

# 固体高分子形燃料電池(PEFC)の性能に及ぼす ガス流路と運転条件の検討

山口 亮<sup>1)</sup>・ 房野 俊夫<sup>2)</sup>・ 三宅 琢磨<sup>3)</sup>・ 大塚 馨象<sup>4)</sup>

## Study of the effects of gas flow channel and operating condition on the performance of polymer electrolyte fuel cell (PEFC)

Ryou YAMAGUCHI, Toshio BOUNO, Takuma MIYAKE, Keizou OHTSUKA

### Abstract

We examined the relation between the performance and the gas flow channel of polymer electrolyte fuel cell (PEFC). We made the gas separator plate by stainless steel with the minute flow channels made by etching technology. Experiments were made on the influence of flow channel geometry, gas flow rate, gas-flow patterns and the temperature of cell.

Results are as follows;

- (1) The highest performance was able to obtain by setting the gas flow channel of  $t_{ch}=0.67$ [mm], and rib  $t_r=1.84$ [mm]. ( $t_{ch}$  : width of gas flow channel,  $t_r$  : width of rib)
- (2) We defined  $\alpha_{rch}$  that was the ratio of the width of the gas flow channel and rib of the separator. And it was able to be confirmed to obtain high power by setting  $t_{ch}=0.67$  [mm] and  $\alpha_{rch} = 1 \sim 3$ .
- (3) Power output was able to be maintained by no water adding at the temperature below about  $40^{\circ}\text{C}$  in case of counter flow, because the generated water at the cathode moved to the anode.
- (4) It was able to keep high performance by the condition of the hydrogen gas temperature of  $70^{\circ}\text{C}$ .

Key Words:

PEFC , Separator , Etching technology , Gas flow channel , counter flow

### 1. はじめに

生活の便利さ、快適さの追求のつけとも言える大気の汚染や地球の温暖化の問題が発生している。このような状況を打破するための有効手段の一つに燃料電池発電がある。中でも固体高分子形燃料電池

(以下 PEFC)は小型軽量で高出力密度であり、また低温で動作するため一般家庭の電源、燃料電池自動車の駆動源として期待が寄せられているが、最適運転条件、重要構成部材であるセパレータの流路形状の最適化などが重要課題となっている。

### 2. PEFC 構成部材

#### 2.1 セパレータ

セパレータは水素、空気を分離して効率的に触媒電極に供給し、発生した電気を外部に取り出す役割

1) 電気電子工学専攻大学院生

2) 佐土原高校教諭

3) 電気電子工学科技官

4) 電気電子工学科教授

を有する重要な構成部材である。ここでは耐腐食性と面精度を同時に解決することを目指し厚み 1mm のステンレス板にエッチングによって微細流路を作成し流路幅とリブ（流路と流路の間の集電部分）を変化させたセパレータを製作し、膜－電極接合体 PRIMEA<sup>®</sup>を入手して 100cm<sup>2</sup>級 PEFC を製作した。これまでに流路幅 0.5mm までの検討を行った<sup>1)</sup>ので、ここでは 0.5mm 以下の流路を作成した。図 1 にセパレータの詳細図を示す。セパレータの流路は単純直線流路とした。表 1 に製作したセパレータの仕様を示す。また、図 2 に製作したセパレータの写真の一例を示す。

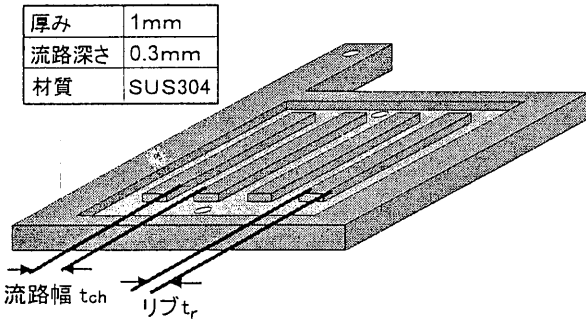


図 1 製作したセパレータの概要

表 1 セパレータの仕様 単位 [mm]

名称 記号 ( $t_{ch}$ , $t_r$ )	流路幅 $t_{ch}$	リブ 集電部分 $t_r$	リブ/流路 幅比 $\alpha_{rch}=t_r/t_{ch}$
A (0.44, 1.87)	0.44	1.87	4.29
B (0.67, 1.84)	0.67	1.84	2.76
C (1.14, 1.86)	1.14	1.86	1.63
D (2.15, 1.85)	2.15	1.85	0.86
E (0.66, 0.34)	0.66	0.34	0.52
F (0.66, 0.85)	0.66	0.85	1.29

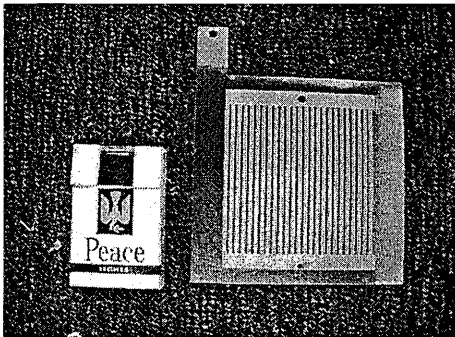


図 2 セパレータの外観

2.2 膜－電極接合体

本研究では、固体高分子膜と電極に(株)ジャパングアテックス社製の膜－電極接合体 PRIMEA<sup>®</sup>を用いた(図 3)。用いた膜の寸法は 130×130mm, 電極有効面積(写真の黒い部分)は 100×100mm, PRIMEA<sup>®</sup> 全体の厚みは 40～50  $\mu$ m, 電極を除いた高分子膜部分の厚みは約 30  $\mu$ m である。

2.3 集電体

反応によって生じた電流を取り出すための集電体には

- ① 供給水素ガス、酸化剤ガス(空気)を通しやすい
- ② 電気伝導性を持つ

などの条件が必要とされる。そこで、本研究では、この条件を持ち合わせた(株)ジャパングアテックス社製の CARBEL<sup>®</sup>-CL を用いた。CARBEL<sup>®</sup>-CL はカーボンフェルトに特殊加工を施したものである。使用した CARBEL<sup>®</sup>-CL を図 4 に示す。寸法は 100×100mm で厚みは約 400  $\mu$ m である。



図 3 膜－電極接合体 PRIMEA<sup>®</sup>



図 4 集電体 CARBEL<sup>®</sup>-CL

### 3. 実験装置と方法

図5にガスフローパターンを示す。(a)はPRIMEA®に対して水素と空気を並行に流す並行流, (b)は向き合うように流す対向流である。

実験は図6に示すシステムで行った。PEFCのイオン伝導には固体高分子膜中に水分が必要なため<sup>2)</sup>, 水素を加湿器に通して供給した。また, 酸化剤である空気をエアープンプで供給した。

電池温度は電池本体, 水素加湿器, 及び配管にヒーターを取り付けて変化させた。電池温度はPEFC内のセパレータの背面, 水素加湿温度は加湿器内, 空気温度は配管内に熱電対を取り付けて測定した。

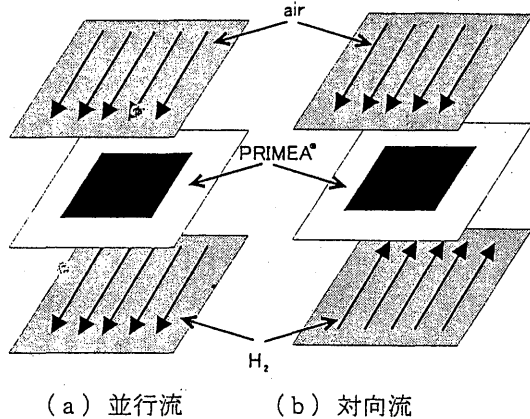


図5 ガスフローパターン

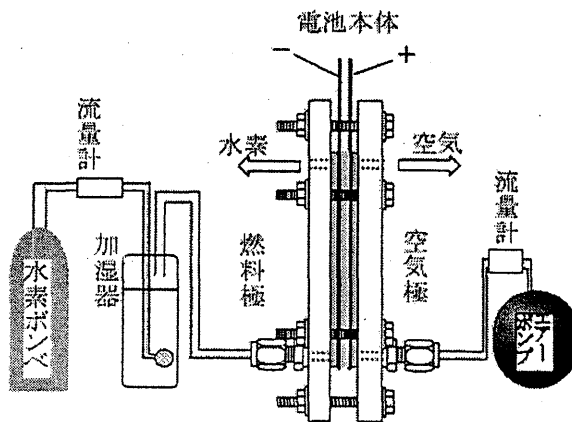


図6 PEFC発電システム

### 4. 実験結果及び考察

#### 4.1 セパレータの流路幅とリブが性能に与える影響

PEFCのI-V特性及びI-P特性を図7示す。I-P特性は最大値を持つ曲線となる。この最大値を最大出力密度  $P_{max}$  と呼び, このときの電流を最大出力動作電流密度  $I_{pmax}$ , セル電圧を最大出力動作セル電圧  $V_{pmax}$  と呼ぶ。

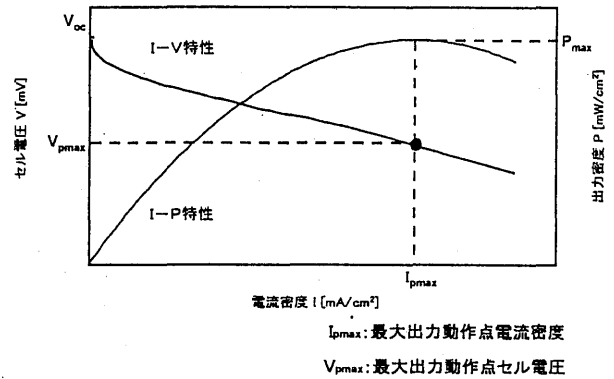


図7 PEFCのI-V, I-P特性

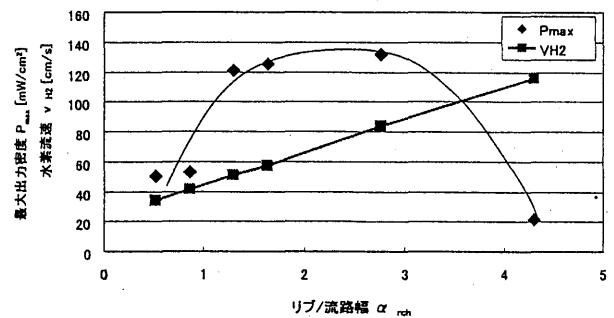


図8 流路定数  $\alpha_{rch}$  に対する  $P_{max}$  と  $v_{H2}$

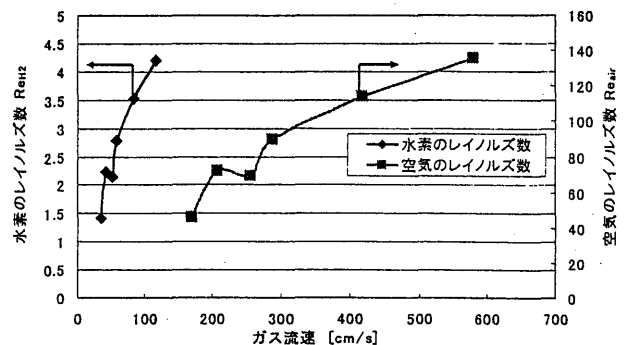


図9 ガス流速に対するレイノルズ数  $Re_{H2}$ ,  $Re_{air}$

図8にリブを流路幅で除した流路定数 $\alpha_{rch}$ に対する水素流速 $v_{H_2}$ ，最大出力密度 $P_{max}$ を示す。図8より $\alpha_{rch}=1$ 以下で出力が低くなっているが，この原因としては流路面積が大きく流速が低いためガス拡散が不十分と考えられる。 $\alpha_{rch}$ を大きくすると集電面積の増大，また流路面積の減少によりガス流速も大きくなり出力も上昇している。しかし， $\alpha_{rch}$ が3以上になると出力が急激に低下した。これは流路幅を細くしすぎたために生成水によって流路が閉塞してしまったと考えられる。

図9に流速に対するアノード，カソード流路内における水素，空気のレイノルズ数を示す。一般的に $Re$ が1000以上でほとんどの流れが乱流となるが流速に対する水素，空気のレイノルズ数はともに小さく層流の範囲であるため，すべてのセパレータにおいてガスの流れは層流であると考えられる。

このことより単純直線流路のセパレータの設計にあたり流路幅とリブの値は流速を速くしつつも流路の閉塞がない幅である0.7mm程度に決定し， $\alpha_{rch}$ を1~3の間で設定することで高い出力が得られるものと考えられる。

## 4.2 ガスフロー及び水素無加湿供給が性能に与える影響

PEFCでは水素イオンの伝導に水分を必要とするため，本研究室では水素ガスをバブラーにより加湿する外部加湿法を採用しているが，現在のPEFC発電システムの省スペース化に向け水素加湿器の大きさが足かせとなっている。そこで，水素無加湿供給において並行流，対向流で300分の発電試験を行った(図10)。

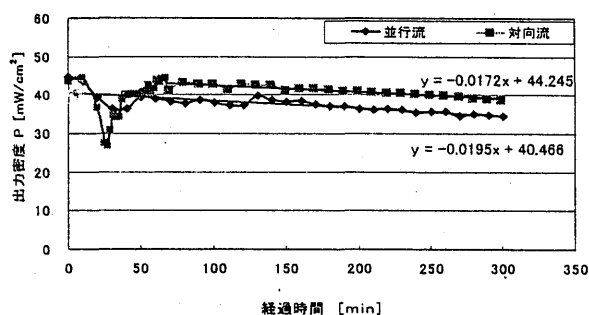


図10 水素無加湿での出力密度の経時変化

図10より水素無加湿でも出力を得ることができた。これは生成水がアノードに逆拡散したためだと考えられる。また対向流の出力が並行流より高く，出力低下率が低かった。これは図11のように対向流では水分の偏在が少ないのに対し，並行流では水分がガス出口付近に偏在したためだと考えられる。

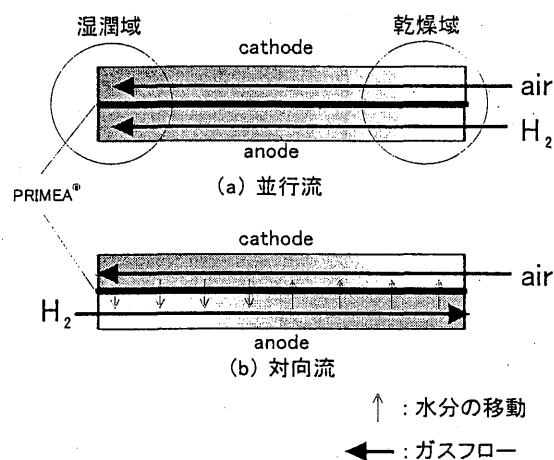


図11 水分移動のモデル<sup>3)</sup>

## 4.3 水素無加湿供給時の出力の電池温度特性

4.2節で水素無加湿供給において発電が可能であったため，電池温度 $t_c$ を変化した場合の最大出力密度の240分間の経時変化を検討した。

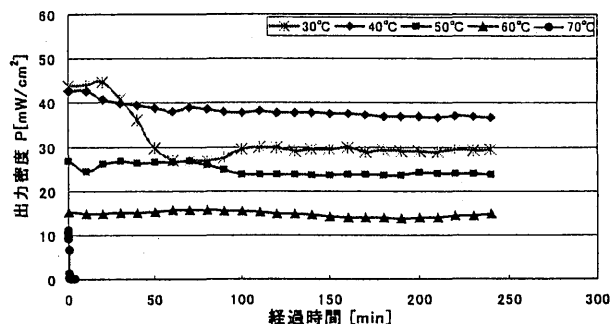


図12 水素無加湿供給での出力密度の経時変化

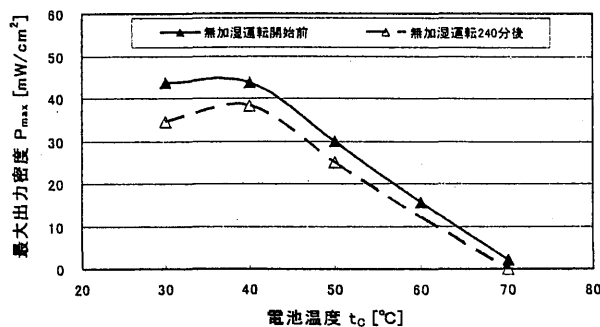


図13 水素無加湿供給における $P_{max}$ の電池温度特性

図 12 において  $t_c$  が 40~60℃までは出力密度に差はあるもののそれぞれ出力密度は比較的安定していた。 $t_c=30℃$ では 20 分あたりから出力が急激に低下しているが、30℃では電池外に持ち去られる水分量が小さく電池内の水分量が過多になったためだと考えられる。また  $t_c=40℃$ で最も高い出力密度を得られているがこれは、電池内の水分量のバランスが取れているためと考えられる。しかし、電池温度を 50℃、60℃と上げると電池外に持ち去られる水分量が多くなりイオン伝導度が小さくなるため出力密度が低くなっている。また  $t_c=70℃$ においてはその影響が顕著に現れており、開始数分で下がり始めさらに数分後にはほとんど出力が得られていない。図 13 に各温度での最大出力密度  $P_{max}$  を示しているが  $t_c=40℃$ までは発電が維持できているが 40℃以降では直線的に減少している。このことより、無加湿においては 40℃までならば運転は可能であるが電池温度を上昇させると電池性能は極端に低下する結果となった。

#### 4.4 水素加湿供給時の出力の電池温度特性

水素無加湿運転は常温程度であれば可能ではあるが 50℃以上で出力は低下し、70℃以降は運転できないという結果が得られた。そこで今度は水素を加湿して供給した場合において電池温度が出力に与える影響を調べた。なお、加湿温度は電池内での結露を避けるために  $t_h=t_c-5℃$  に設定した。

図 14 より電池温度  $t_c=30\sim60℃$ はおおむね安定し、すべての特性において無加湿の出力密度に場合に比べて高くなる結果となった。また 70℃において無加湿の場合は出力密度が得られなかったが加湿した場合には安定しなかったが出力密度を得ることができた。

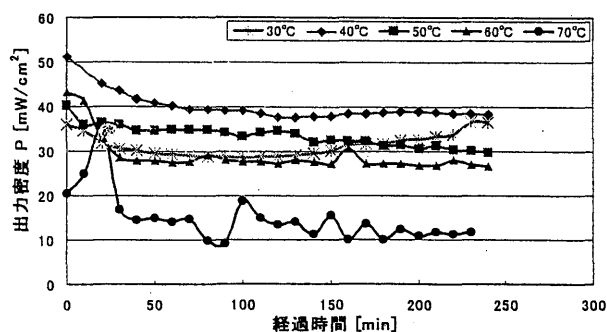


図 14 水素加湿供給における出力密度の経時変化

図 15 に電池温度特性を示す。温度上昇に伴い高分子膜抵抗が減少するため性能は上昇するがおよそ 40℃を最大としその後は減少傾向にあった。これは、膜抵抗は低下するものの温度上昇に伴って電池から奪われる水分量が上昇したために高分子膜の湿潤状態が徐々に保たれなくなった影響が大きいと考えられる。このことより水素を加湿した場合は  $t_c=70℃$ でも出力が得られ、水素無加湿における各温度での出力密度に対してすべて高くなり、また電池温度上昇に伴う出力低下を低減できたものの出力の低下は免れなかった。これは加湿温度  $t_h$  を  $t_c-5℃$  を設定したために加湿水分量が十分ではなかったためだと考えられる。

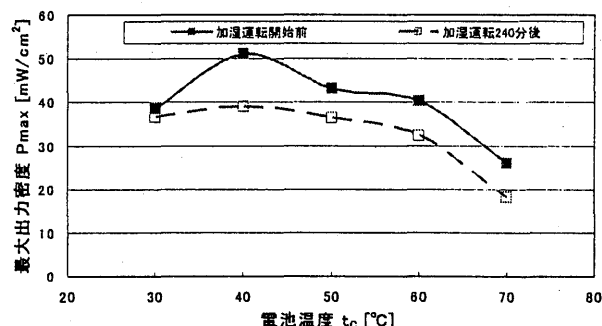


図 15 水素加湿供給における  $P_{max}$  の電池温度特性

#### 4.5 出力の水素ガス加湿温度特性及び空気温度特性

前述のように水素無加湿運転では電池温度  $t_c=50℃$ 以上では高分子膜中の水分量が低下したために性能が低下し、同様に水素加湿運転においても  $t_c=50℃$ 以上で性能が低下した。そのため、アノード側に水分が足りていないと考え、水素加湿運転において、電池温度  $t_c$  を出力が低下し始める 50℃一定にして、水素加湿温度  $t_h$  を 30(< $t_c$ ), 50(= $t_c$ ), 70(> $t_c$ ), また空気温度  $t_{air}$  の影響も調べるために同様に  $t_{air}$  を 30, 50, 70℃と変化した場合の出力特性を求めた。

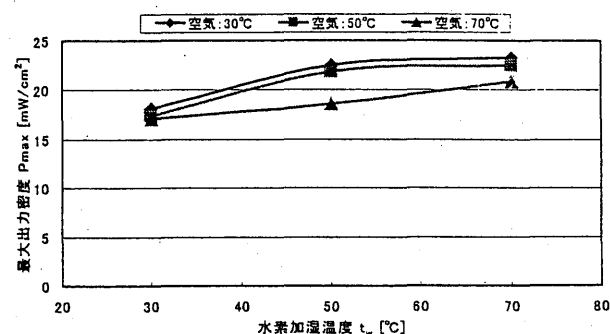


図 16 水素加湿温度に対する最大出力密度  $P_{max}$

図 16 より、水素加湿温度  $t_w$  を上げると  $P_{\max}$  は上昇傾向にあった。水素温度が上昇することで飽和水蒸気量が増大するが電池温度が  $50^\circ\text{C}$  一定のため水素加湿温度  $t_w$  を上昇させていくと電池内において結露によって高分子電解質膜に供給される水分量が増えるために性能が向上したと考えられる。水素加湿温度  $t_w = 30^\circ\text{C}$  で  $P_{\max}$  が最も低かったがこれは電池温度  $t_c = 50^\circ\text{C}$  であるため加湿による供給水分量が足りなかったためだと考えられる。また性能の向上は加湿温度が  $70^\circ\text{C}$  程度で飽和傾向にあった。

図 17 に空気温度を変化させた場合の特性を示すが、空気温度を上昇させると性能は低下した。これは空気温度を上昇させると空気の飽和水蒸気量が増えるために空気が電池から持ち去る水分量が増え高分子膜のイオン伝導度が低下するためだと考えられる。

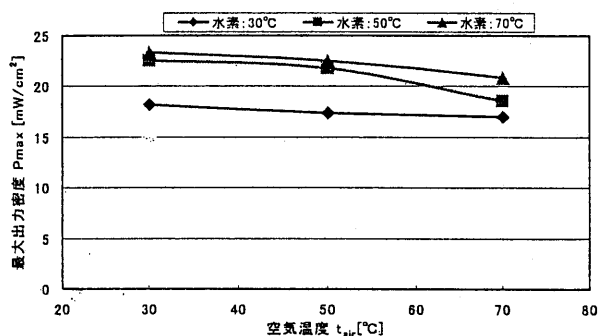


図 17 空気温度に対する最大出力密度  $P_{\max}$

これより、水素加湿温度を  $70^\circ\text{C}$  程度にし、空気温度を常温で供給することで電池温度上昇に伴う性能低下が避けられると考えられる。

そこで、水素加湿温度  $t_w$  を  $70^\circ\text{C}$  一定とし、空気温度を常温で供給した場合の最大出力密度の電池温度特性を求めた。

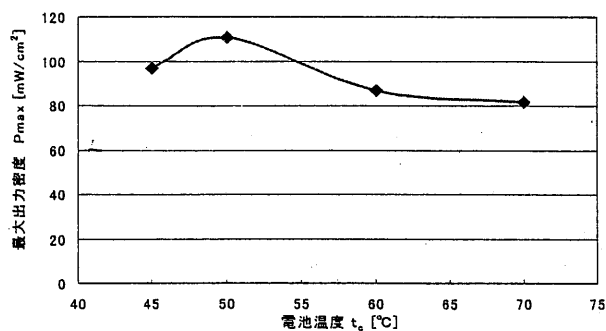


図 18 最大出力密度の電池温度特性 ( $t_w = 70^\circ\text{C}$ )

図 15 では  $t_c = 50^\circ\text{C}$  で出力が低下し始めたが、図 18 では  $50^\circ\text{C}$  でも性能が低下せず、上昇する結果となった。これは加湿温度を  $70^\circ\text{C}$  したために PEFC に供給させる水分量が増え、イオン伝導度が向上したためだと考えられる。また、電池温度  $70^\circ\text{C}$  においても、大きな性能低下はなく発電が維持できている。

## 5. まとめ

本研究を総括すると以下のようにまとめられる。

- (1) 流路幅  $t_{\text{ch}}$  を  $0.7 [\text{mm}]$  程度に細くして流速を上昇させ、リブと流路幅の比である流路定数  $\alpha_{\text{rch}}$  を 1 ~ 3 に設定することで高出力が得られると考えられる。
- (2) ガスフローを対向流とすることでカソードで生成した水が逆拡散しアノードを湿潤状態にし、反応により再びカソードに戻ってくる生成水の循環が起こるため、水素を無加湿供給しても常温ならば運転できることが確認できた。また、並行流では水素、空気の流れが同方向のため生成水がガス出口付近に多く溜まってしまい電池反応を阻害してしまうため出力の低下率が高くなる。
- (3) 供給ガス温度特性において水素ガス加湿温度を上げることによって水素の含有水分量が増えアノードでの高分子膜の保有水分量が増えイオン伝導が高まったため性能を向上することが確認できた。また、空気温度を上昇させると空気の飽和水蒸気量が増え、より多くの水分が高分子膜から奪われてしまい電池性能が低下するため、空気温度を上昇させることは得策ではない。
- (4) 水素加湿温度を  $70^\circ\text{C}$  にして水素含有水分量を増やし PEFC 供給することで高分子膜が乾燥しにくくなり電池温度  $70^\circ\text{C}$  においても高い出力密度を得ることができた。

## 参考文献

- 1) 山口亮 H16 年度電気関係学会九州支部連合大会論文講演集 01-2P-05
- 2) 平田賢: PEM・燃料電池入門 環境新聞社 (1999,7)
- 3) 曾根理嗣 上野三司 桑島三郎:  
宇宙用途を目指した燃料電池の開発  
—微小重力・閉鎖環境下への適応技術の検討—  
宇宙開発事業団技術研究本部