

Performance and Liquid Water Distribution in Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell

(異方性ガス拡散層を持つ PEFC の性能および凝縮水分分布解析)

学位論文内容の要旨

One of the most important issues to advance the fuel cell technology to a commercially attractive level is the water management in proton exchange membrane (PEM) fuel cells. This thesis concerns the water behaviors at the cathode of polymer electrolyte membrane (PEM) fuel cells. The technology of the fuel cell is still immature and has not yet been implemented as dominant in any application or niche market. Research and development is currently being carried out to investigate the mitigation strategies for the cathode flooding. However, there has been little investigation on the effects of the in-plane carbon fiber directions of the GDL. The research of this thesis is devoted on the investigations of the effects of carbon fiber directions of an anisotropic gas diffusion layer (GDL) on PEM fuel cell performance.

The work includes results from experimental test facilities such as the performance measurement and the visualizations inside the cell. The studies on cell performance have focused on the influence of the carbon fiber directions of the GDL on the cell performances. The measurement results was evaluated on a single cell with different fiber directions relative to the channel directions. Using two types of the separator, serpentine and straight, I-V polarization curves were compared. The results confirmed that performance was apparently different for the fiber directions, which was due to the difference in the liquid water transportation.

The operating conditions including, the operating current density, humidification, Oxygen concentrations, air and fuel stoichiometric flows have a great influence on the cell performance. The voltages of the two fiber directions at different humidification and the cell performance at various conditions depicted the advantages of the perpendicular cell over the parallel fiber direction GDL. Transport losses due to the water flooding in the GDL have always been a serious problem in PEM fuel cells operations. The effects of the fiber direction on the mass transport losses in the anisotropic GDL have been investigated with the two different fiber directions of the GDLs, and limiting current measurements were conducted. It was clear that the use of the perpendicular carbon fiber direction allows an adequate oxygen supply, when comparing with the parallel fiber direction cell.

Direct visualization which is one of the fundamental experiment methods for investigation of liquid water behaviors, were conducted to investigate the characteristics of the water removal from the GDL to the flow channel in two different fiber directions. The observations indicated the better removal

ability of the liquid water produced under the ribs with the perpendicular direction GDL fibers than with the parallel fiber GDL.

Because the only visible place of the direct visualization of the liquid water is inside the flow channel, an advanced observation method involving freezing of the accumulated water was developed to investigate the effects of the carbon fiber directions on the water distribution inside the GDL. In this freezing method, a small cell was modified so the bipolar plates can be separated into two parts. The liquid water produced inside the cell was frozen, and then the ice distribution in the cross-sectional view of the cell was investigated by cutting the cell at the boundary between the two pieces. The cross sectional images of the cell showed different existence of the accumulated water inside the GDL under the ribs in two different cells, parallel and perpendicular. It was also shown that the different amount of water at the MEA/MPL interface under the channel and rib. The results indicated that the more oxygen can be transported from the channel into the zone under ribs in perpendicular case than in parallel case. The efficacy of the developed freezing method is demonstrated in the measurements of the water distribution in the cell.

In conclusion the paper demonstrates the effects of anisotropic gas diffusion layer and the mechanism inside of the cell.

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 村 井 祐 一

副 査 准教授 田 部 豊

学 位 論 文 題 名

Performance and Liquid Water Distribution in Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell

(異方性ガス拡散層を持つ PEFC の性能および凝縮水分布解析)

固体高分子形燃料電池は次世代自動車や家庭用のコジェネレーションとして期待されており、様々な研究開発がなされている。それらの課題のひとつとして、燃料電池内で生成する水と反応ガスの流動制御がある。すなわち、広い運転条件において燃料電池内で発生する水を円滑に排出する一方、電解質膜の含水量を適度に保つような装置構造を明らかにすることが、システムの簡素化と効率の向上を図る上で重要である。そこで本研究はこれら物質移動に重要な働きを持つガス拡散層を対象とし、繊維方向の異方性が電池性能に及ぼす影響について明らかにしようとするものである。通常、ガス拡散層はランダムで等方的な繊維方向構造を持っている。これに対して、紙すきの方法でカーボン繊維を構造化して製作したガス拡散層は異方性を有しており、コスト低減と同時に性能向上の可能性がある。これまで、こうした異方性を有する拡散層に関する研究は行われておらず、本研究はその性能影響と内部の凝縮水挙動を解明しようとするものである。

論文は全 5 章で構成されている。以下にその内容と結果の概要を示す。

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ている。また、燃料電池一般についての構造や熱力学について示している。

第 2 章は実験に用いたガス拡散層の構造や特性、ならびに実験装置について記述している。

第 3 章は異方性ガス拡散層を用いた場合の、流路に対する繊維方向の違いによる性能の差異について、実験的な比較を行った結果について論述している。実験では 2 種類のセパレーター流路形状(サーペンタイン型流路とストレート型流路)を使用して、電流-電圧特性曲線の比較を行った。その結果、加湿条件や反応ガス流量条件にかかわらず、流路に対して垂直方向にガス拡散層の主要繊維方向を向けた際に、平行配置に比べて性能が向上することが確認された。この差異は特に高電流密度領域で顕著であった。また、同様な実験を空気の代わりに酸素を用いて行った結果、両者の差異はわずかとなった。これらのことより、繊維方向による性能の変化は、内部の凝縮水の挙動が主たる影響要因と推察された。一方、カソード側から流路内に排出される凝縮水の湧き出し挙動を特殊な可視化セルを用いて観察した。その結果、流路に対して平行に繊維方向を配置した場合には、

流路中央部から凝縮水の湧き出しが多く観察されたのに対して、垂直に配置した場合には、リップ下から流路内に凝縮水が多く湧き出してくる様子を確認することができた。以上より、繊維を流路に対して垂直に配置した場合には、リップ下に溜まった凝縮水が繊維に沿って流路内に円滑に排出されるのに対して、平行に配置した場合にはこの凝縮水移動が阻害され、この領域のガス拡散が悪化したものと推定された。

第4章ではこの推定を実証することを目的として、ガス拡散層内における凝縮水分布の可視化計測を試みた。この種の計測には中性子CTやX線CTによる計測が一部で行われているが、空間分解能が低く、 $300\mu\text{m}$ 程度の厚さ内の分布を見るには不十分である。そこで、新たに凝縮水を凍結して固定化し、拡散層の切断面を顕微鏡観察する凍結可視化法を提案し、計測を行った。これは所定の条件で運転中の電池を停止し、冷凍庫内において30分程度の時間内で氷点下に冷却し、さらに3時間程度かけて $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ まで冷却した後、セルを分解、切断して拡散層断面内の氷分布を顕微鏡により観察するものである。予備的な実験の結果、本手法によって運転直後の凝縮水分布がそのまま氷として固定化されることを確認した。解析では、拡散層断面の氷分布を画像処理して、氷の分布状態の計測を行った。実験の結果、拡散層の繊維方向を流路に対して垂直にした場合には、平行にした場合と比べて拡散層内の凝縮水量が少ないことが確認された。また、平行に配置した場合にはリップ下の凝縮水量が流路下よりも比較的多く、第2章における推察と概ね合致していることが確認された。

第5章は結論であり、本論文を総括している。

以上、本研究により異方性ガス拡散層を用いた場合の繊維方向による燃料電池性能の変化ならびにそのメカニズムを明らかにすることができた。こうした知見は燃料電池の効率を改善するための電池部材構造を考える上で有用である。また、併せて数百ミクロン程度の厚さを持つガス拡散層内の凝縮水分布を計測するための新たな手法として凍結可視化法を提案し、その有用性を示すことができた。

これを要するに、著者は、固体高分子形燃料電池の凝縮水管理に必要な基礎的な知見を得たものであり、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。