

令和 5 年 6 月 10 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19H02807

研究課題名（和文）大規模二酸化炭素資源化のための金属基板固体酸化物電気分解セルスタックの開発

研究課題名（英文）Development of Metal Substrate Solid Oxide Electrolysis Cell Stacks for Large-Scale Carbon Dioxide Recovery

研究代表者

加藤 之貴（Kato, Yuki taka）

東京工業大学・科学技術創成研究院・教授

研究者番号：20233827

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究ではカーボンニュートラル産業の実現のために能動的炭素循環エネルギーシステム（Active Carbon Recycling Energy System, ACRES）を提言し、ACRESに必要な積層可能な金属支持固体酸化物電気分解セル（Metal Supported Solid Oxide Electrolysis Cell, MS-SOEC）を開発に成功し、MS-SOECによるCO₂電気分解を実証した。実験結果よりACRESの定量的な可能性を明らかにした。以上からMS-SOECの開発により大面積化スタック化によるACRESの大規模化が可能であることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究ではカーボンニュートラル産業の実現のために能動的炭素循環エネルギーシステム（Active Carbon Recycling Energy System, ACRES）を提言し、ACRESに必要な積層可能な金属支持固体酸化物電気分解セル（Metal Supported Solid Oxide Electrolysis Cell, MS-SOEC）を開発に成功し、MS-SOECによるCO₂電気分解を実証した。ACRESはカーボンニュートラル産業の拡大に貢献する点で社会的意義が大きい。

研究成果の概要（英文）：This study proposes an Active Carbon Recycling Energy System (ACRES) to realize a carbon-neutral industry, and has successfully developed a stackable Metal Supported Solid Oxide Electrolysis Cell (MS-SOEC), which is essential for ACRES, and demonstrated CO₂ electrolysis by MS-SOEC. Solid Oxide Electrolysis Cell (MS-SOEC), which is essential for ACRES, and demonstrated CO₂ electrolysis by MS-SOEC. From the experimental results, the quantitative potential of ACRES was clarified. The above results show that the development of MS-SOECs enables large-scale ACRES by using large-area stacks.

研究分野：カーボンニュートラル

キーワード：炭素循環 二酸化炭素 電気分解 MS-SOEC カーボンニュートラル

1. 研究開始当初の背景

化石一次エネルギーの消費に際して発生する二酸化炭素(CO₂)は主要な温室効果ガスであり、その排出量の削減は世界的課題となっている。そこで化石一次エネルギー消費量の削減が必要であるが、炭素利用プロセスへの炭素資源の安定供給も求められている。

一つの方策として能動的炭素循環エネルギーシステム(Active Carbon Recycling Energy System, ACRES)が提案されている。ACRES は非化石系一次エネルギーを用いて CO₂ を利用可能な炭素資源として再生し、再利用するものである。ACRES の産業分野での応用先として製鉄プロセスが想定される(Smart Iron-making process based on ACRES, iACRES)。製鉄過程で原料酸化鉄の還元反応を経て排出される CO₂ を回収、還元し一酸化炭素(CO)を再生し、再度還元剤として利用するリサイクルフローを形成する。

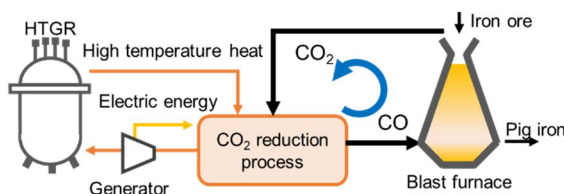


Fig. 1 Schematic of the iACRES concept with CO₂ electrolysis process.



これにより製鉄プロセスの炭素資源である CO の供給量は一定のままでコークス消費量や製鉄過程における CO₂ 排出削減が可能となる。CO₂ の還元には非化石一次エネルギーが必要であり、高温ガス炉(High Temperature Gas cooled Reactor, HTGR)による高温 CO₂ 電気分解還元が候補である。HTGR を駆動熱源とした iACRES の概念図を Fig. 1 に示す。HTGR の 750-950°C の高温熱出力を利用し、高温を CO₂ 還元の熱源として利用し、下流の中温熱で発電を行い、その電力を CO₂ 電気分解へと供給することで CO₂ 電気分解による CO 製造が行える。

CO₂ の CO への電気分解還元は燃料電池の構成を持つ電気分解セルで可能である。高温での電気分解が効率的であり固体酸化物電気分解セル(Solid Oxide Electrolysis Cell, SOEC)が候補である。SOEC を用いた CO₂ 電気分解の多くにはセラミックス電解質を支持基板としたセル(Ceramics-supported SOEC, CS-SOEC)が利用されている。しかしセラミック支持基板は高コストかつ熱応力に脆弱で工業利用に向けた大面積化、量産化が非常に困難である。そこで大面積化が可能かつ安価で量産化が容易な金属支持基板電気分解セル(Metal-supported SOEC, MS-SOEC)を本研究で提案し、このセルの開発を行うこととした。

2. 研究の目的

二酸化炭素(CO₂)を資源として循環する炭素循環エネルギーシステムの産業実装による産業の革新的な低炭素化が本研究のゴールである。CO₂ の還元・資源化がキーテクノロジーであり、本研究では固体酸化物電気分解セル(Solid Oxide Electrolysis Cell, SOEC)を用いた CO₂ 還元による CO₂ 資源化を目指している。社会実装に必要な大量還元の面積化を実現するため、金属基板上に SOEC を製膜した新たな金属基板支持 SOEC (MS-SOEC)の開発を進め、セルの面積化、大規模 CO₂ 還元の可能性を示し、合わせて、積層化(スタック化)のための技術課題の解決を目指した。

SOEC の構造は既に実用が進んでいる固体酸化物燃料電池(SOFC)と同等の構成を有している。技術のボトルネックはセルの面積化である。そこで金属基板上に SOEC を製膜した金属基板支持 SOEC (Metal Supported-SOEC, MS-SOEC)を開発した。本研究では MS-SOEC の面積化、スタック化の課題の特定と解決を進め、大容量 CO₂ 還元の概念実証を目的とする。面積セルの製作パラメータは金属基板構造、大気圧プラズマ溶射にそれぞれにあり、これらの製作パラ

メータの最適化を行い性能向上を計った。CO は炭素材料の素材物質として有用である。本研究では MS-SOEC の製作と実験的検討を行い、MS-SOEC の有用性を検討することとした。

3. 研究の方法

MS-SOEC の評価試験に用いた実験装置の概略図(Fig. 2)と外観写真を (Fig. 3) を示す。評価試験を行った MS-SOEC の構成を Fig. 4 に示す。金属支持基板には SUS430 (直径 20 mm) を用いφ3 mm 穴を穿孔した。中心部に SUS430 メッシュ (線径<10 μm)あるいはSUS316メッシュ(線径 8 μm)が基板に溶接されている (日本精線(株))。金属基板には拡散防止層、カソード層、電解質層、アノード層の順に大気プラズマ溶射によって製膜した。開発したMS-SOECの外観を Fig. 5 に示す。

(1) 平均粒径 29 μm の YSZ 材料粉末を電解質層形成に用いた。メッシュ部に SUS316 メッシュを用いたセル。MM316-(電解質層の厚さ (μm))#(実験番号)と称する。

(2) 平均粒径 18 μm の YSZ 材料粉末を電解質層形成に用いた。メッシュ部に SUS316 メッシュを使用した。APSF (電解質層厚さ (μm))#(実験番号)と称する。

4. 研究成果

APSF セルと MM セルの性能比較を行った。結果を Fig. 6 に示す。APSF150#1 セルが 2 V 加で 0.309@74 mA/cm², 同 4.8 V で 0.676 μm s⁻¹ cm⁻²@235 mA/cm² と MM セルに対して高い CO 生成速度を示した。SEM 観察から APSF セルの YSZ 層は MM セルより緻密であることが確認された。また、YSZ 粉末の微粒子化により電解質層でのオーム抵抗が減少し、

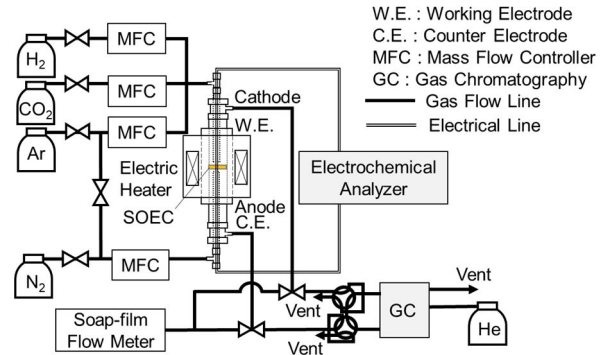


Fig. 2 Schematic diagram of the experimental SOEC evaluation apparatus

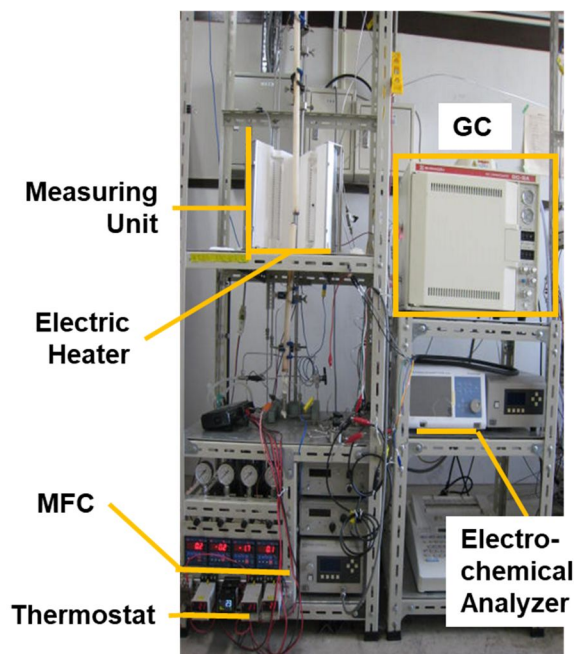


Fig. 3 Experimental setup for MS-SOEC evaluation.

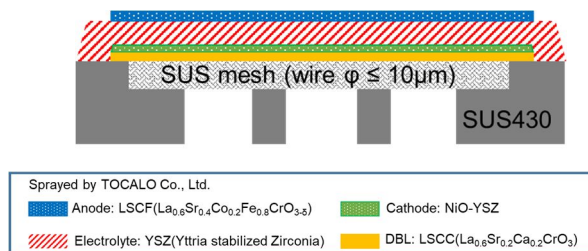


Fig. 4 Structure of cross section of MS-SOEC using metal mesh support.



Fig.5 Developed MS-SOEC (a) anode side, (b) cathode side, (c) metal mesh layer.

APSF75#1、APSF150#1 セルは MM316-150#2 に対して電気化学的性能も 1.2~1.3 倍程度向上した。

Fig. 1 の iACRES システムを汎用高炉(製鉄製造速度 1.0×10^4 t-pigion day⁻¹, CO₂ 発生量 1747 mol-CO₂ s⁻¹)に適用すると仮定し、本研究で開発した MS-SOEC (APSF150#1)を iACRES に応用を想定し、発生 CO₂ を電気分解した場合のセルの規模を、既往 SOFC, SOEC と同等の電解性能を想定した理想的 SOEC セルとを比較をした。開発した実験セルでは

20,000m² 規模のセルで CO₂ の 3.5%程度が還元できると試算され、今後セルの改良により理想的セルに性能が近づくと 10,000 m² 規模のセル面積で CO₂ 60%が還元できると試算された。MS-SOEC の ACRES への適用で CO₂ 排出量を削減できると期待された。CO₂ 還元量の増大のためにはセルの電流密度向上が重要であるといえた。

本研究ではカーボンニュートラル産業の実現のために能動的炭素循環エネルギーシステム (Active Carbon Recycling Energy System, ACRES) を提言し、ACRES に必須な積層可能は金属支持固体酸化物電気分解セル (Metal Supported Solid Oxide Electrolysis Cell, MS-SOEC) を開発に成功し、MS-SOEC による CO₂ 電気分解を実証した。実験結果より ACRES の定量的な可能性を明らかにした。以上から MS-SOEC の開発により大面積化スタック化による ACRES の大規模化が可能であることを示した。

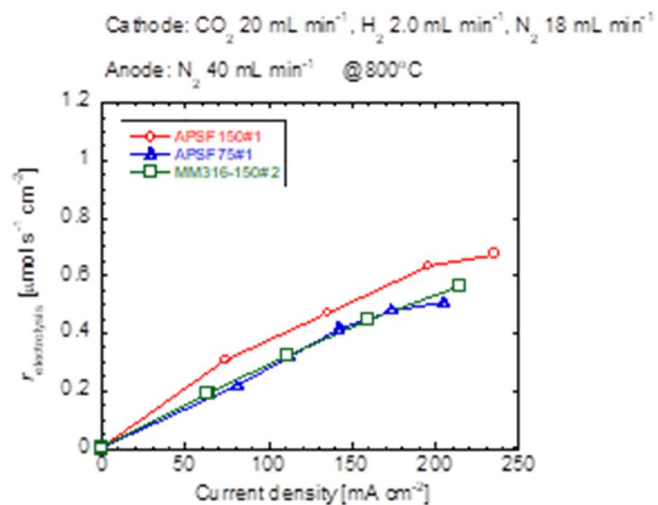


Fig. 6 CO production rate by electrolysis as function of current density for APSF150#1, APSF75#1 and MM316-150#2

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 3.H. Takasu, Y. Maruyama, Y. Kato	4. 巻 60
2. 論文標題 Development of metal supported SOEC for carbon recycling iron making system	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ISIJ Int ' I	6. 最初と最後の頁 2870-2875
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2355/isijinternational.ISIJINT-2020-506	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Y. Numata, K. Nakajima, H. Takasu, Y. Kato	4. 巻 59
2. 論文標題 Carbon Dioxide Reduction on a Metal-Supported Solid Oxide Electrolysis Cell for iACRES	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ISIJ Int ' I	6. 最初と最後の頁 628-633
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2355/isijinternational.ISIJINT-2018-430	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 1件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Sho Kuzukami, Yuko Maruyama, Shuzo Tominaga, Hiroki Takasu, Yukitaka Kato
2. 発表標題 Electrolysis performance of a metal supported-solid oxide electrolysis cell for low-carbon iron making process
3. 学会等名 The First Symposium on Carbon Ultimate Utilization Technologies for the Global Environment (CUUTE-1) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Maruyama, K. Nakajima, H. Takasu, Y. Kato
2. 発表標題 Development of solid oxide electrolysis cell for CO2 reduction in active carbon recycling energy system for iron-making process
3. 学会等名 The Fifth International Symposium on Innovative Materials and Processes in Energy Systems (IMPRES2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Kato
2. 発表標題 Active Carbon Recycling Energy System (ACRES) for the Next Low-Carbon Society
3. 学会等名 5th International Workshop on Heat/Mass Transfer Advances for Energy Conservation and Pollution Control (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	高須 大輝 (Takasu Hiroki) (00833922)	東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授 (12608)	
研究分担者	佐伯 功 (Saeki Isao) (50235090)	室蘭工業大学・大学院工学研究科・教授 (10103)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------