

[22032]

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^{#,A)}, 杉本勝美^{A)}, 浅野等^{A)}, 刀谷拓実^{A)}, 栗田圭輔^{B)}, 飯倉寛^{B)}

Hideki Murakawa^{#,A)}, Katsumi Sugimoto^{A)}, Hitoshi Asano^{A)}, Takumi Katanaya^{A)}, Keisuke Kurita^{B)}, Hiroshi Iikura^{B)}

^{A)} Department of Mechanical Engineering, Kobe University

^{B)} 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. To confirm the applicability of the neutron radiography system in JRR3, an evaluation of the spatiotemporal resolution of the PEFC measurements was carried out. The evaluations of the image blurring on the gadolinium edge were carried out by changing the size of the collimator varied from $5 \times 5 \text{ mm}^2$ to $50 \times 50 \text{ mm}^2$. It was confirmed that the spatial resolution could be improved to $35 \text{ }\mu\text{m}$ with a collimator size of $5 \times 5 \text{ mm}^2$. Furthermore, under these conditions, it is expected that the water distribution in PEFC can be measured with a time resolution of approximately 60 s.

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水が生じる可能性がある。ガス拡散層 (GDL; Gas Diffusion Layer) や流路に結露水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 内で生じる結露水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^[1-4]。GDL は厚みが $100\text{--}200 \text{ }\mu\text{m}$ 、MEA は数十 μm である。中性子ラジオグラフィを用いて液水の滞留に伴う電池性能への影響を評価するためには、時間分解能とともに空間分解能の向上が不可欠である。空間分解能の向上には中性子線の並行度を向上させることが必要であり、そのためにはコリメータの使用が有効とされる。しかしながら、コリメータを使用することで中性子束が低下し、時間分解能の低下につながる。

そこで 2022 年度は、JRR3 に設置の TNRF (7R) を使用して、コリメータを用いた際の空間分解能評価および輝度値評価を行い、PEFC 計測における時間分解能について検討した。

2. 実験方法と装置

2.1 空間分解能の評価

図 1 に、ラジオグラフィにおける画像のボケについての概念図を示す。中性子線が直径 D の孔から照射され、計測対象を透過してコンバータによって可視光に変換される。この時、照射孔とコンバータまでの距離 L 、計測対象物とコンバータまでの距離を l とすると、中性子線の並行度 (L/D) に起因した画像のボケが生じる。このボケの幅は lD/L で表される。このボケに起因する空間分解能の評価に、ラインスプレッド関数を用いた。

図 2 に示すように、計測対象のある一点で透過した中性子線は、コンバータ表面に当たり、内部にて可視光に変換される。可視光はコンバータの厚みによって広がり、可視光面においてボケを含む画像となる。このボケの幅は、式(1)で示すラインスプレッド関数を用いることで評価することが可能である。

[22032]

$$L(x, x_0) = \left[\frac{\lambda/\pi}{1 + \lambda^2(x - x_0)^2} \right] \quad (1)$$

$$\lambda = (z_1 - z_0)^{-1} \quad (2)$$

実際に得られる分布は、中性子線の透過した近傍からの広がりを重ね合わせたものになると考えられる。このとき、ラインスプレッド関数の広がり指標である λ を決定することで、得られた可視化画像からコンバータ内のボケの評価が可能となる。

実際の計測では、コリメータを用いることで D を変化させた。被照射体としてガドリニウム箔を用い、異なる D において l を変化させて画像を取得し、エッジ部分によって生じる画像のボケを、 λ を用いて評価した。これにより、コンバータ内でのボケの影響を含め、中性子線の並行度に起因する空間分解能への影響について評価が可能となる。

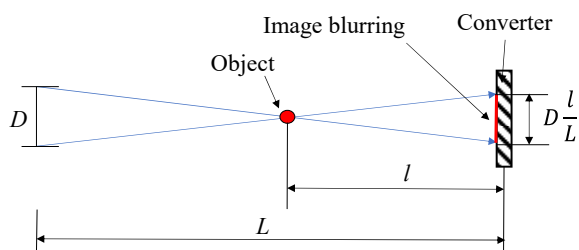


Figure 1. Schematic of the measurement blurring.

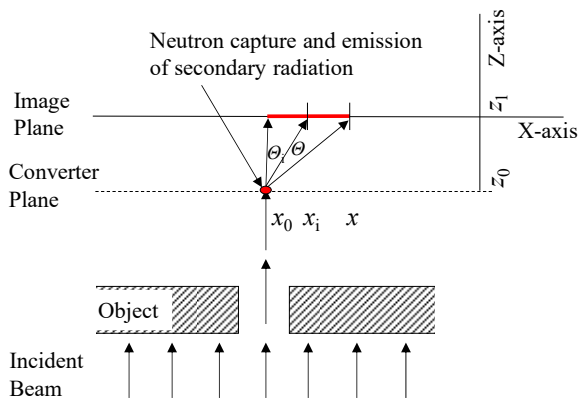


Figure 2. Neutron emission of secondary radiation in converter.

2.2 可視化用 PEFC による輝度評価

輝度評価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模式図を図 3 に示す。実験には電極面積 $20 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$ の単セルを用いた。流路は断面 $1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ の単一蛇行流路であり、電極面積内で一辺 19 mm の流路が 10 回蛇行している。リブ幅は 1 mm である。触媒層を含めた PEM の厚さは約 $90 \mu\text{m}$ 、GDL の厚さは $200 \mu\text{m}$ となっている。カソード側流路に水を注入することで、リブ部と流路部での輝度の違いから、輝度のダイナミックレンジを評

価した。

2.3 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、 $15.5 \mu\text{m}$ である。露光時間は、輝度値を確認しながら調整し、 $20\text{--}180$ 秒間とした。コリメータサイズは、 $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 、 $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ 、 $20 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$ および $50 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$ とした。

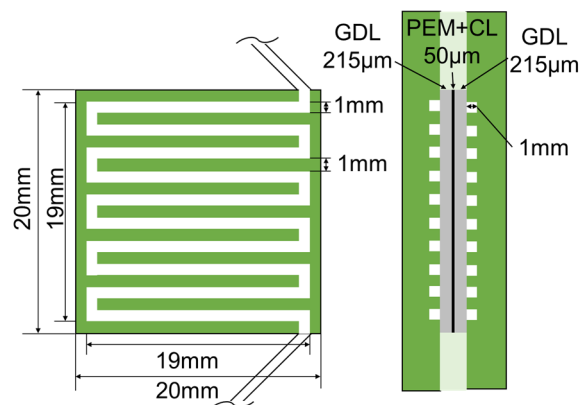


Figure 3. Schematic diagram of the visualization fuel cell.

3. 実験結果

3.1 空間分解能

図 4 に、ガドリニウム箔のエッジ画像の一例を示す。コリメータサイズは $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 、ガドリニウム箔とコンバータの距離は 107 mm である。ここで、図中に示した $0.9 \text{ mm} \times 1.8 \text{ mm}$ の領域において、縦方向の平均輝度分布を算出した。結果を図 5 に示す。この輝度分布を式(1)によって最小二乗近似することで λ を算出した。

各条件で求めた $1/\lambda$ と、コリメータサイズとの関係を図 6 に示す。コリメータが $20 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$ と $50 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$ では、結果がほぼ変化しなかったことから、 20 mm 以上のコリメータでは、照射孔からの影響により、並行度はほとんど変化しないものと考えられる。 $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ のコリメータを使用した場合、 $1/\lambda$ が大幅に低下していることが分かる。この条件では撮像時間は 180 秒に長くなるものの、 $35 \mu\text{m}$ 程度の空間分解能にて計測が可能であることが分かった。

[22032]

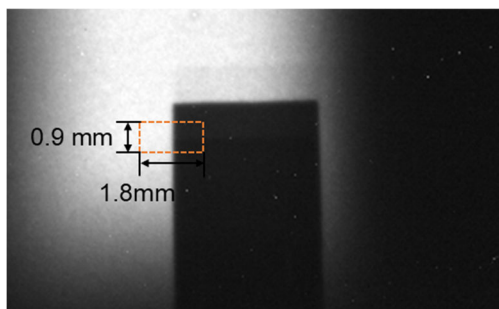


Figure 4. An example of radiograph for gadolinium foil edge.

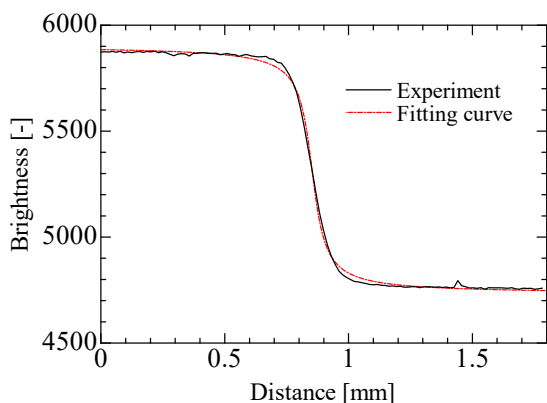


Figure 5. Brightness distribution of the edge image.

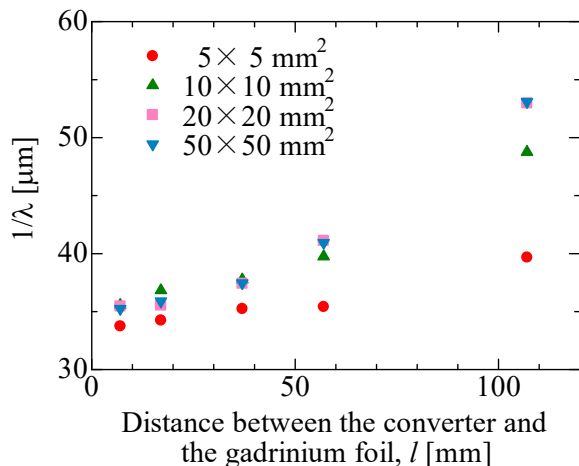
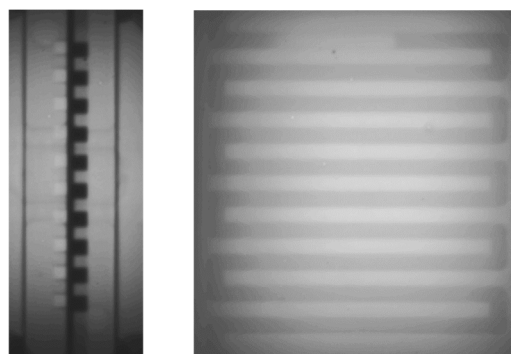


Figure 6. Change in $1/\lambda$ with different collimator sizes.

3.2 空間分解能

可視化用燃料電池のカソード側流路に水を注入して撮影した画像の一例を図 7 に示す。それぞれ高分子膜厚方向および面方向の画像である。これより、流路分および水部分布輝度を計測し、その差を輝度のダイナミックレンジとして算出した。結果を表 1 に示す。コリメータのサイズにより、 $5\text{ mm} \times 5\text{ mm}$ で

は 180 秒、 $10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ では 120 秒、 $20\text{ mm} \times 20\text{ mm}$ では 60 秒にて撮像した。膜厚み方向、面方向ともに、水厚みを算出するのに十分な輝度が得られていることが分かる。これより、膜厚方向については 60 秒程度、面方向についても 15–30 秒程度の時間分解能で、PEFC 内の水分分布計測が可能であると考えられる。



Through-plane direction
In-plane direction

Figure 7. Two-dimensional water distributions using a collimator size of $10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$.

Table 1. Brightness dynamic range by comparison of brightness at between ribs and channels.

	Through-plane direction	In-plane direction
$5\text{ mm} \times 5\text{ mm}$ (180 sec)	9100	2500
$10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ (120 s)	9000	3100
$20\text{ mm} \times 20\text{ mm}$ (60 s)	4850	1700

4. まとめ

JRR3 における PEFC 計測の適用性を評価するため、コリメータを用いた際の空間分解能、および輝度のダイナミックレンジについて評価した。 $5\text{ mm} \times 5\text{ mm}$ のコリメータを用いることで、 $35\text{ }\mu\text{m}$ 程度の空間分解能で計測が可能であり、輝度のダイナミックレンジから時間分解能も 60 秒程度での計測が可能であると考えられる。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 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”,

[22032]

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>