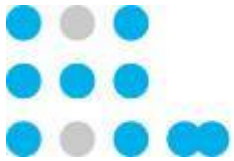
燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業／
Collaborative Industry-Academia-Government R&D Project for Solving Common Challenges Toward Dramatically Expanded Use of Fuel Cells and Related Equipment/
共通課題解決型基盤技術開発／
Development of Fundamental Technologies for Solving Common Fuel Cell Challenges/



FC•Platform

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

FC-Platform Program: Development of design-for-purpose numerical simulators for attaining long life and high performance project

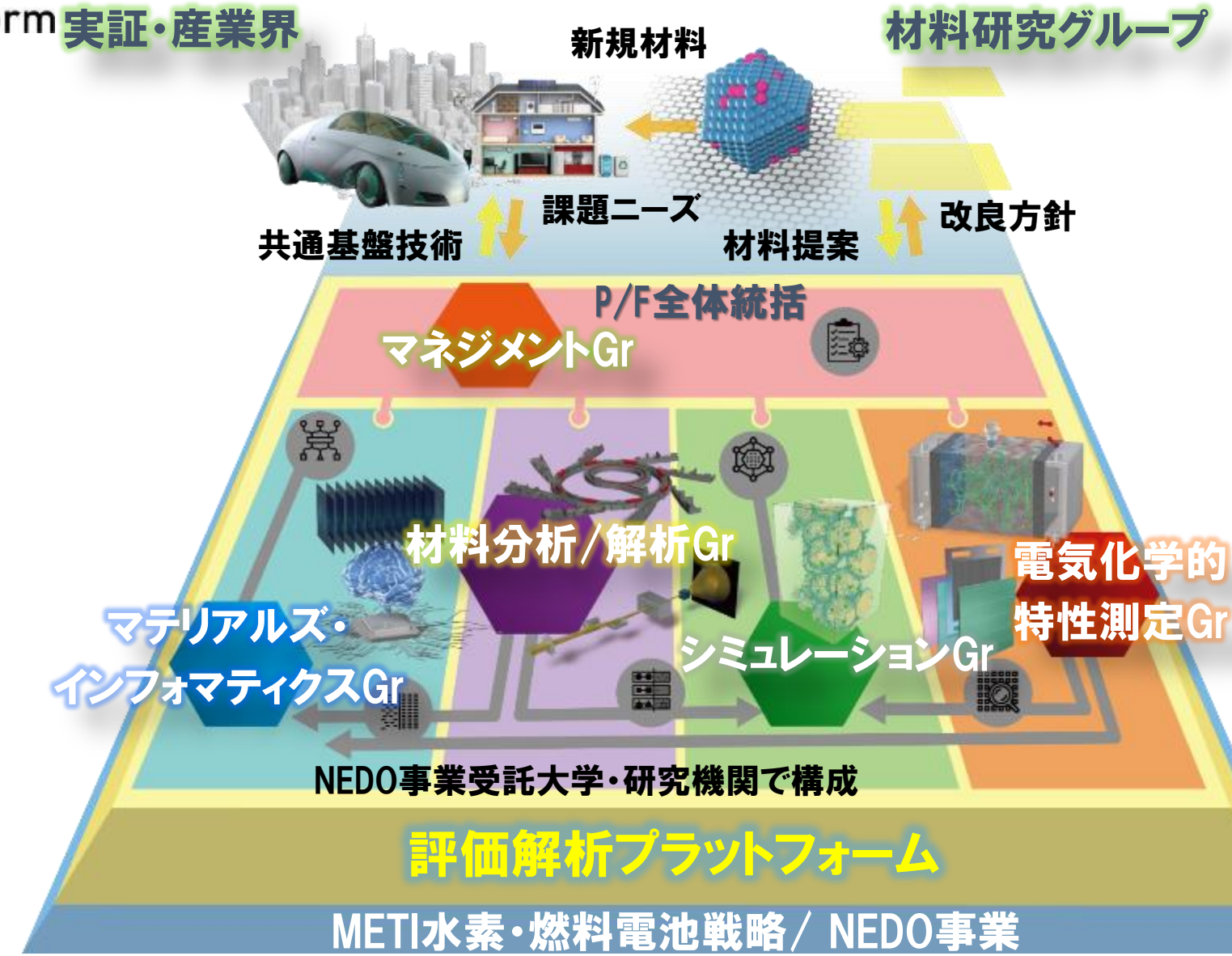
京都大学，東北大学，九州大学，東京大学，東京工業大学

GL 河瀬元明（京都大学）

評価解析プラットフォーム

FC・Platform

FC・Platform



【目的と成果物】

A）材料改良方針
材料・MEA評価

B）現象の可視化
高度化オペランド解析

C）現象の予測
性能・寿命予測モデリング

革新材料創生
経験・理論的設計

評価解析プラットフォームシミュレーショングループ構成7機関

FC•Platform

シミュレーションGr

京都大学

河瀬
行天
長谷川
影山

中川

東北大学

久保
尾澤

徳増

東京工業大学

平井
酒井
笹部

九州大学

井上

東京大学

杵淵

（再委託先）東京農工大学

国立大学法人 東京農工大学
Tokyo University of Agriculture and Technology

金

（再委託先）産業技術総合研究所

産総研

小椋

FC•Platform

評価解析プラットフォームワークパッケージ（WP）

FC•Platform

評価解析プラットフォームWP2: モデル駆動材料設計

材料分析/解析Gr

オペランド現象解析

数理モデル

シミュレーションGr

バリデーション

性能・寿命予測

電気化学的特性測定Gr

モデリング 法則発見 数式と値を決める

シミュレーション 現象予測

材料～アプリケーションを繋ぐ

材料・プロセス

MEA

セル・スタック

動力特性

革新材料設計

☆ 多用途展開にも活用

燃料電池＝多種類の現象を含む複雑系　多くの実施項目

FC•Platform

実施項目 4 , 4-2, 4-3 **FCシステム**モデル，MBD

モデルベースのPEFCシステムシミュレーター

実施項目4-1 **スタック**モデル

冷却モデル

多次元モデル

補機モデル

多用途対応

実施項目 3 **セル**モデル

発電性能を予測するマルチスケールシミュレーター

実施項目 1 , 1-1～1-4
PEM劣化

・化学劣化
・機械劣化
・ラジカルクエンチャー移動

PEMの化学・機械劣化連成シミュレーター

3-8 PEM水収着速度モデル

3-9 GDL伏流モデル

流路モデル

電極モデル

3-1 電極活性モデル

3-2 アイオノマー被覆モデル

3-3 担体モデル

3-4 担体細孔モデル

3-5 層構造モデル

3-6 液水飽和モデル

3-7 アイオノマー酸素透過モデル

実施項目 2 , 2-1
電極形成プロセス

製造プロセスから電極構造を予測するシミュレーター

工場に匹敵する複雑さ，流出入あり，理解を助けるモデル，コストを下げるシミュレーション

実施項目の連関

FC•Platform

実施項目 4 , 4-2, 4-3

アプリケーション
FCシステム

MBD

モデルベースのPEFCシステムシミ

実施項目4-1

スタック

実施項目 3

セル

発電性能を予測するマルチスケールシミュレーター

冷却
モデル

多次元
モデル

補機

多用途
対応

実施項目 1 , 1-1～1-4

PEM劣化

・化学劣化
・機械劣化
・ラジカルクエンチャー
移動

PEMの化学・機械劣化
連成シミュレーター

電解質膜
PEM

3-8 PEM
水収着速
度モデル

GDL
流路

流路モデル

電極モデル

ガス拡散電極

3-2 アイオノマー被覆モデル

炭素担体

電解質バインダー
アイオノマー

白金触媒

3-7 アイオノマー酸素透過モデル

実施項目 2 , 2-1

電極形成
プロセス

製造プロセスから
電極構造を予測す
るシミュレーター

ポリマー

炭素, 金属

炭素

白金

ポリマー

材料で決まる
決まらない

FC•Platform

燃料電池評価・解析プラットフォームシミュレーショングループ

PEM化学劣化シミュレーター

PEMの分子量分布に着目

OH・による加速劣化試験

京大

MW

応力下高次構造変化シミュレーター

東北大

分子動力学計算と分析・解析データ

①PEMの化学・機械劣化連成シミュレーター

X線溶出試験

水 CeO_x Ce^{3+} 水 水 水

東工大

セリウムイオン分布予測シミュレーター

東北大

計測と分子動力学計算から構築

要素モデルを順次開発し統合

・電気化学Gr　バリデーション

・MI Gr　連携

材料からの現象予測評価をフィードバック

・材料分析・解析Gr

物性値,特性値

電極反応活性モデル

全原子電極反応計算

マルチスケール複合計測

東工大

2μm

東北大

②触媒層構造形成過程のプロセスシミュレーター

一次細孔モデル

I/C =0.82 (w/w) Coverage=0.964

I/C =0.72 (w/w) Coverage=0.948

東北大　京大　九大

マルチスケールシミュレーション

担体構造モデル

東北大　東大　東北大

東大　九大　東北大

担体細孔内水状態

触媒層内液水飽和モデル

電極構造モデル

アイオノマーの酸素透過抵抗の計測

京大

構造から性能を予測するシミュレーター

③製造プロセスから発電性能を予測するマルチスケールシミュレーター

要求特性・外部環境

バーチャル車両等のシステム

制御モデル　エア系モデル　パワーマネージメントモデル　H_2系モデル　車両駆動モデル

FCシステムモデル

冷却系モデル　スタック（マスバランス）（過電圧・劣化）　エア　H_2　冷却

京大　④MBD　システム・車両挙動

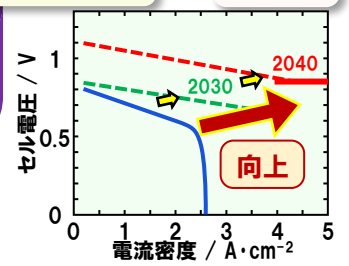
コンプレッサー　電池　スタック　セル　FC材料

・スタック出力
・車両加速性能
・システム劣化

MPL　GDL 伏流　PEM 動的挙動

穿孔予測

産業界・実証　新規材料　材料研究テーマ



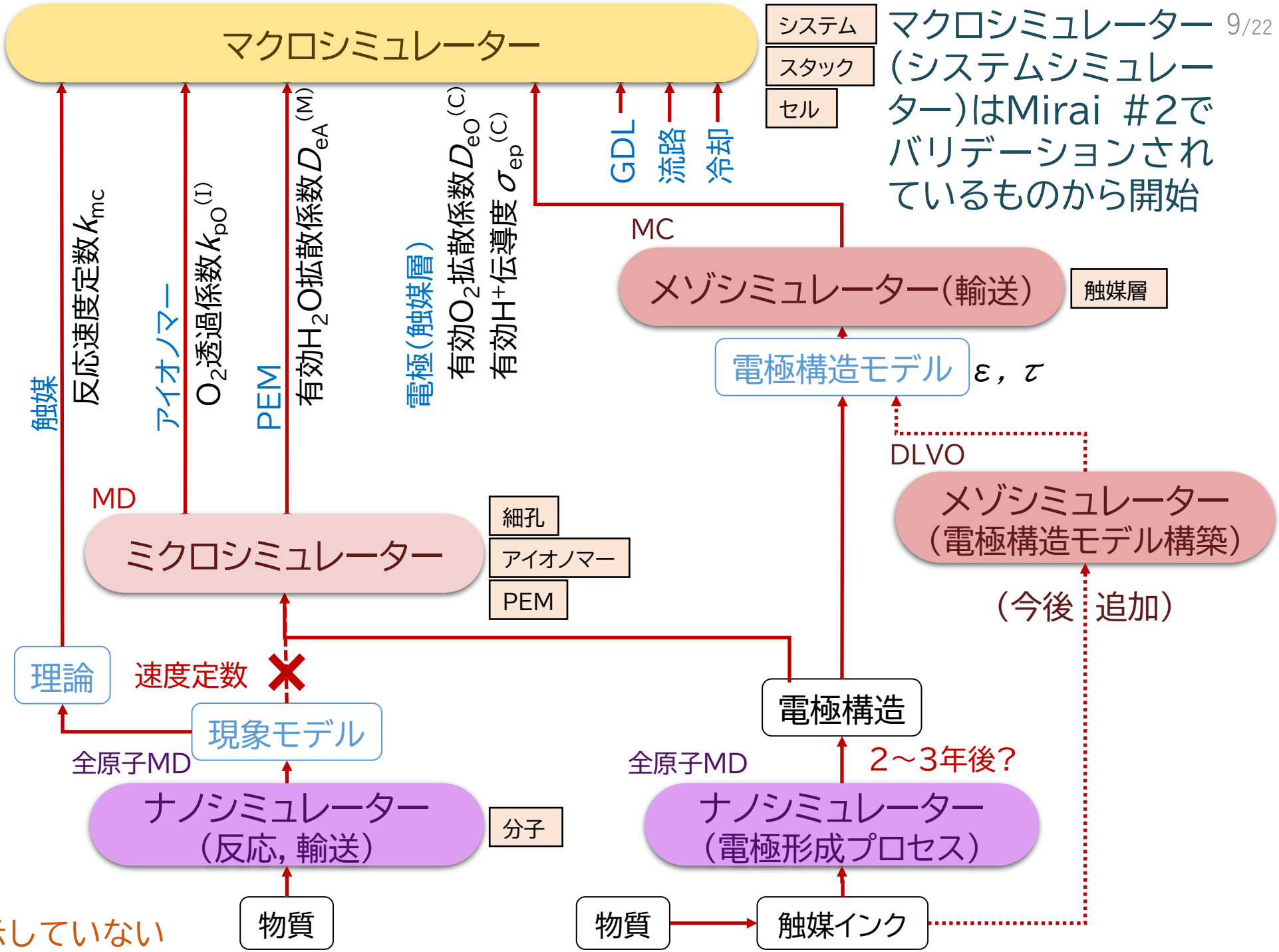
FC•Platform

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ていく

注．計測テーマは本図には示していない

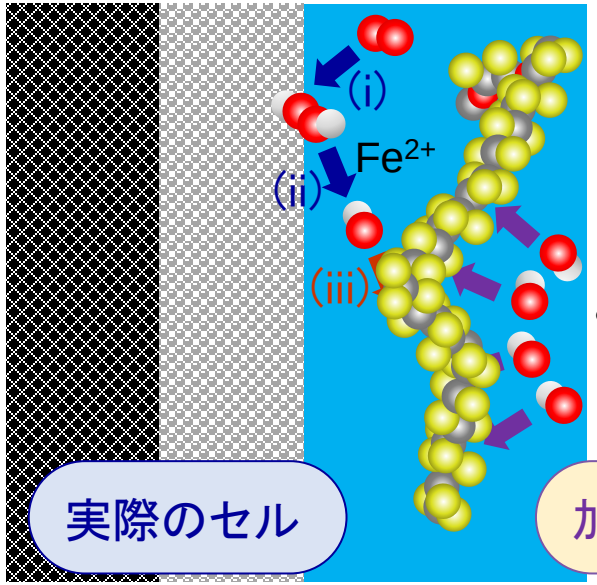


膜劣化：実施項目1-1 PEM化学劣化モデル

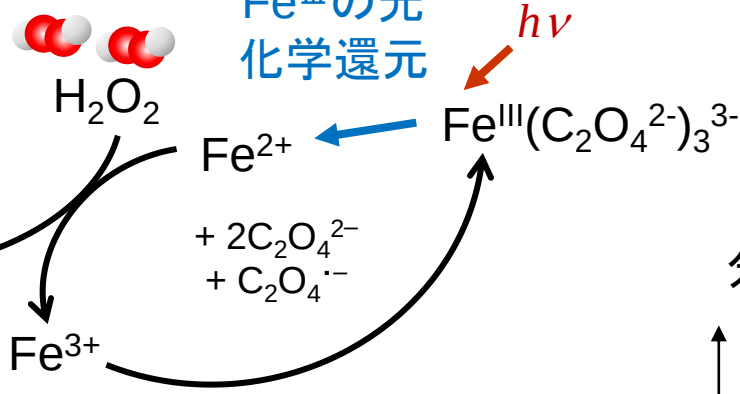
京都大学

FC•Platform

(i) O_2からのH_2O_2の生成 ⇨ (ii) H_2O_2からの・OHの生成 ⇨ (iii) ・OHと高分子鎖の反応 ⇨ 化学劣化



加速劣化



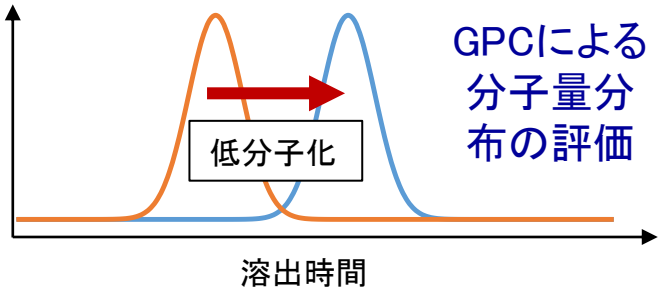
Fe^{III}の光化学還元

$h\nu$

$Fe^{III}(C_2O_4^{2-})_3^{3-}$

光量による•OH発生速度の制御（継続的な発生）

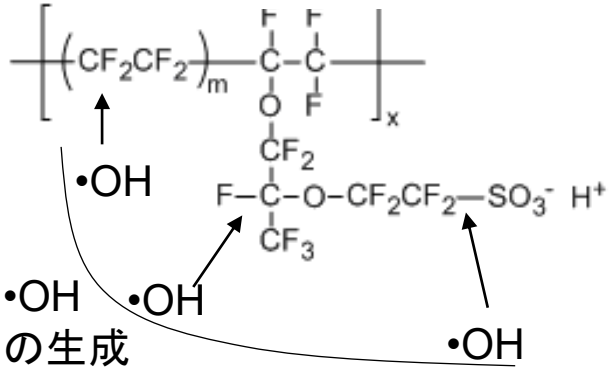
分子鎖の切断に伴う膜の劣化



GPCによる分子量分布の評価

膜の分子量分布の変化に着目

高分子鎖と•OHの反応



膜劣化速度の定量化

劣化の評価←分子量分布

反応速度の定式化

- •OH生成速度
- •OH濃度
- •OH消費速度

PEM化学劣化モデルの開発、数値シミュレーションの実現

膜劣化：実施項目1-3 Ce溶出モデル，実施項目1-4 Ce輸送モデル

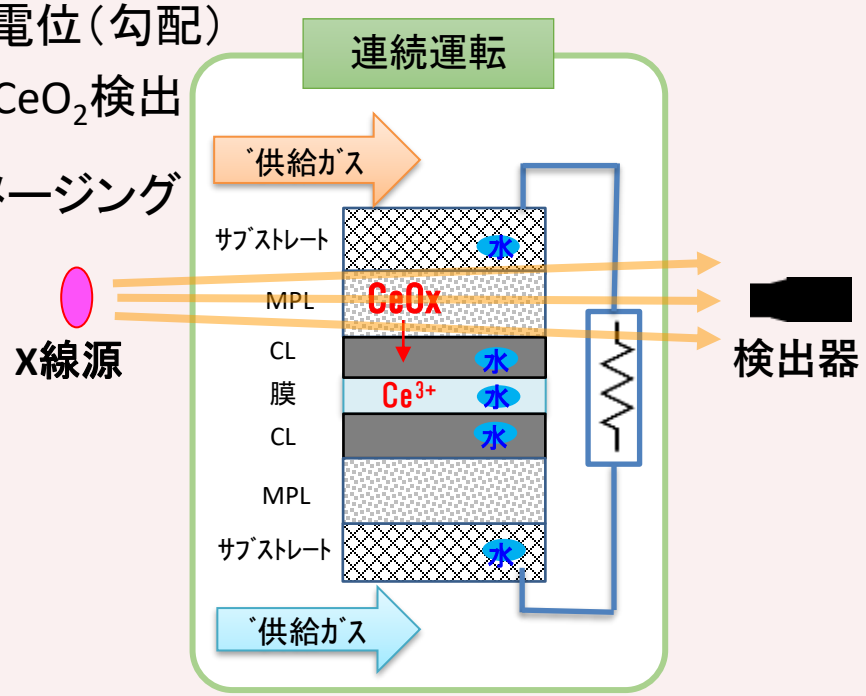
FC•Platform

1-3. 酸化セリウム(CeO_2)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

- 各運転環境下にてMPL添加のCeO_2溶出速度、および移動速度を計測
  ⇒シミュレータ開発へのデータ提示・検証
  ⇒CeO_2溶出制御方法の導出

東京工業大学

- 試験パラメーター
  ・水移動（供給ガスRH）
  ・電位（勾配）
- CeO_2検出
  ・X線イメージング

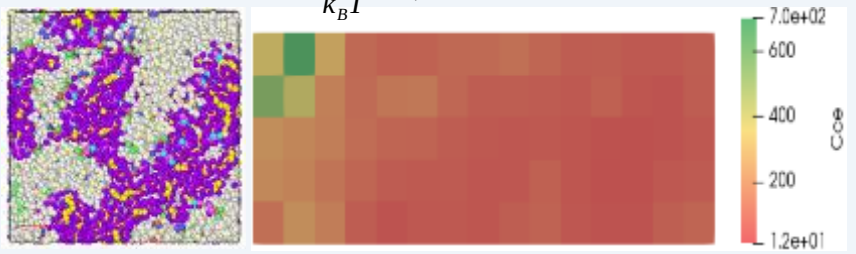


1-4. セリウムイオン輸送モデルの構築とPEM内セリウムイオン分布予測シミュレーターの開発(膜内3次元分布計算)

東北大学

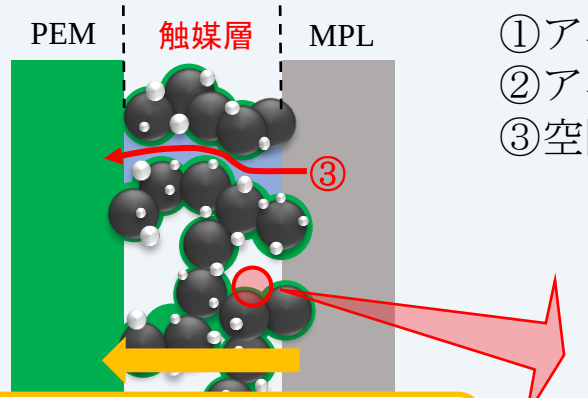
モデル化 $D = f_D(\lambda, c, T)$

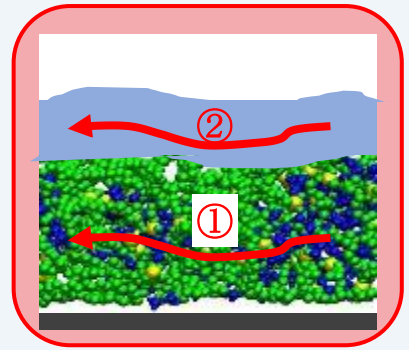
$\mu = \frac{D}{k_B T} = f_\mu(\lambda, c, T), \quad \alpha = f_\alpha(\lambda, c, T)$



MPLからPEMへのセリウム供給モデルの開発（境界条件）

セリウムイオン輸送経路
①アイオノマー内部
②アイオノマー上部の水の層
③空隙が水で満たされた領域





$J_{Ce} = f(\lambda, T)$
セリウムイオン供給モデル

膜劣化：　実施項目1-2 応力構造モデル，実施項目1 劣化シミュレーター

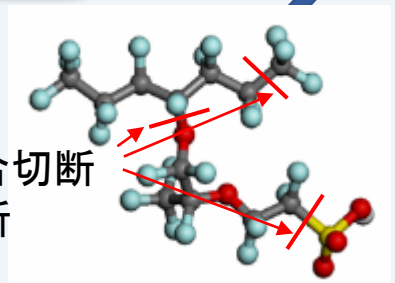
FC•Platform

化学と機械劣化の相乗効果で加速する劣化を予測

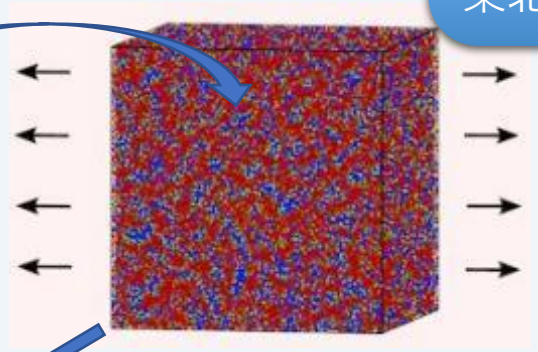
応力構造変化モデル　応力（機械劣化）　⟷　化学劣化　1-1. 膜化学劣化モデル

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(応力と高次構造の相関)

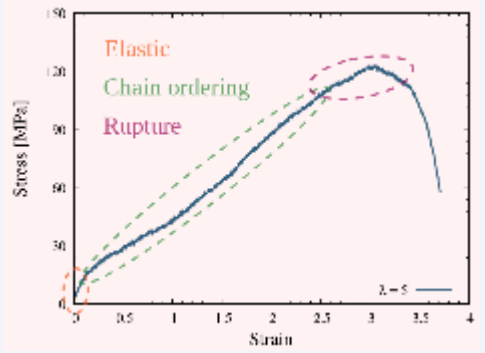
東北大学



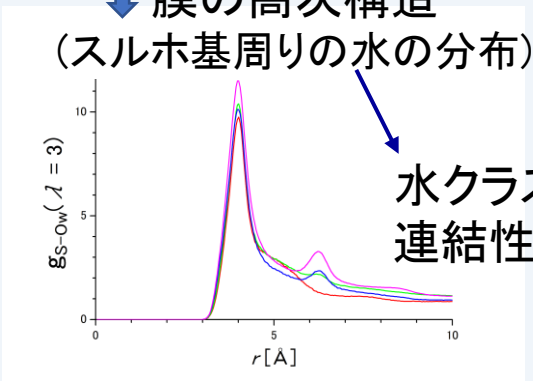
東北大学



応力ーひずみ曲線



膜の高次構造
（スルホ基周りの水の分布）



水クラスター
連結性

(相乗効果の現段階での仮説)
高分子鎖の伸長
水クラスターの連結性の変化
↓
・OHラジカルの高分子主鎖へのアクセス性向上
・膜中のOHラジカル輸送性の向上
・劣化抑制種(Ceイオン)の欠乏
↓
化学劣化促進

1-3, 1-4. Ce溶出・輸送モデル

3つのモデルを統合

1. PEMの化学・機械劣化連成シミュレーターと長寿命化達成のための設計用シミュレーターの開発

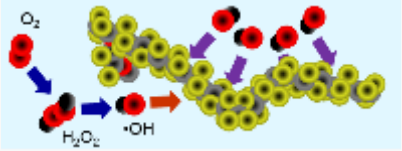
京都大学

FC•Platform

1-1. PEM化学劣化シミュレーターの開発(京大)

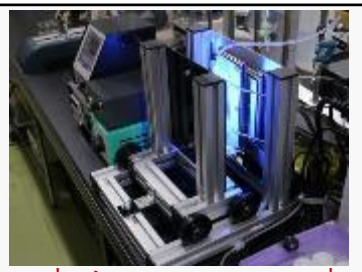
膜の化学劣化反応の速度過程を
シミュレートし、膜の寿命を予測

O_2の還元によるH_2O_2の生成

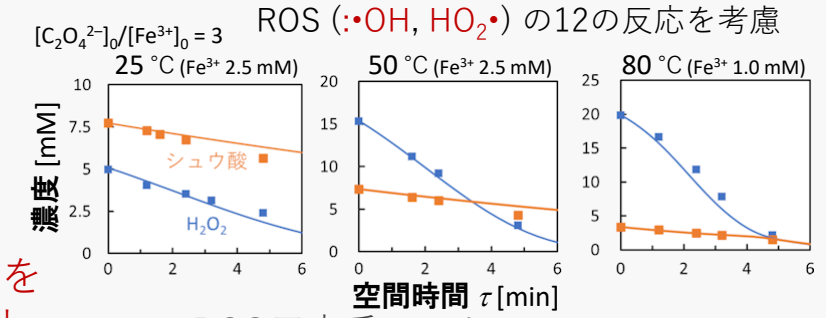


H_2O_2の分解による•OHの生成

膜の加速劣化装置



Fe^{3+}のLMCT反応とFenton反応を組み合わせて •OHラジカルを発生



ROS反応系のシミュレーション

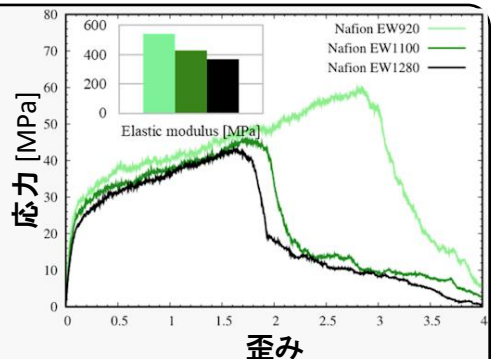
加速劣化手法
膜劣化の定量的評価法
劣化反応速度の定式化

$$Fe^{III}(C_2O_4)_3^{3-} + h\nu \rightarrow Fe^{2+} + 2C_2O_4^{2-} + C_2O_4^{\bullet-}$$
$$Fe^{2+} + H_2O_2 \rightarrow Fe^{3+} + \bullet OH + OH^-$$

各温度でのH_2O_2と$C_2O_4^{2-}$の濃度変化の再現で、シミュレーションの妥当性を確認、ROS濃度の推定が可能に

1-2. 化学劣化や応力下の高分子高次構造変化シミュレーター開発(東北大)

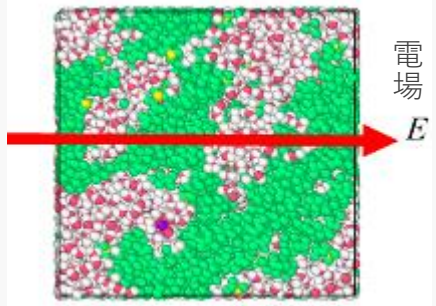
化学劣化により側鎖が脱落すると膜の弾性係数が減少
⇒内部の水クラスター分布との相関を確認



側鎖間隔(EW)と高分子膜の歪み-応力曲線

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)

膜厚、膜面方向のCeイオン分布を予測するCFDコードを構築
⇒MD法により膜内Ceイオンの輸送係数(対流イオン輸送係数、電荷輸送係数、電気浸透係数)を解析

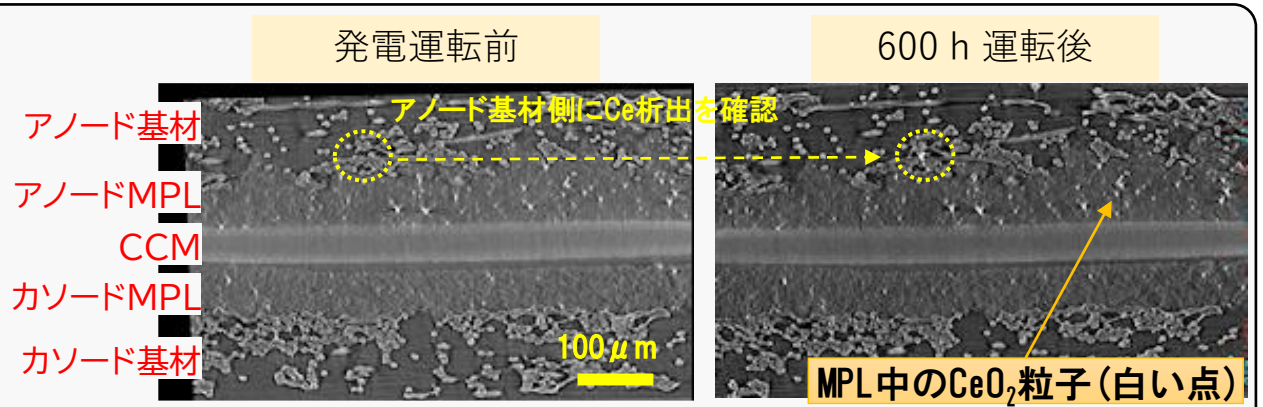


高分子膜内Ceイオン輸送現象シミュレーション

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(東工大)

①ビーカー試験によるCeO_2溶出の感度因子の抽出
②MEA試験によるMPL中CeO_2溶出のX線可視化

600 h 連続負荷(1 A/cm²)運転MEAのX線CT計測
⇒MPL内のCeO_2観察が可能であることを実証
　アノード基材側でのCe析出を発見
⇒MEA運転モードとCeO_2溶出速度の関係を提供可能



600 h連続負荷（1 A/cm²）運転MEAの任意面CT観察

構造形成：実施項目2-1 インクからの構造形成の計測，実施項目2 触媒層構造予測シミュレーター

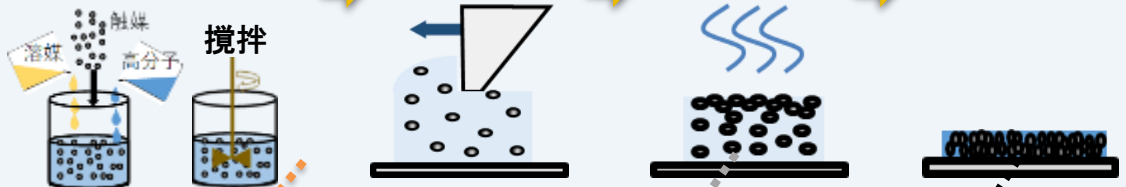
FC•Platform

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

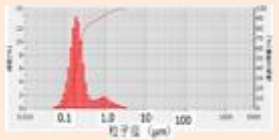
⇒プロセスシミュレータ開発へのデータ提示・検証

①インク作製 → ②塗工 → ③乾燥 → ④完了

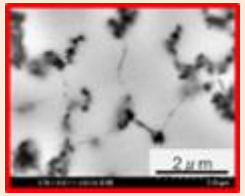


インク物性測定

①インク粒度分布
（粒度分布計）



②インク粒径観察
（走査電子誘電率顕微鏡）

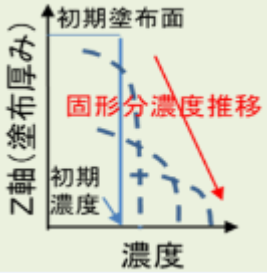


③アイオノマー吸着率
（遠心分離・重量測定）

乾燥工程中インク物性測定

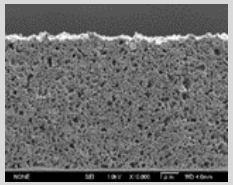
①インク粒径観察
（走査電子誘電率顕微鏡）

②乾燥工程中の“固形分濃度”計測
（X線イメージング）

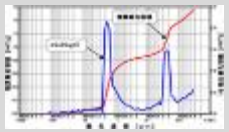


触媒層構造物性測定

①触媒層断面観察
（SEM観察）



②細孔径分布測定
（N_2 吸着法）

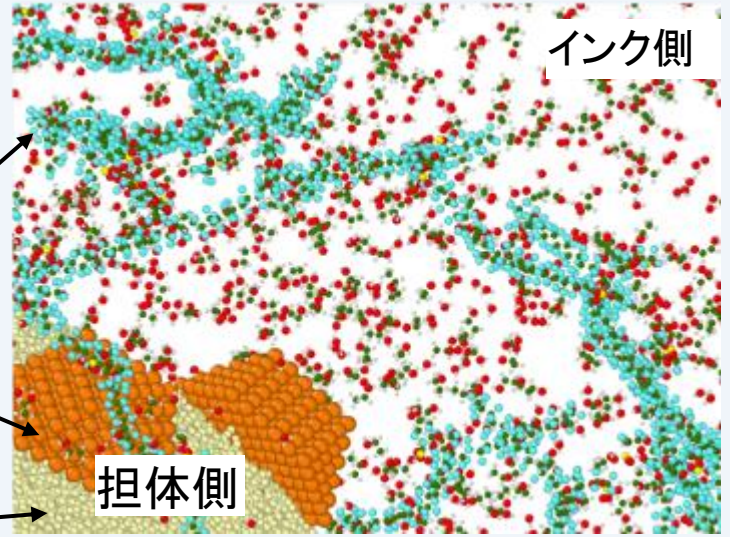


③アイオノマー被覆率
（N_2吸着法）

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

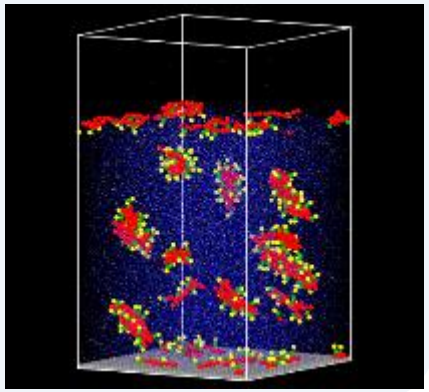
理論的な「触媒層構造作製プロセスの設計」

東北大学



東北大学

触媒インクからの溶媒の蒸発・ナフィオンの凝集をシミュレーション

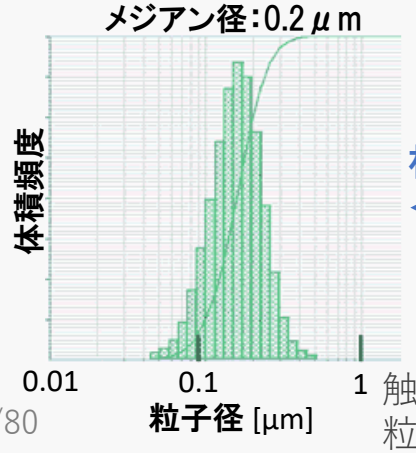


FC•Platform

2-1. 触媒インクからの触媒層構造形成過程の計測(東工大/産総研)

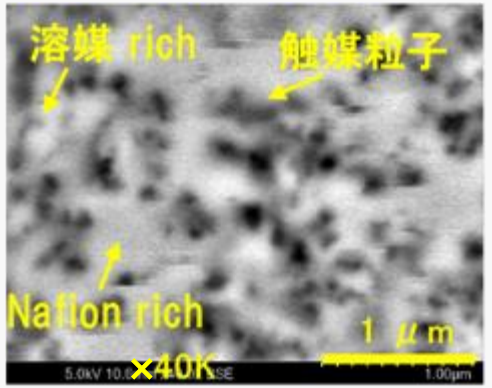
触媒層プロセスシミュレーターの検証を目的としたインク中の固形成分(触媒粒子，アイオノマー)の状態を判別できる可視化技術の開発

⇒「走査電子誘電率顕微鏡」技術でインク中の微細分散状態を明確に判別可. 今後、インク乾燥過程の可視化を行う ＊インク仕様：TEC10V30E　溶媒EtOH/水=20/80



触媒インク粒度分布計測

粒子径の相関を確認



触媒インク顕微鏡観察像

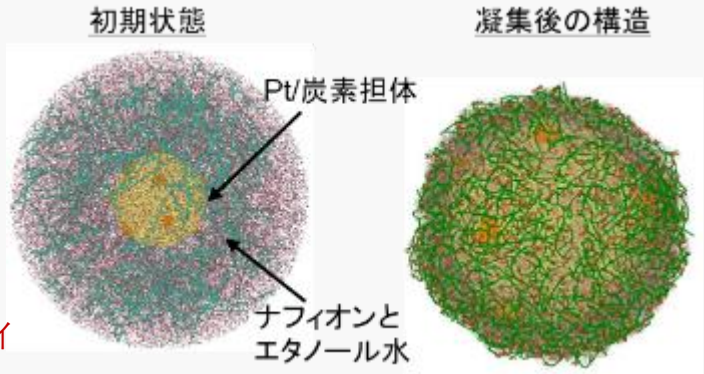
2. 触媒インクからの触媒層構造形成過程のプロセスシミュレーターの開発(東北大)

◆全原子分子動力学法による現象解明

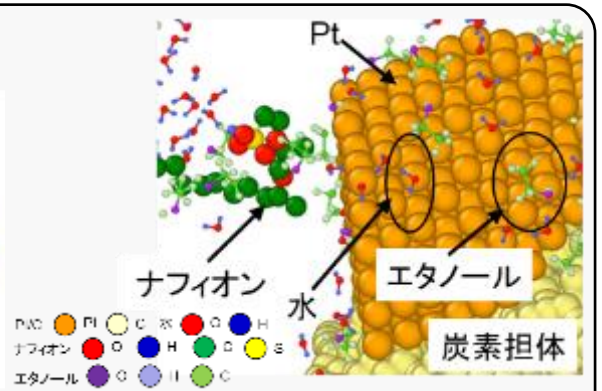
反応分子動力学法を用いて、約59万原子の触媒インクモデル（サブμmスケール以上）を作成

⇒Ptナノ粒子上には主に水分子とエタノール分子が吸着、ナフィオンのSO_3Hや炭素鎖は吸着しない（実験と一致した結果）

今後、200万原子以上のPt/担体モデルを構築し，担体の細孔構造が触媒層形成ダイナミクスに与える影響を明確化



触媒インクモデル

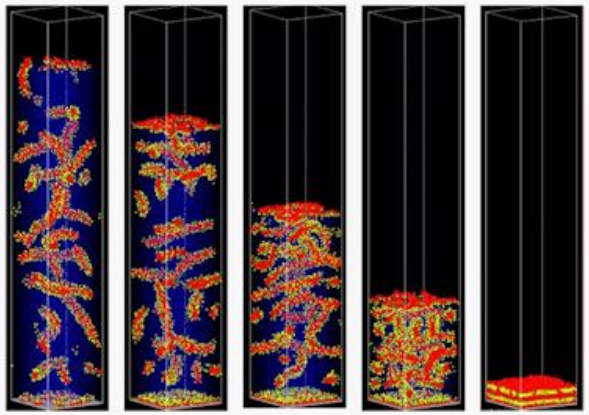


Ptナノ粒子/炭素担体表面上におけるナフィオン、水、エタノールの吸着構造

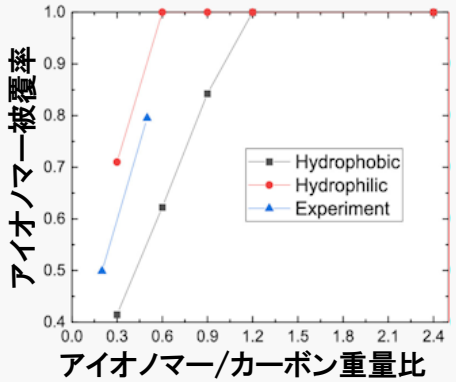
◆分子動力学粗視化法による触媒層形成過程シミュレーター

粗視化法により、触媒インク蒸発過程におけるアイオノマー分散体の表面吸着状態を評価するシミュレーターを構築（分散媒の蒸発速度、アイオノマーの沈降速度と拡散速度の相対関係を表す無次元数を実現象に近い値で設定）

⇒カーボン担体が疎水性の場合は，被覆率は低いが膜が厚く，親水性では，被覆率は大きく膜が薄くなる



アイオノマー吸着シミュレーション



I/C比とアイオノマー被覆率

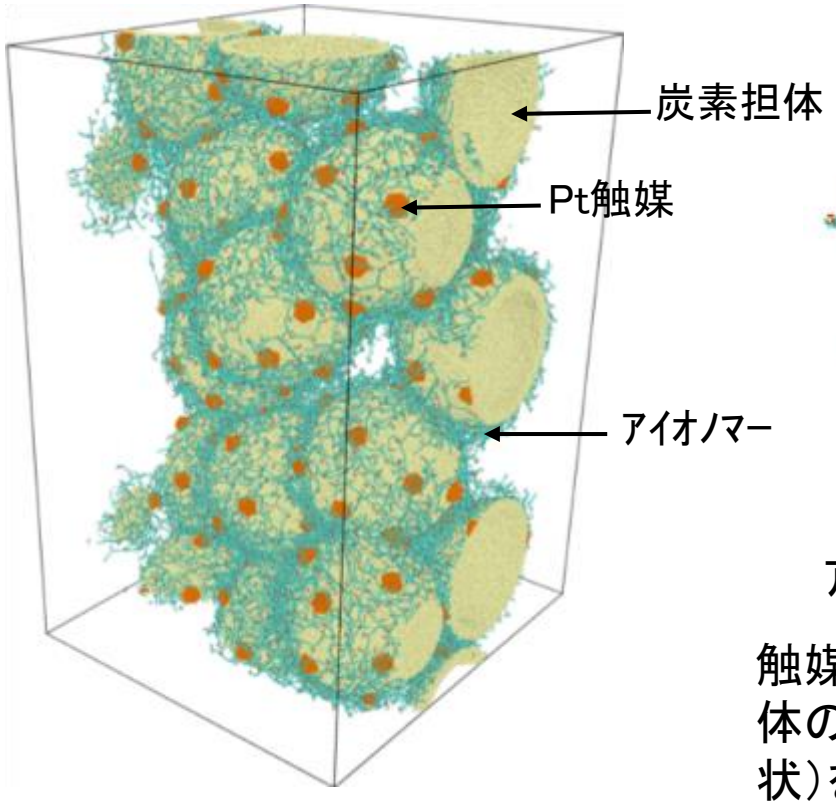
性能向上：実施項目3-1 電極反応の大規模シミュレーション，実施項目3-2 担体細孔構造，担体表面の設計法

FC•Platform

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

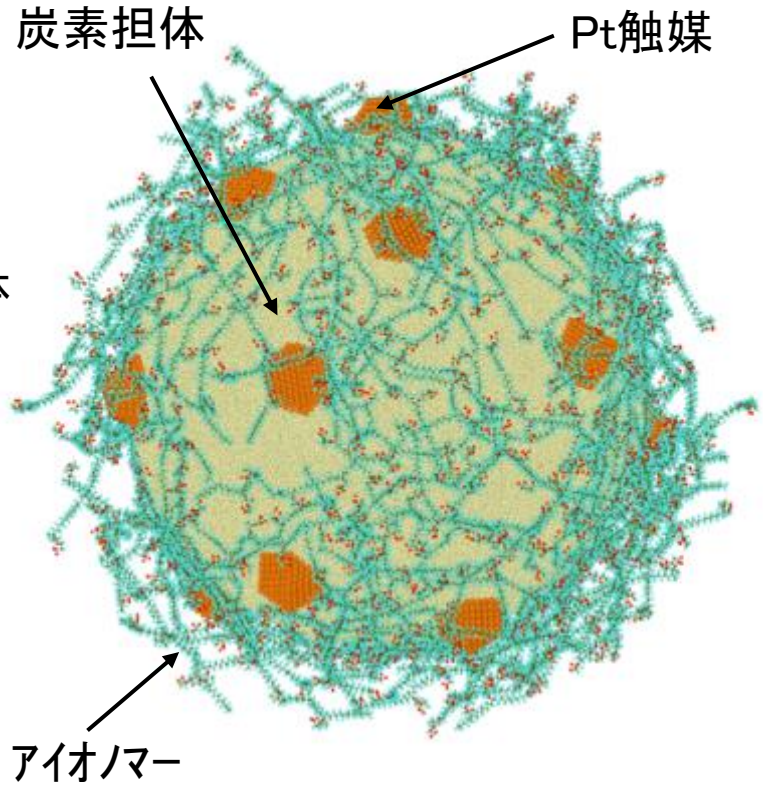
東北大学

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



○ 炭素担体の細孔構造や表面官能基など
○ 炭素担体ネットワーク構造（空孔率など）やナフィオンの凝集形態など
を最適化

【左図の一部分の拡大図】



【特徴】
全原子による超大規模シミュレーション

スパコンの活用

触媒層が高電極反応活性を示すための支配因子（炭素担体の一次構造、二次構造、細孔構造、アイオノマー被覆形状）を提示する

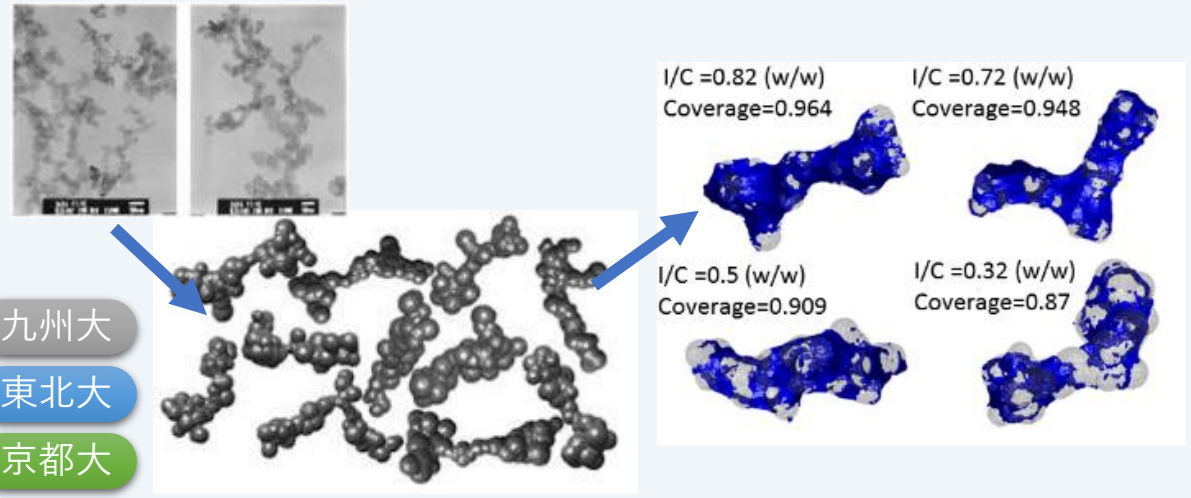
2024年3月末には，材料分析/解析グループと連携して設計指針の精度を評価し、課題と対策を示す

高電極反応活性を有する「触媒層の構造設計」

性能向上：実施項目3-3 担体モデル，3-4 担体細孔中の水

FC•Platform

3-3. 触媒担体の性能を予測可能な担体モデルの開発

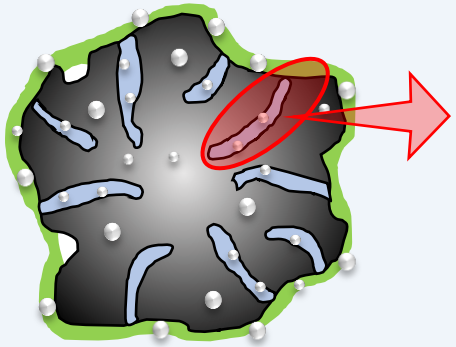


九州大
東北大
京都大

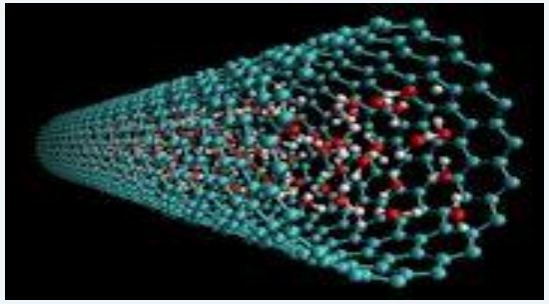
- 担体の構造計測情報（比表面積、粒子径、異方性、TEM像、内部細孔）を基にした三次元構造の再現
- アイオノマー被覆形状（被覆率、厚さ）への影響評価

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

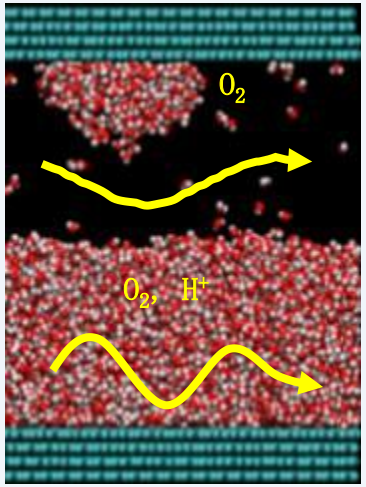
東北大学



一次細孔モデル



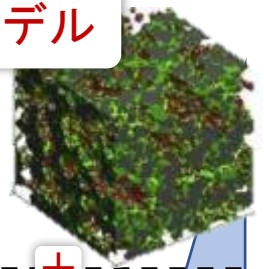
水の相状態，物質輸送経路



分子動力学法により触媒担体内部に存在する水の状態を再現

・担体内部の水の状態(液相、気相)　・担体内部の物質輸送特性(プロトン・酸素)　を明らかにし、担体内部の水の影響を評価する

初期モデル



(前事業)

年度

2020
アイオノマー内部の
・プロトン輸送モデル
・酸素透過モデル

2022
液水あり触媒層の
酸素輸送抵抗モデル

2023
触媒担体
性能モデル

2024
触媒層構造
形成モデル

2025

性能モデル

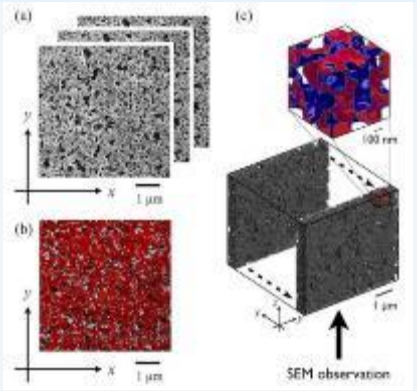
目標性能を有するセルの設計に繋がる知見を創出

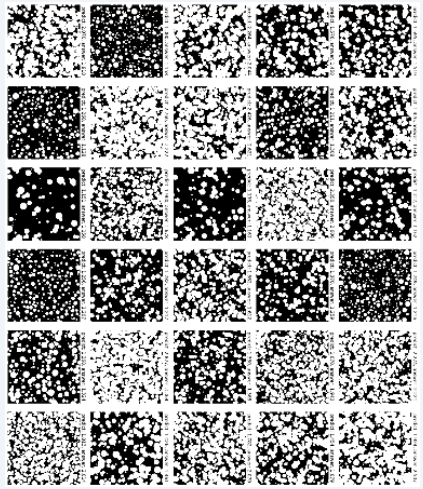
性能向上：実施項目3-5 触媒層構造モデル，3-6 層内液水飽和，実施項目3-7 O_2透過，3 性能予測シミュレーター

FC•Platform

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

東北大　東京大　九州大



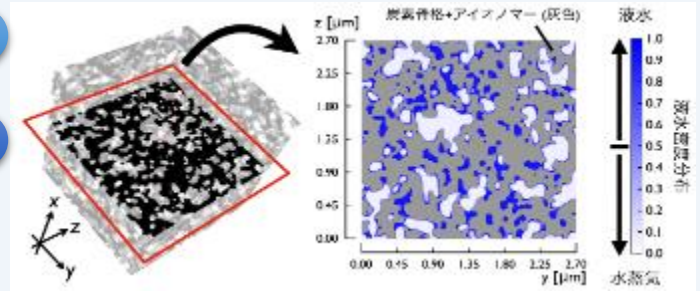


- 連続断面画像からの三次元構造構築，機械学習を用いた画像処理によるアイオノマー、カーボンの判別
- モデル担体による模擬触媒層構造情報蓄積
- 機械学習を用いた断面像からの物質輸送特性、反応特性予測と数値モデル化

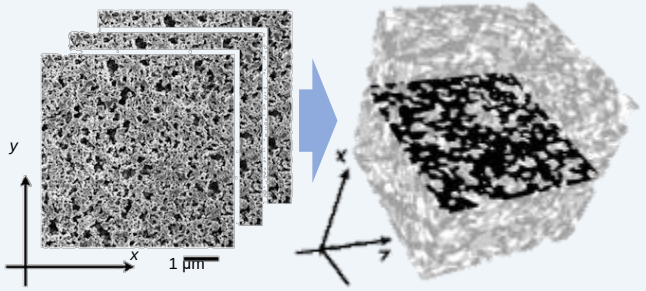
3-6. 触媒層内液水飽和モデルの開発

東北大

東京大



連続断面画像　3D構造モデル

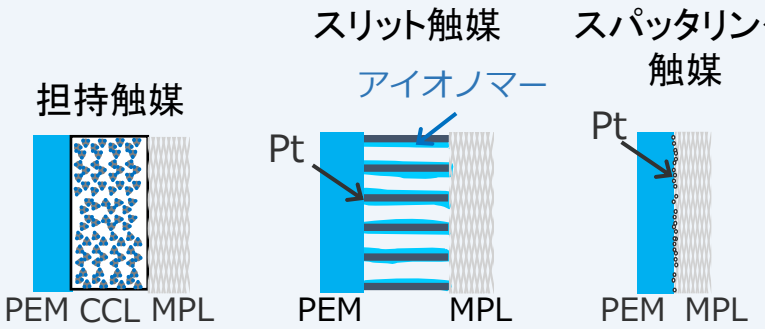


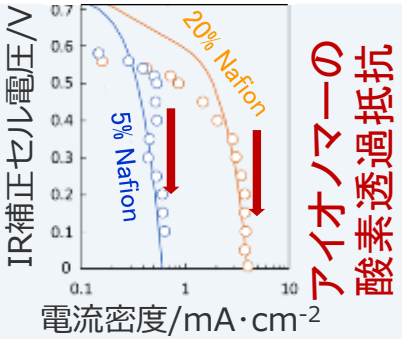
- 格子密度汎関数理論に基くメソ細孔内の相変化解析
- モンテカルロ法による酸素移動解析（液水生成時の酸素拡散性評価）

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

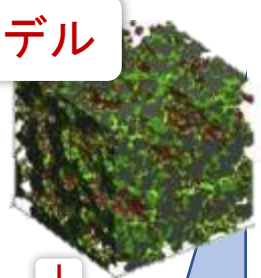
京都大

理想化電極での速度論データ計測





初期モデル



年度

(前事業)

2020

アイオノマー内部の
・プロトン輸送モデル
・酸素透過モデル

2022

液水あり触媒層の酸素輸送抵抗モデル

2023

触媒担体性能モデル

2024

触媒層構造形成モデル

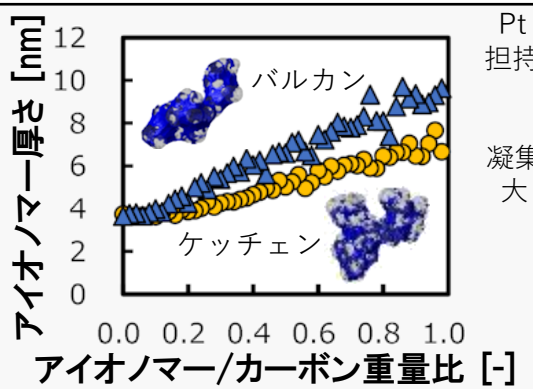
2025

性能モデル

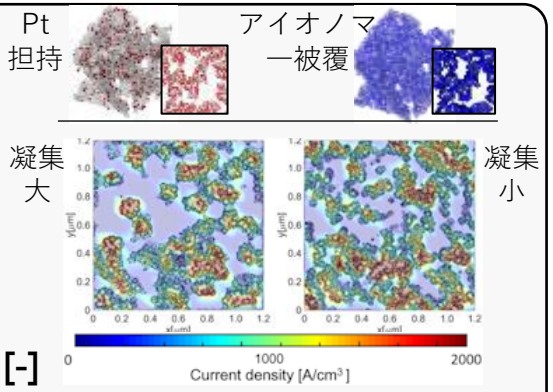
FC•Platform

3－3. 触媒担体の性能を予測可能な担体モデルの開発(東北大、九州大、京都大)

各種カーボンブラック担体の二次粒子径，比表面積，細孔容積の情報から数値担体構造を再現
⇒担体表面の幾何形状の影響として，アイオノマー被覆率，被覆厚さを算出，作製した担体構造を用い触媒層構造を再現し、反応輸送解析を実施　⇒　担体形状違い，アイオノマー量、被覆形状の影響を反映した計算が可能



模擬カーボンブラックとアイオノマー被覆形態、厚さ

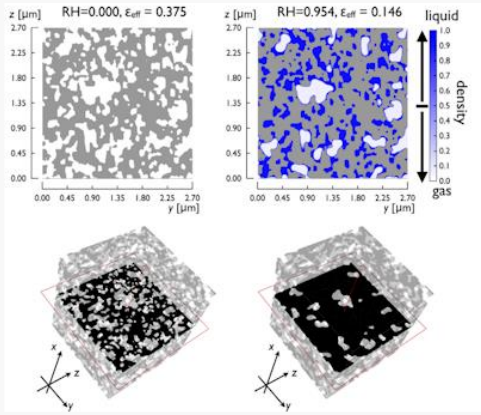


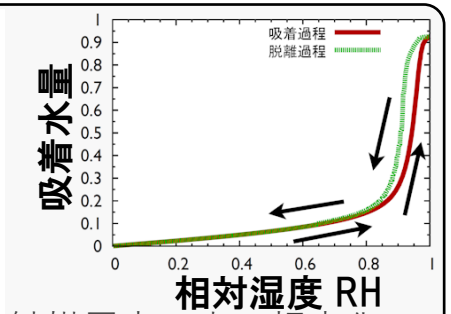
模擬触媒層作製とカソード反応分布計算の一例

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、九州大、東北大)

クライオSEM画像から構築した三次元構造モデルを用いた気体輸送シミュレーションと、実験による酸素拡散抵抗の計測結果を比較し、構築された三次元構造データの妥当性を実証

⇒触媒層内の水の相変化シミュレーション結果と触媒層試料の水の吸着等温線の実験結果を比較し，相変化シミュレーターのモデルパラメーターの決定方法を検討

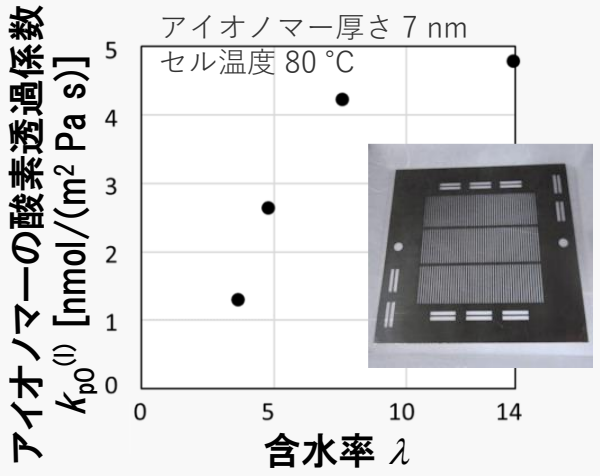




触媒層内の水の相変化シミュレーション（液水分布および吸着等温線）

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)

スパッタ Pt 触媒と薄層アイオノマー塗布 Pt スリット触媒で ORR速度定数を測定
⇒アイオノマーの酸素透過係数 $k_{pO}^{(l)}$ を決定
⇒高含水率ほどアイオノマーの酸素透過係数が大きい

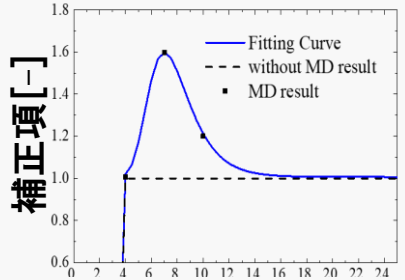


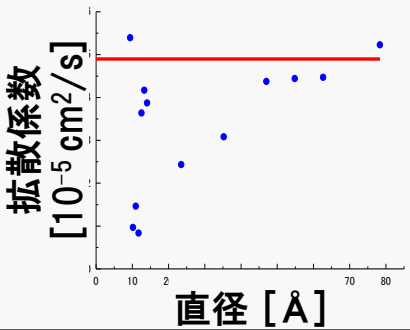
3. 触媒層構造から発電性能を予測するシミュレーターの開発(東北大)

アイオノマー内部のプロトン輸送特性をMDで計算し，モデル化してメゾスケールシミュレーターに実装

一次細孔内のプロトン輸送特性の細孔径依存性を解析

酸素有効拡散係数に対するアイオノマー表面拡散依存性を解析





性能向上：実施項目3-8 電解質膜の吸水速度の定式化，実施項目3-9 伏流の定式化

R03開始

FC•Platform

3-8. 電解質膜の吸水速度の定式化

京都大

含水率分布のある電解質膜内の収着水の有効拡散係数と界面移動係数を定常状態の水透過実験で決定し、収着水の有効拡散係数と界面移動係数の含水率と温度依存性を定式化する。

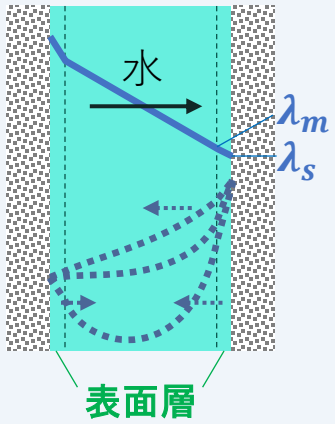
吸水速度はPEM中の拡散とPEM表面層での物質輸送の均衡で決まる

PEM中拡散流束

$$N_A^{(M)} = c^{(M)} \rho^{(M)} D_{eA}^{(M)} \frac{d\lambda}{dz}$$

PEM表面層流束

$$N_A^{(M)} = k_A(\lambda_m - \lambda_s)$$



PEM中水分の有効拡散係数

$10^{10}\ D_{eA}^{(M)}$ /(m²/s) (λ)	温度 T [°C] 60	70	80
ca. 2	-	-	-
ca. 5	4.09 (5.2)	6.11 (4.9)	7.74 (4.5)
ca. 6	4.77 (5.9)	-	21.3 (5.9)
ca. 8	-	-	-
ca. 10	-	-	-

含水率 λ

PEM表面層の水分輸送係数

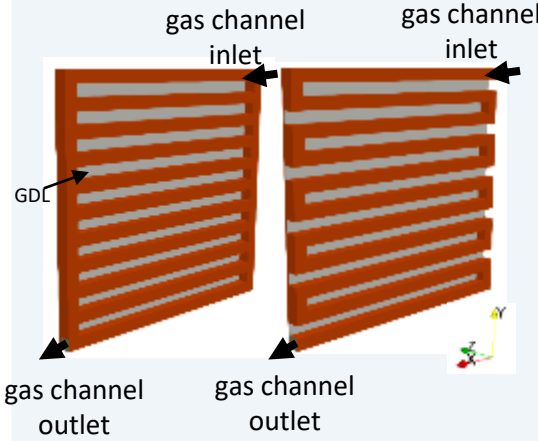
$10^{6}\ k_A$ /(m/s) (λ)	温度 T [°C] 60	70	80
ca. 2	-	-	-
ca. 5	2.13 (5.2)	3.77 (4.9)	5.95 (4.5)
ca. 6	2.13 (5.9)	-	6.35 (5.9)
ca. 8	-	-	-
ca. 10	-	-	-

含水率 λ

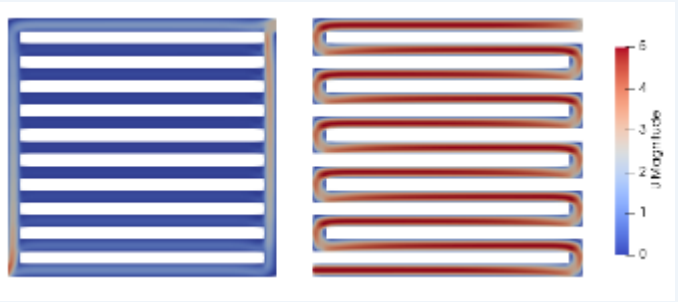
3-9. 流路間伏流の定式化

京都大

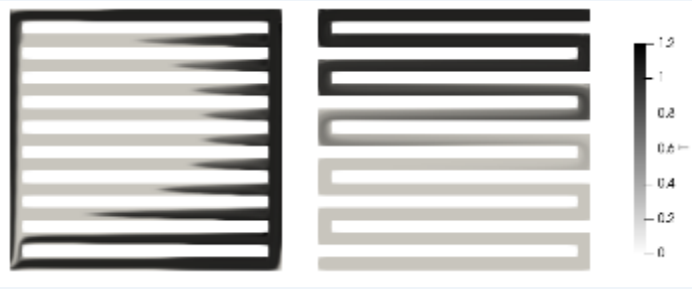
ガス流路内の各位置でのガス組成の計測や推算と、モデリングのために系統的に設計したガス流路での実験によって、伏流の速度を明らかにし、伏流を表現できるモデルを開発することで、その流量を予測可能にする。



パラレル流路　　サーペンタイン流路



速度・圧力場計算



トレーサー物質のステップ応答シミュレーション

流路間伏流によるマクロ混合状態の違いをCFD → 1パラメーターで表現可能

絞り流路での伏流による厚さ方向輸送の計測，CFD，モデル化を遂行中

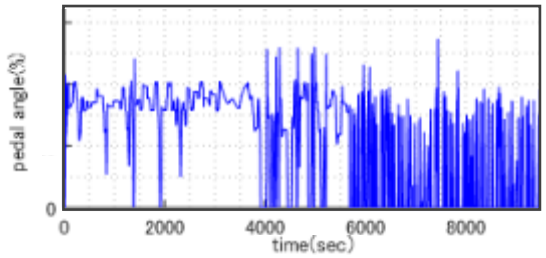
FC•Platform

MBD： 実施項目4 モデルベースのPEFCシステムシミュレーター，実施項目4-1 スタック性能・劣化モデル，4-2 多様なアプリケーションへ対応するためのシステムのモデルと制御器の開発，実施項目4-3 活用促進に向けたユーザビリティの改善

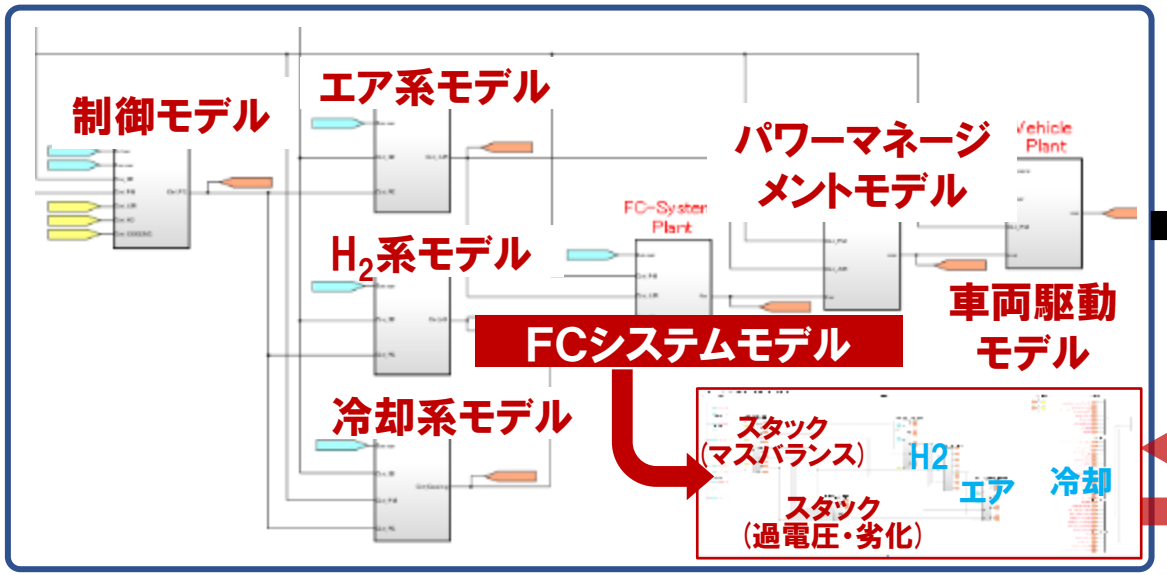
R03開始

要求特性・外部環境

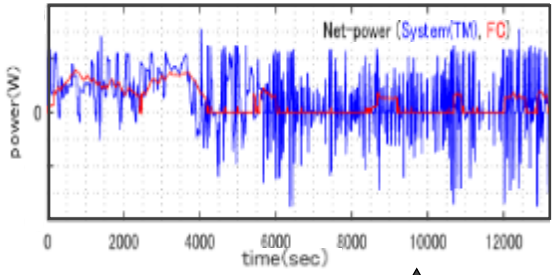
- アクセル開度
- 走行パターン
- 外部環境 （温度、湿度、圧力）



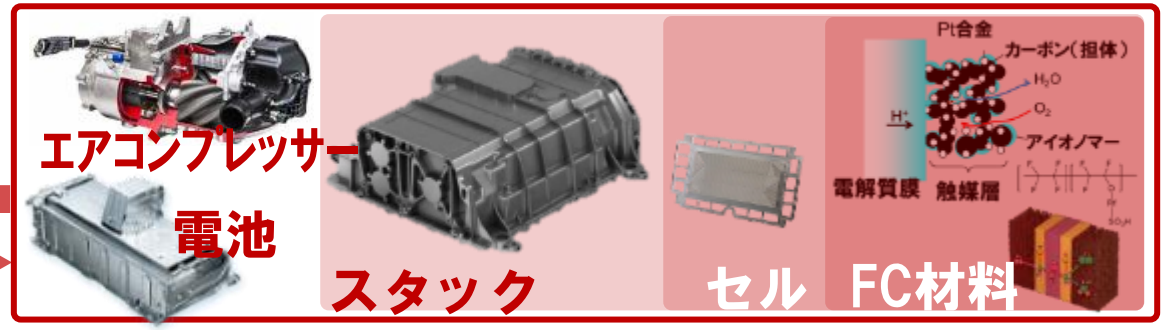
バーチャル車両



- スタック出力
- 車両加速性能
- システム劣化



システム・車両挙動



FC•Platform

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

FC-Platform Program: Development of design-for-purpose numerical simulators for attaining long life and high performance project

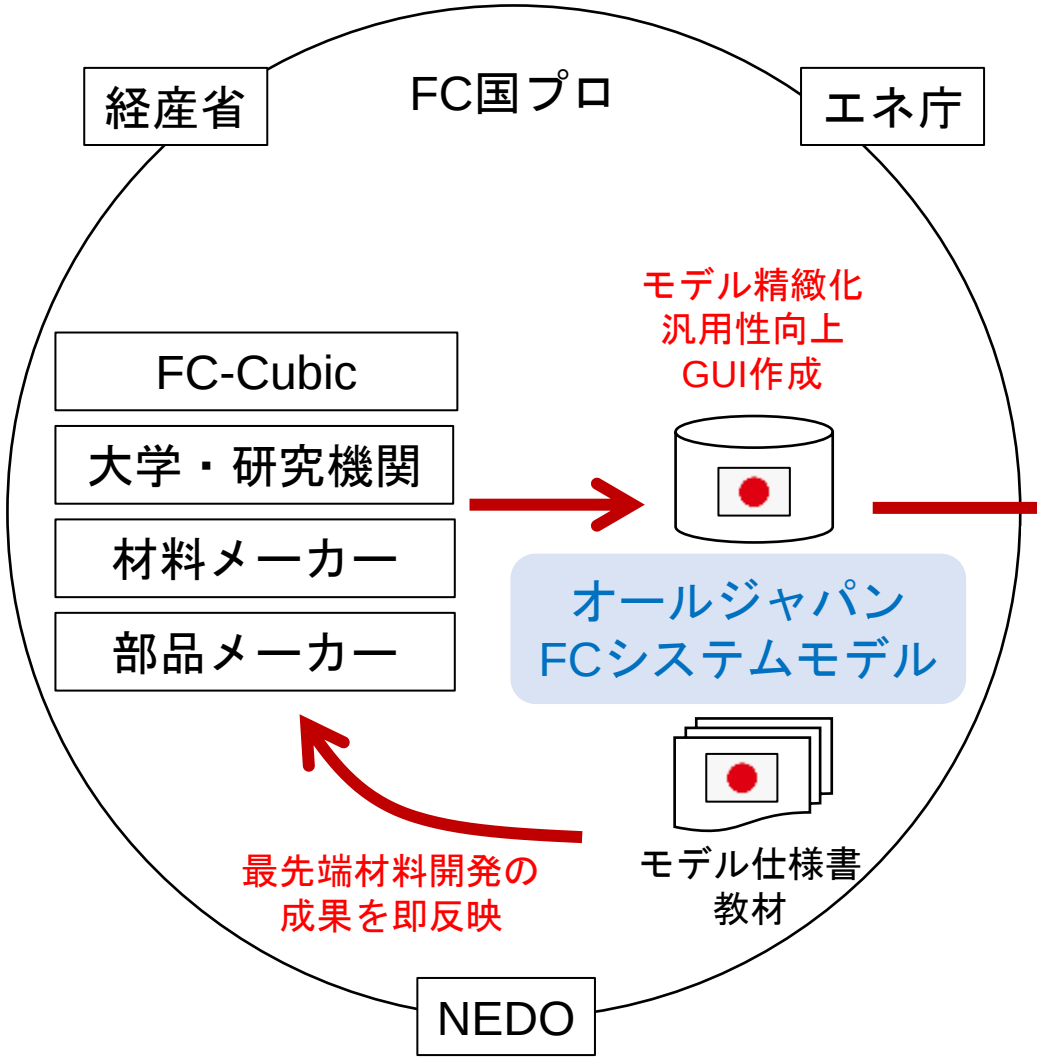
京都大学，東北大学，九州大学，東京大学，東京工業大学

燃料電池システムは，複雑で，着手に精神的障壁，投資障壁が存在

モデルは燃料電池システムの理解を容易にする

数値シミュレーションは，システム試作なしに最終製品性能を推算可能にする

参入障壁を下げ，プレーヤーの増加，裾野の拡大を期待



短期間でのユースケース創出→水素の利用拡大へ

ポテンシャルアプリケーション製造企業，使用企業

- 商用車
- 定置発電機
- 船舶
- 鉄道
- 建設機械
- 航空機
- ……

多様なアプリケーションでの活用促進