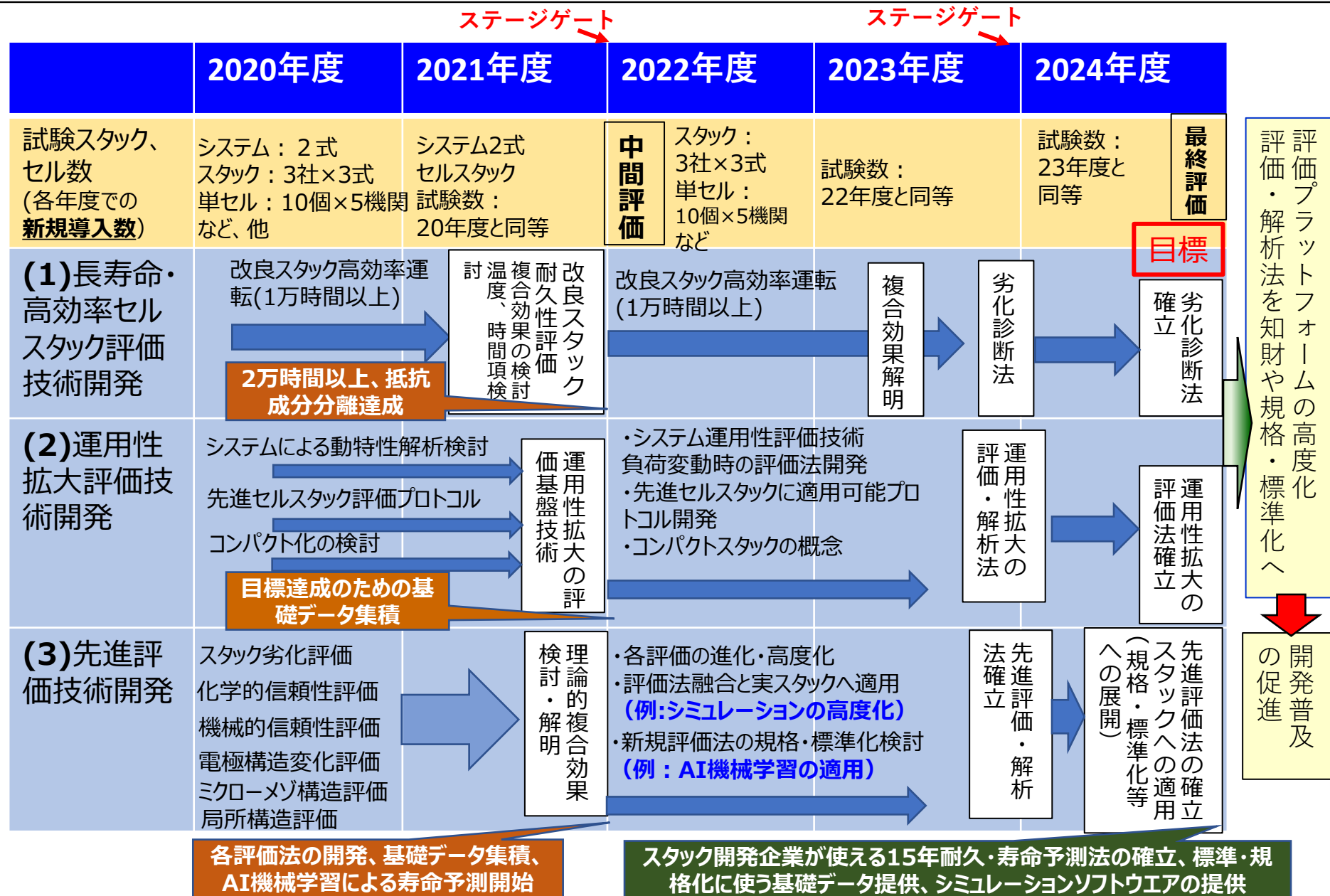


先進スタック評価法・解析への課題と取り組み



急速起動の意義：再エネの変動調整、DSS対応、モビリティ展開

2. 研究開発マネジメント (2) 研究開発スケジュール



2. 研究開発マネジメント (3) 実施体制

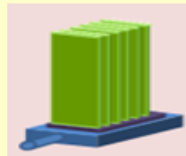
- 13万時間耐久・高効率スタックの評価技術・劣化診断法を確立するため、産学官連携体制構築
- 7委託機関、3スタック開発企業・4ユーザー企業(共同実施)、2再委託先(2大学)
- 3つのテーマの評価技術開発が連携して、次世代スタック・システム開発に役立つ評価技術を開発

グループリーダー：堀田照久(産総研)

会議頻度：全体会議3か月ごと

①長寿命・高効率セルスタック評価技術開発

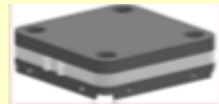
- ア) 筒状平板形スタック耐久性評価
電中研、産総研(京セラ)
- イ) 中温平板形スタック耐久性評価
電中研、産総研(森村SOFCテクノロジー)
- ウ) 業務用平板形スタック耐久性評価
電中研、産総研(デンソー、東邦ガス)



筒状平板形
(京セラ)



中温平板形
(森村SOFC
テクノロジー)



業務用平板形
(デンソー)

連携

耐久
サンプル

劣化要因分析
改良点示唆

②運用性拡大評価技術開発

- ア) システム動特性解析研究開発
電中研、産総研(京セラ、森村SOFCテクノロジー、デンソー)
- イ) 先進セルスタック評価プロトコル
イムラ・ジャパン、東北大、オブザーバー：産総研(京セラ、森村SOFCテクノロジー、デンソー、日産自動車)
- ウ) コンパクト化のためのフィジビリティスタディ
東北大、産総研(大阪ガスマーケティング))

連携

評価プラットフォーム：企業セル分析と先端技術開発

③先進評価技術開発

- | | |
|----------------|-----------|
| ア) スタック劣化評価解析 | 電中研 |
| イ) 化学的信頼性評価解析 | 産総研 |
| ウ) 機械的信頼性評価解析 | 東北大(慶応大学) |
| エ) 電極微構造変化評価解析 | 東大(千葉工大) |
| オ) ミクロメゾ構造評価解析 | 京大 |
| カ) 局所構造評価解析 | 九大(東京ガス) |

知財運営委員会

知財管理・データ管理、審議、承認
成果発表の審議、承認

技術課題解決のために、テーマを超えて取り組みワーキンググループを構築し活動

3. 研究開発成果： (1) 中間目標 (テーマ1 及びテーマ2)

研究開発テーマ・研究機関	中間目標 (2022年度6月)	達成度	達成状況
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	○ 達成	先進スタックの高効率・長期試験に成功し、抵抗成分の分離とその増大要因解明、基礎データの集積
(ア)筒状平板形スタック耐久性評価 電中研、産総研(京セラ)	・数万時間レベルの長期運転・高効率試験による耐久データ蓄積蓄積、加速劣化試験の実施	○	Uf=80%で2万時間、Uf=85%で1.5万時間以上の高効率耐久試験から、抵抗成分分離：IR抵抗と空気極過電圧が主要因。時間依存性検討。燃料極過電圧増大傾向確認
(イ)中温平板形スタック耐久性評価 電中研、産総研(森村SOFCテクノロジー)	・数万時間レベルの長期運転・高効率試験による耐久データ蓄積、加速劣化試験の実施	○	新モデルで数千時間、旧モデルでUf=80%で1.4万時間、Uf=85%で1.2万時間以上の高効率運転から、抵抗成分分離：IR抵抗と空気極過電圧が主要因。燃料極過電圧増大確認。負荷変動加速試験を5千時間実施。時間依存性検討
(ウ)業務用平板形スタック耐久性評価 電中研、産総研(デンソー、東邦ガス)	・数万時間レベルの長期運転・高効率試験による耐久データ蓄積、加速劣化試験の実施	○	Uf=80%で0.5万時間、Uf=85%で0.4万時間耐久。抵抗成分分離。劣化要因の可能性について検討
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	○ 達成	動特性解析用基礎データ収集、急速起動プロトコル作成用基礎データと温度勾配試験装置完成、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
(ア)システム動特性解析研究開発 電中研、産総研(京セラ、森村SOFC、デンソー)	・単セルの動特性解析モデルの構築、セルスタック動特性評価のための基礎データ収集、負荷変動時の性能劣化現象の抽出	○	SOFC動特性モデルの基盤となる化学反応、物質拡散、熱流体変化の動特性解析モデルの整理、単セルを対象とした動特性解析モデルのプロトタイププログラムを構築。また、実システムによる試験を実施し動特性評価のための基礎データ収集した。
(イ)先進セルスタック評価プロトコル イムラ・ジャパン、東北大学、産総研(京セラ、森村SOFC、デンソー、日産)	・急速起動・停止に向けた信頼性評価項目と課題の明確化、試験装置設計に反映。	○	・セルスタック現状仕様・市場ニーズ抽出、要求仕様提示 破壊試験装置設計に反映 ・シート成型法でのMSセル化成功。OCV：1.118V
(ウ)コンパクト化のためのフィージビリティスタディ 東北大学、産総研(大阪ガスマーケティング)	・運用性拡大のためのコンパクト化への基礎データ提示。・スタックシミュレーションへの設計変数・評価関数の検討・感度解析/最適化の課題抽出	◎	アノード支持セル平板型について3D-CFDシミュレーションにてセルサイズ、厚み等のパラメータスタディを実施。コンパクト化に適したセル寸と到達レベルを提示。また、代理モデル(東北大開発)の適用試行し、F/Sに有効に活用できる見通しを得た

3. 研究開発成果： (1) 中間目標 (テーマ3)

研究開発テーマ・研究機関	中間目標 (2022年度6月)	達成度	達成状況
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	○ 達成	高効率で13万時間耐久を見通す評価技術確立のため、セルスタック劣化機構の詳細分析をおこない、基礎データを集積した。各部材・材料での評価法適用性について、先進的な方法や複合的な劣化機構について基礎データを集積した。AI機械学習を使った電極微構造画像の劣化解析への基礎データを集積し、電極微構造変化の予備的予測に成功した。
(ア)スタック劣化評価解析 電力中央研究所	数万時間レベルの耐久実ベースデータの収集、性能表示式への温度依存項の導入、劣化事象の時間依存性の解明と複合効果の解明	○	数万時間レベルの耐久実ベースデータを収集し、性能表示式への温度依存項の導入した。また、性能表示式による性能要因分析による解析により各過電圧による劣化事象の時間依存性の解明と複合効果の解明見込
(イ)化学的信頼性評価解析 産業技術総合研究所	試験後のセルスタックの解体分析と劣化機構解明、運転モードやセル構造に依存した化学的劣化挙動解明、化学的信頼性評価技術の高度化、数種の化学的劣化事象の時間依存性の解明と複合効果の解明、機械学習による燃料極微構造の2次元画像解析手法の開発	○	<ul style="list-style-type: none"> 共同実施先3社の解体分析に加え、他PJとの連携でPCFCの解体分析を実施、劣化機構を解明。 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。 電解質におけるプロトン透過量の定量化に成功。電極・電解質界面構造がオーム損に与える影響を解明。カソード劣化とオーミック抵抗劣化が相関する複合効果を検証。 FIB-SEM画像の高効率解析法を構築。SEM像から微構造パラメータを予測する手法の適応性を確認。
(ウ)機械的信頼性評価解析 東北大学(慶應義塾)	<ul style="list-style-type: none"> セル信頼性評価試験装置試作・関連技術開発・データ取得 セル・スタックシミュレーション 製造時欠陥自動判別法開発 Ni酸化シミュレータ開発 	◎	<ul style="list-style-type: none"> 試験装置試作・予備試験, 6月までに稼働見込み。供試セルTHz事前測定法, 応力測定法開発。基礎データ取得。 シミュレーションスキーム策定, 代理モデル構築前倒し。 画像取得～機械学習判別法予備実験終了, 最適化見込 Ni > 200万原子酸化シミュレータ5種モデル計算達成見込み

3. 研究開発成果： (1) 中間目標 (テーマ3) 及び成果発表

研究開発テーマ・研究機関	中間目標 (2022年度6月)	達成度	達成状況
(工)電極構造変化評価解析 東京大学 (千葉工大)	<ul style="list-style-type: none"> ・機械学習電極画像処理の高速化と高精度化 ・実電極構造局所応力の予測 ・異方性および樹脂含浸レス構造の機械学習再構築 	◎	<ul style="list-style-type: none"> ・マルチアル画像処理枚数を約2桁削減。精度97%以上を実現。 ・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。 ・非等方な電極もGANにより3次元構築することに成功。また、U-netにより樹脂含浸しない炭素析出サンプルの3次元構造再構築に成功。
(オ)マイクロ-メゾ構造評価解析 京都大学	<ul style="list-style-type: none"> ・高燃料利用率運転時に電極内で発現する物理・化学的現象の収集、電気化学特性との相関評価、水蒸気を最大80%程度含む水素燃料の反応モデルの提案。 ・燃料極へのメゾ空隙構造導入によるガス拡散性向上効果の定量的評価、FIB-SEMによる大領域構造データの取得、大領域構造データの機械学習を用いた解析技術の開発。 ・単セルのEIS対応シミュレーション技術の開発。 	◎	<p>コイン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基礎を構築。水素—水蒸気系において広範な水蒸気分圧における燃料極の電気化学活性を実験的に取得し、反応モデルを構築。</p> <p>燃料極支持体のガス輸送特性のデータを蓄積。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技術を確立。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。</p> <p>電極表面ガス濃度やセル面内温度分布が非一様な単セルにおけるEIS対応シミュレーション技術を開発。</p>
(カ)局所構造評価解析 九州大学 (東京ガス)	<ul style="list-style-type: none"> 金属部材の組成、微量元素が耐久性、被毒現象に及ぼす影響を明確化 	○	<p>加湿水素での13万時間耐久を見通せる温度、湿度条件、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を明確化。</p>

成果発表：企業とのコンフィデンスを守りながら成果をアピール




●基盤技術については成果を学会、論文等で発表。ソフト開発・知財化なども検討中。

2020年度： 口頭発表：16件、論文発表：2件

2021年度： 口頭発表：46件、論文発表：10件

3. 研究開発成果： (2) スタック耐久性評価及び評価プラットフォームでの取組

- 先進スタック長期運転試験： 燃料利用率 $U_f=85\%$ (効率 65% 以上)で1万時間を超える耐久試験達成
- 先進スタック劣化機構解明： 大学・研究機関と連携して高 U_f での評価法開発とその劣化機構解明
- 判明劣化状況： IR抵抗と空気極が主要因、複合的な劣化メカニズムを検討、高 U_f での燃料極過電圧増

スタック形状 (企業名)	劣化主要因 (抵抗増大因子) 最大運転時間	劣化現象	劣化時間 依存性	評価プラットフォーム取 組：メカニズム解明・複合化への 取り組み	・判明した高 U_f での劣化 率 ・前PJとの相違
筒状平板形 (京セラ) 	<ul style="list-style-type: none"> ・IR抵抗 ・空気極過電圧 (通常運転と同じ) $U_f=80\%$ 20,000h $U_f=85\%$ 15,000h	<ul style="list-style-type: none"> ・電解質電導度低下 ・空気極/電解質界面絶縁層生成 ・電極組成・微構造変化 ・酸化物ICの酸素リーク 	直線+ $\frac{1}{2}$ 乗 速+指数関 数	<ul style="list-style-type: none"> ・高U_fで燃料極微構造変化小(産総研) ・不純物蓄積Sは影響小(産総研) ・IC中の酸素透過量評価(産総研) ・製造時セル欠陥検出法開発中(東北大) 	$U_f=80\%$ で0.32%/kh $U_f=85\%$ で0.45%/kh 通常運転より劣化率上昇 ・高 U_f での燃料極過電圧上昇 観測
中温平板形 (森村SOFCテクノ ロジー) 	<ul style="list-style-type: none"> ・IR抵抗 ・空気極過電圧 (通常運転と同じ) 旧型で1.8万時間 新型 $U_f=80\%$ 7,000 h $U_f=85\%$ 5,000h	<ul style="list-style-type: none"> ・電解質電導度低下 ・空気極/電解質界面絶縁層生成 ・電極組成・微構造変化 ・金属ICの抵抗増大 ・温度分布、変形・シール 	直線+ $\frac{1}{2}$ 乗 速+指数関 数	<ul style="list-style-type: none"> ・電極劣化評価：燃料下流での燃料極活性点減少も一部あり(京大) ・ボタンセルDRT解析(京大) ・不純物蓄積:S、Si確認影響小(産総研) 	$U_f=80\%$ で0.30%/kh $U_f=85\%$ で0.35%/kh 通常運転と同等レベル 新型で $U_f=80\%$ で0.25%/kh $U_f=85\%$ で0.27%/kh ・高 U_f での燃料極過電圧上昇 観測
業務用平板形 (デンソー) 	<ul style="list-style-type: none"> ・IR抵抗 ・燃料極過電圧 $U_f=80\%$ 数1,000h $U_f=85\%$	<ul style="list-style-type: none"> ・電解質電導度低下 ・電極/電解質界面絶縁層生成 ・電極組成・微構造変化 ・セルの変形・シール性 ・金属ICの抵抗増大 	直線+ $\frac{1}{2}$ 乗 速+指数関 数	<ul style="list-style-type: none"> ・ボタンセル電極劣化評価：DRT解析(京大) ・応力機械的評価(東北大) ・燃料極の不純物分析、金属ICの酸化・抵抗増(九大) 	$U_f=80\%$ で 0.72%/kh-数%/kh 燃料極過電圧で劣化率増大

3. 研究開発成果： (2) スタック耐久性評価及び評価プラットフォームでの取組

- スタック劣化による抵抗増分 ΔR , $\Delta\eta$ を記述する経験式構築：各成分の足し合わせ(暫定劣化予測)
- 劣化記述の精緻化：各劣化要因・メカニズム足し算、掛算、逐次・並列反応などの複合効果を検討中

部材、部位	抵抗種	劣化現象・要因	メカニズム	時間依存性(暫定)
空気極	分極抵抗	不純物(例 S)による被毒、Srの移動、組成変化、Co析出	絶縁層SrSO ₄ などの生成と表面反応失活速度低下	活性表面積現象・拡散：時間の1/2乗、指数関数
電極/電解質界面	オーム損	SrZrO ₃ 等絶縁層生成	絶縁層生成 電極・電解質成分反応	拡散現象：時間の1/2乗
電解質	オーム損	相変態：正方晶の生成 Ni固溶による正方晶誘発	原子再配列によるイオン電導度低下	正方晶化への緩和時間解明：時間の対数
燃料極	分極抵抗	Ni凝集、移動、蒸発によるTPB長減少	YSZのアンカー効果が作用せずNi粒子の移動、凝集、酸化還元	時間の1/2もしくは急激な劣化
インターコネクト	オーム損	金属表面での酸化皮膜厚膜化 酸化物中の酸素透過	Cr蒸発を防ぐ酸化皮膜の成長、酸化物中のイオン拡散	時間の1/2乗
スタック・セル集合体	オーム損	部材の変形や応力集中	変形による接触面積変化、シール性変化で抵抗増	時間の1乗ほか。破壊的劣化になる可能性

作動電圧： $E = E^1 - (I\Delta R(t) + \Delta\eta(t))$
(E^1 :初期電圧)

これまでわかっている劣化要因の時間依存性を考慮：単純和での経験式

抵抗増大経験式

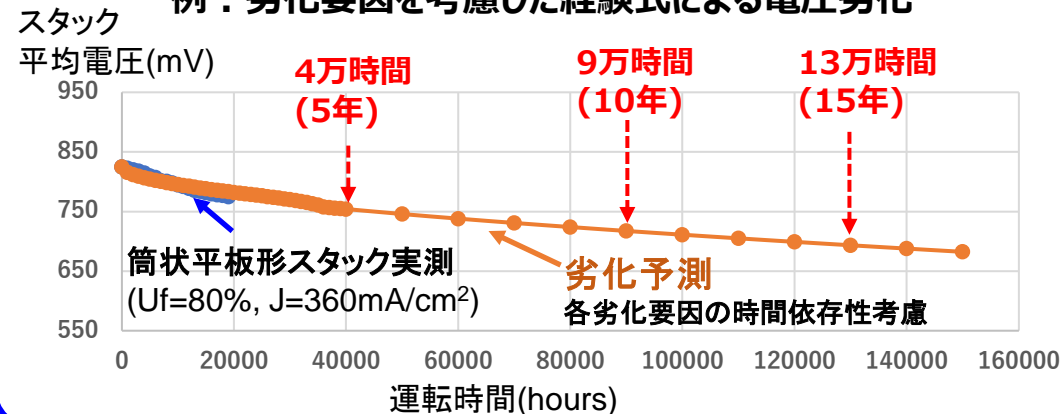
$$\Delta R + \Delta\eta = A(t) + B\sqrt{t} + C\exp(-t) + \dots,$$

変形
シール

被毒、微構造変化、
絶縁層、IC酸化

相変態

例：劣化要因を考慮した経験式による電圧劣化



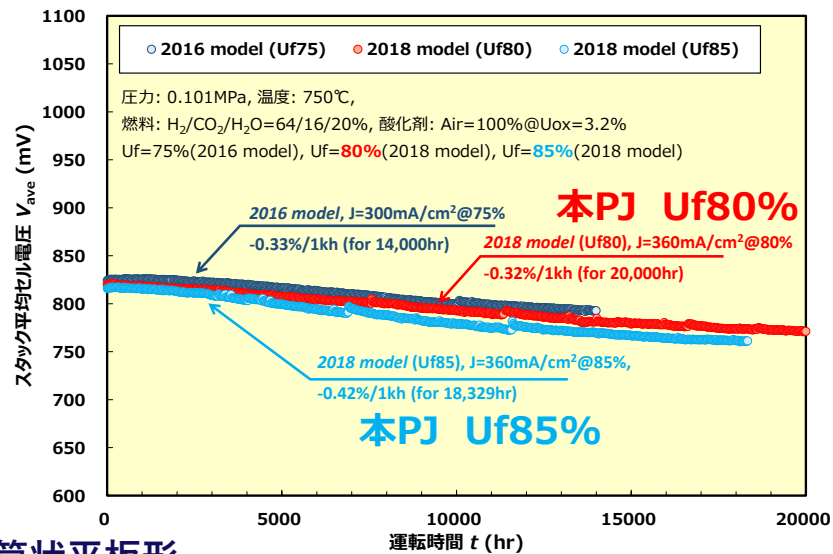
今後劣化複合効果を検討
開発企業の寿命予測へ

3. 研究開発成果： (2) スタック耐久性評価及び評価プラットフォームでの取組

ア) 筒状平板形スタック耐久性評価：電力中央研究所、産業技術総合研究所(京セラ)

- 高効率スタック試験：燃料利用率 $U_f=80\%$ で2万時間、 $U_f=85\%$ で1.8万時間の耐久時間達成
- 高燃料利用率試験でも安定に作動、抵抗成分分離に成功：IR損と空気極過電圧が主たる劣化要因
- $U_f=85\%$ での劣化加速、燃料極過電圧増大を観測：高効率長期運転時の劣化変化を初めて観測

平均セル電圧時間推移(参照 前PJ:2016モデル、 $U_f75\%$)



筒状平板形
スタック外観

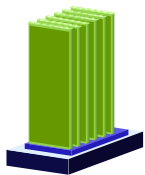
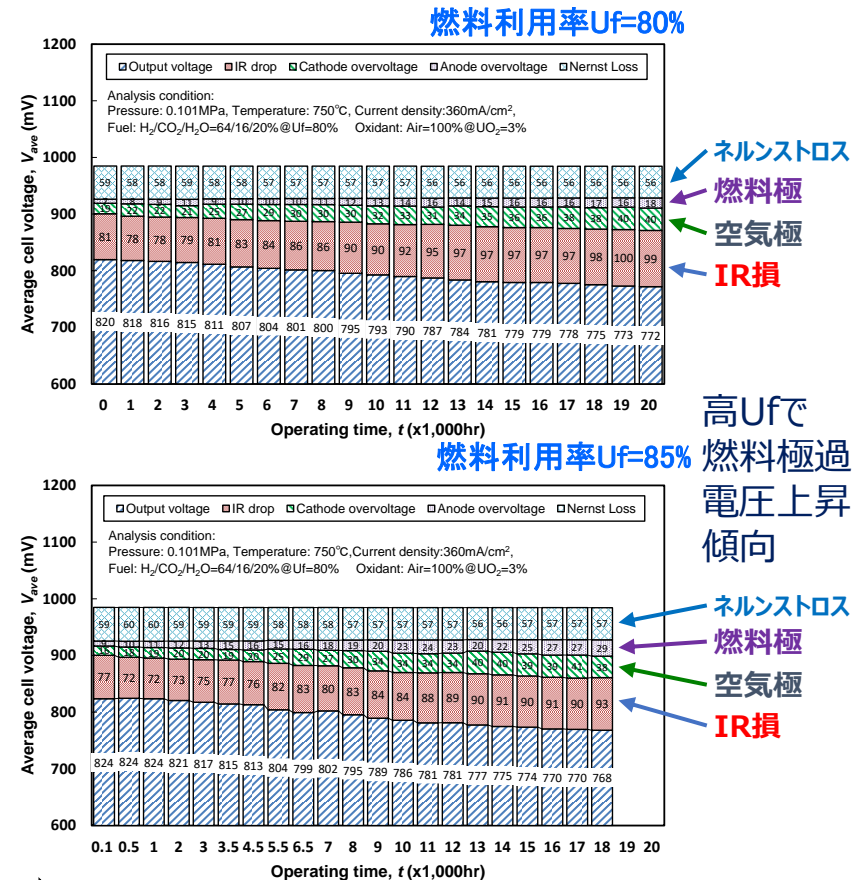


表 同一経過時間における電圧変化率

	5 kh	10 kh	15 kh	20 kh
($U_f=80\%$)	-0.31	-0.34	-0.34	-0.32
($U_f=85\%$)	-0.43	-0.5	-0.45	—

$U_f=85\%$ での劣化率上昇

性能表示式による経時的な性能要因分析



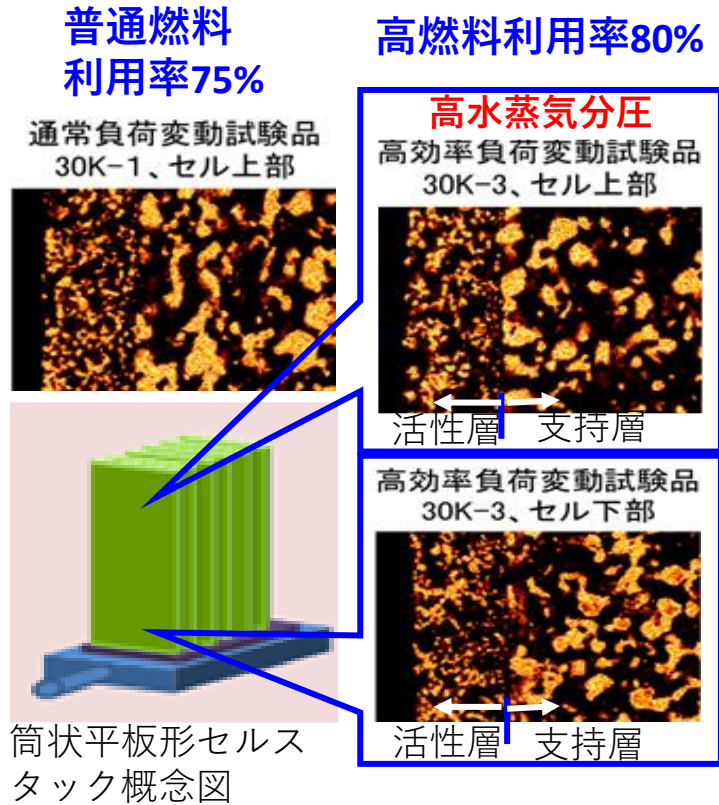
IR損と空気極過電圧が主たる劣化要因

3. 研究開発成果： (2) スタック耐久性評価及び評価プラットフォームでの取組

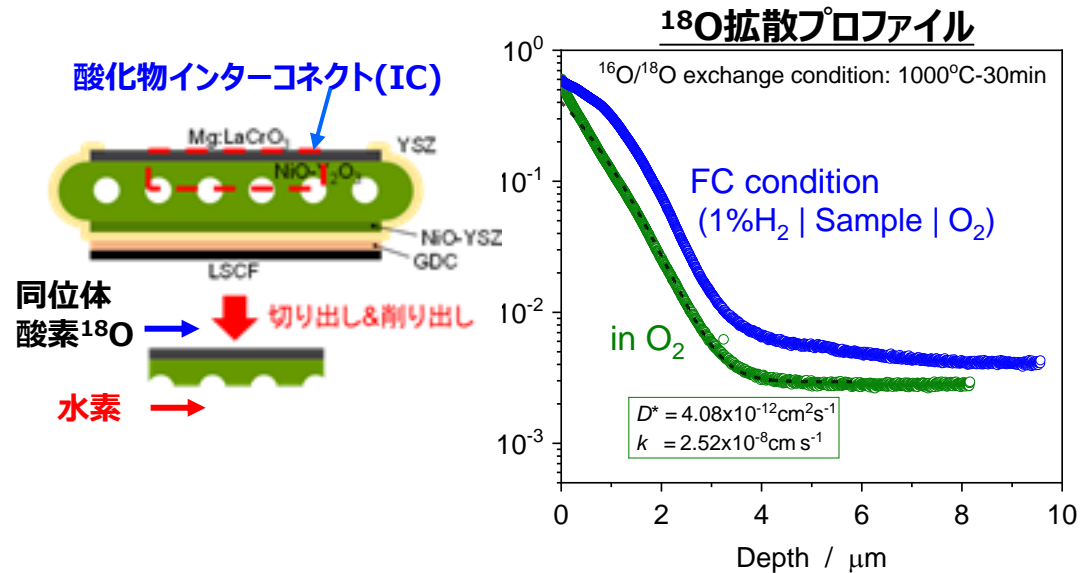
ア) 筒状平板形スタック耐久性評価 (解体分析、部材劣化解析：産業技術総合研究所(京セラ))

- 高燃料利用率運転後の燃料極微構造解析：Ni粒子凝集、移動は検出されず=燃料極性能の維持
- 実機酸化物インターコネク特(IC)材料の酸素透過量評価：同位体酸素($^{16}\text{O}/^{18}\text{O}$)交換法適用
- 運転条件でのIC中酸素透過量：同一雰囲気での酸素透過量より増大 (酸素空孔量増大により)

微構造分析：高燃料利用率運転後の燃料極中Ni粒子の分布(SEM-WDS像) (産総研)



IC中の酸素透過量評価
SOFC環境下での新たな評価(産総研)



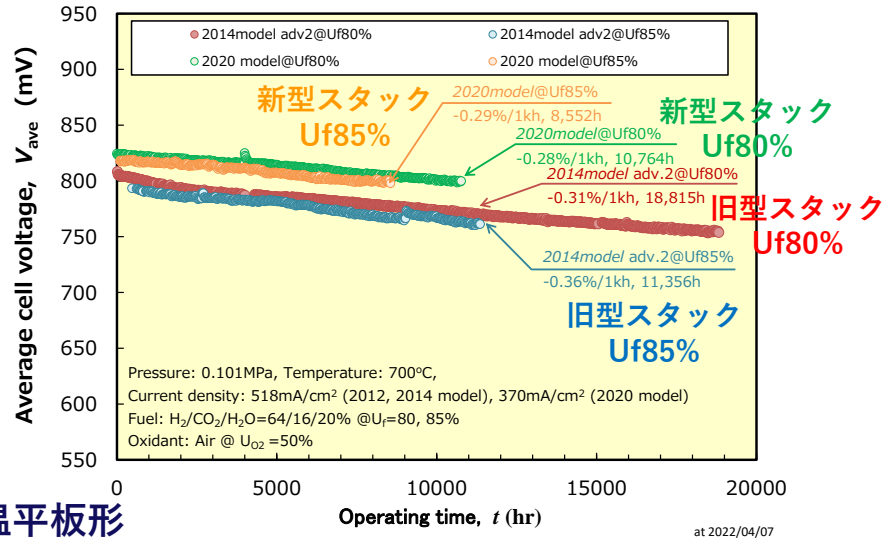
- 両側 O_2 の通常同位体交換後に比べ、より多くの ^{18}O が内部に侵入
- Ni-YSZサーメット燃料極への劣化影響度などを解明予定

3. 研究開発成果： (2) スタック耐久性評価及び評価プラットフォームでの取組

イ) 中温平板形スタック耐久性評価：電力中央研究所、産業技術総合研究所(森村SOFCテクノロジー)

- 高効率スタック（新モデル）試験：燃料利用率 $U_f=80\%$ で1.0万時間、 $U_f=85\%$ で0.8万時間の耐久達成
- 新モデルでの高効率運転耐久性を確認。0.2%/kh台を達成。前モデルとの比較検討中
- 高燃料利用率試験でも安定に作動、抵抗成分分離に成功：IR損と空気極過電圧が主たる劣化要因

平均セル電圧時間推移
(参照 旧モデル $U_f=80,85\%$)



中温平板形
スタック外観
(新型スタック)

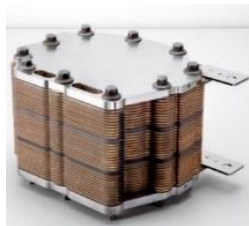
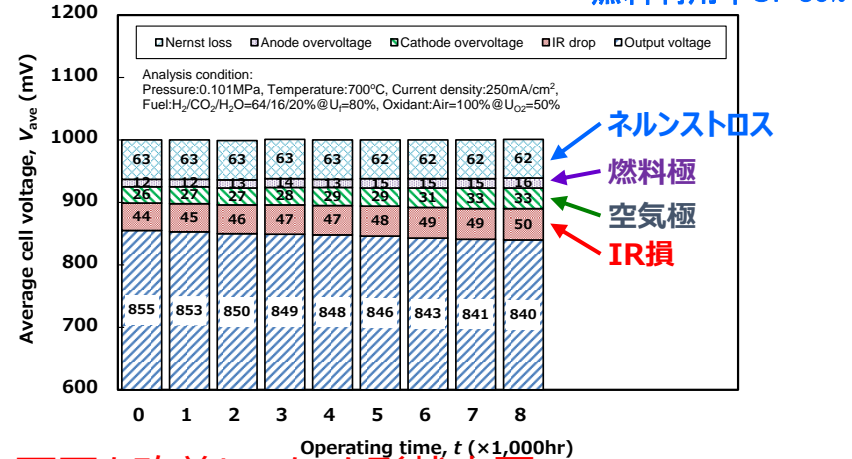
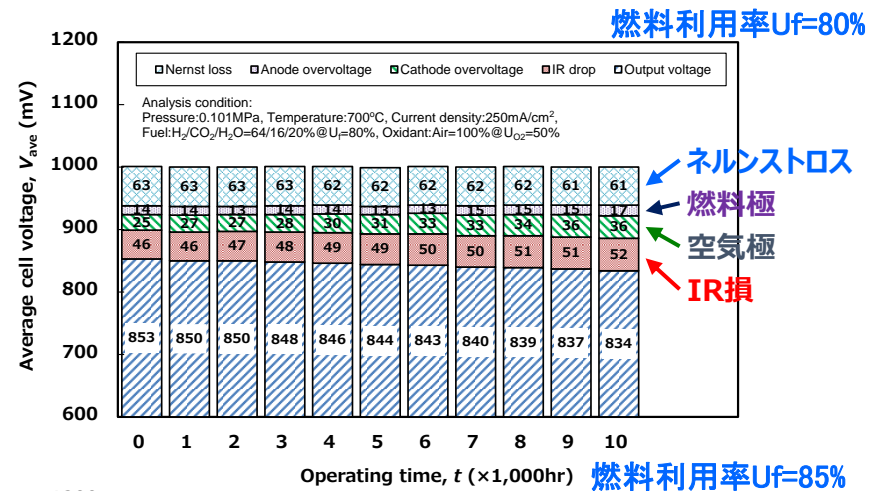


表 電圧変化率比較

	5 kh	10 kh	15 kh
($U_f=80\%$)	-0.21	-0.28	—
($U_f=85\%$)	-0.26	—	—

セル電圧変化率は類似の値

性能表示式による経時的な性能要因分析



新型スタック(軽量・高効率)：旧セルスタックで現出したセル劣化要因を改善しスタック形状変更

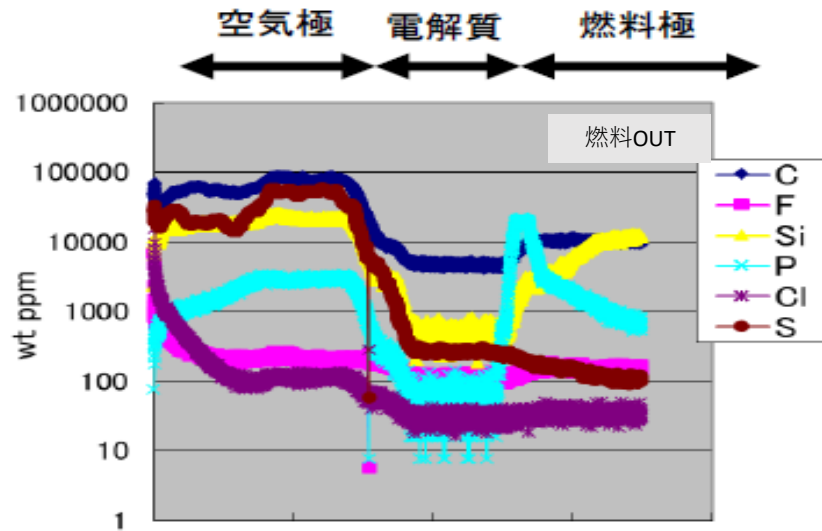
3. 研究開発成果： (2) スタック耐久性評価及び評価プラットフォームでの取組

イ) 中温平板形スタック耐久性評価 (解体分析：産業技術総合研究所(森村SOFCテクノロジー)、京大)

- 旧スタック(Uf=80%, 1.8万時間運転)の解体分析：電極での不純物蓄積増大はなく性能良好
- セル材料、スタックハウジング、ガス供給などからの不純物抑制を確認
- 高燃料利用率試験での燃料極微構造変化：FIB-SEMによる三相界面量評価で変化小
- IR損、電極過電圧の増大に関し、劣化要因を複合させた効果を検討中

解体分析・部材劣化解析：旧型スタック Uf80%, 1.8万時間耐久

旧スタックの不純物分析例
SIMSによる深さ方向分析(産総研)

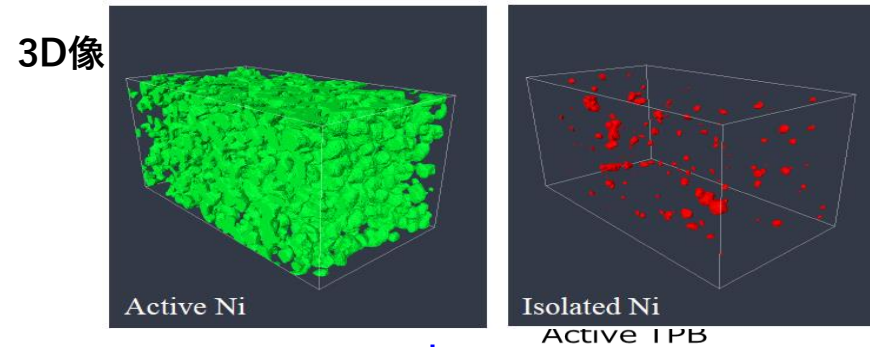


電極の不純物量は、1万時間耐久品と同程度

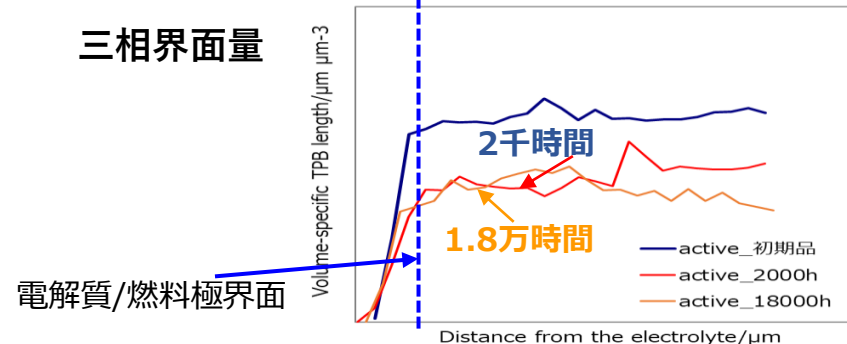
旧セルスタックでP濃集や微構造変化有
→改良して新型セルスタック構築

燃料極微構造の分析例(京大)

2000h以降、燃料極三相界面長の変化は小



三相界面量



→ 2千時間以上での三相界面長保持

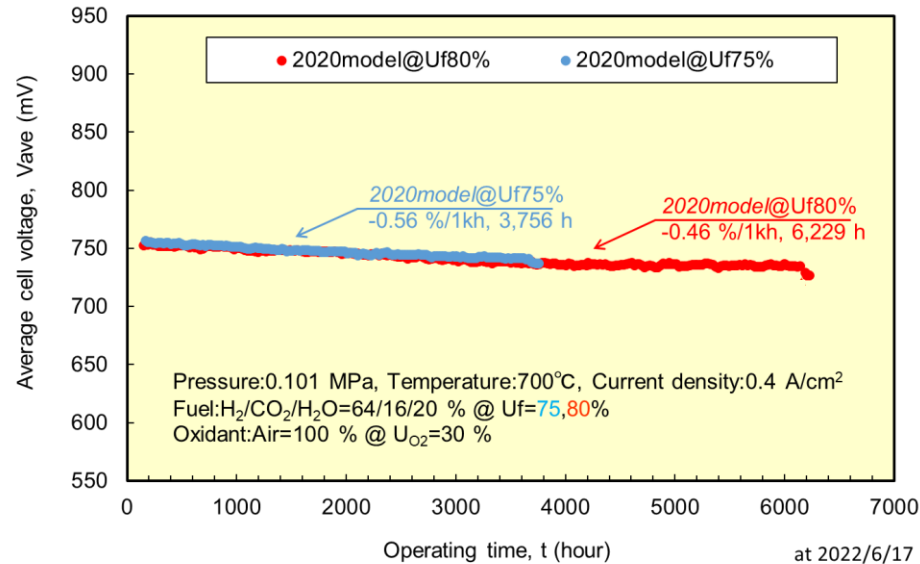
3. 研究開発成果： (2) スタック耐久性評価及び評価プラットフォームでの取組

ウ) 業務用平板形スタック耐久性評価：電力中央研究所、産業技術総合研究所(デンソー、東邦ガス)

- 高効率スタック試験：2020modelの燃料利用率 $U_f=75\%$ で3.8千時間, $U_f=80\%$ で6.2千時間耐久達成
- 高燃料利用率試験でも安定に作動、抵抗成分分離に成功：燃料極過電圧増大

新型改良スタックでの高効率運転耐久試験

平均セル電圧時間推移
($U_f=75,80\%$)



業務用平板形
スタック外観

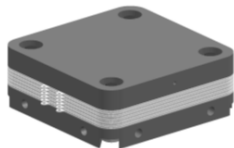
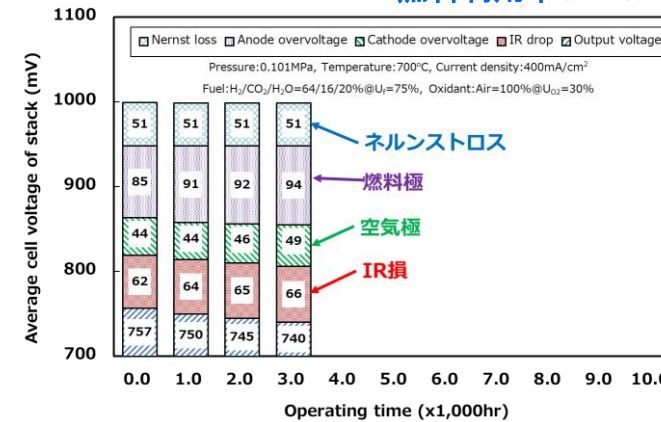


表 電圧変化率比較

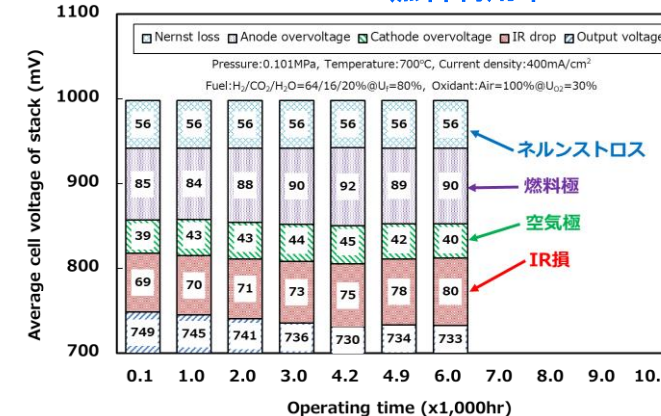
	5 kh	10 kh	15 kh
($U_f=75\%$)	—	—	—
($U_f=80\%$)	-0.55	—	—

性能表示式による経時的な性能要因分析

燃料利用率 $U_f=75\%$



燃料利用率 $U_f=80\%$



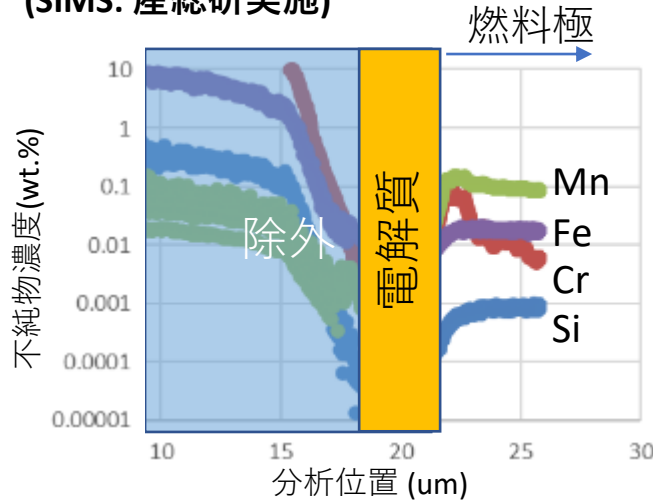
燃料極過電圧、IR損の増大が主たる要因で、今後の劣化状況を注視するとともに分析も進める

3. 研究開発成果： (2) スタック耐久性評価及び評価プラットフォームでの取組

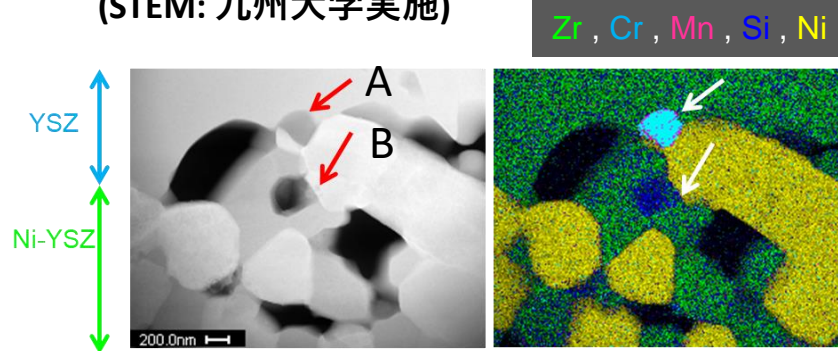
ウ) 業務用平板形スタック耐久性評価 (解体分析：産業技術総合研究所(デンソー、東邦ガス)、九大)

- 改良セルスタックの解体分析：20年度仕様について不純物蓄積量解析、微構造解析
- 燃料極反応活性点への不純物元素偏析を確認：SIMSでのCr, STEMでSiCr, Mn
- 不純物由来と想定される燃料側流路金属部材への蒸散抑制(コーティング)対策に反映

燃料極中の微量不純物分析('20年度仕様)
(SIMS: 産総研実施)



燃料極中の不純物偏析状況('20年度仕様)
(STEM: 九州大学実施)



元素分析結果 (at%)

	A	B
Al	0.97	4.59
Si	3.99	19.47
Ca	0.80	2.19
Ce	1.52	3.97
Cr	19.94	1.73
Mn	10.81	2.06
Fe	0.55	2.26
Ni	31.89	19.63
Y	6.05	8.50
Zr	23.47	35.61

燃料極反応場(3相界面)へのCr, Mn, Si偏析を確認
→燃料極側の燃料流路金属部材への蒸散抑制(コーティング)必要性を示唆

デンソーCS仕様		'17年度仕様	'18~'19年度仕様	'20年度仕様	'22年度仕様
対策	セル	<ul style="list-style-type: none"> ・ 空気極微細構造改良 ・ 燃料極気孔率再調整 		<ul style="list-style-type: none"> ・ 空気極/中間層接合性改良 ・ 燃料極不純物抑制 	
	スタック	<ul style="list-style-type: none"> ・ ガラス組成変更(低ボロン) 	<ul style="list-style-type: none"> ・ セルスタック間シール構造改良 ・ セル変形を考慮したスタック設計 		<ul style="list-style-type: none"> ・ 不純物飛散抑制対策 ・ 集電部材Cr対策改良
抽出された劣化課題		<ul style="list-style-type: none"> ・ セルスタック間リークによる空気極劣化加速 ・ セル変形による集電抵抗増大 	<ul style="list-style-type: none"> ・ 空気極/中間層接合強度不足 ・ 燃料極不純物による電解質分解 ・ 金属集電部(燃料極側)の腐食 ・ 集電/セル界面不良による初期劣化 ・ 集電部材からのCr飛散 	<ul style="list-style-type: none"> ・ 燃料極中不純物の偏析 ・ 集電部材からのCr飛散 	

3. 研究開発成果： (3) 運用性拡大評価技術開発 システム動特性解析

ア) システム動特性解析研究開発：電力中央研究所

- 市販システム試験により、模擬負荷による負荷変動によるシステム出力特性を継続して取得し、急峻な負荷変動に対するシステム出力の追従性を確認した
- セルスタックの負荷変動試験を5千時間程度実施し、負荷変動時の劣化現象として、各部位毎の過電圧変化を抽出する見込み

市販システム試験による動特性基礎データの取得

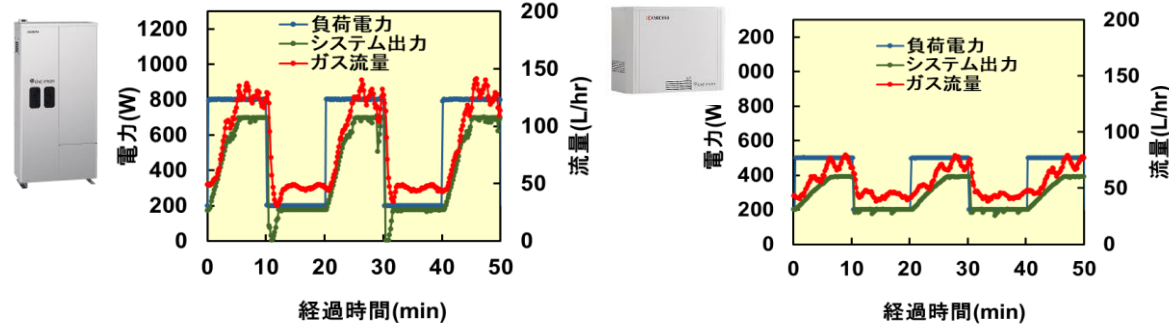


図 各SOFCシステムの負荷変動に対する出力特性

瞬時に負荷が変動した場合、上げ方向にはシステム出力は追従せず、一定の変化率をもって出力が上昇する。一方、下げ方向にはシステム出力は瞬時に応答し追従することを確認した。

⇒上記のシステム出力特性はシステムの制御方法に起因する。制御方法は、システムメーカーの競争領域となるため、NDA範囲の中でメーカーとの対話を通じて、最終年度へのシステム動特性解析モデルへの制御方法に反映する方策を模索する。

セルスタック負荷変動時の劣化現象の抽出

運用性拡大も鑑み、定格以上の過出力領域においてセルスタックの負荷変動試験を5,000時間程度実施し、負荷変動時の劣化現象(各部位毎の過電圧変化)を抽出する。(見込み)

矩形波による模擬負荷により、システム出力特性などの基礎データを取得。

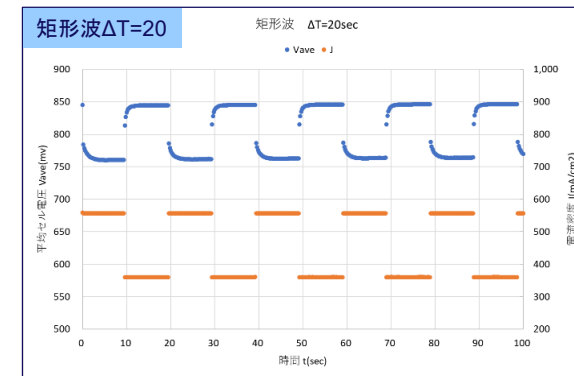


図 矩形波負荷変動試験による負荷変動波形

3. 研究開発成果： (3) 運用性拡大評価技術開発 評価プロトコル開発

イ) 先進セルスタック評価プロトコル開発：イムラ・ジャパン, 東北大学

- 先進スタックに要求される急速起動性を市場ニーズから抽出、プロトコルの手順に反映：21K/min
- 急速起動を実施できる試験装置の完成、プロトコル策定へ前進

イムラ・ジャパン

達成

- 市場ニーズの抽出
⇒ 急速起動・停止
昇温 21°C/分

項目	システム仕様	スタック要求仕様
起動性	試験機： 着火確認40分、発電確認200分	温度上昇2.8°C/min
ON/OFF	月1回の停止（ガス入れ検知） 12回×10年×3（安全係数）×360回	665°C→250°C：3.4°C/min （水素による冷却、250°Cからは逆 気による冷却）
シャットダウン	実使用状態を模擬したパターン試験（OO回）	酸化によるセルの劣化
耐振動性	阪神大震災0.8G以上	1G（耐地震）、OG（輸送対応）
連続耐久性	8万6千時間（効率低下0%以内）	
負荷変動適応	ターンダウン100W、アイトリング35W	特になし

項目	第一ステップ	第二ステップ（運転）
起動性	30分以内	15分以内（運転想定）
ON/OFF	1回/日の停止（5,400回）	5回/日の停止（27,000回）
シャットダウン	1回/月（180回）	-

実機で想定される急速起動・停止
プロトコルの手順&条件を反映
(昇温21°C/分以上)

東北大学

- シミュレーション
- 過酷試験装置

項目③ウ) で開
発, 達成見込み

市販セル
燃料極支持型

急速起動停止を想定した
耐久性評価プロトコルの策定
(評価項目・水準)

高性能セル実用化指針、
セル評価基盤技術の提示

急速起動停止時の
実態把握・課題を明確化

金属支持体

達成

項目	システム仕様	スタック要求仕様	課題
起動性	発電まで30分以内	21°C/min	脱炭酸膜へのガス吸着時間 改善後の温度上昇 (システム構成による)
停止時間	30分以内	14°C/min セル酸化劣化温度（も う少し高くしたい） ガス空冷気冷却の備 の耐圧力	
ON/OFF	5400回×1.2（安全係数） ×6480回	繰り返し熱耐力 (121°C/min) × 14 °C/min × 6480回	ON時の温度（現状100°C 以下をもっと上げたい）
シャットダウン	180回×1.2（安全係数） ×216回	酸化によるセルの劣化	ケースを詳細に検討必要 システム構成による逆流 素量
耐振動性	阪神大震災0.8G以上 輸送時3G	3G	
連続耐久性	13万1千時間（15年）	数秒以内	
負荷変動適応	35W→700W：1分以内？ 700W→35W：1分以内？ (VPPの要求仕様による)	数秒以内	35W（アイトリング時） の電圧維持（制御システム による）

擬似セル

発注済

各種孔径, 開孔率

セラミック
シート接着

● 擬似セル提供

⇒ ● 擬似セルによる局所状態測定

金属支持型セルの開発

理論起
電力発生

シート成型法の適用

連携の中でアイデアが浮上
共同で検討開始

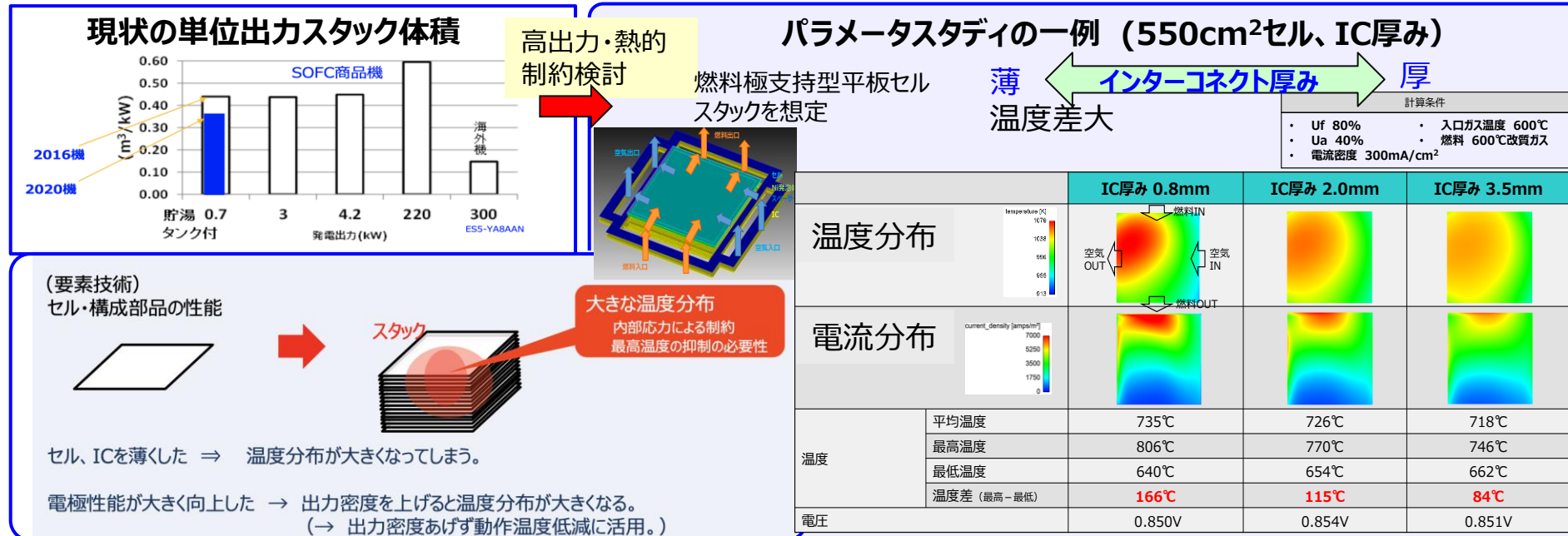
3. 研究開発成果： (3) 運用性拡大評価技術開発 コンパクト化FS

ウ) コンパクト化のためのフィージビリティスタディ 産総研 (大阪ガスマーケティング)、東北大 (慶大)

- SOFCスタックの設計パラメータと熱的制約の関係を明確化：コンパクト化、運用・耐久性の設計指針へ
- 3D-CFDによるパラメータ検討：現状の部材、材料を使いながらも、出力密度を上げる可能性検討
- IC厚みを薄くすることで温度分布が大きくなる傾向も確認され、最適な厚みの必要性を示唆
- 熱的制約とセル有効面積比を勘案、コンパクト化に適したセル寸法が100cm²前後で到達出力が最大500W/Lであることを示唆した。東北大と共同で、代理モデルの導入でより複雑な計算が可能に

本取り組みの意義：スタックコンパクト化・起動性、耐久性向上に展開できる要素開発や設計条件、実スタックでの熱効果の関係を明確化。スタックコンパクト性（熱容量と密接）や熱的制約の明確化

2022年1月までの成果：燃料極支持平板型セルについて、厚み等のパラメータスタディを実施。計画前倒しで行った代理モデル（東北大開発）の適用試行では、3D-CFDを活用したパラメータスタディの生産性を高める見込みが得られた。また、スタック新構造により大幅コンパクト・軽量化を目指す米事例の設計意図の検討を行い、解析に着手。



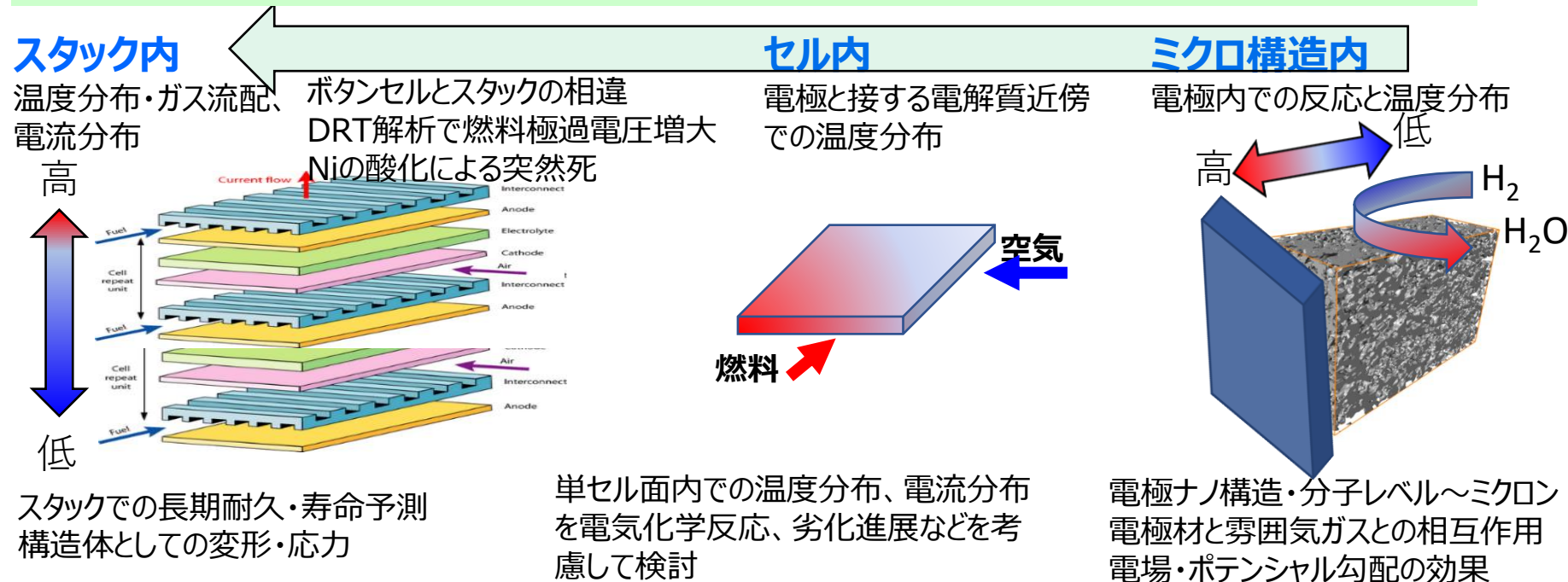
3. 研究開発成果： (4) 先進評価技術開発

- 基盤研究機関での先進評価解析法を深化：個別・部材での劣化メカニズムを複合化した総合的な劣化メカニズム解明中
- 取り組むべき個別課題に対し、ワーキンググループを構築して機動的に研究開発を推進
- 重点的な取り組み→温度分布の解明：ガス流配、電気化学反応の不均一性によって発生、スタック内では数10K、セル内で数Kの差
距離スケールはスタック内、セル面内、電極厚さ方向など、数10cm～μmレベル

定常状態での温度分布→時定数の大きい劣化によって温度分布も変化
非定常・過渡状態の温度分布→急速起動・負荷変動などの温度分布

開発中の高度評価法：スタックの性能表示式、独自コードによる熱流体解析、ANSYS-FLUENTなどの商用ソフトへのシミュレーション展開、マイクロレベルの画像AI劣化予測、分子レベル動力学計算

スタック開発企業が使える高度な評価法、簡便評価・解析技術の提供：開発の促進



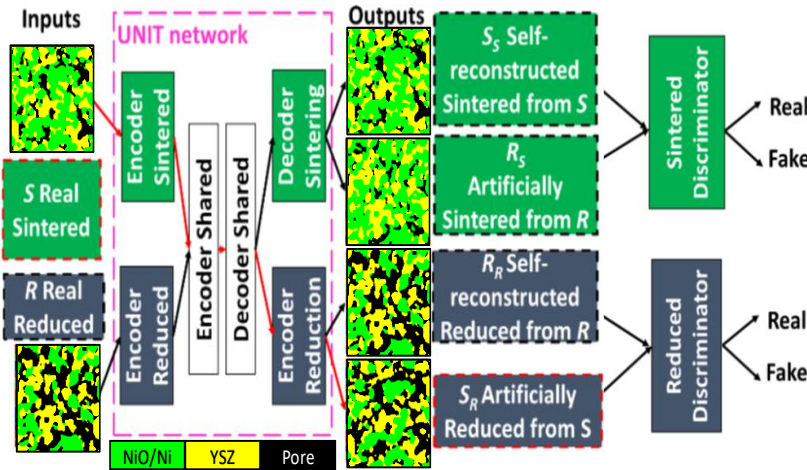
3. 研究開発成果： (4) 先進評価技術開発 AI機械学習の高度化

機械学習総括資料：機械学習による電極構造の評価（東京大学、京都大学）

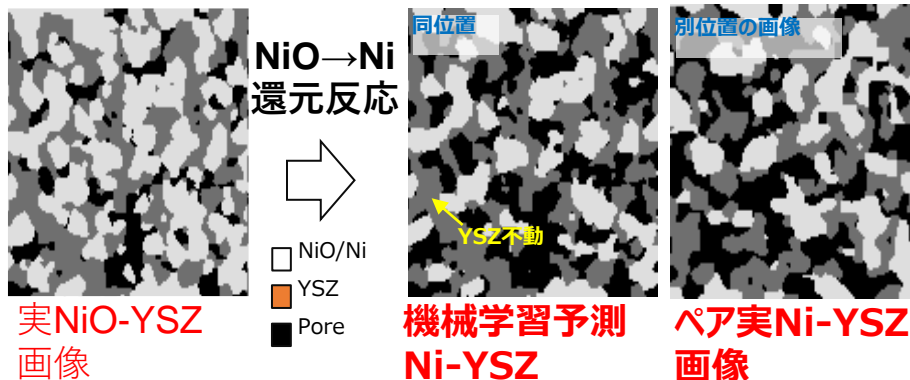
- UNIT, U-netにより電極微構造変化の予測に成功 ⇒ 還元反応, 焼結等による構造変化予測
- 様々な微構造を学習して、電極微構造変化を予測するツールを開発：初期微構造から長期寿命予測へ

UNITによるNiO還元反応後の構造変化予測

NiO-YSZとNi-YSZの実画像ペア(別位置で可)で Unsupervised image-to-image translation (UNIT)を教育し, YSZ不動条件下における還元後のNi構造を予測

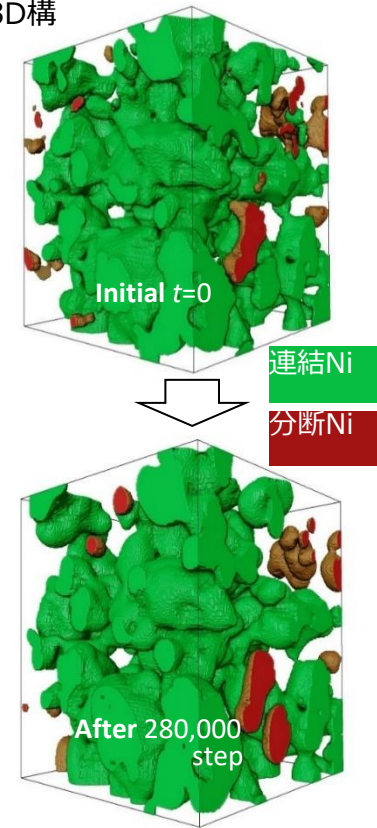
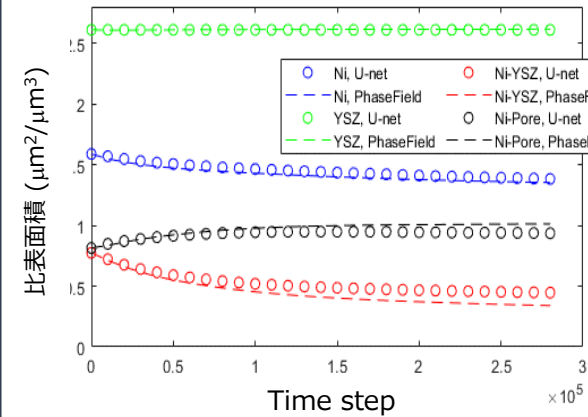
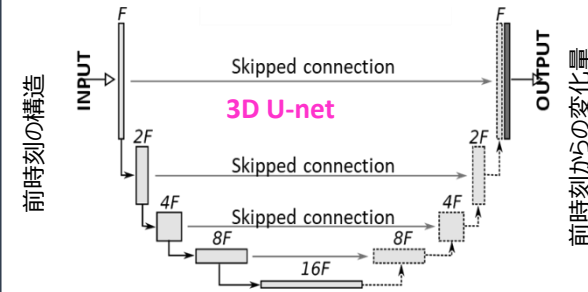


反応(劣化)前後のペア画像で教育すれば、反応後の構造を予測することが可能



U-netを用いたNi焼結3D電極構造変化予測

機械学習(U-net)を用いて, Phase field法Ni焼結3D構造変化を高速かつ良好に再現



3. 研究開発成果： (4) 先進評価技術開発 シミュレーション技術の高度化

シミュレーション技術高度化(劣化要素データ複合・3D化)

これまでの取り組み及び基本式:1要因の劣化を考慮

電荷移動律速の電気化学一般式: Butler-Volmerの式

$$J = J_0 [\exp(n\alpha f \eta_{act}) - \exp(n\alpha(1-f)\eta_{act})]$$

酸素還元: $O_2 + 4e^- = 2O^{2-}$ J_0 : 交換電流密度、 n : 電子数

燃料酸化: $2H_2 + 2O^{2-} = 2H_2O + 4e^-$

- ・劣化現象と関係する交換電流密度 J_0 の時間依存性を検討中。
 - ・電極表面の活性点変化、微構造変化などを考慮。
- 空気極表面が失活し、反応機構が変化して関与する電子数などが変化する場合は、その効果も考慮必要

前PJ成果 Cr被毒シミュレーション: 京大 岩井教授グループ

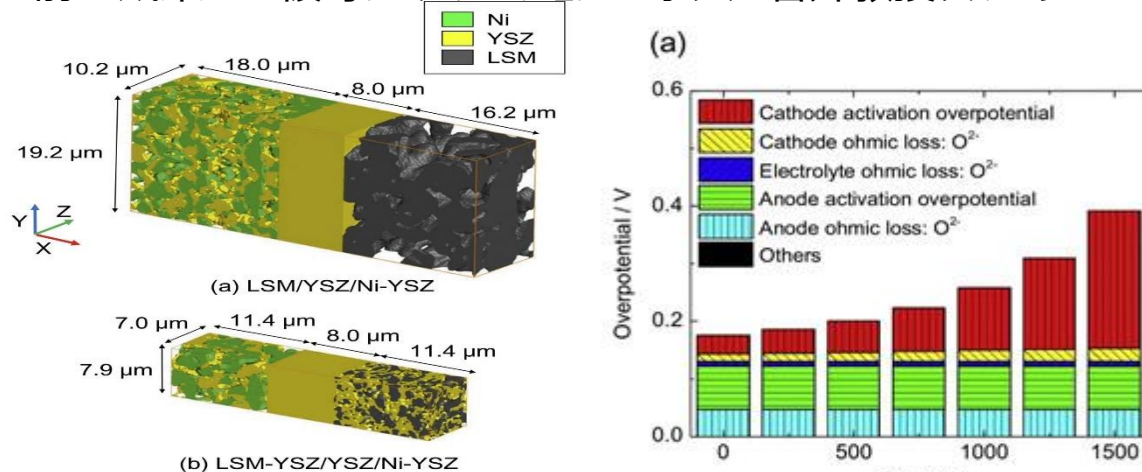


Fig. 1. Schematic image of the calculation domains. (a) LSM/YSZ/Ni-YSZ and (b) LSM-YSZ/YSZ/Ni-YSZ.

K. Miyoshi et al. / Journal of Power Sources 326 (2016) 331e340

本PJ: 複数劣化過電圧を考慮

空気極性能劣化

- 空気極被毒
- 空気極内組成変化
- 空気極微構造変化

燃料極性能劣化

- 燃料極被毒
- 燃料極内Ni移動
- 燃料極微構造変化

上記様々な劣化要因の、

- ・複合的影響
 - ・劣化影響時間
 - ・影響場所、面積
- 等を考慮、さらに**オーム損分・ガス拡散等**も考慮

■セル、スタックの総合的なシミュレーションを検討中

4. 今後の見通しについて

(1) 実用化・事業化のイメージ（成果がどのように使われるか）

先進評価・解析技術のうち、規格・標準への技術データとして使用できるものは規格策定へ貢献
セルスタック応力解析シミュレーションは、汎用ソフトに組み込み公開、販売へ
AI機械学習、欠陥判別などの画像解析技術については、企業が持ち帰り生産性向上、一部知財化実施

(2) 実用化・事業化に対する今後の課題と対応方針

多くの企業が使用できる開発成果については、適正な管理をしつつ実施許諾等を検討
研究開発の成果発表と権利化・技術の普及を考慮しつつ適正に対処

(3) その他の取り組み

本燃料電池プロジェクト事業に参画する他のプロジェクト(プロトン、rSOC)とも連携する
SOFC-ECシステム技術を考慮した関係者との技術的情報交換なども進め、ニーズを把握する
脱炭素に向けたSOFC-ECの役割、商用化・普及への技術的な必要性とその評価も調査する