

燃料電池における熱物質移動現象の解明に基づく 性能向上

研究代表者：宇高 義郎

研究目的：

化石燃料に代わるエネルギー源の一つとして水素を利用する燃料電池が注目されている。中でも固体高分子形燃料電池（PEFC）は、自動車用動力装置としての実用化が期待されている。図1に示す構造であるPEFC中の高分子電解質膜（PEM）の導電性を維持するためには水分が必要な一方、液水が微細多孔質から構成されるガス拡散層（GDL）を塞ぐ現象（フラッディング）が実用化を阻む問題として注目されるなど、PEFC内の水分管理は非常に重要である。そのため、微細な多孔質で構成されるGDL内の蒸気（液水）の挙動や酸素の透過率といった物質輸送現象を解明することが重要であるが、GDLは図2にあるように微細かつ繊維質で非周期的な構造であり、さらに液水排出のために撥水剤が添加されているためにそれらの解明は困難である。そこで、それら従来予測ならびに測定が困難であったそれらGDL中の輸送特性を実験並びに数値解析により多角的に解明することを本研究の目的とする。また、局所的な温度上昇が耐久性を悪化させること、温度分布が物質輸送にも大きな影響を及ぼすことなどから、熱輸送特性の解明も重要な課題であり、それらにも取り組む。

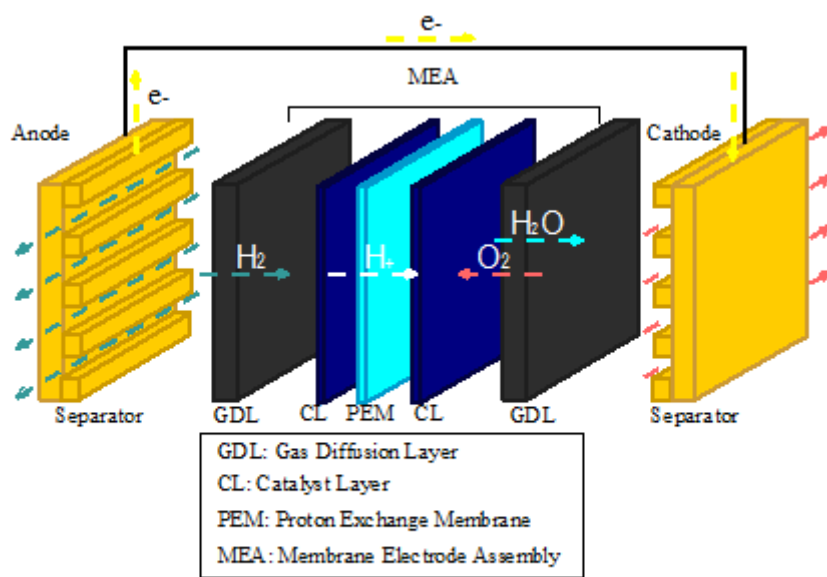


Fig.1 Schematic of PEFC

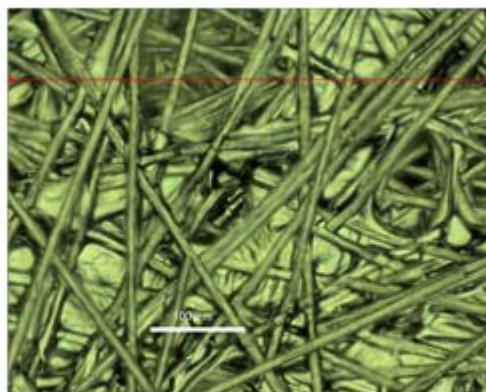
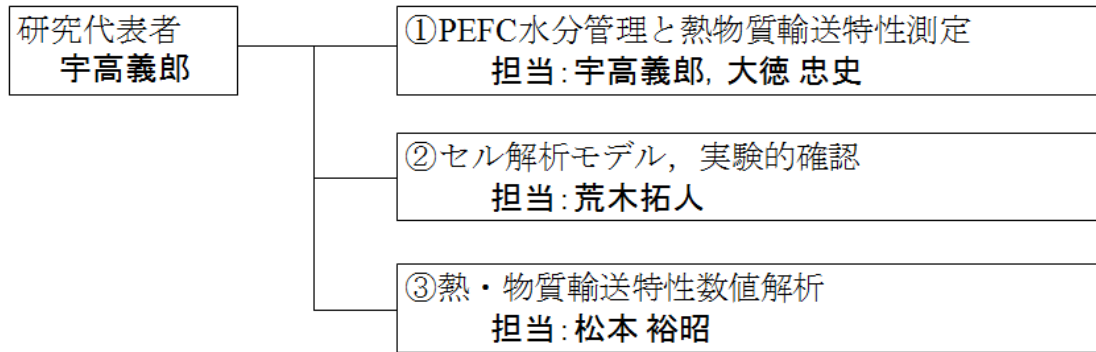


Fig.2 Micrograph of GDL (carbon paper)

研究体制



研究成果：

(1) PEFC 水分管理と熱物質輸送特性測定

・含水条件下を含めた GDL の酸素拡散特性計測手法の確立

図 3 に示すガルバニ電池式酸素濃度センサーを酸素吸収体として利用し，含水条件下の GDL 多孔体の酸素拡散特性計測を試みた．その結果，図 4 に示すように液水飽和度に対する拡散係数の変化を測定することに成功した．測定された拡散係数は，赤三角で示す非撥水 GDL と比較し青三角で示す撥水 GDL は特に飽和度 50%付近でより高い事が判った．

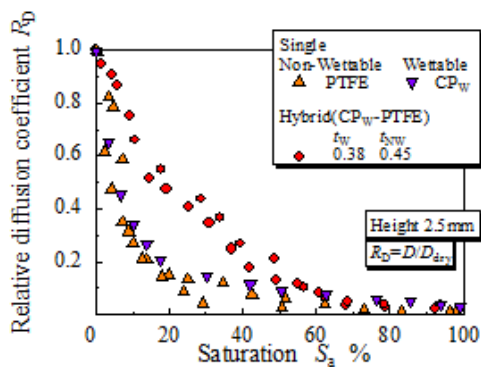


Fig.4 Measured O₂ diffusivity

・ハイブリッド構造 GDL の拡散特性

特に液水挙動に関わる主な基材要因として考えられる基材のぬれ性に着目し、最適な液水の挙動および分布を実現する目的で、基材のぬれ性分布を利用する新構造の GDL を提案した。その構造と概念図を図 5 に示す。そのハイブリッド構造 GDL における拡散係数と飽和度の関係も図 4 にプロットしてあるが、特に飽和度が 50% 以下の領域で、拡散係数が大きく増加している。

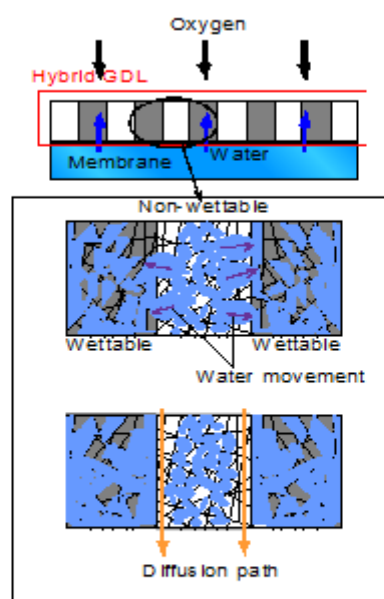


Fig.5 Configuration and principle of Hybrid GDL

・GDL 中の液水分布の可視化

ハイブリッド構造 GDL とクロスタイプの GDL 中の液水分布を X 線 CT を用いて可視化した結果を図 6 に示す。それぞれの GDL 中の詳細な液水分布が得られた。また、測定時間や素材の選択性などから液水分布可視化と酸素拡散特性の同時測定との親和性により高い中性子線による可視化も行った。その装置図を図 7 に、測定結果例を図 8 に示す。

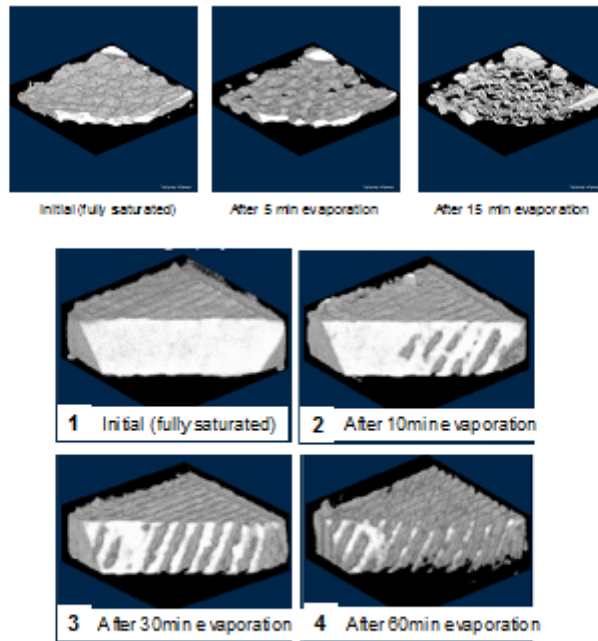


Fig.6 X-ray CT images of Carbon cloth (upper) and Hybrid GDL (lower)

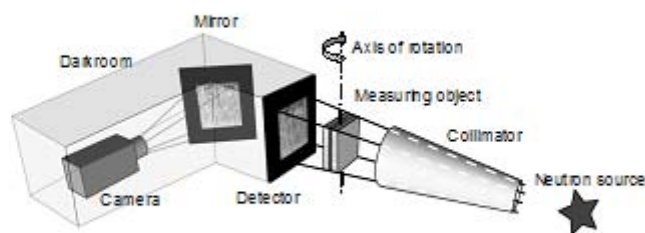


Fig.7 Apparatus for Neutron radiography

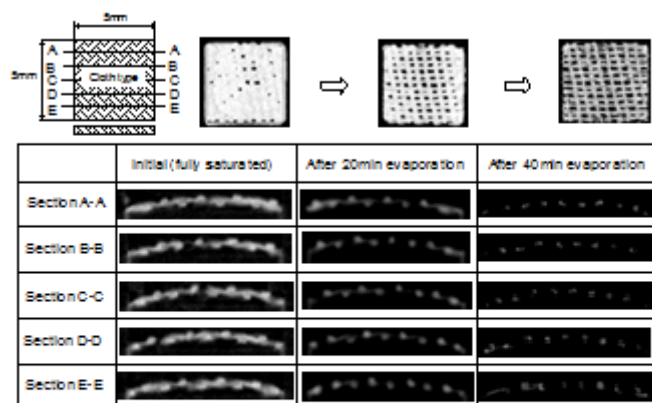


Fig.8 Transient water distribution inside carbon cloth by Neutron CT

(2) セル解析モデル，実験的確認

酸素拡散特性や液水分布が全体の発電特性に与える影響を調べるために負荷変動や供給ガス加湿度変化に対するセル電圧応答の測定と数値解析を行った．図 9 に示すとおり GDL に液水が存在しない条件ではの範囲では解析と実験の応答特性や時定数などは良好に一致した．また，その応答には MEA と GDL 界面の総括拡散抵抗の影響が大きいことを明らかにした．

また，より供給加湿度が高く液水が存在するような条件においても，液水の分布と蒸発速度係数を適切に設定することによって図 10 の下図に示すように電圧応答を再現し予測することができた．

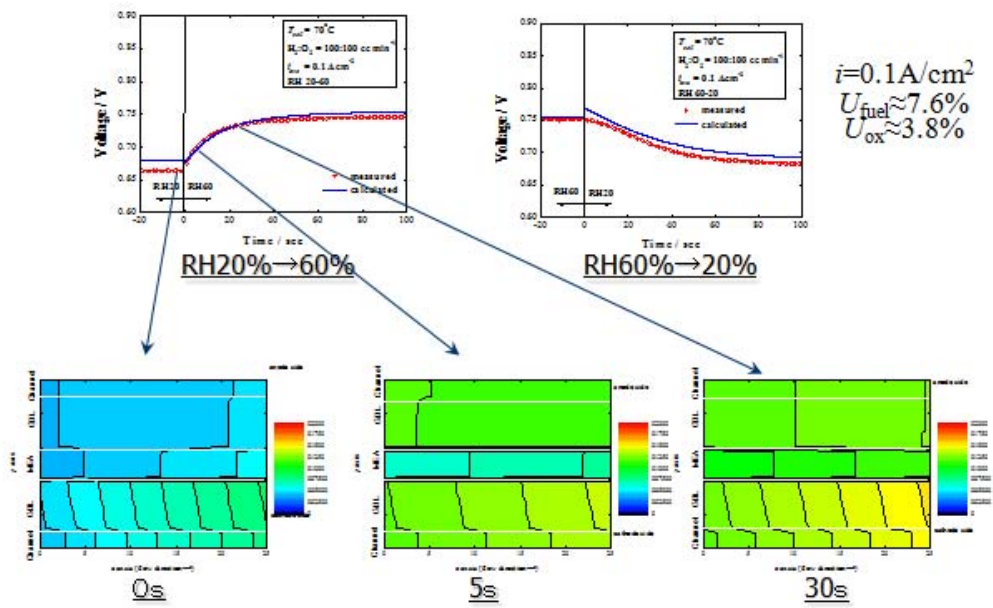
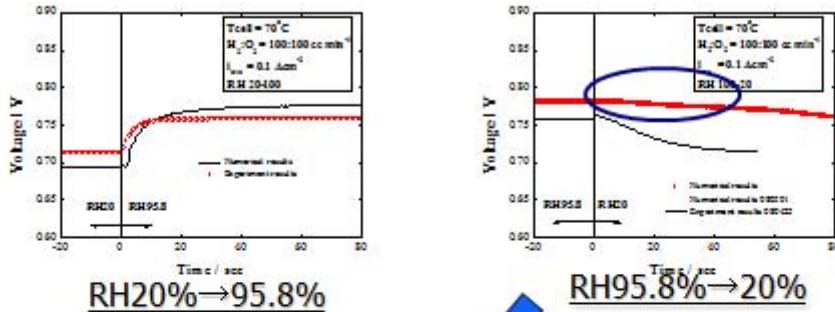
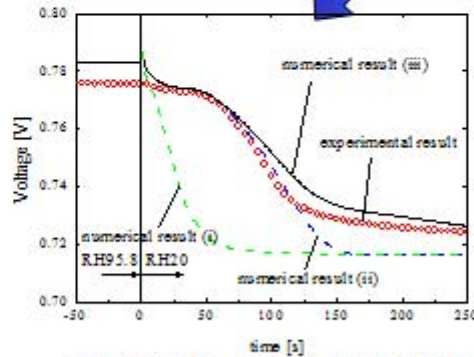


Fig.9 Measured and calculated voltage responses and water concentration distributions



液水の考慮による解析モデルの改善



RH95.8% to 20% with 0.1A/cm²

Fig.10 Voltage responses by improved numerical model

(3) 熱・物質輸送特性数値解析

GDL 内液水挙動を解析するシミュレーションコードを作成した．GDL 内の多孔質形状を単純な形状にモデル化し，表面性状により液体が移動することなどを確認した．

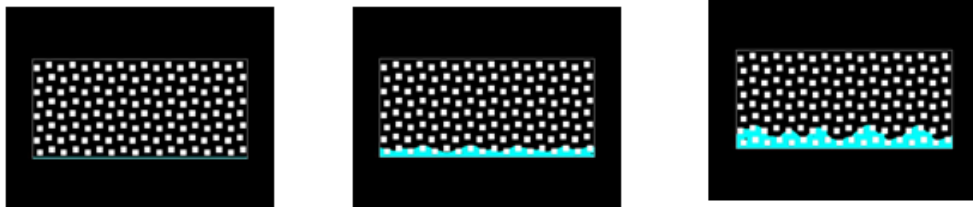


Fig.11 Numerical results of liquid water distribution inside GDL

外部資金獲得状況

- (1) 独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)、 固体高分子形燃料電池実用化戦略的技術開発 / 次世代技術開発事業, 「固体高分子形燃料電池用多孔体内における熱・物質移動現象の単体評価技術の研究開発」(平成 20 年~21 年)(宇高義郎(開発責任者、代表)、荒木拓人、松本裕昭、大徳忠史, 篠原和彦(開発責任者)、久保則夫、田崎豊、青木敦)
- (2) 科学研究費補助金 基盤研究(B)、 「固体高分子燃料電池における新形式ガス拡散層の提案と酸素拡散特性の測定」 (平成 20 年~22 年)(宇高義郎(代表)、松本裕昭、荒木拓人、大徳忠史)
- (3) 科学研究費補助金 若手研究(B)、 「固体高分子形燃料電池内で使用できるマイクロセンサ開発と熱物質輸送特性の解明」(平成 20 年~22 年)(荒木拓人(代表))

外部発表

雑誌論文及び国際会議発表

- (1) 宇高義郎, 田崎豊, 王世学, 石地徹, 打越祥一, 微細多孔体の酸素拡散係数測定法, 日本機械学会論文集(B編), 74 巻 739 号, (2008) pp655-661.
- (2) Yoshio Utaka, Yutaka Tasaki, Shixue Wang, Toru Ishiji, Shoich Uchikoshi, Method of measuring oxygen diffusivity in microporous media, International Journal of Heat and Mass Transfer 52 (2009) 3685-3692.
- (3) Iwasaki, D., Utaka, Y., Tasaki, Y. and Wang, S., Oxygen Diffusion Characteristics of Gas Diffusion Layers With Moisture, Proceedings of the Sixth International ASME Conference on Nanochannels, Microchannels and Minichannels, (2008) ICNMM2008-62106.
- (4) Wang, S., Utaka, Y. and Tasaki, Y., Measurement of Oxygen Diffusion Characteristics of Porous Media Used for the Gas Diffusion Layer of Proton-Exchange Membrane Fuel Cells, Proc. 7th ASME-JSME Thermal Engineering Conf., HT2007-32604, (2007)

- (5) Takuro Araki, So Manabe and Yuki Uemura, Effect of Water Transport on PEMFC Transient Power Generating Characteristics, GHT35c-7, 2008 Fuel Cell Seminar, Oct. 2008, Phoenix, US.
- (6) T. Araki, So Manabe, Yuki Uemura, Kenji Ohora, Measurement and Modelling of Heat and Mass transport characteristics inside PEMFC systems, 7th World Conference on Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics, June 2009, Krakow, Poland.
- (7) 宇高義郎, 岩崎大剛, 田崎 豊, 王 世学, 含水微細多孔質における有効酸素拡散係数測定, 日本機械学会論文集 (B 編), 75(757), pp. 1822-1829, (2009).
- (8) 宇高義郎, 廣瀬生典, 固体高分子形燃料電池用ガス拡散層の液水制御 (ぬれ性の異なる多孔体の交互配置を利用する新構造拡散層), 日本機械学会論文集 (B 編), 76(762), pp. 326-333, (2010)
- (9) 廣瀬生典, 宇高義郎, 田崎 豊, 固体高分子形燃料電池用ガス拡散層の液水制御 (X 線ラジオグラフィ可視化法による新構造ミクロ多孔質体の液水分布特性, 日本機械学会論文集 (B 編) 76(765), pp. 888-895 (2010)
- (10) 宇高義郎, 田崎豊, 宮田智生, 岩崎大剛, 近藤俊介, 青木敦, 空孔径分布の異なる微細多孔体層を隣接させたハイブリッド構造ガス拡散層(X 線ラジオグラフィによる液水挙動可視化解析と酸素拡散特性), 日本機械学会論文集(B 編), 76(770), pp. 1586-1593 (2010)
- (11) 眞鍋壯, 上村有輝, 荒木拓人, 供給ガス相対湿度変化が PEFC 発電応答特性へ及ぼす影響, 76(771), pp. 1942-1949 (2010)
- (12) 宇高義郎, 田崎豊, 王世学, 岩崎大剛, 脇憲尚, 久保則夫, 篠原和彦, Pierre Boillat, Gabriel Frei, 中性子線による液水可視化および酸素拡散特性の同時計測手法を利用する微細多孔体内の物質移動特性, 日本機械学会論文集 (B 編), 76(771), pp.1964-1972 (2010)
- (13) 宇高義郎, 田崎豊, 脇憲尚, 岩崎大剛, 久保則夫, 篠原和彦, Pierre Boillat, Pierre Oberholzer, Gunther G. Scherer, and Eberhard H. Lehmann, 中性子線による液水可視化手法を利用する固体高分子形燃料電池用マイクロポーラス層の液水分布と物質移動特性, 日本機械学会論文集 (B 編), 76(772), pp. 1995-2002, (2010)

学会発表 他

- (1) 阿江 朋暁, 上村 有輝, 荒木 拓人, カソード触媒層内の酸素拡散が PEFC 発電特性に及ぼす影響, 日本機械学会 2009 年度年次大会, 2009 年 9 月, 岩手大学.
- (2) 洗川 拓也, 荒木 拓人, 眞鍋 壮, ガス拡散層内の液水滞留を考慮した PEFC 非定常応答解析, 日本機械学会 2009 年度年次大会, 2009 年 9 月, 岩手大学.
- (3) 大洞 健治, 荒木 拓人, 太田 公一, 遠藤 亮将, ガス拡散層の熱物質輸送特性, 日本機械学会 2009 年度年次大会, 2009 年 9 月, 岩手大学.
- (4) 眞鍋 壮, 上村 有輝, 大洞 健治, 荒木 拓人, 恩田 和夫膜電極接合体界面の輸送抵抗が PEFC 非定常発電特性に及ぼす影響, 第 46 回日本伝熱シンポジウム, pp. 583-584, 2008 年 5 月, 京都国際会館.
- (5) 荒木拓人, 眞鍋壮, 上村有輝, 洗川拓也, 田川恒介, GDL 中の液水滞留を考慮した PEFC 非定常発電応答解析, 第 16 回燃料電池シンポジウム講演予稿集, pp.220-223, 2009 年 5 月, タワーホール船堀 (東京都).
- (6) 眞鍋 壮・田川恒助・山浦利雄・大洞健治・上村有輝・荒木拓人, PEFC 内部の非定常水分輸送特性と温度分布, 平成 21 年電気学会全国大会, 2009 年 3 月, 北海道大学.
- (7) 上村有輝, 眞鍋壮, 長濱光幸, 荒木拓人, 恩田和夫, 供給ガス湿度変化時の PEFC 発電応答解析, 日本機械学会 2008 年度年次大会, 2008 年 8 月, 横浜国立大学
- (8) 眞鍋壮, 上村有輝, 長濱光幸, 荒木 拓人, 恩田 和夫, 固体高分子形燃料電池内の熱物質輸送特性, 第 45 回日本伝熱シンポジウム, D1504, 2008 年 5 月, 筑波国際会議場.
- (9) 荒木拓人, 眞鍋壮, 上村有輝, 恩田和夫, 水分輸送特性が PEFC 非定常発電応答に与える影響, 第 15 回燃料電池シンポジウム講演予稿集, pp.161-164, 2008 年 5 月, タワーホール船堀 (東京都.)