

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 6 月 24 日現在

機関番号：12701

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2015

課題番号：25820058

研究課題名(和文) 固体高分子燃料電池の液水輸送や相変化を考慮した非定常発電特性のモデリング

研究課題名(英文) Numerical modeling of PEFC considering the effects of liquid water transport and phase change

研究代表者

荒木 拓人 (ARAKI, Takuto)

横浜国立大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：90378258

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：固体高分子燃料電池(PEFC)は、排気がクリーンで分散型電源としては高効率なことから省エネルギー・低炭素社会における次世代エネルギー変換デバイスとして期待されている。しかし、このPEFCは高電流密度運転において液水が詰まり活物質の輸送を阻害するという問題があり、その対策としてPEFC内の液水輸送および液水凝縮についての理解が必要であった。しかしながらこの液水輸送と相変化現象はPEFC内の温度分布、反応分布、各種ガス濃度分布と相互に影響を与え合うため、理解が難しかった。そこで、本研究では上記全ての現象を連成して非定常に解析できる数値モデルを開発しそれぞれの影響を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Proton Exchange Membrane Fuel Cell (PEMFC) is one of the most useful candidates of efficient and clean energy conversion devices. Understanding water transport inside PEMFC is very important to estimate and improve its cell performance. However, water transport is interacted with temperature, electrochemical reaction, phase change and heat and active material transport, and difficult to understand. In particular, the temperature gradient has the significant influence on water transport. Then, the two-dimensional unsteady model considering distributions of temperature, species, reaction and phase change was developed to investigate how the temperature gradient effects on the water transport and the cell performance. The result indicated that the temperature gradient invoke heat pipe phenomena, and it could reduce flooding in the CL. Then, considering the temperature gradient and the other effect simultaneously is essential.

研究分野：熱工学

キーワード：固体高分子形燃料電池 熱物質輸送

1. 研究開始当初の背景

固体高分子形燃料電池(PEFC)は、特に家庭用や自動車用など負荷の変動が頻繁な用途への応用が期待されているが、このPEFCのさらなる効率向上のためには非定常状態での各運転パラメータ制御や部材・流路構造などの最適化が求められていた。

2. 研究の目的

ガス拡散層内の液水輸送を、これまでの液水飽和度のみをパラメータとしたモデルから、平均液滴径や比表面積などの他のパラメータを考慮できるような新規モデルを提案する。また、非定常応答特性を実験結果と比較しex-situの見知なども考慮に入れながらモデルを修正し、より精度の高いモデルへ改良する。そうして、これまで明らかで無かった非定常発電特性における応答支配因子を整理し、非定常状態での各運転パラメータ制御や部材・流路構造などの最適化への情報を提供することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、二次元球状アグロメレートモデルをベースに、PEFCの各構成部材中で熱輸送と化学種輸送、電気化学反応を同時に考慮した非定常計算を行った。以下にこのモデルで考慮した現象を示す。

- (i) GDLおよびMPL, CL内空隙中での化学種多成分拡散
- (ii) GDLおよびMPL, CL空隙中のキャピラリ液水輸送
- (iii) PEM中での水分の濃度拡散および電気浸透
- (iv) CL内アイオノマへの酸素溶存および拡散
- (v) CLおよびPEM内アイオノマ中でのプロトン輸送
- (vi) GDL, CL内固相中の電子伝導
- (vii) アグロメレート内部での酸素還元反応
- (viii) CLでの反応熱, 各層でのオーム発熱及び熱伝導

化学種輸送について、カソード内部では加湿空気を、アノード内部では加湿水素ガスを、それぞれステファン・マクスウェル方程式を解き、膜内、左右壁面およびセパレータのリブ界面への流出入は無いものとした。熱輸送は、セル全体で熱伝導方程式を解き、生成項としてカソード触媒層の反応熱、およびセル全体でのプロトン輸送に伴うジュール熱、および潜熱を与え、境界条件は、セパレータ温度を70°C一定とした。液水輸送は、キャピラリ拡散係数を与えてダルシー則について解き、GDL-MPL界面、MPL-CL界面間、およびMPL-クラック界面では、キャピラリ圧差に比例した流束を与えた。カソードの供給ガスは、空気とした。ガス圧力は、 $1.013 \times 10^5$  Pa。相対湿度はRH95%とし

Table 1 Analytical conditions

Separator temperature	$T_{cell}$	70 [°C]
Gas pressure	$P_{total}$	1 [atm]
Gas humidity in channel	RH	100 [%]
Channel width	$l_{Ch}$	1.0 [mm]
Rib width	$l_{Rib}$	1.0 [mm]
Total overpotential	$\eta$	0.6[V]

た。流路幅、リブ幅はともに1.0mmとした。これら解析条件をまとめたものを、表1に示した。このモデルを用いて非定常計算におけるセル内温度分布、GDL, CLおよびMPL中の液水輸送が発電性能に与える影響の検討を行った。

4. 研究成果

図1にカソード側を基準とした、非等温時のセル内温度分布を示す。ここでは、相変化も考慮している。カソード側CL(CCL)上の温度分布とセパレータ温度分布を比較すると、温度の違いが見て取れる。次にチャンネル下付近とリブ下付近を比較すると、チャンネル付近のほうが高いことが見て取れる。以下においては、非等温時と温度分布を一樣にした場合においてセル内部の反応電流分布と水分輸送状態を比較検討する。

図2と図3にそれぞれ非等温、等温時のCCLに着目した反応電流分布を示す。非等温時は、PEMとのリブ下界面付近で発電量が高くなっていることが見て取れる。この結果をもたらした要因を調べるためにカソード側の酸素濃度分布に注目した。

CCL内の酸素濃度分布を図4, 5に示す。非等温時は、等温時に比べてPEMとのリブ下界面付近で酸素濃度分布が高くなっていることがわかる。次にカソード側の液水飽和度分布に注目した。

図6と図7にそれぞれ非等温、等温時のカソード側GDL, MPLおよびCLに着目した液水飽和度分布を示す。図7を見ると、チャンネル下付近のGDLを除いて、各部材に対しほぼ一樣に分布している。これは温度を一樣にしたことで、飽和蒸気圧も一樣であることが原因である。これに対し図6では、各部材のチャンネル下において、飽和度が低くなっている。これは、非等温にしたことでチャンネル下の温度が上昇し、飽和蒸気圧が変化したためである。図8および図9にMPLとCCLの界面を透過する液水、水蒸気の流束を示す。非等温時のほうが、液水の流束が減少している。これは、図6, 7で示した液水飽和度分布の時では、非等温時のほうがCCLとMPLのキャピラリ圧力の差が小さいことが原因である。温度を考慮したことによって、リブ下のPEM-CCL界面付近に液水がたまりにく

くなり、その結果酸素拡散が向上したことで反応が活発になった。  
 以上のことから、セル内の温度分布を考慮したことで、水分輸送や、反応電流分布に影響を与えることを確認できた。

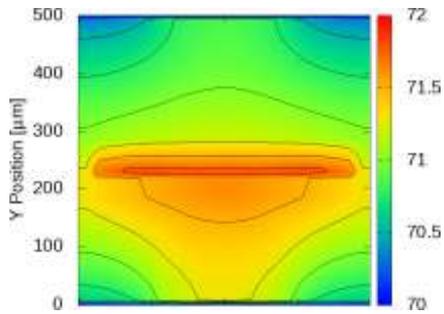


Fig. 1 Temperature distribution  
(Non-Isothermal)

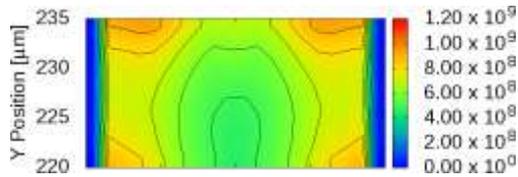


Fig. 2 Reaction current distribution  
(Non-Isothermal)

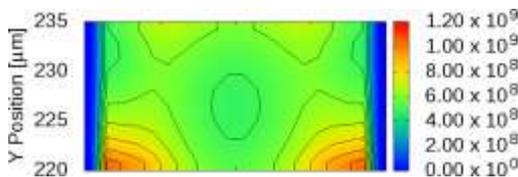


Fig. 3 Reaction current distribution  
(Isothermal)

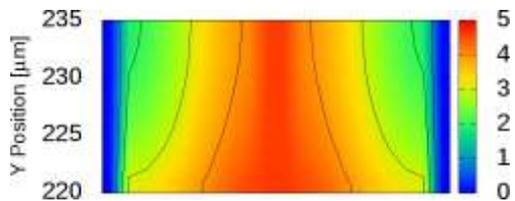


Fig. 4 Oxygen concentration [mol/m<sup>3</sup>]  
(Non-Isothermal)

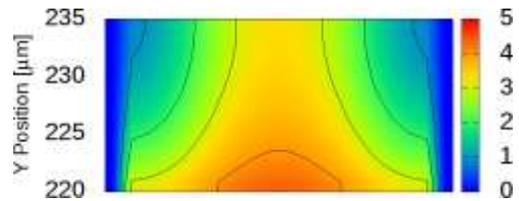


Fig. 5 Oxygen concentration [mol/m<sup>3</sup>]  
(Isothermal)

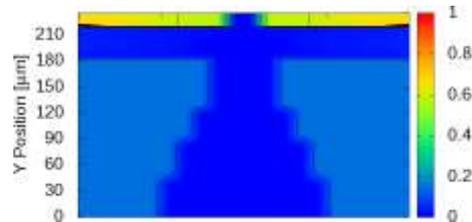


Fig.6 Liquid water saturation (Non-isothermal)

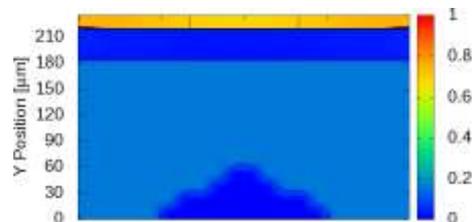


Fig. 7 Liquid water saturation (Isothermal)

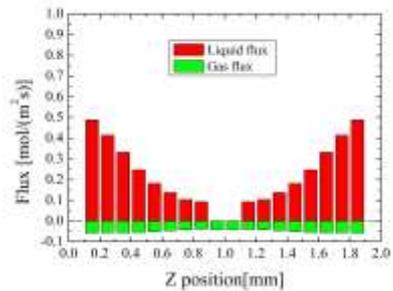


Fig. 8 Flux between MPL and CL  
(Non-Isothermal)

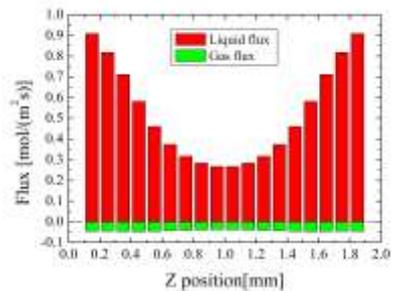


Fig.9 Flux between MPL and CL (Isothermal)

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 8 件)

① Conjugate Analysis of Heat-Species-Charge Transport for Evaluating Effects of the Temperature Gradient on Cell Performance Modeling, Kiyofumi Miyagawa and Takuto Araki ECS Trans. 2015 69(17): 93-103, doi:10.1149/06917.0093ecst (査読有)

② In Situ Humidity Measurements at the CL Surface By MEMS-Based Sensors Catalyst Layer Jun Tsujikawa, Ryotaro Minami, and Takuto Araki, ECS Trans. 2015 69(17): 471-476 doi:10.1149/06917.0471ecst (査読有)

③ Simultaneous Measurements of Liquid Water Distributions and Catalyst Layer Surface Temperature inside Operating PEMFC Catalyst Layer, Kentaro Watanabe, Jun Tsujikawa, and Takuto Araki, ECS Trans. 2015 69(17): 477-483, doi:10.1149/06917.0477ecst (査読有)

④ Numerical Analysis Considering the Effects of Liquid Water on PEMFC Unsteady Performance Takanori Fukuda and Takuto Araki, doi: 10.1149/06403.0581ecst, ECS Trans. 2014 volume 64, issue 3, pp. 581-592 (査読有)

⑤ Modelling and Measurements of Temperature Distributions inside MEA and Its Effects on Water Transport, Takuto Araki, Toshiki Sugimoto, Yasuyuki Minegishi and Masaru Higuchi, doi: 10.1149/06403.0619ecst ECS Trans. 2014 volume 64, issue 3, pp. 619-628 (査読有)

⑥ 「固体高分子形燃料電池内の液水分布状態可視化と非定常発電特性」荒木 拓人, 燃料電池, Vol. 13, No. 2, pp. 9-13, (2013) (査読有)

⑦ Numerical Analysis of PEMFC Unsteady Performance Considering Water and Thermal Transport, Takanori Fukuda, Akira Sato and Takuto Araki doi: 10.1149/05801.1113ecst ECS Trans. 2013 volume 58, issue 1, pp. 1113-1123 (査読有)

⑧ 「PEFC 用 GDL 流路界面における物質伝達抵抗および内部有効拡散係数の異方性測定」金子 春樹, 太田 公一, 清水 雅也, 荒木 拓人, 日本機械学会論文集 B 編, Vol. 79, No. 797, pp. 71-81 (2013) http://dx.doi.org/10.1299/kikaib.79.71 (査読有)

[学会発表] (計 27 件)

① Three-Dimensional Unsteady Numerical

Analysis of a PEMFC Considering Effects of Liquid Water Transport in a Gas Channel with Micro Grooves, Koji Takaya, Takuto Araki, The First Pacific-Rim Thermal Engineering Conference (PRTEC 2016), PRTEC-14958, Topic ID: (a-2) Heat and Mass Transfer Across Interfaces, 2016/03/15, Hawaii, Waikoloa Beach Marriott Resort & Spa, USA

② Multipoint Measurements of Local Temperature in PEMFC by using Thin Film Thermocouples, Koki Kobayashi, Jun Tsujikawa, Takuto Araki, The First Pacific-Rim Thermal Engineering Conference (PRTEC 2016), PRTEC-15036, Topic ID: (b-4) PEFC 1, 2016/03/16, Hawaii, Waikoloa Beach Marriott Resort & Spa, USA

③ 固体高分子形燃料電池内の湿度測定に向けた MEMS センサの小型化, 辻川 順, 小林航輝, 南 凌太郎, 荒木 拓人, 第 7 回マイクロ・ナノ工学シンポジウム, OS0 マイクロ・ナノメカニクス I, 29pm1-E-2, 2015/10/29, 朱鷺メッセ (新潟県新潟市)

④ 新形式ガス流路が PEFC 内部の非定常応答に与える影響, 高谷 洗司, 荒木 拓人, 日本機械学会 熱工学コンファレンス 2015, 燃料電池・二次電池関連研究の新展開(2) D221, 2015/10/25, 大阪大学.

⑤ 薄膜熱電対を用いた PEFC 内局所温度の多点同時測定, 小林 航輝, 辻川 順, 荒木 拓人, 日本機械学会 熱工学コンファレンス 2015, 燃料電池・二次電池関連研究の新展開(2), D222, 2015/10/25, 大阪大学.

⑥ アイオノマ表面の液水輸送抵抗が PEFC の性能に与える影響に関する非定常数値解析, 宮川聖史, 峰岸泰之, 荒木拓人, 第 52 回伝熱シンポジウム, A123, 2015/06/03, 福岡国際会議場

⑦ 液水分布の X 線 CT 可視化および薄膜熱電対を用いた触媒層表面温度の in situ 同時測定, 辻川順, 渡邊健太郎, 荒木拓人, 第 52 回伝熱シンポジウム, A224, 2015/06/04, 福岡国際会議場

⑧ in-situ の GDL の有効熱伝導率測定に向けた MEMS センサの開発, 杉本 俊樹, 金 スンヨン, 荒木 拓人, 第 35 回日本熱物性シンポジウム, OS11 低温度差エネルギーの活用に関連する流体熱物性と技術, 2014/11/22, 東京工業大学

⑨ 温度分布と凝縮速度に着目した PEMFC 内の熱物質輸送および電気化学反応の連成解析 峰岸泰之, 宮川聖史, 荒木拓人, 日本機械学

会 熱工学コンファレンス 2014, H122, OS-4  
燃料電池・二次電池関連研究の新展開(2),  
2014/11/8, 芝浦工業大学

⑩ Effects Of Water Distribution Modes on Gas Diffusivity in PEMFC Gas Diffusion Layer, K. Watanabe, and T. Araki, The 25th International Symposium on Transport Phenomena (ISTP-25), C11-88: Fuel Cells and Battery Technology, 2014/11/5, Krabi, Thailand.

⑪ Development of Water Management Techniques for Each Component of a PEMFC, Y. Utaka, T. Araki, H. Matsumoto, T. Munakata, H. Ito, S. Someya, A. Nakano, J. Zhang, S. Wang, The 25th International Symposium on Transport Phenomena (ISTP-25), C11-142, Fuel Cells and Battery Technology, 2014/11/5, Krabi, Thailand.

⑫ 固体高分子形燃料電池触媒層表面の温度・湿度測定に向けたセンサ開発, キム スンヨン, 杉本 俊樹, 荒木 拓人, 第 6 回マイクロ・ナノ工学シンポジウム, マイクロナノプロセス技術 I, 21am2-A6, 2014/10/21, くにびきメッセ, 松江市

⑬ Numerical Analysis Considering the Effects of Liquid Water on PEMFC Unsteady Performance Takanori Fukuda and Takuto Araki, 2014 ECS and SMEQ Joint International Meeting, Cancun, Mexicom, Meeting Abstract MA2014-02 1023 A0-1. Modeling Water Management - Oct 5 2014 10:00AM

⑭ Modelling and Measurements of Temperature Distributions inside MEA and Its Effects on Water Transport, Takuto Araki, Toshiki Sugimoto, Yasuyuki Minegishi and Masaru Higuchi, 2014 ECS and SMEQ Joint International Meeting, Cancun, Mexico, Meeting Abstract MA2014-02 1026, A0-1. Modeling Water Management - Oct 5 2014 10:00AM

⑮ The Unsteady Water Transport Model Development Through The PEM-GDL Interface Of PEFCs, Jun TSUJIKAWA, Takanori FUKUDA, Konosuke WATANABE, Kazuma EMOTO and Takuto ARAKI, Joint Symposium among Sister Universities in Mechanical Engineering, (JSSUME 2014 Yokohama), 2014/08/16, Port Opening Memorial Hall, Yokohama

⑯ Numerical Analysis of Heat-Mass-Charge Transport Phenomena in a PEMFC, Yasuyuki MINEGISHI, Kiyohumi MIYAGAWA and Takuto ARAKI, Joint Symposium among Sister Universities in Mechanical Engineering, (JSSUME 2014 Yokohama), 2014/08/16, Port Opening Memorial Hall, Yokohama

⑰ Measurements of the Temperature Distribution of a PEMFC Catalyst Layer Using an Ultra Thin Thermocouple Array, Takuto Araki, Toshiki Sugimoto, The international heat transfer conference, IHTC15-9267/FCL-H-122, 11th August 2014, Kyoto, Japan

⑱ Developments of Thin-Film Temperature and Humidity Sensors for PEMFC In-Situ Measurements, Toshiki Sugimoto, Yuhei Horiuchi, and Takuto Araki, ASME 2014 12th Fuel Cell Science, Engineering and Technology Conference, Session: 2-1-4 Design for PEM Fuel Cells I, ES-FuelCell2014-6480, 30th June 2014, Boston, USA

⑲ MEMS センサを用いた PEFC 内の in-situ 湿度測定, 杉本俊樹, 堀内悠平, 荒木拓人, 第 51 回日本伝熱シンポジウム, C121, O S 水素・燃料電池・二次電池 2, 2014/05/21, アクトシティ浜松

⑳ 運転条件が PEFC 内水部輸送形態へ与える影響に関する数値解析, 樋口勝, 赤井勇樹, 峰岸泰之, 荒木拓人, 第 51 回日本伝熱シンポジウム, C132, O S 水素・燃料電池・二次電池 3, 2014/05/21, アクトシティ浜松

㉑ Numerical Analysis of PEMFC Unsteady Performance Considering Water and Thermal Transport, Takanori Fukuda, Akira Sato, and Takuto Araki, Trans. 224th Electrochemical Society Meeting, Meeting Abstract MA2013-02 1467, 30th Oct. 2013, San Francisco, USA.

㉒ MPL クラックを考慮した二相流 PEFC アグロメレートモデルによる発電性能解析, 樋口勝, 赤井勇樹, 荒木拓人, I134, 日本機械学会 熱工学コンファレンス 2013, 2013 年 10 月 19 日, 弘前大学.

㉓ MEMS センサーを用いた固体高分子形燃料電池内の in-situ 湿度測定, 堀内悠平, 杉本俊樹, 荒木拓人 I144, 日本機械学会 熱工学コンファレンス 2013, 2013 年 10 月 19 日, 弘前大学.

㉔ Developments of MEMS-based Thermocouple Array for Sensing Effects of a Flow Channel on PEMFC Local Temperature Distribution, Toshiki Sugimoto, Yuhei Horiuchi, Takuto Araki, Technical Publication. ICNMM2013-73198, 2013 11th ASME International Conference on Nanochannels, Microchannels and Minichannels, June 16-19, 2013, Sapporo, Japan

㉕ PEFC 用 GDL 内液水分布モードの可視化および拡散抵抗の数値解析, 西田洋介, 吉原圭亮, 荒木拓人, 第 50 回伝熱シンポジウム,

A113, 2013 年 5 月 29 日, ウェスティンホテル  
仙台.

②⑥MPL および相変化を考慮した非等温球状  
アグロメレートモデルによる性能解析, 樋口  
勝, 荒木拓人, 堀内悠平, 第 50 回伝熱シンポ  
ジウム, A114, 2013 年 5 月 29 日, ウェスティ  
ンホテル仙台.

②⑦ Visualization of water droplets distributions  
inside PEMFC GDL, Takuto Araki, Japan-Korea  
Joint Seminar on Heat Transfer VII, 18th Nov.  
2013, Kyushu University, Fukuoka, Japan.

〔図書〕 (計 1 件)

“Advanced Studies of Polymer Electrolyte Fuel  
Cells”, Shigenori Mitsushima, Takuto Araki,  
Ken-ichiro Ota, Viktor Hacker, Matthaues  
Siebenhofer (eds.), 2015/09, TU Graz, Graz,  
Austria, ISBN 978-385125417-4

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

荒木 拓人 (Takuto ARAKI)

横浜国立大学 工学研究院, 准教授

研究者番号 : 90378258