

燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた  
共通課題解決型産学官連携研究開発事業  
共通課題解決型基盤技術開発  
長寿命化・高性能化達成のための設計シミュレーターの開発

河瀬元明

国立大学法人 京都大学  
国立大学法人 東北大学  
国立大学法人 九州大学  
国立大学法人 東京大学  
国立大学法人 東京工業大学  
国立大学法人 東京農工大学  
国立研究開発法人 産業技術総合研究所



2024年7月19日

連絡先：河瀬元明  
国立大学法人 京都大学  
kawase@cheme.kyoto-u.ac.jp

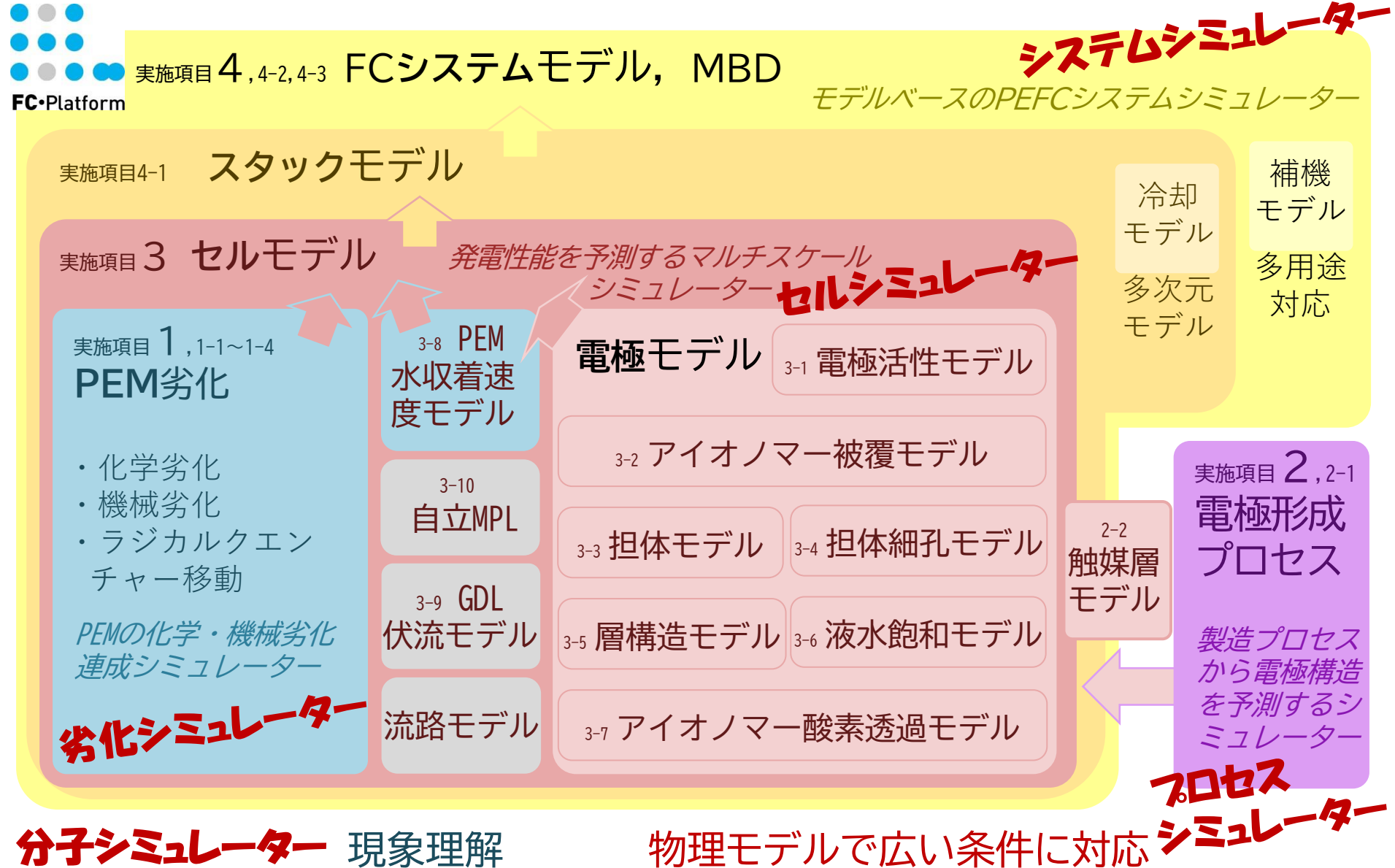
# 事業概要

## 1. 期間

開始：2020年7月  
2021年3月追加  
2021年8月追加  
終了：2025年3月

## 2. 最終目標

PEM劣化モデル，プロセス・性能シミュレーターの構成要素モデル，PEFCシステムモデルを構築し，**産業界で活用可能な数値シミュレーターを開発する。**



## 3.成果・進捗概要

### 実施項目1群. PEMの化学・機械劣化連成シミュレーターの開発

- pH、セリウムイオン濃度とOHラジカル濃度の関係を再現できる反応モデルを構築した。
- 分子量分布と機械強度の相関が得られた。

### 実施項目2群. 製造プロセスから触媒層構造を予測するシミュレーターの開発

- 異なるエタノール濃度や細孔径でのナフィオン凝集状態のシミュレーションが可能となった。
- ハンセン溶解度パラメーターを導入し、異なる溶媒比での凝集シミュレーション結果が実験結果と同様の傾向を示す（水リッチな溶媒の方が分散性が良い）ことを確認した。

### 実施項目3群. 発電性能を予測するマルチスケールシミュレーターの開発

- 担体内部の反応と物質輸送のRH依存性を考慮したモデルを導入した。
- 液水の連結性に基づいて白金触媒の利用率を評価した。

### 実施項目4群. モデルベースのPEFCシステムシミュレーターの開発

- 1+1Dモデル、船舶対応モデル（冷却系に水冷式熱交換器を採用）を追加した。
- Windowsアプリ版のグラフ出力に1Dチャートと1+1Dチャートの2種類を用意した。



# 1. 事業の位置付け・必要性

- ▶ 高効率，高耐久，低コストの燃料電池システムを実現するための**ユーザーニーズに基づく基盤技術**を開発 ⇒ 日本の燃料電池技術の競争力強化
- ▶ 新規に開発された材料に対して，物性値や特性値から，セルの**初期性能ならびに耐久性を予測 & モデルベース開発** (MBD)
  - ⇒ 多様なアプリケーション
  - ⇒ ボトルネックとなる材料・MEA特性と条件を明確化
  - ⇒ 新規材料の有用性を示す & 目標達成に向けた改良指針を提示

性能を最大限発揮する条件を高速探索      各種諸元の感度評価

- ▶ シミュレーション技術を産業界および学术界へ普及させ活用してもらう
  - ⇒ **新規プレイヤーの創出**

材料物性から最終燃料電池システム製品の特性を予測  
**材料からシステムへの橋渡し**

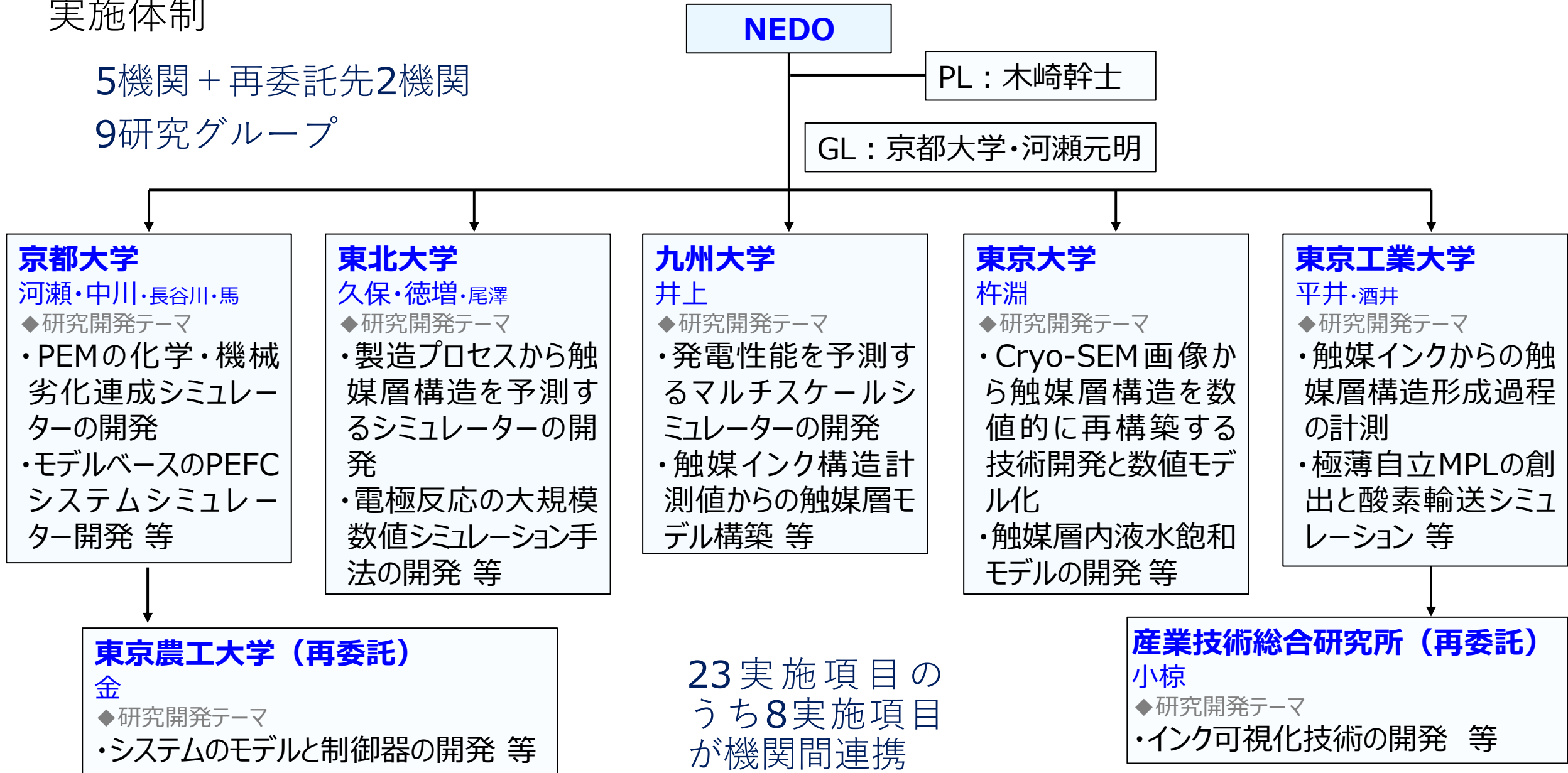


## 2. 研究開発マネジメントについて

### 実施体制

5機関 + 再委託先2機関

9研究グループ



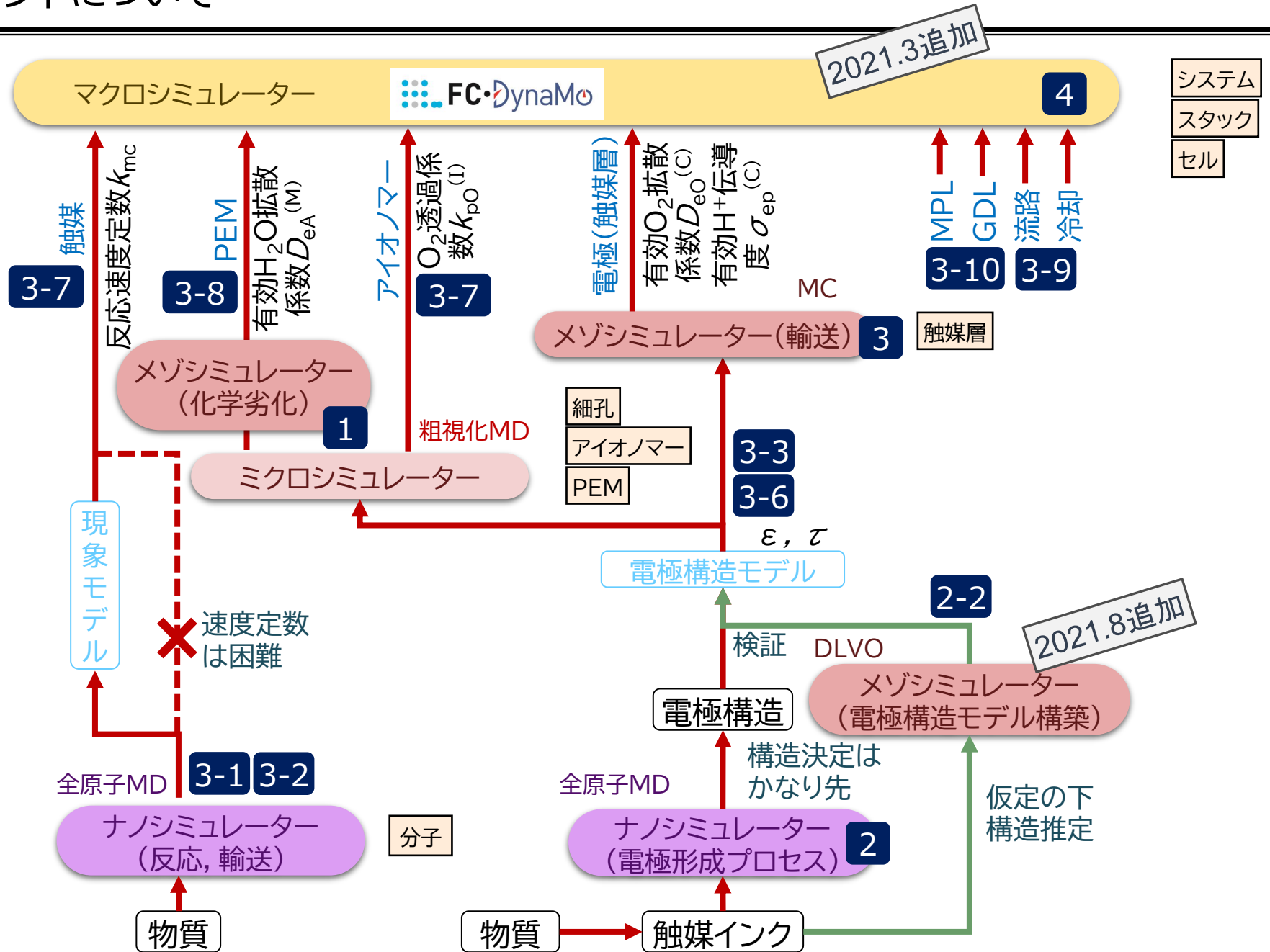
## 2. 研究開発マネジメントについて

ナノメートルスケール  
～マクロスケールのす  
べての層のモデリング、  
シミュレーター開発を  
同時並行で進めている

各層の間の情報の受け  
渡しが連携の鍵  
有効輸送物性値に集約

マクロシミュレーター  
では、必要なパラメー  
ターを仮決め、ミクロ  
シミュレーションの結果  
が出れば差し替える

注. 計測テーマは  
本図には示していない



### 3. 研究開発成果について

シミュレーショングループ技術検討会開催記録（2020年度～2021年度）

- (1) 2020/11/27 キックオフミーティング
- (2) 2021/3/3, 2021/3/9, (3) 2021/3/30, (4) 2021/4/27
- (5) 2021/5/12 「粒子分散系フィルムの乾燥過程と構造形成」 九工大 山村方人
- (6) 2021/5/31 「KRIの燃料電池/水素技術の紹介とPEFCの部材開発に関する技術トピックス」 KRI 佐々木達佳, 大八木晋輔, 松田敏彦, 堀内孝祐, 定塚哲也, 朝倉典昭
- (7) 2021/6/9
- 2021/7/1 プロジェクトレビュー
- (8) 2021/7/6 「新型MIRAIの燃料電池システム」, 「高性能・低コスト 第2世代燃料電池スタック」, 「次世代燃料電池スタック開発のためのマルチフィジックスシミュレーション」トヨタ自動車 井田敦巳, 池畑雄太, 山本 敦
- (9) 2021/7/14
- (10) 2021/7/19 「誘電率顕微鏡の原理と応用例」産総研 小椋俊彦
- (11) 2021/7/27 「多孔質電極内部のイオン伝導度の測定」産総研 城間純
- 2021/8/21 第5回FC-Cubicオープンシンポジウム～燃料電池開発におけるシミュレーションの進化～
- (12) 2021/9/9, (13) 2021/9/14 「FC電解質膜の化学劣化モデル」, 「FC電解質膜の機械劣化モデル」トヨタ自動車 山本敦巳, 市川亮輔
- (14) 2021/9/28 「量産電極乾燥条件」本田技研工業 石井徳朗
- (15) 2021/11/10, (16) 2021/11/16, (17) 2021/12/7 「Finding stable and active Pt-ternary surface for oxygen reduction reaction by machine learning and first-principles calculations」, 「水素限界電流を利用した燃料電池カソード触媒層のガス輸送抵抗解析」, 「アイオノマの細孔侵入自由エネルギーの解析」豊田中研 篠崎数馬,
- (18) 2021/12/20 「固体高分子形燃料電池の白金酸化・還元反応モデルと熱力学的性質」豊田中研 深谷徳宏
- (19) 2022/2/22 「触媒インクの乾燥過程シミュレーション」豊田中研 棟方稔久, 「PEFC触媒層製造のプロセスインフォマティクス」東大 長藤圭介
- (20) 2022/3/2

関心表明書  
LOI 29法人

### 3. 研究開発成果について

シミュレーショングループ技術検討会開催記録（2022年度～2024年度）

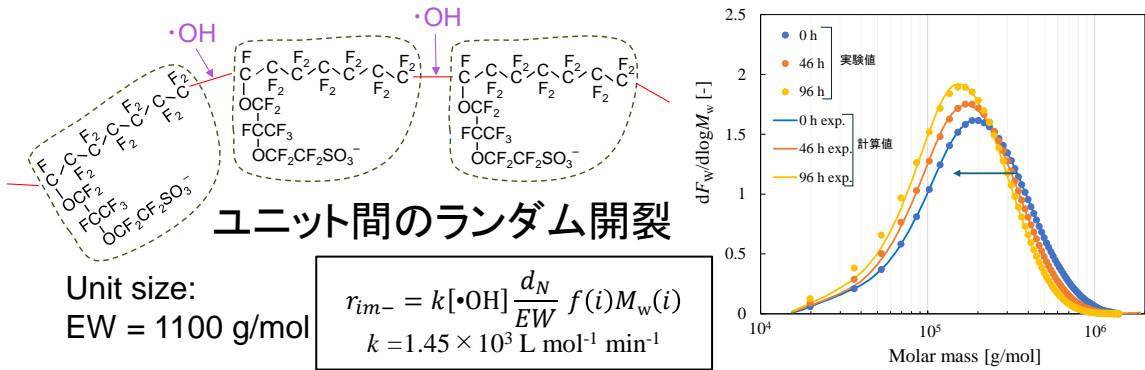
- (21) 2022/5/24 「燃料電池空気極の三次元微細構造を基にした物質輸送・反応計算」 豊田中研 山川俊輔
- (22) 2022/5/31 「Operando X線 Radiographyによる燃料電池内部の水輸送機構の解析」 豊田中研 加藤晃彦
- 2022/6/29 第2回FCワークショップ～FC-DynaMo概要説明、ライブデモ～
- (23) 2022/6/29
- (24) 2022/7/19 「メラミン修飾によるPtの活性・耐久性改善技術」 産総研 山崎眞一
- (25) 2022/7/20 2022/7/28 成果報告会
- (26) 2022/9/30 「放射光によるCe移動現象解析」 豊田中研 北野直紀
- (27) 2022/10/5
- (28) 2022/10/24 「触媒界面の分子動力学計算」 豊田中研 陣内亮典, 「電極触媒・アイオノマー界面の解析と今後の展望」 豊田中研 兒玉健作
- (29) 2023/1/31 「粒子分散系の基礎とHansen溶解度パラメータ解析による導電性ペースト設計」 関西大 川崎英也
- (30) 2023/2/3
- (31) 2023/2/8 「アイオノマ繊維からなる不織布を骨格とする燃料電池空気極触媒層の発電性能」 豊田中研 吉野修平
- (32) 2023/2/10 「いすゞのHDVへの取り組み」 いすゞ中央研究所 福永 晋
- 2023/3/14 第4回FCワークショップ～FC-DynaMo導入・活用セミナー～
- (33) 2023/4/26 他グループとの連携確認
- (34) 2023/4/27 NEDO福島水素エネルギー研究フィールド（F2HR）、デンソー福島見学
- (35) 2023/7/7 2023/7/13 成果報告会
- (36) 2023/8/2 「可視化実験で得られたGDL内液水凝縮量を再現するマクロ凝縮モデル」 豊田中研 稲垣昌英
- (37) 2023/10/2 「イオン交換樹脂からの炭素担持金属触媒の製造」 京大 藤埴大裕, 「固固反応によるメソポーラスカーボンの製造」 京大 蘆田隆一
- (38) 2024/1/22 継続可否審査資料確認
- (39) 2024/3/5～6 九州大学水素エネルギー国際研究センター、NEXT-FC見学（佐々木一成先生）
- 2024/3/27 第8回FCワークショップ～FC-DynaMoアプリ版ハンズオン、Matlab版オンライン体験セミナー～
- (40) 2024/5/8～9 「システム構成部品の機械構造劣化予測技術の紹介」 Nexus R&D 永尾理一



# 3. 研究開発成果について

## 実施項目 1. PEMの化学・機械劣化連成シミュレーターの開発

### 1-1. PEM化学劣化シミュレーターの開発 (京都大学)



電解質膜の化学劣化に伴う分子開裂モデルおよび分子量分布の変化を定量的に表す化学劣化シミュレータを開発した。

### 1-3. 酸化セリウムからのセリウムイオン溶出速度の計測と溶出制御法の開発 (東京工業大学)

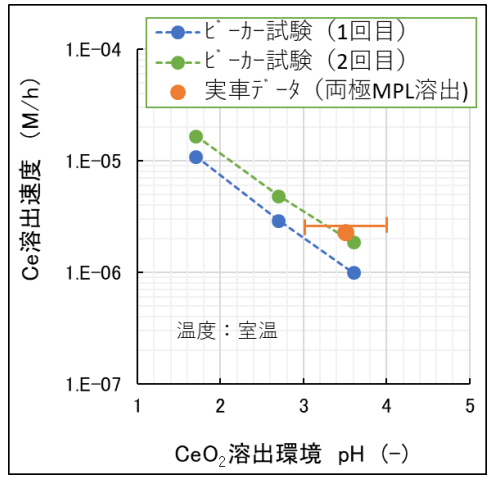
実車のMPL添加CeO<sub>2</sub>溶出移動速度を予測する実験式を導出した。

アノード側: 0.0012 μg/cm<sup>2</sup> × 停止時間 [h]  
 カソード側: 0.0009 μg/cm<sup>2</sup> × 停止時間 [h]

MPLへのCeO<sub>2</sub>仕込み量とpH環境(pH=4で算出)で決まる係数

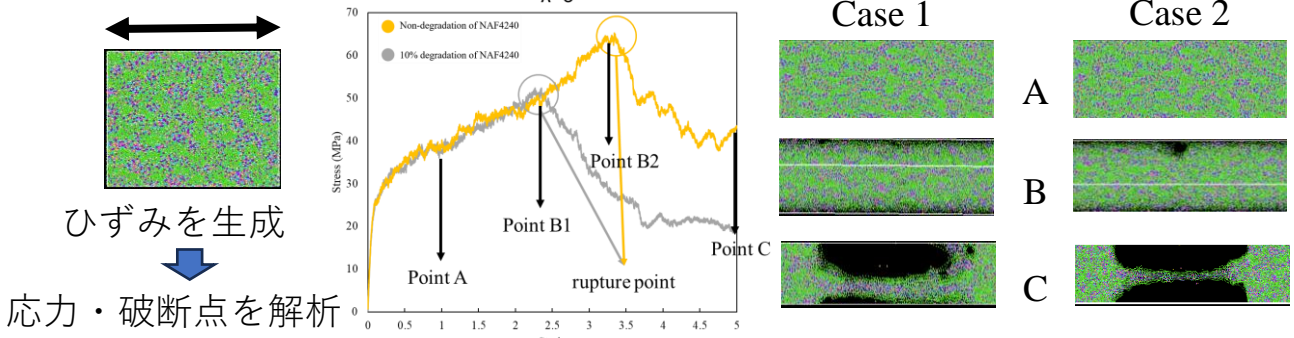
CeO<sub>2</sub>溶出移動速度の制御方法を提案

- 溶出加速: Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(III)の添加 (4倍加速)
- 溶出抑制: FCV停止時の空気パーシ増加



pH環境とCe<sup>3+</sup>溶出速度の関係

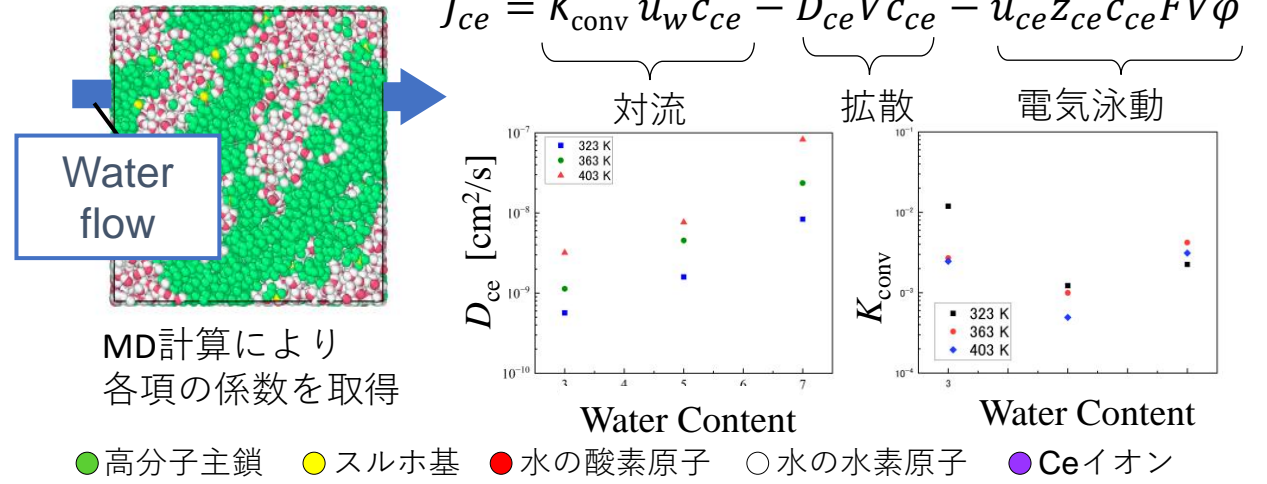
### 1-2. 応力下の補強膜高分子高次構造変化シミュレーターの開発 (東北大学)



● 高分子主鎖 ● 疎水部 ● 親水基 ● ヒドロニウムイオン ● 水の中心 ● 水の極性部分

高分子が開裂した膜の機械的強度が低下することを再現した。

### 1-4. セリウムイオン輸送モデルの構築とPEM内セリウムイオン分布予測シミュレーターの開発 (東北大学)



● 高分子主鎖 ● スルホ基 ● 水の酸素原子 ● 水の水素原子 ● Ceイオン

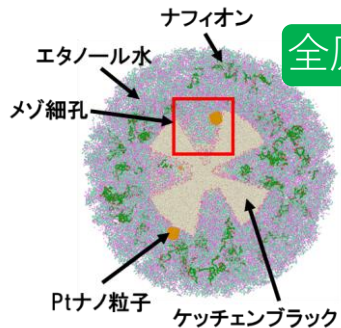
Ceイオン輸送特性(拡散係数、対流イオン輸送係数)を取得した。

# 3. 研究開発成果について

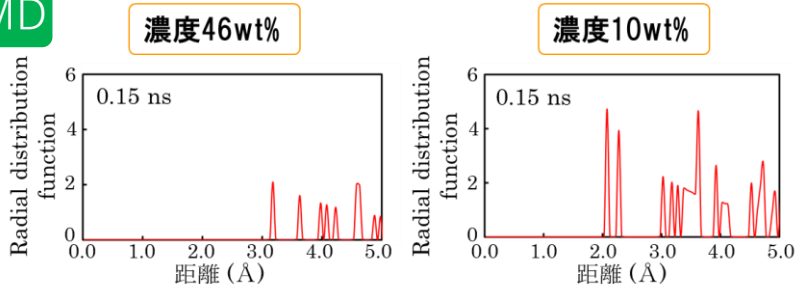
## 実施項目 2. 製造プロセスから触媒層構造を予測するシミュレーターの開発 (東北大学)

153万原子の触媒インクモデルの断面図

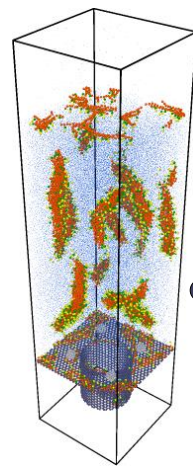
細孔内部の[Pt原子]-[ナフィオンのスルホ基のO原子]間の動径分布関数



全原子MD

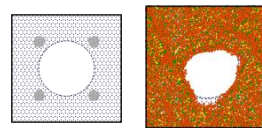


粗視化MD

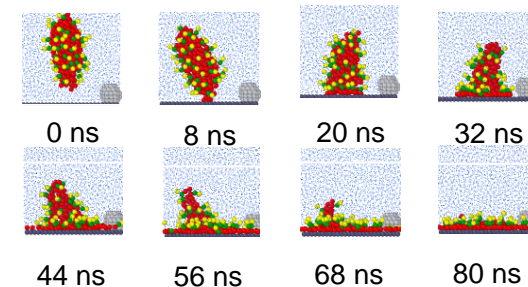
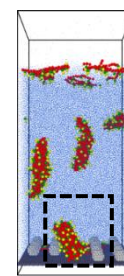


計算モデル

一次細孔上部のイオノマー被覆状態



イオノマー吸着プロセス



● 担持カーボン ● 白金粒子 ● 高分子主鎖 ● 疎水部 ● 親水基 ● 溶媒

触媒インクのイオノマー状態、イオノマー吸着プロセス、最終状態をMD計算により評価した。

異なるエタノール濃度の触媒インクモデルを用いた蒸発シミュレーション

EtOH10 wt%の方が細孔内部のナフィオン分布が増加

### 2-1. 触媒インクからの触媒層構造形成過程の計測 (東京工業大学)

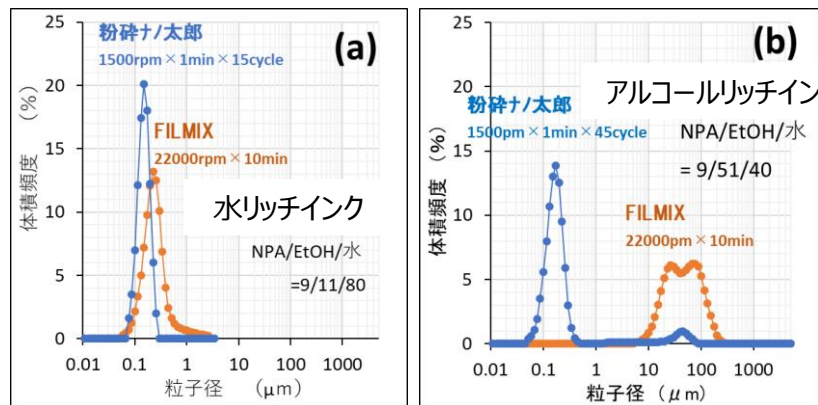
### 2-2. 触媒インク構造計測値からの触媒層モデル構築 (九州大学)

攪拌プロセスがインク粒度分布に与える影響の検証データとして提供した。

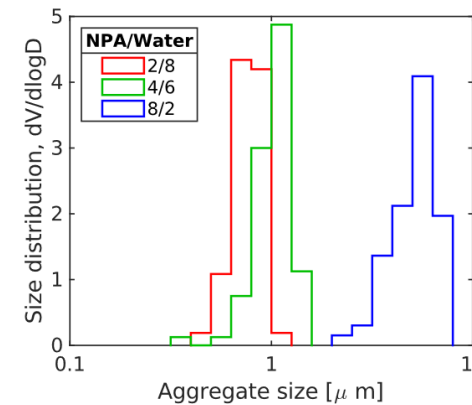
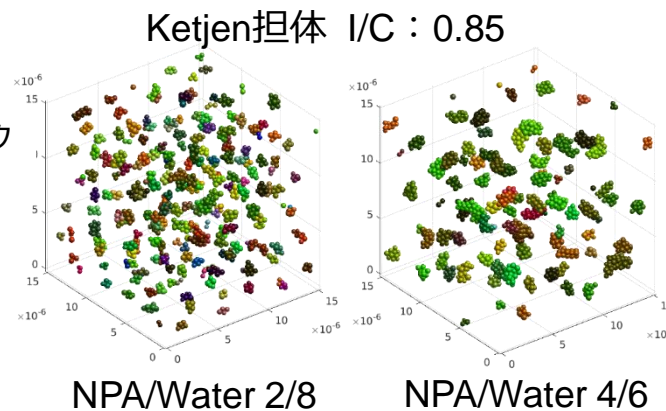
- ① 薄膜旋回型高速ミキサー: FILMIX®
- ② ボールミル型粉砕機: 粉砕ナノ太郎®

2種の攪拌装置でインク調製

水リッチインク: インク粒度分布に攪拌装置の相違なし(a)  
アルコールリッチインク: 粉砕ナノ太郎®採用時に顕著な分散化を確認(b)



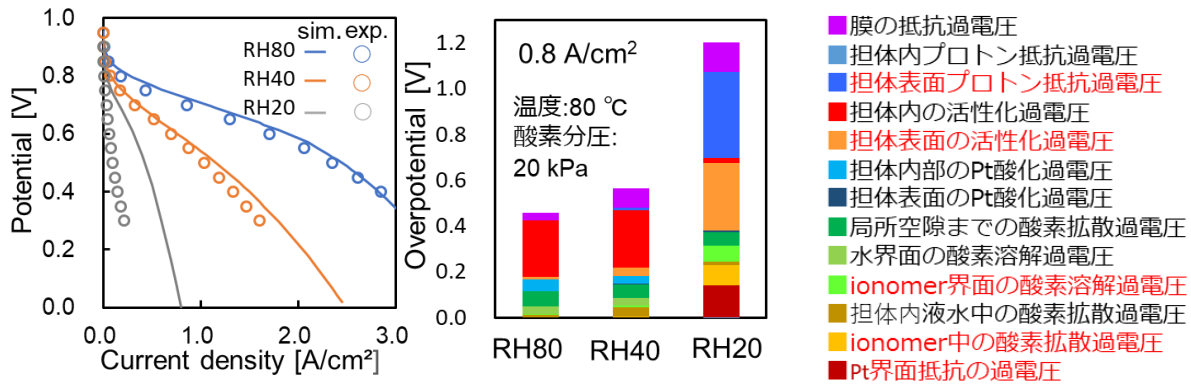
攪拌装置違いのインク粒度分布比較  
(a) 水リッチインク (b) アルコールリッチインク



ハンセン溶解度パラメータにより、水の比率の低下によるアグロメレート径の増加傾向を再現した。

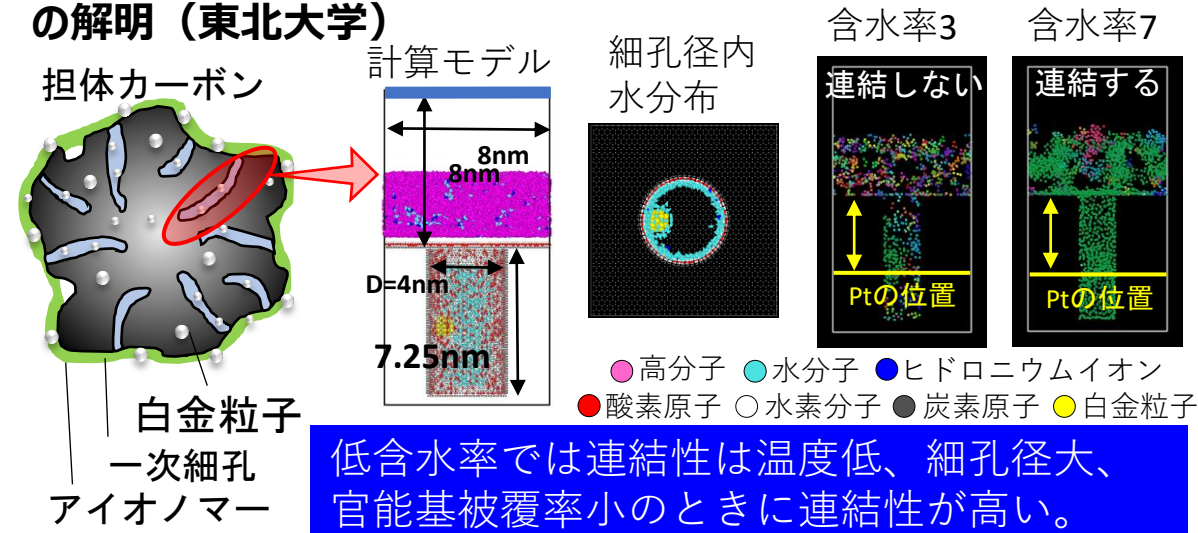
# 3. 研究開発成果について

## 実施項目3. 発電性能を予測するマルチスケールシミュレーターの開発 (東北大学, 九州大学, 東京大学)



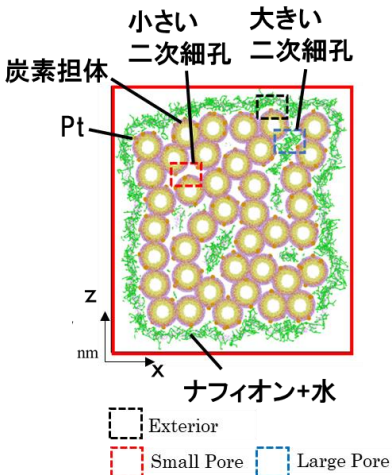
担体内部のPt利用率のRH依存性を反映させた計算

## 3-4. 触媒担体細孔中の水の状態および物質輸送特性の解明 (東北大学)

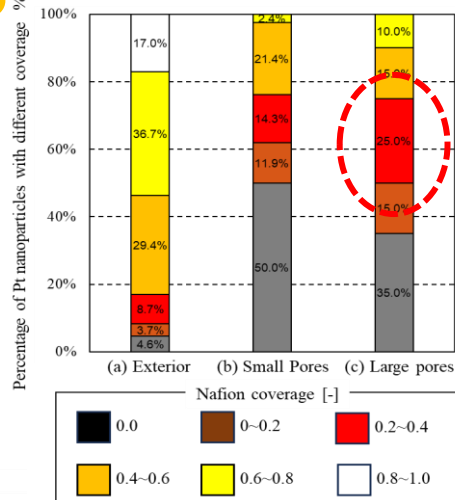


## 3-1. 電極反応の大規模数値シミュレーション手法の開発 (東北大学)

400万原子の大規模触媒層モデルの断面図



Pt粒子に対するナフィオン被覆率の分布



400万原子の大規模触媒層モデルを構築

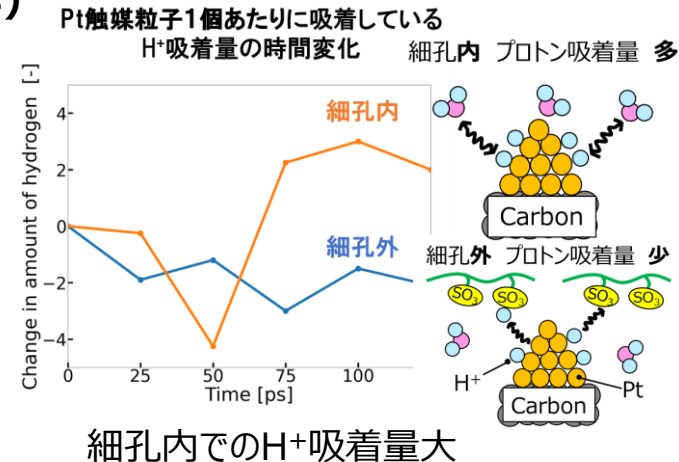
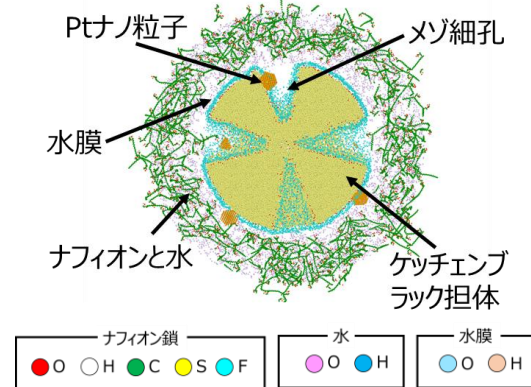
炭素担体の細孔におけるナフィオン被覆状態の解明

大きな細孔において被覆率が小さいPt粒子の割合が増加

良好なプロトン伝導と酸素分子の拡散が期待

## 3-2. 担体の細孔構造, アイオノマー被覆を改善する担体表面の設計法の開発 (東北大学)

ケッチェンブラック担体を用いた触媒層モデルの断面図

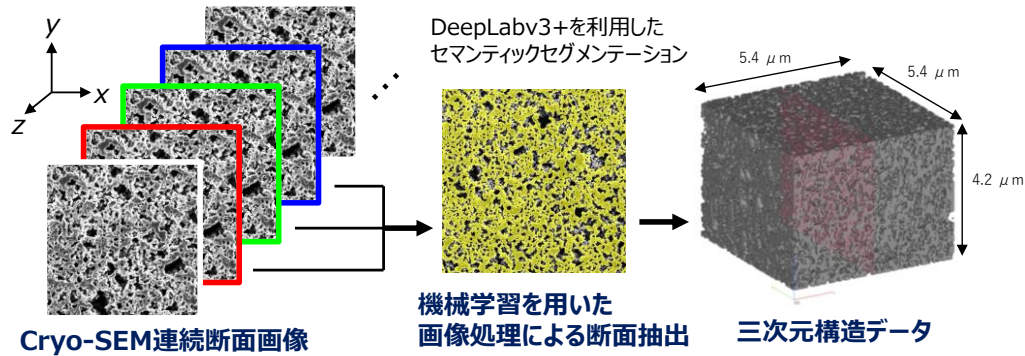


細孔内で高プロトン伝導性期待

# 3. 研究開発成果について

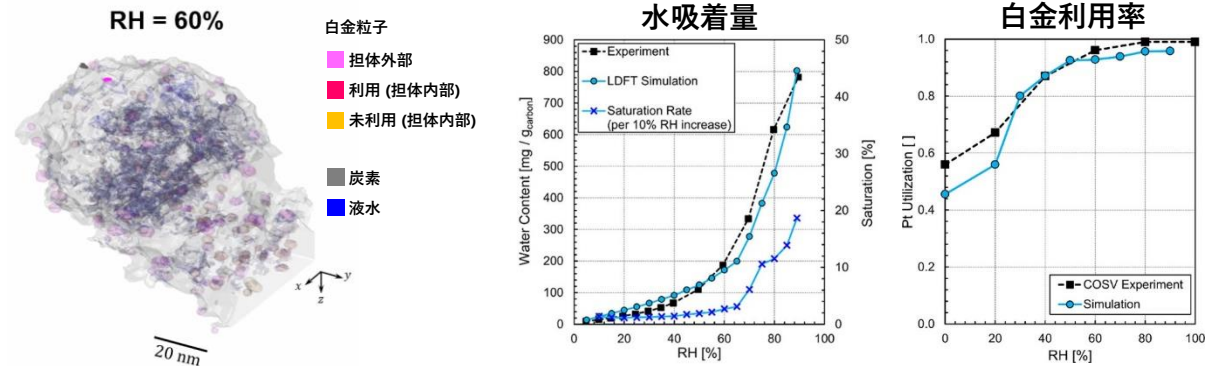
## 3-5. Cryo-SEM画像から触媒層構造を数値的に再構築する技術開発と数値モデル化 (東京大学)

触媒層試料のCryo FIB-SEM連続断面画像から高精度な三次元構造モデルを構築する手法を開発した。



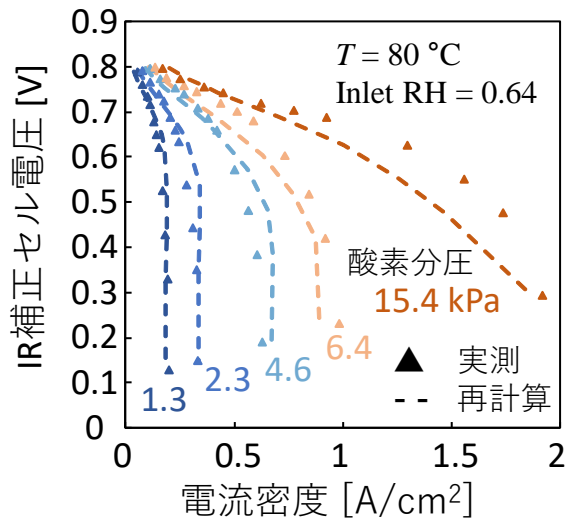
## 3-6. 触媒層内液水飽和モデルの開発 (東京大学)

触媒担体粒子(Mirai-2G)の3D-TEM構造データを対象に水の相変化を格子DFT法により解析し、白金触媒の利用率の相対湿度依存性を再現した。



C. J. C. Otic, S. Katayama, M. Arai, M. Matsumoto, H. Imai, I. Kinefuchi, ACS Appl. Mater. Interfaces 16, 20375 (2024).

## 3-7. 触媒層内アイオノマー薄層の酸素透過抵抗の定式化 (京都大学)



決定したパラメーター ( $T = 80\text{ }^\circ\text{C}$ )

$$k_{vcm}^\circ = 1.8 \times 10^9 \text{ mol}/(\text{Pa m}^3 \text{ s}) \times \exp\left(-\frac{E_{cm}}{0.0336 V}\right) \text{ RH}$$

$$a_v k_{pO} = 0.22 \exp(\text{RH}) + 0.31 \text{ mol}/(\text{Pa m}^3 \text{ s})$$

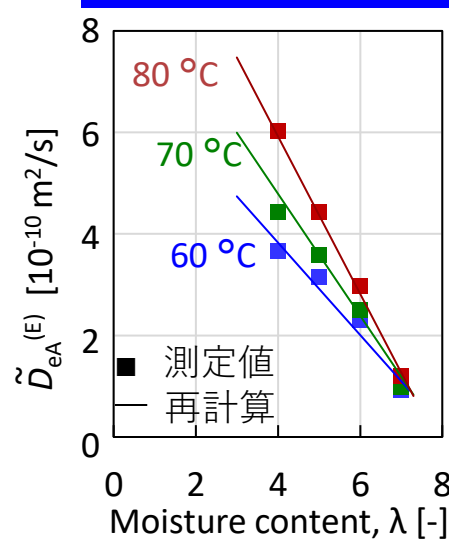
$$\sigma_{ep} = (\varepsilon/\tau) \sigma_p = 0.046 \sigma_p, (0.10 \leq \sigma_{ep} \leq 0.35)$$

$$D_{eO} = 1.5 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$$

炭素担持白金触媒を用いて測定したIVから、パラメーター ( $T = 80\text{ }^\circ\text{C}$ ) を決定した。

## 3-8. 電解質膜の吸水速度の定式化 (京都大学)

触媒層/膜中の有効拡散係数を定式化した。



膜  $N_A^{(M)} = -c^{(M)} \rho^{(M)} D_{eA}^{(M)} \frac{\partial \lambda}{\partial z}$

触媒層  $N_A^{(E)} = -c^{(M)} \rho^{(M)} \tilde{D}_{eA}^{(E)} \frac{\partial \lambda}{\partial z} = -c^{(E)} \rho^{(E)} D_{eA}^{(E)} \frac{\partial \lambda}{\partial z} - \frac{C_g D_{eS} \partial y_s}{1 - y_s \partial z}$

アイオノマー相での拡散 気相での対流・拡散

$$\tilde{D}_{eA}^{(E)} = (-1.55 \times 10^{-10} + 1.21 \times 10^{-9} \lambda) \exp\{-E_a^{(E)}/R(1/T - 1/T_{ref})\} \text{ m}^2/\text{s}$$

$$D_{eA}^{(M)} = (-7.58 \times 10^{-11} + 5.92 \times 10^{-10} \lambda) \exp\{-E_a^{(M)}/R(1/T - 1/T_{ref})\} \text{ m}^2/\text{s}$$

$$T_{ref} = 353.15 \text{ K}, E_a^{(E)} = (37.6 - 3.81 \lambda) \text{ kJ/mol}, E_a^{(M)} = (125.5 - 12.1 \lambda) \text{ kJ/mol}$$

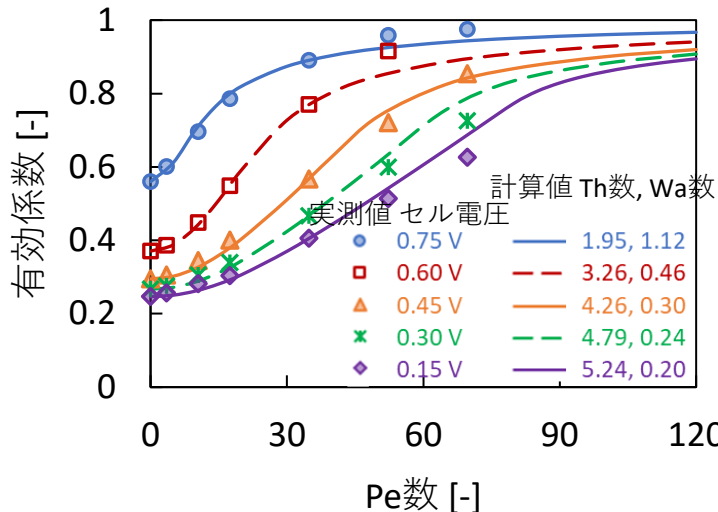
# 3. 研究開発成果について

## 3-9. 流路間伏流の定式化 (京都大学)

異なる流路間圧力差でのリブ下・流路下の有効電流密度比はペクレ数、ワグナー数、シーレ数に支配され、測定結果を精度よく再現できた。

$$Pe = \frac{K_D \Delta P}{\mu D_{eO}} \quad Wa = \frac{b_c}{i^{(F)} R^{(M)}}$$

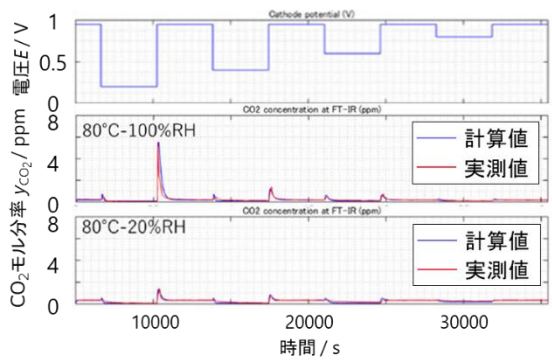
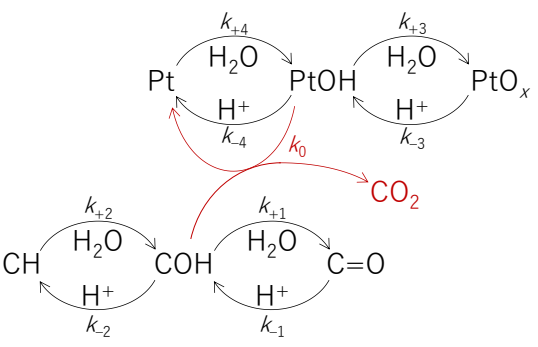
$$Th = \frac{W^{(R)}}{2} \sqrt{\frac{k_{gc} RT}{\delta^{(D)} D_{eO}}}$$



## 実施項目 4. モデルベースのPEFCシステムシミュレーターの開発 (京都大学、東京農工大学)

### 4-1. スタック性能・劣化モデルの開発 / 4-2. 多様なアプリケーションに対応するためのシステムのモデルと制御器の開発

### 4-3. 活用促進に向けたユーザビリティの改善



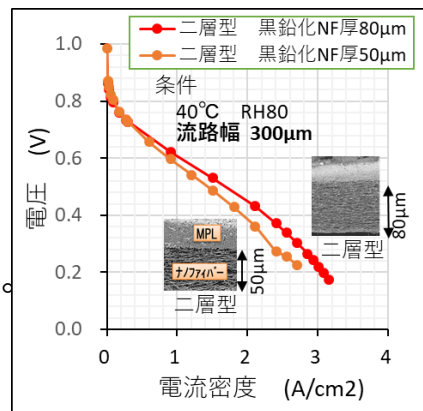
[C腐食] 収束演算が不要なモデリング手法を開発し、広範囲 (0.2~0.95 V、20~100 %、40~80 °C) でのC腐食測定結果を精度良く再現できることを確認した。

## 3-10. 極薄自立MPLの創出と酸素輸送シミュレーション (東京工業大学)

実機流路ピッチ条件で極薄GDLの性能改善の見通しを確認した。

極薄GDL課題  
実機相当(300 μm幅)流路で性能を再現できず。

改善策  
流路部分の面圧不足を解消のため、黒鉛化ファイバー厚さを50→80 μmに増加。  
⇒80 μmでI-V性能の改善を確認。(右図)

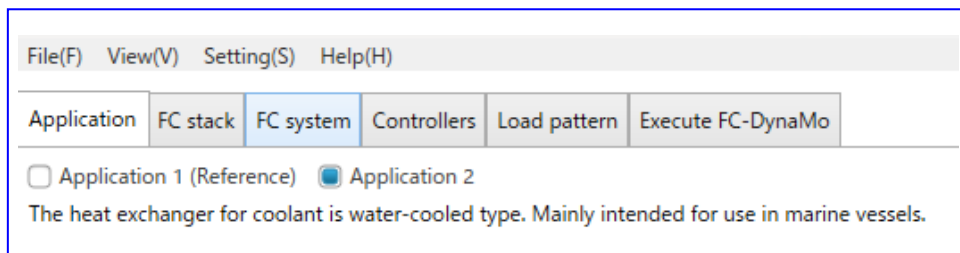


黒鉛化ナノファイバー厚さ50/80 μmの二層型GDLのI-V性能比較 (実機相当流路)

アプリ版FC-DynaMoに1+1Dモデル、船舶対応モデルを搭載した。

### 船舶対応モデル

- ✓ 海水の温度と海水の流量を入力可能とした。
- ✓ 自動車用ラジエーター (気-液熱交換器) を船舶用ラジエーター (液-液プレート型熱交換器) に差替えた。



成果発表  
論文：7  
学会発表：54

## 4. 今後の見通しについて

### シミュレーショングループで開発しているシミュレーター

#### ④ FCシステムシミュレーター **提供中**

Matlab版 - 使用改変許諾契約、無償、商用利用可 - 29法人

Windowsアプリ版 - 使用許諾契約、無償 - 145件 - 2025.3 世界公開予定 -

Pt粒子成長、炭素腐食、1+1D & 1Dモデル搭載

#### ③ セルシミュレーター - 受託解析 - **実施中**

#### ② 電極製造プロセスシミュレーター

分子シミュレーター - 連携 - **予定**

非速度論モデルシミュレーター - 簡易版提供 - **予定**

#### ① 部材シミュレーター

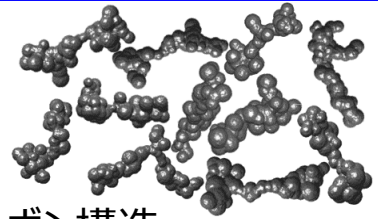
電気化学反応分子シミュレーター - 連携 - **予定**

PEM劣化シミュレーター - FC-DynaMoに組み込み - **予定**

#### 【その他公開予定】

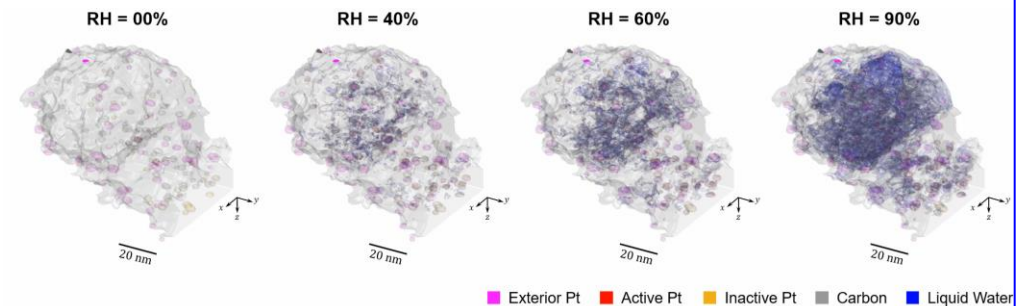
##### 炭素担体モデルのデータベース

CB構造特性データ（比表面積、細孔容積、異方性）描画したカーボン構造



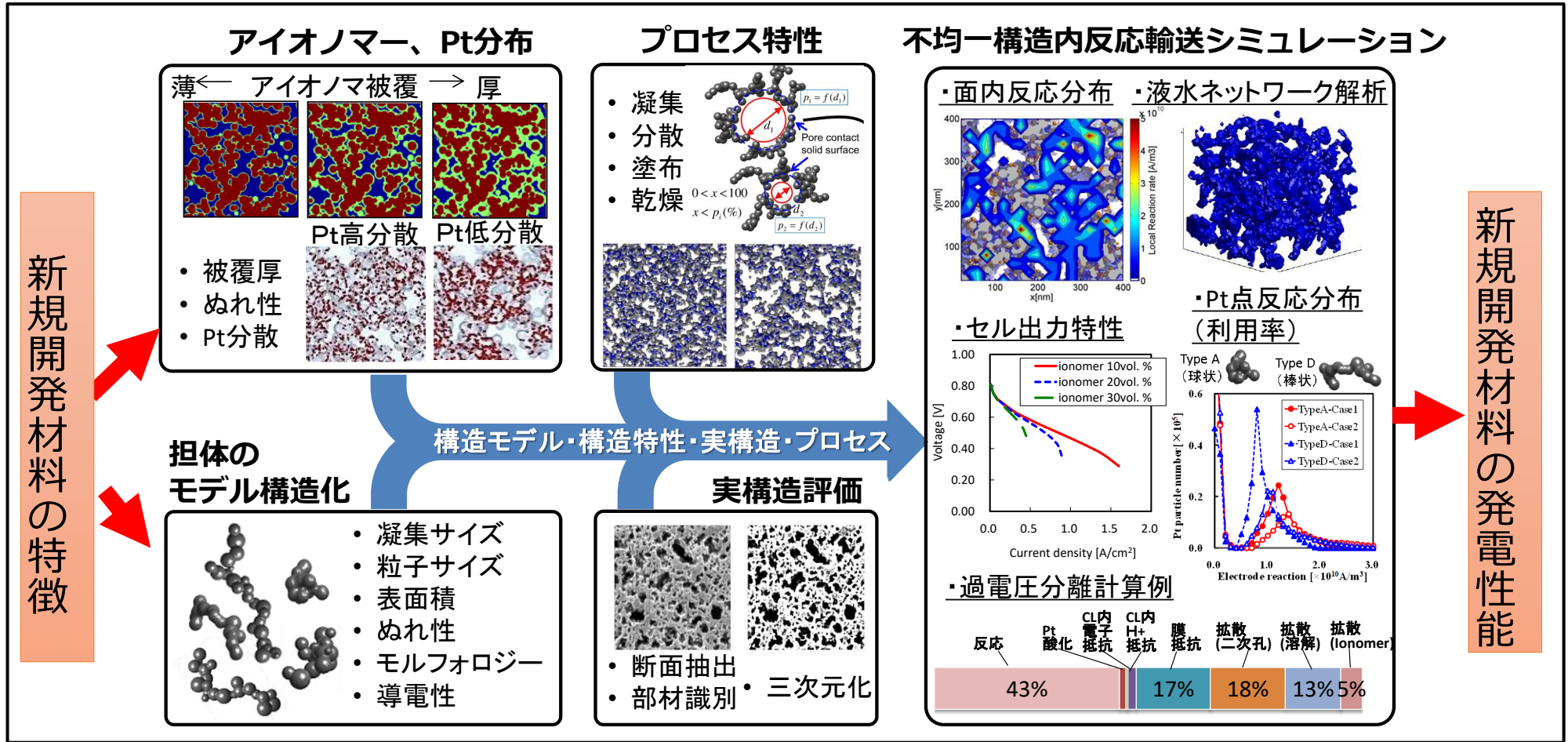
##### 触媒担体内の水の相変化シミュレーター（簡易版）

格子密度汎関数法による水の相変化解析



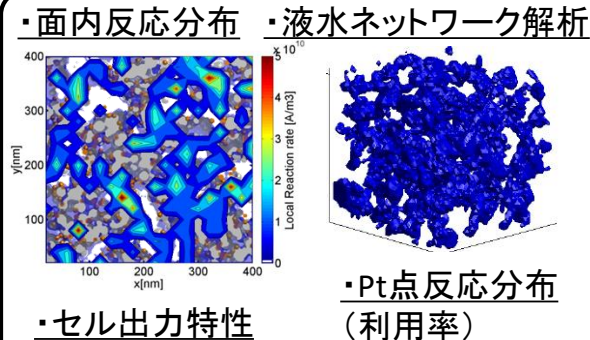
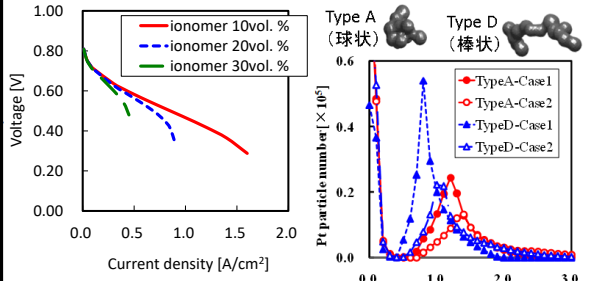
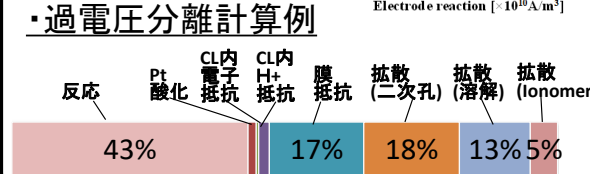
# 4. 今後の見通しについて

## 実施項目3群 マルチスケールシミュレーターの展開計画



メゾスケール計算による、材料からシステム開発への"橋渡し"

新規材料の構造、特性の数値情報から、**発電特性がわかる!**  
 新規材料の性能を最大限発揮する条件を**高速に探索できる!**  
 各種条件の感度評価から、新規材料の**開発指針が立案できる!**  
 少量サンプルでMEA化困難でも、**システム検討へ展開できる!**



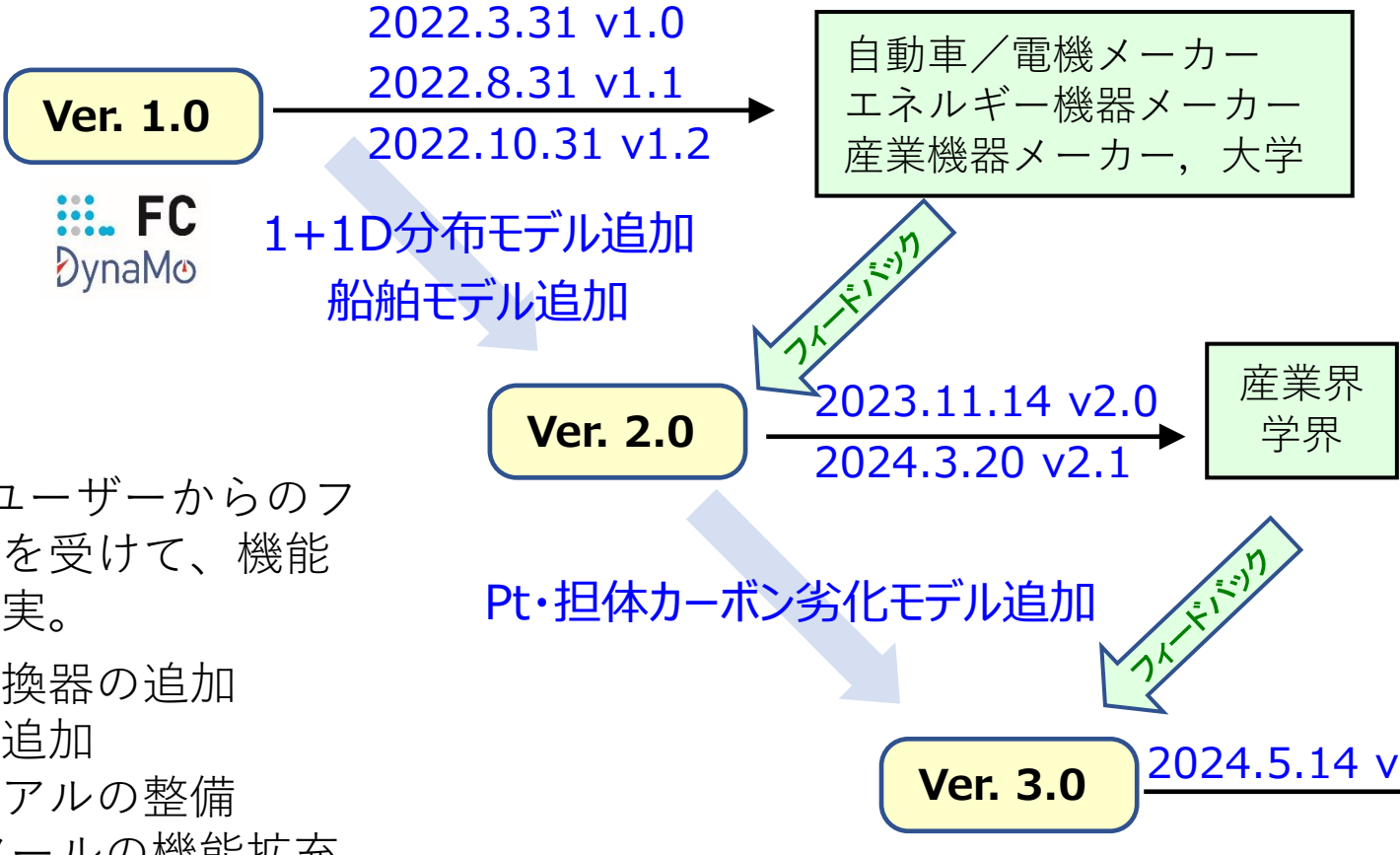
面内反応分布: Local Reaction rate [A/m³] vs x [nm], y [nm]

# 4. 今後の見通しについて

## 実施項目4群 システムシミュレーターFC-DynaMo の展開計画

MATLABソースコード版利用企業からフィードバックをもらう。  
2022/6/29にFC-DynaMo概要説明会、ライブデモを開催。  
2023/3/14-15、2024/3/27にMATLAB版利用者向けの講習会を開催。

Windows アプリ版	MATLABソース コード版
145名	29機関契約



車：本田技術研究所  
定置用：パナソニック  
船舶：ヤンマーパワーテクノロジー  
航空機：ボーイングジャパン  
鉄道：鉄道総合技術研究所

2025年3月の本事業終了時にはアプリ版を海外にも公開し、世界標準を目指す

FC-DynaMoユーザーからのフィードバックを受けて、機能や利便性を充実。

- ・ 水冷式熱交換器の追加
- ・ 出力項目の追加
- ・ 制御マニュアルの整備
- ・ MEA同定ツールの機能拡充



## 4. 今後の見通しについて

- ▶ 数値シミュレーターの用途 数字の予測 & 現象の理解
- ▶ 期待される貢献 最適設計 & 材料開発推進
- ▶ システムシミュレーター FC-DynaMoの今後  
多用途対応 汎用化（完全物理モデル化 & 高速化）  
触媒、PEMの劣化抑制制御 機械部品の劣化予測
- ▶ セルシミュレーターの今後  
電極構造変化（構造劣化）の速度論的予測
- ▶ 電極形成プロセスシミュレーターの今後  
電極構造形成の速度論的予測
- ▶ 分子シミュレーターの今後  
担体細孔内、アイオノマーの直接実測困難な速度パラメーターの予測

材料研究者が手元で  
使えるシミュレーター

PEFCアプリケーションの  
デジタルツイン開発

セルシミュレーター、システム  
シミュレーターへのデータ供給

分子構造を系統的かつ広範囲に変化させたアイオノマーの分子モデルの生成とMDシミュレーションによる特性評価を自動で実行。平衡物性値、輸送物性値を予測。大規模なデータセットを作成。マテリアルズ・インフォマティクスを活用し、分子構造からアイオノマーの特性を簡便に予測できるツールなど。