

固体酸化物形燃料電池 (SOFC) 単セル / スタックの 発電性能試験方法の規格化における不確かさ評価

— SOFCの普及に向けた試験方法の規格化と測定結果の信頼性担保 —

門馬 昭彦*、高野 清南、田中 洋平、嘉藤 徹

高効率発電が期待されるSOFCは、実用化の段階に近づきつつあるが本格的な商業化に向けて試験方法の国際規格を作成し、商取引の活性化による普及を考えなければならない段階に来ている。規格作成にあたってはその試験対象について中身を具体的に記述することや具体的な形を想定して作ることができないこと、さらに試験条件にしても規格化して統一することが適当でないことという制約があった。一方、試験結果の信頼性を担保するために試験結果の不確かさ評価を導入したが、その性能が多くのパラメータに依存するSOFCの試験結果の不確かさ評価については、規格においてその評価方法を具体的に規定しておく必要があると考えた。この論文では、我々がSOFCの試験方法の国際規格作成および試験結果の不確かさ評価にあたって行った取り組みを報告する。

キーワード：固体酸化物形燃料電池、SOFC、不確かさ、性能評価、規格標準化

Evaluating uncertainty in the standardization of SOFC cell/stack power generation performance tests

– Standardization of test methods and ensuring reliability of test results for the dissemination of SOFC –

Akihiko MOMMA*, Kiyonami TAKANO, Yohei TANAKA and Tohru KATO

SOFC (solid oxide fuel cell) is a very promising technology that achieves high power generation efficiency, while being very nearly usable. It is high time we considered enhancing commercialization and dissemination of SOFC by setting a standard for the evaluation method of SOFC cell/stack performance. In setting the standard, it is neither appropriate to describe the specific content or form of the test object, nor appropriate to unify the test conditions, because each type of SOFC has been developed for a different application owing to the diversity of SOFC. On the other hand, uncertainty evaluation of the test results has been introduced to ensure reliability. In setting a standard for the SOFC performance test, it is necessary that the method for uncertainty evaluation be specifically described in the text, because the performance of SOFC depends on many parameters. This report describes the approaches we have taken in order to set the international standard of the SOFC test method and to evaluate the uncertainty of the test results.

Keywords: Solid oxide fuel cell, SOFC, uncertainty, performance evaluation, standardization

1 はじめに

1970年代から我が国において国家プロジェクトとしても研究開発が進められてきた固体酸化物形燃料電池 (SOFC) は、ここへ来て急速に実用段階に近づきつつある。すでに海外のいくつかのメーカーは1 kW ~ 数百 kW 規模の SOFC システムを常に供給する体制を整えているものと思われ、日本においても昨年度から700 W 規模の SOFC がエネファームの中核技術として市場に出はじめた。

このように SOFC の開発は、すでに一部のメーカーによりシステムが実用化・商業化されている状況ではあるが、実際にはセルやスタックレベルの製品が世間一般で

十分に信頼性にたつデータ付きで取引されているというわけではない。それらは依然、多くの企業において開発段階であり、実際、多くの場合、長期耐久性や製造コスト等の課題が残されている。これらの課題を克服するために欧州では FCTESTNET やその後継プロジェクトである FCTESQA^[1] において試験条件の統一化・標準化を図って、研究開発が加速してきた経緯がある。ここでの標準化の作業は、主に試験方法や試験条件の統一化によってラウンドロビンテスト等で行った試験結果の国際間の比較を容易にするために進められていた。そのため試験条件等は、とても具体的であり、想定しているセルやスタック (セルを

産業技術総合研究所 エネルギー技術研究部門 〒305-8568 つくば市梅園 1-1-1 中央第2

Energy Technology Research Institute, AIST Tsukuba Central 2, 1-1-1 Umezono, Tsukuba 305-8568, Japan * E-mail: mo.momma@aist.go.jp

Original manuscript received April 3, 2012, Revisions received May 2, 2012, Accepted May 11, 2012

積層したもの) も欧州が開発を進めている平板タイプのみが主たる対象となっていた。

これに対して日本においては NEDO 等による SOFC 関連の R&D プロジェクトは存在していたが、試験方法の規格・標準化の動きについては欧州等に対して遅れていた。

一方、日本では SOFC の特徴的な動作環境である高温において、さまざまな使用環境条件を想定し、機械的強度の確保や劣化速度の低減等による信頼性の確保をアプリケーションごとに実現するために、さまざまな指向性をもった研究開発が行われてきた。その結果として、さまざまなタイプ(幾何学的な形状、単セル当たりの大きさ)の SOFC が開発されつつある。それぞれのタイプのセルには適切な動作条件が存在するので、これらの条件を統一して試験条件を設定することは、さまざまなタイプの SOFC があらかじめ想定した使用条件を無視して比較することにつながり、適切な比較ではなく、比較することの意義も疑わしくなる。

上記のような事情により、商取引を想定した SOFC 試験法の国際規格の作成に当たっては、日本主導で行う必要があった。日本主導で行うことによってさまざまな使用条件を想定したさまざまなタイプの SOFC が公正に試験され、その結果としての試験データを踏まえて商取引が行われることによって、さまざまなアプリケーションに適切な SOFC が選ばれ、SOFC の発展・普及が加速されることが期待されるのである。

我々のグループでは、燃料電池の燃料として使用されることが期待されている水素や都市ガスについて流量標準の開発^[2]や SOFC システムの高精度効率測定手法の開発等^[3]を通して効率測定方法の JIS TS (Technical Specification:

技術仕様書)^[4]の作成等、SOFC の普及や開発促進につながる標準化についての研究をいち早く進めてきた(図 1)。また、さまざまなタイプの単セルの測定やスタック、システムの測定を通じて SOFC の計測技術を確立してきた^[5]。

これらの技術および経験のもと、SOFC の今後の展開を見越して 2007 年度から経済産業省の委託を受け、SOFC 単セル/スタックの試験方法の標準化・規格化の作業を開始した。実用化が近いと思われた SOFC の商取引の円滑化および SOFC の普及をそれによって加速させることが重要であると考えたからである。

SOFC の性能試験の国際規格を作成する際には、データの信頼性を担保するために、得られたデータの精度について言及する必要がある。IEC やその他の国際規格の組織では、国際標準や国家標準へのトレーサビリティが確保された概念である「不確かさ」を、測定結果の信頼性の定量的評価の尺度として用いることを提唱している。不確かさ付きの測定値を試験のアウトプットとして提出することによって、初めて試験結果の国際比較ができるようになり、規格が国際的な規定として意味のあるものとなる。

このような状況を踏まえて我々のグループでは、JIS TS や 2007 年度に実施した 10 kW SOFC 実システムを用いた効率測定において、入出力の計測値の不確かさ解析を行い、測定した効率を不確かさ付きで評価し、計測の不確かさ評価の導入を積極的に図ってきた^[6]。

ここでは、2007 年度から 3 年間の経済産業省の委託による SOFC セル・スタックの性能試験法に関する国際規格の作成と、その中で扱う不確かさ評価への我々のグループによる取り組みについて記す。

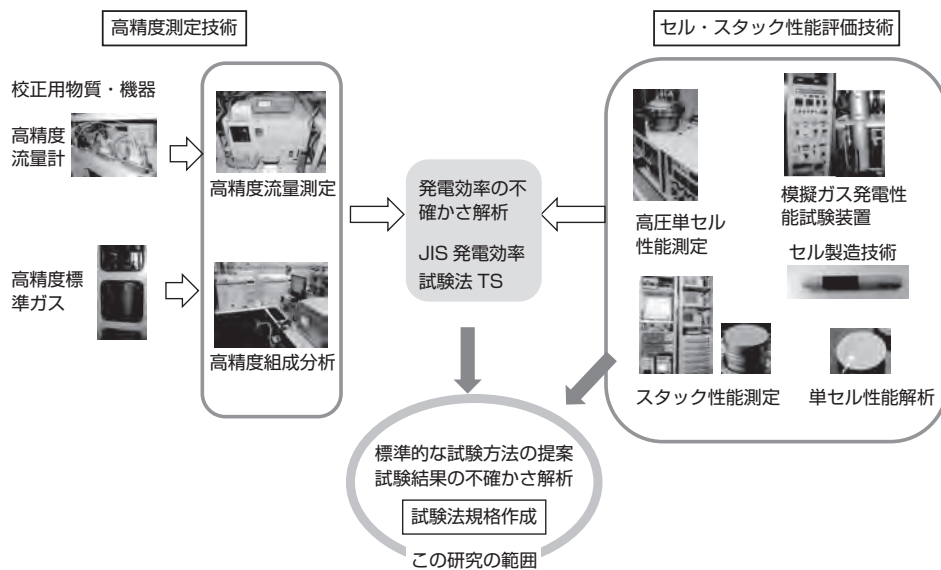


図 1 この研究における要素技術の統合と相互関係

2 研究目標とその実現に向けたシナリオ

これまで述べたとおり、この研究の目標は SOFC 試験法の国際規格提案であり、その中に現状レベルの技術において実施可能な不確かさ評価式・評価方法を盛り込むことである。

最初のステップは規格案を審議するための委員会を組織することであった。我々は委員会を組織するに当たり、事前にアンケート調査を含む聞き取り調査を行い、主に SOFC のメーカーが行っている試験方法や試験方法の規格化にあたって、彼らがどのような考えをもっているかについて調査を行った。委員会の委員の構成はメーカー、ユーザー、中立者からそれぞれ同数となるようにし、中立的な立場で委員会の議論が行われるように考慮する必要がある。しかし、SOFC が依然として開発途上の技術であり、正確な意味でのユーザーがまだあまり存在しないことにより、結果的に委員会での議論がどうしてもメーカー寄りに進む傾向があったことは反省点である。

第二のステップは規格の測定対象を確定することである。上述の様に SOFC ではさまざまな形状、大きさのセル/スタックが開発されつつあるので、規格においてセルやスタックの細部にわたって、試験における部品やその状態および試験条件を規定することは容易ではないし、現実的な方法ではない。ここは、我々が試験法の規格を作成し始めるにあたって最も悩んだ部分である。結果として我々が選択した方法は、以下のとおりである。

- ① 試験対象を「セル/スタックアッセンブリー」とし、この呼称によって取り扱う対象がセルおよびスタックであることを明示する。
- ② 「セル/スタックアッセンブリー」の中身をブラックボックスとし、任意の SOFC に対応可能なようにする。
- ③ 計測システムと「セル/スタックアッセンブリー」のインターフェースを定義し、規定では必要なインターフェイスおよびそれらを介した入出力値の測定方法について記述する。

つまり、規格で試験対象の構成についてすべてを規定することが必ずしも最良ではないので、規格で決めるべきでない（製造者や試験者に判断を任すことが適当であると考えられる（任意性））部分を、セル/スタックアッセンブリーというブラックボックスの中に入れて、計測系とのつなぎの部分だけを規定するという考え方である。こうすることによって、規格で扱う対象はセルだけではなくスタックにも広げることができた。

最後に、測定結果の妥当性を担保するために不確かさの概念を導入することにしたが、それをどのような形で規格に取り入れ、評価式をどうするかを検討する必要があった。不確かさ解析のよりどころとする指針 (GUM)^[7] には

不確かさの一般式が記載されているが、これをそのまま SOFC の性能試験において結果の不確かさ評価式とすることは適切ではないと考えた。一般式を具体的な式に展開するにはさまざまな任意性がある。また、一般式を正直にそのまま適用しようとする、あまりに多くの作業を不確かさの評価者に課してしまうこととなり、結果として使えない（使ってもらえない）規格になる危惧があったからである。したがって、規格で規定する不確かさ評価式は簡便にし、具体的にその方法を記載して方法を統一する必要があると考えた。以下では、不確かさ評価式の導入にあたり我々が行った方法を示す。

3 SOFCの性能測定における不確かさ

3.1 不確かさ評価の方針について

SOFC の性能は測定の際に設定するさまざまな条件に依存するので、測定結果の不確かさを簡単に求めることができる訳ではない。そこで我々は、燃料電池関連の既存の国際規格や検討中の国際規格において不確かさ評価がどのように扱われているかについて調査した。

以下は、燃料電池関連の国際規格等における不確かさの取り扱い方について調べた例である。発行年からわかるように我々がこの研究を始めた 2007 時点において不確かさ評価付きで燃料電池の性能評価を推奨する規格がとて少なかったことがわかる。

(1) 定置用燃料電池システムの性能試験法 IEC (International Electrotechnical Commission: 国際電気標準会議) 62282-3-200 (2010 年回付 CDV, Committee Draft for Voting: 投票用委員会原案)^[8] においては、系統不確かさ（計測器の精度や校正時の誤差に由来する）と偶然不確かさ（データの変動に由来する）に分類して合成・評価する方法を Annex に例として記載し（コンピューターによる計算結果表等）、具体的な方法は GUM を参考に決めることとしている。この CDV における不確かさの扱いは ASME の同じく燃料電池システムの性能試験法 (ASME (American Society of Mechanical Engineers: 米国機械学会) PTC 50-2002^[9]) とおおよそ同じ内容となっており、試験は、steady state で行うとしている。

不確かさの計算は、得られた効率に対するもののみで、燃料ガス組成に対する感度係数は、理論上計算によって求めることが可能である。システムの評価はセルやスタックの温度を決めて行うわけではないので、その不確かさ評価を行う際の入力量はセルやスタックの評価よりも限定され、燃料組成や流量に依存する入力熱量と電気出力の不確かさのみを考慮すればよいということである。

(2) 前述の FCTESQA からは 2009 年末に IEC に PEFC

(polymer electrolyte fuel cell: 固体高分子形燃料電池) の I-V 特性試験法に関する DC (Draft for Comment: コメントを募るための資料。IEC 内の非公式文書のため参考文献にはあげない) が提出された。この試験法の中では、各測定値に対して "measurement uncertainty" の許容値を規定している。ただし、安定状態を定義する際に "measurement uncertainty" を引き合いに出して、変動がその範囲内に入ることとしている等、測定値の変動と測定値の不確かさを明確に区別していない状況がうかがわれる。もっとも、"measurement uncertainty" 自体は、入力パラメータの相関を含む一般式で定義している形をとっていたが、不確かさの求め方の具体的な方法については一切触れられていない。

(3) 2010 年に発行された PEFC の単セル試験法 TS^[10] は、我々が規格案を検討している段階では CD (Committee Draft: 委員会原案) であったが、その中で入力量の最大許容変動幅と試験機器の最大不確かさを規定していた。最終的に発行された TS においては、附属書の中に試験報告書のひな形として、測定の不確かさ (measurement uncertainty) を記載するように推奨しているが、具体的な求め方は GUM^[7] を参照するような記載となっている。

以上の様な状況を踏まえ、我々が提案する SOFC 性能試験法の国際規格案における不確かさ評価については、基本となる指針を以下のようにすることとした。

(a) 不確かさ評価は GUM を参考とし、評価式と具体的な求め方を記載することとする。不確かさ評価は統計的な解析による A タイプおよびそれ以外の手法による B タイプの不確かさを個別に求めて、それらを合成することによって行う。不確かさの一般式からは実際に不確かさ評価を行う手順を導くことが困難で、これを評価者任せにすると評価方法がばらばらになる (評価方法に統一性がなくなる) ことが考えられ、それを避けるためである。

(b) 入力量の許容最大変動幅および機器の最大不確かさを規定し、測定は入力量が許容変動幅に収まった安定状態で行うこととする。こうすることによって A タイプおよび B タイプの不確かさのいずれもおおよその許容値が定まることになる。また、安定状態で測定を行うことによって、不確かさを評価する際に入力量同士の相関を考慮する必要がなくなると考えた。

(c) 評価をする際にあまり多くの作業を評価者に強いるようなものとはしない。規格は商取引における性能試験のためのものであるため、不確かさを正確に求めること自体が要求されるわけではない。試験者がどの程度のレベルの正確さで試験を実施し、結果を提出しているかが判断できればそれで良いと考え、それを不確かさ評価の目的とした。

そして、この目的を達成するために、試験者に日常行っている試験手順からの大幅な逸脱を強いるものであってはならないと考えた。

これらの方針により、我々が行うべき作業は不確かさ評価の一般式から、不確かさへ与える影響が少ないと思われる部分を切り離し、また、具体的な評価作業を併記して、不確かさ評価者が平易に評価できるような形にすることとなった。

3.2 規格案における不確かさ関連の記載について

このような状況を考慮して作成した規格案における不確かさ評価に関連した内容について以下に述べる。

規格案に盛り込んだ性能試験の内容は、定格出力試験、電流-電圧特性試験、有効燃料利用率依存性試験、長期耐久性試験、内部インピーダンス試験等であるが、これらの試験の中には不確かさ評価がとても難しいものや手間がかかると予想されるものがあるので、規格案では定格出力試験の結果のみ不確かさ評価をすることを義務付けるようにした。ここで定格出力試験とは、電流あるいは電圧を 1 点に保った状態で電圧あるいは電流を測定する試験であり、それ以外の制御パラメーターもすべて一定に保持したうえで行う 1 点試験である。二つあるオプションのうち、以下では、一般的に行われているであろうと思われる電流制御による電圧測定の場合を例にとって説明する。

上記の方針により規格案では、規格で定めたすべての試験において満たすべき条件である電流、ガス流量等の入力値の変動の許容範囲を決めた (表 1)。実際に測定する際には、試験者が目標とする測定量の不確かさを得られるように、この範囲内で変動の許容範囲を決定することになる。これによって不確かさの偶然誤差に由来する許容値を定めたことになる。また、「安定状態」として、入力量が試験者の定めた変動の許容範囲以内で、しかも測定が目標とする不確かさを満足するレベルで系が安定した状態と定義し、すべての測定はこの「安定状態」を確認した後に行うこととした。これによって測定が系の急激な条件の変化に伴う過渡応答や種々のドリフト状態のもとで行われることを防止している。結果として測定値の変動は、主に偶発的なノイズや制御しきれない入力量の微小変動によるものと考えられることができるようになり、不確かさ解析において入力量の相関を考慮する必要が少なくなると考えた。

また、測定機器の不確かさ (系統誤差による) としてその最大許容値を定めた (表 1)。これは機器の校正時の不確かさを意図して定めたが、機器が校正されていることを条件として、簡便に機器の確度等のカタログ値から一様分布を仮定した B タイプの不確かさによって判断しても良いこととしている。

表1 規格案で定めた許容変動幅、機器不確かさおよび入力量の不確かさ評価への対応

入力量	変動の許容範囲	測定機器不確かさ	感度係数の測定	不確かさ評価への対応
電圧	電圧制御の場合 設定値の±1%	開回路電圧の±0.5%	実験により決定	○
電流	電流制御の場合 定格電流の±1%	定格電流の±1%	実験により決定	○
ユニット温度	設定値の±1% (°C)	定格温度の±1% (°C)	実験により決定 (定格温度±50°C程度で測定)	○
燃料流量	定格値の±1%	読み値の±1%	実験により決定 (定格流量±10~20%程度の流量幅で測定)	○
酸化剤流量	定格値の±1%	読み値の±1%	実験により決定 (定格流量±10~20%程度の流量幅で測定)	○
燃料組成	H ₂ , H ₂ O, N ₂ は±1 mole%, CO, CO ₂ , CH ₄ は±0.25 mole%	H ₂ , H ₂ O, N ₂ は±2 mole%, CO, CO ₂ , CH ₄ は±1 mole%	混合ガスの供給方式による。 単独で組成を変えることは出来ない	△(一部不可) ガス製造者が発行する組成表の提出等に対応
酸化剤組成	O ₂ ±0.3 mole% (N ₂ バランス)	O ₂ 濃度について±0.3 mole% (N ₂ バランス)	混合ガスの供給方式による。 単独で組成を変えることは出来ない	△(一部不可) ガス製造者が発行する組成表の提出等に対応
燃料温度	性能に影響を与えないような温度であれば問題ない	読み値の±1%	-	× (性能に影響を与えないような温度と規定)
酸化剤温度	性能に影響を与えないような温度であれば問題ない	読み値の±1%	-	× (性能に影響を与えないような温度と規定)
燃料ガス圧力		読み値の±1%	-	×
酸化剤ガス圧力		読み値の±1%	-	×
大気圧	通常は圧力を変えて測定できないので不確かさ評価に含めない。ただし、試験時の大気圧を測定する。また、不確かさに与える影響は少ないことを実験により確認したが、試験圧力が1気圧と大きく異なる場合等は問題となる可能性もある。		-	×
温度分布	サイズが大きなセル・スタックのように対象が複数の温度測定点を有する場合には許容温度分布幅を製造者が定めて、測定はその範囲内で行うこととし、不確かさ評価には含めない。100 cm ² 程度の平板セルでは温度分布が少ないことを実験により確認。		-	×

4 SOFCの特性測定における不確かさ

4.1 不確かさ影響因子の実験的検証による選別

SOFCの特性は、セル温度、燃料流量、空気流量、動作圧力、温度分布等に依存する。したがって、これら入力量の制御や測定の不確かさは、測定量の不確かさに影響を及ぼすこととなる。我々は、これら多くの入力量が測定量の不確かさに及ぼす影響を調査し、調査結果をもとに不確かさ評価に取り入れるべきものとそうでないものとに分けることとした。

図2(a)には例として雰囲気圧力を変えて測定した単

セルの電圧の圧力依存性を示す。測定は開回路電圧(電流=0 A)、燃料利用率50%(電流=24.4 A)、燃料利用率70%(電流=34.1 A)の3条件で行っている。それぞれの曲線の傾きは、電流やガス流量を一定に保ってセル電圧を測定したときに、圧力が設定値からずれた際の電圧測定値の不確かさへの寄与の大きさを示すことになる。図に示したデータから求めたセル電圧の圧力依存性は、1気圧付近では0.3 μV/Pa程度であり、通常の使用気圧の範囲内で測定が行われるならば、気圧変動による測定量Vの不確かさへの影響は小さいと考えることができることが分

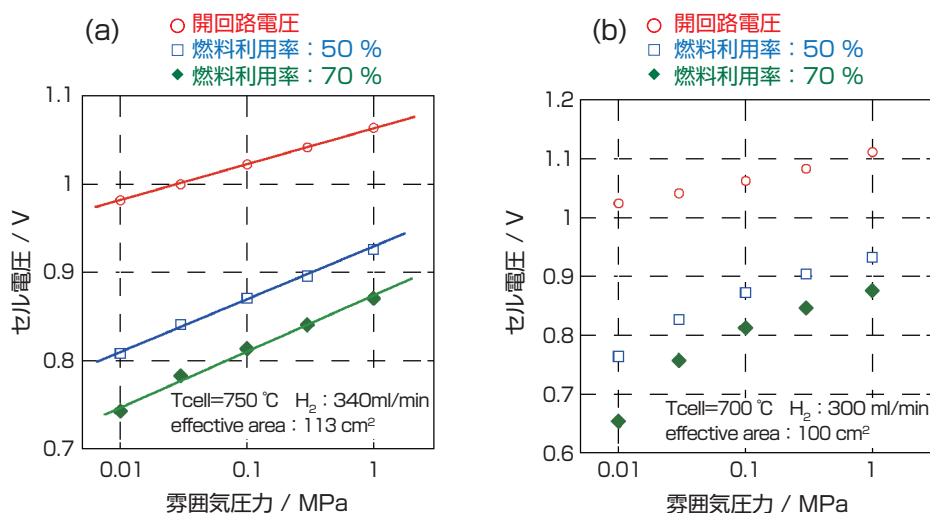


図2 セル電圧の各種燃料利用率における圧力依存性 (a) 電解質支持タイプセル、(b) アノード支持タイプセル

かった。ちなみに我々の規格においては、目安として、測定量の不確かさとして 1 % 程度以内を目標とすることを前提として考えている。

SOFC には幾何形状や大きさだけではなく、支持体に何を使用するかによってもタイプの異なるものがある。先の図で使用したセルは電解質支持タイプであり、電解質の両面に成膜された電極は比較的薄く、電極多孔体中での反応種や反応生成物の拡散の影響を比較的受けにくいという特徴がある。これに対してアノード支持やカソード支持タイプの SOFC では、多孔体の厚みが厚くなるので、ガス拡散の影響を受けやすくなり、動作圧の依存性においても本質的に前者とは異なる影響を与える可能性がある。図 2 (b) には、アノード支持タイプの SOFC 単セルで測定したセル電圧の圧力依存性を示した。低圧側で先ほどの依存性とは大きく異なる様子が観測されるが、1 気圧におけるセル電圧の圧力依存性は $0.2 \sim 0.5 \mu\text{V}/\text{Pa}$ 程度であり、やはりこの場合も不確かさに与える影響は大きくないことが確認できた。

一方、SOFC の温度分布の問題は測定の不確かさを考える上でとてもやっかいな問題である。均一な温度に保たれた SOFC の性能を測定して、そこで得られた性能がその温度における特性であるとして行うことができれば理想的ではあるが、現実の測定では必ずしもそのような状態で測定することができるわけではない。また、SOFC が使われる状況を考えれば、温度分布がある状態こそが本来の使い方であるという考えもある。

そこで、実際に SOFC の単セルの温度分布を測定したが、その例が図 3 である。温度分布はセルを高温に維持するための電気炉への設置状況や温度制御の仕方によっても異なるが、ここでは我々が通常使用している実験装置系へ設置し、温度制御は 1 点制御で行っている。

内部改質反応があまり期待できない電解質支持タイプのセルに、燃料として水素を流した際の温度分布を示したのが図 3 (a) である。ガスの供給は円板形セルの中心部から行われており、そこから外周部へ向かって流れている。この場合の温度分布は負荷の状況にかかわらず、セルの平均温度から $\pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ 程度の範囲に収まっていることがわかる。これは設定値の $\pm 1 \%$ 程度までの変動を許容するとした規格案から判断すると、十分許容できるレベルであると考えられた。一方、SOFC の利点の一つとして期待される内部改質特性をもつアノード支持タイプのセルを使用して、燃料を部分改質メタンとした場合に測定した温度分布を図 3 (b) に示す。図では未改質メタンが内部改質される際の吸熱反応により、入り口付近で温度が下がることが確認されている。負荷状況によって多少の温度分布の違いはあるが、それでも平均温度 $\pm 3 \text{ }^\circ\text{C}$ 程度の温度分布に収まっており、温度分布をセル内の部分的な温度変動としてとらえることができると仮定するならば、内部改質反応が起こる場合でも、この程度の使用条件であれば十分許容範囲に収まると考えられた (実際には温度分布により局所的なインピーダンスの分布が生じ、電流分布が変化するので、温度分布の影響を評価するのはとても困難である)。

以上のように実験による検証を通じて、気圧や温度分布については、不確かさに与える影響は少ないものとして不確かさの評価式には入れないこととした。本来であればこれらが不確かさに与える影響は無視できる程度に小さいものとは言えず、不確かさ評価式に含めてしかるべきものである。しかし、セル製造者が製作する個々の型式のセルにおいて圧力の依存性や温度分布を測定することを期待することはできない (実際に実用セルにおいてこの論文で報告したような圧力依存や温度分布を測定した例はほとんど発表されたことがないのが現状である)。また、温度分布

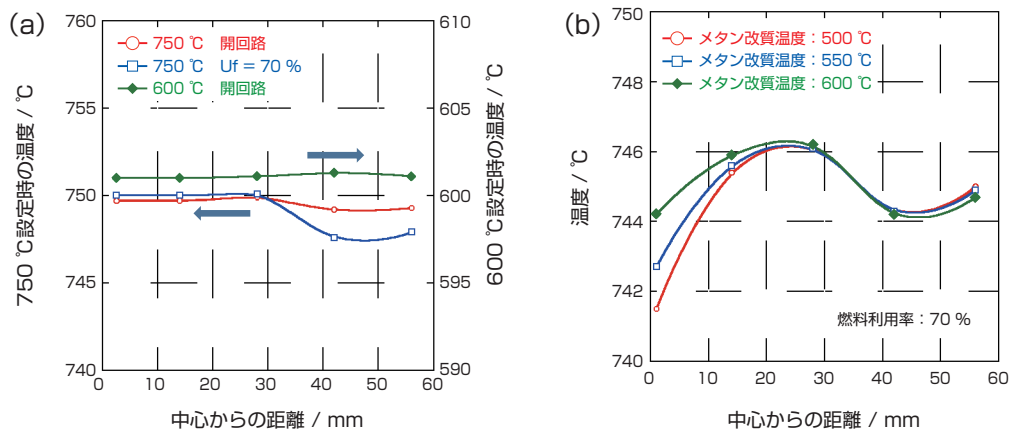


図 3 単セルの温度分布測定例
0.25 φ シース熱電対 (OKAZAKI SUPER COUPLE 1000H) による (a) 電解質支持タイプセル、有効電極面積：113 cm²、燃料：純水素 (b) アノード支持タイプセル、有効電極面積：113 cm²、燃料：部分改質メタン

を測定したとしても温度分布が不確かさに与える影響を見積もることはとても困難である。このような理由があるのでそれらが不確かさに与える影響は少なく、不確かさ評価式から省いても不確かさ評価の目的自体は達成できると判断できるレベルであったことは、結果的に幸運であった。

また、規格案では試験対象ユニットにおいて温度測定が複数箇所あるものの温度分布については、温度分布の許容範囲をあらかじめ製造者が決定することとして、測定はその温度分布の範囲内で行うこととした。つまり、その範囲内であれば不確かさを考慮する必要はないとした。

4.2 導入した不確かさ評価式

以上のような状況から規格案において提案した入力量 X_j を制御して SOFC の電圧 V を測定する際の不確かさ評価式を以下に示す。

$$u(V)^2 = u_i(V)^2 + u_F(V)^2 + \sum_j \left(\left(\frac{\partial V}{\partial X_j} \right)^2 (u_i(X_j)^2 + u_F(X_j)^2) \right)$$

ここで、 $u(X)$ は X の標準不確かさ、下付き I は、計測機器による不確かさ、同じく F は変動による不確かさ、 $\frac{\partial V}{\partial X_j}$ は測定量 V の入力量 X_j に対する感度係数を表し、実験によって決定する。また、入力量の平均値と設定値の差から感度係数を用いて測定量に対して補正を行うこととした。上述のような事情と実験結果により、不確かさ評価式で考慮すべき入力量は表 1 に示すとおりとした。

規格案では附属書にて温度計測、電流計測、流量計測、電圧計測について機器不確かさの求め方と、それらと変動による不確かさからそれぞれの測定値の不確かさの求め方を示した。このようにすることによって、上式がさまざまに解釈されることなく統一された不確かさ評価が行われるものと考えた。

4.3 測定量と入力量の関係 (感度係数の測定)

不確かさの評価式における感度係数は実測によって得ることとしている。前述のとおり不確かさ評価は定格点でのみ行うようにしたので、この測定は定格点のまわりで入力量を振って電圧測定を行うことになる。例としてユニット温度に対する感度係数を求める際の測定データを図 4 に示す。定格点が 750 °C で燃料利用率 70 % である場合には、図におけるその点での傾きが感度係数になる。ここで感度係数を求める実験での入力量の振り幅について述べておくと、一般に SOFC のメーカーは定格条件近辺で温度やガス流量を変えた測定を行っている。ユニット温度の場合、通常 50 °C 程度の間隔で行われている。そこで感度係数を求める際のユニット温度の振り幅については、規格案では ± 50 °C 程度で測定をするように推奨した。したがって図 4 に示すデータは定格温度とその ± 50 °C において電流 - 電

圧特性の測定を行うことによって得られるので、このような感度係数の測定がメーカーにとって新たな負担になることにはならないように配慮したということである。

一方、感度係数を測定することができないために不確かさ評価ができない場合もある。表 1 には、SOFC 試験における入力量に対する感度係数の求め方および不確かさ評価への対応を示したが、燃料組成や酸化剤組成については不確かさ評価をできない場合がある。混合ガスボンベ等を使用してガスを供給する場合等では、混合ガスを構成する 1 種のガスの濃度だけを独立に変化させて感度係数を測定することが実際問題としてできないために、組成の不確かさが電圧に与える影響を評価することができない。

5 SOFC性能試験における不確かさ解析の例

表 2 には、実際に我々が性能試験に使用している計測機器および制御機器を用いて、SOFC 平板単セル (100 cm²) の定格出力試験を行った際の不確かさ解析表 (バジェット表) の例を示す。測定値の変動が大きい場合には、繰り返し測定を行うことによって不確かさを抑えることができるが、30 回 (1 point/sec) 程度の測定を一通り行っただけでも系が安定している状態で測定すれば、測定値の変動が不確かさへ与える影響は小さいことがわかる。定格出力試験では、最終的に入力量である電流と測定量である電圧の積である電気出力をアウトプットとして算出する必要があるので、表 2 の右端の欄には出力換算の不確かさを示している。それらを比較すれば、不確かさの成分の大部分はセルの温度計測に由来するものであることがよく分かる。さらにその内訳では、使用した熱電対に由来する不確かさが大きいこともわかる。不確かさ解析の利点として、このような表を作成することによって、どの測定を改善すれば

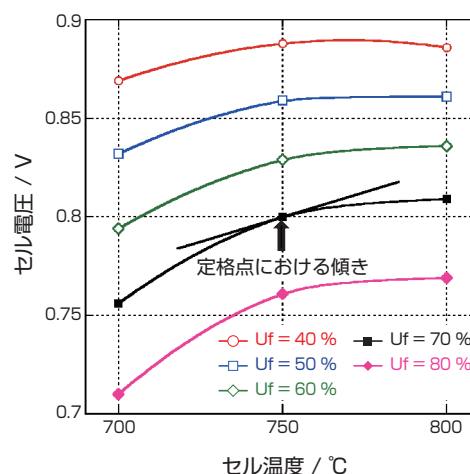


図 4 温度のセル電圧に対する感度係数を求める際の実験例 入力量の振り幅を ± 50 °C 程度とした。

表 2 SOFC 単セルを使用した電流制御定格出力試験の不確かさバジェット表の例

入力量および測定量	不確かさ要因	確度等	誤差限界	標準不確かさ	不確かさのタイプ	自由度	感度係数	電圧換算の標準不確かさ (V)	電力換算の標準不確かさ (W)
セル温度				3.20E+00 °C			1.29E-03 V/°C	4.13E-03	1.24E-01
変動	—	—	—	4.90E-03	A	29			
計測機器	熱電対 (K, クラス2)	±0.75 % of rdg in degree C	5.253 °C	3.03E+00	B				
	記録計	±(0.15 % of rdg + 0.7 °C)	1.751 °C	1.01E+00	B				
電流				7.85E-02 A			6.95E-03 V/A	5.45E-04	1.64E-02
変動	—	—	—	1.83E-03	A	29			
計測機器	分流器	±0.05 % of rdg	0.015 A	8.70E-03	B				
	記録計	±(0.05 % of rdg+12digits)	0.135 A	7.80E-02	B				
燃料流量				4.14E-01 Nml/min			4.23E-04 Vmin/Nml	1.75E-04	5.26E-03
変動	—	—	—	8.68E-02	A	29			
計測機器	MFC Dry cal を用いた校正による			4.05E-01	B				
空気流量				2.89E+01 Nml/min			3.32E-07 Vmin/Nml	9.59E-06	2.88E-04
変動	—	—	—	5.09E-01	A	29			
計測機器	MFC	±1 % of full range	50 Nml/min	2.89E+01	B				
	記録計	±(0.05 % of rdg+12digits)	0.87 Nml/min	5.02E-01					
セル電圧				1.07E-03 V			1.00E+00 V/V	1.07E-03	3.22E-02
変動	—	—	—	6.26E-05	A	29			
計測機器	絶縁アンプ	±(0.1 % of rdg + 0.1 mV)	9.25E-04 V	5.34E-04	B				
	記録計	±(0.05 % of rdg+12digits)	1.61E-03 V	9.31E-04	B				
合成標準不確かさ								4.30E-03	1.29E-01
拡張合成不確かさ (k = 2)								8.60E-03	2.58E-01

測定量の不確かさを少なくすることができるかを、容易に把握できるようになることがあげられる。この測定では、温度測定に K 熱電対 (クラス 2) を用いているが、これをクラス 1 に変更することによって電力測定の標準不確かさは 0.13 W (0.52 %) から 0.08 W (0.33 %) まで改善される。

また、以上のことから安定状態を適切に判断して測定をすれば、測定値の変動が不確かさへ与える影響は小さいと思われるので、試験において使用される機器による不確かさだけでなく、試験結果の不確かさをおおよそ予想できることになる。そこで、規格案において規定した機器不確かさの最大許容値をもつ測定機器を使用したと仮定して、同一セルを試験した際の不確かさとして、相対拡張不確かさを 1.4 % と見積もることができた。規格案では、規定以内の不確かさをもつ機器にて測定するように定めているので、この規格案をもとに試験者が測定方法の計画を立てて実施すれば、相対拡張不確かさ 1.4 % 程度以下の測定結果を得ることが可能であることが確認できたことになる。ただし、この値は、測定対象によって異なり、異なった感度係数をもつ対象を試験する場合や、ガス利用率が高い状態を定格条件とする場合には、大きく変わる可能性があるので注意が必要である。

6 まとめ

規格案でまとめた入力量の最大変動幅や機器の不確かさは、我々がまずたたき台となる数値を示し、委員会での議論を通じて、各社が納得できる値として決定したものである。結論として、この規格案にもとづいて試験をすることによって、最大でも相対不確かさ 1.4 % 程度の測定ができることが確認され、SOFC の商取引を想定したものとして妥当な内容の規格案になったと考えている。

しかし、この規格案に盛り込んだ定格出力試験での不確かさ解析およびそのための不確かさ評価式は、NP (New Work Item Proposal: 新業務項目提案書) を準備する際の国内委員会にて最終的には規格案から省かれた。したがって、不確かさについては NP では入力量 (制御パラメータ) の最大許容変動幅と機器の不確かさだけが残りとなったが、その場合においても上述のような最大不確かさが確認されたのは幸いであった。

不確かさ解析が規格案から外れた最大の理由は、やはりまだ多くのメーカーにおいて不確かさの概念が浸透しておらず、不確かさ解析の煩わしさのみが先行してしまったことによる。我々は、不確かさの評価式の提案に当たっては、なるべく試験者の負担が軽くなるような式 (方法) を導い

たつもりであるが、不確かさ評価のメリットについての説明が十分ではなかった。不確かさの概念は、データの信頼性をトレーサビリティ体系のもとで国際的に保証するものであり、多くの国際標準化組織によって推奨されており、今後ますます国際規格等で導入されるものと考えられる。一方、不確かさ評価により期待される効果は、良い製品を製造するメーカーにとってはそれを行う価値が十分にあるということ、この分野のメーカーに認識してもらうまでには少し時間がかかるようである。

この規格案は現在、国際WGの場で審議段階であり、他国の提案によりいつ不確かさ評価の導入が提案されるかわからないような状況である。また、国内委員会に限ってみれば不確かさ評価については、委員会で我々が行った説明や議論を通じて、その概念が少しずつ浸透してきていると思われる。したがって、突然提案されるかもしれない不確かさ評価について、その是非を判断するための議論の下地づくりに貢献できたのではないかと考えている。

筆者らは不確かさについての専門家ではないが、不確かさ研究の専門家の間では「最も大きな不確かさは考慮されていない要因に存在する」というような格言(?)があるようである。今回の不確かさ評価においても、文中にも述べたように

①温度分布に起因する性能の変化

の他に

②試験者の違いによるバラツキ

③サンプル間のバラツキ

④経時変化によるドリフト

等がそれにあたる可能性があり、残念ながら上記格言の呪縛から逃れることができたわけではないと考えている。これらのうちの一部は我々の不確かさ評価の方針にしたがって外した部分でもある。さらに経時劣化によるドリフトについてはSOFCの耐久性を議論する際には不可欠であり、現在、耐久性の試験方法について検討を積み重ねているところである^[11]。

以上、グローバルに展開される技術の普及を見据えた場合に、避けて通れない国際規格化に臨んで我々が選択した方法論について記述したが、それが少しでも同様に技術開発に携わっている諸兄の参考になれば幸いであると同時に不確かさ評価についても多くのご意見・ご批判をいただきたいと思っている。

謝辞

この研究の成果は経済産業省「基準認証研究開発事業」および「国際標準共同研究開発事業」によって得ら

れたものであり、また、国際規格案の作成にあたりご協力いただいた「SOFC 単位セルアッセンブリー試験方法に関する標準化研究開発委員会」の委員の皆さまおよび関係各社・機関に感謝いたします。

参考文献

- [1] <http://fctesqa.jrc.ec.europa.eu/>
- [2] 嘉藤徹: 固体酸化物形燃料電池(SOFC)の開発と展望 *View and Development of Solid Oxide Fuel Cells*, 江口浩一監修, シーエムシー出版 (CMC books), 179-190 (2010).
- [3] NEDO 平成19年度成果報告書 固体酸化物形燃料電池システム技術開発 固体酸化物形燃料電池システム性能評価技術の開発 システム性能評価技術の開発「システム効率計測評価技術の研究」(2008).
- [4] JIS TS C 0054 メタンを主成分とする気体燃料を用いる固体酸化物形燃料電池発電システムの発電効率試験方法
- [5] 田中洋平他: Synthesiology投稿済み (査読中)
- [6] Y. Tanaka, A. Momma, K. Kato, A. Negishi, K. Takano, K. Nozaki and T. Kato: Development of electrical efficiency measurement techniques for 10 kW-class SOFC system: Part II. Uncertainty estimation, *Energy Conversion and Management*, 50 (3), 467-478 (2009).
- [7] ISO/IEC Guide 98:1995. Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement (GUM), International Organization for Standardization (1995).
- [8] IEC 62282-3-200 Ed.1 (CDV): Fuel cell technologies - Part 3-200: Stationary fuel cell power systems - Performance test methods.
- [9] ASME PTC 50-2002 Fuel Cell Power Systems Performance - Performance Test Codes -
- [10] IEC/TS 62282-7-1: Fuel cell technologies - Part 7-1: Single cell test methods for polymer electrolyte fuel cell (PEFC).
- [11] NEDO 平成22年度成果報告書戦略的国際標準化推進事業/標準化先導研究「固体酸化物形燃料電池セル・スタック耐久性試験方法に関する標準化」(2011).

執筆者略歴

門馬 昭彦 (もんま あきひこ)

1985年東京工業大学金属工学科博士課程修了。SRI インターナショナル客員研究員を経て、1989年電子技術総合研究所入所。固体酸化物形燃料電池の研究開発に従事。現在、エネルギー技術研究部門燃料電池システムグループ主任研究員。専門は、電気化学計測・評価。この論文では、委員会の運営、各種電気化学的測定、不確かさ評価式の検討、論文のとりまとめおよび執筆を担当。



高野 清南 (たかの きよなみ)

1966年徳島大学工学部電気工学科卒業後、通商産業省工業技術院電気試験所入所、MHD発電に関する研究開発に従事。1991年リチウム二次電池のシミュレーション技術の研究を経て、2001年より固体酸化物燃料電池の発電特性評価に関する研究に従事。現在、エネルギー技術研究部門燃料電池システムグループ客員研究員。この論文では、圧力依存性単セル試験や温度分布測定および不確かさ評価の検討等を担当。



田中 洋平 (たなか ようへい)

2005年京都大学大学院工学研究科物質エネルギー化学専攻博士課程修了。同年、産業技術総合研究所入所。現在、エネルギー技術研究部門燃料電池システムグループ研究員。専門は、触媒化学、燃料電池性能評価、エネルギー工学。この論文では、規格案におけるガス供給方法、不確かさ評価方法の導出等を担当。



嘉藤 徹 (かとう とおる)

1991年東北大学大学院修了、工学博士、1992年通産省工業技術院電子技術総合研究所入所。固体酸化物形燃料電池および高温水蒸気電解技術の研究に従事。現在は、経済産業省産業技術環境局 研究開発課 産業技術総括調査官。この論文では、国内委員会の立ち上げから委員会の運営、規格原案の作成・とりまとめ、およびセル・スタックアセンブリーユニットの概念の提案等を行い、研究全体の統括を担当。



回答 (門馬 昭彦)

ここでの記述は、いくつか規定した試験のうち定格出力試験の結果についてのみ、不確かさ評価を義務付けたということです。不確かさ評価をしなくてもよい他の試験結果については、試験報告書に記載することを義務付けた使用計測機器情報により、個々にデータの信頼性を判断してもらうようにしました。したがって、ご指摘のような定格試験結果の不確かさが、不確かさ評価を義務付けなかった他の試験結果に依存することではありません。定格出力試験以外のその他の試験のなかには、本当に不確かさ評価の難しいものもあり、また、我々でもどうしてよいかよく分からないものもあり、特に不確かさ評価を必須としませんでした。不確かさ評価に過度の負担をかけることは、委員会での意見にも逆行し、この規格を使いやすいものとして普及させたいという思いにもそぐわないとの判断です。

議論2 不確かさ評価ができない場合の対応

質問 (立石 裕)

「4.3 測定量と入力量の関係 (感度係数の測定)」の最後で「混合ガスボンベ等を使用してガスを供給する場合等では、混合ガスを構成する1種のガスの濃度だけを独立に変化させて感度係数を測定することが実際問題としてできないために、組成の不確かさが電圧に与える影響を評価することができない」と記載されていますが、「評価することができない」ことは問題ないのでしょうか？

回答 (門馬 昭彦)

規格案では、燃料ガスの供給方法に対していくつかのケースを想定して作りました。このうち混合ガスボンベを使用して供給する場合には、不確かさ評価を行うことが事実上難しく、不確かさ評価はできないと判断しました。この場合、ユーザーには試験報告書に記載することを規定した試験条件や混合ガスの組成分析表を参考にして、独自に試験データの信頼性を判断してもらうことになります。不確かさ評価ができないということは、確かに問題ですが、いたし方がないとの苦渋の判断です。

査読者との議論

議論1 不確かさ評価を行う項目の選択の妥当性

質問 (立石 裕: 産業技術総合研究所つくばセンター)

「3.2 規格案における不確かさ関連の記載について」の中で、「これらの試験の中には不確かさ評価がとて難しいものや手間がかかると予想されるものがあるので、規格案では定格出力試験の結果のみ不確かさ評価をすることを義務付けるようにした。」と記載されていますが、「難しいものや手間がかかる」評価を省略してよいロジックが明確ではありません。仮にここで除外した評価が不確かさに大きな影響を当たるとしたら、全体の信頼性が失われるのではないのでしょうか？