

空冷固体高分子形燃料電池スタックの分極特性
および磁場解析による非破壊診断手法に関する研究

2016年 9月

秋元 祐太郎

空冷固体高分子形燃料電池スタックの分極特性
および磁場解析による非破壊診断手法に関する研究

秋元 祐太郎

システム情報工学研究科

筑波大学

2016年 9月

目次

第1章	緒言	1
1.1	地球温暖化防止と水素社会	1
1.1.1	世界のエネルギー動向と地球温暖化	1
1.1.2	水素	4
1.1.3	日本における水素社会	7
1.2	燃料電池	10
1.2.1	背景、種類	10
1.2.2	原理	12
1.2.3	セルスタック	14
1.2.4	燃料電池システム	16
1.2.5	水素社会に向けた普及課題	22
1.3	研究目的、概要	25
1.4	論文構成	26
第2章	燃料電池計測、診断手法に関するレビュー	28
2.1	背景	28
2.2	内部状況の測定および評価手法	31
2.3	分極評価方法に関する既往研究	33
2.3.1	分極と各種要因	33
2.3.2	Tafel の式	35
2.3.3	フィッティングモデルを用いた分極評価	37
2.4	電流分布測定評価	39
2.4.1	Invasive アプローチ	39
2.4.2	Non-invasive アプローチ	42
2.4.3	燃料電池シミュレーション	47
2.5	まとめ	50
第3章	分極解析手法および電流分布計測評価手法	51
3.1	フィッティング評価モデル	51
3.1.1	理論電圧	51
3.1.2	活性化分極	53
3.1.3	抵抗分極	54
3.1.4	濃度分極	56
3.1.5	フィッティング評価モデル式まとめ	58
3.2	磁気センサによる電流分布評価	59

3.2.1	磁場測定装置.....	59
3.2.2	電流算出式.....	69
3.3	磁場測定データを用いたシミュレーション.....	72
3.4	まとめ.....	75
第4章	フィッティング評価モデルを用いた燃料電池分極特性評価.....	77
4.1	実験方法、条件.....	77
4.2	結果と考察.....	78
4.2.1	モデル間比較.....	78
4.2.2	カソード燃料による影響.....	82
4.2.3	ファン動作温度による影響.....	84
4.3	まとめ.....	89
第5章	定常状態における磁気センサによる電流分布評価.....	90
5.1	実験方法、条件.....	90
5.1.1	磁場測定時.....	90
5.1.2	シミュレーション評価時.....	91
5.2	結果と考察.....	92
5.2.1	磁気センサによる評価結果.....	92
5.2.2	シミュレーションによる評価.....	95
5.3	まとめ.....	100
第6章	不具合時における磁気センサによる電流分布計測評価および不具合診断への 適応.....	101
6.1	フラiddiing状態における電流分布評価.....	101
6.1.1	実験方法、条件.....	101
6.1.2	結果と考察.....	103
6.2	ドライアウト状態における電流分布評価.....	110
6.2.1	実験方法、条件.....	110
6.2.2	結果と考察.....	111
6.3	まとめ.....	116
第7章	提案手法の統合による非破壊診断.....	117
7.1	I-V カーブ測定時診断.....	117
7.1.1	測定方法・条件.....	118
7.1.2	定常状態における面内電流電圧特性および分極評価結果.....	119
7.1.3	フラiddiing状態における面内電流電圧特性および分極評価結果.....	122
7.2	運転時診断.....	129
7.3	まとめ.....	130

第 8 章	結言	131
8.1	結言	131
8.1.1	フィッティング評価モデルによる分極評価	131
8.1.2	定常状態における磁気センサによる電流分布計測評価	131
8.1.3	不具合状態における磁気センサによる電流分布計測評価	132
8.1.4	提案手法の統合による非破壊診断	132
8.2	今後の課題	133
8.3	今後の研究、システムへの発展	135
	謝辞	137
	参考文献	138
	業績リスト	145
	付録 3 次元有限要素法 VBA プログラム	148

目次

図 1-1 NEW POLICIES SCENARIO および LOW OIL PRICE SCENARIO における IEA 石油価格[1]	2
図 1-2 2030 年における日本のエネルギーミックス(COP21 約束草案[4]をもとに作成).....	3
図 1-3 エネルギー基本計画の概要[2].....	3
図 1-4 水電解水素製造における将来コストポテンシャル[7]	5
図 1-5 水素とほかのアプリケーションにおける最適放電および電力量[10].....	6
図 1-6 従来のエネルギーシステムと将来の低炭素システムとの比較[10].....	6
図 1-7 WE-NET における水素エネルギーネットワーク[12].....	8
図 1-8 日本における FCV と水素ステーションの普及に向けたシナリオ[16].....	8
図 1-9 水素利活用技術の適用可能性[18].....	9
図 1-10 燃料電池の発電原理図.....	13
図 1-11 セルスタック構成図.....	15
図 1-12 燃料電池フォークリフト導入台数[28].....	17
図 1-13 米国における各燃料電池の容量当たりの導入量[33]	19
図 1-14 エネファームの累積売り上げおよび初期コスト、補助金価格推移[10].....	19
図 1-15 交通信号および鉄道信号等の燃料電池式非常用電源[31]	20
図 1-16 燃料電池式非常用電源の装置概要[31].....	20
図 1-17 PLUGPOWER 実証におけるシステム部位別故障率[34]	23
図 1-18 定置用 PEMFC のロードマップ[40].....	23
図 1-19 PEMFC のロードマップにおけるスタック、セル課題[40].....	24
図 1-20 本論文の構成.....	27
図 2-1 フラッディング模式図.....	29
図 2-2 水蒸気圧と膜水分量の関係[41].....	30
図 2-3 ドライアウトおよびフラッディング状態における電圧推移[42].....	30
図 2-4 電流遮断法における等価回路および算出式、遮断時概要	32
図 2-5 電流電圧曲線.....	34
図 2-6 理論的な濃度分極および実際の濃度分極[53]	34
図 2-7 TAFEL の式	36
図 2-8 PCB を用いたエンドプレート電流分布測定手法[68].....	40
図 2-9 エンドプレートによる圧力分布の違い[74]	41
図 2-10 磁気センサを用いた単セル磁場計測 [80].....	43
図 2-11 周囲磁場測定による単セル磁場計測 [81].....	44
図 2-12 燃料電池スタックにおける周囲磁場測定によるセル電流分布測定[88].....	44
図 2-13 センサ埋め込み概要図[89].....	45
図 2-14 セル内の電流および磁場ベクトル[90].....	46

図 2-15 各ガス濃度における磁束密度、ベクトル変化[90]	46
図 2-16 3次元有限要素法シミュレーションによる燃料電池流路再現モデル[92]	48
図 2-17 3次元有限要素法シミュレーションによる電流分布評価[92]	49
図 3-1 AMI306のセンサブロック図および動作、測定可能範囲[100]	60
図 3-2 磁場測定装置概要図	61
図 3-3 センサプローブ拡大図	61
図 3-4 LABVIEWを用いた磁場測定インターフェース	62
図 3-5 磁場測定書き込み命令プログラム	63
図 3-6 磁場測定読み込み命令プログラム	64
図 3-7 冷却口へのセンサ挿入図(UNDER VIEW)	65
図 3-8 冷却口へのセンサ挿入図(SIDE VIEW)	65
図 3-9 検定試験概要図	67
図 3-10 検定試験時センサ固定方向	67
図 3-11 磁場応答特性	68
図 3-12 磁気センサ測定範囲に関する特性	68
図 3-13 面内電流密度の分割区域	70
図 3-14 磁場と電流方向の関係	71
図 3-15 燃料電池スタックモデル	73
図 3-16 シミュレーションにおける分割MEA	73
図 3-17 シミュレーションにおける計算フロー	74
図 3-18 提案手法まとめ	76
図 4-1 実験値から各モデルによるフィッティングを行った電流電圧曲線	79
図 4-2 45°Cにおける内部抵抗値の比較	79
図 4-3 各モデルおよび温度による実測内部抵抗値との差	80
図 4-4 入り口、中央、出口セルにおける温度測定結果	80
図 4-5 提案式における各カソードガスの電流電圧曲線	82
図 4-6 各電流における電圧差	83
図 4-7 各ファン動作温度におけるスタック温度	85
図 4-8 各ファン動作温度における電流電圧曲線	86
図 4-9 各モデルの運転温度における内部抵抗パラメータ	86
図 4-10 各モデルの運転温度における活性化分極パラメータ	87
図 4-11 各モデルの運転温度における濃度分極パラメータ	87
図 5-1 実験装置	90
図 5-2 各流量における出力電流	93
図 5-3 各流量におけるセル内部抵抗値	93
図 5-4 水素流量 0.2 L/MINにおける各空気流量の電流分布	94

図 5-5 各流量における電流密度比.....	94
図 5-6 シミュレーションにおける磁束密度分布.....	96
図 5-7 シミュレーションおよび実測磁束密度ベクトル分布.....	97
図 5-8 最小化前の磁場シミュレーション結果.....	97
図 5-9 シミュレーションおよび実測における各磁束密度比較.....	98
図 5-10 シミュレーションにおけるセル電流密度分布.....	99
図 5-11 相対面圧測定解析結果.....	99
図 6-1 燃料電池スタックの空気入り口下向き設置図.....	102
図 6-2 各セルの磁場ベクトル図.....	104
図 6-3 各セルの電流分布図.....	104
図 6-4 流量 20 L/MIN と 9 L/MIN の電流分布の差.....	106
図 6-5 各セルの積層方向相対磁束密度.....	107
図 6-6 2 番セルの積層方向相対磁束密度分布.....	108
図 6-7 カソード入り口、出口における積層方向相対磁束密度.....	108
図 6-8 各ストイキ比のスタック電圧.....	109
図 6-9 各セルの電圧時間変化.....	109
図 6-10 各流量条件における電流電圧曲線.....	111
図 6-11 H1 CASE における電流分布.....	112
図 6-12 H2 CASE におけるスタック電圧 1.2 V の電流分布推移.....	114
図 6-13 H2 CASE におけるスタック電圧 1.2 V 時の出力電流値.....	114
図 6-14 電流分布測定点における電流密度減少率.....	115
図 6-15 スタック電圧 1.2 V 時の積層方向の相対磁場 (H2 CASE).....	115
図 7-1 定常状態における面内電流電圧曲線.....	120
図 7-2 定常状態における 11 番セルの各測定点における面内電流電圧曲線.....	121
図 7-3 定常状態における 11 番セルにおける面内分極 ($I_{LOCAL} = 200 \text{ MA}$).....	121
図 7-4 フラッディング状態におけるセル I-V 曲線.....	123
図 7-5 定常状態、フラッディング状態における 2 番セル I-V 曲線比較.....	123
図 7-6 12A 時の定常状態、フラッディング状態における 2 番セル分極評価.....	124
図 7-7 フラッディング状態におけるセル電圧変動.....	124
図 7-8 フラッディング時における面内電流電圧曲線.....	126
図 7-9 各セルにおける積層方向の相対磁場分布.....	127
図 7-10 各セルにおける濃度分極.....	128
図 7-11 $r=9$ の 2 地点におけるセル積層方向の相対磁場.....	128
図 7-12 運転データを用いたフィッティング例.....	129
図 8-1 本研究のスキームと関連研究.....	136

表目次

表 1-1 水素のエネルギーセキュリティ	5
表 1-2 燃料電池の種類	11
表 1-3 各燃料電池の容量、効率、コスト、動作時間、開発段階[10]	11
表 1-4 燃料電池車と従来車の比較[27]	17
表 1-5 燃料電池自動車のコスト内訳[10]	17
表 1-6 冷却方式による利点、欠点、用途	21
表 4-1 45°C における各モデルのフィッティングパラメータ	81
表 4-2 45°C における実測値とフィッティング値の最大差、最小差	81
表 4-3 入り口、中央、出口セルにおける決定係数	81
表 4-4 入り口、中央、出口セルにおける内部抵抗	81
表 4-5 各カソードガスにおけるフィッティングパラメータ	83
表 4-6 各ファン動作温度の提案式(3.28)におけるフィッティングパラメータ	88
表 4-7 各ファン動作温度の KIM モデル(式.(2.5))におけるフィッティングパラメータ	88
表 5-1 シミュレーションにおける各材料の伝導度	91
表 6-1 各測定条件	110
表 6-2 各流量条件におけるフィッティングパラメータ	112
表 7-1 各状態における空気ストイキ比、ファン動作温度	118
表 8-1 本研究の課題	134

第1章 緒言

1.1 地球温暖化防止と水素社会

1.1.1 世界のエネルギー動向と地球温暖化

産業革命以後、人類は化石燃料由来のエネルギーを大量に消費することで発展してきた。IEA World Energy Outlook [1]によれば、今後も世界平均 GDP は年率 3.5%成長する。つまり現在の 2.5 倍の早さで発展すると想定されている。成長著しいのは非 OECD 諸国であり、これらの国々における化石燃料需要は年々増加している。化石燃料のひとつである石油の世界需要は 2015 年 1.7%増(94.4 百万バレル/日)と前年を上回った。また、石油価格指標の一つである West Texas Intermediate(WTI)価格は、2014 年の\$100/バレル前後から 2015 年にかけて急速に低下し、2016 年現在 \$ 30~50/バレルで推移している。今後も石油平均価格は 2020 年に\$80/バレル、2040 年に\$128/バレル(New Policy Scenario)[1]と従来の予測に比べ抑えられているが上昇していく。また、図 1-1 のように 2040 年に\$85/バレルとなる石油価格低下ケースについても想定している。このシナリオでは、石油輸出国機構(OPEC)による産出量増加など石油価格の低い状態が続くと仮定し推計を行っている。このまま低い石油価格が続いた場合、輸送部門における代替燃料への転換遅延やエネルギー効率の低い製品を使用し続けるといったことが予想される。このように石油は中東情勢の影響を受けるセキュリティの低いエネルギーであるため価格予測が不確実ではあるものの、今後も活用していく重要なエネルギー源[2]であるとされている。しかし、化石燃料の最も深刻な問題は、燃焼による二酸化炭素(CO₂)の排出である。CO₂ は地球温暖化の主要因とされており、気候変動枠組条約第 21 回締約国会議(COP21)[3]において、産業革命以前からの平均気温上昇を 2°C 未満に抑え、そのために今世紀後半に人為起源の温室効果ガスを正味ゼロとすることを目標として定めている。この世界目標達成のために、日本においては COP21 約束草案の中で 2030 年までに 2013 年比 26%削減(10 億 4200 万 t-CO₂)を掲げている[4]。図 1-2 のようにエネルギーミックスとしては総発電電力量 10650 億 kWh のうち、再生可能エネルギー 22~24% (太陽光 31%、風力 7%、地熱 4%、水力 40%、バイオマス 18%)、原子力 22~20%、石炭 26%、LNG 27%、石油 3%といった内訳である。2014 年度の年間発電量のうち、水力発電を含む再生可能エネルギーは 12.6%[5]と目標に対して低く、2030 年に向けてさらなる発展が期待されている。再生可能エネルギーとは、エネルギー源として永続的に利用できると認められるものであり、太陽光、風力、水力、地熱、太陽熱、大気中の熱その他の自然界に存する熱、バイオマスが規定されている。また、廃棄物発電や黒液・廃材などの「リサイクル型エネルギー」、それにコージェネレーションなどの「従来型エネルギーの新利用」を加えたものを新エネルギーと呼ぶ。また新エネルギーは消費地に設置される分散型エネルギーとして位置付けられた[6]。図 1-3 に示すエネルギー基本計画の中で、再生可能エネ

ルギーは、安定供給面、コスト面で様々な課題が存在するが、温室効果ガスを排出せず、国内で生産できることから、エネルギー安全保障にも寄与できる有望かつ多様で、重要な低炭素の国産エネルギー源であると言及されている。また、新エネルギーは最終需要家がエネルギーを利用する形態である二次エネルギーとして触れられ、電気、熱利用コージェネレーションのほか、水素をエネルギーとして利用する水素社会についての新たなエネルギー社会として包括的な検討を進めるべき時期に差し掛かっているとしている[2]。

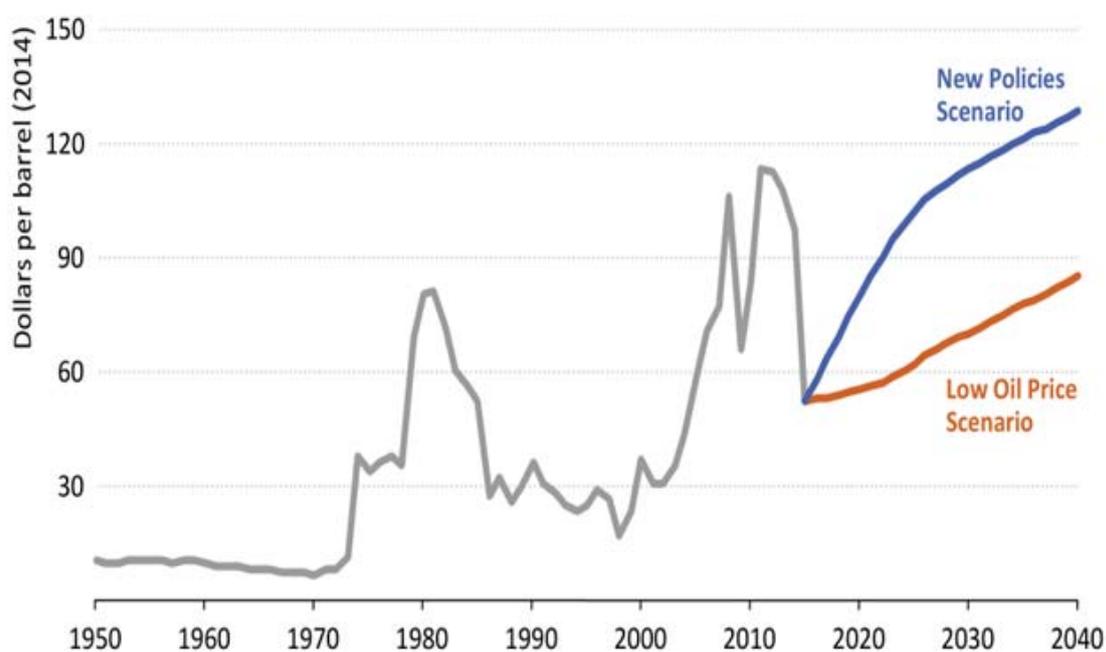


図 1-1 New policieies scenario および Low oil price scenario における IEA 石油価格[1]

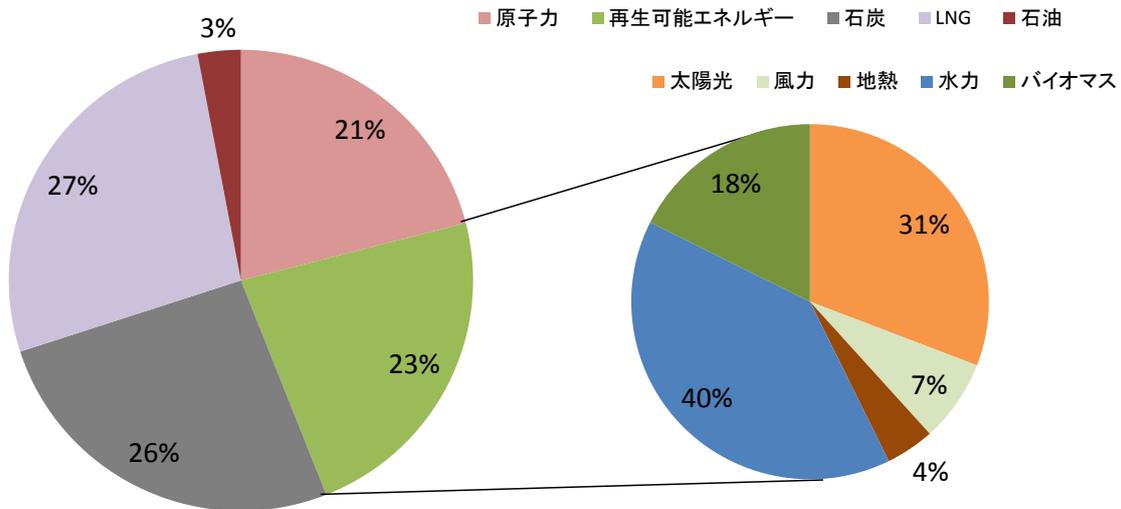


図 1-2 2030 年における日本のエネルギーミックス(COP21 約束草案[4]をもとに作成)

基本的視点 ○エネルギー政策の基本は、エネルギーセキュリティの確保、温暖化対策の強化、効率的な供給。 ○新たな視点として、環境エネルギー分野での経済成長の実現とエネルギー産業構造の改革を追求。 ○2030年に向けて、エネルギー需給構造を抜本的に改革。	
2030年に向けた目標 ○エネルギー自給率及び化石燃料の自主開発比率を倍増 自主エネルギー比率(※)を38%→70%程度まで向上 ※従来のエネルギー自給率(国産+原子力)に加え、自主開発資源も勘案 ○ゼロ・エミッション電源比率を34%→約70%に引き上げ ○「暮らし」(家庭部門)のCO2を半減 ○産業部門において、世界最高のエネルギー利用効率の維持・強化 ○エネルギー製品等の国際市場で我が国企業群がトップクラスのシェア獲得	
目標実現のための取組	
資源確保・安定供給強化への総合的取組 ○エネルギーの安定供給確保 ・官民一体となった資源国との戦略的関係の深化 ・リスクマネー供給支援の強化 ・リサイクル、代替材料開発も加味した戦略レアメタルの自給率50%以上 ○国内における石油製品サプライチェーンの維持 ○緊急時対応の強化	低炭素型成長を可能とするエネルギー需要構造の実現 ○産業部門 ・世界最高水準の省エネ水準の維持・強化 ・天然ガス利用の促進 ○家庭部門・業務部門 ・ZEB・ZEH(ネット・ゼロエネ・ビル・ハウス)を2030年までに新築平均で実現 ・高効率照明(LED等)を、2020年にフローで100%、2030年にストックで100% ○運輸部門 ・新車販売に占める次世代車の割合を2020年最大50%、2030年最大70% ○横断的取組 ・都市や街区レベルでのエネルギー利用最適化 等
自立かつ環境調和的なエネルギー供給構造の実現 ○原子力発電の推進 ・2020年までに新増設9基(設備利用率約85%) ・2030年までに少なくとも14基以上の新増設(設備利用率約90%) ・電源立地交付金制度の改善、核燃料サイクルの確立 ○再生可能エネルギーの導入拡大 ・固定価格買取制度の拡充 ・技術開発、系統安定化対策、規制緩和の推進 ○化石燃料の高度利用 ・石炭火力の新増設・更新は、原則IGCC並みのCO2排出量に抑制 ・今後計画される石炭火力新増設はCCSready ・商用化を前提に、2030年までに石炭火力へのCCS導入を検討 ○電力・ガスの供給システム強化 ・2020年代早期に世界最先端の次世代型送配電ネットワークを構築 ・卸電力市場取引実績を3年以内に2倍程度に引き上げ	新たなエネルギー社会の実現 ○スマートグリッドやスマートコミュニティの実現に向け、国内外での実証、戦略的な標準化等を推進、特区的対応の検討(環境未来都市の実現) ○スマートメーター・エネルギーマネジメントシステムを、2020年代早期に、原則全需要家へ導入 ○水素エネルギー社会の実現
革新的なエネルギー技術の開発・普及拡大 ○革新技术開発前倒し、新たなエネルギー革新技术ロードマップの策定	エネルギー・環境分野における国際展開の推進 ○官民一体となった海外展開支援体制の整備 ○世界の温室効果ガス削減への貢献を適切に評価する新たなメカニズムの構築
エネルギー国際協力の強化	エネルギー産業構造の改革に向けて
国民との相互理解 人材の育成	地方公共団体、事業者、非営利組織の役割分担、 国民の努力等

図 1-3 エネルギー基本計画の概要[2]

1.1.2 水素

新エネルギーの中でも水素は、さまざまなエネルギーから生産できるクリーンなエネルギーであるという資源の確保、エネルギーセキュリティが高いという特徴を有する。

表 1-1 のように、化学プラントからの副生水素、化石燃料改質、水、バイオマス、光触媒を介した太陽光などから水素は作ることが出来る。1920 年代には初めて商業化技術によって水から純水素を製造し、1960 年代には化石燃料由来の産業生産にシフトした[7]。水素製造における環境性は高く、燃焼を伴う CO₂ 排出をする化石燃料改質を除くと、排出ゼロ(正味も含む)あるいは電気エネルギー分である。また、将来的には CO₂ 回収・貯蔵(Carbon dioxide Capture and Storage: CCS)することで、製造時には CO₂ 排出をゼロとすることが理論的には可能である。副生水素以外は、他の 2 次エネルギーに比べ経済性に課題がある。例えば、図 1-4 に示すように水電解による水素製造では大量の電気を用いる。そのため、初期コストが格段に安価になったとしても電力価格によって水素価格が決まってしまう。したがって、オフピーク時の電力を使用することで価格を抑えることが検討されている。さまざまなエネルギーから生産できるという点では、電気も同様なエネルギーと言えるが、水素はより貯蔵・輸送性に優れる。図 1-5 に示すように、水素は長期保管、大電力の保存に適している。一方、電気はその保存形態によるが総じて短期保管、10 MW 以下の電力に適している。長期における貯蔵が容易な点は 2014 年に策定されたエネルギー基本計画[2]の 3E+S(エネルギーの安定供給、経済効率性の向上、環境への適合、安全性)と合致している。また、資源のリサイクル性や燃料としての利用段階でクリーンなエネルギーであること、エネルギーの脱炭素化といった面からも優れている。つまり、水素の本格的な利用は電気と同じかそれ以上に我々の生活や社会を大きく変える可能性を有しており[8]、水素を用いたエネルギー製造、利用システムである水素社会は 20 世紀後半から議論されている。1975 年には製造から利用に至るまでの水素利用システムを水素経済(Hydrogen Economy) と Bockris[9]により提唱されている。この中で、特に輸送貯蔵可能な燃料として水素に着目し、太陽エネルギーからの水素製造を究極的な姿として描いている。図 1-6 に示すように従来のエネルギーシステムは産業、輸送、民生の各部門に電気、熱、ガソリン燃料などの異なるエネルギー供給が行われてきた。そのため、化石燃料に大きく依存し、各エネルギー供給への供給拠点が必要であった。水素は将来想定される低炭素社会の中で異なるエネルギー供給へのつながりを持つことが出来る重要な役割を担っている[10]。

表 1-1 水素のエネルギーセキュリティ

	1次エネルギー源	環境性	経済性
副生水素	塩水、天然ガスエチレン	追加的なCO ₂ 排出なし	副次的に生産されるため経済的
化石燃料改質	石油、天然ガス	燃料中に含まれる炭素分のCO ₂ が排出される	比較的安価
水電解	水	製造時のエネルギーによって排出量が変わる	改質に比べると高コスト
バイオマス	バイオマスガス	バイオマス由来であるためゼロとみなす	高コストが普及への課題
光触媒水分解	太陽光	排出されない	基礎研究段階

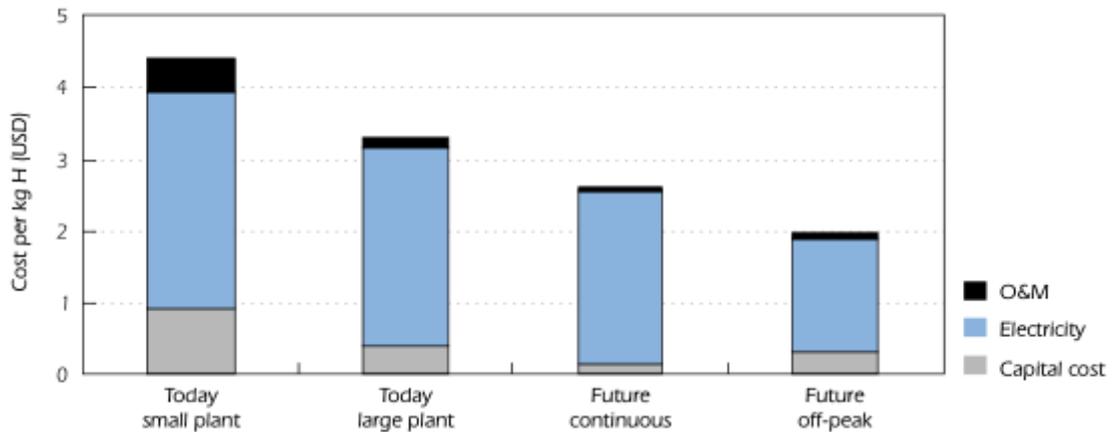


図 1-4 水電解水素製造における将来コストポテンシャル[7]

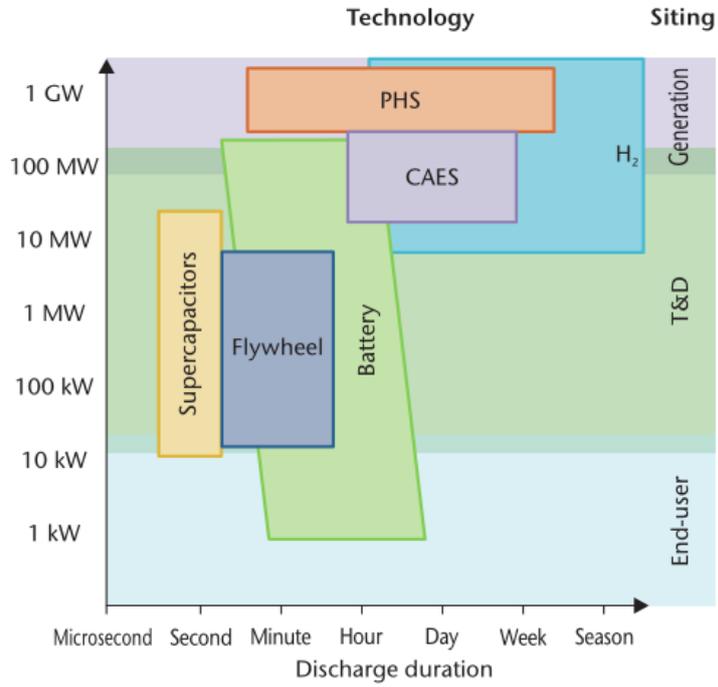


図 1-5 水素とほかのアプリケーションにおける最適放電および電力量[10]

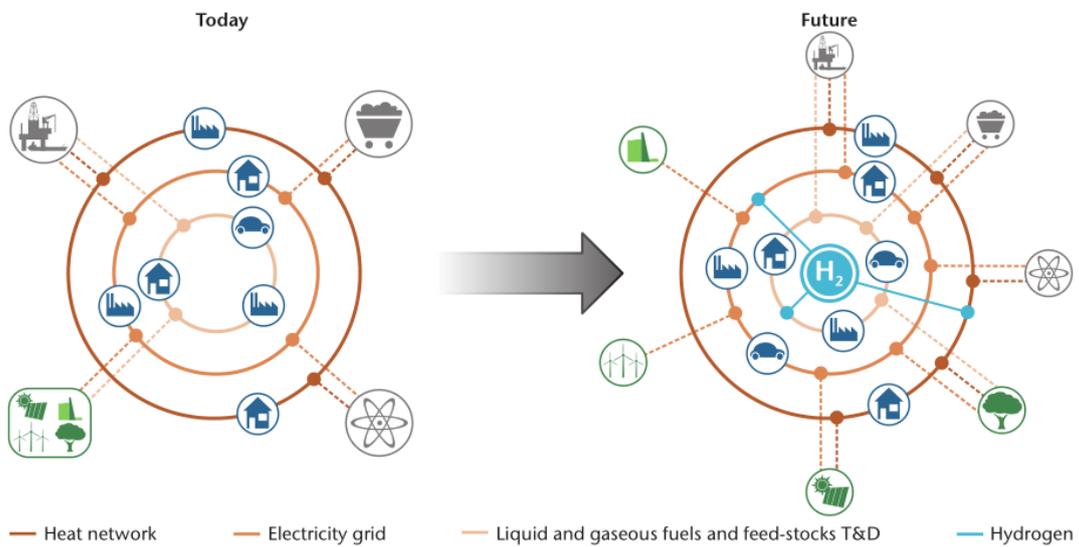


図 1-6 従来のエネルギーシステムと将来の低炭素システムとの比較[10]

1.1.3 日本における水素社会

日本においては 1974 年のサンシャイン計画[11]において水素製造や利用技術に対する研究開発が行われ、太陽光、風力、地熱、石炭などとともに、次世代のエネルギーシステムを担う技術として注目されてきた。その後のムーンライト計画[11]では燃料電池技術の開発が進み、ニューサンシャイン計画の一環として水素利用国際クリーンエネルギーシステム技術研究開発(WE-NET) [12]が行われ、燃料電池の研究開発の加速的推進と水素安全利用等の基盤技術が開発された。特に、図 1-7 のような水素を二次エネルギーとする再生可能エネルギー供給利用ネットワークが構想され、水素供給ステーションが初めて導入された。水素・燃料電池実証プロジェクト(Japan Hydrogen & Fuel Cell Demonstration Project: JHFC) プロジェクト[13]は、燃料電池自動車等実証研究と水素インフラ等実証研究といった自動車に特化したものがあり、これによって世界初の燃料電池自動車(Fuel Cell Vehicle: FCV) のリース販売による導入が始まった。また、現在も一般社団法人水素供給利用技術協会(HySUT)[14]は、水素エネルギーの供給および利用に関する技術開発、調査研究および普及啓発等を総合的に行っている。2014 年 12 月には FCV がリースではなく一般販売された[15]。この一般販売、今後の普及に向け、FCV への導入支援策として補助金や水素ステーションの規制見直しが行われた。2016 年 4 月現在、91 箇所の水素ステーションが営業、計画されている。そして、図 1-8 に示すように 2030 年に FCV 65 万台、ステーション 720 箇所に普及させることを初期目標にしている[16]。そのほか、日本においては図 1-9 に示すように、水素発電などの発電用燃料、船や飛行機などの輸送燃料として実証研究が行われており、水素への期待が高まっている。

日本においては前述の特徴に加え、水素関連の市場規模が日本国内に限っても 2050 年に 8 兆円程度、日本の水素関連特許の出願件数は世界 1 位という産業振興の面からも優れることから導入を推進している[17]。エネルギー基本計画[2]においては、水素社会実現に向けた利活用の推進として、家庭用燃料電池コジェネレーションシステム(エネファーム)や燃料電池自動車の普及、導入拡大に向けた施策、環境整備などが明記されている。

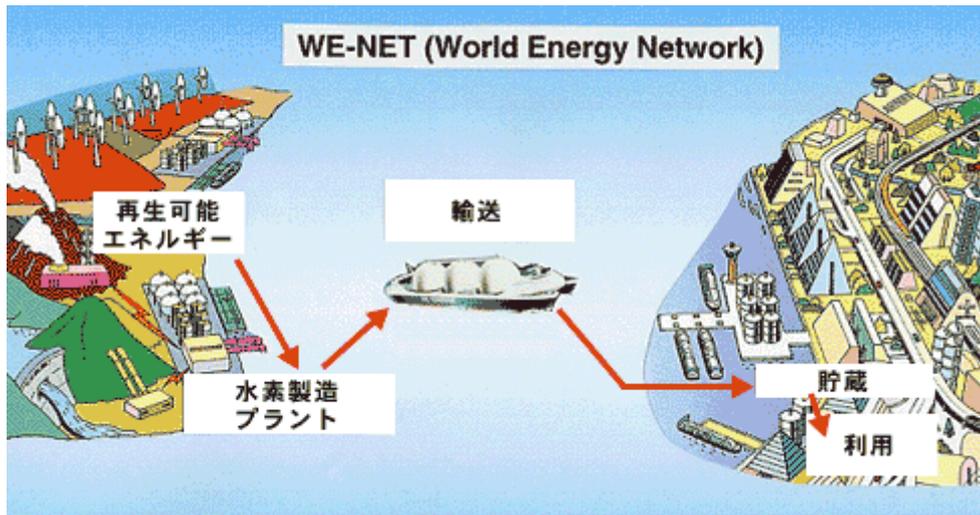


図 1-7 WE-NET における水素エネルギーネットワーク[12]

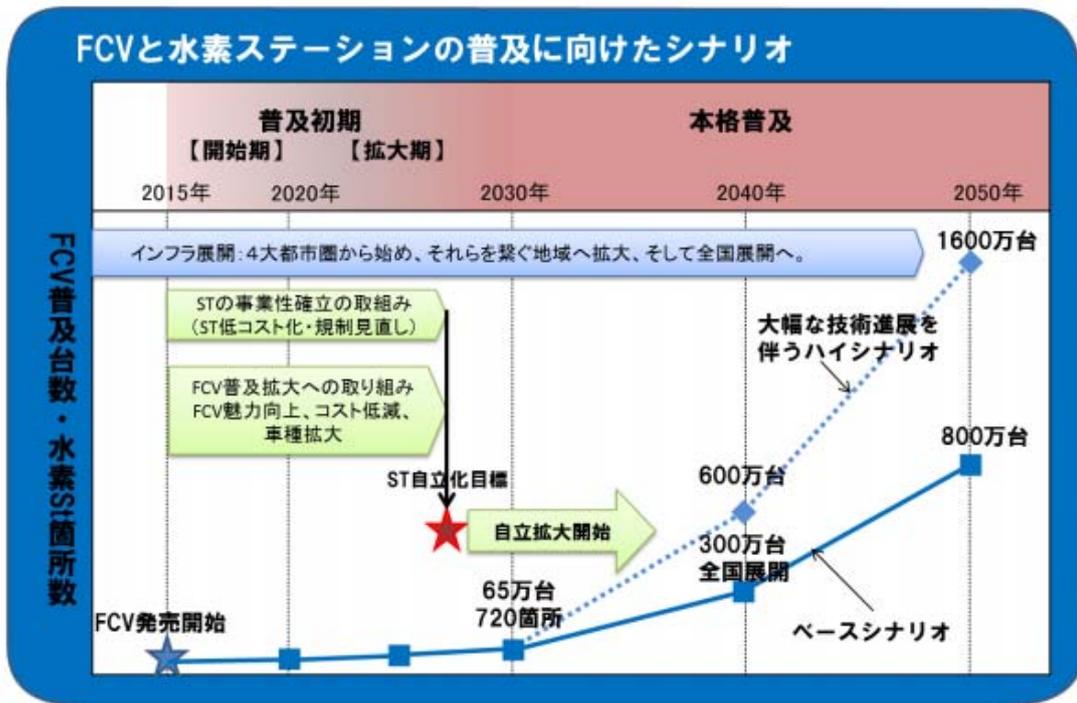


図 1-8 日本における FCV と水素ステーションの普及に向けたシナリオ[16]



図 1-9 水素利活用技術の適用可能性[18]

1.2 燃料電池

1.2.1 背景、種類

燃料電池は、水素と酸素の電気化学反応により電力を発生させる発電装置である。近年注目されているが、1839年にグローブ卿が作動原理を発見した古くからの歴史がある。一般的に燃料電池が広く知れ渡ったのは1960年代のアポロ計画におけるスペースシャトルの電源として燃料電池(アルカリ形)が使われたためである。

化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換するため、従来の内燃機関に比べ高効率であるという特徴を有する。また、従来の火力発電などの集中型発電は規模が大きくなるほど効率は高くなるが、燃料電池は小型、大型どちらのシステムも同等の効率を示す。さらに、電気と熱のエネルギー効率である総合効率は、現在商用化されているシステムにおいて95%[17]と非常に高い。そのため、世界規模の環境問題である地球温暖化を解決する分散型電源の一つとして期待されている。表 1-2 のように燃料電池は使用されている電解質の種類によってアルカリ形燃料電池(Alkaline Fuel Cell: AFC)、リン酸形燃料電池(Phosphoric Acid Fuel Cell: PAFC)、熔融炭酸塩形燃料電池(Molten Carbonate Fuel Cell: MCFC)、固体酸化物形燃料電池(Solid Oxide Fuel Cell: SOFC)、固体高分子形燃料電池 (Proton Exchange Membrane Fuel Cell: PEMFC)の5つに分類される。このうち、本研究においてPEMFCを用いている。以下に、その特徴を示す。

PEMFCは、パースルオロスルホン酸系のイオン交換膜を電解質とし、この膜の両側に白金の超微粒子を担持したカーボンブラックからなる電極触媒層とカーボン繊維からなるガス拡散層から構成される電極部を接合している。低温型に分類され、可搬用、自動車用電源や定置用小型(家庭用)電源への適用を目的に技術開発が進められている。また燃料として用いられる水素は天然ガス、メタノール、灯油、LPG等を改質することにより作られている。他の燃料電池に比べ、電解質に高分子膜を使用しているためPAFCで発生するような電解質の流失がないこと、作動温度が低いため起動停止が容易であること、COによる被毒を有する燃料極触媒が必要なこと、加湿量が多すぎると反応ガスがスムーズでなくなり性能が低下するが少なすぎると電解質膜の水分量が低下し性能が低下するため、システムの水分乖離が重要となることがある。また、表 1-2、表 1-3 に示すように比較的動作温度が低く、小型軽量化が可能で起動停止が早いといった特徴を持つため、家庭用コジェネレーションシステムとしては商用化され、また燃料電池自動車(Fuel Cell Vehicle :FCV)においても利用され、さらに携行用など多用途に展開できる点から、研究開発が進められている。

表 1-2 燃料電池の種類

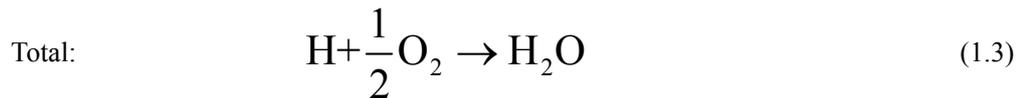
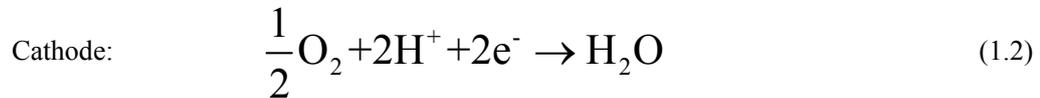
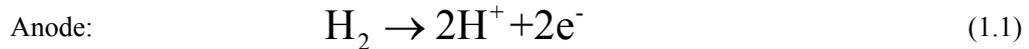
名称	電解質	動作温度	用途
アルカリ (AFC)	水酸化カリウム(KOH)水溶液	常温-120°C	宇宙開発
リン酸 (PAFC)	五酸化リン(P ₂ O ₅)が水和してできる酸(P ₂ O ₅ ·nH ₂ O)	200°C 程度	コジェネレーションシステム
固体高分子 (PEFC)	パーフルオロスルホン酸系のイオン交換膜	常温-120°C	車載、家庭用コジェネレーションシステム
熔融炭酸塩 (MCFC)	アルカリ金属炭酸塩	700°C 程度	大規模発電
固体酸化物 (SOFC)	酸化物セラミックス	1000°C 程度	家庭用・業務用コジェネレーションシステム、大規模発電

表 1-3 各燃料電池の容量、効率、コスト、動作時間、開発段階[10]

Application	Power or capacity	Efficiency *	Initial investment cost	Life time	Maturity
Alkaline FC	Up to 250 kW	~50% (HHV)	USD 200-700/kW	5 000-8 000 hours	Early market
PEMFC stationary	0.5-400 kW	32%-49% (HHV)	USD 3 000-4 000/kW	~60 000 hours	Early market
PEMFC mobile	80-100 kW	Up to 60% (HHV)	USD ~500/kW	<5 000 hours	Early market
SOFC	Up to 200 kW	50%-70% (HHV)	USD 3 000-4 000/kW	Up to 90 000 hours	Demonstration
PAFC	Up to 11 MW	30%-40% (HHV)	USD 4 000-5 000/kW	30 000-60 000 hours	Mature
MCFC	KW to several MW	More than 60% (HHV)	USD 4 000-6 000/kW	20 000-30 000 hours	Early market

1.2.2 原理

燃料電池は、燃料である水素と酸化剤である酸素を外部から供給し、電気化学反応によって発電を行う装置である。PEMFCの最小の発電単位であるセルは、水素を供給する電極を燃料極(アノード: Anode)、酸素または空気を供給する電極を空気極(カソード: Cathode)、それに挟まれた電解質膜である固体高分子膜、さらに両端を電氣的に接合するための電極で構成される。アノードとカソード、高分子膜の間に式(1.1)から(1.3)の電気化学反応が行なわれ電気エネルギーを取り出すことができる。



アノードに水素が供給されると、電極、触媒、ガスが接触する三相界面においてプロトン(H^+)と電子(e^-)が生じる。プロトンは電解質中を、電子は外部回路を通過してそれぞれカソードへ向かう。カソードの三相界面上で、酸素と外部回路を通過してきた電子およびプロトンが結合し水を生成する。この外部回路を流れる電子(電流)から電力を取り出すことができる。水素・酸素燃料電池反応は発熱反応であり、反応によって取り出される全エネルギーは、燃料電池に供給されるエネルギーであるエンタルピー変化 ΔH (標準状態 $\Delta H_0 = 285.8\text{kJ/mol}$) で表される。一方、電気へ変換可能なエネルギーは、Gibbs(ギブス)の自由エネルギー ΔG であり、標準状態においては水素 1mol あたり 237.2 kJ となる。残りのエネルギー $T\Delta S$ は熱エネルギーとして取り出すことができる。 T は絶対温度、 S はエントロピーである。この関係を表すと式(1.4)となり、燃料電池の理論最大効率 η_{th} は式(1.5)となり、標準状態において理論最大効率は 83%(HHV)となる。

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \quad (1.4)$$

$$\eta_{th} = \frac{\Delta G}{\Delta H} \quad (1.5)$$

また、標準状態において水素 1mol の分子数はアボガドロ数 N に等しく、水素 1 mol から n 倍の電子が外部回路に流れたとすると、その電気量は nNe となるので取り出すことができる電流量は $I = nF$ となる。したがって、理論的な起電力 E は式(1.6)で示され、1.23 V となる。

$$E_{th} = -\frac{\Delta G}{2F} \quad (1.6)$$

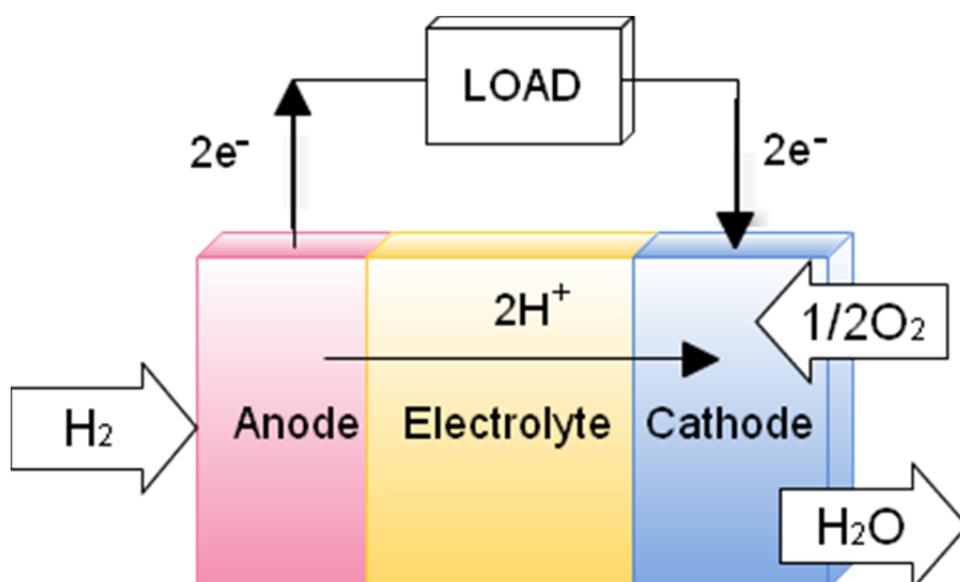


図 1-10 燃料電池の発電原理図

1.2.3 セルスタック

図 1-11 に燃料電池セル、スタックの構造を示す。燃料電池の発電最小単位をセルと呼ぶ。セルは、電解質膜や触媒、電極、ガス拡散層(Gas diffusion layer: GDL)、セパレータ(バイポーラプレート)から構成される。このうち電解質膜、燃料極、空気極の 3 者を一体化したものを膜電極接合体(Membrane Electrode Assembly: MEA)と呼ばれる。電解質膜は、機械的、温度、化学的要因により劣化する。機械的な劣化は MEA の初期不良あるいは欠陥により生じる穴やクラック、裂け目、ピンホールによって引き起こされる。局所的には流入側カソード部分で起こりやすく、その部分では過度に、そして不均一に機械的なストレスが掛かり、穴や裂け目が生じやすい[19]。触媒は長期的な運用における Pt 触媒に対しては数多く評価されており、純粋な Pt 触媒は不純物によって汚染させることが知られている。汚染物とは供給反応物もしくはシステムに由来するものである。材料の性能としては高湿度、低 pH など過酷な運転状態下での検討が必要であるが不十分な状況にある[20]。GDL はカーボンブラック粉末と疎水化剤からなるマクロ多孔炭素繊維紙やカーボンクロス基材を含む二層炭素質多孔体である。これまでは耐久性より PEMFC の性能向上のための材料およびデザインについての研究がなされてきた。しかし、GDL 表面の親水性増加が 11,000 時間経過時[21]や氷点下起動時[22]に観測されている。バイポーラプレートは燃料流路と電気化学的反応によって発生した電流を通過するものである。機能としては高い電気伝導性、低いガス透過性、高耐食性、十分な強度、低熱抵抗、低コストなどが求められている。材料としてはグラファイトなどに加えて、金属、炭素ベースの複合材料、導電性グラファイトを含む高分子材料などが用いられる。高耐食性、耐薬品性、低い密度、高い電気伝導性、熱伝導性はグラファイトやグラファイト複合物が有効である。しかし、製造時などにおける衝撃および振動下の耐久性や水素透過性が金属に比べ劣る。Al、Ti および Ni などの合金は、優れた電気伝導性、機械的特性に優れ、かつ低コストという特徴を持つ。しかし、バイポーラプレートと GDL の間の接触抵抗が存在し、内部抵抗増加を招く。

一つのセルから得られる電圧は理論電圧に比べ低く、通常 0.6-0.8V[23]程度である。また、化学反応量が電流に比例するため高い出力を得るためにはセルの面積を大きくすることが必要である。高い電圧、そして出力を得るためにセルを積層しこれをスタックと呼ぶ。スタックは燃料電池システムの核となる重要な構成要素である。前述の劣化要因を踏まえ、セルの積層数やセル面積はシステムの仕様や電池特性、機械的強度等を加味して設計される。スタックは組みあがると直方体の形状であるが、その中では化学変化、物質の相互作用、電気伝熱などに関する物理現象が複雑に組み合わさっている。スタック構造としては、前述の最小単位である MEA をセパレータにより両側から挟み込むことにより、セルを構成し積層している。

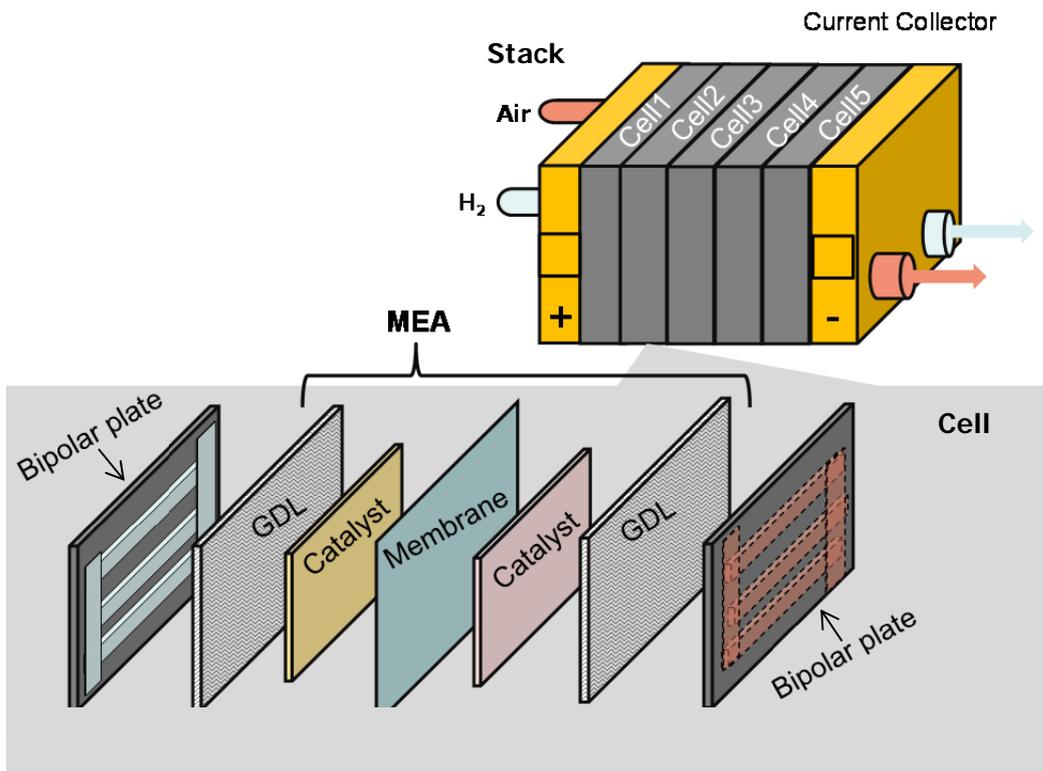


図 1-11 セルスタック構成図

1.2.4 燃料電池システム

燃料電池は、前述のような特徴を持つことから多用途利用が期待されている。実用化された燃料電池システムの一つに、燃料電池自動車(FCV, FCEV)がある。FCVは燃料電池で発電しながら走行する電気自動車である。一般的な電気自動車と違うのは、充電する必要がなく、ガソリン自動車などの内燃機関自動車と同様に燃料を補給し走行できるため、内燃機関自動車などと同じ使い方となる。このため、内燃機関自動車を代替するものとして注目されている。特徴としては、エネルギー効率が低いことや走行時の排出がなくクリーンであること、燃料である水素製造方法が多様であるため、エネルギーセキュリティに優れること、騒音が低く静粛性に優れることが挙げられる。実際に、多くの研究[24][25]においてFCVの燃費は従来のガソリン自動車に比べ向上することが示され、FCVの大規模実証試験 JHFC[13]では最大2倍程度の向上が見られる。現状、走行距離は内燃機関自動車と同程度であるが、水素タンクの高圧化やその他ストレージ技術の進化によってそれ以上の走行距離も期待できる。また、補給時間も同程度で済むことから、電気自動車に比べて長距離を走行することに有利である[26]。構造としては、燃料電池スタックはもちろん、バッテリー、高圧の水素あるいは化石燃料を貯蔵する燃料タンク、燃料電池やモーターを制御する装置、モーターである。燃料搭載方法としては、車上でガソリンやメタノールなどの化石燃料を改質して使用する方式と水素を直接搭載する方式がある。ガソリン改質FCVは、既存のガソリンスタンドが使えるというインフラ面で優位であるが、ガソリンを改質する技術がまだ未成熟である。水素スタンドから供給する場合、技術的に可能であるが水素を供給するインフラがまだ少ないといった欠点があり、補助金による導入支援と規制緩和などといった方策が行われている。表 1-4 に従来車とのコスト比較を、表 1-5 にFCVのコスト内訳を示す。現状、FCVは\$60,000と従来車に比べコストは2倍程度となっている。特に燃料電池スタックの価格が大部分を占めており、コスト削減が求められている。2050年には\$33,400とハイブリッド車と同程度になると予想されており、そのためには現在の信頼性を保ちつつ、スタックコストを\$40/kWと1/10にしなければならない。

また、米国においては燃料電池式のフォークリフトの導入が盛んに行われている。食品流通および流通施設における導入が多く、これまでに図 1-12 のように4,000台程度導入されている。フォークリフトにおける燃料電池化の利点は、電池式に比べ充電時間の短縮や充電スペースの小型化、出力低下の減少などが挙げられる。日本におけるフォークリフトの導入はJHFCプロジェクト[13]によるもののみであり、今後の普及が期待されている。

表 1-4 燃料電池車と従来車の比較[27]

	Today	2030	2050	Unit
Conventional ICE gasoline	28 600	30 900	32 300	USD
Conventional ICE diesel	29 300	31 700	33 100	USD
Hybrid gasoline	30 000	31 800	33 200	USD
Plug-in hybrid gasoline	32 400	33 200	34 400	USD
BEV (150 km)	35 400	32 800	34 000	USD
FCEV	60 000	33 600	33 400	USD

表 1-5 燃料電池自動車のコスト内訳[10]

	Today	2030	2050	Unit
FCEV costs	60 000	33 600	33 400	USD
Thereof				
Glider*	23 100	24 100	25 600	USD
Fuel cell system**	30 200	4 300	3 200	USD
H ₂ tank**	4 300	3 100	2 800	USD
Battery**	600	460	260	USD
Electric motor and power control**	1 800	1 600	1 400	USD
Specific costs				
Fuel cell system (80 kW)	380	54	40	USD/kW
H ₂ tank (6.5 kg H ₂)	20	14	13	USD/kWh
Battery (1.3 kWh)	460	350	200	USD/kWh
Other parameters				
Tested fuel economy	1.0	0.8	0.6	Kg H ₂ /100 km
Life time	12	12	12	Years

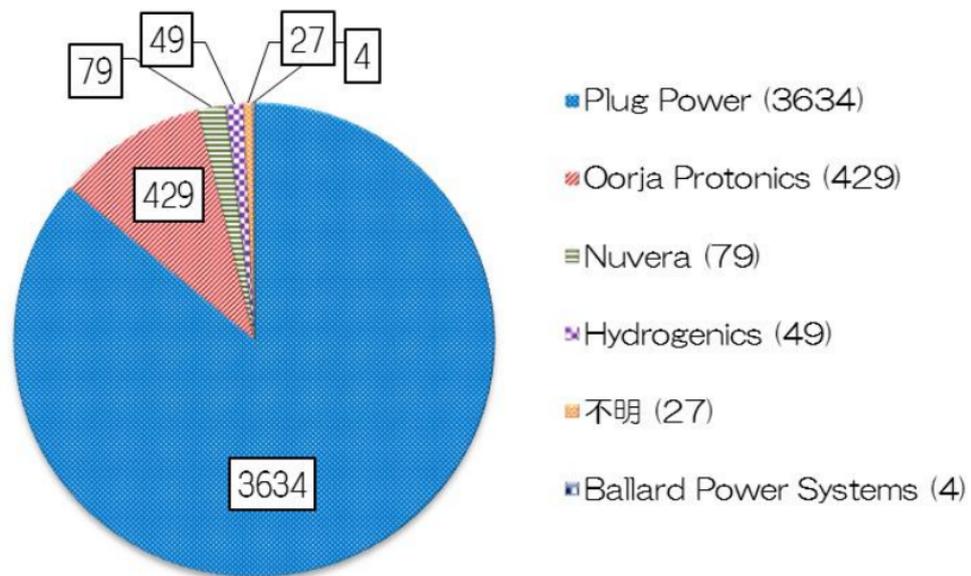


図 1-12 燃料電池フォークリフト導入台数[28]

そして、FCV やフォークリフトといった移動体の動力源としてだけでなく、コジェネレーションシステムや非常用電源といった定置用システムにおいても実用化されている。燃料電池は発電時に熱を排出する。その熱も利用した場合の効率を総合効率と呼び、総合効率は90%を超える。図 1-13 に示すように、米国において容量当たりの導入量の8割以上は定置用が占める。米国においては特に産業用における平常時高効率電源および非常時電源としての役割が大きく、業務用の大型コジェネレーションシステムあるいは後述する通信設備の小規模電源として導入されている。日本においては、家庭用コジェネレーションシステムに対してエネファームという統一名称を定め、2014 年末時点までに 12 万台程度[29]導入され、より一層の普及が期待されている。図 1-14 に示すように、導入にしたがい量産効果が起き、システム価格が補助金の減少以上に低下している。一般的には、燃料電池スタックのほかに、発電した直流電力を交流に変換するインバータを含むパワーコンディショナや都市ガスを水素に変換する改質器、排熱を回収する排熱回収装置、貯湯槽、バックアップ用のバーナーが用いられる。

非常用電源としては、米国や日本などにおいて交通信号用[30][31]や通信設備の非常用電源が導入されている。これまで交通信号などにおける非常用電源はディーゼルエンジンやバッテリーを用いるものが多かった。近年では、図 1-15 のような燃料電池式非常用電源が一部商用化され、現在も研究開発されている。図 1-16 のようにシステムとしては燃料電池のほか、水素吸蔵合金や水素ポンプによる燃料貯蔵部とポンプなどによる空気供給部、商用電源と非常用の切り替えや制御などを行うコントロールユニットから成り立つ。ディーゼル式に比べ、排気ガスがないことや低騒音であること、設置場所の制約やメンテナンス性で優位となる可能性が大きい。また、バッテリー式と比べ質量当たりのエネルギー密度や長時間運転の向上が期待されている。燃料電池を用いた非常用電源は交通信号だけではなく、港湾、鉄道、通信といったインフラでの導入が特に米国において進んでいる。米国 Plugpower 社は鉄道事業者や通信事業向けに低電圧装置用の非常用電源を供給している[32]。

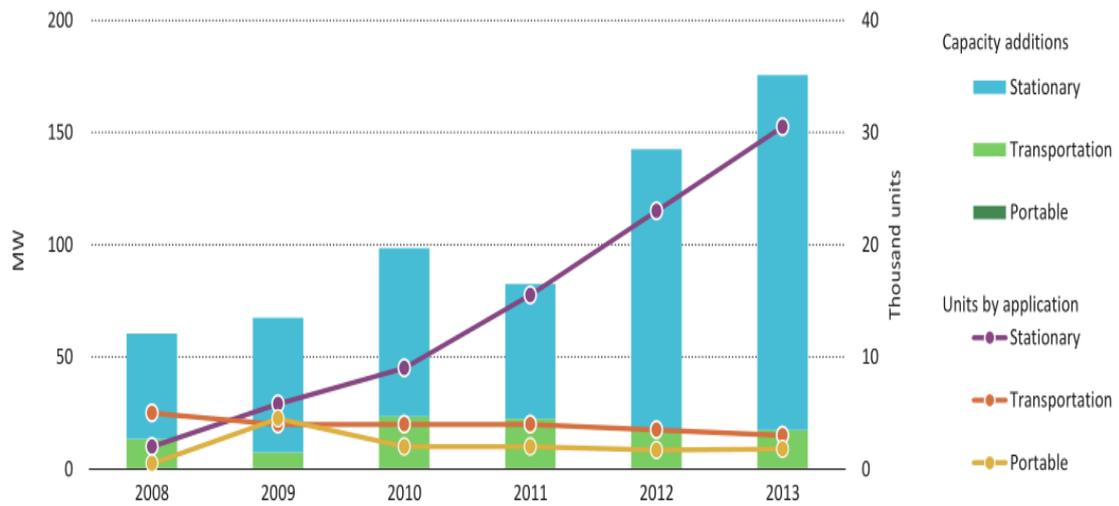


図 1-13 米国における各燃料電池の容量当たりの導入量[33]

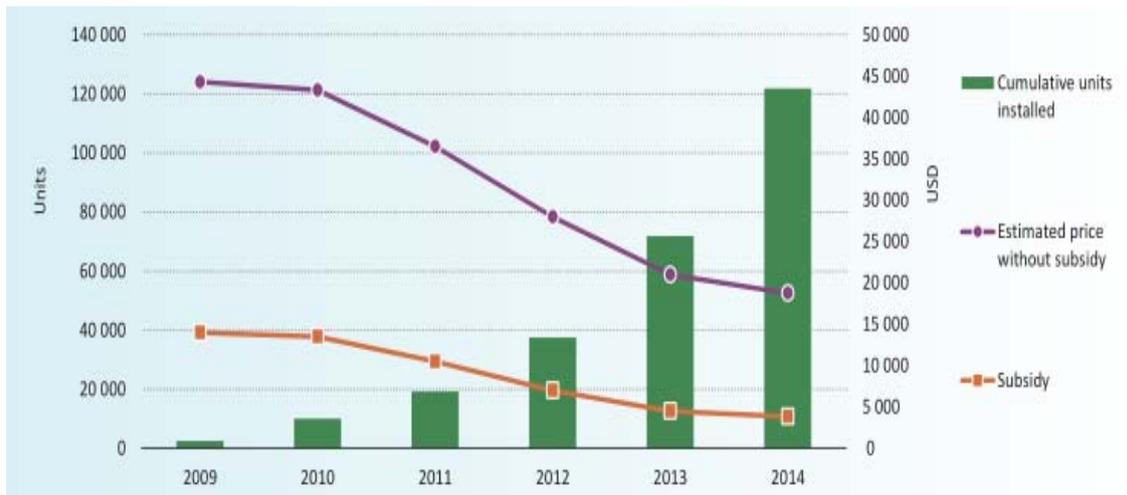


図 1-14 エネファームの累積売り上げおよび初期コスト、補助金価格推移[10]



図 1-15 交通信号および鉄道信号等の燃料電池式非常用電源[31]

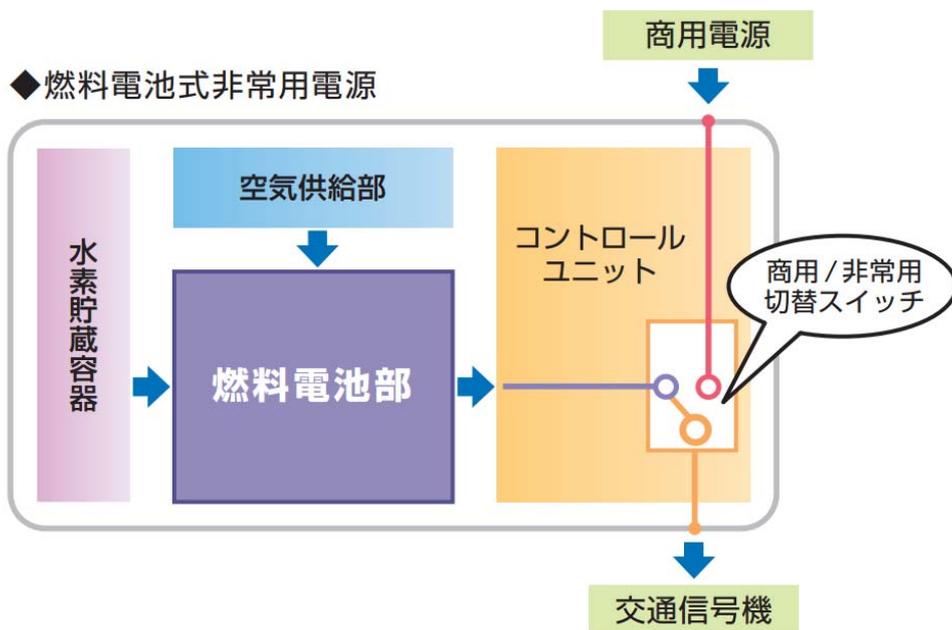


図 1-16 燃料電池式非常用電源の装置概要[31]

表 1-6 にスタック冷却方式による利点、欠点、用途について示す。前述の燃料電池自動車やコジェネレーションシステムの冷却方法が水冷であるのに対して、非常用電源や可搬式の出力が数 kW 程度の場合、空冷式を採用することが多い。これは用途として排熱を回収する必要がないことや空冷式とすることで装置やスタックの煩雑化を避けるためである。非常用や可搬式といった汎用性の高い製品については空冷式を今後も採用することが予想される。フォークリフトについては、日本において燃料電池自動車から転用しているため水冷式を、米国において非常用電源から転用しているため空冷式を採用している。

表 1-6 冷却方式による利点、欠点、用途

冷却方式	利点	欠点	用途
空冷	スタック小型化	冷却制御が難しい 効率低下	非常用、可搬式 移動体(フォークリフトなど)
水冷	冷却制御が容易	スタック煩雑化 大型化	コジェネレーションシステム、 移動体(燃料電池自動車、 フォークリフト)

1.2.5 水素社会に向けた普及課題

前述のように固体高分子形燃料電池(PEMFC)はFCVや定置用のコジェネレーションシステムおよび非常用電源として実用化されている。しかし、普及拡大に向けた課題は数多く残されている。米国の定置用燃料電池の実証試験[34]において、システムの中でスタック故障が最も多いと報告されている。米国エネルギー省(USDOE)においては、車載用5千時間、バス用2万時間、定置用4万時間と目標稼働時間と設定されている。10%の出力低下が起きた場合を寿命とすると容量にもよるが2~10 $\mu\text{V/h}$ となり、多くの研究において4万時間未満で実験を終了[35]あるいは故障によるスタック交換[36]などを行っている。特に加速試験においては10 $\mu\text{V/h}$ 以上の出力低下が起きており[37]、稼働時間の向上が課題となっている。日本においては、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)が固体高分子形燃料電池実用化推進技術開発(H22~H26年度)[38]が行い、現在も固体高分子形燃料電池利用高度化技術開発事業(H27~H31年度)[39]が行われている。これらの開発事業においてはセル目標稼働時間が示されている。しかし、現在までに目標稼働時間が達成されたと報告されておらず、極めて重要かつ深刻な課題である。また、上記事業ではセルおよび触媒などマイクロレベルでの稼働時間は掲げられているが、材料、部品レベルだけではなく、燃料電池システムレベルの信頼性向上が実用化に向けて不可欠である。システムとしての信頼性を向上させるためには、図 1-18 および図 1-19 に示す NEDO の事業およびロードマップ[40]にも記載されているようにシステム診断技術、解析手法の高度化やシミュレーション技術の向上、それらを用いた現象解明を行わなければならない。

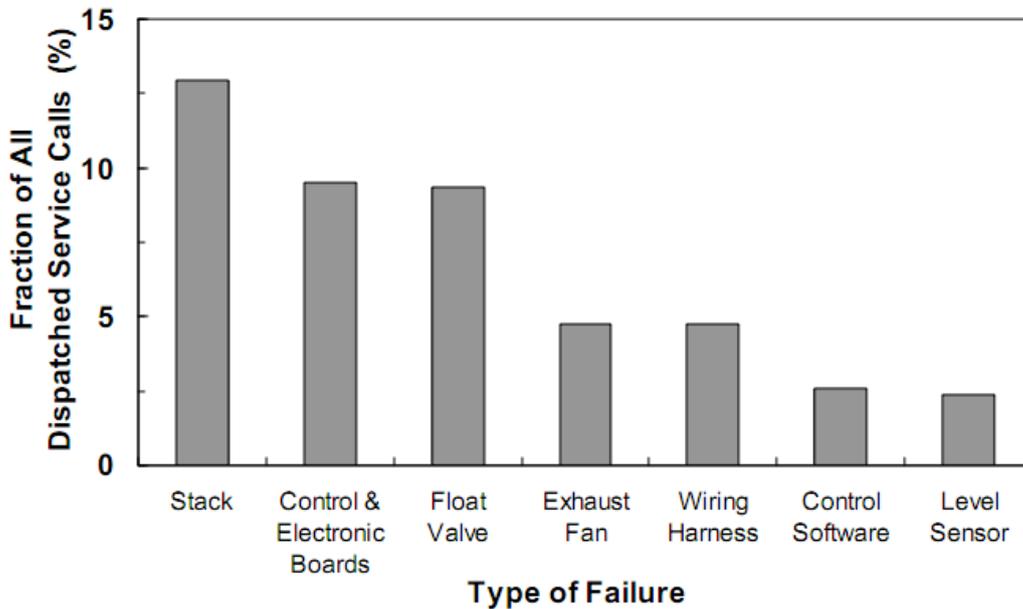


図 1-17 Plugpower 実証におけるシステム部位別故障率[34]

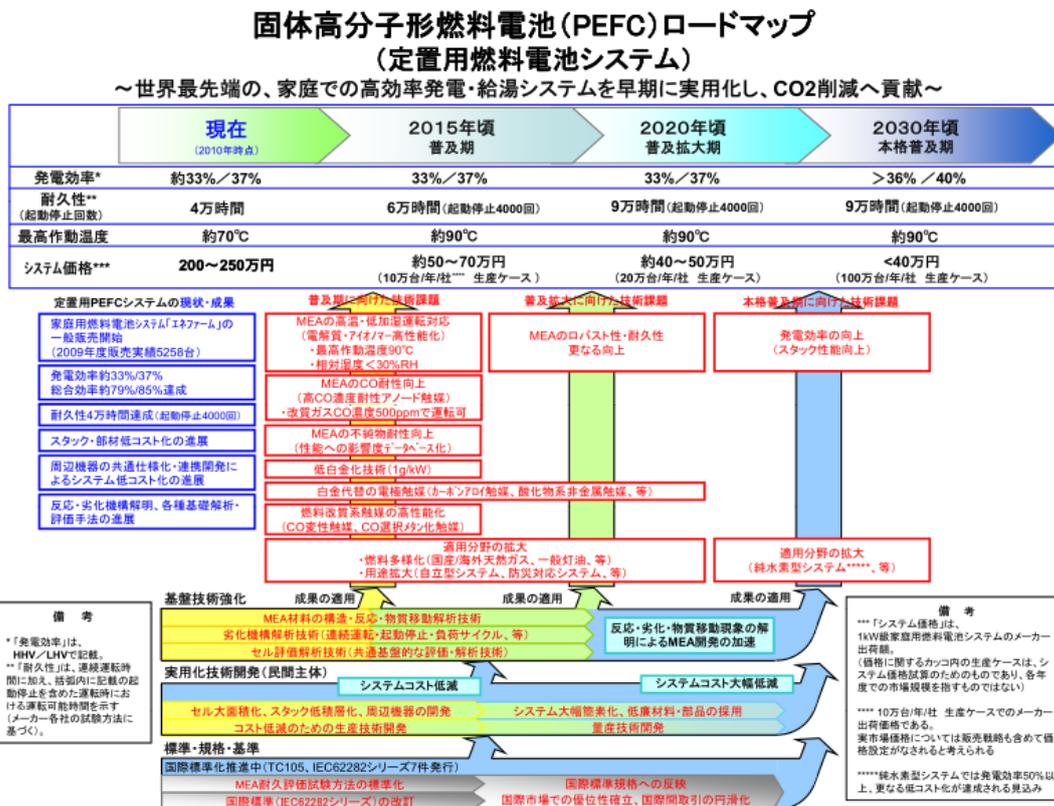


図 1-18 定置用 PEMFC のロードマップ[40]

燃料電池 本体	<p><専用設備技術></p> <p>【定置用】</p> <ul style="list-style-type: none"> ・1kW級スタック商品化(初層導入段階) ・耐久性 4万時間 ・運転温度:70℃程度 ・加温(相対湿度):100%近傍 ・スタック劣化加速試験手法提示 	<p>△ 低コスト化技術開発</p> <p>△ Vスタックのコンバクト化、簡素化</p> <p>□ 空気及び燃料中不純物の影響評価</p> <p>△ ガスケット・シール等材料全般の低コスト化</p> <p>△ 量産技術開発</p> <p>□ 耐久性:8万時間実証</p>	<p>普及期対応スタック</p> <p>△ スタック量産技術確立</p>	<p>定置用本格普及期対応スタック</p> <p>耐久性 9万時間</p> <p>最高運転速度(約90℃) 低加温対応<約30kWh</p>
スタック /セル	<p><次世代技術></p> <p>○●レベル:材料開発段階、セル、ショートスタックでの検討中心。</p> <p>○●内容:低白金担持量MEA、高濃・低加温対応MEA等新材料</p>	<p>☆△★高濃・低加温対応MEA・スタックの検討 (☆△80~90℃ ★▲90~100℃程度、<30MPa)</p> <p>▽ -40℃からの起動・停止への対応</p> <p>△▲高電流密度化によるセル数、部材使用量低減</p>	<p>高濃低加温で運転可能な高耐久性スタックの開発</p> <p>普及期、本格普及期に向けた開発</p> <p>定置用</p> <ul style="list-style-type: none"> ☆△高濃(~90℃)、常圧・低加温(<約30MPa)作動 □ 耐久性9万時間確保見込み <p>自動運用</p> <ul style="list-style-type: none"> ★▲高濃(~120℃)、常圧、加温器レスで運転可能 ■ 耐久性確保見込み ■ 耐久性 5万時間(15年)確保見込み 	<p>定置用本格普及期対応スタック</p> <p>耐久性 9万時間</p> <p>最高運転速度(約90℃) 低加温対応<約30kWh</p> <p>定置用・自動運用本格普及期には、長期的技術課題解決・区別による異なる高濃性能、低コスト化スタックが必要</p> <p>自動運用普及期</p> <p>【自動運用 普及期】</p> <ul style="list-style-type: none"> ★ 効率(定格の25%負荷) 6kWh/5kWhV ▲ スタック製造原価 <\$5千円/kWh(50万台/年 ケース) ■ 耐久性 5万時間(15年) ▲ 出力密度 2.4kW/L ★▲高濃(約100~120℃)、-40℃起動 ★▲加温器レス・水素管理レス <p>【自動運用 本格運用化目標】 (2030年燃料長期課題解決反後)</p> <ul style="list-style-type: none"> ★ 効率 6kWh/5kWhV(定格の25%負荷) ▲ スタック製造原価 <2.5千円/kWh(50万台/年 ケース) ■ 耐久性 5万時間以上(15年以上) ▼ 出力密度 >2.4kW/L ★▲対応温度約-40~120℃(加温器レス)水素圧
燃料電池 本体	<p>【自動運用】</p> <ul style="list-style-type: none"> ・スタック製造原価 数十万円/kWhレベル ・出力密度 >1.4kW/L ・耐久性 約2万時間 <p>スタックの軽量化、コンバクト化、高出力化が進展</p> <p>注 出力密度を算出する際のスタック体積には、スタックの締め付け機構まで含め、ケースは含めない。</p>	<p>▲ 低コスト化技術開発</p> <p>▲ スタックコンバクト化、簡素化</p> <p>■ 高耐久化技術開発、加速評価法開発</p> <p>● 空気及び燃料中不純物の影響評価</p> <p>● スタック・セルレベル区別メカニズム解明</p> <p>▲ ガスケット・シール等材料全般の低コスト化</p> <p>▲ 量産技術開発</p> <p>■ 効率(定格の25%負荷) 6kWh/5kWhV</p> <p>■ 耐久性: 5万時間(15年)</p> <p>▲ 出力密度 約2kW/L</p>	<p>★▲▲自動運用</p> <ul style="list-style-type: none"> 高濃(約100℃程度、-40℃から作動) ガス出口圧力<1.2atm 低加温運転(<30MPa)による高効率化 利便性向上確保見込み ▲ スタック量産技術確立 <p>★ 効率(定格の25%負荷) 6kWh/5kWhV</p> <p>▲ スタック製造原価 5~7万円/kWh</p> <p>■ 量産技術開発にて約50万台/年 ケース</p> <p>■ 耐久性 5万時間(15年)</p> <p>▲ 出力密度 2.4kW/L見込み</p>	<p>定置用本格普及期対応スタック</p> <p>耐久性 9万時間</p> <p>最高運転速度(約90℃) 低加温対応<約30kWh</p> <p>定置用・自動運用本格普及期には、長期的技術課題解決・区別による異なる高濃性能、低コスト化スタックが必要</p> <p>自動運用普及期</p> <p>【自動運用 普及期】</p> <ul style="list-style-type: none"> ★ 効率(定格の25%負荷) 6kWh/5kWhV ▲ スタック製造原価 <\$5千円/kWh(50万台/年 ケース) ■ 耐久性 5万時間(15年) ▲ 出力密度 2.4kW/L ★▲高濃(約100~120℃)、-40℃起動 ★▲加温器レス・水素管理レス <p>【自動運用 本格運用化目標】 (2030年燃料長期課題解決反後)</p> <ul style="list-style-type: none"> ★ 効率 6kWh/5kWhV(定格の25%負荷) ▲ スタック製造原価 <2.5千円/kWh(50万台/年 ケース) ■ 耐久性 5万時間以上(15年以上) ▼ 出力密度 >2.4kW/L ★▲対応温度約-40~120℃(加温器レス)水素圧
燃料電池 本体	<p><基礎的技術課題></p> <ul style="list-style-type: none"> ・対象:セル・スタックにおけるガスや水の挙動、電流分布、温度分布 ・手法:電気化学的手法、可視化セル、中性子ラジオグラフィ、MRI 	<p>・高スタック作動状態可視化技術の開発及びそのソール化</p> <p>・セル・スタック解析手法、診断技術の高進化</p> <p>・実験との比較による「ミュレーション」技術の向上とそれを用いた現象解明</p> <p>・標準セル及び標準的試験方法確立</p>	<p>定置用本格普及期対応スタック</p> <p>耐久性 9万時間</p> <p>最高運転速度(約90℃) 低加温対応<約30kWh</p> <p>定置用・自動運用本格普及期には、長期的技術課題解決・区別による異なる高濃性能、低コスト化スタックが必要</p> <p>自動運用普及期</p> <p>【自動運用 普及期】</p> <ul style="list-style-type: none"> ★ 効率(定格の25%負荷) 6kWh/5kWhV ▲ スタック製造原価 <\$5千円/kWh(50万台/年 ケース) ■ 耐久性 5万時間(15年) ▲ 出力密度 2.4kW/L ★▲高濃(約100~120℃)、-40℃起動 ★▲加温器レス・水素管理レス <p>【自動運用 本格運用化目標】 (2030年燃料長期課題解決反後)</p> <ul style="list-style-type: none"> ★ 効率 6kWh/5kWhV(定格の25%負荷) ▲ スタック製造原価 <2.5千円/kWh(50万台/年 ケース) ■ 耐久性 5万時間以上(15年以上) ▼ 出力密度 >2.4kW/L ★▲対応温度約-40~120℃(加温器レス)水素圧 	<p>定置用本格普及期対応スタック</p> <p>耐久性 9万時間</p> <p>最高運転速度(約90℃) 低加温対応<約30kWh</p> <p>定置用・自動運用本格普及期には、長期的技術課題解決・区別による異なる高濃性能、低コスト化スタックが必要</p> <p>自動運用普及期</p> <p>【自動運用 普及期】</p> <ul style="list-style-type: none"> ★ 効率(定格の25%負荷) 6kWh/5kWhV ▲ スタック製造原価 <\$5千円/kWh(50万台/年 ケース) ■ 耐久性 5万時間(15年) ▲ 出力密度 2.4kW/L ★▲高濃(約100~120℃)、-40℃起動 ★▲加温器レス・水素管理レス <p>【自動運用 本格運用化目標】 (2030年燃料長期課題解決反後)</p> <ul style="list-style-type: none"> ★ 効率 6kWh/5kWhV(定格の25%負荷) ▲ スタック製造原価 <2.5千円/kWh(50万台/年 ケース) ■ 耐久性 5万時間以上(15年以上) ▼ 出力密度 >2.4kW/L ★▲対応温度約-40~120℃(加温器レス)水素圧

図 1-19 PEMFC のロードマップにおけるスタック、セル課題[40]

1.3 研究目的、概要

本研究は、システム診断手法の提案、確立により燃料電池スタック搭載システムの信頼性向上を目的としている。そのためには、燃料電池スタック診断技術、解析手法の高度化が必要である。

本研究では、診断指標として燃料電池の電流分布および分極特性に着目した。燃料電池は前述のとおり最小の発電単位であるセルと、セルを直列に接続したスタックで構成される。発電はセル面で行われるため、セル面内、スタック積層方向で燃料ガス濃度、温度、湿潤状態等の条件が異なる。それら複合要因によって発電量が局所的にばらつき、電流に分布が生じる。一般的な燃料電池システムは出力に応じた制御を行うが、偏りのある電流分布は局所的な劣化を引き起こし、セルを直列に接続する構造からスタックおよびシステム全体の致命的な不具合につながる。そのため、電流分布測定およびその分布要因となる分極特性評価を行いそれらに基づくシステム制御を行うことが重要である。しかし、現在までに発電システムに搭載する燃料電池スタックに対し面内測定を行う非破壊な方法は確立されていない。また、シミュレーション単独の分布予測、評価では、実際の現象や内部状況を再現することが困難である。

本論文では、最初に電流分布測定および分極特性評価手法を含めた燃料電池測定、診断技術に関するレビューを行い、実際のシステムに適用する上での問題点について示す。そして、実際のシステムに適用し得る提案手法について、計算方法および測定、評価結果を示す。さらに、不具合時に適用する指標を提示し、本研究によって提案された非破壊診断技術により燃料電池システムの安定稼働、信頼性向上に貢献する。

1.4 論文構成

本論文は8章により構成されている。図 1-20 に構成を示す。以下に、各章の内容について述べる。

本論文の第1章では、本研究の背景および目的についてまとめた。

第2章では従来の研究をレビューし、その問題点をまとめた。

第3章では本研究で提案する分極解析手法の評価式に関して理論式からの導出を行った。また、電流分布測定手法に用いる開発した磁場測定装置や電流計算式などについて、そして3次元有限要素法による燃料電池シミュレーション方法についてまとめた。

第4章では提案した分極解析手法であるフィッティング評価モデルを用いた燃料電池分極特性評価手法の理論式からの各分極項の導出について示した。また、先行研究モデル式との比較評価により、提案式が実測値である電流遮断試験値と最も近く、温度関数としては各セル温度もしくは補正温度を用いる必要が示唆された。そして、カソード燃料、ファン動作温度による評価を行い、理論的な推察と各分極パラメータの推移が同一であったことから、提案式が PEMFC の状況に応じた分極評価が可能であることが示され、非破壊、In-situ による出力低下要因が特定可能となった。

第5章では、定常状態における磁気センサによる電流分布計測評価についてまとめた。2セルスタックの計測において、磁場分布と巨視的な電流の関係はアンペールの法則により磁場に直交方向に燃料電池中を流れる電流の方向となり一致した。また定常状態においても電流は両端に偏る分布を示した。この要因を特定するために、3次元有限要素法(3DFEM)シミュレーションおよび面圧計測を行った。MEA 伝導度が一樣な場合のシミュレーションの結果、磁場は両端に偏ることが示された。このことから、負荷との接続端子である集電板が両端に位置することによるスタックの構造的要因により分布に偏りが生じることを明らかにした。また、実測値との最適化シミュレーションの結果、中央部においてMEA 伝導度が低下することが示された。プレスケールによる面圧測定結果において中央部の面圧が低下していることから、2つ目の分布偏り要因として、面中央部の面圧不足による電気伝導度の低下を明らかにした。

第6章では、不具合状態における電流分布測定、評価手法を示し、不具合診断への適応についてまとめた。まず、発電時生成水の GDL および流路内に滞留することにより生じる不具合、フラiddiying状態における磁場、電流分布を測定評価した。定常状態とフラiddiying状態の電流分布差により、発電低下箇所が2番セルカソード出口で生じていることが示された。また、積層方向の磁場がフラiddiying状態では増加した。続いて、膜の乾燥により生じる不具合、ドライアウト状態における磁場、電流分布についても測定評価した。ドライアウトを模擬した状態において、初期に比べ20分後にはアノード出口側で40.4%の低下となった。一方、積層方向の磁場がドライアウト状態では変化しなかった。こ

の 2 つの不具合において、積層方向の磁場を不具合指標とすることで、非破壊診断への適応が可能となる。

第 7 章では、提案方法を組み合わせた非破壊診断手法について示し、技術課題とあわせ面内要因分析など診断方法の可能性を示した。

第 8 章では、本論文の総括を述べるとともに、今後の研究課題についてまとめた。

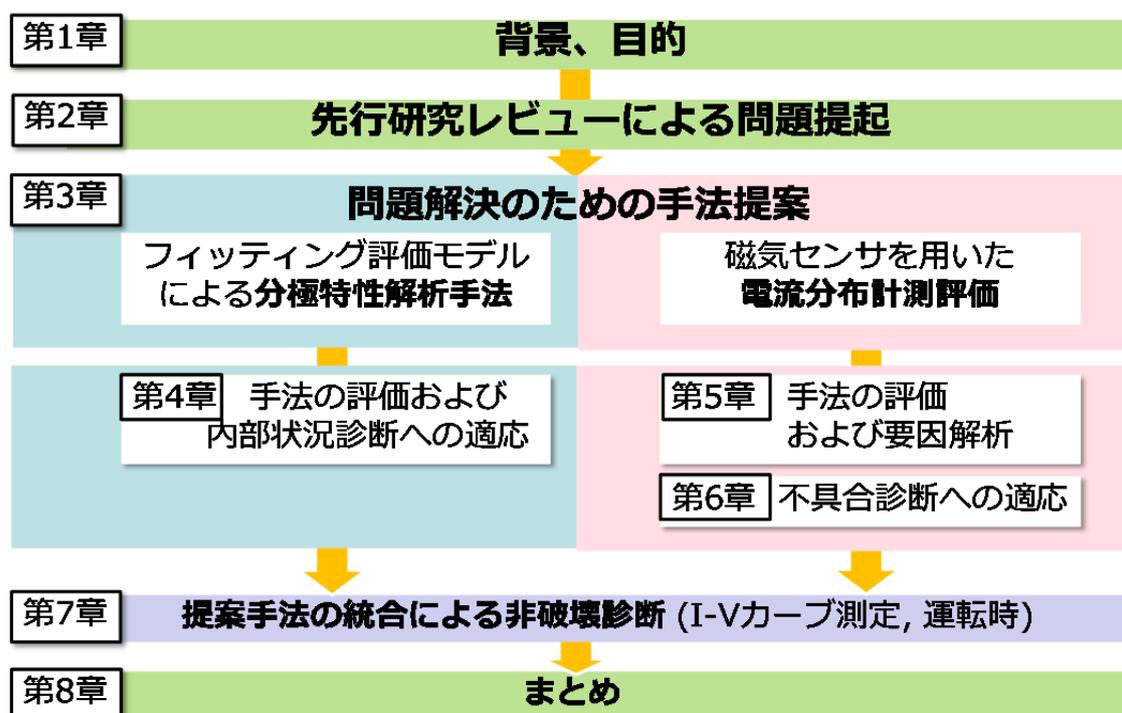


図 1-20 本論文の構成

第2章 燃料電池計測、診断手法に関するレビュー

2.1 背景

燃料電池自動車やエネファームのようなコジェネレーションシステム、そして非常用電源システムなどにおいては、燃料電池そのものだけでなく、燃料を送るためのポンプや安定した運転を行うための冷却装置などといった補器とあわせたシステムで導入される。一般的に導入されたシステムにおいて、燃料電池スタックおよび各セルの電圧、電流、また水素、空気の流量や圧力、そして運転温度などが常時モニタリングされ、システムによっては制御にフィードバックされる。モニタリングや制御へのフィードバックは燃料電池が機械、電気、そして化学反応によって発電を行うため、常に内部状態に変化が生じるため必要である。内部は定常ではなく、一瞬にして不具合が起こりシステムに損害を引き起こす可能性がある。燃料電池の代表的な不具合としては、フラッディングとドライアウトの2つが存在する。

フラッディング(Flooding)は、図 2-1 のように発電時に生成あるいは加湿による水が過剰に存在することで、触媒との反応面積を減少させる、もしくは流路に滞留する(特にブラッキングとも呼ぶ)ことを指す。また、ドライアウト(dry-out、dehydration)とは、膜が流量や運転温度などによって乾燥することで、イオン伝導度が減少することである。PEMFCの電解質膜として用いられるNafion117においては飽和水蒸気圧における水蒸気圧が増加するに伴い、測定膜水分量の上昇するような3次関数を描くことが分かっている[41]。フラッディング、ドライアウトどちらも燃料電池の発電反応と深く関係している。燃料電池の発電反応に関わるのは、水素をイオン化・電子と分離させる触媒(主にPt)、イオン化された水素プロトンのみを通過させる高分子膜である。したがって、触媒での反応を向上させること(活性化)および高分子膜のイオン伝導性を向上させること(水和)が燃料電池の出力を最高にするうえで重要となる。しかし、両者を達成することは難しい。触媒をより活性化させるには高い温度と気体との反応面積を大きくすることが必要である。高い運転温度は、飽和水蒸気量を大きくするため、電池内は乾燥状態になりやすい。一方で、膜を水和させるためには、湿潤な状態でなければならない。しかし、湿潤な状況は飽和水蒸気量を超えた水分が触媒と接触するため、乾燥状態と比べ、触媒との反応面積を減少させる。つまり、湿潤状態は触媒性能を低下させ、乾燥状態は膜性能を低下させる。

これら不具合は出力を大幅に、そして急速に減少させ劣化や故障を引き起こす。図 2-3 のように、定電流において運転した場合、ドライアウトは分単位、フラッディング状態においては秒単位での電圧低下が起きる[42]。したがって、早期に発見、改善する必要が生じる。このため、常時のモニタリングが必要である。定電流運転の場合、出力の変化は電圧

波形に表れ、各セル電圧のモニタリングをすることでセルの不具合状況を見ることが出来る。しかし、電圧波形のみでは不具合を判別することは困難である。

本章では、先行研究のレビューを示す。まずスタックや各セルの電流電圧曲線(I-V カーブ)および電流分布測定地点における部分電流電圧曲線を評価するための方法を、続いて燃料電池の電流分布評価方法について、最後に燃料電池シミュレーションについての先行研究およびその課題を示す。

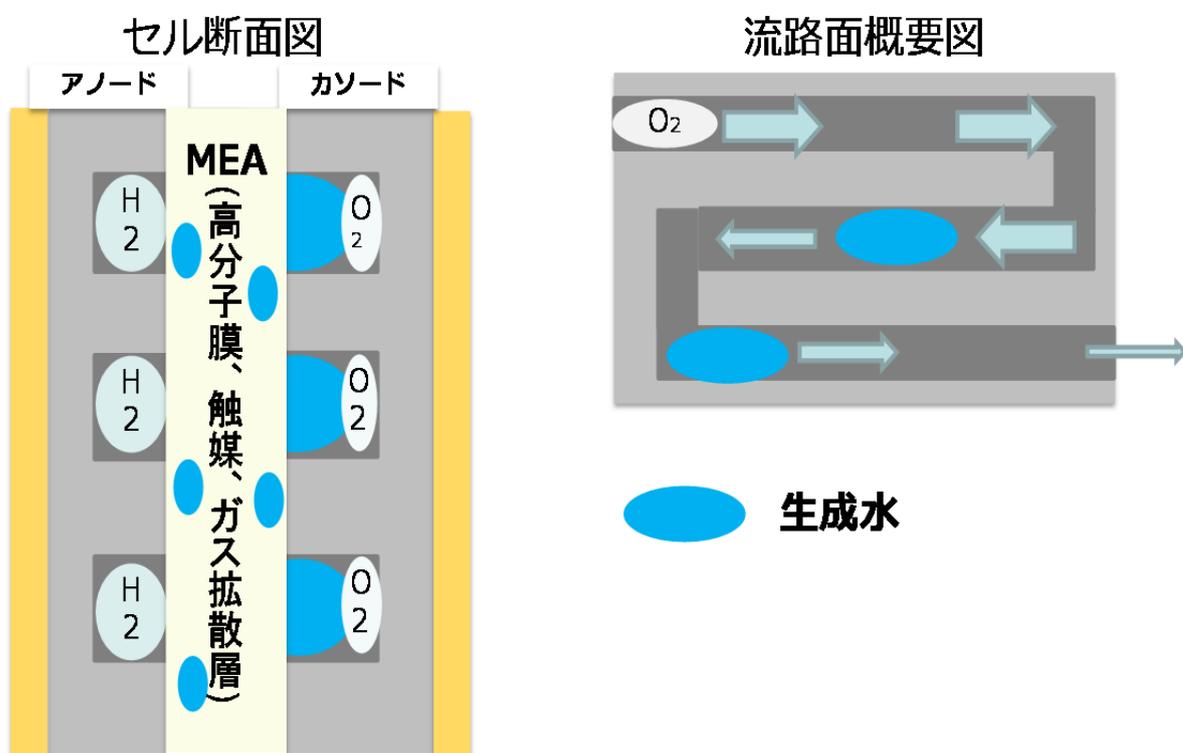


図 2-1 フラッディング模式図

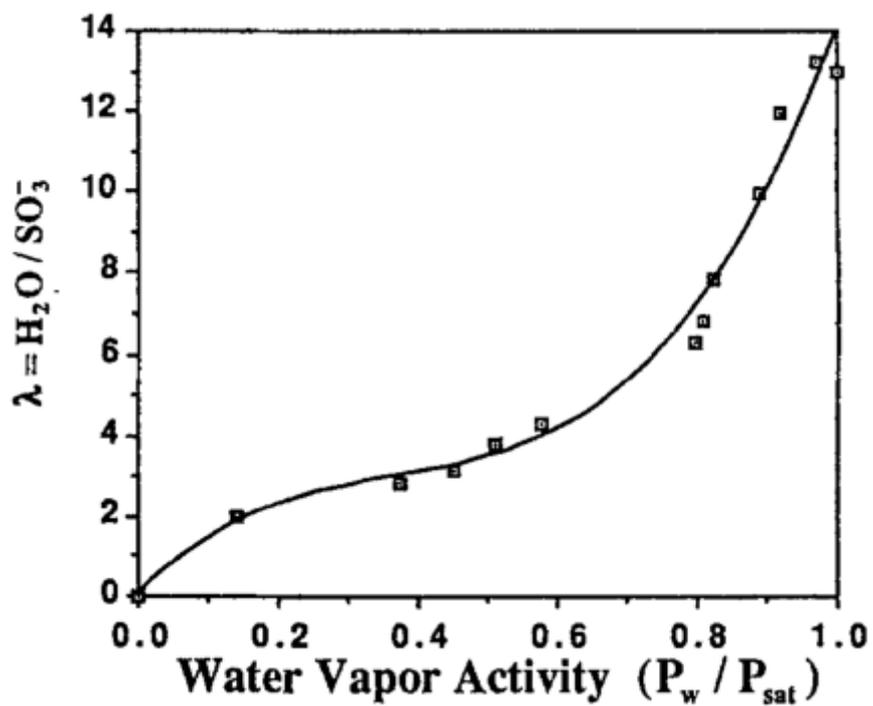


図 2-2 水蒸気圧と膜水分量の関係[41]

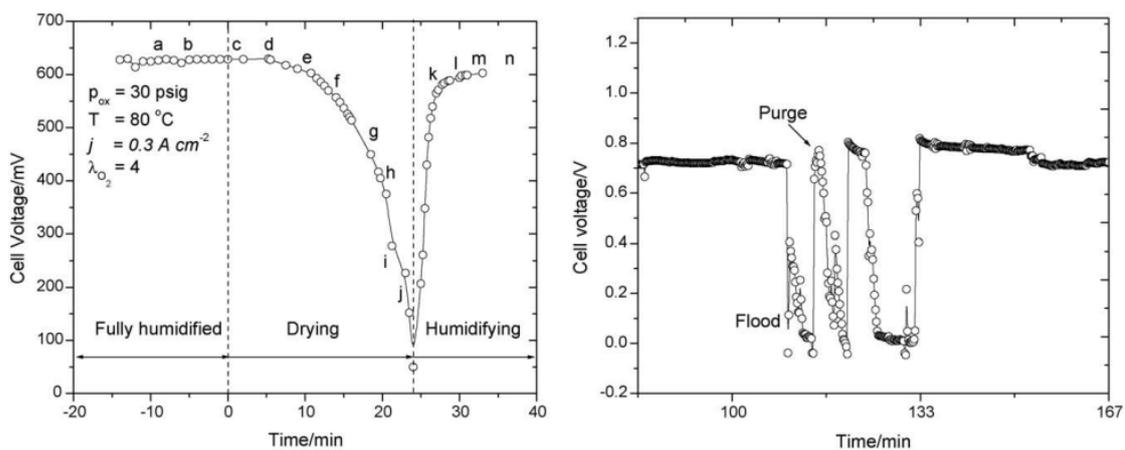


図 2-3 ドライアウトおよびフラッシング状態における電圧推移[42]

2.2 内部状況の測定および評価手法

燃料電池セルやスタックの内部状況を測定、評価する手法としては、内部抵抗を測定する電流遮断法(Current Interrupt: CI)[43]や電気化学インピーダンスを測定する Electrochemical Impedance Spectroscopy(EIS) [44]がある。電流遮断法は燃料電池の内部抵抗を測定する手法の一つで、負荷電流を高速に遮断することにより、接触抵抗や膜抵抗である抵抗分極と化学反応に起因する抵抗分(活性化、濃度分極)を図 2-4 のように分離することができる。特徴としては簡易計測ができること、欠点としては急激な負荷変動による損傷の可能性があることである。また、EIS はさまざまな周波数の交流を印加することにより分極を分離することができる。特徴としては、CI と異なり急激な負荷変動がないため燃料電池を損傷させないこと、欠点としては測定時間が長いこと、定常状態における測定であることがある。Rubio ら[45]は膜の水分状態を EIS によって判定しており、フラッドイングやドライアウトの指標となる抵抗分を測定しているが、負荷を遮断することや交流を印加しなければならないことなど、負荷側に影響を与える。そのため、これらは実験における利用には有効でありシステム運転中に用いることは難しい。

また、フラッドイングの原因となる生成水を測定、観測する手法としては核磁気共鳴画像法(Magnetic resonance imaging: MRI)やニュートロンイメージング[46]、透明セルを用いた内部水分分布観測法[47]などがある。近久ら[48]は透明エンドプレートを使って温度、電流、水滴分布の関係を明らかにした。これらは、燃料電池の内部状態を予測する手段として有用ではあるが、MRI などの特殊環境が必要であり、またスタック中の各セルを診断することはできない。

システムの運転中に診断する、あるいは制御の指標とする先行研究としては、Steiner ら[49]が電圧とガス圧力変化によってフラッドイングやドライアウトを判別した。また、Lira ら[50]は線形パラメータ変動モデル(LPV model)を用いて機器のロバスト化を行っている。しかし、スタック個々の特性や運転方法によって条件が変わってくる。また、平均化した指標となってしまうため局所的な故障を発見できない[51]。したがって、システムに内包されるスタックに対する新しい手法や判別、制御指標が必要である。

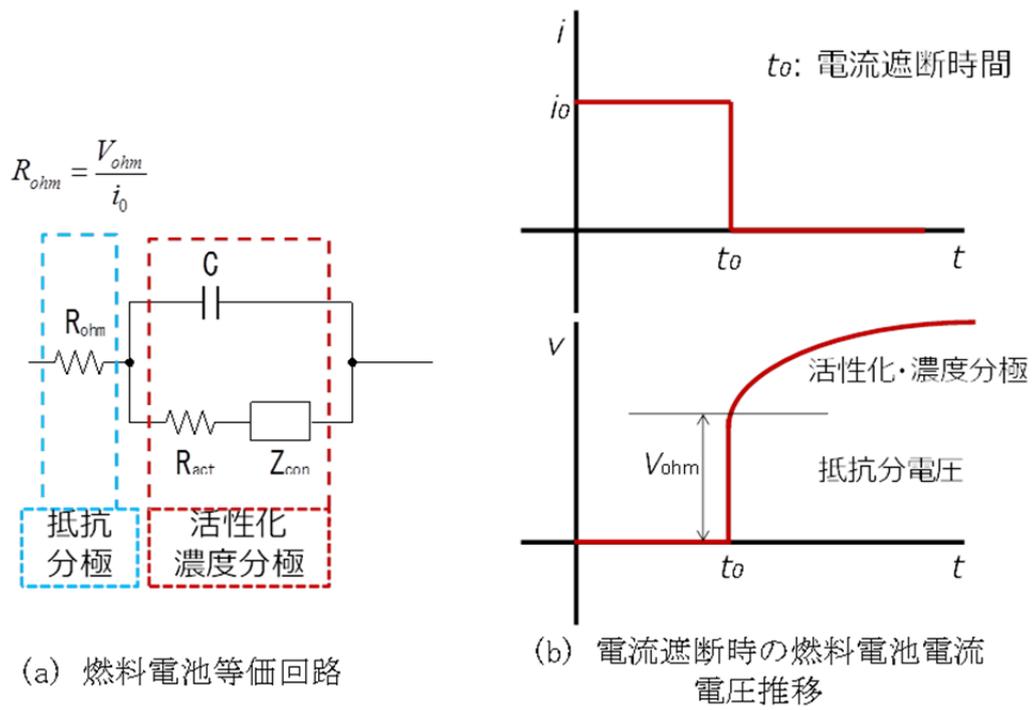


図 2-4 電流遮断法における等価回路および算出式、遮断時概要

2.3 分極評価方法に関する既往研究

図 2-5 のように燃料電池のセルスタック電圧は電流(密度)の増加につれて、減少していく。これは、分極あるいは過電圧(Overpotential)や電圧損失(Voltage loss)と呼ばれる電圧降下によるものである。一般的に理論電圧や開回路電圧(OCV : Open Circuit Voltage)からの電圧降下のことを指す。したがって、電圧の低下要因を評価するためには、それぞれの分極を分離しなければならない。本節では、各分極について説明したのち、その評価方法について先行研究およびシステムへの搭載に向けた課題を示す。

2.3.1 分極と各種要因

分極は一般的に活性化分極、抵抗分極、濃度分極(拡散分極)の三つに分類できる。

活性化分極は、アノードでは水素の酸化の際、カソードでは酸素の還元の際に、イオンになる反応を進めるために活性化エネルギーが消費され、その損失分を指す。水素の酸化反応と比べ酸素の還元反応が進みづらく、カソード側での活性化分極が大部分を占める。低電流密度域では活性化分極の増加は急激、そして支配的である。高電流密度域ではなだらかに増加していくが、後述の抵抗分極、濃度分極が増加していくため、その支配は弱まる。この分極は電流の式としては Butler-Volmer の式、電圧の式としては Tafel の式により表される[23]。触媒はこの反応の活性化エネルギーを低減させる働きをしており、触媒性能の向上が活性化分極の低減の鍵を握る。活性化分極を低減させるためには、他に、反応温度を高めることや、電極有効面積を増やすことが有効である[52]。

抵抗分極は、電解質膜、電極、セパレータ等における電子やイオンの移動に対する抵抗による電圧降下を指す。抵抗分極は内部抵抗と電流の積の形であるオームの法則の形で表され、電流の増加に比例して増加する。一般的な内部抵抗値として、 $0.1\sim 0.2 \Omega\text{cm}^2$ [53]となる。低減させるためには、電気抵抗の少ない材料の選定や、材料間の接触抵抗を下げる必要がある。また電解質の厚さを薄くする、電解質形状について相対的に面積を大きく(電流密度を小さく)することも有効であるが、出力密度や機械的強度は低下してしまう。

濃度分極は、燃料電池の反応によって電極近傍では酸素、水素の分圧(濃度)が低下しこれらの物質を電極へ補給する速度や生成物の散逸速度の影響による低下を指す。濃度分極は特に燃料を多く消費する高電流密度域で支配的である。要因としては、生成水が滞留(フラッディング)してガスの拡散性が阻害されることが挙げられる。理論的には Nernst の式より対数関数を用いて表されるが、フラッディングなどの他の影響により指数関数的な増加になる(図 2-6)。多孔質電極では反応物質の拡散係数を出来るだけ大きくすると同時に、撥水性の付与やガス流動で水がスムーズに排出されるような工夫が濃度分極を下げる事が必要である。

一般的な電流電圧曲線において低電流密度域では活性化分極が支配的であり、高電流密度域では濃度分極が支配的である。この特性を見ると電流密度の低い領域では効率は高くなる。しかし、実際は有用な出力が得られないため最大出力が得られる電流密度付近まで高めて運用される。また、電流密度が低く電圧が高くなると材料劣化が起こりやすいといった指摘もある。

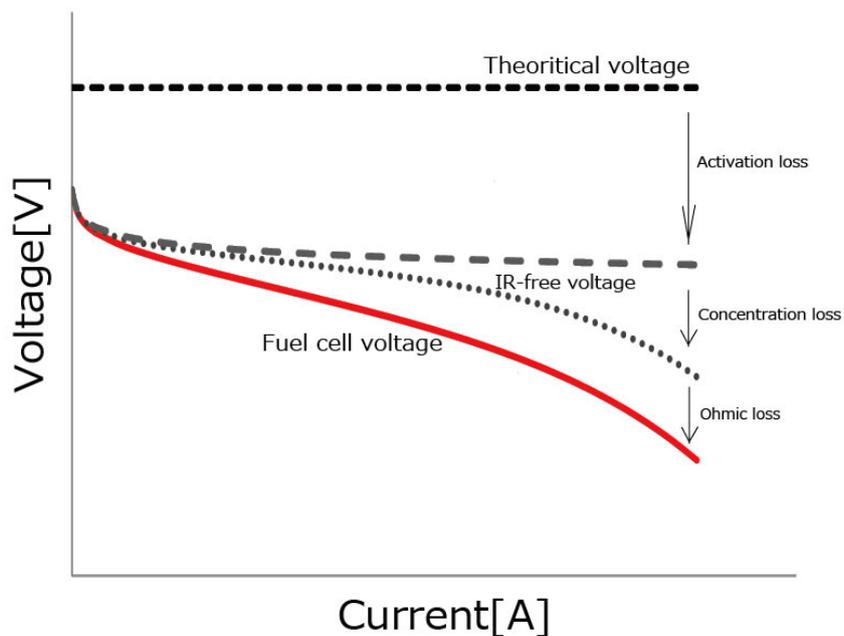


図 2-5 電流電圧曲線

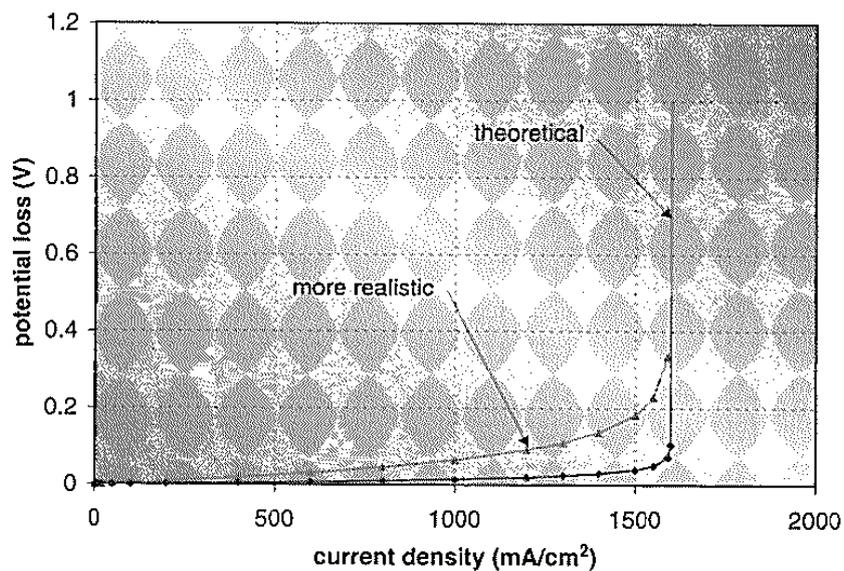


図 2-6 理論的な濃度分極および実際の濃度分極[53]

2.3.2 Tafel の式

1905 年に Tafel は電極表面の過電圧(分極)が各種電気化学反応に似たパターンを持つことを示した。図 2-7 のように電流密度の対数に関する過電圧をプロットすると、過電圧の多くの値に対してグラフは直線になる。電流密度の対数に関するこの曲線は Tafel 曲線として知られ、式としては過電圧を η_{act} とすると

$$\eta_{act} = A \ln \left(\frac{i}{i_0} \right) \quad (2.1)$$

となる。定数 A はゆっくりした電気化学反応では大きくなる。定数 i_0 は反応が速くなると大きくなる。 $i > i_0$ の範囲でしか成立しないことが重要である。電流密度 i_0 は交換電流密度と呼ばれている。Tafel の式は実験の結果として導き出されたものではあるが、理論的な整合性もとれている。燃料電池の燃料として水素を用いる場合、定数 A は

$$A = \frac{RT}{2\alpha F} \quad (2.2)$$

となることが示されている[54]。定数 α は電荷移動係数と呼ばれ、電気化学反応の速度を変えるために使われる電気エネルギーの割合である。その値は、関連する反応と電極材料に依存し、0~1.0 の範囲になることが知られている。アノードでは、電荷移動係数は多くの材料の場合およそ 0.5 となる[55]。カソードでは、電荷移動係数に幅はあるものの 0.1~0.5 となる[23]。

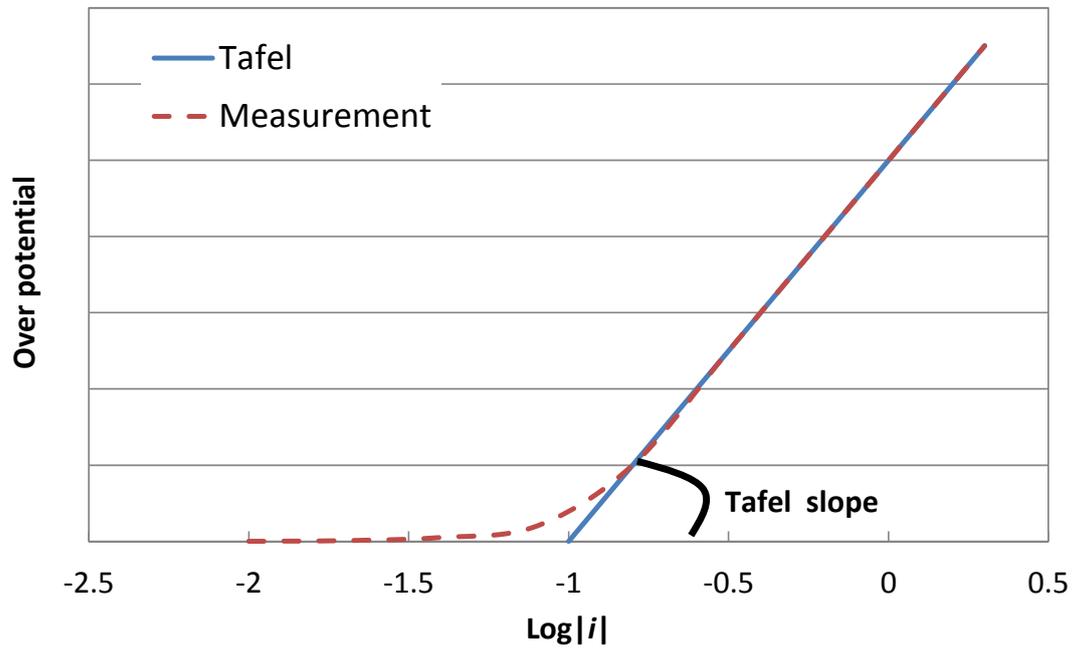


図 2-7 Tafel の式

2.3.3 フィッティングモデルを用いた分極評価

燃料電池の電圧は、理論的な電圧 E_0 や開回路電圧 E_{ocv} から活性化分極 η_{act} 、抵抗分極 η_{ohm} 、濃度分極 η_{mass} の差による求めることができる。電圧 V は

$$V = E_0 - \eta_{act} - \eta_{ohm} - \eta_{mass} \quad (2.3)$$

と表される。各項はフィッティングモデルによって定義が異なる。活性化分極は多くのモデルにおいて前節の Tafel の式を用いている。抵抗分極は、オームの法則より抵抗と電流(密度)の積で表される。濃度分極は、図 2-6 のように理論的には対数関数の形をとる。Haji ら [56] は O' Hayre ら [57] の熱力学理論式に基づき

$$V = E_0 - \left[a_c + b_c \ln(i + i_{loss}) \right] - R_{ohmic} \cdot i - c_c \cdot \ln \left(\frac{i_{L,c}}{i_{L,c} + i_{loss}} \right) \quad (2.4)$$

というモデル式を用いている。 a_c は Tafel の式における切片のカソード分[V]、 b_c は Tafel 勾配のカソード分[V]、 i は電流密度[A/cm²]、 i_{loss} は初期電流ロス、 R_{ohmic} は内部抵抗[Ωcm²]、 c_c はフィッティングパラメータ、 i_L は最大電流密度[A/cm²] である。しかし、最大電流密度を予測することは難しく、実際は図 2-6 のような指数関数のような増加になる。そのため、低電流から中電流域、つまり濃度分極が支配的にならない範囲での分析では、Chu ら [58] のように濃度分極を含めない形で分析することがある。全範囲の分析では、Kim ら [59] が提案した分極項に指数関数を用いることが多い。

$$V = E_{OCV} - A \ln(i) - R_{ohmic} \cdot i - m \exp(n \cdot i) \quad (2.5)$$

この式は、多くの論文 [60] で使用される燃料電池の一般的なフィッティングモデルである。 m 、 n はフィッティングパラメータである。しかし、急峻な電圧変動やデータ数の少ない場合には現実的でない結果やパラメータが出ることもある。その場合、フィッティングのあてはまりを示す決定係数が小さくなる。急峻な電圧変動にも対応するモデル式のひとつに Squadrito ら [61] のモデルがある。

$$V = E_{OCV} - A \log(i) - R_{ohmic} \cdot i + \alpha i^k \ln(1 - \beta \cdot i) \quad (2.6)$$

α 、 β 、 k はフィッティングパラメータである。濃度分極の項に電流密度のべき乗を係数として用いることで、急峻な電圧に対応することが特徴である。また、Pasani ら[62]の電極など表面での物質輸送や移動理論を考慮したモデルがある。

$$V = E_{OCV} - A \ln(i) - R_{ohmic} \cdot i + \alpha \ln \left(1 - \frac{I}{I_l} S^{-\mu(1-I/I_l)} \right) \quad (2.7)$$

α 、 μ はフィッティングパラメータである。 I_l は最大電流、 S はフラッディングパラメータと呼ばれ、 $S = 1$ のときは表面での水の含水値が等しくなるため、理論的にはフラッディングが起きているとしている。しかし、Squadrito ら[61]や Pasani ら[62]のモデル式はパラメータが多く、式も複雑であるため、最小二乗法などではすべてのパラメータを一意に定めることが難しい。Squadrito ら[61]においてはフィッティングパラメータの k を、Pasani ら[62]においては μ などを固定し評価を行っている。また Koylu ら[63]は、多くの理論を組みこんだシミュレーションソフトウェアを開発した。この中で、式(2.5) Kim モデル[59]や他のモデル[64][65]との比較を行い、よりフィッティング精度が向上したことを示している。

このようにフィッティングモデル式は、運転条件から予測される限定的なモデルではある一方、現実的な運転条件、実在するデザインの燃料電池のモデリングとしては非常にシンプルで有益である[66]。パラメータを増加させることやシミュレーションに含める理論式を増加させるほど、再現性、フィッティング精度は向上するが、要因分析を難しくさせる。そのため各目的にあったフィッティングモデル式を構築することが重要である。

2.4 電流分布測定評価

燃料電池の電流分布はセル面各部で異なる。それはセル面内、スタック積層方向で燃料ガス濃度、温度、湿潤状態等の条件が異なることに起因する。偏りのある電流分布は局所的な劣化を引き起こすため、電流分布測定およびその分布要因評価を行いそれらに基づくシステム制御、分布の改善を行うことが重要である。

2.4.1 Invasive アプローチ

電流分布評価手法としては、プリント基板や抵抗回路、ホール素子を燃料電池内部に組み込むことが一般的である[67]。これらは、Invasive アプローチ、つまり燃料電池に何らかの改善、破壊を伴う手法とされている。特に図 2-8 に示すようなプリント基板を用いる手法(Print circuit board (PCB) method)は Cleghorn ら[68]によってあみ出され、多くの研究で用いられている。この手法は分割したバイポーラプレートとプリント基板を用いて電流分布を計測する。アノードのガス拡散層(GDL)と触媒層が分割されることもある。Brett ら[69]は Stumper ら[70]の手法を用いて単流路の燃料電池を時間的空間的に高い分解能で測定した。また、部分的な電流の時間的な遅れが GDL を通ったガスの拡散によって生じるため入り口側の反応ガスの変化により観測された。Nojonen ら[71]はさまざまな運転条件下におけるカソード側の電流分布を観測した。さらに、Hakenjos ら[72]は PEMFC の電流、温度、水分分布を同時に計測することを試みた。アノード側に分割されたバイポーラプレートを置き、カソード側のエンドプレートは覗き窓となる。つまり、サーモグラフィによって温度を測定し、流路上の水滴を可視化することが出来る。Ibrahim ら[73]は分割したバイポーラプレートとプリント基板を用い、さまざまな流れと運転条件のために MEA 方面の部分的な電流分布を適切に比較した。Kim ら[74]は圧力分布の変化による電流分布の違いについて研究している。接触抵抗は締め付け圧とガス圧力、電流密度、温度などに依存する。PCB の分割セルを用いており 112 の分割数でエンドプレートと流路の間に接続されている。MEA の有効面積は 360 cm^2 である。PEMFC の各電流密度は PCB を通り、PCB 内のセンサに供給される。図 2-9 に示すようなエンドプレートを用いると総圧力面積と平均圧力は平面よりカーブが高くなり、最高圧力は同じであった。中央部ではカーブが平面に比べてより活性化分極が低くなりこの違いにより電圧が高くなった。標準偏差はカーブエンドプレートが平面に比べ小さく電流分布が均一であることを示した。Zhou ら[75]は GDL の多孔質と接触抵抗における締め付け力の効果を検証した。それらは良い GDL 多孔質と低い表面接触抵抗の関係によるガス流路を提案した。近年では圧力計測フィルム(Pressure Indicating Film: PIF)が圧力分布を測定するのに用いる。これは色によって圧力分布を示すものでソフトウェアを用いて換算する。Wen ら[76]は PIF を用いて異なる締め付けトルクとボルトを用いて性能を調査した。その結果、高い平均的な接触圧はより大きな最大出力と均等な圧力分布となるこ

とを示した。さらにオーム抵抗と物質移動限界電流が平均的な接触圧力と相関があることを示している。Yu ら[77]は単セルの圧力分布について PIF を使って測定している。エンドプレートに金属の代わりに複合材料を使うことで圧力分布が均一になることを示した。それらは熱によって変形、曲げている。この複合材料により性能の劣化なしにスタックの重量の減少もする。

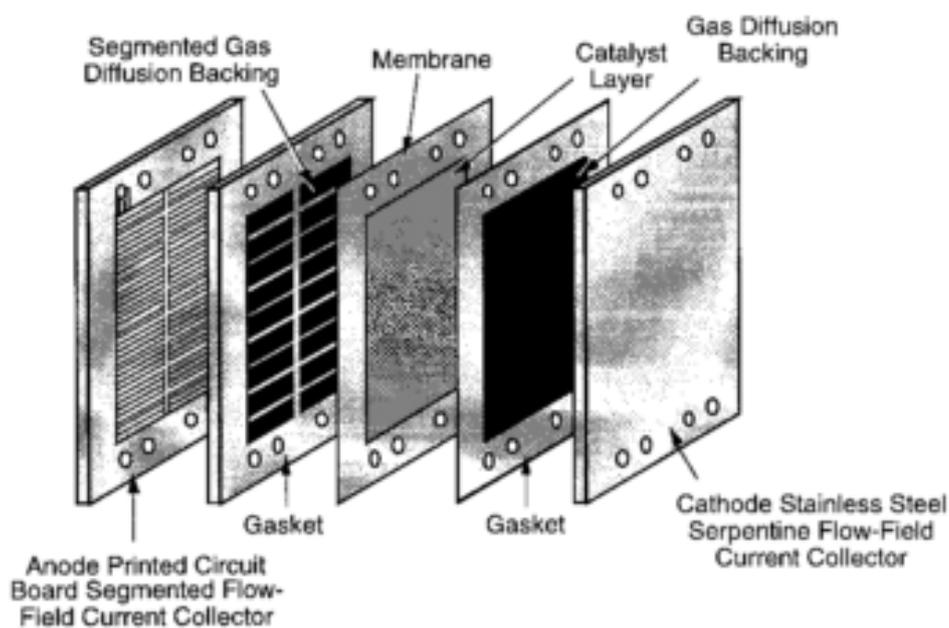


図 2-8 PCB を用いたエンドプレート電流分布測定手法[68]

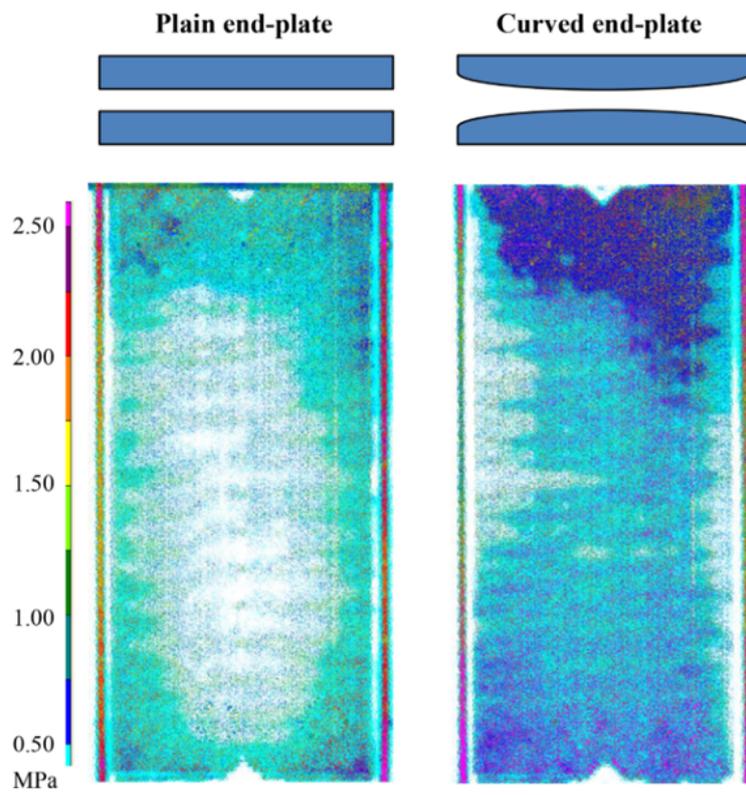


図 2-9 エンドプレートによる圧力分布の違い[74]

2.4.2 Non-invasive アプローチ

Invasive approach による電流分布評価を行った研究が多くある一方で、Non-invasive、つまり非破壊な手法は確立されていない。前述のレビュー[67]によれば、数少ない評価手法のほとんどは磁場測定装置によるものとされている。それは近年、磁気センサの小型化、高感度化が進んだことによるものだと考えられる。燃料電池に限らず磁気を用いた故障診断方法についての研究が増加している。例えば、金森ら[78]の回路網における微小傷を針形状磁気プローブにより発見する研究や岸本ら[79]のように周囲に設置した磁気センサによるリチウムイオン電池内の電流分布計測法がある。

燃料電池に対しては、Hauer ら[80]が図 2-10 のような装置を用いて磁気センサ測定値とアンペールの法則による計算によって電流分布の算出を行った。加藤ら[81]は図 2-11 のように単セル周囲に 20 個の Magneto-Impedance(MI)センサを配置し 25 分割の計算を行っている。磁場から電流を計算する逆問題の最適化手法としてローゼンブロック法と進化戦略と併用している。ローゼンブロック法では、形状(対象領域)を変化させていき、目的関数が最小になるように最適化を行う。その方法として Horii ら[82]や Takahashi ら[83]を参考にしている。また後藤ら[84]は 108 個のセンサを埋め込み、燃料電池を模擬した導体に電流を流し評価した。電流分布への変換はビオサバールの法則変換式より導出している。そして北林ら[85]は 50×50 cm の単セル周囲に MI センサを 108 個設置し評価している。初期値への依存性があるために、まず低解像度で最適化を行い、その平均値を初期値として 100 分割した。不具合診断技術としては、Hamaz ら[86]が電流に起因する燃料電池の異常を発見する研究を行った。彼らは 1 次元センサを用い、正常時との差を見ることで異常を検知した。ビオサバールの法則を用いてベースラインにおける磁場と電流の関係を明らかにし、故障の決定とクラス分けをしている。故障診断方法としては、Standard Faults Detection and Isolation methodology of model-based diagnosis[87]を用いている。セル有効面積 220 cm²、40 セルスタックを用いている。シミュレーションと低ストイキ比運転によるアクチュエータ故障を模擬した実験により故障診断方法を提案している。しかし、燃料電池の電流分布と故障時の分布との関連性が明らかではないことやクラス分けする意義が不明、定性的、感覚的な指標が多いことが問題点として挙げられる。また周囲磁場による故障検出法はスタックにおいて図 2-12 のような装置を用いて行われている[88]。しかし、内部現象と電流分布が一致しているわけではなく、あくまで電流の強弱による故障検出である。また周囲磁場を測定するため、マイクロな電流もしくはマクロな電流のどちらかしか測定できない欠点を持つ。このように、燃料電池に対する磁気センサを用いた非破壊診断手法はあるものの、あくまで電流分布測定、不具合検出にとどまっている。実際、先行研究においては、センサは高感度化し全体電流は従来の電流計測にとどまっていた。さらに、各セル制御への応用や電流分布以外の内部状況を明らかにするまでに至っていない。

また、日本国内においては磁気センサを用いた燃料電池診断の特許が企業、特に自動車メーカーより数多く出願、公開されている。トヨタ自動車・デンソー[89]は図 2-13 に示すように、セルの一部に磁気センサを埋め込むことによって、対象箇所の電流を測定する手法について特許出願している。また、各磁気センサおよびセル積層方向間の電流差を測定し均一化を行うことができるように燃料流量を制御するシステムについての記載もある。しかし、センサを埋め込むことによる燃料電池の煩雑化、信頼性の低下が懸念される。日産[90]は図 2-14、図 2-15 に示すように、セパレータ周囲に磁気センサを配置し、磁束密度と右ねじの法則によってセル面で均一な電流分布の際の磁力線と一致させる方法について特許出願を行っている。電流分布を測定することなく、電流分布が均一でない時にエラーを出力するシステムである。

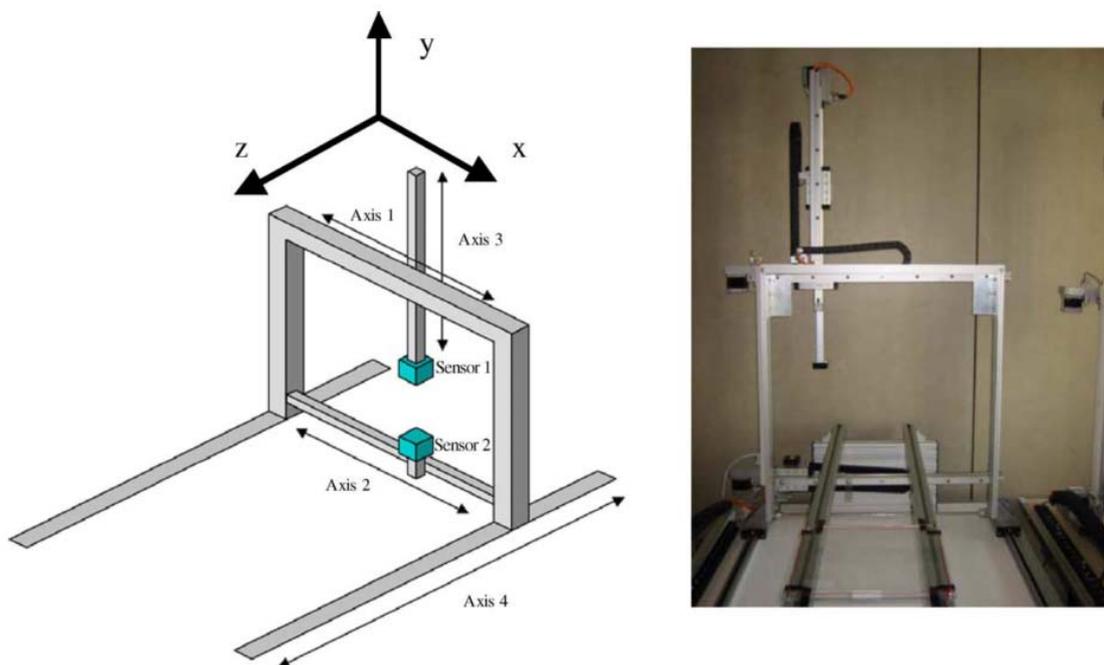


図 2-10 磁気センサを用いた単セル磁場計測 [80]

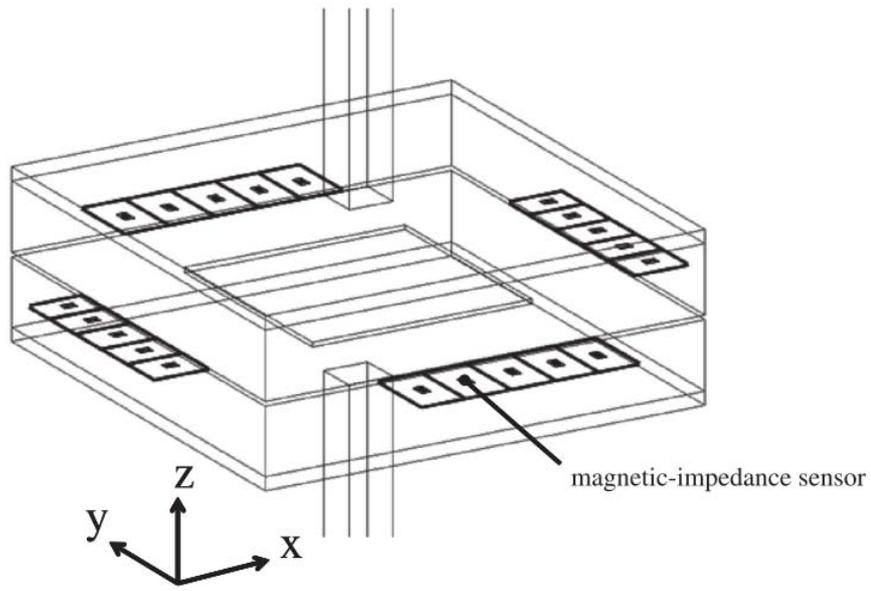


図 2-11 周囲磁場測定による単セル磁場計測 [81]

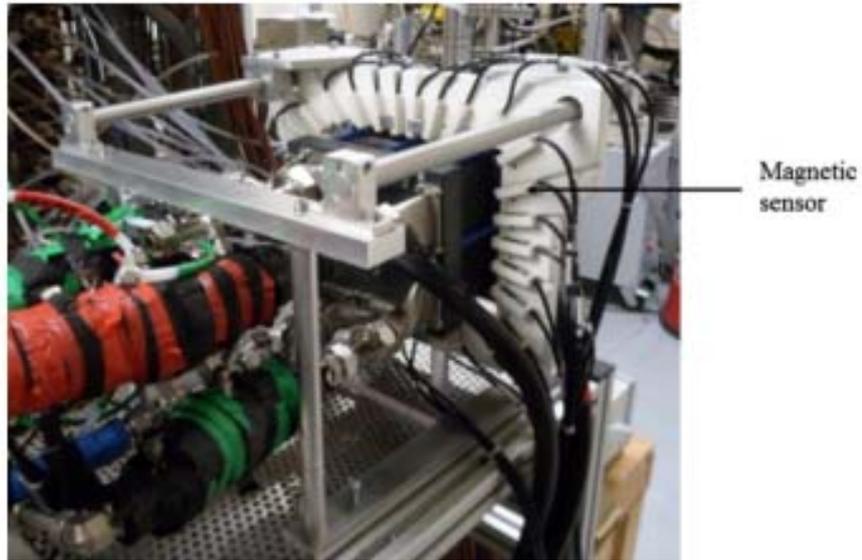


図 2-12 燃料電池スタックにおける周囲磁場測定によるセル電流分布測定[88]

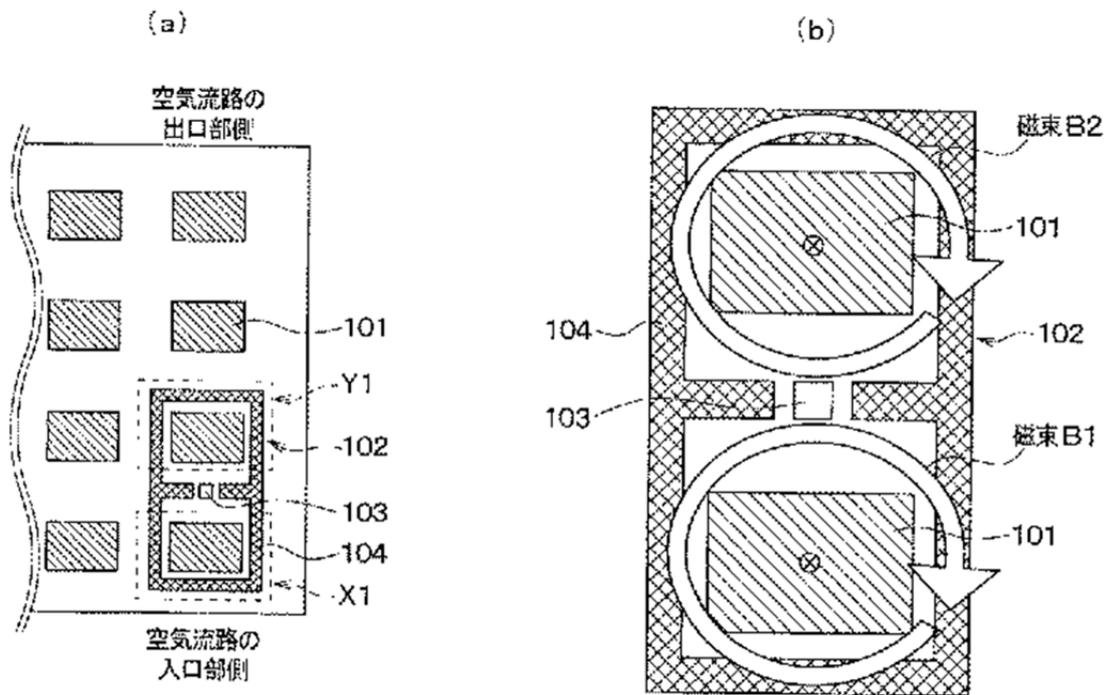


図 2-13 センサ埋め込み概要図[89]

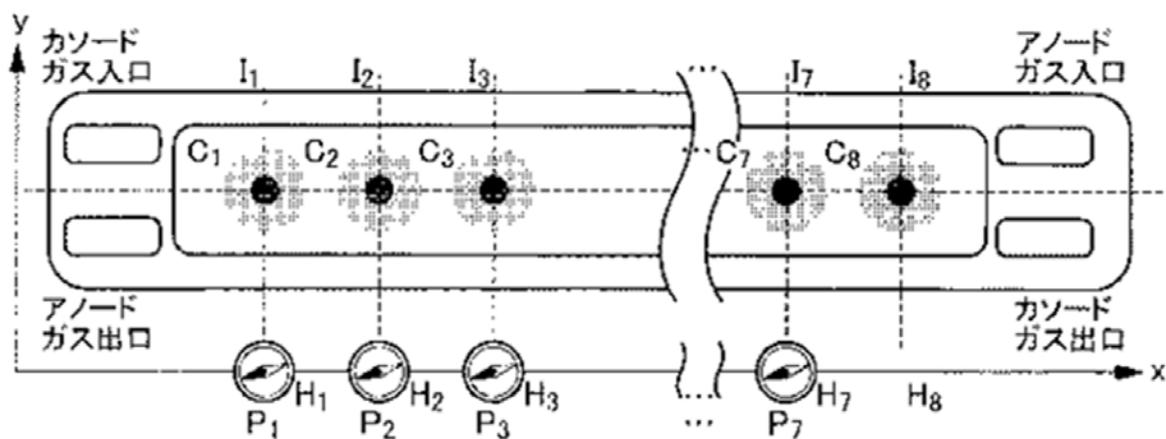


図 2-14 セル内の電流および磁場ベクトル[90]

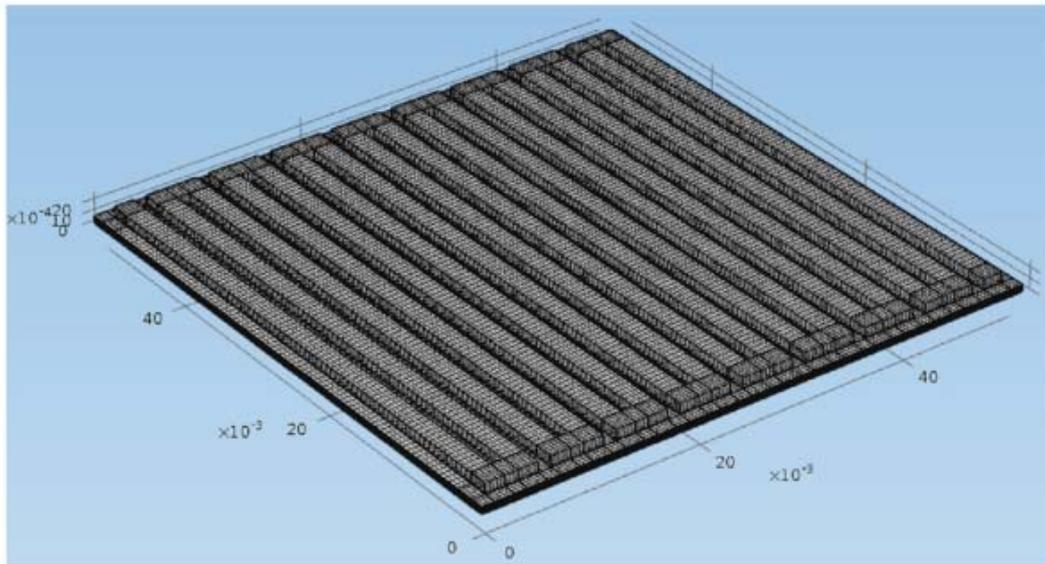
	ガス濃度分布	磁束密度測定(比較形態)	磁力線方向測定(本実施形態)
アノードガス濃度が出口側で低い場合	<p>(A-1)</p> <p>カソードガス入口 アノードガス濃度 アノードガス入口</p> <p>低 ← 高</p> <p>アノードガス出口 カソードガス出口</p> <p>電流密度</p> <p>アノードガス出口 アノードガス入口</p>	<p>(B-1)</p> <p>アノードガス濃度</p> <p>低 ← 高</p> <p>測定点</p> $H = \frac{I}{2\pi r} \text{ [A/m]}$	<p>(C-1)</p> <p>アノードガス濃度</p> <p>低 ← 高</p> <p>測定点</p> $\theta = \arctan \left[\frac{\sum_{k=1}^n H_k \sin \alpha_k}{\sum_{k=1}^n H_k \cos \alpha_k} \right]$
カソードガス濃度が出口側で低い場合	<p>(A-2)</p> <p>カソードガス入口 カソードガス濃度 アノードガス入口</p> <p>高 → 低</p> <p>アノードガス出口 カソードガス出口</p> <p>電流密度</p> <p>カソードガス入口 カソードガス出口</p>	<p>(B-2)</p> <p>カソードガス濃度</p> <p>高 → 低</p> <p>測定点</p>	<p>(C-2)</p> <p>カソードガス濃度</p> <p>高 → 低</p> <p>測定点</p>

図 2-15 各ガス濃度における磁束密度、ベクトル変化[90]

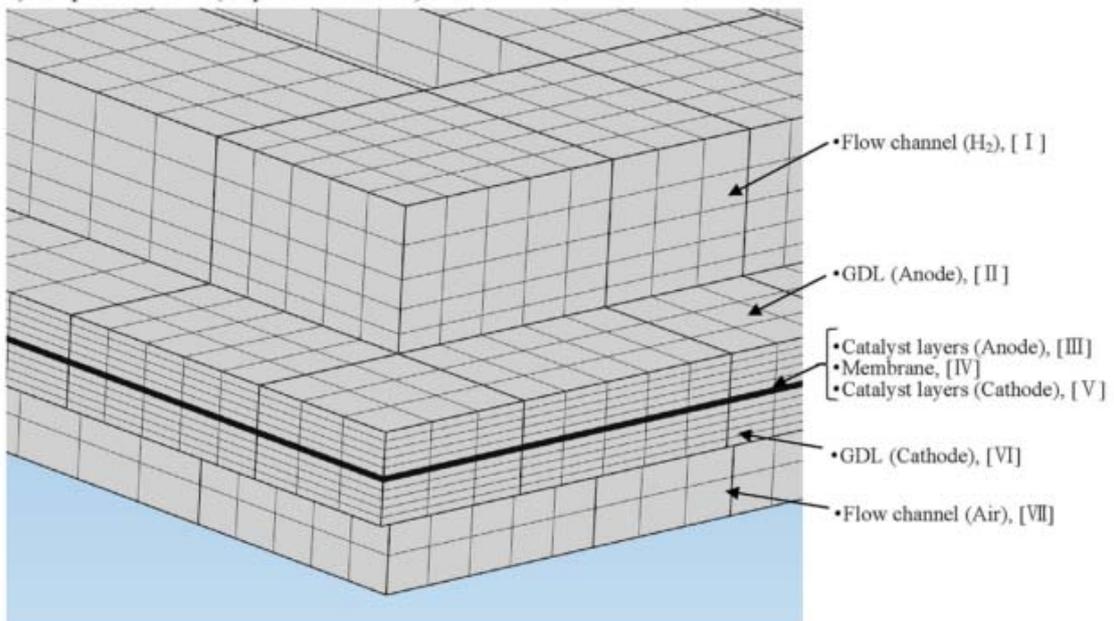
2.4.3 燃料電池シミュレーション

燃料電池の構造や内部状況などをシミュレーションにより再現することは広く行われてきた。Cheddie ら[66]のレビューによれば、前述の電流電圧曲線を再現することや機械的な分析シミュレーションが行われており、スタックレベルの研究は少なかった。多くの研究が Ding ら[91]のように1、2次元の流路内水分を再現することであった。しかし、コンピューターの進化に伴い、3次元の分析やスタックの分析も行われるようになった。また、3次元の分析が可能になったことで、セルにおけるさまざまな流路や燃料、内部水路状況を再現できるようになった。燃料電池は機械、電気、化学、流体力学などさまざまな物理現象が相互に関係するため、シミュレーションにおいてもそれらを包括的に分析しなければならない。多くの研究機関や企業などにおいて3次元有限要素法(3 Dimension Finite Element Method: 3DFEM)シミュレーションソフトを用いて分析している。図 2-16 は、3次元有限要素法による燃料電池モデルである。四面体や六面体などにより構成される有限個の要素に分割され、各要素面、線、頂点について計算される。Kwon ら[92]はシミュレーションにより図 2-17 のように各セル電圧における電流分布を導出し統計分析によって評価を行った。分析指標としては、中央値、分位数、最大値、最小値、平均、標準偏差、分散、歪度、尖度を用いている。歪度はデータ分布が左右均等あるいはどこかで鋭くなることを示すのに用いられる。正規分布が左右対称な分布の一つである。一方、尖度は分布がフラット、突き出ているかを示す指標である。尖度が正のとき、データの中央は正規分布に比べ高い値を示していることになる。負の場合はその逆になる。尖度が 0 のときは正規分布のことである。結果として、水の分布と水素濃度のデータは正規分布を示し、統計値がイメージデータを分析するのに適しているとした。また電圧レンジの尖度が-1 になるところがオーム損の支配的な領域と似ていることを示した。そのほか、高温燃料電池のモデル化[93][94]や燃料電池モデリング[95]、各フローパターンにおける分布の推定[96]、流路長による性能の違い[97]などが行われている。

一方、前述の先行研究やシミュレーション評価の多くは、ある条件を与え、それにより導出された解を導くことを行っている。そのため、実際の燃料電池内部現象を再現できていない可能性が考えられる。したがって、実測値に基づいたシミュレーションによって、再現性を高める必要がある。

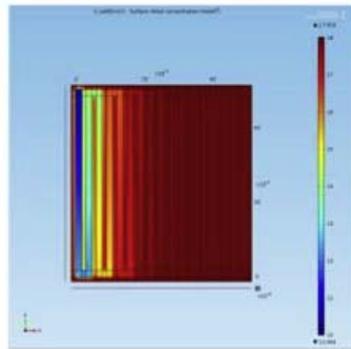


a) Shape of domain (serpentine channel)

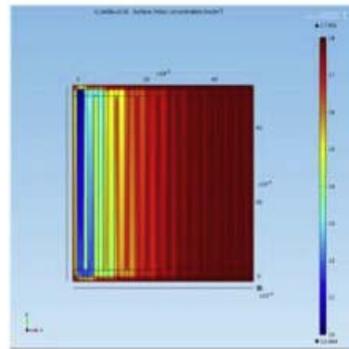


b) Domain area and mesh shape

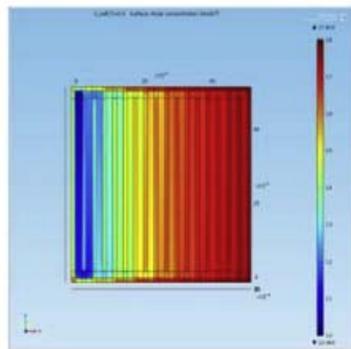
図 2-16 3次元有限要素法シミュレーションによる燃料電池流路再現モデル[92]



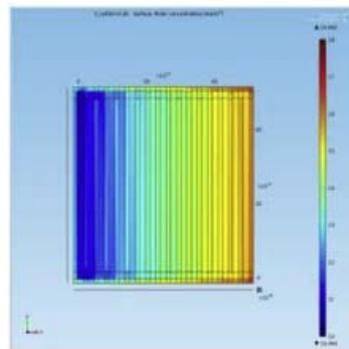
a) distribution at 0.5 V



b) distribution at 0.55 V



c) distribution at 0.6 V



d) distribution at 0.65 V

図 2-17 3次元有限要素法シミュレーションによる電流分布評価[92]

2.5 まとめ

本章では、まず燃料電池の不具合に関する先行研究を示した。燃料電池の不具合としてはフラiddiingやドライアウトがあり、一般的なシステムにおいて測定している電流、電圧、流量、温度といったパラメータでは診断が難しいこと、そして電流遮断法など従来の診断手法はシステム搭載に適さないため、新たな不具合判別、制御の指標が必要であると考えた。

診断方法として、まず分極評価方法の中でもフィッティングモデルを用いた解析方法について示した。この方法は、実在する燃料電池の現実的な運転条件に対しては有益とされている。しかし、先行研究のモデルにおいて、燃料電池の運転方法が一定など、システムと一致しない点がある。続いて、診断方法として電流分布の測定方法について示した。燃料電池はセル面で発電するため、面内各部において条件が異なり発電量がばらつく。これまでは主に接触型(Invasive)により測定が行われていたが、非破壊型(Non-invasive)において、スタックの各セル面内部状況の把握が可能な手法が必要である。またシミュレーションによっても電流分布は評価されているが、磁場の実測値を用いた評価はなされていない。

そこで、本研究では、実際のシステムに適応し得る非破壊診断技術を開発する。開発手法はフィッティング評価式による分極特性解析手法と磁気センサを用いた非破壊電流分布計測評価手法である。前者は、先行研究においての問題点であった燃料電池の運転温度を反映することとする。また後者は、先行研究においてなされていない、各セルの園内出力低下箇所、低下のプロセス、そしてシミュレーションによる要因推定を行うものとする。

第3章 分極解析手法および電流分布計測評価手法

3.1 フィッティング評価モデル

本研究では、実際の燃料電池システムへの搭載を目的としたフィッティング評価モデルを提案する。今回対象とする燃料電池は空冷スタックである。実際のシステムでは、低電流域において運転温度はファン動作温度より低くなる。運転温度がファン動作温度以上になると、ファンにより空冷され運転温度は一定に保たれる。したがって、本研究の評価モデル式は、動作温度を変数とすること、そしてシステムに搭載でき素早く出力低下を判断できることが重要である。

3.1.1 理論電圧

固体高分子形燃料電池において、理論電圧は熱力学的なポテンシャルと等価であると先行研究[56]ではしている。燃料電池の電圧は温度、圧力などによって異なる。まず Gibbs の自由エネルギーは

$$\left(\frac{dG}{dT}\right)_p = -S \quad (3.1)$$

G : Gibbs の自由エネルギー

S : エントロピー

V : 容積

T : 温度

となる。これをモルあたりで考えると

$$\left(\frac{d(\Delta\hat{g})}{dT}\right)_p = -\Delta\hat{s} \quad (3.2)$$

$\Delta\hat{g}$: モルあたりの Gibbs の自由エネルギー

$\Delta\hat{s}$: モルあたりの温度と独立なエントロピーとなる。

また、Gibbs の自由エネルギーは

$$\Delta\hat{g} = -nFE \quad (3.3)$$

n : 反応に寄与する電子数

F : ファラデー定数

E : 標準状態における可逆電圧

と表せることから、

$$\left(\frac{dE}{dT}\right)_p = -\frac{\Delta\hat{s}}{nF} \quad (3.4)$$

とすることができる。以上より、温度 T における一定圧力下における電圧は

$$E_0 = E + \frac{\Delta\hat{s}}{nF}(T - T_0) \quad (3.5)$$

T_0 : 標準状態温度

となる。燃料および酸化剤ガス圧力が両方で一定でない場合、Gibbs の自由エネルギーに拡散、濃度に関する考慮をしなければならない。一般的な水素と酸素による燃料電池の場合、一定温度化における Nernst の式は

$$E_0 = E - \frac{RT}{nF} \ln\left(\frac{a_{\text{H}_2\text{O}}}{a_a \cdot a_c^{1/2}}\right) \quad (3.6)$$

R : 標準状態における気体定数

$a_{\text{H}_2\text{O}}$: 水の活量

a_{H_2} : 水素の活量

a_{O_2} : 酸素の活量

となる[57]。

温度や圧力、アノードカソードでの活性を考慮した Nernst の式は式(3.5)および式(3.6)により以下のようなになる。

$$E_0 = E + \frac{\Delta\hat{s}}{nF}(T - T_0) - \frac{RT}{nF} \ln\left(\frac{a_{\text{H}_2\text{O}}}{a_a \cdot a_c^{1/2}}\right) \quad (3.7)$$

本研究では先行研究[56]で用いられた以下の値に基づき計算を行う。 $E = 1.229 \text{ V}$ 、 $\Delta\hat{s} = -163.23 \text{ J/mol K}$ 、 $n = 2$ 、 $F = 96485.35 \text{ C/mol}$ 、 $T_0 = 298.15 \text{ K}$ 、 $R = 8.314 \text{ J/mol K}$ 、 $a_{\text{H}_2\text{O}} = 1$ 、 $a_a = 0.1$ 、 $a_c = 0.21(\text{Air})$ or $1(\text{O}_2)$ 。

3.1.2 活性化分極

活性化分極は Butler–Volmer の式より

$$\eta_{act} = -\frac{RT}{\alpha nF} \ln(i_0) + \frac{RT}{\alpha nF} \ln(i) \quad (3.8)$$

i_0 : 交換電流密度

i : 燃料電池出力電流密度

と表せる。この式は活性の状態変化に伴う正味電流

$$i = i_0 \exp\left(\frac{\alpha nF \eta}{RT}\right) \quad (3.9)$$

を変形した式である。先行研究[59], [61]においては、運転温度一定であるため、交換電流密度を定数とし

$$\eta_{act} = b + a \ln(i) \quad (3.10)$$

としていた。これは前述の Tafel の式(2.1)と同じである。

しかし、温度変数を含めた交換電流密度[57]は

$$i_0 = nFfc_R^* \exp\left(\frac{-\Delta G}{RT}\right) \quad (3.11)$$

f : 生成遅れ速度

c_R^* : 反応表面濃度

ΔG : Gibbs の自由エネルギー

であるため、温度 T の変数として Gibbs の自由エネルギーについても考慮すると以下の式となる。

$$\begin{aligned} \eta_{act} &= -aT \left[\ln(c) - \frac{\Delta G}{RT} - \ln(i) \right] \\ &= T \left[b + a \ln(i) \right] + \frac{\Delta G}{R} a \end{aligned} \quad (3.12)$$

$$\left[bT + \frac{\Delta G}{R} a \right] + aT \ln(i) = B + A \ln(i) \quad (3.13)$$

a, b : フィッティングパラメータ

A, B : 先行研究式との比較のためのパラメータ

なお、本研究では Gibbs の自由エネルギー $\Delta G = 237.2 \text{ kJ/mol}$ [23]とした。

3.1.3 抵抗分極

抵抗分極はオームの法則より

$$\eta_{ohm} = R_{ohmic} \cdot i \quad (3.14)$$

R_{ohmic} : 燃料電池の内部抵抗

で表される。

内部抵抗は、以下のように

$$R_{ohmic} = R_{ionic} + R_{elec} \quad (3.15)$$

R_{ionic} : イオン移動抵抗

R_{elec} : 電荷移動抵抗

に分けることができる。

一般的に抵抗値は

$$R = \frac{L}{\sigma S} \quad (3.16)$$

σ : 伝導度

で表され、イオン、電荷の伝導度はそれぞれ、 10^6 、 10^0 S/cm [57]程度になると考えられる。

これはイオンの移動が電荷の移動に比べ難しいことに起因し、内部抵抗に占めるイオン伝導に関する抵抗 R_{ionic} は支配的である。このことから本研究では

$$R_{ohmic} \cong R_{ionic} \quad (3.17)$$

とする。イオン伝導度と温度の関係は理論的[57][98][99]に与えられ

$$\sigma T = A \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (3.18)$$

$$\ln(\sigma T) = \ln(A) - \frac{E_a}{RT} \quad (3.19)$$

E_a : プロトンの伝導に関わる活性化エネルギー

で表される。 A は先行研究により $\ln(A) = 10.8$ S/K cm [98]と示され、 E_a は 34.6 KJ/mol [99]と実験により求められている。

つまり、イオン伝導度は

$$\sigma = \frac{\exp(10.8 - 4.162 / T)}{T} \quad (3.20)$$

となる。したがって、抵抗分極は基準温度 T_0 のときの内部抵抗を $R_{ohmic}(T_0)$ 、イオン伝導度を σ_0 とすると

$$R_{ohmic(T)} = \frac{\sigma_0}{\sigma} R_{ohmic(T_0)} \quad (3.21)$$

と表すことができる。

3.1.4 濃度分極

濃度分極は反応濃度減少による損失であるため、流路における濃度(バルク濃度)と触媒層における濃度差を計算しなければならない。理論的には、Nernst 損失および反応損失を考慮する必要がある[57]。Nernst 損失は Nernst 式による電圧降下、反応損失は触媒反応減少による発電量(電流)低下を指す。まず、Nernst の式により、バルク濃度と触媒層濃度の差によるネルンスト損失は

$$\eta_{mass} = E_{Nernst}^0 - E_{Nernst}^* = \frac{RT}{nF} \ln \left(\frac{c_R^0}{c_R^*} \right) \quad (3.22)$$

c_R^0 : バルク濃度

c_R^* : 反応濃度

となる。これらは、反応物拡散と電流の関係式

$$i = nFD^{eff} \frac{c_R^* - c_R^0}{\delta} \quad (3.23)$$

D^{eff} : 反応物拡散性

δ : 触媒層厚さ

により限界電流密度 i_L を用いて、式(3.23)は以下のように表すことができる。

$$\eta_{mass} = \frac{RT}{nF} \ln \left(\frac{i_L}{i_L - i} \right) \quad (3.24)$$

上式のように、濃度分極は理論的に対数となる。しかし、一般的な理論式では燃料や生成水の拡散を考慮しておらず、また実際の状況を式で表すことが難しい。図 2-6 にあるように、実際は、生成水の滞留などに反応が阻害され徐々に分極が上昇していく。そのため、実験結果から示される経験的な濃度分極は指数関数で表すことが一般的である[59]。経験的な濃度分極は以下の式で表される。

$$\eta_{mass} = m \exp(n \cdot i) \quad (3.25)$$

m 、 n : 濃度分極に関するフィッティングパラメータ

この式は、多くのフィッティング評価試験において濃度分極式として用いられており、先行研究[60]の計測により

$$m = 1.1 \times 10^{-4} - 1.2 \times 10^{-6} (T - 273.15) \text{ for } T > 312.15 \text{ K} \quad (3.26)$$

$$m = 3.3 \times 10^{-3} - 8.2 \times 10^{-5} (T - 273.15) \text{ for } T < 312.15 \text{ K} \quad (3.27)$$

と温度の関数となることが示されている。本研究ではこの計測結果を用いる。

3.1.5 フィッティング評価モデル式まとめ

以上より、運転温度 T の関数のモデル式は

$$\begin{aligned} V &= E_0 - \eta_{act} - \eta_{ohm} - \eta_{mass} \\ &= E_{0(T)} - T \left[-b + a \ln(i) \right] - b \frac{\Delta G}{R} - R_{ohmic(T)} \cdot i - m_{(T)} \exp(n \cdot i) \quad (3.28) \end{aligned}$$

となる。各項に運転温度をとること、燃料電池の 3 つの分極特性を反映するための最小パラメータとしたことが特徴である。本研究ではこのモデルにおいて、先行研究モデルとの比較やさまざまな運転条件におけるパラメータの変化から提案モデル式について考察する。

3.2 磁気センサによる電流分布評価

PEMFC はセル面で発電しており、面内各所では燃料ガス濃度、温度、湿潤状態等によって発電に不均一性が生じる。過度の不均一性は膜など部品の偏った劣化や発電量低下を招く。電流の周囲には磁場ができるため、磁場を測定することで電流の偏りを明らかにでき、また電流の分布状況の評価することができる。そこで、本研究では磁気センサを用いてスタックの磁場分布を測定、評価する。

3.2.1 磁場測定装置

本研究で用いる磁場測定装置は、磁気センサと磁場取得プログラム、PC インターフェースから構成され、自身が博士前期課程時に開発した装置である。以下に各構成を説明する。

磁気センサは磁場(磁界)の大きさ・方向を測定することを目的としたセンサである。測定対象磁場の強さ、交流・直流の別や測定環境等、目的に応じて多種多様な磁気センサが存在する。本研究では、感度レンジ、耐熱性、素子サイズを考慮し Magneto-Impedance(MI)センサを採用した。MI センサは磁気インピーダンス現象を応用したもので、超小型化が可能という特徴を持つ。主な用途としては携帯電話などのモーションセンサとして用いられ、また生体磁気など医療分野にも応用が検討されている。

本研究で用いる磁気センサはアイチマイクロ社製 AMI306[100]である。図 3-1 にブロック図および動作測定可能範囲について示す。AMI306 は 3 方向の磁気を感知するための MI センサとそのセンサを動作させるための制御用 IC を集積化した電子コンパスである。制御用 IC は 3 個の MI センサからの磁気信号を検出するための専用回路、センサの原点(オフセット調整)と感度調整を行う増幅器、周囲温度を測定できる温度センサ、12bitAD コンバータ、I2C シリアル出力回路、定電圧回路、回路制御用ロジック回路を持っている。ピン数は 10 ピン、電源電圧はアナログ回路(磁気センサ部)電圧 VDD が 5 V まで、デジタル回路電圧 VID が 4 V までである。入出力インターフェースとして I2C インターフェースを用いている。アドレスは 7 bit により構成されている。センサのほか、I2C 通信ホストおよび AVDD-GND 端子間 1.0 μ F、DVDD-GND 端子間 0.01 μ F のバイパスコンデンサを必要であり、プローブ上にこれらは搭載される。AMI306 の磁気特性は図 3-1(b)に示すように動作範囲が ± 3 G、測定可能範囲が ± 12 G(オフセット調整含む)、磁気感度が 600 LSB/G (温度変化率 -7~+5 %)、方位分解能が ± 0.9 degree、正確さが ± 0.6 degree である。LSB とは、Least Significant Bit の略で、2 進数データの最下位ビットのことである。つまり、AD 変換時の最小値を指す。このことから最小磁気感度は 1LSB あたりの磁気感度となるため、前述の逆数である 1.6 mG となる。

I2C (Inter-Integrated Circuit) はフィリップス社が提唱した周辺デバイスとのシリアル通信で比較的近距離のデバイス間情報伝達を行うためのインターフェースである。特徴として

Serial Clock と Serial Data の 2 本の信号線のみで通信できることやマスタとスレーブによる通信、マルチマスタが可能なが挙げられる。

AMI306 の磁束密度測定のための命令および値出力は、HOST 側から電源を供給する。続いて、センサをアクティベート、計測モードの設定を行う。そして、AMI306 に計測命令を行い、読み取り命令によって値を得る、というロジックで行われる。

出力値は LSB 形式となっている。そのため磁束密度[mG]に変換し、電流との関係を導出しなければならない。センサ出力値を B_{LSB} [LSB] とすると磁束密度 B [mG] 導出式は

$$B = \frac{B_{LSB}}{SENS} \times 1000 \quad (3.29)$$

である。 $SENS$ [LSB/G] は各センサのもつ固有値で x 軸 = 0x96、0x97、 y 軸 = 0x98、0x99、 z 軸 = 0x9A、0x9B に格納されている。多くのセンサで同程度の値が格納されており、この差は製造段階の検定試験時に格納される値である。 $SENS$ 値はオフセット調整やその他の書き込みによって変化しない。

図 3-2、図 3-3 に博士前期課程時に開発した測定装置概要を示す。また、図 3-4、図 3-5、図 3-6 にプログラム概要について示す。センサには DC3.3V が供給され、磁場出力値は National Instruments 製 I2C インターフェース NI-USB8451 を通り、PC に表示、保存される。本研究はプログラミング言語として Labview を用いている。IO ポートやクロック周波数、通信するための各アドレスを指定することで、フォルダに測定値が保存される。磁気センサによる磁場測定は図 3-7、図 3-8 のように燃料電池の冷却口にセンサプローブを挿入することで行う。挿入したセンサを任意位置に固定し、その地点の磁場を測定する。

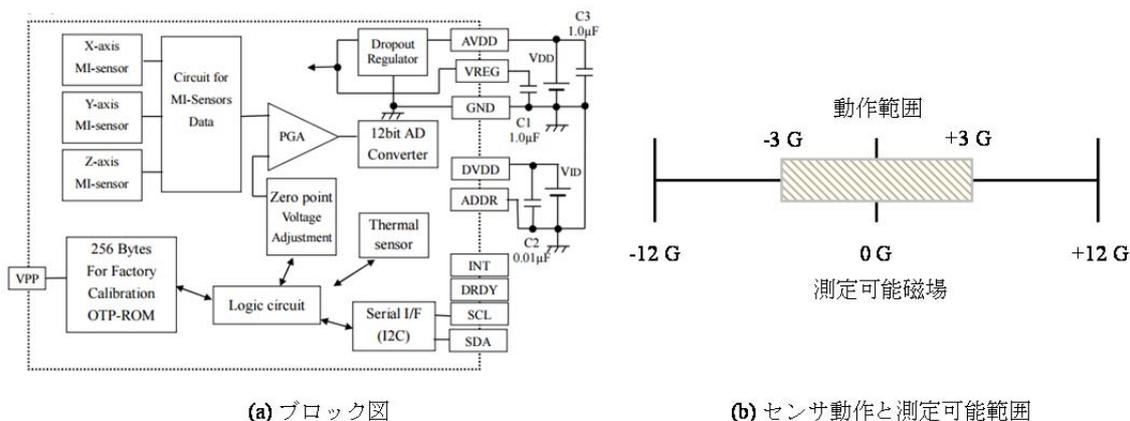


図 3-1 AMI306 のセンサブロック図および動作、測定可能範囲[100]

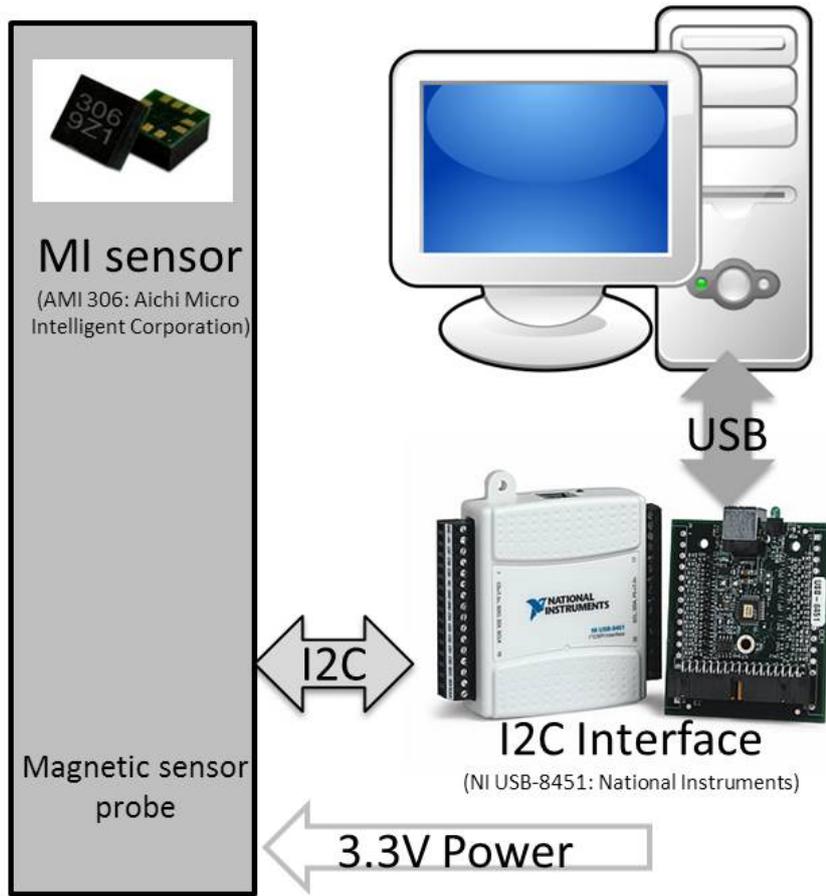


図 3-2 磁場測定装置概要図

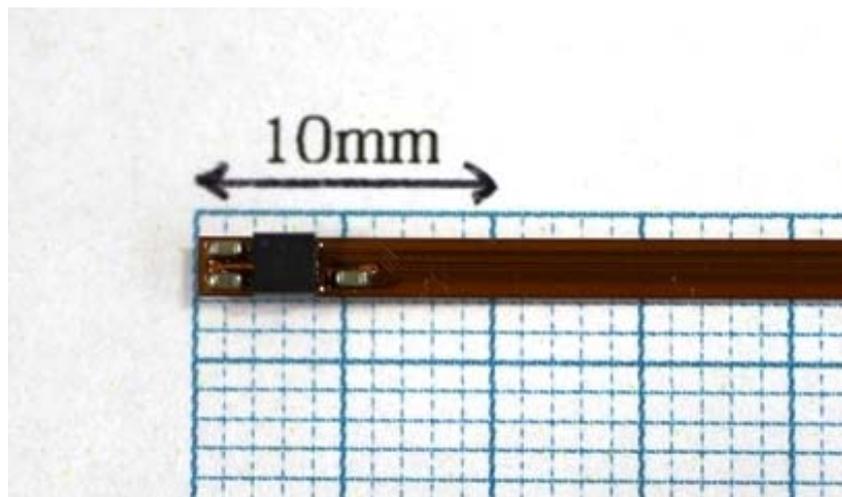


図 3-3 センサプローブ拡大図

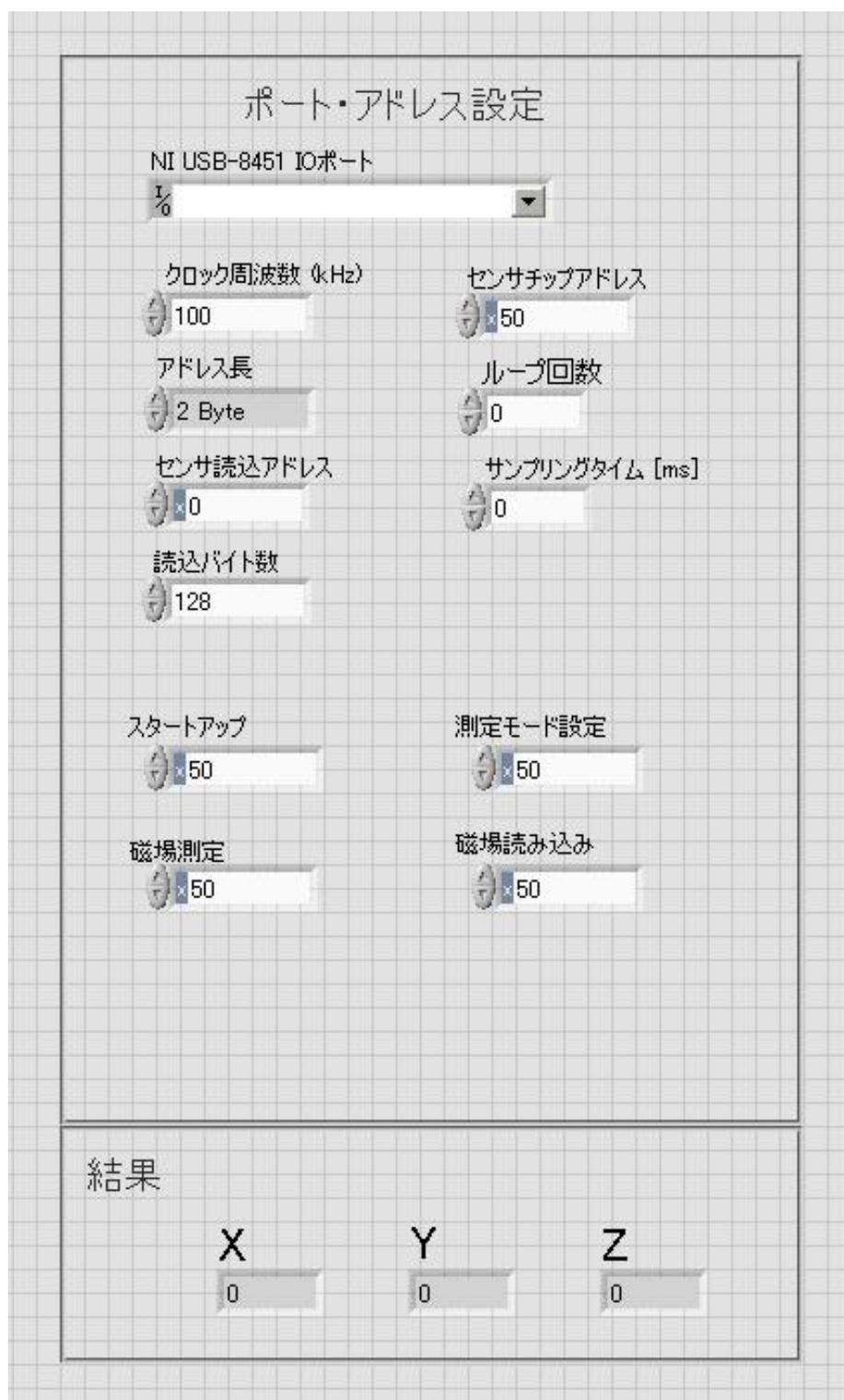


図 3-4 Labview を用いた磁場測定インターフェース

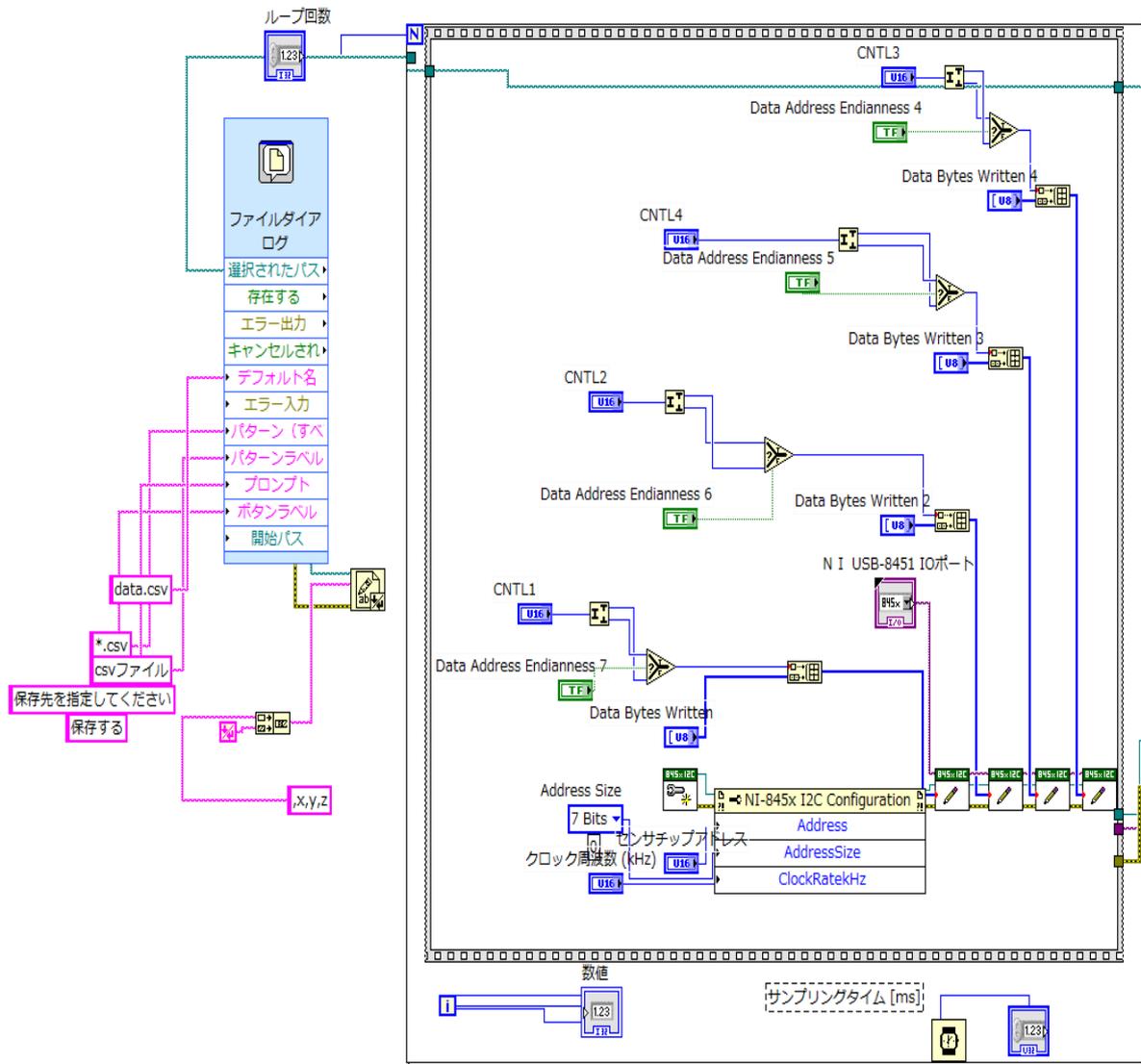


図 3-5 磁場測定書き込み命令プログラム

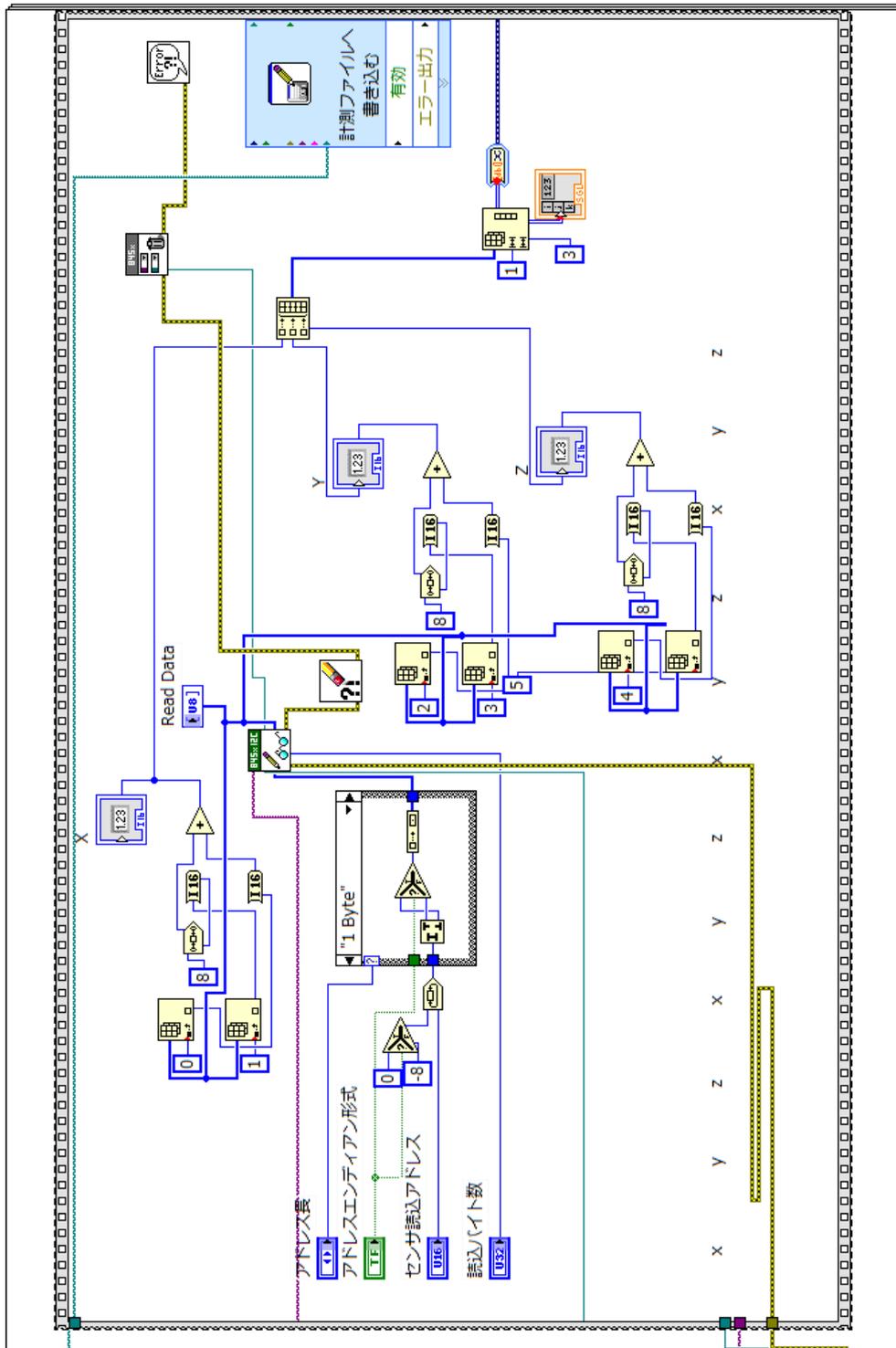


図 3-6 磁場測定読み込み命令プログラム



図 3-7 冷却口へのセンサ挿入図(Under View)

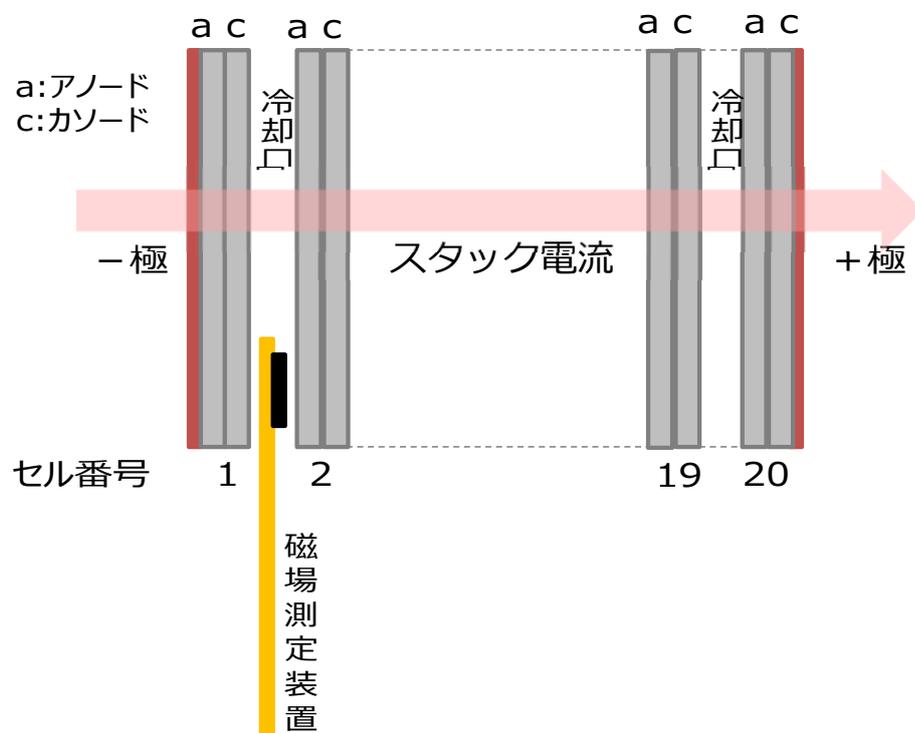


図 3-8 冷却口へのセンサ挿入図(Side View)

図 3-9 に博士前期課程時に行った磁気センサからの出力値と電流値の相関についての検定試験概要および図 3-10 に固定方向について示す。ビオサバール法則よりセンサの位置が同じであれば、距離一定であるため磁束密度は電流に対して比例関係になる。図 3-9 に示すように安定化電源を用いて直流電流を銅線に流し、銅線に流れる電流と磁気センサから出力される磁場の相関性について検証した。固定方向は図 3-10 のようにセンサの磁場出力が x 、 y 、 z になるように設定した。

図 3-11 に磁場応答特性を示す。 x 、 y 、 z 軸とも安定化電源から出力される電流値の増加に対して設定した軸と一致した磁束密度が線形に増加している。各軸における傾きの差は、製造時の MI センサの各軸の磁気感度が異なることによるものと推測される。それぞれの傾き α は α_x 、 α_y 、 $\alpha_z = 757$ 、 813 、 867 となり、この値を用いて換算電流値を求める。また、Input 方向以外の軸磁場出力が変化した要因として、測定時に Cu 線との距離や軸とのズレなどの測定誤差および測定感度によるものと推測される。Input 方向とその方向からのズレは合計 7.0% となった。つまり、本装置には測定による誤差が 7.0% 存在すると考えられる。図 3-12 に y 軸において、0.5 A ごと 6 A まで測定を行った結果を示す。AMI306 の磁場測定レンジは ± 3 G となっており、それ以上の磁場測定においてはオフセット調整が必要である。今回の結果から 4 A 付近にて +3 G に達することが明らかとなった。

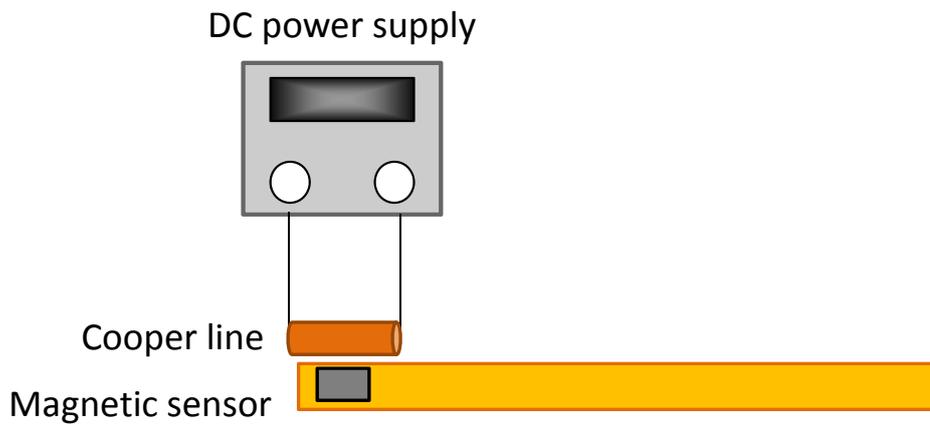


図 3-9 検定試験概要図

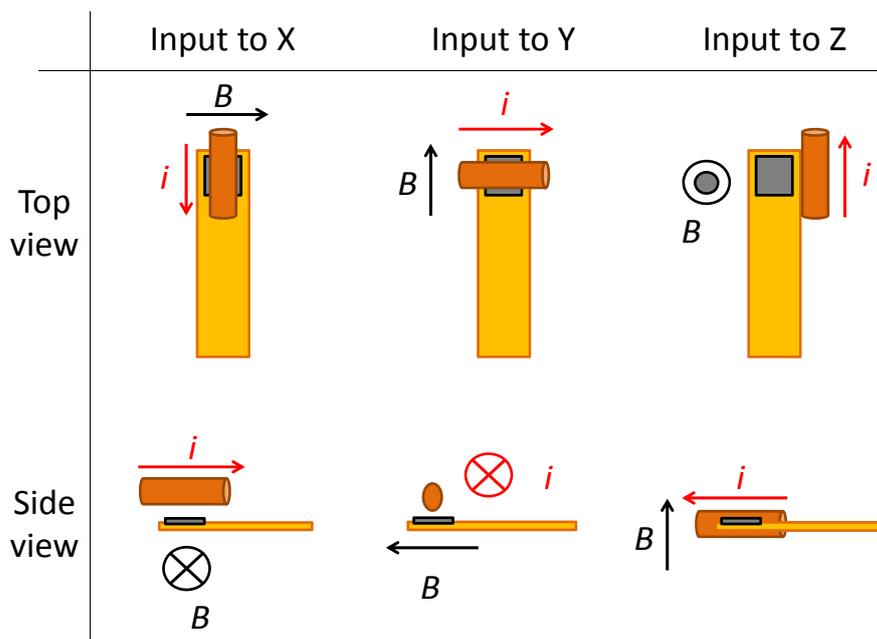


図 3-10 検定試験時センサ固定方向

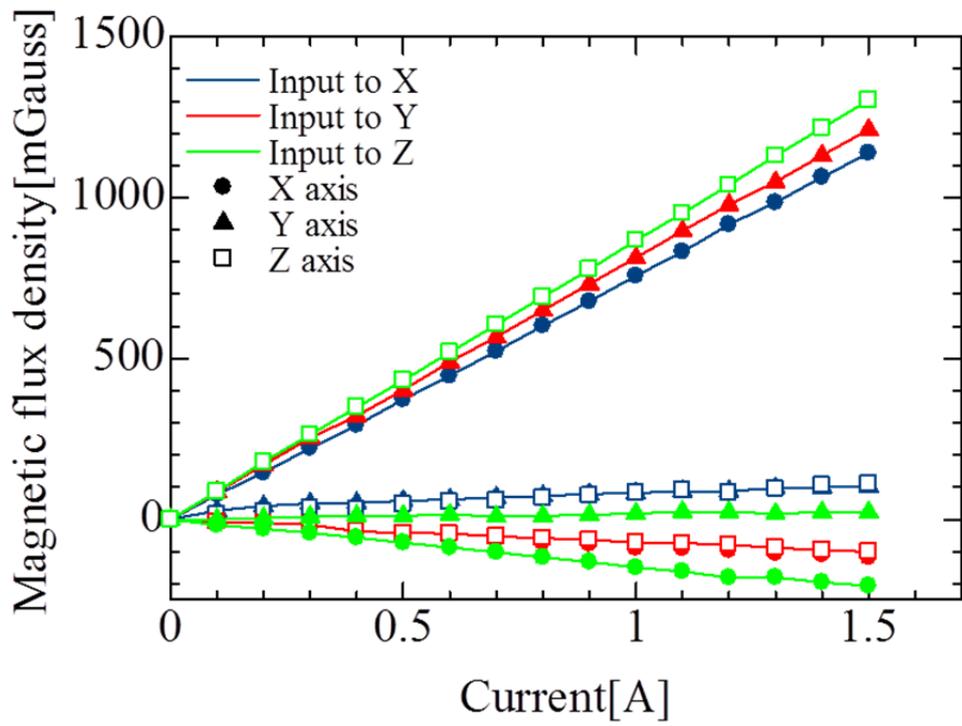


図 3-11 磁場応答特性

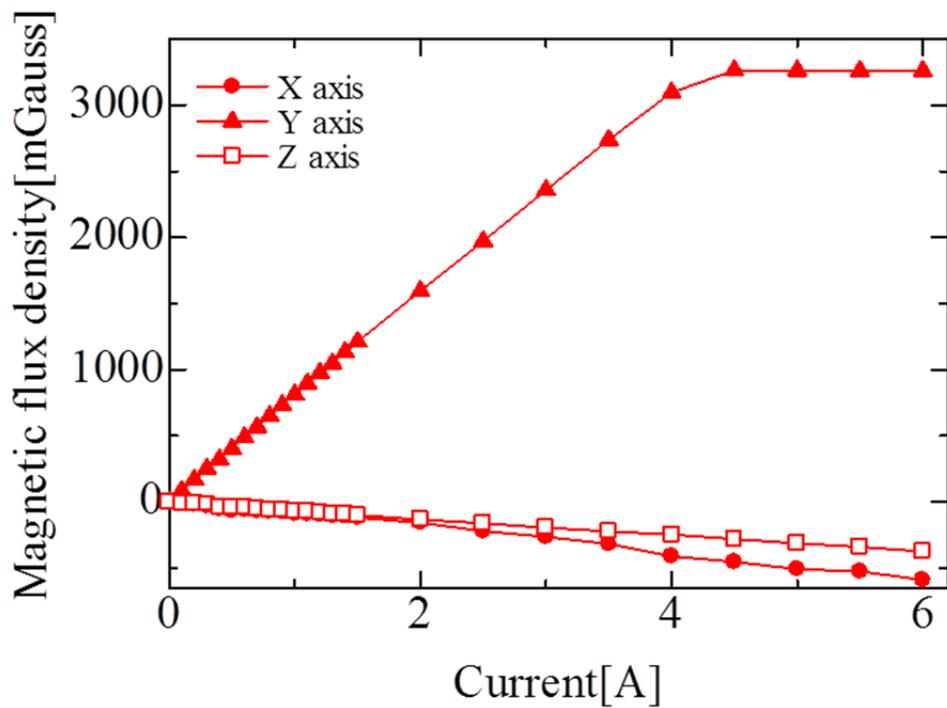


図 3-12 磁気センサ測定範囲に関する特性

3.2.2 電流算出式

磁束密度から電流分布への換算は、まず磁束密度から検定試験によって得られた傾き α を用いて図 3-13 に示す冷却口からアノード面の各地点の分割区域ごとの面内電流密度を行った。測定点は $x=9, 27, 45, 63, 81$ mm、 $y=9, 27, 45$ mm の計 15 点である。ある j 点における n [A] のときの電流密度換算値 i_{jn} [A/cm²] の計算式は

$$i_{jn} = \frac{\sqrt{i_{xn}^2 + i_{yn}^2}}{S} \quad (3.30)$$

$$i_{xn} = \frac{1}{\alpha_x} (B_{xn} - B_{x0}) \quad (3.31)$$

$$i_{yn} = \frac{1}{\alpha_y} (B_{yn} - B_{y0}) \quad (3.32)$$

となる。 B_{x0} は 0 A 時の磁場測定装置から出力される磁束密度[G]、 B_{xn} は n [A] 時の磁場測定装置から出力される磁束密度[G]、 α は電流に対する磁場の傾き、 S は測定面積である。図 3-14 に示すように、本研究では x 方向はセル横方向、 y 方向はセル高さ方向、 z 方向はセル積層方向になる。アンペールの法則により、セル横方向、高さ方向の磁場は燃料電池の発電電流に対応する。セル積層方向の磁場は、セル表面に流れる電流に対応する。つまり、不具合などによりセル表面に迂回する電流を示している。本研究ではこの積層方向の相対磁場 B_z' を不具合診断の指標となると考え、以下の式で定義する。

$$B_z' = \frac{B_z^2}{B_x^2 + B_y^2 + B_z^2} \quad (3.33)$$

各電流密度の総計が発電電流と一致するように以下の補正を行った。

$$i'_{xn} = i_{xn} \times \frac{I}{i} \quad (3.34)$$

$$i'_{yn} = i_{yn} \times \frac{I}{i} \quad (3.35)$$

$$i = \sum_{j=1}^{15} i_{jn} \quad (3.36)$$

i'_{xn} は磁場の補正電流換算値 x 成分、 i'_{yn} は磁場の補正電流換算値 y 成分、 I は スタック電流値、 i は 電流分布の総和である。

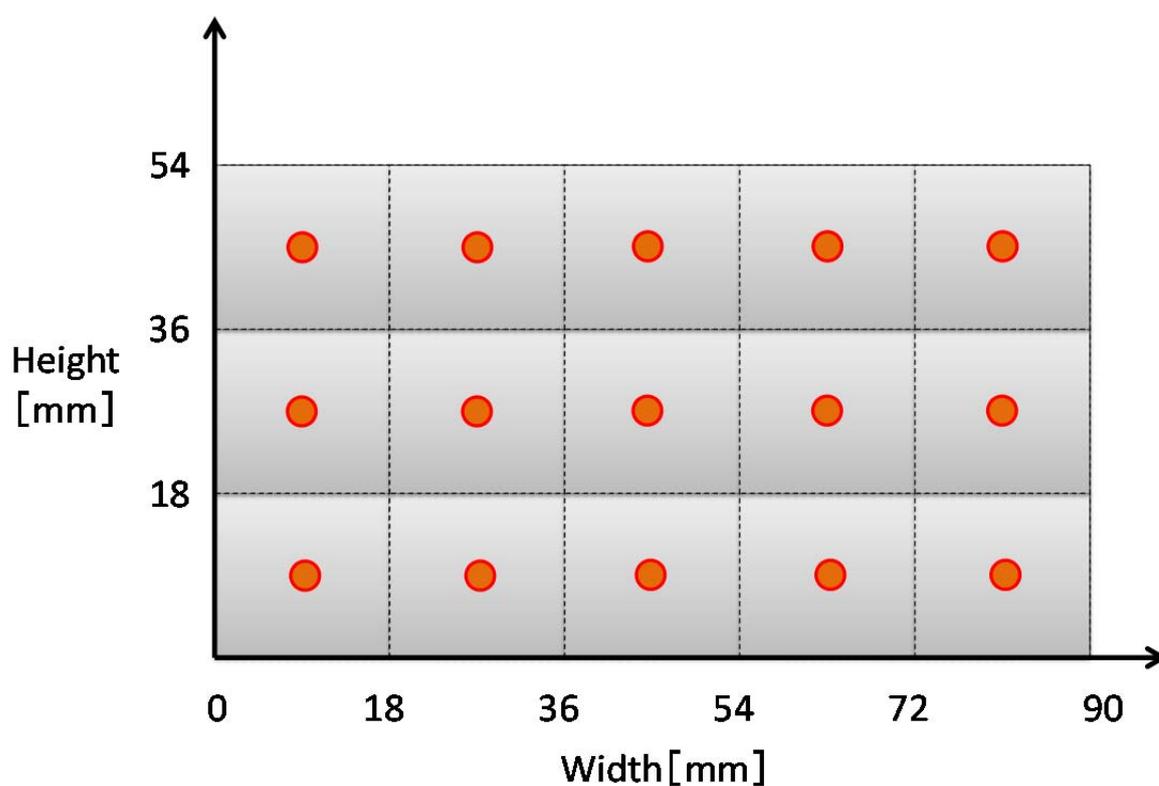


図 3-13 面内電流密度の分割区域

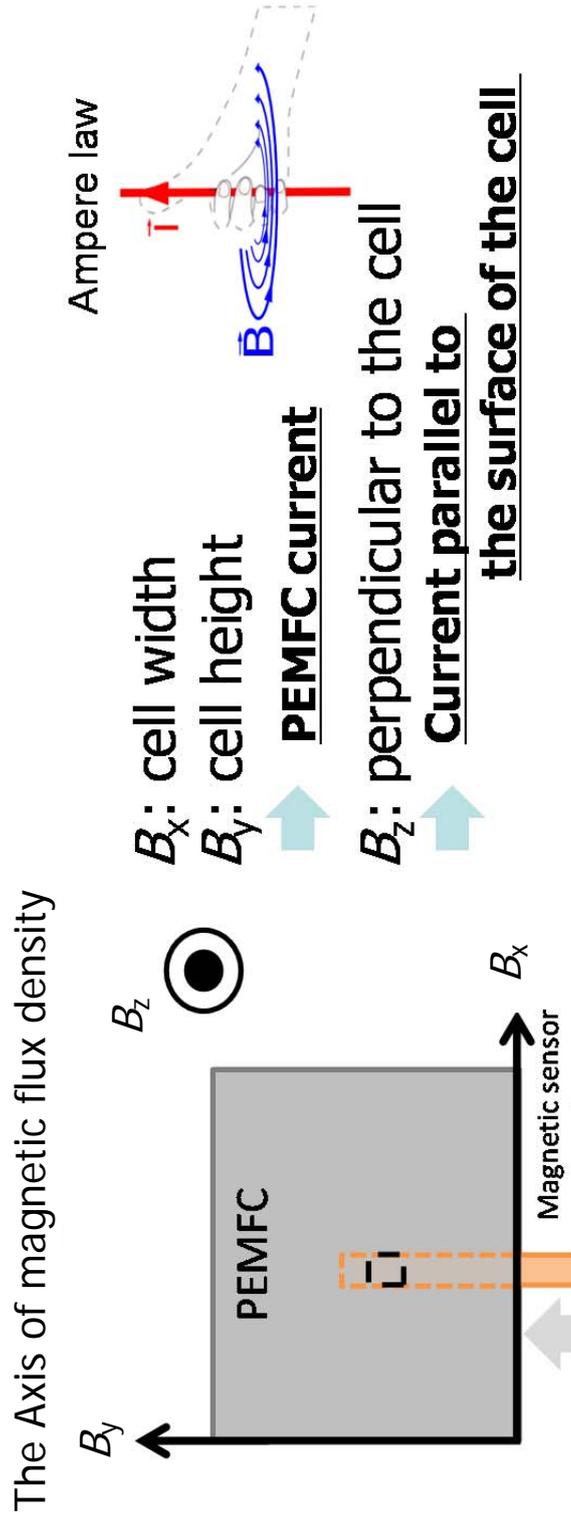


図 3-14 磁場と電流方向の関係

3.3 磁場測定データを用いたシミュレーション

磁気センサと3次元有限要素法(3DFEM)を用いてMEA上の電流分布の予測を試みた。3次元磁場センサプローブは冷却口に挿入することで用いられる。磁場測定値は3DFEMシミュレーションによってMEAの電流分布に変換される。この手法は、非破壊、その場での診断を可能にする利点を持つ。以下に、評価方法について示す。

3DFEMは数学計算方法としてモーターや変圧器などで使われる。本研究では、MEAの電流分布に3DFEMを用いて磁場測定から変換している。まず、固体高分子形燃料電池をシミュレータ上で再現する。今回はMurata Software Femtetを用いた。スタックモデルを図3-15に示す。このシミュレーションでは、定電流のスタックモデルの磁場電流分布を評価する。しかし、今回のモデルでは流体力学や電気化学反応を考慮していない。なぜなら、Femtetにはその機能を含まないからである。続いて、PEMFCの電気伝導率を設定する。しかしMEAの電気伝導率は面内で一定ではなく各部を測定することが困難であるため、今回は図3-16のように25分割した。図3-17のように反復計算によって磁場測定値との差が最小となるようにMEAの電気伝導率を変更しながら決定する。電気伝導率を5パターンとすると、1セル25パターンなので、計250パターン(5×50)となる。この計算により、50のうちの1つの伝導率が決定する。これを、予測された電流分布は測定値とシミュレーション値の差が最小になるまで計算することで分布が決定する。つまり、目的関数 W_m は

$$W_m = \sum_{a=1}^{15} |B_a - B_{0a}| \quad (3.37)$$

B_a : 磁気センサによる測定値[G]

B_{0a} : シミュレーション結果[G]

となる。そして、反復計算の収束条件は

$$\text{When: } W_m > W_{m-1} \quad (3.38)$$

となる。プログラムソースについては付録に示す。

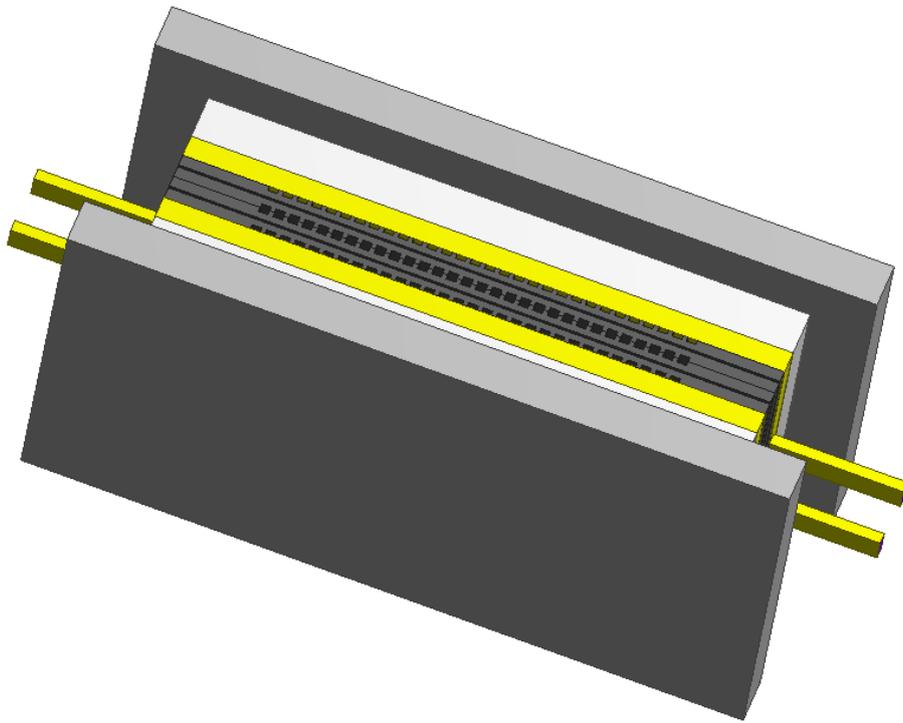


図 3-15 燃料電池スタックモデル

$\eta_{k,1}$	$\eta_{k,2}$	$\eta_{k,3}$	$\eta_{k,4}$	$\eta_{k,5}$
$\eta_{k,6}$	$\eta_{k,7}$	$\eta_{k,8}$	$\eta_{k,9}$	$\eta_{k,10}$
$\eta_{k,11}$	$\eta_{k,12}$	$\eta_{k,13}$	$\eta_{k,14}$	$\eta_{k,15}$
$\eta_{k,16}$	$\eta_{k,17}$	$\eta_{k,18}$	$\eta_{k,19}$	$\eta_{k,20}$
$\eta_{k,21}$	$\eta_{k,22}$	$\eta_{k,23}$	$\eta_{k,24}$	$\eta_{k,25}$

MEA conductivity: $\eta_{k,j} = 1 \times 10^9, 1 \times 10^7, 1 \times 10^5, 1 \times 10^3, 10$

Cell Number: $k = 1$ or 2

MEA Are Location: $j = 1 \sim 25$

図 3-16 シミュレーションにおける分割 MEA

MEA conductivity mapping

$\eta_{k,1}$	$\eta_{k,2}$	$\eta_{k,3}$	$\eta_{k,4}$	$\eta_{k,5}$
$\eta_{k,6}$	$\eta_{k,7}$	$\eta_{k,8}$	$\eta_{k,9}$	$\eta_{k,10}$
$\eta_{k,11}$	$\eta_{k,12}$	$\eta_{k,13}$	$\eta_{k,14}$	$\eta_{k,15}$
$\eta_{k,16}$	$\eta_{k,17}$	$\eta_{k,18}$	$\eta_{k,19}$	$\eta_{k,20}$
$\eta_{k,21}$	$\eta_{k,22}$	$\eta_{k,23}$	$\eta_{k,24}$	$\eta_{k,25}$

$m = 0$

MEA conductivity:

$$\eta_{k,j} = 10^9 \sim 10$$



$\eta_{k,1}$	$\eta_{k,2}$	$\eta_{k,3}$	$\eta_{k,4}$	$\eta_{k,5}$
$\eta_{k,6}$	$\eta_{k,7}$	$\eta_{k,8}$	$\eta_{k,9}$	$\eta_{k,10}$
$\eta_{k,11}$	$\eta_{k,12}$	$\eta_{k,13}$	$\eta_{k,14}$	$\eta_{k,15}$
$\eta_{k,16}$	$\eta_{k,17}$	$\eta_{k,18}$	$\eta_{k,19}$	$\eta_{k,20}$
$\eta_{k,21}$	$\eta_{k,22}$	$\eta_{k,23}$	$\eta_{k,24}$	$\eta_{k,25}$

Example of $m = 1$

($5 \times 50 = 250$ ways)



$\eta_{k,1}$	$\eta_{k,2}$	$\eta_{k,3}$	$\eta_{k,4}$	$\eta_{k,5}$
$\eta_{k,6}$	$\eta_{k,7}$	$\eta_{k,8}$	$\eta_{k,9}$	$\eta_{k,10}$
$\eta_{k,11}$	$\eta_{k,12}$	$\eta_{k,13}$	$\eta_{k,14}$	$\eta_{k,15}$
$\eta_{k,16}$	$\eta_{k,17}$	$\eta_{k,18}$	$\eta_{k,19}$	$\eta_{k,20}$
$\eta_{k,21}$	$\eta_{k,22}$	$\eta_{k,23}$	$\eta_{k,24}$	$\eta_{k,25}$

Example of $m = 2$

($5 \times 49 = 245$ ways)

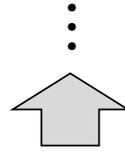


図 3-17 シミュレーションにおける計算フロー

3.4 まとめ

本章において、提案した手法を図 3-18 に示す。まず分極評価のためのフィッティング評価モデルについて提案した。評価モデルは、理論電圧、活性化分極、抵抗分極、濃度分極から成り立つ。理論電圧は Gibbs の自由エネルギーより温度、圧力、燃料活性を考慮した。活性化分極は Butler–Volmer の式より交換電流密度の温度変数を定数とせず運転温度を考慮した。抵抗分極は、電荷移動を主要因としオームの法則を基に先行研究の実験値などから導出した。濃度分極は理論的な導出した場合対数となるが、実験結果としては指数関数になることが多いことから、先行研究を基に導出した。各項に温度変数を含むことで運転温度が変化する場合においてもフィッティング評価モデルにおける分極評価が可能となった。これにより、運転温度が変化する実システムに搭載される燃料電池スタックにおいても出力低下要因を推定することが可能となった。

続いて、磁気センサによる電流分布評価方法について示した。開発した磁場測定装置は、MI センサを搭載した磁気センサプローブと磁場取得プログラム、PC インターフェースから構成され、これらは自身が博士前期課程時に開発した装置である。本章では各装置、プログラムについて示すとともに、磁場取得値と一方向電流の関係などを検定試験結果、磁場から電流密度を算出する式についても示した。今回用いたセンサの仕様上、最小磁場測定値が 1.6 mG、測定可能範囲が ± 3 G である。また、検定試験の結果により出力に対して 7.0% の測定誤差があることを示した。

最後に、磁場測定データを用いたシミュレーションについて示した。本手法は磁気センサと 3 次元有限要素法(3DFEM)を用いて MEA 上の電流分布の予測を試みるものである。このシミュレーションでは、定電流のスタックモデルの磁場電流分布を評価するために、MEA 各部の電気伝導率を設定し反復計算によって磁場を算出し、実験データと比較する。反復計算プログラムについては付録に示した。磁場測定による電流分布評価とシミュレーションにより面内の出力低下箇所やその経過プロセス、シミュレーションによる分布推定、要因評価が可能になった。

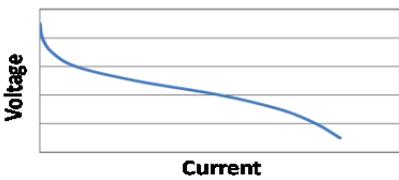
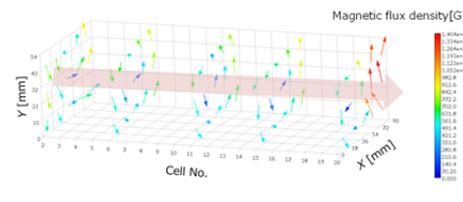
開発 手法	<p>各項に温度変数を含む フィッティング評価式</p>	<p>非破壊電流分布</p> <ul style="list-style-type: none"> ・磁気センサによる計測 ・シミュレーションによる評価
解析 対象	<p>温度変化のある 各セル電流電圧曲線</p> 	<p>出力による各セル空冷口磁場</p> 
特定 事項	<ul style="list-style-type: none"> ・燃料電池出力低下要因 	<ul style="list-style-type: none"> ・各セル面内出力低下箇所 ・各セル出力低下プロセス ・シミュレーションによる 分布推定、要因評価

図 3-18 提案手法まとめ

第4章 フィッティング評価モデルを用いた 燃料電池分極特性評価

4.1 実験方法、条件

実験には、300 W 級 20 セルスタックを用いる。供給ガスとしては、アノードにボンベからの水素(純度 99.999%)を、カソードにポンプ(テクノ高槻製)からの空気あるいはボンベから酸素をいずれも無加湿で供給する。流量はマスフローメータ(azbil CMS)によりモニタリングする。電子負荷(KIKUSUI PLZ334W)は定電流で動作し、2 分ごとに負荷を上昇させていく。この際の電流、電圧をロガー(HIOKI LR8400)によりモニタリングする。周囲温度は 25°C±2、スタック温度は、周囲温度からファン動作温度まで上昇していき、ファンにより一定温度に冷却される。

また、測定電圧と各モデル値をフィットさせるために、以下の目的関数を Excel ソルバー内の回帰ツールにより最小二乗法を用いて線形回帰を行う。

$$\min F = \sum_{i=0}^k \left[V_{e(i)} - V_{\text{model}(i)} \right]^2 \quad (4.1)$$

評価指標は、フィッティング精度を示す決定係数 R、電流遮断法(Current Interrupt: CI)より得られた内部抵抗値、またフィッティングパラメータの推移を用いる。有効数字は、参考文献[23]に基づき、3 桁とする。

4.2 結果と考察

4.2.1 モデル間比較

まず、本研究により提案するモデルと先行研究により提案されたモデルを比較し、フィッティング精度について議論する。

図 4-1 に中央セル(10 番セル)のストイキ比 = 4、ファン動作温度 45°C 時の実測値および各モデルによる推定 I-V 曲線を示す。また図 4-4 に入り口、中央、出口セルにおける温度を、表 4-1 に各モデルにおけるパラメータと CI によって得られた内部抵抗値を示す。パラメータ a 、 b に対しては他の文献と比較するためにファン動作温度 $T_0 = 45$ を乗じた。実測値に対していずれの曲線も良い当てはまりを示しており、当てはまりを示す決定係数は、提案したモデルが最も低いが、0.99 以上である。内部抵抗値は一般的な範囲[53]の $0.1\text{-}0.2\ \Omega\ \text{cm}^2$ になり、CI の実測値 $0.144\ \Omega\text{cm}^2$ と提案モデルが最も近く、誤差率は 1.8% である。この傾向はすべてのセルで共通している。さらに、活性化分極のパラメータ a は温度との積をとる(A) と他のモデルや先行研究と比較して同オーダーとなっている。また、先行研究[60], [61], [66] と比べても同程度である。拡散分極のパラメータである m 、 n は Kim モデルと異なった。多くのセルで拡散分極のパラメータ m 、 n が 0 となっている。これは、Kim モデルにおいて抵抗分極と活性化分極が分離できていないためだと考えられる。一方で、提案モデルは m を温度関数としたため、パラメータ n が変化する。これら傾向は、他のセルにおいても同様であった。表 4-2 には各偏差の最大値と最小値および決定係数、CI 抵抗値との差を示す。偏差は提案モデル式が大きい、決定係数は 0.99 以上である。また、CI 抵抗値との差は式(2.5)が $0.041\ \Omega\text{cm}^2$ (28.6%)、式(2.6)が $0.024\ \Omega\text{cm}^2$ (16.4%) と他の提案モデルの方が大きくなった。

また、図 4-3 に入口側、出口側セルの内部抵抗値を示す。ファン動作温度によって燃料電池の運転温度 T_s を設定しているため、各セルの温度 T_c は一様ではない。スタック中央部の温度を用いた場合に比べ、各セルの温度を用いてフィッティングを行った場合、入口側、出口側内部抵抗値の CI との誤差率が改善し決定係数が上昇した。このことからスタックのセル間で温度が異なる場合、各セルの温度を用いる、あるいは補正を行うことが必要である。表 4-3、表 4-4 に入り口、中央、出口セルにおける決定係数、内部抵抗について示す。Kim モデルの決定係数は最も高く、提案式はどれも 0.99 以上であった。一方、Squadrito モデルは出口側で 0.97 と低くなった。内部抵抗は、提案式のセル近傍温度が誤差 2.9、1.8、7.8% と最も小さくなった。

以上の結果から、提案式は先行研究の式に比べ複雑ではあるが、運転温度に対してより正確に分極を分離できるといえる。

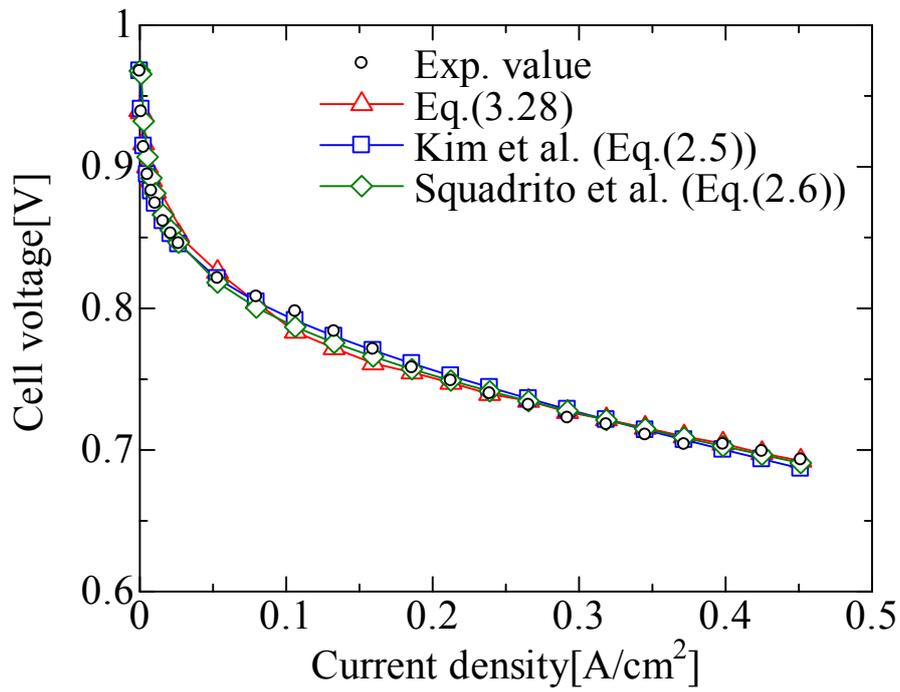


図 4-1 実験値から各モデルによるフィッティングを行った電流電圧曲線

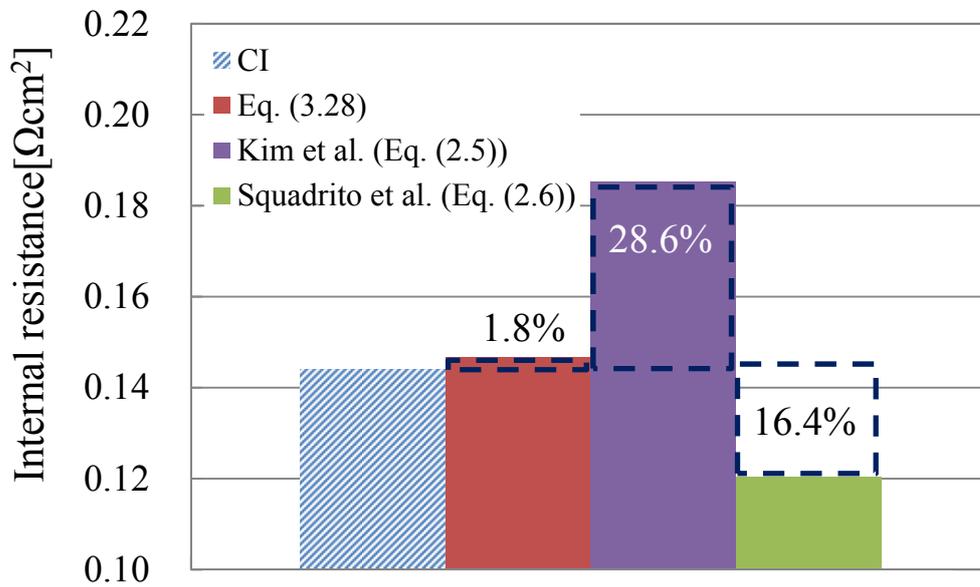


図 4-2 45°C における内部抵抗値の比較

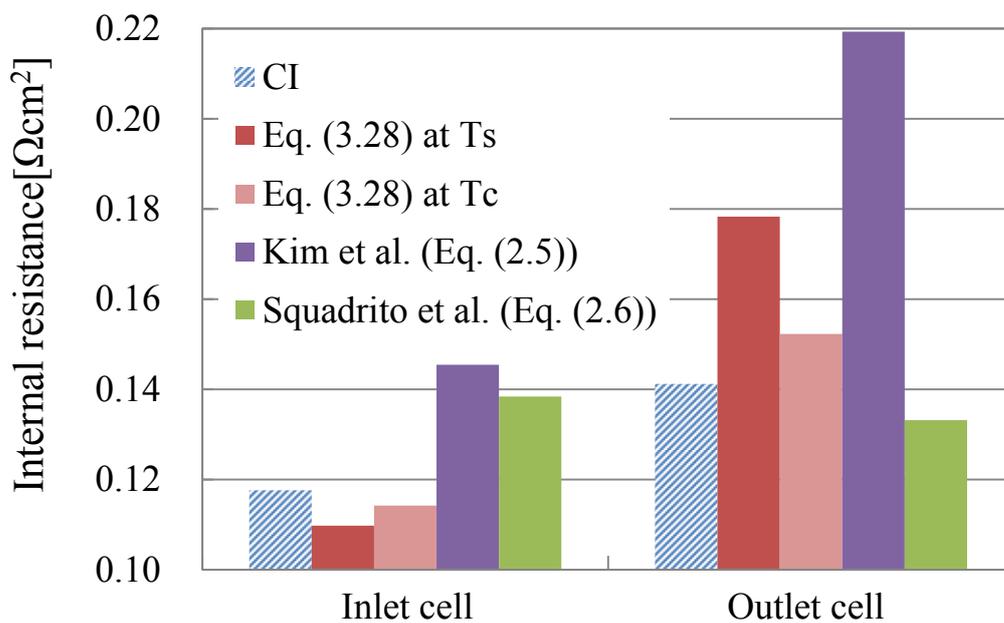


図 4-3 各モデルおよび温度による実測内部抵抗値との差

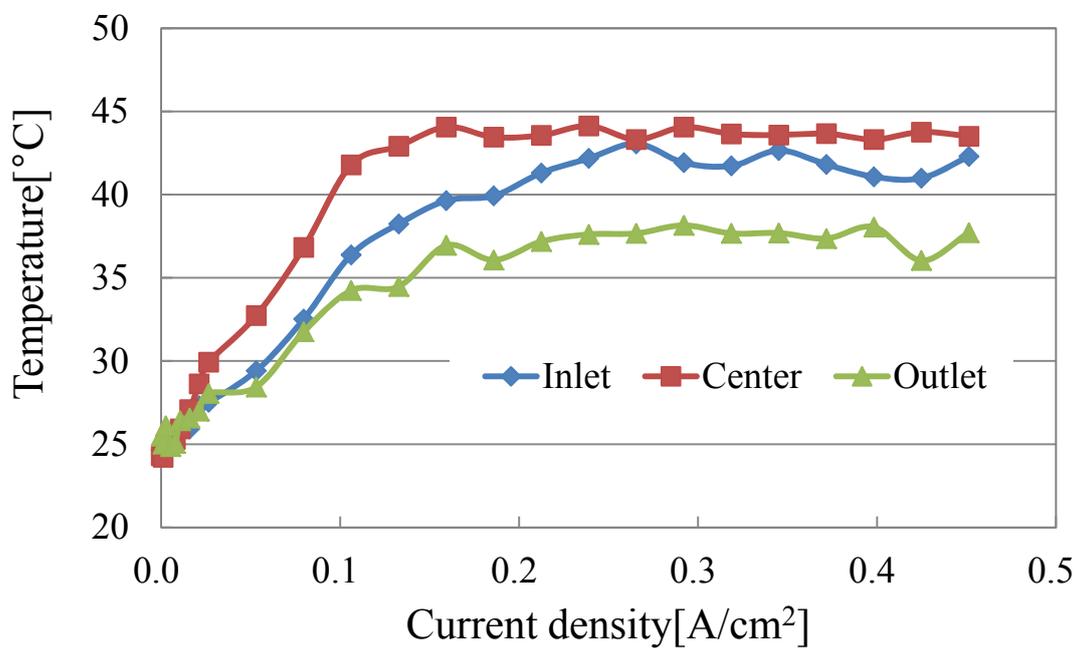


図 4-4 入り口、中央、出口セルにおける温度測定結果

表 4-1 45°C における各モデルのフィッティングパラメータ

	R	R_{ohmic} [Ωcm^2]	A [V]	m [10^{-5} V]	n [10^{-3} cm^2/A]
Eq. (3.28)	0.995	0.147	0.0238	5.80	8.33
Kim et al. (Eq.(2.5))	0.999	0.185	0.0281	0.00	0.00
Squadrito et al. (Eq.(2.6))	0.997	0.120	0.0360		
Current interrupt		0.144			

表 4-2 45°C における実測値とフィッティング値の最大差、最小差

	D_{max}	D_{min}	R	CI_{diff} [Ωcm^2]
Eq. (3.28)	0.028	0.000	0.995	0.0026
Kim et al. (Eq.(2.5))	0.006	0.000	0.999	0.0413
Squadrito et al. (Eq.(2.6))	0.026	0.000	0.997	0.0237

表 4-3 入り口、中央、出口セルにおける決定係数

R	Eq.(3.28)	Kim et al. (Eq.(2.5))	Squadrito et al. (Eq.(2.6))
Inlet	0.994	0.998	0.996
Center	0.990	0.998	0.993
Outlet	0.991	0.999	0.970

表 4-4 入り口、中央、出口セルにおける内部抵抗

R_{ohmic} [Ωcm^2]	CI	Eq. (3.28) at T_s	Eq. (3.28) at T_c	Kim et al. (Eq.(2.5))	Squadrito et al. (Eq.(2.6))
Inlet	0.118	0.110	0.114	0.145	0.082
Center	0.144	0.147	0.147	0.185	0.126
Outlet	0.152	0.178	0.152	0.219	0.165

4.2.2 カソード燃料による影響

カソード燃料として、ポンプから Air をストイキ比 = 4 で用いる場合とボンベから O₂ を Air と同流量で用いる場合を比較した。図 4-5 に比較結果を示す。また、表 4-5 に各パラメータを示す。今回も決定係数は 0.99 と高く、またパラメータである a 、 b が 20.8%、10.1% 減少した。これはカソード燃料を酸素としたことで触媒への酸素供給が多くなり活性化分極が低減されるためと推測される。したがって、図 4-6 のように電圧差は活性化分極の項である対数のような形になる。また供給酸素量の上昇により、活性化分極ほどではないものの高電流域においても電圧が維持され相対的にイオン電導度の上昇するため $0.134 \Omega\text{cm}^2$ と抵抗値フィッティングパラメータも減少している。また、パラメータ n は $0.87 \times 10^{-3} \text{cm}^2/\text{A}$ 小さくなったが、これは触媒表面での酸素濃度が高まったことにより濃度分極が減少したことが考えられる。

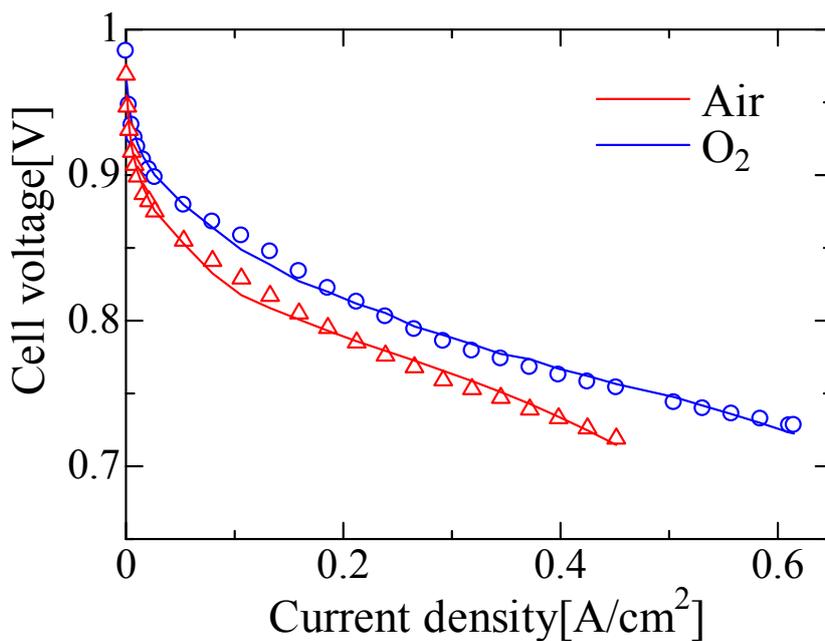


図 4-5 提案式における各カソードガスの電流電圧曲線

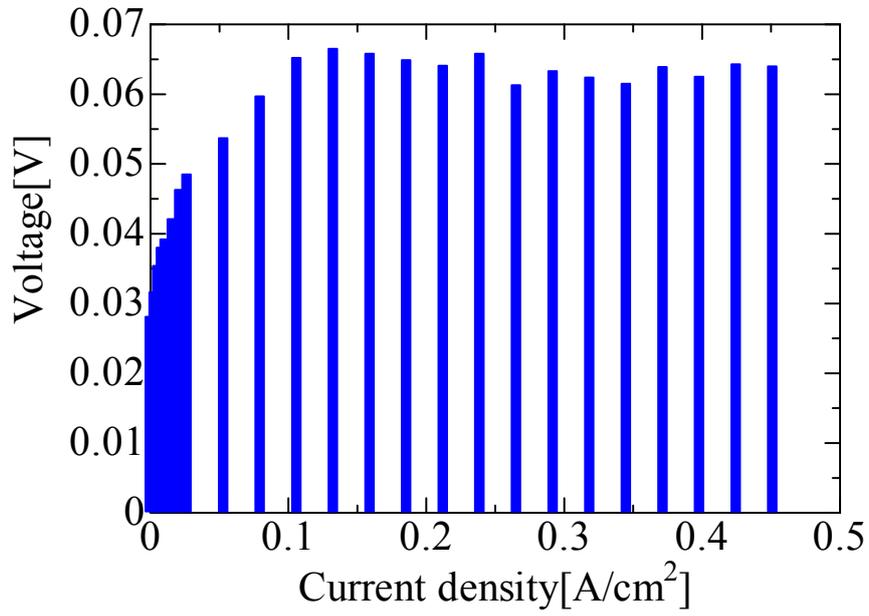


図 4-6 各電流における電圧差

表 4-5 各カソードガスにおけるフィッティングパラメータ

Cathode gas	R	R_{ohmic} [Ωcm^2]	a [10^{-5} V/K]	b [10^{-4} V/K]	n [10^{-3} m ² /A]
Air	0.995	0.147	7.48	9.64	8.33
O ₂	0.997	0.134	5.93	8.67	7.46

4.2.3 ファン動作温度による影響

運転温度によるフィッティングパラメータの推移について示す。図 4-7 に各ファン動作温度におけるスタック温度の推移を示す。また図 4-8 に各ファン動作温度の IV 曲線、表 4-6 に各ファン動作温度のフィッティングパラメータを示す。一般的に、高温での運転は、活性過分極を低減させより早い反応を導くため、性能が向上する。このことがフィッティングパラメータにも表れており、 a は 55、75°C において 45°C に比べ 19.3、61.4%減少している。しかし、性能曲線にはその傾向が現れていない。これは、水素と空気を無加湿で供給していることに起因すると考えられる。したがって、フィッティングパラメータ R_{ohmic} 、 n は膜内の水分量の減少により増加したと考えられる。特に 75°C においては 45°C の 2.5 倍上昇している。そのほか 35、40°C においては R_{ohmic} が CI とほぼ同様の $0.14 \Omega \text{ cm}^2$ になった。それゆえに、膜の水分量は同様の範囲内と考えられる。特に、35°C においてはフィッティングパラメータ n が上昇しており、これは触媒などでフラッディングが起き減少していると推測される。

一方、表 4-6 のように活性化分極パラメータ a にはファン動作温度 45°C 以上では減少傾向ではあるが、45°C 以下では増加していない。提案式(3.28)における活性化分極パラメータ a は式(3.13)のように、Tafel 勾配を表している。そして、図 4-7 のように今回の燃料電池スタックにおいては常温からスタックが起動するため、低電流域では温度が低く、同一であることから、低電流域の Tafel 勾配が一定であることが影響していると考えられる。そのためファン動作温度 T_0 を乗じた場合においても、変化がない。また、式(3.9)において温度 T の変数として Gibbs の自由エネルギーについても考慮すると電流は

$$\begin{aligned} i &= nFfc_R^* \exp\left(-\frac{\Delta G}{RT}\right) \exp\left(\frac{\alpha nF\eta}{RT}\right) \\ &= A \exp\left(-\frac{\Delta G}{RT}\right) \exp\left(\frac{\alpha nF\eta}{RT}\right) \end{aligned} \quad (4.2)$$

となる。この式において $\alpha nF\eta < \Delta G$ の時、電流が増加する。しかし、 $\alpha nF\eta > \Delta G$ の場合は電流が減少する。つまり、分極は

$$\eta > \frac{\Delta G}{\alpha nF} \quad (4.3)$$

のようになり、温度が影響を与えないにもかかわらず分極が変化する。実験的にも活性化分極の影響がみられないこともあり、その要因としてはイオン伝導度や燃料濃度、拡散に温度がより影響するためであるとされている[57]。

表 4-7 に示す Kim モデルのパラメータは活性化、抵抗、拡散分極パラメータのどれも温度との相関が低い。特に 35°C から 45°C の内部抵抗、活性化、濃度分極に関しては、図 4-9 に示す内部抵抗の上昇や図 4-10 のパラメータの減少、さらに図 4-11 に示す濃度分極パラメータ n が 0 と評価されてしまっていることがあり、理論的な考察と逆のパラメータ推移となっている。これは、温度関数を含んでいないためである。45°C から 75°C のに関しては、I-V カーブに顕著に表れているため、提案モデルと同様の結果になっている。一方、提案モデルにおいて、特に 35°C から 45°C の内部抵抗、活性化、濃度分極に関しては、I-V カーブに表れていないにもかかわらず現象との対比が取れている。

以上のことから、本研究で提案する式は運転温度が変化する場合に各分極パラメータの相関があるが、低電流域では温度が同一であるため、また温度が抵抗分極や濃度分極に大きく影響を与えるため、活性化分極パラメータの相関が低くなったといえる。しかし、従来の Kim モデルにおいて評価の困難であった I-V カーブに表れていない分極に関して、温度変数項により評価可能であることを示した。

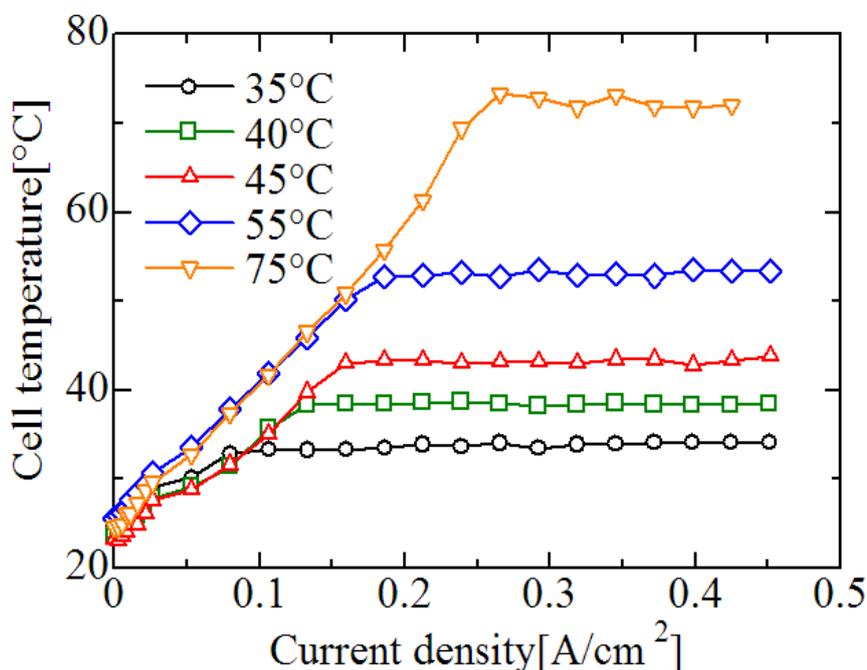


図 4-7 各ファン動作温度におけるスタック温度

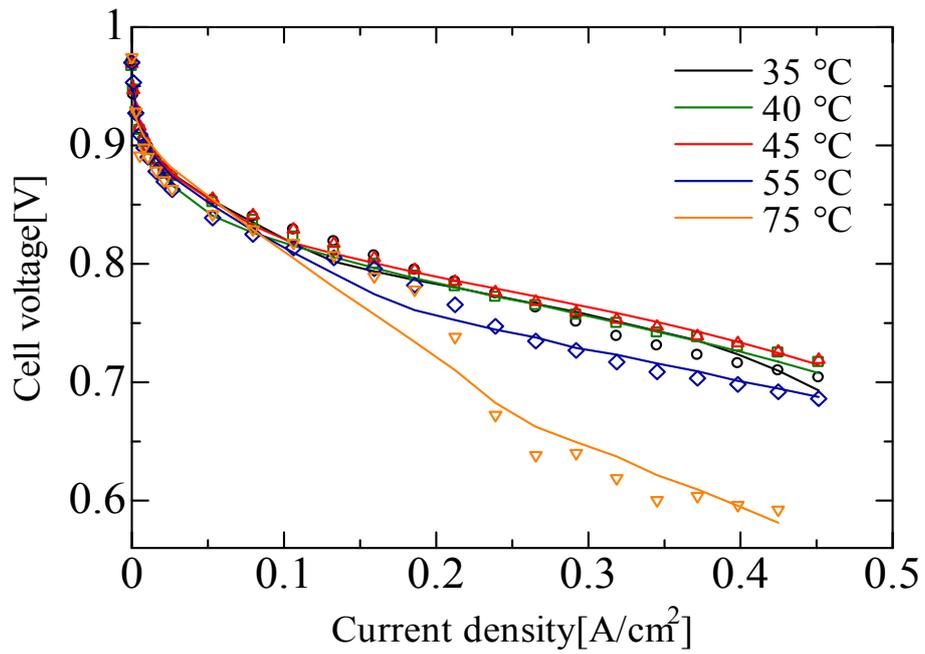


図 4-8 各ファン動作温度における電流電圧曲線

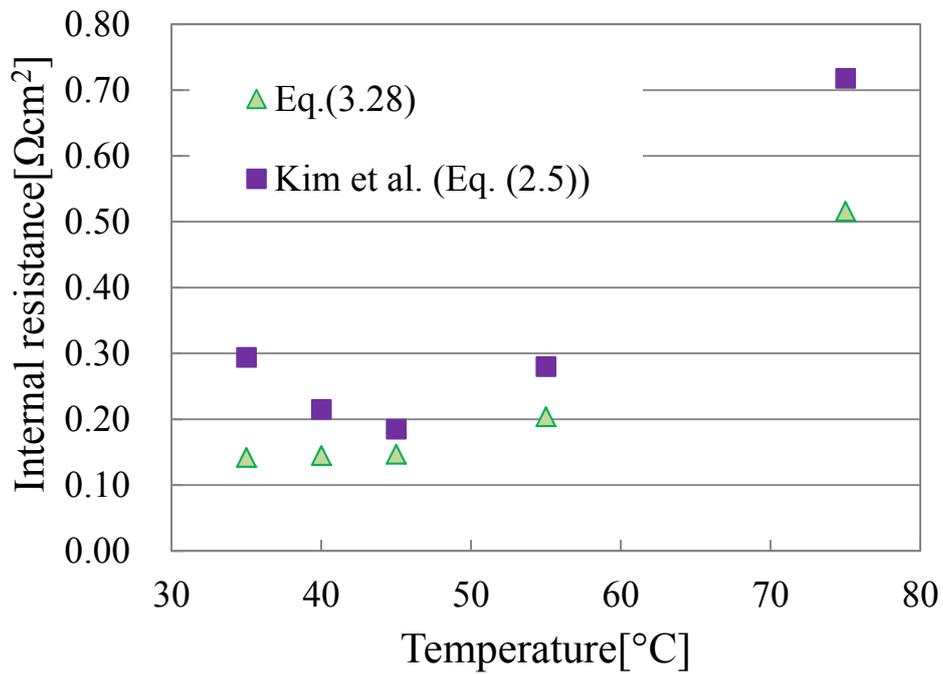


図 4-9 各モデルの運転温度における内部抵抗パラメータ

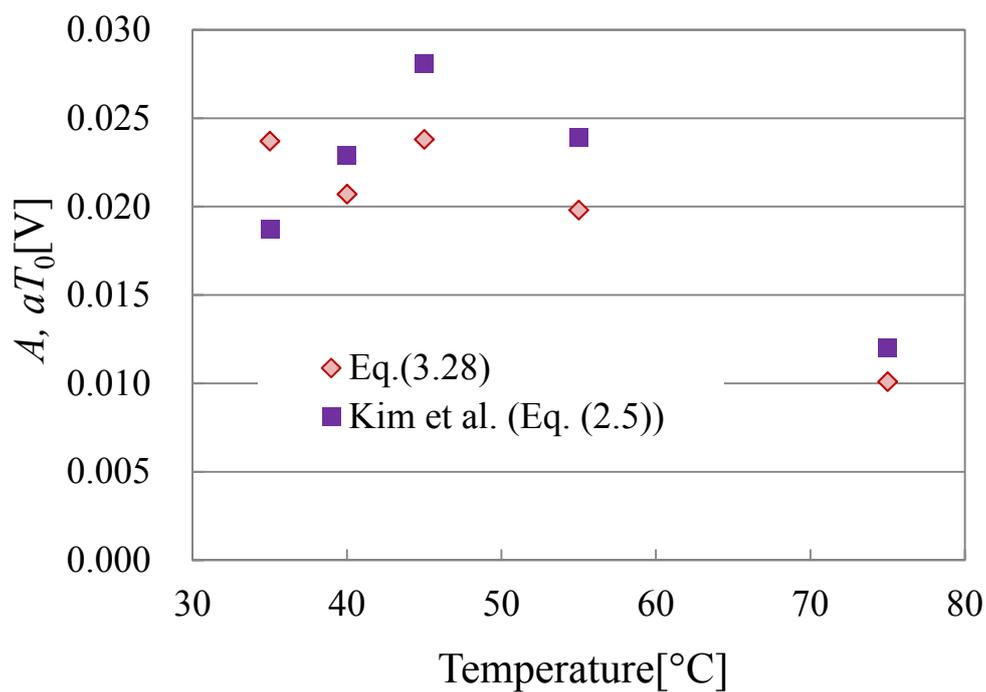


図 4-10 各モデルの運転温度における活性化分極パラメータ

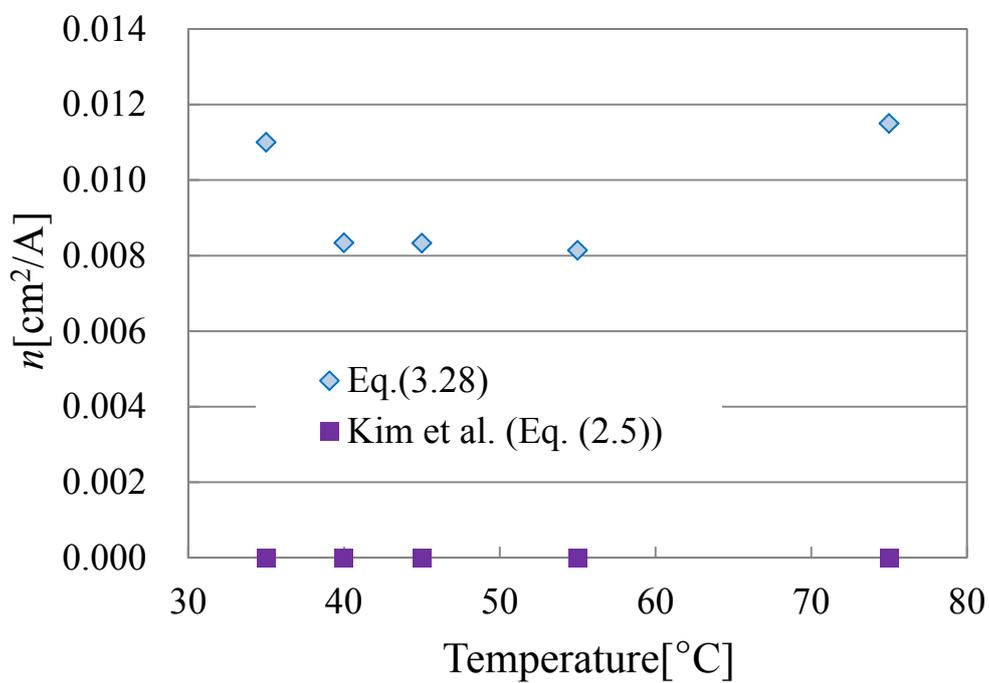


図 4-11 各モデルの運転温度における濃度分極パラメータ

表 4-6 各ファン動作温度の提案式(3.28)におけるフィッティングパラメータ

T_0 [°C]	R	R_{ohmic} [Ωcm^2]	a [10^{-5}V/K]	$a T_0$ [10^{-2}V]	b [10^{-4}V/K]	$b T_0$ [10^{-1}V]	n [$10^{-2}\text{cm}^2/\text{A}$]
35	0.998	0.142	7.71	2.37	9.07	2.79	1.10
40	0.997	0.145	6.63	2.07	9.17	2.87	0.834
45	0.995	0.147	7.48	2.38	9.64	3.07	0.833
55	0.993	0.204	6.04	1.98	9.38	3.08	0.814
75	0.985	0.516	2.89	1.01	9.82	3.42	1.15

表 4-7 各ファン動作温度の Kim モデル(式.(2.5))におけるフィッティングパラメータ

T_0 [°C]	R	E_0 [V]	R_{ohmic} [Ωcm^2]	A [10^{-2}V]	m [10^{-2}V]	n [cm^2/A]
35	0.999	0.971	0.294	1.87	2.48	0
40	0.999	0.967	0.215	2.29	1.50	0
45	0.998	0.968	0.185	2.81	2.52	0
55	0.997	0.970	0.280	2.39	1.89	0
75	0.975	0.975	0.718	1.20	5.63	0

4.3 まとめ

本章では、燃料電池の運転温度を考慮可能な提案式の評価および内部状況診断への適応についてまとめた。

まず、同一の実験データに対して提案式と先行研究式のパラメータ比較を行い精度についての議論を行った。実測値と式との当てはまりを示す決定係数は、提案式および先行研究式どれも 0.99 以上と高い一致度を示した。内部抵抗値は一般的な範囲となり CI の実測値 $0.1441 \Omega\text{cm}^2$ 最も近く、誤差率は 1.8%であった。拡散分極のパラメータである m 、 n は先行研究式では分離できていないため 0 となったが、提案モデルは m を温度関数としたため、パラメータ n が変化する。これら傾向は、他のセルにおいても同様であった。以上の結果より、本研究のように燃料電池の運転温度が変化する場合においては、提案式が有効であることが示された。また、入口側、出口側セルの内部抵抗値を用いて温度に関する考察を行った。セル温度とファン動作温度は異なり、フィッティングを行う際の温度を燃料電池の運転温度であるスタック中央部の温度 T_s 、各セルの温度 T_c を用いる場合にした。スタック中央部の温度を用いた場合に比べ、各セルの温度を用いてフィッティングを行った場合、入口側、出口側内部抵抗値の CI との誤差率が改善し決定係数が上昇した。このことから、スタックのセル間で温度が異なる場合、各セルの温度を用いるあるいは補正を行うことが必要である。

続いて、カソードガスによる提案式フィッティングパラメータ影響について評価した。内部抵抗、活性化分極、拡散分極の減少といった理論上想定される結果となった。さらに運転温度に関しても、基準とした 45°C 以上の場合は活性化分極が減少する一方、無加湿であるため内部抵抗、拡散分極が上昇し、 45°C 以下の場合には内部抵抗がほぼ一定、温度減少に伴って拡散分極が上昇するというフラッディングを表す結果となった。一方、活性化分極のパラメータの温度感応度が、特に 35 、 40°C において低く、これは本研究において常温からの運転温度となり、支配的な領域において同一温度になることや Gibbs の自由エネルギー項を定数としていることが要因として考えられる。課題はあるものの、Kim モデルと比較し運転温度が変化する際にも分極評価が可能になった。

以上の結果から、提案式は先行研究の式に比べ複雑ではあるが、運転温度に対して先行研究に比べ分極を分離でき、カソードガスや運転温度が変化するなど場合においても適応することを示した。そして、本提案式を用いるフィッティング手法はシステムに搭載可能であるため、In-situ による燃料電池の出力低下要因の特定や性能評価が可能である。

第5章 定常状態における磁気センサによる電流分布評価

5.1 実験方法、条件

5.1.1 磁場測定時

実験装置概要を図 5-1 に示す。空冷口にセンサプローブを挿入するため、2 セルスタックで実験を行った。アノードにはボンベからの水素(純度 99.999%)、カソードにはポンプ(テクノ高槻製)からの空気を、ともに無加湿でマスフローメーター(azbil CMS)を通して供給する。今回、水素流量は 0.2 L/min とし、各空気流量(0.4、0.6、0.8、1.0、1.2、1.4 L/min)に対して電子負荷(TAKASAGO FK-160L2Z)を用いて 1.2 V 定電圧運転を行う。運転中はロガー(HIOKI LR8400)によって電圧、電流の測定、記録を行う。燃料電池はファンによる冷却により $60\pm 1^{\circ}\text{C}$ に運転温度を保つ。また、電流分布測定後に電流遮断試験を行い、セル抵抗値を測定した。電流遮断試験(CI)は、電子負荷(TAKASAGO FK-160L2Z)に内蔵している機能により行われ、遮断時の電圧はメモリハイコーダ(HIOKI MR8870)によって計測する。

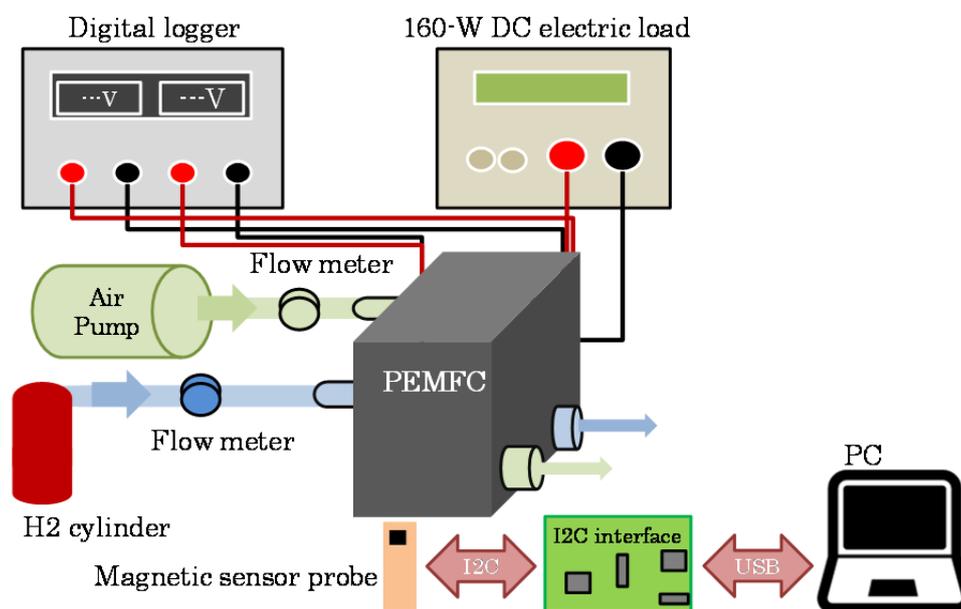


図 5-1 実験装置

5.1.2 シミュレーション評価時

シミュレーションにおいてスタック電流は 15A として評価を行う。周囲温度は $25 \pm 1^\circ\text{C}$ 、とした。シミュレーション条件を表 5-1 に示す。電気伝導率は基本的に Femtet に内包される値を用いている。エンドプレートにはステンレス鋼を用いている。セパレータと集電板はそれぞれカーボンと金を用いている。絶縁板は ABS 樹脂を用いた。MEA は反復計算によって 1×10^9 、 1×10^7 、 1×10^5 、 1×10^3 、10 S/m に決定される。このとき MEA は図 3-16 のように 1 枚当たり 25 分割される。プログラムソースについては付録に示す。

表 5-1 シミュレーションにおける各材料の伝導度

Component	Material	Value [S/m]
End plate	Stainless steel	1.37×10^6
Separator	Carbon	6.10×10^4
Current corrector	Gold	4.26×10^{77}
Insulating resin	Acrylonitrile-butadiene-styrene	0
MEA	Conductive body	1×10^9 , 1×10^7 , 1×10^5 , 1×10^3 , 10

5.2 結果と考察

5.2.1 磁気センサによる評価結果

図 5-2 に各空気流量における電流について示す。また、図 5-3 に各空気流量における CI を用いた内部抵抗測定結果を示す。空気流量の上昇に伴い、燃料電池の電流は上昇し、空気流量 1.0 L/min のとき最大電流 10.2 A となった。また、1.0 L/min 以上になると電流は次第に減少する。CI による抵抗値測定によると空気流量が 1.0 L/min より低い時、抵抗値は 1.0 L/min 時と同様あるいは小さくなっている。したがって、空気流量が 1.0 L/min より低い時、生成水の滞留等によって燃料利用効率が減少し発電量が低下していると考えられる。また、1.0 L/min 以上の時は電流が減少した。このとき抵抗値は上昇しており、今回燃料、酸化剤ともに無加湿供給であるために、膜が乾燥し発電量が低下したと推測される。これらの結果から、本実験におけるスタックにおいて 1.0 L/min 未満では湿潤、それ以上では乾燥状態であると考えられる。

図 5-4 に各空気流量における電流分布を示す。最大電流密度は $(x, y) = (9, 27)$ における 362 mA/cm^2 であった。ここで、最大電流、空気流量 1.0 L/min における各地点の電流密度との比について図 5-5 に示す。各酸素流量における電流値と電流分布の傾向に大きな変化はない。しかし、 $(x, y) = (45, 27)$ 、 $(63, 27)$ 以外の測定点は他と異なる傾向を示した。 $(x, y) = (45, 27)$ では湿潤状態において比は 1 以上となり、乾燥状態で 1 以下となった。一方、 $(x, y) = (63, 27)$ においては、乾燥状態で 1 以下、湿潤状態で 1 以上となった。これらは流量変化により MEA 内の水移動や酸化剤の分布変化が起こったことに関係していると考えられる。また、分布が左右に偏っている要因としては中央のセル面圧が低いことによって接触抵抗が高いことや外部回路に接続する集電板の影響を受けていることが考えられる。

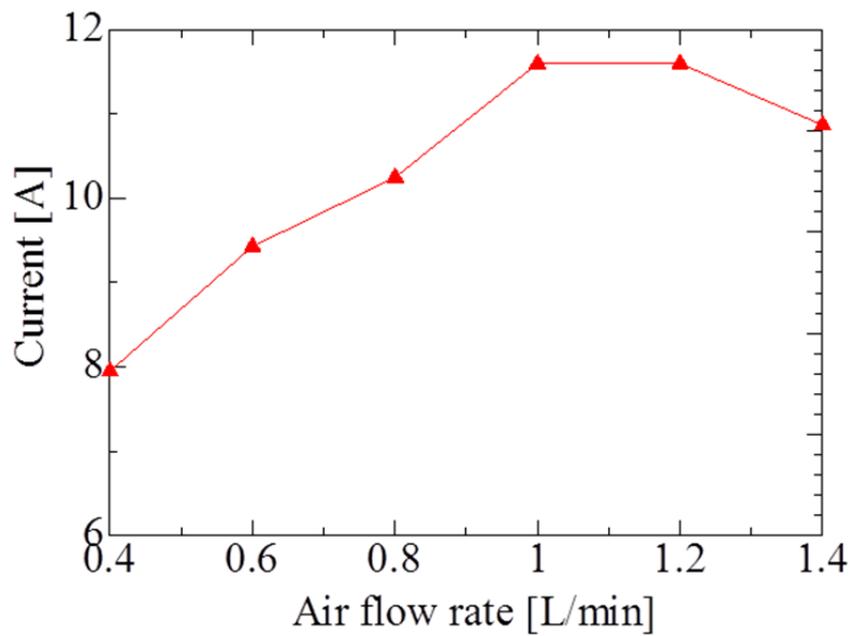


図 5-2 各流量における出力電流

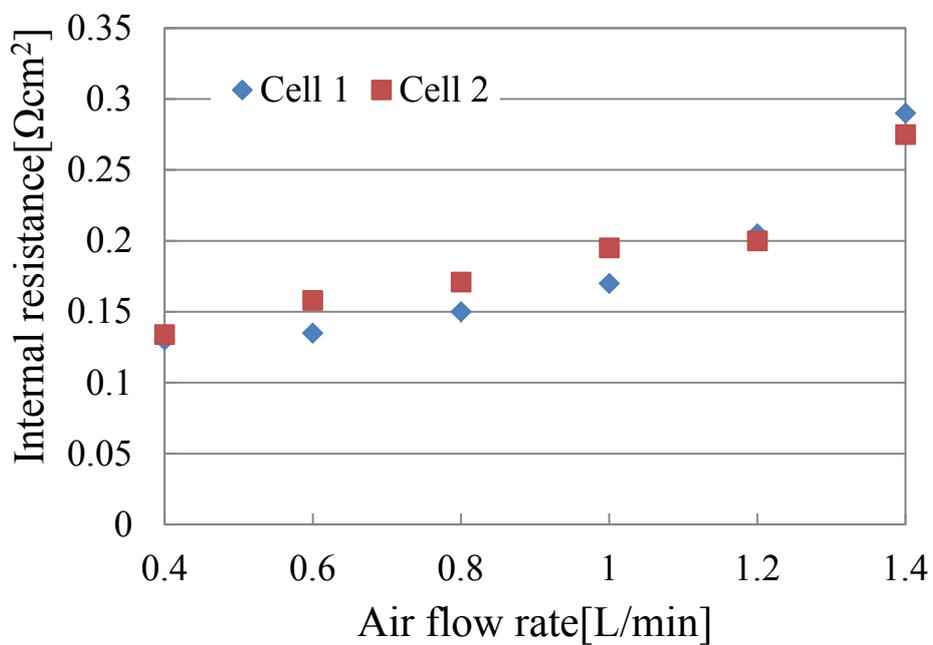


図 5-3 各流量におけるセル内部抵抗値

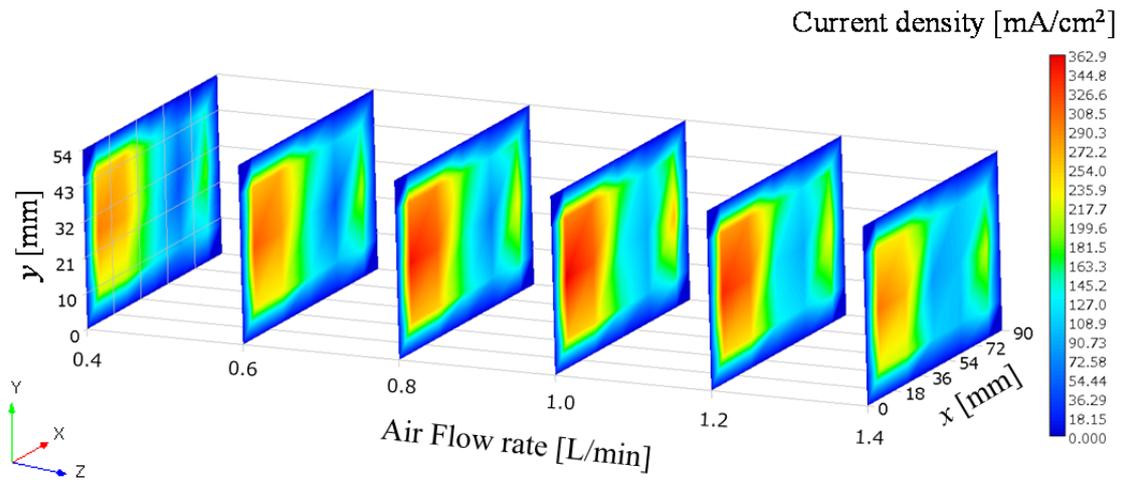


図 5-4 水素流量 0.2 L/min における各空気流量の電流分布

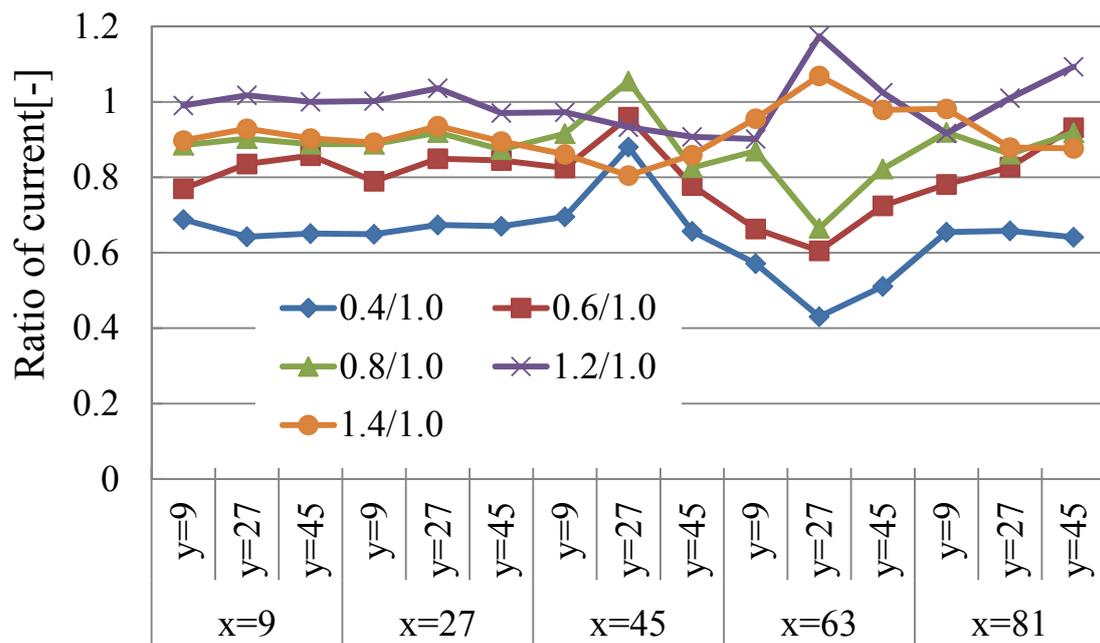


図 5-5 各流量における電流密度比

5.2.2 シミュレーションによる評価

差の最小化計算後の 15 A 時の磁場分布を図 5-6 に示す。図 5-4 で示した電流分布の実測値と同様、磁場は集電板の影響を受けて両端に偏る。また、2 セルスタックにおける 15 A 時の磁場測定値とシミュレーション結果のベクトルを図 5-7 に示す。 x 、 y の要素はアンペールの法則によると電流に対応している。ベクトルは反時計回りであり、巨視的にはスタック電流に対応した向きと一致する。また、3.2 節で示したように本研究で用いる磁場測定装置は、測定可能範囲が ± 3 G である。今回のシミュレーションはスタック電流を 15 A としたため、磁場は測定可能範囲内になっている。本スタックの最大出力電流は 30 A 程度であることから、開発した磁場測定装置において測定可能と考えられる。本スタック以上の大電流を出力する場合、センサの仕様としては図 3-1 に示すように ± 12 G まで測定可能であるためオフセット調整プログラムの変更し ± 3 G の計 6 G の範囲にする必要である。

図 5-8 に最小化前の磁場シミュレーション結果を示す。図 5-8 (a) に示す x 、 y 軸の出力はシミュレーション値のベクトル量であるが、(b) に示す z 軸の出力は絶対値を示している。本研究において磁場の z 方向は MEA 伝導度が減少し電流が迂回するといった不具合時に増加すると想定している。しかし、その方向までを今回のシミュレーションによって再現することが困難であるため、本研究においては絶対値としその大きさについて評価を行う。最小化前はすべての分割 MEA 区域の伝導度が 1×10^9 S/m であるため電流分布は一様となる。本研究で用いる磁場測定装置は 3.2 節で示すように最小磁気感度 1.6 mG、測定誤差が 7.0% である。 y 軸においてはすべての範囲で最小磁気感度以上であったが、 x 軸においては $(x, y) = (9, 27)$ 、 $(x, y) = (81, 27)$ においては最小磁気感度以下の 0.95 mG、0.96 mG となった。しかし、この 2 点においては y 方向出力が x 軸に対して 360 mG、332 mG と 300 倍以上大きく、開発した装置の測定値が 0 G あるいは 1.6 mG のどちらと評価されてもスタック電流は式(3.30)に示すように x 、 y 軸の合成であるため、最小磁気感度が電流分布の評価に対して影響することはないと考えられる。一方、 z 軸においては電流分布が一様であるために $(x, y) = (81, 9)$ を除き、磁場出力が最小磁気感度以下となった。

図 5-9 に磁場シミュレーション値と測定値の比較結果を示す。シミュレーションとの差は、 x 、 y 軸のそれぞれの合計が 0.22 G、0.35 G になった。差の最小化計算したにもかかわらず差が生じた理由としては、測定誤差およびシミュレーションでは流体力学や電気化学反応を含んでいないためであると考えられる。測定誤差については前述のとおり装置測定誤差が 7.0%あり、図 5-9 (a)にはこの誤差を含んだ値を示している。しかし、各測定値に対して小さく、傾向を見る上での有意な差を持っていると言える。そして、電流分布がガス供給や流路上の水の圧力、膜状態の影響を受けるがシミュレーションにおいて考慮していないことも差が生じた理由の一つである。(b)の z 軸も測定値およびシミュレーション値において異なる。 z 軸はセル上を平行に流れる電流に対応するためこの部分では電気抵抗が高く迂回していると考えられる。この差をなくすためには、今回考慮していない事象、原理を含めたシミュレーションを行うことが必要である。しかし、最小化計算により差は縮

まっており、傾向は確認できる。また、式(3.33)より積層方向の相対磁場 B_z' についても算出した。測定値の $(x, y) = (27, 9)$ において最大値 17.7% となった。定常状態においても、偏りのある磁場分布により積層方向の磁場が存在することを示した。

最小化後のシミュレーションによる電流分布を図 5-10 に示す。最大値はセル 1 $(x, y) = (63, 9)$ で 501.6 mA/cm^2 、セル 2 $(x, y) = (63, 27)$ で 552.0 mA/cm^2 であった。最小はセル中央部で $(x, y) = (45, 27)$ である。MEA の電気伝導率 η_k は $\eta_{1,8}$ 、 $\eta_{1,9}$ 、 $\eta_{1,13}$ 、 $\eta_{1,18}$ 、 $\eta_{2,13}$ において 10 S/m それ以外は 10^9 S/m だった。これらは集電板と MEA の面圧の影響であると考えられる。

相対面圧 P/P_{\max} を図 5-11 に示す。各部の面圧 P はプレススケール(Fujifilm)によって測定された $(x, y) = (81, 9)$ の最大面圧 P_{\max} にて正規化される。最小は中央セルにおける $P_{y=27}/P_{\max}$ でこの結果から中央部では電流の流れることが難しいことが推定される。

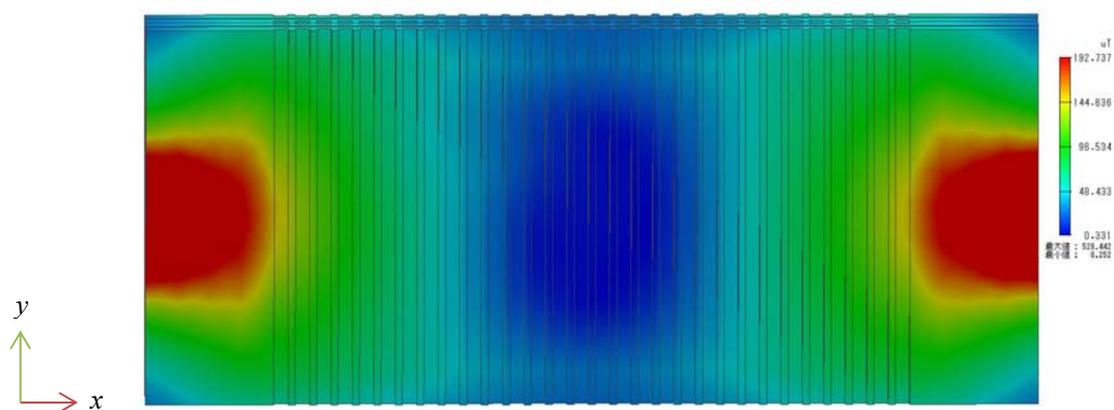


図 5-6 シミュレーションにおける磁束密度分布

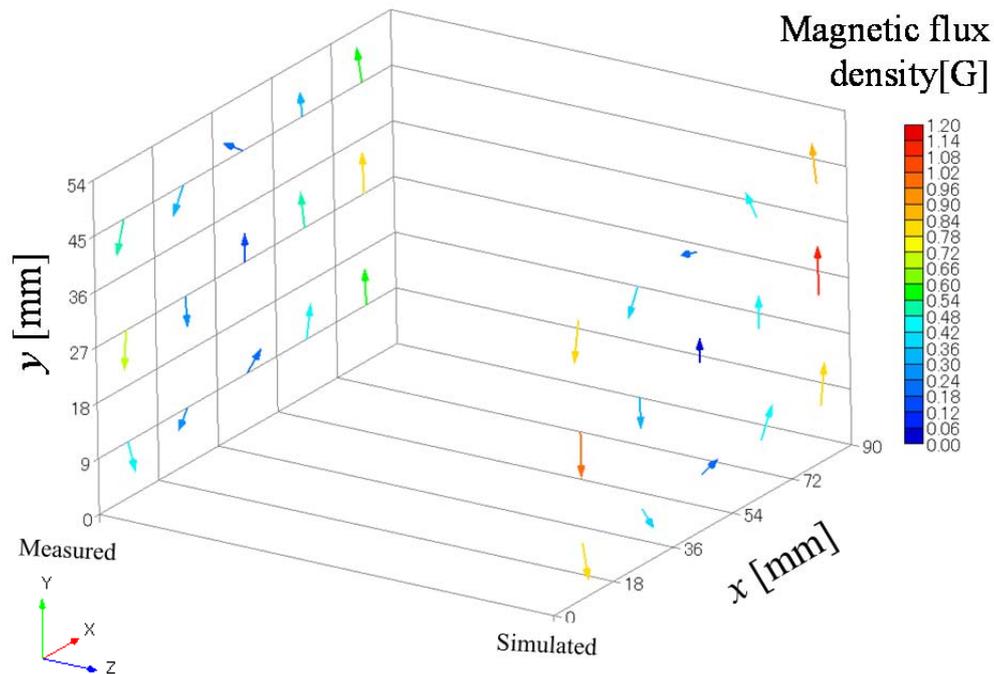


図 5-7 シミュレーションおよび実測磁束密度ベクトル分布

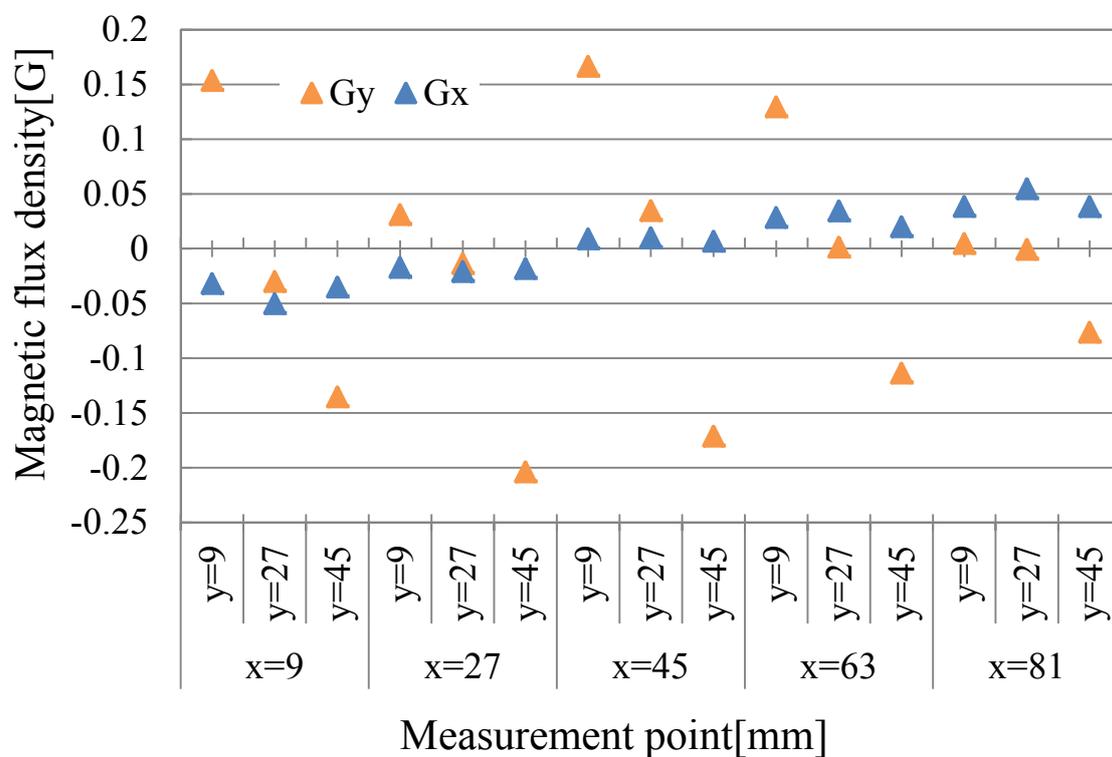
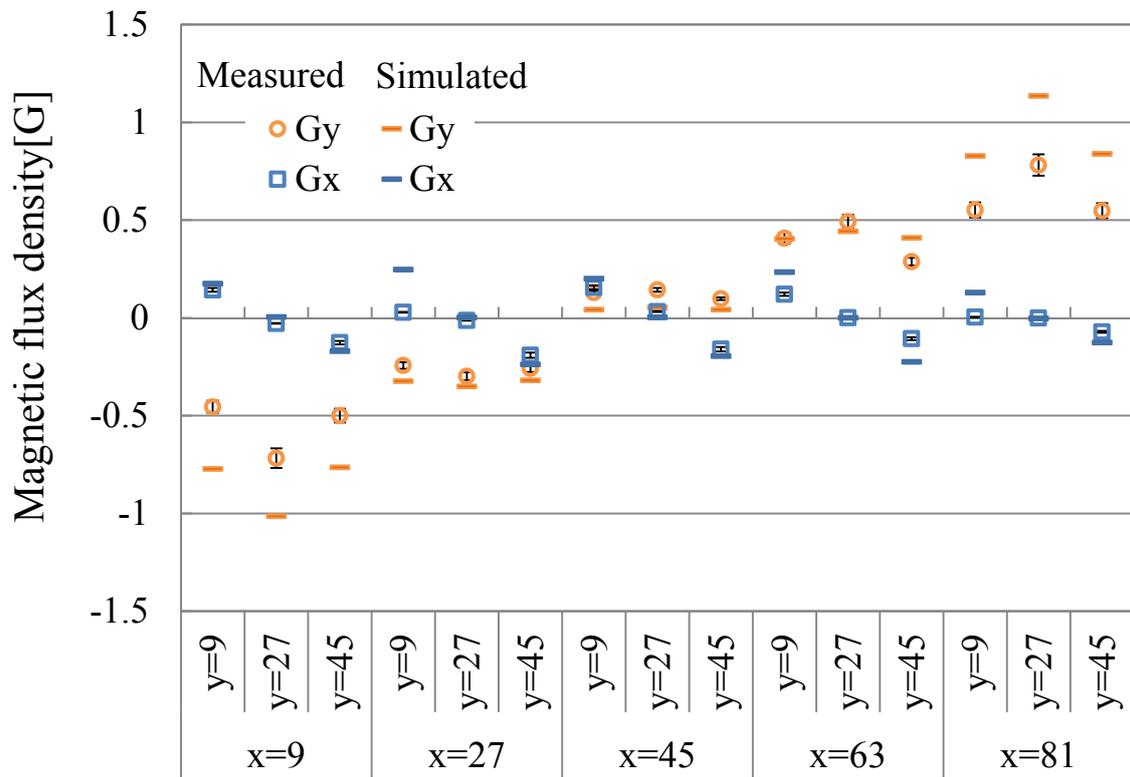
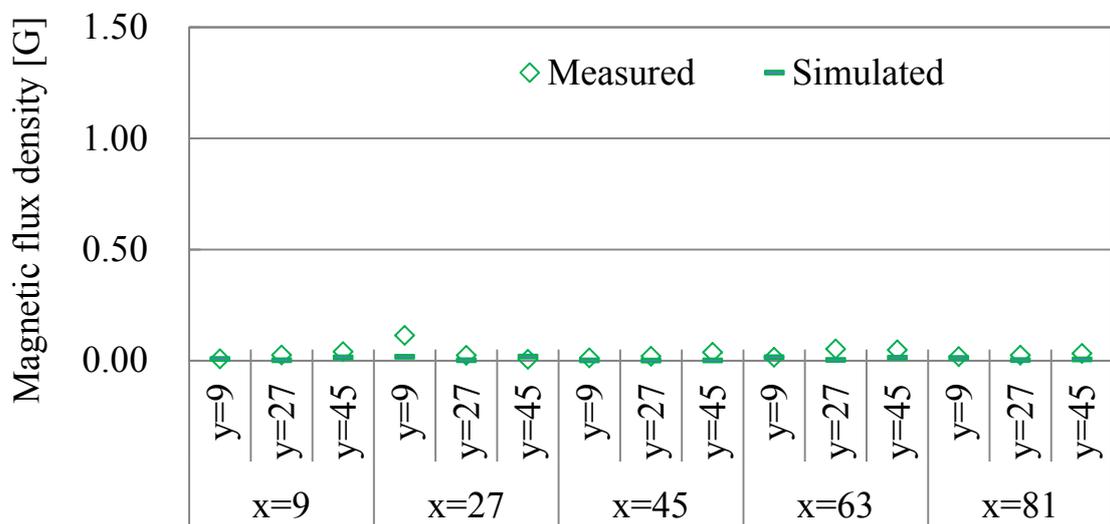


図 5-8 最小化前の磁場シミュレーション結果



(a) x and y -axis (vector quantity)



(b) z -axis (scalar quantity)

図 5-9 シミュレーションおよび実測における各磁束密度比較

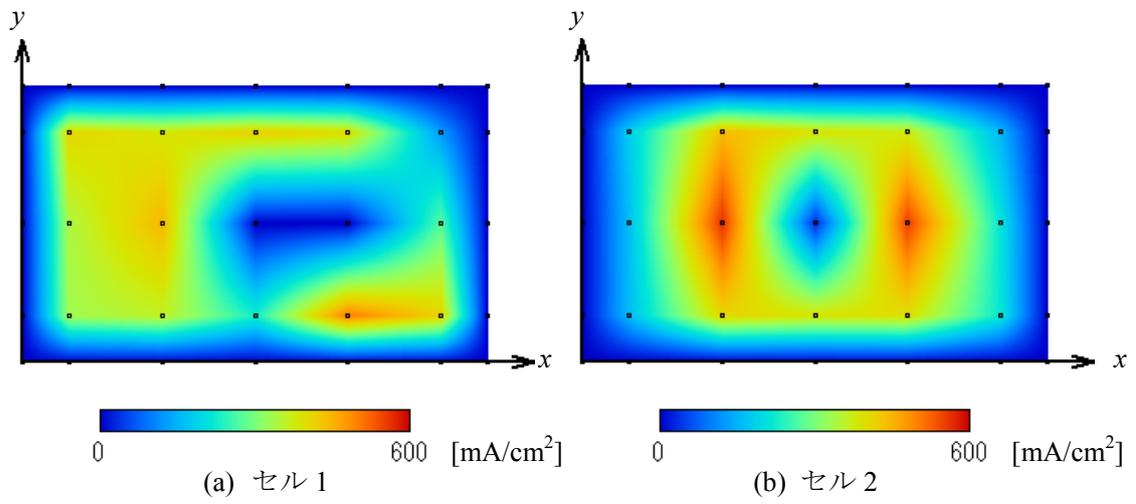


図 5-10 シミュレーションにおけるセル電流密度分布

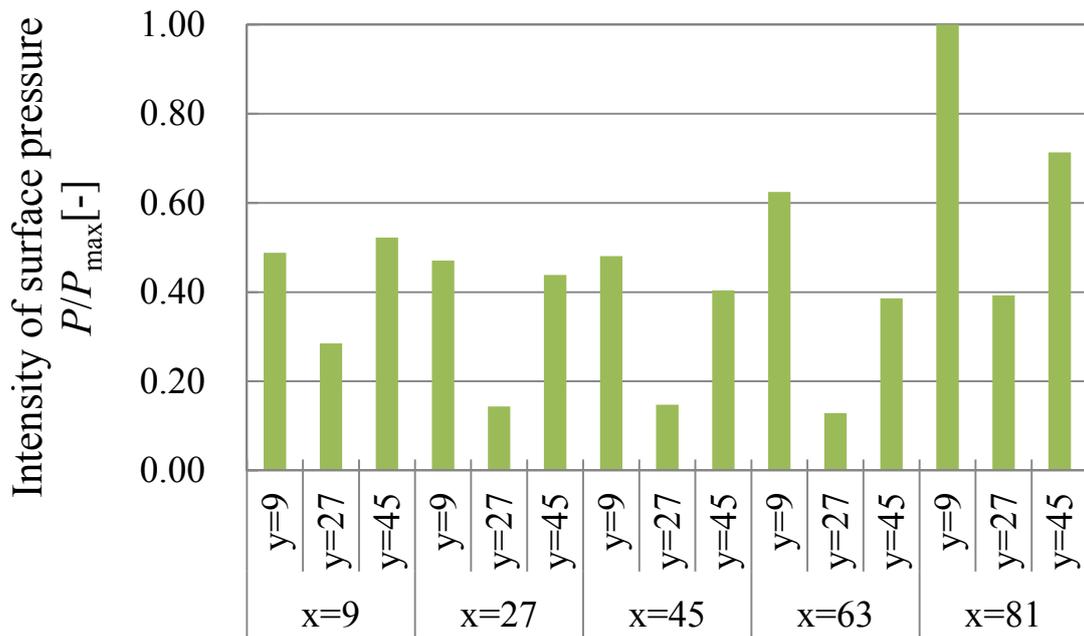


図 5-11 相対面圧測定解析結果

5.3 まとめ

本章では、提案した電流分布計測評価手法の評価および要因解析を行った。

まず、流量変化によって生成水や酸化剤等に分布が生じるため、出力が変化するとともに電流分布が変化することを示した。磁場ベクトル分布はカソードからみて反時計回りとなり、アンペールの法則の電流方向と燃料電池スタックの電流方向がマクロ的に一致しており、電流による磁場を測定しているといえる。電流分布は、左右両端に偏っている。この要因特定のために、シミュレーションおよび面圧測定による要因解析評価を行った。

シミュレーションによって、磁気センサによる測定結果と同様、分布は両端に偏る結果となった。また電流分布が一様な場合においても偏り、要因の一つとして負荷接続端子が両端に位置していることなどの構造によるものと示された。また、実測値とシミュレーション値の差の最小化計算によって、各セルの中央部の電流分布が小さい結果となった。プレスケールを用いた面圧測定により中央部の面圧はほかの部分に比べ相対的に小さく、偏る要因の一つとして中央部面圧不足による接触抵抗の増大を示した。また、磁場測定装置は測定可能範囲が ± 3 G、最小磁気感度 1.6 mG、測定誤差が 7.0%であるが、対象スタックにおいては測定可能範囲であり、最小磁気感度、誤差に関してもスタック電流や不具合を計測可能であることを示した。

これらの結果より、提案手法が燃料電池スタックに対して面的な評価を可能することを示すとともに、本研究で用いるスタックが定常の場合においても提案手法に与える影響について明らかにした。

第6章 不具合時における磁気センサによる 電流分布計測評価および不具合診断への適応

6.1 フラッシング状態における電流分布評価

6.1.1 実験方法、条件

実験には、4章同様 300 W 級 20 セルスタックを用いる。供給ガスとしては、アノードにポンペからの水素(純度 99.999%)を、カソードにポンプ(テクノ高槻製)からの空気をいずれも無加湿で供給する。流量はマスフローメータ(azbil CMS)によりモニタリングする。電子負荷(KIKUSUI PLZ334W)は定電流運転を行う。電流、電圧はロガー(HIOKI LR8400)により常時モニタリングされる。

また、本節においてスタックは各セルを同時に磁場測定するために図 6-1 のように空気入り口下向き設置にし、両端子接続とした。測定セルは、2、6、11、15、20 番である。空気入り口が下向きであるため、流量を減少させていった際にセル番号が小さいほどフラッシングが起りやすいと考えられる。定常電流値は 10 A ($= 0.265 \text{ A/cm}^2$)とし、供給 Air 流量を 20、18、16、14、12、10、9 L/min と変化させていく。流量に対応する Air ストイキ比は 10A 時において 5、4.5、4、3.5、3、2.5、2.3 となる。流量変化は、10 分間隔(ページ後)とし、磁場測定タイミング流量変化から 5 分後とした。ファン動作温度 35°C とし、測定条件を一定とするために常時回転している。室温は $25 \pm 1^\circ\text{C}$ 、湿度 $40 \pm 3\%$ であった。

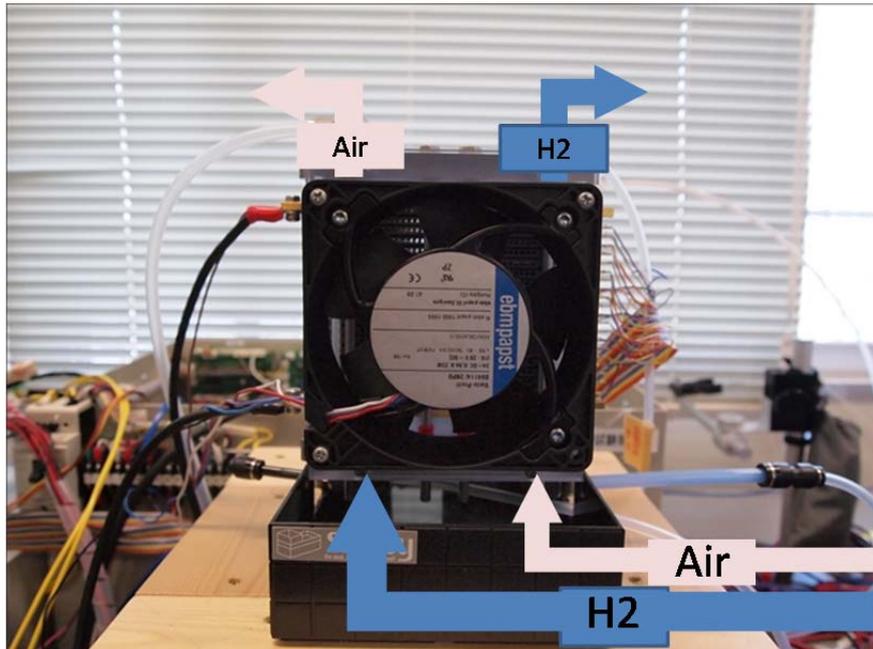


図 6-1 燃料電池スタックの空気入り口下向き設置図

6.1.2 結果と考察

図 6-2 に空気流量 9 L/min 時の測定セルの各点の計測磁場ベクトルを示す。アンペールの法則(右ねじの法則)により磁場に対して直交方向に電流は流れる。これを適応すると燃料電池中を流れる電流の方向に一致し、巨視的にスタック電流により発生する磁場を測定していることがわかる。また、20 番セルの $x = 63, 81$ の各点は回転方向とずれがある。これは、20 番セルが電極に近くその影響を受けていると考えられる。そして、2 番セルにおいても中央部、特に $(x, y) = (45, 45)$ の点において磁場方向が z 軸方向と一致する。したがって、アンペールの法則から面方向へ電流が流れていると考えられる。さらに、2 番セル $(x, y) = (63, 9)$ 、 $(x, y) = (81, 9)$ の点においても磁場方向が z 軸方向に近く、この点はカソードの出口側である。したがって、この点においてフラッディングが起きた可能性が高い。

図 6-3 に空気流量 20 L/min 時の測定セルの各点の電流分布を示す。電流分布は左右に分かれる。この要因として、負荷を集電板の両端子に接続したためであると考えられる。また、セルの面圧が一定でなく、流路が完全に形成されていないため電極の影響を受けていることも示唆される。

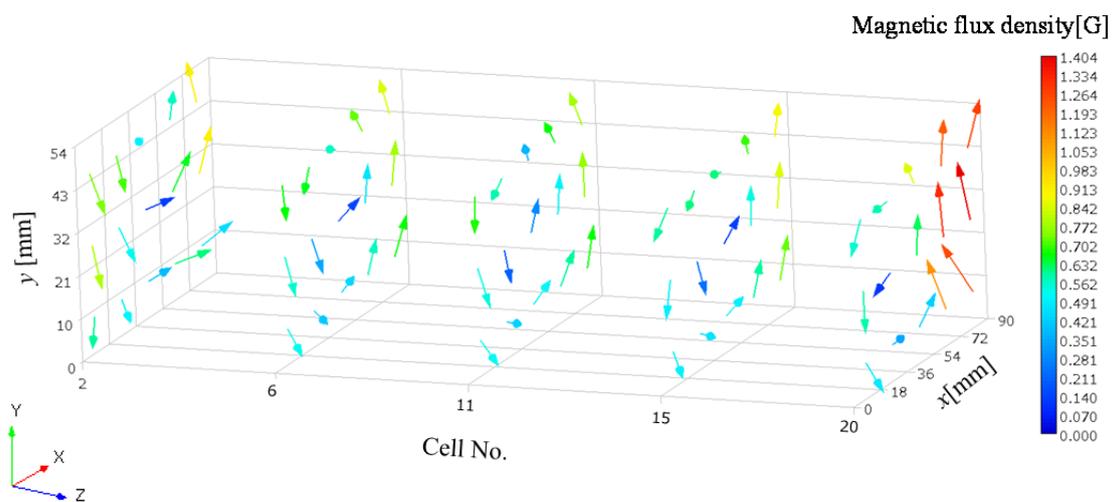


図 6-2 各セルの磁場ベクトル図

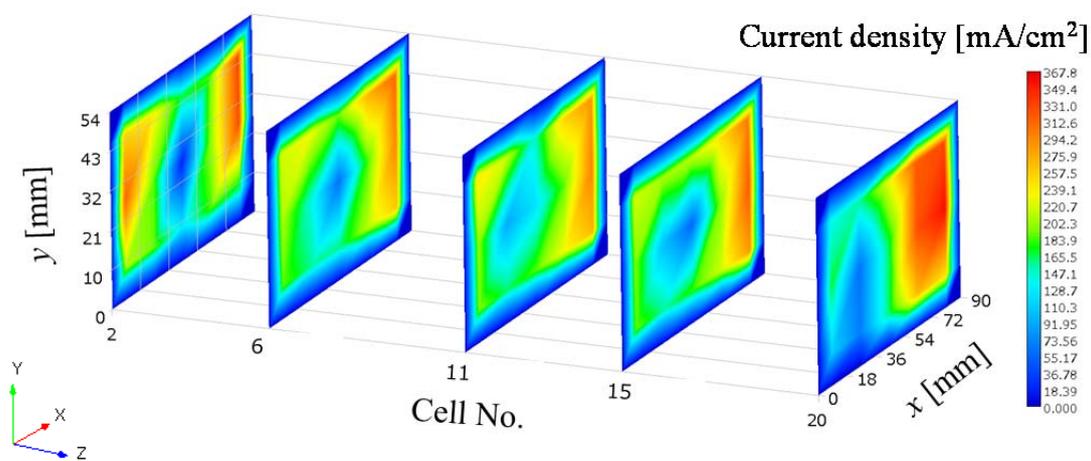


図 6-3 各セルの電流分布図

図 6-4 に各セルの流量 20 L/min と 9 L/min の電流分布の差を示す。赤いほど、流量によって差が大きいことを示し、電流密度が減少した事を示している。結果から、2 番セルカソード出口付近 $(x, y) = (63, 9)$ 、 $(x, y) = (81, 9)$ および 20 番セル中央下部 $(x, y) = (36, 9)$ 付近において電流密度が減少している事がわかる。要因としては、フラッディングもしくは流量の減少による発電量の低下が考えられる。

そこで、各セル I-V と磁場の z 成分から要因の特定を行なった。 z 成分には式(3.33)により相対値 B_z' を算出した。図 6-5 に各セルの積層方向相対磁束密度 B_z' を示す。流量に関係なく、2 番セルでの相対磁束密度が大きいことがわかる。また、ストイキ比が 2.3 に減少する、つまり流量が減少した際に、前述 2 番セルカソード出口付近 $(x, y) = (63, 9)$ 、 $(x, y) = (81, 9)$ が上昇している。図 6-6 は 2 番セルの相対的な z 成分の磁束密度分布である。セル面中央の z 成分の磁束密度は変化していない。図 6-7 に 2 番セル入り口、出口側の積層方向相対磁束密度を示す。入り口ではほぼ変化のない磁束密度が、ストイキ比 2.3 においてはカソード出口付近で積層方向の磁束密度が増加している。また図 6-8 のように定電流時のスタック電圧は減少している。さらに、図 6-9 のように空気入り口側を下向きにしているため番号の小さいセルの電圧変動が激しい。以上のことから、流量の減少によってカソード出口に生成水が溜まりフラッディングが起きたと推測される。また、20 番セルにおいてはストイキが小さくなった際の変化が見られなかった。さらに、図 6-9 のように 20 番セルの電圧に変動はないが、相対的に低く徐々に減少しつつあることから、膜の乾燥が懸念される。したがって、20 番セルにおいては、フラッディングでなく流量不足やドライアウトによる発電量の減少であると推測される。測定区域をさらに細かくすることによって解像度が増加し要因の特定につながる事が予想される。

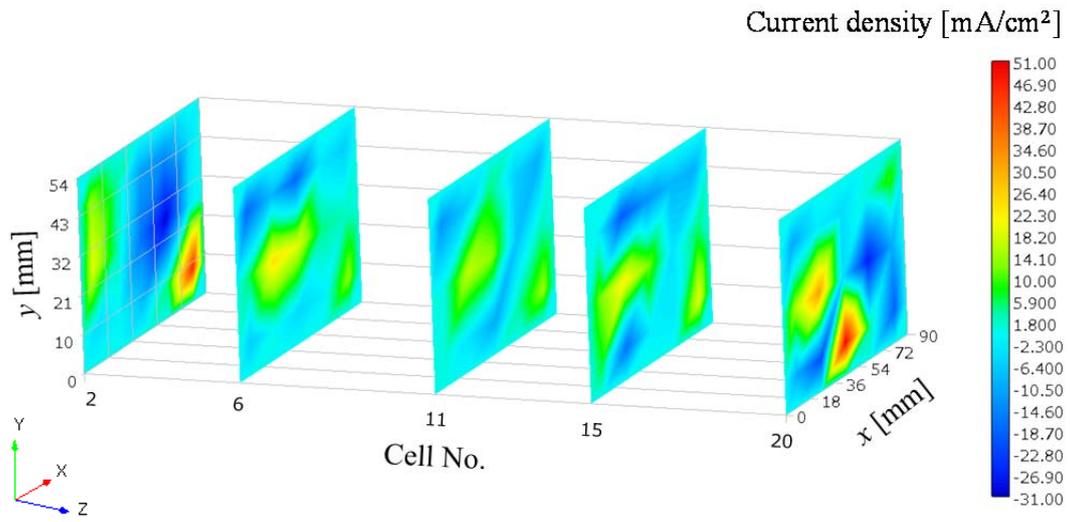
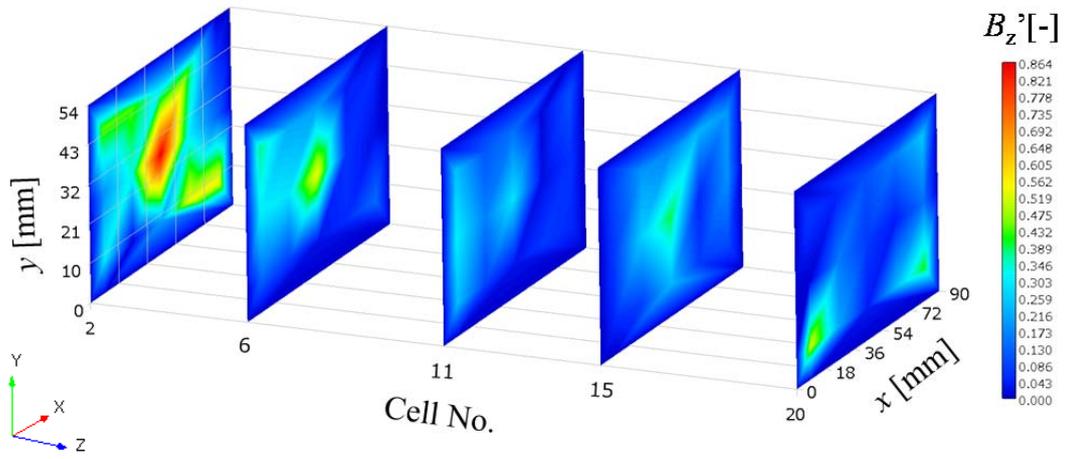
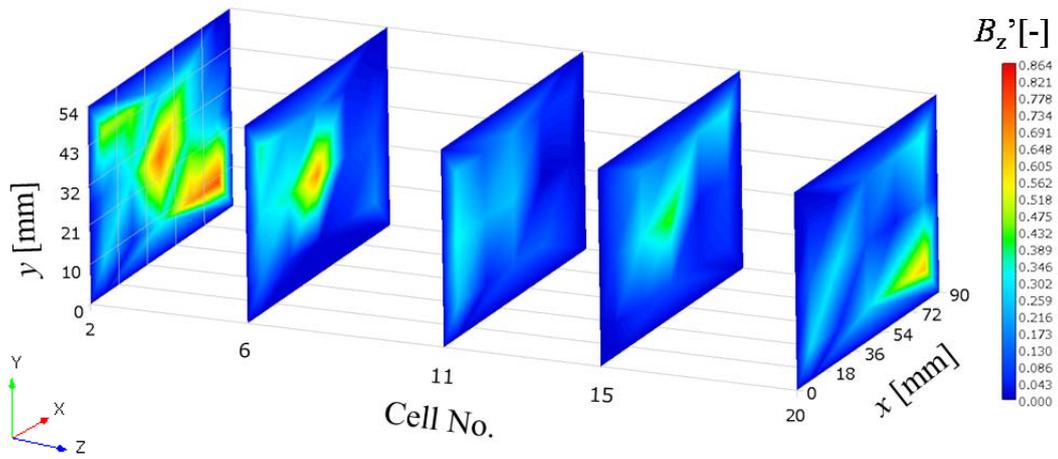


図 6-4 流量 20 L/min と 9 L/min の電流分布の差



(a) $\lambda = 5$



(b) $\lambda = 2.3$

図 6-5 各セルの積層方向相対磁束密度

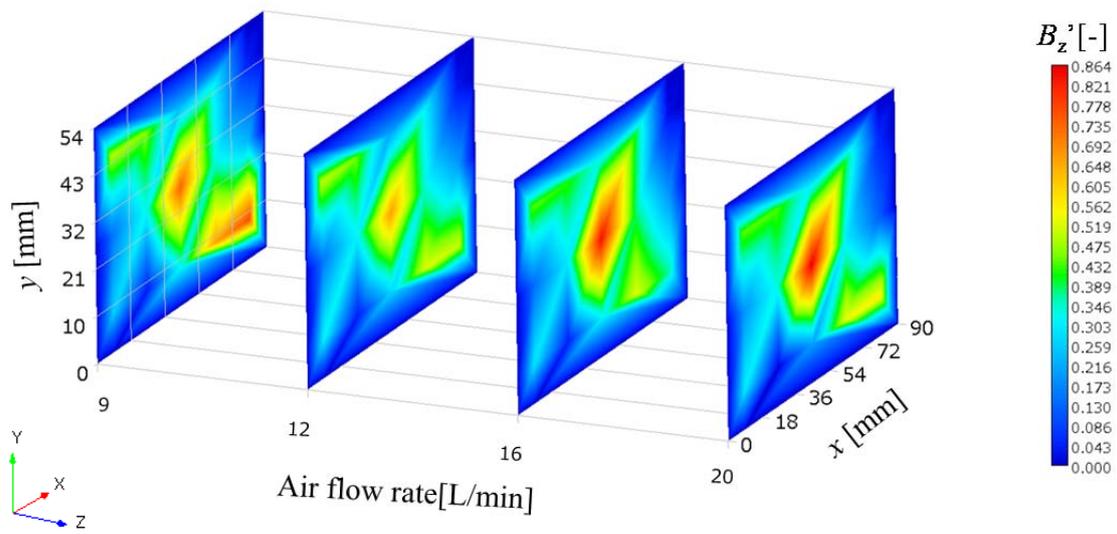


図 6-6 2 番セルの積層方向相対磁束密度分布

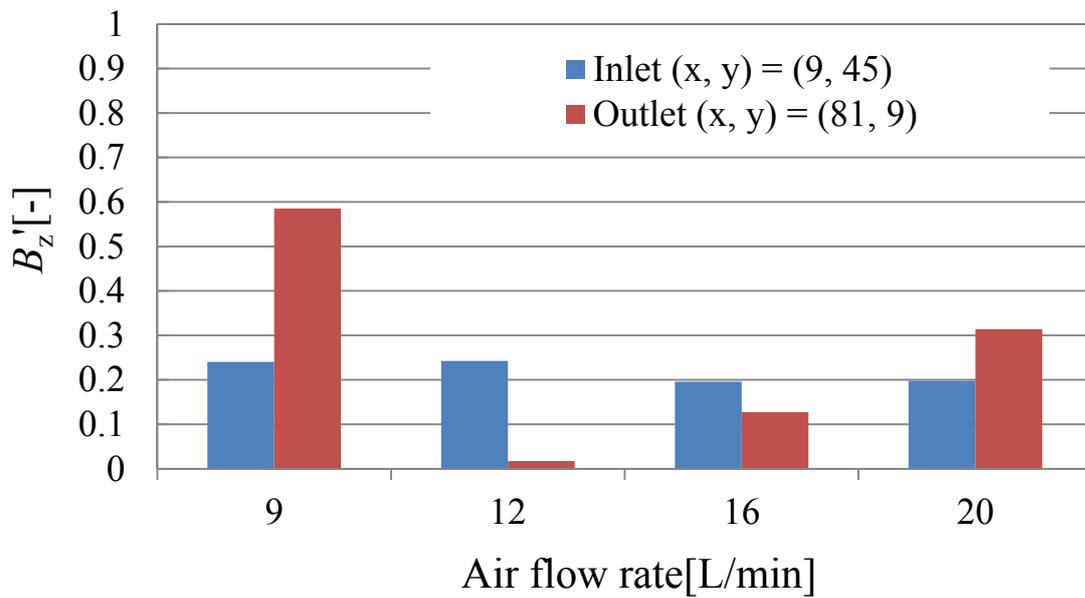


図 6-7 カソード入り口、出口における積層方向相対磁束密度

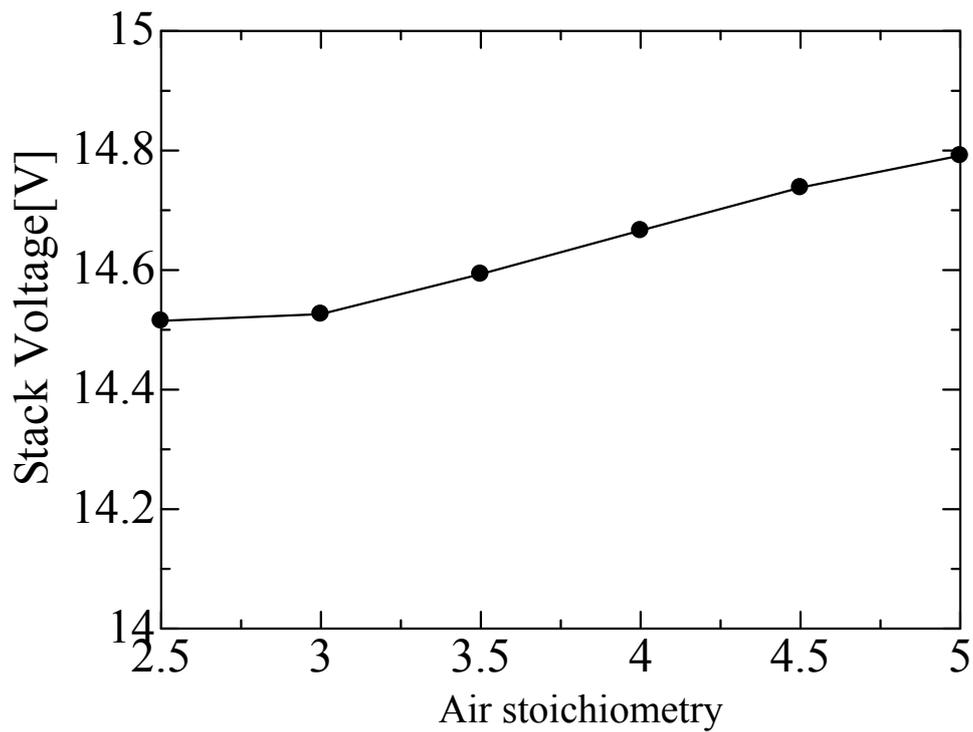


図 6-8 各ストイキ比のスタック電圧

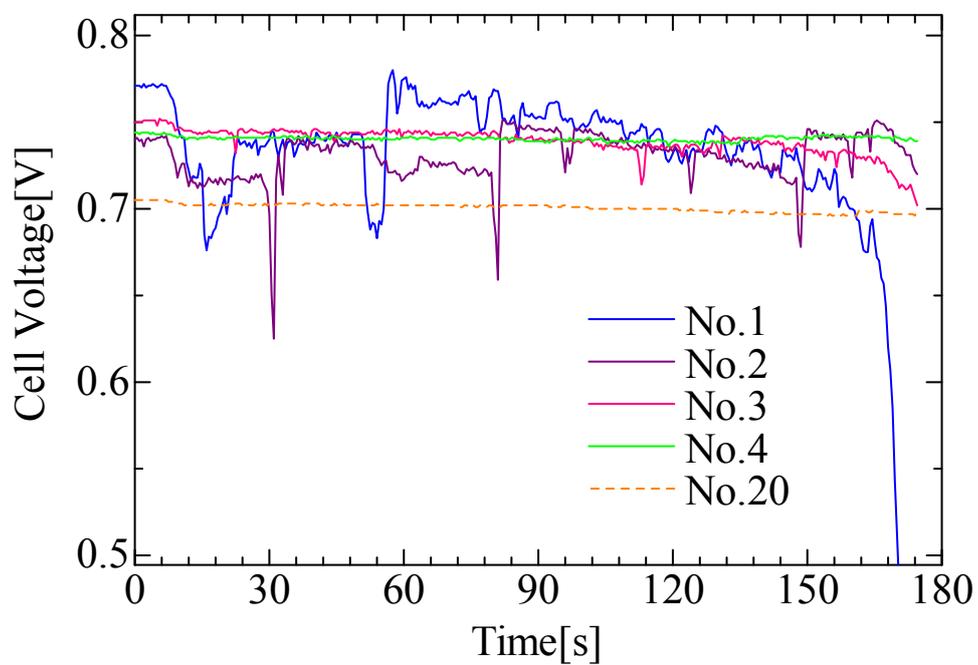


図 6-9 各セルの電圧時間変化

6.2 ドライアウト状態における電流分布評価

6.2.1 実験方法、条件

実験には 5 章同様、2 セルスタックを用いる。アノードにはボンベからの水素(純度 99.999%)、カソードにはポンプ(テクノ高槻製)からの空気を、ともに無加湿でマスフローメーター(azbil CMS)を通して供給する。運転中はロガー(HIOKI LR8400)によって電圧、電流の測定、記録を行う。

2 セルスタックの電流電圧特性の測定条件を表 6-1 に示す。今回は 2 つの測定条件により電流電圧曲線を測定した。まず、(H1 case)水素 1.0 L/min、空気 2.0 L/min、そして(H2 case)水素 2.0 L/min、空気 4.0 L/min であり、いずれも無加湿で各測定点に対して 4 章同様 2 分ごとに測定した。アノード-カソードストイキ比は 15 A 時で(H1 case)4.1、3.4、(H2 case)8.1、6.8 である。また、Kim モデル(式.(2.5))を用いたフィッティングによる分極特性解析を行った。

さらに、今回はスタック面内電流分布の変化を磁気センサにより測定した。H2 case において電子負荷(TAKASAGO FK-160L2Z)を用いて 1.2 V 定電圧運転を行う。また、各測定点の初期状態からの減少率 r_d を算出した。

$$r_d = \frac{\sqrt{B_x^2 + B_y^2}}{\sqrt{B_{x0}^2 + B_{y0}^2}} \quad (6.1)$$

B_{x0} 、 B_{y0} : 初期状態における x 、 y 軸の磁場測定値

B_x 、 B_y : x 、 y 軸の磁場測定値

表 6-1 各測定条件

	Hydrogen flow rate [L/min]	Air flow rate [L/min]
H1 case	1.0	2.0
H2 case	2.0	4.0

6.2.2 結果と考察

図 6-10 に各運転方法におけるセル I-V カーブを示す。表 6-2 に各運転方法のフィッティングによる各フィッティングパラメータを示す。 R_{ohmic} は抵抗成分、 A は Tafel 勾配、 m 、 n は拡散分極のパラメータである。図 6-10 のように各セルとも H1 case に比べ、H2 case では電流密度が高くなるにつれて電圧の減少している。最大出力は H1 case 25 A 時で 32.0 W であった。また、H2 case では 1 番セルが 17.5 A 以上で 0.1 V 以下になってしまったため測定できなかった。抵抗分極パラメータを見ると、H1 case に比べ増加していることから、流量が大きいことによる膜の乾燥が推測される。また、H2 case においてセル 1 がセル 2 に比べ、減少が顕著である。これは、フィッティング評価によると抵抗分極のほか、活性化分極に起因するものと推測される。

図 6-11 に H1 case における各電流値の電流分布を示す。最大値は $(x, y) = (81, 45)$ の点で 933.62 mA/cm^2 となった。一方、 $(x, y) = (45, 45)$ の中央の点では 119.95 mA/cm^2 となった。H2 case および先行研究[101]における同形の 20 セルスタックにおいても同様に両端に偏る傾向であった。このことから運転方法に起因するものではなく、前章で特定した要因である負荷に接続している集電板の影響および面圧不足が原因と考える。

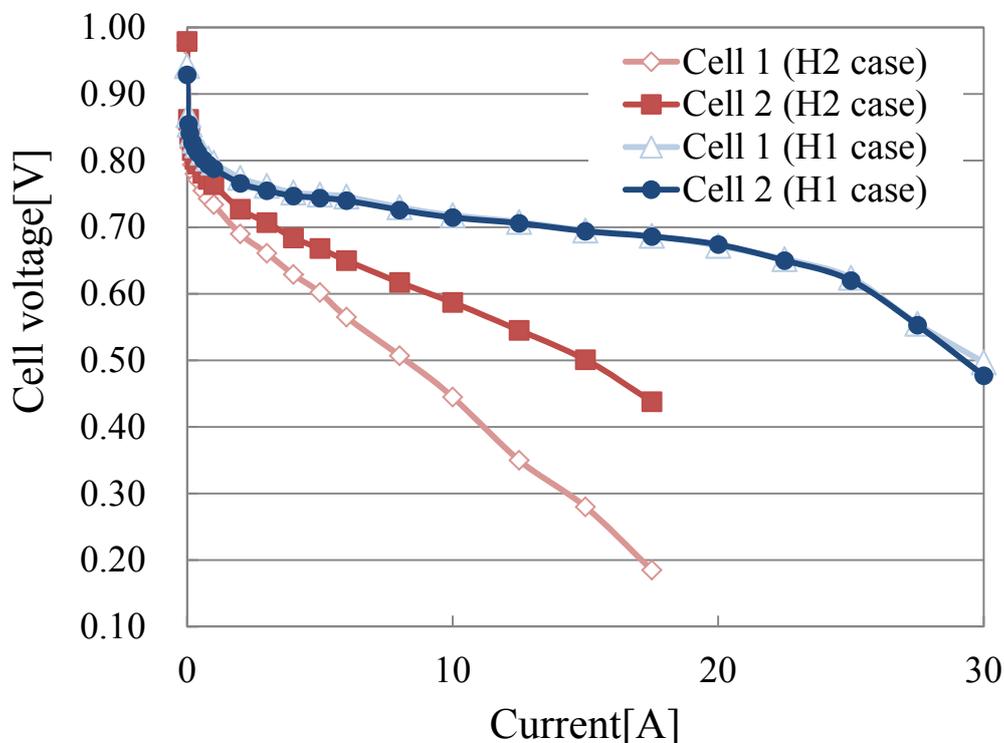


図 6-10 各流量条件における電流電圧曲線

表 6-2 各流量条件におけるフィッティングパラメータ

(a) H1 case

	R	$R_{ohmic} [\Omega cm^2]$	$A [V]$	$m [V]$	$n [10^{-3} cm^2/A]$
Cell 1	0.995	0.126	0.0210	0.0680	18.10
Cell 2	0.991	0.155	0.0180	0.0871	0.00

(b) H2 case

	R	$R_{ohmic} [\Omega cm^2]$	$A [V]$	$m [V]$	$n [10^{-3} cm^2/A]$
Cell 1	0.992	0.206	0.0540	0.0571	4.05
Cell 2	0.999	0.245	0.0281	0.106	1.74

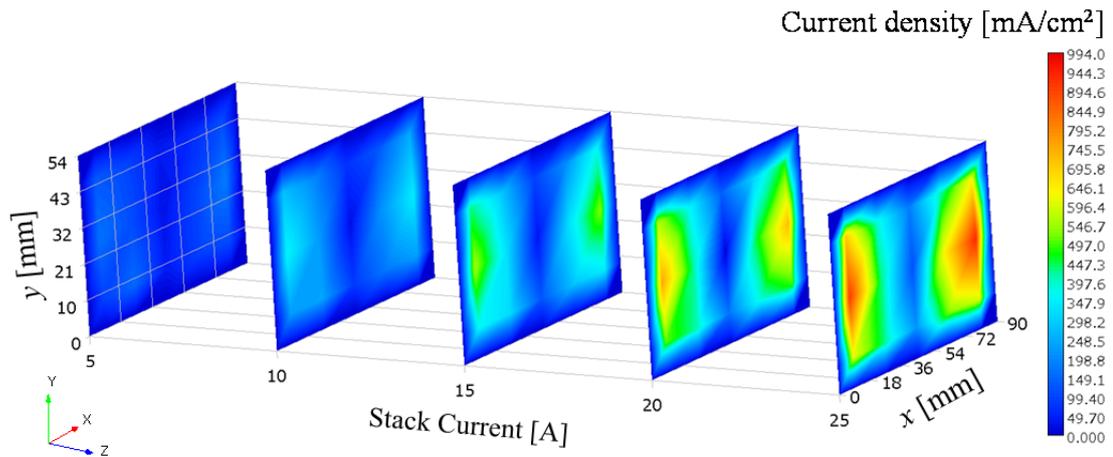


図 6-11 H1 case における電流分布

H2 case では乾燥状態であることが確認された。そこで、H2 case において定電圧時に電流密度分布がどのように変化するかを測定した。図 6-12 に 5 分毎の電流密度分布を示す。各測定時のスタック電流値は図 6-13 のように初期状態 6.8 A から 6.1、5.5、5.2、4.9 A と 20 分後には 27.9% も出力が減少していく。図 6-14 の各点の減少率をみると多くの点で磁場測定値が減少しており、 $(x, y) = (81, 9)$ の点では、初期状態から 40.4% まで低下している。ここは、カソード出口に位置しており、その影響で乾燥がより進んだと考えられる。しかし、 $(x, y) = (27, 9)$ 、 $(63, 45)$ の点では減少率 9 割以上とほとんど減少していない。これらの点では、 B_z' が大きく、初期状態から 20 分経過時までの平均値は 46.9、34.9% と他のすべての点が数% 以下であるのに比べ非常に大きい。したがって、これらの点では乾燥以外の影響、例えば燃料流路や個体差などにより迂回電流が大きく、そのため乾燥による減少率が小さい。なお、減少している点における B_z' については最大で 2.9% の増加であった。これはフラッディング時より小さい。

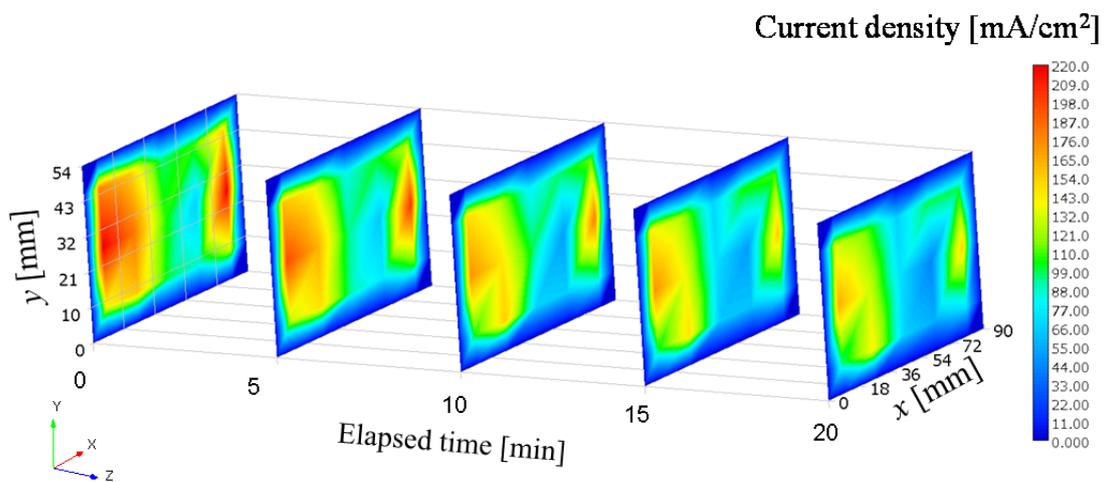


図 6-12 H2 case におけるスタック電圧 1.2 V の電流分布推移

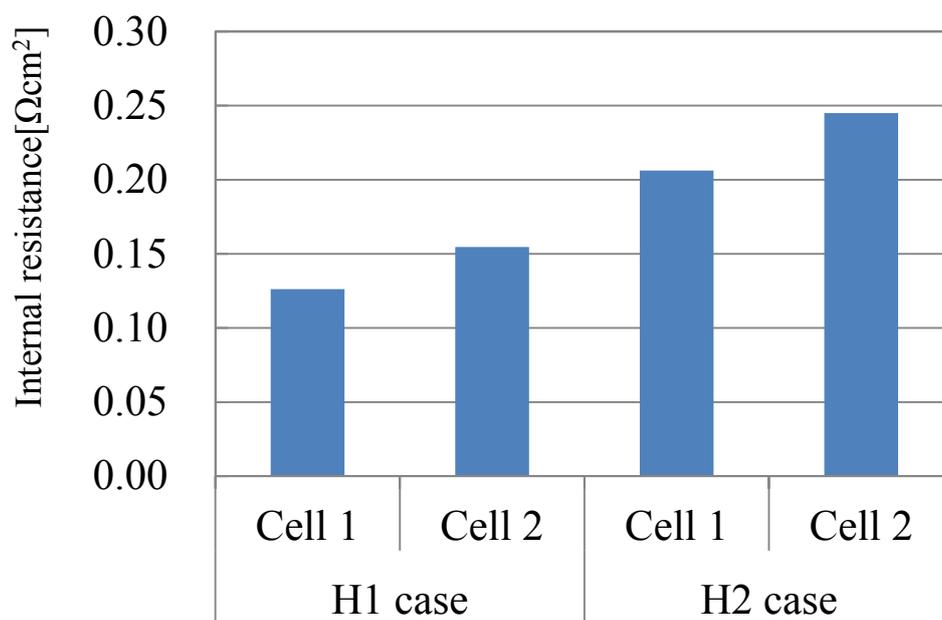


図 6-13 H2 case におけるスタック電圧 1.2 V 時の出力電流値

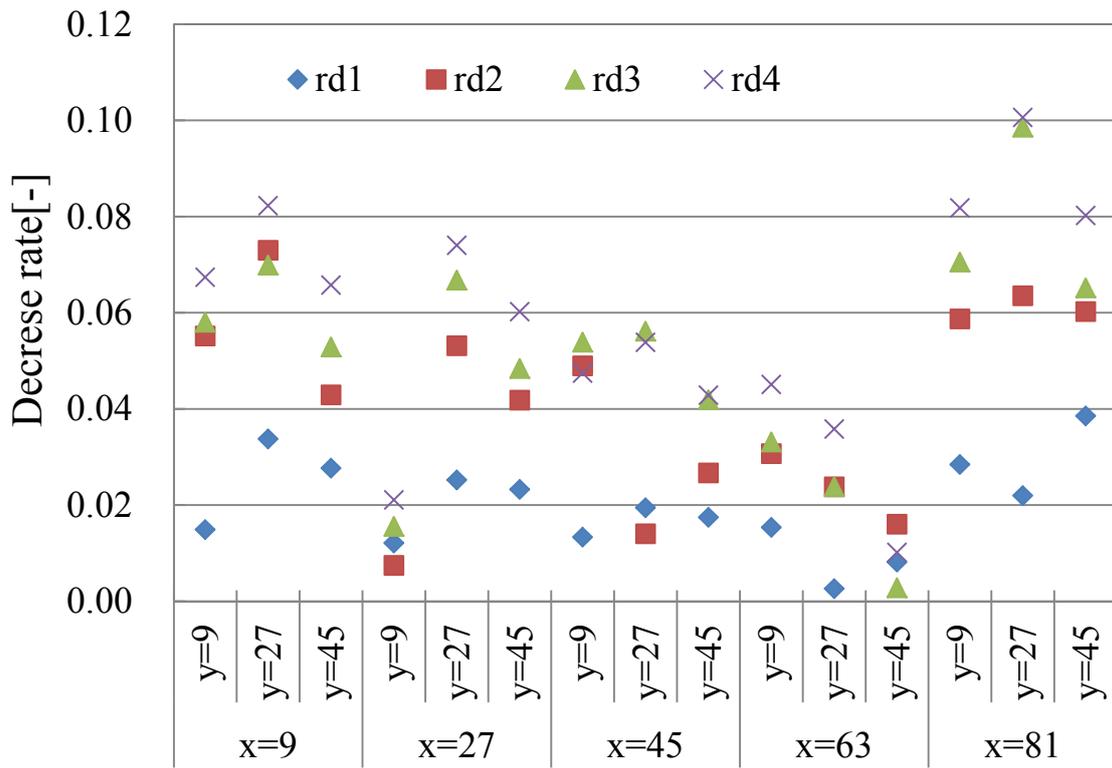


図 6-14 電流分布測定点における電流密度減少率

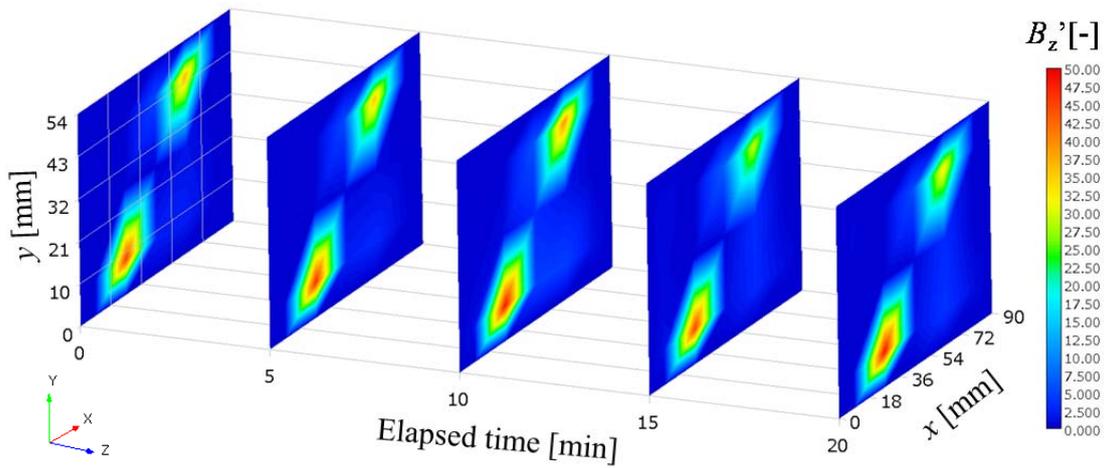


図 6-15 スタック電圧 1.2 V 時の積層方向の相対磁場 (H2 case)

6.3 まとめ

本章では、今回対象とする固体高分子形燃料電池の代表的な不具合であるフラッディングとドライアウトに対する提案手法を用いた評価結果を示した。

まず、20 セルスタックを燃料入り口下向きに設置し、流量変化の条件とすることで入り口側においてフラッディングを模擬した。今回のフラッディング条件である空気ストイキ比 2.3 において電流分布は定常と同様左右に偏る結果となった。しかし、ストイキ比 5 との差分により、顕著に低下している箇所を特定した。2 番セルにおいては特にカソード出口側で低下しており、これはフラッディング時に水が滞留しやすい箇所と一致している。この箇所における磁場の積層方向成分の相対値 B_z' は、ストイキ比 2.3 において 0.31 から 0.58 まで上昇しており、このことからカソード出口付近で生成水が滞留しているとともに、 B_z' によるフラッディング判別の可能性を示した。

続いて、2 セルスタックにおいて流量増大させドライアウトを模擬した。ドライアウト条件における電流分布は時系列に変化しており、スタック電流値としては 1.9A 減少し、最も低下したアノード出口側では 40.4% 初期値に比べ減少した。一方、 B_z' の変化は最大で 0.03 と小さかった。

以上の結果から、電流分布の差分によって出力低下箇所の特定ができることが確認された。また、 B_z' の測定により、出力低下の不具合がフラッディングかドライアウトかという判別が可能であることを示した。本提案手法は、空冷口に挿入するという制約はあるものの、先行研究における磁気センサを用いた評価に比べ、スタックの各セルの出力低下箇所の特定、不具合の判別に関しては優れているといえ、システムにおける In-situ 診断を可能にした。

第7章 提案手法の統合による非破壊診断

フィッティング評価モデル式による分極特性解析により、電流、電圧、温度というこれまで従来システムにおいても測定している指標を用いることで、電圧低下要因の解析が可能となった。また、磁気センサと用いた電流分布測定評価により、これまで非破壊、in-situにおいて計測困難であった電流分布低下箇所と不具合判別が可能となった。本章では、これらの統合による非破壊診断手法として、I-V カーブ測定時診断と運転時診断を提案する。また提案手法による評価、考察、課題について示す。

7.1 I-V カーブ測定時診断

I-V カーブ測定は、システムの初期運転時や動作確認時に、一時的に負荷から切り離し電子負荷装置などにより燃料電池セルスタック性能を評価する一般的な診断方法である。この測定は、セルおよびスタックで行われる。定電流負荷においてI-V カーブ測定を行う場合、各セルの電圧は異なりセル電流は一定となるが、磁気センサのセル面測定点において電流は異なる。したがって、セル面においてI-V カーブは変化する。本研究において提案した磁気センサを用いた電流分布評価手法により、さらにセル面においてもI-V カーブを測定することが可能となる。また、I-V カーブフィッティングにより各分極特性も評価でき、電圧低下要因を定量的に評価できる。

本節では、燃料電池スタックに対して磁気センサを用いた電流分布測定を行い、さらに各測定点から導き出されたI-V カーブに対してフィッティング評価モデルにおける分極解析をした結果および考察について示す。

7.1.1 測定方法・条件

実験条件として、スタックは 6.1 と同様に inlet 下向き設置にした。測定セルは、No. 2、6、11、15、20 である。I-V カーブは 5 章と同様に、OCV~1A までの低電流域は 0.1 A 刻みで、9 A 以降の高電流域においては 0.5 A 刻みで、デジタルロガー(HIOKI LR840)によって 0.5 秒ごとに電圧値を記録している。I-V カーブとしては平均値をプロットした。

本節では、定常状態およびフラッディング状態における非破壊診断を行う。表 7-1 に、各状態における空気ストイキ比、ファン動作温度について示す。定常状態においては、Air ストイキ比は 5、ファン動作温度 45°C とした。フラッディング状態においては、6.1 と同様に、空気流量 9 L/min、ファン動作温度 35°C とした。室温は 25±1°C、湿度 40±5 %であった。これら 2 つの条件には異なる 20 セル同出力のスタックを用いる。提案モデル式(3.28)を用いたフィッティングによって、内部抵抗値や活性化分極、濃度分極を評価した。温度変数としては、各セル中央部に設置された熱電対により計測された温度を用いている。

表 7-1 各状態における空気ストイキ比、ファン動作温度

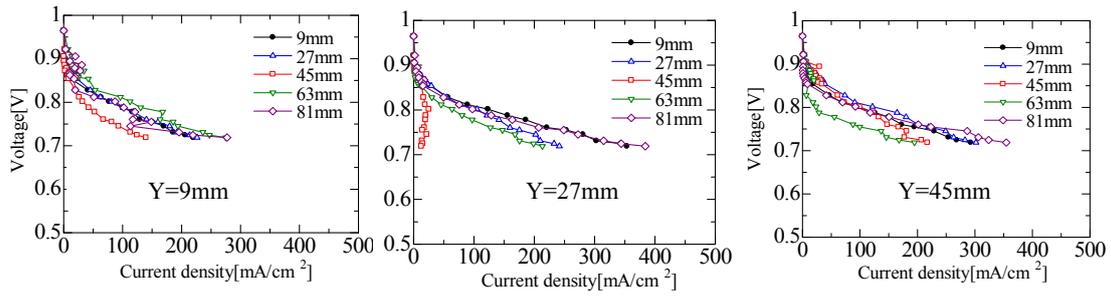
	Cathode flow condition	Operation temperature of fan[°C]
Stedy state	Stoichiometry = 5	45
Flooding state	Flow rate = 9 L/min (Constant)	35

7.1.2 定常状態における面内電流電圧特性および分極評価結果

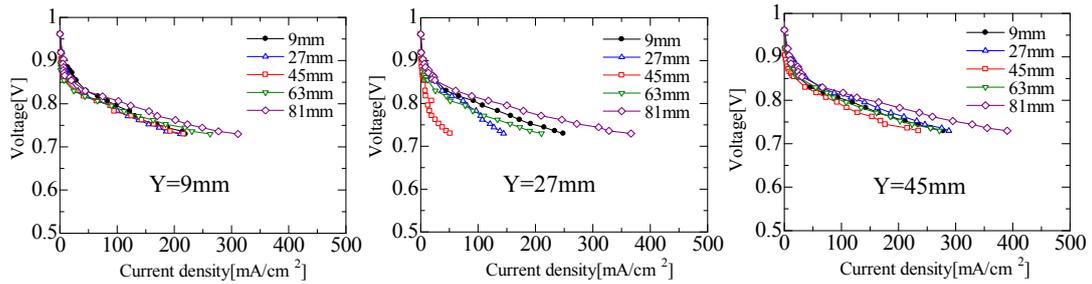
図 7-1 に面内電流電圧特性を示す。図 7-2 に 11 番セルにおける面内電流電圧特性について示す。セルの面内各部において電流電圧特性は異なった。特に、セル中央部 $x = 27, 45 \text{ mm}$ 、 $y = 27$ の出力が相対的に低い。これは 6.1 節で示したように、積層方向ではなく面方向に電流が流れているためであると考えられる。また、セル I-V カーブのように滑らかな曲線を描くことができなかった。特に低電流域とでは歪みが大きく、これは低電流域では電流によって発生する磁場が小さく周囲磁場の変化を受けていることが考えられる。

図 7-3 に面内各部電流 $i_{\text{local}} 200 \text{ mA}$ 時の 11 番セル面内分極評価を示す。 $(x, y) = (27, 27)$ において、各分極値の総計がセル OCV 電圧を上回ったため評価不能とした。これらは、出力が相対的に低い点と一致する。

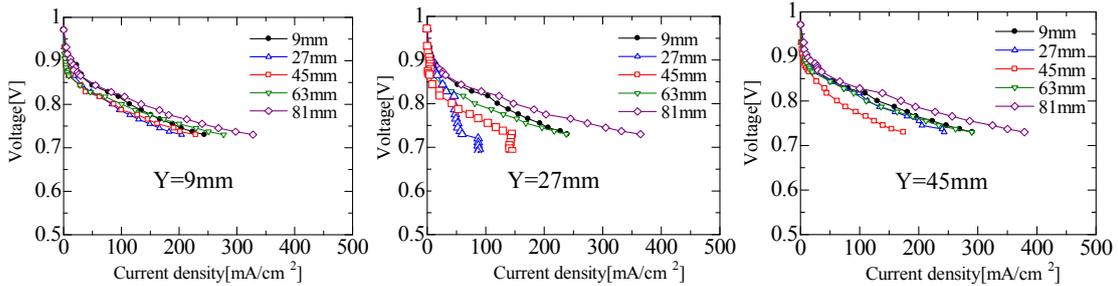
定常状態において各セルの測定点における面内電流電圧特性を図 7-2 のように示すことが可能となった。課題としては、今回は各セル温度を用いているが磁気センサの各セル面測定点の温度と異なる点がある。磁気センサでの測定の際に、同時に温度を測定することでさらに分極解析精度の向上が期待できる。



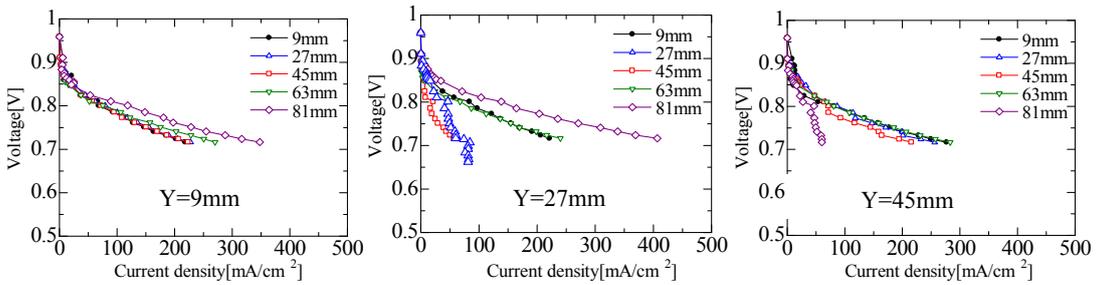
(a) Cell 2



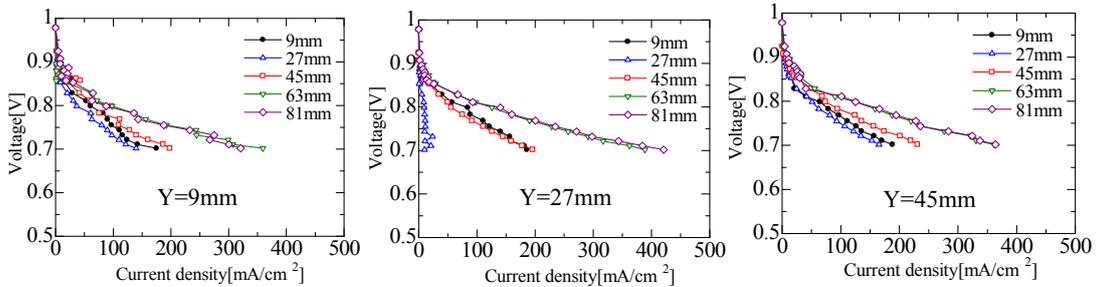
(b) Cell 6



(c) Cell 11



(d) Cell 15



(e) Cell 20

図 7-1 定常状態における面内電流電圧曲線

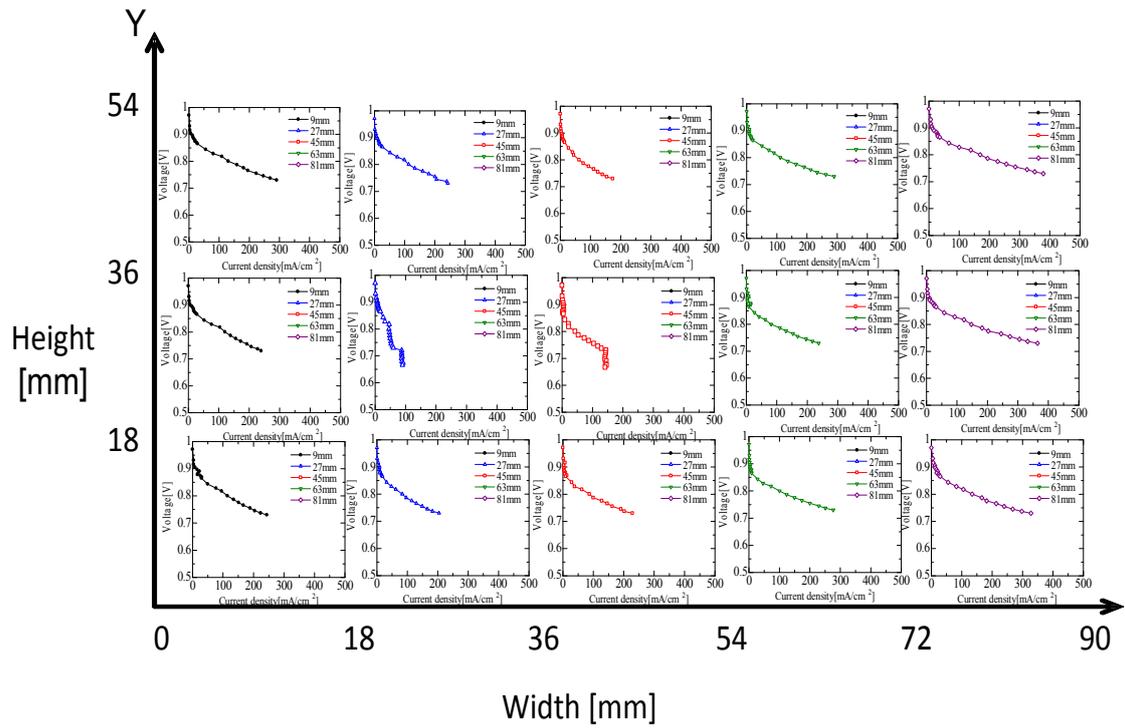


図 7-2 定常状態における 11 番セルの各測定点における面内電流電圧曲線

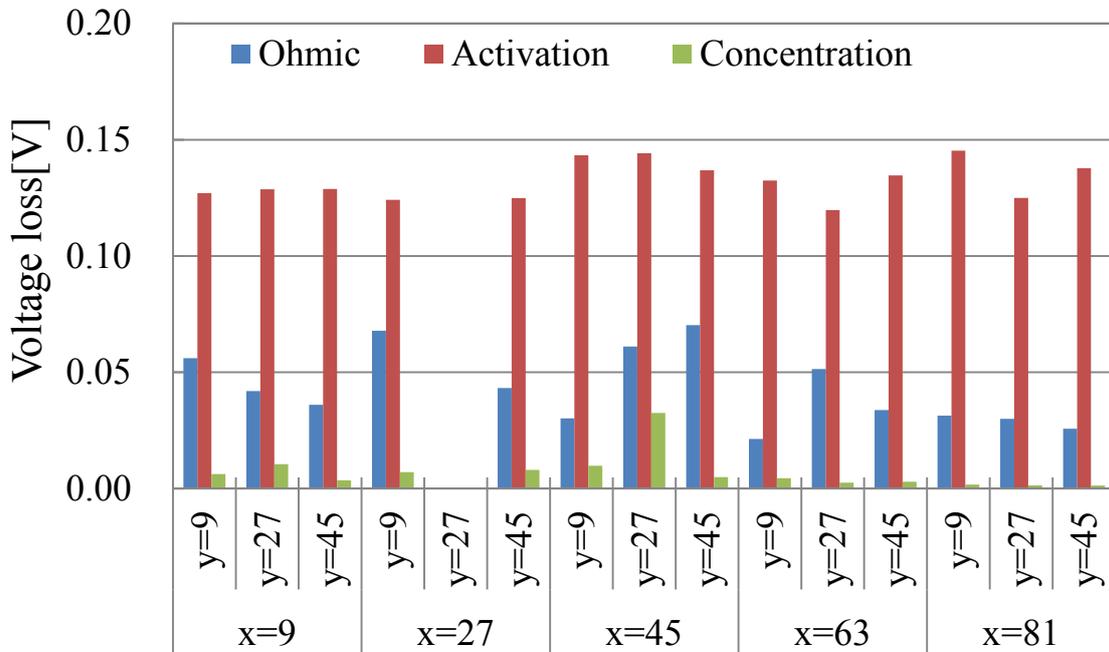


図 7-3 定常状態における 11 番セルにおける面内分極 ($i_{local} = 200 \text{ mA}$)

7.1.3 フラッディング状態における面内電流電圧特性および分極評価結果

図 7-4 に測定セルの I-V 曲線を示す。燃料入り口側を下向きに設置し、入り口側セルにおいてフラッディング状態を模擬しているスタックであるため、図 7-4 の I-V 曲線のようにセル 2 において電圧が低く、また 10 A 付近で電圧変動が起き、11.5 A から電圧低下が大きい。図 7-5 に定常状態およびフラッディング状態における 2 番セルの電流電圧曲線および図 7-6 に分極評価結果を示す。フラッディング状態に用いたスタックにおいて、定常状態のファン動作温度、ストイキ比での電圧低下はみられず、濃度分極が現れていない。一方、フラッディング状態においては抵抗分極が 0.22 から $0.10 \Omega\text{cm}^2$ に減少し、濃度分極が現れ 10 A 時に 0.017 V の濃度分極による電圧低下があることがわかる。また、図 7-7 に I-V カーブ測定時の 10 A から 10.5 A 時の入り口側セルにおける測定電圧値を示す。入り口側、特に 1 番セルにおいて最大 0.3 V と変動が大きい。また 2、3 番セルにおいても変動があることから 1-3 番セルにおいてはフラッディング状態にあると考えられる。

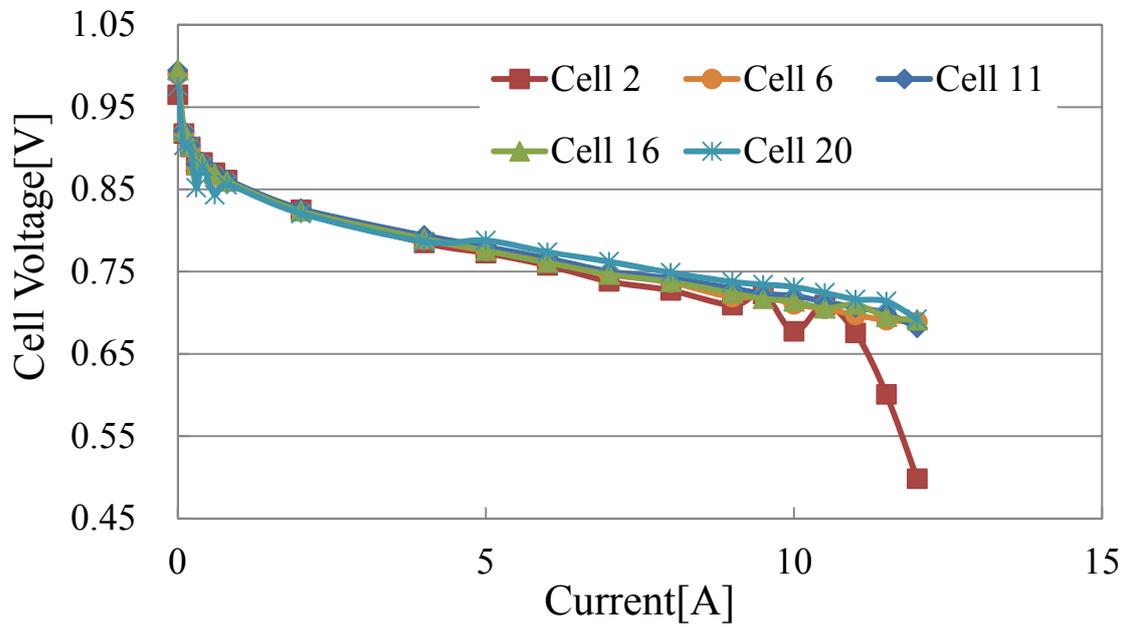


図 7-4 フラッディング状態におけるセル I-V 曲線

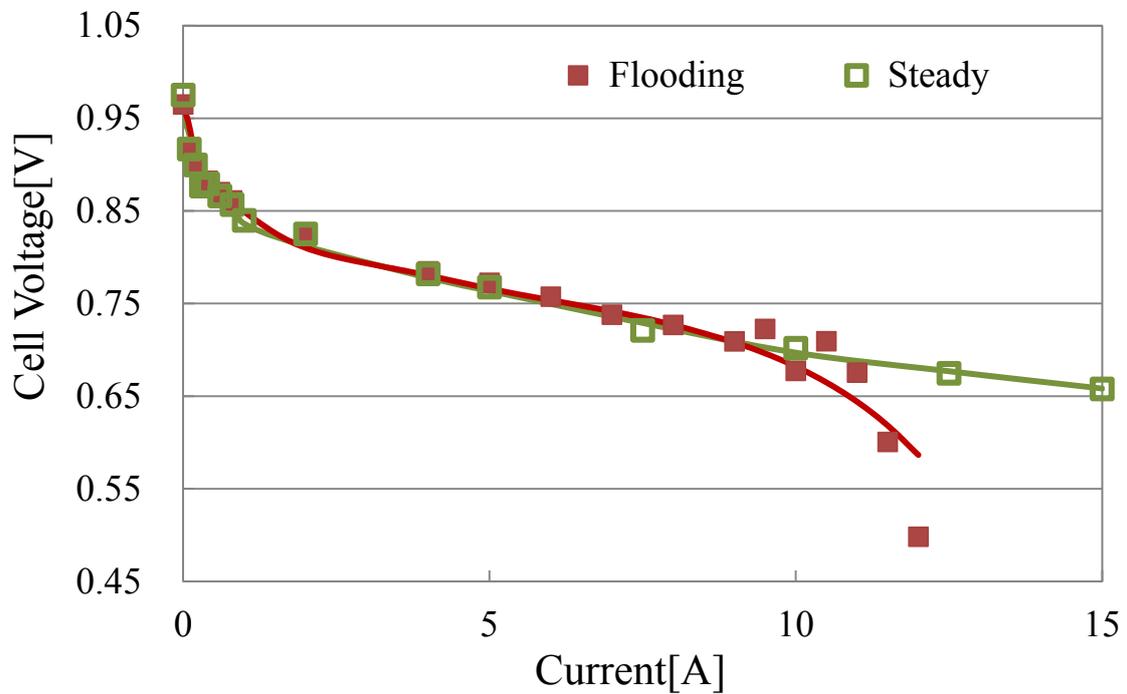


図 7-5 定常状態、フラッディング状態における 2 番セル I-V 曲線比較

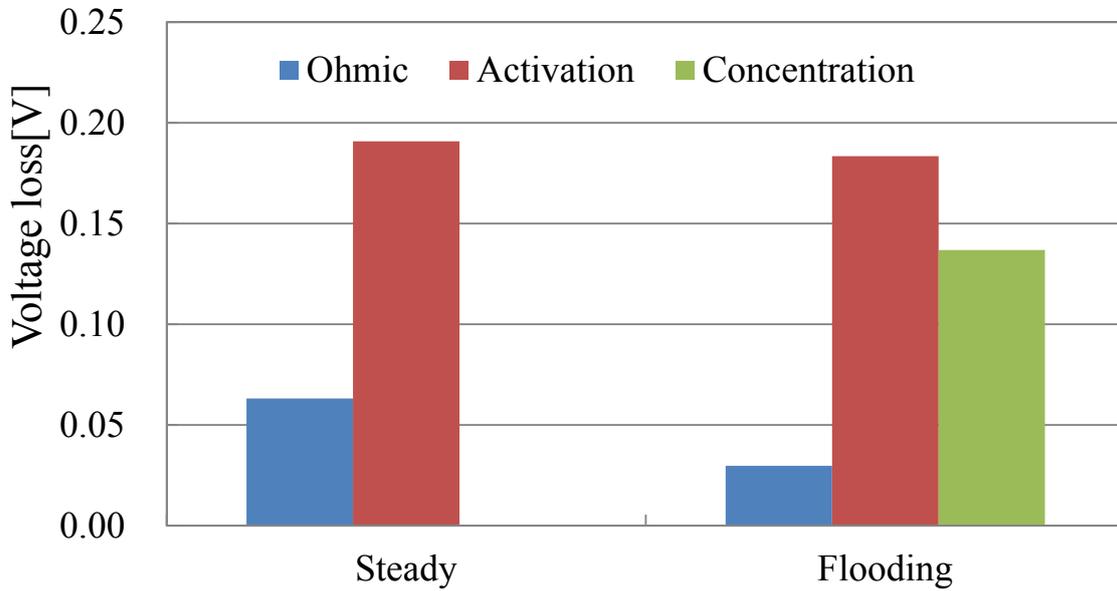


図 7-6 12A 時の定常状態、フラッディング状態における 2 番セル分極評価

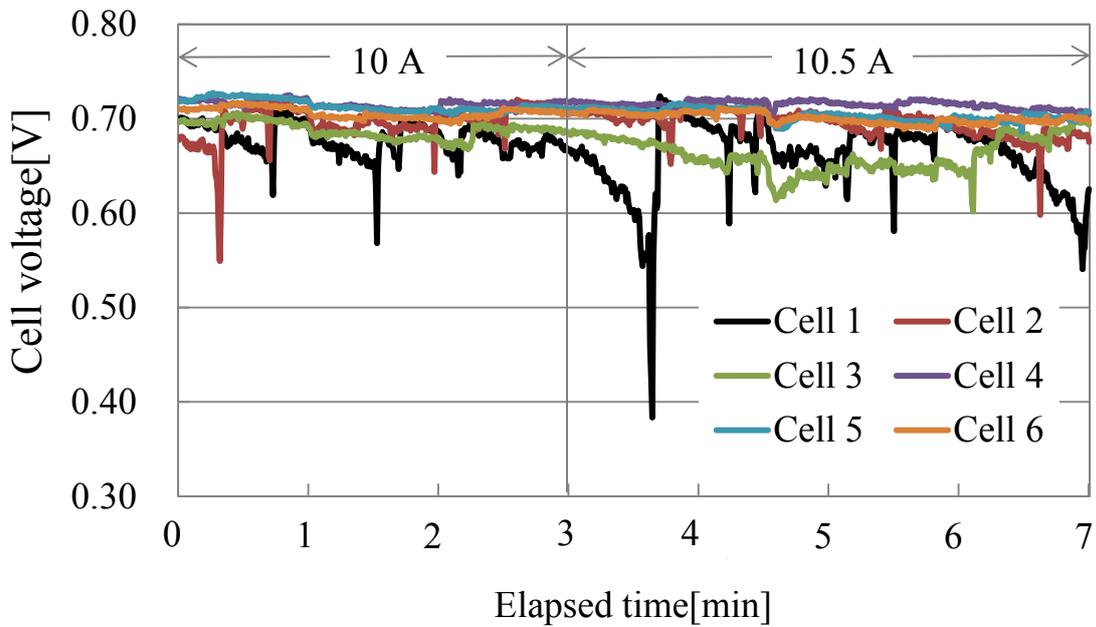
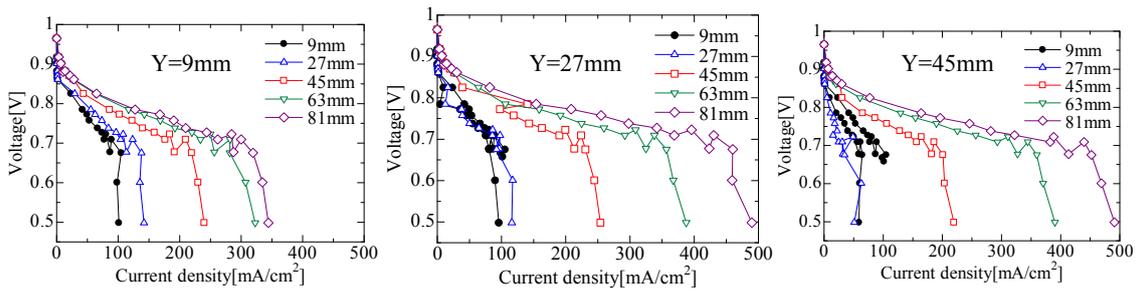


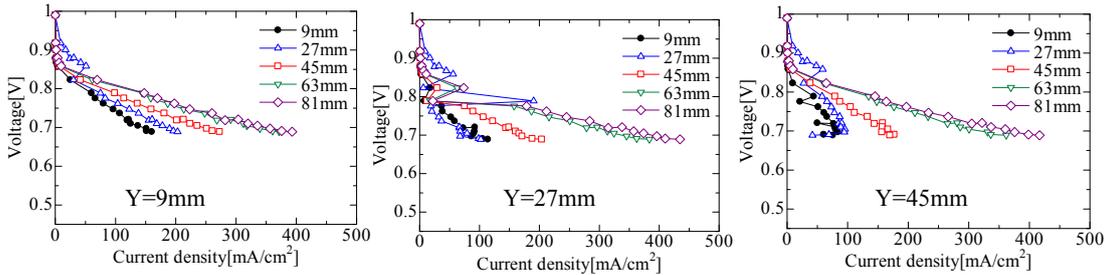
図 7-7 フラッディング状態におけるセル電圧変動

図 7-8 にフラッディング時の面内電流電圧曲線を示す。磁場計測装置のセンサ不具合により、16 番セル $x = 81 \text{ mm}$ において測定できていなかった。図 7-4 で示したように 2 番セルの高電流域における電圧は他のセルと比べ、減少している。これが面内電流電圧曲線にも現れている。本状態において用いたスタックにおいては $x = 9, 27 \text{ mm}$ において電流が小さく、これはスタック固有の問題および端子の影響であると考えられる。また、図 7-9 に各セルにおける 11 A、12 A の積層方向相対磁場 B_z' 分布を示す。2 番セルの、特に $y = 9$ の地点で B_z' が大きく、これはカソード出口側でのフラッディングによるものと考えられる。2 番セルにおいて $(x, y) = (45, 9)$ 、 $(x, y) = (81, 9)$ の地点で B_z' の測定平均 0.517 と最も大きい。これらの 2 点について分極評価、比較を行う。

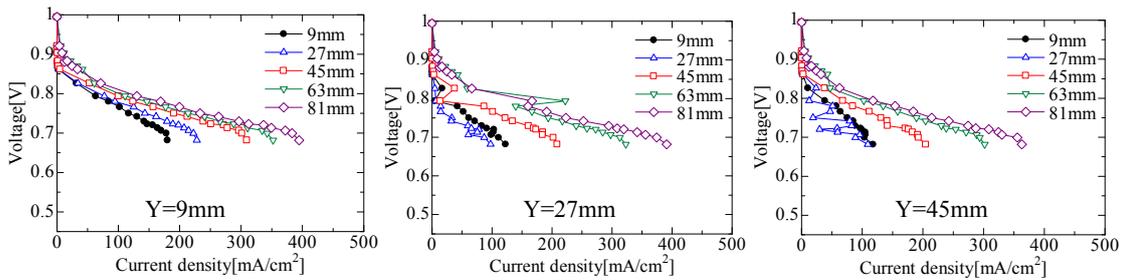
図 7-10 に各セルの濃度分極について、図 7-11 に B_z' について示す。濃度分極はフラッディング状態にある 2 番セルで大きく 0.0726 V ($x = 45$)、0.0895 V ($x = 81$) であった。最も小さい 20 番セルとは 0.0687 V の差が生じた。図示していない活性化分極については 0 A 時の分極も含めると 0.423 から 0.446 V とほぼ一定であった。また、抵抗分極は 0.100-0.120 Ωcm^2 とほとんど変化がなかった。これはストイキ比が小さく、各ファン動作温度が 35°C と低いために、理論値の下限に位置したことが考えられる。さらに B_z' も 2 番セルにおいて 0.568 ($x = 45$)、0.505 ($x = 81$) と大きく、6.1 と同様に相対的に大きくなっており、この部分でフラッディング状態であることが予想される。



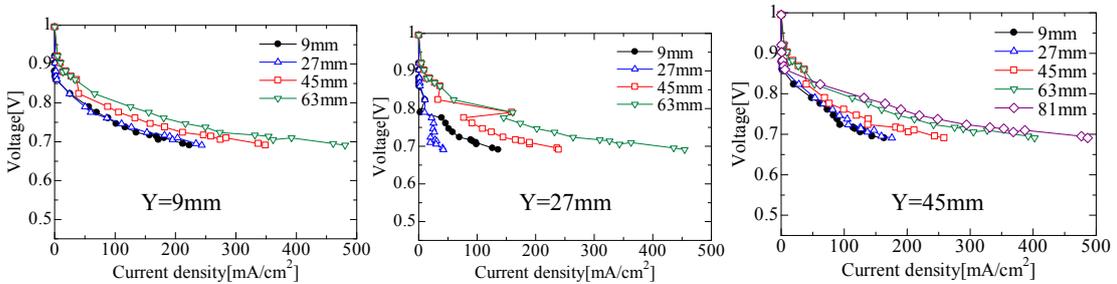
(a) Cell 2



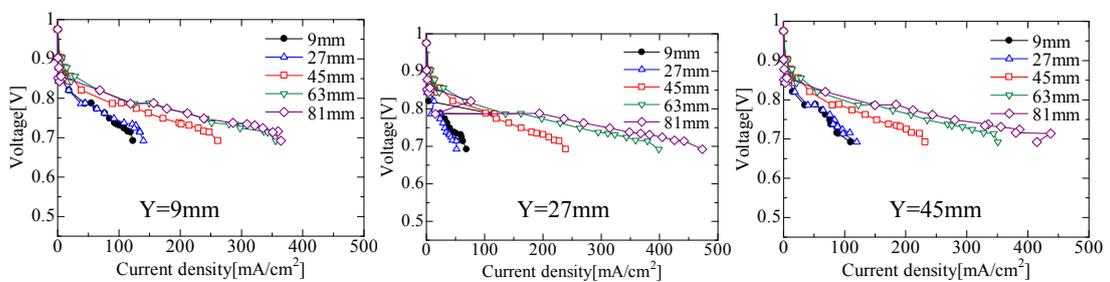
(b) Cell 6



(c) Cell 11

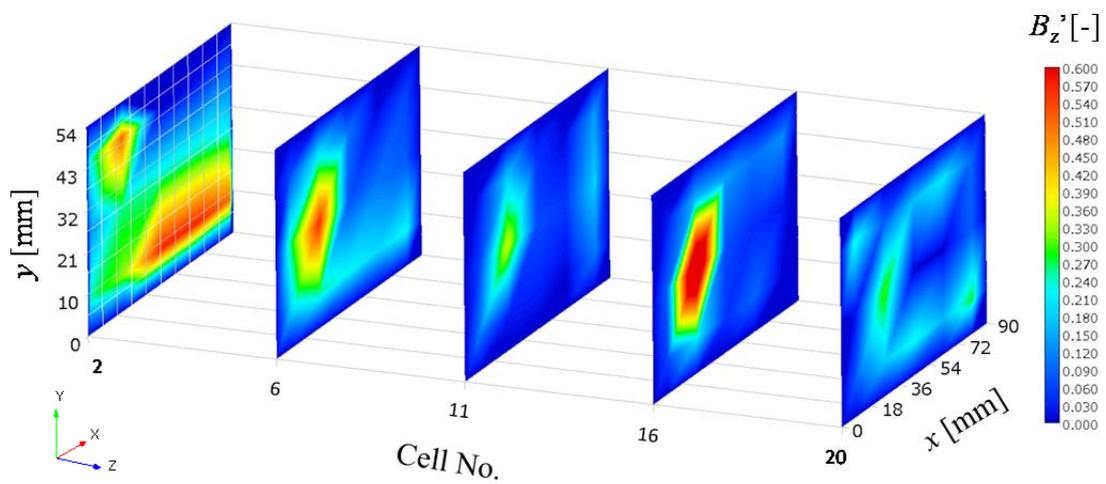


(d) Cell 16

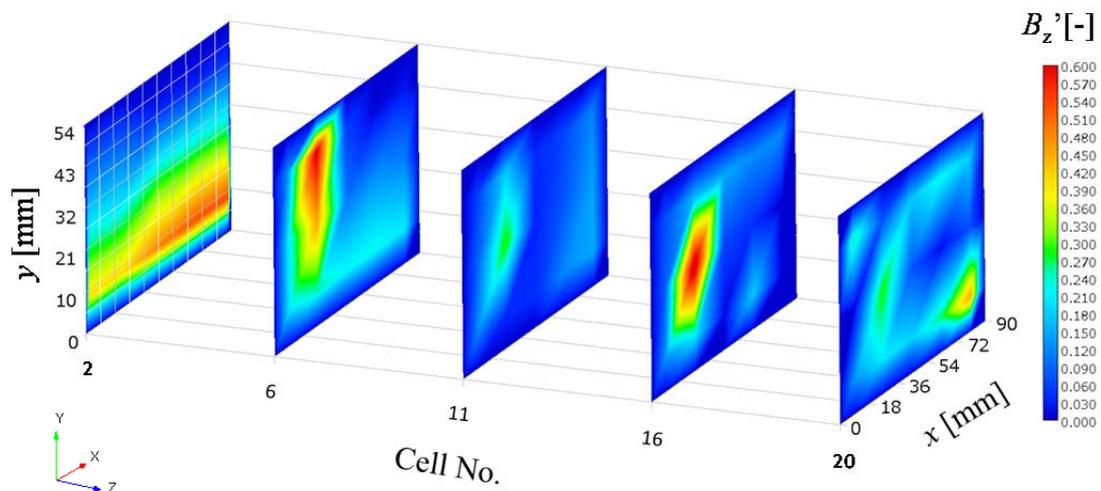


(e) Cell 20

図 7-8 フラッシング時における面内電流電圧曲線



(a) 11A



(b) 12A

図 7-9 各セルにおける積層方向の相対磁場分布

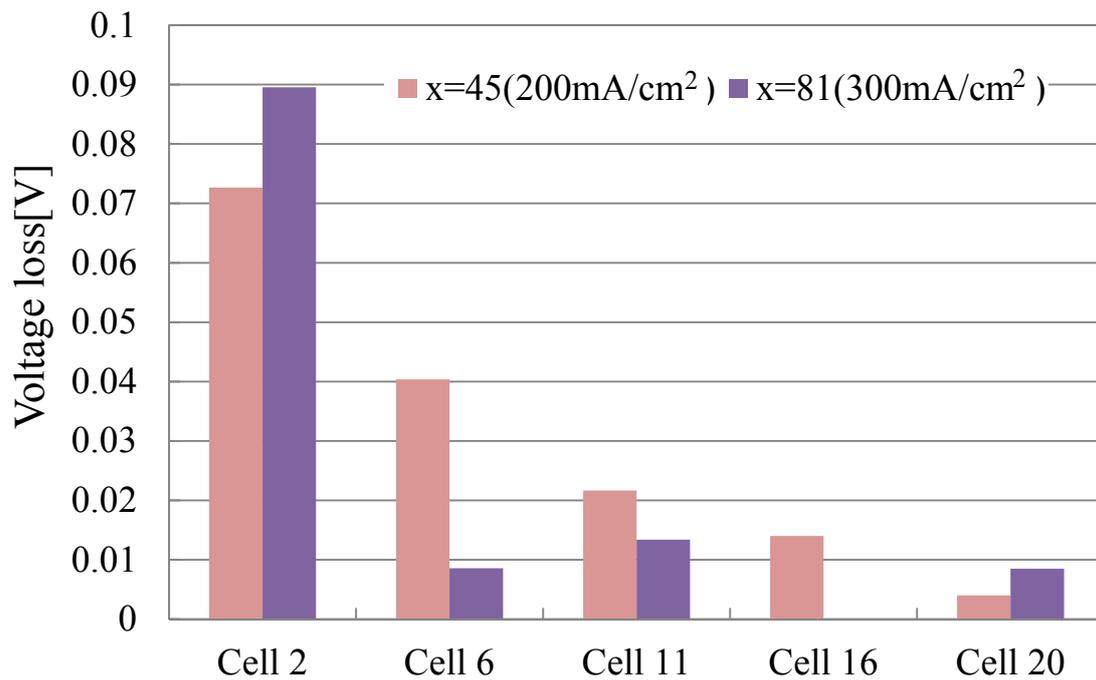


図 7-10 各セルにおける濃度分極

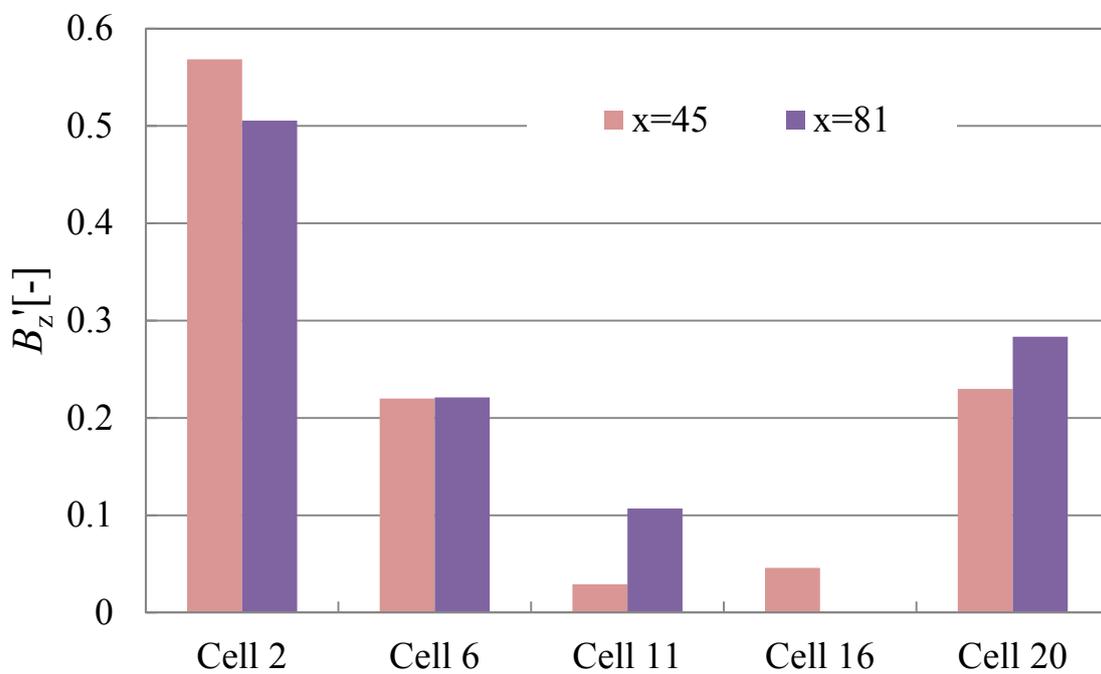


図 7-11 $y=9$ の 2 地点におけるセル積層方向の相対磁場

7.2 運転時診断

運転時においても電流、電圧、温度はモニタリングしている。したがって、負荷変動によって燃料電池出力が変動する場合、診断は可能となる。また出力が変化しない場合においても、前回の電流電圧測定データを用いることや測定データの上書きにより分極解析をすることはできる。図 7-12 は、ある運転データを用いた時のフィッティング評価例である。図のように、変動のある負荷に対して、電流分布が広範囲にわたる場合にはフィッティングを行うことが出来る。

課題としては、出力変動に偏りがある場合やまったく変動しない場合にも分極解析精度を I-V カーブ測定時と同様にする方法を検討しなければならないことがある。

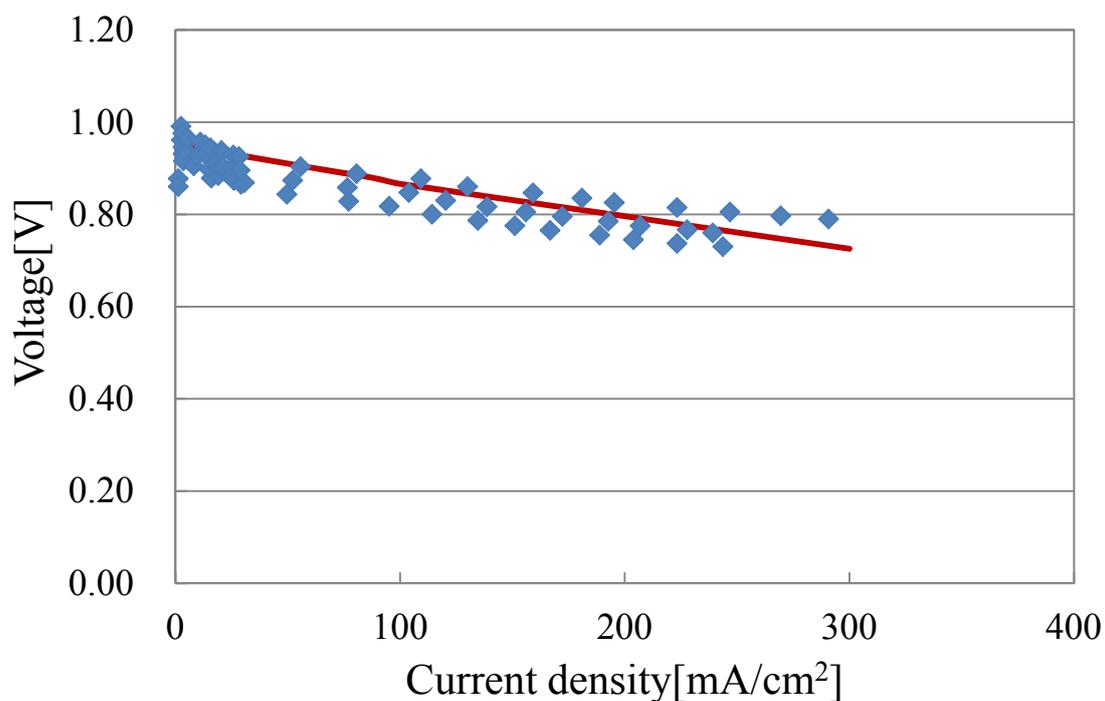


図 7-12 運転データを用いたフィッティング例

7.3 まとめ

本章では、提案するフィッティング評価モデル式による分極特性解析と磁気センサと用いた電流分布測定評価の 2 手法を統合させることにより可能となるセル面内評価に関して示した。

セル面内評価可能な事例として、まず I-V カーブ計測時の診断を示した。I-V カーブを計測する際に同時に電流分布を測定することで、面内各部において I-V カーブを示すことができる。そしてフィッティング評価モデルによって分極が解析され、各出力低下要因が示される。フラクティング状態においても I-V カーブおよび面内電流分布計測により分極が評価でき、本章ではフラクティング状態において増加する濃度分極を定量的に示した。課題としては、フィッティング評価モデルの温度をセル温度としていること、磁気センサによる測定がすべての測定点で同時ではないことなどがある。これらを改善することにより、分極解析精度の向上や実際の電流分布に近づくことが期待できる。

また、運転時における診断方法についても示した。システムに搭載される燃料電池は負荷が変動することにより一般的には出力も変動する。運転時の電流分布測定を行い、これまでもシステム上モニタリングしている電流、電圧、温度データを用いることで、I-V カーブ計測時の診断と同様にセル面内で I-V カーブを示すことができる。課題としては、変動が偏りあるいは変動しない場合においても解析精度を保ちながら評価をする方法について検討しなければならない。

以上の結果から、課題はあるものの各セルの面的な非破壊診断の可能性を示した。

第8章 結言

8.1 結言

本研究では、システム診断手法の提案、確立により燃料電池スタック搭載システムの信頼性向上を目的とし、新たな不具合判別、制御の指標となる診断方法を開発した。開発手法はフィッティング評価式による分極特性解析手法と磁気センサを用いた非破壊電流分布計測評価手法である。前者は、先行研究においての問題点であった燃料電池の運転温度を反映するものである。また後者は、先行研究においてなされていない各セルの面内出力低下箇所、低下のプロセス、そしてシミュレーションによる要因推定を行うものである。

8.1.1 フィッティング評価モデルによる分極評価

提案した分極解析手法であるフィッティング評価モデルを用いた燃料電池分極特性評価手法の理論式からの各分極項の導出について示した。また、先行研究モデル式との比較評価により、提案式が実測値である電流遮断試験値と最も近く、温度関数としては各セル温度もしくは補正温度を用いる必要が示唆された。そして、カソード燃料、ファン動作温度による評価を行い、理論的な推察と各分極パラメータの推移が同一であったことから、提案式が PEMFC の状況に応じた分極評価が可能であることが示され、非破壊、In-situ による出力低下要因が特定可能となった。

8.1.2 定常状態における磁気センサによる電流分布計測評価

定常状態における磁気センサによる電流分布計測評価についてまとめた。2セルスタックの計測において、磁場分布と巨視的な電流の関係はアンペールの法則により磁場に直交方向に燃料電池中を流れる電流の方向となり一致した。また定常状態においても電流は両端に偏る分布を示した。この要因を特定するために、3次元有限要素法(3DFEM)シミュレーションおよび面圧計測を行った。MEA 伝導度が一樣な場合のシミュレーションの結果、磁場は両端に偏ることが示された。このことから、負荷との接続端子である集電板が両端に位置することによるスタックの構造的要因により分布に偏りが生じることを明らかにした。また、実測値との最適化シミュレーションの結果、中央部において MEA 伝導度が低下することが示された。プレスケールによる面圧測定結果において中央部の面圧が低下していることから、2つ目の分布偏り要因として、面中央部の面圧不足による電気伝導度の低下を明らかにした。

8.1.3 不具合状態における磁気センサによる電流分布計測評価

不具合状態における電流分布測定、評価手法を示し、不具合診断への適応についてまとめた。まず、発電時生成水の GDL および流路内に滞留することにより生じる不具合、フラッディング状態における磁場、電流分布を測定評価した。定常状態とフラッディング状態の電流分布差により、発電低下箇所が 2 番セルカソード出口で生じていることが示された。また、積層方向の相対磁場 B_z' がフラッディング状態では 0.58 まで増加した。続いて、膜の乾燥により生じる不具合、ドライアウト状態における磁場、電流分布についても測定評価した。ドライアウトを模擬した状態において、初期に比べ 20 分後にはアノード出口側で 40.4% の低下となった。一方、積層方向の磁場がドライアウト状態では変化しなかった。この 2 つの不具合において、積層方向の磁場を不具合指標とすることで、非破壊診断への適応が可能となる。

8.1.4 提案手法の統合による非破壊診断

提案するフィッティング評価モデル式による分極特性解析と磁気センサを用いた電流分布測定評価の 2 手法を統合させることにより可能となるセル面内評価に関して示した。電流分布と同時に、スタック電流、セル電圧、各セル温度を測定することで、面内各部において I-V カーブを示すことができる。その結果、分極が解析され、各出力低下要因が示すことが可能となる。本研究においては、定常状態のほか、不具合状態の一つであるフラッディング状態の I-V カーブにおける評価結果により、各セルの面的な非破壊診断の可能性を示した。

以上のように、温度変化のある空冷 PEM スタックに対し、提案したフィッティング評価モデルおよび磁気センサを用いた非破壊電流分布計測評価手法の 2 手法を用いることで、分極や各セルの面内出力低下箇所を推定可能となった。また、2 手法の統合によって各セルの面的な非破壊診断の可能性について示した。そして、本研究で確立した手法やモデルなどは今後の研究開発において有用な情報を提供し得るものである。

8.2 今後の課題

今後は、本研究によって得られた成果を発展させ非破壊診断技術を確立し、燃料電池スタックを搭載したシステムの信頼性の向上に活用していくことが重要となる。本研究の延長に残された課題を以下に示す。

提案したフィッティング評価モデルは、温度変化に対して活性化分極が反映されにくいモデルとなっている。特に Gibbs の自由エネルギーを定数としており、温度変化の影響があることから改良が必要である。またより良いフィッティング精度とするために、各セルないし、電流分布計測との統合時の各測定点の温度を測定する必要がある。各セルの温度測定は、システムによってはコストの増加につながるため行われていない場合もある。したがって、補正やセル面においては磁気センサを用いた磁場と温度の同時計測を行うことなどがフィッティング精度を維持するためには必要である。

電流分布測定の課題としては、まずシミュレーションモデルの改良がある。流路を反映し内部状態と比較することが重要である。続いて、磁気センサの測定点がある。本研究では、セル面積に対して等分となる 15 分割を行った。今後は、流路など内部状況を詳細に把握できるように分割数を細かくしていく必要がある。また分割領域に合わせてセンサの感度などについても再考する余地がある。また磁気センサによる測定がすべての測定点で同時ではないことなどがある。特に高さ方向ではスイープするためタイムラグがある。本研究ではプローブ上に 1 つのセンサを搭載したが、センサの小型化、薄膜化がより進むことで、プローブ上に複数個のセンサを搭載することが可能となり、不具合時のような変動する電流分布の測定精度の向上が期待できる。

提案手法の統合による非破壊診断の課題としては、フィッティング評価モデルで述べた課題と同様、セル温度としてセル面中央部の温度を用いていることおよび磁気センサ測定部の温度測定があげられる。また、運転時診断においては分析対象スタックの出力変動が広範囲の場合のみであり、出力変動がない場合あるいは偏る場合の解析方法について検討しなければならない。

最後に、本研究では空冷 300 W 級 PEM 20 セルスタック、同一 MEA を対象としている。燃料電池の非破壊診断技術として確立するためには、大面積 PEM スタックや SOFC など他種への適応について検討することが重要である。そのためには、磁気センサ稼働温度等やプローブの変更、改良およびそれに合わせた磁場測定装置・プログラムが必要である。

以上を表 8-1 にまとめて示す。

表 8-1 本研究の課題

項目	現状	今後の課題
フィッティング 評価モデル による 分極評価 (第 4 章)	<ul style="list-style-type: none"> ・温度変化に対して活性化分極が反映されにくい ・セル温度としてセル中央部 1 点を用いている 	<ul style="list-style-type: none"> ・モデル改良 <ul style="list-style-type: none"> - 定数項の温度変化を考慮 (Gibbs の自由エネルギー) ・温度影響分析 <ul style="list-style-type: none"> - セル測定点数の減少 - 温度測定点の影響解析 - 電流に対するスタック温度変化による影響分析
磁気センサ による 電流分布 評価 (第 5、6 章)	<ul style="list-style-type: none"> ・シミュレーションにおいて燃料流路を考慮していない ・測定点が 15 点 ・セル横方向のみ同時測定 	<ul style="list-style-type: none"> ・シミュレーションモデルの改良 ・流路など内部状況を考慮した測定点 ・セル高さ方向の同時測定 <ul style="list-style-type: none"> - 磁気センサプローブの改良 (センサ変更) - 磁場測定地点(空冷口)の改良
手法の統合 による 非破壊診断 (第 7 章)	<ul style="list-style-type: none"> ・セル温度としてセル面中央部の温度を用いている ・分析対象スタックの出力変動が広範囲 	<ul style="list-style-type: none"> ・磁気センサ測定部の温度測定 <ul style="list-style-type: none"> - 磁場との同時測定 ・出力変動がない あるいは偏る場合の解析方法
全般	<ul style="list-style-type: none"> ・空冷 300 W 級 PEM 20 セルスタック、同一 MEA を対象としている 	<ul style="list-style-type: none"> ・大面積 PEM スタック、他種への適応 <ul style="list-style-type: none"> - 磁場測定装置の改良 (空冷口等へ対応、埋め込み型の検討) - 磁気センサ(温度等) プローブ(測定位置等)の改良

8.3 今後の研究、システムへの発展

最後に、非破壊診断技術の確立と燃料電池スタックを搭載したシステムの信頼性の向上についての将来展望を述べる。

非破壊診断技術としては先に述べた課題を解決し、運転条件や既存の方法による内部状態との比較し整合性をとることにより技術として確立が可能と考えている。運転条件として本研究ではフラiddiing状態、ドライアウト状態といった不具合状態を I-V カーブによって示したが、既存の面内電流分布評価方法である分割電極を用いることによる面内の詳細な把握に向けた研究を行うことが重要である。

図 8-1 のように非破壊診断技術の確立によって、燃料電池を構成する材料、MEA、流路設計などの要素課題を提示することが可能となる。システムレベルの評価結果を踏まえた要素研究における詳細な解明が不可欠である。また、実システムに対しても非破壊診断技術の確立および制御への応用が期待できる。特にフラiddiing、ドライアウト状態の判別を定量的に、非破壊で行うことが可能となれば、運転方法の改良によって燃料電池スタックの長寿命化につながる。実システムにおいては水冷など冷却方式の違いや高出力密度化が進み、空冷口が縮小されつつある。その場合、本研究を応用しセンサをセパレータに埋め込むなどの改良が必要であり、汎用的な非破壊診断手法の確立に向けた障壁となる。

これら新要素技術と非破壊診断技術、実システムへの適応といったフィードバックループによる研究の循環を行うことが、技術発展のために重要である。

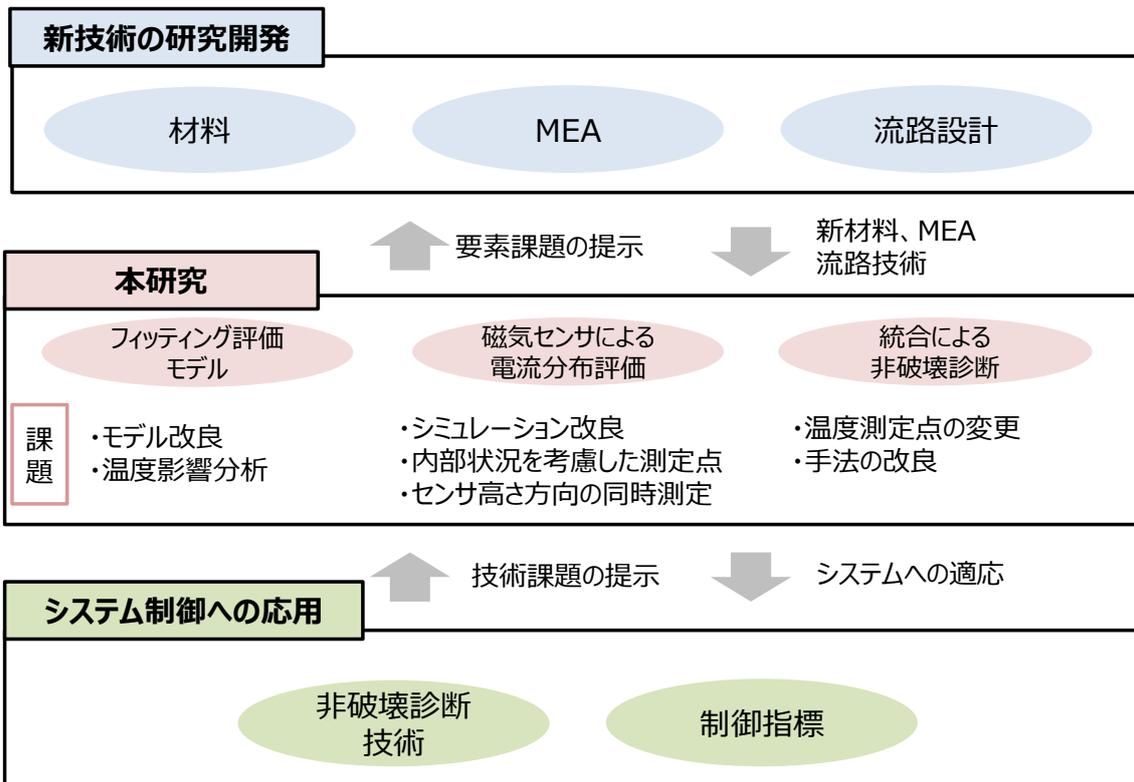


図 8-1 本研究のスキームと関連研究

謝辞

本論文を作成、そして完成させるにあたり、指導教官としてご指導を賜りました筑波大学大学院システム情報系構造エネルギー工学域 岡島敬一 准教授に心より謝意を表します。岡島先生には研究に対する考え方など熱心かつ温かいご指導を賜り、多くのことを学ばせて頂きました。特に先生の工学者としての姿勢は、私の研究者としての基礎となっています。これからもご指導ご鞭撻のほどをよろしくお願いいたします。

また、学類、博士前期、後期課程 1 年次にはゼミや学会などにおいてご助言を下さり、そして本論文の審査もして頂いた内山洋司 筑波大学名誉教授にも心より御礼申し上げます。厳しく優しい見識のあるご意見により研究が発展したように思う所存です。そして、鈴木研吾 助教にも学会および後期課程最終年度と短い時間ながら多くのご助言頂きました。紙面をお借りして御礼申し上げます

本研究は株式会社京三製作所との共同研究の一環として実施しました。同社開発センター 金子亮氏、堺将人氏、谷口茂氏には深く感謝いたします。

そして、新エネルギーシステム研究室の燃料電池班として共に実験を行った那須巧氏、野上拓真氏、小山優希氏、小野口猛氏、水無瀬晶氏には多くのご助言と研究に関する細やかなご指導の他、意見交換や協力を賜りました。その他、5年半もの間ともに切磋琢磨した新エネルギーシステム研究室、エネルギーリスク研究室の学生の皆様には言葉では言い表せないほど感謝しております。ゼミや合宿、見学会、日頃の生活といった業績には残らないところで多くの貢献をして頂きました。研究室の皆様や雰囲気があったからこそ、目標に向け研究を継続することが出来たと思う所存です。今後も、研究者として燃料電池や再生可能エネルギーなど新エネルギーシステムの研究を行い、課題解決と普及に貢献していきたいと思っております。

最後に、後期課程に進むと決めた時も温かく見守り、日頃を支えてくれた両親、家族、そして松尾佳澄氏には心より感謝いたします。ありがとうございます。今後ともよろしくお願いいたします。

参考文献

- [1] IEA, World Energy Outlook 2015. IEA, 2015.
- [2] METI, “エネルギー基本計画(Energy Basic Plan 2014),” pp. 1–78, 2014.
- [3] UNFCCC, “Report of the Conference of the Parties on its twenty-first session, held in Paris from 30 November to 13 December 2015,” 2016.
- [4] 地球温暖化対策推進本部, “COP21日本約束草案.pdf.” 環境省, 2015.
- [5] 環境エネルギー政策研究所, “Renewable 2015 Japan status report,” 2015.
- [6] 内山洋司, エネルギー工学と社会. (財)放送大学教育振興会, 2008.
- [7] International Energy Agency, “Hydrogen Production and Storage. R&D Priorities and Gaps,” 2006.
- [8] 山地 憲治, 水素エネルギー社会. エネルギー・資源学会, 2008.
- [9] J. O. Bockris, 新エネルギーシステム -太陽エネルギーと水素への道-. 技報堂出版, 1975.
- [10] International Energy Agency, “Technology Roadmap Hydrogen and Fuel Cells,” 2015.
- [11] 資源エネルギー庁, “新エネルギー便覧,” 1999.
- [12] 資源エネルギー庁(監修), “1999/2000資源エネルギー年鑑,” 1999.
- [13] 財団法人石油産業活性化センター, 財団法人日本自動車研究所, 財団法人エンジニアリング振興協会, 社団法人日本ガス協会他, “燃料電池システム等実証研究(JHFCプロジェクト),” 2011.
- [14] 水素供給・利用技術研究組合(HySUT), 地域水素供給インフラ技術・社会実証. 水素供給・利用技術研究組合(HySUT), 2013.
- [15] 資源エネルギー庁, “燃料電池自動車および水素ステーションについて,” 2015.
- [16] 燃料電池実用化推進協議会(FCCJ), “F C Vと水素ステーションの普及に向けたシナリオ,” 2016.
- [17] 新エネルギー部, 水素エネルギー白書. 国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構, 2015.
- [18] METI, “Road Map for Hydrogen and Fuel Cells,” 2014.
- [19] W. M. JinfengWu, Xiao Zi Yuan, Jonathan J. Martin, HaijiangWang, Jiujun Zhang, Jun Shen, ShaohongWu, “A review of PEM fuel cell durability: Degradation mechanisms and mitigation strategies,” J. Power Sources, vol. 184, pp. 104–119, 2008.
- [20] X. Cheng, Z. Shi, N. Glass, L. Zhang, J. Zhang, D. Song, Z. S. Liu, H. Wang, and J. Shen, “A review of PEM hydrogen fuel cell contamination: Impacts, mechanisms, and mitigation,” J. Power Sources, vol. 165, no. 2, pp. 739–756, 2007.
- [21] J. St-Pierre and N. Jia, “Successful Demonstration of Ballard PEMFCs for Space Shuttle Applications,” J. New Mat. Electrochem. Syst., vol. 5, pp. 263–271, 2002.

- [22] M. Oszcipok, D. Riemann, U. Kronenwett, M. Kreideweis, and M. Zedda, “Statistic analysis of operational influences on the cold start behaviour of PEM fuel cells,” *J. Power Sources*, vol. 145, no. 2, pp. 407–415, 2005.
- [23] 槌屋治紀 訳 James Larminie, Andrew Dicks 著, 解説 燃料電池システム. オーム社, 2004.
- [24] S. . C. C.H Zheng, C.E Oh, Y.I Park, “Fuel economy evaluation of fuel cell hybrid vehicles based on equivalent fuel consumption,” *J Hydrog. Energy*, vol. 37, no. 1790–1796, 2012.
- [25] Y. Akimoto, K. Okajima, and Y. Uchiyama, “Simulation of FCV Fuel Consumption Using Stationary,” *Jounal Energy Power Eng.*, vol. 8, no. 5, pp. 844–851, 2014.
- [26] 自動車技術会公益財団法人, 自動車技術ハンドブック 設計(EV・ハイブリッド)編. 精興舎, 2016.
- [27] Committee on Transitions to Alternative Vehicles and Fuels; Board on Energy and Environmental Systems; Division on Engineering and Physical Sciences; National Research Council, *Transitions to Alternative Vehicles and Fuels*. The National Academies Press, 2013.
- [28] 金田武司, “水素エネルギーの展望～世界の動向と日本の展開～,” 水素エネルギー社会形成研究会 キックオフセミナー, 2015.
- [29] 資源エネルギー庁, “平成 2 6 年度エネルギー白書 概要,” 2014.
- [30] Y. Mori, K. Tateishi, K. Yoshida, and K. Wada, “Development of Fuel-cell Type , Backup Power Generation System for Traffic Signals,” 2006.
- [31] 京三製作所, “環境報告書2015,” 2015.
- [32] (有)デジタルリサーチ, 2016年版 定置用燃料電池の現状と将来展望 (Ⅱ) 分散電源・コージェネ・バックアップ電源. 2016.
- [33] US DOE, “2013 Fuel Cell Technologies Market Report,” 2014.
- [34] A. Feitelberg, “Ongoing Development of Plug Power’s Next Generation Stationary PEM Fuel Cell System,” in *Fuel Cell Seminar*, 2006, pp. 92–95.
- [35] S. J. C. Cleghorn, D. K. Mayfield, D. A. Moore, J. C. Moore, G. Rusch, T. W. Sherman, N. T. Sisofo, and U. Beuscher, “A polymer electrolyte fuel cell life test: 3 years of continuous operation,” *J. Power Sources*, vol. 158, no. 1, pp. 446–454, 2006.
- [36] A. J. L. Verhage, J. F. Coolegem, M. J. J. Mulder, M. H. Yildirim, and F. A. De Bruijn, “30,000 h operation of a 70 kW stationary PEM fuel cell system using hydrogen from a chlorine factory,” *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 38, no. 11, pp. 4714–4724, 2013.
- [37] J. Xie, D. L. W. III, D. M. Wayne, T. A. Zawodzinski, P. Atanassov, and R. L. Borup, “Durability of PEFCs at High Humidity Conditions,” *J. Electrochem. Soc.*, vol. 152, no. 1, pp. A104–A113, 2005.
- [38] 新エネルギー部, “「固体高分子形燃料電池に実用化推進技術開発」基本計画,” 国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構, 2014.
- [39] 新エネルギー部, “固体高分子形燃料電池利用高度化技術開発事業 基本計画,” 2015.

- [40] 新エネルギー部 燃料電池・水素グループ, “燃料電池・水素技術開発ロードマップ2010,” 国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構, 2010.
- [41] T. Springer, T. A. Zawodzinski, and S. Gottesfeld, “Polymer Electrolyte Fuel Cell Model,” *J. Electrochem. Soc.*, vol. 138, no. 8, pp. 2331–2342, 1991.
- [42] W. Merida, D. A. Harrington, J. M. Le Canut, and G. McLean, “Characterisation of proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) failures via electrochemical impedance spectroscopy,” *J. Power Sources*, vol. 161, no. 1, pp. 264–274, 2006.
- [43] T. Mennola, M. Mikkola, M. Noponen, T. Hottinen, and P. Lund, “Measurement of ohmic voltage losses in individual cells of a PEMFC stack,” *J. Power Sources*, vol. 112, no. 1, pp. 261–272, 2002.
- [44] Y. Koyama, Y. Akimoto, and K. Okajima, “Evaluation of PEMFC stack performance considering start-up conditions,” in *Proceedings of the International Conference on Electrical Engineering (ICEE2015)*, 2015, pp. 1–5.
- [45] M. A. Rubio, A. Urquia, and S. Dormido, “Diagnosis of PEM fuel cells through current interruption,” *J. Power Sources*, vol. 171, no. 2, pp. 670–677, 2007.
- [46] S. Tsushima, K. Teranishi, K. Nishida, S. Hirai, “Water content distribution in a polymer electrolyte membrane for advanced fuel cell system with liquid water supply,” *Magn Reson Imaging*, vol. 23, pp. 255–258, 2005.
- [47] S. H. Kousuke Nishida, Motoyuki Ishii, Sohji Tsukushima, “Experimental visualization and numerical simulation of water transport in gas diffusion layer of PEFC,” in *International conference on Power Engineering-09 (ICOPE-09)*, 2009, vol. 2, pp. 231–236.
- [48] T. Chikahisa, Y. Tabe, K. Kikuta, N. Nohara, and H. Shinohara, “Measurement of Water Production Behavior, Temperature, and Current Density Distributions in a Polymer Electrolyte Fuel Cell,” in *Proceedings of the ASME 2009 Conference*, 2009, pp. 1–6.
- [49] P. Moçotéguy, B. Ludwig, and N. Steiner, “Influence of ageing on the dynamic behaviour and the electrochemical characteristics of a 500 We PEMFC stack,” *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 39, no. 19, pp. 10230–10244, 2014.
- [50] S. De Lira, V. Puig, and J. Quevedo, “PEM Fuel Cells System Robust LPV model-based Fault Diagnosis,” *20th Int. Work. Princ. Diagnosis*, 2009.
- [51] T. Nogami, Y. Akimoto, and K. Okajima, “Output Characteristic of PEMFC Stack on Various Operating Conditions,” in *Proceedings of the International Conference on Electrical Engineering (ICEE2014)*, 2014, pp. 1247–1250.
- [52] 西川尚男, 燃料電池の技術 固体高分子形の課題と対策. 東京電機大学出版局, 2010.
- [53] F. Barbir, *PEM Fuel Cells-Theory and Practice*. Elsevier Academic Press, 2005.
- [54] M. A., *Fuel Cells*. Macmillan, 1976.
- [55] D. C.W., *Electrochemistry*. 1967.

- [56] S. Haji, "Analytical Modeling of PEM Fuel Cell i-V Curve," *Renew. Energy*, vol. 36, pp. 451–458, 2011.
- [57] P. B. O'Hayre R, Cha S, Collella C, *Fuel cell Fundamentals*. Wiley& Sons, 2009.
- [58] D. Chu, R. Jiang, and C. Walker, "Analysis of PEM fuel cell stacks using an empirical current \pm voltage equation," pp. 365–370, 2000.
- [59] G. L. G. B. J.Kim, S.M. Lee, S.Srinivasan, "Modeling of Proton Exchange Membrane Fuel Cell Performance with an Empirical Equation," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 142, no. 8, pp. 2670–2674, 1995.
- [60] F. Laurencelle, R. Chahine, J. Hamelin, K. Agbossou, M. Fournier, T. K. Bose, and A. Laperrière, "Characterization of a Ballard MK5-E Proton Exchange Membrane Fuel Cell Stack," *Fuel Cells*, vol. 1, no. 1, pp. 66–71, 2001.
- [61] G. Squadrito, G. Maggio, E. Passalacqua, F. Lufrano, and A. Patti, "Empirical equation for polymer electrolyte fuel cell (PEFC) behaviour," *J. Appl. Electrochem.*, vol. 29, no. 12, pp. 1449–1455, 1999.
- [62] L. Pisani and B. D'Aguanno, "A new semi-empirical approach to performance curves of polymer electrolyte fuel cells," *J. Power Sources*, vol. 108, pp. 192–203, 2002.
- [63] S. E. G. Umit O. Koylu, Steven F. Rodgers, "PEM Fuel cell Basics and Computational Modeling," in *Hydrogen energy and vehicle systems*, Scott E. Grasman, Ed. CRC Press, 2013, pp. 45–77.
- [64] R. O'Hayre, T. Fabian, S. Litster, F. B. Prinz, and J. G. Santiago, "Engineering model of a passive planar air breathing fuel cell cathode," *J. Power Sources*, vol. 167, no. 1, pp. 118–129, 2007.
- [65] A. Ersoz, H. Olgun, and S. Ozdogan, "Simulation study of a proton exchange membrane (PEM) fuel cell system with autothermal reforming," *Energy*, vol. 31, no. 10–11, pp. 1490–1500, 2006.
- [66] D. Cheddie and N. Munroe, "Review and comparison of approaches to proton exchange membrane fuel cell modeling," *J. Power Sources*, vol. 147, no. 1–2, pp. 72–84, 2005.
- [67] L. C. Perez, L. Brandao, J. M. Sousa, and A. Mendes, "Segmented polymer electrolyte membrane fuel cells-A review," *Renew. Sustain. Energy Rev.*, vol. 15, no. 1, pp. 169–185, 2011.
- [68] S. J. C. Cleghorn, C. R. Derouin, M. S. Wilson, and S. Gottesfeld, "A printed circuit board approach to measuring current distribution in a fuel cell," *J. Appl. Electrochem.*, vol. 28, no. 7, pp. 663–672, 1998.
- [69] A. K. Daniel J. L. Brett, Steve Atkinsa, Nigel P. Brandon, Velisa Vesovic, Nikos Vasileiadis, "Localized Impedance Measurements along a Single Channel of a Solid Polymer Fuel Cell," *Electrochem. Solid-State Lett*, vol. 6, no. 4, pp. A63–A66, 2003.
- [70] J. Stumper, S. A. Campbell, D. P. Wilkinson, M. C. Johnson, and M. Davis, "In-situ methods for the determination of current distributions in PEM fuel cells," *Electrochim. Acta*, vol. 43, no. 24, pp. 3773–3783, 1998.

- [71] M. Noponen, J. Itonen, A. Lundblad, and G. Lindbergh, "Current distribution measurements in a PEFC with net flow geometry," *J. Appl. Electrochem.*, vol. 34, no. 3, pp. 255–262, 2004.
- [72] A. Hakenjos, H. Muentner, U. Wittstadt, and C. Hebling, "A PEM fuel cell for combined measurement of current and temperature distribution, and flow field flooding," *J. Power Sources*, vol. 131, no. 1–2, pp. 213–216, 2004.
- [73] I. Alaefour, G. Karimi, K. Jiao, and X. Li, "Measurement of current distribution in a proton exchange membrane fuel cell with various flow arrangements - A parametric study," *Appl. Energy*, vol. 93, pp. 80–89, 2012.
- [74] S.-G. Kim, M.-J. Kim, and Y.-J. Sohn, "Segmented cell approach for studying uniformity of current distribution in polymer electrolyte fuel cell operation," *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 40, no. 35, pp. 11676–11685, 2015.
- [75] P. Zhou, C. W. Wu, and G. J. Ma, "Contact resistance prediction and structure optimization of bipolar plates," *J. Power Sources*, vol. 159, no. 2, pp. 1115–1122, 2006.
- [76] C. Y. Wen, Y. S. Lin, and C. H. Lu, "Experimental study of clamping effects on the performances of a single proton exchange membrane fuel cell and a 10-cell stack," *J. Power Sources*, vol. 192, no. 2, pp. 475–485, 2009.
- [77] H. N. Yu, S. S. Kim, J. Do Suh, and D. G. Lee, "Composite endplates with pre-curvature for PEMFC (polymer electrolyte membrane fuel cell)," *Compos. Struct.*, vol. 92, no. 6, pp. 1498–1503, 2010.
- [78] S. Kanamori, H. Hoang, T. Ueno, and S. Yamada, "Eddy-Current Inspection of Small Cracks in Narrow Spaces by Using Needle-type Magnetic Probe," *J. Magn. Soc. Japan*, vol. 37, no. 1, pp. 8–11, 2013.
- [79] Y. Kishimoto, Y. Kobayashi, T. Ohtsuka, K. Amaya, and T. Togo, "Measurement method of current density in lithium-ion battery by using magnetic sensor," *Trans. JSME (in Japanese)*, vol. 81, no. 825, pp. 14–00637–14–00637, 2015.
- [80] K.-H. Hauer, R. Potthast, T. Wüster, and D. Stolten, "Magnetotomography—a new method for analysing fuel cell performance and quality," *J. Power Sources*, vol. 143, no. 1–2, pp. 67–74, 2005.
- [81] M. I. Tomoaki Katou, Yuji Gotoh, Norio Takahashi, "Measurement Technique of Distribution of Power Generation Current Using Static Magnetic Field around Polymer Electrolyte Fuel Cell by 3D Inverse Problem FEM," *Mater. Trans.*, vol. 53, no. 2, pp. 279–284, 2012.
- [82] M. Horii, T. Takahashi, and T. Narita, "Investigation of evolution strategy and optimization of induction heating model," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 36, pp. 1085–1088, 2000.
- [83] N. Takahashi, M. Horii, T. Kitamura, and J. Takehara, "Optimal design of tank shield model of transformer," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 36, pp. 1089–1093, 2000.

- [84] M. I. and Y. K. Y. Gotoh, N. Takahashi, “Proposal of Non-contacting Static Magnetic Measurement Method of Generation Current inside Membrane Electrode Assembly in Polymer Electrolyte Fuel Cell,” in Proceedings of IEEE International Magnetics Conference, 2012, pp. 1–4.
- [85] 北林拓也、後藤雄司、山梨龍、泉政明, “空間磁界を用いたMEAでの発電電流分布の推定,” in 第21回燃料電池シンポジウム, 2014, pp. 129–132.
- [86] T. Hamaz, C. Cadet, F. Druart, and G. Cauffet, “Diagnosis of PEM fuel cell stack based on magnetic fields measurements,” in the 19th World Congress The International Federation of Automatic Control Cape, 2014, pp. 11482–11487.
- [87] R. Isermann, Fault-Diagnosis system systems, an introduction from Fault Detection to Fault Tolerance, Springer. Springer.
- [88] M. Le Ny, O. Chadebec, G. Cauffet, S. Rosini, and Y. Bultel, “PEMFC stack diagnosis based on external magnetic field measurements,” *J. Appl. Electrochem.*, vol. 45, no. 7, pp. 667–677, 2015.
- [89] 株式会社デンソー, トヨタ自動車株式会社, “燃料電池システム,” 特開2013-1118140号, 2013.
- [90] 日産自動車株式会社, “電流分布検出装置および燃料電池システム,” 特開2013-142551号, 2013.
- [91] Y. Ding, R. Anderson, L. Zhang, X. Bi, and D. P. Wilkinson, “Simulations of two-phase flow distribution in communicating parallel channels for a PEM fuel cell,” *Int. J. Multiph. Flow*, vol. 52, pp. 35–45, 2013.
- [92] O.-J. Kwon, H.-S. Shin, S.-H. Cheon, and B. S. Oh, “A study of numerical analysis for PEMFC using a multiphysics program and statistical method,” *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 40, no. 35, pp. 11577–11586, 2015.
- [93] C. Siegel, “Review of computational heat and mass transfer modeling in polymer-electrolyte-membrane (PEM) fuel cells,” *Energy*, vol. 33, no. 9, pp. 1331–1352, 2008.
- [94] C. Siegel, “Approaches for Fuel Cell Stack Modeling and Simulation with,” in Proceedings of the COMSOL Conference 2010 Paris Approaches, 2010, pp. 1–7.
- [95] J. Blackburn and N. McCartney, “PEM Fuel Cell Using Equation Based Simulation,” in Proceedings of the 2015 COMSOL Conference, 2015, pp. 1–8.
- [96] A. L. R. Paulino, E. Robalinho, E. F. Cunha, R. R. Passos, E. I. Santiago, I. De Pesquisas, N. Ipen, S. Paulo, U. Nove, and D. J. Uninove, “Current Distribution on PEM Fuel Cells with Different Flow Channel Patterns,” in Proceedings of the 2013 COMSOL Conference, 2013, pp. 1–5.
- [97] A. D. Santamaria, N. J. Cooper, M. K. Becton, and J. W. Park, “Effect of channel length on interdigitated flow-field PEMFC performance: A computational and experimental study,” *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 38, no. 36, pp. 16253–16263, 2013.
- [98] J. . Z. J. Zhang, J.; Zhang, H.; Wu, PEM Fuel Cell Testing and Diagnosis. 2013.

- [99] C. Song, Y. Tang, J. L. Zhang, J. Zhang, H. Wang, J. Shen, S. McDermid, J. Li, and P. Kozak, "PEM fuel cell reaction kinetics in the temperature range of 23-120 °C," *Electrochim. Acta*, vol. 52, no. 7, pp. 2552–2561, 2007.
- [100] A. M. I. Corporation, "AMI306 Datasheet." 2012.
- [101] Y. Akimoto and K. Okajima, "Experimental Study of Non-Destructive Approach on PEMFC Stack Using Tri-Axis Magnetic Sensor Probe," *J. Power Energy Eng.*, vol. 3, pp. 1–8, 2015.

業績リスト

学術論文(査読付)

- J1. Yutaro Akimoto, Keiichi Okajima, and Yohji Uchiyama, "Evaluation of current distribution in a PEMFC using a magnetic sensor probe", Energy Procedia, 75, pp 2015-2020, August 2015, Abu Dhabi.
- J2. Yutaro Akimoto, and Keiichi Okajima, "Experimental study of non-destructive approach on PEMFC stack using tri-axis magnetic sensor probe", Journal of Power and Energy Engineering, 3, 3 (2015), pp. 1-8, March 2015, Scientific Research Publishing, Delaware.
- J3. Yutaro Akimoto, and Keiichi Okajima, "Semi-empirical equation of PEMFC considering operation temperature", Energy Technology & Policy, 1, 1 (2014), pp.91-96, Nov 2014, Taylor and Francis, Pennsylvania.
- J4. Yutaro Akimoto, Keiichi Okajima, and Yohji Uchiyama, "Simulation of FCV fuel consumption using stationary PEMFC", Journal of Energy and Power Engineering, 8, 5 (2014), pp.841-851, May 2014, David Publishing Company, California.

国際会議論文(査読付)

- I1. Yutaro Akimoto, and Keiichi Okajima, "3DFEM simulation of PEMFC using magnetic fields", Proceedings of the International Conference on Electrical Engineering (ICEE2016), 90478, pp.1-6, July 2016, Okinawa.
- I2. Aki Minase, Yutaro Akimoto, and Keiichi Okajima, "Segmented cell approach for in-situ diagnosis of PEMFC stack based on magnetic field measurement", Proceedings of the International Conference on Electrical Engineering (ICEE2016), 90476, pp.1-6, July 2016, Okinawa.
- I3. Takeshi Onoguchi, Yutaro Akimoto, and Keiichi Okajima, "Study of various operating conditions for stable PEMFC operation", Proceedings of the International Conference on Electrical Engineering (ICEE2016), 90472, pp.1-6, July 2016, Okinawa.
- I4. Yutaro Akimoto, and Keiichi Okajima, "Non-destructive approach for current distribution in PEMFC by means of experimental measurement and 3DFEM simulation", Proceedings of the International Conference on Electrical Engineering (ICEE2015), ICEE15A-348, pp. 1-5, July 2015, Hong Kong.
- I5. Yuki Koyama, Yutaro Akimoto, and Keiichi Okajima, "Evaluation of PEMFC stack performance considering start-up conditions", Proceedings of the International Conference on Electrical Engineering (ICEE2015), ICEE15A-356, pp.1-5, July 2015, Hong Kong.

- I6. Yutaro Akimoto, and Keiichi Okajima, "Modeling of PEMFC based on a new semi-empirical equation considering operation temperature", Proceedings of the World Renewable Energy Congress (WRECXIII), pp 1-7, August 2014, London.
- I7. Yutaro Akimoto, Takuma Nogami, and Keiichi Okajima, "Study of in-situ approach on PEMFC stack using tri-axis magnetic sensor probe", Proceedings of the International Conference on Electrical Engineering (ICEE2014), pp 1226-1230, June 2014, Korea.
- I8. Atsushi Nonaka, Yutaro Akimoto, and Keiichi Okajima, "Evaluation of daily use of batteries as emergency power supply for earthquake", Proceedings of the International Conference on Electrical Engineering (ICEE2014), pp 15-19, June 2014, Korea.
- I9. Takuma Nogami, Yutaro Akimoto, and Keiichi Okajima, "Output characteristic of PEMFC stack on various operating conditions", Proceedings of the International Conference on Electrical Engineering (ICEE2014), pp 1247-1250, June 2014, Korea.
- I10. Yutaro Akimoto, Keiichi Okajima, and Yohji Uchiyama, "FCV fuel consumption simulation based on stationary PEMFC, Proceedings of the 5th International Conference on Applied Energy (ICAE2013), 309, pp.1-6, July 2013, South Africa.

国内会議論文(査読無)

- D1. 秋元祐太郎、岡島敬一、「磁気センサを用いた固体高分子形燃料電池における内部診断方法の検討」、『日本機械学会 2015 年度年次大会』、札幌、J0560204、2015 年 9 月。
- D2. 秋元祐太郎、岡島敬一、「燃料電池スタック評価のための運転温度を考慮した IV フィットティングの検討」、『第 10 回新エネルギー技術シンポジウム』、郡山、B-1、2014 年 11 月。
- D3. 野上拓真、秋元祐太郎、岡島敬一、「燃料電池スタック運転時の加湿条件による電圧低下要因の評価」、『第 10 回新エネルギー技術シンポジウム』、郡山、A-3、2014 年 11 月。
- D4. 野中淳司、秋元祐太郎、岡島敬一、内山洋司、「震災対策を前提とした蓄電池導入における平常時活用のための特性評価」、『エネルギー・資源学会 第 30 回エネルギーシステム・経済・環境コンファレンス (2014)』、pp.627-630、2014 年 1 月。
- D5. 秋元 祐太郎、那須 巧、岡島 敬一、内山洋司、「水素コミュニティ評価のための定置用燃料電池による FCV シミュレーションの検討」、『第 31 回エネルギー・資源学会 研究発表会』、pp.347-350、大阪、2012 年 6 月。
- D6. 秋元 祐太郎、那須 巧、岡島 敬一、「定置用固体高分子形燃料電池を用いた燃料電池自動車走行シミュレーションの検討」、『第 7 回新エネルギー技術シンポジウム』、つくば、E-6、pp.18-24、2012 年 3 月。

その他

- O1. 松原悠、佐藤良太、巖先鏞、吉野宏志、秋元祐太郎、木下尚彦、遠藤靖典、「TA を活用した大学院教育の達成度評価システム」、『大学教育学会 2015 年度課題研究集会』、2015 年 11 月、岩手.
- O2. Hiroshi Yoshino, Yutaro Akimoto, Naohiko Kinoshita, Ryota Sato, Sunyong Eom, Yu Matsubara, and Yasunori Endo, "On the quality assurance of academic degrees by an achievement evaluation based on a self-assessment", The 111th Meeting on Higher Education for the Next Generation, Nov.2015, Sebu.
- O3. 秋元祐太郎、「リスク工学専攻で得られた研究力」、リスク工学研究 Vol.11, pp.28-29 , 2015 年 3 月、筑波大学大学院システム情報工学研究科リスク工学専攻、茨城.
- O4. 岡島敬一、秋元祐太郎、「定置用固体高分子形燃料電池を用いた燃料電池自動車走行のシミュレーション評価」、自動車技術、68、7、pp.93-97、2014 年 7 月、自動車技術会、東京.

付録 3 次元有限要素法 VBA プログラム

以下に、Femtet を VBA によりモデル作成、磁場計算するためのプログラムソースを示す。
なお、モデル成形に関する一部のプログラムは膨大であるため省略している。

Option Explicit

Dim FEMTET As New CFemtet

Dim Als As CAnalysis

Dim BodyAttr As CBodyAttribute

Dim Bnd As CBoundary

Dim Mtl As CMaterial

Dim Gaudi As CGaudi

Dim Gogh As CGogh

Dim Pos() As New CComplex

Dim i As Long

Dim x As Double

Dim y As Double

Dim z As Double

Dim state As Long

Dim Gx(15) As Variant

Dim Gy(15) As Variant

Dim Gz(15) As Variant

Dim kmin As Long

Dim k As Long

Dim j As Long

Dim Nf As Long

Dim Np As Long

Dim n As Long

Dim difGmin As Long

```

'////////////////////////////////////
Global nullVertex() As CGaudiVertex
Global nullEdge() As CGaudiEdge
Global nullFace() As CGaudiFace
Global nullBody() As CGaudiBody

'////////////////////////////////////
'解析条件/材料定数/境界条件/ボディ属性用変数の宣言
Private c_pi As Double

'寸法用変数の宣言
Private pi As Double
'////////////////////////////////////

'////////////////////////////////////
'   Main 関数
'////////////////////////////////////
Sub FemtetMain(state As Long, j As Long, x As Double, y As Double, z As Double, k As Long,
kmin As Long, difGmin As Variant, Pos() As CComplex, Gx() As Variant, Gy() As Variant, Gz() As
Variant)

    Dim ProjectName As String

    '----- プロジェクトの設定 -----
    ProjectName = "D:\Documents\Femtet\単セル\単セル"

    '----- Femtet 自動起動 (不要な場合や Excel で実行しない場合は下行をコメントアウト
    してください) -----
    Workbooks("FemtetRef.xla").AutoExecuteFemtet

    '----- プロジェクトの作成 -----
    If FEMTET.NewProject(ProjectName & ".als", True) = False Then
        FEMTET.ShowLastError
    End If

```

'----- 変数の定義 -----

InitVariables

'----- データベースの設定 -----

AnalysisSetUp

BodyAttributeSetUp

MaterialSetUp

BoundarySetUp

'----- データベースの保存 -----

FEMTET.SaveDataBase

'----- モデルの作成 -----

Set Gaudi = FEMTET.Gaudi

MakeModel state, n, Nf, k, kmin, Np

'----- メッシュの生成 -----

'<<<<<<< メッシュを生成する場合は以下のコメントを外してください >>>>>>>

Gaudi.MeshSize = 5#

Gaudi.Mesh

'----- 解析の実行 -----

'<<<<<<< 解析を実行する場合は以下のコメントを外してください >>>>>>>

FEMTET.Solve

'----- 解析結果の抽出 -----

'<<<<<<< 計算結果を抽出する場合は以下のコメントを外してください >>>>>>>

SamplingResult state, j, x, y, z, k, kmin, difGmin, Pos(), Gx(), Gy(), Gz()

End Sub

```

'////////////////////////////////////
'   解析条件の設定
'////////////////////////////////////
Sub AnalysisSetUp()

'----- 変数にオブジェクトの設定 -----
Set Als = FEMTET.Analysis

'----- 解析条件共通(Common) -----
Als.AnalysisType = GAUSS_C

'----- 磁場(Gauss) -----
Als.Gauss.b2ndEdgeElement = True

'----- 応力(Galileo) -----
Als.Galileo.bThermalStress = True

'----- 開放境界(Open) -----
Als.Open.OpenMethod = ABC_C
Als.Open.ABCOrder = ABC_2ND_C

'----- 調和解析(Harmonic) -----
Als.Harmonic.FreqSweepType = LINEAR_INTERVAL_C

'----- 熱荷重(ThermalStress) -----
Als.ThermalStress.bLinkWatt = True

'----- 高度な設定(HighLevel) -----
Als.HighLevel.NonLTol = (1) * 10 ^ (-2)

'----- メッシュの設定(MeshProperty) -----
Als.MeshProperty.nMaxAdaptive = (1)
End Sub

```

```

'////////////////////////////////////
'   Body 属性全体の設定
'////////////////////////////////////
Sub BodyAttributeSetUp()

    '----- 変数にオブジェクトの設定 -----
    Set BodyAttr = FEMTET.BodyAttribute

    '----- Body 属性の設定 -----
    BodyAttributeSetUp_End_plate
    BodyAttributeSetUp_絶縁樹脂
    BodyAttributeSetUp_セパレータ
    BodyAttributeSetUp_集電板
    BodyAttributeSetUp_Air
    BodyAttributeSetUp_Anode_H2
    BodyAttributeSetUp_Cathod_Air
    BodyAttributeSetUp_ゴム
    BodyAttributeSetUp_MEA1
    BodyAttributeSetUp_不良 MEA
End Sub

'////////////////////////////////////
'   Body 属性の設定 Body 属性名 : End_plate
'////////////////////////////////////
Sub BodyAttributeSetUp_End_plate()

    '----- Body 属性の Index を保存する変数 -----
    Dim Index As Integer

    '----- Body 属性の追加 -----
    BodyAttr.Add "End_plate"

    '----- Body 属性 Index の設定 -----
    Index = BodyAttr.Ask("End_plate")

    '----- 電流(Current) -----
    BodyAttr.Current(Index).i = (0)
End Sub

```

```

'////////////////////////////////////
'   Body 属性の設定 Body 属性名：絶縁樹脂
'////////////////////////////////////
Sub BodyAttributeSetUp_絶縁樹脂()
  '----- Body 属性の Index を保存する変数 -----
  Dim Index As Integer

  '----- Body 属性の追加 -----
  BodyAttr.Add "絶縁樹脂"

  '----- Body 属性 Index の設定 -----
  Index = BodyAttr.Ask("絶縁樹脂")
End Sub

```

```

'////////////////////////////////////
'   Body 属性の設定 Body 属性名：セパレータ
'////////////////////////////////////
Sub BodyAttributeSetUp_セパレータ()
  '----- Body 属性の Index を保存する変数 -----
  Dim Index As Integer

  '----- Body 属性の追加 -----
  BodyAttr.Add "セパレータ"

  '----- Body 属性 Index の設定 -----
  Index = BodyAttr.Ask("セパレータ")

  '----- 電流(Current) -----
  BodyAttr.Current(Index).i = (1.5) * 10 ^ (1)
End Sub

```

```

'////////////////////////////////////
'   Body 属性の設定 Body 属性名 : 集電板
'////////////////////////////////////
Sub BodyAttributeSetUp_集電板()
  '----- Body 属性の Index を保存する変数 -----
  Dim Index As Integer

  '----- Body 属性の追加 -----
  BodyAttr.Add "集電板"

  '----- Body 属性 Index の設定 -----
  Index = BodyAttr.Ask("集電板")

  '----- 電流(Current) -----
  BodyAttr.Current(Index).i = (1.5) * 10 ^ (1)
End Sub

```

```

'////////////////////////////////////
'   Body 属性の設定 Body 属性名 : Air
'////////////////////////////////////
Sub BodyAttributeSetUp_Air()
  '----- Body 属性の Index を保存する変数 -----
  Dim Index As Integer

  '----- Body 属性の追加 -----
  BodyAttr.Add "Air"

  '----- Body 属性 Index の設定 -----
  Index = BodyAttr.Ask("Air")
End Sub

```

```

'/////////////////////////////////////////////////////////////////
'   Body 属性の設定 Body 属性名 : Anode_H2
'/////////////////////////////////////////////////////////////////
Sub BodyAttributeSetUp_Anode_H2()
  '----- Body 属性の Index を保存する変数 -----
  Dim Index As Integer

  '----- Body 属性の追加 -----
  BodyAttr.Add "Anode_H2"

  '----- Body 属性 Index の設定 -----
  Index = BodyAttr.Ask("Anode_H2")
End Sub

```

```

'/////////////////////////////////////////////////////////////////
'   Body 属性の設定 Body 属性名 : Cathod_Air
'/////////////////////////////////////////////////////////////////
Sub BodyAttributeSetUp_Cathod_Air()
  '----- Body 属性の Index を保存する変数 -----
  Dim Index As Integer

  '----- Body 属性の追加 -----
  BodyAttr.Add "Cathod_Air"

  '----- Body 属性 Index の設定 -----
  Index = BodyAttr.Ask("Cathod_Air")
End Sub

```

```

'/////////////////////////////////////////////////////////////////
'   Body 属性の設定 Body 属性名 : ゴム
'/////////////////////////////////////////////////////////////////
Sub BodyAttributeSetUp_ゴム()
  '----- Body 属性の Index を保存する変数 -----
  Dim Index As Integer

  '----- Body 属性の追加 -----

```

```

BodyAttr.Add "ゴム"

'----- Body 属性 Index の設定 -----
Index = BodyAttr.Ask("ゴム")
End Sub

'////////////////////////////////////
'   Body 属性の設定 Body 属性名 : MEA1
'////////////////////////////////////
Sub BodyAttributeSetUp_MEA1()
'----- Body 属性の Index を保存する変数 -----
Dim Index As Integer

'----- Body 属性の追加 -----
BodyAttr.Add "MEA1"

'----- Body 属性 Index の設定 -----
Index = BodyAttr.Ask("MEA1")

'----- 電流(Current) -----
BodyAttr.Current(Index).i = (1.5) * 10 ^ (1)
End Sub

'////////////////////////////////////
'   Body 属性の設定 Body 属性名 : 不良 MEA
'////////////////////////////////////
Sub BodyAttributeSetUp_不良 MEA()
'----- Body 属性の Index を保存する変数 -----
Dim Index As Integer

'----- Body 属性の追加 -----
BodyAttr.Add "不良 MEA"

'----- Body 属性 Index の設定 -----
Index = BodyAttr.Ask("不良 MEA")
End Sub

```

```

'////////////////////////////////////
'   Material 全体の設定
'////////////////////////////////////
Sub MaterialSetUp()

'----- 変数にオブジェクトの設定 -----
Set Mtl = FEMTET.Material

'----- Material の設定 -----
MaterialSetUp_104_ステンレス鋼
MaterialSetUp_007_ABS 樹脂_耐衝撃_
MaterialSetUp_002_金 Au
MaterialSetUp_カーボン
MaterialSetUp_000_空気_乾燥_
MaterialSetUp_膜
MaterialSetUp_水素
MaterialSetUp_ゴム
MaterialSetUp_不良膜
End Sub

'////////////////////////////////////
'   Material の設定 Material 名 : 104_ステンレス鋼
'////////////////////////////////////
Sub MaterialSetUp_104_ステンレス鋼()
'----- Material の Index を保存する変数 -----
Dim Index As Integer

'----- Material の追加 -----
Mtl.Add "104_ステンレス鋼"

'----- Material Index の設定 -----
Index = Mtl.Ask("104_ステンレス鋼")

'----- 抵抗率(Resistivity) -----
Mtl.Resistivity(Index).sRho = (7.2992700729927) * 10 ^ (-7)

```

'----- 導電率(ElectricConductivity) -----

Mtl.ElectricConductivity(Index).ConductorType = CONDUCTOR_C

Mtl.ElectricConductivity(Index).sSigma = (1.37) * 10 ^ (6)

'----- 比熱(SpecificHeat) -----

Mtl.SpecificHeat(Index).C = (4.63) * 10 ^ (2)

'----- 密度(Density) -----

Mtl.Density(Index).Dens = (7.91) * 10 ^ (3)

'----- 熱伝導率(ThermalConductivity) -----

Mtl.ThermalConductivity(Index).sRmd = (1.5) * 10 ^ (1)

Mtl.ThermalConductivity(Index).bSpline = False

Mtl.ThermalConductivity(Index).Set_Table 0, (-0.73) * 10 ^ (2), (1.3) * 10 ^ (1)

Mtl.ThermalConductivity(Index).Set_Table 1, (0.27) * 10 ^ (2), (1.5) * 10 ^ (1)

Mtl.ThermalConductivity(Index).Set_Table 2, (1.27) * 10 ^ (2), (1.7) * 10 ^ (1)

Mtl.ThermalConductivity(Index).Set_Table 3, (2.27) * 10 ^ (2), (1.8) * 10 ^ (1)

'----- 線膨張係数(Expansion) -----

Mtl.Expansion(Index).sAlf = (1.47) * 10 ^ (-5)

Mtl.Expansion(Index).bSpline = False

Mtl.Expansion(Index).Set_Table 0, (-1.73) * 10 ^ (2), (1.14) * 10 ^ (-5)

Mtl.Expansion(Index).Set_Table 1, (0.2) * 10 ^ (2), (1.47) * 10 ^ (-5)

Mtl.Expansion(Index).Set_Table 2, (2.27) * 10 ^ (2), (1.75) * 10 ^ (-5)

Mtl.Expansion(Index).Set_Table 3, (5.27) * 10 ^ (2), (2.02) * 10 ^ (-5)

'----- 弾性定数(Elasticity) -----

Mtl.Elasticity(Index).sY = (2) * 10 ^ (11)

'----- 圧電定数(PiezoElectricity) -----

Mtl.PiezoElectricity(Index).bPiezo = False

'////////////////////////////////////

' Material の設定 Material 名 : 007_ABS 樹脂(耐衝撃)

```

'/////////////////////////////////////////////////////////////////
Sub MaterialSetUp_007_ABS 樹脂_耐衝撃_()
  '----- Material の Index を保存する変数 -----
  Dim Index As Integer

  '----- Material の追加 -----
  Mtl.Add "007_ABS 樹脂(耐衝撃)"

  '----- Material Index の設定 -----
  Index = Mtl.Ask("007_ABS 樹脂(耐衝撃)")

  '----- 誘電体(Permittivity) -----
  Mtl.Permittivity(Index).TanD = (1.1) * 10 ^ (-2)
  Mtl.Permittivity(Index).sEps = (3.1)

  '----- 比熱(SpecificHeat) -----
  Mtl.SpecificHeat(Index).C = (1.46) * 10 ^ (3)

  '----- 密度(Density) -----
  Mtl.Density(Index).Dens = (1.03) * 10 ^ (3)

  '----- 熱伝導率(ThermalConductivity) -----
  Mtl.ThermalConductivity(Index).sRmd = (2.62) * 10 ^ (-1)

  '----- 線膨張係数(Expansion) -----
  Mtl.Expansion(Index).sAlf = (1.025) * 10 ^ (-4)

  '----- 弾性定数(Elasticity) -----
  Mtl.Elasticity(Index).sY = (1.89) * 10 ^ (9)

  '----- 圧電定数(PiezoElectricity) -----
  Mtl.PiezoElectricity(Index).bPiezo = False

'/////////////////////////////////////////////////////////////////
'   Material の設定 Material 名 : 002_金 Au
'/////////////////////////////////////////////////////////////////

```

Sub MaterialSetUp_002_金 Au()

'----- Material の Index を保存する変数 -----

Dim Index As Integer

'----- Material の追加 -----

Mtl.Add "002_金 Au"

'----- Material Index の設定 -----

Index = Mtl.Ask("002_金 Au")

'----- 抵抗率(Resistivity) -----

Mtl.Resistivity(Index).sRho = (2.35017626321974) * 10 ^ (-8)

Mtl.Resistivity(Index).bSpline = False

Mtl.Resistivity(Index).Set_Table 0, (-1.95) * 10 ^ (2), (0.5) * 10 ^ (-8)

Mtl.Resistivity(Index).Set_Table 1, (0), (2.05) * 10 ^ (-8)

Mtl.Resistivity(Index).Set_Table 2, (1) * 10 ^ (2), (2.88) * 10 ^ (-8)

Mtl.Resistivity(Index).Set_Table 3, (3) * 10 ^ (2), (4.63) * 10 ^ (-8)

Mtl.Resistivity(Index).Set_Table 4, (7) * 10 ^ (2), (8.6) * 10 ^ (-8)

'----- 導電率(ElectricConductivity) -----

Mtl.ElectricConductivity(Index).ConductorType = CONDUCTOR_C

Mtl.ElectricConductivity(Index).sSigma = (4.255) * 10 ^ (7)

'----- 比熱(SpecificHeat) -----

Mtl.SpecificHeat(Index).C = (1.2885437293055) * 10 ^ (2)

Mtl.SpecificHeat(Index).bSpline = False

Mtl.SpecificHeat(Index).Set_Table 0, (-1.73) * 10 ^ (2), (1.08698665265684) * 10 ^ (2)

Mtl.SpecificHeat(Index).Set_Table 1, (-0.73) * 10 ^ (2), (1.24031218703441) * 10 ^ (2)

Mtl.SpecificHeat(Index).Set_Table 2, (0.2) * 10 ^ (2), (1.2885437293055) * 10 ^ (2)

Mtl.SpecificHeat(Index).Set_Table 3, (1.27) * 10 ^ (2), (1.30986714799377) * 10 ^ (2)

Mtl.SpecificHeat(Index).Set_Table 4, (3.27) * 10 ^ (2), (1.36063719248965) * 10 ^ (2)

'----- 密度(Density) -----

Mtl.Density(Index).Dens = (1.932) * 10 ^ (4)

'----- 熱伝導率(ThermalConductivity) -----

```

Mtl.ThermalConductivity(Index).sRmd = (3.15) * 10 ^ (2)
Mtl.ThermalConductivity(Index).bSpline = False
Mtl.ThermalConductivity(Index).Set_Table 0, (-1.73) * 10 ^ (2), (3.45) * 10 ^ (2)
Mtl.ThermalConductivity(Index).Set_Table 1, (-0.73) * 10 ^ (2), (3.27) * 10 ^ (2)
Mtl.ThermalConductivity(Index).Set_Table 2, (0.27) * 10 ^ (2), (3.15) * 10 ^ (2)
Mtl.ThermalConductivity(Index).Set_Table 3, (1.27) * 10 ^ (2), (3.12) * 10 ^ (2)

```

```
'----- 線膨張係数(Expansion) -----
```

```

Mtl.Expansion(Index).sAlf = (1.42) * 10 ^ (-5)
Mtl.Expansion(Index).bSpline = False
Mtl.Expansion(Index).Set_Table 0, (-1.73) * 10 ^ (2), (1.18) * 10 ^ (-5)
Mtl.Expansion(Index).Set_Table 1, (0.2) * 10 ^ (2), (1.42) * 10 ^ (-5)
Mtl.Expansion(Index).Set_Table 2, (2.27) * 10 ^ (2), (1.54) * 10 ^ (-5)
Mtl.Expansion(Index).Set_Table 3, (5.27) * 10 ^ (2), (1.7) * 10 ^ (-5)

```

```
'----- 弾性定数(Elasticity) -----
```

```

Mtl.Elasticity(Index).sY = (7.95) * 10 ^ (10)
Mtl.Elasticity(Index).Nu = (4.2) * 10 ^ (-1)

```

```
'----- 圧電定数(PiezoElectricity) -----
```

```
Mtl.PiezoElectricity(Index).bPiezo = False
```

```
'////////////////////////////////////
```

```
' Material の設定 Material 名 : カーボン
```

```
'////////////////////////////////////
```

```
Sub MaterialSetUp_カーボン()
```

```
'----- Material の Index を保存する変数 -----
```

```
Dim Index As Integer
```

```
'----- Material の追加 -----
```

```
Mtl.Add "カーボン"
```

```
'----- Material Index の設定 -----
```

```
Index = Mtl.Ask("カーボン")
```

```

'----- 抵抗率(Resistivity) -----
Mtl.Resistivity(Index).sRho = (1.63934426229508) * 10 ^ (-5)

'----- 導電率(ElectricConductivity) -----
Mtl.ElectricConductivity(Index).ConductorType = CONDUCTOR_C
Mtl.ElectricConductivity(Index).sSigma = (6.1) * 10 ^ (4)
End Sub

'////////////////////////////////////
'   Material の設定 Material 名 : 000_空気 (乾燥)
'////////////////////////////////////
Sub MaterialSetUp_000_空気_乾燥_()
'----- Material の Index を保存する変数 -----
Dim Index As Integer

'----- Material の追加 -----
Mtl.Add "000_空気 (乾燥) "

'----- Material Index の設定 -----
Index = Mtl.Ask("000_空気 (乾燥) ")

'----- 誘電体(Permittivity) -----
Mtl.Permittivity(Index).sEps = (1.000517)

'----- 比熱(SpecificHeat) -----
Mtl.SpecificHeat(Index).C = (1.006) * 10 ^ (3)

'----- 密度(Density) -----
Mtl.Density(Index).Dens = (1.205)

'----- 熱伝導率(ThermalConductivity) -----
Mtl.ThermalConductivity(Index).sRmd = (2.65) * 10 ^ (-2)

'----- 圧電定数(PiezoElectricity) -----
Mtl.PiezoElectricity(Index).bPiezo = False

```

```

'----- 音速(SoundVelocity) -----
Mtl.SoundVelocity(Index).Vel0 = (3.4) * 10 ^ (2)

'//////////
'   Material の設定 Material 名 : 膜
'//////////
Sub MaterialSetUp_膜()
'----- Material の Index を保存する変数 -----
Dim Index As Integer

'----- Material の追加 -----
Mtl.Add "膜"

'----- Material Index の設定 -----
Index = Mtl.Ask("膜")

'----- 抵抗率(Resistivity) -----
Mtl.Resistivity(Index).sRho = (1)

'----- 導電率(ElectricConductivity) -----
Mtl.ElectricConductivity(Index).ConductorType = PERFECT_CONDUCTOR_C
Mtl.ElectricConductivity(Index).sSigma = (1)
End Sub

'//////////
'   Material の設定 Material 名 : 水素
'//////////
Sub MaterialSetUp_水素()
'----- Material の Index を保存する変数 -----
Dim Index As Integer

'----- Material の追加 -----
Mtl.Add "水素"

'----- Material Index の設定 -----

```

```

        Index = Mtl.Ask("水素")
End Sub

'////////////////////////////////////
'   Material の設定 Material 名 : ゴム
'////////////////////////////////////
Sub MaterialSetUp_ゴム()
    '----- Material の Index を保存する変数 -----
    Dim Index As Integer

    '----- Material の追加 -----
    Mtl.Add "ゴム"

    '----- Material Index の設定 -----
    Index = Mtl.Ask("ゴム")
End Sub

'////////////////////////////////////
'   Material の設定 Material 名 : 不良膜
'////////////////////////////////////
Sub MaterialSetUp_不良膜()
    '----- Material の Index を保存する変数 -----
    Dim Index As Integer

    '----- Material の追加 -----
    Mtl.Add "不良膜"

    '----- Material Index の設定 -----
    Index = Mtl.Ask("不良膜")
End Sub

'////////////////////////////////////
'   Boundary 全体の設定
'////////////////////////////////////
Sub BoundarySetUp()

```

```

'----- 変数にオブジェクトの設定 -----
Set Bnd = FEMTET.Boundary

'----- Boundary の設定 -----
BoundarySetUp_RESERVED_default
BoundarySetUp_in
BoundarySetUp_out
End Sub

'////////////////////////////////////
'   Boundary の設定 Boundary 名 : RESERVED_default (外部境界条件)
'////////////////////////////////////
Sub BoundarySetUp_RESERVED_default()
'----- Boundary の Index を保存する変数 -----
Dim Index As Integer

'----- Boundary の追加 -----
Bnd.Add "RESERVED_default"

'----- Boundary Index の設定 -----
Index = Bnd.Ask("RESERVED_default")

'----- 電気(Electrical) -----
Bnd.Electrical(Index).Condition = ELECTRIC_WALL_C
End Sub

'////////////////////////////////////
'   Boundary の設定 Boundary 名 : in
'////////////////////////////////////
Sub BoundarySetUp_in()
'----- Boundary の Index を保存する変数 -----
Dim Index As Integer

'----- Boundary の追加 -----
Bnd.Add "in"

```

```

'----- Boundary Index の設定 -----
Index = Bnd.Ask("in")

'----- 電気(Electrical) -----
Bnd.Electrical(Index).Condition = PORT_C
End Sub

'/////////////////////////////////////////////////////////////////
'   Boundary の設定 Boundary 名 : out
'/////////////////////////////////////////////////////////////////
Sub BoundarySetUp_out()
'----- Boundary の Index を保存する変数 -----
Dim Index As Integer

'----- Boundary の追加 -----
Bnd.Add "out"

'----- Boundary Index の設定 -----
Index = Bnd.Ask("out")

'----- 電気(Electrical) -----
Bnd.Electrical(Index).Condition = PORT_C
End Sub

'/////////////////////////////////////////////////////////////////
'   IF 関数
'/////////////////////////////////////////////////////////////////
Function F_IF(expression As Double, val_true As Double, val_false As Double) As Double
  If expression Then
    F_IF = val_true
  Else
    F_IF = val_false
  End If
End Function

```

```

'////////////////////////////////////
'   変数定義関数
'////////////////////////////////////
Sub InitVariables()

'解析条件/材料定数/境界条件/ボディ属性用変数の定義
c_pi = 3.14159265358979

'寸法用変数の定義
pi = 3.14159265358979

End Sub

'////////////////////////////////////
'   モデル作成関数
' Func 1-8 Body はモデル全体の構成（履歴を含む）
' Func 9 Body で MEA 導通部分を指定（全体 1069 個）
' Func 10 Body で不良部分を指定 <- ループ区間
'////////////////////////////////////
Sub MakeModel(state As Long, n As Long, Nf As Long, k As Long, kmin As Long, Np As Long)

'----- Body 配列変数の定義 -----
Dim Body() As CGaudiBody

'----- モデルを描画させない設定 -----
FEMTET.RedrawMode = False

Func0 Body
Func1 Body
Func2 Body
Func3 Body
Func4 Body
Func5 Body
Func6 Body
Func7 Body

```

```

Func8 Body
Func9 Body
Func10 Body, state, Nf, k, kmin, Np

'----- モデルを再描画します -----
FEMTET.Redraw

'----- モデルを保存します -----

'   If Gaudi.NewModel(True) = False Then
'   FEMTET.ShowLastError
'   End If

'   If Gaudi.SaveModel("C:\femtet¥Model&k&.gmd", True) = False Then
'   FEMTET.ShowLastError
'   End If

End Sub

'////////////////////////////////////
" Func 1-10 Body のモデル成形、色指定などは省略
' Func 10 Body における不良部分指定方法のみ以下に記述
'////////////////////////////////////

Sub Func10(ByRef Body() As CGaudiBody, state As Long, Nf As Long, k As Long, kmin As Long,
Np As Long)

Dim i As Long
Dim j As Long

For i = 0 To 12

    If i = 0 Or i = 1 Then
        For j = 0 To 44
            Set BodyArray316((585 + j) + 45 * i) = Body((1646 - i) - j * 13)
        
```

```

Next j
Elseif i = 2 Or i = 3 Or i = 4 Or i = 5 Or i = 6 Or i = 7 Or i = 8 Or i = 9 Or i = 10 Or i = 11 Then
  For j = 0 To 44
    If j = 0 Then
      Set BodyArray316((585 + j) + 45 * i) = Body((1646 - i - 1) - j * 13)
    ElseIf j = 43 Then
      Set BodyArray316((585 + j) + 45 * i) = Body((1646 - i) - j * 13 - 1)
    Else
      Set BodyArray316((585 + j) + 45 * i) = Body((1646 - i) - j * 13)
    End If
  Next j
Elseif i = 12 Then
  For j = 0 To 44
    If j = 0 Then
      Set BodyArray316((585 + j) + 45 * i) = Body(1644)
    ElseIf j = 43 Then
      Set BodyArray316((585 + j) + 45 * i) = Body(1085)
    ElseIf j = 44 Then
      Set BodyArray316((585 + j) + 45 * i) = Body(1072)
    Else
      Set BodyArray316((585 + j) + 45 * i) = Body((1646 - i) - j * 13)
    End If
  Next j
End If

```

Next i

```

If state = 1 Then
  k = kmin
End If

```

```

Nf = 5
Np = Nf * (k - 1)

```

```

n = 0
  For n = 0 To (Nf - 1)

    BodyArray316(Np).Color = &H408000
    BodyArray316(Np).SetName "不良 MEA", "不良膜"

    Np = Np + 1
  Next n

```

```
End Sub
```

```
'////////////////////////////////////
```

```
'////////////////////////////////////
```

```
'  計算結果抽出関数
```

```
'////////////////////////////////////
```

```
Sub SamplingResult(state As Long, j As Long, x As Double, y As Double, z As Double, k As Long,
kmin As Long, difGmin As Variant, Pos() As CComplex, Gx() As Variant, Gy() As Variant, Gz() As
Variant)
```

```
'----- 変数にオブジェクトの設定 -----
```

```
Set Gogh = FEMTET.Gogh
```

```
  If FEMTET.OpenPDT(FEMTET.ProjectPath & FEMTET.ProjectTitle & ".pdt", True) = False
```

```
  Then
```

```
    FEMTET.ShowLastError
```

```
  End If
```

```
'モードの設定
```

```
Gogh.Gauss.Mode = 0
```

ベクトルフィールドの設定

```
Gogh.Gauss.Vector = GAUSS_MAGNETIC_FLUX_DENSITY_C
```

```
Dim s As Long
```

```
Dim difG As Variant
```

```
s = 0
```

```
Gx(15) = 0
```

```
Gy(15) = 0
```

```
Gz(15) = 0
```

```
difG = 0
```

```
For x = 1 To 5
```

```
    For z = 1 To 3
```

```
        y = 30.5
```

```
            ActiveSheet.Cells(j, 1).Value = 9 * (2 * x - 1) - 3.25
```

```
            ActiveSheet.Cells(j, 2).Value = y
```

```
            ActiveSheet.Cells(j, 3).Value = 9 * (2 * z - 1)
```

```
            If (Gogh.Gauss.GetVectorAtPoint(9 * (2 * x - 1) - 3.25, y, 9 * (2 * z - 1), Pos) =  
False) Then
```

```
                FEMTET.ShowLastError
```

```
            End If
```

```
        For i = 0 To 2
```

```
            ActiveSheet.Cells(j, i + 4).Value = Pos(i).Real
```

```
        If i = 0 Then
```

```
            Gx(15) = Gx(15) + Abs((Abs(Gx(s)) - Abs(ActiveSheet.Cells(j, i +  
4).Value)))
```

```
        ElseIf i = 1 Then
```

```
            Gy(15) = Gy(15) + Abs((Abs(Gy(s)) - Abs(ActiveSheet.Cells(j, i +  
4).Value)))
```

```

Else
    Gz(15) = Gz(15) + Abs((Abs(Gz(s)) - Abs(ActiveSheet.Cells(j, i +
4).Value)))
End If

Next i
j = j + 1
s = s + 1
Next z
Next x

difG = Gx(15) + Gy(15) + Gz(15)
ActiveSheet.Cells(j, 7).Value = difG

If difGmin > difG Then
    difGmin = difG
    kmin = k
End If

If state = 1 Then

'ベクトルフィールドの設定
Gogh.Gauss.Vector = GAUSS_CURRENT_DENSITY_C

For x = -3 To 90
    For z = 7 To 47
        y = 27.5
            ActiveSheet.Cells(j, 1).Value = x - 0.25
            ActiveSheet.Cells(j, 2).Value = y
            ActiveSheet.Cells(j, 3).Value = z

        If (Gogh.Gauss.GetVectorAtPoint(x - 0.25, y, z, Pos) = False) Then
            FEMTET.ShowLastError
        End If
    End For
End For

```

```

For i = 0 To 2
    ActiveSheet.Cells(j, i + 8).Value = Pos(i).Real
Next i

    j = j + 1

Next z
Next x

For x = -3 To 90
    For z = 7 To 47
        y = 33#
        ActiveSheet.Cells(j, 1).Value = x - 0.25
        ActiveSheet.Cells(j, 2).Value = y
        ActiveSheet.Cells(j, 3).Value = z

        If (Gogh.Gauss.GetVectorAtPoint(x - 0.25, y, z, Pos) = False) Then
            FEMTET.ShowLastError
        End If

        For i = 0 To 2
            ActiveSheet.Cells(j, i + 8).Value = Pos(i).Real
        Next i

        j = j + 1

    Next z
Next x

End If

End Sube

```