自動車用固体高分子型燃料電池の性能評価*
(第2報, 自己加湿型 200 W 級 PEFC スタックの性能と解析)
吉川 大雄^{*1}, 菱沼 孝夫^{*2}, 近久 武美^{*2}

Performance of a Polymer Electrolyte Fuel Cell for
Automotive Applications
(2nd Report, Characteristics of Self-Humidifying Operation of
a 200 W PEFC Stack)

Hiroo YOSHIKAWA, Yukio HISHINUMA^{*3} and Takemi CHIKAHISA

^{*3} Graduate School of Engineering, Hokkaido University, N 13, W 8, Sapporo, Hokkaido, 060-8628 Japan

The objective of this study was to fabricate a self-humidifying fuel cell stack humidified with water recovered at the cathodes, composed of 10 cells with 104 cm² cell areas, measure and simulate the performance of the stack. The model for the simulation is a three-dimensional model of the heat and mass transfer of water and gaseous reactants in fuel cell components with water cooling. The results of the stack experiments showed a maximum power of 250 W at the current density of 0.5 A/cm². The simulation model showed good agreement with the actual performance of the stack. A self-humidifying stack with a vapor permeating membrane showed a performance comparable to conventional stacks and it is very effective in simplifying stack systems. The numerical analysis showed that the stack performance is affected by the anode and cathode gas flows, co-flow is superior to cross-flow and that one cooling cell is necessary for two or three generating cells to maintain a fuel cell temperature below 100°C.

Key Words: Fuel Cell, Alternative Energy, Automobile, Polymer Electrolyte, PEFC, Experiment, Numerical Simulation, Self-Humidifying, Cross-Flow, Co-Flow, Number of Cooling Cell

1. まえがき

最近の固体高分子型燃料電池 (PEFC) の研究・開発により, 電池本体や燃料改質器の性能, システム統合化ならびに商業利用を前提とした製品のプロトタイプの改良がなされてきた. その結果, PEFCは21世紀の環境基準に適合する移動用動力源として有力な選択肢の一つになる可能性を有している. そのため自動車用固体高分子型燃料電池の性能を明らかにするため, 単セルでの性能評価とシミュレーションと電池性能に及ぼす湿度の影響と起動特性⁽¹⁾をI報で明らかにしてきた. さらに実用化を考えた場合, 燃料電池は内燃機関と違って二次元の面で発電するため, 体積あたりの出力密度を上げるためにはセルの厚みを薄くし多層に積層することが必要であり, また湿度管理を簡単にする必要がある. 水素と酸素が電気化学反応した際に生じる水分を利用して, 電解質の加湿を行う自己加湿型単セル電池の性能は報告されているが^(2,3), スタック性能については少ない.

そこで本研究では, 反応面積が104cm²の10セルスタックを製作し, カソードガスより反応生成水分を回

収して電池加湿を行う自己加湿型スタックを組立て, 電池性能を測定して従来加湿型スタック性能と比較した. またスタック内におけるガス流れ方向と冷却方法の最適化を検討するため, スタック性能を解析する三次元計算プログラムを作成した. 従来加湿型スタックとは, 外部加湿器により加湿されるガスを用いたスタックである. 作成した計算モデルにより, 電池内部のガス流れ方向の影響を評価し, スタック内の発電セル数に対する冷却セル数の比率を検討した.

2. 燃料電池スタックの構成

図1は, 本研究で設計・組立てを行った自己加湿型

Fig.1 Photo of 200W PEFC stack

* 原稿受付 2000年1月18日.

^{*1} 正員, 北海道大学大学院(〒060-8628 札幌市北区北13条西8).

^{*2} 正員, 北海道大学大学院工学研究科.
E-mail: hishi@eng.hokudai.ac.jp

Table 1 Specifications of 200W PEFC stack

Item	Value
Type of fuel cell	PEFC
Reaction area	104cm ²
Number of cells	10
Size of separator	138 mm×138 mm
Thickness of separator	2mm
Passage of gases	Straight
Design power	200W @0.5A/cm ²

PEFCスタックの外観写真である。水素と酸素の反応でカソード側に生成する水を回収し、スタックに供給されるガスを加湿する構造となっている。実験を行う際には、スタック上部に冷却システムを組み込んだマニホールドが設置される。本スタックは、一セルあたりの反応面積が104cm²である10発電セルと5冷却セルから構成される。セパレータ表面に掘り込まれた反応ガスの流れる流路形状はストレート型である。また、外部加湿器を用いた際のスタック出力の設計値は、0.5A/cm²の電流密度において200Wとし、その他の仕様を表1に示す。

自己加湿型スタックは、電解質膜、セパレータ、水蒸気透過膜ならびに冷却システムで構成され、その模式図を図2に示す。セル内でのアノードとカソードのガス流れ方向には、クロスフロー（直交流）を用いた。図2において、アノードガスは紙面に対して垂直方向に流れるのに対し、カソードガスは上方に流れて、セル出口付近で冷却システムにより冷やされ、ガス中の水蒸気が凝縮する。カソード側で水素と酸素による電気化学反応により水が生成するため、セルより排気されるカソードガスには多くの水蒸気が含まれる。セル出口で冷却されて凝縮し、回収された水は、カソード流路の壁面を伝って流れ落ちながら、アノードとカソードガスを同時に加湿する。なお、アノードガスは

Fig.2 Schematic diagram of the self-humidifying stack

Fig.3 Diagram of the experimental apparatus

水蒸気透過膜を通して加湿される構造とした。ここで用いた水蒸気透過膜には、電解質膜と同じ膜を使用した。スタックは電池温度を一定に保つために2発電セルに対して1冷却セルの割合で水冷した。

図3は燃料電池性能評価装置の構成図である。任意の温度に制御が可能な冷却水を循環ポンプを用いて流し、スタックを60℃一定温度に保つ構造とした。本研究では自己加湿型と従来加湿型スタックの両性能を測定し、バブラーは従来型スタックに供給されるアノードおよびカソードガスを加湿するために使用された。燃料としてガスボンベより純水素を使用し、酸化剤にはモル分率が0.21の酸素と窒素ガスとを混合した疑似空気を用いた。ガスの絶対圧をそれぞれ1気圧（大気圧）とし、流量は全実験通して、水素が9.2, 空気が36.9 L/minとした。過剰率⁽¹⁾で表すと、 $\lambda_{\text{H}_2/\text{O}_2}=2.0$ or 3.3 (@ 0.6A/cm²)になる。

3. シミュレーションモデルの概要

燃料電池性能をシミュレーションモデルにより解析するため、ガス拡散や電気化学反応を考慮した三次元モデルを作成した。本シミュレーションでは、図4に示すような反応系において、電極表面における気体濃

Fig.4 Model for the simulation of the fuel cell

Fig. 5 Fuel cell model for the simulation of heat transfer

度、電解質のイオン伝導度、電気浸透抗力係数および電解質中の水の逆拡散をイオン移動方向とガス流れ方向について考慮し、電池内の水と反応ガスの物質移動を解析した。物質移動に関する式はI報⁽¹⁾で示した計算式を用いた。一方、図5に示すように熱計算系ではスタック内の発電セルはどれも均一の発電・発熱をするものと仮定して、水素極側境界を断熱境界とし、空気極側に配置した冷却水により冷却した。電池内の熱移動計算は、気体の流れ方向、イオンの移動方向および奥行き方向について、熱伝導、対流熱伝達ならびにエンタルピー輸送を考慮した計算を行った。熱伝導ならびに対流熱伝達の計算式は、

$$Q = (T_1 - T_2) / \frac{\Delta l}{A\lambda} \dots \dots \dots (1)$$

$$Q = (T_1 - T_2) / \frac{1}{Ah} \dots \dots \dots (2)$$

で表される。ただし、 Q :移動熱量、 λ :熱伝導率、 h :熱伝達率、 T :温度、 A :接触面積、 Δl :熱の移動距離である。時間ステップあたりの温度変化は以下のように定義される。

$$\Delta T = \frac{\sum Q_{in} - \sum Q_{out} + \sum H_{in} - \sum H_{out}}{mCp} \times dt \dots \dots (3)$$

H :エンタルピー、 m :質量、 Cp :比熱である。

なお、このモデルにおける仮定条件は以下の通りである：

- (1) 熱移動計算において、カソード側セパレータ外面を冷却水による冷却として、アノード側セパレータ外面を断熱とする、
- (2) セパレータおよびガス拡散層での電気抵抗は非常に小さいため、電極触媒間の電位差は面内一定とする、

Table 2 Input parameters for fuel cell simulation

Item	Value
Parameter used in the expression for cathodic transfer coefficient : $C\alpha$	0.50
Contact resistance : $R_{contact}$	0.104 Ωcm^2

Fig. 6 Experimental results and modeling analysis: ($\lambda_{h\text{ or }o} = 2.0$ or $3.3 @ 0.6 \text{ A/cm}^2$, stack temperature 60°C , anode humidifier temperature 60°C , cathode humidifier temperature 50°C .)

(3) アノード側の活性化・濃度分極は、カソード側と比べて非常に小さいため無視する、

(4) 水蒸気の蒸発・凝縮による気体温度ならびに気体濃度の変化は考慮しない。

以上の仮定に基づいて、直交気体流れに関して、平均電流密度、水素、窒素、酸素ならびに冷却水の流量と入口温度を与えて、発生電圧、電流密度分布および電解質、セパレータ、冷却水、ガスの温度変化を計算時間ステップを0.01秒、計算回数を約72万回として、温度変化が 0.1°C 以下になるまで計算した。

4. 実験および計算結果

図6は実験および計算結果の一例である。スタック温度は 60°C であり、アノードおよびカソードガスは外部加湿器によって各設定温度で加湿されている。図中の印が実験値を、曲線が計算値を示している。実験結果を基に決定した計算に用いるパラメータを表2に示す。I報⁽¹⁾と比較して水素と酸素の反応にともなうカソード反応の移動係数を決定する式に用いるパラ

Fig. 7 Characteristics of operation with vapor permeating membrane: (water and stack temperature 20°C .)

Fig. 8 Calculated effects of ratio of water humidified anode gas to water recovered: ($\lambda_{\text{horo}} = 2.0$ or $3.3 @ 0.6 \text{ A/cm}^2$, cell temperature 60°C .)

メータ C_a は低下し、一セルあたりの接触抵抗 R_{contact} が増加した。 C_a の低下と R_{contact} の増加の原因は、水分量の減少等により触媒性能が影響を受けたことと、端板のたわみにより部材間の内部抵抗が増加したことが考えられる。電池性能は 0.5 A/cm^2 の電流密度において、電圧が 4.7 V 、出力は約 250 W であり、スタックの設計値である 200 W を達成することができた。また、計測結果は電流密度 0.5 A/cm^2 以上で電池電圧の低下量が增大している。反応時に生じる生成水により、反応ガスの拡散が阻害されて過電圧が増加したためと考えられるが、計算結果はこの傾向を模擬していない。なお、この図はバブラーを用いてガスを加湿する従来加湿型スタックの結果である。

自己加湿型スタックでは、アノードガスは水蒸気透過膜を通して加湿される。図7はアノードガス流量に対する相対湿度の関係を示したグラフである。実験で

Fig. 9 Experimental results and modeling analysis of self-humidifying and conventional stack performance: ($\lambda_{\text{horo}} = 2.0$ or $3.3 @ 0.6 \text{ A/cm}^2$, stack temperature 60°C .)

は一枚の水蒸気透過膜を用いて、ドライアノードガスを水蒸気透過膜を通して加湿した際の相対湿度を測定した。スタックの性能測定試験で供給されるアノードガス流量は 9.2 l/min であり、その値での相対湿度は約 85% である。以後、自己加湿型スタック性能のシミュレーションを行う際には、アノード側相対湿度にこの値を用いた。また、実験値を基に行った解析結果から、水蒸気透過膜を二枚使用すると、アノードガスは十分に加湿されることが分かる。

自己加湿型スタック内でカソード側に生成した水は、カソードガスを加湿するとともに水蒸気透過膜を介してアノードガスを加湿するので、アノード回収水利用率を、カソード排気ガス中の水蒸気が冷却システムで凝縮して回収された水量に対するアノードガス加湿水量として定義する。アノード回収水利用率の影響を検討するため、アノード回収水利用率とスタック性

Fig. 10(a) Calculated distribution of current density:

Fig. 10(b) Calculated distribution of membrane temperature:

Fig. 10(c) Calculated distribution of oxygen mole fraction:

(cross-flow, mean current density 0.5 A/cm^2 , one cooling cell to two generating cells, cooling water temperature 45°C , $\lambda_{\text{horo}} = 2.0$ or $3.3 @ 0.6 \text{ A/cm}^2$.)

Fig. 11(a) Calculated distribution of current density:

Fig. 11(b) Calculated distribution of membrane temperature:

Fig. 11(c) Calculated distribution of oxygen mole fraction:

(co-flow, mean current density $0.5/\text{cm}^2$, one cooling cell to two generating cells, cooling water temperature 45°C , $\lambda_{\text{horo}} = 2.0$ or $3.3 @ 0.6 \text{ A/cm}^2$.)

能との関係をシミュレーションによって評価した。その計算結果を図8に示す。アノード回収水利用率は高電流密度ほどスタック電圧におよぼす影響が大きい。また、 0.5 A/cm^2 でアノードガスを完全に加湿する水量は、冷却システムにより凝縮して回収された水量の10%程度で良いことが分かる。

図9は自己加湿型スタックと従来加湿型スタック性能を比較した実験および計算結果である。モデルによる計算結果は実験値の傾向をよく表現している。自己加湿型スタック性能は 0.5 A/cm^2 で 3.83 V 、従来加湿型は 4.68 V である。自己加湿型スタックの性能は、 0.5 A/cm^2 の電流密度では従来型の18%減であり、比較的性能差は小さい。また、水蒸気透過膜を二枚使用する

と、完全にアノードガスを加湿できるため、自己加湿型スタックは従来加湿型とほぼ同程度の性能を有すると考えられる。したがって、自己加湿型スタックは燃料電池システムの簡素化に非常に有効であると同時に、従来型と変わらない高い性能を得ることが出来る。

電池性能を精度良く評価するためには、反応面内における電解質膜温度と電流密度分布を測定することが必要であるが、電池性能へ影響する可能性があるのでシミュレーションにより評価した。特に電解質温度は膜の含水量に影響を与える。膜の含水量が減少すると、スタック性能も低下する。自己加湿型スタックにおける反応面の電流密度分布、電解質膜温度および酸

Fig. 12 Calculated distribution of membrane temperature: (one cooling cell to three generating cells, cross-flow, mean current density $0.5/\text{cm}^2$, cooling water temperature 45°C , and cooling water flow rate 0.2 L/min , $\lambda_{\text{horo}} = 2.0$ or $3.3 @ 0.6 \text{ A/cm}^2$.)

Fig. 13 Calculated distribution of membrane temperature: (one cooling cell to four generating cells, cross-flow, mean current density $0.5/\text{cm}^2$, cooling water temperature 45°C , and cooling water flow rate 0.2 L/min , $\lambda_{\text{horo}} = 2.0$ or $3.3 @ 0.6 \text{ A/cm}^2$.)

素のモル分率を実験と同条件で計算した。その結果を図10に示す。アノードとカソードガスの流れ方向はクロスフローである。反応面の平均電流密度は $0.5\text{A}/\text{cm}^2$ とした。電流密度は 0.29 から $0.58\text{A}/\text{cm}^2$ の範囲で分布しており、その差は $0.29\text{A}/\text{cm}^2$ である。電解質膜の最大および最小温度は 63 と 42°C である。酸素のモル分率は 0.13 から 0.19 まで変化している。計算結果から、一発電セルあたりの電池電圧は $0.428\text{V}/\text{cell}$ であった。

電池内でのアノードとカソードガスの流れ方向による影響を検討するため、ガス流れ方向をクロスフロー(直交流)からコフロー(並行流)に変えた。解析結果を図11に示す。コフローの一発電セルあたりの電池電圧は、クロスフローより約 1.6% 高い。また電流密度分布差は、コフローが 0.23 、クロスフローが $0.29\text{A}/\text{cm}^2$ である。コフローの酸素モル分率の最大・最小差がクロスフローよりも約 33% 小さいため、電流密度はより均一であると考えられる。したがって、本モデルによる解析結果から、面内における発電分布がより均一であるコフロースタックの性能は、クロスフロースタックより優れていると言える。

冷却セル数を減少することは、スタック自体の簡素化とコンパクト化のために望ましい。最適な冷却セル数を検討するため、冷却セル間の中心発電セルの電解質温度を計算した。その結果を図12および13に示す。図12は3発電セルに対して、図13は4発電セルに対して1冷却セルの割合で発電面を水冷した際の電解質膜温度分布である。ガス流れ方向はクロスフローである。2発電セルに対して1冷却セルの図10(b)と比較すると、1冷却セルに対する発電セル数が増加するほど電池電圧は低下しており、また電解質の温度差は大きくなっている。最大膜温度が上昇すると膜の含水量が減少してイオン伝導性が低下するためと考えられる。図より、4発電セルに対する1冷却セルは、反応面を十分に冷却することが難しい。燃料電池の主要構成部品である電解質膜は、熱強度の問題から、長時間 100°C 以上の高温下で性能を維持することが難しいと推測される。したがって、電池温度を 100°C 以下に制限するため、2あるいは3発電セルに1冷却セルが必要であると言える。

5. 結 論

1発電セルあたり 104cm^2 の反応面積を有する燃料電池スタックの性能を測定した。その結果、10発電セルで構成されるスタックは、 $0.5\text{A}/\text{cm}^2$ で最大 250W の出力を発生した。燃料電池性能を解析するため作成し

た三次元シミュレーションモデルにより、スタック性能を評価出来た。

水蒸気透過膜を用いてアノードガスを加湿する自己加湿型スタックの性能は、 $0.5\text{A}/\text{cm}^2$ の電流密度で外部加湿器を用いる従来型スタックの 18% 減である。また、水蒸気透過膜を二枚使用すると、完全にアノードガスを加湿できるため、自己加湿型スタックは従来加湿型とほぼ同程度の性能を有すると考えられる。したがって、自己加湿型スタックは燃料電池システムの簡素化に非常に有効であると同時に、従来型と変わらない高い性能を有する。

電池内におけるアノードとカソードガスの流れ方向による影響を検討するため、ガス流れ方向を直交流から並行流に変えた。その結果から、面内の発電分布がより均一であるため、並行流スタック性能は直交流スタックより優れていると言える。

冷却セル数を減少することは、スタック自体の簡素化とコンパクト化のために望ましいが、4発電セルに1冷却セルでは反応面を十分に冷却することが難しい。電池温度を 100°C 以下に制限するためには、2あるいは3発電セルに1冷却セルが必要である。

本研究の遂行に当たり、(株)日立製作所 日立研究所 山賀賢史氏の助言と協力を頂いた。ここに謝意を表する。

文 献

- (1) 吉川・ほか2名, 日本機械学会論文集, (2000), 66巻652号B編.
- (2) (株)東芝, 固体高分子型燃料電池の研究開発, (1998), NEDO平成9年度報告書.
- (3) Dhar・ほか2名, Abstracts of Fuel Cell Seminar, (1996), 583-586.