

積層組立の容易な固体高分子型燃料電池用セパレータの開発（第2報）

中北 賢司*, 富村 哲也*, 清水 輝彦*

Development of Separator for PEFC Stack to Assemble Easily (2nd Report)

Kenji NAKAKITA, Tetsuya TOMIMURA and Teruhiko SHIMIZU

1. はじめに

燃料電池は、水素と酸素の化学反応により電気を発生する発電装置で、環境問題やエネルギー問題解決の手段として注目を浴びている。近年、大規模な実証試験も始まり実用化を目指して開発が進められている。しかしながら、実用化までには解決しなければならない課題も残されている。

図1に固体高分子型燃料電池（PEFC）の概略を示す。PEFCは単セルと呼ばれる一つの電池が多数積層されて構成されている。単セルは、ガスを流し集電材の役目をするセパレータと、ガスを反応させ起電力を発生するMEA（Membrane Electrode Assembly）とからなっている。本研究で対象としているセパレータは、切削カーボンからなるものがこれまで主流として使われてきているが、コスト低減等を目指し樹脂セパレータや金属セパレータなどの開発^{1,2)}も盛んに行われてきている。

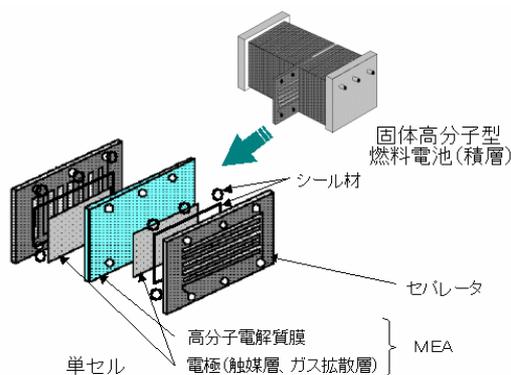


図1 固体高分子型燃料電池の概略図

平成16年度より積層組立の容易なセパレータの開発を目標に材料選定、流路パターン設計、設計したセパレータを用いた燃料電池の作製・評価に取り組んできた。ここでは流路パターン設計、シミュレーション実験による評価および燃料電池の発電試験評価について報告する。

2. 流路パターンの設計・評価

2.1 シミュレーション実験

前回の報告³⁾から、負荷電流20Aの燃料ガス流量（水素ガス利用率80%、酸素ガス利用率40%）に対して流路の最適幅は1mmから4mmの間にあると考えられた。

表1 モデルに適用した各設定項目

設定項目	設定値
酸素ガス	温度 70°C, 湿度 90%RH, 利用率 40%, 電流 30A の流量
カソードセパレータ (焼結黒鉛)	温度 75°C, 厚さ 2mm, ガス流路深 1mm, ガス流路長 70mm, ガス流路幅 1, 2, 3, 4mm
カソードガス拡散層	温度 75°C, 厚さ 0.15mm
カソード触媒層	温度 75°C, 厚さ 0.01mm
高分子電解質 (Nafion117)	温度 75°C, 厚さ 0.10mm,
アノード触媒層	温度 75°C, 厚さ 0.01mm
アノードガス拡散層	温度 75°C, 厚さ 0.15mm
アノードセパレータ (焼結黒鉛)	温度 75°C, 厚さ 2mm, ガス流路深 1mm, ガス流路長 70mm, ガス流路幅 1, 2, 3, 4mm
水素ガス	温度 70°C, 湿度 90%RH, 利用率 80%, 電流 30A の流量

* 電子・機械情報グループ

本報告では更に最適幅を調べるため流路長 70mm の単一流路を施した簡易モデルを作製し、表 1 の設定の下でシミュレーションを行った。カソードガス拡散層表面における水の生成状態を図 2 に示す。なお、その後の試験で標準燃料電池が負荷電流 30A を引くことが可能であったことから負荷電流を 30A としている。

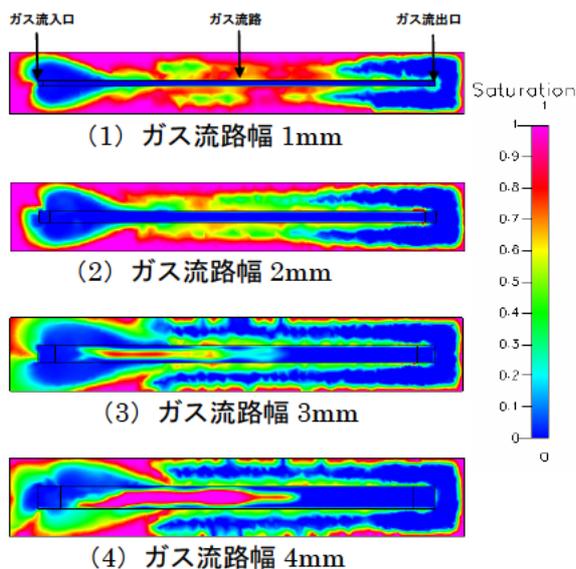


図 2 簡易モデルにおけるカソードガス拡散層表面の水分布

図 2 の Saturation はカソードガス拡散層のポラス構造が水により目つぶれを起こした割合を示すが、この図より流路幅 3mm, 4mm のものはガス流路上に水がたまっているのがわかる。これに対し、流路幅 1mm と 2mm のものはガス流路上に水がたまっていないため、発電効率がよいと期待される。

さらに詳しく調べるためこれらのモデルについて電流電圧特性を調べた結果を図 3 に示す。流路幅 3mm, 4mm のものは高電流密度の領域で急激にセル電圧が落ち込んでいるのが分かる。これは図 2 が示すように水により燃料ガスの流通が妨げられたことによると考えられる。また、流路幅 1mm のものと 2mm のものごとを比べると 2mm の方のセル電圧が高くなっており、そのため流路幅は 2mm が最適とした。

次に幅 2mm 長さ 70mm の流路を市販 MEA の電極面積と同じ 50cm² (縦約 71mm×横約 71mm) に施すことを考える。

流路と流路の間にある電極リブの幅を 1mm とす

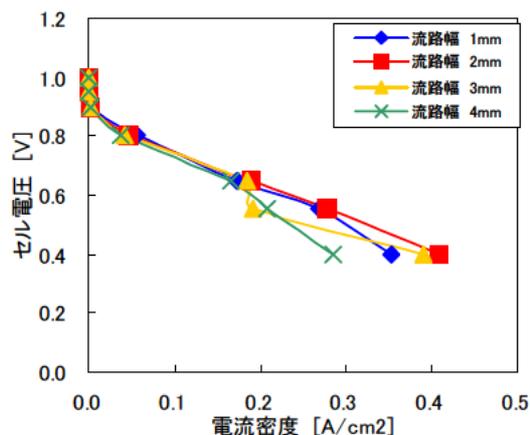


図 3 各流路幅に対する I-V 特性

ると、 $71\text{mm} / (\text{流路幅 } 2\text{mm} + \text{電極リブ } 1\text{mm}) = 23.66\dots$ となり、23~24 行の流路が施せる。そこで流路幅 2mm, 長さ 70mm の流路を 23 本蛇行させてつなげ 1 本の流路としたサーペンタイン (蛇行) モデルを作成し、表 3 の条件でシミュレーションし、カソードガス拡散層表面での水分布を調べた。その結果を図 4 に示す。

図 4 からわかるように流路の最初の 6 行目以降から水がたまりはじめている。この斑はセル温度分布に斑を作り、図 3 でも見られたように発電効率を下げる等の影響を与えると考えられる。

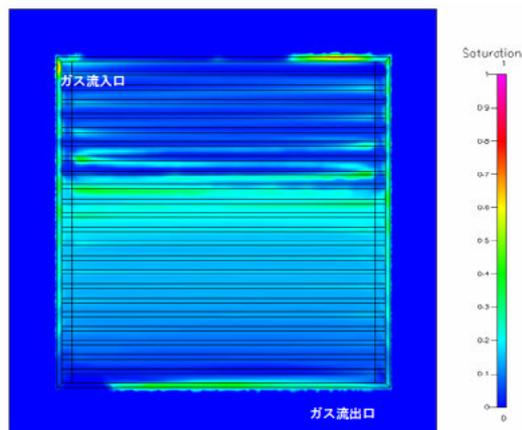
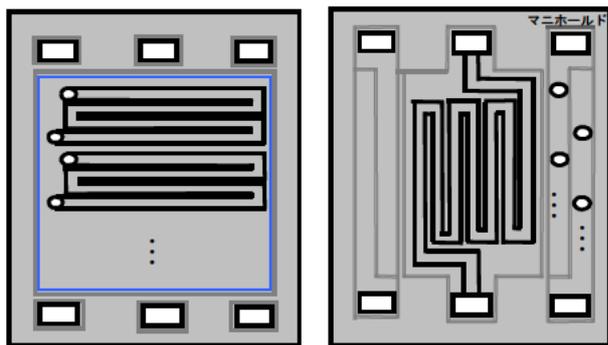


図 4 サーペンタインモデルにおけるカソードガス拡散層表面の水分布

そこで、流路を 1 本とするのではなくいくつか分割することを考える。つまり図 5 のように蛇行流路をいくつか設けて、マニホールドから冷却水側を



(1) ガス側 (2) 冷却水側

図5 提案するセパレータ

通してガスを供給するセパレータを提案する。

流路幅 2mm 長さ 70mm の流路は最大で 24 行並ぶこと、水素と酸素が交じり合うことを避けるためにガス流入口と排出口をセパレータの同じ側面に設けることという条件から、流路数は 1, 2, 3, 4, 6, 12 本が考えられる。

これをサーペンタインモデルで一つ一つシミュレーションするには膨大な時間を要するために簡易モデルでシミュレーションした。

つまり、流路を分割するとそれぞれの流路に流れるガス流量が全ガス供給量 (30A 分) / 分割数となるため、流路幅 2mm の簡易モデルを使いガス流量を流路数に合わせて設定し、電流がどれくらい取れるかを調べた。図 6 は縦軸が取れる電流 (電流密度で表す) と計算回数が見られている。

図 6 より流路数 12 だけ他のものより電流密度が低い値となっている。このため流路数は 1, 2, 3, 4,

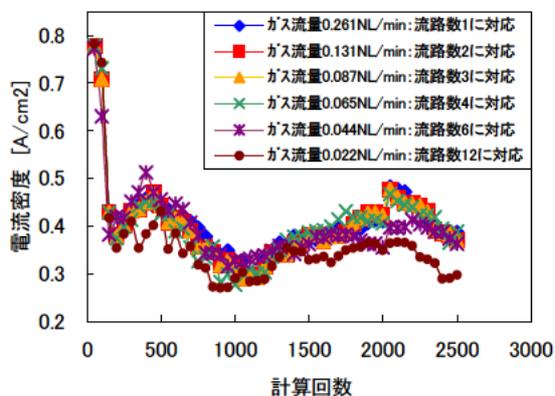


図 6 各流路数に対応するガス流量を流したときの電流密度

6 がよいといえる。

一方、図 4 の結果より一つの流路は水がたまらないように 6 行以内で構成する必要があった。これは流路数 4, 6, 12 に対応しており、この結果と合わせて考えると、流路数は 4, 6 がよいといえる。

3. 燃料電池発電試験

3. 1 単セル発電試験

これまでセパレータ材料として検討を進めてきた熱可塑性樹脂-黒鉛複合体¹⁾を用いて、図 7 に示すような独自に設計したセパレータ (厚さ 3mm) を圧縮成型により作製した。



(1) ガス側 (2) 冷却水側

図 7 セパレータ概観写真

予備試験として適切な燃料電池組み上げ条件を求めるために、熱可塑性樹脂からなるセパレータに対して組み上げる際の締め付けトルクを 1.5N・m, 2N・m, 3N・m と変化させた場合の発電性能の違いを調べた。その結果、発電特性が最も良い 3N・m に固定してすべての燃料電池を組み上げた。

設計したセパレータを評価するために、これまで検討してきた熱可塑性樹脂からなるセパレータ (圧縮成型) および比較用に入手した熱硬化性樹脂からなる材料を用いて切削加工により作製したセパレータを用いて、2 種類の燃料電池を組み上げた。発電性能は、I-V 特性試験とインピーダンス試験⁴⁾により評価した。

表 2 に示す発電条件下で測定した I-V 特性試験およびインピーダンス測定の結果 (cole-cole プロット)

表 2 I-V 特性試験条件 (単セル)

セル温度	75℃
露点温度	70℃
アノード	H ₂ (流量固定)
カソード	O ₂ (流量固定)

を図 8, 図 9 にそれぞれ示す. インピーダンス測定は, 負荷電流 1A, 掃引周波数 0.01Hz~10kHz で行った.

図 8 より熱可塑性樹脂からなるセパレータを用いた燃料電池は, 10A ($0.2\text{A}/\text{cm}^2$) で 0.470V と負荷電流の増加に伴う電圧低下が顕著であった. また, 開放電圧 (OCV) も 0.837V と低い値となった. 前者の理由は次のように考えられる. インピーダンス測定結果において 10 kHz における R 成分は, 接触抵抗, 膜抵抗, セパレータの抵抗などに相当する. 今回使用した MEA は市販のものであるため, この R 成分の値の変化はセパレータ自身の抵抗が支配的であると考えられる. 熱可塑性樹脂を用いて作製したセパレータの抵抗が熱硬化性樹脂を用いたセパレータに比べて 4 倍程度高い値を示していることが, 図 8 に示す I-V 特性において電流が引けなかった理

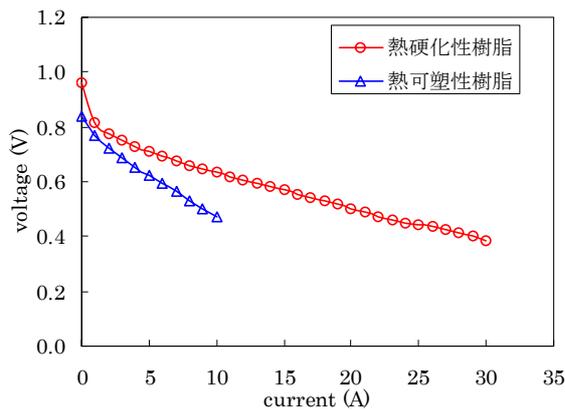


図 8 I-V 特性試験結果 (単セル)

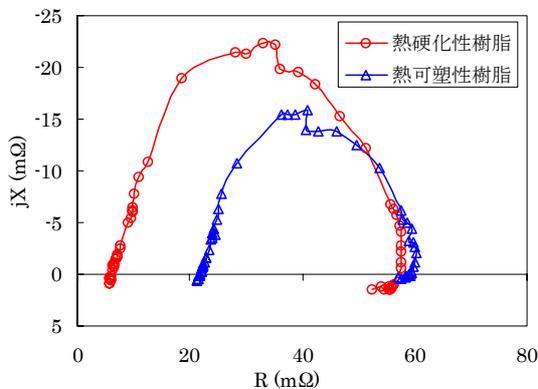


図 9 cole-cole プロット (単セル)

由であると考えられる.

今回使用した熱可塑性樹脂を用いたセパレータは, 試験片における抵抗率がばらつきはあるものの $20\text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$ 程度である. しかしながら, セパレータに成型した際の抵抗をさらに低減させる必要があることがわかった.

後者の理由として次のように考えられる. 開放電圧は, 上記のようにセパレータの抵抗が高くて 0.9 V 以上は発生すると考えられる. 原因を調べるために, MEA とセパレータ間にスペーサーとして $50\mu\text{ m}$ のテフロンシートを入れて再度燃料電池として組み直し発電試験を行った. その結果, OCV の値は初期の状態よりも 15%程度高い値を示した. このことから, ガス拡散層を圧縮しガスの拡散性を低下させたため OCV の低下を招いたと考えられる.

一方, 熱硬化性樹脂からなるセパレータを用いた燃料電池は, OCV は 0.9 V 以上の値を示し, 負荷電流 15 A ($0.3\text{ A}/\text{cm}^2$) において 0.568 V と若干低い値を示した. しかしながら, $0.5\text{ A}/\text{cm}^2$ 以上の高電流密度を得ることができた. 燃料電池の性能を支配する因子はセパレータの抵抗, MEA の性能, 組み上げ方など多く存在するため, 高電流密度領域での性能低下の原因は特定できていないが, 今回設計したセパレータ流路および形状において燃料電池として発電可能なことが確認された.

3. 2 スタック発電試験

次に, 熱可塑性樹脂からなるセパレータを用いて 3セルの燃料電池として組み上げ, 今回設計したセパレータがスタックとして発電可能であるか確認した. 表 3 に示す発電条件下で測定した I-V 特性の結果を図 10 に示す.

熱可塑性樹脂からなるセパレータを用いた単セル発電試験の結果より, OCV の値は 2.51 V ($=0.837\text{ V}\times 3$) と予想される. しかしながら, 3セルにおける OCV の値は 2.75 V であった. これは, インピーダンス測定による抵抗成分の値が, 単セルの値の約 3 倍程度あったため, セパレータと拡散層の接触のばらつきによるものであると考えられる. しかしなが

表 3 I-V 特性試験条件 (3セル)

セル温度	75°C
露点温度	70°C
アノード	H_2 (利用率 70%)
カソード	O_2 (利用率 40%)

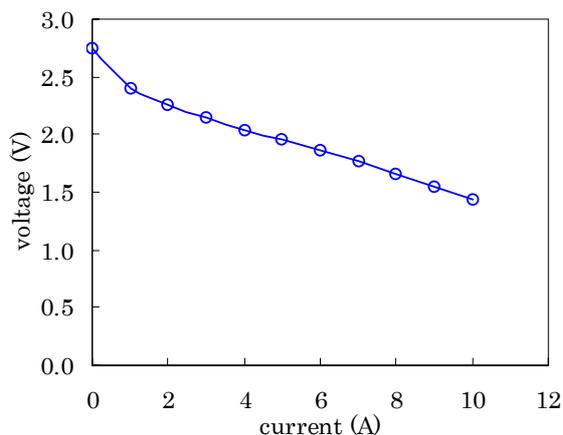


図 10 I-V 特性試験結果 (3 セル)

ら, 使用したセパレータの抵抗値が高かったため I-V 特性が良くなかったが, 今回設計したセパレータの構造で 3 セル燃料電池においても発電可能であることが確認できた。

4. まとめ

積層組み立ての容易なセパレータを作製するために, シミュレーションを用いた流路パターン設計・評価および設計したセパレータを用いて燃料電池を作製した。その結果, 以下のことがわかった。

- ・ 負荷電流 30A (水素ガス利用率 80%, 酸素ガス利用率 40%) に対してセパレータに施すガス流路の最適幅は 2mm である。

- ・ 50cm² の正方形電極に幅 2mm のサーペンタイン流路を施す場合は流路を 4 もしくは 6 に分割した方が発電斑の発生が少なく高効率期待される。

- ・ シミュレーション結果等を基に独自のセパレータを熱可塑性樹脂および熱硬化性樹脂を用いて作製し, 単セルの燃料電池として組み上げ発電を行った。その結果, 提案した熱可塑性樹脂の場合はセパレータの抵抗が高かったため高電流密度まで得ることができなかった。一方, 熱硬化性樹脂の場合, 0.5A/cm² 以上の電流密度まで得ることができ, 設計したセパレータを用いて組み上げた燃料電池において発電が可能であることが確認できた。

- ・ 設計したセパレータを用いて 3 セルの燃料電池を組み上げ発電可能であることが確認できた。

謝辞

本事業の一部は, 平成 16 年度電源立地地域交付金の助成を受けて行われた。

参考文献

- 1) “燃料電池 2005”. 日経 BP 社, p115-118 (2005)
- 2) “平成 13 年度成果報告書 固体高分子形燃料電池の研究開発 カーボン樹脂モールドセパレータの開発”. 新エネルギー・産業技術総合開発機構, (2002)
- 3) 中北賢司ほか: “積層組立の容易な固体高分子型燃料電池用セパレータの開発 (第 1 報)”. 三重県科学技術振興センター工業研究部研究報告, (2005)
- 4) “燃料電池発電特性とその評価・分析方法”. エヌエフ回路設計ブロック技術資料