

# 固体高分子形燃料電池の加湿条件の検討

越智祥文<sup>1)</sup>・田島大輔<sup>1)</sup>・大坪昌久<sup>2)</sup>・本田親久<sup>2)</sup>

## Consideration of a Polymer Electrolyte Fuel Cell under Low Humidified Condition

Yoshifumi OCHI, Daisuke TASHIMA, Masahisa OTSUBO, Chikahisa HONDA

### Abstract

Environmental problems have become aggravated by consuming the fossil energy. Then, the fuel cell that doesn't exhaust carbon dioxide is paid to attention. As for Polymer Electrolyte Fuel Cell (PEFC), the water management is a noteworthy problem. The method of external humidification is coupled with the systems configuration increasing. It is thought that the generated water is able to keep the water content of membrane when a reactant gas is supplied to the PEFC by counter flow. In this study, the performance of PEFC is examined in cases of counter flow and parallel flow, low humidified condition and dry condition. Both low humidified condition and dry condition obtained a high power density with case of the temperature of the cell at 50°C or less. Moreover, the similar performance under counter flow and parallel flow both at low humidified condition was obtained. When we operate the cell for a long time, the cell voltage was able to be maintained by changing the air of utilization rate.

### Key Words:

PEFC, water management, without humidifier, counter flow, parallel flow

### 1. 緒言

化石エネルギーの多大な消費により「環境問題」や「化石資源の枯渇」が深刻化を増している。この問題を打開するためには、高効率化によりエネルギー・資

源の消費速度を減少させることが現実的である。そこで注目されているのが燃料電池である。その中で固体高分子形燃料電池(PEFC)に注目した。PEFCは固体高分子膜の水管理が問題視されている。そのため、固体高分子膜の水分を保持するために供給ガスをバブラー(加湿器)に通すことで供給ガスに水分を含ませることで固体高分子膜を湿潤に保たせる方法が用いられている。また、加湿条件はバブラー内の水温を変えることで

1) 電気電子工学専攻大学院生

2) 電気電子工学科教授

制御できる。現在の燃料電池車にはバブラーを設けている。しかし、バブラーを設置することで構成システムが大きくなり、また水温を変える際に外部エネルギーを供給しなければならないというデメリットがある。

そこで本研究では、無加湿で燃料を供給した場合、供給ガスの流し方を考慮することにより生成水をセル内で供給ガスが加湿され(内部加湿)、固体高分子膜の湿潤状態を保てると思ひ、対向流・並行流について検討を行った。

## 2. 燃料電池の構成

燃料電池の構成を図1に示す。ガス流路板には短冊状の溝を形成した。その溝の幅と山の部分の幅は2.0mm、溝の深さを1.0mmとした。その寸法図を図2に示す。この領域で白金系触媒を塗布した膜-電極接合体を挟み、セルとした。この電極有効面積は25cm<sup>2</sup>(=5.0cm×5.0cm)である。また、ガス流路板と端板の材料は硬質アルミ A5052 を使用した。

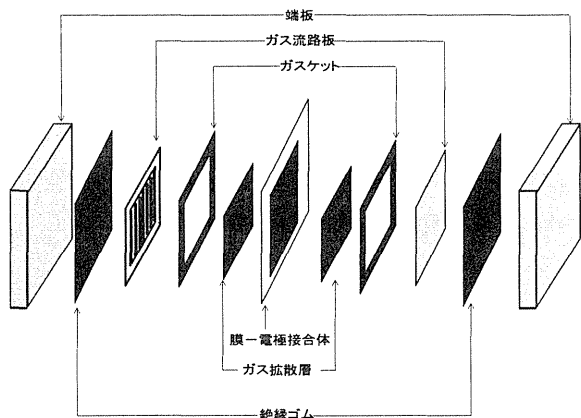


図1 燃料電池の構成

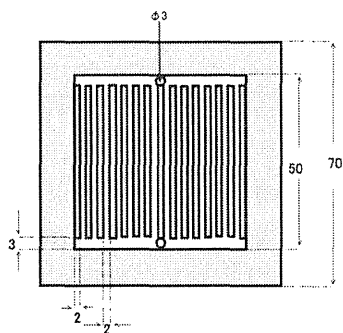


図2 ガス流路板の寸法(単位 mm)

## 3. 実験方法

負荷電流を0~100mA/cm<sup>2</sup>では20mA/cm<sup>2</sup>ごとに増加させ、100mA/cm<sup>2</sup>からは50mA/cm<sup>2</sup>ごとに増加させた。なお、各電流値について2分間流しセル電圧を安定させ、その後電圧を測定した。表1に実験条件、図2に測定回路を示す。

また、低加湿条件とは水素ガスだけをバブラーに通した場合、無加湿条件とはどちらもバブラーに通さない場合と定義する。

表1 低加湿,無加湿条件での実験条件

セル温度 [°C]	31~61
水素温度 [°C]	31~61
空気温度 [°C]	31~61
流し方	対向流、並行流
水素供給流量 [ml/min]	70
空気供給流量 [ml/min]	400

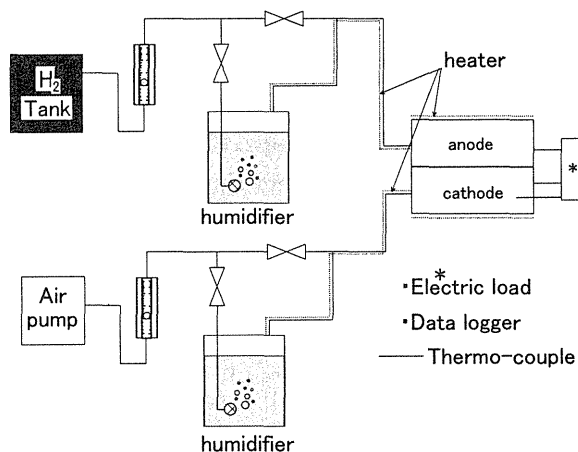


図3 測定回路

## 4. 実験結果と検討

一般的に PEFC では供給ガスを両方とも加湿している<sup>1,2)</sup>。しかし、加湿するためには加湿器が必要であり、加湿量を変えるためには外部からエネルギーを与えなければならない。そこで、燃料電池の副産物である水を利用して加湿器を削除できると考えた。本研究ではアノードからカソードへプロトンが移動する際に起こる電気浸透現象を考慮し、水素加湿を行った。また、燃料電池の電気化学反応には活性化過電圧が必ず

存在する。活性化過電圧を低減させるためには以下のようなことが考えられている。

- ・セル温度を上げる。
- ・効果的な触媒を使用する。
- ・電極の表面粗さを増す。
- ・圧力を上げる。

などがある。この中でセル温度を上げることは可能なため、セル温度の変化による性能特性について、またガスフローの違いによる性能への影響について検討を行った。

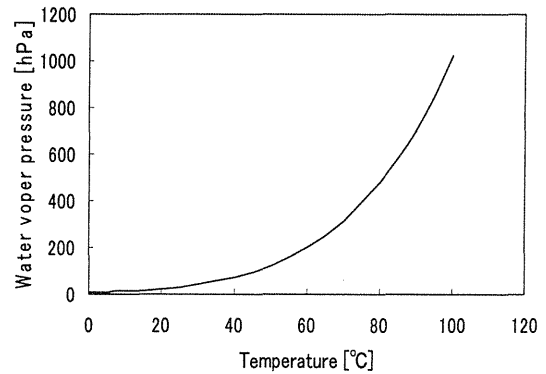


図5 飽和水蒸気圧と温度の関係

4.1 セル温度変化に伴う性能評価(低加湿条件)

低加湿条件におけるセル温度と最大出力密度の関係を図4に示す。同図よりセル温度が約52°Cのとき、対向流・並行流とも一番良い性能を得ている。一般にPEFCは動作温度80°C前後で運転されている。それ故、セル温度が約60°Cで性能が低下することは理解できない。この原因を解明するために、図5に飽和水蒸気圧と温度の関係を示す。図5より飽和水蒸気圧は温度に対して指数関数的に上昇していることが分かる。そのため、セル温度が高くなるにつれてセル内の飽和水蒸気圧が上がり、未反応の空気と一緒にセル外に排出されたと考えられる。したがって、乾燥した空気が供給入り口付近の高分子電解質膜を乾燥させ、温度の上昇と共にその乾燥領域が広がっていき、イオン伝導度が低下し、セル電圧が低下したものと考えられる。

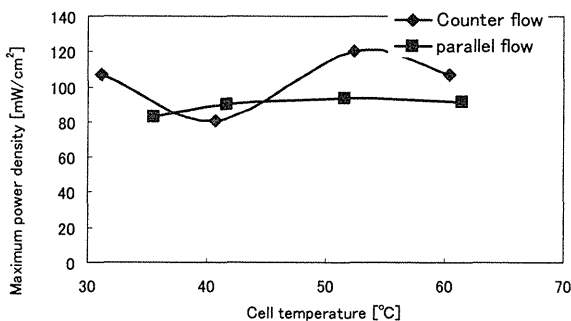


図4 セル温度と最大出力密度(低加湿条件)

4.2 セル温度変化に伴う性能評価(無加湿条件)

無加湿条件におけるセル温度と最大出力密度の関係を図6に示す。これよりセル温度が約50°Cのとき、対向流・並行流とも一番良い性能を得ている。また、セル温度が約40°Cではほぼ同様な性能が得られたが、セル温度が約60°Cでは並行流の方が対向流の性能と比べて高くなっていることが分かる。セル温度が60°Cで性能が逆転した理由としてガスの流れ方であると考えられる。対向流は水素の入り口と空気の出口、水素の出口と空気の入り口という様に流入と排出が同じ位置で行われている。そのため、セル温度、ガス供給温度が高くなるにつれて飽和水蒸気圧が上がり、乾燥した水素や空気が流入されるためその付近の水分を吸収して高分子電解質膜が乾燥する。一方並行流では、供給ガスの入り口と出口が同じ位置にあるため、乾燥されたガスが流入されてもすぐ電気化学反応が起こり、それにより水が生成される。そのためある程度、高分子電解質膜の含水量が保たれ、対向流よりも高い性能が得られたものと考えられる。

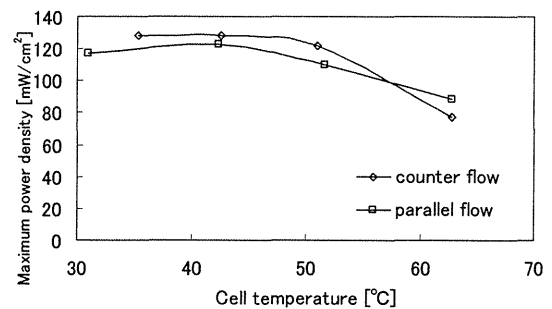


図6 セル温度と最大出力密度(無加湿条件)

4.3 供給ガスの加湿の有無が性能に及ぼす影響の検討

図 7(a)、(b)に供給ガスの加湿の有無による性能の比較、表 2 に発電効率を示す。

表 2 発電効率(セル温度 50℃のとき)

発電効率 [%]		
流し方	無加湿条件	加湿条件
対向流	15.5	20.2
並行流	10.3	16.2

表 2 より加湿,無加湿条件とも並行流よりも対向流の方が発電効率は高いことが分かる。これは図 8 に示すような現象が起こったためであると考えられる。対向流の場合,定常状態において生成水がセル内を循環し,高分子電解質膜を湿潤状態に保つことができる。一方並行流の場合,定常状態において生成水がガスの流れに沿って流れ,したがってガスの出口付近では水分が溢れ,また入り口付近では乾燥状態となる。このことにより高分子電解質膜が局部的に乾燥,又は水分過多となり,セル性能が低下したものと考えられる。

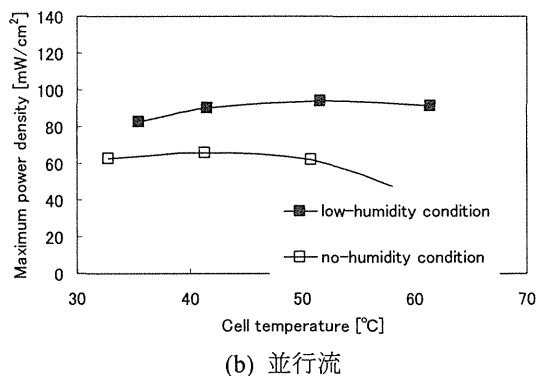
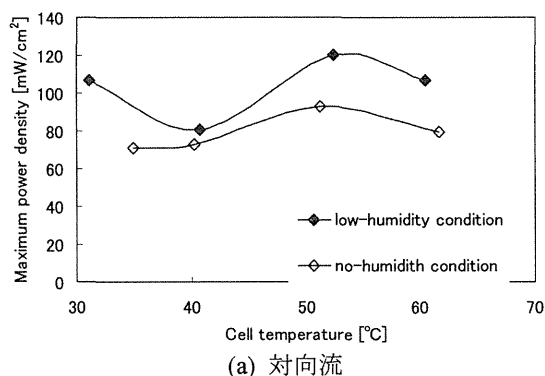


図 7 供給ガスの加湿の有無の検討

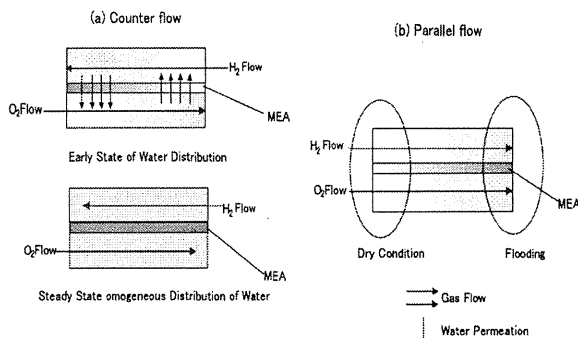


図 8 セル内の水移動のイメージ

4.4 空気利用率変化に伴う性能評価

空気利用率を変化させることでセル内の酸素濃度のみならず,排出される水分量も変化する。空気利用率を変化させることでセル電圧の変動がどのようになるかを検討を行った。

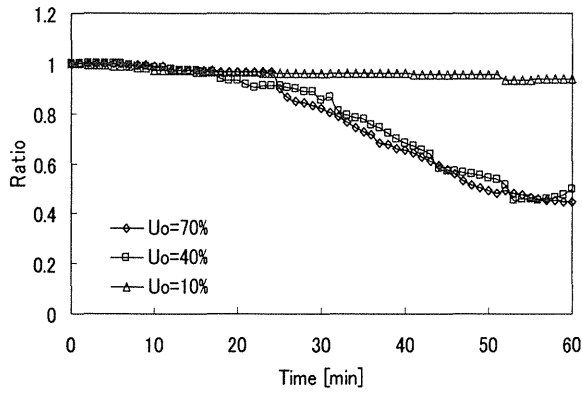
負荷電流を 100,200mA/cm<sup>2</sup> に固定し,10 分間通電させ,その後 1 分毎にセル電圧を測定した。実験条件を表 3 に示す。

表 3 空気利用率変化による実験条件

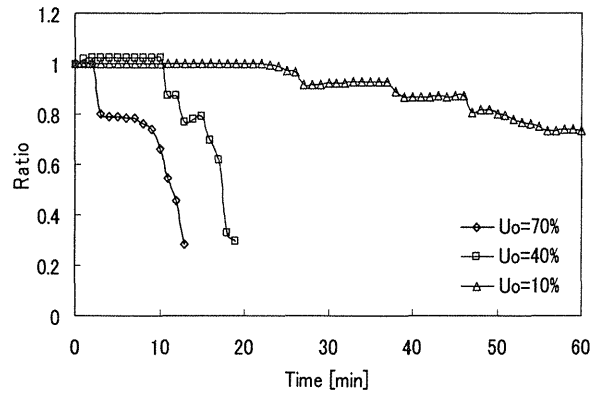
セル温度 [°C]	14.2~17.5 (室温)
水素温度 [°C]	14.2~17.5 (室温)
空気温度 [°C]	14.2~17.5 (室温)
流し方	対向流、並行流
加湿条件	加湿(水素のみ)
水素供給流量 [ml/min]	70
空気供給流量 [ml/min]	250、400、1700
負荷電流 [mA/cm <sup>2</sup> ]	100、200

図 9(a),(b)、図 10(a),(b)に実験結果を示す。空気流量が 250ml/min では空気利用率は 70%、空気流量が 400ml/min では空気利用率は 40%、空気流量が 1700ml/min では空気利用率は 10%である。Ratio とは初期のセル電圧を基準とし、それぞれのセル電圧を基準電圧で割った値と定義する。

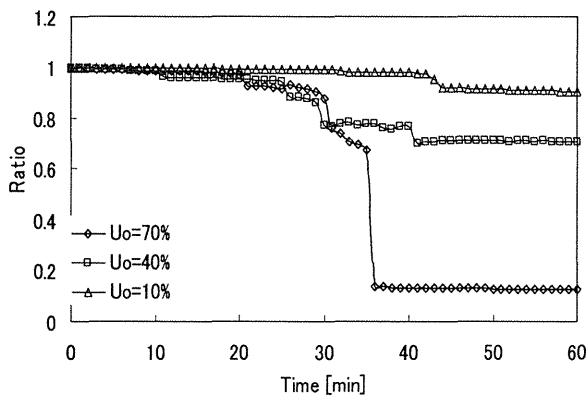
図 9(a),(b)より負荷電流が 100mA/cm<sup>2</sup> において、対向流、並行流とも空気利用率を下げることでセル電圧が安定していることが分かる。空気利用率を下げることでセル内の酸素濃度が変化しやすくなり、電気化学反応が活性化したためであると考えられる。



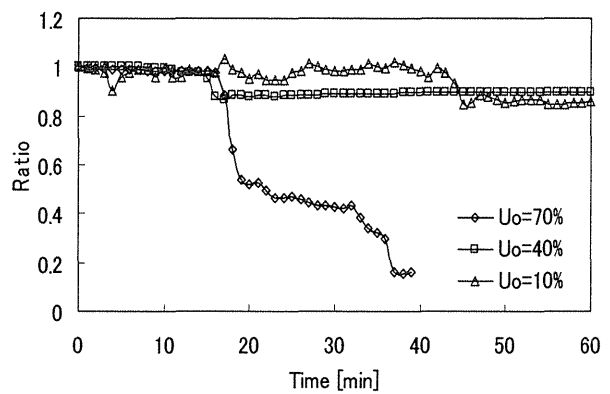
(a)対向流



(a)対向流



(b)並行流



(b)並行流

図 9 空気利用率とセル電圧の関係( $I=100\text{mA}/\text{cm}^2$ )

図 10 空気利用率とセル電圧の関係( $I=200\text{mA}/\text{cm}^2$ )

図 10(a),(b)より負荷電流が  $200\text{mA}/\text{cm}^2$  の場合,対向流において空気利用率 70,40%ではセル電圧の低下が激しく,測定できなくなった。それに対し並行流では空気利用率 70%では対向流と同じく測定できなかったが,空気利用率 40%からは測定できた。このような結果となった理由として,対向流の流れ方は互いの供給ガスの入り口付近が乾燥し,また負荷電流を  $200\text{mA}/\text{cm}^2$  としたことで電気浸透ドラッグ現象<sup>3-4)</sup>により,水素側から空気側へ膜内を通り水が移動したため,固体高分子電解質膜の水分布が偏り,膜抵抗が増加したためセル電圧が急激に低下したと考えられる。空気利用率 10%では対向流,並行流とも生成水が空気の流れに沿ってセル内を移動したため固体高分子膜がその水分を含み,適度に湿潤状態を保ったため,セル電圧の低下があまり無かったと考えられる。

次に表 4 の実験条件で実験を行った。この実験条件で燃料電池を長期的に使用する場合における運転方法を確立させるためである。

表 4 空気利用率変化による実験条件

セル温度 [°C]	19.2~19.4 (室温)
水素温度 [°C]	14.1~14.9
空気温度 [°C]	19.2~19.4 (室温)
流し方	対向流、並行流
加湿条件	加湿(水素のみ)
水素供給流量 [ml/min]	70
空気供給流量 [ml/min]	① 0~30分:250 ( $U_o=70\%$ ) ② 31~60分:400 ( $U_o=40\%$ ) ③ 61~90分:1700 ( $U_o=10\%$ )
負荷電流 [ $\text{mA}/\text{cm}^2$ ]	100

空気利用率を 30 分間隔で変化させた場合におけるセル電圧の変化を図 11 に示す。図 11 より対向流、並行流は同等の性能がでていることが分かった。空気利用率を変化させるとセル電圧が回復していることが分かる。空気利用率を低くすることで流量が増え、セル内の酸素濃度が一時的に上がり、電気化学反応が活性化されたと考えられる。特に、空気利用率を 40%→10%(領域②→③)に変化させるとその効果が顕著に現れていることが分かる。

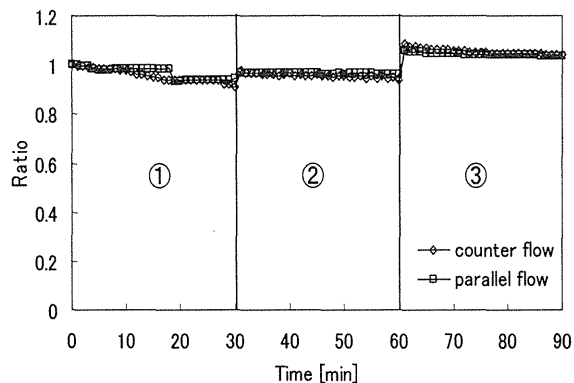


図 11 空気利用率変化によるセル電圧の変化

## 5. 結言

本研究では加湿器を省き、燃料電池システムのコンパクト化、コスト削減を目的とし、対向流・並行流に

ついて検討を行ってきた。以下に実験で得られた知見を示す。

- ① 対向流・並行流ともセル温度が約 50℃のとき、最大出力密度を得た。
- ② 低加湿、無加湿条件のいずれも場合でも 50℃以下で作動させれば、高い効率を保持することが分かった。
- ③ セル電圧の低下が確認された場合、一時的に空気利用率を下げればよいことが分かった。

## 参考文献

- 1) Jeffrey A. Koled et.al : Advanced composite Polymer Electrolyte Fuel Cell, Electrochemical Society Proceedings, Vol.95, pp.193-203, (1995)
- 2) Felix N. Buchi, et.al : Dependence of current distribution on water management in PEFC of technical size, Journal of Power Sources, Vol.145, pp.62-67, (2005)
- 3) Thomas A. Zawodzinski, et.al: The water content dependence of electro-osmotic drag in proton-conducting polymer electrolytes, Electrochimica Acta, Vol.40, No.3, pp.297-302, (1995)
- 4) Felix N. Buchi, et al : Operating Proton Exchange Membrane Fuel Cell without External humidification of the reactant gases, Journal of Electrochemical Society, Vol.144, No.8, pp.2767-2772, (1997)