

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

Real-time Measurement of Water Content of CCM in On-board Fuel Cell Stack System

岩 成 亨*

Toru IWANARI

古 澤 宏一朗*

Koichiro FURUSAWA

宮 島 一 嘉*

Kazuyoshi MIYAJIMA

井ノ上 雅次郎*

Masajiro INOUE

要 旨

燃料電池スタックの耐久性向上のために、スタックインピーダンスを用いてセル面内 catalyst coated membrane (CCM) 含水量を適正な範囲とする制御をおこなっている。

本稿では、セル面内 CCM 含水量を明確にするため、含水量分布計測システムを用い、実車搭載発電システムにおける燃料電池スタックのセル面内含水量をリアルタイムに計測した。これにより、定電流発電はもちろんのこと過渡電流発電においてもセル面内 CCM 含水量を把握することが可能となった。この結果、2016 年モデルの FCV に適用しているセル面内 CCM 含水量制御の有効性を確認することができた。また、セル面内 CCM 含水量制御の最適化により、燃料電池スタックのさらなる耐久性向上に繋がった。

ABSTRACT

In order to increase the durability of fuel cell stacks, the in-plane water content of the catalyst-coated membranes (CCM) in the cells is controlled within the proper range using stack impedance.

Setting out to elucidate the status of the in-plane water content of the CCM, the research discussed in this paper employed a water content distribution measurement system to conduct real-time measurements of the in-plane water content of the cells in a fuel cell stack forming part of an on-board generation system. The use of the system makes it possible to determine the in-plane water content of the CCM during both constant current generation and transient current generation. The results of this study verified the effectiveness of the in-plane CCM water content control employed in the 2016 model FCV. In addition, optimization of the control of in-plane water content of the CCM has also had an effect in further increasing the durability of the fuel cell stacks.

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。

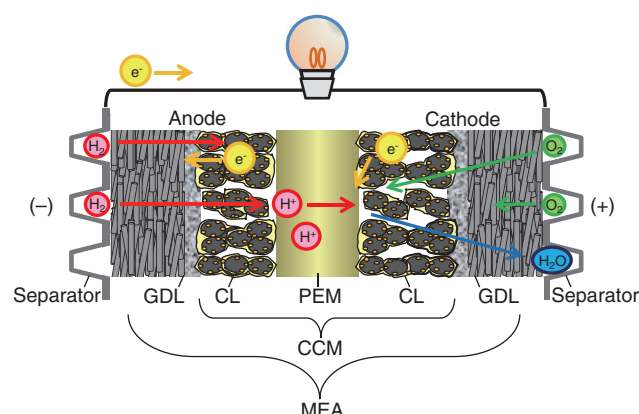
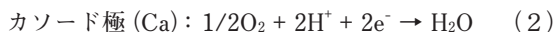


Fig. 1 Schematic image of fuel cell

* 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含水量を適正な範囲に制御する必要がある。

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⁽⁴⁾による最適なセル面内CCM含水量分布の算出をおこない、スタックの耐久性向上を目指した。

本稿では、構築したインピーダンスによる含水量分布計測システム (impedance distribution measurement system: IDMS) を用い、台上にて実車搭載発電システム内の燃料電池スタックのセル面内CCM含水量分布をリアルタイムに計測し、そのセル面内CCM含水量が適正な範囲内に収まっているか検証し、実車搭載発電システムの制御方法へ反映することを目的とした。

3. 計測の必要性

セル面内CCM含水量分布は、スタックへの投入ガスの流量や圧力、スタックの温度、発電電流等の作動条件の瞬時的な変化により、さまざまに変化する。しかし、燃料電池の耐久性を向上させるためにセル面内CCM含水量は常に上下限範囲内に維持させる必要がある。セル面内CCM含水量範囲の上下限値はFig. 2に示すCCM単体耐久テストの結果から設定した。

実車搭載発電システムでは、Fig. 3に示すセル面内CCM含水量とスタックインピーダンスの特性を基に測定したスタックインピーダンスを用いて、セル面内CCM含水量を

上下限範囲内に制御している。

セル面内CCM含水量に影響を与える要因はさまざまあるが、2016年モデル実車搭載発電システムでは、スタックに導入される空気に加湿量を制御する手法を採用した。加湿器と並列に設置してある加湿器バイパスのコントロールバルブによって加湿器を通る空気流量を調整することで、セル面内CCM含水量を制御することが可能となる (Fig. 4)。

スタックインピーダンスの制御範囲 (Fig. 3中のTarget impedance) はセル面内CCM含水量の偏在 (Fig. 3中のDistribution of water content) や計測誤差によって影響を受ける。セル面内CCM含水量の偏在は定電流発電のシミュレーションによって最適化され、スタックインピーダンスの制御範囲の拡大に繋がっている。

しかしながら、スタックインピーダンスの制御範囲はセル面内CCM含水量の偏在を考慮しているものの、定常電流発電時の計算モデルを使用した予測である。そのため、実車搭載発電システムでの過渡電流発電において、セル面内CCM含水量が上下限範囲内に収まっているか検証する必要がある。

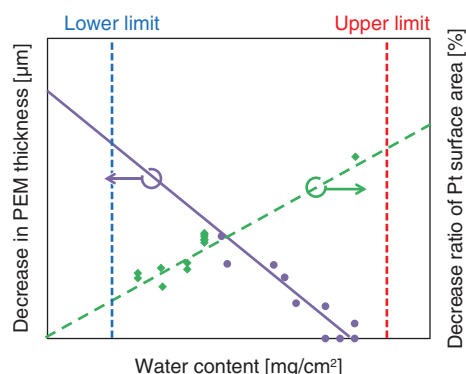


Fig. 2 Upper and lower limits for water content to maintain PEM thickness and Pt surface area

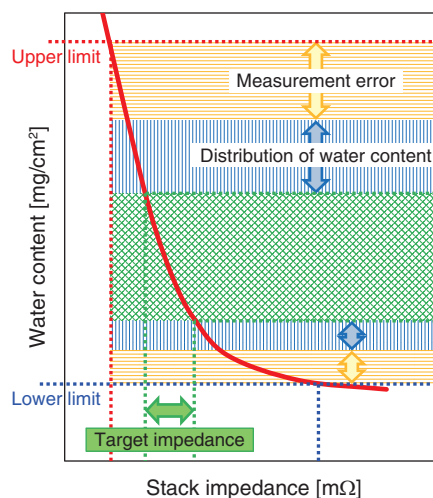


Fig. 3 Relationship between stack impedance and water content

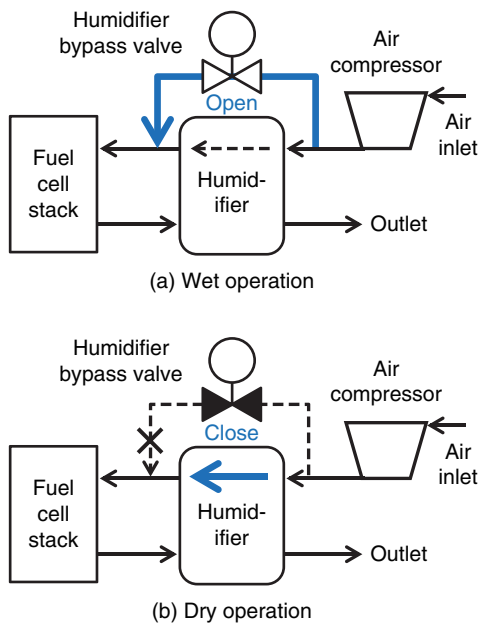


Fig. 4 Schematic image of humidity control of supplied air

4. 従来計測手法の課題

従来、セル面内 CCM 含水量分布を計測する手法としては重量測定法 (Fig. 5) や核磁気共鳴 (NMR)⁽⁵⁾ を利用した測定法などがある。

重量測定法は含水している物としていない物の重量差を含水量とする測定法である。この測定法ではセル面内 CCM 含水量を測定したい作動条件で燃料電池を一定時間発電させ、その後、構成部材を分解する。そして CCM を所定の分割数に裁断し、水分が蒸発しない袋へ取り分け、重量を測定する。その後乾燥させ、再度重量を測定する。そ

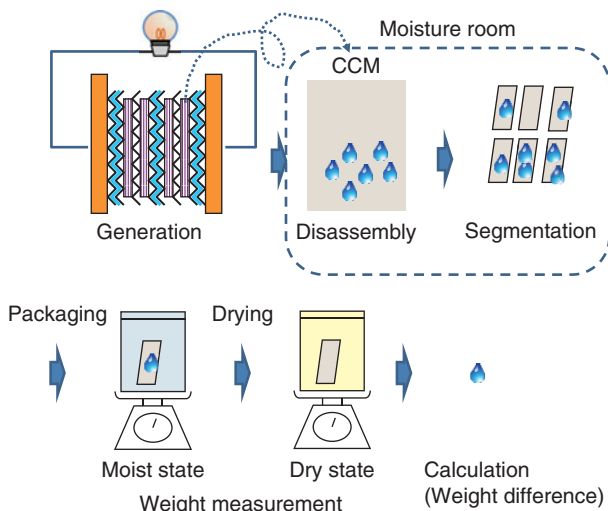


Fig. 5 Dry weight method for measurement of water content of CCM

の重量差がセル面内 CCM 含水量となる。分解、裁断の際は水分の蒸発を考慮して、高湿環境で素早く作業しなければならない。また、一定の発電状態のセル面内 CCM 含水量だけしか測定できないため、条件ごとに反復測定しなければならないことや、過渡的な条件では測定できないという課題があった。

NMR 法は、磁場中に置かれた試料に高周波磁場を照射して核スピンを共鳴させ、放出される NMR 信号を受信して原子状態を計測することで、CCM 内の局所水分量をリアルタイムに計測できる手法である。この手法では強力な磁場中にスタックおよび実車搭載発電システムをさらす必要があり、計測設備の大型化やシステムの誤動作が課題となる。

5. 課題解決手法

Fig. 6 に示すようにセル面内 CCM 含水量を計測するため、台上の実車搭載発電システムのスタックにインピーダンスによるセル面内の含水量分布計測システム (IDMS) を導入した。計測するための重畳された電流は、センサの分割された電極パッド [Fig. 6(b) の Terminal pad] 中のシャント抵抗を介して電圧信号 (V_2) として計測される。また同時にセルの電圧信号 (V_1) も計測される [Fig. 6(c)]。これらよりインピーダンスが計算され、セル面内 CCM 含水量が算出される。このセル面内 CCM 含水量が定電流発電および過渡電流発電において、セル面内 CCM 含水量が上下限範囲内に収まっているか検証する。本測定に際しては、高電圧かつ高周波環境であるので、機器の絶縁およびノイズ対策に十分留意した。

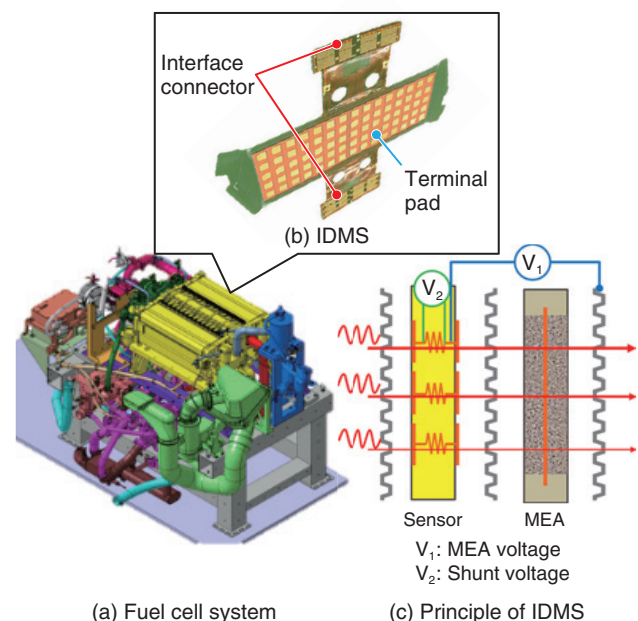


Fig. 6 Fuel cell system with IDMS for bench use

6. 台上試験結果

6.1. 定速走行モード

まず定速走行モード（定電流発電）においてセル面内 CCM 含水量が上下限範囲内に収まっていることを検証した。

Fig. 7 に電流域ごとのセル面内 CCM 含水量分布の結果を示す。Fig. 7 (a) のように低電流域ではカソード側で生成された水が出口側 (Ca OUT) に向かって流れて集まるため、出口側ほどセル面内 CCM 含水量が高くなることから、そのため、カソード入口側 (Ca IN) のセル面内 CCM 含水量が下限を下回る可能性がある。Fig. 8 に示すようにカソード出口側 (Ca OUT) で若干セル面内 CCM 含水量が減っているのは、水分がセル面内 CCM を介し対向して流れるアノード側へ移動したためと考える。一方、高電流域ではセル面内 CCM 含水量が大きい領域がカソード入口側 (Ca IN) へシフトしてくる。これは、電流増加に伴って発電

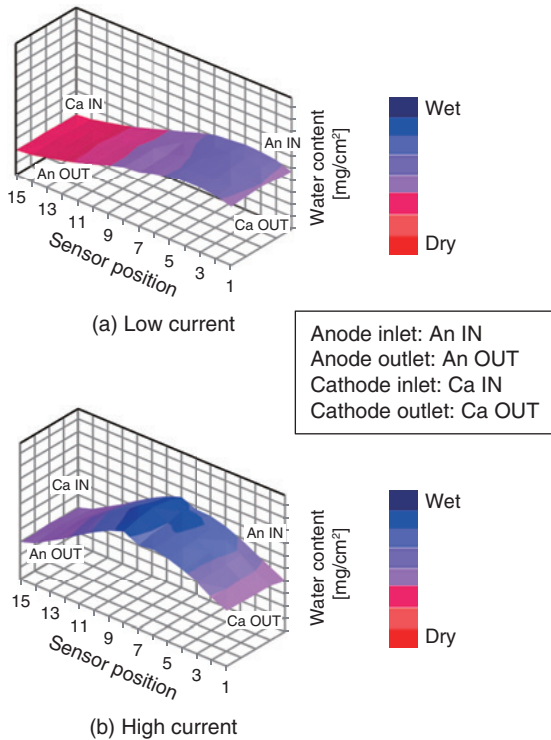


Fig. 7 Water content distribution under conditions of constant current generation

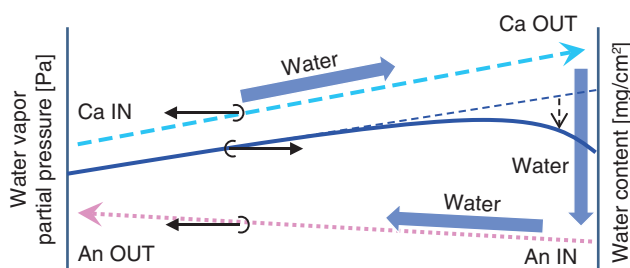


Fig. 8 Schematic image of movement of water in CCM

エリアが酸素濃度の高いカソード入口側 (Ca IN) へシフトするためと考える。発電による生成水が多くなるため、中央部のセル面内 CCM 含水量が上限を上回る可能性がある。

Fig. 9 に、電流域ごとのセル面内 CCM 含水量の結果を示す。このように、スタックインピーダンス値は上下限範囲内に収まっており正しく制御できていることが確認できた。また低電流域でのカソード入口側のセル面内 CCM 含水量下限や高電流域での中央部のセル面内 CCM 含水量上限においては、セル面内 CCM 含水量も上下限範囲内に収まっていることを確認した。

6.2. スタック評価走行モード

次に開発時に使用したスタック評価走行モード（過渡電流発電）とスタックインピーダンス値の模式図を Fig. 10 に示す。含水量分布計測システムによって、モード走行中のセル面内 CCM 含水量分布をリアルタイムに計測することができた。

モード走行中にはセル面内 CCM 含水量が大きく変化する。セル面内 CCM 含水量が増加する（インピーダンス値は低くなる）場面は、加速時に発生する。一方、セル面内 CCM 含水量が低下する（インピーダンス値は高くなる）場面は、減速時と、アイドリング時に発生する。そこで、セル

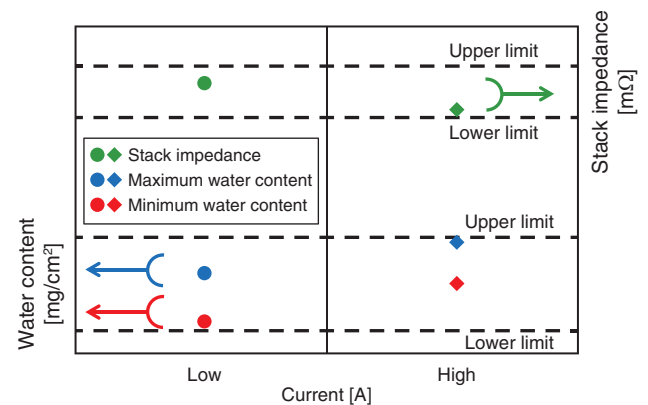


Fig. 9 Results for water content under conditions of constant current generation

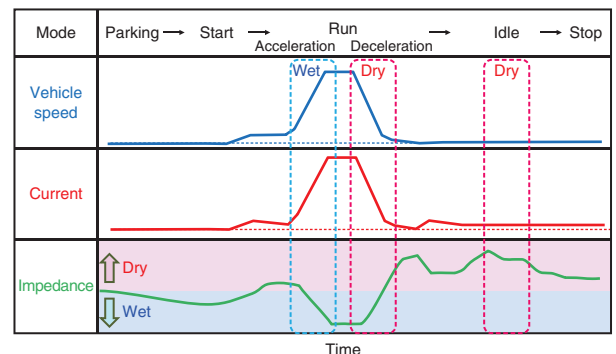


Fig. 10 Schematic image of evaluation running mode for fuel cell vehicle

面内 CCM 含水量が全ての部位で上下限範囲内に収まっているか検証をおこなった。以下に各モードでの検証結果について述べる。

6.2.1. 加減速時

Fig. 11 に加減速時のセル面内 CCM 含水量の最大値、最小値の時系列データを示す。また、Fig. 12(a) に加速時のセル面内 CCM 含水量が最大となる長辺方向のセル面内 CCM 含水量分布の測定結果を示す。図中の青点と赤点はセル面内 CCM 含水量の短辺方向の最大値と最小値である。このように加速時のセル面内 CCM 含水量は定速走行時の高電流域 [Fig. 7(b)] と同様にガス流れ方向のセル中央で最も高い値を示しているが、セル面内 CCM 含水量は上限値以下に収まっていることが確認できた。

次に Fig. 12(b) に減速時のセル面内 CCM 含水量が最小となるセル面内 CCM 含水量分布の測定結果を示す。加速から減速に移った時は、カソード入口のセル面内 CCM 含水量が下限付近まで低下していることがわかる。Fig. 12(a) のような高電流では、発電生成水量が多いためセル面内 CCM 含水量も多くなるが、減速時になると発電生成水量が電流に応じて減少する。さらに直前的高電流発電によりスタックの温度が高いためガスの飽和水蒸気量が高くなり、スタック外へ排出される水分が増加する。それに加え、減速時の空気流量が供給量制御の応答遅れにより過多となる。それら相乗効果によって、カソード入口付近のセル面内 CCM 含水量が低下すると考える。しかし、今回の減速時のセル面内 CCM 含水量は上下限範囲内に収まっていることが確認できた。

6.2.2. アイドリング時

次にアイドリング時のセル面内 CCM 含水量の測定結果を Fig. 13, 14 に示す。カソード入口のセル面内 CCM 含水量が時間とともに少なくなり、しばらくすると下限値を下回っていることがわかる。これは、発電生成水が少ないアイドリング時にスタックのインピーダンスが制御範囲内に収まっているにも関わらず、乾燥した空気がスタックに

入り、カソード入口付近のセル面内 CCM 含水量が想定以上に低下したためである。

そこで今回対策として、アイドリング時の発電生成水の少ない状況においては、導入する空気全量の調整に加えて加湿器に通す空気割合を増やすことにより、カソード入口部のセル面内 CCM 含水量を上げた。

この結果、Fig. 15 に示すようにカソード入口部のセル面内 CCM 含水量が下限を下回ることがなくなり、制御変更による効果が確認された。

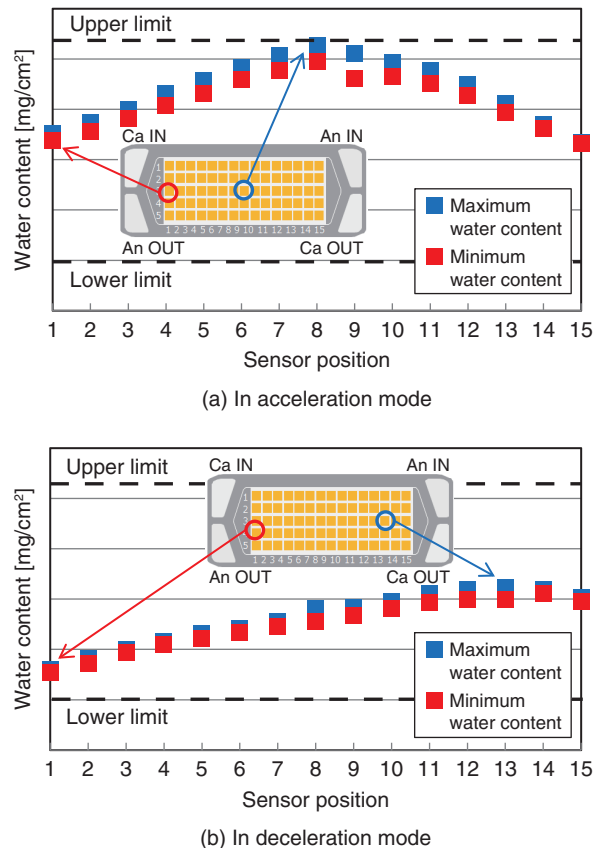


Fig. 12 Results for water content distribution in acceleration mode and deceleration mode

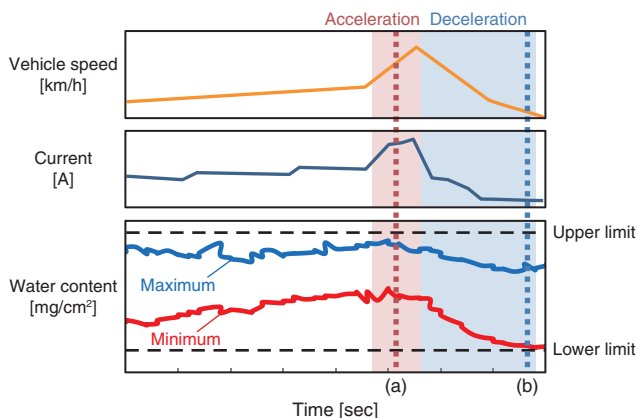


Fig. 11 Time-series results for water content in acceleration mode and deceleration mode

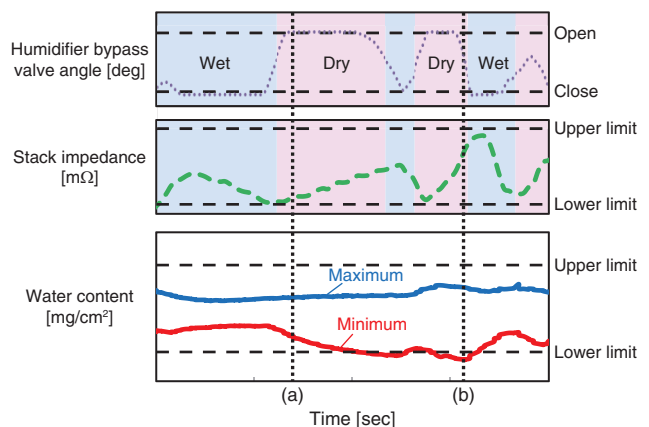


Fig. 13 Time-series results for water content in idling mode

以上、実車搭載発電システムにおけるセル面内の CCM 含水量分布をリアルタイムに計測することによって、スタック評価走行モードにおいても上下限範囲内のセル面内 CCM 含水量に制御されていることを確認することができた。

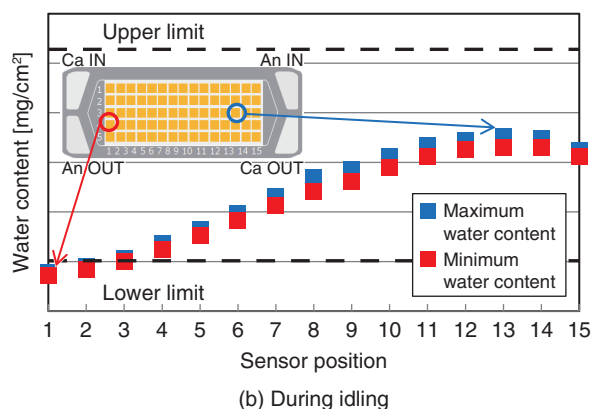
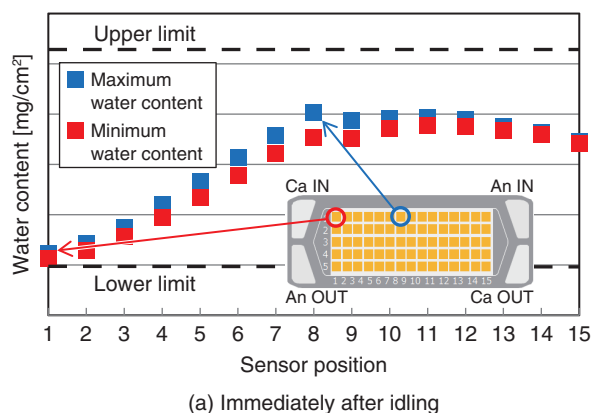


Fig. 14 Results for water content distribution in idling mode

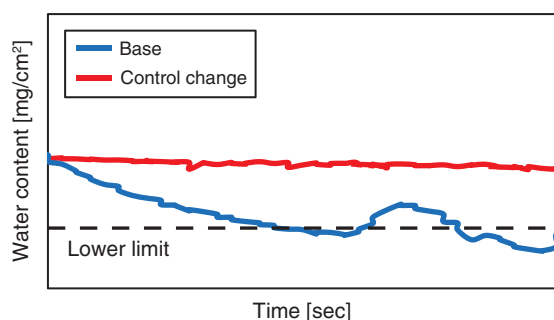


Fig. 15 Effect of change in control on water content at cathode inlet

7. まとめ

2016 年モデル FCV 搭載発電システムにおけるセル面内 CCM 含水量制御の確認をおこない、以下の結果を得た。

- (1) 定電流発電において、スタックインピーダンス制御によりセル面内 CCM 含水量が上下限範囲内に収まって

いることを確認できた。

- (2) 過渡電流発電である加減速時において、セル面内 CCM 含水量が上下限範囲内に収まっていることを確認できた。

- (3) アイドリング時においても、セル面内 CCM 含水量が下限値を下回る課題の抽出とその対策効果の確認ができた。

以上より、スタックインピーダンスを用いたセル面内 CCM 含水量制御の有効性が確認できた。また、制御の最適化により燃料電池スタックのさらなる耐久性向上に繋がった。

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) 南雲健司, 井ノ上雅次郎: 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, Honda R&D Technical Review, Vol.28, No.1, p.24-30
- (5) 横内康夫, 小川邦康, 拝師智之, 伊藤衡平: NMR センサーによる PEM 内含水量と燃料電池発電電流の空間分布および時間変化の計測, 日本伝熱シンポジウム講演論文集 2010, A213, (2010)

著者



岩成 亨



宮島 一嘉



古澤 宏一朗



井ノ上 雅次郎