

[2023105103]

## 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>, 大林優斗<sup>A)</sup>, 中川勝文<sup>A)</sup>, 杉本勝美<sup>A)</sup>, 浅野等<sup>A)</sup>,  
白勢裕登<sup>B)</sup>, SCHREIBER Christopher<sup>B)</sup>, WAKOLO Solomon<sup>B)</sup>, DZRAMADO Eric<sup>B)</sup>, 犬飼潤治<sup>B)</sup>,  
原山勲<sup>C)</sup>, 栗田圭輔<sup>C)</sup>, 飯倉寛<sup>C)</sup>  
Hideki Murakawa<sup>A)</sup>, Yuto Obayashi<sup>A)</sup>, Katsufumi Nakagawa<sup>A)</sup>, Katsumi Sugimoto<sup>A)</sup>, Hitoshi Asano<sup>A)</sup>,  
Yuto Shirase<sup>B)</sup>, Christopher Schreiber<sup>B)</sup>, Solomon Wakolo<sup>B)</sup>, Eric Dzramado<sup>B)</sup>, Junji Inukai<sup>B)</sup>,  
Isao Harayama<sup>C)</sup>, Keisuke Kurita<sup>C)</sup>, Hiroshi Iikura<sup>C)</sup>

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

<sup>B)</sup> Hydrogen and Fuel Cell Nanomaterials Center, University of Yamanashi

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

#### Abstract

Water management in a polymer electrolyte fuel cell (PEFC) is a key issue for PEFC operation. Recently, there has been a demand for operating the PEFCs at more than 100 °C to improve the power generation efficiency and the cooling performance of large fuel cell cars. Under these conditions, back pressure conditions are also crucial as operating conditions to maintain the proton exchange membrane at an appropriate humidity. However, there are few investigations for evaluating the water distributions inside the PEFC under the operation at more than 100 °C. In this study, a neutron radiography was employed for measuring two-dimensional water distributions during the PEFC operation. This year, a safety review for the fuel cell experiments using a hydrogen was carried out, and the system to conduct power generation experiments was built at TNRF in JRR3. Preliminary visualization was carried out by flowing humidified nitrogen into the fuel cell without power generation. As a result, it was shown that water distributions in the fuel cell in the through-plane direction of the membrane can be obtained every 3 seconds.

**Keyword:** neutron radiography, fuel cell, power generation

#### 1. はじめに

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。近年では高出力が求められる車両への PEFC の利用を目指して、120 °C 程度の動作温度での実用化を目指した研究が行われている<sup>1)</sup>。このような温度条件では、高分子電解質膜 (PEM; Proton exchange membrane) のドライアウトを防止するため、供給ガスである空気 (または酸素) および水素の背圧制御が必要となることから、適切な運転条件の選定において、発電時の液水挙動の評価が求められている。

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

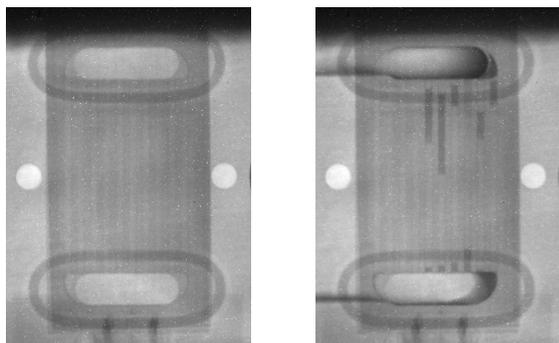
れる空間・時間分解能に応じて、様々な手法を用いて研究がなされてきた。著者らは、金属内の水分分布の可視化が可能か中性子ラジオグラフィに注目し、従来から様々な研究を実施してきた<sup>2-5)</sup>。従来は水素吸蔵合金を用いて水素供給を行っていたが、実機を模擬した燃料電池への適用を考慮すると、供給水素流量の増加が可能なボンベによる水素供給が適している。

そこで 2023 年度は、JRR3 に設置の TNRF (7R) において水素ボンベを使用した実験を計画し、原子炉内での発電実験を実施可能な安全審査の通過と、予備実験を行った。

#### 2. 燃料電池発電システム

図 1 に、TNRF に設置した燃料電池の制御システムの概略図を示す。電源供給ユニットは、照射室の外に設置し、ガス供給ユニット、湿度・温度制御装置、背圧制御装置、拡散装置等の主なシステムは、照射室上部に設置した。水素は 3.5L ボンベを使用することとした。水素、空気、窒素をガス供給ユニットに供給し、湿度・温度制御装置を介して燃料電池に供給される。燃料電池下流は背圧制御装置に接続されており、背圧の制御が可能となっている。水素は希釈装置において窒素によって希釈され、水素濃度 4%以下にしてから排気装置によって配置される。安全対策として、ガス供給装置および照射室内に

[2023105103]



(a) 50 cc/min (b) 500 cc/min  
Figure 2. Water distributions in a fuel cell under conditions of humidified nitrogen flow

拡散式水素検知器を設置した。水素漏洩を検知した場合は自動で水素供給が停止する。

ラジオグラフィ装置での利用可能な電源容量の制約から、配管・加湿器等に設置された全てのヒータを同時に使用することが出来ない。そこで、加湿器および配管の温度上昇の過程においては、アノード側・カソード側の加湿器および配管のヒータ制御を順番に行うことで、実験条件の設定が可能であることを確認した。

### 3. 予備実験

予備実験として可視化用小型燃料電池を用いた、中性子ラジオグラフィ計測を行った。試験部は電極面積  $20\text{ mm} \times 20\text{ mm}$  の単セルであり、アノード側およびカソード側流路は、断面  $1\text{ mm} \times 1\text{ mm}$  の 10 本並列流路となっている。リブ幅は  $1\text{ mm}$  である。中性子ラジオグラフィは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,  $2048 \times 2048$  ピクセル) を使用して画像として取得した。露光時間は 3 秒とした。

加湿器温度  $74.6\text{ }^\circ\text{C}$ 、背圧  $0\text{ kPaG}$ 、セル温度  $68.6\text{ }^\circ\text{C}$  において、無発電にて加湿した窒素ガスを供給した。ガス流量が  $50\text{ cc/min}$ 、および  $500\text{ cc/min}$  ( $0^\circ\text{C}$ 、1 気圧換算) における条件において計測した結果を図 2 に示す。発電をしていない条件であるため、水の供給は加湿器によるものだけとなる。加湿器温度に対してセル温度を低く設定することで、流路内に液が滞留する状態が確認できた。よって、この撮影条件によって、発電時の水分分布計測が可能であることが分かった。

### 4. まとめ

JRR3 において、水素ポンプを用いた PEFC 発電実験を行うための安全審査を受け、発電システムの構築を行った。これにより、 $100^\circ\text{C}$  を超える条件での発電実験が可能である。可視化用燃料電池を用いた予備実験により、電池内部に生成する液水を約 3 秒ごとに計測可能であることを確認した。今後は、電池温度が  $100^\circ\text{C}$  を超える条件での PEFC 発電実験を実施していく。

- [1] J. Zhang et al., "PEM fuel cells operated at 0% relative humidity in the temperature range of  $23\text{--}120^\circ\text{C}$ ", *Electrochimica Acta*, Vol. 52, 5095-5101 (2007).
- [2] 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>
- [3] N. Takenaka, et al., "Visualization of dynamic 3-D water behavior in polymer electrolyte fuel cell by using neutron

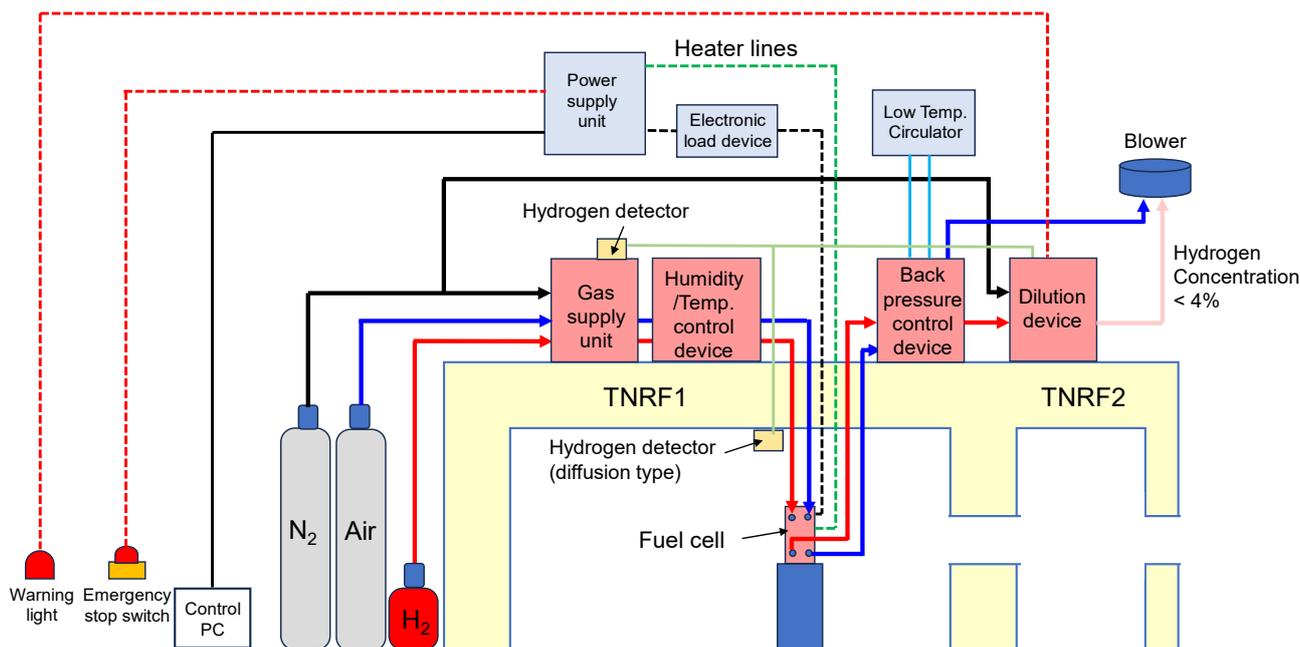


Figure 1. Fuel cell control system for thermal neutron radiography system in JRR3.

[2023105103]

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>

- [4] 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>
- [5] 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>