

[21029]

## 中性子ラジオグラフィによる固体高分子型燃料電池内の 水分分布の可視化と性能評価

### Visualization and Performance Evaluation of Water Distribution of Polymer Electrolyte Fuel Cell using Neutron Radiography

村川英樹<sup>#,A)</sup>, 杉本勝美<sup>A)</sup>, 浅野等<sup>A)</sup>, 水島幸志<sup>A)</sup>, 栗田圭輔<sup>B)</sup>, 飯倉寛<sup>B)</sup>

Hideki Murakawa<sup>#,A)</sup>, Katsumi Sugimoto<sup>A)</sup>, Hitoshi Asano<sup>A)</sup>, Kousi Mizushima<sup>A)</sup>, Keisuke Kurita<sup>B)</sup>, Hiroshi Iikura<sup>B)</sup>

<sup>A)</sup> Department of Mechanical Engineering, Kobe University

<sup>B)</sup> Japan Atomic Energy Agency

#### Abstract

Water management is a key topic of a polymer electrolyte fuel cell (PEFC). If condensed water exists in the gas diffusion layer (GDL) and the gas channel, it may depress the gas diffusion as flooding. However, the generated water must be appropriately supplied to the proton exchange membrane (PEM) for proton conduction. Hence, water management is significantly important for PEFC performance, and clarification of the water-transport mechanisms between the PEM, GDL, and gas channels is of great concern. Neutron radiography is a powerful tool for measuring water distribution in the PEFC surrounded by metal under power generation. To confirm the applicability of the neutron radiography system in JRR3, an evaluation of the spatiotemporal resolution of the PEFC measurements was carried out. It was confirmed that the dynamic range of the neutron radiograph of the PEFC was sufficient with an exposure time of 30 sec and a pixel size of 19.2  $\mu\text{m}$ .

**Keyword:** neutron radiography, dynamic range, spatial resolution, temporal resolution

## 1. はじめに

### 1.1 背景

主に自動車用の燃料電池として開発されている固体高分子形燃料電池 (PEFC; Polymer electrolyte fuel cell) は、高分子電解質膜と触媒層で構成される膜電極接合体 (MEA; Membrane electrode assembly) をガス拡散層素、カソード側) を供給することでプロトンが高分子膜を伝導し起電力が生じる。発電によって水が生成し、供給ガスの湿度や電池温度などの条件によっては、カソード側において結露が生じる可能性がある。ガス拡散層 (GDL; Gas Diffusion Layer) や流路に結露が滞留すれば反応の妨げとなり、発電出力低下の要因になると考えられている。一方、プロトンの伝導性を良好に維持するためには、電解質膜を適切な湿潤状態に保つ必要があり、PEFC において水管理は重要な課題である。更なる燃料電池車の普及のためには、PEFC の低価格化が必要であり、そのためには高電流密度条件での運転が求められている。このような条件では、単位面積当たりの水生成量が増加することから、電池反応によって生じた水の適切な排水が重要である。近年では、従来よりも高い温度領域での運転についても試行されており、発電時における内部の物質輸送と電池性能の相関解明が求められている。

PEFC 内で生じる結露と電池性能に関しては、光学的可視化用 PEFC を用いた水挙動の観察、MRI や X 線を用いた水分分布計測など、計測対象と要求される空間・時間分解能に応じて、様々な手法を用いて研究がなされてきた。著者らは、金属内の水分分布の可視化が可能か中性子ラジオグラフィに注目し、従来から様々な研究を実施してきた<sup>[1-4]</sup>。

### 1.2 中性子ラジオグラフィ

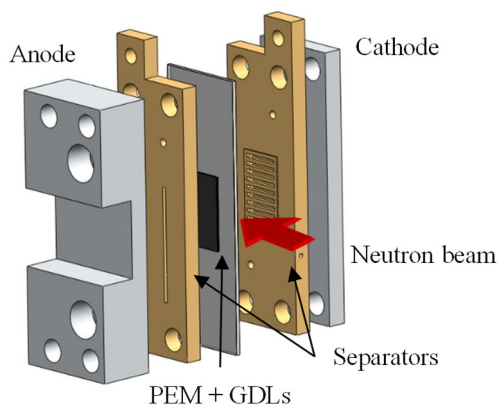
中性子ラジオグラフィは、中性子源が加速器や原子炉に限定されていることから、計測対象に応じて適切な時空間分解能を選択する必要がある。著者らは原子力機構に設置の JRR-3、および京都大学複合原子力科学研究所に設置の KUR を中性子源として、計測対象に応じて様々な時空間分解能による計測を行ってきた。JRR3 に設置の中性子ラジオグラフィ設備では、A4 サイズ程度の広い視野と比較的高い中性子束のため、ピクセルサイズ 1.0  $\mu\text{m}$  での高空間分解能計測<sup>[1]</sup>や、最短 1 秒/CT での計測<sup>[2]</sup>を実現してきた。PEFC の運転では水素を扱うことから、原子炉での実験に際して高い安全性を確保する必要がある。しかしながら東日本大震災以降、JRR3 の運転停止期間が長期に及んだことから、PEFC 運転に関わる実験装置の確認や、計測用カメラやその他の設定等の確認が必要となる。そこで 2021 年度は、実験装置の確認を進めるとともに、可視化用小型 PEFC を用いた照射試験を実施し、得られる画像輝度値を基に時空間分解能について検討した。

## 2. 実験装置

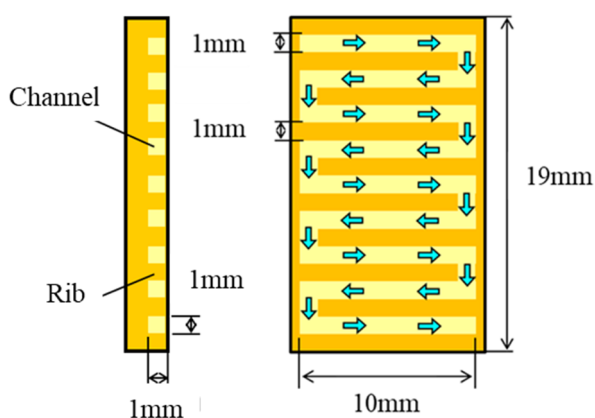
### 2.1 可視化用小型 PEFC

試験照射に用いた中性子ラジオグラフィ用可視化小型燃料電池の外観図を図 1 に示す。PEFC は、アノード側流路から水素を、カソード側流路から酸素または空気を供給し、生成された水は、蒸気または液水としてカソード側流路から排出される。使用した小型電池は単セルで、電極面積 19 mm  $\times$  10 mm、流路形状は 1 mm  $\times$  1 mm の単一蛇行流路とした。セパ

[21029]



(a) Overview



(b) Detail of the flow channel

Figure 1. Schematic of the small sized PEFC.

レータ流路などはアルミ製で、表面に金メッキを施している。固体高分子膜 (PEM; Proton Exchange Membrane, Nafion® NRE-212) を中心に触媒層 (CL; Catalyst Layer)、ガス拡散層 (TGP-H-60, 東レ(株)) の順に挟んでおり、PEM と CL を合わせて約 90  $\mu\text{m}$ 、カソード側の GDL は 190  $\mu\text{m}$  である。

## 2.2 計測システム

照射室において中性子線をコンバータによって可視光に変換し、その光を Andor 製冷却型 CCD カメラ (iKon-L936, 2048×2048 ピクセル) を使用して画像として取得した。取得した画像の画素寸法は、19.2  $\mu\text{m}$  に設定した。露光時間は、輝度値を確認しながら調整した結果、30 秒間とした。

## 3. 可視化結果

カソード側流路を水で満たした条件において、中性子ラジオグラフィにおいて撮影した結果の一例を図 2 に示す。右側がカソード側であり、流路部分に水が存在することで中性子線が減衰し、画像として暗くなっていることが確認できる。輝度のダイナミックレンジを確認するため、流路部における高分子膜厚み方向の輝度分布を図 3 に示す。今回の計測条件ではアルミ部分の平均輝度値が約 47,000 であり、流路の水部分の輝度値が約 12,900 であった。この輝

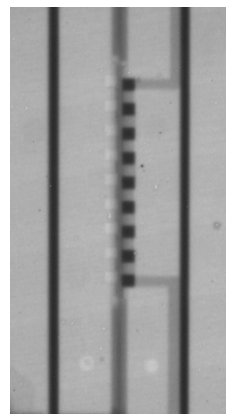


Figure 2. Visualized image by test irradiation.

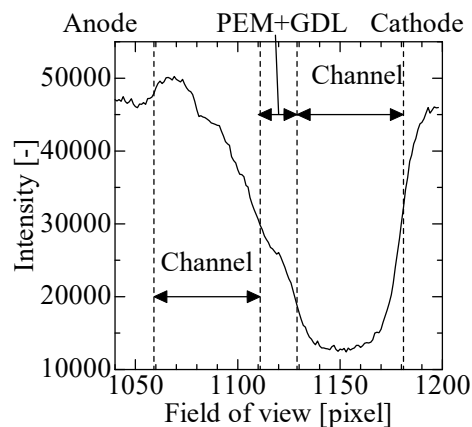


Figure 3. Intensity distribution in the through plane direction of the PEM.

度値の差が画像のダイナミックレンジとなることから、30 秒における計測でも十分な輝度値が得られていることが分かる。しかしながら画素寸法が 19.2  $\mu\text{m}$  であること、中性子線の平行度に起因する画像のボケが確認される。数 10~200  $\mu\text{m}$  程度の PEM や GDL を対象とした計測を実施するためには、コリメータの設置、およびカメラ光学系の変更等の対応が必要であると考えられる。それにより、時間分解能が低下することが見込まれるが、露光時間 1 分程度で、十分な輝度の連続撮像が可能であると見込まれる。

## 4. まとめ

JRR3 における PEFC 計測の適用性を評価するため、小型 PEFC の可視化試験を実施した。数 10 秒程度で十分なダイナミックレンジの画像取得が可能であることを確認した。電池温度が 100°C を超える条件での運転も含め、PEFC 運転設備の準備を引き続き実施していく。

## 参考文献

- [1] H. Murakawa, et al., "Measurements of water distribution in through-plane direction of PEFC by using neutron radiography", Nuclear Instruments and Methods in Physics

[21029]

Research A, Vol.651, No.1-21, pp.286-289, 2011  
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2010.12.047>

- [2] N. Takenaka, et al., “Visualization of dynamic 3-D water behavior in polymer electrolyte fuel cell by using neutron image intensifier”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, Vol.651, No.1-21, pp.277-281, 2011  
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2011.01.003>
- [3] H. Murakawa, et al., “Study of water transport phenomena in polymer electrolyte fuel cells in the through-plane direction”, Multiphase Science and Technology, Vol.27, No.2-4, pp.117-132, 2015  
<https://doi.org/10.1615/MultScienTechn.v27.i2-4.20>
- [4] H. Murakawa, et al., “Simultaneous Measurements of Water Distribution and Electrochemical Characteristics in Polymer Electrolyte Fuel Cell”, Materials Research Proceedings, Vol. 15, pp. 268-273, 2020  
<https://doi.org/10.21741/9781644900574-42>