

NEDO水素・燃料電池成果報告会2024

発表No.A1-5 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
／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

発表者名 内田 誠

団体名 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

発表日 2024/7/18

連絡先：内田 誠
国立大学法人山梨大学
(E-mail:uchidam@yamanashi.ac.jp)

事業概要

1. 期間

開始 : (西暦) 2022年 7月
終了 (予定) : (西暦) 2025年 3月

2. 最終目標

研究開発用生産プロセス規模の「Ptの有効性を倍増可能な精密塗工と乾燥工程フリーを実現する業界初のマルチノズル式静電スプレー(ES)法」を将来の大量生産を可能とする革新的プロセスへ進化させる。小規模から本格量産性のある装置のためのマイルストーンとして、触媒有効性50%・触媒層性能20%向上し、ダイ塗工比で乾燥炉長比50%減相当の乾燥負荷低減する500ノズル規模のノズルデバイス塗工を実現する。

3. 成果・進捗概要

1) ES法プロセスの要素技術原理解明

電場解析シミュレーションにより電場分布偏差を低減する実用サイズの数値解析とメカニズム解明に進捗あり。最終目標の500ノズルデバイス構築へ、シミュレーション結果で有望な結果が得られた。

高時空間分解能可視化と計算科学によりESプロセス電極の材料から性能に至るデジタルエンジニアリングの確立をめざし推進中。

2) ES法プロセスを用いた触媒層の性能の検証

各種電気化学特性など、81>72マルチノズルすべての項目で性能の向上確認。数値解析シミュレーション技術も駆使したノズル配置改善の効果を検証できた。

3) ES法マルチノズルデバイスモジュール設計・制御技術開発

電場分布偏差低減デバイスの設計作成改良中。

81ノズルのデバイスの検証結果をもとに500ノズルデバイスを製作。最外周の電場制御み静電場制御プレート構造を採用。

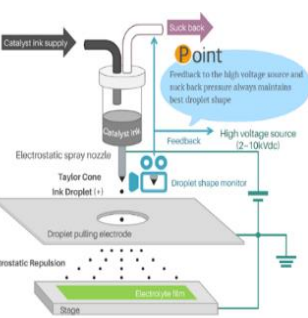
1. 事業の位置付け・必要性

• 本事業を実施する背景や目的
各種開発触媒材料の特徴を最大限発揮させるための触媒層設計技術を構築し、2030 年以降の更なる燃料電池や水電解システムの**低コスト、高性能、高耐久化に資する製造プロセス技術を開発する**。また、「共通課題解決型基盤技術開発」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製造プロセスにおける革新的な要素技術を開発する**。また、2030 年の燃料電池の**高効率・高出力化を実現するための触媒層に課せられた過電圧低減目標へ寄与を検証する**。

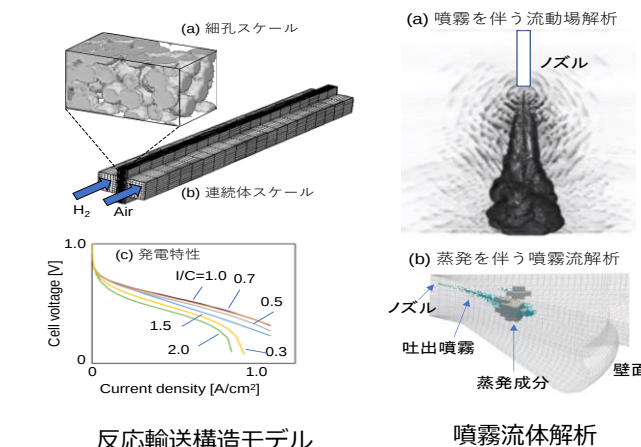
• 本事業の位置づけや意義、必要性

先行開発：
Ptの有効性を倍増可能な精密塗工と乾燥工程フリーを実現する業界初の72マルチノズル式静電塗工法を確立。

静電スプレーの基本原則

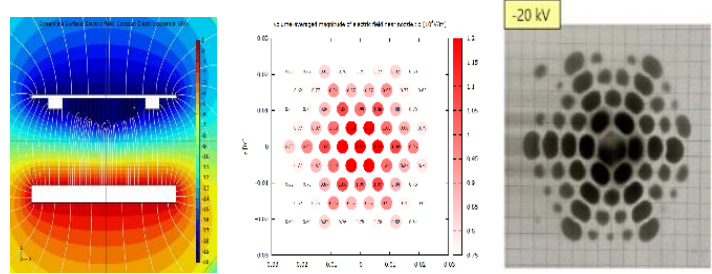


研究機関向け触媒塗工装置

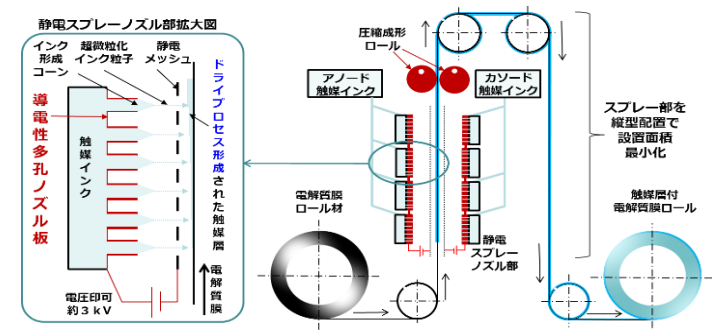


マルチノズルデバイスと各種プロセス技術開発

	スプレー	ダイコータ	静電スプレー	静電スプレー事業後
MEA性能	○	○	◎	◎
量産性	△	◎	×	○
カーボンニュートラル	△	×	◎	◎



ノズルの電場シミュレーション解析



大量生産を可能とする革新的生産プロセス (最終の装置イメージ)

• 乾燥工程不要でCO₂排出削減、触媒利用率2倍以上、薄膜塗工、省電力等により製造ランニングコスト大幅削減
• 乾燥工程不要+両面同時塗工で全長短縮 18.6m ⇒ 14m (25%短縮)
(S社実験機) 目標成膜速度20m/min : 12台/ラインで対応 (8000ノズル/台)

2. 研究開発マネジメントについて

・研究開発の目標と目標設定の考え方（根拠）と実施体制

産業界のニーズに資する既存設備(ダイコータ)に対して、ES法は潜在能力として、競争力を持つことが期待されているが、社会実装可能な装置として実現するには、8000ノズル規模のマルチノズル化が必要であると試算された。（試算値は、産業界との情報交換により随時に直しを実施する。）

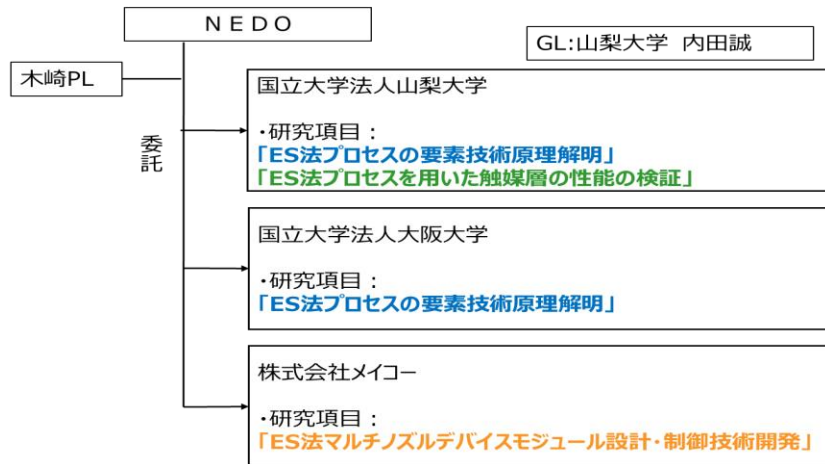
本事業では、現時点で成果を得ている72ノズルからの拡大を実現するためのマイルストーンとして、**実生産ラインに重要と考えられる1000ノズル規模も見据えながら、500規模のモジュール開発と要素部分の原理解明**を設定する。

⇒大規模マルチノズルデバイス開発には、トライ＆エラーのづくり設計開発ではなくて、DX技術を駆使した要素技術のメカニズム解明として、具体的には電場解析、フライトシミュレーション、噴霧流体解析等の技術を構築したうえでデバイス設計への反映が必須。

開発項目1 ⇒DX技術と実験検証をもとに科学的根拠を創出する

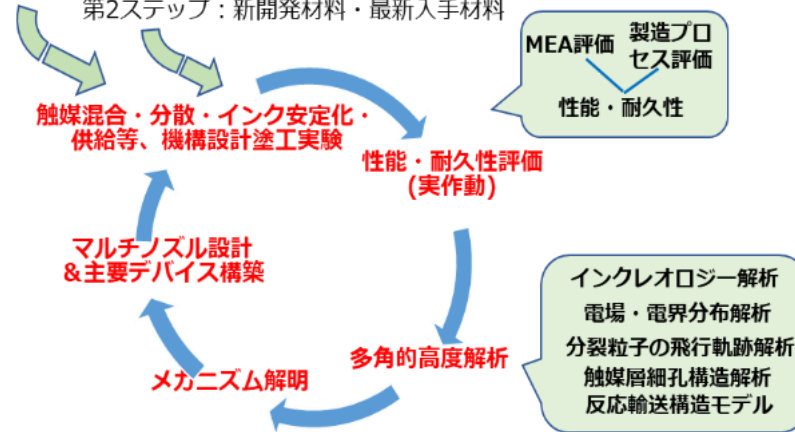
開発項目2 ⇒触媒の有効性と性能の向上にむけた現状課題の検証としてテーマCで開発されたES法マルチノズルデバイスを用いた触媒層の性能をダイコータ転写法と比較検証する

開発項目3 ⇒テーマAより導き出された設計数値とテーマBの性能検証のフィードバックを基にマルチノズルデバイス設計製造を実施する



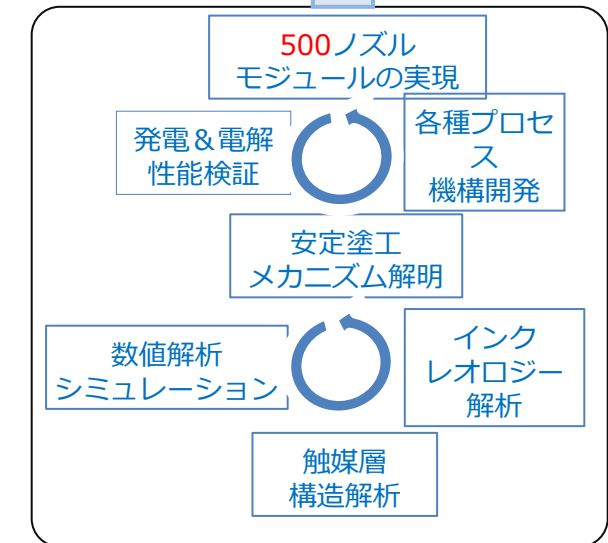
第1ステップ：市販材料

第2ステップ：新開発材料・最新入手材料



アジャイル開発

幅150mmのCCMを20m/分で塗工するためには、電界均一による能力向上係数を3倍とし、目標成膜速度
20m/min：12台/ラインで対応（8000ノズル/台）



2. 研究開発マネジメントについて ・ 研究開発のスケジュール と 知的財産戦略の取り組み

事業項目	2022年度				2023年度				2024年度			
	第1 四半期	第2 四半期	第3 四半期	第4 四半期	第1 四半期	第2 四半期	第3 四半期	第4 四半期	第1 四半期	第2 四半期	第3 四半期	第4 四半期
①「ES 法プロセスの要素技術原理解明」 (山梨大学、大阪大学)		数値解析シミュレーション技術開発のめどつけ 電場・電界分布等の静電特性/分裂粒子の飛行軌跡解析								数値解析技術開発		
				主要メカニズム抽出						メカニズム解明		
				混合・分散・供給時のレオロジー解析						インク安定化技術		
②「ES 法プロセスを用いた触媒層の性能の検証」 (山梨大学)				500 ノズル性能の検証						500 ノズル性能の検証		
				触媒有効性 35%・触媒層性能 14%向上						触媒有効性 50%		
										触媒層性能 20%向上		
③「ES 法マルチノズルデバイスモジュール設計・制御技術開発」 (メイコー)				500 ノズル規模デバイスの設計制御技術開発						500 ノズルの設計制御技術開発		
				モジュールの素材、形状、配置などの設計開発						インクの分散・供給方法、 塗工後のアニール方法等の開発		

順調に計画実施中

■ 静電スプレー法に関する山梨大学保有特許出願、権利化状況

2024年5月8日現在

- 開発技術の知財は、ファミリーとして群管理を実施。
- 中国、米国も含めて、確実に権利化を実現している。
- 今後も、タイムリーな権利化を推進する。

国名	ステータス	単独/共願	名称・日本語	出願日	出願番号	登録日	登録番号	出願人名称1	出願人名称2
中国	登録	単独	インク分散・供給方法、塗工後のアニール方法等の開発	2022/6/2	552443	2022/8/2	552443	国立大学法人山梨大学	
日本	登録	単独		2022/4/2	552443	2022/8/2	552443	国立大学法人山梨大学	
日本	登録	単独		2022/4/2	552443	2022/8/2	552443	国立大学法人山梨大学	
米国	登録	単独		2018/1/1	15/515,973	2021/8/3	15/515,973	国立大学法人山梨大学	
日本	登録	共願		2018/2/2	552443	2022/8/2	552443	国立大学法人山梨大学 (持分1/3)	株式会社メイコー (持分2/3)
日本	特許査定	共願		2020/1/2	552443	2023/7/2	552443	国立大学法人山梨大学	株式会社メイコー

3. 研究開発成果について

・ 研究開発の進捗状況

1) ES法プロセスの要素技術原理解明①

電場解析シミュレーションにより電場分布偏差を低減する実用サイズの数値解析とメカニズム解明に進捗あり。
⇒ 最終目標の500ノズルデバイス構築へ、シミュレーション結果で有望な結果が得られた。

基準となるピン配置

電場分布偏差を低減例

ノズル配置、
ダミーノズル配置
などの最適化

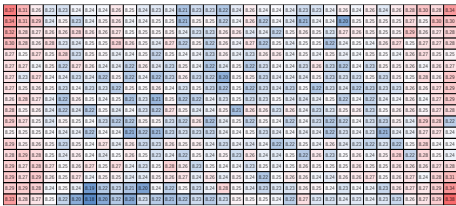
Range 1.01, Average 6.89

Range 0.54, Average 9.10

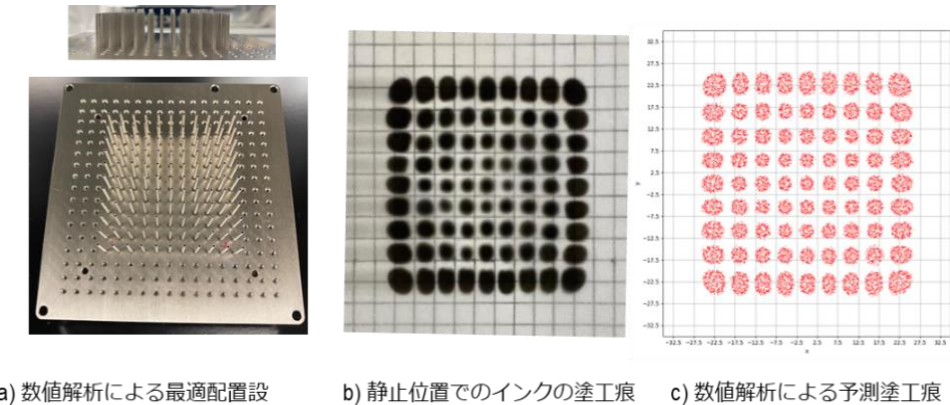
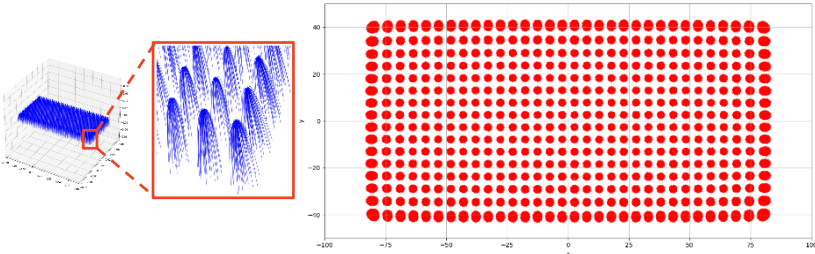
数値解析による電場均一化の配置に従い81ノズルのデバイスを作製

電場 & 軌跡解析による500ノズルデバイス開発

標準偏差は平均の1%以下であり
ノズル先端の電場はかなり均一化できた

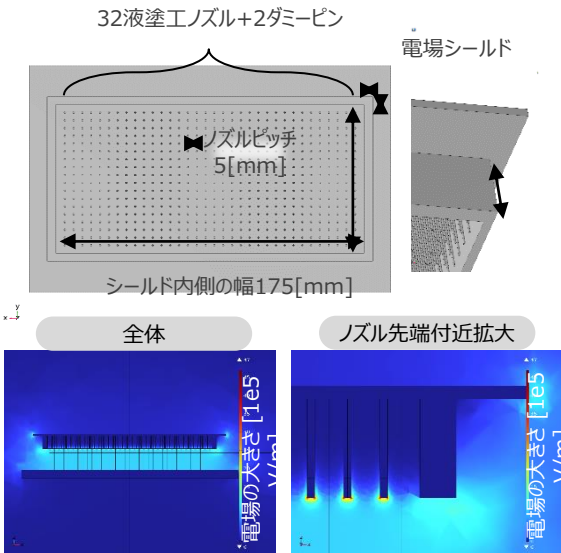


軌跡解析により得られた塗工痕



a) 数値解析による最適配置設計で制作した81ピンノズルデバイス
b) 静止位置でのインクの塗工痕
c) 数値解析による予測塗工痕

a) 数値解析による最適配置設計81マルチノズルデバイスの静止位置での
b) 実塗工痕およびc) 予測着弾痕

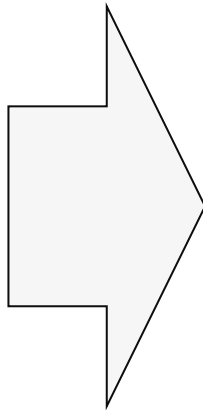
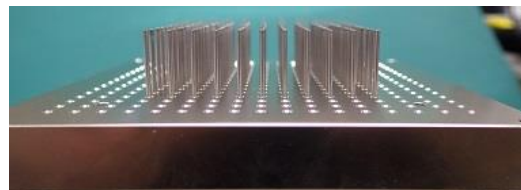
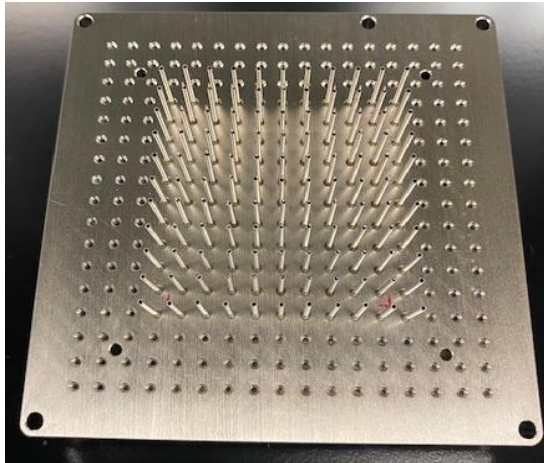


3. 研究開発成果について

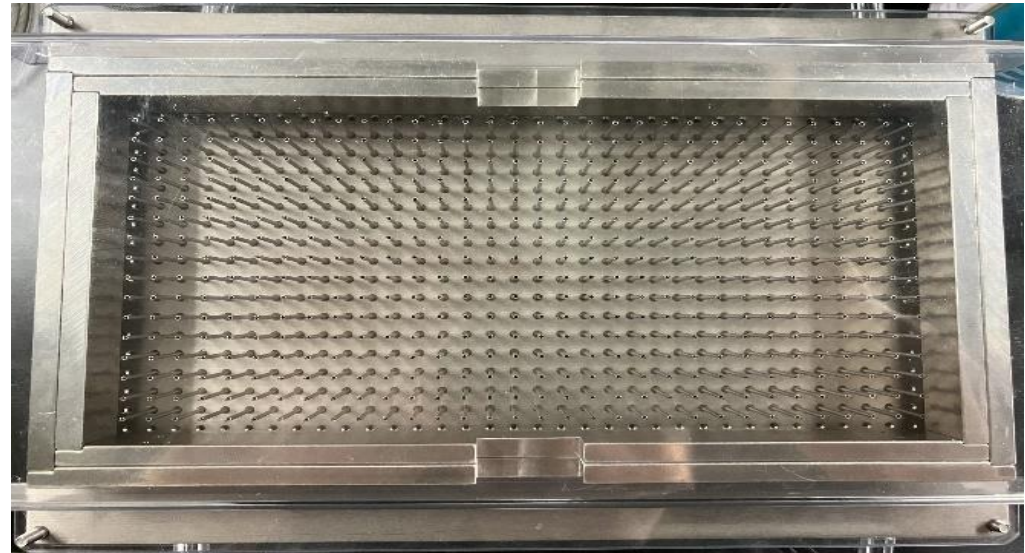
・研究開発の進捗状況 3) ES法マルチノズルデバイスモジュール設計・制御技術開発

81ノズルのデバイスの検証結果をもとに**500ノズルデバイス**を製作。
最外周の電場制御み静電場制御プレート構造を採用。

数値解析による電場均一化の配置に従い
81ノズルのデバイスを作製



500マルチノズル試作品



3. 研究開発成果について

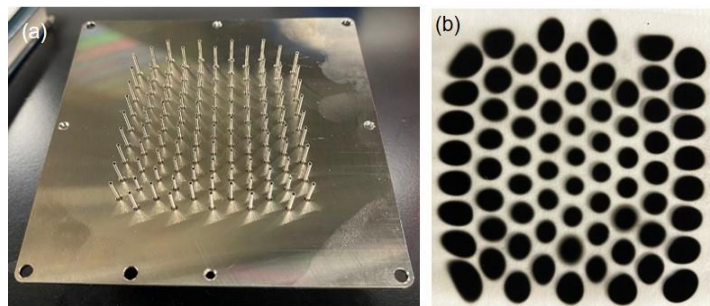
・ 研究開発の進捗状況

2) ES法プロセスを用いた触媒層の性能の検証

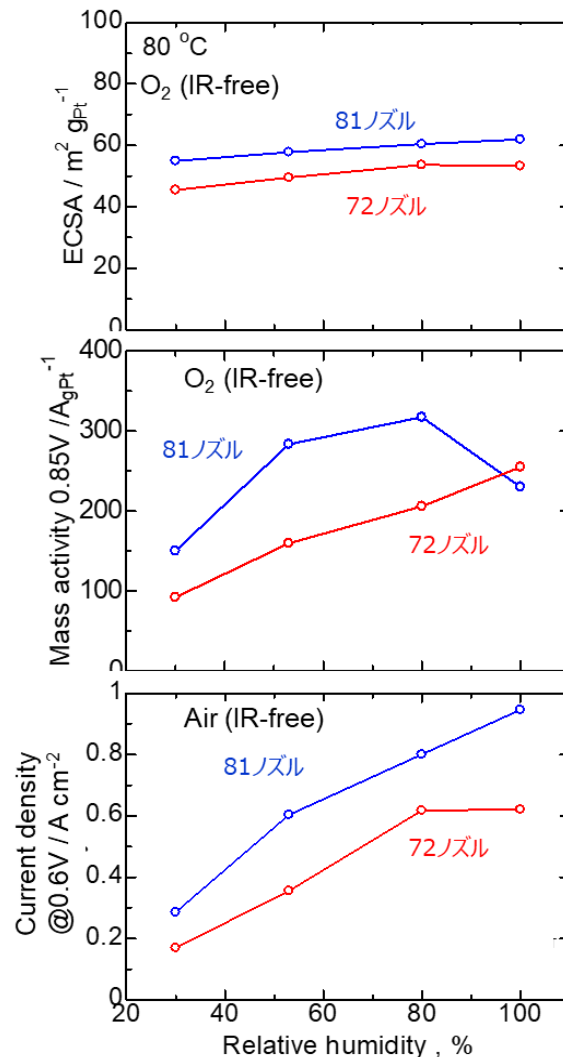
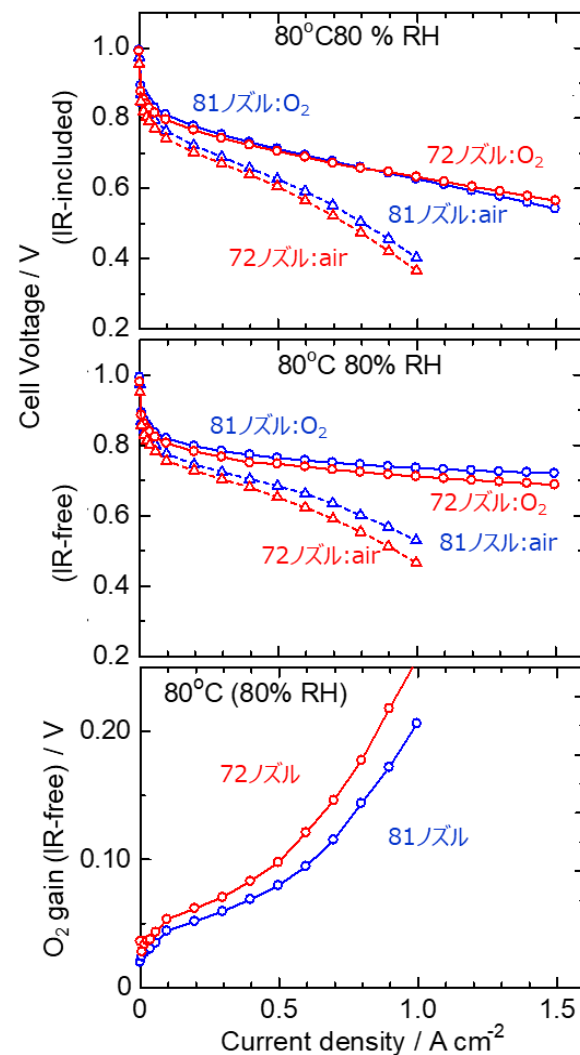
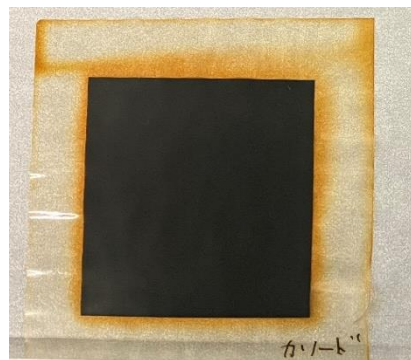
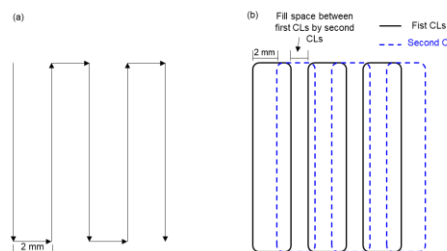
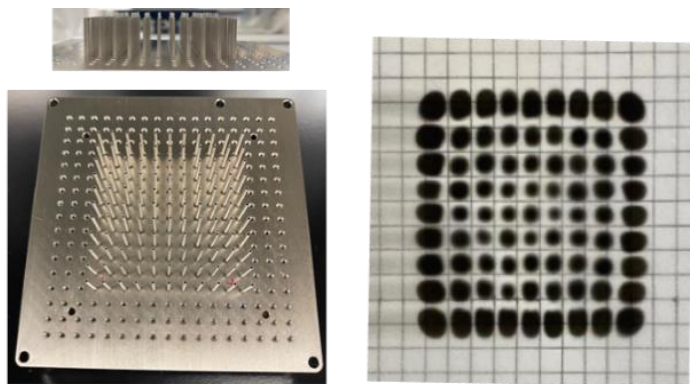
各種電気化学特性など、81>72マルチノズルすべての項目で性能の向上確認。
数値解析シミュレーション技術も駆使したノズル配置改善の効果を検証できた。

電極サイズ：25cm²、JARI-Cell, 0kPaG
カソード：Pt/C触媒(TEC10E50E), アイオノマー
(I:D521, I/C=0.7)、触媒量0.1mg/cm²
Nafion膜(NRE212, 50μm)へES
アノード：Pt/C触媒(TEC10E50E), アイオノマー
(I:D521, I/C=0.7)、触媒量約0.2mg/cm²、PSS,
ガス拡散層(GDL:SGL22BB)へGDE

72ノズルデバイス



81ノズルデバイス



● 今後、触媒層の均一性の詳細解析、さらに500マルチノズルにおける、性能検証を進める。

3. 研究開発成果について

・研究開発の進捗状況

1) ES法プロセスの要素技術原理解明②

高時空間分解能可視化と計算科学によりESプロセス電極の材料から性能に至るデジタルエンジニアリングの確立をめざし推進中。

ES塗工高性能触媒層：均一・高空隙，均等アイオノマー被覆

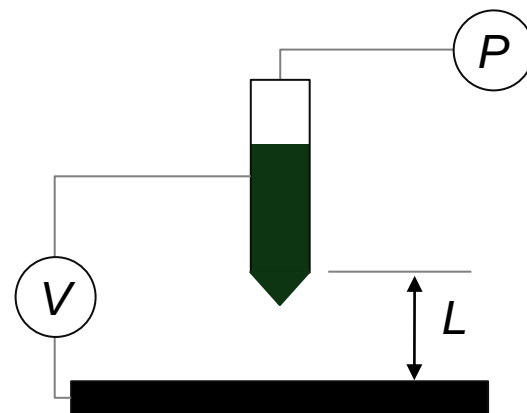
課題

- ①多様なインク材料・組成比への対応
- ②大面積・高速塗工マルチノズル化への対応

これらを解決するためには

- ◆ES-CL高性能化機構の解明と設計・制御手法の確立
- ◆ES-CLインク吐出・分裂挙動の解明
- ◆ES-CLインク噴霧飛行・蒸発・着弾挙動の解明
- ◆ES-CL構造形成過程・機能発現の解明

が必要



- 静電噴霧形成時の異なる吐出モードを高時空間分解可視化により明らかにした。
- 安定吐出条件の支配因子の解明に向けて計算科学による検討を進めるために，粘性係数，界面張力，誘電率などの計測を実施。

高時空間分解能可視化

印加圧力大

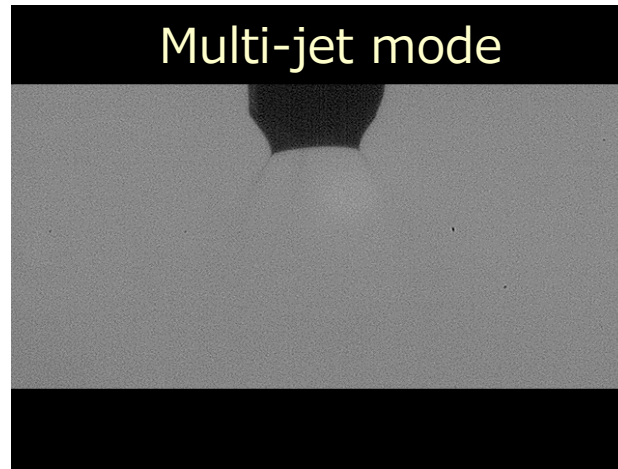
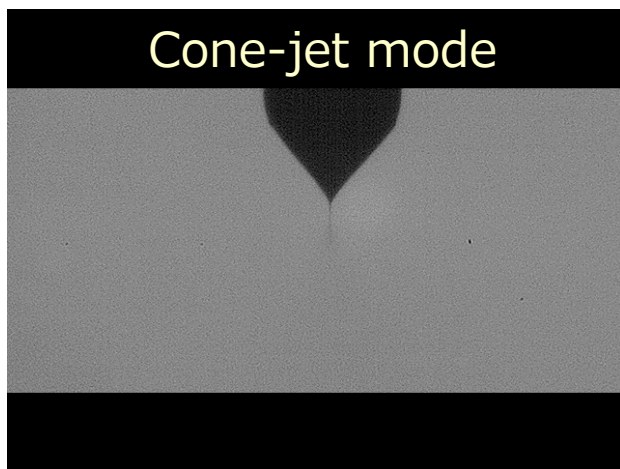
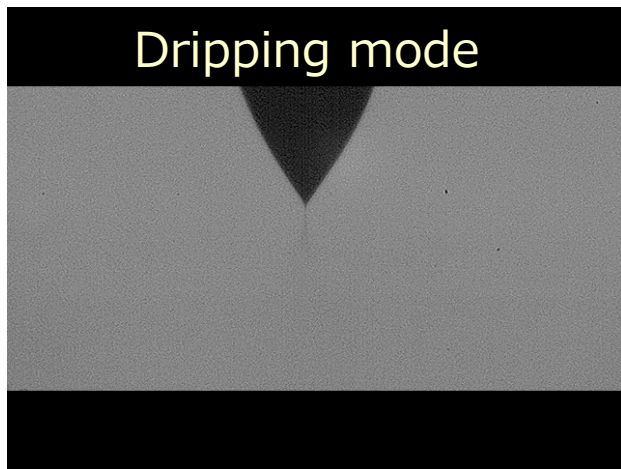
安定吐出条件

印加電圧大

Dripping mode

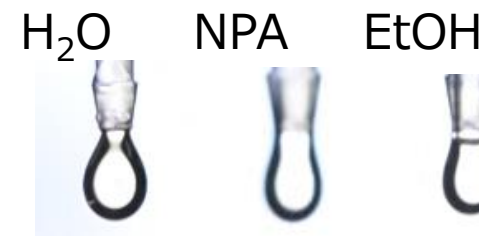
Cone-jet mode

Multi-jet mode

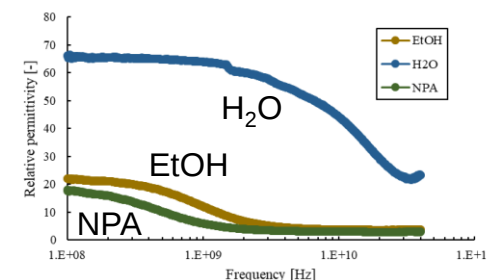


撮影速度：10,000 frames/sec

◎表面張力の測定



◎誘電率の測定



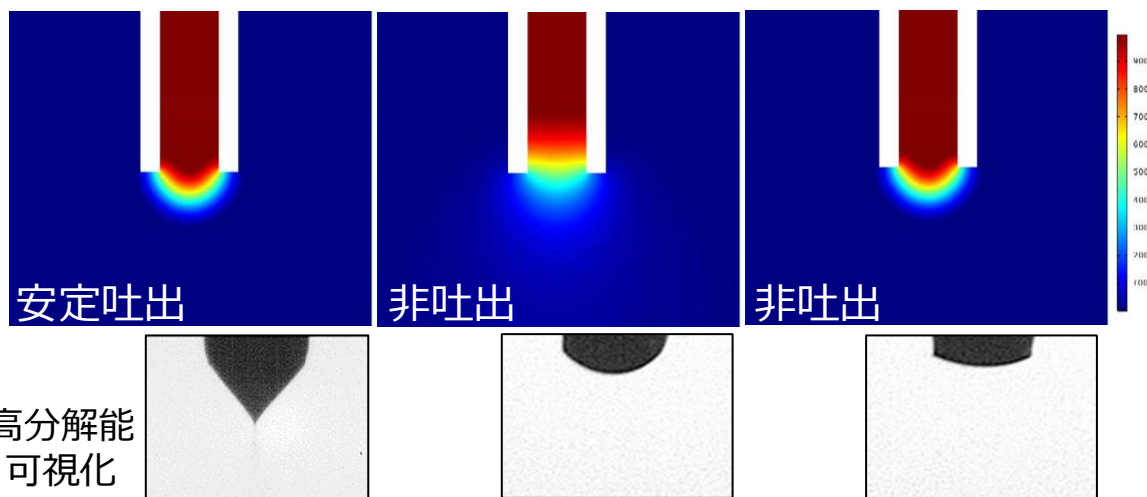
3. 研究開発成果について

・ 研究開発の進捗状況

1) ES法プロセスの要素技術原理解明②

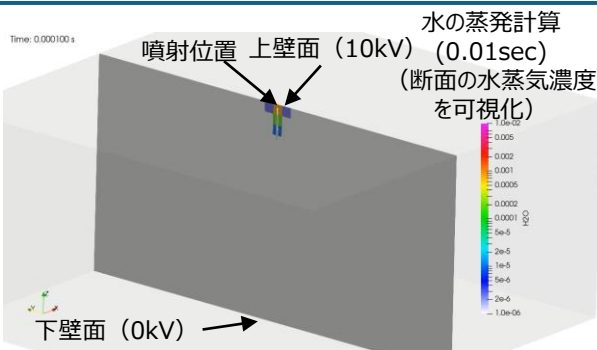
高時空間分解能可視化と計算科学によりESプロセス電極の材料から性能に至るデジタルエンジニアリングの確立をめざし推進中。

ES吐出挙動の気液二相流シミュレーション



- メニスカス先端の頭頂角が従来のテイラーコーン角度とは異なることを明らかにし、電場による応力を考慮した独自の混相流解析モデルにより再現することに成功。

ES流動・蒸発挙動の気液二相流シミュレーション



- 静電スプレー流動場（静電場、静電場と液滴の相互干渉、相変化を考慮）を解明する解析基盤を構築。

デジタルエンジニアリングの解析フロー

[電極材料]
ESインク調整

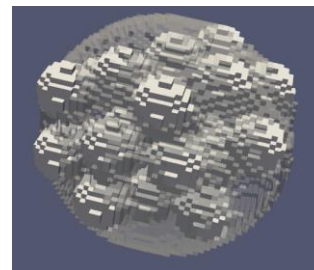
ESインク
吐出

ESインク
流動・蒸発

触媒層
構造形成

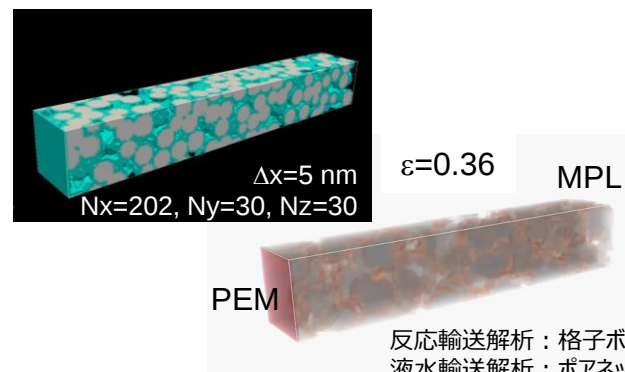
燃料電池
機能発現[性能]

ES蒸発・構造形成挙動の気液二相流シミュレーション



スラリー微細滴について蒸発を伴うイオノマー析出挙動の解析手法を構築

ES触媒層機能発現の細孔スケール反応輸送解析



細孔スケールでの反応輸送解析手法を構築し、触媒層構造がセル性能に及ぼす影響の解明と高性能電極ESプロセスの確立を目指す

反応輸送解析：格子ボルツマン法
液水輸送解析：ポアネットワークモデル

3. 研究開発成果について

・目標達成に向けたアプローチ

テーマ名	最終目標 (2025年3月)	最終目標達成に向けた取り組み
A:ES法プロセスの要素技術原理解明	500ノズル規模のノズルデバイス塗工を実現する 数値解析シミュレーション技術開発 とその 要素技術のメカニズム解明	・クーロン力、静電場力、空気抵抗を考慮した電場解析シミュレーションにより電場分布偏差を低減する実用サイズの数値解析で、実際の塗工状態の再現が実現。流動場の基礎的解明 & 主要メカニズムの抽出は達成。 ・大阪大学に導入したES塗工機の活用することにより溶媒蒸発影響、ノズル間の空間形成メカニズム等を解明し、静電場解析と融合することにより数値解析シミュレーション技術開発が達成できる。 * 数値解析シミュレーション技術開発により、ES法実装設計が加速できる。
B:ES法プロセスを用いた触媒層の性能の検証	500ノズル規模のノズルデバイスを用いた触媒層の燃料電池および水電解性能の検証と触媒有効性50%・ 触媒層性能20%向上 する。(対既存プロセス)	・現状設計要素を用いたマルチノズルとインクプロセスの改良とアイオノマー比率の最適化により、最終目標であるアイオノマーの均一薄膜被覆とPtナノ粒子の頭出しに、部分的に成功。ダイコータに勝るセル性能が得られ、最終目標を上回る触媒層性能(36%UP@0.6V)を達成しており、この設計要素を見織り込んだ500ノズルデバイスでの達成にめどがついている。 ・要素技術開発の成果を適応すれば、さらに特性改善され500ノズルデバイスでの性能向上は達成可能である。 * 性能を実現する触媒有効性の効果を数値化する見込みである。
C:ES法マルチノズルデバイスモジュール設計・制御技術開発	・500ノズル規模のノズルデバイスモジュールの設計・制御技術開発 ・ダイ塗工比で乾燥炉長比50%減相当の乾燥負荷低減	・塗工状態と数値モデルの再現性を実現した80ノズルの設計を微調整することにより、500ノズルデバイスの設計開発を達成できる ・現設計要素を盛り込んだ数値計算モデルで、1000ノズルシミュレーションで良好な結果が得られており、今後、テーマA&Bで明らかにされる設計要素を盛り込み、500ノズル達成できる。 * 現状、マルチノズル化に伴う乾燥負荷の増大はなく、当初設計通りの50%減相当の乾燥負荷低減が実現できる見込みである。

3. 研究開発成果について ・ 論文、学会発表、広報等の取り組み

● 学会発表

所属	タイトル	発表場所	発表年月日
大阪大学	燃料電池とフロー電池における熱流体研究と材料研究の協働	日本機械学会関西支部専門部会	2023.4.7
University of Yamanashi, Meiko Co., Ltd, Mizuho Research & Technologies, Ltd.	Development of Multi-Nozzle Electrospray Device for Fabrication of Cathode Catalyst Layer on Polymer Electrolyte Fuel Cells	244th ECS meeting Gothenburg Sweden	2023.10.8
大阪大学	固体高分子形燃料電池触媒層作製における静電噴霧の安定吐出条件の検討	日本機械学会関西学生会 2023年度学生員卒業研究発表講演会	2024.3.14

● 成果普及の努力（広報等）

2024年2月28日から3月1日のH₂ & FC-EXPO2024水素燃料電池展において、山梨県展示ブースでES塗工装置の試作品を展示し、研究成果をアピールした。

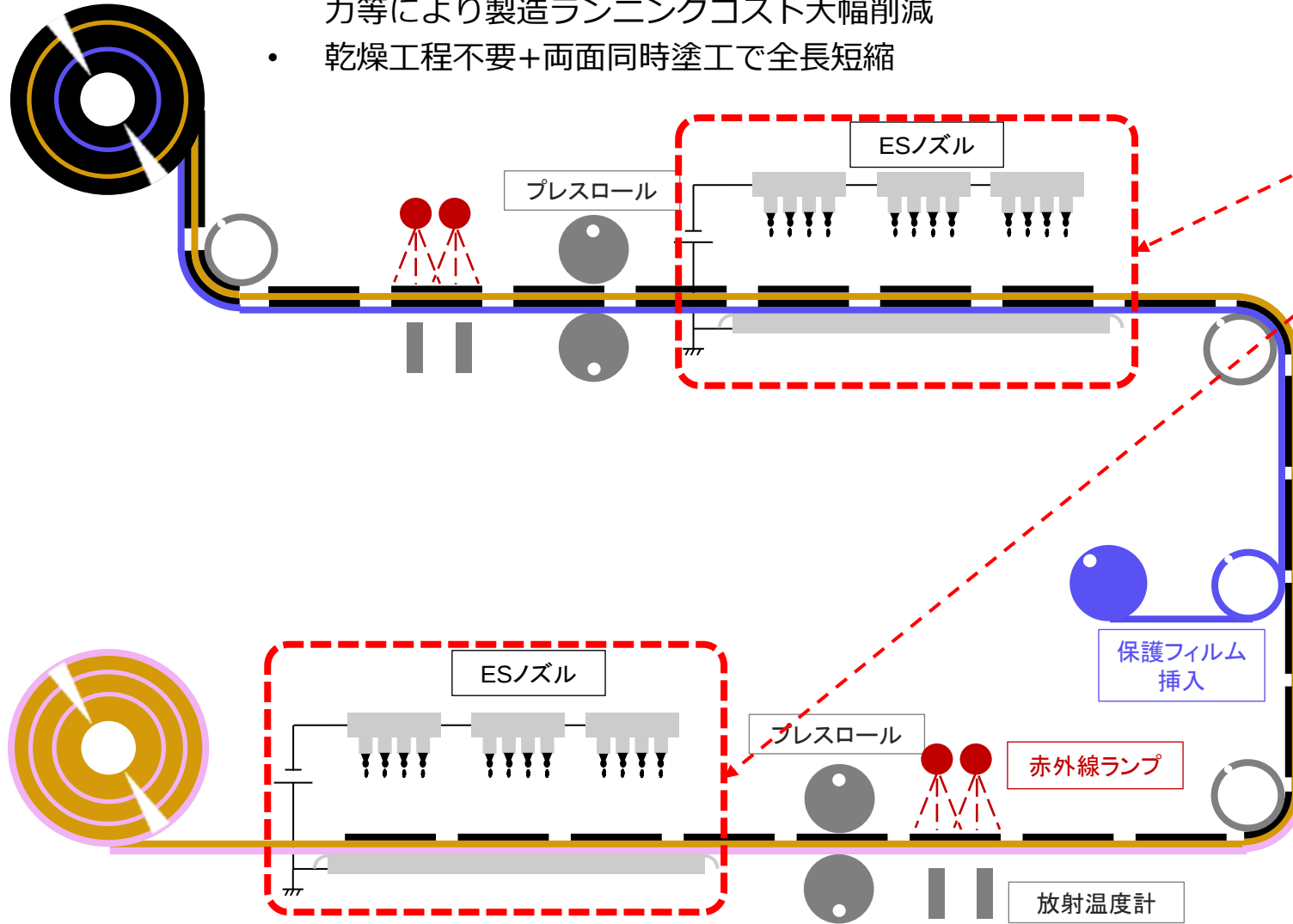
4. 今後の見通しについて

・ 実用化・事業化のイメージ & 今後の課題と対応方針

動画

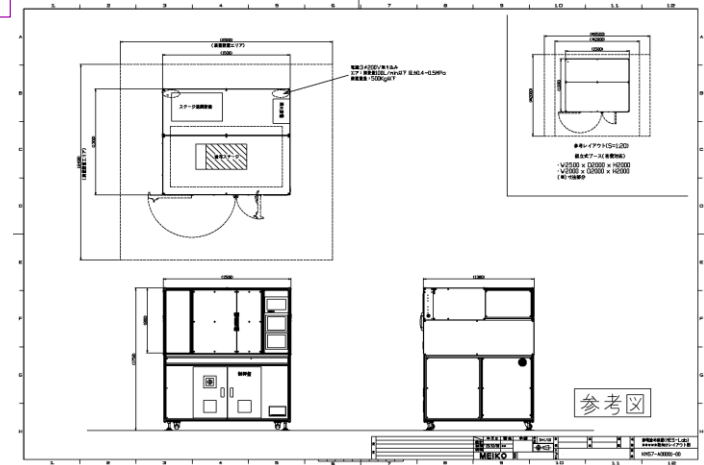
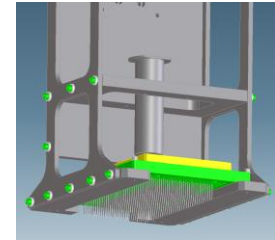
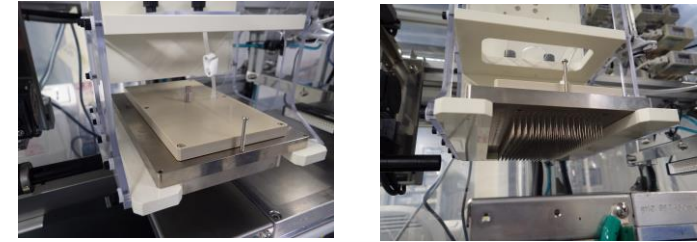
ロール to ロールプロセス

- 乾燥工程不要でCO₂排出削減、触媒利用率2倍以上、薄膜塗工、省電力等により製造ランニングコスト大幅削減
- 乾燥工程不要+両面同時塗工で全長短縮



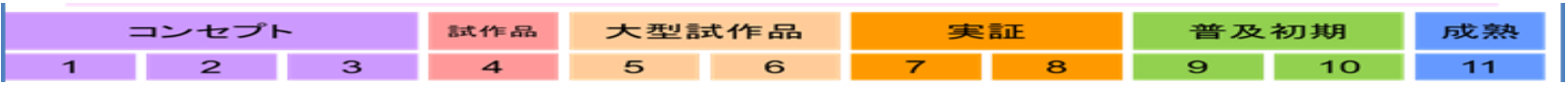
本NEDO事業での開発部分

枚葉塗工機



* 産業界&AFCとRtoRプロセスへの適応実現に向けてトータルプロセスの姿を構築し、意見交換実施中。

4. 今後の見通しについて ・ 実用化・事業化に向けた具体的な取り組み（計画や戦略等）

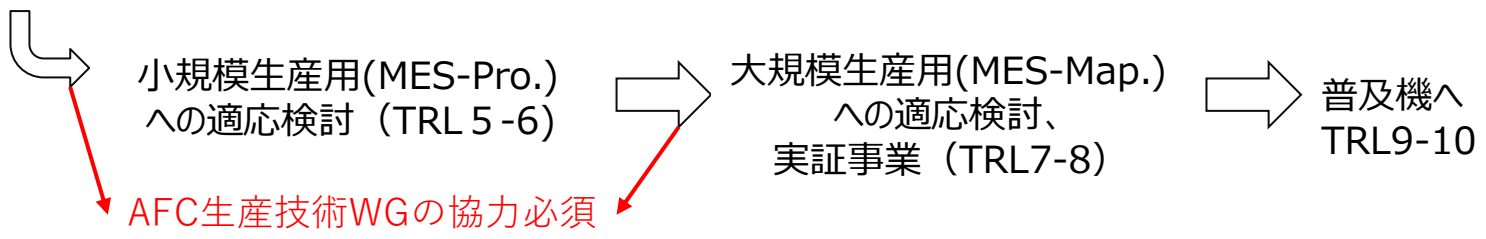
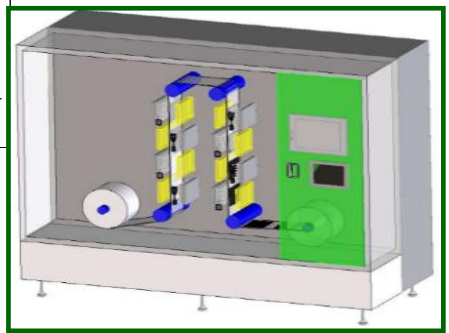
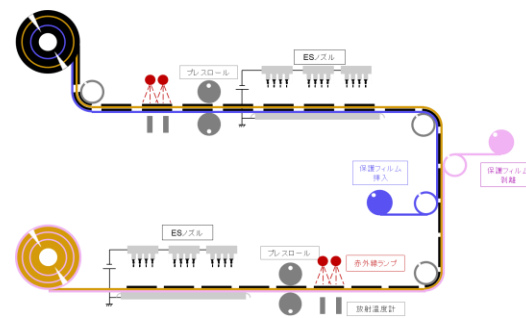


現時点：TRL3 事業終了時点：TRL4



23-24年度
LOI企業2社
：研究開発用(MES-Lab.)
導入検討中 (TRL4)

年度	2025年度～	2028年度～	2032年度～	2036年度～	2040年度以降
メイコー MES-Lab, MES-Lab-mini	ブラッシュアップのための改良検討 → 装置設計	ES装置の製造、販売 (MES-Lab、MES-Lab-mini)			
MES-Pro (小型機)	仕様検討 → 装置設計	ES装置の製造、販売 (MES-Pro)			
MES-Map (大型機)	仕様検討 → 装置設計	ES装置の製造、販売 (MES-Map)			



- ①実生産プロセスへの展開：AFCや産業界と意見交換しながら現状解明されているメカニズム・発電性能などをベースに実用化企業とLCA貢献、プロセススペース改善などのプロセス構築へ向け新規開発事業につなげる。
- ②理想的な触媒層・セル構造の検討：本事業の原理解明の成果・シミュレーション技術をベースに共通基盤技術開発として、インク作製から触媒層・セルまでの設計指針の検討をすすめる次期研究開発事業につなげる。