サーモグラフィーによる固体高分子形燃料電池 単セル内温度面分布 *in situ* 計測*

(第1報, 流入ガス流量とセパレーターのガス流路ピッチが 温度面分布と発電性能に及ぼす影響評価)

西村 顕^{*1}, 澁谷 健一^{*1}, 森本 淳志^{*2}
田中 成季^{*2}, 廣田 真史^{*1}, 中村 義弘^{*3}
小島 正嗣^{*3}, 成田 雅彦^{*3}

In-Situ Measurement of In-Plane Temperature Distribution in a Single-Cell Polymer Electrolyte Fuel Cell by Thermograph (1st Report, Effect Assessment of Gas Flow Rate at Inlet and Gas Channel Pitch of Separator on In-Plane Temperature Distribution and Power Generation Performance)

Akira NISHIMURA^{*4}, Kenichi SHIBUYA, Atsushi MORIMOTO,
Shigeki TANAKA, Masafumi HIROTA, Yoshihiro NAKAMURA,
Masashi KOJIMA and Masahiko NARITA

^{*4} Division of Mechanical Engineering, Graduate School of Engineering, Mie University,
1577 Kurimamachiya-cho, Tsu-shi, Mie, 514-8507 Japan

To clarify the mechanism of coupling phenomena such as heat, mass and electric charge transfer in a single-cell polymer electrolyte fuel cell (PEFC), we have measured in-plane temperature distribution in a single-cell PEFC by thermograph under power generation. We have investigated the influence of gas flow rate at inlet and gas channel pitch of separator on in-plane temperature distribution and power generation performance. As a result, the higher temperature region is observed near the outlet of cell when the stoichiometric ratio of gas flow rate is set over 1.00 due to the convection heat transfer by excess oxygen flow in gas channel at the cathode. When the stoichiometric ratio of gas flow rate is set at 1.00, in-plane temperature distribution becomes uniform and high power generation performance is obtained. Total voltage is increased and temperature in observation area is decreased with decreasing the gas channel pitch of separator irrespective of gas flow rate.

Key Words: PEFC, Heat Transfer, Energy Conversion, Thermography, *In-Situ* Measurement, In-Plane Temperature Distribution, Gas Flow Rate, Gas Channel Pitch

1. 緒 言

各種燃料電池の中で、高出力密度、低温作動といった特徴を有する固体高分子形燃料電池 (Polymer Electrolyte Fuel Cell, 以下 PEFC) の研究開発が盛んであり、定置用、自動車用としての普及に向けた取り組みが加速している。PEFC の開発課題は主に、(1) 長寿命化、(2) 発電効率向上、(3) 低コスト化に大別されるが、PEFC の発電 (反応) 面で偏りなく、一様に高出力を得ることが本質的に要求される発電機としての性能にも関わらず、そのような運転制御や製品設

計を目指して取り組まれた研究は極めて少ない^{(1) (2)}。反応面で一様に高出力を得ることができれば、発電性能向上はもちろんのこと、不均一発電の際に電荷・温度・水の不均一分布で生じる PEFC 構成部材への負荷や濃度過電圧に起因した劣化⁽³⁾⁽⁴⁾を防止できると考えられる。ゆえに、PEFC の反応面で各物理量が一樣分布となるように運転制御、製品設計することは、PEFC の開発課題を解決する上で非常に有効である。

そのような反応面での各物理量が一樣分布となる運転条件や設計方法の提案を行う上で、まずは単セル内でのどのような現象が起きているか把握し、その現象の支配因子や各物理量の不均一分布の生成因子を特定することが必要である。本研究では、特に必要な知見として単セル内の温度分布に着目した。これは、例えば局所の温度上昇により電解質膜が熱分解することや温

* 原稿受付 2009 年 7 月 23 日。

^{*1} 正員, 三重大学大学院工学研究科 (〒514-8507 津市栗真町屋町 1577)。

^{*2} 三重大学大学院工学研究科。

^{*3} 東邦ガス (株) (〒476-8501 東海市新宝町 507-2)。

E-mail: nisimura@mach.mie-u.ac.jp

度面分布に起因して電解質膜が膨張・収縮による応力で破断することが劣化原因として挙げられているためである⁽⁷⁾⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾。

また、発電性能は以下に示すネルンストの公式により温度上昇に伴い向上するが、高温になると今後は逆に湿度が降下して電解質膜のプロトン伝導度、すなわち発電性能が低下するため、加湿や加圧が必要になり、温度を考慮した運転制御をしなければならない⁽¹²⁾⁽¹³⁾。

$H_2 + 1/2O_2 \rightarrow H_2O$ について

$$E = E^0 + \frac{RT}{2F} \ln \left(\frac{a_{H_2} \cdot a_{O_2}^{\frac{1}{2}}}{a_{H_2O}} \right) \quad (1)$$

ここで、 E は起電力、 E^0 は標準圧力 (0.1MPa) での起電力、 R は気体定数、 T は温度、 F はファラデー定数、

a_{H_2} は H_2 の活性、 a_{O_2} は O_2 の活性、 a_{H_2O} は H_2O の活性である。

さらに、電解質膜とカソード触媒層の界面で生成する水が触媒層、ガス拡散層 (Gas Diffusion Layer, 以下 GDL)、セパレーターと経路して排出される際の相状態は、生成水の存在する位置の温度によって決まる飽和蒸気圧と水蒸気分圧によって変化する。液滴水となると、単セル内でフラディングやブラッキングといった現象が起こり、発電性能の低下を引き起こす。

以上のことから、単セル内の温度分布を制御することが、その影響を受ける因子である水や発電特性の制御・管理上不可欠⁽¹⁴⁾であり、ひいては PEFC の高発電効率化、長寿命化に必要な不可欠と考える。

PEFC で温度測定する際には、実際の現象を正確に把握するため、発電状態を変化させない非接触式 *in situ* 計測が有効である。PEFC 内部の *in situ* 計測手法開発に関する研究は、多くは水管理に重点をおいた液滴水の生成・分布の観察を目的として行われており⁽⁹⁾⁽¹²⁾⁽¹⁵⁾⁽²³⁾、それに比べると温度分布の *in situ* 計測手法開発に関する研究報告は全体的に少ない。

PEFC 内部の温度分布の非接触式 *in situ* 計測手法開発に関しては、サーモグラフィーとシリコンガラスやフッ化バリウムを組み込んだ加工セルを用いて、セパレーターと GDL の界面とセパレーターリブ部⁽¹⁾⁽¹³⁾⁽²⁴⁾⁽²⁵⁾や膜電極接合体 (Membrane Electrode Assembly, 以下 MEA)⁽⁷⁾ の温度面分布を測定した結果について報告されているが、水分凝縮や凍結現象の起こりやすい低温域 (-5~60°C) 条件⁽¹⁾⁽¹³⁾⁽²⁴⁾⁽²⁵⁾や低温 (25°C) でもその

ような現象の起こらない乾燥ガス供給条件⁽⁷⁾に焦点を当てており、通常 PEFC が運転される 70~80°C の温度域での測定結果については、報告されていない。また、サーモグラフィーでは測定対象から放射される赤外線を検知して温度測定するが、上述研究のように観察窓にガラスを使用した際の、ガラスに付着する生成水や加湿水による赤外線吸収の影響や温度補正についてはこれまで十分検討、報告されていない。加えて、ガラス製観察窓を単セルに取り付ける際の締め付け圧力が温度面分布測定誤差に大きく影響を与えることも報告されており⁽¹⁾⁽²⁴⁾、その精度確保は容易ではない。さらには、このようにして測定したデータを基に、発電性能向上や長寿命化につながる運転制御や製品設計について提案まで行っている報告例はない。

そこで本研究では、図1に示すように、単セルのカソード側のエンドブロック、集電板、温水流通板に穴を開け、観察窓とした。観察面は、GDL と接触するカソードセパレーターのガス流路側の面と反対側のフラットな面 (以下セパレーター背面) となる。これにより、生成水や加湿水による赤外線吸収の影響は受けずに、温度測定が可能になる。また、単セルの内部にガラスなどの異物を挿入しないため、既往研究で報告されている観察窓締め付け圧力起因の測定誤差やガスリークの心配がなくなる。

Fig.1 Single cell of PEFC with observation window

本研究の対象は単セルのため、通常発電時には外部加熱が必要となる。しかしながら、反応熱起因の温度面分布を測定する際に、このような外部加熱は外乱要因となる。そこで、本研究では反応熱で自立運転できる高電流密度条件で実験を行った。このような高電流密度条件では、多量の生成水によりカソード側でフラディングが生じやすく、その結果、濃度過電圧による電圧値低下が報告されている⁽⁸⁾⁽²⁶⁾。さらに、反応熱による温度上昇も大きく、そのためアノード側の水分濃度低下に起因したドライアウトの問題も指摘されてい

る⁽²⁷⁾⁽²⁸⁾。以上の点から、現状の燃料電池の問題点を端的に表す有意義な条件と考えた。また、このような高電流密度条件で濃度過電圧を生じさせずに高電圧値が得られれば、高出力運転方法の提案につながる点でも有意義と考え、実験条件とした。

以上のことをふまえ本研究では、PEFC 内部の発電状態での温度面分布について、単セルに設けた観察窓とサーモグラフィーを用いてこれまでより高精度に *in situ* 計測する手法を確立し、実機単セルの運転条件や構造が単セル内温度面分布に及ぼす影響および分布生成因子を明らかにすることを目的とする。セパレーターのガス流路とリブ部の GDL に接する面の幅を変化させると生成水の分布や発電性能が変化することが報告⁽²⁹⁾⁽³⁰⁾されており、セパレーターのガス流路とリブ部の幅の寸法(以下ガス流路ピッチ)が反応面でのガス、生成水、温度、電流密度の面分布をもたらすことが予想される。そこで本研究ではセパレーターのガス流路ピッチをパラメータとし、まずはガス流路とリブ部の幅の比は1:1で固定して、その長さを変化させる。そして、その異なるガス流路ピッチのセパレーターについて、流入ガス流量を変化させた時の温度面分布や発電性能を実験的に評価する。セパレーターの流路構造については、サーペンタインタイプやパラレルタイプが一般的であるが、対向節タイプ⁽³¹⁾⁽³³⁾や焼結多孔質体タイプ⁽³⁴⁾⁽³⁵⁾といった特殊な構造も提案されている。本研究では、出来るだけ簡便な構造変化で大きく性能向上させることが燃料電池普及の鍵と考え、一般的なサーペンタインタイプを基本構造とし、切削加工技術で対応可能なガス流路ピッチサイズを条件範囲とする。実験では、温度面分布とともに単セル流入・流出ガス流量、入口ガス温度、入口ガス露点温度、ならびに電流値・電圧値のデータも収集し、これらと温度面分布との相関も調べる。その上で、温度面分布生成因子の特定、ならびに発電性能向上や長寿命化につながる運転制御や製品設計について提案を試みる。

2. 温度測定手法の確立

2・1 温度観察面の放射率の設定

本研究では、温度測定にサーモグラフィー(NEC Avio 赤外線テクノロジー社製 TH9100WL)を使用した。この機器の測定精度は、空間分解能 1.2mm、温度分解能 0.1°Cである。サーモグラフィーで測定する際には、測定対象の放射率を予め設定しないといけない。そこで、セパレーターの放射率を調べる予備実験を行った。

この予備実験では、単セルより解体したセパレーター単体の GDL 接触面を電気式のホットプレートによ

り所定の温度に一樣加熱し、セパレーター背面の表面温度を直径 0.1mm の K 型熱電対 (CHINO 社製) とサーモグラフィーで同時測定する。熱電対での温度測定は 4 箇所で行い、その値はデータロガーを介して PC に保存した。サーモグラフィーには予め仮の放射率を設定して、セパレーターの表面温度を測定した。熱電対 4 箇所の測定値の平均値と熱電対周辺のサーモグラフィーによる測定値との誤差を求め、適切な放射率を導出した。なお、今回使用したセパレーターはカーボングラファイト製で放射率は 0.70~0.80 程度⁽³⁶⁾⁽³⁷⁾であるが、セパレーター背面の表面のわずかな凹凸や反射に起因した放射率の分布も温度面分布の測定誤差につながることを考え、厚さ 0.1mm の黒体テープ (OPTEX 社製 HB-250) を表面に貼り付けて温度測定した。したがって、正確には黒体テープを介して射出される赤外線を検知して温度測定することになる。この黒体テープの放射率はカタログ値で 0.95 であるが、一般的に物質の放射率は温度上昇に伴い値が低くなる傾向を有するため、設定放射率を変化させて、測定対象温度域に適した放射率を調べた。

• Emissivity: 0.93 • Emissivity: 0.94 • Emissivity: 0.95 • Emissivity: 0.96
• Emissivity: 0.97

Fig.2 Calibration of emissivity for temperature measurement by thermograph

図2に予備実験結果をまとめた。この時、サーモグラフィーの放射率設定値は、0.93~0.97と変化させた。なお、図2中の誤差温度は、サーモグラフィー測定温度から熱電対測定温度を引いたものである。本図に示した熱電対測定温度と誤差温度との関係から、放射率 0.94 と 0.95 の時に誤差温度 $\pm 1.0^\circ\text{C}$ 程度で黒体テープの放射率を近似できた。本研究では単セル初期設定温度を 70°C とするため、その温度で最も誤差温度が小さくなる放射率 0.95 を選定して、以降の実験を行った。

2・2 観察窓

本研究では、実機単セル内部の温度面分布をサーモグラフィーで測定するため、単セルに加工を施した。本来ならば反応面であるカソード側の触媒層と電解質膜の界面の観察や温度面分布測定ができれば良いが、セパレーターや GDL を加工して内

NII-Electronic Library Service

察面を直接大気にさらしても、その内側の単セル構成部材の温度勾配への影響は少ないと考える。単セルのアノードとカソードのそれぞれのガス入口には直径 0.1mm の K 型熱電対 (CHINO 社製) と露点計 (VAISALA 社製 HMT337FC) が設置されており、流入ガスの温度とその時の露点温度が測定される。また、単セルのガス入口・出口の配管は断熱材および帯状ヒーター (大化電器製フレキシブルヒーター) で覆われており、放熱による温度変化を防止している。

Table 1 Specification on components of single cell of PEFC

Parts	Size	Characteristics
Polymer electrolyte membrane (PEM)	50.0mm×50.0mm×0.13mm	Nafion 115 (produced by Du Pont Corp.)
Catalyst	50.0mm×50.0mm (attached with PEM)	Pt/C (20wt% Pt loading)
Gas diffusion layer (GDL)	50.0mm×50.0mm×0.17mm	Carbon paper (TGP-H-060 produced by Toray Corp.)
Separator	75.4mm×75.4mm×2.00mm (Gas supply area: 50.0mm×50.0mm)	Carbon graphite, Serpentine
Current collector	Area: 6937mm ² , Thickness: 2.00mm	Copper coated with gold
End block	110mm×110mm×12.7mm	Aluminum

Table 2 Comparison of structure among different separators used in this study

Number of gas channel [-]	10	5	2
Gas channel pitch [mm] (Gas channel width : Rib width)	0.5 (1:1)	1.0 (1:1)	2.5 (1:1)
Gas channel depth [mm]	1.0		
Gas channel pattern	Serpentine type		
Total area of gas channel width in power generation area [mm ²] (Ratio to the area of gas channel pitch of 1.0mm)	1300 (1.00)	1300 (1.00)	1313 (1.01)
Total area of rib width in power generation area [mm ²] (Ratio to the area of gas channel pitch of 1.0mm)	1200 (1.00)	1200 (1.00)	1188 (0.99)
Power generation area [mm ²] (Total area of gas channel width + total area of rib width)	2500		

データ計測・収集部は、サーモグラフィー、データ転送装置 (CHINO 社製 PA-B) ならびに PC から構成される。サーモグラフィーで測定した温度データは、内蔵される専用メモリーに一時保存し、その後別途専用ソフト (NEC Avio 赤外線テクノロジー社製 TH91-702) により処理、整理する。単セル入口・出口ガス流量、入口ガス温度、入口ガス露点温度、単セル初期設定温度、電流値ならびに電圧値は、それぞれ計測器で取得したデータを電気信号としてデータ転送装

置により PC に送り、専用ソフト (CHINO 社製 CISAS) で一括処理、整理する。

ガス排出部は除湿用の乾燥剤 (シリカゲル) とマスフローメーター (コフロク社製 MODEL8300) から構成され、マスフローメーターの保全上、除湿後に出口ガス流量を測定する。

3・2 実験方法 実験は、まず実験装置全体の窒素供給によるリークチェックと単セル初期設定温度 70℃までの昇温を行い、その後アノードへの水素供給とカソードへの酸素供給により、発電を開始する。入口ガス温度は単セル初期設定温度と同じ 70℃に、入口ガス露点温度は 65℃に制御する。流入ガスの圧力は、酸素、水素ともに 0.3MPa (ゲージ) とする。サーモグラフィーによる温度面分布測定は、電流密度 0.80A/cm² の発電条件について行う。

反応面である電解質膜とカソード触媒層の界面への酸素、プロトン、電子の供給が十分に、かつ一様に行われれば PEFC の長寿命・高効率運転が可能となる。したがって、酸素、プロトン、電子の供給量を決める流入ガス流量が発電性能や温度面分布に与える影響は大きいと考える。そこで、ガス流路ピッチを 0.5, 1.0, 2.5mm と変化させたセパレーターについて、表 3 に示す条件 I~IV のように単セル流入ガス流量を変化させてその影響を調べた。ここで、条件 I は通常発電モード、条件 II は供給ガス過剰発電モード、条件 III は水素、酸素いずれもストイキ比 1.00 での発電モード、条件 IV は供給ガス不足発電モードである。なお、本実験では操作電流を基に算出される反応ガス量と流入ガス流量からストイキ比を算出する。

いずれの実験においても、温度面分布とともに、単セル入口・出口ガス流量、入口ガス温度、入口ガス露点温度、単セル初期設定温度、電流値ならびに電圧値も同時に測定した。

Table 3 Experimental condition on gas flow rate at inlet of PEFC

Experiment		I	II	III	IV
Anode	Gas flow rate at inlet [NL/min]	0.199	0.280-0.420	0.140	0.126
	Stoichiometric ratio [-]	1.43	2.00-3.00	1.00	0.90
Cathode	Gas flow rate at inlet [NL/min]	0.174	0.140-0.210	0.070	0.063
	Stoichiometric ratio [-]	2.50	2.00-3.00	1.00	0.90

4. 実験結果

4・1 観察窓設置が発電性能に及ぼす影響検証実験
観察窓を設けたことによる発電性能への影響を検証す

るため、観察窓のある、なしで発電実験を行い、電圧・電流密度特性を比較した。図4に、ガス流路ピッチ1.0mmのセパレーターを用いて条件Iで発電した際の観察窓ある、なしでの電圧・電流密度特性を示す。本図から、電流密度の増大に伴い観察窓ありの方が観察窓なしよりも電圧値は低くなっているが、その低下の程度はわずかで、電流密度 $0.80\text{A}/\text{cm}^2$ においては6.8%の低下である。この時の電力低下量は 0.82W であり、電流密度 $0.80\text{A}/\text{cm}^2$ における観察窓なしでの発電電力量 12W や供給水素が有する反応エンタルピー 29.6W に比べて小さい。したがって、観察窓設置による発電性能への影響は少ないと判断して、以降の結果の議論を行う。

Fig.4 I-V characteristics under power generation with and without observation window

4・2 通常発電モード 図5に通常発電モードでの温度面分布画像を示す。同図にはあわせてガス流路ピッチ1.0mmで開回路電圧 (Open Circuit Voltage, 以下OCV) 運転した際の温度面分布画像も示した。ここで、OCVでは外部加熱なしで運転できないため、単セル側面に接着してある薄型ヒーターで加熱した。なお、温度面分布画像中の右上角と左下角が黒く映っているが、これは単セルの右上角と左下角にそれぞれ設置されているカソードの流入ガスと流出ガスの配管に巻いた断熱材が、サーモグラフィーで撮影する際に観察面手前の領域の一部を覆うためである。配管から断熱材を取り除くと観察面の右上角と左下角の黒い部分はなくなるが、流入ガスと流出ガスの温度や湿度が変化してしまうため、断熱材を巻いた状態で撮影した。

図5から、OCV運転した際の温度面分布画像と比べると、電流密度 $0.80\text{A}/\text{cm}^2$ で運転した場合には、ガス流路ピッチによらず全体の温度は単セル初期設定温度

の 70°C より高くなることが分かる。電流密度 $0.80\text{A}/\text{cm}^2$ では外部加熱はしていないことから、この温度上昇は反応熱に起因したものであると判断できる。また同図から、ガス流路ピッチによらず発電状態の観察面の温度はそれぞれガス流入口付近に対してガス流出口付近が 2°C ほど高くなることが見て取れる。これは、ガス流路内を流れる酸素が対流熱伝達によって反応熱で加熱され、下流域にいくほど高温となるため、この酸素流れが観察面の温度を平準化しつつ、ガス流出口付近を他の領域と比べてより高温化したことが理由として考えられる。

Fig.5 In-plane temperature distributions under normal operation (OCV, current density = $0.80\text{A}/\text{cm}^2$)

さらに図5において、ガス流路ピッチの縮小に伴い温度が全体的に降下することが確認できる。ここで、この時得られた電圧値は、ガス流路ピッチ 0.5, 1.0, 2.5mm についてそれぞれ 0.55, 0.52, 0.50V であり、ガス流路ピッチの縮小に伴い上昇している。予想したように、ガス流路ピッチが縮小することで、ガスが反応面に対して均一供給されやすくなり、発電性能が向上したと考えられる。この時、電圧値と観察面の温度について、ガス流路ピッチの縮小に対する増減が逆の関係になっているが、これは理論的に燃料電池から得られる全エネルギーについて、同一電流密度で電圧値が上昇すると $\Delta G (=I \times V)$ が増加し、その結果 ΔQ が低下することで温度が降下したと考えられる。ここで、 ΔG は反応のギブス自由エネルギー変化、 ΔQ は発熱量である。

4・3 供給ガス過剰発電モード 図6に供給ガス過剰発電モードでの温度面分布画像を、表4には温度面分布測定時における各種測定データをそれぞれ示す。

Fig.6 In-plane temperature distribution under excess gas supply operation

Table 4 Comparison of gas flow rate and total voltage among separators used in this study under excess gas supply operation

Gas channel pitch [mm]	Stoichiometric ratio [-]	Gas flow rate at inlet [NL/min]		Gas flow rate at outlet [NL/min]		Total voltage [V]
		Anode	Cathode	Anode	Cathode	
0.5	2.00	0.280	0.140	0.125	0.066	0.55
	3.00	0.420	0.210	0.274	0.143	0.55
1.0	2.00	0.280	0.140	0.123	0.065	0.52
	3.00	0.420	0.210	0.271	0.142	0.53
2.5	2.00	0.280	0.140	0.124	0.065	0.50
	3.00	0.420	0.210	0.274	0.143	0.50

図6から、ガス流路ピッチによらず発電状態の観察面の温度はそれぞれガス流入口付近に対してガス流出口付近が約2°C程度高くなることが分かる。これは図5と同様な結果であるが、通常発電モードの流入ガス流量は水素がストイキ比1.43、酸素がストイキ比2.50であることから、通常発電モードも供給ガス過剰発電モードの一種である。また図6から、ストイキ比が2.00から3.00と増加するのに伴い、0.5~1°C程度であるが全体的に温度が降下していることが見て取れる。これは、反応熱によって高温化した反応面に対して相対的に低温の流入ガスの供給量が増加することで、観察面のみならずガス流路が接するGDLや反応面について、対流熱伝達による冷却効果が増したためであると考えられる。一方、図5と同様に、ガス流路内を流れる過剰酸素は対流熱伝達によって反応熱で加熱され、下流域にいくほど高温となるため、この酸素流れが観察面の温度を平準化しつつ、ガス流出口付近を他の領域と比べてより高温化している。ここで、表4から、いずれのガス流路ピッチにおいても、ストイキ比2.00と3.00で得られた電圧値はほぼ等しくなった。これは、ストイ

キ比2.00と3.00で、ストイキ比を増加させても反応消費ガス量はほとんど変化しないことを意味する。したがって、ストイキ比を増加させると未反応のまま単セル外へ流出されるガス量が増大し、それによって過剰ガス流れによる対流熱伝達の効果も増したと考えられる。なお図6から、ガス流路ピッチの縮小に伴い温度が全体的に降下することが確認でき、また表4から、この時得られた電圧値はガス流路ピッチの縮小に伴い上昇している。これは通常発電モードと同じ現象が起きていると考えられる。

4・4 ストイキ比1.00 発電モード 図7に水素、酸素いずれもストイキ比1.00とした場合の発電モードでの温度面分布画像を示す。また、表5には温度面分布測定時における各種データを示す。

Fig.7 In-plane temperature distribution under stoichiometric ratio of 1.00 operation (stoichiometric ratio of H_2 : 1.00, stoichiometric ratio of O_2 : 1.00)

Table 5 Comparison of gas flow rate and total voltage among separators used in this study under stoichiometric ratio of 1.00 operation

Gas channel pitch [mm]	Stoichiometric ratio [-]		Gas flow rate at inlet [NL/min]		Gas flow rate at outlet [NL/min]		Total voltage [V]
	Anode	Cathode	Anode	Cathode	Anode	Cathode	
0.5	1.00	1.00	0.140	0.070	0.000	0.000	0.56
1.0	1.00	1.00	0.140	0.070	0.000	0.000	0.52
2.5	1.00	1.00	0.140	0.070	0.000	0.000	0.51

図7から、ガス流路ピッチによらず発電状態の観察面の温度面分布はほぼ一樣になることが見て取れる。これは、表5に示したように供給したガスが単セル内で全て反応により消費されるため単セル外へ排出される過剰ガス流れがなく、それによって観察面の温度面分布に及ぼす対流熱伝達の影響も少なくなるためと考えられる。これらの発電モードでもガス流路ピッチの縮小にともなう温度の降下と電圧値の上昇が認められ、ガス流量条件によらず電圧値と温度面分布の相関が得られることが明らかとなった。表5に示した電圧値は、通常発電モードや供給ガス過剰発電モードと同程度であり、この結果から、本運転条件では温度面分布の均一化と高い発電性能が得られた。

これより、水素、酸素ともに化学両論的に必要な量だけの供給で十分な発電性能が得られることが分かった。前述したように、本実験で採用した高電流密度条件では、多量の生成水によるカソード側でのフラッディングや反応熱による温度上昇に起因したアノード側のドライアウトが想定されたが、明確にはそのような現象に起因した温度面分布や発電特性は確認できなかった。このような現象は流入ガスの相対湿度や単セル初期設定温度とも関係すると考えられるため、今後それらを変化させてその影響を検討したい。

以上より、本実験条件では水素、酸素ともに過剰供給しなくても発電性能を維持できることが明らかとなった。過剰に流入ガスを供給しなくて良いということは、①ブロアー、ガスポンプ、ポンプなどの補機の動力や使用ガス量の低減、②未反応のまま排出されるガスの回収・再利用のための配管や機器類の削減をもたらし、システム全体の省エネルギー化や低コスト化につながる。このような簡便な運転方法改善の提案はこれまでになく、非常に斬新で、かつ前述した PEFC の開発課題解決に効果的と考える。

4・5 供給ガス不足発電モード 図8に供給ガス不足発電モードでの温度面分布画像を示す。

Fig.8 In-plane temperature distribution under shortage gas supply operation (stoichiometric ratio of H_2 : 0.90, stoichiometric ratio of O_2 : 0.90)

この条件では、いずれのガス流路ピッチについても、水素、酸素いずれも流入ガス流量をストイキ比 1.00 に設定して定常状態を確認後、ストイキ比 0.90 に変更したところ徐々に電圧値が降下し、5 分も経たずに発電停止した。そこで、ストイキ比 0.90 に流入ガス流量を変更した時点から 30 秒毎の温度面分布画像データを

取得し、過渡状態の温度面分布の変化から、供給ガス不足発電モードの特性を調べた。

図8から、時間経過ごとに観察面のガス流入口付近が徐々に高温化していくことが分かる。これは、反応に必要な量のガスが供給できていないため、ガスが行きわたらない単セル後半部分では発電・発熱できなくなることで低温化し、その結果ガス流入口付近が相対的に高温化したと考えられる。また、過剰ガスによる対流熱伝達の影響もないため、高温化したガス流れ起因の温度面分布平準化も発現しない。

5. PEFC 高性能化・長寿命化のための提案

以上の結果をふまえ、温度面分布生成メカニズムと発電性能向上や長寿命化につながる運転制御方法や製品設計について検討する。

流入ガス流量はわずくでも変化すると観察面の温度面分布や単セルの発電性能に与える影響が大きい。カソード側のセパレーターのガス流路を流れる酸素のストイキ比を 1.00 以上とすると、過剰酸素が対流熱伝達によって反応熱で加熱され、下流域にいくほど高温となるため、この酸素流れが観察面の温度を平準化しつつ、ガス流出口付近を他の領域と比べてより高温化する。一般的に PEFC では過剰に流入ガスを供給することが多いが、本研究で水素、酸素ともに流入ガス流量をストイキ比 1.00 とした場合に高い発電性能が得られたことから、温度やガスの均一面分布を心がければ、高発電性能と省エネルギー・低コストを同時実現する運転が可能である。

ガス流路ピッチについては、縮小することで反応面における面方向の不均一ガス分布が解消され、発電性能が向上する。その際には観察面の温度が全体的に降下するが、これは水素の有する化学エネルギーから電気エネルギーへの変換効率(発電効率)が向上することに起因する。一例として、ストイキ比 1.00 発電モードで得られたガス流路ピッチ 0.5, 1.0, 2.5mm の発電効率(HHV ベース)を比較すると、それぞれ 37.6, 35.3, 34.4% となり、ガス流路ピッチ 0.5 mm において最高値が得られた。発電効率は下式より求めた。

$$\eta = \frac{I \times V}{C_{H_2} \times q_{H_2}} \times 100 \quad (2)$$

ここで、 η は発電効率[%]、 C_{H_2} は水素のモル流量 [mol/s] で、電流値を水素のイオン価数 2 とファラデー

定数 96500C/mol で除すことにより求め、 q_{H_2} は水素の高位発熱量 285.8kJ/mol , I は電流値 20A ($=\text{C/s}$), V は電圧値 $[\text{V}]$ である。

ここで得られた発電効率 37.6% は、NEDO の燃料電池・水素技術開発ロードマップ2008 詳細版⁽³⁹⁾にて定められた2020~2030年の定置用PEFCの開発目標値である 36% (HHV ベース) を上回り、本研究で目指す、出来るだけ簡便な構造変化によるPEFCの性能向上は十分に可能であることが立証された。

6. 結 言

サーモグラフィーと観察窓を用い、流入ガス流量とセパレーターのガス流路ピッチを変化させて、発電状態のPEFC単セル内部温度面分布の *in situ* 計測を行ったところ、以下の知見を得た。

- (1) 流入ガス流量をストイキ比 1.00 より大きくすると、セパレーターのガス流路内を流れる、反応消費されない過剰な酸素が観察面の温度を平準化しつつ、ガス流出口付近を他の領域と比べて高温化する。
- (2) 水素、酸素いずれも流入ガス流量のストイキ比を 1.00 とした場合に、観察面の温度面分布は均一化し、それに起因した高い発電性能が認められた。このような運転条件では、高発電性能と省エネルギー・低コストの同時実現が可能であることが示唆された。
- (3) ガス流路ピッチの縮小こともなう温度の降下と電圧値の上昇が認められた。また、このガス流路ピッチの縮小こともなう電圧値と温度面分布の相関は、ガス流量条件によらず得られることが明らかとなった。
- (4) ガス流路ピッチを縮小することで、反応面の面方向不均一ガス分布が解消され、発電性能が向上した。ストイキ比 1.00 発電モードで得られたガス流路ピッチ 0.5mm の発電効率は、HHV ベースで 37.6% となった。

謝 辞

本研究の遂行にあたり、三重県工業研究所の方々の協力を得た。ここに感謝の意を表す。

文 献

- (1) Ogawa, T., Chikahisa, T. and Kikuta, K., Measurement of Fluctuating Distribution in PEFC due to Produced Water, *Preprints of Thermal Engineering Conference 2003*, No.03-30(2003-11), pp. 483-484.
- (2) Rulliere, R., Lefevre, F. and Lallemand, M., Prediction of the Maximum Heat Transfer Capability of Two-Phase Heat Spreaders—Experimental Validation—, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 50 (2007), pp. 1255-1262.
- (3) Enami, Y., Analysis on Lateral Distribution in Polymer Electrolyte Fuel Cell, *Fuji Times*, Vol. 75, No. 9 (2002), pp.524-526 (in Japanese).
- (4) Ito, K., Temperature Distribution Measurement in Through-Plane Direction for PEFC, *Journal of Japan Society of Mechanical Engineers*, Vol. 111, No. 1079 (2008), pp. 42-44.
- (5) Kubo, N., Fukuyama, Y., Mashio, T., Sakamoto, Y., Kusaka, J. and Daisho, Y., Study on Transport Phenomena in Polymer Electrolyte Fuel Cell (First Report) -The Experimental and Numerical Investigation by the Use of Segmented Cell-, *Transactions of Society of Automotive Engineers of Japan*, Vol. 35, No. 4 (2004), pp. 65-71.
- (6) Tanigawa, H., Miyazaki, Y. and Tsuruta, T., Effect of Water Production on the Polymer Electrolyte Fuel Cell Performance, *Preprints of the 45th National Heat Transfer Symposium of Japan*, A223 (2008-5), pp. 445-446.
- (7) Wang, M., Guo, H. and Ma, C., Temperature Distribution on the MEA Surface of a PEMFC with Serpentine Channel Flow Bed, *Journal of Power Source*, Vol.157 (2006), pp. 181-187.
- (8) Weber, A. Z., Darling, R. M. and Newman, J., Modeling Two-Phase Behavior in PEFCs, *Journal of Electrochemical Society*, Vol. 151 (2004), pp. A1715-A1727.
- (9) Yokouchi, Y., Ogawa, K., Haishi, T. and Ito, K., Current-Distribution Measurement in Membrane Electrode Assembly under Water Electrolysis Condition Using NMR Sensor, *Proceedings of 2nd International Forum on Heat Transfer*, No. 123 (2008-9), p. 94.
- (10) Tsuji, K., Domestic Fuel Cell Co-Generation System Entering Real Commercial Stage, *Hydrogen Energy System*, Vol. 33 (2008), pp. 65- 69 (in Japanese).
- (11) Uchida, H., Analysis on Degradation Mechanism of Polymer Electrolyte Fuel Cell, *Preprints of the NEDO Symposium "Observation on Polymer Electrolyte Fuel Cell for High Performance and High Durability and Priority Subject on Technology Development in Future"*, (2008), p. 35 (in Japanese).
- (12) Nanjo, T., Tsushima, S., Nishida, K., Teranishi, K., and Hirai, S., Lateral Distribution of Water Content in a Polymer Electrolyte Fuel Cell Membrane by Magnetic Resonance Imaging, *Preprints of Thermal Engineering Conference 2005*, No.05-17 (2005-11), pp. 265-266.
- (13) Ogawa, T., Hohara, N., Chikahisa, T. and Hishimura, Y., Prospect of Water Production and Temperature Distribution in PEM Fuel Cells, *Thermal Science and Engineering*, Vol.23 (2004), pp. 93-94.
- (14) Wang, Y. and Wang, C. Y., A Nonisothermal Two-Phase Model for Polymer Electrolyte Fuel Cells, *Journal of Electrochemical Society*, Vol. 153, No. 6 (2006), pp. A1193-A1200.
- (15) Fukui, K., Nakayama, H., Tabe, Y., Chikahisa, T., Takahashi, S. and Yoshizawa, K., Cold Start Characteristics and Freezing Phenomena in PEM Fuel Cell below Freezing, *Preprints of the 44th National Heat Transfer Symposium of Japan*, A159 (2007-5), pp. 73-74.
- (16) Hashimoto, K., Tanno, H., Koike, S., Izumi, T. and Ejiri, E., Visualization of Moisture Generation in a Polymer Electrolyte Fuel Cell,

- Visualization Information*, Vol. 24, No. 1 (2004), pp. 129-132 (in Japanese).
- (17) Jiao, K., Park, J. and Li, X., Characteristics of Liquid Water Removal from The Gas Diffusion Layer by Reactant Flow in PEM Fuel Cell, *Proceedings of The 4th International Green Energy Conference*, Paper ID23 (2008), pp. 62-73.
 - (18) Kodaka, T., Tsushima, S. and Hirai, S., Transport Analysis of Generated Water and Water Vapor on Hydration of Polymer Electrolyte Fuel Cell Membrane by nuclei-labeling MRI, *Preprints of the 44th National Heat Transfer Symposium of Japan*, C136 (2007-5), pp. 221-222.
 - (19) Konomi, T., Nagata, J. and Murakami, H., Development of High Performance Visualized PEFC for Microscopic Image Analysis, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 72, No. 724 (2006), pp. 2978-2983.
 - (20) Nishida, K., Tsushima, K., Teranishi, K. and Hirai, S., Visualization of Microscopic Behavior and Promotion of Water Removal in a Porous Electrode of Polymer Electrolyte Fuel Cell, *Transactions of the Japan Society of Chemical Engineers*, Vol. 33, No. 2 (2007), pp. 181-185 (in Japanese).
 - (21) Ogawa, K., NMR/MRI Measurement - Principle of Measurement and Application to PEFC and Gas-Hydrate, *Journal of Heat Transfer Society of Japan*, Vol. 47, No. 200 (2008), pp. 27-39.
 - (22) Tasaki, Y., Ichikawa, Y., Kubo, N. and Shirohara, K., In Situ Diagnostic of Water Distribution in Thickness Direction of MEA by Neutron Imaging - Focused on Characteristics of Water Distribution in Gas Diffusion Layer -, *Preprints of the 45th National Heat Transfer Symposium of Japan*, I134 (2008-5), pp. 385-386.
 - (23) Tsushima, S., Nanjo, T., Kotaka, T., Yoshida, M. and Hirai, S., Development of Advanced Magnetic Resonance Imaging Techniques for Water Transport Analysis in PEFC, *Preprints of Fuel Cell Symposium*, (2007), pp. 180-183.
 - (24) Ogawa, T., Nohara, N., Kikuta, K., Chikahisa, T. and Hishimura, Y., Observation of Water Production and Temperature Distribution in PEM Fuel Cells, *Preprints of the 41st National Heat Transfer Symposium of Japan*, F154 (2004-5), pp. 235-236.
 - (25) Nohara, N., Kikuta, K., Tabe, Y. and Chikahisa, T., Simultaneous Measurement of Mass and Heat Transfer Phenomena and Current Density Distribution in PEFC, *Preprints of the Japan Society of Mechanical Engineers*, No.05-01 (2004-9), pp. 273-274.
 - (26) Ding, Y., Liao, Q., Zhu, X., Li, J., Tian, X., Shi, Y. and Ji, S., Visualization Study on the Cathode Flooding and Two-Phase Flow Resistance Characteristics of a DMFC, *Proceedings of The 4th International Green Energy Conference*, Paper ID50 (2008), pp. 118-133.
 - (27) Yokoi, Y., Nishida, K., Tsushima, S. and Hirai, S., Visualization Measurement of Water in Anode of PEFC by Water Sensitive Paper, *Preprints of the 46th National Heat Transfer Symposium of Japan*, B2-225 (2009-6), pp. 387-388.
 - (28) Manabe, S., Uemura, Y., Ohora, K., Araki, T. and Onda, K., Effects of Transport Resistance at MEA Surfaces on PEFC Transient Power Generation, *Preprints of the 46th National Heat Transfer Symposium of Japan*, B2-311 (2009-6), pp. 583-584.
 - (29) Konomi, T., Kitahara, T., Nakajima, H. and Murakami, H., Analysis of Electric Generation Distribution on PEFC Electrode (1st Report, Electric Generation Distribution under Rib and Gas Channel on 1 mm Rib Width Cell), *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 73, No. 726 (2007), pp. 631-637.
 - (30) Konomi, T., Kitahara, T., Nakajima, H. and Murakami, H., Analysis of Electric Generation Distribution on a PEFC Electrode (2nd Report, Electric Generation Distribution on a PEFC with Ribs and Flow Channels of 2 mm Width), *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 74, No. 739 (2008), pp. 678-683.
 - (31) Konomi, T., Kitahara, T., Nakajima, H. and Takazono, Y., Development of a PEFC with Serpentine Hybrid Gas Channels (1st Report, Design and Performance of the PEFC), *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 75, No. 752 (2009), pp. 569-576.
 - (32) Takazono, Y., Konomi, T., Kitahara, T. and Nakajima, H., Development of a PEFC with Serpentine Hybrid Gas Channels (2nd Report, Effects of the Flow Velocity in a Low Pressure Channel), *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 75, No. 752 (2009), pp. 577-584.
 - (33) Nguyen, T. V., A Gas Distributor Design for Proton-exchange-membrane Fuel Cells, *Journal of the Electrochemical Society*, Vol. 143, No. 5 (1996), pp. L103-L105.
 - (34) Shudo, T. and Suzuki, K., Performance Improvement in Direct Methanol Fuel Cells Using a Highly Porous Corrosion-Resisting Stainless Steel Flow Field, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 33, No. 11 (2008), pp. 2850-2856.
 - (35) Morioka, S., Tabe, Y., Kikuta, K., Chikahisa, T. and Kozaki, M., Performance and Internal Phenomena in PEM Fuel Cells with Porous Separator, *Preprints of the 46th National Heat Transfer Symposium of Japan*, B2-331 (2009-6), pp. 597-598.
 - (36) The Japan Society of Mechanical Engineers ed., *Heat Transfer Hand Book*, (1993), pp. 238-240, Maruzen.
 - (37) Saito, K., *Inorganic Chemistry Book X-2 Boron, Carbon, Germanium*, (1965), p. 260, Maruzen.
 - (38) New Energy and Industrial Technology Development Organization (NEDO). "Road Map of PEFC". Home Page of NEDO. (on-line), available from
<https://app3.infoc.nedo.go.jp/informations/koubo/events/FA/nedoeventpage.2008-06-18.1414722325/30ed30fc30de30c3PEFC5b9a7f6e7528.pdf>, (accessed 2009 - 7 - 20).