

発表No.A1-7

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

WP1 革新的高性能電極・部材
の開発 / 参画機関 (委託先)

○国立大学法人 東北大学
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 京都大学
国立大学法人 名古屋工業大学
ノリタケ株式会社

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
(再委託先)
国立大学法人 京都大学
国立大学法人 群馬大学

WP3 セル評価・アプリケーション
研究 / 参画機関 (委託先)

○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 東京科学大学
国立大学法人 横浜国立大学

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
日本特殊陶業株式会社
日本碍子株式会社
株式会社デンソー

WP1連絡先：国立大学法人 東北大学
雨澤 浩史 (koji.amezawa.b3@tohoku.ac.jp)

WP2連絡先：国立研究開発法人
産業技術総合研究所
島田 寛之 (h.shimada@aist.go.jp)

発表者 産業技術総合研究所 島田 寛之

2025年7月15日

WP3連絡先：一般財団法人電力中央研究所
森 昌史 (masashi@criepi.denken.or.jp)

事業概要

GOAL：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

1. 期間 開始：2020年7月
終了：2025年3月

2. プロジェクト
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 空気極の高性能化	出力密度 > 1.3 W/cm ² @550℃ 分極 < 0.1Ωcm ² @550℃
耐久性向上	電圧低下率 1%/1000h以下

3. 成果と進捗概要

WP1 革新的高性能電極・部材の開発

(1) 空気極高性能化のための指針の提示

- ・新規材料の開発に成功
- ・コンポジット化の有効性検証

(2) 中間層導入効果の検討

- ・材料両立性・耐久性に効果

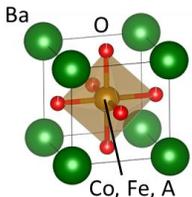
(3) 電極有効反応場の定量評価

- ・高性能・高耐久性電極設計に活用

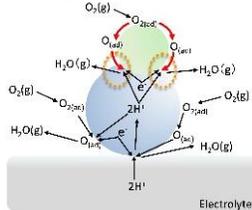
(4) インクジェット印刷の利用

- ・電極構造化、組成傾斜構造

⇒WP2への技術移転、セル実装



Ba-Co-Fe-Y系高活性空気極材料の開発



表面修飾による性能向上の実証

空気極技術移転会議

WP2 高効率・高出力密度セルの開発

(1) セル出力密度を約3倍に向上

2019年度0.5W/cm²@600℃
⇒2023年度1.4W/cm²@600℃

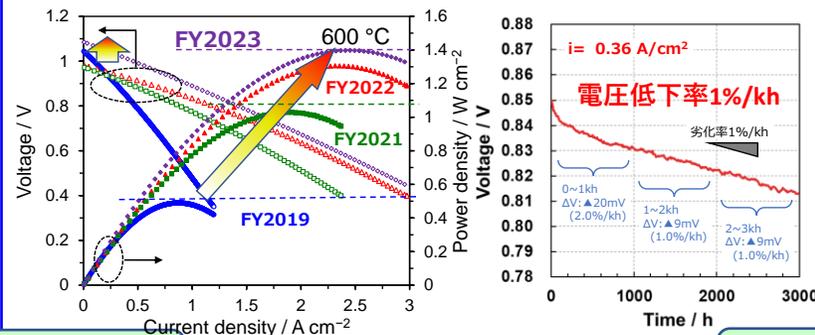
(2) セル発電効率62%を実証

電流密度0.3A/cm², U_f=85%, メタン換算

(3) セル劣化要因の解析と耐久性向上

⇒電圧低下率 1%/1000h

(4) セル性能向上、耐久性向上要素技術



発電評価会議

WP3 セル評価・アプリケーション研究

(1) 基礎発電特性評価と安定性試験

(最大試験時間：1000h) の実施

(2) 緩和時間分布(DRT)法

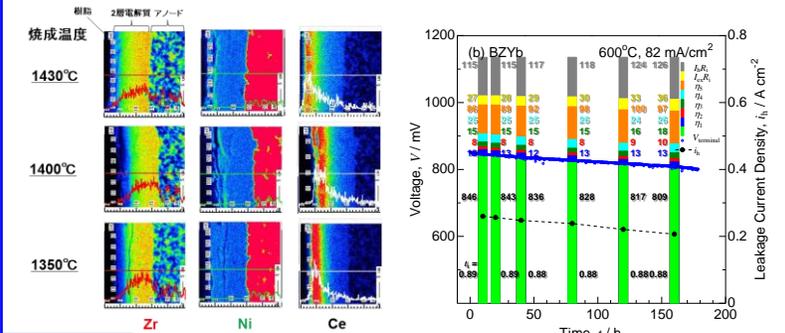
⇒セル要素の抵抗分離技術を確立

(3) 中間層/電解質の膜厚比の適性化

⇒リーク電流抑制効果と効率を試算

(4) マルチフィジックスモデル

⇒高い精度でセル特性を再現



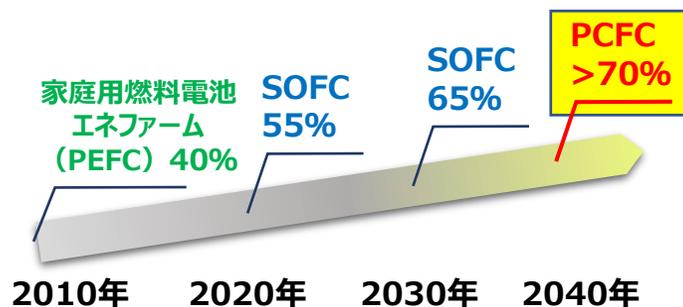
セル部材間の元素拡散の評価

DRT解析により各セル部材の過電圧を算出

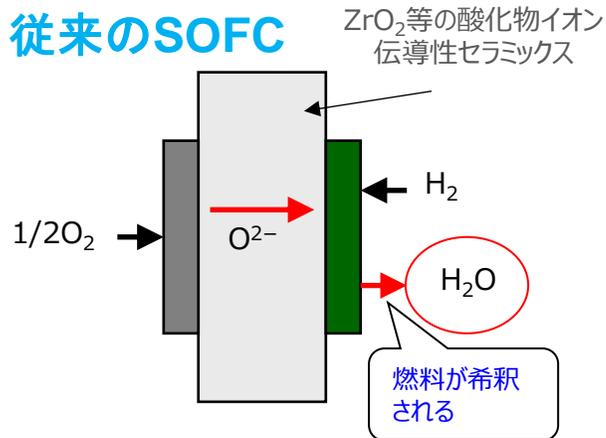
1. 事業の位置付け・必要性

次世代SOFCのニーズ

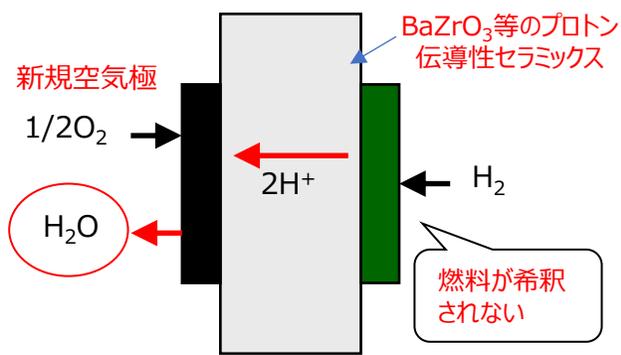
1. 発電効率の向上
2. 長寿命化
3. 付加価値の向上
4. 水素社会への貢献



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

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

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**

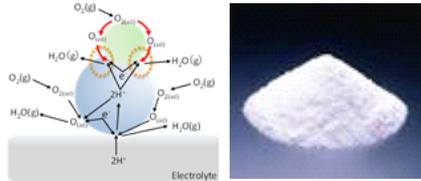
2. 研究開発マネジメントについて

研究開発目標

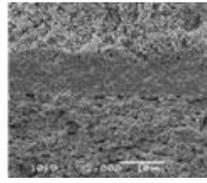
1. **発電効率の向上**：発電効率65%以上を実証、70%を見通す
2. **出力密度の向上**：セルの出力密度 $>1.3\text{W}/\text{cm}^2@550^\circ\text{C}$ （低温作動）
空気極抵抗： $<0.1\Omega\text{cm}^2@550^\circ\text{C}$
3. **耐久性向上**：電圧低下率 1%/1000h以下
4. **システム検討**：単セルの性能を検証し、システムの机上検討を行う

研究開発実施体制

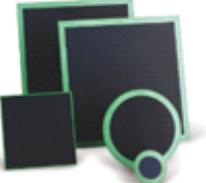
- WP1（電極材料開発）、WP2(セル開発)、WP3（評価解析）の3事業が連携して課題解決



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

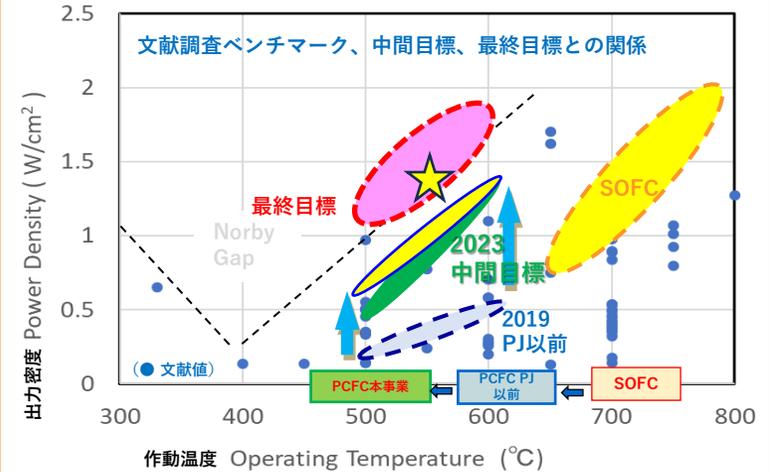
研究開発マネジメント体制

- (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、発電評価会議、空気極技術移転会議、サテライトミーティング、Ad-Hoc会議(2022-)、革新セルTF(2023-)
- (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

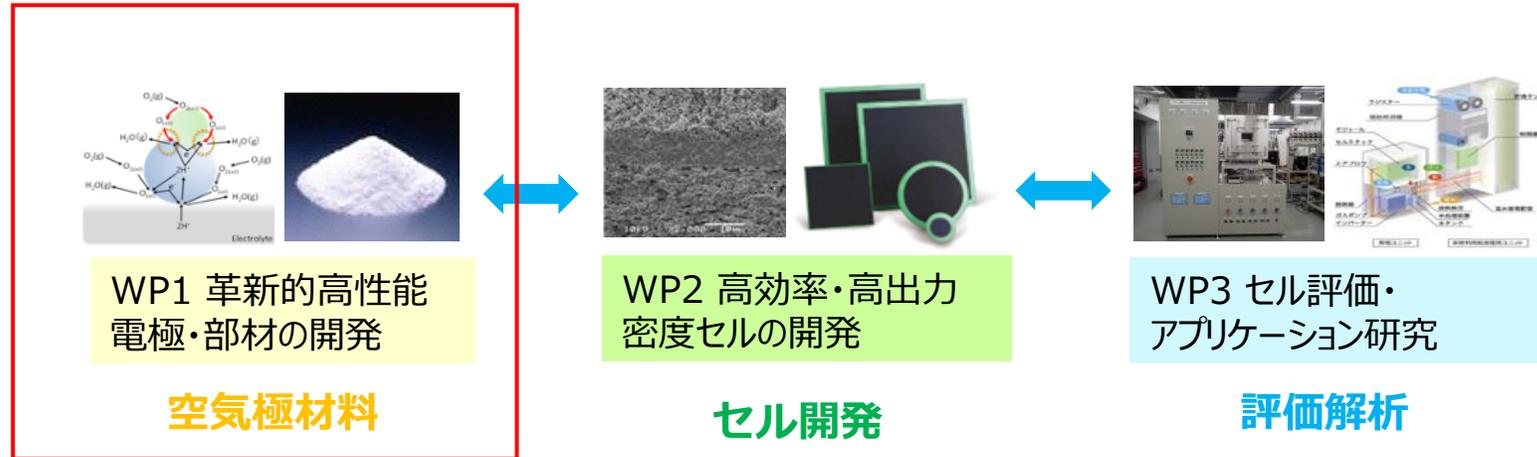
作動温度に対する出力密度のベンチマーク



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

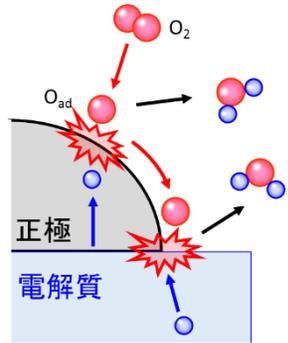
成果報告



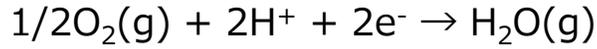
WP1～WP3が連携して事業推進、WP1は高性能空気極開発を担当

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

WP1 革新的高性能電極・部材の開発 (研究開発体制と実施テーマ)

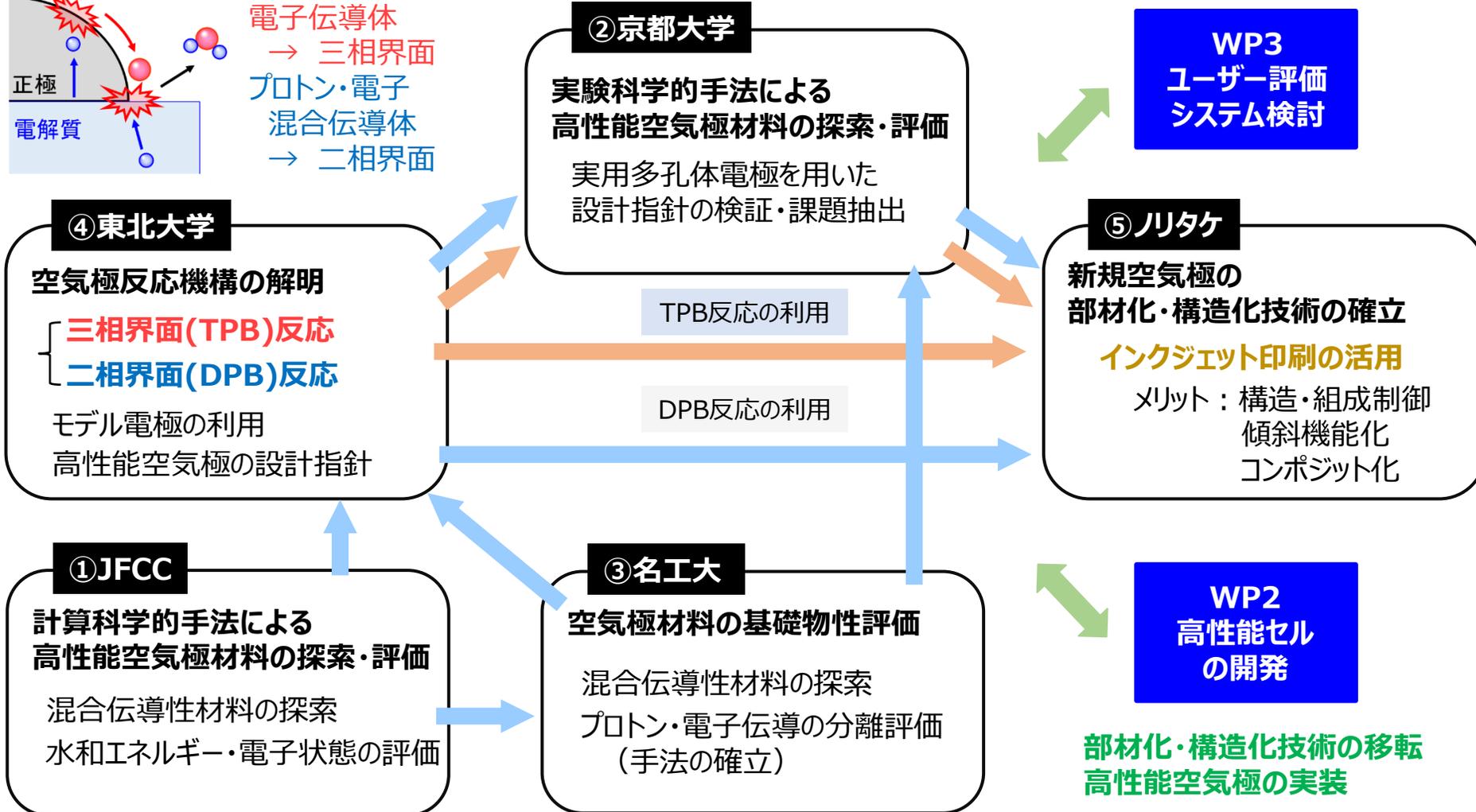


酸素還元反応



電子伝導体
→ 三相界面
プロトン・電子
混合伝導体
→ 二相界面

性能, 耐久性, コスト等からの要請
性能予測のための物性値共有



【タスク】

高効率PCFC実用化を見通す
要素技術として、WP1は高性能な空気極を開発する。

【開発目標】

中間目標(2023年度末)
: 0.3 Ω·cm²@500°C
最終目標(2024年度末)
: 0.1 Ω·cm²@550°C

- 実施にあたっては,
 - ・ 先導研究の成果を活用
 - ・ WP2・WP3との連携
- TFチームを編成し、開発
空気極の技術移転・実装
を検討

3. 研究開発成果について

① 計算化学的手法による高性能空気極材料の探索・評価 (JFCC)

研究開発概要 (背景, 目的, 課題)

空気極材料はPCFCの性能律速要因となっている。本テーマでは、計算化学に基づいて、高プロトン伝導性・高電子伝導性をもつペロブスカイト型酸化物空気極材料を探索し、評価を行った。

研究開発目標, アプローチ

第一原理計算によりペロブスカイト型酸化物 $LnMO_3$ (Ln =希土類, M =3d遷移金属)を対象に、プロトン溶解性、電子構造などを評価する。また、母材におけるプロトン拡散機構を検討し、これに基づき適切な空気極材料の母材を提案する。

研究成果, トピックス

様々なペロブスカイト型 $LnMO_3$ 及び固溶体 $Pr(M_{0.5}M'_{0.5})O_3$ における水和エネルギーに対して系統的な検討を行った:

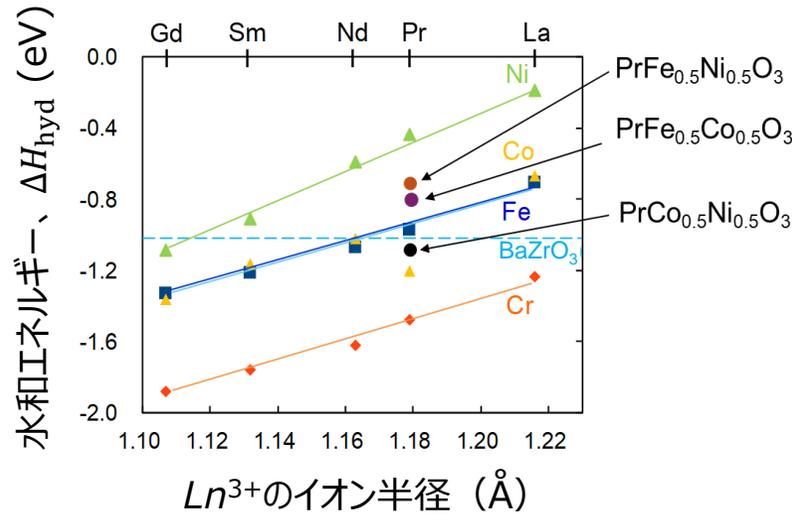
1) 酸素空孔による水和反応式, ΔH_{hyd}



★各々の結晶構造の対称性に基づいて、候補プロトンサイトを系統的に検討した。

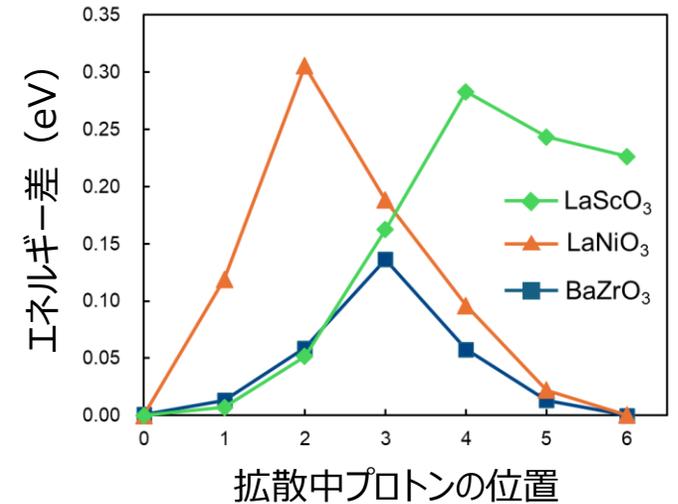
- ① d電子の増加に従い、プロトン溶解性が低下する。(一方、バンド構造計算により電子伝導性が増加する。)
- ② Ln^{3+} のイオン半径が小さい程、プロトン溶解性が向上する。
- ③ 水和エネルギーが低すぎても、OH結合が強固となり、プロトンの伝導が抑制される可能性があるため、BaZrO₃と同程度の水和エネルギーが望ましいと考えられる ($Ln=Pr, Nd; M=Fe, Co, Ni$)

2) 組成と水和エネルギーの相関



$LnMO_3$ における水和エネルギーと代表的なプロトン伝導体BaZrO₃との比較。

3) プロトン拡散機構の解析



$LnMO_3$ におけるプロトン拡散の活性化エネルギーとBaZrO₃との比較

- ④ $LnMO_3$ 結晶に多くのプロトンが挿入されても、BaZrO₃に比べてプロトン伝導性が低くなる傾向がある。

3. 研究開発成果について

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)

研究開発概要 (背景, 目的, 課題)

PJ全体目標である (発電効率65%以上, 出力密度1.3 W/cm²以上, 作動温度550 °C) を達成するために, 最大の性能律速要因となっている空気極材料の高性能化を図る。

研究開発目標, アプローチ

実際に電極を作製し, 性能評価を実施することで, 高性能PCFC空気極実現のための実験科学的手法による材料探索を行う。これにより, 電極設計コンセプトの妥当性を評価する。

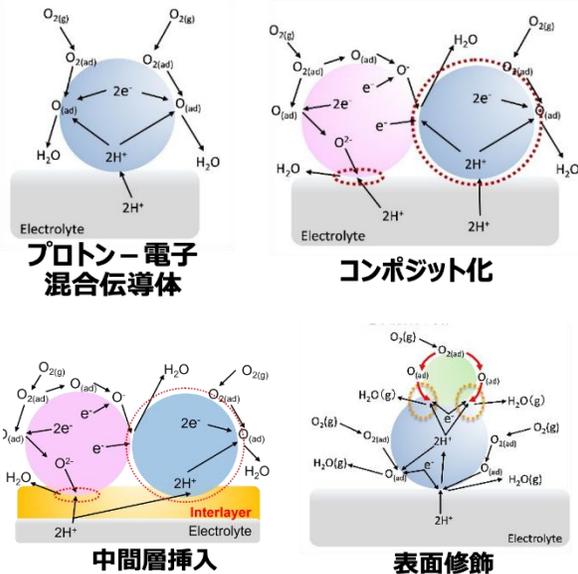
アプローチ: 混合導電体の利用/コンポジット化/表面修飾/中間層挿入

✓ 分極抵抗 < 0.1 Ωcm²@550 °C (最終目標)

研究成果, トピックス

実電極を用いた各性能向上因子の有効性検証

✓性能向上因子



Legend for the graph: Cathode (blue circle), BZYb (orange square), Ni-BCY anode (green triangle), Pd Reference (red diamond). 三極式セルを使用

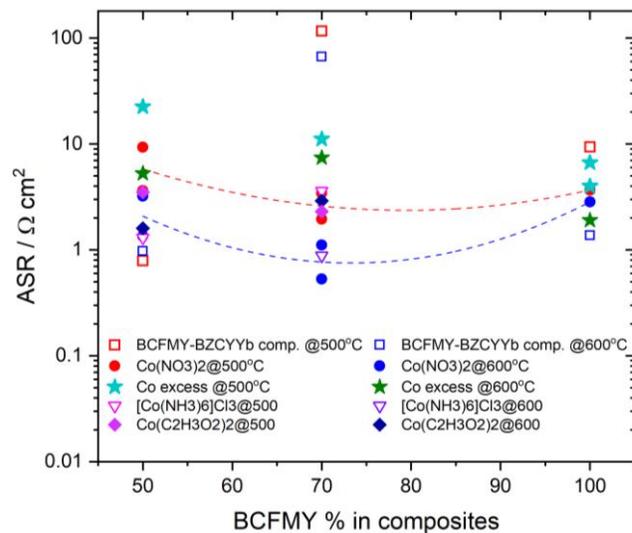
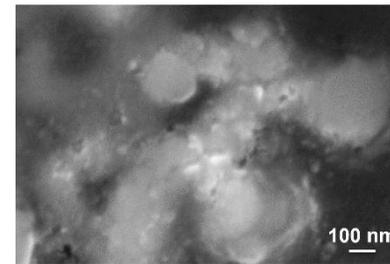


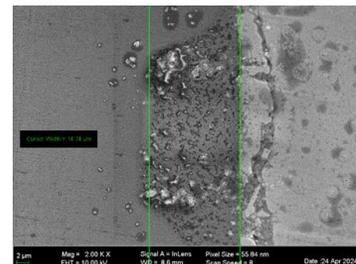
図 BCFMY系電極の重量混合比と分極抵抗の関係 (全てBZCYyb中間層を挿入)。

→ 性能の向上効果は, あるところで高止まり。



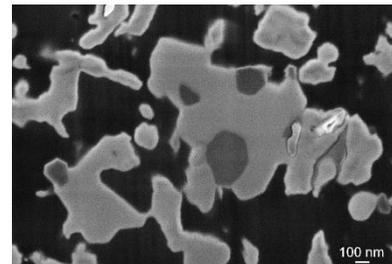
Co-infiltrated BCFMY-BZCYyb 電極表面

→ CoO_x粒子の担持状態



0.1M Co(NO₃)₂ aq. を滴下したBZYb電解質断面

→ 電解質が多孔質化



Co₃O₄-dispersed BCFMY-BZCYyb の断面像

→ MgCoO₂副生相の生成

実電極で評価すると, コンポジット化, 中間層挿入には効果がある。表面修飾については, 効果が確認できる系/できない系がある。

表面修飾効果

- Co成分分布がinfiltrationに使用する液性(pH・粘性・均一溶液 or コロイドなど)によって異なる。
- 効果の最大化には, 固溶状態を含めた安定相の同定と解析が重要。

3. 研究開発成果について

③空気極材料の基礎物性評価 (名古屋工業大学)

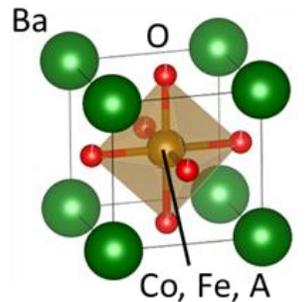
研究開発概要 (背景, 目的, 課題)

高効率PCFCを実現する上で、PCFC空気極に適したイオン-電子混合伝導体の開発が重要課題の一つである。本研究では、基礎物性の観点から、空気極材料の有望な候補となりうる混合伝導体を提示し、これより空気極抵抗の低減及びPCFC電力密度の向上を図る。

研究開発目標, アプローチ

- 各元素を固溶させたBa-Co-Fe-Y系ペロブスカイト混合伝導体の基礎物性 (特に酸素透過性) の系統的な評価。
- 以上より見出された有望な混合伝導体をPCFC単セルに空気極として実装した際の発電試験を実施。(WP2, 3産総研との連携)

Ba-Co-Fe-Y系ペロブスカイト



研究成果, トピックス

$BaCo_{0.4}Fe_{0.4}A_{0.1}Y_{0.1}O_{3-\delta}$ (BCFAY; A = Mg, Ti, Ni, Zn, Zr, Mo)

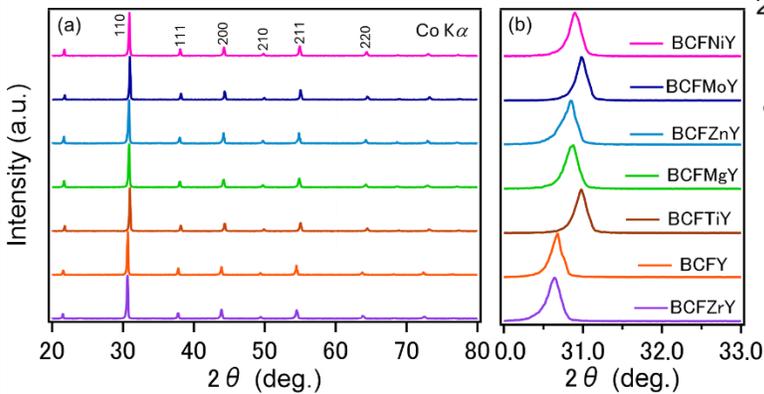


図1 作製した $BaCo_{0.4}Fe_{0.4}A_{0.1}Y_{0.1}O_{3-\delta}$ (BCFAY); A=Ti, Mg, Zn, Mo, Zr, Niの(a)粉末X線回折パターン及びその拡大図

全て立方晶ペロブスカイト($Pm\bar{3}m$)
格子定数: 4.11–4.15 Å

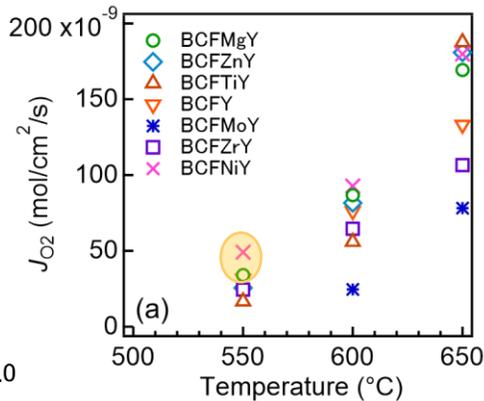


図2 (a)BCFAYの酸素透過速度 J_{O_2} , BCFAYを空気極として実装したPCFCセルの(b) $I-V$, 発電特性及び(c)0.85 V時のインピーダンス

酸素透過性が高いBCFMgY, BCFNiYを空気極として実装したPCFC単セルが、高い電力密度, 低い分極抵抗率 R_p を示した。

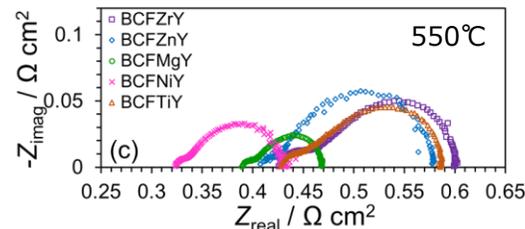
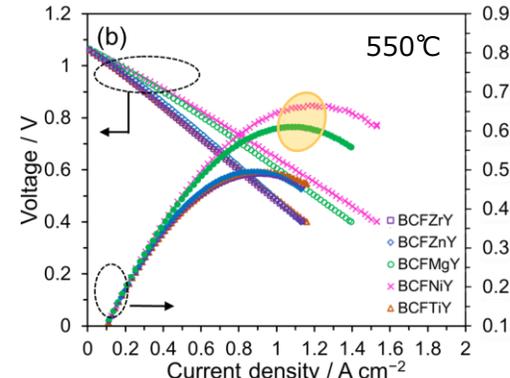


表1 BCFAY(A=Mg, Ti, Ni, Zn, Zr)を空気極として用いたPCFC単セルの550°Cでの開回路電圧(OCV)、最大電力密度、オーミック抵抗(R_{ohm})、分極抵抗(R_p)及び J_{O_2} の比較。橙色字は5試料の中で最も性能が高いものを示す。

カソード材料	OCV [V]	$i@0.85V$ [A/cm ²]	最大出力密度 [W/cm ²]	$R_{ohm}@0.85V$ [Ω cm ²]	$R_p@0.85V$ [Ω cm ²]	J_{O_2} [nmol cm ⁻² s ⁻¹]
BCFZrY	1.07	0.39	0.48	0.43	0.18	24.5
BCFTiY	1.06	0.29	0.49	0.43	0.16	16.7
BCFMgY	1.07	0.52	0.61	0.39	0.08	34.0
BCFZnY	1.07	0.41	0.50	0.41	0.18	25.7
BCFNiY	1.07	0.54	0.67	0.32	0.10	49.1

•高い酸素透過性を示すBa-Co-Fe-Y系ペロブスカイト混合伝導体が高性能PCFC空気極として有望であると示した。

•BCFMgY, BCFNiYを空気極とした場合の R_p により、本事業の最終目標値(550°Cで0.1 Ω·cm²以下)を達成。

3. 研究開発成果について

④空気極反応機構の解明 (東北大学)

研究開発概要 (背景, 目的, 課題)

本事業WP1で開発された空気極候補材料に対し、モデル電極を用いた電極反応機構の解明を実施し、基礎科学的知見に基づき、高性能電極の材料選択、最適構造の提案を行う。また、電極コンポジット化等による電極高性能化の可能性についても検討する。

研究開発目標, アプローチ

独自に考案したパターン緻密膜モデル電極を用い、以下を実施する。

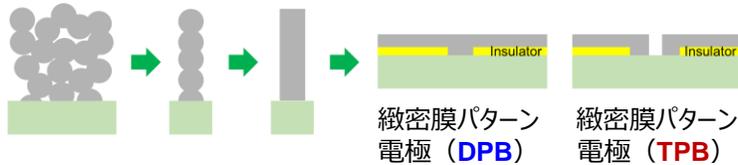
- ・代表的PCFC空気極材料の性能スクリーニング
- ・各電極材料における反応機構の解明
- ・コンポジット化, 中間層挿入等の影響の解明

以上より得られた知見に基づき、電極高性能化の指針を提示する。

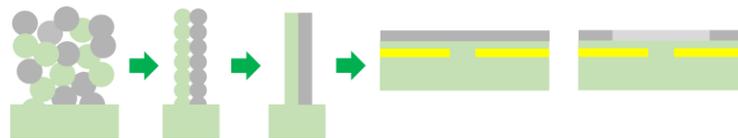
研究成果, トピックス

本事業で考案・作製されたパターン緻密膜モデル電極

- ・二相界面(DPB)と三相界面(TPB)型



- ・コンポジット型



- ・中間層挿入型

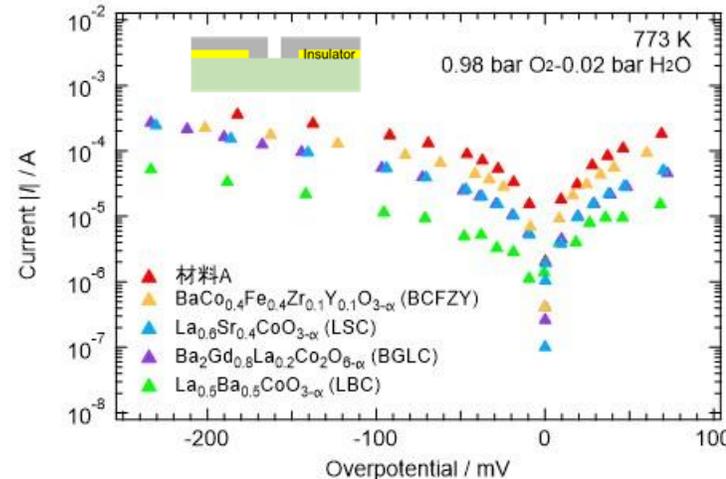
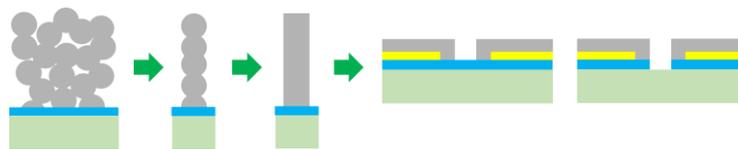


図1 モデル電極を用いた各PCFC空気極の電極活性評価
電解質: Ba(Zr,Yb)O_{3-δ}, 温度: 500°C

空気極材料の性能スクリーニング

- ✓ 各種候補材料の電極活性の横並び評価
- ✓ 電極反応サイトの特定

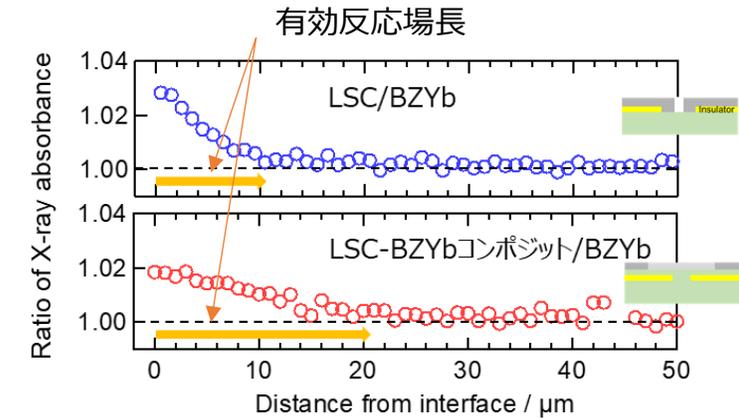


図2 オペランドマイクロX線吸収分光によるPCFCモデル空気極における反応分布評価

電極反応分布のオペランド評価

- ✓ 有効反応場長の定量的評価
- コンポジット化による反応場伸長

3. 研究開発成果について

⑤新規空気極の部材化・構造化技術の確立（リタケ）

研究開発概要（背景、目的、課題）

WP1各機関の研究開発により提示される、空気極高性能化に向けた材料・構造の最適化設計を実現するための部材化・構造化技術の開発を行う。電極のマイクロ・マクロ構造の制御や材料の複合化を可能とする技術確立する。

研究開発目標、アプローチ

リタケ独自のセラミックインクでの加飾技術を応用し、PCFC電極用材料を用いたインク作製技術、インクジェット印刷による構造制御技術確立することで、設計指針に基づいた電極組成・構造の適正化を実現する。

研究成果、トピックス

インクジェット印刷による構造制御技術開発

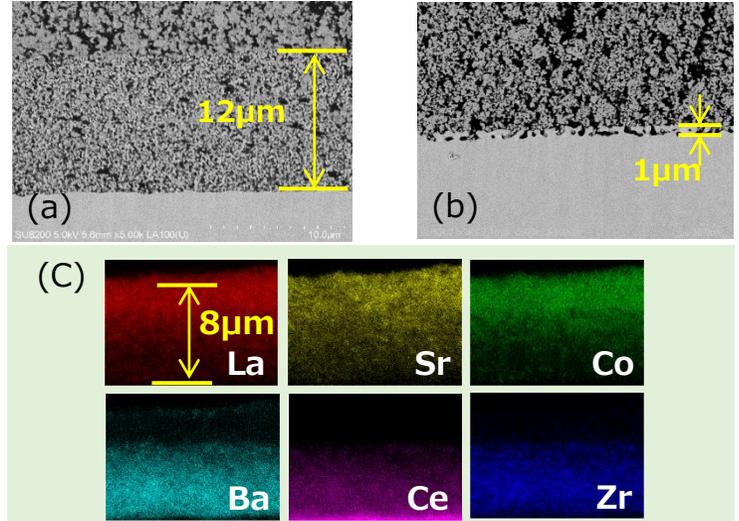


図1 インクジェット印刷で形成した(a)コンポジット空気極 (b)多孔質中間層 (c)組成傾斜電極

インクジェット印刷による各種の構造制御技術を確立

準量産プロセスによる新規空気極材料の作製（WP2産総研との連携）

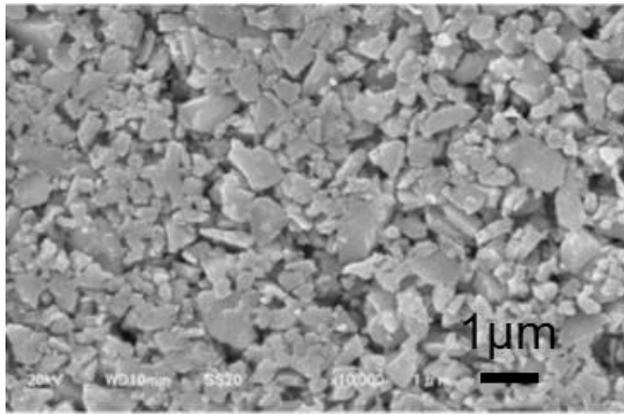


図2 準量産プロセスで作製した新規高性能空気極材料BaCo_{0.4}Fe_{0.4}Mg_{0.1}Y_{0.1}O_{3-δ}

実用化を見据えた製造プロセスの材料でラボレベルと同等の性能を確認

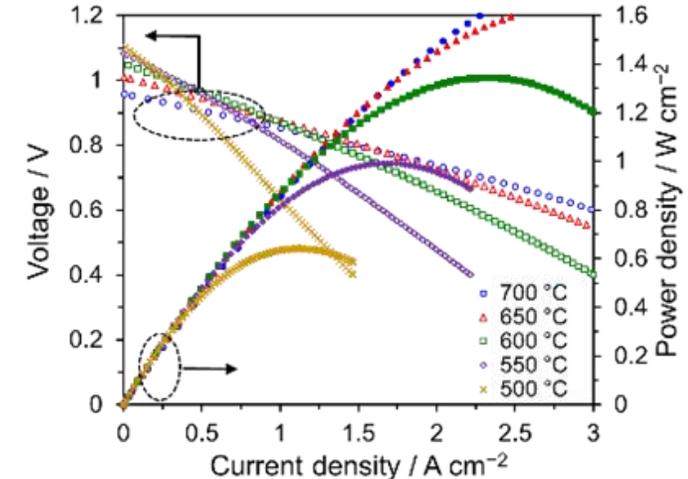
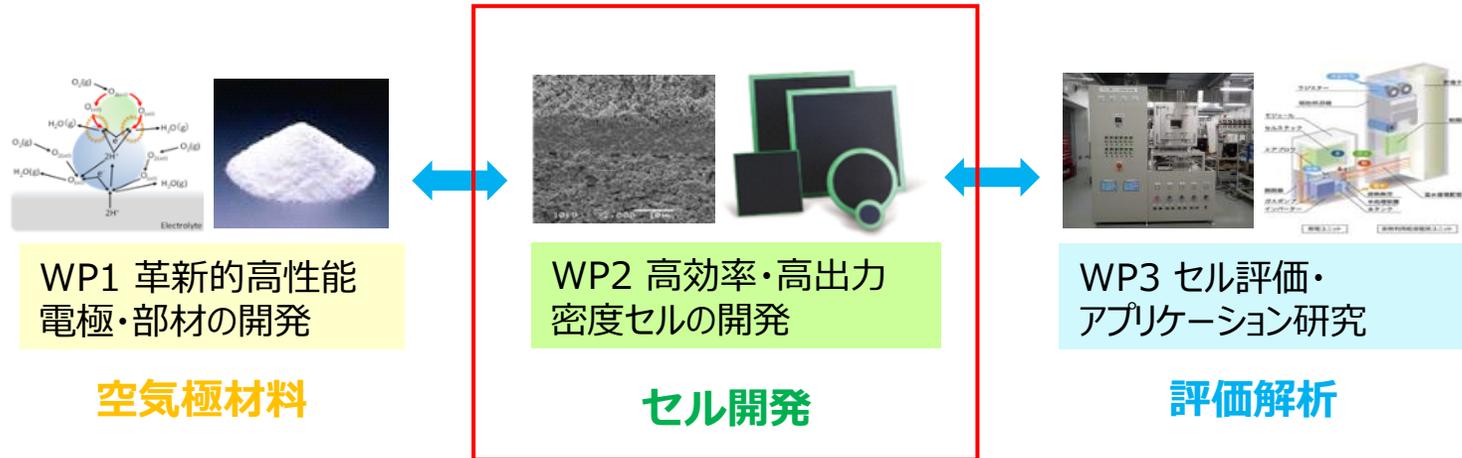


図3 準量産材料を空気極として実装したPCFCセルの発電特性

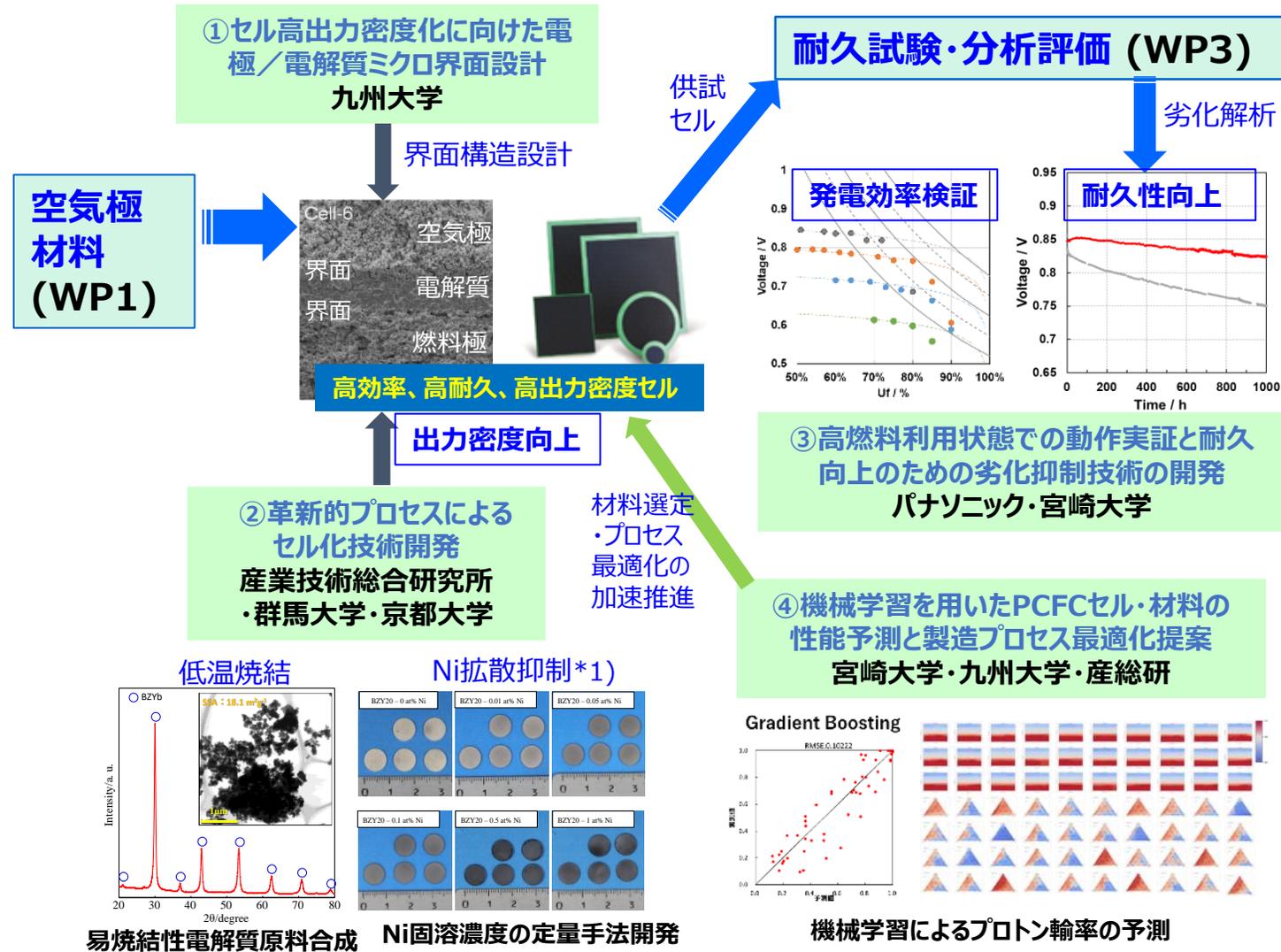
超高効率プロトン伝導セラミック燃料電池デバイスの研究開発 WP2 高効率・高出力密度セルの開発 成果報告



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 @550°C
- ・発電効率: 65%以上70%を見通す
- ・耐久性: 電圧低下率 1%/1000h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

- ・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) セル出力密度の向上 (産業技術総合研究所、他)

研究開発目標

標準セル		改良セル	革新セル
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 (@550℃) 1.7 W/cm ² (@600℃) 相当

既存のSOFC・PCFCを超える出力密度を550℃で実現する

アプローチ

電解質抵抗

+

電極抵抗

+

界面

- ・電解質薄膜化
- ・電解質物性向上
- ・多層積層構造

- ・高性能空気極(WP1)
- ・界面エンジニアリング



セル内部抵抗を低減する

研究成果、トピックス

電解質薄膜化 13μm ⇒ 8μm

電解質原料 A/B比制御

特許出願済

焼成温度 1500℃ ⇒ 1430℃
(Ba揮発、Yb偏析抑制)

多層積層構造

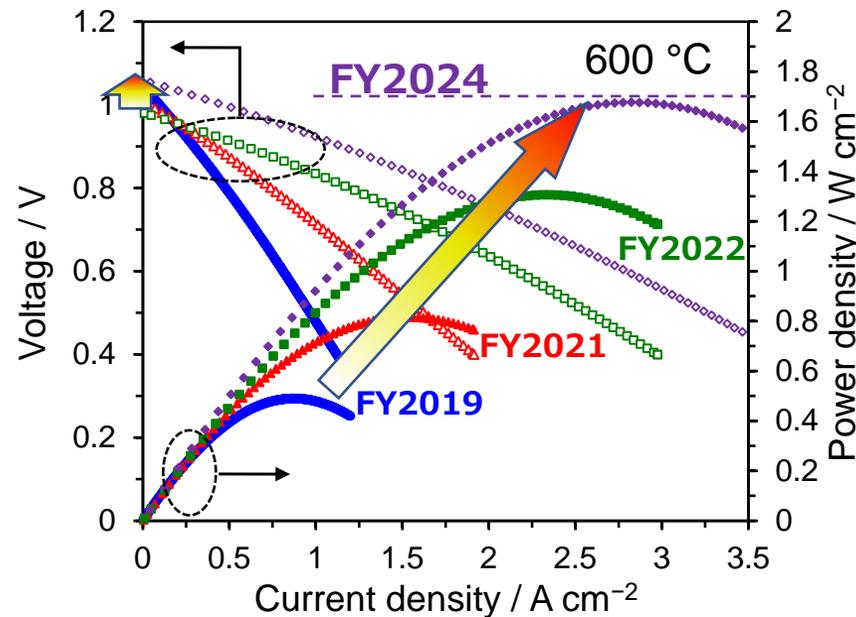
特許出願済

電極材料 LSCF ⇒ WP1空気極

特許出願済

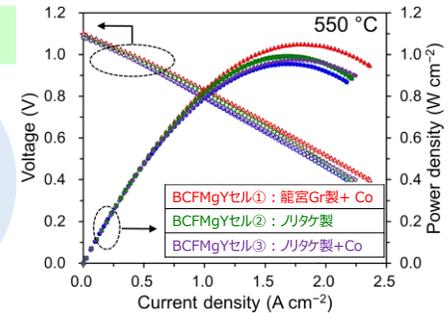
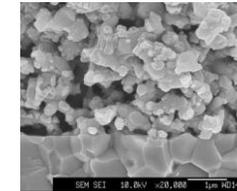
電極/電解質界面の密着度向上

<開発したセルの発電特性>



WP1-WP2技術により、世界最高レベルの出力密度を実現

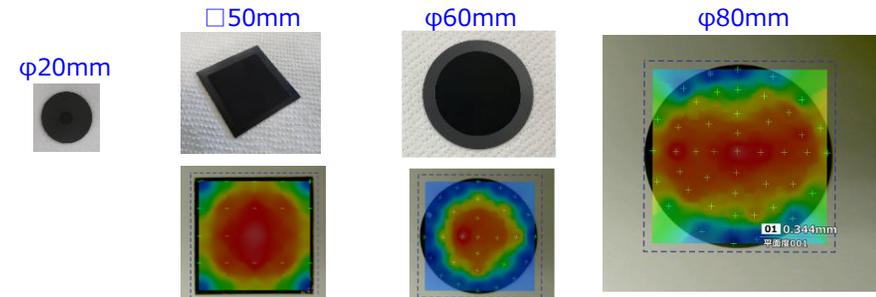
WP1新規空気極をセル実装



Ba(Co,Fe,Mg,Y)O₃系 + Co表面修飾 ⇒

550℃以下でも優れた電極特性

大面積化セルの作製



WP1,2,3の技術を結集して、革新セルを創出

3. 研究開発成果 (2) 発電効率実証、耐久性向上 (パナソニックHD・宮崎大学)

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72%以上(2024年度末)
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を実証
- ②耐久向上：セル電圧低下率1%/kh以下(2024年度末)
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

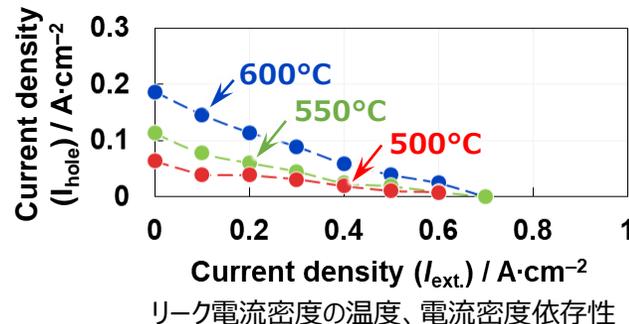
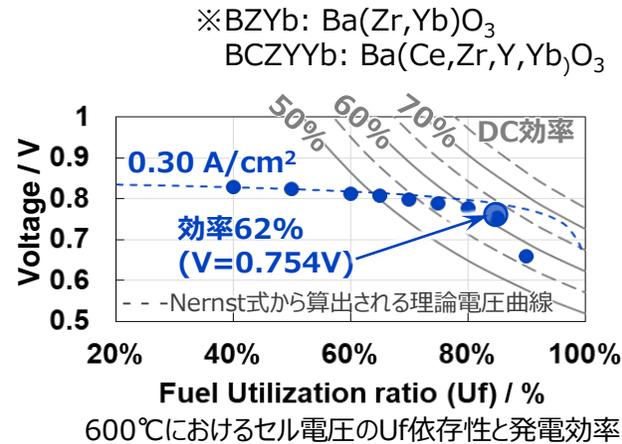
①高効率実証

- 電流密度0.3A/cm²、U_f=85%で効率62%
- 効率向上策として、低温作動によるリーク電流抑制効果を実証

セルサイズ φ60mm

セル構成
燃料極 Ni-BZYb
電解質 BZYb / BCZYYb
空気極 LaSrCoO_{3-δ}

燃料極ガス：
3%H₂O-48.5%N₂-48.5%H₂
空気極ガス：
3%H₂O-97%Air
(U_{air}=30% @ 0.3A/cm²)



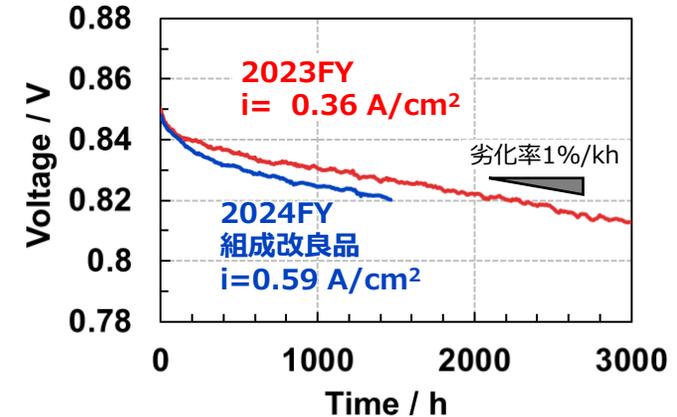
②耐久向上

- 最大3000hの連続発電試験により劣化率1.0%/khを確認、電流密度は0.59A/cm²まで向上
- 燃料極微構造の劣化を示唆

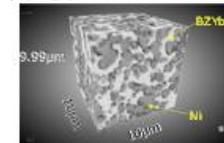
セルサイズ φ20mm

セル構成
燃料極 Ni-BZYb
電解質 BZYb
中間層 多孔質BCZYYb
空気極 LaBaCoO_{3-δ}-BZYb

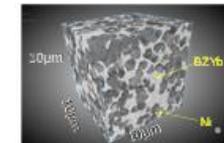
燃料極ガス：
3%H₂O-97%H₂
空気極ガス：
3%H₂O-20%O₂-77%N₂



発電初期



3000h発電後



TPB長さ 7.61μm/μm³ 4.86μm/μm³
3000h発電前後の燃料極三次元再構築結果

目的と課題

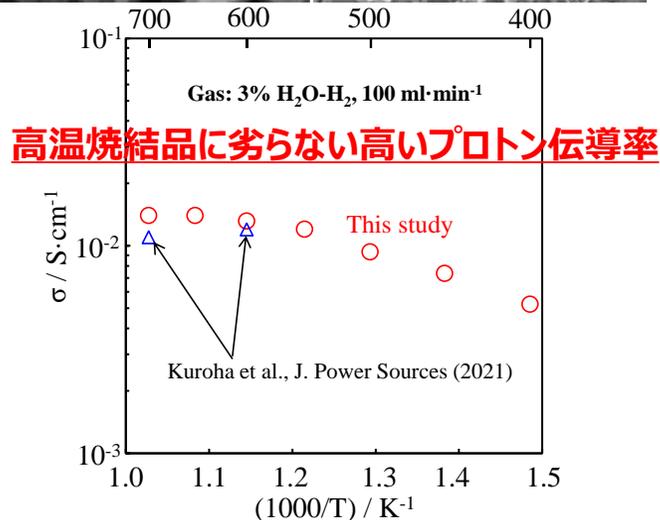
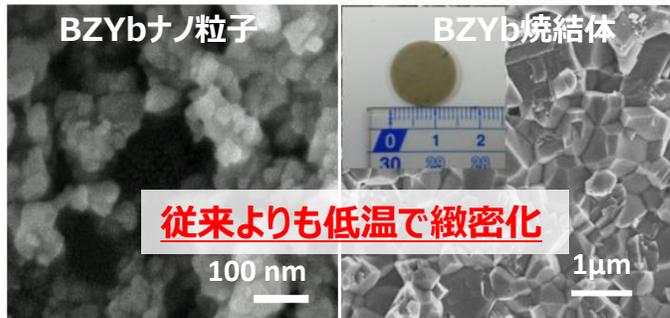
セル性能向上 (電流密度、効率、耐久性の向上)
 ⇒ 電解質へのNi拡散がプロトン伝導度およびプロトン輸率を大幅に低下させている ⇒ 低温焼結が有効

アプローチ

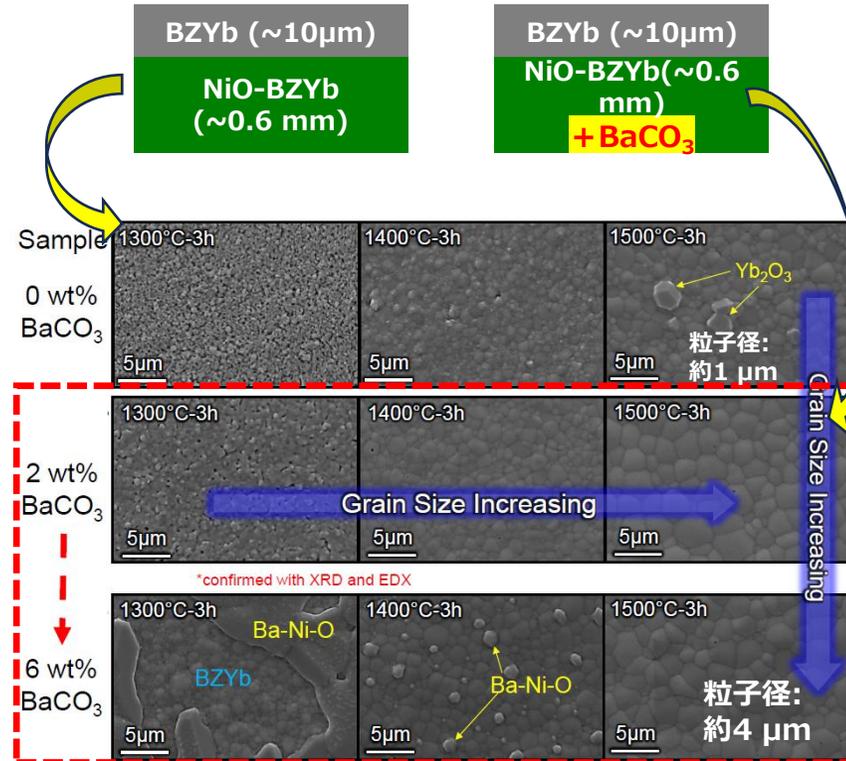
- ① 易焼結性ナノ粒子原料合成 (群馬大)
- ② 低温焼成を実現する電解質成膜プロセス (産総研)
- ③ Niの拡散を抑制する界面接合プロセス (京都大)

研究成果、トピックス

① 易焼結性ナノ粒子原料の合成 (群大)

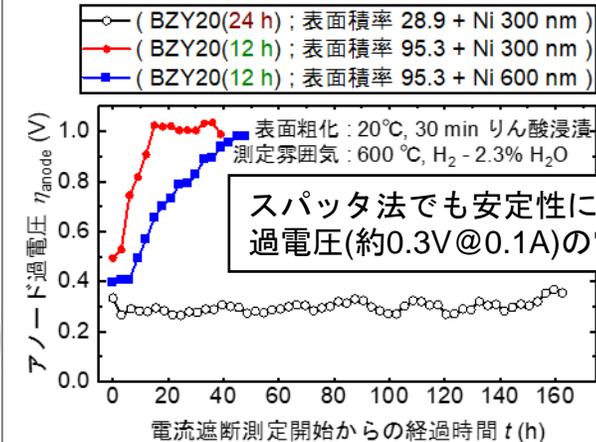


② 燃料極からのBa拡散を活用した焼結プロセス (産総研)



電解質の粒成長を促進し、粒界抵抗を低減

③ Ni拡散抑制を目的とした電解質/Ni界面接合技術 (京大)



✓ 電解質表面積が大きいと、Ni 触媒層が孤立化しやすくなり、アノード過電圧が高くなる。

➡ **スパッタ法による電極付与の最適な表面積率**

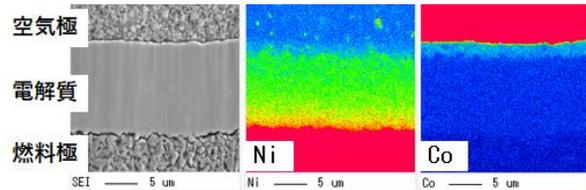
✓ 同じ表面積率 141.3 で比較すると、過電圧は Ni-Fe, Ni-Cu < Ni

➡ **Fe や Cu との合金化によりNi スパッタ電極の過電圧低減効果がある可能性**

3. 研究開発成果 (3) 要素技術② 界面エンジニアリング (九州大学・産総研)

目的と課題

- セル性能向上 (電流密度/効率)、耐久性向上
- ⇒ 空気極/電解質の界面が律速、劣化の主要因となっている

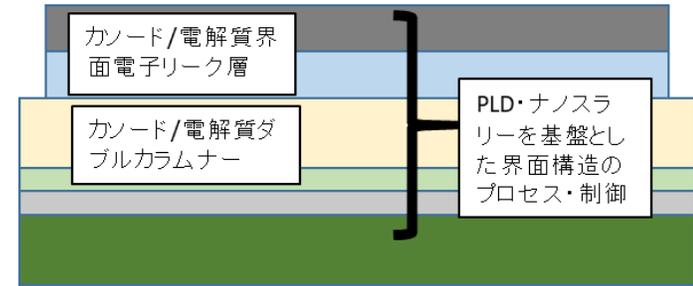


空気極/電解質 界面

- 遷移金属の拡散
- 高抵抗層
- 電極剥離

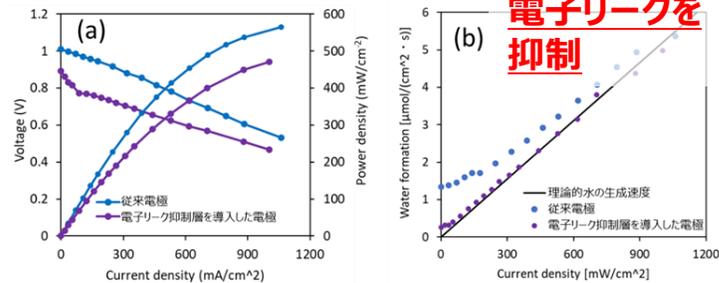
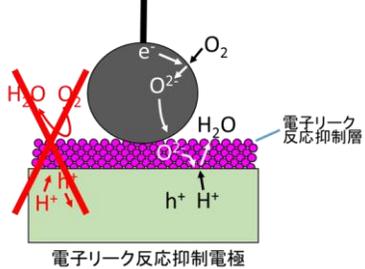
アプローチ

- 新規空気極構造：積層構造、ダブルカラムナー
- 中間層、界面層の導入
- 電解質表面、空気極界面の詳細解析



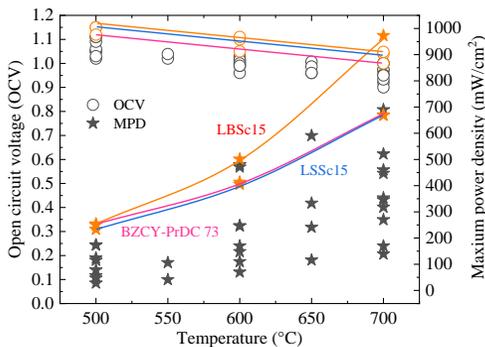
研究成果、トピックス

① 電子リーク反応抑制層

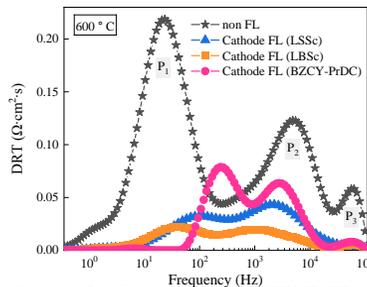


空気極/電解質界面に電子リーク反応を抑制する層を挿入→リークによる過剰な水の生成を抑制

② 新規中間層材料によるセル開回路電圧の向上



La_{0.85}Ba_{0.15}ScO₃カソード機能層により OCVが向上し、出力が向上した

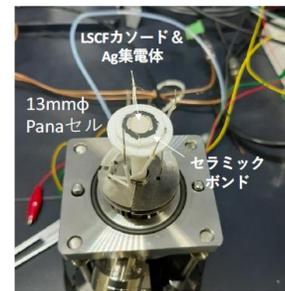


開回路電圧と出力密度を両立

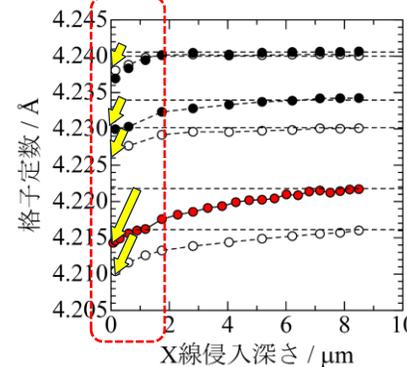
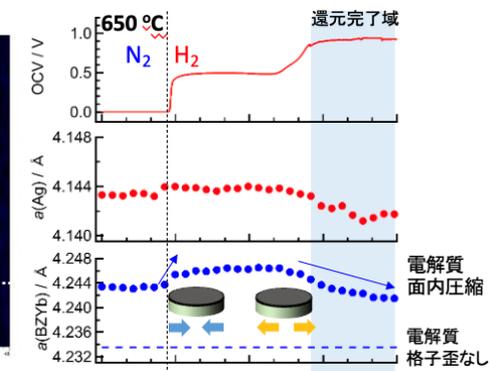
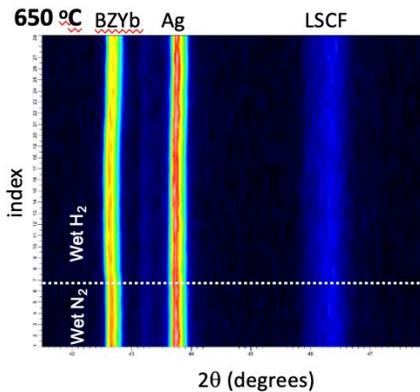
図 カソード機能層の影響

図 カソード機能層の電極過電圧への影響

③ 電解質表面、空気極界面の詳細解析技術



2室型チャンバー
Ag集電体(1.3 μm)
BLC/ナ/BZYbカソード
BZYb電解質薄膜(5 μm)
Ni/BZYb(還元)

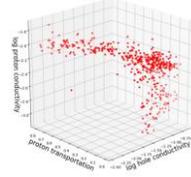
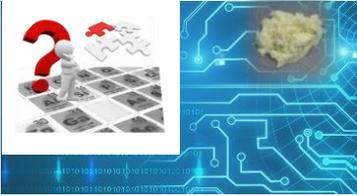


動作中のPCFCや薄膜電解質表面の結晶構造を解析する技術を確立



目的と課題

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 (2023年度末)

機械学習による研究開発の加速：二乗平均平方根誤差(RMSE)0.02以内の機械学習予測精度を達成する。→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)

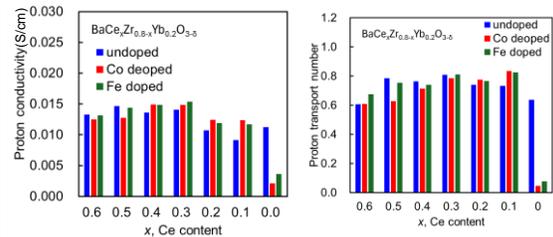
機械学習による研究開発の加速：機械学習により高効率・高出力密度セルを実現するための電解質、中間層を選定する。

研究成果、トピックス

■ プロトン伝導度、輸率予測

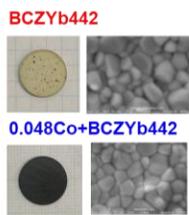
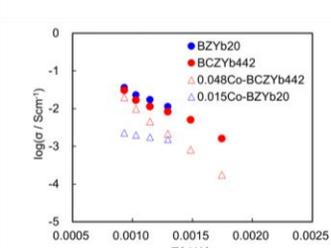
→中間層のCo固溶耐性の予測し、劣化解析をサポート

予測



CoやFeが固溶しても $BaCe_{0.4}Zr_{0.4}Yb_{0.2}O_{3-\delta}$ は高いプロトン伝導度と高いプロトン輸率を両立

実測

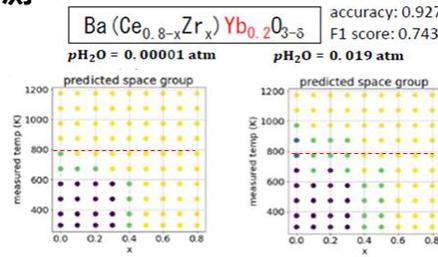


$BaZr_{0.8}Yb_{0.2}O_{3-\delta}$ と比べ $BaCe_{0.4}Zr_{0.4}Yb_{0.2}O_{3-\delta}$ はPCFC作動温度でCoやFeの固溶でプロトン伝導度た輸率の低下が小さい →セルにおけるCo固溶による電圧低下の抑制効果

■ 相転移予測

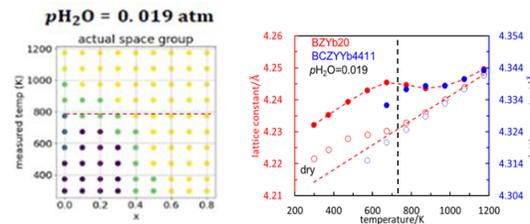
→加水の有無で相転移温度が変化することを確認

予測



$BaCe_{0.4}Zr_{0.4}Yb_{0.2}O_{3-\delta}$ はPCFC作動温度で立方晶系を維持することを予測

実測



$BaCe_{0.4}Zr_{0.4}Yb_{0.2}O_{3-\delta}$ はPCFC作動温度で相転移もなく、水和膨張、熱膨張も電解質である $BaZr_{0.8}Yb_{0.2}O_{3-\delta}$ と近い値

電解質と中間層の剥離抑制効果

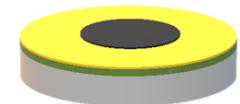
■ 機械学習に基づく出力、耐久性を有したPCFCの材料構成

中間層： $BaCe_{0.4}Zr_{0.4}Yb_{0.2}O_{3-\delta}$

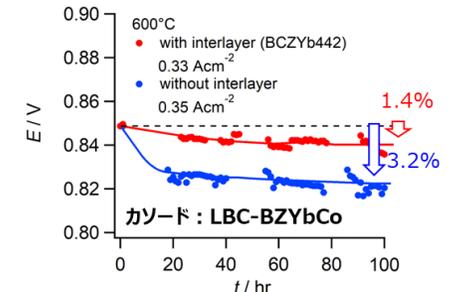
電解質： $BaZr_{0.8}Yb_{0.2}O_{3-\delta}$

アノード： $Ni-BaZr_{0.8}Yb_{0.2}O_{3-\delta}$

標準セル



実測



中間層により電圧低下を抑制

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 成果報告



WP1～WP3が連携して事業推進、WP3は評価解析を担当

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

WP3 セル評価・アプリケーション研究 (研究開発体制と実施テーマ)

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 (電中研・東京ガス・東邦ガス・エア・リキード・ラボラトリーズ)

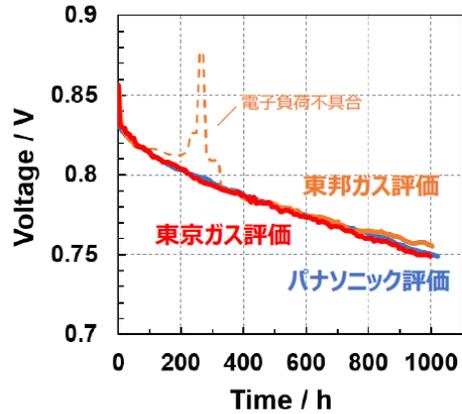
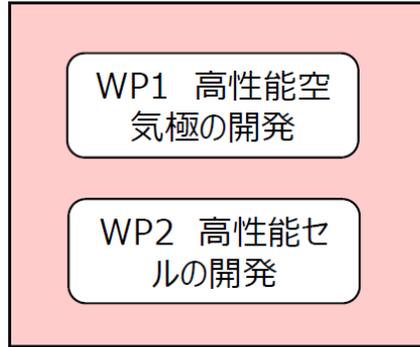


図 セルの安定性試験の一例

性能評価

劣化要因特定

各WPとの連携



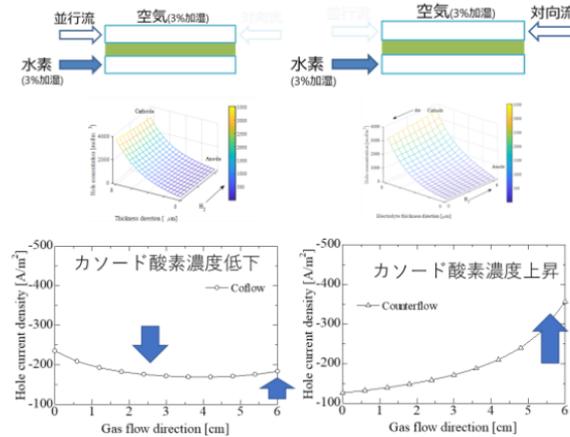
結果をフィードバック

性能・コスト分析

性能・構造解析

効率試算

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 (横国大)



②電気化学測定による性能劣化要因特定技術の確立 (産総研)

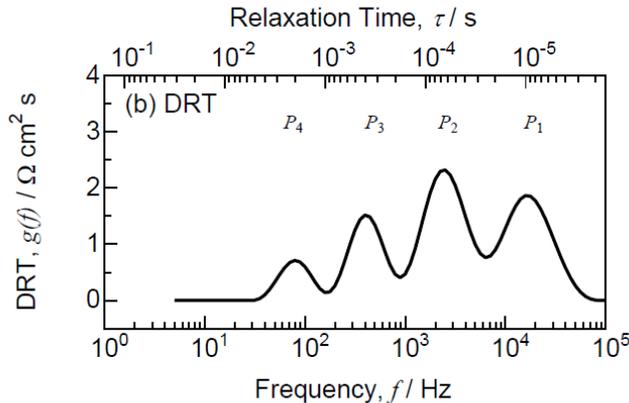


図 DRTスペクトル解析例

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・システム的设计 (東工大)

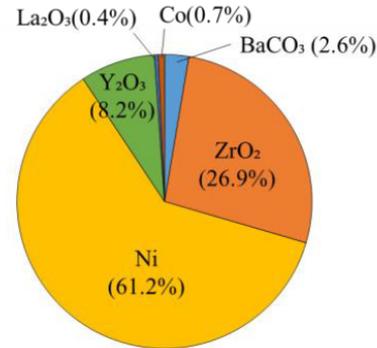


図 PCFCの原材料コストの内訳例

アドホック会議・意見交換会による課題整理 (WP1~3)

LOI企業にもご協力頂き、海外における開発動向、システムの発電効率の解析法、システムおよびセル解析からセル開発への要求仕様を整理

- ・システムおよびセル解析から見たセル開発への要求仕様に関するアドホック会議
- ・PCFCリバーシブル特性の電解モードに関する意見交換会

等

3. 研究開発成果 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)

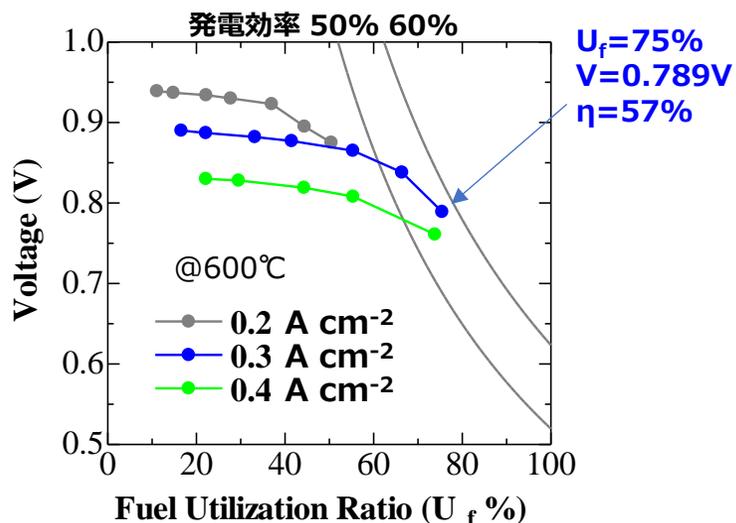
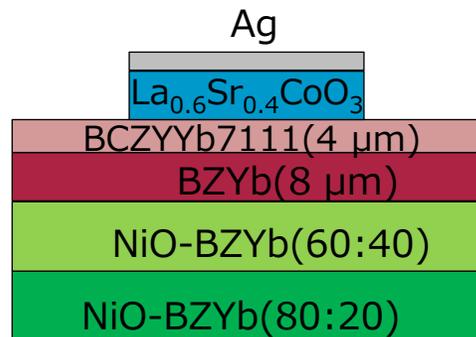
研究開発概要

- 実機に向けて面積を拡大したセル (16cm²) の基礎発電特性を評価する。
- コインセル耐久試験や反応性評価を行い、課題を抽出、WP1、WP2にフィードバックする。

大型セルの発電効率評価



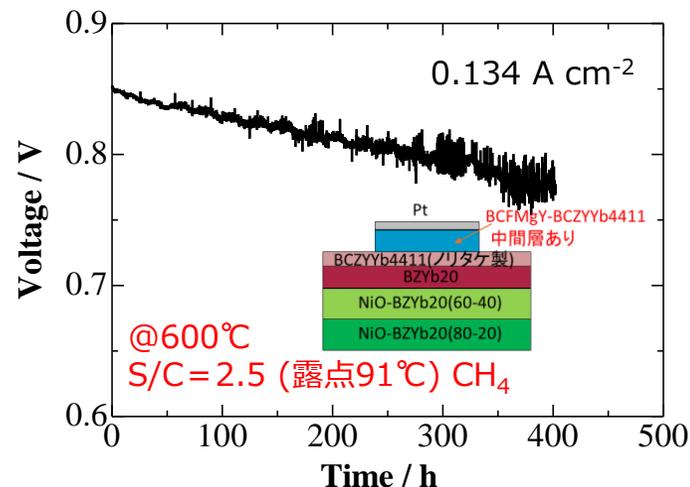
- セルサイズ : Φ60 mm
- 電極面積 : 15.9 cm²



Fuel Utilization Ratio (U_f %)

燃料利用率とセル電圧

メタン燃料の検討



現状の燃料極では、メタン-水蒸気の直接供給では発電できなかったが、2~3 mmφの改質触媒球を数個アノード近くに配置した結果、発電可能となった

第一原理計算による革新セルにおける課題

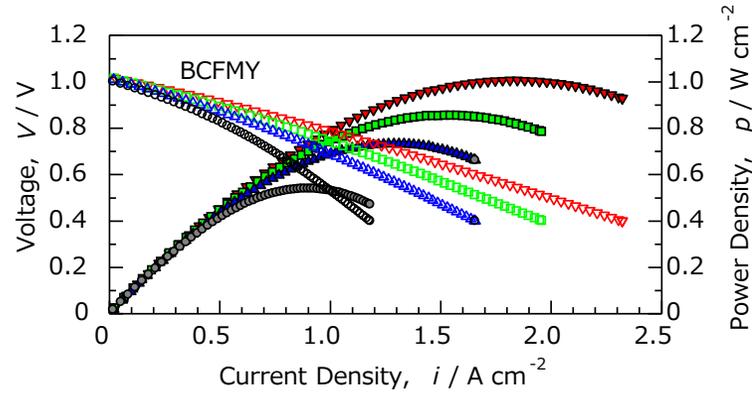
BCZYYbにもNiやCoが固溶することでYやYbを格子から押し出し、水和反応が阻害
→ドーパント-酸素空孔の安定配置を決定することで、ペロブスカイト中のNiとCoの反応機構を解明

大判化したセルの性能確認、耐久性の再現性確認、安定性の評価の結果をフィードバックすることで、セル改良指針を提示した。

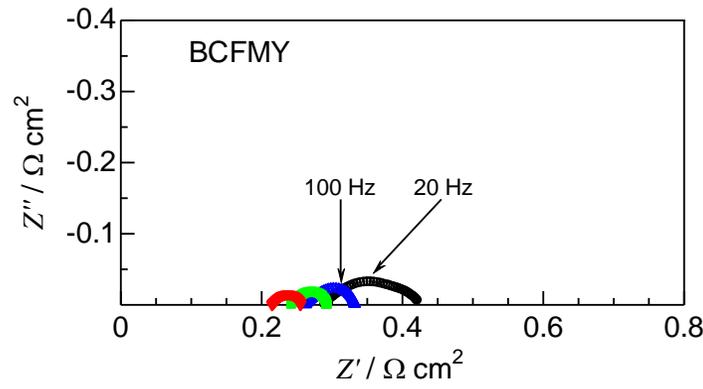
3. 研究開発成果 ②電気化学測定による性能劣化要因特定技術の確立 (産業技術総合研究所)

研究開発概要

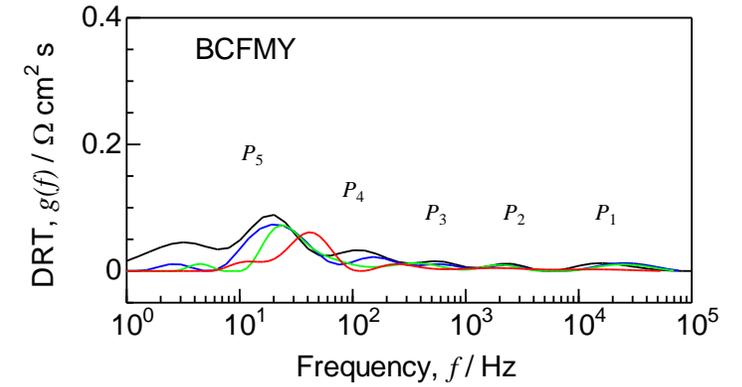
- DRT法によるインピーダンス解析等を行い、参照極がない場合でも燃料極と空気極等の内部抵抗が分離できることを確認し、WP1、2へセル改良指針をフィードバックする。



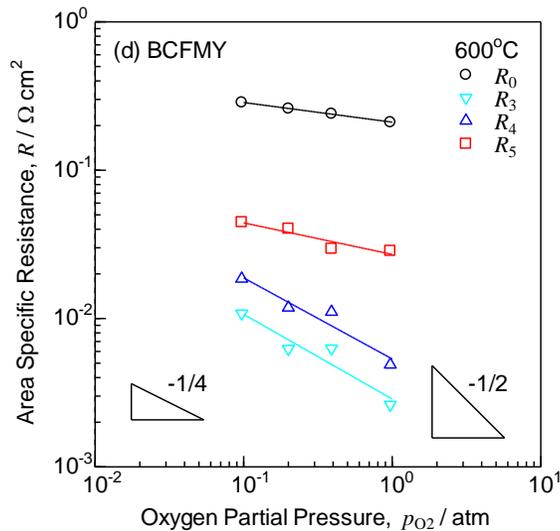
(a) i -V特性



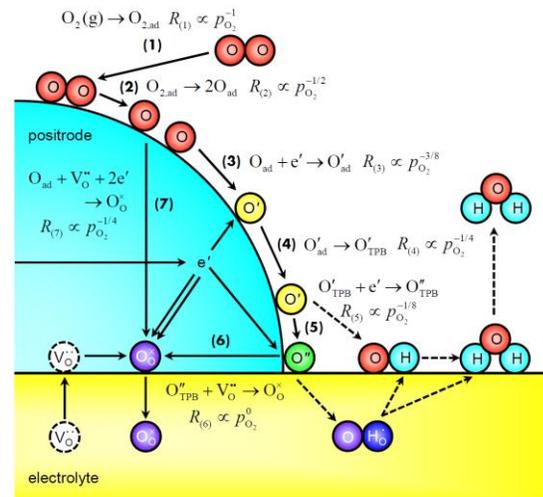
(b) EIS測定



(c) DRT分析



(d) ASRの酸素分圧依存性



(e) 空気極における反応機構

- (a) 電流密度(i) – 電圧(V)特性を測定
- (b) 電気化学インピーダンススペクトル(EIS)を測定
- (c) EISを緩和時間分布(DRT)法によって分離
- (d) PCFCのORR分極抵抗(R_4)は酸素分圧の-1/2乗に比例
- (e) PCFCでは、酸素解離反応が律速過程であることを解明

H. Sumi et al., Commun. Chem., 8, 71 (2025)

電極性能は酸素乖離吸着反応が律速であること、劣化は電極から電解質への遷移金属拡散が影響していること等を明らかにした。

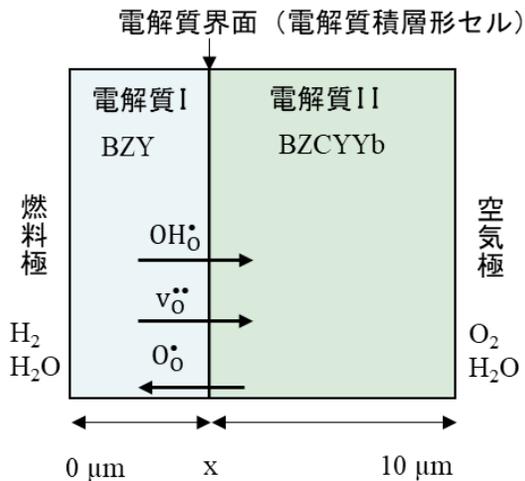
3. 研究開発成果 ③コストエンジニアリングによる製造プロセス及び高性能セル・システム設計 (東京科学大学)

研究開発概要

- 積層電解質によるリーク電流抑制を目指し、異なる2つの電解質内部のキャリアの輸送過程を明らかにする。
- 種々の製造法の相互評価によりコストインパクトを算出する。

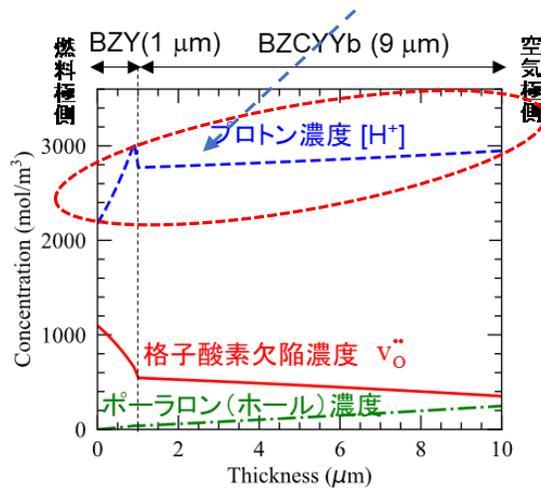
キャリア輸送と計算モデル、電解質内のプロトン濃度

CO₂耐性があるBZYと高H⁺輸率のBZCYYbの最適膜厚比を算出



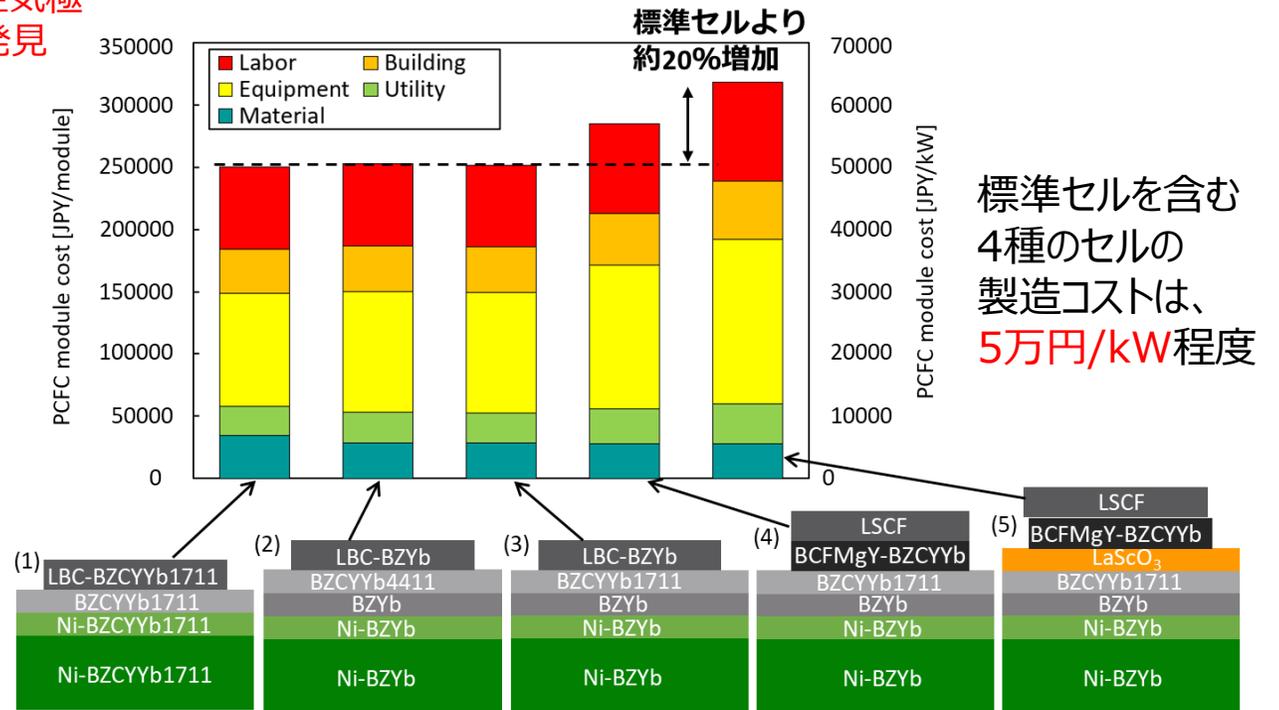
※BZY: BaZr_{0.8}Y_{0.2}O₃, BZCYYb: BaZr_{0.1}Ce_{0.7}Y_{0.1}Yb_{0.1}O₃

➤ H⁺濃度の増加傾向が空気極側方向に高くなることを発見



最適な膜厚比が開回路電圧とプロトン濃度を高めることを示唆

開発各種セルのコスト評価



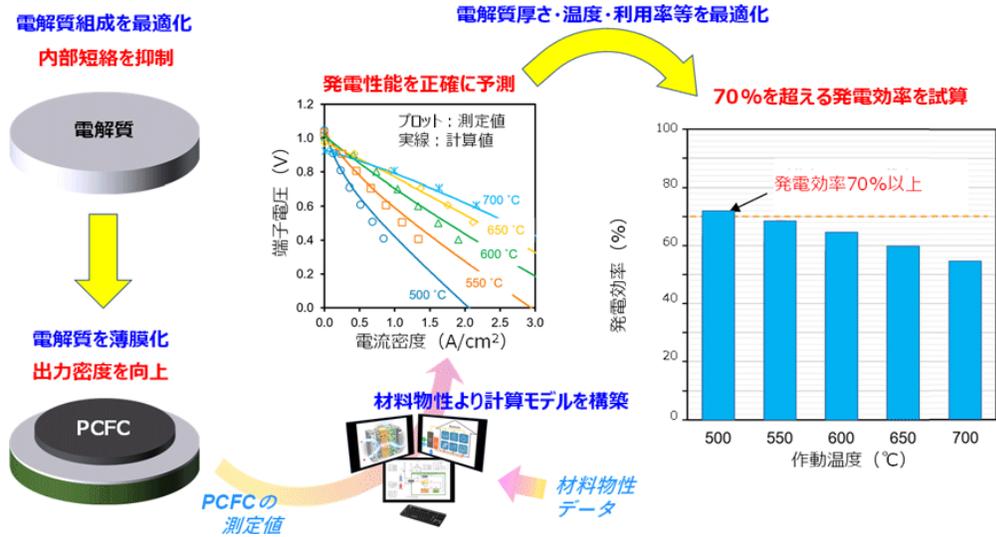
- 種々の積層型革新セルについて製造コストを明らかにした。
- 電解質積層型セルについて電解質内部の荷電粒子（酸素空孔、プロトン、ホール）の輸送過程を予測し、リーク電流の減少（OCVの改善）を定量的・実験的に明らかにした。

3. 研究開発成果 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 (横浜国立大学)

研究開発概要

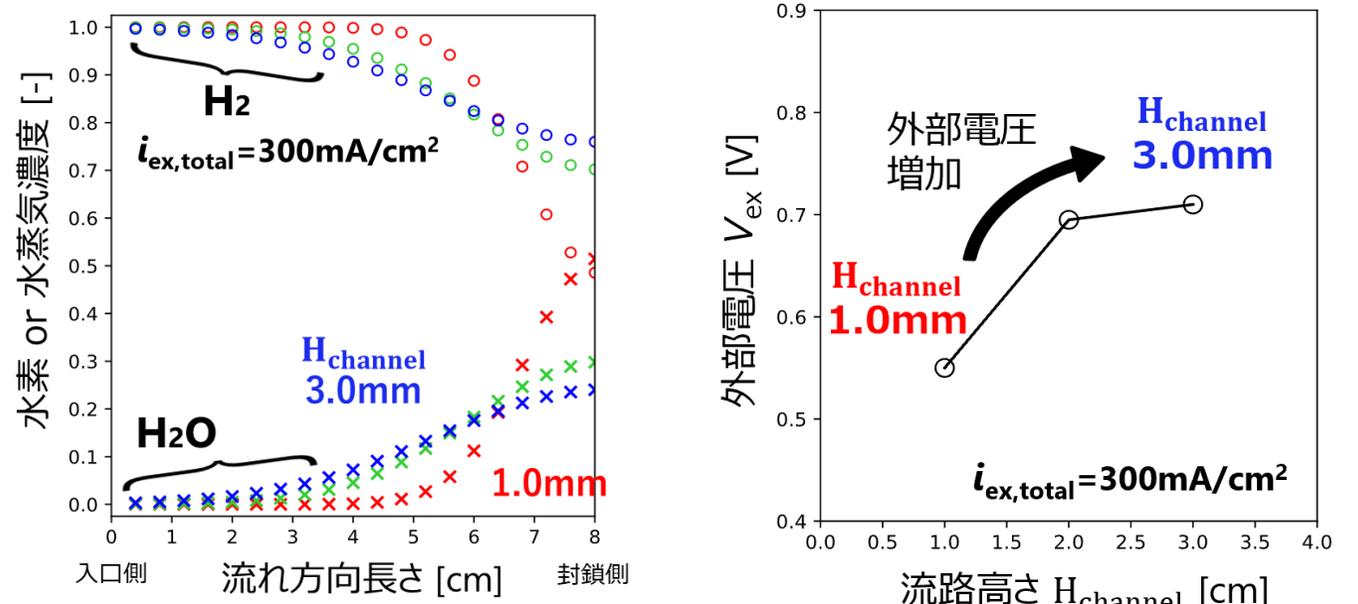
- 高燃料利用率時にセルスタック内で生じる水蒸気濃度差の影響 (過電圧) を明らかにするため、実験結果を精度良く再現できる数値解析モデルを開発する。

発電効率の試算



実験データを再現できる数値解析モデルを構築し、
発電効率70%以上が実現できることを示した

水蒸気濃度の影響



ガス流れ方向に対する水素および水蒸気濃度の変化

アノード側で水蒸気は生成しないが、
水素消費に伴い下流側で水素濃度低下

ガス流路高さと外部電圧の関係

セル内の水蒸気の逆拡散を促進する構造が
効率改善につながることを定量的に確認

- 開発セルの実験データからセルやスタックの性能予測ができる数値解析モデルを開発した。
- 燃料極水蒸気濃度とセル過電圧の関係を定量化し、無加湿水素や利用率100%の運転の成立性等を確認した。

3. 研究開発成果（特許，論文，对外発表）

(1) 出願特許 2024年度に**5件**出願（2020～2024年度計：**20件**）

出願機関	内容（タイトル）
リタケ 宮崎大学	プロトン伝導性セラミック燃料電池の電極およびその製造方法
産業技術総合研究所	プロトン伝導型固体酸化物形セル用の電解質及び燃料極の積層体の製造方法、並びにプロトン伝導型固体酸化物形セル用電解質及びそれを有するプロトン伝導型固体酸化物形セル
パナソニックHD	易焼結性プロトン伝導酸化物粉末の合成方法および合成粉末
パナソニックHD	複合酸化物粒子、電解質膜の製造方法、コンポジット電極、および複合酸化物粒子の製造方法
産業技術総合研究所	プロトン伝導セラミックセル用電解質層、プロトン伝導セラミックセル用電解質、プロトン伝導セラミックセル及びプロトン伝導セラミックセルの製造方法

(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

発表種別	学会発表		論文発表	
	2020-24年度計	2024年度	2020-24年度計	2024年度
WP1	83	27	16	0
WP2	126	40	21	4
WP3	82	8	22	10
合計	291	75	59	14

(3) プレスリリース

横国大、産総研、宮崎大
共同プレスリリース（2023年10月10日）※11紙に掲載

YNU 横浜国立大学
YOKOHAMA National University

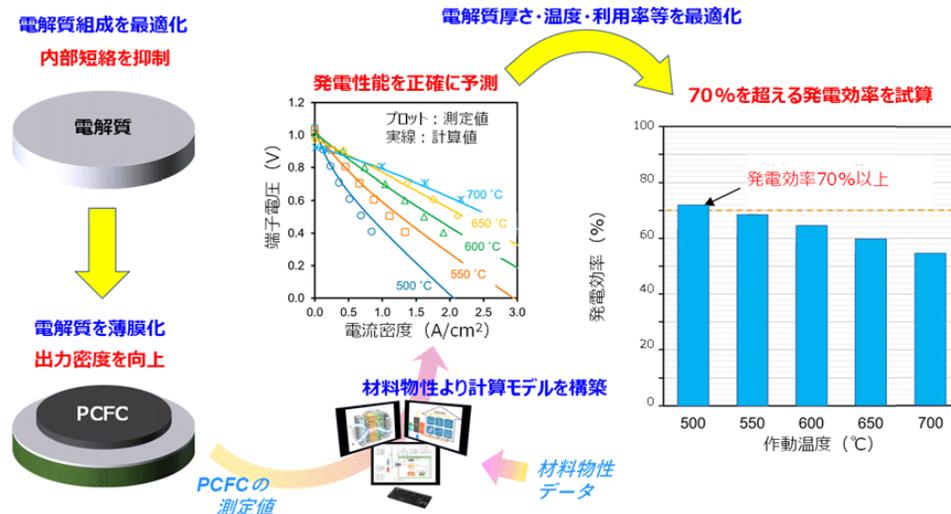
産総研

宮崎大学
University of Miyazaki

Press Release
2023年10月10日14時

次世代プロトン伝導セラミック燃料電池の
発電性能を飛躍的に向上

— 発電効率70%が実現可能で、
カーボンニュートラルに貢献 —

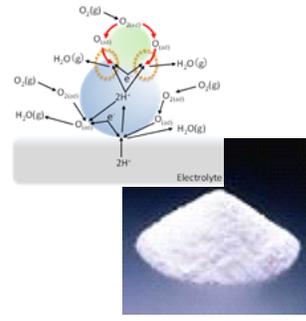


➤ 実験データを再現できる計算モデルを構築し、
発電効率70%以上が実現できることを示した

4. 今後の見通し (1)WP1~WP3 全体総括、今後の見通しと展望

(1) WP1 革新的高性能電極・部材の開発

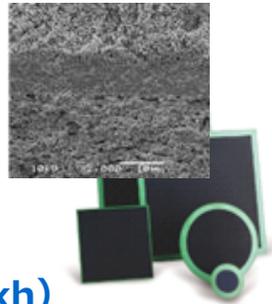
- ・550℃で分極抵抗0.1 Ω·cm²以下の空気極開発
- ・反応理解に基づく高性能空気極の材料・構造設計指針を提示
- ・インクジェット印刷による最適構造の実現



WP2への技術移転・セル実装 ↓ 材料

(2) WP2 高効率・高出力密度セルの開発

- ・セルの出力密度を3倍以上に向上
- ・リーク電流を抑制し、理論値に近い起電力を達成
- ・高効率の可能性を実証（発電効率62%）
- ・セル性能、耐久性向上のための要素技術開発（電圧低下率1%/kh）



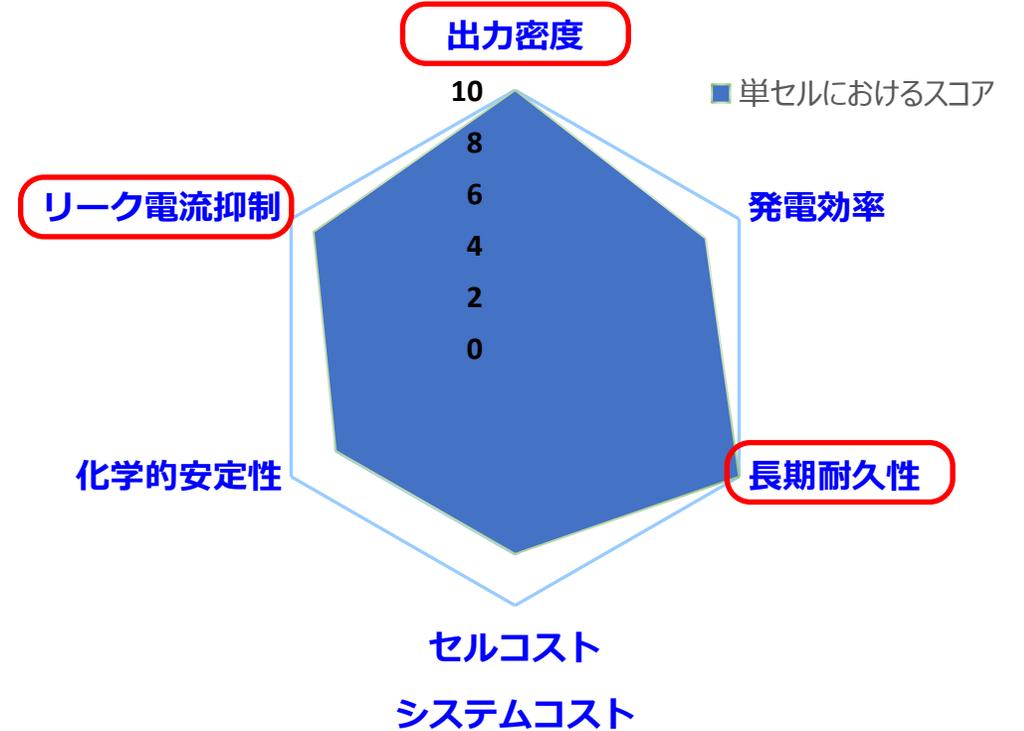
WP3による評価と詳細解析 ↓ セル

(3) WP3 セル評価・アプリケーション

- ・大判セルの基礎特性評価を実施し、WP1,2にフィードバック
- ・DRT法により酸素解離反応が律速過程であることを解明
- ・製造コストが5万円/kW程度であることを確認
- ・マルチフィジックスモデルにより高効率効率の可能性や水蒸気濃度の影響を明確化
- ・水蒸気電解評価を実施し、リーク電流量測定技術等構築



PCFCセル開発の達成度（自己評価）



- 550~600℃でのセル性能は**実用に近いレベル**に到達
- 出力密度は、世界最高レベルを達成
- 耐久性は、1%/kh以下を達成
- リーク電流も大幅に改善
- △ 一方、**電解運転時にはリーク電流が発生し、電解も視野に入れた実用化に向けて引き続き重要な課題**
- △ 高濃度水蒸気雰囲気下などにおける**化学的安定性**などより多くの実績が必要

ご清聴ありがとうございました。