

1Dモデルを用いたシミュレーションによる次世代型燃料電池スタックの性能予測

Technology Using 1D Simulations to Predict Performance of Internally Humidified Stacks for Next-Generation PEFC Systems

山下 恭平 YAMASHITA Kyohei 木原 洋平 KIHARA Yohei 鷹股 光 TAKAMATA Hikaru

固体高分子型燃料電池は、様々な用途への実用化が進んでいる。近年は、トラック・バスなどの比較的大出力・高耐久が要求されるHDV（Heavy Duty Vehicle）用途への展開が期待されている。

東芝エネルギーシステムズ(株)は、高耐久性が特長である独自の内部加湿方式の固体高分子型燃料電池スタック（以下、内部加湿型スタックと略記）を製品化し、これまで定置用途に適用してきた。更に、高出力密度化・低コスト化により、HDV用途への適用拡大を目指している。セル性能向上に向けた開発として、1D（1次元）モデルシミュレーションにより、セル部材の物性値に基づくセル性能予測を行った。その結果、新規候補材料の採用により、現行製品の約4倍の電流密度を実現できることを示した。

Polymer electrolyte fuel cell (PEFC) systems have been put to practical use in various applications. Recently, demand has grown for application to heavy-duty vehicles (HDVs) such as trucks, buses, etc., which require relatively high output power and durability.

Toshiba Energy Systems & Solutions Corporation has developed a highly durable, proprietary internally humidified stack and applied it to stationary PEFC systems. With the goal of expanding application to HDVs, we are working to increase the output power density and reduce the cost of next-generation PEFC systems while developing technology using 1D simulations to predict internally humidified stack performance based on the physical properties of cell materials. We have conducted 1D simulation tests using candidate cell material data, confirming that the current density of cells using new materials has nearly quadrupled compared to conventional products.

1. まえがき

固体高分子型燃料電池は、定置用途だけでなく、自動車の動力源を含む様々なアプリケーション向けに開発・商品化されている。特に近年では、トラック・バスなどの大型車両への用途拡大が期待されている。

東芝エネルギーシステムズ(株)は、8万時間の設計寿命を持つ高耐久性、1週間の安定した連続運転、及び高エネルギー効率が特長の燃料電池システムを開発し⁽¹⁾、定置用に製品提供してきた。これらの特長は、図1に示す多孔質カーボンセパレーターを用いた独自の内部加湿型スタック構成の水管理技術によって実現した。内部加湿型スタック構成では、加湿水が多孔質カーボンセパレーターを介して、供給される水素ガス及び空気を加湿し、また反応によって生じる生成水を、空気と加湿水との圧力差によって多孔質カーボンセパレーターを介して除去する。これにより、電池内部を常に発電に適した湿度状態に保ち、フラッドイング（電極に水が過剰に蓄積して反応ガスの供給を阻害する現象）による電圧低下や温度・湿度分布が生じることを抑制して、世界最高クラス的设计寿命を実現した。

近年燃料電池の用途拡大に向けて、トラック・バスなど

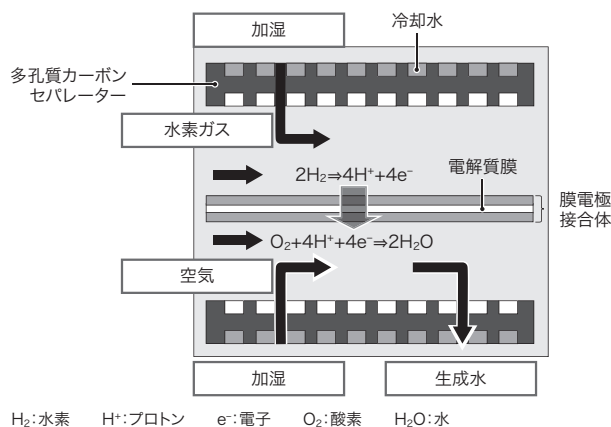


図1. 内部加湿型スタック構成の概要

多孔質カーボンセパレーターを介して水素ガスを加湿し、生成水を除去する。

Internally humidified stack overview

の大型車両、鉄道、船舶といったHDV用途が注目されている。この用途では、これまで商品化されている乗用車用途と比較して、大出力の運転と高い耐久性が要求される。当社は、高耐久な内部加湿型スタックの強みを生かしながら、更に高出力密度化・低コスト化することにより、HDV用途にも適用可能な燃料電池スタックを開発している。

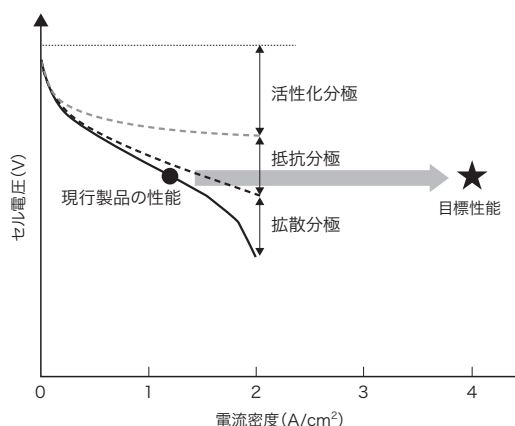


図2. 電流密度の増加に伴う各分極の増大と目標性能

高出力密度化に向けては、活性化、抵抗、拡散それぞれの分極を低減して、セル性能を高める必要がある。

Dependence of cell voltage on current density and target cell voltage

高出力密度化・低コスト化に向けては、図2に示すように電極面積当たりの電流（電流密度）を現行比約4倍に高めて、単位電極当たりから取り出せる電力を倍増させることを目標としている。一般的な燃料電池に用いられる稠密（ちゅうみつ）セパレーターでは、電流密度が高くなり、反応によりカソード極で生じる生成水が増加することでフラッディングが発生し、反応部へのガス拡散が阻害される。一方、当社の内部加湿型スタックは、多孔質カーボンセパレーターにより反応部で生成された水を除去できるため、高電流密度でも高い性能を維持できる強みがある。

図2に示すように、電流密度を増加させると、触媒活性により発生する活性化分極、電子やプロトンの移動抵抗により発生する抵抗分極、及び触媒表面への電気化学反応を発生させるための水素・酸素の拡散輸送抵抗による拡散分極のそれぞれの分極が増大する。このため、セル電圧が低下し、効率・発電性能が低下する。これらの各分極の低減に向けて、燃料電池の各構成要素・部材の物性が与える影響を、シミュレーションを用いて明らかにすることで、セル内部における現象理解だけでなく、各要素・部材の改良設計・開発指針を定めて、開発効率を向上させることができる。

ここでは、当社で実施している1Dモデルを用いたシミュレーションによるセル性能向上への取り組みと成果に関して述べる。

2. 1Dモデル

燃料電池セル内の物質移動現象・電気化学反応を解析するために、セルを厚さ方向に分割し、各要素に対してガス、液水、プロトン、及び電子の、移動現象と電気化学反

応のそれぞれを集中乗数系で表現する1Dモデルを、Rubioらのモデルを参考に作成した⁽²⁾。

1Dモデルの概要を図3に示す。ガス拡散層（GDL）・マイクロポーラス層（MPL）・触媒層（CL）におけるガス移動現象は、Stefan-Maxwellの式、Knudsenの式、及び質量保存則の組み合わせにより表現した。各層の有効相互拡散係数としては、Fuller-Schettler-Giddingsの式により求められるバルクの相互拡散係数に対して、気孔率と屈曲度による補正を行うことで表現した。

CLでは、触媒担体表面にアイオノマー（触媒層中に分散した高分子電解質）の層が被覆されているとし、アイオノマーへの酸素の溶解及びアイオノマー層中の移動について、Nonoyamaらのモデル及び実験式により与えた⁽³⁾。

液水の移動については、水分率の勾配による駆動と、電解質膜及びアイオノマー内のプロトン移動に伴う電気泳動を考慮した。水の凝縮・蒸発は、Hertz-Knudsenの式で表現し、それぞれの層に対して有効表面積による補正を加えた。

プロトン及び電子の移動に伴う過電圧は、電解質のプロトン伝導度又は個体の電子伝導度としてオーム則によって与え、電解質と固体それぞれの占有体積比による補正を加えた。

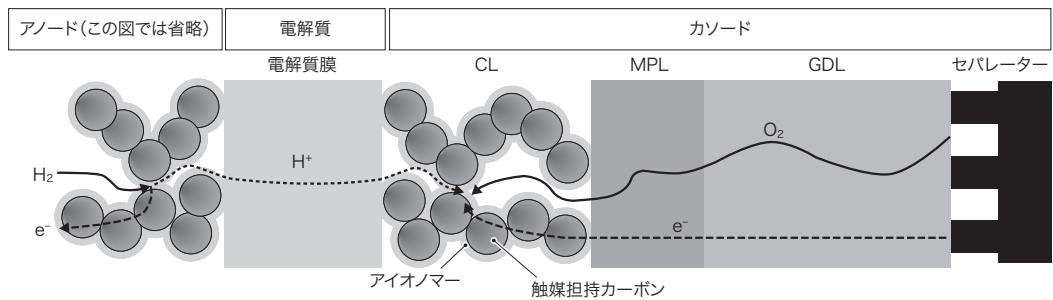
アノード極・カソード極のいずれも、セパレーターとの境界では、水蒸気分圧を飽和蒸気圧で一定とし、かつ液水量がゼロとなる境界条件を与えて、多孔質カーボンセパレーターによる内部加湿を模擬した。セル内の温度は、モデルの簡素化のために均一であると仮定し、発電による発熱量と冷却水の熱容量より求めた温度を使用することで、発電による温度上昇を模擬した。

3. 部材の物性値の測定

1Dモデルの各種パラメーターを得るため、現行製品に採用している部材、及び新規採用を検討している部材の物性値を測定した。物性値の測定に際しては、独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の「NEDO PEFCセル評価解析プロトコル 2023年版」⁽⁴⁾（以下、NEDOプロトコルと略記）を参考に、試験方法及び条件を設定した。

3.1 GDLの物性値

GDL及び当社製のMPLについて、ガス拡散性と電気抵抗を測定した。ガス拡散性は、電極面積5 cm²の評価用小型セルを作成し、NEDOプロトコル「G-1：ガス拡散抵抗」を参考にガス拡散抵抗を測定した。また、電気抵抗は、NEDOプロトコル「B-1：接触抵抗試験方法（対GDL）」を参考にスタック締結を模擬し、圧縮状態での電気抵抗を測



(a) 1Dモデルの構成

物理現象	電解質膜	CL	MPL	GDL	セパレーター
ガス移動	－	分子拡散 (Stefan-Maxwell), Knudsen拡散			
	－	アイオノマー中の酸素 拡散・溶解	－		
水移動	水分率差駆動				
	電気浸透		－		
水相変化	Hertz-Knudsen式				
電子移動	－	オーム則			
プロトン移動	オーム則		－		
電気化学反応	－	Tafel式	－		

(b) 各層の物理現象

図3. 1Dモデルの概要

内部加湿型スタックのセルを厚さ方向に分割し、各要素に対して物理現象を表す式を適用し、更に補正することで、1Dモデルを作成した。

Internally humidified stack model for 1D simulations

表1. 各GDLの物性値の比較

Physical properties of each gas diffusion layer (GDL) material

項目	現行製品のGDL	GDL A	GDL B
厚さ	1.00	0.66	0.58
ガス拡散抵抗	1.00	0.65	0.59
電気抵抗	1.00	1.16	0.86

各値は、現行製品のGDLの値に対する比

表2. 各CLの物性値の比較

Physical properties of each catalyst layer (CL) material

項目	現行製品のCL	CL α	CL β	CL γ
質量活性	1.00	1.37	1.12	1.23
プロトン移動抵抗	1.00	0.54	0.69	1.00
ガス拡散抵抗	1.00	0.72	0.75	1.00

各値は、現行製品のCLの値に対する比

定した。

現行製品のガス拡散性・電気抵抗を改善するために選定した2種類のGDL (GDL A, GDL B) の物性値を、現行製品のGDLとの比として、表1に示した。現行製品のGDLより薄型のGDL Bを選ぶことで、ガス拡散抵抗・電気抵抗ともに低減が見込まれる。

3.2 CLの物性値

CLは、電極面積5 cm²の評価用小型セルを用いて、NEDOプロトコル「C-1：I-V測定方法・過電圧分離解析方法」及び「C-4：ORR活性評価方法」により、触媒活性を測定した。また、NEDOプロトコル「C-6：酸素拡散抵抗(触媒層)」により触媒層内のガス(酸素)拡散抵抗を、NEDOプロトコル「C-7：プロトン輸送抵抗(触媒層)」により触媒層内アイオノマー中のプロトン移動抵抗を、それぞれ

測定した。

CL α (触媒活性やガス拡散性の向上が期待される新規のもの)、CL β (現行製品のCLにガス透過性の向上が期待される新規アイオノマーを用いたもの)、及びCL γ (現行製品のCLの製造プロセスの中で分散方法を改善したもの)について、現行製品のCLの物性値に対する比を表2に示す。

4. 性能予測

図3に示した1Dモデルに対して、各層の物性パラメーターや移動現象を表すパラメーターとして、測定により得られた物性値と、材料の仕様表の数値を与えた。温度や圧力の実測による感度評価結果と比較することで、1Dモデルの各種補正係数の合わせこみを行った。

図4は、現行製品の内部加湿型スタックのIV(電流-電

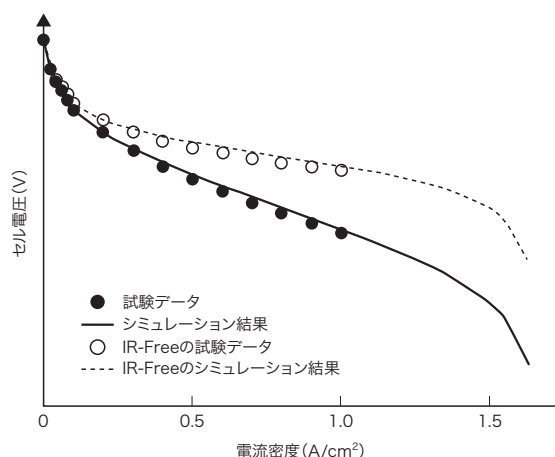


図4. 内部加湿型スタックの現行製品の試験データと1Dモデルによるシミュレーション結果のIVカーブの比較

試験データとシミュレーション結果が、よく一致した。

Comparison of current-voltage (*I-V*) curves of measurement data for conventional products and estimation results obtained by 1D simulations

圧)カーブについて、試験データと、1Dモデルによるシミュレーション結果を比較して示したものである。IR-freeは、IVカーブから電気抵抗・プロトン移動抵抗成分として抵抗分極を除去した電圧を示す。IR-Freeと比較することで、抵抗分極を除いた活性及び拡散分極の試験データとの整合を確認できる。

IVカーブ・IR-Freeともに、試験データとシミュレーション結果がよく一致することを確認した。

次に、現行製品の内部加湿型スタックに対して、CLやGDLの仕様を変更した場合の性能を、シミュレーションで求めた。

CL仕様の変更としては、新規触媒を採用したCL α だけでなく、新規触媒に新規アイオノマーを組み合わせたCL $\alpha + \beta$ 、更に製造プロセス改善を盛り込んだCL $\alpha + \beta + \gamma$ などの組み合わせを含めて、8通りが考えられる。セル仕様は、3.1節で述べた3種類のGDLとした。これらを組み合わせた全24通りについて、シミュレーションを行った。

表3は、200 kPa (ゲージ圧)の加圧条件でシミュレーションを行った結果である。それぞれの組み合わせに対して、電流密度2 A/cm²におけるセル電圧を、現行製品のCL・GDLの組み合わせのセル電圧との差として示した。また、図5に代表例のIVカーブ、及び参考として現行製品の大気圧でのIVカーブを示す。

現行製品のGDLとCLの組み合わせをCL α に変更することで、約0.19 Vの電圧向上が得られた一方拡散分極が著しく増大する限界電流は約3 A/cm²であり、大きな改善は見られなかった。更に、ガス拡散性が高いGDL Bに変更す

表3. CL・GDLの各組み合わせにおけるセル電圧のシミュレーション結果

Results of simulations of cell voltage for different combinations of CL and GDL materials

項目	触媒	アイオノマー	製造プロセス	セル電圧 (V) (相対値*)		
				現行製品のGDL	GDL A	GDL B
現行製品のCL	現行	現行	現行	0.00	0.09	0.11
CL β		新規	現行	0.01	0.10	0.12
CL γ		現行	新規	0.01	0.10	0.12
CL $\beta + \gamma$		新規	新規	0.03	0.11	0.13
CL α	新規	現行	現行	0.19	0.22	0.23
CL $\alpha + \beta$		新規	現行	0.20	0.23	0.24
CL $\alpha + \gamma$		現行	新規	0.20	0.23	0.24
CL $\alpha + \beta + \gamma$		新規	新規	0.21	0.23	0.25

加圧条件：200 kPa (ゲージ圧)

電流密度：2 A/cm²

*現行製品のCL・GDLを用いた場合のセル電圧との差

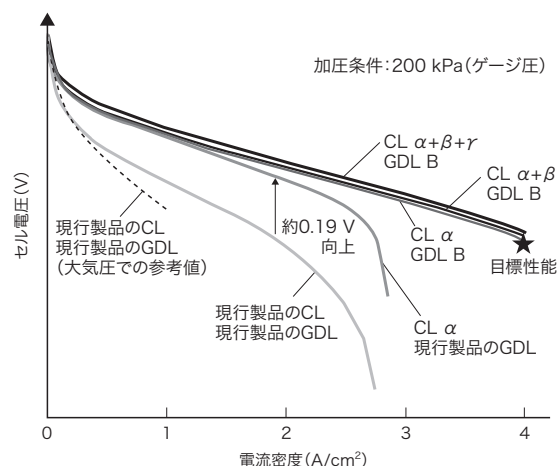


図5. CL・GDLを変えた場合のIVカーブのシミュレーション結果

加圧条件とCL・GDLの変更によって、目標性能を実現できることを示した。

Results of *I-V* curves obtained by 1D simulations when physical properties changed

ることで、高電流密度域での拡散分極が大幅に低減した。これらから、加圧条件及びCL・GDLの変更によって目標とする現行製品の約4倍の電流密度が実現できることを示した。また、新規アイオノマーや製造プロセス改善を盛り込むことで更なる性能改善の余地があることが分かった。

5. あとがき

固体高分子型燃料電池セル内部での物質移動現象・電気化学反応を解析する1Dモデルを開発し、各セル部材の物性値に基づいたセル性能の予測を可能とした。

新規材料の採用や製造方法の変更による各分極の低減について、1Dモデルを用いたシミュレーションにより、現行製

品に比べて約4倍の電流密度を確認し、高出力密度化・低コスト化の実現可能性を示した。

今後、1Dモデルによる予測値と、過去からの蓄積を含めた実測データとの比較、更には各種物性値の測定により、1Dモデル及びパラメーターの精度を高め、物性値のデータベースを拡充して、更なる高出力密度化・低コスト化に向けた開発を進めていく。

文 献

- (1) 公野元貴, ほか. 水素社会実現に向けた燃料電池システムの最新技術. 東芝レビュー. 2021, **76**, 3, p.31-35. <<https://www.global.toshiba/content/dam/toshiba/jp/technology/corporate/review/2021/03/a08.pdf>>, (参照 2025-05-20).
- (2) Rubio, Miguel A. et al. Dynamic modelling of PEM fuel cells using the FuelCellLib Modelica library. Mathematical and Computer Modelling of Dynamical Systems. 2010, **16**, 3, p.165-194.
- (3) Nonoyama, N. et al. Analysis of Oxygen-Transport Diffusion Resistance in Proton-Exchange-Membrane Fuel Cells. Journal of The Electrochemical Society. 2011, **158**, 4, B416-B423. <https://www.researchgate.net/publication/274539255_Analysis_of_Oxygen-Transport_Diffusion_Resistance_in_Proton-Exchange-Membrane_Fuel_Cells>, (accessed 2025-05-20).
- (4) NEDO. NEDO PEFCセル評価解析プロトコル 2023年版. 2023, 73p. <<https://www.nedo.go.jp/content/100963953.pdf>>, (参照 2025-05-20).



山下 恭平 YAMASHITA Kyohei, Ph.D.

東芝エネルギーシステムズ(株)
エネルギーアグリゲーション事業部 水素エネルギー開発部
博士(環境学) 日本伝熱学会・日本冷凍空調学会会員
Toshiba Energy Systems & Solutions Corp.



木原 洋平 KIHARA Yohei

東芝エネルギーシステムズ(株)
エネルギーアグリゲーション事業部 水素エネルギー開発部
Toshiba Energy Systems & Solutions Corp.



鷹股 光 TAKAMATA Hikaru

東芝エネルギーシステムズ(株)
エネルギーアグリゲーション事業部 水素エネルギー開発部
Toshiba Energy Systems & Solutions Corp.