

燃料電池自動車用水素燃料仕様に係る 国際標準化の動向

富岡 秀徳

財団法人日本自動車研究所 FC・EV研究部

〒105-0012 東京都港区芝大門1-1-30 12階

International Standardization for Hydrogen Fuel for Fuel Cell Vehicles

Hidenori TOMIOKA

Japan Automobile Research Institute

1-1-30 Shibadaimon Minato-ku, Tokyo, 105-0012

Dissemination of fuel cell vehicles (FCV) is one of the key issues for preservation of the environment on earth, especially for reduction of greenhouse gasses. Standardization of those technologies is important to develop the market growth of FCV. This paper reviews the progress of international standardization for the hydrogen fuel quality of proton exchange membrane (PEM) fuel cell applications for road vehicles, and indicates the prospect of the further standardization. The technical specification ISO/TS14687-2 which was for the FCVs introduction stages has been published in 2008. It is now revised for the international standard and is expected to be published in the middle of 2012. This international standard is also going to be revised because some of the items need to be reviewed for the mass production stage which will come in years before next decade.

Keywords: Standard, Hydrogen quality, Fuel cell vehicles, ISO14687-2

1. はじめに

燃料電池自動車(Fuel Cell Vehicle : 以下FCV)は、燃料として水素を利用し、燃料電池で発電した電気によりモータを駆動し走行する自動車である。走行中排出するのは、水素と大気中の酸素との反応により生成する水のみである。そのため、温室効果ガスであるCO₂の排出量削減のみならず、大気汚染排出ガス低減など、環境対策に大きく寄与するものとして着目されている。国のエネルギー基本計画(2010年6月閣議決定)においては、FCVの2015年の普及開始を目指すこととしている。一方、産業界では、日・米・欧の自動車メーカーがFCVの2015年からの市販計画を発表している。また、自動車メーカー、エネルギー事業者等から構成される燃料電池実用化推進協議会が2010年3月、2015年FCV、水素インフラの普及開始、2025年にFCV200万台、水素スタンド1,000基と

する普及シナリオを公表した。さらに2010年には、韓国や中国でも2015年からのFCVの量産化計画が示された。

燃料電池自動車(FCV)用の燃料仕様の国際標準化については、2003年より活動を開始し、国際間の研究協力を通じ国際規格(International Standard: IS)発行を目指して進めている。2003年10月に、FCV用の燃料仕様に関する日本提案が承認され、日本より議長(高木靖雄/東京都市大学名誉教授)を選出しISO/TC197(水素技術)AWG12(FCV用水素燃料仕様)が発足した。この提案は、NEDO事業にて、(財)日本自動車研究所(JARI)が実施した水素燃料中の不純物の燃料電池に及ぼす影響について検討した試験結果[1]を基に作成されたものである。参加各国の熱心な審議を経て、2008年3月にTS(Technical Specification: 技術仕様書)として発行された。本稿では、TSを発行するまでの経緯に簡単に触れ、その後のIS化のための審議の動向について述べる。

2. TS発行までの経緯

このプロジェクトは、当初既存のISO14687(水素燃料仕様)に関するAmendment(追補)を発行する新規提案を行い、IS化を目指した。1999年に発行された当初の規格は、自動車用としては内燃機関のための品質を設定していたにも関わらず、燃料電池へ適用されると記述されていた。表1にも記載した当該規格では、燃料電池がたちまち不具合となる可能性が高い。その是正のため、上記新規提案を行った。

この日本提案に対し、不純物の影響を確認する発電試験を行った成分数が限られている、試験時間が10時間と短いなどの理由から、米国・カナダより、ISとするにはデータが不十分であり時期尚早とのコメントが付された。数回にわたる審議を経て、FCV導入期の水素燃料仕様としてTS(ISO14687のPart 2 : ISO/TS14687-2 : FCV用水素燃料仕様)を発行し、直ちにIS化に向けて各国研究協力を行い、IS化に資するデータを収集することが合意された。

TS策定の過程においては、主にNEDO水素社会構築事業で得られたJARIのデータ [2], [3] を中心に議論を進め、加えて、北米から、CO₂、ハロゲン化物、粒子状物質等の規定に関して提案があり、それらを考慮し規格値を策定した。

具体的には、日本は主に燃料電池の発電性能に直接影響を与える成分(S, CO, NH₃等)の規格値についてデータに基づいて提案した。これに対し、主に北米からの議論は、①規格値は分析定量可能な値以上で定める必要がある、②CO₂、水、酸素、粒子状物質等の、FCVのシステム(水素貯蔵メディア、配管、バルブ)に対して影響を与える成分について規格値を定めるべきであるとの論旨を展開し、それらの規格値案を示した。

これらの議論を審議・調整し、各国の提案を取り込む形でTSの規格値を策定した。2006年7月にDraft Technical Specification (DTS) をTC197に提出し、投票の結果反対票なしで承認され、2008年3月にTS14687-2として発行された。当該TSの不純物の規格については、表1.の中に示したとおりである。

3. IS発行を目指したプロセス

2008年3月のTS発行後、導入期のFCVおよび水素の市

場を想定したIS化に対し、WG12参加国、特に日本 [4], [5] と米国、仏国との積極的な燃料電池テストでの研究協力の結果と併せて、燃料供給側の検討項目、主に純度と製造コストのトレードオフバランスの検討、品質管理手法等について検討し、それらを反映したCD (Committee Draft : 委員会原案、2009年8月から10月の2ヶ月間) を介し、DIS (Draft International Standard : 照会原案、2010年12月) を策定した。その後 FDIS (Final Draft International Standard : 照会原案) を経て IS (International Standard : 国際規格) 発行に至る。現状で2012年6月の発行を目指している。以下にFDISを目指した主な審議内容について概説する。

3.1 燃料電池テストの結果について

JARIにおいて実施した研究成果のうち、主に2009年度に開催されたWG12国際会議にて報告し、規格案の審議に貢献した項目としては、主に長時間試験、アノード白金担持量が水素中不純物による劣化挙動に及ぼす影響、混合不純物の影響等が挙げられる。以下にこれらの内容についてその概略を紹介する。

1) 長時間試験 (CO, H₂S, NH₃)

通常FCV用水素燃料として水素が供給される際、5,000時間運転後も不純物による影響が発現しないことが求められている。そこでCO (0.2 ppm)、H₂S (0.004 ppm) についてはTSの規格値まで添加した水素を5,000時間導入し、NH₃ (0.1 ppm) についてはTS規格値の10倍の濃度 (1 ppm) で500時間 (5,000時間の1/10) の試験を実施した。その結果、上記3種の不純物とも上記試験の範囲において不純物による劣化は観察されなかった。これはTSにて規定される規格値が妥当なものであることを示唆している。

2) アノード白金担持量の影響

FCVのコスト低減のための取り組みの一つとして、白金担持量の低減が求められている。現状においてアノードの白金担持量削減の目標値は0.05 mg/cm²程度と見込まれている。JARIのTSの規格値設定のため実施した試験においては、白金担持量が0.4 mg/cm²であった。この0.4 mg/cm²と0.05 mg/cm²との範囲で白金担持量を変化し、不純物による劣化挙動に及ぼす影響について確認し、以下のような結果を得た。

- CO : CO による電圧低下量が、白金担持量が減少するとともに大きくなり、白金担持量の影響は顕

著に現れる。0.05 mg/cm²の場合、TS 規格値の 0.2 ppm であってもわずかに影響は観察された[6], [7]。

- H₂S : H₂S も白金担持量の影響が顕著に確認され、白金担持量が少ないほど電圧の顕著な低下を示す H₂S 添加量が減少することがわかった。
- NH₃ : NH₃ については、NH₃ による劣化挙動が白金担持量に影響されないことが確認された。

以上の結果は、COあるいはH₂Sが触媒への吸着、反応等により触媒が被毒するという劣化機構に対し、NH₃は触媒に大きな影響を及ぼさず、電解質膜に影響を及ぼすことを示唆する結果となった。

3) 混合不純物の影響

これまでの不純物の試験は各々単一の不純物の影響を検討してきた。WG12国際会議の中でも複数の不純物が同時に添加されたときにどのような挙動を示すのかが、規格値の策定に関わる重要な因子であると認識されていた。特に、複数の被毒成分が混合されることにより、複合効果により個々の成分の影響の総和より大きな影響(劣化)が発現すると、規格値策定の支障となる恐れがある。

具体的にはCO・H₂S、CO・NH₃、H₂S・NH₃の2成分ずつ3種の不純物の組み合わせについて、それぞれ発電試験を行った結果、混合不純物による電圧低下は、それぞれの単独の不純物による電圧低下量の和で表されることがわかった[8], [9]。この結果により、当該試験の範囲において、単独の不純物の試験を実施することで規格値の検討することは問題ないと結論した。

3. 2 水素インフラ側の課題

1) ヘリウムの緩和

Heについては、燃料電池には無害であるが、FCVのシステムコントロールのために、管理する必要のある成分である。もともと日本の提案の際には、日本の市場調査に基づいたデータから設定しており、液化天然ガスを主な原料とする日本の水素において、特に問題なく他の希ガスと共に100 ppmと定めていた。

これに対し、米国等、天然ガスを液化せず、直接パイプラインで供給する国においては、含まれるHeが液化により除去されずに、原料として使用される。その際、通常の製造プロセスである水蒸気改質、PSAのシステムではHeは十分に除去されず、製品水素中に残存することとなる。米国等の市場調査をベースとした検討結果に

より、300 ppmまでの緩和により、供給可能であることが確認され、また、自動車側も、その程度の値であれば、システムコントロール上問題ないことを確認した。ただし、その他の指定成分中の希ガスであるN₂とArについては、システムコントロール上問題であることと、また、水素ステーションでの計量(重さ)に大きな誤差を与える懸念から、100 ppmで据え置くことが合意された。

2) 燃料供給側の検討課題

粒子状物質のTSにおいて設定されていたサイズ規定について、ISにおいては削除することとした。これは、主に米国で実施された水素ステーションの分析結果において、濃度については問題なかったが、全てのステーションで規定より大きい粒子が散見されたことによる。米国の場合、カリフォルニア州法にて水素燃料仕様が定められており、このままでは全てのステーションが州法違反となる。そのため、サイズについてはノズル側に適正なフィルターを設置することをステーションの規格にて規定する等の対応により、燃料仕様からはサイズ規定を削除するとの方策でこの問題を回避しようとした。なお、日本でも測定した各ステーションから10 μmを超える粒子が検出されており、米国特有の問題ではない。

粒子状物質については、具体的な試験データも十分ないこともあり、今後、次期改定にむけて、検討が必要な項目の1つである。

3) 分析法及び品質管理に係る課題

これまで、分析法については米国ASTMが開発した水素中不純物の分析方法の規格を参照する方向で検討されていたが、ようやくTC197との合意が得られ、当該ASTMを参照できることとなった。また、現状での全ての成分の規格値に対して十分な定量下限を保証できることが示された。

一方、Linde、Air Liquide等の欧州系燃料供給会社は、14成分に及ぶ規格に対して難色を示していたが、彼らが通常供給している水素ガスが、十分規格値を満たしていること、また、それらの品質保証は、彼らが今まで採用している通常のプロセスコントロールにより十分達成されるとの認識が示され、一定の合意が得られた。具体的には、参考情報(Annex B)として、水蒸気改質、PSAの製造システムについて、その品質管理の手法を示し、規格を補足している。

表1. ISO14687-2 FCV用水素燃料規格の変遷

仕様	ISO14687-2 2012年予定	ISO/TS14687-2 2008年	ISO14687 1999年
	Grade D	Grade D	Type I, Grade A
純度	99.97 %	99.99 %	98 %
総炭化 水素	2 ppm	2 ppm	100 ppm
H ₂ O	5 ppm	5 ppm	合わせて 1,900 ppm
O ₂	5 ppm	5 ppm	
He	300 ppm	100 ppm	
Ar, N ₂	100 ppm	100 ppm	
CO ₂	2 ppm	2 ppm	---
CO	0.2 ppm	0.2 ppm	1 ppm
S	0.004 ppm	0.004 ppm	2 ppm
HCHO	0.01 ppm	0.01 ppm	---
HCOOH	0.2 ppm	0.2 ppm	---
NH ₃	0.1 ppm	0.1 ppm	---
ハロゲン化 物	0.05 ppm	0.05 ppm	---
粒子	1 mg/kg	1 µg/L (10 µm以下)	問題なきこ と

4. IS発行後の課題と日本の取組

上述の取組により、2012年の当該国際規格の発行に目処が立った。これによりFCV導入期の世界共通の水素燃料仕様が定まった。しかしながら、この仕様は、実証試験あるいは導入期の限定された台数のFCVを暫定的に守ることを主目的に規格値が策定された。そのため、自動車・インフラ双方とも直ちに改定作業に取り掛かることを前提として、国内合意を形成した経緯があった。今後の普及期（2015年～2025年）、特にその後半の拡大期（2020年～）の大量普及を想定したFCV技術、燃料供給インフラビジネスに適した燃料規格を目指し、改定作業（2017年頃発行を目処）を要する。そのため、試験研究も含めた取組の更なる強化が必要となっている。

普及期においては、FCV側からみれば、大量普及のために高性能化、低コスト化を目指す中で、実運転に即した条件での試験でないと、過剰な品質を燃料に求める可能性が高いことがわかってきている。さらに、今まで十分な検討を行っていなかった粒子状物質あるいはオイルミスト等について検討してゆく必要がある。一方、燃料供給側からは、コスト低減のため、可能な限り規格値の緩和が求められている。

これらの課題に対応し、大量普及時代に即した規格を策定することにより、FCVの普及の促進が加速されるも

のと考える。

5. おわりに

以上、FCV水素燃料仕様についての国際標準化の動向について述べてきた。IS化を推進するため、各国との研究協力を進め、2012年中には国際規格（IS）として初版が発行される目処が立った。IS発行後、より成熟した市場に適用するISを目指し、直ちに改定作業に入る手筈となっている。今後も、これらの活動を継続し、国際標準化活動に対し引き続き貢献してゆく。

なお、これらの成果は、新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の委託により財団法人日本自動車研究所が実施した「水素製造・輸送・貯蔵システム等技術開発」の一部である。

参考文献

1. NEDO, 平成14年度成果報告書「自動車用固体高分子形燃料電池システム普及基盤整備」燃料性状規格検討に関する調査, (2003年3月)
2. NEDO, 平成15年度成果報告書「自動車用固体高分子形燃料電池システム普及基盤整備」燃料性状規格検討に関する調査, (2004年3月)
3. Akai, et al., Influences of Impurities in Hydrogen on Fuel Cell Performance, 15th World Hydrogen Energy Conference, (2004)
4. 松田佳之他: 燃料電池の水素循環系における不純物の濃縮調査, 自動車研究, Vol.29, No.6 p.259-262(2007)
5. 松田佳之他: 燃料電池の水素循環系における不純物の濃縮挙動, 自動車研究, Vol.30, No.7 p.351-354(2008)
6. 橋正好行他: Pt 担持量がCOによる燃料電池の発電性能の低下に及ぼす影響, 自動車研究, Vol.31, No.7 p.317-320(2009)
7. Hashimasa, et al., Effects of Platinum Loading on PEFC Power Generation Performance Deterioration by Carbon Monoxide in Hydrogen Fuel, ECS Trans. 26 (1), 131 (2010)
8. 松田佳之他: 混合不純物 (CO, H₂S) が燃料電池発電性能へ与える影響, 自動車研究, Vol.31, No.7 p.321-324 (2009)
9. 松田佳之他: 複数の不純物 (CO, H₂S, NH₃) を混合させた水素の燃料電池発電性能に対する影響, 自動車研究, Vol.32, No.7 p.345-348 (2010)