

[2024105105]

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(Ⅱ)

Visualization and Performance Evaluation of Water Distribution of Polymer Electrolyte Fuel Cell using Neutron Radiography (II)

村川英樹^{A)}, 大林優斗^{A)}, 中川勝文^{A)}, 杉本勝美^{A)}, 浅野等^{A)},
白勢裕登^{B)}, SCHREIBER Christopher^{B)}, DZRAMADO Eric^{B)}, 犬飼潤治^{B)},
原山勲^{C)}, 栗田圭輔^{C)}, 飯倉寛^{C)}

Hideki Murakawa^{A)}, Yuto Obayashi^{A)}, Katsufumi Nakagawa^{A)}, Katsumi Sugimoto^{A)}, Hitoshi Asano^{A)},
Yuto Shirase^{B)}, Christopher Schreiber^{B)}, Eric Dzramado^{B)}, Junji Inukai^{B)},
Isao Harayama^{C)}, Keisuke Kurita^{C)}, Hiroshi Iikura^{C)}

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

^{B)} Hydrogen and Fuel Cell Nanomaterials Center, University of Yamanashi

^{C)} Japan Atomic Energy Agency

Abstract

Water management in polymer electrolyte fuel cells (PEFC) is a key issue in PEFC operation. Recently, there has been a demand for operating PEFCs at temperatures above 100 °C to improve the power generation efficiency and 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, few investigations have evaluated the water distributions inside PEFC operating at temperatures above 100 °C. In this study, neutron radiography was employed to measure the two-dimensional water distributions during PEFC operation at 105 °C. As a result, water accumulation was confirmed in the flow channels under a back pressure of 300 kPaG. Furthermore, the cell voltage fluctuated owing to the water accumulation in the channel.

Keyword: fuel cell, high temperature operation, back pressure control, power generation,

1. はじめに

固体高分子形燃料電池は、電池性能と冷却性能の向上を目的に、従来に比べ高い 120 °C 程度での動作を目指した研究が行われている[1]。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。しかしながら 100 °C を超える条件において、発電時の水分分布を評価した例はほとんど無く、これらの条件での液水挙動の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な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[2-5]。昨年度までに、JRR3 に設置の TNRF (7R) にて燃料電池の発電実験を行うための実験システムを整備してきた。本年度は、これらのシステムを用いることで、従来に比べてより高温であるセル温度 105 °C の条件において発電実験を行い、中性子ラジオグラフィを用いて発電時の水生成の挙動を評価した。

2. 実験装置

2.1 燃料電池発電システム

TNRF に、可搬式の燃料電池制御システムを設置して実験を行った。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した。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排気される。安全対策として、ガス供給装置および照射室内に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、実験条件の設定を行った。

2.2 燃料電池および実験条件

図 1 に、計測に使用した燃料電池全体およびガス流路の概略図を示す。PEM を挟んでガス拡散層 (GDL; Gas diffusion layer), 水素側 (アノード) お

よび空気側（カソード）の流路がそれぞれ設置してある。流路は10本の並列流路であり、水素および空気を対向流にて供給した。流路およびリブ幅はそれぞれ1mmである。流路全体を計測範囲として、PEM面方向の水分布を計測した。

電池温度は105℃とし、バブラーの設定温度により水素および空気の燃料電池入口での相対湿度を60.5%に設定した。水素および空気流量は100 cc/min（0℃、1気圧換算）とし、排圧調整器によって排圧を300 kPaGに設定した。この条件において電流密度を時間的に変化させ、流路内に生成する凝縮水を中性子ラジオグラフィによって可視化した。

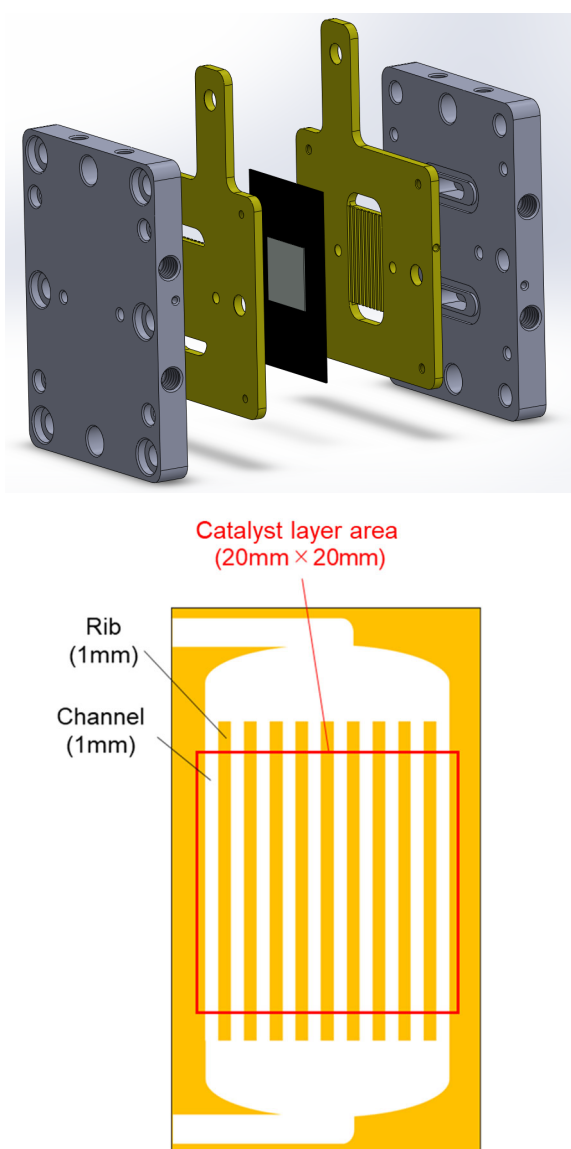


Figure 1. Schematic of the fuel cell and gas channel.

3. 実験結果

図2に、実験時の電流密度およびセル電圧の時間変化を示す。電流密度は、発電開始から段階的に増加させ、一旦0.9 A/cm²に増加させた。その際、セル

電圧の低下が確認されたため、安定して発電するように電流密度を調整した。発電開始から3～18分までは、0.8 または 0.9 A/cm²にて発電を行った。この時、時間経過に伴い電圧が大きく変動しながら徐々に低下していることが確認できる。

図3に、発電開始5分における二次元水厚み分布の一例を示す。計測は露光時間3秒とし、画像転送時間を含め、約4.5秒毎に画像を取得した。図の上部に記した1～10の数字は流路番号を示している。発電に伴い、流路下流位置において液水の増加が確認された。流路への液水滞留を確認された時刻において電圧が低下していることから、電圧低下は主に流路への液水滞留に伴うプラグgingにより生じたと考えられる。液水の滞留を詳細に評価するため、流路およびリブ部の一部の領域において、各時刻の平均水厚みを算出した。算出領域は、図中に赤で示す0.676×0.676 mm²の領域とした。流路5は、発電に伴い流路に液水が滞留したと考えられる領域である。これと同じ流路高さ位置であるものの、あまり多くの液水が滞留しなかった流路7、およびそれぞれ両隣のリブ部を対象として評価した。

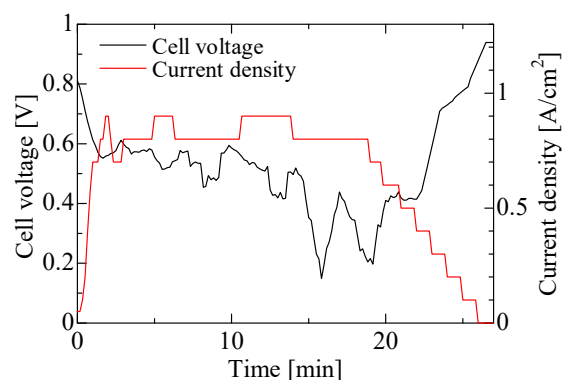


Figure 2. Time-series of the cell voltage and the current density.

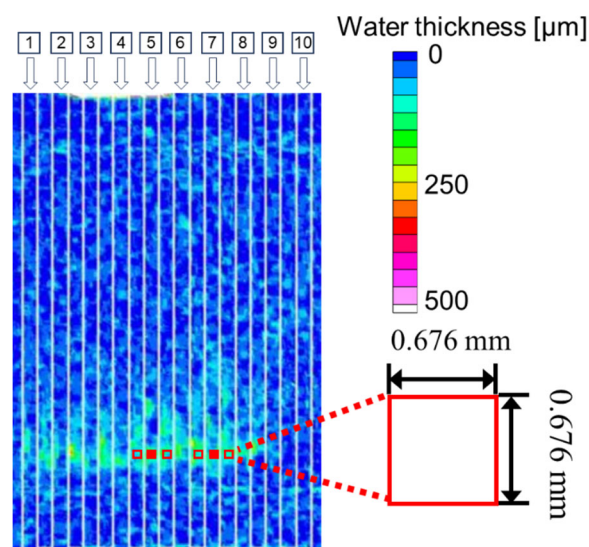
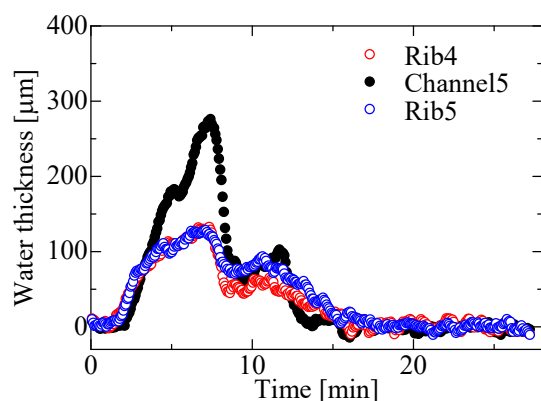
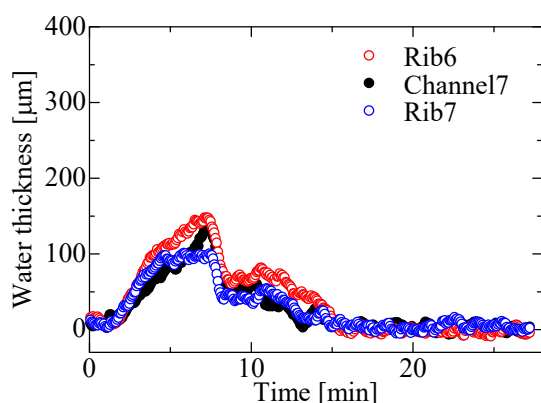


Figure 3. Two-dimensional distribution of water thickness at 5 min.

図 4 に、平均水厚みの時間変化を示す。流路 5、およびその水厚みを算出した領域の左右のリブ領域（リブ 4 およびリブ 5）において、発電開始から 3 分までの時間では、ほぼ同じように水厚みが増加し、約 $90\text{ }\mu\text{m}$ の水厚みに達していることが分かる。それ以降の時間では、リブ部の水厚みは約 $130\text{ }\mu\text{m}$ を最大に、あまり大きな変化が生じていないが、流路部での水厚みは大きく増加している。一方、流路 7 の領域では、その左右のリブ領域（リブ 6 およびリブ 7）の水厚みと大きな差異が確認されなかった。最大の水厚みも $150\text{ }\mu\text{m}$ 程度であった。このことから、発電に伴って生成した液水が GDL 内に滞留し、水厚みが $130\text{ }\mu\text{m}$ を超える程度になると、主にリブ部に面した GDL から、流路内に液水が排出されることで、流路内に液水が滞留したと考えられる。



(a) Channel 5



(b) Channel 7

Figure 4. Time-series of average water thickness at Channels 5 and 7.

4. まとめ

中性子ラジオグラフィを用いて、PEFC の一般的な運転温度を超えるセル温度 $105\text{ }^{\circ}\text{C}$ において、中性子ラジオグラフィを用いた発電時の可視化実験を行った。その結果、 $100\text{ }^{\circ}\text{C}$ を超える条件においても、排圧条件によっては発電に伴い PEFC 内に液水が滞留することを示した。

参考文献

- [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, pp. 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
- [3] 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
- [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
- [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