パッシブ形 PEFC における熱流体の計測*

江尻 英治**

Measurements of Heat and Flow in Passive-Type PEFC

Eiji EJIRI

1. はじめに

燃料電池は、水素と酸素を反応させて電気を発生させる、高効率でクリーンなエネルギー変換装置である。その中でも固体高分子形燃料電池 (PEFC) は、作動温度が低く、取り扱いが容易で、出力密度が高いなどの利点があり、自動車用あるいは家庭用コジェネレーションなどで実用化が活発に推進されている。これらの PEFC では通常、実機の出力密度を高めるために、空気の高圧、加湿、水素の加湿、循環、さらには水分の回収などが必要となる。したがって、全体のシステムとしては複雑なものとならざるを得ない。

本解説で対象としているパッシブ形 PEFC は、常温、無加湿、超低圧で水素を供給し、大気から直接酸素を取り込むものであり (過給エンジンに対して、自然吸気エンジンを考えるとわかりやすい)、システム全体の大幅な簡素化を図ることができる。したがって、低コストのモバイル機器電源、アウトドア電源、非常用バックアップ電源など、数 W~数十 W 程度の比較的小出力レンジの機器への適用を考えた研究開発が行われている。これまでに、複数のセルを平面状に配置する構造をもつもの¹⁾、円板状のセルを積層させた構造をもつもの^{2), 3)}など多数の研究開発例が報告されている。それらの中では、ある条件下での出力低下、出力停止などの課題も指摘されている⁴⁾。これらの課題のほとんどすべては、空気極が大気開放になっていること、水素供給がデッドエンド系であることなど、パッシブ形特有のシステム構成に起因しているものと考えられる。

これまでに著者は、上述のパッシブ形燃料電池の諸課題に対し、主に流体工学的な手法でトラブルシューティングを目的とした実験調査を行ってきた。その結果、課題の原因となっているメカニズムもほぼ解明され、実用化のための対策の目処も立ちつつある。以下の解説では、その実験調査に用いた手法、結果などの概略について述べる。

2. 実験装置

2.1 パッシブ形燃料電池の構造

実験に使用する供試体として、電池の最小単位である単セルと、複数の単セルを平面状に配置して直列に結線した実機相当のモジュールとがある。これらは実験の目的によって使い分けられる。実験で使用した単セルの構造の一例を Fig. 1 に、設計諸元の一例を Table 1 に示す。MEA (膜/電極接合体) は、電解質膜の両面に触媒層が形成されたもので、それがさらに 2 枚の GDL (ガス拡散層) に挟まれたサンドウィッチ構造となっている。空気極側のガス拡散層は、多数の小穴が穿たれた金メッキ処理された集電板に接しており、この小穴より大気中の酸素が取り込まれる。水素極側のガス拡散層は、サーペンタイン流路 (Fig. 1) あるいは多数の小穴が穿たれた集電板に接している。

実験で使用したモジュールは 15 あるいは 20 セルから構成されている。空気極側から見た水素供給配管とパージ用配管の一例を Fig. 2 に示す。パージ用配管は窒素を封入したり、水分を排出したりするためのもので、通常の運転中は集合部の下流で封鎖されている (デッドエ

Fig. 1 Schematic structure of test fuel cell.

Table 1 Typical design specifications of single cell.

Cell effective area	23 cm ² (47 mm x 48 mm)
Rated voltage	0.6 V
Rated current	4.4 A
Hydrogen pressure	5 kPaG
Electrolyte	PTFE based (t=30 μm)
GDL	Cloth type (t=300 μm)

* 原稿受付 2011 年 8 月 4 日

** 正会員 千葉工業大学 工学部 機械サイエンス学科
(〒 275-0016 千葉県習志野市津田沼 2-17-1,
E-mail: ejiri.eiji@it-chiba.ac.jp)

Fig. 2 Hydrogen gas channel configuration in module.

Fig. 3 Definitions of fuel cell postures.

ンド系)。なお、図中のセルにつけられた番号は結線の順番を示している。単セルもモジュールも、本体を傾斜させて設置することが可能である。傾斜角 θ は、Fig. 3 のように、空気極が底面となった状態を $\theta = 0^\circ$ と定義している。したがって、本体を鉛直に立てた状態が $\theta = 90^\circ$ 、空気極が天側にある状態が $\theta = 180^\circ$ ということになる。以下、特に断りのない場合は $\theta = 90^\circ$ とする。

2.2 実験システム

Fig. 4 に実験のシステム図を示す。高圧ボンベよりレギュレータで 5 kPa まで減圧された乾燥水素は、ほぼ室温で燃料電池に供給される。全体の配管はデッドエンド系⁵⁾、すなわち消費された水素だけが供給されるシステムとなっている。モジュールにおいては各セルの電圧は常時モニターされ、データロガーおよびパソコンによって記録される。パッシブ形燃料電池の空気極は大気

Fig. 4 Diagram of experimental system.

開放であるため、周囲の気流の影響を受けて性能が変化しないように試験部は風除けで周囲を囲んである。発電性能は、電子負荷器を含む燃料電池性能評価装置（エヌエフ回路設計ブロック、FRA5095）で計測した。燃料電池の負荷については、特に断りのない限り、一定電流の下で実験を行っている。

3. 計測例

Fig. 5 は、15 セルからなるモジュールを定格 90W 付近で連続運転をしたときの出力の時間履歴である⁶⁾。この図にはパッシブ形燃料電池モジュールの典型的な挙動の一例が示されている。傾斜角 $\theta = 90^\circ$ では長時間の連続運転が可能であるが、 $\theta = 0^\circ$ あるいは $\theta = 180^\circ$ では、運転開始後数十分程度で出力が低下あるいは停止する。 $\theta = 0^\circ$ では、モジュールの出力電圧は他の傾斜角の場合に比べて低だけでなく、不安定である。

Fig. 6 は同じ 15 セルのモジュールを傾斜角 $\theta = 0^\circ$ で運転したときの、3 セル（No. 4, No. 8 および No. 9）の電圧の時間履歴を示したものである。No. 4 および No. 9 のセルは正常な電圧を示しているが、No. 8 のセルは実験開始後 20 分あたりから電圧が低下し始め、30 分後にはついにゼロに近づく。実験は定電流で行っているため、No. 8 セルの内部抵抗が増大し、出力電圧が低下したと考えられる。したがって、この場合、モジュールの出力低下はこの No. 8 セルの電圧低下に起因しているものと考えられる。

Fig. 5 Typical time history of output power.

Fig. 6 Time history of output voltage of three cells.

3.1 水分の計測

燃料電池の出力低下は、反応で発生する水分が関わっていることが多い。例えば、電池内部の水分が過剰であればフラッディング (flooding) を発生し、凝縮水が反応に必要な水素や酸素のガスの輸送を阻害して、性能を低下させる。逆に水分が過少であればドライアウト (dryout) を発生し、電解質を通過するイオンの伝導性が低下して、やはり性能が低下する。

ガス中の水蒸気の挙動を大まかに把握するために、Fig. 7 に示すように、モジュール内のセルの水素極および空気極の GDL 表面近傍に電気容量式湿度センサー (トウプラスエンジニアリング, TA502) を設置した。以下、電圧降下を生じていないセルについての計測結果である⁶⁾。空気極側の相対湿度の時間履歴を Fig. 8 に示す。空気極側の相対湿度は、いずれの傾斜角 θ においても実験開始後からあまり大きな変化はなく、むしろ緩やかに減少していく傾向にある。反応により空気極では水 (水蒸気) が生成されるが、電池本体の温度上昇があるために相対湿度は減少してゆくと考えられる。傾斜角 $\theta = 180^\circ$ では、 $\theta = 0^\circ$ あるいは 90° に比べ相対湿度が低いことに注目すべきと考えられる。

水素極側の相対湿度の時間履歴を Fig. 9 に示す。水素極側の相対湿度は、いずれの傾斜角 θ においても実験開始後より急激に増加し始め、似たような傾向を辿りながら飽和状態の 100% へ漸近していく。水素極側の集電板の上流にチャンバーを設け、エンドプレートをアクリルで製作して可視化した写真を Fig. 10 に示す。これは傾斜角 $\theta = 0^\circ$ での様子であるが、実験開始時には乾燥水素で充填されていたチャンバー内 (Fig. 10(a)) は、

Fig. 7 Installation positions of sensors.

Fig. 8 Time history of relative humidity near cathode.

Fig. 9 Time history of relative humidity near anode.

(a) Initial.

(b) After 20 minutes.

Fig. 10 Appearance of anode with transparent chamber.

実験開始 20 分後にはアクリル壁面に水分が凝縮している (Fig. 10(b))。水素極には乾燥空気が供給されており、反応で水素極に水を発生することはないので、この現象は妙だと思われるかもしれない。この水分は、空気極で発生した水が、電解質内の水の濃度勾配によって、電解質、GDL を通って水素極側に運ばれてきたものである (一般に逆拡散といわれている)。ちなみに空気極側でこのような水分の凝縮は (定格点での運転では) 通常あまり見られない。

3.2 温度の計測

燃料電池では大雑把にいうと燃料のもつ発熱量の約半分が反応で熱となって散逸する。モジュールの各セルは直列に結線されているので、各セルには同じ電流が流れる。しかしながらセル間の性能バラツキによって各セルの発熱量は異なり、モジュールの設置状態やモジュール内におけるセルの位置によっても温度分布が生じる。また同一セル内でも電流分布による温度分布が生じるのが普通である。セルの GDL 表面の温度の傾向をおおまかに知ることは、Fig. 7 に示すように熱電対を挿入することによって可能である。空気極側の GDL 表面温度を、熱電対を用いて計測した例を Fig. 11 に示す⁶⁾。いずれの傾斜角 θ においても GDL 表面温度は、実験開始後より徐々に上昇し始め、似たような傾向を辿る。傾斜角 $\theta = 0^\circ$ では比較的溫度上昇が大きいように見える。

パッシブ形の空気極は大気に露出しているため、温度

Fig. 11 Time history of temperature on cathode GDL surface.

Fig. 12 Thermographic image of module in normal operation.

計測には赤外線放射温度計が便利である。次にモジュール全体の空気極側の表面温度を計測した例を示す⁷⁾。測定には赤外線サーモグラフィ (NEC Avio 赤外線テクノロジー, TVS-500) を用いた。Fig.12 は、定格出力で傾斜角 $\theta = 90^\circ$ で運転中の温度分布を示す。下方よりも上方のセルの方が高温となっており、高温になった本体で暖められた空気および排出される高温の水蒸気による自然対流が発生していると考えられる。同じセル内で極端に温度分布が発生しているセルは見当たらない。

Fig.13 は、やはり定格出力で傾斜角 $\theta = 90^\circ$ で運転中の温度分布を示すが、電圧降下直後に撮影された映像である。図中の No. 8 のセルで比較的高温の部分が発生

Fig. 13 Thermographic image of module just after power breakdown.

Fig.14 Thermographic image of two cells just after power breakdown.

していることがわかる。ちなみにこの時点で、No. 8, No.14 および No.20 の 3 セルで電圧降下が発生している。Fig.14 は、左に電圧降下が発生しているセル、右に正常に発電しているセルを並べて表示したものである。右のセルでは比較的均一な温度分布となっているのに対し、左のセルでは、上半分がかなり高温となっている。Fig.14 では上方から水素を供給していることを考えると、左の電圧降下が発生したセルは、水素供給の上流側にあるが、下流側に比較して電流密度が極めて大きくなっていることがわかる。Fig.14 に示された GDL 表面上の各部の温度 ($T_1 \sim T_4$) を、計測されたデータと比較すると、 $T_2 < T_4 < T_3 < T_1$ であった。

なお、今まで述べてきた出力電圧の急激な低下は、水素供給をフロー系にして、水素利用率を 80% 以下にすると発生しなくなる。また、このような現象は、当然のことながら加湿水素を供給すると発生しやすくなる。さらに、このような現象は水素の供給方法に起因するものであり、水素極側の流路を適切に設計することによって回避することができる。

3.3 酸素濃度の計測

パッシブ形では酸素を直接大気から取り込むため、空気極近傍の酸素濃度が燃料電池の性能に大きく影響する。Fig. 7 に示すように、空気極近傍の酸素濃度を蛍光式酸素濃度センサー (オートマチックシステムリサーチ, FO-960/WP-130) によって計測した例を次に示す⁶⁾。

Fig. 15 は同一の運転状態で GDL 表面からのセンサー受感部までの距離 d による酸素濃度の変化を調べたものである。GDL 表面から $d = 10\text{mm}$ 以上離れると通常の大気の酸素濃度 21% に近い値を示すが、 $d = 2 \sim 5\text{mm}$ の至近距離では 10~12% の低い酸素濃度を示す。燃料電池の空気極では空気から酸素を選択的に吸収するため、このような酸素欠乏状態となる。

空気極全体の状況を把握するためには、空気極に平行な複数断面上で酸素濃度の二次元計測を行なう必要がある。次に、燃料電池酸素分布可視化装置 (島津製作所, FCM-405-Oxy) を単セルに適用した例を示す⁸⁾。この装置は、酸素感応試薬が、照射された可視光レーザ (λ

= 407nm) を吸収して特定の波長の蛍光を発し、この蛍光強度が周りの酸素濃度によって変化する原理（高酸素濃度→低蛍光強度、低酸素濃度→高蛍光強度）を利用している⁹⁾。試薬を対象物表面に塗布することで、二次元的な酸素濃度計測が可能となる。Fig.16 に、異なる

Fig.15 Time history of oxygen concentration near cathode GDL surface.

(a) In oxygen concentration of 5%.

(b) In oxygen concentration of 20%.

Fig.16 Visualized fluorescence intensity.

Fig.17 Experimental setup for oxygen concentration measurement.

酸素濃度下で同一のサンプル試験片が発する蛍光の強度を比較したものを示す。Fig.17 に実験システムの概要を示す。燃料電池の空気極近傍には、予めこの酸素感応試薬を塗布した計測スクリーンを GDL 表面から距離 x の位置に設置した。

Fig.18 に、三つの傾斜角 θ において $x = 4 \text{ mm}$ の位置で計測された酸素濃度分布を示す。図中の数字は酸素濃度 (%) を示す。傾斜角 $\theta = 0^\circ$ では、酸素濃度は場所によって特定の傾向というものがなく見えるが、その絶対値には 20% 以下となる低濃度の部分もみられる。設置間隔 x を変えた場合、その傾向は同じようにはならず、酸素濃度分布は常に不安定な状態にあると考えられる。傾斜角 $\theta = 90^\circ$ では、酸素濃度は下方で高く上方で低くなる傾向にあるが、その絶対値は最上部を除いて比較的高く、十分な量を安定して供給できていると考えられる。傾斜角 $\theta = 180^\circ$ では、空気極中心付近で酸素濃度が最も低く、外側になるにつれて高くなる。このことから、安定した酸素供給は周辺部だけで、中央部には十分な酸素は供給されにくくなっていると考えられる。設置距離 x を変えた場合、酸素濃度分布の傾向は傾斜角 $\theta = 90^\circ$ の場合と同じだが、全体として濃度レベルが高くなる。

3.4 気流速度の計測

空気極近傍において酸素濃度と同様に重要なのが空気の流れである。ここでは、PIV を単セルに適用して速度場を計測した例を示す。Fig.19 に示すようにレーザ

Fig.19 Direction of laser sheet projection for PIV.

Fig.18 Measured oxygen concentration.

Fig.20 Measured air flow velocity vectors with PIV.

シートを単セルの中心線に一致させ、シートに垂直方向から撮影する。高速度ビデオカメラ（フォトン，FASTCAM 512PCI）と解析ソフトウェア（LaVision, Flow Master）を使用した。一般に PIV 計測ではトレーサ粒子が必要である。エチレングリコールなどの液体を微粒化してトレーサとして用いる方法は、多孔質の GDL などを詰まらせて燃料電池の性能劣化を来たすので使用できない。

Fig.20 に、トレーサとして外径 30-50 μm のマイクロバルーンを使用して計測された速度ベクトルを示す^{10), 11)}。傾斜角 $\theta = 0^\circ$ では、速い流れのない滞留している部分が多くみられる。傾斜角 $\theta = 90^\circ$ では、下方から上方に向かう自然対流がみられ、酸素濃度分布の計測結果と整合性がある。傾斜角 $\theta = 180^\circ$ では外側から中心に向かった後、中心付近で上昇する気流がみられる。空気極中心付近では十分な酸素供給が行われていない結果になったと考えられる。空気極近傍では燃料電池に取り込まれる酸素によって誘起される速度が観察できる。

4. まとめ

パッシブ形 PEFC の単セルとモジュールについて、水分、温度、酸素濃度、気流速度を比較的簡便な方法で計測した例を示した。燃料電池の性能に影響を与えるパラメータとして、大気圧力、温度、湿度などの他に、伝熱に関わる本体部の材質や構造などもあり、実用化に向けて今後さらに検討が必要である。

参考文献

1) Hebling, C., et al.: Fuel Cell for Low Power Range-Banded

- Structure Membranes and Micro Structured Flow Fields, Abstracts of Fuel Cell Seminar, Portland (2000) pp. 134-137.
- 2) Bossel, U. G. : Portable fuel cell charger with integrated hydrogen generator, Proceedings of the European Fuel Cell Forum Portable Fuel Cells Conference, Lucern (1999) pp. 79-84.
- 3) Daugherty, M., et al. : Modular PEM fuel cell for outdoor applications, Proceedings of the European Fuel Cell Forum Portable Fuel Cells Conference, Lucern (1999) pp. 69-78.
- 4) Hottinen, T., et al.: Effect of cathode structure on planar free-breathing PEMFC, Journal of Power Sources, 138 (2004) pp. 205-210.
- 5) Larminie, J. and Dicks, A.: Fuel Cell Systems Explained, Second Edition, John Wiley & Sons Inc., New York (2003) pp. 112-114.
- 6) Ejiri, E. and Yamada, K.: Experimental Study on Performance of a Banded Structure Membrane Fuel Cell, Trans. ASME, Journal of Fuel Cell Science and Technology, Vol. 6, No. 3 (2009) pp.031001-6.
- 7) 黒田佳裕, 千葉雄太, 江尻英治: パッシブ形 PEFC モジュールの性能に関する研究, 日本機械学会 2008 年度年次大会講演論文集, Vol.7 (2008) pp.15-16.
- 8) 杉原宏, 小原翔, 飯嶋拓也, 江尻英治, 南雲雄三, 大野隆: パッシブ型燃料電池の空気極近傍の酸素濃度分布計測, 可視化情報学会全国講演会, Vol.30, Suppl. No.2 (2010) pp.187-188.
- 9) 南雲雄三・他 12 名: 燃料電池内の酸素分布可視化, 島津評論 Vol.66, No.1・2 (2009) pp.37-44.
- 10) 小原翔, 飯嶋拓也, 江尻英治: パッシブ形 PEFC の空気極付近の流れの可視化, 日本機械学会 2009 年度年次大会講演論文集, Vol. 7 (2009) pp.129-130.
- 11) Ejiri, E., Kohara, S., Iijima, T.: Experimental Investigation Focusing on Heat and Mass Transfer in a Passive Planer PEMFC Module, ASME 8th International Fuel Cell Science, Engineering and Technology Conference (CD-ROM), (2010) FuelCell2010-33148.