

燃料電池における生産プロセス最適化探索のための 自動実験装置の紹介

Introduction of Automated Experimental Equipment for Exploration of Production Process
Optimization in Fuel Cells

吉村 紗矢香

YOSHIMURA Sayaka

秋山 久

AKIYAMA Hisashi

西貝 大樹

NISHIGAI Hiroki

舘野 宏志

TATENO Hiroshi

カーボンニュートラル社会の実現において、燃料電池は重要な技術である。その性能の研究開発だけでなく、社会に安定供給するための生産プロセス確立もまた非常に重要な技術である。しかしその生産プロセスにおける燃料電池性能向上にかかわるパラメータは膨大であり、社会実装には多大な時間を要する。堀場製作所ではその生産プロセス開発に寄与するために、燃料電池の生産プロセスを模擬した自動実験装置の製作をした。本装置は燃料電池の塗布・乾燥プロセスに焦点を当て設計・製作し、燃料電池のサンプル製作と基礎的な評価を行うことが可能である。ここではその装置について全体コンセプトとそれぞれの機能を紹介する。

Fuel cells are an important technology for the realization of a carbon-neutral society, and not only the research and development of their performance, but also the production process to ensure a stable supply to society is an extremely important technology. However, the parameters involved in the production process are enormous and social implementation requires a great deal of time. In order to contribute to the production process, Horiba has developed an automated experimental device that simulates the fuel cell production process. This apparatus was designed and fabricated with a focus on the fuel cell coating and drying processes, and is capable of fabricating fuel cell samples and performing basic evaluations. Here we introduce the overall concept and functions of the apparatus.

はじめに

研究や開発、製造分野のDX (Digital Transformation) にとって、質の良いデータを取得することは、対象の状態を正確に把握し、データ駆動による判断・管理を実現するために、非常に重要である。堀場製作所には様々な分析計があり、例えばバッテリーのライフサイクルの各プロセスに対し、その状態を把握するための様々なデータを取得することができる (Figure 1)。

また、日本の燃料電池は、世界に技術を先駆しているが、発電効率、耐久性、生産性を両立した最適設計はかならずしも達成できておらず、特に生産技術はその膨大なプロセスパラメータと複雑な物理現象からなるがゆえに、まだ開発の余地がある。研究により開発された高性能な新材料を実社会で活用していくためには、性能を維持しつつも目標コストを達成できるよう、量産プロセスに適応、つまり、プロセスのスケールアップ、スピードアップを図る必要がある。これらのプロセス条件を最適化するために、従来は、カン・コツ・経験に頼って試行錯誤を繰り返したり、膨大

なプロセスパラメータの組み合わせを総当たりで実験を行ったりしており、膨大な費用と時間がかかっている^[1]。

NEDO (国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構) は、産学官が長期的視野を共有して技術開発に取り組むために、燃料電池・水素技術開発ロードマップを策定、公開しており、様々なプロジェクトを推進している。堀場製作所は、2023年度よりNEDOが推進しているプロジェクトの一つである「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」に参加した。本プロジェクトの目的は、燃料電池の生産プロセスの開発スピードを飛躍的に向上するために、AIロボットを活用した自動実験／自律探索システムに基づく「プロセスインフォマティクス」の共通基盤を構築することである。東京大学が標準プロセスの開発、金沢大学が標準インクの試作、九州大学が評価方法の開発を担当し、堀場製作所は要素開発を担い、燃料電池触媒層の生産を模擬した自動実験装置を製作した。

● バッテリー開発・製造・再利用におけるトータルソリューションを提供

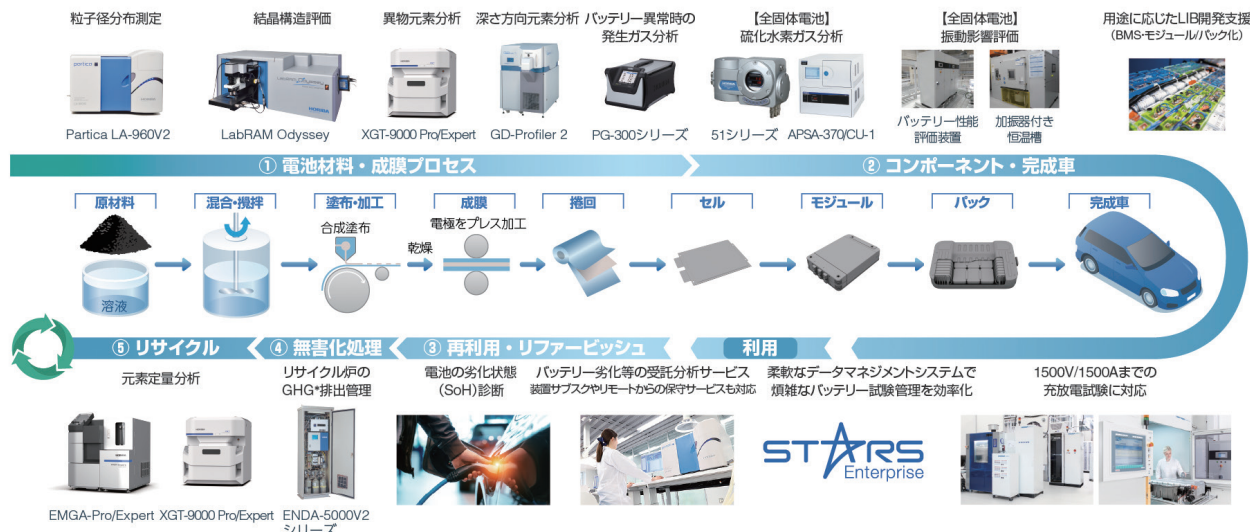


Figure 1 Battery life cycle and related analytical equipment.

プロジェクトにおける装置のコンセプト

今回製作した装置は、より短時間で燃料電池の生産が求められる中で、特に生産時間と性能に寄与する、触媒層のエイジングプロセスに焦点を当てている。具体的には「塗布」、「乾燥」の機能搭載と、それに関わる「評価」を自動で行う機能を持つ。またKPIとして「人が行う実験手法に対し自動実験の速度を10倍にする」を掲げている。今後の利活用の段階では社会実装を視野に入れているため、その背景を踏まえて以下に述べる3つ大きな要求機能を設け設計コンセプトとした。

①既存の建屋に導入できるように、エレベータに乗るサイズとする

燃料電池生産メーカーの装置は大量生産を想定しており、何百メートルにもわたる巻シートを送りながらRtoR (Roll to Roll) 方式でシート上に電池材料を塗布していく。またその乾燥プロセスは各社ノウハウがあり温度や風量、時間や流線といったパラメータを、量産プロセス検討時に突き詰めることで歩留まりを抑える様々な工夫がされている。そのため燃料電池生産装置の中でも塗布・乾燥部分だけで10 mを超える装置は少なくなく、その規模の装置を生産プロセスの開発のために導入するのは現実的ではない。今回の装置は小型化を図り、工場に設置されているようなエレベータに乗るサイズとすることで、既設の建屋を改造することなく設置できることを目指した。

②実際の生産ラインへの条件適用を想定、かつ低コストでの運用

実際の生産にスケールアップする際の条件の変化を抑えるために、生産装置の熱風乾燥によるゾーンヒーティングを模擬した多段乾燥炉を採用した。また高価な燃料電池材料の消費を抑えるため、ダイコート式の塗布機構を採用した。

塗布する膜厚条件によるが、インク材料1 mLに対し100枚を目安とし、1 cm²の塗布面積とすることで低コストでの運用を可能としている。

③カスタマイズ性を持たせるために、計測ユニットをモジュール化する

塗布・乾燥装置で燃料電池触媒層のサンプルを製作した後は、性能評価を行う。本装置では評価内容を表面粗さ、画像解析、電気伝導率としたが、データの蓄積により今後の評価の多様性を反映できるように、各計測ユニットをモジュール化している。

装置の紹介

装置全体概要

まずは装置の全体写真をFigure 2に示す。装置は主に製作プロセス、評価プロセスの2つの機能を持ち、サンプルホルダが装置内を移動することで燃料電池用薄膜の製作から評価プロセスを行うことができる。またストッカー装置を別体で用意し108個のサンプルホルダを保管できる構造とし



Figure 2 Automatic testing equipment.

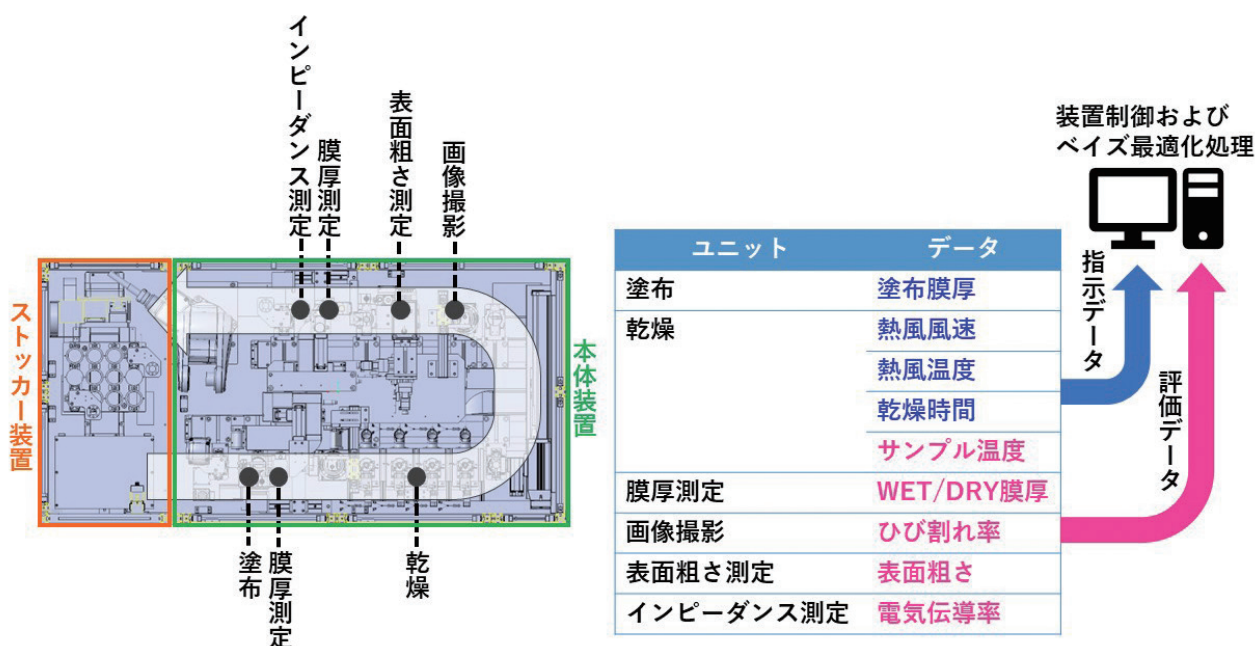


Figure 3 Top view of the equipment and overview of data transfer

ており、サンプルホルダの交換を1度/日実施し24時間体制で稼働させることで約162条件の試験が可能となる。これまでの経験から、人が1日に行う試験は約10条件であるため、人に対する試験速度10倍のKPIを達成している。

また各ユニットで授受可能なデータについて簡易イメージ図をFigure 3に示す。指示データをもとにサンプルの製作を行い、評価プロセスで得た測定データをもとに次の製作プロセスの条件を決定、このプロセスを繰り返す。またその条件は東京大学が製作したベイズ最適化アルゴリズムで決定している。次に各ユニットについて紹介を行う。

サンプルホルダおよび搬送

サンプルの搬送や保管および成膜条件の変更を容易にするために、専用のサンプルホルダを設計した。保持できるシート膜厚は50 μm であり、今回の評価で用いた樹脂シート以外のシート材料にも、近い膜厚であれば保持することが可能である。乾燥炉の熱風に耐えられるようにスーパーエンジニアリングプラスチックの一種であるPPS樹脂(ポリフェニレンサルファイド)を材料に選定している。また装置内部に搬送路とロボットアームを備え、各ユニット間の移動やストッカーへの移動を円滑に行っている。これらの構造により、実際の生産装置で採用されるRtoR方式の装置と比較し、装置の小型化や塗布材料の汎用性を持たせている。

塗布

インクの消費量を抑え、かつ様々な評価に適用可能とするため、技術研究組合FC-Cubicの標準セルと同じ1 cm^2 という必要最小サイズで塗布を行う。また試験ごとに膜厚条件を設定するため、生産工程と同原理かつ枚葉塗布できる、

プランジャーポンプ駆動によるダイコート方式を採用した。この膜厚条件は50 μm ~200 μm の範囲で任意に指定ができる。試験間に発生するスリットダイのインク乾燥という課題に対して、微少量のインクを捨て打ちシートに塗布することで、1ロットを通して試験を行うことが可能である (Figure 4)。

膜厚測定

塗布工程の品質は、乾燥前後の膜厚と後述の画像撮影による形状測定によって監視される。膜厚測定については、塗布直後のWET状態の膜厚と、乾燥直後のDRY状態の膜厚を計測することができる。サンプルの特徴から共焦点光学式の変位計を用いており高さ分解能1 μm での計測が可能である。WET状態の膜厚については、スリットダイの直後に膜厚計を配置し、塗布動作と同期させることで塗布直後の膜厚を計測することが可能である。



Figure 4 Coating test sample.

乾燥

生産ラインを模擬し、それぞれ別の乾燥条件を設定できるように、独立で制御可能な熱風式乾燥炉を4ゾーン設けた(**Figure 5**)。各乾燥炉では、風速を0~10 m/sec、温度を常温~180度、および乾燥時間を任意に設定することが可能である。この熱風の制御には株式会社堀場エステック社製のマスフローコントローラSEC-E50を使用し、高精度な流量制御を行っている。また乾燥中のサンプルの中心表面温度を、堀場製作所の放射温度計IT-480Fで計測し、サンプルの乾燥の指標としてモニタ出来るようにしている。この放射温度計は本装置向けに測定距離と測定スポット径を専用カスタマイズしており、装置の小型化に寄与している。さらに炉内の複数点をシース熱電対で温度測定し、生産設備にスケールアップするときには炉内の温度条件を比較できるようにになっている。

画像撮影および表面粗さ測定

塗工や乾燥条件により、乾燥後のサンプルにひび割れや表面粗さの違いが生じる。塗布領域に対してのひび割れ率を正しくとらえるため、塗布試料の乾燥前後にてテレセントリック光学系および透過光により撮影し、得られた画像から画像処理にて塗布領域内のひび割れ率を測れるようにしている。また、高画素カメラを用いることで画素分解能 $6.9\mu\text{m}/\text{Pixel}$ で10 mm角以上の領域を計測することができる。

表面粗さについては、乾燥後に白色干渉計を用いて1 mm角エリアの表面粗さを、高さ分解能 $1\mu\text{m}$ で計測できる。また、カットオフ周波数を選択することで、カットオフ周波数以下の細かい表面粗さ、カットオフ周波数以上の粗い表面粗さを計測できるようになっており、サンプルの表面性状の指標にできる。

インピーダンス測定

評価の最後として接触式のインピーダンス計測を行っている。小片サンプルの測定を行うため小型のサンプルプローブを採用している。また再現良く計測するために、接触時の圧力が一定になるようにプローブの固定を行っている。

上記各ユニットを経由し、サンプルホルダは最後にストッカーに戻される。得られた情報をもとにバイズ最適化が行われ、次の製作パラメータを決定し、サンプルの製作が開始される。この間、人の介入はなく、指定したパラメータの最適値を導くための自動実験が可能である。

おわりに

本稿では、堀場製作所で製作した、燃料電池の塗布・乾燥の生産プロセスを模擬した自動実験装置を紹介した。この装置により、コンパクトでありながら、燃料電池の生産パラメータと評価パラメータの一貫したデータ制御を行うことが可能となる。塗布・乾燥プロセスは、燃料電池の生産プロセスにおける一部分ではあるが、この装置から得られたデータを用いて、データ主導で生産条件を最適化することが達成できた暁には、プロセスインフォマティクスを用いた省人、省スペースでスピード感のある生産設備の社会実装が実現可能になると考えている。さらに**Figure 1**で示したような様々な分析計を応用することで、新たな評価項目、例えば塗布前のインク材料の管理や、バッテリーパックの劣化評価など多種にわたるデータの取得や、新たな指標の実装が可能になることから、燃料電池全体のライフサイクルに対し、DXソリューションとして重要な役割を担うことができると考えている。研究における非常に重要なデータを取り扱う分析計メーカーとして、プロセスインフォマティクスの活用や、開発者や研究者が求めるDXソリューションの提案に努めていきたい。

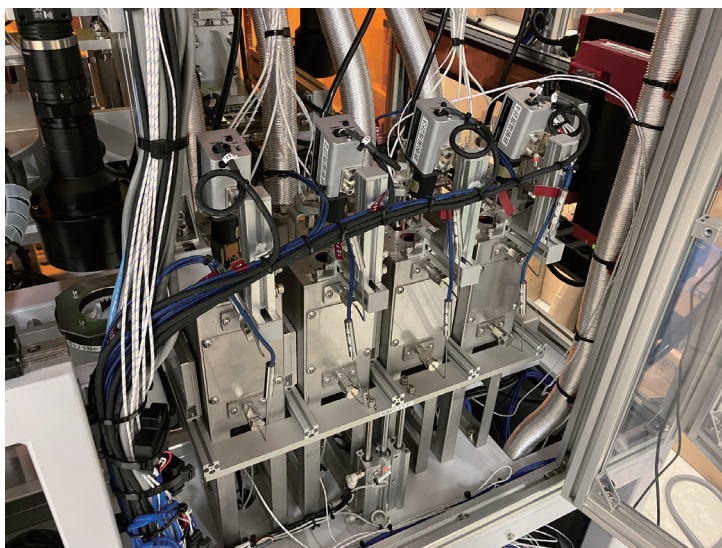


Figure 5 Drying unit

謝辞

本プロジェクトを通して全体の運営や多大なるサポートをくださったNEDOの皆様には厚く御礼申し上げます。また塗布や乾燥の生産設備に関する深い知見や様々なアドバイスをいただいたオールスターFCおよびFC-Cubicの皆様には深く感謝を申し上げます。また共同プロジェクトメンバーとして様々なご協力、ご助言をいただいた東京大学、金沢大学、九州大学の皆様に深謝の意を表する。

*編集局注：本内容は特段の記載がない限り、本誌発行年時点での自社調査に基づいて記載しています。

参考文献

- [1] NEDO(国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構), NEDO燃料電池・水素技術開発ロードマップ-FCV・HDV用燃料電池ロードマップ(解説書), p187, (2025), https://www.nedo.go.jp/library/battery_hydrogen.html



吉村 紗矢香

YOSHIMURA Sayaka

株式会社堀場製作所
開発本部 オープンイノベーションLab部
サブリーダー
Assistant Section Leader,
Open Innovation Lab Dept.,
R&D Division,
HORIBA, Ltd.



秋山 久

AKIYAMA Hisashi

株式会社堀場製作所
開発本部 オープンイノベーションLab部
Open Innovation Lab Dept.,
R&D Division,
HORIBA, Ltd.



西貝 大樹

NISHIGAI Hiroki

株式会社堀場製作所
開発本部 オープンイノベーションLab部
Open Innovation Lab Dept.,
R&D Division,
HORIBA, Ltd.



館野 宏志

TATENO Hiroshi

株式会社堀場製作所
開発本部 オープンイノベーションLab部 副部長
Deputy Department Manager,
Open Innovation Lab Dept.,
R&D Division,
HORIBA, Ltd.