戦略的創造研究推進事業(ALCA) 技術領域(プロジェクト名) 「自律分散型次世代スマートコミュニティ」 課題名「高効率水素製造水蒸気電解/燃料電池 可逆作動デバイスの開発」

終了報告書

研究開発期間 平成23年 10月~令和 2年 3月

研究開発代表者:内田 裕之 (国立大学法人山梨大学クリーンエネ ルギー研究センター、教授)

○報告書要約(和文)

研究開発代表研究者:山梨大学 教授 内田 裕之

研究開発課題名: 高効率水素製造水蒸気電解/燃料電池可逆作動デバイスの開発

1.研究開発の目的

太陽光、風力等の再生可能エネルギーから得た変動の大きな電力で水蒸気電解(SOEC)して水素製造・貯蔵し、必要時に固体酸化物形燃料電池(SOFC)で発電可能な可逆作動デバイスを研究・開発する。新規高性能電極を開発し、高効率かつ低温作動化により耐久性向上と低コスト化を目指す。これにより再生可能エネルギーの導入拡大と水素社会の実現に寄与する。

2.研究開発の概要

(1)内容:

1.可逆作動 SOEC/SOFC 用の高性能・高耐久電極の開発(山梨大学)

大規模再生可能電力を蓄電・平準化するシステムの心臓部分となる SOEC/SOFC 可逆作動セル 用の新規高効率・高耐久性電極を開発した。作用機構の解明による高性能電極設計指針の確立 とともに、劣化機構の解明により高耐久化指針を確立した。

2.可逆作動 SOEC/SOFC 用高性能セルスタックと水素ガスシールの開発(ノリタケ)

SOEC/SOFC 可逆作動セルの心臓部であるセラミックセル、及び高効率化に最も重要な要素の一つである水素ガス漏洩を抑制するガラスシールを開発した。これらを用いて1kW 級スタックの製造方法を確立した。

3. 開発電極の実用化研究と社会実装に向けた仕様の検討(東京ガス)

開発電極を有する可逆作動セルを実用化、社会実装するためには、実用サイズへ大型化する際の課題、すなわち、性能をフルに発揮させるための集電法、ガスの流配法、スタック形状と適切なサイズなど、実用化のための最適構成を明らかにする必要がある。そこで、社会実装に向けてのセルの大型化技術、スタック化技術を検討し、高効率なシステムを設計するための研究を実施した。

(2)成果:

- 1. 可逆作動セル用高性能・高耐久酸素極と中間層の開発 緻密で均一なサマリアドープセリア (SDC) 中間層の調製法を開発し、 $La_{1-x}Sr_xCo_{1-y}Fe_yO_3$ -SDC 酸素極の性能と耐久性を大幅に向上できた。初期性能に対する中間層の効果を初めて示した。世界的課題の酸素極高耐久化に成功し、特許が成立した。チーム内で、この調製法を実使用サイズセルに適用し、効果が実証できた。
- 2. 水素極の高性能化と劣化抑制法の開発 二重層構造水素極の微細構造制御と Ni-Co 触媒の SDC への高分散化により高性能化した。これら水素極と酸素極により低温作動化して SOEC 初期電圧効率 98%の見通しを得た。可逆交互運転により水素極劣化が大幅抑制できることを初めて示し、PCT 出願した。この成果は世界的な課題の SOEC 水素極の劣化抑制に大きく貢献する。
- 3. 可逆作動 SOEC/SOFC 用高性能セル/スタックとガラスシール開発 実使用サイズセルを安価なプロセスで製造する方法を確立し、高効率化の鍵となる開発ガラスシールを用いて 10 段積層ショートスタックを作製した。そして SOEC/SOFC 両モードで目標とする性能を達成できた。
- 4. 可逆作動 SOEC/SOFC の社会実装の検討 SOEC/SOFC を水素吸蔵合金と組み合わせ、水素 貯蔵・放出時の発熱・吸熱を利用するシステム効率向上法を提案した。また、余剰電力を利用した SOEC 水素製造のコストを競争可能な値にするための、システムコストの目標値を算出できた。
- (3)今後の展開: SOEC/SOFCを大規模再生可能エネルギーの蓄電に実用化するためには、高性能・高耐久電極開発のみならず水素ガスシールを含めたスタック製造技術の低コスト化が極めて重要である。コストダウンのためには高電流密度運転が有効であるが、劣化速度が速くなるため対策が必須となる。また、早期社会実装のために、SOFC 発電時の廃熱の有効利用法など、開発セル/スタックをシステム化するための課題をシステムメーカーと共に解決する必要がある。

• Report summary (English)

Principal investigator: Hiroyuki UCHIDA, Professor, University of Yamanashi R & D title: Development of a Reversible Solid Oxide Electrolysis Cell for Efficient Hydrogen Production and Power Generation in the Fuel Cell Mode

1. Purpose of R & D

We have developed a highly efficient reversible solid oxide cell (R-SOC). When an SOC is operated as a solid oxide electrolysis cell (SOEC), large-scale renewable electric power (solar and wind power generation) can be stored as hydrogen. The stored hydrogen is supplied to an SOFC (the reverse operation mode of the SOEC, to match the electricity supply with demand), fuel cell vehicles, or industrial uses (NH₃ production, oil refining, synthetic fuels, etc.). The present research aims to contribute toward establishing low-carbon technologies as well as a hydrogen energy society.

2. Outline of R & D

(1) Contents:

1. High-performance and durable electrodes for a reversible SOEC/SOFC (University of Yamanashi)

We have developed novel electrodes with high-performance and durability. Based on the analysis of the operation and degradation mechanisms, concepts for such electrodes have been established.

2. High-performance cell/stacks and H₂-gas seal for a reversible SOEC/SOFC (Noritake Co., Ltd.)

We have developed ceramic single cells and glass materials to seal H₂-gas in a reversible SOEC/SOFC. We have established a production method of 1 kW-class stack.

3. Analyses of cell/stacks and systems for a social implementation (Tokyo Gas Co., Ltd.)

For a social implementation of a reversible SOEC/SOFC system with high efficiency, a suitable shape & size of cell/stack, current collection, and gas distribution have been examined.

(2) Achievements:

1. High-performance and durable O₂ electrodes with ceria-based interlayers

The performance and durability of a composite oxygen electrode, $La_{1-x}Sr_xCo_{1-y}Fe_yO_3$ and samaria-doped ceria (LSCF–SDC), have been improved greatly by the use of a dense and uniform SDC interlayer (patented preparation method). The effect of the uniform interlayer on the electrode performance has been clarified for the first time.

2. High-performance H₂ electrodes and suppression of the degradation by reversible operation

We have prepared high-performance double-layer (DL) H_2 electrodes with highly-dispersed Ni-Co catalysts by controlling the microstructure. With the use of our O_2 and H_2 electrodes, the voltage efficiency for an SOEC has been estimated to be 98% at 750°C. The durability of the DL- H_2 electrode has been improved greatly by a reversible cycling operation between SOEC and SOFC.

3. High-performance cell/stacks and glass materials to seal H₂-gas

We have succeeded in establishing a production method of practical-size single cells. It was effective to apply a new method (patented by University of Yamanashi in the project team) to densify the ceria-interlayer for the O_2 electrode. Projected performances in both operation modes of SOEC and SOFC have been achieved at our 10-cell stack with newly developed glass sealant.

4. Analyses of cell/stacks and systems for a social implementation

By utilizing the exothermic/endothermic heat during H₂-storage/supply for metal-hydride, the system efficiency of R-SOC can be increased. We have estimated a projected system cost, which enables H₂-production cost competitive to those by other water electrolysis technologies.

(3) Future developments:

In order to commercialize SOEC/SOFC for the storage of large-scale renewable electric power, it is essential to decrease the cost of cell/stack with high-performance and durable electrodes as well as H₂-gas seal. While a high current density (HCD) operation is effective for the cost reduction, we need to develop countermeasures against an accelerated degradation at the HCD. For a social implementation of the system, it is necessary to collaborate with a system company, solving various issues such as effective utilization of exhaust heat from SOFC operation-mode.