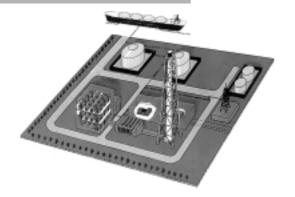
特集論文



固体酸化物形燃料電池 (SOFC) 発電システムの開発

Development of SOFC Power Generating System

杉 谷 敏 夫 加 幡 達 雄 橋 本 貴 雄 溝 口 孝

当社は,ガスタービン複合発電システムと組み合わせることにより,60% LHV(石炭)~70% LHV以上(LNG)の高効率発電が実現できる固体酸化物形燃料電池 (Solid Oxide Fuel Cell:SOFC)の開発を進めている.円筒型SOFCは,2001 年に10 kW 級モジュールにて加圧内部改質で755 時間連続運転を達成した.また,一体積層型SOFCは,2000年7月から2001年10月にかけて常圧25 kW モジュールの運転試験を実施し,最大出力15 kW,累積7 500時間運転を達成した.これら実証機試作を通じて,電池モジュール構造の確立を図り,SOFC 発電システムの早期実用化に向けて開発を進めて行く.

1.ま え が き

燃料電池は,エネルギー効率が高く,CO2をほとんど発生せず環境負荷が小さいことなどから開発が進められている.その中でも固体酸化物形燃料電池(SOFC)は,高温作動のため多様な燃料を使用できること,電池単体で45%以上,ガスタービン複合発電システムとの組合わせで60%LHV(石炭)~70%LHV以上(LNG)の高効率発電が可能なことなどから,将来の分散電源,集中電源として期待されている.当社は1984年にSOFCの開発に着手して以来,電池を構成するセラミック材料,電池構造,製造技術及び電池モジュール*の開発を推進し,現在数10~100kW級発電システム実証機の開発段階にある.本報では,当社で開発を進めている円筒型SOFC及び一体積層型SOFCの開発状況と次ステップへの展望について述べる.

*電池モジュール:複数の電池を収納し,発電反応場を維持する容器

2.円筒型加圧内部改質10 kW 級モジュールの開発

2.1 加圧化技術開発

SOFCは1000 レベルの高温作動で排ガス温度が高く,また,燃料排ガス中に未利用燃料を含んでいるため,ガスタービンと組み合わせた複合発電システムを構成することが可能である.図1にSOFC複合発電システムの系統図を示す.SOFC複合発電システムにおいては,ガスタービンの空気圧縮機で昇圧した空気をSOFCへ供給するため,SOFC電池モジュールの加圧運転が必須となる.当社は,電源開発(株)と共同で加圧モジュールの開発を進めており,1998年には,電源開発(株)若松総合事業所において10kW級加圧モジュールにて7000時間連続運転を達成した(112).

2.2 **円筒焼結型** SOFC **の開発**

当社は,モジュール開発と並行して電池本体の低コスト化及び耐久性改善のため,焼結法による電池製造技術の開発を

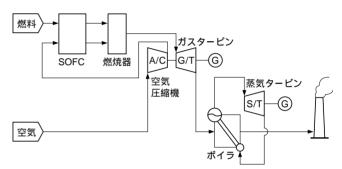
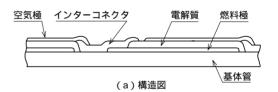
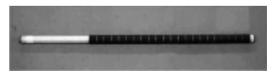


図1 加圧型 SOFC 複合発電システム SOFC とガスタービン 複合発電システムを組み合わせた,加圧 SOFC 複合発電システムの系統図を示す.





(b)外観写真

図2 円筒焼結型 SOFC 円筒焼結型 SOFC の構造及び外観写真を示す.

進めてきた.図 2(a)に円筒焼結型 SOFC の電池構造を示す. 円筒焼結型 SOFC は,押出成型した円筒状のセラミックス管 (基体管)の外面に,燃料極,電解質及び空気極を順次縞状 に成膜して複数の単電池を構成し,さらに,単電池間を導電 性のインターコネクタにより電気的に接続した構造となって いる.構成図 2(b)は1本の基体管上に22個の単電池を配列 した例である.

表 1 円筒焼結型 SOFC 構成材料と製造 方法

項目	材 料	製法
基本管	CSZ	押出成型
燃料極	Ni / YSZ	湿式法
電解度	YSZ	湿式法
インターコネクタ	チタン塩酸	湿式法
空気極	(La,Sr)MnO ₃	湿式法

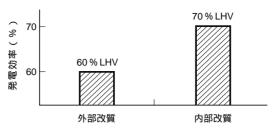


図 3 システム発電効率概算比較 る発電効率への効果を示す.発電時の電池発熱 をメタンの改質エネルギーとして利用するため, システム発電効率が上昇する.

表 2 加圧内部改質型 10kW 級 モジュール仕様

形 式	円筒形	
セルチューブ数量	288本	
運転温度	900	
運転圧力	0.39 MPa	
燃料	天然ガス	
電流	64 A	
電圧	160 V	
出力	10 kW	
発電効率(HHV)	40 %	

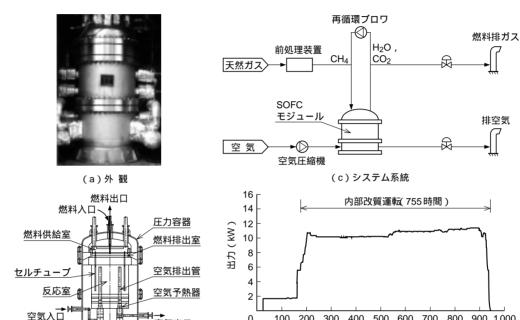


図 4 加圧内部改質型 10kW 級モジュール ム及び運転結果を示す.

(b)構造

加圧内部改質型 10kW 級モジュールの外観,構造,システ

運転時間(h)

(d)運転結果

100 200 300 400 500 600 700 800 900 1000

表1に円筒焼結型SOFCに使用している電池構成材料と製 法を示す.構成材料はすべてセラミックス材料である.焼結 法は,原料であるセラミックスの粉を溶媒に溶かしたスラリ ーを基体管表面に順次印刷し,複数の膜を同時に焼結するた め,材料の歩留まりが高く,製造設備も安価であることから 電池本体の製造コストの低減が期待される.

また, 更なる低コスト化のため, 単位面積当たりの電気出 力を増加させたアドバンス円筒型SOFCの開発を新エネルギ 一·産業技術総合開発機構(NEDO)の委託を受け実施して いる.

2.3 内部改質技術開発

SOFC が発電反応に直接利用できる燃料は水素 (H2) 及び 一酸化炭素(CO)である.燃料に都市ガスを用いる場合, その主成分であるメタン (CH4) を水蒸気 (H2O) と反応さ せて水素と一酸化炭素に改質する必要がある.メタンの改質 反応は式(1)のように,吸熱反応であり熱の供給が必要と なる.

 $CH_4 + H_2O$ $CO + 3H_2$ 11 218 KJ/Nm³ (1)一方, SOFC は発電に伴い電池が発熱するため, 電池の冷

却が必要である、SOFCの燃料極にはメタン改質触媒作用の あるニッケル(Ni)が含まれていることからSOFC内部でメ タンの改質反応が可能で,電池発熱をメタン改質反応熱源に 利用すると同時に電池の冷却も行うことができる.このよう に,内部改質発電システムは熱を有効に利用できるため,シ ステム全体の発電効率向上が可能となる、図3に電池発熱を 利用しないでメタンを改質した場合(外部改質)及び電池発 熱を利用した場合(内部改質)のシステム発電効率の概算比 較を示す.内部改質の発電効率は,外部改質に比べて約 15%の向上が見込まれる.内部改質技術はSOFC複合発電シ ステムの発電効率65%を達成するために必要不可欠な技術 である.

2.4 加圧内部改質型10 kW 級モジュール発電試験

当社は,円筒焼結型SOFCを使用した加圧内部改質型 10 kW級モジュールの開発を,電源開発(株)と共同で進め てきた.本モジュールの主仕様を表2に示す.運転計画点は, 圧力 0.39 MPa, 温度 900 で,電流 64 A における出力は 10 kW である. モジュール外観及びモジュール構造をそれぞ れ図 4(a)(b)に示す.モジュール容器は円筒竪型形状で, 内部は燃料ヘッダ,発電室,空気予熱器で構成されている.システム系統図を図4(c)に示す.燃料の都市ガスは付臭剤として添加されている硫黄分を脱硫処理した後,モジュールへ供給する.また,都市ガスの改質に必要な水蒸気は,発電後の燃料排ガスに含まれる水蒸気を再循環することで自給している.

本モジュールの運転結果を,図4(d)に示す.計画点においてモジュール出力10kWを達成し,加圧内部改質では世界に先駆けて連続755時間の長時間運転を達成し,計画停止した.

3. 一体積層型常圧25 kW 級モジュールの開発

3.1 **一体積層型 SOFC の開発**

当社は、1990年より一体積層型(Monoblock Layer Built: MOLB型)SOFCの開発を進めてきており、1996年には、中部電力(株)と共同で平板型のSOFCとしては当時最高の5.1 kWの発電出力を達成した.電池構造を図5(a)、(b)に示す.電池本体は、電解質に燃料極、空気極スラリー材料を塗布した発電膜と、発電膜を電気的に接続するインターコネクタにより構成される.発電膜に凹凸状の三次元ディンプル構造を採用することで、単位体積当たりの有効発電面積が増加し、出力密度の向上が可能となった.さらに発電膜の三次元ディンプル構造は燃料及び空気ガス流路を形成するとともに、発電膜の機械的強度を向上させている.

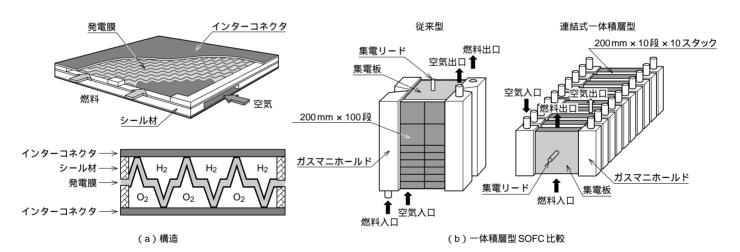
一体積層型SOFCでは, 平板状の発電膜とインターコネク

タを積み重ねて電池を構成するため、電池端部に燃料ガス及び空気をシールするガスシール材が必要である。従来は、ガラス材料を主成分とするガスシール材を使用していたため運転状態で溶融し、シール性が不安定となる課題があった。これに対して、当社は、高密度化セラミックスを用いたガスシール材料を独自に開発し、耐久性、信頼性を向上させた。一体積層型SOFCの特長をまとめて以下に示す。

- (1)原材料をスラリー化して製作するため,連続生産が可能.
- (2)主要部材は発電膜,インターコネクタのみで部品点数が 少なく,すべてセラミックスで構成される.
- (3) 三次元ディンプル構造の発電膜によりコンパクトなシステム構築が可能.

3.2 実用化電池の開発(電池の連結接合方式の開発)

一体積層型 SOFC は、大容量化に伴い、発電膜及びインターコネクタの積層数を増していく必要がある、従来は、垂直方向への積層構造 [図5(b)左図]としていたが、積層数が増えた時に電池の総重量が増加し、最下段層への荷重応力増大が懸念された。さらに、積層段数を増加すると積層電池に燃料ガス・空気を導入するためのガスマニホールドが大型となり、電池とガスマニホールドの熱膨張率整合化と精密な成形技術が要求され、積層数を制限する必要があった。そこで、信頼性を確保しつつ大容量化を図るため、電池を水平方向に接続する連結接合方式 [図5(b)右図]を開発した。連結式一体積層型(Train type MOLB: T-MOLB型) SOFCの外観



1500



(c)連結式一体積層型SOFC外観

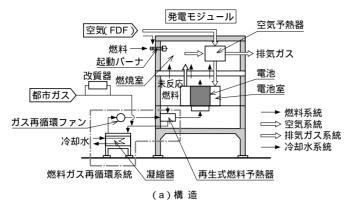
一体積層型 SOFC

図 5

発電出力 0.4 電池温度 昇降温度 : 出力密度 /hr) 1000 0.3 出力密度 (W/cm² 出力(W)電池温度 0.2 500 0.1 0.0 0 500 1 000 1500 2000 運転時間(h)

(d) サーマルサイクル試験結果

一体積層型SOFCの構造,外観写真及びサーマルサイクル特性試験の結果を示す.





(b)外 観

図 6 連結一体積層型数 10kW 級発電試験装置 連結一体積層型電池を用いた数 10kW 級発電試験装置の構造及び外観写真を示す. 部が電池モジュールである.

写真を図 5(c)に示す.写真は,発電膜とインターコネクタを 10 段積層した電池にガスマニホールドを取り付け, 2 個連結した例である.連結式一体積層型 SOFC では複数の積層電池を水平方向に連結して大容量化を図るため,発電膜への荷重応力が増大することがない.

3.3 一体積層型 SOFC の耐久性検証

一体積層型 SOFC の実用性を検証するため,積層電池(10段)の長期及びサーマルサイクル特性試験を実施した.その結果,1000 から室温までのサーマルサイクル3回を含む2000時間の連続発電において出力密度0.35 W/cm²を示し,その耐久性を確認した.さらに,図5(d)に示すように,積層電池(10段)を用いて,温度変化率を変化させたサーマルサイクルテストを実施し,10 /hから200 /hの温度変化速度で電池性能の低下が無いことを確認した.

3.4 数10 kW 級常圧モジュール発電試験

SOFCの実用化には、電池反応による発熱により電池の作動温度1000 を維持する熱自立システムの開発が不可欠である、熱自立運転の課題を抽出し解決するために、(1)電池反応による熱自立運転、(2)都市ガスによる起動昇温、(3)都市ガス改質ガスによる発電試験が可能な数10kW級の熱自立モジュールを開発し、発電試験を実施した。

数10 kW級モジュールの装置系統について図6(a)に,試験装置の外観を図6(b)に示す.燃料改質系統,燃料再循環系統,空気系統,燃料系統からなり,装置としては,主に都市ガス改質装置,制御盤,発電炉から構成される³¼²,2000年7月から翌年3月まで5348時間発電試験,さらにモジュール改造後,2001年7月から10月まで2152時間発電試験を実施し,平板型SOFCとしては世界最高となる出力15kW,累積7500時間発電(内部改質100%運転2473時間)を達成した.さらに,モジュールの高性能化をNEDOの委託を受け実施している.

4.ま と め

SOFCはクリーンで環境に優しい高効率発電システムとして期待されている.SOFC実用化の1つの姿として,SOFCを加圧化しガスタービン複合発電システムと組み合わせた,大容量事業用発電代替発電システム(代表写真)がある.また,SOFCは燃料の化学エネルギーを直接的に電力に変換す

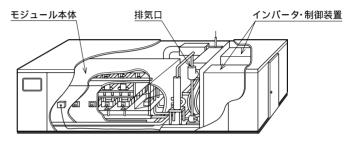


図7 SOFC実用化イメージ(SOFC分散電源用パッケージ) SOFCを用いた分散電源用パッケージの実用化イメージを示す.

るため,小規模でも高い発電効率が得られることから,中小容量分散電源(図7)としての適用も考えられる.

今後,SOFC電池モジュールのスケールアップとシステム 開発を図り,実用化を推進していきたい。

終わりに,SOFCに関する当社の技術は,NEDO委託研究及び長年にわたる電源開発(株),中部電力(株)との共同研究の中で培われてきたものであり,関係者に対し感謝の意を表する.

参考文献

- (1) 久留ほか, 加圧型 SOFC10kW モジュール, 第7回燃料 電池シンポジウム講演予稿集 No.B3-11 (2000-5) P334-341
- (2) 森ほか,加圧型10kW級モジュール,第8回SOFC研究 発表会講演要旨集 No.110B (1999-12) P.49-54
- (3) Nakanishi, A. et al., Development of several 10kW class MOLB type SOFC, in proceedings of the Fuel Cell Seminar (2000-10) P.779-782
- (4) Sakaki, Y. et al., Development of MOLB type SOFC, in Solid Oxide Fuel Cells VII (2001-6) P.72-77



杉谷敏夫 原動機事業本部 エネルギーシステム 技術部長



橋本貴雄 長崎造船所 火力ブラント設計部 次長



加幡達雄 原動機事業本部 エネルギーシステム 技術部 新技術開発課長



溝口孝 神戸造船所 火力部次長