

PEM 型燃料電池の 3 次元数値シミュレーションへの 機械学習モデルの活用検討

松元隆輝ⁱ, 高山務ⁱⁱ

Integration of Machine Learning Models into Three-Dimensional Numerical Simulation of Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cells.

Ryuki MATSUMOTO, Tsutomu TAKAYAMA

燃料電池の開発・設計において、高性能かつ高耐久の燃料電池セルを開発するためには、セル内部の現象および状態を理解することが重要である。加えて、耐久性評価の観点から、白金劣化をはじめとする様々な劣化現象の予測も重要である。しかしながら、劣化現象は数 1,000 時間以上の長い時間スケールで発生するため、多くの数値計算コストがかかる。この計算コストの大幅な削減に向けて、これまで我々が開発を行ってきた PEM 型燃料電池の 3D シミュレーターである P-Stack に対し、サロゲートモデルによる高速化検討を行った結果を述べる。

(キーワード): 燃料電池, 電気化学, サロゲートモデル

1 はじめに

燃料電池の開発・設計において、燃料電池セルの内部状態を評価するために数値シミュレーションが活用されている。それに対して我々は 3 次元 PEM 型燃料電池シミュレーターである P-Stack®を開発してきた。P-Stack は実機形状のセル・スタックシミュレーションが可能であり、数時間程度の運転を想定した非定常シミュレーションも実施することが出来る。しかしながら、白金劣化をはじめとする劣化現象は数千～数万時間の長い時間スケールで発生するため、従来の計算手法では多くの時間がかかる。そのため計算時間の削減が必要不可欠であり、サロゲートモデルの適用可能性検討を行った。

サロゲートモデルとは、物理シミュレーションの結果を用いて学習を行った機械学習モデルであり、従来のシミュレーション手法と比較して短い計算時間で予測が出来る特徴がある。これにより、従来手法では膨大な計算コストがかかるシミュレーションにおいても、より高速に予測できることが期待され

る。

従来の P-Stack では、セル・スタックの内部状態を、3 次元輸送計算と発電計算を連成させて計算を行っている。発電計算においては現在 0 次元モデルが採用されており、高速なシミュレーションが可能となっているが、今後劣化モデル等の開発により計算コストの大幅な増加が想定される。それに加えて、前述のように長時間スケールでの計算が必要となるため、高速化は必要不可欠である。そこで、発電計算のサロゲートモデルの適用による代替が可能であるかを検討した。サロゲートモデル自体の計算速度はそのモデルの構造に依るため、代替の対象となる現象の複雑さとは直接関係しておらず、計算時間を抑えることが期待できる。そのため、サロゲートモデルを適切に活用することが出来れば、劣化モデルであっても従来モデルと同等の計算速度でシミュレーションできると期待される。

2 サロゲートモデルの作成

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 コンサルタント

ⁱⁱ 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 課長 博士 (理学)

2.1 サロゲートモデルの概要

従来の P-Stack の発電計算では, Butler-Volmer 式でモデル化される水素酸化反応(HOR)と酸素還元反応(ORR)を MEA の面方向の各メッシュについて計算し電流を求めている. P-Stack における電気化学反応の概要図を図 1 に示す. 規定された電位 $V_{\text{cell}}[\text{V}]$ とアノード触媒層における水素分圧 $p_{\text{H}_2}[\text{Pa}]$, 温度 $T[\text{K}]$, 水蒸気活量 $a_w[-]$ およびカソード触媒層における酸素分圧 $p_{\text{O}_2}[\text{Pa}]$, 温度 $T[\text{K}]$, 水蒸気活量 $a_w[-]$ より電流 $j[\text{A}]$ を計算する. 式(1)から(4)に計算式を示す. 式(1)は HOR 式, 式(2)は ORR 式, 式(3)は電流の保存式, 式(4)は電位の式である.

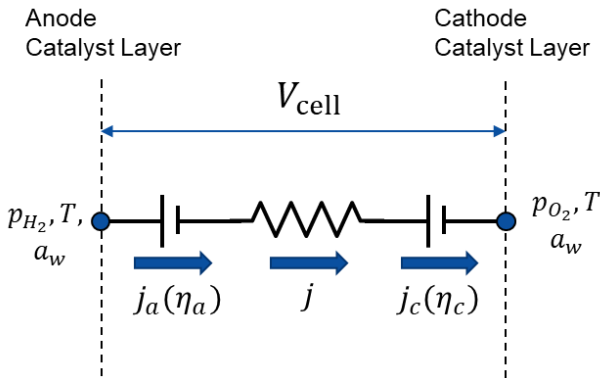


図 1 電気化学反応の概要図

$$j_a = j_0^a \left(\frac{p_{\text{H}_2}}{p_{\text{ref}}} \right)^{\gamma_a} \left[\exp \left(\frac{\alpha_a^+ F \eta_a}{RT} \right) - \exp \left(- \frac{\alpha_a^- F \eta_a}{RT} \right) \right] \quad (1)$$

$$j_c = j_0^c \left(\frac{p_{\text{O}_2}^{\text{eff}}}{p_{\text{ref}}} \right)^{\gamma_c} (1 - \theta) \left[\exp \left(\frac{\alpha_c^+ F \eta_c}{RT} \right) - \exp \left(- \frac{\alpha_c^- F \eta_c}{RT} \right) \right] \quad (2)$$

$$j = j_a = j_c \quad (3)$$

$$V_{\text{cell}} = \eta_a - \eta_c + (E_c - E_a) - r^{\text{eff}} j \quad (4)$$

ここで, η_a, η_c はそれぞれアノード・カソードの過電圧を表し, r^{eff} は PEM のプロトン伝導度を表す. これに対して, アノード・カソード触媒層の分圧, 温度, 水蒸気活量及び電位を入力として, 電流を予測するサロゲートモデルを学習する. サロゲートモデルの概要図を図 2 に示す.

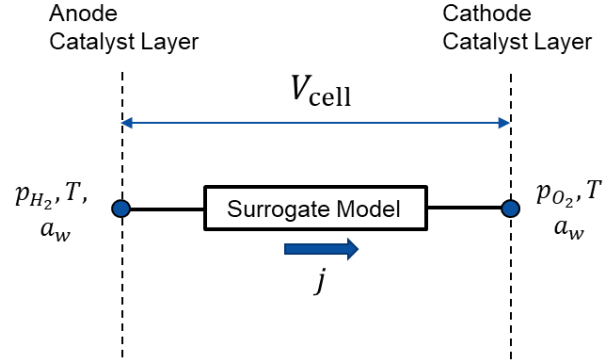


図 2 サロゲートモデルの概要図

ここで, サロゲートモデルの説明変数は, 電位, アノード触媒層水素, 水蒸気濃度, カソード触媒層酸素, 水蒸気濃度及び触媒層温度であり, 目的変数は電流密度, セル抵抗, 過電圧, アノード触媒層水素, 水蒸気フラックス, カソード触媒層酸素, 水蒸気フラックス, 触媒層熱フラックスである.

2.2 動径基底関数法

図 2 に示したサロゲートモデルを構築するために, 動径基底関数法を用いた. 動径基底関数法とは回帰式が動径基底関数と呼ばれる非線形関数を基底関数とした線形結合で表される回帰モデルの一つである. 式(5)に回帰式を示す. ここで, d_x は入力データの次元, N は学習データの数, $\mathbf{x} = (x_{(1)}, \dots, x_{(d_x)})$ は入力データ, $\mathbf{x}_n = (x_{n(1)}, \dots, x_{n(d_x)})$ は学習データ, $\{w_n\}, \{b_i\}$ は重みである. また, $\phi(\cdot)$ は式(6)に示す動径基底関数であり, データ間の距離の関数である.

$$S(\mathbf{x}) = \sum_{n=1}^N w_n \phi(\|\mathbf{x} - \mathbf{x}_n\|) + b_0 + \sum_{i=1}^{d_x} b_i x_{(i)} \quad (5)$$

$$\phi(r) = r^2 \log(r) \quad (6)$$

重み $\{w_n\}, \{b_i\}$ は回帰式から構成される線形方程式を解くことにより得られるため, 学習コストは極めて低いという特徴がある. 加えて, 式(5)の回帰式は学習に使用したデータは必ず満足するという特徴がある.

2.3 学習データの生成

サロゲートモデルの学習のため, P-Stack を用いて 1-D 相当の計算を 1,000 ケース行った. データの生成

に使用した P-Stack の運転条件を表 1 に示す．これらのパラメータの範囲から，ラテン超方格サンプリングを用いて 1,000 ケースの条件を生成し，P-Stack の計算を行った．より広い範囲の予測を可能とするために，運転条件の範囲を広く設定している．但し，0.3V 未満の範囲のデータは P-Stack においては計算対象外の領域であるため学習の際に除外した．

表 1 学習データ生成に用いた運転条件

項目	範囲
電流密度	0 ~ 4 A/cm ²
Anode 水素濃度	1 ~ 100%
Anode 湿度	50 ~ 100%RH
Anode 圧力	0 ~ 200 kPa(g)
Cathode 酸素濃度	0.1 ~ 21%
Cathode 湿度	50 ~ 100%RH
Cathode 圧力	0 ~ 200 kPa(g)
温度	60 ~ 90 °C

表 1 の条件のもと計算した 1,000 ケースの計算結果の散布図を図 3 に示す．シミュレーションの出力は電位，各種過電圧，セル抵抗，触媒層ガス濃度，触

媒層温度，触媒層ガスフラックスおよび熱フラックスである．このように広範な範囲にわたるデータを学習データとして使用した．特に，I-V プロットの結果を確認すると，低出力から高出力まで幅広い結果が得られていることが分かる．但し，前述のとおり，電位が 0.3V を下回るデータについては除している．

2.4 動径基底関数法による学習結果

生成した学習データの 8 割を訓練データ，2 割をテストデータとして学習を行った結果を図 5 に示す．縦軸に予測結果，横軸に P-Stack の計算結果をとった散布図をプロットした．どの予測対象についても決定係数 R^2 が 0.9 を超えており，十分な予測精度が得られていると考えられる．一方で，電流密度や水フラックスについては，セル抵抗や熱フラックスと比較して精度が落ちる結果となった．特に，これらの傾向は低負荷領域，高負荷領域に顕著に現れていることが分かる．これらの計算条件は設定した運転条件の境界近くに位置するため，他の領域と比較して予測が困難となると考えられる．更なる精度の向上のために，境界付近の学習データを増やす等の対応が考えられる．

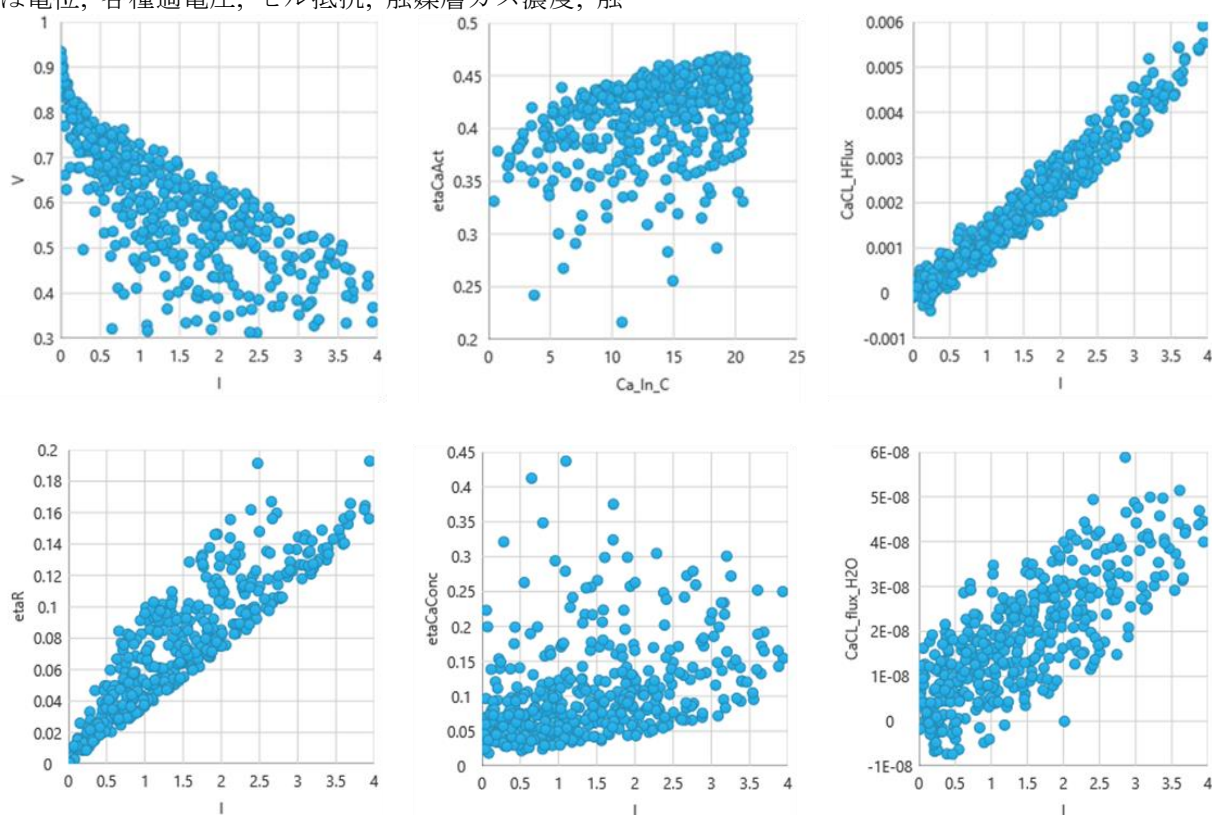


図 3 P-Stack による計算結果．上段左図: I-V，上段中央: カソード活性化過電圧，上段右図: カソード熱フラックス
下段左図: 抵抗過電圧，下段中央: カソード濃度過電圧，下段右図: カソード水フラックス

3 P-Stack との連携

学習済みモデルを P-Stack に統合し、面内分布の計算を行った。対象とした形状は $5 \times 5 \text{ cm}^2$ のサーペントイン形状の流路を持つセルであり、概形を図 4 に示す。この形状のセルに対して、表 2 に示す運転条件を基準条件として I-V の予測結果と P-Stack の計算結果との比較を行った。また、圧力違い条件としてアノード・カソード圧力を 50 kPa(g) とした結果の比較も行った。

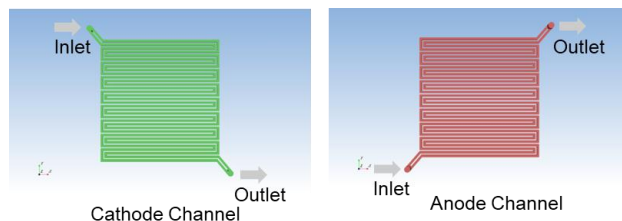


図 4 カソード及びアノード流路の形状

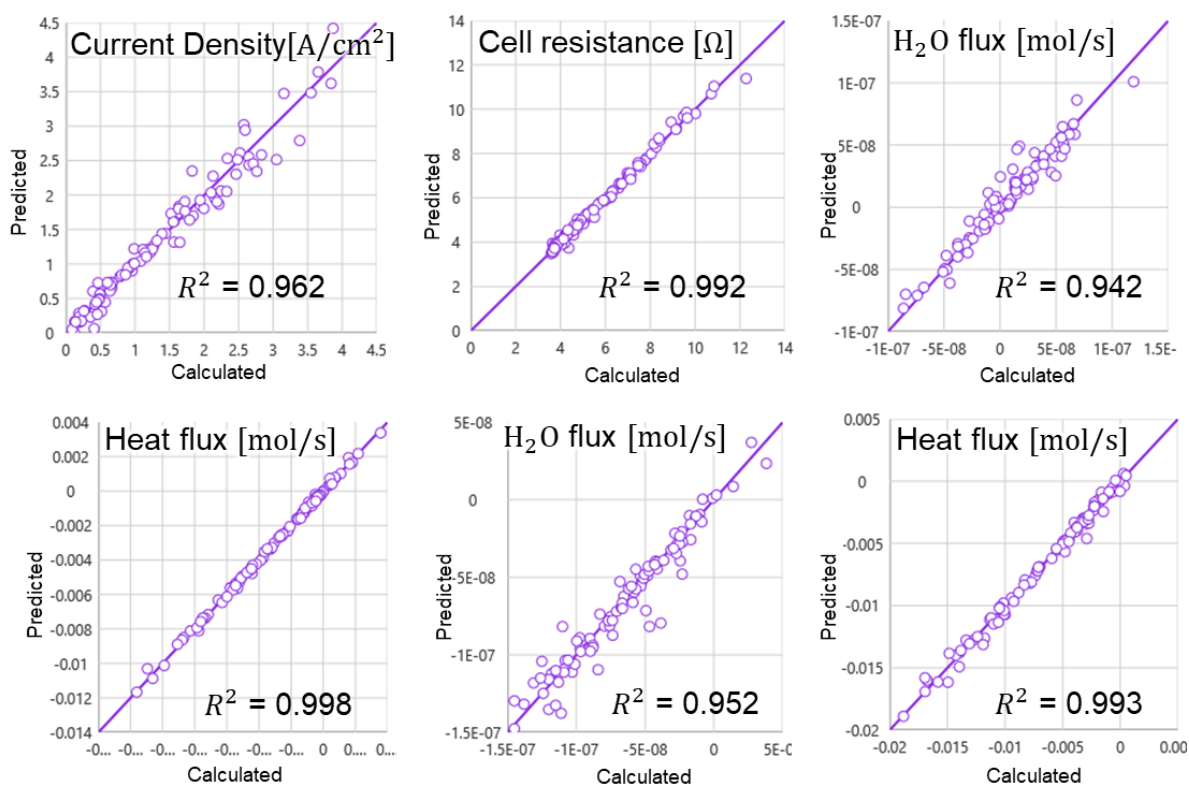


図 5 RBF を用いた予測結果。縦軸を予測結果、横軸を P-Stack の計算結果とした散布図。

上段左図：電流密度、上段中央：セル抵抗、上段右図：アノード水フラックス

下段左図：アノード熱フラックス、下段中央：カソード水フラックス、下段右図：カソード熱フラックス

表 2 基準運転条件

項目	値
Anode 水素濃度	100 %
Anode 湿度	60 %RH
Anode 圧力	0 kPa(g)
Cathode 酸素濃度	21 %
Cathode 湿度	60 %RH
Cathode 圧力	0 kPa(g)
温度	80 °C

表 2 の運転条件のもと, 0.2[A/cm²], 1.0[A/cm²], 1.8[A/cm²]にて予測を行った結果を図 6 に示す. 黒色実線が基準条件の P-Stack の結果を表し, 赤色実線が 50kPa(g)条件の P-Stack の結果を表す. 各電流密度における予測結果を点で示す.

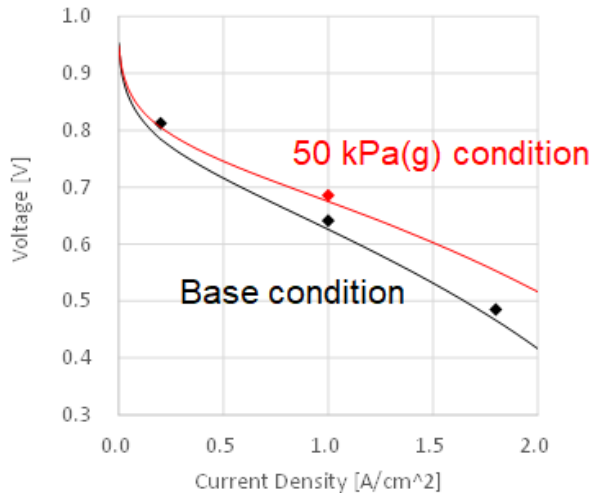
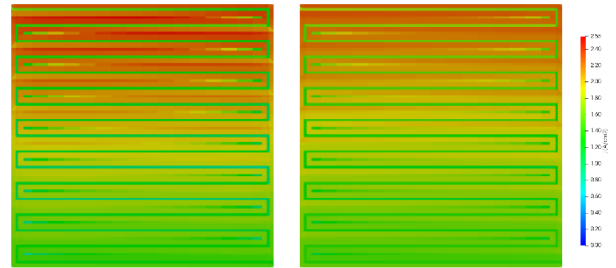
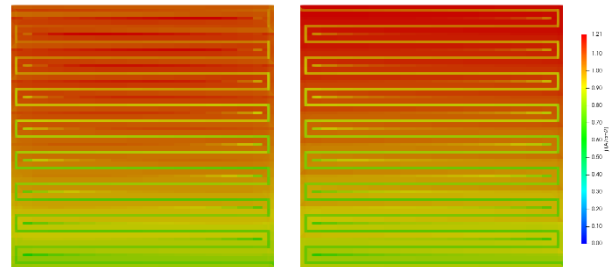
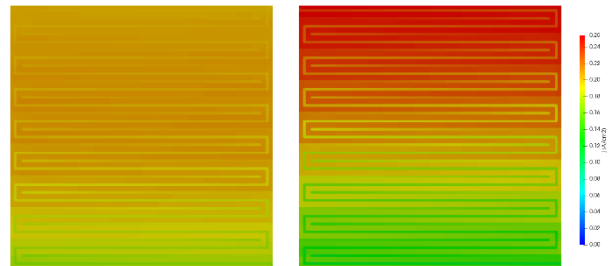


図 6 基準条件及び 50kPa(g)条件の計算結果と予測結果の比較.

1.0[A/cm²], 1.8[A/cm²]の予測結果については概ね P-Stack の結果を再現する結果となった. しかしながら, 0.2[A/cm²]については, 黒色実線との乖離が確認出来る. 低負荷領域では前述のとおり, 学習データ群の境界付近に位置しており, 予測が困難であると考えられる. この点については, 低負荷領域でのデータを増やすことや, 機械学習モデルの変更により精度が改善できると考えられる.

次に, 面内の発電分布について比較を行った結果を図 7 ~ 図 9 に示す. 面内分布の計算条件についても先ほどと同様に, 表 2 に記載の基準運転条件および 50kPa(g)条件にて P-Stack の計算と予測計算を行った. 左図に P-Stack の計算結果を示し, 右図に予測結

果を示す.

図 7 基準条件 1.8[A/cm²] 比較結果
左 : P-Stack 計算結果, 右 : 予測結果図 8 基準条件 1.0[A/cm²] 比較結果
左 : P-Stack 計算結果, 右 : 予測結果図 9 基準条件 0.2[A/cm²] 比較結果
左 : P-Stack 計算結果, 右 : 予測結果

I-V の比較結果と同様, 1.8[A/cm²]及び 1.0[A/cm²]条件については P-Stack の結果をよく再現する結果が得られた. しかしながら, 低負荷条件である 0.2[A/cm²] 条件についてはカソード上流側に発電が集中し, P-Stack の計算結果と比較すると上流と下流で差がつくような結果となった. 0.2[A/cm²]条件では酸素濃度が支配的となり, 酸素濃度の高い上流側に発電が集中したものと考えられる.

次に 50kPa(g)条件の結果を図 10 に示す. 50kPa(g)条件では, 基準条件 1.0[A/cm²]の結果と比較して, P-Stack の計算結果および予測結果が共に発電分布が中腹に集中するような結果となっている. これは圧力上昇に伴って膜含水量が中腹付近に集中したことによる効果であると考えられる. 予測モデルはこれらの傾向も再現できることが分かった.

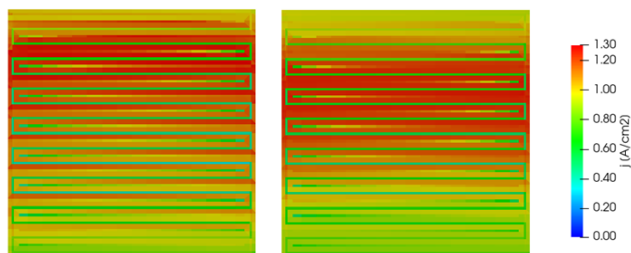


図 10 50kPa(g)条件 1.0[A/cm2] 比較結果

4 まとめ

燃料電池セルの設計・開発において重要な性能評価や耐久性評価のためにこれまでP-Stackの開発を行ってきた。耐久性評価において、白金をはじめとする劣化現象の予測は極めて重要であるが、P-Stackには現在劣化現象を予測するモデルは実装されていない。加えて、劣化現象の様な長時間スケールで起こる複雑な現象を予測するためには、更なる計算速度の向上が必要となる。そこで、現在開発中の白金劣化モデルと並行して従来の計算速度と同等の速度で計算を行うために、P-Stackにおけるサロゲートモデルの活用可能性検討を行った。

機械学習モデルとしては動径基底関数法と呼ばれる非線形モデルを使用し、P-Stackの境界条件である電位、触媒層のガス濃度、温度を入力として、電流密度、抵抗、各種過電圧、触媒層フラックスを予測するモデルを作成した。学習データにはP-Stackの1D相当のモデルを作成し、広範な運転条件のもとラテン超方格サンプリングを用いてサンプリングした1,000ケースの計算の結果を用いた。予測対象のすべての

変数に対して、決定係数 R^2 が0.9を超える精度が得られた。但し、低負荷領域および高負荷領域では予測精度が落ちる傾向が見られた。

動径基底関数法を用いて作成した機械学習モデルをP-Stackと連携し、I-V計算および膜内分布予測を行い、計算結果との比較を実施した。0.2[A/cm2]、1.0[A/cm2]、1.8[A/cm2]の負荷電流密度について予測を行ったところ、1.0[A/cm2]および1.8[A/cm2]については計算結果をよく再現する結果が得られたのに対し、0.2[A/cm2]の結果については計算結果と比較してカソード上流側に発電が集中する結果となった。0.2[A/cm2]条件では酸素濃度が支配的となり、酸素濃度の高い上流側に発電が集中したものと考えられる。また、基準条件以外の計算条件として、圧力50kPa(g)条件の比較も行った。圧力50kPa(g)条件の結果は予測及び計算結果ともにセル中腹に発電が集中する傾向がみられ、予測は計算結果をよく再現する結果が得られた。これは圧力上昇に伴い、膜含水量が中腹付近に集中したことによる効果であると考えられ、水バランスの影響も考慮したモデルであることが分かる。

今後は、白金劣化モデル等の劣化現象のモデルに対して、同様に学習モデルの構築、性能評価を行い、従来計算と同等の計算速度で劣化現象の再現が可能か検討を行う。これにより燃料電池セルの設計・開発に貢献していきたい。

P-Stackはみずほリサーチ&テクノロジーズ㈱の登録商標である。