

氏名（本籍） ^{とも} ^だ ^{けい} ^{すけ} 友 田 圭 祐（神奈川県）
学位の種類 博士（工学）
学位記番号 甲第 941 号
学位授与の日付 平成 29 年 3 月 18 日
学位授与の要件 学位規則第 4 条第 1 項該当
学位論文題目 粉体 NaBH_4 を水素燃料とする燃料電池システムのモデルに基づく供給水素圧力の変動抑制法

論文審査委員 （主査）教授 星 伸一
教授 木村 真一 教授 古川 昭雄
教授 堂脇 清志 教授 早瀬 仁則

論文内容の要旨

水素エネルギーの導入が我が国で積極的に進められている。その中でも燃料電池自動車（FCV: Fuel Cell Vehicles）では、限られたスペースに有効に水素燃料が積めるように、体積エネルギー密度の高い燃料積載方法が求められている。この課題に対し、高い水素貯蔵密度を有し、加水分解により水素を生成する水素化ホウ素ナトリウム（化学式: NaBH_4 、英語名: Sodium Tetrahydroborate）が注目されている。 NaBH_4 を燃料とする研究の代表例として、ダイムラー・クライスラー社が開発を行っていた FCV がある。しかし、水溶液化した NaBH_4 を燃料としたため、燃料タンクが大きくなってしまふ等の問題があり実用化には至らなかった。そこで田村らにより、 NaBH_4 を粉のまま水素燃料として搭載し、オンサイトで水溶液化した後、水素生成を行い発電する燃料電池システムが提案された。本論文では、このシステムを STEPS (Sodium TEtrahydroborate Power System) と呼んでいる。

本研究は、上記の STEPS を水素供給システムとして搭載した FCV (STEPS-FCV) を研究に行った。この STEPS において、燃料電池 (FC: Fuel Cell) の継続的な発電を行うための供給水素量の制御法として、FC スタックへの供給水素圧力（以後、供給水素圧力）が FC の定格水素圧力範囲に追従するように NaBH_4 水溶液の供給速度を段階的に切り替えて制御する方法（従来水素圧制御法）を、本研究開始以前は適用していた。しかし、 NaBH_4 による水素生成反応は時定数が大きいうえ、反応場温度や触媒条件などの要因に大きく依存する。よって、FC のパーズ動作時や STEPS を搭載した際の負荷急変時における定格水

素圧力範囲を大きく超えるような変動が、供給水素圧力の制御時において大きな外乱要素となっていた。このような外乱による供給水素圧力の変動は、FC スタックのセル膜の劣化や発電能力の低下を招く恐れがあった。以上に示す課題は、従来水素圧制御法が実験的に導かれた燃料供給法を採用しているため、STEPS で生じる外乱に対し適切な制御法が検討できていないことに起因する。そのため、これらの外乱を抑制する新規の水素圧制御法が求められていた。

本論文では、STEPS の定常運転時（反応場温度が 70℃～100℃）における安定的な供給水素圧力制御の確立を目的とし、ページ動作や FC の負荷変動などの STEPS で生じる外乱を抑制する新規の水素圧制御法を提案する。以下に、本論文で提案する新規の水素圧制御法の導出手順を示す。第一に、反応場の環境を考慮した供給水素圧力を推定する水素圧制御法の数値シミュレーションモデルを構築する。第二に、構築した水素圧制御法の数値シミュレーションモデルを利用して、STEPS で生じる外乱を抑制する新規の水素圧制御法の検討を行い、シミュレーションと実験により有効性を検証する。以上に示す手順で検証することにより、供給水素圧力を FC の定格水素圧力に収束させる新規の水素圧制御法の効果を迅速かつ正確に、安全に、低コストで検討できると考えられる。以下より各章の概要を述べる。本論文は 6 章から構成されている。

第 2 章では、STEPS における水素生成のための動作や、FC の継続発電を可能にする水素圧制御法、水素生成速度を促進するための触媒検討、STEPS の始動運転時に高速水素生成を行うコールドスタート法などについて述べる。さらに、STEPS の基本性能の評価と水素貯蔵密度の考察を行う。最後に、研究中の STEPS-FCV の概要について示す。

第 3 章では、供給水素圧力を FC の定格水素圧力範囲に収束させる新規の水素圧制御法の基礎を確立するため、 NaBH_4 の水素生成反応における反応速度式の導出、およびそれをベースとした水素生成速度と供給水素圧力を推定する数値シミュレーションモデルを構築する。まず、水素生成速度の数値シミュレーションモデルを構築するうえで、 NaBH_4 の水素生成反応における反応速度式（反応次数、活性化エネルギー、頻度因子）の導出を行う。STEPS の定常運転時に想定される反応場温度が 66.2℃～86.2℃の範囲で、かつ Raney Ni を触媒として用いた場合に、水素生成速度は反応場の濃度に比例する一次反応とみなせることを明らかにする。さらに、Raney Ni 触媒が反応時に浮遊状態で存在している場合において、触媒の総表面積に比例して頻度因子を求めても問題がないことを明らかにする。次に、上記の結果を基に水素生成速度の数値シミュレーションモデルを構築することで、規定された反応場温度と触媒の総表面積の条件下にて水素生成速度を推定できることを、実験値との比較により示す。最後に、妥当性を示した水素生成速度の数値シミュレーションモデルを基に、ページ動作の要素を加えた水素圧制御法の数値シミュレーションモデルを構築し、規定された反応場温度と触媒の総表面積の条件下において供給水素圧力を推定できることを、実験値との比較により示す。

第 4 章および第 5 章では、第 3 章で妥当性を示した供給水素圧力を推定可能な数値シミュレーションモデルをベースとし、STEPS で生じる外乱を抑制する新規の水素圧制御法を提案し、シミュレーションと実験によりその有効性を示す。

第4章では、FCで周期的に作動するパージ動作に起因する供給水素圧力の変動抑制を目的とした、パージ補償制御法を用いた水素圧制御法を提案する。FCでは、一定間隔で弁を開いて、FC内部に蓄積された不純物や水蒸気を外部に排出するパージ動作が行われ、これが外乱となり供給水素圧力が急峻に低下してしまう。そこで、パージにより排出される水素量と同量の水素を生成できる NaBH_4 水溶液を、制御器が出力する供給速度に加えて一定時間前の最適なタイミング（最適補償タイミング）で供給することで、パージ動作の外乱を抑制する制御法（パージ補償制御法を用いた水素圧制御法）を提案する。まず、パージ補償制御法を適用するにあたり最適補償タイミングの導出は必須であるため、第3章で構築した水素圧制御法の数値シミュレーションモデルを利用して検討を行う。その結果、最適補償タイミングを導出し、本研究で検討したFCの出力電力が4kWまでの領域において供給水素圧力を変動抑制可能であることを示す。特にパージ動作の影響が大きくなる高出力の領域において供給水素圧力の変動抑制効果は大きく、提案するパージ補償制御法を用いた水素圧制御法が有用であることを示す。次に、シミュレーションで導出した最適補償タイミングを基に、実験における最適補償タイミングの導出を行い、提案パージ補償制御法の有効性を示す。その結果、最適補償タイミングはシミュレーション結果と近い値を示し、FCの発電電力が大きい領域であればあるほど、供給水素圧力の変動抑制効果が高いことを示す。

第5章では、STEPSを自動車に適用した際に特に顕著となる負荷変動幅が大きい場合について、提案水素圧制御法による供給水素圧力の変動抑制効果を検討する。STEPS-FCVに用いられている電力変換回路では、急速なFCの劣化進行を抑えるためにFCからの入力電流指令値にローパスフィルタを掛け、その一方で急峻な負荷電力の変動を電気二重層キャパシタに負担させる複合電力変換回路制御法（MPC制御法: Multiple Power Converter Control）が、先行研究で提案されている。このMPC制御により、負荷急変条件下においてもFCの出力電力の変動は緩やかになることから、水素消費速度の変動も緩やかにできることが期待できる。そこで、提案水素圧制御法とMPC制御法を組み合わせることで、急峻な負荷変動による外乱を抑制する水素圧制御法について提案する。まず、車速から供給水素圧力を推定可能な数値シミュレーションモデル（STEPS-FCVモデル）を、第3章で構築した水素圧制御法モデルと、先行研究で妥当性が示されているMPC制御モデルを組み合わせることによって構築する。次に、構築したSTEPS-FCVモデルの妥当性とMPC制御法を用いた水素圧制御法の有効性を示すために、学内の平坦路を利用した走行試験を行い、供給水素圧力のシミュレーション値と実験値がよく一致することを示したうえ、供給水素圧力をFCの定格水素圧力範囲内に収束可能であることを示す。最後に、MPC制御法を用いた水素圧制御法の有効性を検証するため、JC08モードを参考にし、現状のSTEPS-FCVが定常的に出力できる最大電力を勘案した評価車速パターンを作成し、妥当性を示したSTEPS-FCVモデルを利用してシミュレーションを行う。その結果、供給水素圧力をFCの定格水素圧力範囲にほぼ収束可能であることを示す。また、MPC制御法に加え、パージ補償制御法を統合した水素圧制御法の有効性をSTEPS-FCVモデルを利用してシミュレーション検証を行い、供給水素圧力をFCの定格水素圧力範囲に制御で

き、さらにパージ動作による周期的な供給水素圧力変動も抑制可能であることを示す。
第6章では、各章で得られた結論を総括するとともに、今後の展望について述べる。

論文審査の結果の要旨

燃料電池自動車 (FCV: Fuel Cell Vehicles) では、限られたスペースに有効に水素燃料を積めるように、体積エネルギー密度の高い燃料搭載方法が求められている。この課題に対し、高い水素密度を有し、加水分解により水素を生成する水素化ホウ素ナトリウム (化学式: NaBH_4 , 英語名: Sodium Tetrahydroborate) を、粉のまま水素燃料として搭載し、オンサイトで水素生成を行い発電する燃料電池システムが提案された。本論文では、このシステムを STEPS (Sodium TEtrahydroborate Power System) と呼んでいる。

この STEPS で、燃料電池 (FC: Fuel Cell) の継続的な発電を行うための供給水素量の制御法として、FC スタックの定格水素圧力範囲に追従するように NaBH_4 の供給速度を段階的に切り替えて制御する方法 (水素圧制御法) を、本研究以前は適用していた。しかし、 NaBH_4 による水素発生は時定数が大きいうえ、反応場温度や触媒条件などの要因に大きく依存するため、FC のパージ動作時における FC スタックへの供給水素圧力 (以下、供給水素圧力) の周期的な振動や、負荷急変時における定格水素圧力範囲を大きく超えるような変動が生じ、FC のセル膜の劣化や発電能力の低下を招く恐れがあった。

そこで本論文では、STEPS の定常運転時 (反応場温度が $70\text{ }^\circ\text{C}$ 以上) における安定的な水素圧制御法の確立を目的に、パージ動作や FC の負荷変動などの STEPS で生じる外乱を抑制する水素圧制御法を提案している。

本論文は6章から構成されている。

第1章では、 NaBH_4 を水素燃料として用いることについての、先行研究や課題などが示されている。

第2章では、STEPS の構成と水素圧制御法、水素生成速度促進のための使用触媒の検討と STEPS の始動運転時に高速水素生成を行うコールドスタート法のほか、STEPS を搭載した燃料電池自動車の試作車である STEPS-FCV の概要が示されている。

第3章では、供給水素圧力を定格圧力範囲に収束させる新規の水素圧制御法の基礎を確立するため、 NaBH_4 の水素生成反応における反応速度式の導出、及びそれをベースとした水素生成速度と供給水素圧力を推定する数値シミュレーションモデルの構築が行われている。また、構築されたモデルが、規定された反応場温度と触媒条件下で、水素生成速度を推定できることが、実験値との比較により示されている。

第4章では、FC で周期的に行われるパージ動作に起因する供給水素圧力変動の抑制を目的としたパージ補償制御法が提案され、その有効性がシミュレーションと実験により示されている。

第5章では、STEPS を自動車適用した際に特に顕著となる負荷変動幅の大きい場合の圧力変動抑制効果が検討されている。STEPS-FCV に用いられている電力変換回路では、急速な FC の劣化進行を抑えるために FC の出力電流指令値にローパスフィルタをかけ、その一方で急峻な負荷電力の変動を電気二重層キャパシタに負担させる複合電力変換回路制御 (MPC 制御: Multiple Power Converter control method) が、先行研究で提案されているが、この制御により負荷急変条件下においても FC の出力電力の変動は緩やかとなることから、提案水素圧制御法により供給水素圧力を定格水素圧力範囲内にほぼ収束可能であることが示されている。

また、MPC 制御法とパージ補償制御法を統合した水素圧制御法の有効性を、1/5 スケールの JC08 mode を想定したシミュレーションにて検証を行い、FC の定格圧力範囲内に供給水素圧力を制御でき、周期的な圧力振動も抑制可能であることが示されている。

第6章では、総括と今後の展望が述べられている。

本論文により、 NaBH_4 を水素燃料として用いて燃料電池で発電するシステムであるSTEPSにおける水素生成速度モデルが明らかにされた。さらにそのモデルから導出された水素圧制御モデルを用いて、STEPSで生じる外乱を抑制する提案水素圧制御法の検討が行われ、シミュレーションと実験によりその制御法の有効性が示された。このモデルを用いることにより、新規の水素圧制御法の検討が容易になったと言える。よって、本論文は、博士（工学）の論文として合格と認める。