

発表No. A-34

**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
研究開発項目 I 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)**

参画機関（委託先）

パナソニックホールディングス株式会社

○国立研究開発法人
産業技術総合研究所

国立大学法人 九州大学

国立大学法人 宮崎大学

参画機関（再委託先）

国立大学法人 京都大学

国立大学法人 群馬大学

発表者 ○水谷 安伸

2022年7月28日

参画機関（研究協力企業）

イムラ・ジャパン株式会社

住友電工株式会社

株式会社IHI

三井金属鉱業株式会社

株式会社ノリタケカンパニーリミテド

株式会社エア・リキード・ラボラトリーズ

東京ガス株式会社

東邦ガス株式会社

連絡先：産業技術総合研究所
極限機能材料部門 水谷安伸
E-mail:yas-mizutani@aist.go.jp
TEL:052-736-7569

事業概要

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

説明略

1. 期間

開始：2020年7月
終了（予定）：2025年3月

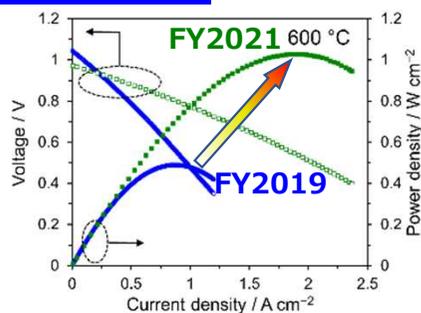
2. 最終目標

開発目標	目標値
発電効率の向上	発電効率65%以上70%を見通す
出力密度の向上 空気極高性能化	出力密度 $>1.3 \text{ W/cm}^2$ @ 500°C 分極 $<0.1\Omega\text{cm}^2$
耐久性向上	電圧低下率 1%/1000hr以下

3. 成果・進捗概要 WP2 高効率・高出力密度セルの開発

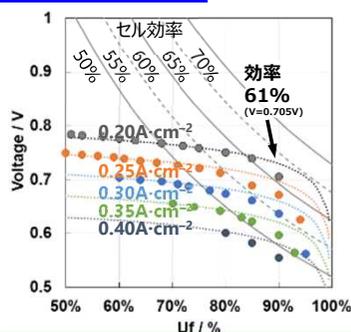
研究開発テーマ	実施機関	成果・トピックス
①セル高出力密度化に向けた電極/電解質マイクロ界面設計	九州大	新規な空気極/電解質界面構造を提案、効果確認 ダブルコラムナー構造電極の試作・評価
②革新的プロセスによるセル化技術開発	産総研 京都大 群馬大	BZYb電解質の薄膜化により出力密度向上 遷移金属の拡散を抑制する界面接合プロセス 易焼結性のBZYbナノ粒子を合成
③高燃料利用状態での動作実証と、耐久向上のための劣化抑制技術の開発	パナソニック 宮崎大	高燃料利用率の発電と発電効率確認 耐久性向上と劣化メカニズムの解析
④機械学習を用いたPCFCセル・材料の性能予測と製造プロセス最適化提案	宮崎大 九州大 産総研	プロトン輸率予測の学習モデルを構築 仮想組成の合否判定ツールの開発と熱膨張率予測 機械学習用データベースの構築

出力密度向上



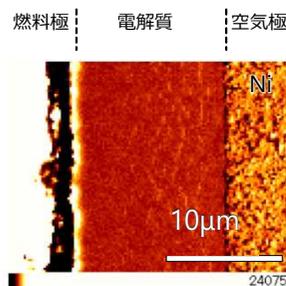
- 出力密度を2倍に向上
2019年度 0.5W/cm^2 @ 600°C
⇒2022年度 1.0W/cm^2 @ 600°C
(海外トップランナーと同等以上)

発電効率向上



- 燃料利用率90%の発電に成功 (SOFCでは75~85%)
- 最高発電効率は61% (中間目標の55%を超える)

耐久性向上

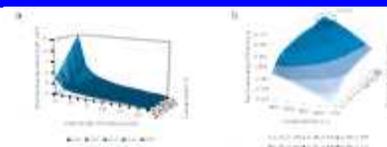


- 空気極側の劣化が主要因
- SOFCでは見られない劣化挙動を観測 (電解質中Niが偏析) 【WP3/外部PJ連携の成果】

機械学習による研究開発加速

- 電解質のプロトン伝導度、輸率の予測システム構築
- 機械学習用データベース構築

セル性能予測モデル構築

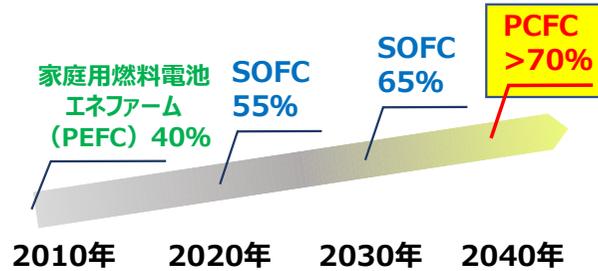


- 材料物性およびセル仕様から高精度にセル性能を予測 【WP2/WP3横国大連携成果】

1. 事業の位置付け・必要性

次世代SOFCのニーズ

1. 発電効率の向上
2. 長寿命化
3. 付加価値の向上
4. 水素社会への貢献

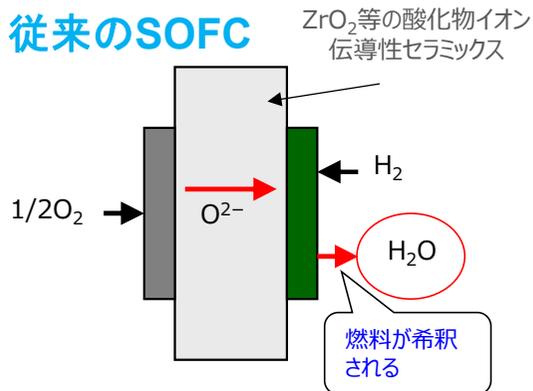


研究開発の背景

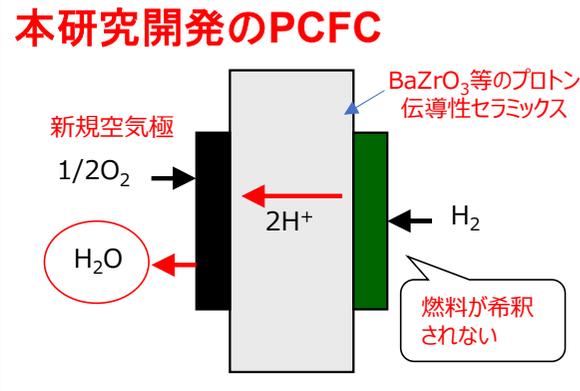
定置用燃料電池の飛躍的な普及拡大のためには、

- (1) 発電効率向上によるモノジェネ市場への普及拡大（グリッドパリティの実現）
- (2) CO₂排出削減、**グリーン燃料対応**による企業のRE100ソリューションへの対応（低炭素から脱炭素）が求められている

従来のSOFC



本研究開発のPCFC



研究開発の最終目的、アウトカム

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

PCFCの特長

- ① **600℃以下の中低温域で動作可能**
SOFCよりも作動温度が低いメリット（低コスト、急速起動停止）
- ② **理論的に高い発電効率の実現可能**
（アノードで燃料が希釈されない）
⇒ 高燃料利用率 × 高電圧 = 高効率
- ③ **水素関連デバイスへの応用展開が可能**
⇒ 水素燃料電池、高効率水素製造
- ④ **貴金属不要で低コスト**

2. 研究開発マネジメントについて

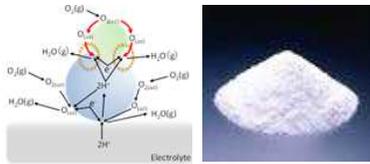
説明略

研究開発目標

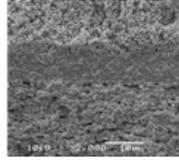
1. 発電効率の向上：発電効率65%以上を実証、70%を見通す
2. 出力密度の向上：セルの出力密度 $>1.3\text{W}/\text{cm}^2@500^\circ\text{C}$ （低温作動）
空気極抵抗： $<0.1\Omega\text{cm}^2@500^\circ\text{C}$
3. 耐久性向上：電圧低下率 1%/1000hr以下
4. システム検討：単セルの性能を検証し、システムの机上検討を行う

研究開発実施体制

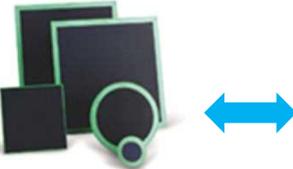
・WP1（電極材料開発）、WP2（セル開発）、WP3（評価解析）の3事業が連携して課題解決



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



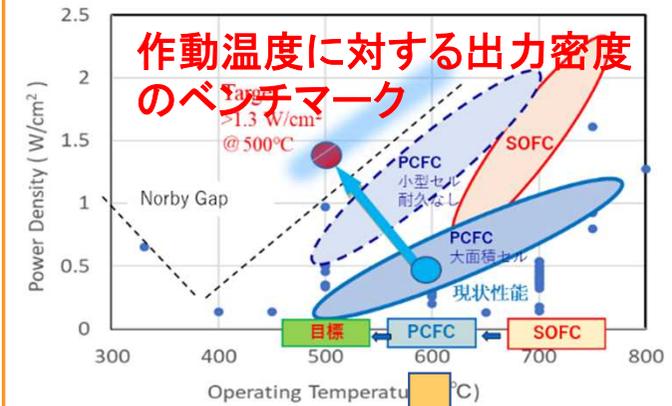
WP3 セル評価・アプリケーション研究

研究開発マネジメント体制

- (1) 研究開発マネジメント：PL意見交換、外部有識者、3GL会議、コアメンバー会議
- (2) 研究開発推進：全体会議、WP進捗会議、サテライトミーティング、Ad-Hoc会議
- (3) 知財・連携：知財検討委員会、技術検討委員会

目標設定の考え方

- (1) 市場からの要求性能
- (2) 国内外文献調査からベンチマーク

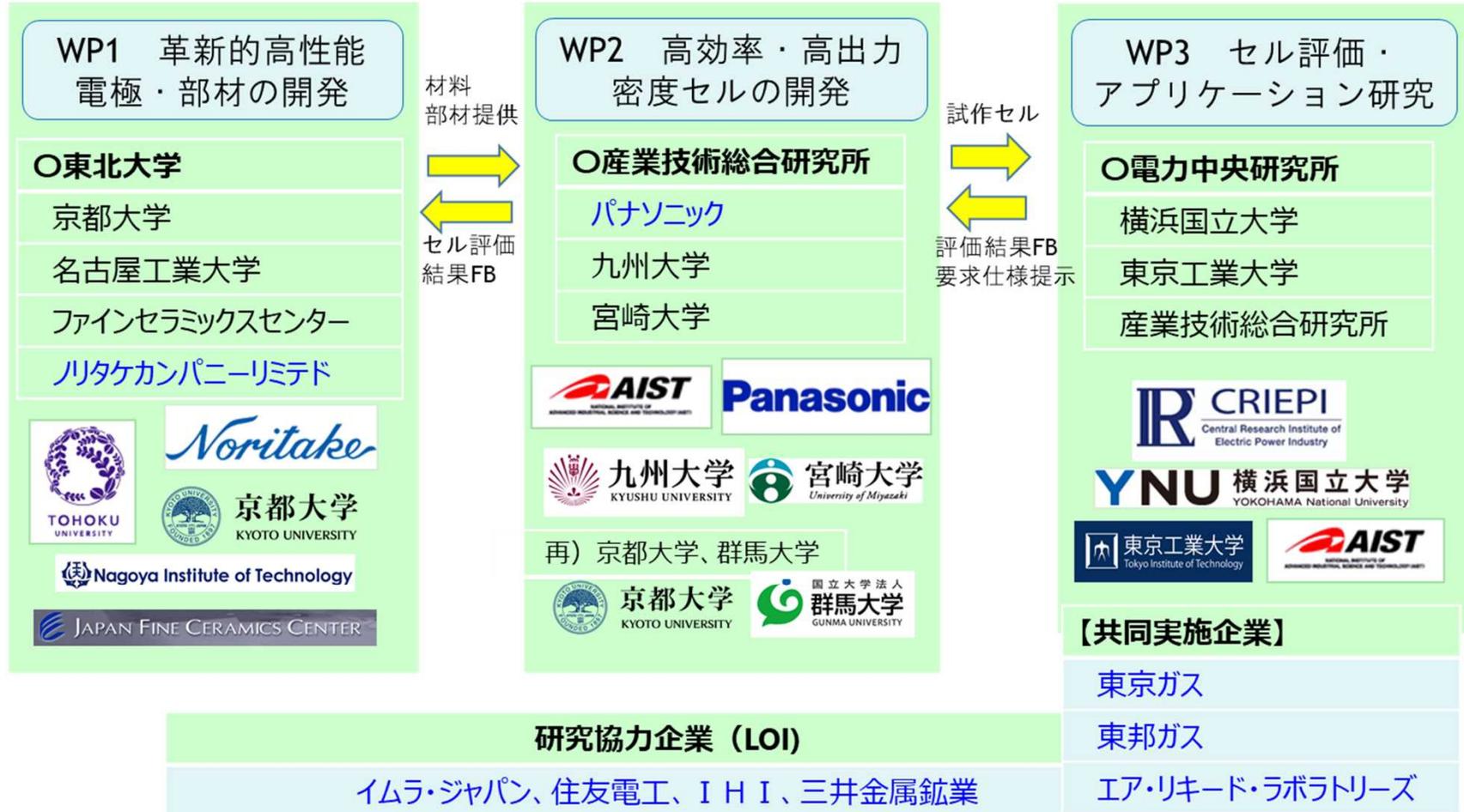


達成すべきセル性能



【参考】 研究開発実施体制（WP1~WP3全体の参画機関および研究協力企業）

説明略



○: 代表機関 (GL)

研究協力企業 (関心表企業) からのアドバイス

共同実施企業 (ユーザー企業) のご協力

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

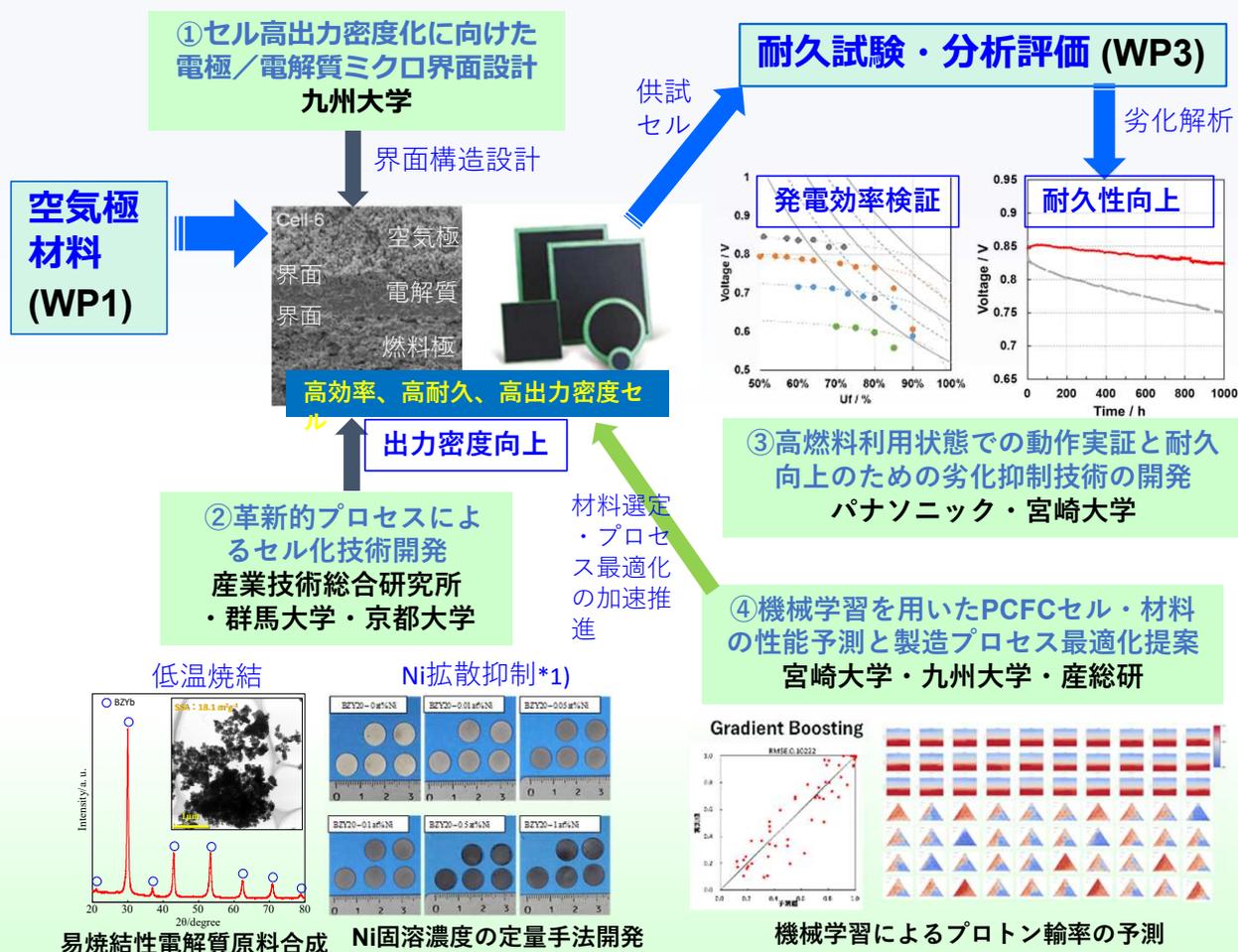
成果報告



WP1～WP3が連携して事業推進、WP2はセル開発を担当

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 (研究開発体制と実施テーマ)



○開発目標

- 出力密度: 出力密度 > 1.3 W/cm² @ 500°C
- 発電効率: 65%以上70%を見通す
- 耐久性: 電圧低下率 1%/1000hr以下

○アプローチ

- 電極/電解質界面構造 (九州大学)
- 新規なセル製造プロセス (産総研、群馬大、京大)
- 高効率実証、耐久性向上 (パナソニック、宮崎大)
- 機械学習による研究加速 (宮崎大、九大、産総研)

○実施にあたって

- NEDO先導研究 (~2019) までの成果を活用
- WP1と連携して空気極
- WP3と連携して評価解析

*1) Niの拡散はセル性能を低下させる要因の1つ

3. 研究開発成果 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) その1

研究の目的とねらい

高出力密度、高効率なPCFCを実現するための要素技術

- ・ PCFC空気極側のIR損と分極の低減 → 高出力密度化
- ・ ホール伝導による電子リーク抑制 → 高効率化
- ・ 遷移金属相互拡散の抑制 → 高出力密度、高効率化

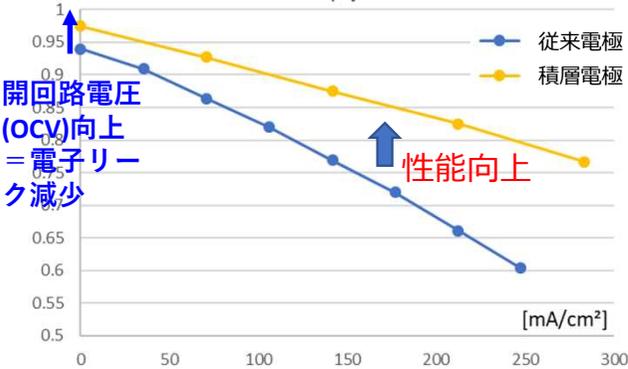
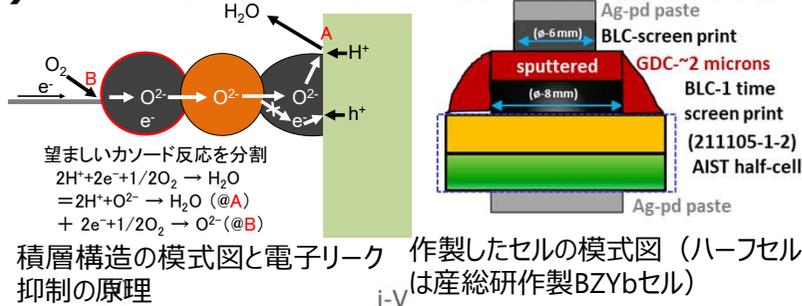
研究開発目標、アプローチ

電極と電解質のマイクロ界面エンジニアリングにより、電極/電解質界面抵抗の低減および高プロトン輸率化を図る

- ・ カソード電子リーク抑制積層界面構造
- ・ カソード/電解質マイクロ界面構造
- ・ ダブルカラムナー層の導入

研究成果、トピックス

1). 積層構造カソードによるプロトン輸率の向上



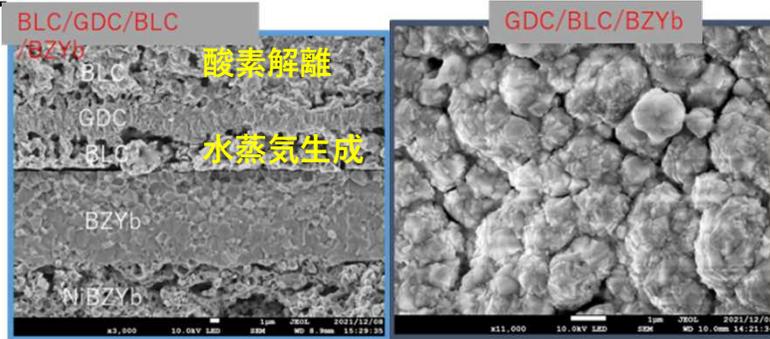
作製したセルの模式図 (ハーフセルは産総研作製BZYbセル)

BZYb電解質上にBLC電極/GDC電解質/BLC電極の積層構造 (左)、GDC電解質層は想定通りの多孔質構造 (右)

- ・ スパッタ法で作製したGDC層とBLC電極層を積層したカソードにより、燃料電池性能向上と電子リークの抑制を両立

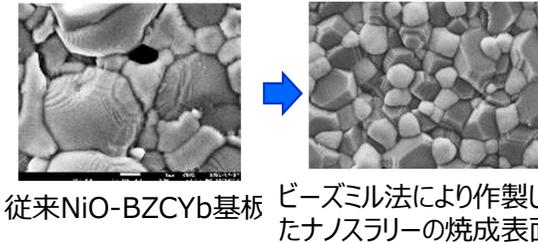
左図：従来電極および積層構造電極を用いたセルの燃料電池特性の比較：積層構造電極により、開回路電圧、発電性能ともに向上(ハーフセルは産総研作製BZYbセル)

*GDC: Gd doped Ceria, BLC: BaLaCoO₃

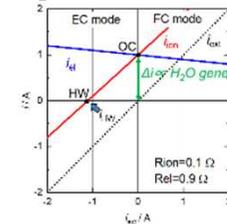


2). アノード機能層の作製

- ・ NiO-BZCYbのビーズミルスラリーにより従来よりも微細な緻密コンポジット構造の作製に成功→今後、高性能セルに展開



3). 電子リーク定量法の確立



- ・ 水蒸気生成量測定、Hebb-Wagner分極により、電子リーク量、イオン輸率の定量法を開発 → 効果の定量的評価に活用する

※Hebb-Wagner分極：「イオン電流 = 0」の状態

3. 研究開発成果

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) その2

研究成果、トピックス

4) 界面へのPr_{0.8}Ce_{0.2}O₂/BZYbダブルカラムナー層の導入効果(パナソニック連携)

LSCF/BZYb-Pr_{0.2}Ce_{0.8}O₃/BZYb/Ni-BZYb

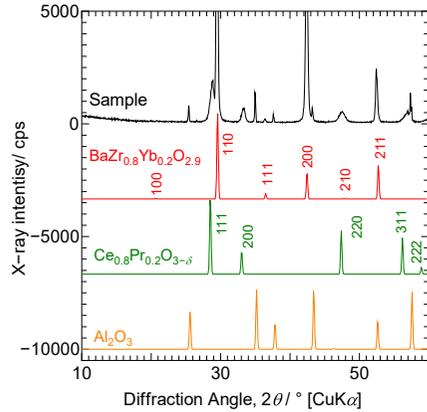


図 作成したBZYb-PrDCダブルカラムナー層のXRD

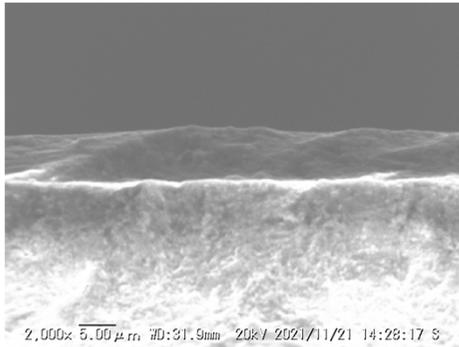


図 作成したBZYb膜のSEM像とXRD測定結果

パナソニックセルLSCF/BZYb/Ni-BZYb
ダブルカラムナーセルSSC/BZYb-PrDC/BZYb/Ni-BZYb

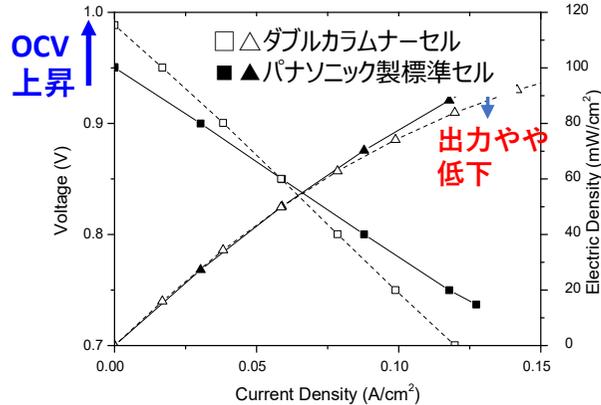
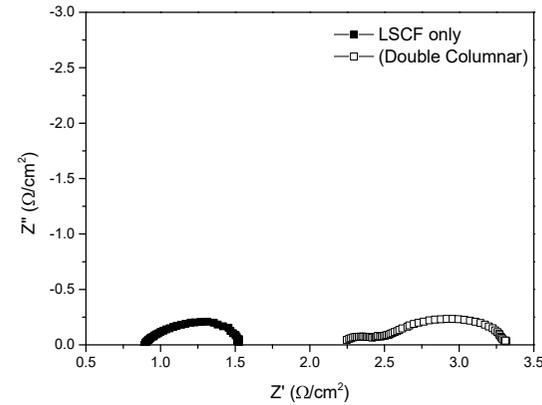
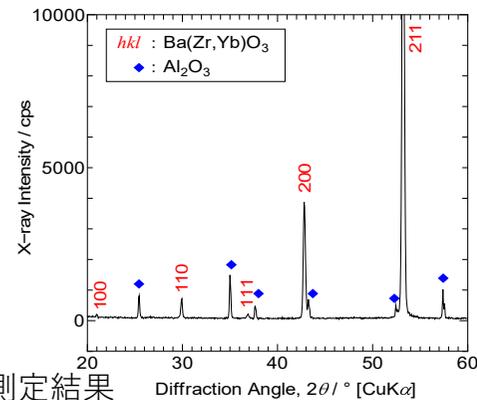
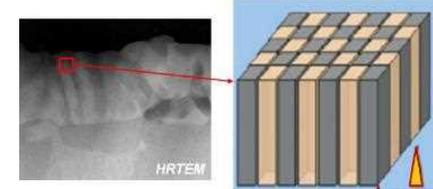


図 作成したBZYb-PrDCダブルカラムナー層を有するBZYbセルの発電結果と内部抵抗のインピーダンス比較



ダブルカラムナー構造



ダブルカラムナー層の導入により、開回路電圧(OCV)上昇
IR損が増加したため出力はやや低下→今後、組成と成膜条件で改善

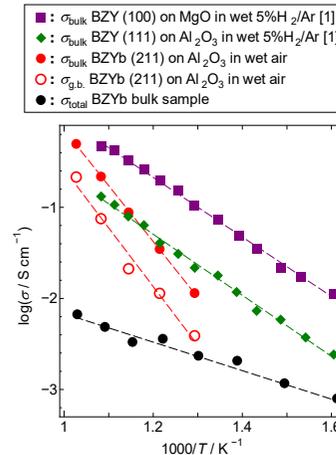


図 BZYb膜の伝導度の温度依存性

PLDにより配向したBZYbの薄膜を作成でき、伝導度が大きく向上できることを見出した。
PLDで配向を制御した薄膜を作成できると、出力の向上が期待できる。

1] D. Pergolesi et al., Nature Materials, 9 (10), 846-852 (2010), DOI10.1038/nmat2837

3. 研究開発成果 ②-1 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）

研究開発概要（背景、目的、課題）

プロトン伝導セラミック燃料電池（PCFC）普及のためには、コストに直結する単セル出力密度を向上させることが必要

プロトン伝導セラミックスの難焼結性のため、セル化における焼結温度が非常に高いことが課題（1500℃以上）

↳ 燃料極のNiが電解質に拡散、微細構造制御が困難

研究開発目標、アプローチ

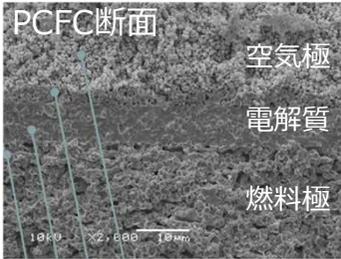
「①低温反応焼結による低温焼結プロセス」と「②部材間の強固な界面を実現する界面接合プロセス」を軸にしたセル化プロセス開発に取り組み、出力密度向上を目指す

FY2019 PJ前	FY2021 目標	FY2022 目標	FY2024 目標
0.5 W/cm ² (@600℃)	0.7 W/cm ² (@600℃)	1.3 W/cm ² (@600℃)	1.3 W/cm ² (@500℃)

研究成果、トピックス

【現状プロセスの改良、最適化によりセル出力密度を向上】

「空気極/電解質の界面接合状態の改善」+「電解質薄膜化」+「燃料極の構造制御」により、出力密度を大きく向上し、1.0W/cm²を達成（cf. 従来セル0.5W/cm²、2022/06中間目標0.7W/cm²）



空気極
電解質
燃料極

空気極の
界面接合状態の改善

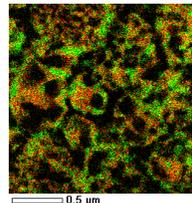
中間機能層の採用

電解質の緻密薄膜化

共焼結による強固な界面

<技術1：空気極/電解質の界面接合状態の改善>

- 低気孔率・薄膜化空気極により界面接合面積を拡大し、電極抵抗を低減



G: (La,Ba)CoO₃ (LBC)

R: Ba(Zr,Yb)O₃ (BZYb)

空気極内では、LBCとBZYbがナノレベルで複合化

<技術3：燃料極の構造制御>

- 気孔率増加によりガス拡散性を改善

気孔率：26%

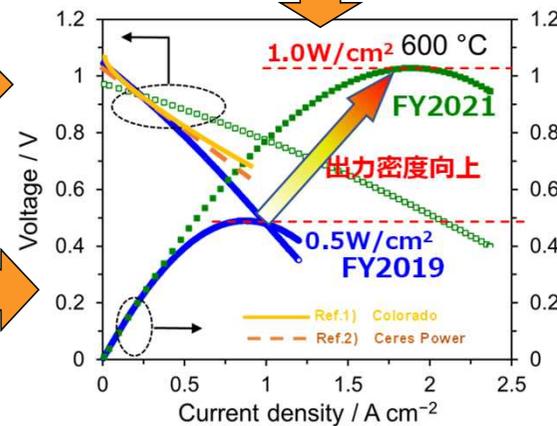
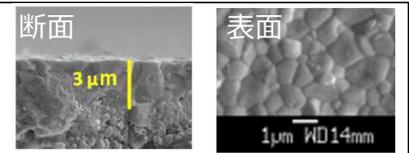
気孔率：37%

電極抵抗：
0.42 Ωcm²

電極抵抗：
0.15 Ωcm²

<技術2：電解質の薄膜化>

- セル抵抗が電解質膜厚に一次線形的に依存 → 電解質薄膜化の有効性を定量的に確認
- ガスリークが無い緻密薄膜電解質を実現（3μm）



★海外トップランナーとのベンチマーク比較

PCFCトップランナーのコロラド鉱山大学/Fuel Cell Energy社およびSOFCで600℃作動を実現しているCeres Power社セルを上回る性能
★ただし、課題として開回路電圧が低下しており、リーク電流の増加が懸念事項

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. 研究開発成果 ②-2 金属元素拡散を抑制する界面接合プロセス開発 (京都大学)

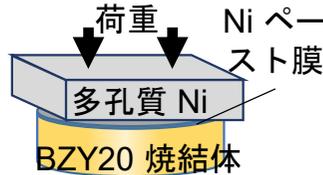
研究開発概要(背景、目的、課題)

【課題】共焼結プロセスでは燃料極から電解質へNiが拡散、プロトン伝導率と輸率が低下

【目的】各部材間の金属元素の拡散を抑制するプロセスの開発

界面接合プロセス

≦1100 °C, 還元雰囲気, 1 時間程度の熱処理により金属Ni多孔体とBZY20焼結体を接合し、電解質を研磨 (cf. 共焼結法では≧1400 °C)



研究開発目標、アプローチ

界面接合プロセスの実現に向け、下記を研究開発目標とした要素研究を実施する。

- 金属Ni多孔体を焼結済み電解質へ、Niの拡散を完全に排除した状態で接合できることを実証
- このような接合体が従来型の共焼結型のPCFCよりも高い開回路電圧(1.1V)を示し、従来型と同等の内部抵抗($\sim 2 \Omega \text{ cm}^2$)であることを示す

研究成果、トピックス

テーマ: BZY電解質上へ高性能アノード機能を備えたNiペースト膜を作製できる条件の切り分け、確立

BZY焼結体に塗布したNi膜の集電性に問題はないが、電極抵抗が大きい
→ 主要因は、三相境界の不足であると推定

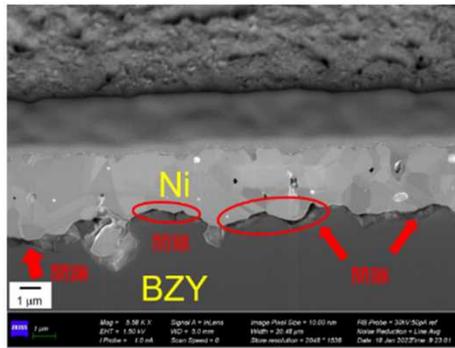
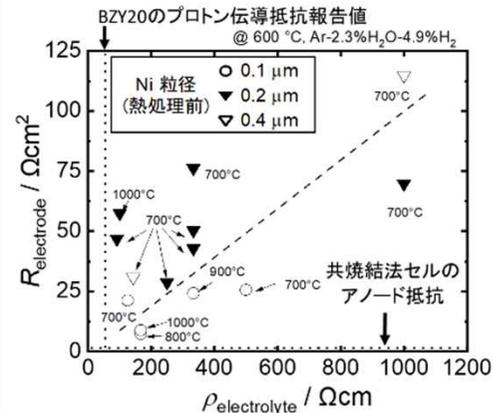


図1 BZY焼結体へのNiペースト塗布により作製した対称セルの過電圧および断面像

テーマ: BZY電解質に拡散・固溶した微量Niの化学状態判別・定量評価法の確立とNi拡散係数の評価

0.1 at%以下のごく微量の固溶Niの濃度が色彩により粗く定量可能

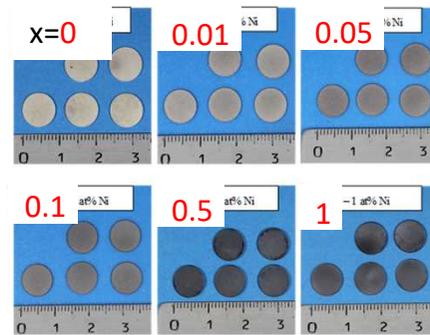


図2 BZY20 - x at% Ni ペレット(焼結後)

微量固溶Niが水素雰囲気中でNi金属(強磁性体)として析出 → 水素雰囲気中BZYへのNi固溶限は0.024%未満まで低下

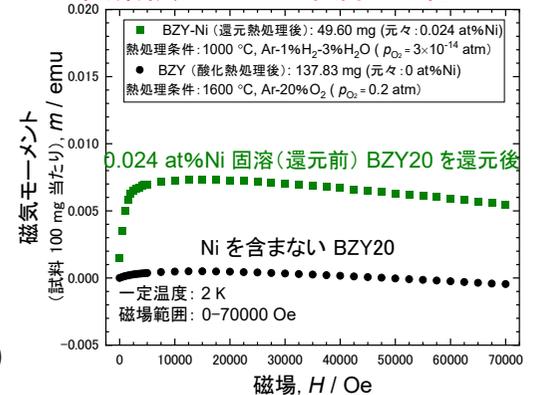


図3 BZY20 - 0.024 at% Ni 粉末の水素還元後の磁化曲線

3. 研究開発成果 ②-3 革新的プロセスによるセル化技術開発 (群馬大学)

研究開発概要(背景、目的、課題)

PCFCでは、**プロトン伝導体原料粉末が難焼結性**であり、共焼結の際の燃料極粒子の粗大化や電解質への**Niの拡散**により、期待される性能が得られていない。そこで、本研究では、**実用化を睨んだスケールアップ可能な易焼結性プロトン伝導体ナノ粒子合成プロセスの構築**を目的とする。

研究開発目標、アプローチ

[研究開発目標]

焼結助剤フリーで1500°C以下で緻密化可能な①BaZr_{0.8}Yb_{0.2}O_{3-δ} (BZYb)および②BaZr_{0.4}Ce_{0.4}Y_{0.1}Yb_{0.1}O_{3-δ}(BZCYYb4411)ナノ粒子の合成

[アプローチ]

既存の工業設備で実施可能な液相合成(共沈)プロセス

研究成果、トピックス

【① BaZr_{0.8}Yb_{0.2}O_{3-δ} (BZYb)ナノ粒子の合成】

- ・ 従来よりも低温でBZYbを生成する共沈法を開発するとともに、50g/Batchへのスケールアップを達成。
- ・ 1500°Cの焼成で相対密度~98%を達成

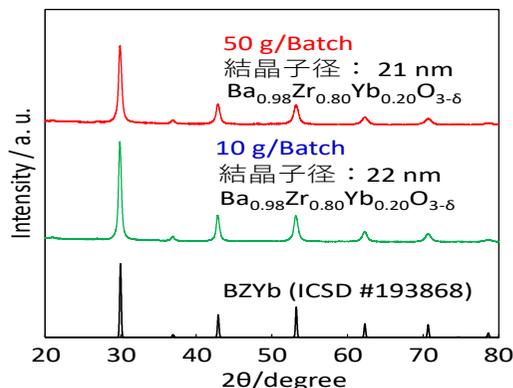


図1 異なるバッチスケールで合成したBZYbナノ粒子粉末のXRDパターン

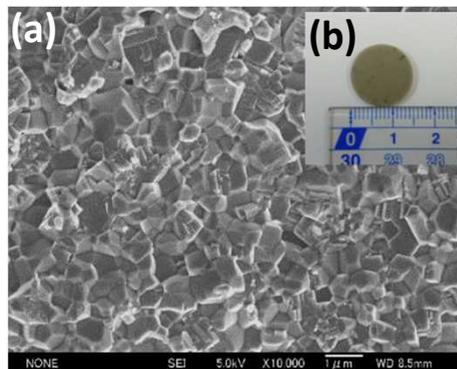


図2 1500°Cで焼成したBZYbペレットの(a)微細構造および(b)外観

【② BaZr_{0.4}Ce_{0.4}Y_{0.1}Yb_{0.1}O_{3-δ}(BZCYYb4411)ナノ粒子の合成】

- ・ BZYbの合成プロセスを応用し、原料塩の選択等により、従来プロセスでは困難なBZCYYb4411単相の粉末合成に成功
- ・ 1300°Cの焼成で相対密度~95%を達成

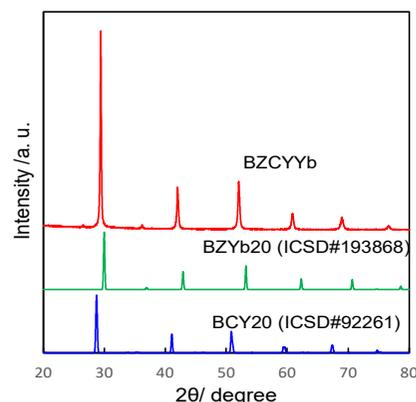


図3 BZCYYb4411ナノ粒子粉末のXRDパターン

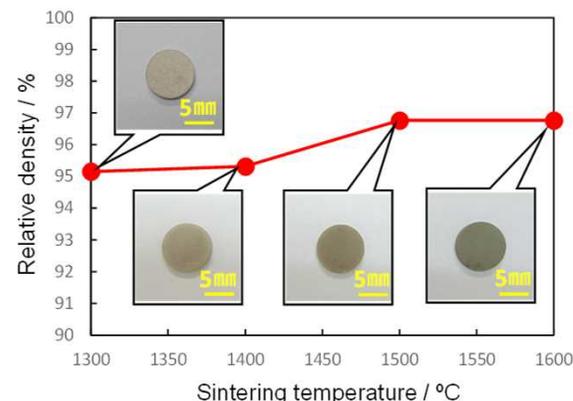


図4 BZCYYb4411ペレットの緻密化挙動

3. 研究開発成果 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)

研究開発概要(背景、目的、課題)

PCFCの実用化に向け、①高効率実証と②耐久向上に向けた技術開発を実施

- ①高効率実証
高燃料利用状態での発電実証
- ②耐久向上
劣化メカニズムの解明と、それに基づく劣化率の改善

研究開発目標、アプローチ

- ①高効率実証：目標DC効率55%以上
φ60mmの単セルにより供給ガス流量、電流値を規定した条件で、高燃料利用状態での発電実証を実施
- ②耐久向上：セル電圧低下率10%/kh以下
1000hの定電流試験により電圧低下率を算出し(初期電圧0.85V)、評価後セルの解析により劣化要因を解明

研究成果、トピックス

①高効率実証

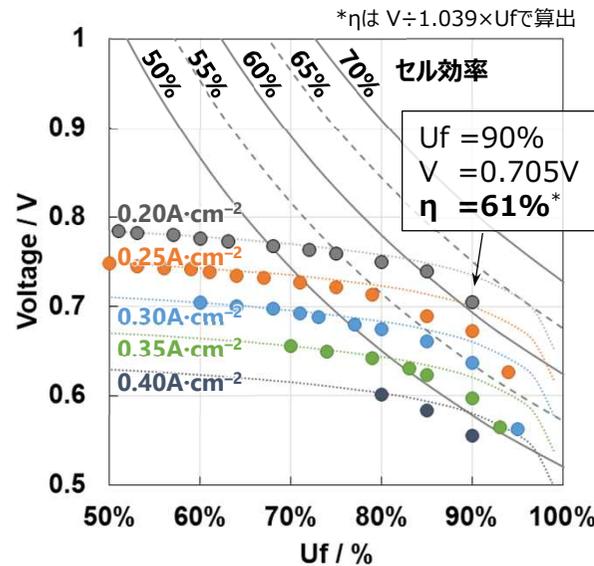
研究成果：
Uf=90%で効率61%を確認

残課題：
発電性能向上

セルサイズ φ60mm

セル構成
燃料極 Ni-BaZrYbO_{3-δ}
電解質 BZYbO_{3-δ}
空気極 LaSrCoO_{3-δ}

燃料極ガス：
wet 50%N₂/H₂
空気極ガス：
wet Air (U_{air}=30%@0.3A/cm²)



図XX 各電流密度でのセル電圧の燃料利用率依存性

②耐久向上

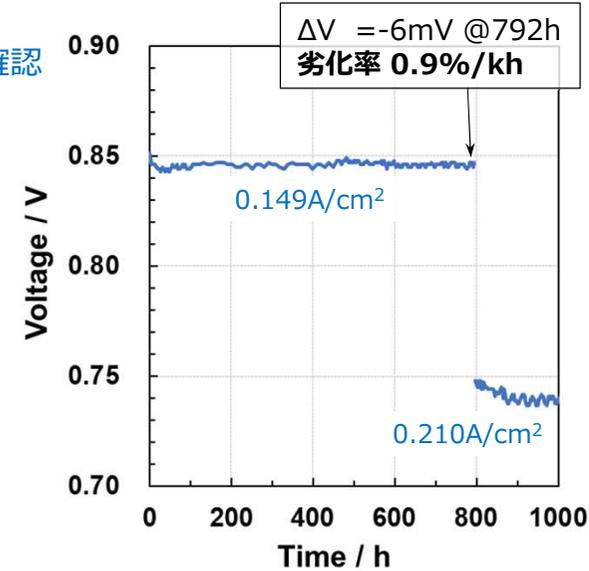
研究成果：
LBC-BZYb空気極で0.9%/khを確認

残課題：
再現性、劣化メカニズムの解明
発電性能向上(電流密度向上)

セルサイズ φ20mm

セル構成
燃料極 Ni-BaZrYbO_{3-δ}
電解質 BZYbO_{3-δ}
中間層 BaCeZrYYbO_{3-δ}
空気極 LaBaCoO_{3-δ} + BZYb

燃料極ガス：
97%H₂-3H₂O
空気極ガス：
97%Air-3%H₂O

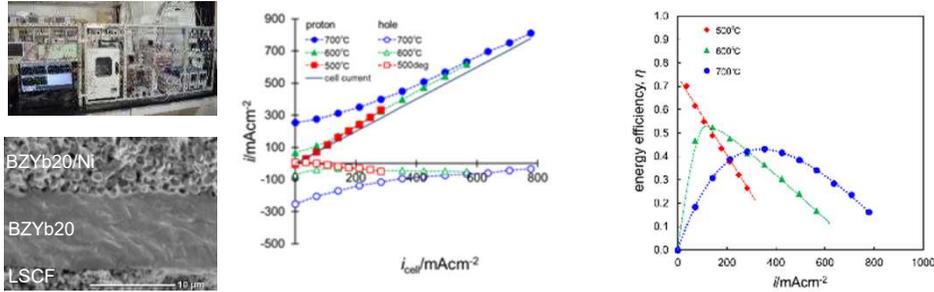


図XX 1000h連続通電時の電圧推移

3. 研究開発成果 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 (宮崎大学)

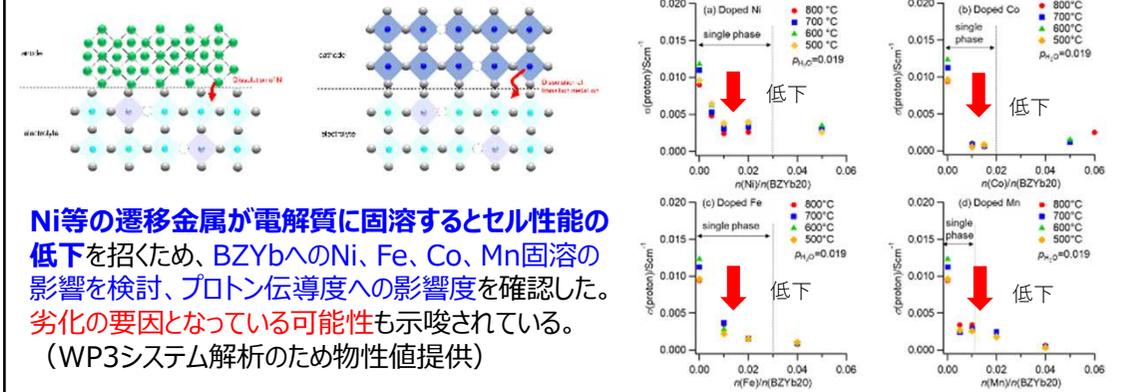
研究成果、トピックス

標準セルの水素電流と発電効率

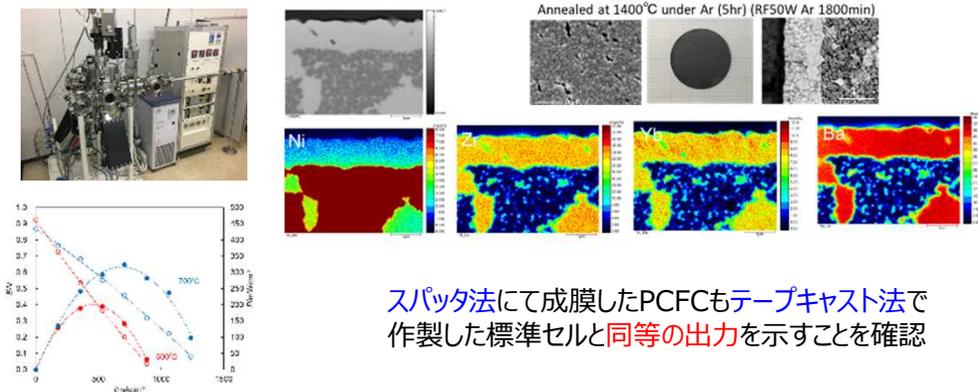


効率向上のためには漏れ電流の定量的評価が重要であるため空気極の水蒸気分圧変化を精密測定し、水素イオン電流を評価
500°Cでは電子リークによる漏れ電流が無いことを確認

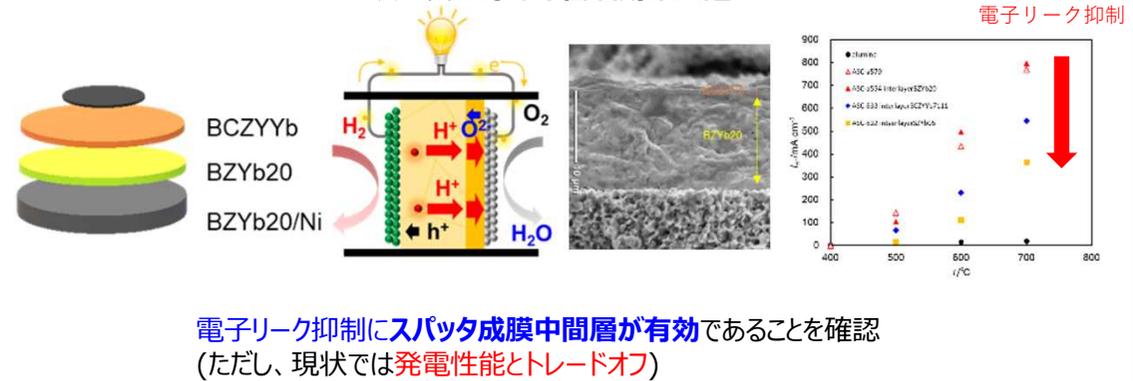
プロトン伝導度への遷移金属元素固溶の影響



スパッタにより製膜したPCFCの特性評価



スパッタによる中間層効果実証



1. Optimum dopant of barium zirconate electrolyte for manufacturing of protonic ceramic fuel cells

T. Kuroha, Y. Niina, M. Shudo, G. Sakai, N. Matsunaga, T. Goto, K. Yamauchi, Y. Mikami, and Y. Okuyama, Journal of power sources, 506 (2021) 230134 (パナソニック・宮崎大の連携成果)

3. 研究開発成果

④-1 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)

研究開発概要(背景、目的、課題)

機械学習により材料探索の時間やコストを削減し、さらにPCFC最適構成、プロセス推薦システムを開発することで機械学習をPCFC開発の加速ツールとして利用する



研究開発目標、アプローチ

中間目標 (2022年度6月)

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する。
→目標達成と共に本プロジェクト開発のツールとして活用するためのソフトを開発

最終目標 (2024年度末)

機械学習による研究開発の加速：機械学習により高効率・高出力密度セルを実現するための電解質、中間層を選定する。

研究成果、トピックス

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：加速ツールとなるソフトウェア開発

①機械学習用データベースの開発とデータ収集 (産総研野村G)

- Web APIによるデータベースの操作画面
- API経由で取得したデータの表示
- データベースの構成



例：鉛蓄データの読み込み・表示

ID	組成	結晶構造	伝導率	熱膨張	化学膨張	CO2耐性	伝導率	熱膨張	化学膨張	CO2耐性
1	Ca0.8Sr0.2Zr0.8Yb0.2O3-δ	Perovskite	0.12	10.5	0.15	0.05	0.12	10.5	0.15	0.05
2	Ca0.8Sr0.2Zr0.8Yb0.2O3-δ	Perovskite	0.15	11.0	0.18	0.06	0.15	11.0	0.18	0.06
3	Ca0.8Sr0.2Zr0.8Yb0.2O3-δ	Perovskite	0.18	11.5	0.20	0.07	0.18	11.5	0.20	0.07
4	Ca0.8Sr0.2Zr0.8Yb0.2O3-δ	Perovskite	0.20	12.0	0.22	0.08	0.20	12.0	0.22	0.08
5	Ca0.8Sr0.2Zr0.8Yb0.2O3-δ	Perovskite	0.22	12.5	0.24	0.09	0.22	12.5	0.24	0.09
6	Ca0.8Sr0.2Zr0.8Yb0.2O3-δ	Perovskite	0.24	13.0	0.26	0.10	0.24	13.0	0.26	0.10



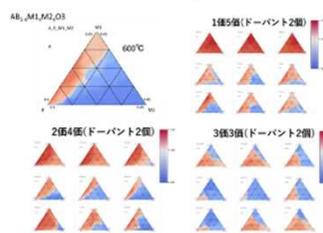
機械学習用のデータをローカルPC (産総研中部センター設置) 及びクラウド (Amazon Web Service : AWS) 上で管理、運用するデータベース (PCFC Database) を開発

データベースのプラットフォームを使用し、収集した結晶構造データ、熱膨張データ、化学膨張データ、CO2耐性データ、伝導率データ、輸率データをローカルPCで登録し、クラウドにアップロードして使用

- データベース運用サポートと機械学習 (状態図・相転移予測) モデル開発の外部委託先として「みずほリサーチ&テクノロジーズ株式会社」を選定
- 機械学習用データベース (PCFC Database) のプラットフォームを使用し、ローカルPC (産総研中部センター設置) 及びクラウド上での結晶構造データ、熱膨張データ、化学膨張データ、CO2耐性データなどの登録を継続中
- 登録結晶構造データの件数 (30種類、600個)
- 11-19系ペロブスカイト型酸化物 (16組成、500種)
 - CaZrO系 (ドーバント-In) 1組成、30種
 - SrZrO系 (ドーバント-Yb) 1組成、30種
 - BaZrO系 (ドーバント-In) 1組成、30種
 - BaZrO系 (ドーバント-Sr, Y, Yb, Ni) 6組成、170種
 - BaCeO系 (ドーバント-In) 1組成、30種
 - BaCeO系 (ドーバント-Y, Yb) 2組成、60種
 - Ba (Ce, Zr) O系 (ドーバント-Y, Yb) 4組成、150種
- 111-11系ペロブスカイト型酸化物 (14組成、199種)
 - LaMnO系 (ドーバント-A) 12組成、138種
 - LaMnO系 (ドーバント-Sr) 2組成、60種

②機械学習による物性予測可視化ソフトの開発 (宮崎大奥山G、九州大山崎G)

仮想組成の輸率予測



仮想組成の導電率・熱膨張予測



数百万個の仮想組成の予測結果を把握する可視化ソフトを開発

- ・定性的な情報を瞬時に把握することを可能にするヒートマップを開発
- ・定量的なプロトン伝導度、正孔伝導度、輸率、熱膨張の予測情報を把握し、電解質材料やカソード材料に適した物性を有する組成を把握するソフトを開発

まとめ：データベース、機械学習モデルを開発し、仮想組成の物性予測を実施するとともに、予測結果の可視化ソフトを開発し、加速ツールとして利用可能な環境を構築した。

今後、伝導度と熱膨張を踏まえて材料選定・探索の加速に役立てていく。

K. Nomura*, H. Shimada, Y. Yamaguchi, W. Shin, Y. Okuyama, Y. Mizutani, Phase Transitions, Thermal Expansions, Chemical Expansions, and CO₂ Resistances of Ba(Ce_{0.8-x}Zr_xY_{0.1}Yb_{0.1})O_{3-δ} (x = 0.1, 0.4) Perovskite-Type Proton Conductors, Journal of The Electrochemical Society, 169, 2 (2022)024516. (産総研の成果)

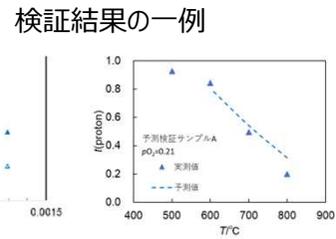
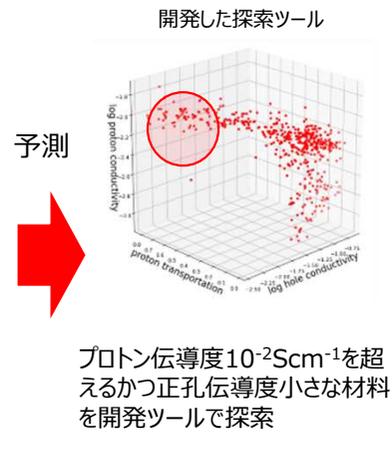
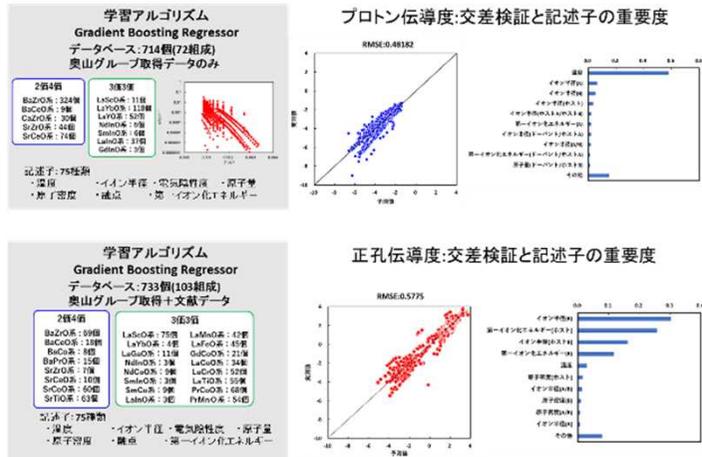
3. 研究開発成果

④-1 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)

研究成果、トピックス

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：機械学習による材料物性予測と仮想組成予測

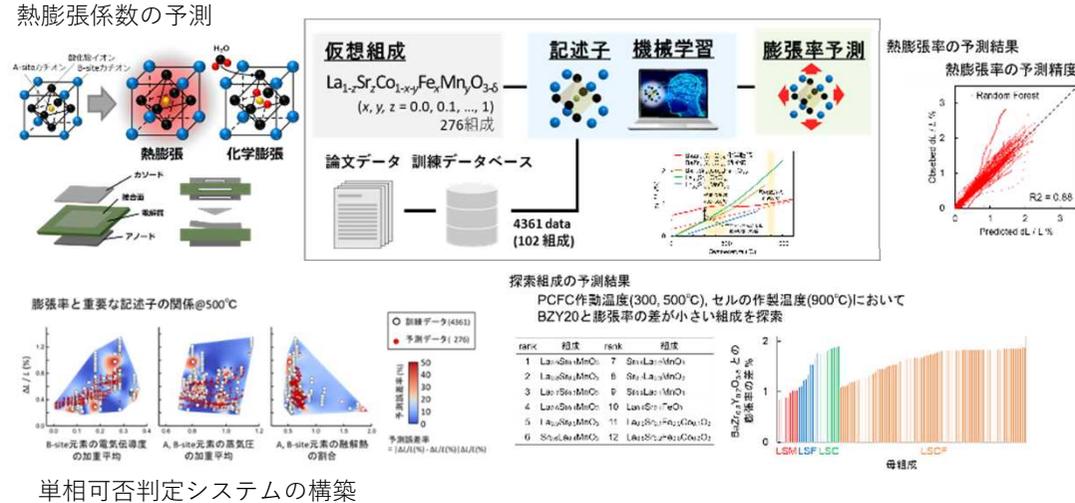
①プロトン伝導度、正孔伝導度、輸率の予測システムの構築 (宮崎大 奥山G)



600°Cで輸率0.8以上かつ 10^{-2}Scm^{-1} を超える電解質材料を機械学習から発見

- ・プロトン伝導度、正孔伝導度、輸率データを収集し、データ駆動型の機械学習による予測を実施
- ・228万組成の仮想組成の輸率予測を基に材料を選定し予測を検証
- ・予測結果はパナソニックにフィードバックした (セル開発の参考データ)

②熱膨張係数の予測と単相可否システムの構築 (九州大 山崎G)



- ・機械学習による熱膨張係数を予測する学習モデルを構築し、電解質候補材料であるBaZrO₃の膨張率とマッチングするカソード材料を探索するシステムを構築
- ・合成可否判定システムを検討し、予測した材料の最適な選定法を検証

辻川皓太、兵頭潤次、志賀元紀、奥山勇治、山崎仁丈、機械学習を用いたペロブスカイト酸化物におけるプロトン濃度の予測精度評価、燃料電池 20 (2021) 4 75-86. (九州大・宮崎大の連携成果)

Kenta Hoshino, Junji Hyodo, and Yoshihiro Yamazaki, Non-linear Behavior for Chemical Expansion in Yttrium-doped Barium Zirconate upon Hydration, Chemistry Letters (2021) (九州大の成果)

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

2021年度研究成果・トピックス（まとめ）

研究開発テーマ	実施機関	2021年度成果
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	<ul style="list-style-type: none"> ・界面エンジニアリング ・2層構造空気極を提案 ・ダブルカラムナー層導入
②革新的プロセスによるセル化技術開発	産総研	<ul style="list-style-type: none"> ・電解質薄膜化、プロセス／構造制御 ・出力密度を1.0W/cm²@600℃まで向上
	京都大学	<ul style="list-style-type: none"> ・電解質へのNi拡散を抑制するプロセス
	群馬大学	<ul style="list-style-type: none"> ・易焼結性電解質原料合成（BZYb, BZCYYb）
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	<ul style="list-style-type: none"> ・燃料利用率90%の運転に成功 ・発電効率61%(DC)を確認 ・電解質への遷移金属元素固溶の影響確認 ・効率、耐久性改善のための要素技術
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	<ul style="list-style-type: none"> ・プロトン伝導度、輸率の予測システム構築 ・熱膨張係数の予測と単相可否システム構築 ・機械学習用PCFCデータベース構築

プロジェクト最終目標	
開発目標	目標値
発電効率	発電効率65%以上70%を見通す
出力密度	出力密度>1.3 W/cm ² @500℃
耐久性	電圧低下率 1%/1000hr以下



2021年度成果

目標項目	実績
発電効率	DC61% 燃料利用率90%
出力密度	出力密度1.0 W/cm ² @600℃（2019の約2倍）
耐久性	電圧低下率 0.9%/1000hr

End of Presentation

ご清聴ありがとうございました

3. 研究開発成果（特許、論文、对外発表）

(1) 出願特許

・これまでに6件出願承認済、さらに出願予定あり

状況	出願機関	内容（タイトル）
出願済	名古屋工業大学	燃料電池材料のイオン二種（プロトン、酸化物イオン）の輸率評価法
		燃料電池電極材料のプロトン導電率評価法（出願手続き中）
出願予定	産業技術総合研究所	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
	パナソニック （発明者に奥山教授連名、米欧中に 出願可能性あり）	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
		電気化学セル評価ホルダ 膜電極接合体焼成用セッター
出願予定	ノリタケカンパニーリミテド	セラミックスインクジェット印刷用インクの製造方法

(2) 对外発表

・研究成果は知財出願後に積極的に对外発表、成果PR
・学会表彰4件の実績

発表種別	学会発表		論文発表	
	2022/3 発表済	2022/6 発表見込み	2022/3 投稿済	2022/6 投稿見込み
WP1	20	4	4	3
WP2	32	3	6	3
WP3	29	5	3	3
合計	81	12	13	9

(3) 成果普及活動

- ①展示会：
 - ・水素・燃料電池展（FC EXPO 2021）
 - ・国際ナノテク展(nano tech 2022)に出展、成果PR
- ②学会（特別企画セッション等）
 - ・日本セラミックス協会 第33回、第34回秋季シンポジウム
 - ・14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM 14) Symposium24
 - ・第30回SOFC研究発表会（NEDO特別セッション）
 - ・第124回SOFC研究会（2022/4/25開催）
 - 「プロトン伝導セラミックセル研究開発の最前線」
 - ・日本セラミックス協会セラミックス誌特集号（2022/11月号）



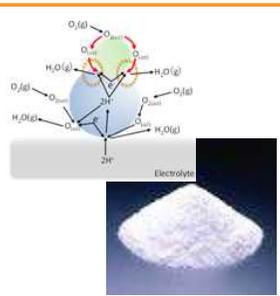
4. 今後の見通しについて (WP3プレゼンにて説明)

4. 今後の見通し (1)WP1~WP3 全体総括、今後の見通しと展望

説明略

(1) WP1 革新的高性能電極・部材の開発

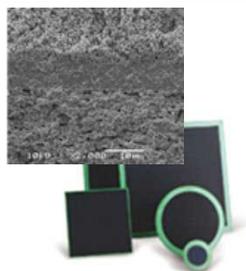
- ・電極反応機構の解明に取り組み、高性能化のための指針を提示
- ・空気極抵抗 $\sim 0.1\Omega\text{cm}^2$ @600 $^{\circ}\text{C}$ 、インクジェット印刷部材化
- ・計算と実験を融合した開発体制、物性評価手法の確立



材料

(2) WP2 高効率・高出力密度セルの開発

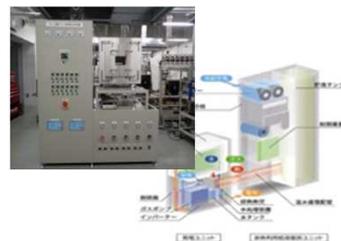
- ・出力密度を2倍に向上（海外トップランナーと同等以上）
- ・高効率の可能性を実証（発電効率61% 燃料利用率90%）
- ・セル性能、耐久性向上のための要素技術開発



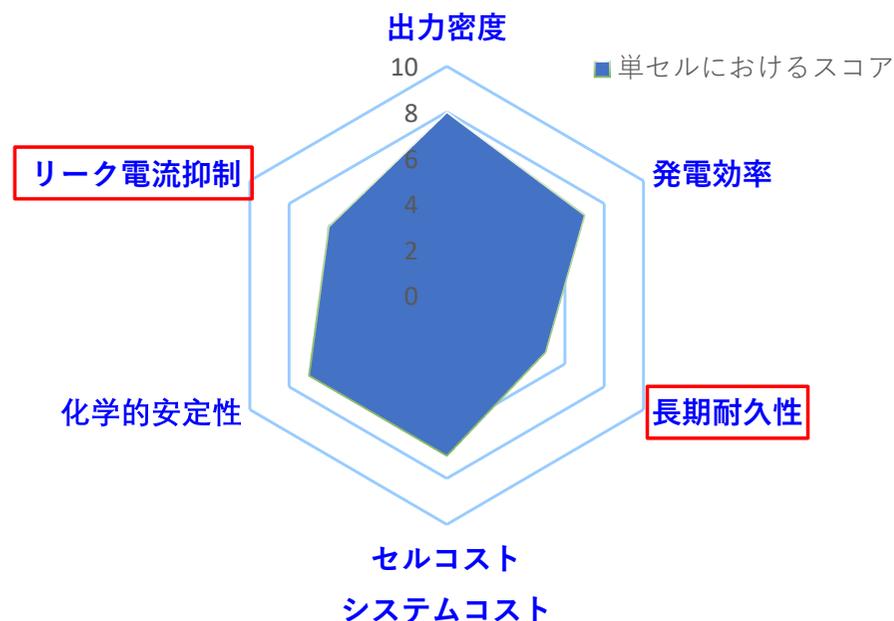
セル

(3) WP3 セル評価・アプリケーション

- ・PCFCセル評価のプロトコル、ユーザー企業を含めた評価体制を確立
- ・劣化メカニズム解明に向けた評価技術、耐久性向上開発のサポート
- ・セル/スタック/システム性能予測、コストエンジニアリング

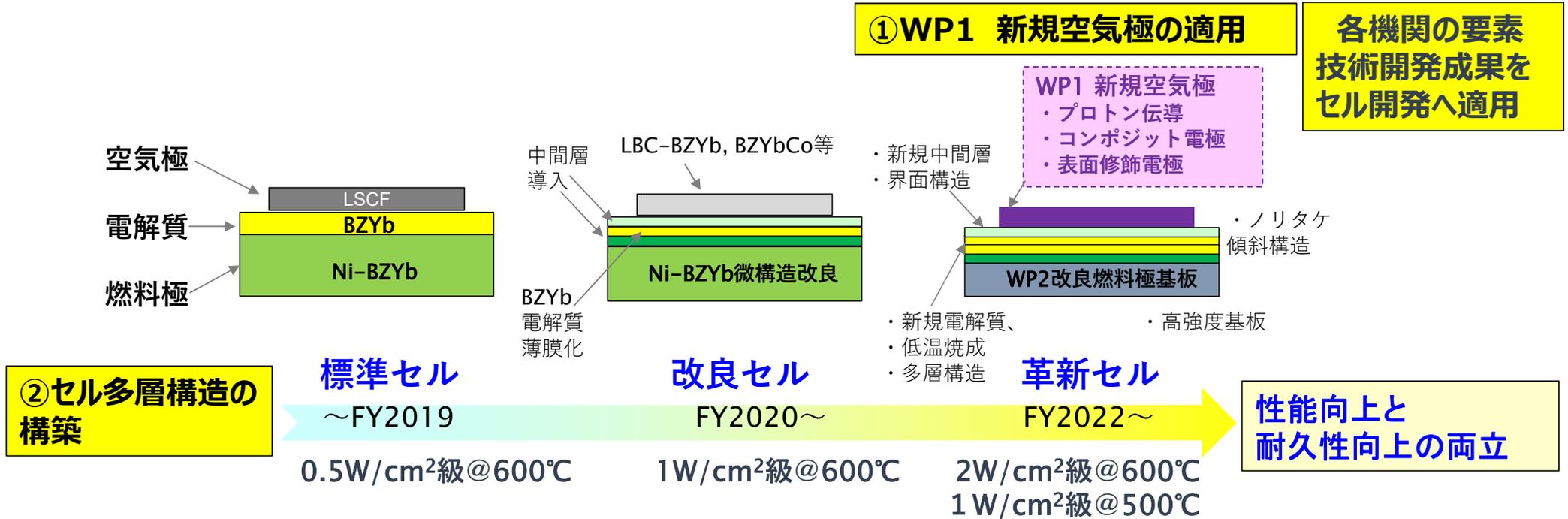


PCFCセル開発の達成度（自己評価）



- 600 $^{\circ}\text{C}$ のセル性能は実用に近いレベルまで達している
⇔ 500 $^{\circ}\text{C}$ では性能不足
- △ 長期耐久性およびリーク電流抑制が課題
⇔ セル性能向上はリーク電流の増大とトレードオフ

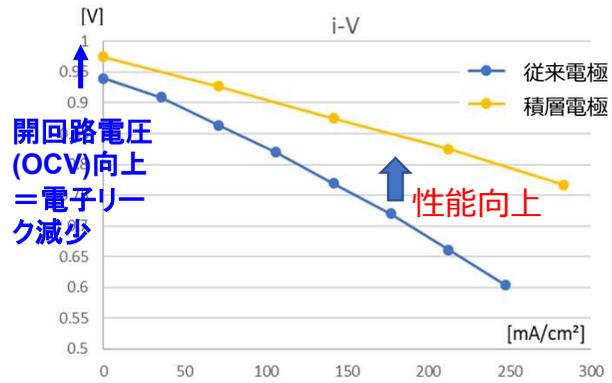
4. 今後の見通し (2)今後の取組みの方向性



②セル多層構造の構築

②'中間層の適用、最適化

空気極中間層の役割
 (1)プロトン輸率向上 (リーク電流抑制)
 (2)遷移金属の固溶抑制 (ブロッキング)
 (3)空気極との整合性



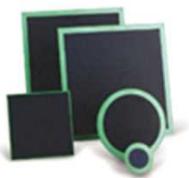
WP2-WP3連携 耐久性の向上

- 劣化メカニズムの解明
- 劣化要因の定量化
- 劣化対策

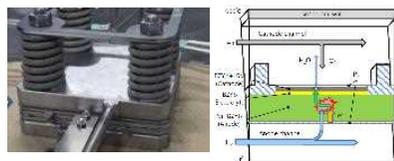
4. 今後の見通し (3) 実用化に向けた取組みと連携体制

(1) 実用化を見据えた材料・セル開発

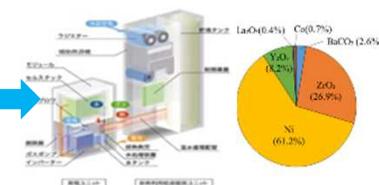
PCFC 材料・セル



スタック



システム



導入市場



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。今後の材料・セル開発に反映していく。

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

マルチフィジクスモデル (横国大)

コストエンジニアリング (東工大)

シーズ・ニーズ比較検討 (産総研、他)

WP3 セル評価・アプリケーション研究

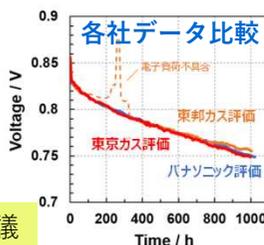
(2) ユーザー企業によるセル評価 (WP3)

ユーティリティ企業 (共同実施)

東京ガス(株)
東邦ガス(株)
エア・リキード・ラボラトリーズ



発電試験評価会議



- ・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がセル評価に無償で協力。
- ・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。

(3) 関心表明企業の協力

プロジェクト全体会議、技術検討委員会

関心表明企業 (共同実施)

東京ガス(株)、東邦ガス(株)
エア・リキード・ラボラトリーズ

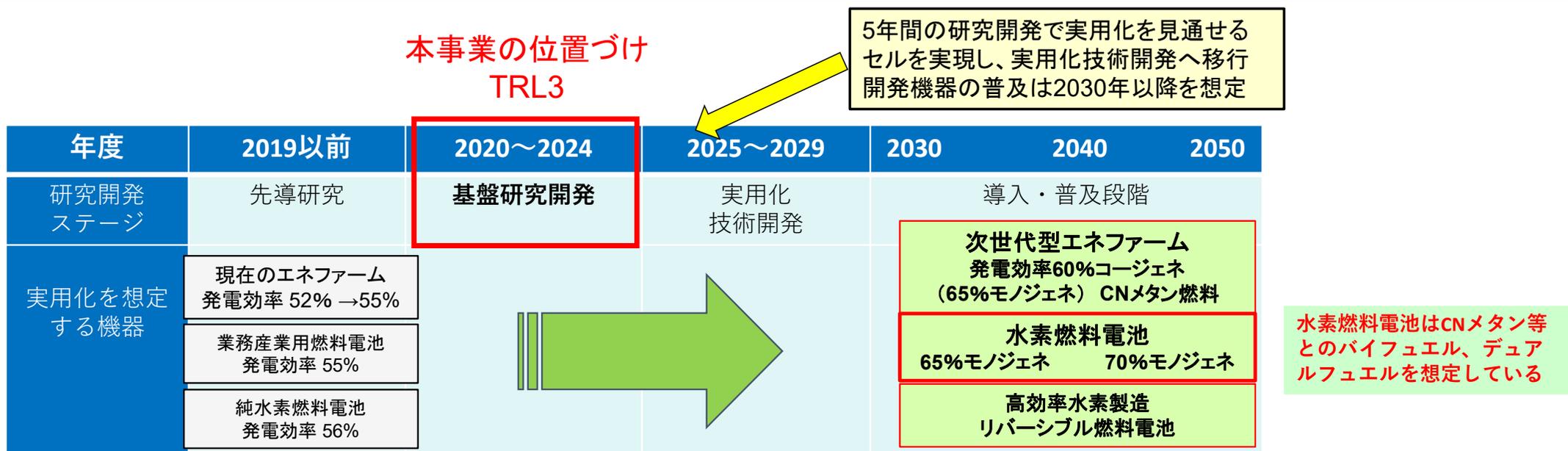
関心表明企業 (技術検討委員)

イムラ・ジャパン(株)、住友電工(株)、
(株)IHI、三井金属鉱業(株)

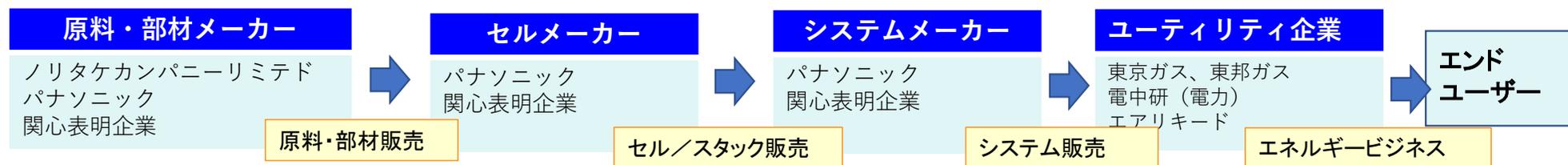
- ・プロジェクト全体会議 (年2回以上開催) で関心表明企業に研究開発進捗を報告
- ・技術検討委員としてご意見を頂いている。(導入シナリオ検討に反映)

4. 今後の見通し (4)実用化に向けたロードマップ

説明略



各企業の事業化への役割とバリューチェーン(関心表明企業との連携)



燃料電池の普及拡大に向けたPCFC研究開発の貢献		
家庭用燃料電池 自立普及拡大の政府方針に貢献	業務産業用燃料電池 グリッドパリティの実現 モノジェネによる市場拡大	水素エネルギー利用 水素燃料電池、高効率水素製造への展開