P-Stack による固体高分子形燃料電池の 非定常フルスタックスケールシミュレーション

高山 務ⁱ

Transient Full-Stack Scale Simulations of Polymer Electrolyte Fuel Cells by P-Stack

Tsutomu TAKAYAMA

固体高分子形燃料電池シミュレータ P-Stack を使用し,水素極 (アノード)側のインジェクタ,循環系,お よび冷却系の循環を考慮して,固体高分子形燃料電池セルおよびスタックの非定常挙動の解析を行った. インジェクタ,循環系,および排出口は境界条件としてモデル化した.スタックの制御条件としては,ア ノード側の圧力幅や循環ポンプ流量,カソード側の背圧,冷却系の循環系ポンプ流量や冷却効率を考慮し, 非定常な負荷変動に追随して変動する各種の制御条件を仮定したときのセルおよびスタックの挙動と内部 状態を解析した.解析の結果,制御条件の差異による局所的な水素欠乏の可能性や,スタックされたセル 間の振る舞いの差異を議論することができた.こうした解析は,燃料電池の非定常制御下の状態を把握す るうえで重要な情報となる可能性がある.

(キーワード): 固体高分子形燃料電池, シミュレーション, マルチフィジックス, スタック制御

1 はじめに

水素と酸素を反応させて発電する装置である燃料 電池は、次世代のエネルギー源として注目されてい る.特に、再生可能エネルギーから生産した水素を利 用することで、CO₂フリーで安定したエネルギー供給 を実現することができる.

燃料電池の応用先としては様々な用途が考えられ るが、なかでも自動車を脱炭素化する手段として、固 体高分子形燃料電池が有力視されている. 同様の手 段としては二次電池を用いた電気自動車に注目が集 まっているが、燃料電池の場合は二次電池と比較し て航続距離が長く、また再充填(充電)に要する時間 も短いため、長距離用や商用車用として利点がある と考えられており、米国や欧州、さらには中国でも多 くの企業が参入しつつある.

燃料電池の設計において,数値シミュレーション は有用な手段である.燃料電池は図1に示すような 層構造を持つセルから構成されており,数[mm]程度 の厚さのセルが数十から数百枚積層された構造を持 っため、運転中の内部状態を実験で計測することは 難しい.数値シミュレーションでは、燃料電池スタッ クの内部状態を把握することができ、部材特性に対 する依存性や、内部でのガス濃度や温度の偏り、液水 の生成など、性能を決定する要因を詳しく検討する ことができる.

加えて、燃料電池システムの設計においては、スタ ック全体の非定常な制御も重要な課題である.スタ ック内の各種ガス濃度分布や温度分布などを適切な 状態に保つことで、スタックの発電効率を高くして 燃費を向上できるとともに、触媒層など各種部材の 劣化を低減して耐久性を改善することができ、シス テム全体のコストダウンにつながる.

こうした制御システムの検討においても、シミュ レーションは重要な役割を果たす.実験のみで設計 を行う場合、スタックや補機類などが完成するまで テストを行うことができず、テスト自体にも時間を 要するが、シミュレーションであれば設計の早い段

ⁱ サイエンスソリューション部 デジタルエンジニアリングチーム シニアコンサルタント 博士 (理学)

階から検討を開始することができる.

本稿では、非定常なアノード系の挙動の数値シミ ュレーションに向けた取り組みとして、循環系、イン ジェクタおよび排出口を模擬した燃料電池セルおよ びスタックのシミュレーションを行った結果を示す. 特に、今回の検討では、自動車の運転状態を模擬した 非定常な負荷変動を課すとともに、スタックの制御 パターン(例えば、スタックの背圧や循環ポンプ流量 の制御など)を変更した場合の影響を解析した.この 結果、こうしたシミュレーションによって、制御パタ ーンの違いによるスタック内部状態への影響を細部 にわたって検討できることを確認した.特に、水素の 局所的な枯渇は触媒層カーボン担体の急激な劣化を もたらす可能性があるが、こうした現象は局所的に 生じるものであり、スタック全体を解像し内部の分 布を検討できるシミュレーションが必要となる.こ の結果は、スタック全体の詳細な非定常シミュレー ションが、通常のシステム制御設計シミュレーショ ンで行われる手法(スタックや補機などのコンポー ネントを単位としたモデルを作成し、軽量な制御対 象モデルを構築して解析を行う手法)では把握でき ない課題を確認する手法として重要であり、相補的 な関係にあることを示している.

本稿は以下のような構成をとる.まず,2章におい て,適用した解析モデルについて説明する.続いて, 3章においてスタックの非定常挙動のシミュレーシ ョン手法について示し,4章で解析結果を示す.



図1 燃料電池セルの典型的な構造

2 固体高分子形燃料電池の解析モデル

今回行った解析では、3次元的なガスと液水の流動、 冷却水流動、化学種輸送、および熱輸送について、電 気化学反応と連成させて計算するモデル¹⁾を使用し ている.燃料電池は様々な部分から構成されており、 空気または水素および水蒸気、液水の混合流体が流 れているアノード・カソード流路や、各種の気体の拡 散および液水の移動を考慮しなければならない多孔 体部分(GDL および MPL)、冷却水が流れる冷却水 流路、固体部分であるセパレータなどが存在するた め、各部位ごとに適した輸送方程式系を考慮する必 要がある.

流体については、流れの詳細な特徴を求める詳細 な流体モデルは適用せず、Darcy 則に基づく圧損と流 量の関係から, 圧力分布と流量分配を計算する. この とき, 流路断面については 1 つの体積要素で代表さ れるような粗いメッシュを使用するとともに, セル 単位の詳細な流体解析から求めた圧損係数分布を適 用することで, 計算精度を確保しながら大幅に計算 コストを低減している.

電気化学反応については、両極の触媒層と電解質 膜の界面での 2 次元の反応としてモデル化し、触媒 層における各種反応ガスの分圧 p_{H_2} , p_{O_2} と温度に依 存して過電圧 η_a , η_c と反応電流密度 j_a , j_c の関係が決定 されるものとした.ここで、カソード側については触 媒層のミクロレベルの構造に起因した酸素輸送抵抗 による影響を含めた補正分圧を使用し、さらに気相 側水蒸気活量に依存する触媒利用率 θ による補正を 含めた.本モデルでは、図 2 に示すような膜を介し た等価回路モデルを構成し、セル全体で等しいセル 電圧が実現するような状態を反応電流密度分布とし て計算する.このとき,PEM部分の抵抗はPEMの含 水量に依存するプロトン伝導抵抗を考慮する.



図2 反応電流を決定する等価回路モデル

反応電流分布に従い,各種のガスに対する生成お よび消費ソースが与えられる.これらは CL と PEM の境界面における境界条件として輸送方程式におい て考慮される.また,PEM を介した水の輸送につい ては,含水率と水蒸気活量との関係式,PEM 内の含 水率に依存する水分拡散係数,および含水量に依存 する移動係数n_dを持つ電気浸透も考慮する.加えて, 窒素についても,PEM を介した拡散によるカソード 側からアノード側への移動を考慮した. 3 解析対象とモデル

3.1 解析対象セルおよびスタック計算の詳細

今回の解析の対象は,図3に示す流路構造を持つ セル,およびこれを256枚積層したスタックである. スタックのセル枚数は車載用のスタックが300枚程 度であることを考慮して設定した。セルの材料特性 は、図5に示す標準的な電流-電位関係を与えるよう に選択した.アノードおよびカソードの流入/流出 方向は対向流の構成をとる.

スタックの解析においては、スタックを構成する 256 枚のセルのうち, 両端の3枚ずつをそれぞれ単一 のセルとしてモデル化し、内側の 250 枚については おおよそ均一であるとして、セル50枚ごとに1枚の セルで代表するモデル化を行った.これにより,計算 規模は11枚のセル相当に低減される.1枚のセルで 代表した部分については, ガスや熱の収支において 50 倍の寄与を持つものとして考慮した.マニホール ド部分の流入/流出口は図4に示すような配置とし た. アノード・カソードいずれも同じ方向から流入し て同じ方向へ流出する構造であり、スタックした場 合には流入/流出口から最も遠いセル(セル番号1と する)と流入/流出口に最も近いセル(セル番号 11 とする)が存在する. さらに、アノード系および冷 却系は閉鎖されているものとし、図6のようなガス および冷却水の循環を模擬した.











3.2 運転条件と制御パラメータ

今回の検討では,非定常な出力変動に対し,異なる 制御パターンを仮定したときの内部状態の変化を解 析した.

まず,非定常な出力変動として仮定した出力電流 を図7に示す.電流のパターンは全体で60秒であり, 車体を加速させるための出力を行っている期間(ピ ーク)3つから構成されている.また,各ピークの間 には出力がゼロとなっている期間が存在する.

一方,スタックの制御パラメータとしては,以下の ようなパラメータを考慮した.

- 水素インジェクタの開閉圧力(下限・上限) 水素インジェクタは高い圧力差によって駆動されるため,ここでは開放時に一定のモル流量となるものとした.この場合,閉鎖されているアノード系の圧力を一定の範囲に保つためには,圧力をモニターしながらインジェクタの開閉を制御する必要がある.ここでは,このような制御を再現するため,水素インジェクタの開閉条件となる下限および上限圧力値を設定した.これらのパラメータを制御することにより,スタックにおけるアノード系の圧力を制御することができる.
- 水素循環ポンプ流量 水素系は閉鎖されていると水蒸気や窒素が局所 的に蓄積するため,循環ポンプを備えている.こ の循環ポンプの流量をパラメータとし、時系列 データとして与えた.
- カソード背圧 カソード系は空気の取り込み口から出口へ連続 的に流れる構造を持つが、背圧を制御すること でカソード側の圧力を調節することができる. 背圧は時系列データとして与え、制御状態を模 擬した.
- 冷却水ポンプ流量 冷却水の循環流量を制御することで、スタック の冷却状況を調節することができる.ポンプは 体積流量が規定できるものとし、これを時系列 データとして与えた.
- ラジエータ動作比率
 FC スタックの場合, 冷却系はラジエータを通ら

ずに直接循環するバイパスを持つものとした. これは、ピーク出力時を考慮したラジエータの 特性がピーク時以外には過剰な冷却を与えてし まうことによる.FCスタックのピーク時出力は 数十 kWのオーダーを持つが、これを冷却でき る性能のラジエータが存在する場合、低出力時 にはすぐに冷却水を外気温度付近まで低下させ てしまう.これをポンプ流量のみで制御する場 合、非常に細かい制御が必要となってしまう.但 し、バイパスを考慮した冷却水の再循環をその まま定式化することは煩雑なため、ここで冷却 系制御のおおよその効果を確認することを目的 とし、ラジエータの放熱効率に対する係数とし てラジエータ動作比率を定義し、これを時系列 データとして与えることとした.

各制御パラメータについては、出力電流の変動に 合わせて、図8のような変動データをあらかじめ仮 定して与えた. なお, 実際の制御では, 出力条件等に 応じて一定のアルゴリズムに従ってパラメータが決 定されるべきであり,このアルゴリズムを別途実装 することで,より現実的な制御を模擬することが可 能となるが、今回は非定常解析の模擬としてあらか じめ指定された制御パラメータの時系列データを与 えることとした.図8には、赤と青の線で示された2 通りの変動データが存在する.青の変動データはベ ース条件であり,出力電流の変化に合わせて敏感に 変動する制御パラメータを仮定している.出力電流 の上昇に合わせ、セルの出力電位が高くなるように、 アノード系の制御圧力範囲やカソード系の背圧を上 昇させ,熱や水の生成量が増大することを受けて水 素循環ポンプの流量や冷却水ポンプ流量、ラジエー タ動作比率などを上昇させている.一方,赤の変動デ ータは、ベース条件と比較して変動を粗くしたもの である.特にアノード系および冷却系の循環ポンプ 流量を低めに抑えており、補機類の消費電力の低減 が期待できる.以下,ベースとなる制御条件を Base, 変動を粗くした制御条件を Lazy と呼ぶこととする.

また,スタック解析ではセル間の比較に注目し, Lazy 条件の最も大きいピーク(30 秒以降)のみを解 析対象とした.アノード系および冷却水循環ポンプ 流量は単セルの 256 倍として適用した.











図8 各種制御パラメータの時系列データ

上から順に,水素インジェクタの開閉圧力(下限・上限),水素循環ポンプ流量,カソード背 圧,冷却水ポンプ流量,ラジエータ動作比率を示した.

4 解析結果

4.1 単セル解析

解析の結果得られたセルの発電特性として、セル 電位およびセル出力の時系列データの比較を図9に、 内部状態の例として、アノード側触媒層における水 素分圧の最小値、PEM の温度および含水量の最大・ 最小と平均値の比較を図10に、それぞれ示した.セ ル電位およびセル出力の比較から, Base と Lazy の 2 つの制御条件によるセル性能への影響はほとんどな いことが確認できる.一方,アノード側触媒層におけ る水素分圧の最小値は Lazy 条件において有意に低い 値を示している.特に,出力電流を負荷しているのに も関わらずアノード系の循環ポンプ流量が低い部分 において水素濃度の最低値が低下する傾向を示して おり,20 秒から 25 秒付近では顕著に水素濃度が低下 している.このことは,ポンプの制御に依存して局所 的な水素欠乏の危険性があり,さらにこうした危険 性はセルの発電性能のみから推測することが難しい, ということを示す一つの例となっている.また,PEM の温度や含水量にも明確な差が見られる.今回の条 件ではセルの発電性能には影響していないが,セル の温度や含水量を制御する観点では,こうした制御 条件の違いによる影響も無視できない.従って,今回 行ったような非定常解析は,制御条件を詳細に検討 する段階において,例えば定常解析や,セルの内部状 態を把握できない実験などの手法では得られない情 報を得る有効な手段となる可能性がある.

また,内部状態を確認することで,局所的な水素欠

乏が生じている位置を議論することができる.この 例として、図11にアノード流路と触媒層での水素分 率および窒素分率の分布を示した.BaseとLazyの2 つの制御条件について、水素分圧の差がみられる22 秒と、出力電圧が高い53秒の2つの時刻を比較して いる.この図において、右上がアノード側の入口であ り、左下が出口である.この結果から、ポンプの流量 が不足している場合、出口付近に窒素が蓄積する形 で水素欠乏が生じることが確認できる.出力電流が 大きい場合でも、ポンプの循環が強ければこのよう な窒素の蓄積は発生せず、水素欠乏は生じない.



図 10 セル内部状態の比較

上:アノード側触媒層における水素分圧最小値 中央:PEM 温度の最大・最小・平均

下: PEM 含水量の最大・最小・平均



4.2 スタックの解析

続いて、スタックについての解析結果を示す.3章 に記載したとおり、スタック解析ではセル間の比較 に注目し、Lazy条件の最も大きいピーク(30秒以降) のみを解析対象とした.アノード系および冷却水循 環ポンプ流量は単セルの256倍として適用した.

セルの発電特性として、セル電位およびセル出力 の時系列データの比較を図12に、内部状態の例とし て、アノード側触媒層における水素分圧の最小値、 PEM の温度および含水量の最大・最小と平均値の比 較を図13に、それぞれ示した.

今回の解析条件では、スタックされたセル間の発 電性能に有意な差は生じなかった.一方、アノード側 触媒層の水素分圧最小値を比較すると、中央付近の セルにおいて、水素分圧の最小値が低下する傾向が 確認された.この傾向は、前後1秒程度の移動最小 値をプロットし、圧力振動の最小値を取った図14を みると比較しやすい.中央付近のセル(例えばセル番 号4)では、最も流入および流出側に近いセル(セル 番号 11) と比較して 10kPa 程度まで水素分圧が低下 している.これは、より厳しい運転条件において、こ れらのセルで水素欠乏が生じる可能性を示唆してい る.セル温度にも差異がみられるが、これは端部のセ ルが放熱されやすいことによるものである.セルの 含水量には、平均値を見る限り極端な差は生じてい ない.

中央付近のセルで水素分圧の最小値が低下するの は、スタックの奥ほど流量分配が低下することによ り窒素が蓄積しやすくなることと、スタックの入口 側ほど再循環した水素および窒素が直接流入し、水 素濃度の振れ幅が大きくなること(逆に言えば、スタ ックの奥ほど注入されたガスが混合し、水素の振れ 幅がちいさくなること)の競合によるものと推測さ れるが、メカニズムを理解するにはより詳しい解析 を行う必要がある.

最後に,図15に示したように,内部状態を比較することで,中央付近のセルの下流側で水素欠乏が生じる傾向を確認することができる.











図 13 スタックされたセル間の内部状態の比較 上:アノード側触媒層における水素分圧最小値 中央:PEM 温度の平均 下:PEM 含水量の平均



図 14 スタックされたセル間の水素分圧最小値の比較 移動最小値をとり、圧力振動の最低値を比較した



図 15 いくつかのスナップショットにおけるスタックされたセル間の内部状態の比較 左上:7秒 右上:15秒 左下:20秒 右下:24秒

それぞれの図は、上段:最も入口に近いセル 中段:中央セル 下段:最下層セルであり、

左列:反応電流分布(平均値を1に規格化) 中列:アノード触媒層の水素分圧 右列:PEM の含水量から 構成される

5 まとめ

セルまたはスタックの非定常挙動の解析例として, アノード系および冷却系の循環を模擬し,非定常な 負荷変動と,負荷変動に追随する非定常制御下にあ るセルおよびスタックを仮定して,内部状態の解析 を行った.今回モデル化した制御条件は以下の5つ である.

- アノード側圧力制御範囲(インジェクタ開閉圧力 となる圧力最小値・最大値)
- ・ アノード系循環ポンプ流量
- ・ カソード側背圧
- 冷却系循環ポンプ流量
- · 冷却効率

セルについては、2 つの異なる制御条件を仮定し、 セル挙動の差異を議論した.特に、アノード系循環ポ ンプの流量が低い場合、局所的な水素欠乏が生じる 可能性が高まることが確認された.また、欠乏が生じ る部位などを議論することも可能である.スタック については、スタックされたセル間で水素濃度に差 が生じる状況が確認できた.

こうした解析は、燃料電池システムの制御手法を 開発する際に、シミュレーションによってスタック の挙動を事前に予測するとともに、内部状態を詳細 に把握する有用なツールとなる可能性がある.将来 的には、あらかじめ仮定した制御条件ではなく、実際 の制御アルゴリズムを模擬した解析を行うことも可 能であり、シミュレーションによる制御機構の検証 を行うこともできる可能性がある.

引用文献

 米田雅一,高山務,茂木春樹,吉村英人,高山糧, 仮屋夏樹:固体高分子形燃料電池シミュレータ P-Stack 次世代版の開発,みずほ情報総研技報, Vol. 7 No. 1, (2015), 6-17