

磁気センサを用いた PEFC 内の欠陥検出法

Detection Method of Defect in PEFC Using Magnetic Sensor

児嶋 直幸^{*1}、竹谷 佑介^{*1}、泉 政明^{*2}、後藤 雄治^{*3}

Naoyuki Kojima^{*1}, Yusuke Taketani^{*1}, Masaaki Izumi^{*2}, Yuji Gotoh^{*3}

^{*1}北九州市立大学 大学院 国際環境工学研究科 環境工学専攻

Graduate Programs in Environmental Engineering, Graduate School of Environmental Engineering, The University of Kitakyushu

^{*2}北九州市立大学 国際環境工学部 機械システム工学科

Department of Mechanical System Engineering, Faculty of Environmental Engineering, The University of Kitakyushu

^{*3}大分大学 理工学部 創生工学科

Department of Innovative Engineering, Faculty of Science and Technology, Oita University

概要：本研究の目的は PEFC の MEA 内部の欠陥を非接触で検出する手法の有効性を確かめることである。本手法は発電中の PEFC の周囲に形成される磁束密度を測定し、この磁束密度を用いて逆問題解析を行い、得られた電極面内の電流分布から欠陥箇所の推定を行うものである。逆問題解析には Tikhonov の正則化法を適用した。本手法の有効性を検証するために、燃料電池内部の電流分布を測定することが可能な模擬燃料電池を用いた。この模擬燃料電池を用いた実験により、磁束密度測定の際の外乱の影響を排除する手法、及び Tikhonov の正則化法を用いる際の正則化パラメータの決定法を検討した。更に、電極の一部 (10mm × 10mm) を欠損させた MEA1 層を内蔵した燃料電池実機に本欠陥検出法を適用し、その欠陥箇所を検出することに成功した。

Abstract : The aim of this study is to verify a detection method of defects in a MEA of a PEFC with non-contact. This method is based on a measurement of a current distribution inside the PEFC, which is estimated from a magnetic flux density around the PEFC by an inverse problem analysis using Tikhonov's regularization. In order to verify the effectiveness of this method, a pseudo-fuel cell which was able to measure the current distribution inside itself was used. By this experiment, the methods for disturbance removal in measuring magnetic flux density and for determination of regularization parameter in using Tikhonov's regularization were discussed. Furthermore, this detection method was applied to 1-cell stack with a defect (10 mm × 10 mm), and consequently detected the defect successfully.

Key Words : Polymer electrolyte fuel cell, Non-contacting diagnostics, Current distribution, Magnetic sensor, Magnetic flux density, Tikhonov's regularization, Disturbance removal

1. 緒言

比較的低温で作動する固体高分子形燃料電池 (PEFC : Polymer Electrolyte Fuel Cell) は、燃料電池自動車や家庭用燃料電池等に用いられ、既に一部の企業により商用化されている。今後、更なる普及拡大のためには、燃料電池の性能及び寿命に関わる基盤技術や生産技術の向上と同時に、燃料電池の性能を評価する簡易な技術が必要になると予想される。

PEFC は通常、要求される電気出力を得るために膜電極接合体 (MEA : Membrane Electrode Assembly) を数十層から数百層積層してスタックを構成する。このスタック

の中で一部の MEA に欠陥が存在すると、スタック全体の性能の大きな低下を引き起こす。スタックを組み立ててから、性能の低い MEA を検出するためには、MEA 各々に電圧測定端子を接続し電圧の測定を行う必要があるが、多くの手間と時間を要する。

燃料電池内の各 MEA の性能を評価する手法に関して、これまでも種々の研究がなされてきた。大きく分けて接触法と非接触法に分類される。接触法には、MEA やセパレータを分割して電極面内の電流分布を求める手法^{1), 2)}、各 MEA に測定端子を接続し過渡応答を解析する手法³⁾がある。また、燃料電池内部にセンサを挿入する手法としては、小型のシャント抵抗を内蔵したボード⁴⁾や多数の電

圧測定部を内蔵したボード⁵⁾を燃料電池内部に挿入する手法、あるいは、磁気センサを燃料電池の内部に挿入する手法^{6), 7)}などによる電流分布のマッピング法が提案されている。これらの接触法による電流分布の測定は、手間と時間を要する以外に、燃料電池の構造変更による発電状態への影響などを慎重に配慮する必要がある。一方、非接触法による研究では、燃料電池周囲の磁界を測定し、この磁界分布から燃料電池内部の電流分布を推定する手法⁸⁾が研究されてきた。この手法の主な課題として、燃料電池周囲の磁界から内部の電流分布を推定するための適切な逆問題解析法の選択、測定した磁界に含まれる誤差の影響、更に磁界が受ける周囲環境（外乱）の影響などが挙げられる。著者らも長年これら課題に対して検討を行ってきた^{9) ~ 11)}。

本研究では磁界から電流分布を求める逆問題解析法として Tikhonov の正則化法¹²⁾を用い、また発電電流により形成される磁界が受ける外乱を低減するために測定磁界を補正した。これら手法の基礎的な可能性を、内部の電流分布を測定できる模擬燃料電池及び 1 層の MEA で構成した燃料電池実機を用いて検討した。

2. 計測原理

図 1 に示すように PEFC の MEA の電極面（50mm × 50mm）を 25 等分に要素分割し、各要素の中心に電流 x_i が集中すると仮定した。なお、添え字 i は MEA 電極面の分割要素番号を示す。磁界と電流の関係は、Biot-Savart の法則を用い、電流は平面に対して垂直方向に無限長の直線上を流れると仮定する。PEFC 周囲の測定位置 j （ j は後述するセンサ番号に対応する）における磁束密度は各要素の電流に起因する磁束密度を足し合わせることで求められることができる。これより式 (1) の線形方程式として表すことができる。

$$Ax = b \quad (1)$$

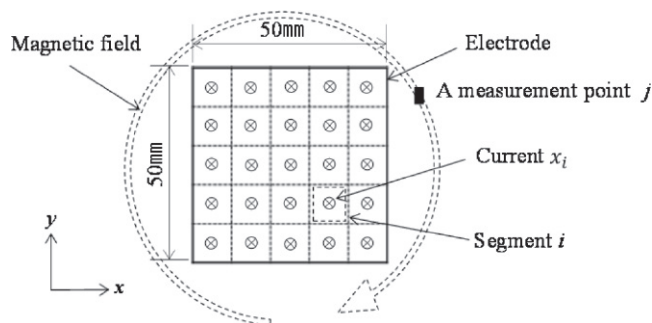


図 1 解析モデル
Fig. 1 Model for analysis.

ここで x は x_i を要素に持つベクトル、 b は測定位置における磁束密度ベクトル、 A は電極面の要素と磁束密度の測定位置との幾何学的関係により求まる係数行列である。

本解析では測定した磁束密度から MEA の電極面の電流分布の推定を行うため、行列 A 及びベクトル b はともに既知量となり、ベクトル x を求めることになる。測定される磁束密度には測定誤差が含まれるため式 (1) を x について解くと解が安定しない。このような線形方程式を悪条件方程式と呼び、この悪条件方程式に対する解法として Tikhonov の正則化法を適用した。この方法は、式 (2) に示す汎関数 $F(x)$ を最小化するときの x を解とする手法である。

$$F(x) = \|Ax - b\|^2 + \lambda \|x\|^2 \quad (0 \leq \lambda \leq \infty) \quad (2)$$

ここで、 λ は正則化パラメータである。式 (2) より、二次の汎関数 $F(x)$ は一意の最小値 x_λ を持つことは明らかであるため、式 (3) を解くことにより、式 (4) が求められる。

$$\frac{dF(x)}{dx} = 0 \quad (3)$$

$$x_\lambda = (A^T A + \lambda I)^{-1} A^T b \quad (4)$$

ここで、添え字の T は行列の転置を示し、 I は単位行列を示す。式 (4) から、任意の正則化パラメータ λ を設定することにより、一意な解 x_λ を得ることができる。最適な λ を決めることが本手法の本質的な問題となる。

3. 実験方法

3.1 磁界測定方法及び補正方法

磁束密度測定に Honeywell 製の磁気センサ (HMC5983) を用いた。この磁気センサの寸法は 3mm × 3mm × 0.9mm¹ であり、測定範囲は ± 0.88G、デジタル分解能は 0.73mG である。図 2 に示すように、磁気センサは磁気センサ板に 3 行 × 9 列の計 27 個搭載されている。図 2 中の番号は列番号を示し、今回の実験では中央の行に位置する 9 個の磁気センサによって測定された磁束密度データを使用し

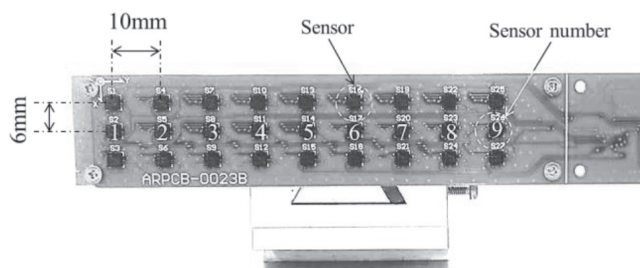


図 2 磁気センサ板
Fig. 2 Magnetic sensor board.

た。この4枚の磁気センサ板を燃料電池側壁の周囲4辺に配置した。よって、磁気センサの個数は合計36個となる。1つの磁気センサから x 及び y 方向の磁束密度データが得られるため、合計72個の磁束密度データを取得することができる。しかし、磁界方向の関係で、磁束密度が数mGと非常に小さくなる磁束密度データ4個を取り除き、68個の磁束密度データを用いて逆問題解析を行った。なお、中央の行に位置する磁気センサの中央位置がMEAと同一面上になるように配置した。

燃料電池の発電電流により発生する磁界は周囲の環境に影響され易い。たとえば、周囲に強磁性体が存在すると測定点での磁界が変化する。この影響を完全に取り除くことは実用的には困難であるため、測定した磁束密度を以下の方法で補正した。図3に示すように、本来燃料電池をセットする位置に配置した1本の銅線に電流を流し、そのときの磁束密度を測定し、計算値と測定値の間に存在する関係から補正係数を求め、この補正係数を磁束密度の測定値に乗じて補正を行った。なお、磁束密度測定を行う場所、方向及び周囲環境などが異なると補正係数は異なるため、条件が異なる度に補正係数を求め直した。

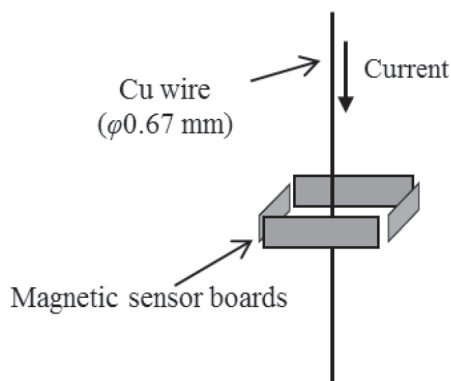


図3 磁束密度の補正方法
Fig. 3 Compensation method of magnetic flux density.

3.2 模擬燃料電池を用いた実験

外部電源から燃料電池に直流電流を供給した時に、その内部の電流分布を測定できる模擬燃料電池を準備した。図4に示すように、この模擬燃料電池は模擬MEAを一对のカーボン板(95mm×95mm、厚さ3mm)と、一对の金メッキを施した銅製エンドプレート(95mm×95mm、厚さ10mm)で挟む構造となっている。また、図5に示すように、模擬MEAはアクリル板(厚さ20mm)にカーボン円柱($\phi 5\text{mm} \times 20\text{mm}$)が25本埋め込まれた構造で、これらのカーボン柱に電流が流れる。図中の番号はカーボン柱の位置の番号である。予め、各々のカーボン柱の抵抗値を測定しておくことで、模擬燃料電池に電流を流したとき、各々

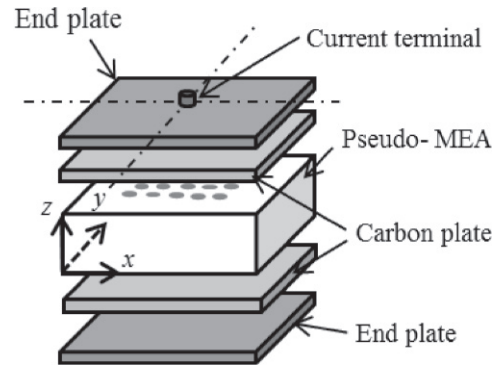


図4 模擬燃料電池の模式図
Fig. 4 Schematic view of pseud-fuel cell.

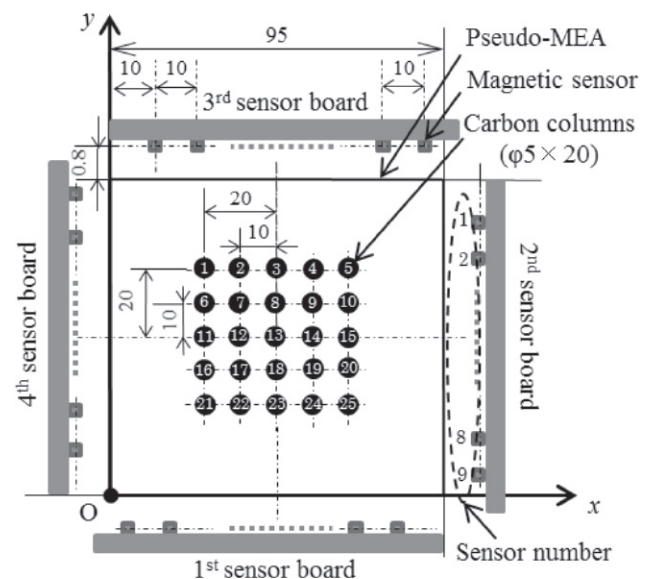


図5 模擬MEA内のカーボン柱と磁気センサ板の位置
Fig. 5 Positions of carbon columns in pseudo-MEA and magnetic sensor boards.

のカーボン柱の両端の電位差を測定することでカーボン柱に流れる電流値（以降、測定電流値と呼ぶ）が得られる。また、任意のカーボン円柱の両端面に薄い電気絶縁性のシートを内挿することにより電流が流れない状態、つまり欠損状態をつくることができる。本研究では、電極面の角に相当する図5中の21番、辺に相当する20番、及びやや内部に相当する9番に位置するカーボン円柱を欠損箇所とした。現時点ではこれら3ヵ所のみで、その他の位置での検討を行っていない。

正則化パラメータの検討では、模擬燃料電池に電流を流し、各カーボン円柱に流れる測定電流値を用いて磁界測定点の磁束密度を順計算により求め、その磁束密度に誤差として $\pm 3.0\text{mG}$ を乱数で加えた値を磁束密度データとした。

式(2)に示すTikhonovの正則化法による逆問題解析

の結果は正則化パラメータ λ に大きく依存する。たとえば、 λ の値が小さすぎる場合、わずかな測定誤差で解が大きく変動する。また、 λ の値が大きすぎる場合、式 (2) の右辺第 1 項がほとんど意味を持たなくなり、適切な解が得られない。従って、最適な正則化パラメータを求めるために、逆問題解析により推定した電流値（以降、推定電流値と呼ぶ）の合計値 $\sum x_i$ 及び次式に示す変化率 ν の λ に対する変化から適した λ の値を決定する手法を検討した。

$$\nu = \sum_{i=1}^{25} \left| \frac{dx_i}{d\lambda} \right| \quad (5)$$

3.3 1 セルスタックを用いた実験

1 層の MEA（外寸 95mm × 95mm、電極 50mm × 50mm）を内蔵する 1 セルスタックを用いた。1 セルスタックは MEA（電解質厚さ 50 μ m、電極及び GDL の合計厚さ約 0.25mm）を一对のカーボン製セパレータ（厚さ 12mm）と一对の金メッキを施した銅製エンドプレート（厚さ 10mm）で挟む構成となっている。欠陥箇所を故意に作るために、図 6 に示すように一部の電極を欠損させた MEA と、比較のために正常な電極の MEA の 2 種類を準備した。セパレータには深さ 1.0mm、幅 0.75mm、長さ

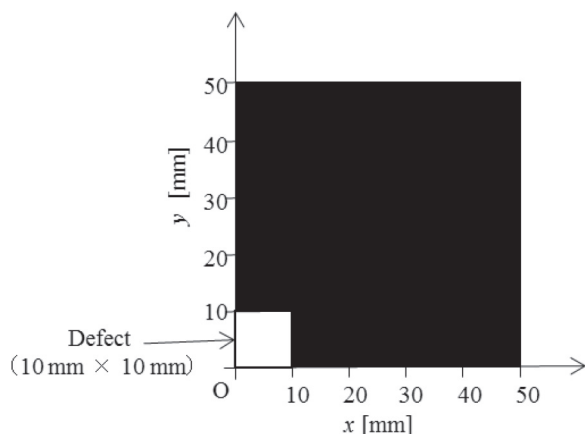


図 6 欠損を有する電極形状
Fig. 6 Configuration of electrode with defect.

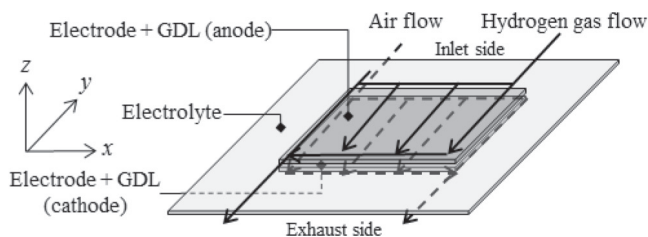


図 7 MEA へのガス供給方法
Fig. 7 Gas supplying method to MEA.

48mm の溝を 35 本平行に設けた。図 7 に示すように、水素ガス及び空気を並行流で MEA に供給した。

1 セルスタックの発電実験は、21℃の蒸留水中でバブリングすることにより加湿した水素ガス 200ml/min 及び空気 1500ml/min を MEA に供給し、22～24℃のスタック温度において実施した。発電電流 3.0 A 時において PEFC 周囲の磁束密度を測定し、補正を行った磁束密度を用いて Tikhonov の正則化法により逆問題解析を行った。正則化パラメータ λ の決定方法については模擬燃料電池で検討した手法を適用した。

4. 実験結果及び考察

4.1 逆問題解析における正則化パラメータ λ の決定法

図 8 に推定電流値の合計値 $\sum x_i$ の正則化パラメータ λ に対する変化を示す。20 番、21 番の欠損時共に、 λ が増加すると $\sum x_i$ 値は減少し、ある λ 値以上では合計推定電流値がほぼ一定になる。この推定電流値の合計がほぼ一定になった時の値と模擬燃料電池の電流端子に流した電流値との差は 1% 未満であり、この一定の区間に最適な正則化パラメータが存在すると考えられる。

図 8 の推定電流値の合計値がほぼ一定になった直後、つまり 21 番欠損の場合 λ が 5.7 のときの電流分布を図 9 に示す。横軸の Position No. は図 5 のカーボン柱の埋め込み位置の番号に対応し、比較のために測定電流値も記している。欠損位置の推定電流値はほぼ 0 A に近い値を示しているが、他の位置の推定電流値は変動が大きく、測定電流値との差が開いている位置が多い。一方、 λ が極端に大きい 100 のときの電流分布を図 10 に示す。正則化パラメー

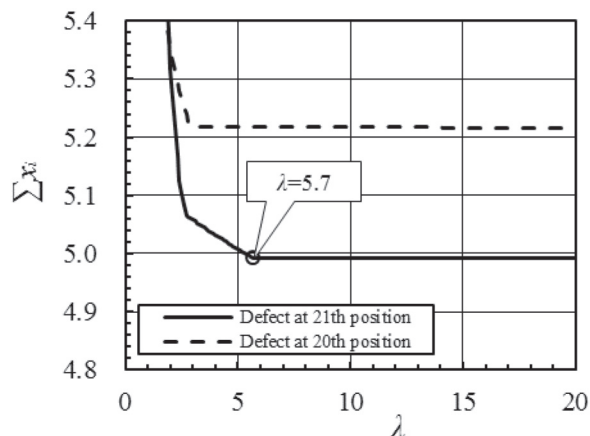


図 8 合計推定電流値 $\sum x_i$ と正則化パラメータ λ の関係
Fig. 8 Relation between estimated total current $\sum x_i$ and regularization parameter λ .

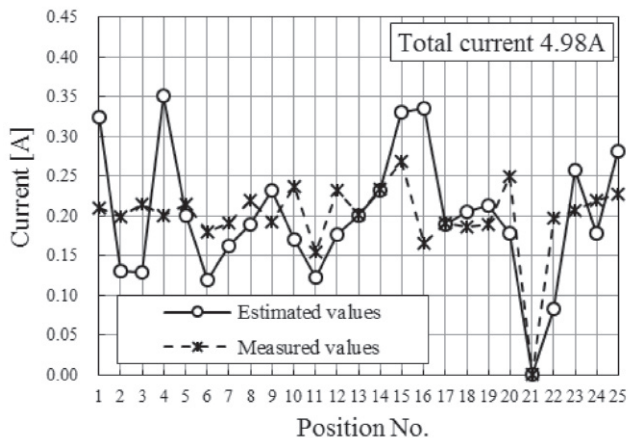


図9 $\lambda = 5.7$ の時の21番欠損の場合の電流分布
Fig. 9 Current distribution at $\lambda = 5.7$ in the case of No.21 defect.

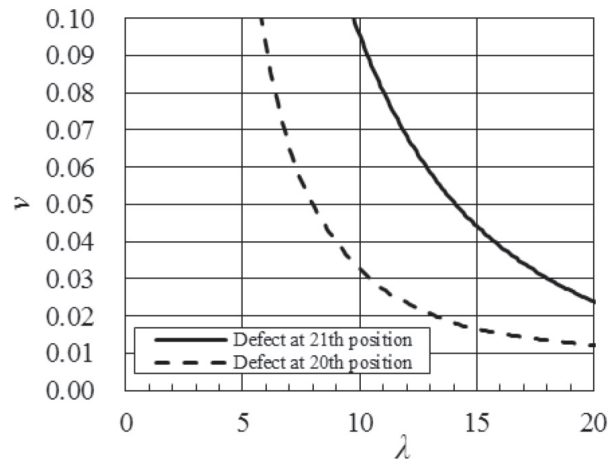


図11 変化率 ν と λ の関係
Fig.11 Relation between variation ν and regularization parameter λ .

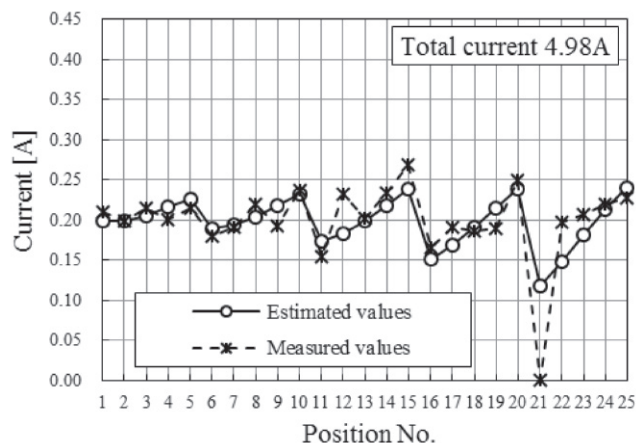


図10 $\lambda = 100$ の時の21番欠損の場合の電流分布
Fig.10 Current distribution at $\lambda = 100$ in the case of No.21 defect.

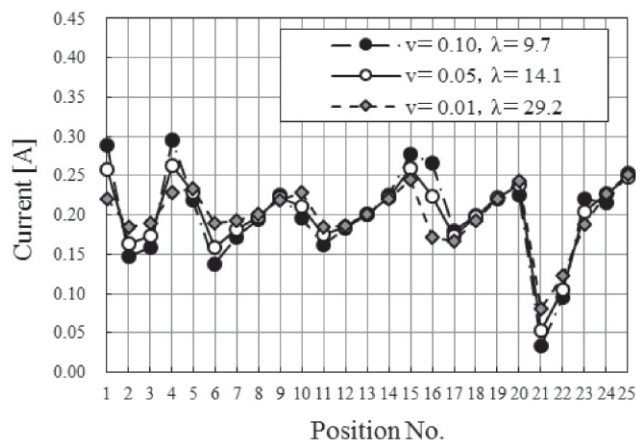


図12 電流分布に及ぼす ν の影響(21番欠損の場合)
Fig.12 Effect of ν on current distribution (in case of No.21 defect).

タが大きすぎる場合は推定電流値の場所による変動が小さくなり、欠損位置の推定電流も比較的大きな値を示す結果となった。このような場合、欠損位置の推定が困難になることが分かる。なお、この傾向は20番欠損の場合にも発生する。よって、推定電流値の合計値だけでは、最適な正則化パラメータ λ を決めることが困難であり、また、欠損の位置によっても適切な λ の値が異なるため、式(5)に示す正則化パラメータ λ に対する推定電流値の変化率 ν を導入した。

図11に変化率 ν と λ の関係を示す。20番欠損及び21番欠損とも ν 値は λ の増加にともない単調に減少する。 ν 値の最適値については今後検討の余地があるが、推定電流値と測定電流値の差が小さくなる0.05を本研究では最適値とみなした。図11より $\nu = 0.05$ の時の λ 値は20番欠損

及び21番欠損それぞれにおいて8.0及び14.1になる。

ν 値の妥当性について21番欠損の場合で検討した。 $\nu = 0.05$ を中心に0.10と0.01の場合の比較を図12に示す。この範囲の ν の値であれば、いずれの場合も欠損位置で推定電流値は0Aではないが、最も低い値を示しており、欠陥箇所の推定がある程度可能であることがわかる。

一方、図13に示す20番欠損の場合、No.1から17までの位置の推定電流は測定電流に近い値を示し、欠損位置でも最も低い推定電流値0.10Aを示している。しかし、隣接する25番位置の電流値も低く出ており、空間分解能が低下するケースがあることが分かった。

更に欠損位置が内部に入った9番の場合についても、同様に $\nu = 0.05$ の時の λ 値を用いて推定した。図14に示すように、欠損位置では低い電流値を示さず、隣接する5番

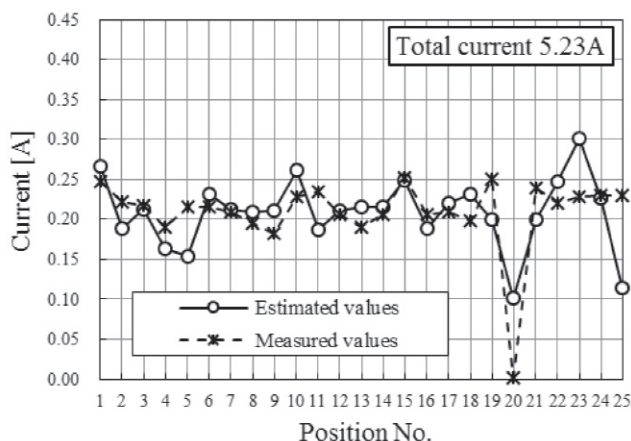


図13 20番欠損の場合の電流分布 ($\lambda = 8.0$)
Fig.13 Current distribution in case of No.20 defect ($\lambda = 8.0$).

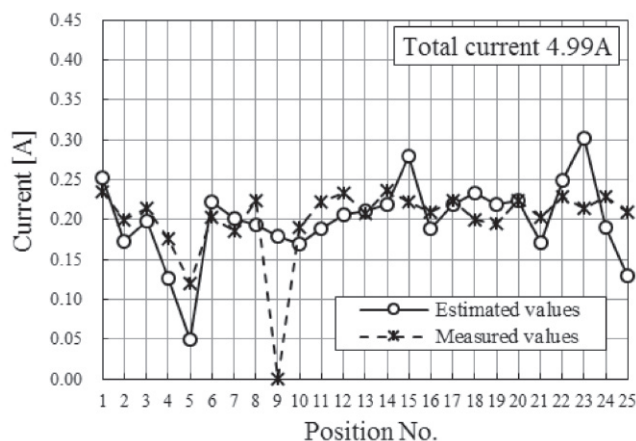


図14 9番欠損の場合の電流分布 ($\lambda = 7.5$)
Fig.14 Current distribution in case of No.9 defect ($\lambda = 7.5$).

位置が最も低い電流値を示した。欠損位置が内部に入る場合には、欠陥が存在することは推定できるが、その正確な位置を判定することは現時点では困難であることがわかった。

以上から空間分解能に課題は残るが、Tikhonov の正則化法を用いて推定した電流分布から模擬燃料電池内の欠陥の有無の検出がある程度可能であることが示された。

4.2 磁束密度の補正

模擬燃料電池を用いて測定磁束密度の補正の有効性について検討した。21番欠損の場合において、磁束密度の生の測定値及び測定値に補正を施した値を用いて逆問題解析を行った結果を、それぞれ図15及び図16に示す。なお、正則化パラメータ λ の決定法は4.1節で記した方法を適

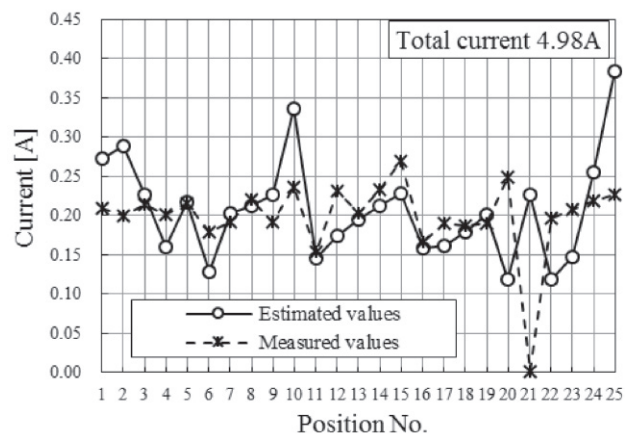


図15 磁束密度の補正を行わなかった時の電流分布(21番欠損、 $\lambda = 17.8$)
Fig.15 Current distribution estimated using magnetic flux densities without compensation (No.21 defect, $\lambda = 17.8$).

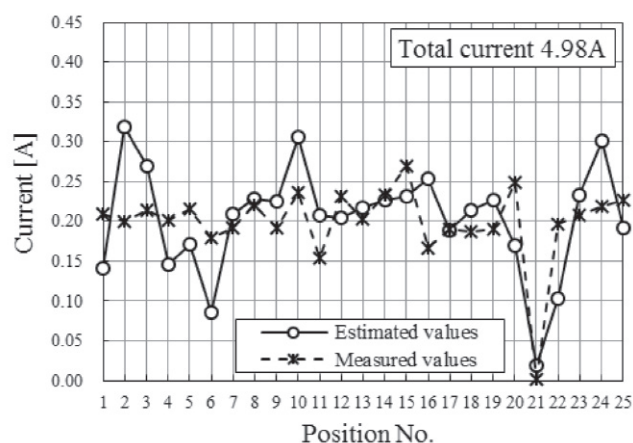


図16 磁束密度の補正を行った時の電流分布(21番欠損、 $\lambda = 23.2$)
Fig.16 Current distribution estimated using magnetic flux densities with compensation (No.21 defect, $\lambda = 23.2$).

用した。

補正を行わなかった場合(図15)、欠損位置であるNo.21の位置の推定電流値は高い値を示し、更にNo.25の推定電流値も異常に高い値を示すなど、推定電流値と測定電流値に大きな差がみられた。一方、測定した磁束密度に補正を行った場合(図16)、No.21の位置の推定電流値は0 Aに近く、欠損位置の推定が可能となり、磁束密度の補正の有効性が確認された。

4.3 1セルスタックによる検討

模擬燃料電池で検討した正則化パラメータ λ の決定方法及び磁束密度の補正法を1セルスタックに適用した。測定した磁束密度を補正した値から逆問題解析で推定した1セルスタック内のMEAの電極面内の電流分布を図17に示

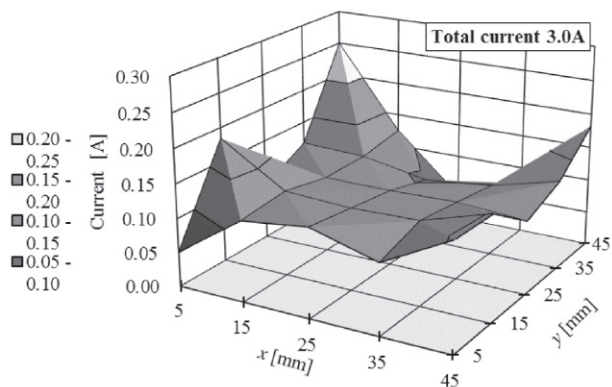


図17 欠損を有する電極面内の推定電流分布 ($\lambda = 11.4$)
Fig.17 Estimated current distribution in electrode with a defect ($\lambda = 11.4$).

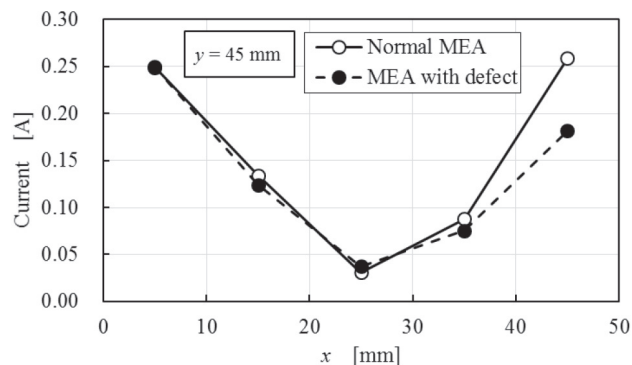
す。欠損位置に対応する $(x, y) = (5 \text{ mm}, 5 \text{ mm})$ の位置の電流値が低く表れており、欠陥箇所の可能性が高いことを示している。

しかしながら、 $(x, y) = (25 \text{ mm}, 45 \text{ mm})$ の位置の電流値も低く出ている。この位置が低く表れる結果は、図 18(a) に示すように、欠損を設けていない正常な MEA においても発生しており、何らかの原因による部分的な分極により電流が低く表れたと考えている。一方、図 18(b) に示す $y = 5 \text{ mm}$ の位置の電流分布の比較では、欠損位置の電流値が正常な MEA と比較し著しく低い値を示しており、欠陥箇所と判定することが可能になる。このように、正確な欠陥の有無は正常な MEA を用いて推定した電流分布と比較することにより可能であることがわかる。

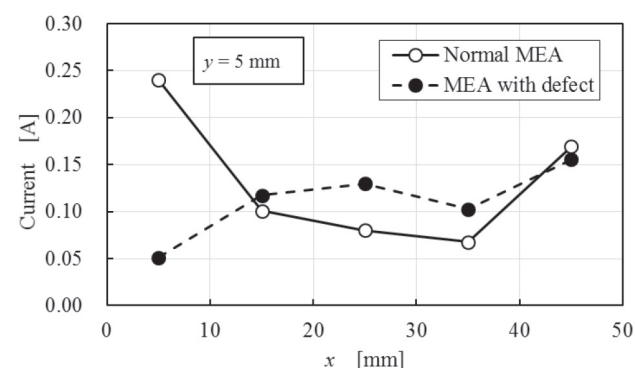
本研究では、電極面の角に欠損が存在する場合にはその検出の可能性を示すことができた。しかしながら、他の欠損箇所、特に電極の内部に欠損がある場合、あるいは MEA の個体差についての検討など、実用化のためには実施例を積み重ねることが必要であるとともに、複数の MEA を積層したスタックへの拡張など今後検討する必要があると考えている。

5. 結言

本研究では発電中の PEFC 周囲の磁束密度を測定し、この磁束密度から逆問題解析により MEA 電極面の電流分布を推定して、この電流分布から MEA の欠陥箇所の検出の可能性を検討した。先ず燃料電池内部の電流分布を測定できる模擬燃料電池を用いて、測定した磁束密度に及ぼす外乱の影響を除く補正方法の有効性を示した。また、逆問題解析法として採用した Tikhonov の正則化法の正則化パラメータ λ の決定法について検討し、 λ に対する推定電流



(a) $y = 45 \text{ mm}$



(b) $y = 5 \text{ mm}$

図18 正常MEAと欠損を有するMEAの電極面内の推定電流分布の比較

Fig.18 Comparison between estimated current distributions in electrodes of normal MEA and MEA with defect.

値の変化率を導入する手法を提案した。更に、本手法を電極の一部 ($10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$) を除いた欠陥 MEA を内蔵した 1 セルスタックの発電実験に適用し、欠陥箇所を検出することに成功した。今後、空間分解能の向上及び複数層の MEA を有するスタックでの検証試験を進めて欠陥検出技術を更に高めていく予定である。

謝辞

本研究の一部は平成 27 年度 JKA 自転車等機械工業振興補助事業の支援を受けて実施されました。関係各位に感謝申し上げます。

参考文献

- 1) Z. Liu, Z. Mao, B. Wu, L. Wang, V. M. Schmidt : Current density distribution in PEFC, *J. Power Sources*, **141**, 205-210 (2005)
- 2) M. Heuer, P. A. Bernstein, M. Wenske, Z. A. Styczynski : Results of current density distribution mapping in PEM fuel cells dependent on operation

- parameters, *Energies*, **6**, 3841–3858 (2013)
- 3) Y. Matsumoto, K. Sugiura, A. Daigo, T. Murakami : Grasp of correlation between degradation factor and cell position of PEFC stack, *ECS Transactions*, **71**, 217–226 (2016)
- 4) M. Geske, M. Heuer, G. Heideck, Z. A. Styczynski : Current density distribution mapping in PEM fuel cells as an instrument for operational measurements, *Energies*, **3**, 770–783 (2010)
- 5) S. A. Freunberger, M. Reum, J. Evertz, A. Wokaun, F. N. Büchi : Measuring the current distribution in PEFCs with sub-millimeter resolution – I. Methodology, *J. Electrochemical Society*, **153** (11), A2158–A2165 (2006)
- 6) C. Wieser, A. Helmbold, E. Gülzow : A new technique for two-dimensional current distribution measurements in electrochemical cells, *J. Applied Electrochemistry*, **30**, 803–807 (2000)
- 7) D. Candusso, J. P. Poirot-Crouvezier, B. Bador, E. Rullière, R. Soulier, J. Y. Voyant : Determination of current density distribution in proton exchange membrane fuel cells, *Eur. Phys. J. Appl. Phys.*, **25**, 67–74 (2004)
- 8) K. H. Hauer, R. Potthast, T. Wüster, D. Stolten : Magnetotomography – a new method for analysing fuel cell performance and quality, *J. Power Sources*, **143**, 67–74 (2005)
- 9) 泉政明、山中孝行、兼子祐司、草野健太、森田正信、後藤雄治、小坂大吾、楠原良人、後野隆、鈴木康夫：PEFCにおける発電電流分布測定、第15回燃料電池シンポジウム講演予稿集、141–144 (2008)
- 10) 北林拓也、後藤雄治、山梨龍、泉政明：空間磁界を用いたMEAでの発電電流分布の推定、第21回燃料電池シンポジウム講演予稿集、129–132 (2014)
- 11) T. Kitabayashi, Y. Gotoh, M. Izumi, T. Nara : Examination of non-contacting measurement method of power generation current inside single polymer electrolyte cell using simulated annealing, *ECS Transactions*, **71**, 13–20 (2016)
- 12) 堤正義：「逆問題－理論および数理科学への応用」、朝倉書店、185–193 (2012)