

構内走行試験による燃料電池の耐久性評価

米山 崇* 山本 貴光** 小川 賢一*

Durability Analysis of Fuel Cell by the Vehicle-Running Tests

Takashi YONEYAMA Takamitsu YAMAMOTO Kenichi OGAWA

Fuel cell is a promising electric power source of railway vehicles in the future. And its durability is important when it is used for railway vehicles. So, we investigated five factors which influence the decreasing rate of the fuel-cell's output voltage. By the running tests of a set of fuel-cell vehicles on our test track, it was demonstrated that the number of times of start stop and the number of duty cycles affected the degradation of the fuel-cell's performance.

キーワード：燃料電池，耐久性，劣化，起動・停止回数，サイクル数，運転時間

1. はじめに

燃料電池は水素を燃料として発電を行うクリーンな電源として注目されており，将来的に鉄道車両の電源としても利用される可能性がある。燃料電池を鉄道車両へ適用する際には，長期間の使用に耐える耐久性が重要である。また，長期的には寿命判断も必要となると考えられるが，鉄道車両で数年に渡る長期間燃料電池を運転した実績のある研究開発機関は，現時点で筆者らの他には見当たらない。

そこで，燃料電池の耐久性を検証するために100kW級燃料電池を搭載した試験車両の構内走行試験を行った。

燃料電池の耐久性において，性能低下が重要な評価指標であり，発生電圧の低下率に対する運転時間や起動停止回数など発電性能に影響を及ぼすことが予想される5つの項目との相関について分析した。以下に，その結果を報告する。

2. 固体高分子型燃料電池における触媒のはたらき

固体高分子型の燃料電池は，図1に示すように負極に水素，正極に酸素を供給すると，水の電気分解の逆の反応により電力を取り出すことができる発電装置であり，負極・正極ではそれぞれ以下の電気化学反応が生じている¹⁾。

負極側反応：

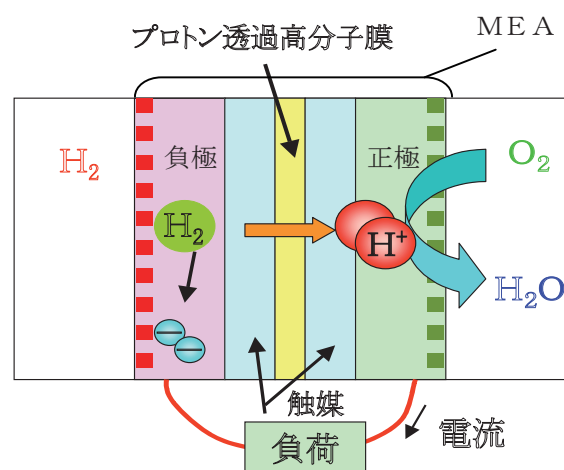
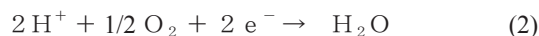


図1 燃料電池の発電のしくみ

正極側反応：



(1)の反応において水素が電子を生成する酸化反応と，(2)の反応において水が生成する還元反応には，それぞれ触媒の白金が寄与しているが，白金は貴金属であるため，使用量を極力少なくすることや，周囲の環境・状況により劣化しないことが望ましい。また，触媒の働きにより発生した電子は導電性の物質の中しか通過できず，一方，プロトン(H⁺)はイオン伝導性の物質の中しか透過できないという性質を持っている。

そこで，燃料電池の触媒層では図2に示すように，導電性のある炭素の粉末に，触媒である白金を微小な粒子として付着させ，さらにイオン伝導性の物質を付着させている。

燃料電池による発電の際には，図2に示すように水素

* 車両制御技術研究部 動力システム研究室

** 車両制御技術研究部 駆動制御研究室

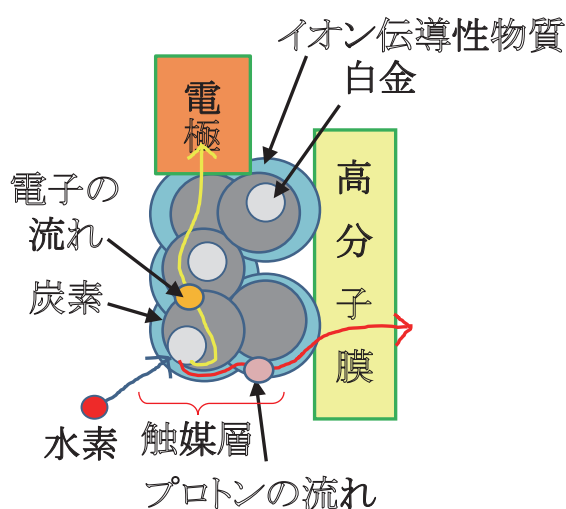


図2 燃料電池の触媒層の働き

分子は触媒に触れてプロトンと電子に分かれ、発生したプロトンはイオン伝導性物質と高分子膜を通り抜け、電子は導電性のある炭素の中を通り電極へ達する²⁾。このため触媒層の中の水素の流路、触媒、炭素、イオン伝導性物質のいずれが欠けても燃料電池は発電することができない。

なお、実際の固体高分子型燃料電池では、プロトン透過高分子膜（以下、高分子膜）・触媒・電極などを1枚に圧着したMEA（Membrane Electrode Assembly、膜電極接合体）とよばれるシート状のものを採用していることが多く、このMEAは燃料電池の開発の上で、最も重要な要素技術の一つとなっている。

3. 固体高分子型燃料電池の劣化要因

燃料電池は燃料の水素と酸化剤の酸素を供給し続けられ、連続的に電力を発生させることができるものであるが、時間の経過とともに不可逆的な性能の低下が発生してしまう。そこで、これを燃料電池の劣化と呼ぶこととする。燃料電池の劣化の要因としては以下のものが挙げられる。

3.1 触媒の劣化

炭素の表面に付着している触媒の白金は、表面積が広いことが燃料電池の発電反応に有利である。白金の有効利用の観点から、白金を微小な粒子状にしたものを触媒層に分布させているが、この白金の粒子同士が凝縮して粒径が増加してしまうと、触媒表面積が減少する。この場合、反応速度が低下して、発生電圧が低下してしまう。また、白金が付着している炭素の腐食により、白金が流出し触媒表面積が減少することでも、発生電圧が低下してしまう。

これらの現象は、高温度下や高電圧下で発生しやすいとされており、劣化を避ける運転方法が望まれる。

3.2 周囲環境による劣化

固体高分子型燃料電池の内部には、反応に使用した水が存在している。燃料電池の運転中は内部の温度が70℃前後あるため、水は気体または液体の状態であるが、運転停止状態で冬季に気温が氷点下になると、凝固し固体になってしまう。水は固体になると液体よりも体積が増えるため、燃料電池の内部で膨張した氷が、厚さ数十μmのMEAの膜を破壊し、発電不能になる場合がある。

また、高分子膜をプロトン（H⁺）が移動する際には、プロトンがイオンであることから、高分子膜を十分な湿润状態に保つ必要があるが、低湿度状態で燃料電池による発電を行うと、プロトンが十分に伝導できないことにより反応速度が低下し、一時的な出力電圧の低下が起こるだけでなく高分子膜を劣化させてしまい不可逆的な出力電圧の低下が発生する。

4. 劣化評価方法の代表例

燃料電池の劣化評価方法の代表的なものとして、出力電圧の低下を計測するものと、燃料電池内部で発生しているクロスオーバー量を測定するものがあり、以下にこれらの概要を述べる。

4.1 出力電圧の低下

燃料電池の発電装置としての性能を測定する際、出力電圧は最も基本的な性能指標であり、電圧計で容易に測定でき、運転中に計測可能というメリットを持ち合わせている。また、前章で述べたように、燃料電池は劣化すると出力電圧が低下することから、出力電圧の低下を測定することで劣化傾向を把握することが可能である。そこで、本報告では出力電圧の低下を劣化傾向の把握の指標とした。

また、最近の傾向として、鉄道車両に使用される装置の劣化を非分解でかつ運転中に測定できる項目から監視する状態監視技術が注目されており、出力電圧の監視による劣化傾向の監視は、その方法の一つになりうる。

なお、燃料電池は本報告で取り上げている固体高分子型の燃料電池の他にも、熔融炭酸塩型や固体酸化物型の燃料電池があり、これらの種類の燃料電池も劣化評価が行われている。劣化の指標として出力電圧の低下を採用しているものがあり、10%程度の電圧低下を寿命としているものが多い³⁾。

4.2 クロスオーバーの発生

燃料電池の内部に使用されているMEAは、本来プロトンは透過させるが、水素や電子は通過させない性能を

持っている。しかし、水素がプロトンに変化しないままMEAを通過してしまい、正極側で触媒の働きにより酸素と反応（局部的燃焼）してしまう現象があり、これをクロスオーバーと称する。クロスオーバーが発生すると、燃料が発電に寄与せずに消費されることから、燃料電池の発電効率を低下させるだけでなく、発生する熱や生成物によるMEAへの損傷、大量のクロスオーバーの発生による出力電圧低下による燃料電池の運転継続不能など、多くの不具合の原因となる。このことから、クロスオーバーの発生量も燃料電池の劣化・寿命指標の一つとなっている。しかしながら、クロスオーバーの定量的測定には運転停止状態において微量の水素透過をガスクロマトグラフを用いて測定するなどの必要があり、現在所有している燃料電池では測定が困難であった。

なお、クロスオーバーの大量発生を放置するとMEAの破損が予測されることから、燃料電池の異常電圧低下は常時、またMEAの異常ガス透過の有無は燃料電池の運転の前後に確認を行っている。



図3 100kW級燃料電池外観

表1 100kW級の固体高分子型燃料電池の仕様

最大出力 (Net)	120 kW
燃料	純水素
酸化剤	空気
出力電圧	900 ~ 600 V
起動時間	90 秒
質量	1850 kg
外形寸法	1.65 (L) × 1.25 (W) × 1.50 (H) m

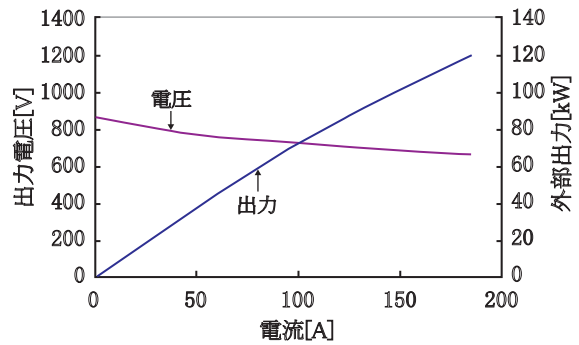


図4 燃料電池の出力・電圧・電流特性

5. 出力電圧の測定方法

燃料電池の劣化を検証するため100kW級燃料電池を搭載した試験車両の構内走行試験により燃料電池の発電性能を測定し、出力電圧による評価を行った。以下に、使用した燃料電池、試験電車の概要、試験方法と測定結果について述べる。

5.1 100kW級燃料電池

本報告で検証した燃料電池には100kW級の固体高分子型燃料電池を使用した。この燃料電池で使用する水素は気体の純水素を、酸化剤としては空気をコンプレッサにより供給している。この燃料電池は自身の運転に必要な周辺機器の電力も自ら発電することで、加湿や冷却を行っており、外部から独立した運転が可能である。燃料電池の外観を図3、主な仕様を表1、電流と電圧の特性を図4に示す。なお、燃料電池1セル（燃料電池の最小単位）で発生する電圧は約1Vであり、セルを100枚程度積層したものをスタックと呼び、さらのこのスタックを直列につなぐことで900～600Vの出力電圧を得ている。

燃料電池の電圧は図4に示すように、負荷が大きくなると下がる特性がある。また、温度が低いと、燃料電池の発電に必要なエネルギーが大きくなり、出力電圧が下がる傾向がある。したがって、燃料電池の出力電圧の経時的な変化を観測するためには、出力や温度環境などが性能比較に影響を及ぼさないよう、同一の運転点において比較する必要がある。

5.2 燃料電池・バッテリーハイブリッド試験電車

この燃料電池を車両用の電源の一部として搭載した試験電車（図5）を、鉄道総研内の構内試験線にて走行させ、燃料電池の劣化評価用のデータ収集を行った。試験電車は図6に示すように、燃料電池の他に回生エネルギー吸収用のバッテリーを搭載している⁴⁾。また、燃料電池の負荷パターンは図7に示す通り、一時的なアイドル状態

特集：車両技術

を除き、ほぼ一定の出力となっている。通常、車両の走行に必要な電力は運転状態によって大きく変わるものであり、今回使用した燃料電池・バッテリーハイブリッド試験電車の試験走行時の最大出力は360kW程度であった。この走行に必要な電力を、主にバッテリーから放電される電力を使用することで、燃料電池からの出力は走行抵抗や主回路機器での損失など、走行中に発生する損失分だけを走行・停車時間中に平均的に出力できればよい。これにより燃料電池の出力電流・電力はバッテリーからの電力と比較して小さく、概ね一定値とすることができる。なお、ブレーキ時には発生する回生電力をバッテリーに充電することを優先し、燃料電池は一時的にアイドル状態としている。



図5 燃料電池・バッテリーハイブリッド試験電車

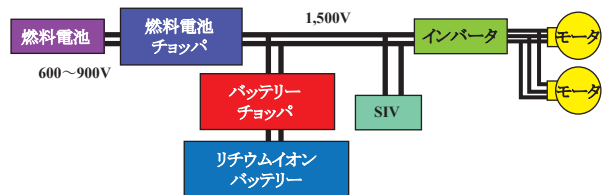


図6 燃料電池・バッテリーハイブリッド試験電車の主回路構成

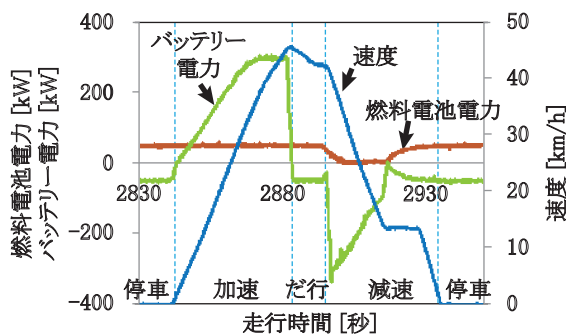


図7 燃料電池・バッテリーハイブリッド走行試験結果例

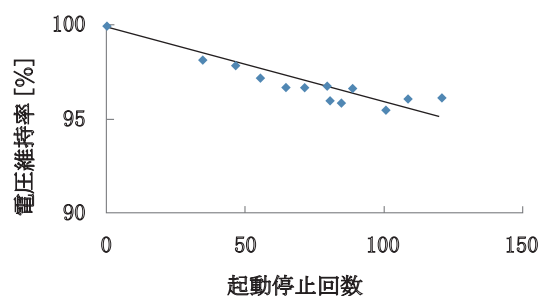


図8 起動停止回数と劣化の関係

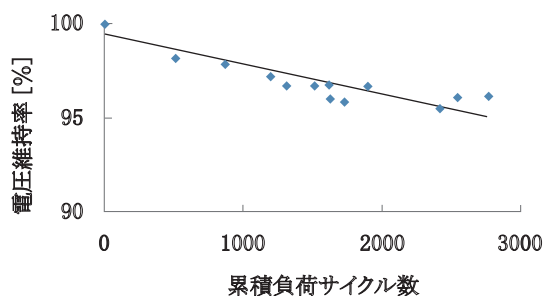


図9 累積負荷サイクル数と劣化の関係

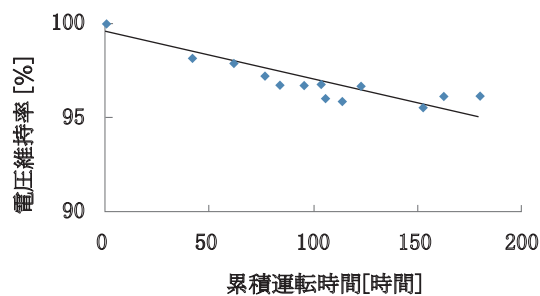


図10 累積運転時間と劣化の関係

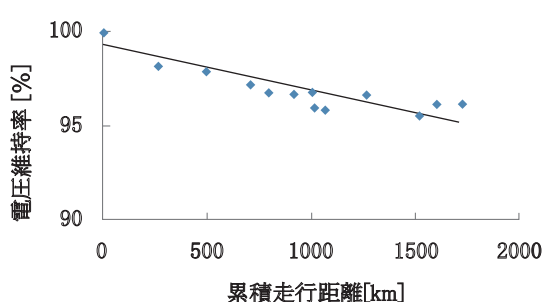


図11 累積走行距離と劣化の関係

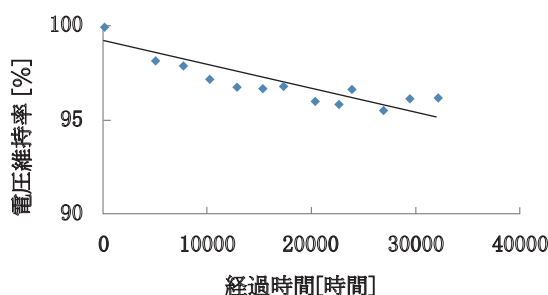


図12 経過時間と劣化の関係

5.3 燃料電池の出力測定結果

燃料電池の出力測定データの中から、表2の運転点における電圧測定結果を図8～図12に示す。図8の「起動停止回数」は、燃料電池の補機システムを含むシステムを停止状態から起動し、発電、その後停止させるまでの動作を1回とし、その回数を示したものである。図9の「累積負荷サイクル数」は、図13における高出力運転とアイドル運転がそれぞれ1回行われることを1サイクルとし、これが行われた回数を示している。図10の「累積運転時間」は燃料電池の稼働していた時間を示し、図12「経過時間」は、劣化評価を開始した時を起点として、そこから経過した暦上の時間であり、運転時間と停止時間の両方を含んでいる。

また、電圧維持率は劣化評価の開始時の燃料電池の出力電圧値を100%とし、そこからの減少分が劣化率となる。

図8～図12の測定結果より、劣化評価を開始した時点より、約4%の出力電圧低下がみられ、徐々に劣化していることが認められるが、これらの図からどの要因が劣化に影響を及ぼしやすいかを読み取ることは難しい。そこで、この測定結果から、燃料電池の劣化に影響を与えると考えられる要因を定量的に判断できるように、燃料電池の出力電圧の低下が、一次関数的に起こると仮定して、その相関係数を求めたものを表3に示す。なお、燃料電池の出力電圧は運転時間や負荷サイクル数が増えるに従って減少していく負の相関があるため、相関係数が-1に近いほど相関があるといえる。

表3より、燃料電池の出力電圧の低下（劣化）は、起動停止回数との相関が最も大きく、次いで累積負荷サイクル数の相関が大きいことが分かった。このことから、燃料電池を鉄道車両に適用する際には、鉄道車両のメンテナンス周期の目安となる累積走行距離や経過時間といった項目の他に、燃料電池特有の劣化傾向を考慮する必要があることがわかった。

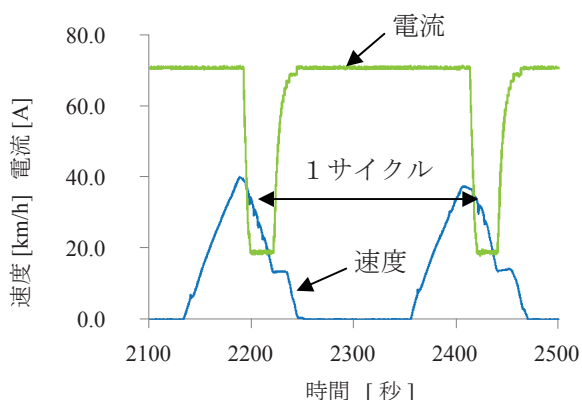


図13 燃料電池の負荷パターン

表2 劣化評価に使用する燃料電池の運転点

項目	条件
出力電流	95～100 [A]
電池温度	66～70 [°C]
吸気温度	47～53 [°C]
排気温度	55～60 [°C]

表3 耐久評価項目による耐久性との相関係数の比較

No	耐久評価項目	相関係数
1	起動停止回数	-0.9017
2	累積負荷サイクル数	-0.8814
3	累積運転時間	-0.8750
4	累積走行距離	-0.8722
5	経過時間	-0.8584

6. 劣化の要因の推定

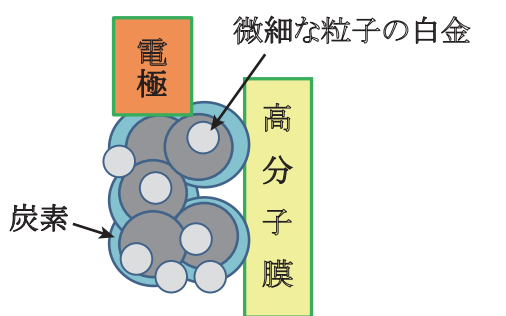
燃料電池の劣化において、起動停止回数、累積負荷サイクル数、累積運転時間との相関が大きいことが分かった。これらの要因と燃料電池の劣化との関係について、以下に述べる。

6.1 燃料電池の起動停止回数

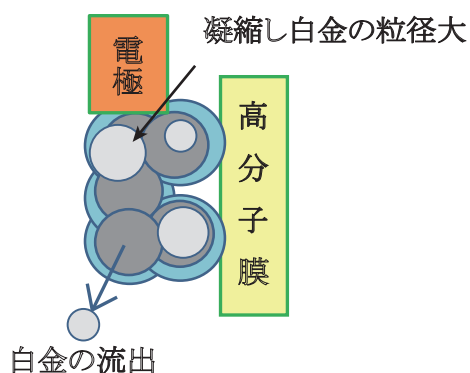
燃料電池の運転において、MEAの十分な加湿が劣化防止に必要であるが、本報告で使用した燃料電池は、燃料電池の運転に必要な加湿や冷却のための周辺機器への電力の供給も自ら発電した電力で行っているため、燃料電池の起動前には十分な加湿を行うことができず、低加湿状態で起動が行われている可能性がある。また、固体高分子型の燃料電池の運転温度は70°C程度が、MEAへの加湿や発電効率の点で有利とされているが、燃料電池の起動時には燃料電池の温度は常温であり、加湿のための水分が十分に蒸発していないことで一時的な低湿度状態になっていることが考えられる。

MEAは、本来、プロトン(H⁺)のみを通過させ、水素分子や電子を直接通過させない役割を持っているが、低湿度下では水素がプロトンに変化できないまま、高分子膜を通過してしまうクロスオーバを発生させやすく、これにより高分子膜を劣化させてしまい、不可逆的な出力電圧の低下が発生することが考えられる。

以上のことから、起動時における燃料電池内の湿度管理が重要であり、電車など移動体向けでは1日1回～数



(a) 健全な触媒層



(b) 劣化が進んだ触媒層

図 14 触媒層の変化

回の起動・停止が行われることから、起動時の加湿方法について十分な検討が必要である。

6.2 累積負荷サイクル数

本検討で使用している燃料電池・バッテリーハイブリッド車両では回生時に燃料電池の出力を絞るため、図7や図13のような負荷パターンになっている。

燃料電池は図4に示したように、無負荷時に高い電圧を発生するが、この電圧が高分子膜や触媒を劣化させることが知られている²⁾。このため、累積負荷サイクル数が増えると劣化が進んでいくことが考えられる。

累積負荷サイクル数を減らすためには、燃料電池を一定負荷で連続運転をすればよいが、この方法では車両のブレーキ時にバッテリーは燃料電池の発電電力とモータからの回生電力の両方を吸収しなければならず、機器の大容量化が必要になる。

この他に、無負荷による劣化を防ぐために、本装置に採用しているように燃料電池へ空気を供給させるためのコンプレッサや、冷却水を循環させるポンプなどの補機で使用する電力を燃料電池自身から供給することで燃料電池の無負荷運転を低減する方法がある。

6.3 累積運転時間

燃料電池の累積運転時間が長くなると、図14に示すように、触媒の白金の微小な粒子同士が凝縮して粒径が増大し表面積が減ることや、白金が付着している炭素の腐食が起これ白金が流出してしまうことで反応できる表面積が減ることが知られている²⁾。

燃料電池の累積運転時間を減らすためには、低出力運転時（アイドル状態）に燃料電池を停止させるなどの方法が考えられるが、この方法は燃料電池の起動停止回数を減らすことはトレードオフの関係になる。

現段階では、燃料電池の起動停止回数と累積運転時間のどちらも、劣化との相関が大きいと、どちらの要因の方が劣化に与える影響が大きいか、今後、さらなる検証を行う必要がある。

7. 結論

今回の検証で、燃料電池を鉄道車両に適用した場合の劣化特性について、現段階で最も影響が大きい項目は燃料電池の「起動停止回数」であり、ついで「累積負荷サイクル数」の影響が大きいことが分かった。

このことから、燃料電池を鉄道車両に適用する際には、鉄道車両のメンテナンス周期の目安となる累積走行距離や経過時間といった項目の他に、燃料電池特有の劣化傾向を考慮する必要があることがわかった。

今後は、燃料電池の出力低下が10%程度となるところまで確認することを目標に、劣化にいずれの要素が影響が大きいのか、検証を行いたいと考えている。また、徐々に劣化していく要素の他に、故障などのように急激に性能低下を起こす要素がないか、周辺機器で故障を発生させやすい部品がないかなど検証を行っていく。

本研究開発の一部は国土交通省からの補助金を受けて実施した。

文献

- 1) 山本貴光, 米山崇, 小川賢一: 固体高分子型燃料電池の制御方法と最近の開発動向, 鉄道総研報告, Vol.20, No.7, pp.41-46, 2006
- 2) 水素・燃料電池ハンドブック, 水素・燃料電池ハンドブック編集委員会, オーム社, 2006
- 3) 燃料電池発電, 燃料電池運転性調査専門委員会, コロナ社, 1994
- 4) 山本貴光, 長谷川均, 古谷勇真, 小川賢一: 燃料電池・バッテリーハイブリッド車両のエネルギー効率評価, 鉄道総研報告, Vol.23, No.11, pp.17-22, 2009