

薄型セパレータを用いた PEM 形燃料電池の 性能影響因子評価に関する研究

学位論文内容の要旨

燃料電池は高効率および低エミッションのエネルギー変換機であり、移動用、定置用ならびに携帯用の動力源として多いに期待されている。中でも PEFC(固体高分子形燃料電池) は低温作動可能で、かつ出力密度が高い特徴を有しており、精力的に実用化開発が進められている。しかし、コスト低減、耐久性向上のほか、PEFC では水分管理技術の確立が課題となっている。すなわち、固体高分子形電解質膜ではイオン伝導度を保つために膜を適度な湿潤状態に保つ必要があり、加湿量が少なく電流密度が低い条件ではドライアウトが生じる一方、高電流密度条件では生成水が作動ガス流路やガス拡散層 (GDL) 内に溜まり、ガス拡散を阻害する、いわゆるフラッディングが生じたりする。したがって、ドライアウトやフラッディングが生じにくく、必要最小限の供給ガス量で高い性能を発揮できる技術が求められている。

一方、燃料電池をコンパクト化し、出力密度の向上と同時にコスト低減を図るためには、電池厚さの大部分を占めるセパレータ厚さを薄くすることが求められる。すなわち、電池セルは数十 μm の高分子膜・電極接合体 (MEA)、0.3mm 程度のガス拡散層 (GDL)、および作動ガス流路溝を持つ厚さ数ミリ程度のセパレータの積層構造を持っており、セパレータ厚さを極力薄型とすることが電池サイズを小型化する上で有効となる。これまでの燃料電池の研究は、いずれも溝深さが 1mm 以上の流路における性能評価であり、1mm 未満の溝についての水分影響評価の研究は僅かな報告例がある程度である。

以上、燃料電池のスタック性能はセパレータ溝深さや形状の他、セルの構成部材である MEA および GDL が相互に関連して決まるので、運転条件を含めた多くのパラメータの相互影響を、多数の研究者による様々な切り口から評価する必要がある。

そこで、実用化可能な薄型セパレータをまず試作し、電池性能に対する GDL の撥水性、電池温度、電流密度、および供給ガス加湿条件の影響について実験を行い、簡易的な凝縮水の計算方法を提案し、フラッディング状態の推定と加湿条件設定を行うための指標について検討した。

論文は以下の 6 章から構成した。

第 1 章は序論であり、研究の背景について述べるとともに、本研究の目的および得られた結果の概要について論述した。また、各種燃料電池の特徴ならびにそれらの研究動向を紹介した。さらに、固体高分子形燃料電池の課題とそれらの研究動向もあわせて紹介した。

第 2 章では、本研究における実験装置とその方法について示した。また、本研究で試験に供する薄型セパレータの構造を示した。薄型セパレータの溝は 0.1mm、0.3mm、0.5mm、0.8mm の 4 種類を用意し、電池性能並びに圧力損失測定を行った。また、セパレータの大きさは 2 種類とし、高電流密度

域の測定のための小型セパレータ (反応面積 25cm^2) と、電池性能全般評価用の大型セパレータ (反応面積 130cm^2) を用いた。

第3章では、第2章にて説明した実験装置およびセパレータを用いて、性能影響因子の影響を評価した。まず、溝深さ影響評価試験を行い、 0.3mm まで薄型化した流路においても高い性能が得られることを確認した。また、撥水处理量を高めると GDL の内部抵抗が増加するほか、ドライアウトしやすくなるので、高電流密度条件を除いて撥水性を高くし過ぎるのは好ましくないことを明らかにした。一方、フラッディングが生じるような高電流密度域では撥水性が高いほうが良好な性能を示す場合が多いが、流路内の凝縮水の間欠的な排出影響をより強く受け、低撥水性 GDL に比べて電圧変動が大きくなることがわかった。さらに GDL の厚さは発電性能に大きく影響し、浅溝の薄型セパレータを用いた場合には流路深さに対する相対比率が大きくなるので、特にフラッディングしやすい高加湿条件において GDL 厚さによる差が顕著となることがわかった。すなわち、厚い GDL は排水性に乏しく、フラッディングを起こしやすい状態においては不利となった。

第4章では、フラッディングならびにドライアウトといった状態を簡易的に推定する計算式を提案した。これを用いて第3章における実験データを解析した結果、計算と実験結果は良く対応していることが確認できた。燃料電池における水分管理ではセル温度や電流密度条件に応じた加湿量の制御が有効であり、今回提案した簡易計算式を用いるとこれらの関係を容易に評価することができるので、水分管理制御に応用可能と考えられる。

第5章では、薄型セパレータを用いた場合の溝深さに対する圧力損失の半理論予測式を提案し、実験値との比較を行った。計算の結果、圧力損失は溝深さの概ね三乗に反比例して増大し、今回解析した長さ 50mm のストレート流路においては、溝深さが 0.2mm 以下になると圧力損失が急激に増加するものと推定された。同様に $0.1, 0.3, 0.5\text{mm}$ の溝を持つ実際のセパレータを用いて実験を行った結果においても、この計算値とよく合致することが確認できた。本関係式は今後、フラッディングと気流条件の関連を解析したり、凝縮水の排出に有効な圧力損失を得るための流路設計を行う上で、利用可能と考えられる。

第6章は、本研究の結論であり、得られた結果の概要を記述した。

以上、本研究において薄型セパレータを用いた固体高分子形燃料電池において、その性能影響因子を評価し、その影響因子を最適な条件に制御することで高い性能を得られることを示した。また、内部凝縮水の簡易計算式を提案し、水分管理制御に応用可能であること明らかにした。さらに、圧力損失に関する半理論式を提案し、最適な流路設計やフラッディング解析に応用可能であることを示した。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 近 久 武 美

副 査 教 授 大 島 伸 行

副 査 教 授 工 藤 一 彦

学 位 論 文 題 名

薄型セパレータを用いた PEM 形燃料電池の 性能影響因子評価に関する研究

燃料電池は高効率および低エミッションのエネルギー変換機であり、移動用、定置用ならびに携帯用の動力源として多いに期待されている。中でも PEFC(固体高分子形燃料電池)は低温作動可能で、かつ出力密度が高い特徴を有しており、精力的に実用化開発が進められている。しかし、コスト低減、耐久性向上のほか、水分管理技術の確立が課題となっており、特に燃料電池を薄型化した際の凝縮水影響については十分に明らかになっていない。例えば、これまでに行われている燃料電池の研究は、いずれも溝深さが 1mm 以上の流路における性能評価であり、1mm 未満の溝についての水分影響評価の研究は僅かな報告例がある程度である。そこで、本研究は実用化可能な範囲の薄型セパレータを有する燃料電池において、電池性能に対する流路深さ、拡散層 (GDL) の撥水性、電池温度、電流密度、および供給ガス加湿条件の影響について検討を行った。また併せて、簡易的な凝縮水の計算方法を提案し、フラiddiing状態の推定と加湿条件設定を行うための指標について検討した。

まず、薄形セパレータを有する燃料電池を試作し、性能影響因子の影響を評価した。この結果、溝深さを 0.3mm 程度まで薄型化したストレート形状の流路を用いると、圧力損失を適度な値に保つことができ、凝縮水による偏流や閉塞影響の少ない、高い電池性能を得られることが明らかとなった。また、撥水処理量を高めると GDL の内部抵抗が増加するほかドライアウトしやすくなるので、凝縮水発生量の大きな高電流密度条件を除いて撥水性を高くし過ぎるのは好ましくないことが明らかとなった。一方、フラiddiingが生じるような高電流密度域では、一般に撥水性が高い GDL が用いられる場合が多いが、この電流密度域においても撥水性の高い GDL は流路内の凝縮水の間欠的な排出影響をより強く受け、薄型化したストレート流路を持つ構造では低撥水性 GDL に比べて電圧変動が大きくなることがわかった。さらに GDL の厚さは発電性能に大きく影響し、GDL 層内に適度な気体の流れを形成しながら凝縮水を流路に排出するためには、流路深さの減少に対応させて GDL 厚さを薄型化するのが適切であることがわかった。

次に、フラiddiingならびにドライアウトといった水分管理上問題となる状態を簡易に推定す

る計算式を提案した。これを用いて今回得られた種々の実験データを解析した結果、フラッディングやドライアウトの出現傾向に関して計算と実験結果は良く対応していることが確認できた。燃料電池における水分管理ではセル温度や電流密度条件に応じた加湿量の制御が重要であり、今回提案した簡易計算式を用いるとこれらの関係を容易に評価することができる。

一方、薄型セパレータを用いた場合の溝深さに対する圧力損失の半理論式を提案し、実験値との比較を行った。その結果、本関係式は実験とよく対応することが確認され、圧力損失は溝深さの概ね三乗に反比例して増大する関係が示された。本関係式は今後、フラッディングと気流条件の関連を解析したり、凝縮水の排出に有効な圧力損失を得るための流路設計を行う上で、利用可能と考えられる。

以上、本研究により薄型セパレータを用いた固体高分子形燃料電池に関する性能影響因子を評価し、それらの最適な条件に関して明らかにすることができた。また、内部凝縮水の簡易計算式を提案し、水分管理制御に応用可能であること明らかにした。さらに、圧力損失に関する関係式を提案し、最適な流路設計やフラッディング解析に応用可能であることを示した。

これを要するに、著者は PEM 型燃料電池の小型化に際して流路深さと圧力損失ならびに凝縮水挙動の関係について新知見を得たものであり、動力エネルギー工学の発展に対して貢献するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。