

非破壊リアルタイム診断による燃料電池の 最適制御手法の開発

Development of Optimal Control Method for PEMFC stacks by Non-Destructive Real-Time Diagnostics

研究代表者 筑波大学システム情報系 助教 秋元祐太郎

Yutaro Akimoto

In order to clarify the location and factor of fuel cell's output degradation that cause it, we developed the method for evaluating the in-plane current distribution of fuel cells by non-destructive magnetic field measurement and polarization evaluation method for calculating degradation factors based on voltage, current and temperature. As for the current distribution evaluation method, it was possible to avoid simulated failures by performing control based on the magnetic field output values obtained in experiments. We also developed the method to calculate the current intensity distribution in real time and showed that the uniformity of the voltage and current distribution is different. A preventive control method was developed to control based on the polarization evaluation and compared to defect methods in previous studies, it was shown to have advantages in efficiency and defects could be avoided. In addition, the sensitivity analysis of control thresholds was performed and issues in system adaptation were presented.

要旨

燃料電池の出力低下箇所と低下要因を明らかにするために、非破壊磁場計測による燃料電池のセル面内電流分布評価手法および電圧、電流、温度計測データから出力低下要因を算出する分極評価手法を開発する。電流分布評価手法としては、不具合を模擬する実験にて得られた磁場出力値をもとに制御を行い、模擬した不具合を回避することが可能となった。また、リアルタイムに電流強度分布を算出する手法を開発し、電圧と電流分布の均一さは異なることを示した。分極評価手法をもとに制御する予防制御手法を開発し、先行研究の不具合手法と比較し、効率などでの優位性、不具合が回避可能なことを示した。また、制御閾値に関する感度分析を行い、システム適応における課題を示した。

触な計測手法として磁気センサを用いたセル面電流分布手法を開発した。また、燃料電池の出力低下要因を特定するための分極評価手法もあわせて開発し、計測だけではなく診断・評価・制御する手法として確立を目指している。

本研究では、これまでの固体高分子型燃料電池の信頼性向上のための手法を応用した出力向上による最適制御を行う。具体的には、磁気センサによる電流分布計測による分布の均一性、要因分析による制御へのフィードバックなどにより、効率的な運転方法を自動的に探索し、制御する手法を開発する。

本報告では、2章にて磁気センサによる電流分布のリアルタイム計測の関連研究と提案手法およびそれをを用いた結果について、3章にて出力低下要因分析による制御に関する関連研究と提案手法およびそれをを用いた結果について示す。

1. まえがき

固体高分子型燃料電池は複数の要因により出力が不安定になるなど信頼性に課題がある。燃料電池システムとしての信頼性を向上させるためには、NEDOの定めるロードマップにあるように、システムの診断・解析手法の高度化やシミュレーション技術の向上により出力低下要因を明らかにすることが必要不可欠である。そこで、我々の研究室では非破壊・非接

2. 磁気センサを用いた非破壊診断・制御手法

2.1 背景

燃料電池の電流分布に起因する磁場を図1のように図2に示す磁気センサにより計測し、フラッディングとドライアウト時に異なる電流分布となることから制御手法とする方法である。燃料電池の電流分

布は内部状況を知るうえで重要な指標である。不均一な電流分布は化学反応が偏っていることを示し、発電の有効面積を減少させ、さらには局所的な劣化を招く。先行研究としては燃料電池内にプリント基板を埋め込むことで測定する方法がある⁽¹⁾が、非破壊ではないことや、スタックの大型化、高コスト化が生じる。当研究室と同じように磁気センサにより磁場を測定する方法はほかにもある^{(2), (3)}が、当研究室では微小なセンサを空冷口に挿入し測定する手法を取り、常時設置だけでなく、オンサイト保守での診断可能な手法である。また、本手法は他の診断・制御手法に比べ、事前情報として初期値のみを用いるため機械学習のように膨大なデータが必要ないこと、および簡易的であるため燃料電池の1秒以内の不具合に対応できるという利点を持つ。

研究期間内において、国際学術論文誌1報、国際学会発表論文1件（口頭）を実施した。本章ではそれらについてまとめる。

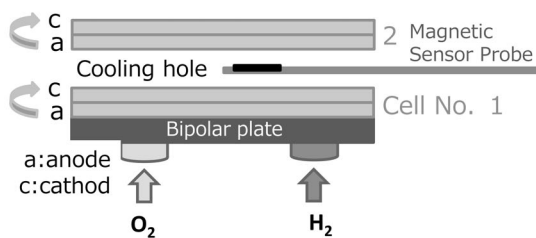


図1 磁場計測外形図

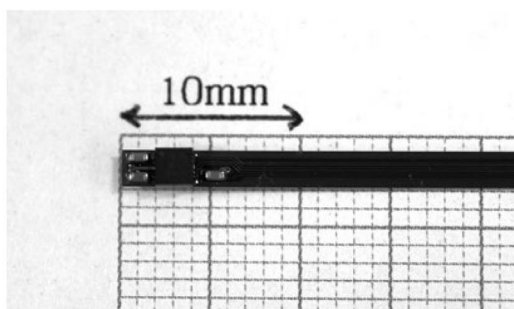


図2 磁気センサプローブ

2.2 手法概要

本研究で開発した手法は、電流分布の絶対値を計算するのではなく、運転初期状態からの差分という相対値を算出することで、センサ計測数と計算時間の削減を可能としている。つまり、運転初期状態は健全な運転をしている想定の下、健全状態と不具合状態との差を予想することに注目している。

手法の概要としては、まず、運転初期の磁束密度を測定し、システム内に保持する。続いて、制御の基準となるセル電圧を下回った時に計測した磁束密度とシステム内に保持した磁束密度から運転初期状態との電流分布の差分を予測する。電流分布予測がフラグディングやドライアウトなどの不具合に当てはまる場合には回避制御を行う。これを制御電圧に達するまで繰り返す。

磁場計測値から電流分布を計算する手法については以下のとおりである。ビオサバルの法則より電流と磁場の関係は以下のように表される。

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \frac{\mu_r}{4\pi} \int_V \frac{\mathbf{r}_s - \mathbf{r}}{|\mathbf{r}_s - \mathbf{r}|^3} \times \mathbf{j}(\mathbf{r}_s) dV_s$$

燃料電池のマクロな電流方向は一定であるため、磁場は電流の計測箇所と計算箇所の位置関係によるものとなり以下の行列で表すことができる。

$$\begin{pmatrix} B_{1x} \\ \vdots \\ B_{nx} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a_{11x} & \cdots & a_{1nx} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ a_{n1x} & \cdots & a_{nmx} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J_1 \\ \vdots \\ J_n \end{pmatrix}$$

$$\begin{pmatrix} B_{1y} \\ \vdots \\ B_{ny} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a_{11y} & \cdots & a_{1ny} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ a_{n1y} & \cdots & a_{nny} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J_1 \\ \vdots \\ J_n \end{pmatrix}$$

$$a_{kn} = \lambda_{kn} (r_n - r_k)$$

$$k = 1 \text{ to } n$$

すなわち、 $(r_n - r_k)$ の位置関係によって決定する。

たとえば、磁場計測点が4点であるときの点4における磁場は

$$B_{4x} = a_{41x}J_1 + a_{42x}J_2 + a_{43x}J_3$$

$$B_{4y} = a_{41y}J_1 + a_{42y}J_2 + a_{43y}J_3$$

となる。燃料電池が定電流で運転しているときは電流分布にムラが生じたとしてもその合計は一定になるはずなので以下の式が成り立つ。

$$\sum_{i=1}^n \mathbf{J} = \sum_{i=1}^n \mathbf{J}' = \text{const.}$$

つまり、逆行列

$$\begin{pmatrix} J_1 \\ \vdots \\ J_n \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a_{11x} & \cdots & a_{1nx} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ a_{n1x} & \cdots & a_{nmx} \end{pmatrix}^{-1} \begin{pmatrix} B_{1x} \\ \vdots \\ B_{nx} \end{pmatrix}$$

を計算し、その差分をとることによって各箇所電流分布がわかる。

2.3 フラッディングおよびドライアウトを模擬した運転時の磁場出力を用いた回避結果^[2]

本研究では5セルの空冷型固体高分子形燃料電池スタックを用いた。水素は水素ポンプから、空気はポンプより供給される。フラッディング時は水素側にはデットエンド状態、45°C付近で空冷、ページによる回避制御を行う。ドライアウト時は水素側がフロー状態、80°C付近で空冷、空冷による回避制御を行う。

一定の電流下では、ドライアウトとフラッディングにて磁場計測値が異なることが分かった。これは、一般的に、フラッディング時は蛇型流路の出口に生成水が滞留し、またドライアウト時は蛇型流路の入り口側で乾燥しやすいことから、異なる箇所で相対的に電流が増加したためと考えられる。

図3にフラッディングを模擬した運転時の磁場出力およびセル3, 5の電圧を示す。磁場出力値が閾値を上回ると、不具合の回避制御により電圧が回復し、運転を継続して行うことができた。同様に、ドライアウト時にも磁気センサ計測点数を2点まで減らして制御できることを明らかにした。

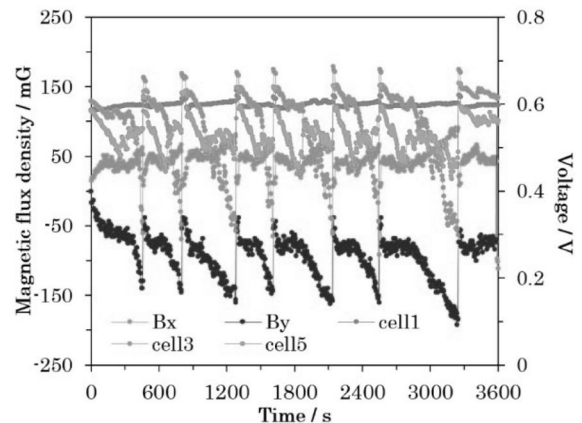


図3 フラッディング模擬運転時の磁場、セル3, 5の電圧推移

2.4 フラッディングとドライアウトを模擬した運転時のリアルタイム電流分布計算結果^[3]

これまでは電圧が閾値以下になった際に、その磁場計測値を取得し、それを用いた制御を行っていた。本研究では電流分布をリアルタイムに計算する手法を構築し、論文[2]の計測データをもとに、磁場から計算される電流分布を示す。本研究で計算される電流分布は前述の通り、絶対値ではなく、初期状態からの変化分である相対値である。以後、電流強度分布 (Current intensity distribution) とする。

図4に電流強度分布算出に用いた磁場計測時の各セル電圧を示す。今回の運転はフラッディングとドライアウトを交互に模擬したデータである。具体的には、前述のフラッディング運転を行い、セル電圧が0.3 Vになったらページによる回避、その後、ドライアウト運転を行い0.3 Vを下回ったら冷却に夜回避、その後、フラッディングというのを繰り返す。図4のようにまず、フラッディングによりセル3が0.3 Vを下回り、その後、ドライアウトによりセル1が、その後、セル5、セル1、セル5、セル1と繰り返される。

図5に750秒から900秒までの電流強度分布の計算結果を示す。左上 ($x = 0, y = 40$) 側から空気が供給され、右下 ($x = 90, y = 0$) 側から空気が排出される。セル3は760秒の時に0.3 Vを下回り、そこから20秒、つまり780秒までページされるように設定されている。電流強度分布を見ると750秒と800秒では変化がないことがわかり、ページによって電圧は回復しているが、電流強度分布は初期状態に戻っ

ていないことがわかる. その後, 図 5(c), (d) は 850 秒, 900 秒とドライアウト運転を行うことで初期状態まで電流強度分布が戻ったことを示している.

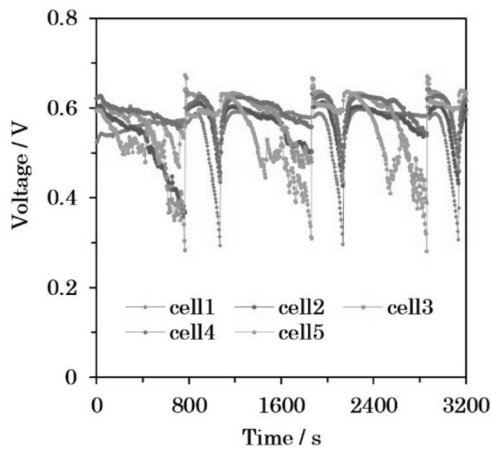
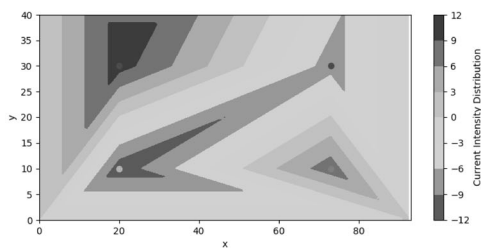
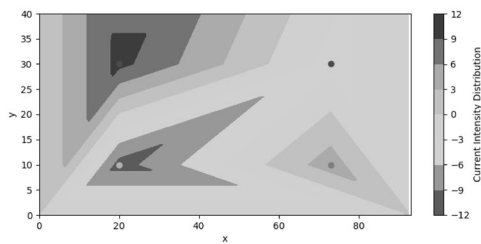


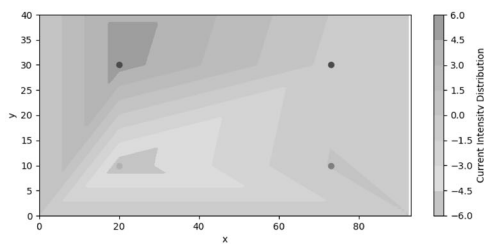
図4 各セル電圧推移



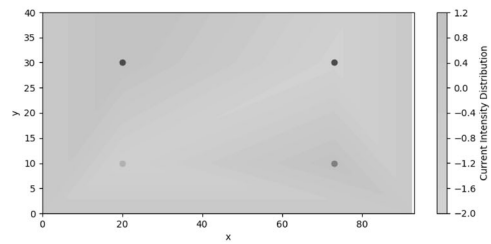
(a) 750 sec.



(b) 800 sec.



(c) 850 sec.

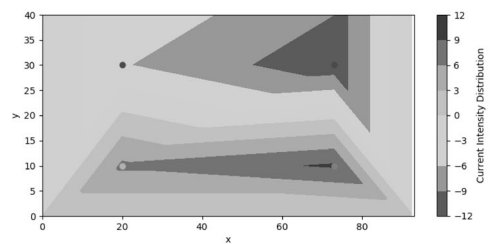


(d) 900 sec.

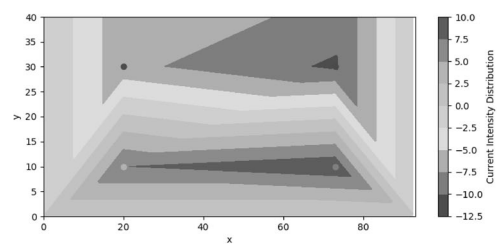
図5 750 秒から 900 秒までの電流強度分布の計算結果

図 6 に 1050 秒から 1200 秒までの電流強度分布の計算結果を示す. セル 1 は 1063 秒の時に 0.3 V を下回り, 1195 秒までファンによる冷却が行われた. 電流強度分布を見ると, フラッディング同様, 1050 秒と 1100 秒では変化がないことがわかり, ファンによる冷却が終わる 1050 秒付近で, 一部低下し, フラッディング運転が始まった後の 1200 秒にて初期状態まで電流強度分布が戻ったことを示している.

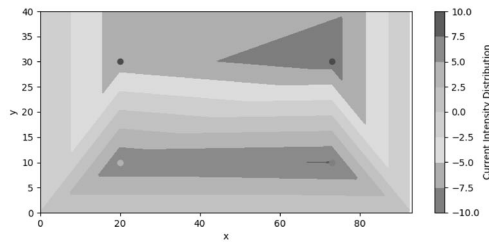
これらの結果より, これまでの電圧計測ではわからない内部情報を示すことが可能となり, この非破壊磁場計測から計算される電流強度分布をもとに制御を行うことで, 電流分布を均一に保ったまま運転することが可能となる.



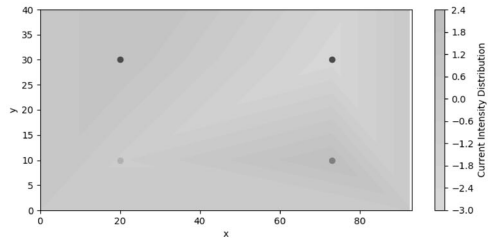
(a) 1050 sec



(b) 1100 sec.



(c) 1150 sec.



(d) 1200 sec.

図6 1050 秒から 1200 秒までの電流強度分布の計算結果

3. 出力低下要因分析による不具合診断・制御手法

3.1 背景

一般的に、燃料電池の電圧 V は以下の式のように理論起電力 E_0 と各出力低下要因である活性化分極 η_{act} 、抵抗分極 η_{ohmic} 、拡散分極 η_{con} の差となる。

$$V = E_0 - \eta_{act} - \eta_{ohmic} - \eta_{con}$$

本研究では特に、フラッディング時に上昇する濃度分極とドライアウト時に上昇する抵抗分極と呼ばれる損失成分を不具合判別指標として制御を行う。濃度分極は燃料を多く消費する高電流領域において反応により電極近傍の酸素、水素の濃度が低下し、これらを電極へ供給する速度の差により生じる損失である。抵抗分極は電解質膜、電極、セパレータ等における電子やイオンの移動に対する抵抗による損失、いわゆるオーム損である。したがって、これらの分極を分離することが可能となれば、それぞれの分極を改善する制御を行うことが可能と考え、先行研究^[5]において理論式および実験などの経験則を定式化し、それを用いた制御を行っている。

研究期間内において、国際学術論文誌 1 報、国内学会発表論文 2 件（口頭）を実施した。本章ではそれらについてまとめる。

3.2 手法概要

既存の研究^[4]では電流、電圧のみでは分極を算出しており、その分離精度に課題があった。先行研究^[5]では一般的な燃料電池システムにて計測されている温度を用いると、内部の湿潤状態など水管理指標を推定できるため、セルごとの分極算出を実現している。これを制御に応用する。図 7 に本手法の制御フローを示す。まず、初期電圧、電流、温度を保持し、温度を含む電流-電圧曲線から分極を理論式により計算する。毎秒得られる電圧、電流、温度データを上書きしていき、逐次、電流-電圧曲線を更新していく。濃度分極と抵抗分極に閾値が設定され、それぞれフラッディングとドライアウト検知指標となっている。閾値を上回った時に、抵抗分極であればドライアウトと判断し、ファン制御による冷却を行う。抵抗分極の差の閾値は 0.04 とし、閾値を上回った際は冷却ファンが 45°C まで動作する。濃度分極であればフラッディングと判断する。濃度分極の閾値は理論電圧の 15% とし、閾値を上回った際は徐々に水素、空気流量を上昇させる。制御は時間ではなく、閾値を下回ったら終了する。

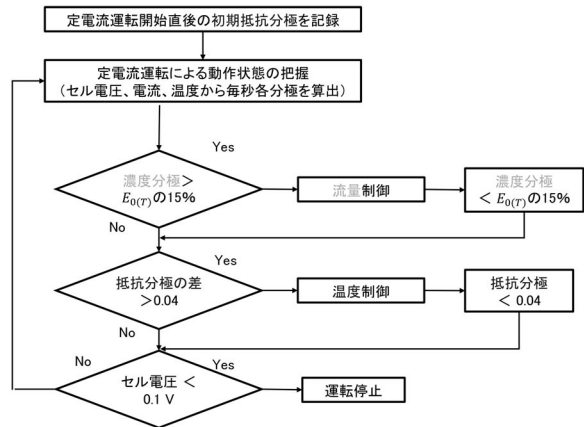


図7 制御フロー

3.3 結果^{[1], [4], [5]}

本研究にて、フラッディングを模擬した運転時の濃度分極による制御について、図 8 に予防制御手法（提案手法）と先行研究^[6]の不具合制御手法と比較したスタック出力の推移を示す。また、表 1 に制御回数、平均出力、水素消費量、効率を比較した結果を示す。予防制御手法の制御回数は 54 回と不具合制御

手法の6回よりも多いが不具合制御手法よりも早く制御しているためより高い出力を維持している。制御回数が多いが水素消費量は減少し、効率も1.4%向上している。また、他のセルへの影響を少なくしながら制御によってフラiddiingを回避していることが分かった。

表1 制御回数, 平均出力, 水素消費量, 効率比較

Method	Preventive control	Fault control
Control frequency[Times]	54	6
Average power[W]	30.7	30.1
Hydrogen consumption[L]	19.4	19.9
Efficiency[%](LHV)	26.5	25.1

図9にフラiddiingとドライアウトが混在する運転を模擬した時の運転温度およびドライアウトの制御を行ったセル2の電圧, 抵抗分極の推移を示す。ドライアウトの検知条件としては, 抵抗分極が初期値から0.04V以上になった時であり, 検知後に冷却を行う。運転開始後400秒から539秒にかけて温度が上昇した際にセルの電圧が0.438Vから0.372Vに減少し, 抵抗分極の差が0.083Vに増加している。その後539秒から650秒において, ファンの制御が行われセル電圧の減少を抑制している。813秒から861秒において温度が62.2°Cから67.7°Cまで上昇し, セル電圧は0.425Vから0.381Vまで減少し, 抵抗分極の差は0.083Vまで増加している。その後860秒から927秒までファンの制御によりセル電圧が0.440Vまで増加し, 抵抗分極が0.046Vまで減少

した。このように抵抗分極を閾値としてドライアウトを制御により回避可能であることを示した。

図10に制御閾値の違いにおける抵抗分極を検知したセル3の電圧推移を示す。制御閾値が低いほどドライアウトを早く検知し, 制御を行っている。そのため, 制御閾値が0.02の時平均出力最も高くなっている。しかし, 本実験では, ドライアウトが起こること想定していたため誤制御は起こらないが, 制御閾値を低くするほど誤検知が生じやすくなることが考えられる。次に基準値である制御閾値が0.04の時, 平均出力及びドライアウトの検知時のセル3の平均電圧は, 制御閾値が0.06の時よりも高く, 0.02の時よりも低い。また, 制御閾値の高い0.06では制御回数, 冷却ファンの動作時間が最も少なくなった。これは, 定電流運転を始めてから最初に検知する時間が遅いことが要因と考えられる。また, ドライアウト検知時のセル3の平均電圧は0.30Vであるが1309秒では0.22Vと低くなっている。したがって, 提案手法ではセル電圧ではなく, 分極を制御指標としており, 温度によって分極の値が変わるため, 制御閾値が高いほどドライアウトの検知が遅れてしまう可能性がある。これらのことから, 実システムの適応のためには, 出力, 冷却ファンの動作時間だけでなく, 誤制御, 不具合の検知が遅くならないような適切な制御閾値を選定することが示唆される。

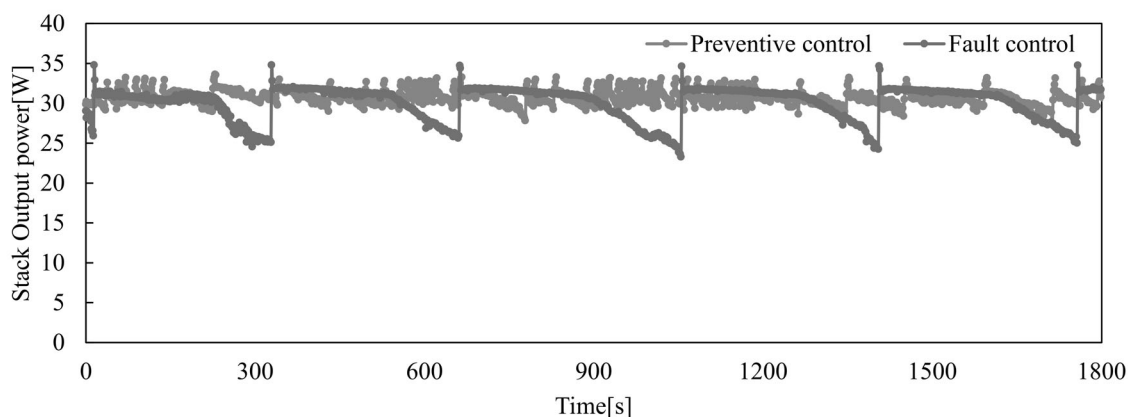
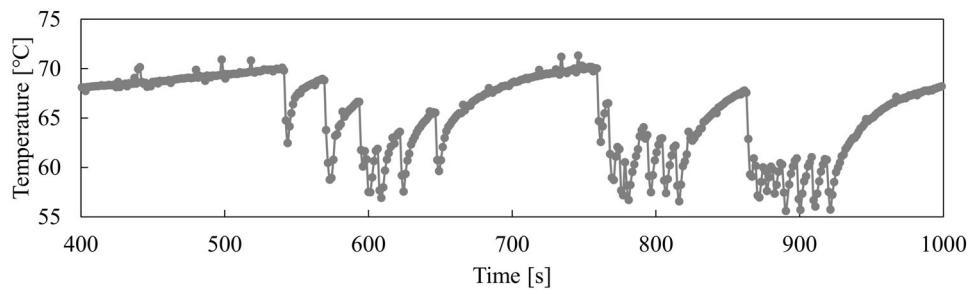
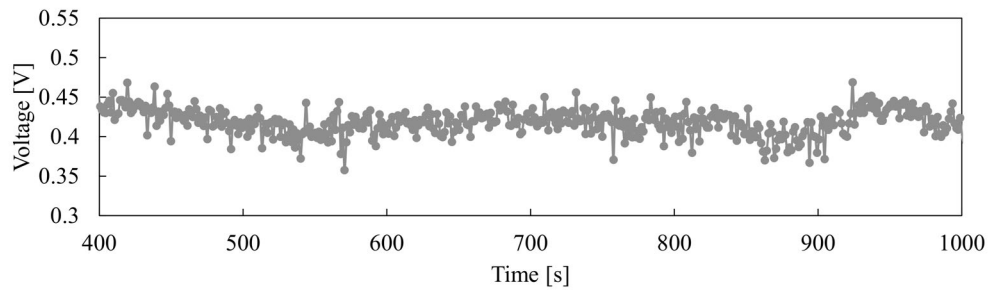


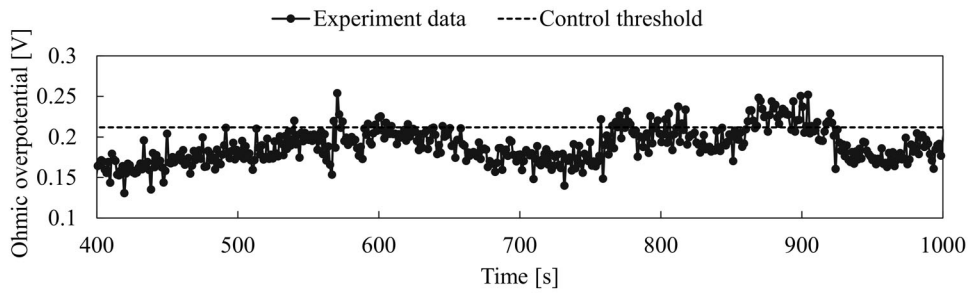
図8 予防制御手法と不具合制御手法スタック出力推移



(a) 運転温度



(b) セル電圧



(c) 抵抗分極

図9 フラッドイングとドライアウトが混在する運転を模擬した際のドライアウト検知および回避結果

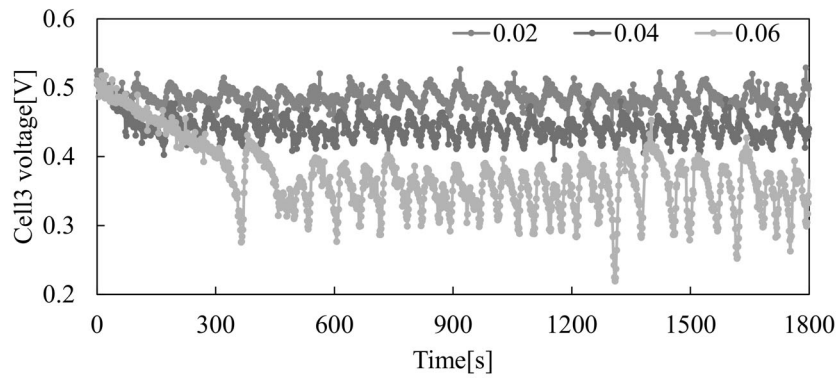


図10 ドライアウト制御閾値の違いにおけるセル3電圧推移

発表論文

- [1] Yuto Tsuzuki, Yutaro Akimoto, Keiichi Okajima, Preventive control method for stable operation of proton exchange membrane fuel-cell stacks, *AIMS Energy*, 11(1), 64-78, Jan. 2023.
- [2] Yutaro Akimoto, Yuta Izawa, Shin-nosuke Suzuki and Keiichi Okajima, Experimental investigation of stable PEMFC control using magnetic sensor probes, *Fuel cells*, Vol. 22, 1-2, pp. 2-11, April 2022

口頭発表, 受賞等

- [3] Yutaro Akimoto, Shin-nosuke Suzuki, Keiichi Okajima, "Evaluation of current intensity distribution of PEMFC based on 4-points magnetic field measurement", *Proceedings of the International Conference on Applied Energy - ICAE2022*, Vol. 26, 10122, 1-4, Aug. 2022.
- [4] 都築祐人, 秋元祐太郎, 岡島敬一「燃料電池システムの安定稼働と発電効率向上のための予防制御手法の検討」『令和4年電気学会 電力・エネルギー部門大会 講演論文集』, 155, 2-5, pp. 7-8, 2022年9月
- [5] 都築祐人, 秋元祐太郎, 岡島敬一, 「分極特性に基づく水素利用率向上のための固体高分子形燃料電池における予防制御手法の検討」, 『電気学会全国大会 講演論文集』, 4-130, pp. 1-2, 2022年3月

参考文献

- (1) Rui Lin, Xuwei Lin, Yuanming Weng, Yingshi Ren, "Evolution of thermal drifting during and after cold start of proton exchange membrane fuel cell by segmented cell technology", *International Journal of Hydrogen Energy*, Volume 40, Issue 23, April 2015, pp. 7370-7381.
- (2) Haruto MORITA, Takuya IKEDA, Masaaki IZUMI, Yuji GOTOH. (2023) Study on non-contacting diagnostic method of PEFC performance using magnetic sensors (Approach using sparse modeling). *Transactions of the JSME* 89:919, pages 22-00293-22-00293.
- (3) Lyes Ifrek, Sébastien Rosini, Gilles Cauffet, Olivier Chadebec, Luc Rouveyre, Yann Bultel, "Fault detection for polymer electrolyte membrane fuel cell stack by external magnetic field," *Electrochimica Acta*, Volume 313, 2019, pp. 141-150.
- (4) Junbom Kim et al, "Modeling of Proton Exchange Membrane Fuel Cell Performance with an Empirical Equation", *J. Electrochem. Soc.* 142, 1995 pp. 2670-2674
- (5) Yutaro Akimoto and Keiichi Okajima, "Semi-Empirical Equation of PEMFC Considering Operation Temperature", *Energy Technology & Policy*, 1:1, 2014, pp. 91-96.
- (6) Yutaro Akimoto, and Keiichi Okajima, "Simple on-board fault-detection method for proton exchange membrane fuel cell stacks using by semi-empirical curve fitting", *Applied Energy*, Volume 303, 1 December 2021, 117654