

シミュレーションによる燃料電池スタックセル面内 CCM 含水量分布予測

Numerical Prediction of Water Content Distribution of Catalyst Coated Membrane of Fuel Cell Stack using Simulation

南 雲 健 司*
Kenji NAGUMO

井ノ上 雅次郎*
Masajiro INOUE

要 旨

ABSTRACT

固体高分子形燃料電池の耐久性に影響を与える要因の一つに catalyst coated membrane (CCM) の含水量分布がある。また燃料電池スタックのセル面内 CCM 含水量分布は、冷媒入口温度やカソード極入口流量などの燃料電池の運転条件によって変化するため、燃料電池の耐久性確保には適切な運転条件の設定が重要である。

そこで短期間で精度良く運転条件を予測できるシミュレーションの構築をおこない、運転条件のセル面内 CCM 含水量分布への影響度の検討をおこなった。その結果、運転条件のうち冷媒入口温度、カソード極入口圧力、カソード極入口流量にてセル面内 CCM 含水量分布をコントロールすることができることを見出した。

構築したシミュレーションと運転条件のセル面内 CCM 含水量分布への影響度の検討結果を用いることで、セル面内 CCM 含水量分布を適正な範囲内に収め、含水量分布のばらつきを低減させた。また、数日で精度の良い運転条件を 2016 年モデル FCV 用燃料電池スタックに適用することができた。

The distribution of the water content of catalyst-coated membranes (CCM) is a factor that affects the durability of polymer electrolyte fuel cells. Because the in-plane distribution of the water content of the CCM in fuel cell stacks changes with changes in fuel cell operating conditions such as the coolant inlet temperature and the cathode electrode gas inlet flow rate, the setting of appropriate operating conditions is important in helping to ensure fuel cell durability.

The research discussed in this paper therefore developed a simulation making it possible to accurately predict operating conditions in a short period, and studied the effect of operating conditions on the in-plane distribution of the water content of the CCM. The results of this study indicated that the in-plane distribution of water content could be controlled via three operating condition parameters: the coolant inlet temperature, the cathode gas inlet pressure, and the cathode gas inlet flow rate.

Using the developed simulation and the results of the study of the effect of operating conditions on the in-plane distribution of the water content of the CCM made it possible to maintain the in-plane distribution within the upper and lower limit values and reduced variation in the distribution. It was also possible to apply accurate operating conditions in the 2016 FCV fuel cell stack in a period of several days.

1. まえがき

CO₂ や NO_x などの自動車排ガス中に含まれる環境汚染物質による地球環境への影響や、将来的な化石燃料の枯渇に対応するために、クリーンかつ低燃費な自動車の開発が急務である。Honda は持続的なエネルギー循環型社会を目指し、化石燃料に頼らず水素を燃料とする燃料電池自動車 (FCV) と燃料電池の研究開発を進めてきた⁽¹⁾。

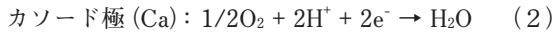
Fig. 1 に燃料電池の構成図と内部の反応について示す。燃料電池セル (以下、セル) は膜電極接合体 (membrane electrode assembly: MEA) とガス流路が形成されたセパ

レータから構成されており、セルを複数枚積層したものを燃料電池スタック (以下、スタック) と呼んでいる。

MEA は高分子電解質膜 (polymer electrolyte membrane: PEM) と触媒層 (catalyst layer: CL) そしてガス拡散層 (gas diffusion layer: GDL) から構成されており、触媒層が形成された高分子電解質膜は catalyst coated membrane (CCM) とも呼ばれている。

燃料電池の反応は、式 (1) に示すアノード極の水素酸化反応と式 (2) に示すカソード極の酸素還元反応からなり、水素と酸素の化学反応により電気と水を生成する。

* 四輪 R&D センター



FCV に搭載のスタックは、小型軽量化と高出力で高効率な発電性能の実現が求められるとともに、車載する燃料電池特有の電流負荷の変動に対する耐久性が要求される。燃料電池の耐久性を確保するには、燃料電池出力に大きく寄与する電極触媒の表面積の保持、および酸素と燃料である水素のガス隔離とアノードとカソードの電気絶縁の両機能を持つ PEM の厚み保持が必要となる。

電極触媒の表面積の保持と PEM の厚み保持にはセル面内 CCM 含水量が密接に関係している。一般的に含水量が多い場合、電極触媒の溶解や凝集、再析出によって触媒の肥大化が促進され触媒表面積の低下が加速される。一方で含水量が少ない場合、不純物や過酸化水素が PEM 内に蓄積されて化学劣化が促進され PEM の厚みが減少するという報告⁽²⁾もある。

よって、車載用燃料電池の耐久性向上にはセル面内 CCM 含水量分布を明確にし、その上でセル面内 CCM 含水量を適切な範囲に制御する必要がある。

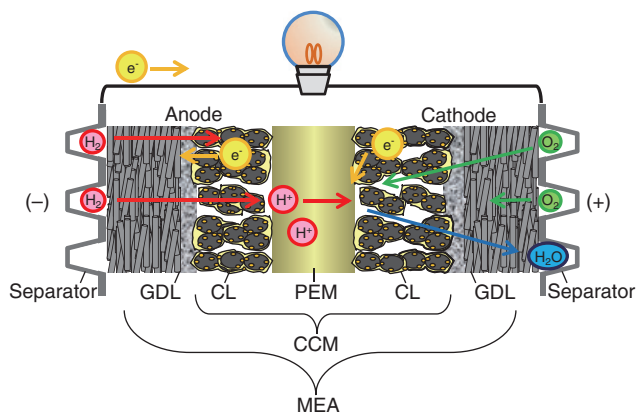


Fig. 1 Schematic image of fuel cell

2. 開発の目的

そこで、2016 年モデルの FCV 用スタック開発においては、多分割インピーダンスセンサの開発⁽³⁾によるセル面内 CCM 含水量分布の明確化とシミュレーションによる最適なセル面内 CCM 含水量分布の予測をおこない、スタックの耐久性向上を目指した。

本稿では、シミュレーションによるスタックセル面内 CCM 含水量分布の予測について述べる。

セル面内 CCM 含水量分布が燃料電池の耐久性に影響することは前述のとおりであるが、このセル面内 CCM 含水量分布は燃料電池の運転条件によって大きく変化する。すなわち燃料電池の耐久性向上には適切な運転条件の設定も重要である。

運転条件のパラメータには、冷媒の入口温度と入口流量、An ガスと Ca ガスの入口流量と入口圧力の 6 種類がある。

これまでは中性子ラジオグラフィや重量測定法を用いてセル面内 CCM 含水量の測定をおこなっていた。しかし、パラメータの組み合わせが多いことに加え計測に時間がかかるなど^{(3),(4)}、短期間で精度の良い運転条件を決定するのが容易ではないという課題があった。

この課題に対しては、最初に短期間で精度の良い結果を出せるシミュレーションの構築をおこない、運転条件の各パラメータがセル面内 CCM 含水量分布に与える影響検討をシミュレーションで事前におこなう。そして構築したシミュレーションと事前検討結果の両者を用いて、セル面内 CCM 含水量が適切な範囲に収まる運転条件を短期間で精度良く予測することを本シミュレーションの目的とした。

3. シミュレーションの構築

3.1. セル面内 CCM 含水量分布シミュレーション

セル面内 CCM 含水量分布シミュレーションについては、市販の固体高分子形燃料電池シミュレーションソフトウェア⁽⁵⁾をもとに、Honda 独自の機能改良をおこなうことによって構築した。

3.2. セル、スタック構造と運転条件

Fig. 2 に 2016 年モデル FCV 用のセルの概略図を示す。シミュレーションに取り入れた主要構造は、Wave 流路セパレータ、2 セルごと冷却構造⁽¹⁾、スタック横置き構造、An ガスと Ca ガスの対向流および Ca ガスと冷媒の並行流構造、MEA 外周樹脂構造による An と Ca の独立流量分配構造⁽⁶⁾を再現した。

またこのセルが複数枚積層されたものがスタックとなるが、シミュレーション上での条件設定 (周期境界条件) により再現した。

なお、運転条件には電流値を一定とし他のパラメータの影響を確認した。この電流値は燃料電池の耐久性と信頼性に最も影響を及ぼす値を採用した。

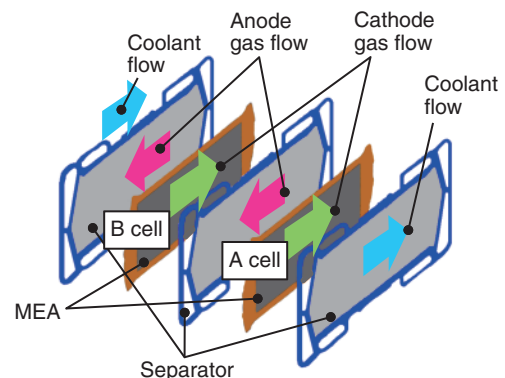


Fig. 2 Schematic image of cell structure

3.3. シミュレーション結果と特徴

Fig. 3(a) に A セル側, (b) に B セル側のセル面内のシミュレーション結果を示す。図中の Ca in は空気入口, Ca out は空気出口, An in は水素入口, An out は水素出口, Coolant in は冷媒入口, Coolant out は冷媒出口を表す。

特徴として Ca ガス入口側で最もセル面内 CCM 含水量が少なく, Ca ガス出口に向かいセル面内 CCM 含水量が増加している。これは Ca 側での生成水が Ca 出口に向かって流れ, 集まるためである。しかし, セル面内 CCM 含水量の最大値を示す位置は Ca ガス出口 (図中 P1 で示す) ではなく, Ca ガス入口側へ少し移動した位置 (図中 P2 で示す) となっている。

Fig. 4 は今回のセル面内 CCM 含水量分布の特徴を説明するための模式図である。セル面内 CCM 含水量を決める要因には, CCM を介して, Ca と An との間で生じる水蒸気分圧差による水の拡散 [図中 (1) で示す] とガスによって CCM から持ち去られる水分量 [図中 (2) で示す] の二つがある。

Ca ガス出口位置 (Fig. 3 図中 P1 で示す) でセル面内 CCM 含水量が最大にならないのは, An ガスによって

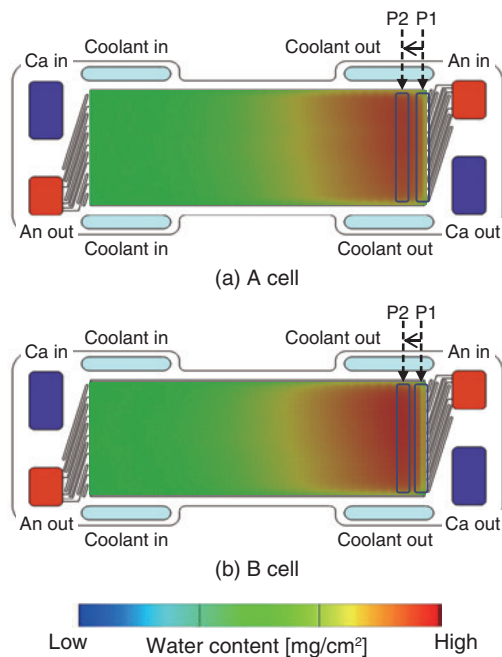


Fig. 3 Simulation results for water content distribution

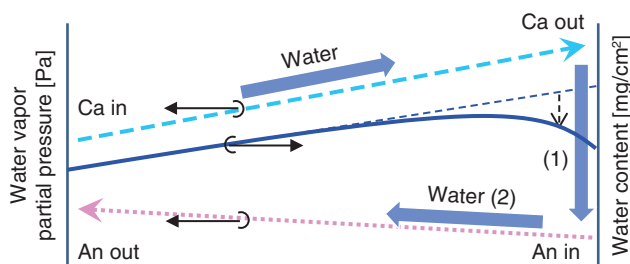


Fig. 4 Schematic image of movement of water in CCM

CCM から持ち去られる水分量 [Fig. 4 図中 (2) で示す] が水の拡散 [Fig. 4 図中 (1) で示す] を上回ったためであると考えられる。

3.4. CCM 含水分布シミュレーションと測定結果の比較

2016 年モデル FCV 用スタックの開発において, セル面内 CCM 含水量分布の計測は, 新規に開発されたセンサシステム⁽³⁾でおこなった。その概略図を Fig. 5 に示す。これはセル面内を 75 個のセグメントに分割し, セル面内 CCM 含水量分布を計測するものである。このセンサシステムによる測定結果とシミュレーション結果の比較のため, シミュレーションデータも 75 個のセグメントに分割し, 各セグメントのなかでデータの平均化処理をおこなった。

Fig. 6(a) に A セル, (b) に B セルのシミュレーション結果と測定結果との比較を示す。比較は Fig. 5 に示すように中央のセグメント群についておこなっている。

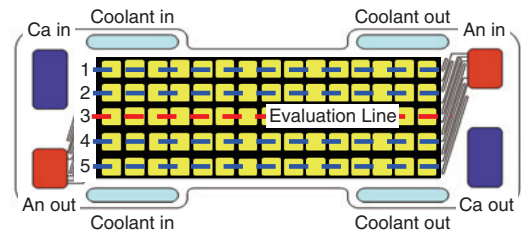


Fig. 5 Schematic image of 75-segment impedance measurement system

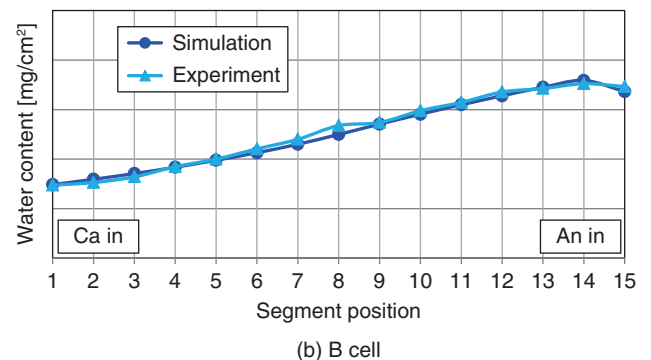
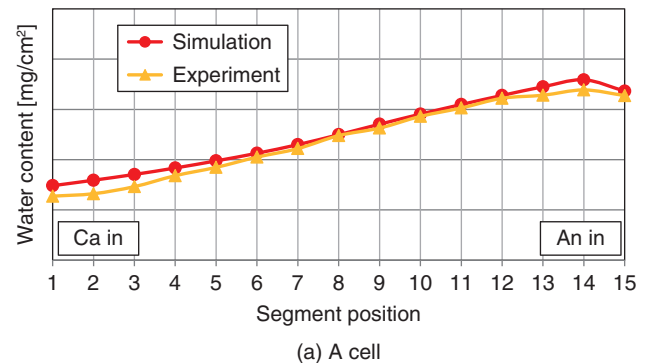


Fig. 6 Results of comparison of simulation and experiment

2 セルごとと冷却構造を採用しているが、A セルと B セルともにセル面内 CCM 含水量分布の差異は無く、ともに測定結果とシミュレーション結果はよく一致していることがわかる。また、75 個のセグメント平均の予測精度は 5.0% 以内であることが確認できた。

4. 運転条件パラメータの影響度検討

運転条件のパラメータである冷媒の入口温度と入口流量、An ガス入口流量、Ca ガス入口流量、An ガス入口圧力、Ca ガス入口圧力を変更し、セル面内 CCM 含水量分布への影響度を検討した。それぞれの運転条件の変更は、3.2. 節で採用した運転条件に対し燃料電池システムとして運転可能な範囲を網羅できる $\pm 10\%$ の値とした。

また運転条件の変更に対し A セル、B セルともに同様の変化を示したため、以後、A セルの結果のみについて述べる。

4.1. 冷媒入口温度の影響

Fig. 7 に冷媒入口温度を変更したシミュレーション結果を示す。

冷媒入口温度の変更によるセル面内 CCM 含水量分布の傾向には変化はないが、セル面内 CCM 含水量絶対値の変化が大きいことがわかる。冷媒入口温度を上げるとセル面内の温度が上昇するためセル面内 CCM 含水量は減少し、冷媒入口温度を下げるとセル面内温度が低下するため、セル面内 CCM 含水量が増加する。

4.2. 冷媒入口流量の影響

Fig. 8 に冷媒入口流量を変更したシミュレーション結果を示す。

冷媒入口流量の変更によるセル面内 CCM 含水量分布への影響はほとんど見られない。しかし詳細の数値を確認すると、冷媒入口流量を増加させた場合は、CCM で生成した熱量が冷媒によってより多く持ち去られる。その結

果、冷媒温度の上昇と共に冷媒出口付近 (図中の Segment position 14) のセル面内の温度が上昇し、セル面内 CCM 含水量が減少している。一方、冷媒入口流量を減少させた場合は、CCM で生成した熱量が冷媒によって持ち去られにくくなるため、冷媒温度が低下し、冷媒出口付近 (図中の Segment position 14) のセル面内 CCM 含水量が増加している。

4.3. An ガス入口流量の影響

Fig. 9 に An ガス入口流量を変更したシミュレーション結果を示す。

An ガス入口流量の変更による変化はほとんど見られない。しかし詳細の数値を確認すると、An ガス入口流量を増加させると An in 側 (図中の Segment position 15) では、An ガスによって CCM から持ち去られる水分量が増加してセル面内 CCM 含水量が減少するが、An ガスの下流 (図中の Segment position 1 から 14) では An ガスによって持ち去られる水分量が減少するため、セル面内 CCM 含水量が増加している。An ガス入口流量を減少させると An ガスによって CCM から持ち去られる水分量が減少し、An in 側 (図中の Segment position 15) ではセル面内 CCM 含水量が増加するが、An ガス流路下流 (図中の Segment position 1 から 14) では An ガスによって持ち去られる水分量が増加するため、セル面内 CCM 含水量が減少している。

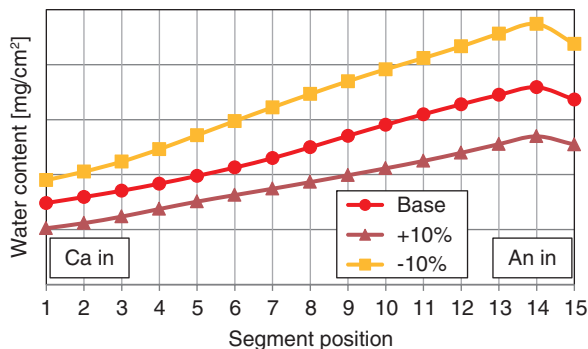


Fig. 7 Simulation results with change in coolant inlet temperature

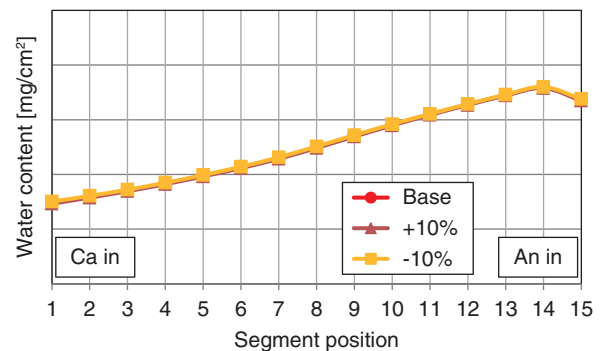


Fig. 8 Simulation results with change in coolant inlet flow rate

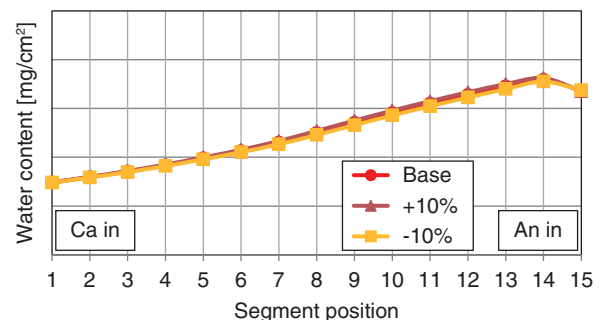


Fig. 9 Simulation results with change in An gas inlet flow rate

4.4. Ca ガス入口流量の影響

Fig. 10 に Ca ガス入口流量を変更したシミュレーション結果を示す。

Ca ガス入口 (図中の Segment position 1) ではセル面内 CCM 含水量の変化は少ない。しかし、Ca ガス入口流量を増加させるとセル面内 CCM 最大含水量 (図中の Segment position 14) が減少し、Ca ガス流量を減少させるとセル面内 CCM 最大含水量 (図中の Segment position 14) が増加していることがわかる。これは、Ca ガス流量を増加させた場合は持ち去られる水分量が増加し、Ca ガス流量を減少させた場合は持ち去られる水分量が減少するためである。

4.5. An ガス入口圧力の影響

Fig. 11 に An ガス入口圧力を変更したシミュレーション結果を示す。

An ガス入口圧力の変更による影響はほとんど見られない。しかし詳細の数値を確認すると、Fig. 4 で説明した CCM 内の水移動の原理から、An ガス入口圧力を増加させると An ガス水蒸気分圧が上昇するため、Ca ガス水蒸気分圧との差が減少する。その結果 Ca で発生した生成水の An 側への移動量が減少し、すべての Segment position においてセル面内 CCM 含水量が減少している。An ガス入口圧力を減少させると An ガス水蒸気分圧が減少するため、Ca

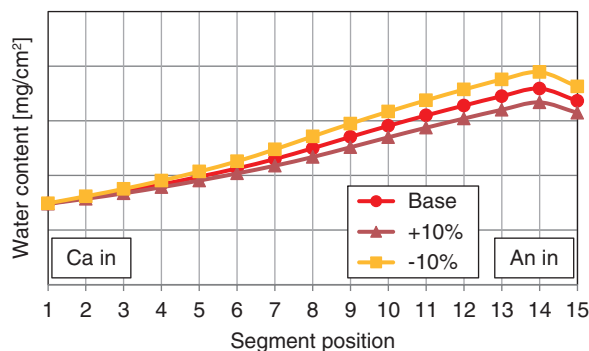


Fig. 10 Simulation results with change in Ca gas inlet flow rate

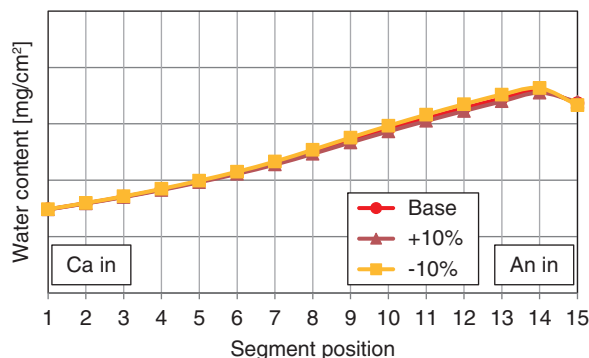


Fig. 11 Simulation results with change in An gas inlet pressure

ス水蒸気分圧との差異が増加し、Ca で発生した生成水の An 側への移動量が増加し、すべての Segment position においてセル面内 CCM 含水量が増加している。

4.6. Ca ガス入口圧力の影響

Fig. 12 に Ca ガス入口圧力を変更したシミュレーション結果を示す。

セル面内 CCM 含水量分布が大きく変化していることがわかる。4.5. 節の CCM 内水移動の原理と同様に Ca ガス入口圧力を上げると Ca ガス水蒸気分圧が上昇するため、An ガス水蒸気分圧との差が増加し、Ca で発生した生成水の An 側への移動量が増加し、セル面内 CCM 含水量が増加している。Ca ガス入口圧力を減少させると Ca ガス水蒸気分圧が減少するため、An ガス水蒸気分圧との差異が減少し、Ca で発生した生成水の An 側への移動量が減少し、セル面内 CCM 含水量が減少している。

4.7. 運転条件パラメータの感度

まえがきに述べたようにセル面内 CCM 含水量分布は、適切な範囲内に収めなければならない。そこで Fig. 7 から Fig. 12 に示した結果をふまえ、各パラメータを 10% 増加させた際のセル面内の最大 CCM 含水量と最小 CCM 含水量の変化率を Fig. 13(a) に、10% 減少させた際の変化率を Fig. 13(b) に示す。

Fig. 13(a), (b) どちらのグラフも冷媒入口温度に対する変化割合が最も大きく、セル面内の最小 CCM 含水量、最大 CCM 含水量が 20% 以上変化している。次に変化割合が大きいのが Ca ガス入口圧力となり、セル面内の最低 CCM 含水量は 5% から 10% 程度、セル面内の最大 CCM 含水量は 10% 程度変化している。3 番目に変化割合が大きいのが、Ca ガス入口流量となり、セル面内の最低 CCM 含水量の変化は少ないもののセル面内の最大 CCM 含水量が 5% 程度変化している。

以上の結果をまとめると、冷媒入口温度もしくは Ca ガス入口圧力でセル面内の最低 CCM 含水量をコントロールできる。次にセル面内の最大 CCM 含水量を冷媒入口温度

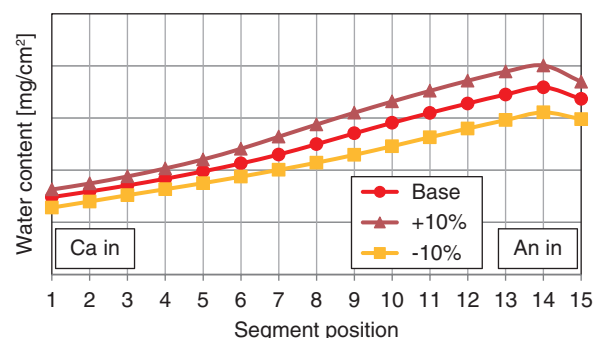


Fig. 12 Simulation results with change in Ca gas inlet pressure

もしくは Ca ガス入口圧力をメインパラメータとし, Ca ガス入口流量を次のパラメータとすることによりセル面内の CCM 含水量分布をコントロールすることができることを示している。

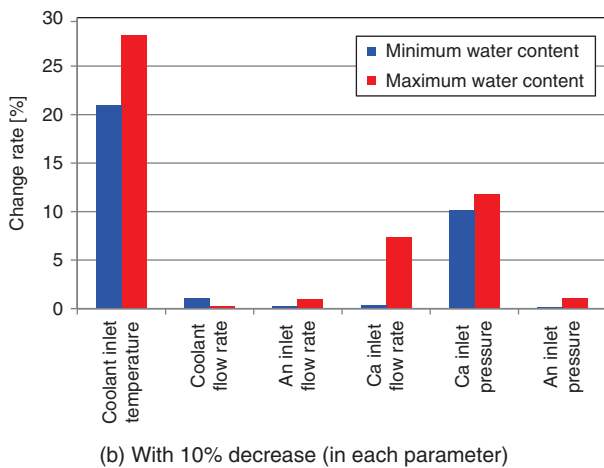
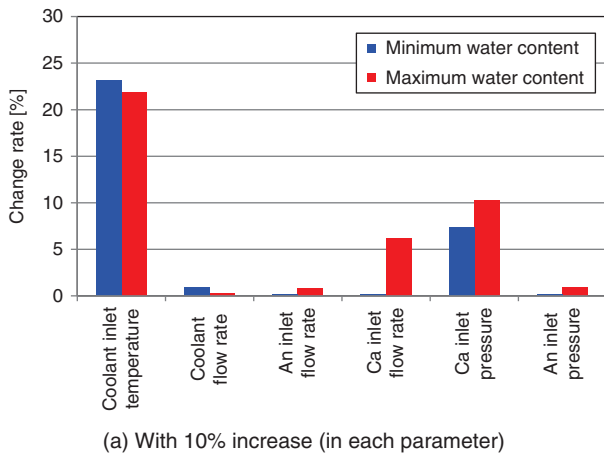


Fig. 13 Rate of change of maximum and minimum water content for individual operating condition

5. スタックへの適用

前述の検討結果を用い, 2016 年モデル FCV 用スタックの運転条件に適用した際のセル面内 CCM 含水量分布の結果を Fig. 14 に示す. 図中の Upper limit, Lower limit はスタックの耐久性確保に必要なセル面内 CCM 含水量の上限値と下限値をあらわす。

従来の運転条件でのセル面内 CCM 含水量分布 (図中の●印) は, セル面内 CCM 含水量上限値を超えており, これではスタックの耐久性を確保できない。

これに対して含水量を考慮し, シミュレーションによって決定した運転条件でのセル面内 CCM 含水量分布 (図中の■印) は, 冷媒入口温度を上げることでセル面内全体の CCM 含水量を低下させ, さらに Ca ガスの流量を上げることでセル面内最大 CCM 含水量を下げ, 上限値, 下限値内に収めることに成功している。

また, 図中の◆印はスタックでのセル面内 CCM 含水量分布の測定結果を示している. シミュレーション結果 (図中の■印) とスタックの測定結果 (図中の◆印) を比較すると, 両者はよく一致しており, 本シミュレーションは高精度の高いものであることが再確認できる。

Fig. 15(a) は, セル面内 CCM 含水量分布を表すための指標を模式的に示したものである。

指標はセル面内 CCM 含水量の最大値と平均値の差 (図中の Maximum-average), セル面内 CCM 含水量の平均値と最小値の差 (図中の Average-minimum) の二つを設定し,

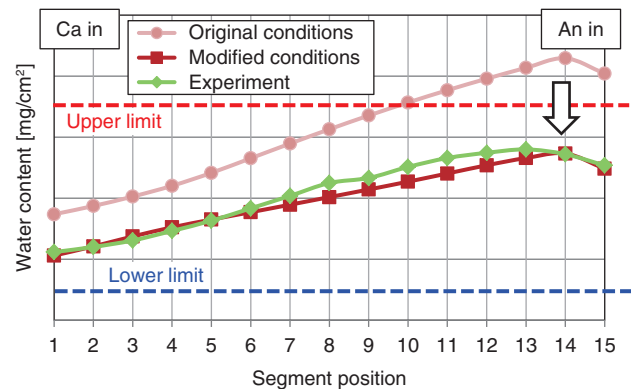
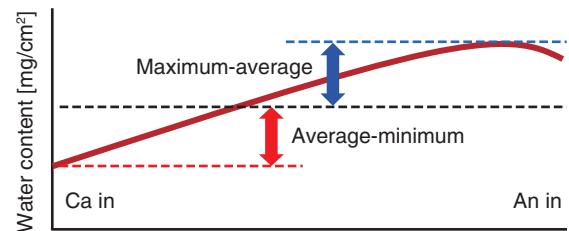
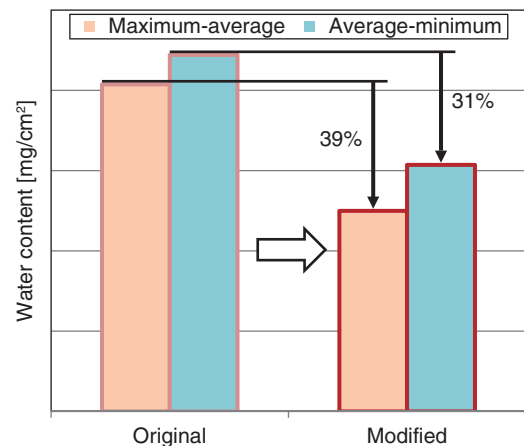


Fig. 14 Original and enhanced water content distribution



(a) Schematic image of maximum-average and average-minimum



(b) Maximum-average and average-minimum water content change for original and modified operating conditions

Fig. 15 Enhancement of water content distribution

両者とも数値が小さいほどセル面内 CCM 含水量分布が改善していることを示す。

Fig. 15(b) は、運転条件の改良前後のセル面内 CCM 含水量分布を上記指標で示したものである。

改良後の運転条件では、セル面内 CCM 含水量の最大値と平均値の差 (図中の Maximum-average) で 39%, セル面内 CCM 含水量の平均値と最小値の差 (図中の Average-minimum) で 31% 含水量分布が改善しており、セル面内 CCM 含水量分布を上下限值内に収めると同時に含水量分布ばらつきも低減させることができた⁽⁴⁾。

また、これまで試験により数週間を要して運転条件を決定していたが、本シミュレーションを用いることにより、数日で決定することができるようになった。

6. まとめ

セル面内 CCM 含水分布シミュレーションを構築し、そのシミュレーションを用いて以下の結果を得た。

- (1) 2016 年モデル FCV 用のスタック構造でシミュレーションを実施し、セル面内 CCM 含水量分布について、センサシステムの測定結果とシミュレーション結果を比較した。その結果、シミュレーションの予測精度は 5.0% 以内であることが確認できた。
- (2) 運転条件の各パラメータがセル面内 CCM 含水量分布に与える影響度を事前に検討した。その結果、セル面内最低 CCM 含水量を冷媒入口温度もしくは Ca ガス入口圧力でコントロールできることを見出した。さらにセル面内最大 CCM 含水量は冷媒入口温度もしくは Ca ガス入口圧力をメインパラメータとし、次に Ca ガス入口流量をパラメータとすることによりセル面内 CCM 含水量分布をコントロールすることができることを見出した。
- (3) 構築したシミュレーションとセル面内 CCM 含水量分布をコントロールできる冷媒入口温度、Ca ガス入口圧力、Ca ガス入口流量を用いることで、セル面内 CCM 含水量分布を上下限值内に収め、セル面内 CCM 含水量分布のばらつきを低減させた。そしてまた数日で精度の良い運転条件をスタックに適用することができた。

参考文献

- (1) 斉藤信広, 菊池英明, 中尾靖宏: FCX クラリティ搭載の新燃料電池スタック, Honda R&D Technical Review, Vol.21, No.1, p.15-22
- (2) 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, p.84-113, (2010)
- (3) 佐藤雅彦, 千葉裕人, 井ノ上雅次郎: 燃料電池スタック

におけるセル面内 CCM 含水量分布計測システムの開発, Honda R&D Technical Review, Vol.28, No.1, p.15-23

- (4) 岩成亨, 宮島一嘉, 古澤宏一郎, 井ノ上雅次郎: 実車搭載発電システムにおける燃料電池スタックセル面内 CCM 含水量のリアルタイム計測, Honda R&D Technical Review, Vol.28, No.1, p.31-36
- (5) Yoneda, M., Tago, Y., Suzuki, K., Takimoto, M., Ejiri, E.: Macroscopic Modeling and Simulation for Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cells, ECS Transactions, 11-1, p.1105-1114, (2006)
- (6) 木村顕一郎, 河崎輝明, 大村孝之, 渥美淑弘, 清水潔: 新型燃料電池自動車 CLARITY FUEL CELL の開発, Honda R&D Technical Review, Vol.28, No.1, p.1-7

■ 著 者 ■



南雲 健司



井ノ上雅次郎