

# 固体高分子型燃料電池における熱および物質移動と 燃料電池自動車システムに関する研究

## 学位論文内容の要旨

本研究は、固体高分子型燃料電池 (PEFC) の性能に関して、自動車用動力源としての評価、自動車に搭載した際の運転条件の確立、低温起動や出力密度の向上など実用化のための検討すべき課題の解決、自動車システムの最適構成の検討といった自動車用動力源としての視点から検討を行い、PEFCの基本性能を実験と熱および物質移動を考慮したシミュレーションを用いた解析により、PEFC性能の評価ならびに最適運転条件を明らかにするものである。また、燃料電池自動車のシステム評価を行って、燃費が最大となる最適システム構成を検討した。論文を以下の7章から構成した。

第1章は序論であり、研究の背景について述べるとともに、本研究の目的および得られた結果の概要について論述した。また、燃料電池一般についての概説、各種燃料電池の開発動向、自動車用動力源としてのPEFCの研究動向、燃料電池自動車の性能と開発動向についてとりまとめた。

第2章では、燃料電池自動車 (FCEV) の位置付けを明確にするため、各種自動車用動力源の総合効率、エネルギー消費量およびCO<sub>2</sub>排出量比較について検討した。燃料から各種流通経路を経て自動車として実際に走行するまでのエネルギーフロー図を作成して、総合的なエネルギー変換効率を算出した結果、EV、Hybrid-EVおよびFCEVなどモータを動力に用いるものの総合効率が、従来のガソリン車やディーゼル車を大きく上回っている。FCEVの走行段階および燃料製造段階のエネルギー消費量ならびにCO<sub>2</sub>排出量は、ガソリン車の半分以下であり、CO<sub>2</sub>排出量削減に最も有効な車両であると言える。したがって、FCEVは高い効率、低エネルギー消費量、低CO<sub>2</sub>排出量、クリーンな排気特性から次世代移動用動力源として有望である。

第3章では、104cm<sup>2</sup>の反応面積を有するPEFCを製作し、電池温度、ガス流量、酸素・水素濃度および加湿量を変化させて、単セル性能を評価した。その結果、電池性能は温度、水素濃度の影響は少なく、酸素濃度、水分の影響が大きい。また、電池内物質移動を考慮した一次元シミュレーションモデルを開発し、幅広い電流密度範囲と様々な電池作動条件下において計測値と比較した結果、両者は良く対応した。カソード側で生成した凝縮水が拡散層および触媒層の表面を覆ってガスの拡散を阻害して電池性能に影響を及ぼすが、モデルを用いた解析の結果、触媒層の表面を凝縮水が覆うことによる電池性能の低下が拡散層より顕著であることを示した。

第4章では、PEFCは膜を湿潤状態に保つための加湿が必要であり、電池の起動ならびに負荷変動に適応する必要がある。そこで、各電池温度条件下で加湿と非加湿での性能と非加湿での起動を測定すると共に電池内物質移動を考慮した計算を行った。その結果、電池への供給ガスを加湿しないドライガス条件では電池温度および電流密度が低いほど電池性能が優れていた。定常一次元モデルによる解析の結果、ドライガス条件での電池電圧の減少は、膜の含水量低下によりイオン伝導性が低下し、過電圧が増加するために起きた。外部加湿の困難な電池起動時に低作動温度ならびに低電流密度が運転条件として選択されるなら、ドライガスでの起動は充分可能である。本モデルを用いて解析を行った結果、ドライ条件下では、電解質の薄膜化が

性能向上に大きく寄与し、電池温度が高い場合でも電池出力を得ることが出来る。薄膜化が可能ならば、ドライガスを用いた高作動温度での起動および運転が可能となるが、膜の一層の強度強化が必要である。また、起動実験の結果、電池は比較的低温である10℃での起動直後より高い電池電圧を発生し、電流に対する応答特性が優れている。10℃程度の起動では、燃料電池のみの自立運転が可能である。

第5章では、FCEVのシミュレーションモデルを開発して駆動システムの解析を行ない、FCEVの性能評価、燃費が最大となる車両スペックの決定、PEFCおよびFCEVシステムの最適制御の検討を行なった。日本の燃費測定法である10・15、米国の都市内走行モードであるFUDS、米国の高速走行燃費測定モードであるFHDSおよび欧州で使用されている走行モードであるNEDCの各運転モードにおいて、燃費が最大となる燃料電池、二次電池およびモータの最適構成を検討した結果、FHDSを除く各運転モードにおいて二次電池出力は燃料電池より高い。走行モードの大部分が低負荷運転であるため、ピーク的に高い値を示す駆動力は二次電池の出力で補う運転が燃費を高くする制御であるためと考えられる。他と比べて都市内走行を比較的良く模擬しており、加速・減速が激しく、10・15モードより走行負荷が高いFUDSモードと、10・15モードに似た速度パターンであるが、後半の高速運転時の走行負荷はより高いNEDCの各機器出力は、10・15モードの約2倍必要である。FHDSは高速走行パターンであるため、連続的に高出力が必要になり、二次電池出力より燃料電池出力が大きくなる。シリーズとはエネルギー供給を常に二次電池から行い、燃料電池は二次電池の充電にのみ使用し、パラレルとは燃料電池からエネルギー供給し、不足エネルギーを二次電池から補うものと定義する。シリーズの燃費はパラレルより低く、シリーズ用二次電池はパラレル用より容量が大きくなるため重量が重くなり、車両重量とともに走行に必要な駆動エネルギーが増加するためである。各運転モードにおいて回生ブレーキがない場合、燃費は最大で10・15モードの時23%低下し、回生ブレーキによるエネルギー回収が燃費向上のために非常に重要であることを確認した。燃料電池の運転は、負荷変動を二次電池で吸収して燃料電池を高効率で運転する運転制御が燃費向上に有効である。

第6章では、PEFCの実用化に向けた3つの課題について検討した。以下に論じる。

#### (1) 自己加湿および最適スタック構造

燃料電池の湿度管理を簡単にするため、カソード排出ガスより反応生成水分を回収して電池加湿を行う自己加湿型スタックを組立て、電池性能を測定して従来加湿型スタック性能と比較し、熱および物質移動を考慮した三次元計算プログラムによりスタック性能を解析した。自己加湿型スタックの性能は $0.5\text{A}/\text{cm}^2$ の電流密度で外部加湿器を用いる従来型スタックの18%減である。現在使用している供給ガスの加湿に用いる水蒸気透過膜の透過性能を向上して透過面積を増やすと、自己加湿型スタックは従来加湿型とほぼ同程度の性能を有すると考えられるため、自己加湿型スタックは燃料電池システムの簡素化に非常に有効であると同時に従来型と変わらない高い性能を有する。電池内におけるアノードとカソードガスの流れ方向による影響を検討するため、ガス流れ方向を直交流から並行流に変えた解析結果から、面内の発電分布がより均一であるため、並行流スタック性能は直交流スタックより優れていると言える。冷却セル数を減少することが、スタック自体の簡素化とコンパクト化のために重要であり、2あるいは3発電セルに1冷却セルが、 $100^\circ\text{C}$ 以下の電池温度と均一な電解質温度分布を達成するために必要である。

#### (2) $0^\circ\text{C}$ 以下の低温起動

$0^\circ\text{C}$ 以下の低温環境下では、反応によって生成した水分が触媒反応面で凍結して性能が低下するので、燃料電池の起動および運転方法の確立が重要となる。低温起動時の電池特性を明らかにするため、単セル燃料電池を用いて $-10^\circ\text{C}$ と $-25^\circ\text{C}$ の低温環境下で電池性能を計測し、シミュレーションによって低温環境下における燃料電池の自立運転の可能性を検討した。 $-25^\circ\text{C}$ の低温環境下において燃料電池の起動試験を行った結果、低電流密度で発電はするが生成水の凍結により電圧は時間とともに低下する。生成水分の反応面への凍結を防止するには、電流密度および燃料電池の供給ガス流量を調整することが必要である。 $-20^\circ\text{C}$ の低温環境下で燃料電池の自立運転の可能性をシミュレーションを用いて検討した結果、供給ガス温度が $-20^\circ\text{C}$ では、電

池温度が-18.5℃で定常になり自立運転は難しい。

### (3) 高出力密度化

燃料電池は内燃機関と違って二次元の面で発電するため、出力密度を高めるためにはセルの厚みを薄くすることが必要である。従来使用していた4mm厚さのセパレータの約1/7に相当する0.6mm厚セパレータを使用した超薄型燃料電池を試作して、実現の可能性を検討した。性能試験の結果、反応面積当たりの出力密度は従来型と比べて若干劣るが、体積当たりの出力密度は1.503kW/L、重量当たりでは0.769kW/kgとなり従来型の5.5倍の性能であり、大幅な出力密度の向上を達成することが出来る。0.6mm厚さのセパレータを用いた燃料電池は、ガス流路断面積が小さいために凝縮水の影響を受けやすいと考えられ、最適な加湿温度、凝縮水の排出性能の向上ならびにガス流路内における圧力損失の低減が重要となる。

第7章は、本研究の結論であり、得られた成果の概要を記述した。

# 学位論文審査の要旨

主査	教授	菱沼孝夫
副査	教授	宮本登
副査	教授	福迫尚一郎
副査	教授	服部英
副査	助教授	近久武美

## 学位論文題名

# 固体高分子型燃料電池における熱および物質移動と 燃料電池自動車システムに関する研究

固体高分子燃料電池 (PEFC) は電解質に固体高分子膜を使用するため、電解質に液体を使用するリン酸型燃料電池 (PAFC)、熔融炭酸塩型燃料電池 (MCFC) に比較し、電解質の保持が安定であり、固体酸化物型燃料電池 (SOFC) に比較し低温で作動する特徴を有し、さらに出力密度が高いなど、自動車用動力源および小型分散電源に応用されようとしている。そのため国内外で研究開発は進められており、特に内燃機関に替わる低環境負荷型動力源として注目されている。

本論文は固体高分子型燃料電池を組み立て、実験評価することにより基本特性を明らかにすると共に、熱および物質移動を考慮したシミュレーション解析により、自動車用動力源としての評価を可能とした。次に燃料電池の性能を基に燃料電池自動車システムを検討し、燃費が最大となる最適運転条件を明らかにしている。さらに実用化上重要な低温起動特性、薄型燃料電池、自己加湿型燃料電池についても多くの成果を得ている。

本論文の主な成果は次の点に要約される。

- 1) 各種燃料電池の研究状況を概説し、その中でも自動車動力源としての PEFC の研究動向、自動車に応用した場合の固体高分子型燃料電池自動車の特徴と問題点を明らかにしている。燃料電池自動車 (FCEV) の将来性を考えた場合、効率が重要な課題であり、燃料の山元から消費されるまでの総合効率を既存の内燃機関、ハイブリッド、電気、燃料電池の各種自動車について計算し、FCEV は高効率であり、クリーンな排気特性を有し、次世代の自動車として魅力的であることを明らかにした。
- 2) 104 cm<sup>2</sup>PEFC 単セルを製作し評価することにより、単セルの基本特性を明らかにした。電池性能は酸素および水分濃度の影響が大きく、カソード反応が律速であることを明らかにした。電池反応に関して反応および物質移動 1 次元シミュレータを

開発し、電池性能を幅広い実験条件下で評価することを可能にした。反応ガス中の水分濃度は高分子電解質膜イオン伝導性に影響を与え、特にアノード側加湿が電池性能維持に重要であることを示している。燃料電池起動時、低温のため反応ガスを加湿出来ない場合は電流密度を低くし、低作動温度領域で運転することが、電池の性能低下を防ぐことを見出している。

3) 駆動系が燃料電池、2次電池とモーターよりなる FCEV システムについて、燃料電池を充電に使用し2次電池から常に電力を供給するシリーズ型と燃料電池から電力を主に供給し、不足分を2次電池から供給するパラレル型の2ケースを考えたシミュレーションモデルを開発している。日本の走行モードである 10・15、米国の都市内走行モードである FUDS、高速走行モードである FHDS、欧州の走行モードである NEDC の各運転モードにおいて燃費が最大になる燃料電池、2次電池およびモーターの出力を明らかにしている。シリーズの燃費はパラレルより低く、2次電池の大型化による重量増加のためであることを見出している。各運転モードにおいて回生ブレーキによるエネルギー回収の効果を評価したところ、10・15、FUDS などの都市内走行モードでは 20%以上の燃費改善が可能であることを明らかにしている。FCEV システムにおいて燃料電池と2次電池から電力を供給するパラレル型は回生ブレーキによりエネルギー回収をすればガソリン換算で 35 km/L 以上の燃費を達成できることを明らかにしている。

4) 燃料電池の性能維持に重要な湿度管理を簡単に出来る、カソード排ガスより生成水分を回収し、電池加湿を行う自己加湿型 200W、10 セルスタックを組み立て実用性を検証した。また熱および物質移動を考慮した3次元シミュレーターを開発し冷却セル数の最適化、ガス流れの適正化を図ることにより、電池内温度分布を均一にする設計法を提案している。またセパレーターの薄型化による高出力密度化、低温起動についても検討し、将来の燃料電池の課題についても解決策を提案している。これを要するに、著者は、燃料電池自動車システムにおいて固体高分子燃料電池の熱および物質移動を解析し、燃料電池特性を明らかにすると共に、システムを評価することにより、実用上の課題についても解決の指針を与えたものであり、将来の熱工学および内燃機関工学に対して貢献するところ大なるものがある。

よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。