

ガウス過程回帰モデルを用いた 燃料電池スタック出力予測モデル

Fuel Cell Stack Power Prediction Model Using Gaussian Process Regression Model

小林 諒¹
Ryo KOBAYASHI

古澤 宏一郎¹
Koichiro FURUSAWA

梅澤 健輔¹
Kensuke UMEZAWA

要 旨

燃料電池スタックの各制御パラメータを考慮したスタック出力予測モデルは、実車相当のシステムにて各補器の制御を最適化設計する上で不可欠である。しかしながら、スタック出力を定量的に予測するモデルの構築には燃料電池内部の材料や構造に関する多くのデータを要する上に、内部の現象も複雑なため大規模なモデル化が必要となる。本研究では実験計画法の一つである空間充填法を用いて、効率的にデータを取得した。取得したデータをもとにガウス過程回帰を用いることで、スタック性能およびスタック各部の温度や圧力を短い計算時間で予測できるモデルを作成した。さらにこのモデルを使ってスタック出力の最大化する運転条件を計算で求め、試験によって検証することで、限られた試験データからスタックの性能検討に使える出力予測モデルが得られることを明らかにした。

ABSTRACT

A fuel cell stack power prediction model that takes into consideration the various stack control parameters is important in the optimization design of the controls for each item of auxiliary equipment in a system equivalent to that of an actual vehicle. However, creating a model for quantitative prediction of stack power requires large amounts of data concerning the materials and structure inside the fuel cell. Moreover, since the internal phenomena are complex, large-scale modeling is necessary. For this research, a design of experiment method known as the space filling technique was used to acquire data efficiently. With the acquired data as a basis, the use of Gaussian process regression made it possible to create a model capable of predicting stack performance as well as the temperature and pressure in the various parts of the stack in a short computation time. It was also made clear that this model could be used to calculate operating conditions that would maximize stack power, and verification by testing showed that it would be possible to obtain a power prediction model that could be used to investigate stack performance from a limited amount of test data.

1. 序論

1.1. 背景

水素 (H_2) を燃料とし化学エネルギーを直接電気エネルギーへと変換する固体高分子型燃料電池 (Fuel Cell: FC) は、内燃機関に対してエネルギー効率がよく、また運転中の排出物が水のみであることから環境負荷が低い発電デバイスとして、乗用車やトラック、工場用のバックアップ電源など、多岐にわたった活用が期待されている⁽¹⁾。特に自動車業界においては各国の法規制に伴う電動化によって、環境負荷の低い FC 自動車の開発が進んでいる。しかしながら、FC 自動車の普及率は低く、理由としてインフラ整備

が十分でないことや FC スタックのコストが高いことが挙げられる^{(2), (3)}。FC スタックの低コスト化には限られた触媒量および電極面積にて必要な出力や耐久性を達成することが必要である⁽³⁾。よって、材料の開発や出力の向上を目的とした制御最適化などが必要とされる。

発電環境下でのガス、温度および発電により生成される水に応じて FC スタック内での電流分布や電気化学反応の活性が変化し、結果としてスタック性能が変化するため、制御に対するスタック性能予測を目的としてスタック内環境を数理モデリングにて再現する研究が複数おこなわれている^{(4), (5)}。FC スタックの数理モデリングをおこなう場合、それぞれの複数のパラメータが互いに影響しあうた

¹ 先進パワーユニット・エネルギー研究所
E-mail: ryo_01_kobayashi@jp.honda

Table 1 Definition of input and output parameters

	Anode				Cathode			Coolant			Electrical
Input parameter	Flow rate (An_Q)	Relative humidity (An_RH)	Pressure (An_P)	N ₂ concentration (An_N2)	Flow rate (Ca_Q)	Pressure (Ca_P)	Relative humidity (Ca_RH)	Flow rate (Co_Q)	Pressure (Co_P)	Temperature (Co_T)	Current density (CD)
Output parameter	Differential pressure (An_dP)				Differential pressure (Ca_dP)			Outlet pressure		Outlet temperature	Power

め、モデリングは複雑なものとなる。さらに物理現象に応じた各理論式の理解や各種材料の物性値などが必要となる⁽⁶⁾。よって、材料やFC構造を変更するたびに複数のパラメータ取得のために正確な計測や係数のフィッティングが必要となる。

他のモデリング手法として、人工知能技術の発展に伴い、機械学習を用いたモデリングの研究が増加している⁽⁷⁾。機械学習によるFCスタック性能モデリングの利点として、複雑なスタック内部の流体や水の状態をシミュレーションすることなくモデリングが可能なが挙げられる。

教師有り学習は機械学習の一種であり、計測データの特徴量に対して適切に入力と出力のラベリングをすることでデータを学習し、モデル作成をおこなう。教師有り学習の機械学習の一種である人工ニューラルネットワークを用いたスタック出力予測モデルの精度は高く、定量的な性能予測が可能である^{(8), (9)}。しかし、人工ニューラルネットワークを用いた性能予測モデル作成には、大量の計測データが必要である。また、参考文献^{(8), (9)}ではいずれも説明変数が5個程度であり、説明変数の分布も変数ごとに3水準程度と限られているため、スタック出力を精度良く予測可能な範囲も限られる。そこで、本研究では実験計画法 (Design of Experiment: DoE) によって効率的に取得した計測データからガウス過程回帰⁽¹⁰⁾を用いて入口制御パ

ラメータとなる11変数に対するFCスタックの出力および差圧、出口温度についての予測モデルを作成した。作成したスタック出力予測モデルにて出力向上を目的とした制御パラメータ変数の全体最適化をおこない、スタック出力が向上することを実機にて検証した。少ないトレーニングデータを用いたガウス過程回帰によるスタック出力予測モデルは出力向上のための制御検討に活用できることを明らかにした。

1.2. スタックモデル化の概要

本研究にてガウス過程回帰モデル作成にあたり評価したスタックの概要を Fig. 1 に示す。

まず効率的に機械学習用のトレーニングデータを取得するため、DoE である空間充填法⁽¹¹⁾を用いて、実験条件を定めた。また、全自動で実験およびデータ前処理が実施できる装置を構築した。これはFCスタックを装置に設置するだけで、実験条件作成・実験・実験データ取得・データ整理をおこなうものである。全自動評価システムで取得した実験データを用いて、FCスタックの機械学習統計モデルをガウス過程回帰で作成した。作成したモデルの入力および出力を Table 1 に示す。実験計画の立案およびガウス過程回帰モデルの作成には ETAS 社製の ETAS ASCMO を用いた。

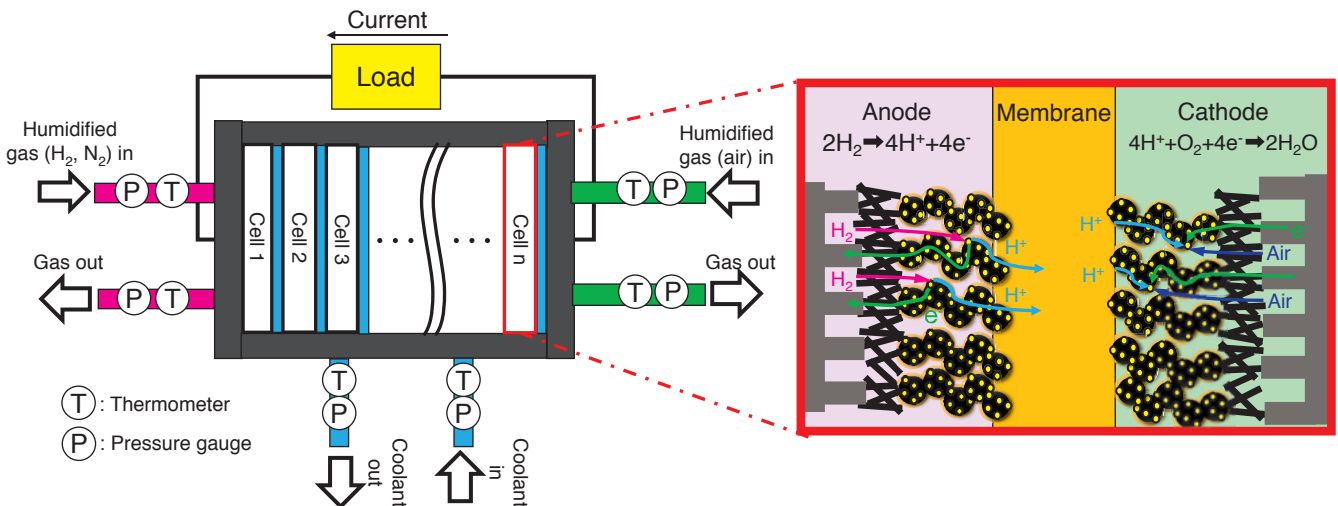


Fig. 1 Schematic image of stack

2. スタック性能評価

2.1. 実験条件の設定

DoE を用いて実験条件を設定する際に、11 制御パラメータの各上限値および下限値を設定する必要がある。上下限値の設定はスタック構成部材が破損に至らない範囲および評価装置の制御上下限の二つの観点に基づいて設定した。一例として、スタック保護の観点からスタック内のアノードとカソード間に差圧が発生する場合、ある差圧以上における構成部材保護のため⁽¹²⁾、アノードとカソード間の差圧には上限値を設定した。

2.2. 実験手順

実験を実施するにあたり 9 セルを積層したスタックを作製し、DoE に基づき各計測条件での評価をおこなうにあたり実験手順は Fig. 2 のように設定した。

アノード、カソードに H₂、窒素 (N₂) を供給し、スタックおよび加湿器の温度を調整した。次に、カソードに空気を導入し、アノードおよびカソードの背圧を調整した。この時、スタックが開回路電圧の 1 V 付近で保持されると、構成部材の劣化が進行するため、わずかに電圧が低下した状態となるように電流値を設定した。

電流が設定値に達するまで 1 A/sec で発電し、30 min 間電流を保持、最後の 1 min の平均値を目的計測条件でのスタック出力性能とした。計測後は、再度カソードに N₂ を導入してスタック電圧を下げ、温度調整および H₂、N₂ 供給下での排水処理をおこなった。

2.3. 全自動評価システム

上記の条件と手順にて実験をおこないガウス過程回帰モデル作成用のデータを整理するために、自動評価が可能なシステムを構築した。概要を Fig. 3 に示す。

全自動評価システムは大きく実験制御部・実験装置部・データ解析部の三つから構成される。実験制御部では ETAS 社製ソフトの ETAS ASCMO を用いて作成した実験計画法を基に 11 変数を用いて装置制御用ファイルを作成し、実験装置制御用に変換した制御プロファイルを送信する。実験装置部では 11 変数に関連する制御パラメータ

部分のみが異なる制御プロファイルを基に前述した実験手順の制御をおこなう。各条件における実験データを各種計測器にて計測し、ロガーにて記録した。計測データはデータ解析部において自動的に整理され、Table 1 に基づいてラベリングされることで機械学習用のデータに加工された。作成されたデータセットを用いてガウス過程回帰モデルが作成された。本装置を全自動で動かすためのマネジメントシステムは ETAS 社の ETAS INCA-FLOW を用いた。

2.4. スタックのガウス過程回帰モデル

スタックのモデル化にはガウス過程回帰を用いた。ガウス過程回帰の特徴は非線形であり確率論を用いるため、モデル予測値が不確実性を持ち、予測値の確からしさを判別可能である⁽¹⁰⁾。

モデル化に使用しているガウス過程回帰による予測式を式 (1) に示す⁽¹³⁾。

$$y(\vec{x}) = \sum_{i=1}^N C_i \cdot e^{-\frac{1}{2} \sum_{l=1}^D \frac{(x_{i,l} - x_l)^2}{r_l^2}} \quad (1)$$

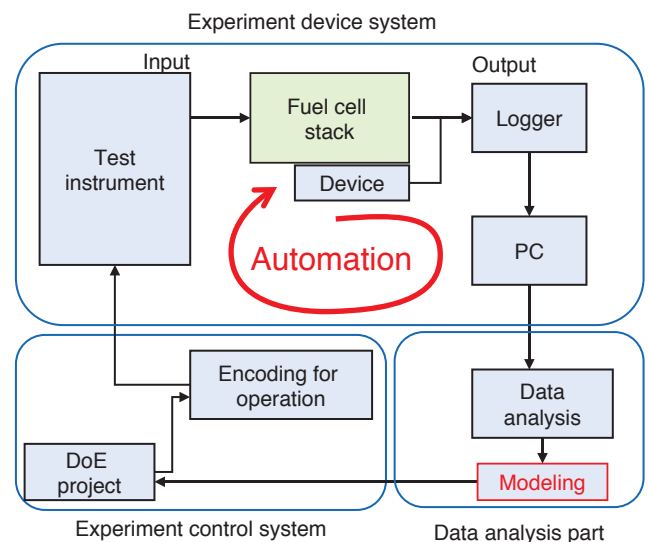


Fig. 3 Schematic image of automated test process

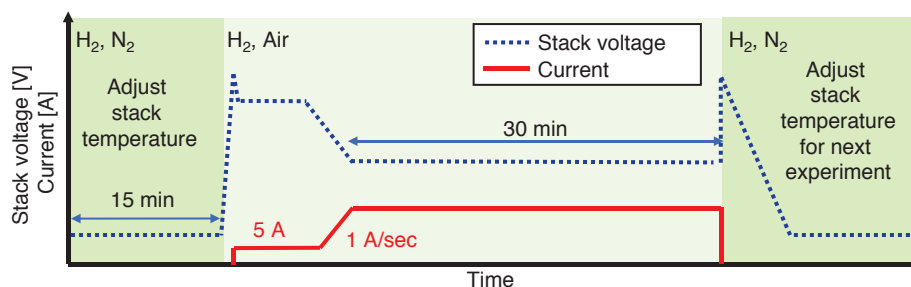


Fig. 2 Schematic image of experiment protocol

指数関数部分にガウスカーネル関数として一般的に使用されるARD二乗指数カーネルを用いている。 $\mathbf{x}$ は説明変数の入力ベクトル、 N はトレーニングデータ数、 C_i は i 番目のトレーニングデータにおける係数であり、ハイパーパラメータから求められる。 D は次元数、 $X_{i,j}$ はトレーニングデータの位置、 X_i は入力の値、 r_i は長さスケールである。この中で C_i および r_i がハイパーパラメータであり、ASCMOでは周辺尤度最適化アルゴリズムによってこれらのハイパーパラメータが決定される⁽¹⁴⁾。

空間充填法にて設定した実験条件の内、全自動評価システムにて取得した169条件のデータセットを基にガウス過程回帰モデルを作成した。Table 1にモデル化における各パラメータの定義(ラベリング)を示す。ここで N_2 濃度はアノード入口における供給ガス中の N_2 の割合、アノードおよびカソードの差圧はスタック入口と出口の圧力差である。出力のモデル化にあたりスタックの出力を9セルの合計から1セル相当に換算した。定義した11入力パラメータに対して、各出力項目をガウス過程回帰にてモデル化した。

作成したモデルの精度はLeave One Out法(LOO法)⁽¹⁵⁾を用いて評価した。LOO法で得られるモデル精度は決定係数 R^2 によって評価可能である。 R^2 が0.9以上であれば定量的な予測が可能、 R^2 が0.6以上であれば定性的な予測が可能なモデルが得られたと判断できる⁽¹⁵⁾。

3. 結果および考察

3.1. スタックモデル評価

Table 1の入力条件の定義に基づいてアノード差圧、カソード差圧、冷媒出口圧、冷媒出口温度、スタック出力をモデル化した。作成したモデルをLOO法で評価した結果をFig. 4に示す。モデル化には169点の計測データを用いた。スタック出力やスタックの各出口パラメータの予測精

度は $R^2 > 0.9$ を示しており、定常状態におけるスタック出力、カソード差圧、アノード差圧、冷媒出口温度および圧力について定量的に予測可能なモデルが得られた。

ガウス過程回帰モデルから、スタック出力に対する11変数の各寄与度を評価した。出力に最も寄与度が高い電流の寄与度を1とした時の他のパラメータの寄与度を相対的に示したものがFig. 5である。アノードの制御パラメータの寄与度は低く、カソードの制御パラメータの寄与度は高いことがわかる。FCの過電圧はアノードの水素酸化反応よりカソードの酸素還元反応に大きく依存するため⁽¹⁶⁾、本研究の出力予測モデルにおいてもスタックの特性を適切に抽出できていることがわかる。

Fig. 6に各標準条件において測定したスタックの分極曲線と各標準条件での制御パラメータを入力した際に出力予測モデルから予測された出力平均値を示す。ガウス過程回帰によって作成したモデルでは予測値の平均値と標準偏差 σ が得られる^{(10), (17)}。Fig. 6ではモデル予測平均値に対して $\pm 3\sigma$ の結果も示した。実際に計測したスタックの分極

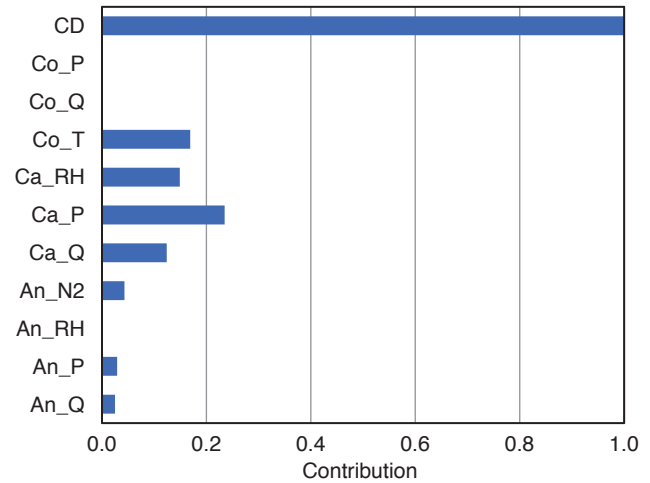


Fig. 5 Input relevance to stack power

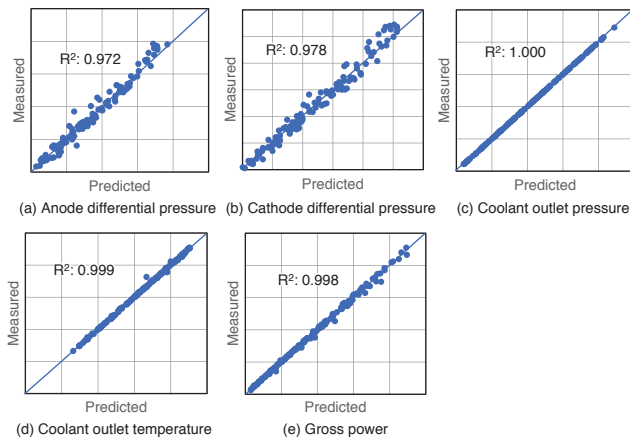


Fig. 4 Results of leave one out evaluation

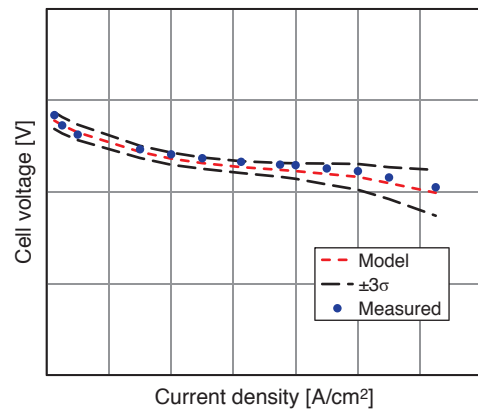


Fig. 6 Comparison of model prediction and measured data

曲線はモデル $\pm 3\sigma$ 以内に入っているため、各運転条件における出力を予測可能であることが示された。

Fig. 6において低電流密度に対して高電流密度では σ の広がり大きい。これは高負荷側の計測データ数が全計測データ中の約12%であり低負荷に対して学習データが少ないためである。

これまでは多元配置法⁽¹⁸⁾にて作成した実験計画のパラメトリックスタディの結果からスタック出力を予測していた。そのため、複数の変数が同時に変化した際には計測点が著しく増加するという課題があった。また11変数を多元配置法で評価し、予測精度の高いモデルを作成するには数万という実験が必要となる。本研究では実験計画に実験計画法である空間充填法を用いてガウス過程回帰によるモデリングをおこなうことで、評価点数を数百点に減らしながらも、相関のある11変数が同時に変化した際の各出力項目の予測が可能となることを明らかにした。

3.2. 出力予測モデルを使用した制御パラメータ検討による出力向上

スタック出力予測モデルを用いて、各制御パラメータを検討し、出力向上が可能であるか検証した。検証としてスタックの低電流密度および高電流密度における出力の最大化を目的とした制御パラメータの全体最適化を実施した。

Fig. 7に標準条件および最適化条件でのモデル予測出

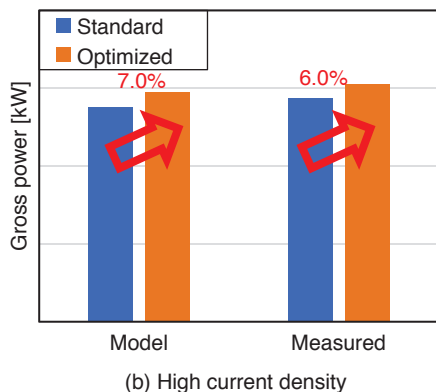
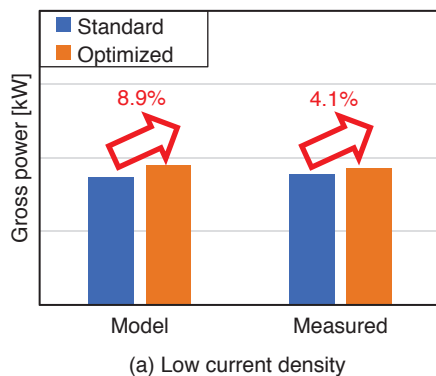


Fig. 7 Effect of optimized parameters on stack power

力平均値および実測の出力を示す。なお、実測ではモデル作成に用いたスタックと仕様は同じだが、異なる個体を用いた。

出力予測モデルから算出される出力予測平均値は、標準条件に対して制御変更をおこなうことで、低電流密度において8.9%、高電流密度で7.0%の出力向上が予想され、実測で4.1%、6.0%であった。よって、本研究にて作成した出力予測モデルを用いてスタック出力向上の検討が可能である。

Fig. 8に低電流密度および高電流密度において全体最適化した際の各制御パラメータを標準運転条件に対する比率として示した。最適化条件ではカソード圧力およびカソード流量を標準運転条件より高く設定しており、カソード過電圧の低減により出力が向上していると考えられる。一方で、アノードに関しては流量を下げ、 N_2 濃度を上げる条件となっているが、これはアノードの過電圧影響がほとんど出力性能に寄与しないためと考えられる。これらの制御パラメータの調整はFig. 5の結果や一般的なFCの特性⁽¹⁶⁾からも支持される。より精度のある出力予測モデルを作成するには11次元からなる空間の全体においてデータの密度を上げる必要があると考えられる。

本研究にて作成したスタック出力予測モデルを使用して、今後は補機なども組みあわせた実車相当のFCシステムの最適化をおこなっていく。

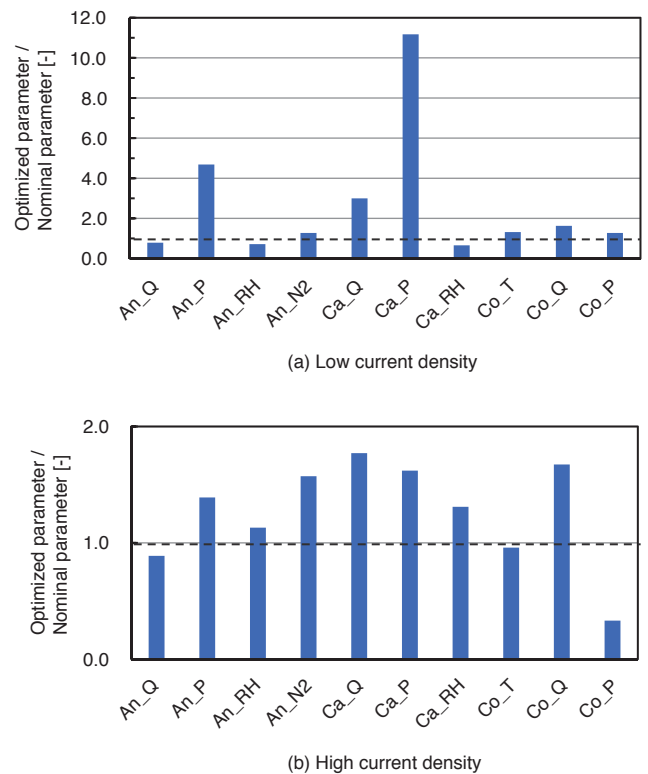


Fig. 8 Ratio of optimized parameter / nominal parameter

4. まとめ

本研究で得られた結果を下記に示す。

- (1) 空間充填法によってスタック性能評価点数を最小限にし、実験およびデータ解析を自動化したシステムにて取得した計測データを基にガウス過程回帰にて各出力項目をモデル化した。
- (2) ガウス過程回帰モデルを用いて、スタックの出力最大化を目的とした制御パラメータを最適化することで、スタック出力向上の検討が可能となった。

今後、本稿で示したモデルを用いて、システムレベルでの最適化をおこなっていく。

参考文献

- (1) https://www.meti.go.jp/committee/kenkyukai/energy/suiso_nenryodenchu/pdf/001_04_00.pdf
- (2) <https://fccj.jp/pdf/2020-PEFC-1.pdf>
- (3) <https://www.nedo.go.jp/content/100871976.pdf>
- (4) Wu, H.-W.: A review of recent development: Transport and performance modeling of PEM fuel cells, *Applied Energy*, Vol. 165, p. 81-106, (2016)
- (5) Siegel, C.: Review of computational heat and mass transfer modeling in polymer-electrolyte-membrane (PEM) fuel cells, *Energy*, Vol. 33, Issue 9, p. 1331-1352, (2008)
- (6) Salva, J. A., Iranzo, A., Rosa, F., Tapia, E.: Validation of cell voltage and water content in a PEM (polymer electrolyte membrane) fuel cell model using neutron imaging for different operating conditions, *Energy*, Vol. 101, p. 100-112, (2016)
- (7) Wang, Y., Seo, B., Wang, B., Zamel, N., Jiao, K., Adroher, X. C.: Fundamentals, materials, and machine learning of polymer electrolyte membrane fuel cell technology, *Energy and AI*, Vol. 1, 100014, (2020)
- (8) Nanadegani, F. S., Lay, E. N., Iranzo, A., Salva, J. A., Sunden, B.: On neural network modeling to maximize the power output of PEMFCs, *Electrochimica Acta*, Vol. 348, p. 136345, (2020)
- (9) Han, I.-S., Chung, C.-B.: Performance prediction and analysis of a PEM fuel cell operating on pure oxygen using data-driven models: A comparison of artificial neural network and support vector machine, *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 41, Issue 24, p. 10202-10211, (2016)
- (10) Rasmussen, C. E.: Gaussian Processes in Machine Learning, *Advanced Lectures on Machine Learning*, p. 63-71, (2003)
- (11) Santiago, J., Claeys-Bruno, M., Sergent, M.: Construction of space-filling designs using WSP algorithm for high dimensional spaces, *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, Vol. 113, p. 26-31, (2012)
- (12) Ebadighajari, A., DeVaal, J., Golnaraghi, F.: Optimal control of fuel overpressure in a polymer electrolyte membrane fuel cell with hydrogen transfer leak during load change, *Journal of Power Sources*, Vol. 340, p. 247-257, (2017)
- (13) Kruse, T., Ulmer, H., Kreuzinger, T., Lang, T.: HiL システムと計測データに基づくモデルを使用したコントロールユニットの適合, 計測と制御, 第 53 巻, 第 8 号, p. 752-757, (2014)
- (14) Esteves, A., Kawamoto, A. M., Pelisser, A., Carmelutti, D.: Automated in-vehicle engine calibration to optimize emissions levels using machine learning, *SIMEA 2021*, (2021)
- (15) https://www.etas.com/download-center-files/products_ASCMO/etas-ascmo-static-v5.9-user-guide-r01-en-202205.pdf
- (16) https://www.jstage.jst.go.jp/article/ieejpes1990/120/6/120_6_885/_pdf
- (17) Rasmussen, C. E., Williams, C. K. I.: Gaussian Processes for Machine Learning, The MIT Press, (2005)
- (18) 森田浩:よくわかる最新実験計画法の基本と仕組み, 秀和システム, 281 p., (2019)

■著 者■



小 林 諒



古澤宏一郎



梅澤健輔