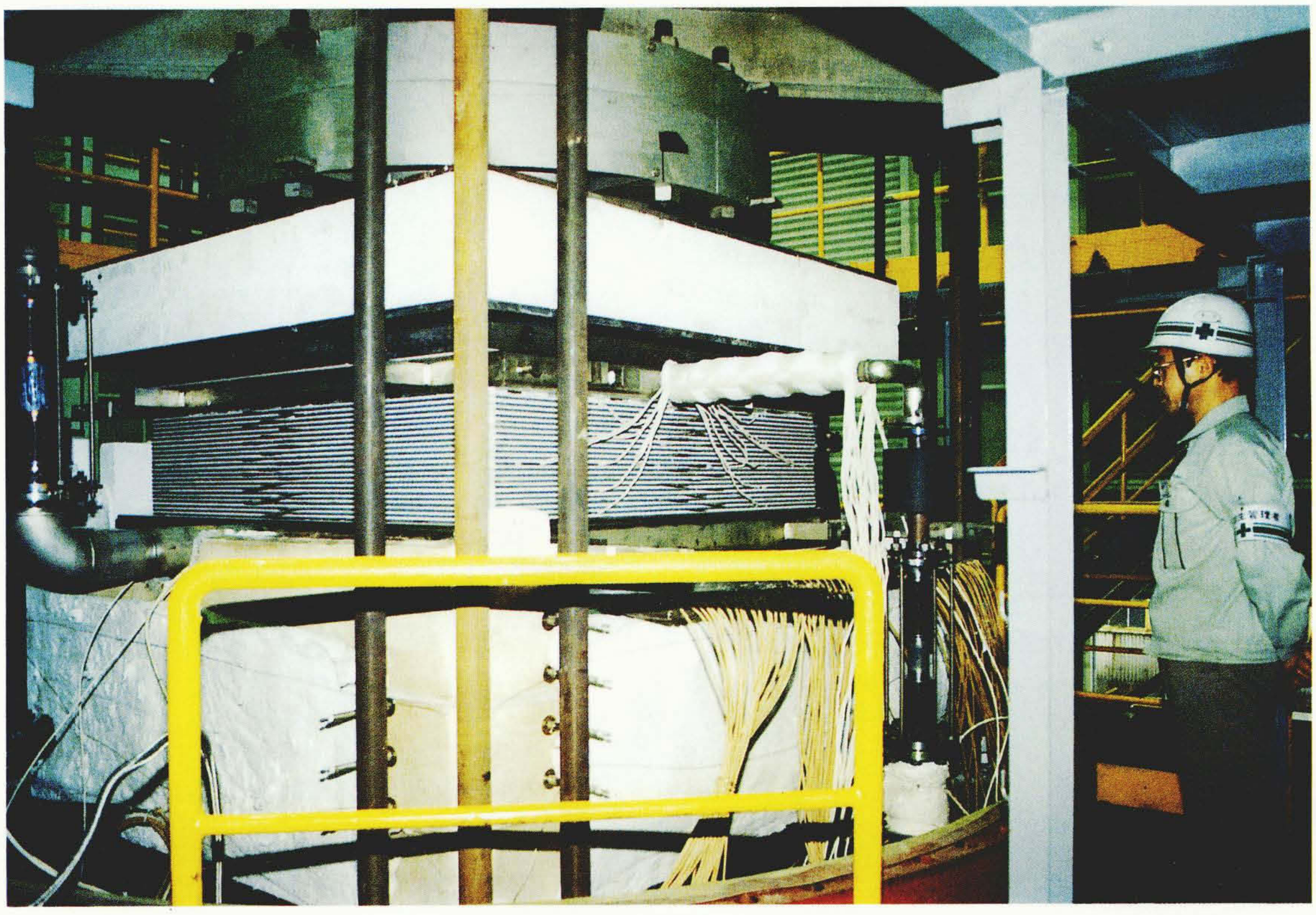
高効率発電を目指す溶融炭酸塩型燃料電池発電システム

Molten Carbonate Fuel Cell for High Efficiency Power Generation System

加原俊樹*　*Toshiki Kahara*
大塚馨象**　*Keizô Ôtsuka*
竹内將人***　*Masato Takeuchi*
藤村秀和****　*Hidekazu Fujimura*



加圧25 kW級溶融炭酸塩型燃料電池　電極有効面積1万2,100 cm²のセルを22枚積層した燃料電池本体部を示す。

MCFC(Molten Carbonate Fuel Cell：溶融炭酸塩型燃料電池)による発電システムは，クリーンで高効率であるという特徴を持っており，日立製作所はNEDO(新エネルギー・産業技術総合開発機構)の委託研究として，この発電システムの研究開発を進めている。電池の大容量化を図るためには，電極有効面積の拡大とセルの高積層化が必要であり，日立製作所はこれに対処するために，独自のセル構造である複合大容量形セルを開発するとともに，中間ヘッダ積層モジュール構造を開発した。複合大容量形セルは1枚のセパレータ上に4個の単位セルを配置するものであり，これによって世界最大級の電極有効面積1万2,100 cm²を達成した。この複合大容量形セル22枚を積層して，加圧25 kW級MCFCを開発し，このクラスの長時間運転記録である5,700時間の試験に成功した。この成果から，今後100 kW級，1,000 kW級MCFCの研究開発，および実用化に向けて明るい見通しを得ることができた。

* 日立製作所 日立工場　** 日立製作所 日立工場 工学博士　*** 日立製作所 日立研究所　**** 日立製作所 機械研究所

1 はじめに

最近の地球環境問題，特に温暖化防止に関してCO_2の低減が大きな課題として取り上げられている。化石燃料を用いる発電方式のCO_2発生量を低減するためには，発電効率の高い発電方式を開発しなければならない。MCFC(Molten Carbonate Fuel Cell：溶融炭酸塩型燃料電池)は50～60%という高い発電効率が期待でき，燃料の多様化が可能であり，環境との調和性が優れるなど数多くの特徴を持っている。このため将来の有望な発電方式として注目されており，わが国と米国が中心となって研究開発を活発に行っている[1]。わが国では通商産業省工業技術院のムーンライト計画の一環として研究開発が取り上げられており，日立製作所は石川島播磨重工業株式会社，三菱電機株式会社とともに，NEDO(新エネルギー・産業技術総合開発機構)から委託を受けて電池本体の研究開発を続けている。

日立製作所は，これまでに1 kW級，10 kW級MCFCの開発を経て，ここで述べる電極有効面積1万2,100 cm^2のセルを22枚積層した25 kW級スタックを開発した。現在，これらの成果をもとに100 kW級スタックを製作中である。前報[2]でMCFCの要素技術開発状況を中心に述べたので，ここでは大容量化要素技術，スタック技術，今後の展望などについて述べる。

2 発電原理と特徴

MCFCは電解質としてLi_2CO_3とK_2CO_3の混合物を用い，燃料ガス(アノードガス)としてH_2を，酸化剤ガス(カソードガス)としてO_2とCO_2を用いる発電方式である。発電原理を**図1**に示す。MCFCの運転温度は650 ℃付近である。電池反応は同図に併記したように，H_2とO_2が反応して水を生成するものであり，その過程で直流電力を発生する。

MCFCの単位電池(セル1枚)電圧は，定格発電時で約0.8 Vである。したがって，実際の発電ではセルを多数積層することによって電圧を高くする。また，発電電流値を大きくするためには，電極有効面積を拡大する。

MCFC発電システムを**図2**に示す。MCFCでは発電時に発熱するので，冷却のために過剰の空気をカソードに供給して冷却する。MCFCからの排カソードガス温度は約700 ℃である。この排熱を有効に利用するために，ガスタービンや蒸気タービンを組み合わせたボトミングサイクルが設けられる。

MCFC発電システムの特徴は，発電効率がボトミングサイクルの組み合わせによって50～60%と高いこと，COも燃料として使用できるため石炭ガスが使用できること，環境との調和性が優れ需要地に隣接して設置できることなどであり，西暦2000年初期にこの発電システムの実現が期待されている。

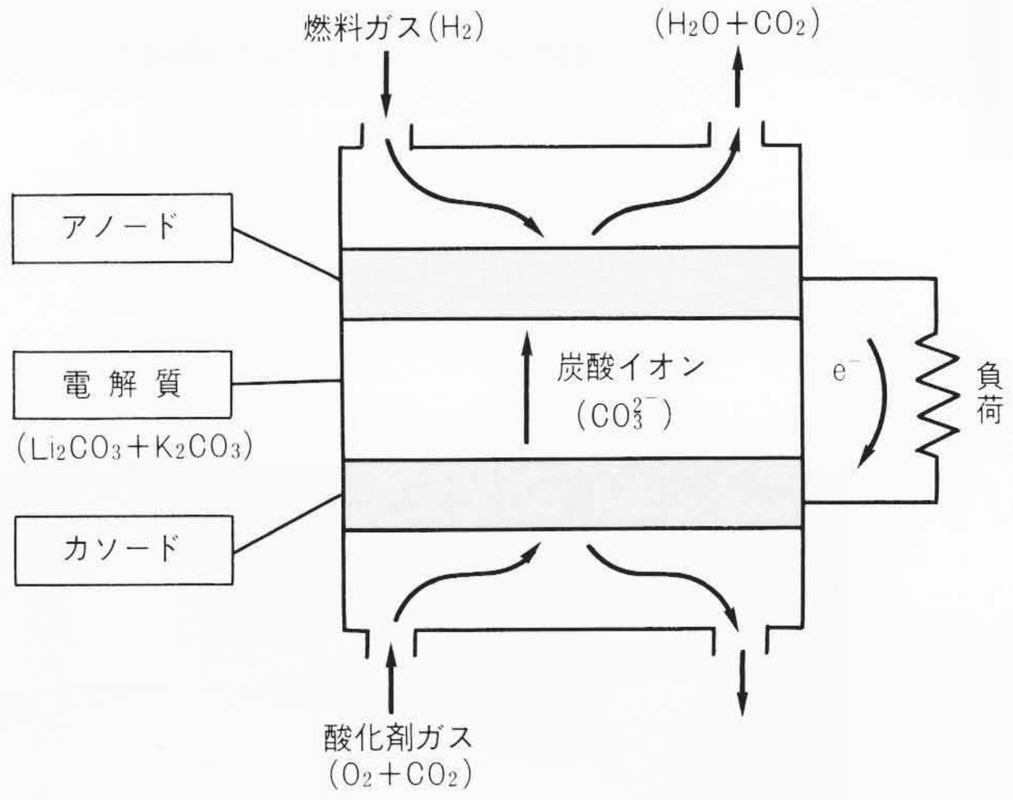
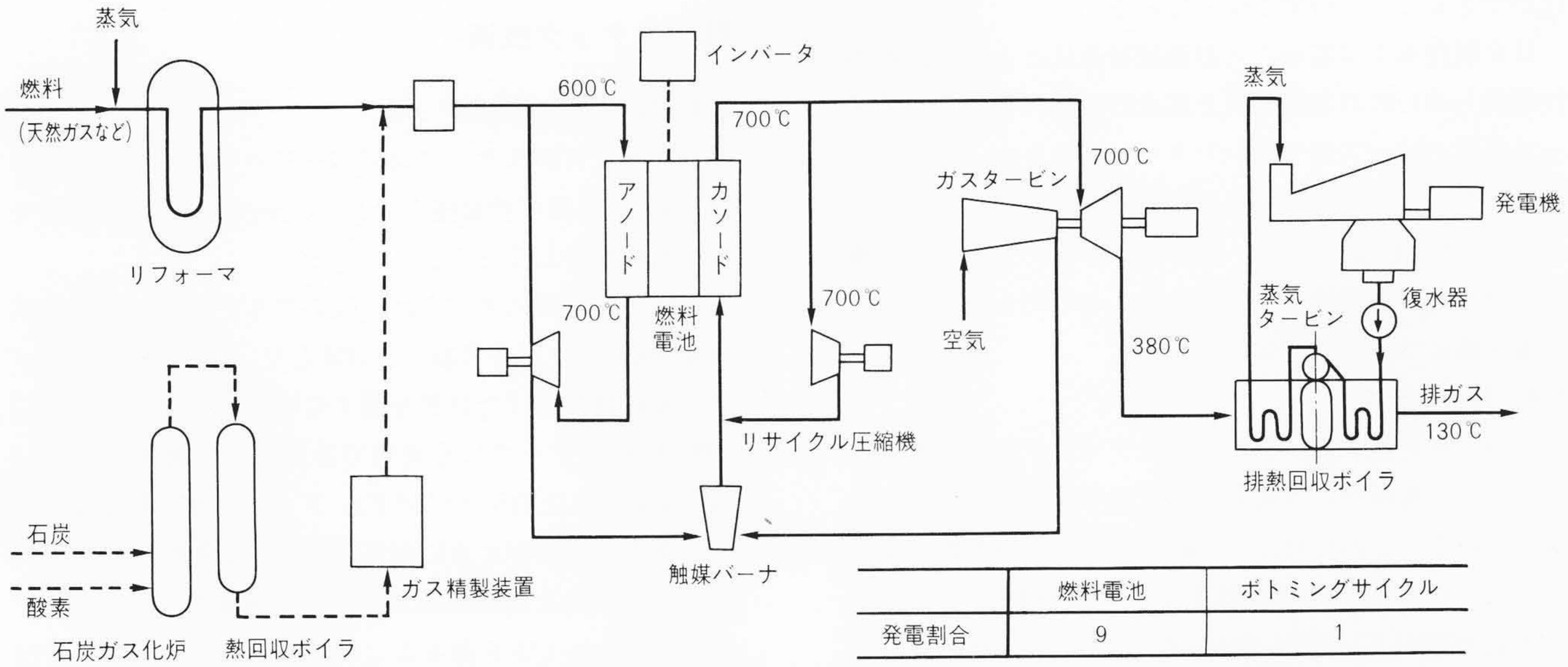


図1 MCFCの作動原理 燃料である水素と酸化剤である空気中の酸素および炭酸ガスが反応して，水を生成する過程で電気が得られる。

3 大容量化に対する要素技術

3.1 大容量化スタック構造

MCFCの大容量化を図るためには，電極有効面積の拡大とセル積層数の増加が必要である。電極有効面積の拡大は電流値を大きくし，セル積層数の増加は電圧値を高くする。電極有効面積の拡大およびセル積層数を増加したときの課題は，セル面内および各セルへのガスの均一供給と温度分布の均一化，およびアノードガスとカソードガスの差圧低減である。日立製作所はこの問題を解決するためのセル構造として，独自の複合大容量形セル構造を開発した[3]。複合大容量形セル構造を**図3**に示す。4個の単位セルを同一平面内に配置して，新たに4倍の面積を持つセルを作るものであり，この構造によって世界



	燃料電池	ボトミングサイクル
発電割合	9	1

図2　MCFC発電システム　　電力事業用を想定した大規模発電システムであり，燃料として天然ガスや石炭ガス化ガスを用い，排熱を回収するボトミングサイクルが備えられている。

最大級の電極有効面積1万2,100 cm^2を開発した。

また，高積層化に対しては各セルへのガス供給を均一にするために，**図4**に示す積層セルの中間にガスヘッダを設ける中間ヘッダ構造を開発した[4]。

3.2　電解質基板

電解質基板は$LiAlO_2$微粉末にAl_2O_3繊維を混合したスラリーを作り，ドクターブレード(テープキャスティング)法で製作する。幅1.6 mの電解質基板を連続製造できる技術を開発しており，Al_2O_3繊維の混合によって機械的強度が大で，耐ヒートサイクル性に優れた基板を製作している[5]。

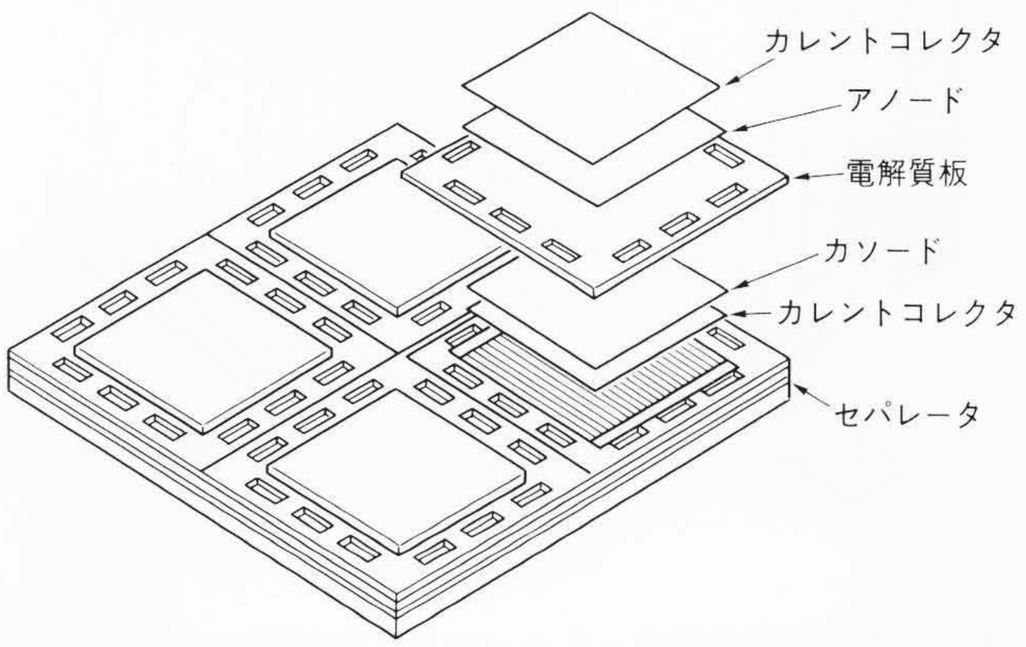


図3　複合大容量形セル構造　　単位セル4個を同一平面上に配置し，4倍の面積を持つ新たな単セルを構成する。

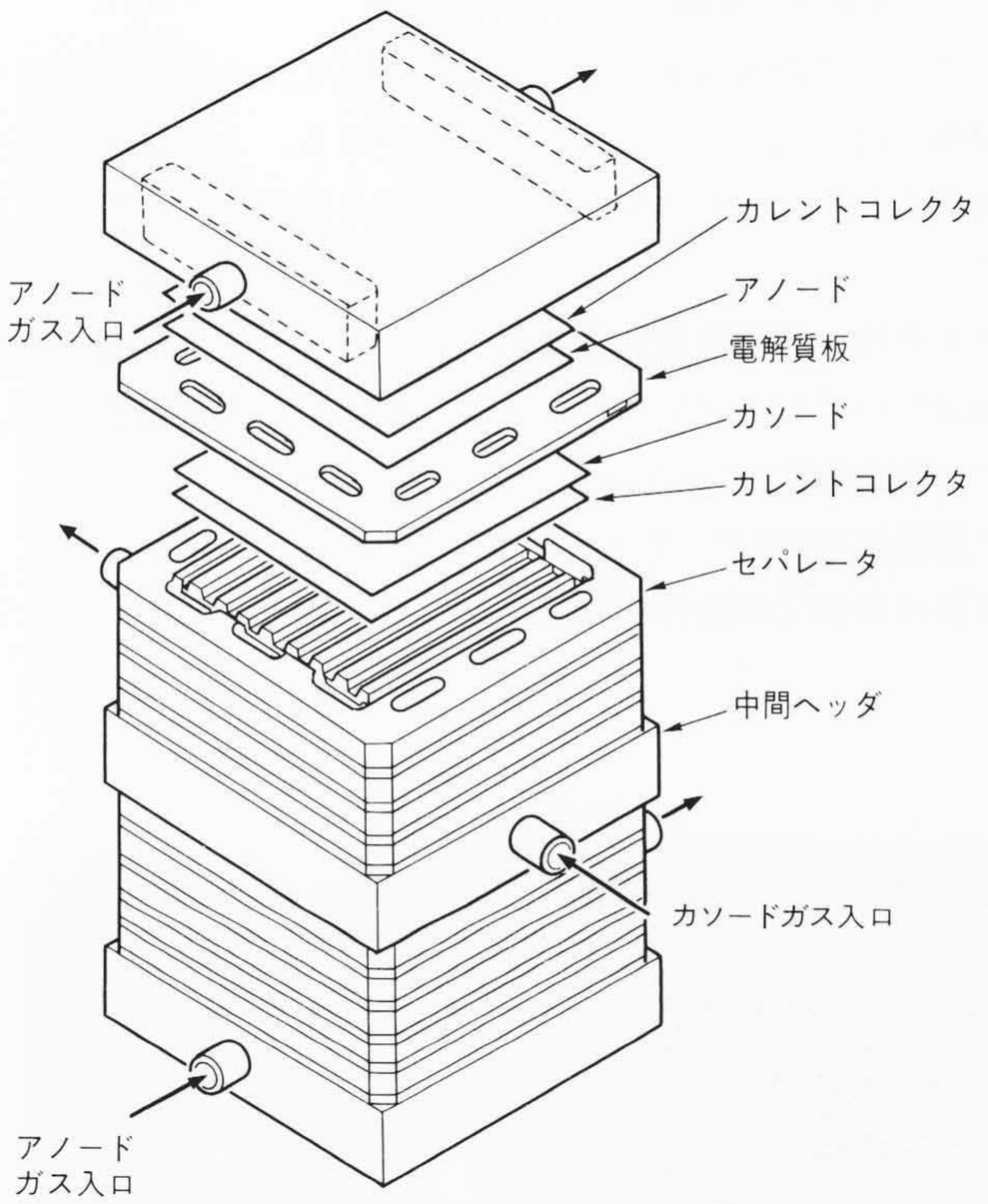


図4　中間ヘッダ積層構造　　カソードガスを供給する中間ヘッダの上下にセルを積層して，各セルへのガス供給の均一化を図る。

3.3　電　　極

電極はNi粉末にバインダーを混合したスラリーを作り，これを心材の両面に添着する方法で連続製造している。心材を用いているために強度が大であり，取り扱いが容易である。特に，カソードは外部で酸化やリチウム

化ができるという特徴を持っている。

日立製作所では電極の大形連続製造化とともに，その性能向上のための基礎研究も重点的に進めている。アノードの耐クリープ性や耐シンタリング性を向上させるために，Al，Mg，La，Zrなどの第二元素の添加が有効であること[6]，およびアノード性能やカソード性能が電極細孔中の電解質量によって異なることを明らかにし，その適正値について検討している。

3.4 セパレータ

セパレータはアノードガスとカソードガスを分離するとともに，電極からの集電とセル間の電気的接続を兼ね備えている。このために，高耐食性と電気導電性が要求される。日立製作所では数多くの金属材料の中から，SUS310S鋼および25Cr-30Ni-Al-Y鋼がセパレータ材として優れていることを見いだした[7]。外寸約1.5 mの複合大容量形セパレータの製作状況を**図5**に示す。

3.5 スタック冷却

スタックの大容量化に伴う課題として，スタック温度分布の均一化とガス供給の均一化がある。この課題を解決するために，日立製作所では各種の運転条件を想定してシミュレーションを行い，有効なスタック冷却設計やガスの均一流配技術を検討している。スタックの温度分布についてシミュレーションした結果の一例を**図6**に示す。電流密度150 mA/cm²，入口ガス温度550 ℃，スタック周囲温度600 ℃，アノードガス利用率60%，カソードガス利用率20%の条件で計算した結果である。

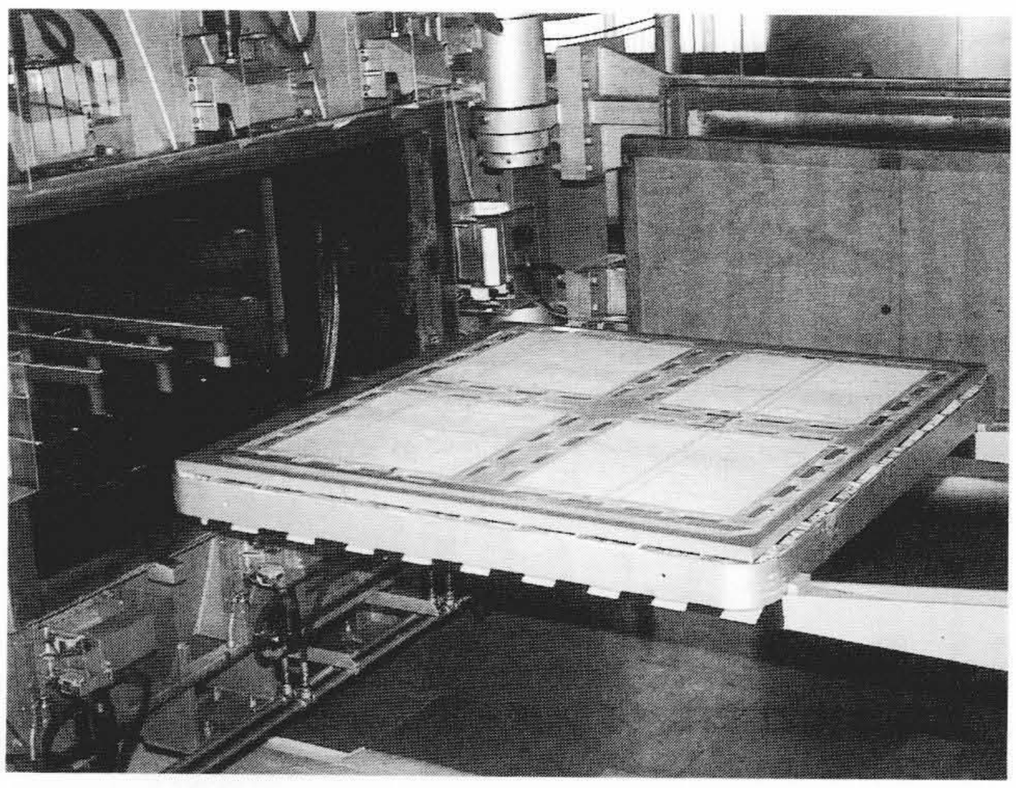


図5　複合大容量形セパレータの製作状況　　フレーム，中心板，波板を真空中で加熱し，一体に接合してセパレータを製作している。

4 スタック技術

4.1 加圧25 kW級スタック

加圧25 kW級スタックは67ページの写真に示したとおりである。電極有効面積1万2,100 cm²の複合大容量形セルを22枚積層している。

加圧25 kW級スタックは，反応ガスを加圧して発電試験をするため，圧力容器中に設置した。圧力容器をスタック上方に持ち上げた状態を**図7**に示す。この圧力容器は，100 kW級スタックにも使用できるように製作されている。反応ガス圧力5.9×10⁵ Pa，アノードガス利用率，カソードガス利用率ともに40%の条件下で運転したときのスタック性能を**図8**に示す。定格電流密度150 mA/cm²付近で出力30 kWを得ることができたが，セル電圧には±5%程度のばらつきがあった。今後，セル電圧のばらつきを低減する必要がある。加圧25 kW級スタックはこのクラスでは世界最長である5,700時間の運転を達成した[8]。この結果から，100 kW級スタックおよび1,000 kW級スタックの開発に明るい見通しを得ることができた。

4.2 100 kW級スタック

ムーンライト計画第Ⅱ期中間評価用100 kW級スタックは，カソードガスを供給する中間ヘッダの上下に電極

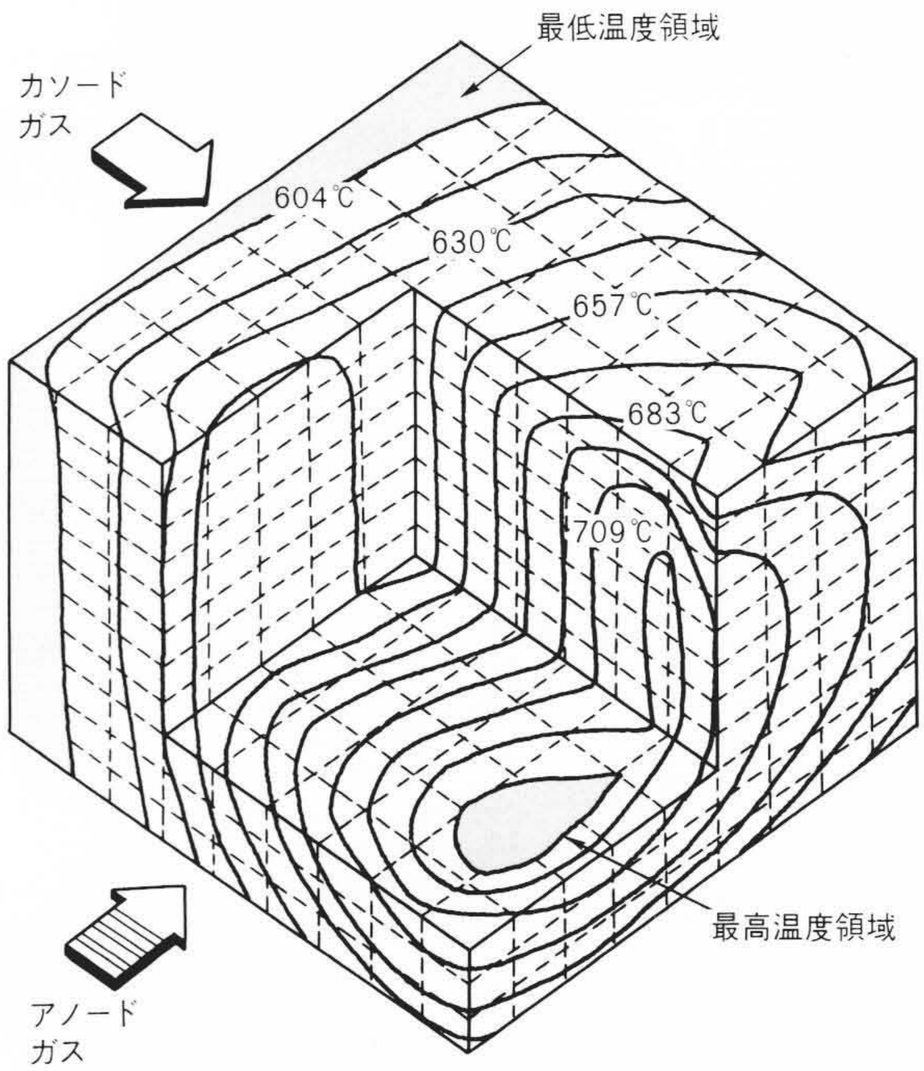


図6　電池温度分布のシミュレーション結果　　カソードガス冷却を行うため，カソードガス入口側の温度が低く，出口側が高くなる。電池は12セル積層したものである。

図 7　加圧25 kW級スタック　　スタックの周囲を断熱材で覆い，圧力容器中に収納する。この写真は圧力容器を持ち上げた状態を示したものである。この圧力容器は100 kW級も収納できる大きさに製作している。

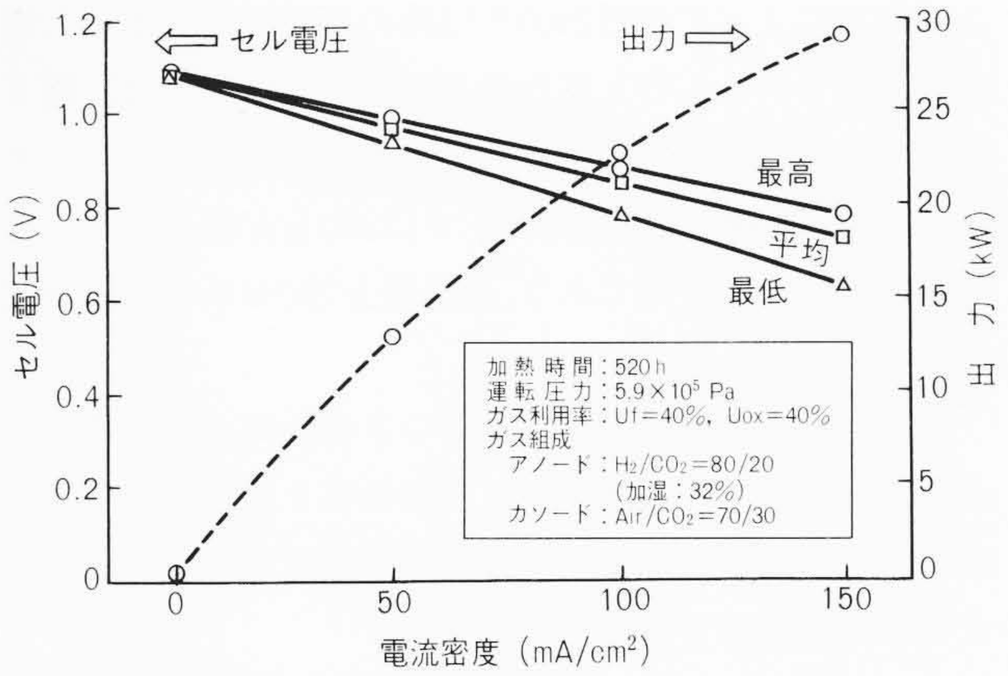


図 8　加圧25 kW級スタックの性能　　測定した電流密度の範囲では，電流密度の増加とともに出力も増加している。

有効面積 1 万2,100 cm²の複合大容量形セル22枚を積層し，さらにアノードガスを供給する上下ヘッダを備えて50 kWモジュールを作り，これを 2 個積層する予定である。**4.1**節で述べたように，中間ヘッダを境にした22セル積層ハーフモジュールに相当するもので，所定の性能を得ることができたので，この構造に明るい見通しを持っている。

5　大容量化への展望と課題

MCFCの開発は平成 5 年度の中間評価，平成 9 年度の1,000 kW級プラント建設，実証試験が計画されており，

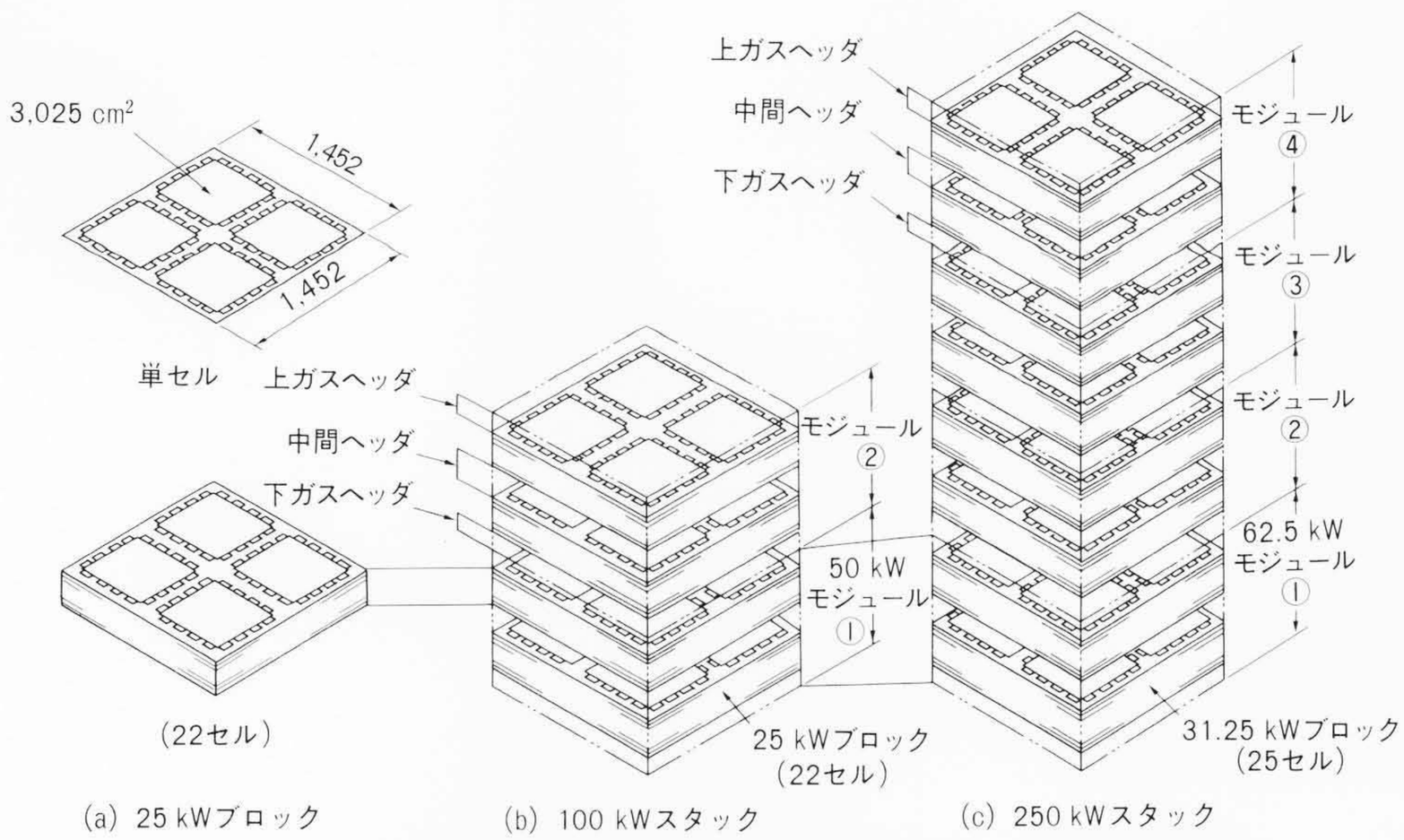


図 9　MCFCスタックの大容量化計画　　電極面積 1 万2,100 cm²のセルを積層したモジュールを単位とし，モジュール積層数を増加することによって大容量化を図る。

この成功によって西暦2000年以降の商用プラントへと展望が開けていくものと思われる。日立製作所では，**図9**に示すような計画でスタックの大容量化を図っていく予定である。1,000 kW級スタックは250 kW級スタック4基から構成する計画であり，積層数を200セルにする予定である。

今後，引き続きセル間のばらつきを低減し，高性能化と長寿命化のための基本的な要素研究を継続すること，および実用化に向けてのコスト低減を図っていくことが大きな開発課題である。

6 おわりに

MCFCは高い発電効率が得られることから，大容量火力代替用として期待されるとともに，コージェネレーション用としても期待が大きい。しかし，社会に先行した研究データがないことから，多くの難しい問題を抱えており，実用化までには長期にわたる地道な研究開発を継続する必要がある。日立製作所はMCFCの実用化に向けて鋭意努力を傾注する考えである。

終わりに，この研究開発はムーンライト計画の一環としてNEDOの委託研究として実施したものであり，通商産業省工業技術院殿，NEDO殿をはじめ，関係各位のご指導，ご鞭撻(べんたつ)に対し謝意を表す次第である。

参考文献

1) 広瀬：高温型燃料電池の研究開発について，エネルギー，Vol.24，No.4，24(1991)
2) 加原，外：溶融炭酸塩型燃料電池発電装置の開発，日立評論，**72**，6，573～580(平2-6)
3) 大塚：複合大容量型燃料電池，OHM，第78巻，第11号，31(1991)
4) 加原，外：中間ヘッダ方式10 kW級溶融炭酸塩型燃料電池の特性，電気化学，Vol.59，No.4，308(1991)
5) 加原，外：ドクターブレード法電解質板を用いた溶融炭酸塩型燃料電池の特性，'86電気化学秋季大会講演要旨集，131(1986)
6) 竹内，外：溶融炭酸塩型燃料電池用アノードのシンタリングおよびクリープ変形の抑制，マグネシウムの添加効果，日本化学会誌，1988-No.7，1067(1989)
7) 檜山，外：溶融炭酸塩に対するオーステナイト系ステンレス鋼の耐食性，Boshoku Gijutsu，Vol.39，409(1990)
8) S. Takashima，et al.：MCFC Stack Technology at Hitachi，The International Fuel Cell Conference Proceedings，265(1992)