

# 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）

中北 賢司\* , 富村 哲也\*

## Development of Separator for PEFC Stack to Assemble Easily (1st Report)

by Kenji NAKAKITA and Tetsuya TOMIMURA

Fuel Cells System is expected to settle the problem of environment and energy. We are studying material and design of separator for polymer electrolyte fuel cells (PEFC) stack to assemble easily. For the separator material, a conductive composite made with thermoplastic elastomer (TPE) and graphite was close to 20 m<sup>2</sup>·cm of the resistivity of the goal. The separators were made of the composite by a compression molding process. For the design obtained from the results of simulation, it was indicated that gas passage width suitable for electric current 20A is 1mm ~ 4mm.

Key words: polymer electrolyte fuel cell, separator, composite, simulation

### 1. はじめに

燃料電池システムは環境問題とエネルギー問題の同時解決が期待でき、国策としても普及を進めている。特に比較的低温で動作する固体高分子型燃料電池（PEFC: Polymer Electrolyte Fuel Cells）システムは盛んに研究開発が行われている。

図1に示されるように、固体高分子型燃料電池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）とから成っているが、コストの大部分を占めるセパレータは低コスト化が望まれており、高価な切削カーボンによるものから安価で大量生産に適する樹脂によるもの等多くのタイプが提案されている。

三重県科学技術振興センター工業研究部では、平成14年度に三重大学、県内企業と共同で熱可塑性樹脂を基材とするゴム弾性をもつ固体高分子型燃料電池用セパレータを開発した<sup>1),2)</sup>。しかし、発電後の熱による変形、冷却水詰まり、及び燃料電池に組み立てにくい等、幾つかの課題が残った。そこで、

\* 電子材料研究グループ

「セパレータの最適材料の選定と複合体の作製・評価」、「流路パターン設計・評価とセパレータの作製」、「積層燃料電池の作製・評価」という三つの課題に取り組み、セパレータ材料の性能向上や組立易さを考慮したセパレータの設計、更にそのセパレータを用いた積層燃料電池の作製を目指すこととした。本報告ではこの内、セパレータ材料の作製・評価と、ガス流路幅についてのシミュレーション結果について報告する。

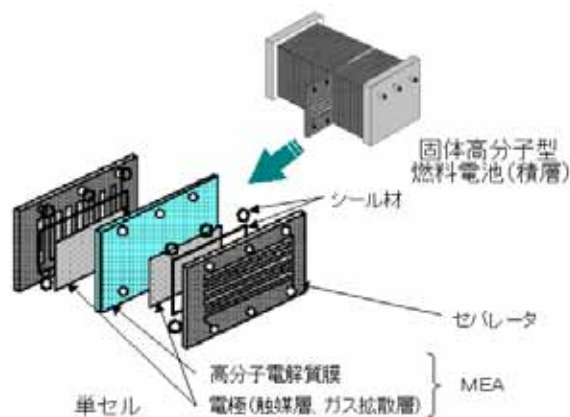


図1 固体高分子型燃料電池の構成

## 2. 実験

### 2.1 セパレータの最適材料の選定と複合体の作製・評価

一般にPEFC用のセパレータは、炭素材、樹脂に導電性粒子を充填したもの（熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂）、金属などさまざまなものが検討されている。それらは、表1に示すような長所・短所を有している。そのため、どの素材がセパレータ材料として主流になるのかは現在のところ分からない。そのため多くの企業等がセパレータの研究開発を行っている<sup>3)</sup>。一般にセパレータに要求される項目は、電気的特性、耐酸性、機械的強度などがある<sup>4,5)</sup>。

#### 2.1.1 試料および実験方法

表1 各種セパレータの特徴

種類	長所・短所
炭素材製	<ul style="list-style-type: none"> <li>電気抵抗：低い</li> <li>腐食性：強い</li> <li>機械的強度：割れやすい</li> </ul>
樹脂製	<ul style="list-style-type: none"> <li>電気抵抗：他に比べると高い</li> <li>腐食性：強い</li> <li>機械的強度：強い</li> </ul>
金属製	<ul style="list-style-type: none"> <li>電気抵抗：低い</li> <li>腐食性：工夫が必要</li> <li>機械的強度：強い</li> </ul>

本研究では、バインダー樹脂としてスチレン-イソプレン系の熱可塑性エラストマー（TPE）を用いた。このTPEは、ハードセグメントとしてスチレン構造を有し、ソフトセグメントとしてイソブレンブロック構造を有している。TPEがゴム弾性を有する理由はこの分子構造によるものである。一方、導電粒子として数種類の天然黒鉛を用いた。これらの黒鉛は、粒子径の異なる隣状黒鉛である。複合体Aに用いた黒鉛の粒子径は、複合体Bに用いたそれよりも大きい。

複合体の作製は、トルエンを溶媒として用い、TPE及び黒鉛を室温にて攪拌混練した。その後、自然乾燥により溶媒を除去した後、150℃・10分間所定の圧力でプレス機にてシート状試料を作製した。このシート状試料を対象として、四端子法により室温での抵抗率を測定した。

#### 2.1.2 実験結果および検討

図2は、TPEに2種類の黒鉛をそれぞれ充填した複合体の抵抗率を黒鉛の重量%で示したものである。一般に、絶縁体であるバインダー樹脂に導電性

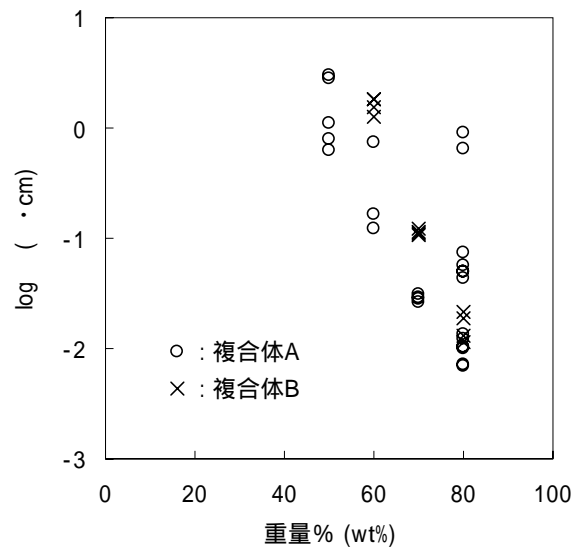


図2 導電粒子の充填に伴う抵抗率の変化

粒子を充填するとその抵抗率は充填が少ない場合はバインダー樹脂とほぼ同程度を示す。そして、ある充填量以上になると充填量に伴い抵抗率は急激に減少する。さらに導電性粒子を充填するとある充填量よりその変化の割合は緩やかになる（後者をパーコレーション閾値<sup>6)</sup>とする）。図2に示した充填量はパーコレーション閾値以上の充填量である。そのため、80wt%以上黒鉛を充填しても急激な抵抗率の変化は望めなく、加工性の観点からもこれ以上の充填は望ましくないと考えられる。目標としている抵抗率が20mΩ・cm台であるのに対して、ばらつきはあるものの複合体Aにおいて80wt%の時、抵抗率は低いもので10mΩ・cm程度であった。一方、複合体Bの抵抗率はばらつきがあるものの同じ黒鉛充填量における複合体Aのその値よりも大きい傾向にある。これは、平均粒子径など黒鉛の特徴を示す物性の差異によると考えられる。

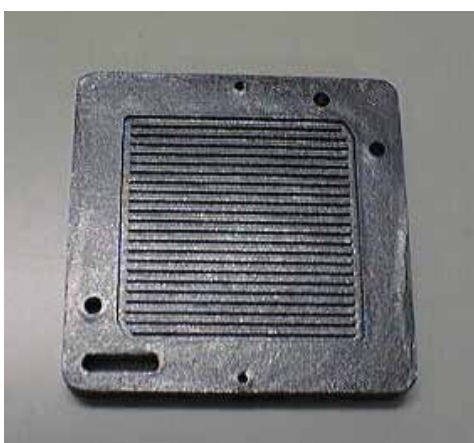
#### 2.1.3 セパレータの作製

セパレータの作製は、セパレータ用母材として複合体Aの充填量80wt%の複合体を用いた。初めに熱プレス機を用いて所定の厚さ、寸法のバルクを作製した。その後、40tonプレス機を用いてセパレータ用の金型によりセパレータ流路等を成型した(図3)。その結果、セパレータ流路の転写は可能であることが分かった。しかしながら、表2に示すようにセパレータの厚みには設計値に対して大きな誤差があり、寸法精度の改善が必要だと考えられる。そのためには、母材の投入量、締め付け圧力、金型温度などの

再検討が必要だと考えられる。



(1) アノードセパレータ



(2) カソードセパレータ

図3 作製したセパレータ

表2 作製したセパレータの寸法誤差

測定箇所		設計値 [mm]	誤差 [%]
アノードセパレータ	縦幅	100.0	0.25
	横幅	100.0	0.20
	厚み	9.2	20.84
	流路溝幅	1.8	0.00
	流路溝間幅	1.05	0.48
	流路溝深さ	1.8	5.28
カソードセパレータ	縦幅	100.0	0.30
	横幅	100.0	0.32
	厚み	9.2	23.32
	流路溝幅	1.8	4.44
	流路溝間幅	1.3	5.77
	流路溝深さ	1.8	1.67

## 2.2 流路パターンへの設計・評価とセパレータの作製

### 2.2.1 シミュレーション実験

本研究では最終的に独自に設計・作製したセパレータを用いて固体高分子型燃料電池を組み上げることを目標としている。セパレータを設計する際にはセパレータに施すガス流路の流路幅、流路長等を決定しなければならないが、流れるガスには、反応ガス中の水分または反応でできる水の滞りがないように水を効率よく排出すること、ガスが反応した際の熱を斑ができないように分散すること等が要求される。ガスの流れはセパレータの流路形状によって影響されると考えられるため、シミュレーションによって流路幅の検討を行った。用いたのは(株)ウェーブフロントから市販されているシミュレーションソフト CFD-ACE+で、流体等の物理現象と電気化学反応との連成問題を解析できるソフトウェアである。

図4にこのソフトウェアによって作製した簡易モデルを示す。

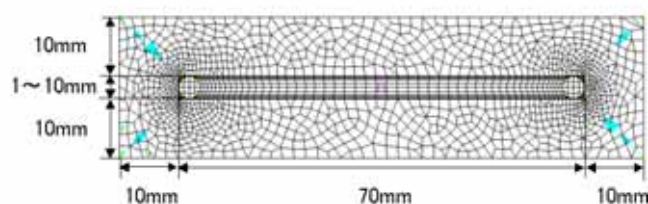


図4 簡易モデル

モデルの寸法について、ガス流路の長さは市販されている標準燃料電池のガス流路の長さと同じ長さの7cmとし、燃料ガス流量は市販の標準燃料電池の性能を考慮して水素ガス利用率80%、酸素ガス利用率40%において負荷電流20Aを取り出せる量とした。また、ガス流路幅をパラメータとして、1mm、4mm、7mm、10mmとした。

このモデルはセパレータ、MEA(触媒層、電極層)の各層を成しているが、それらの設定値は表3に示すとおりである。

ガスを水素ガス、酸素ガスがお互い交差するように流し、カソードガス拡散層表面での水分分布、温度分布、電圧分布について検討を行った。

表3 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 ，湿度：90%RH， 流量：利用率 40%で電流 20A が取出せる量
カソードセパレータ	温度：75 ，厚さ：2mm， 物性：焼結黒鉛， ガス流路深さ：1mm， ガス流路幅：1,4,7,10mm
カソードガス拡散層	温度：75 ，厚さ：0.15mm
カソード触媒層	温度：75 ，厚さ：0.01mm
高分子電解質	温度：75 ，厚さ：0.10mm， 物性：Nafion117
アノード触媒層	温度：75 ，厚さ：0.01mm
アノードガス拡散層	温度：75 ，厚さ：0.15mm
アノードセパレータ	温度：75 ，厚さ：2mm， 物性：焼結黒鉛， ガス流路深さ：1mm， ガス流路幅：1,4,7,10mm
水素ガス	温度：70 ，湿度：90%RH， 流量：利用率 80%で電流 20A が取出せる量

## 2.2.2 シミュレーション結果

まず、水分分布のシミュレーション結果について報告する。

固体高分子型燃料電池のカソード側では、アノード側から水素イオンとともに移動してくる水や、水素イオンと電子、酸素が結びついて生成された水が発生する。これらの水が触媒層やガス拡散層にたまると触媒面積を減少させたり、反応に寄与する粒子の移動を阻害したりして発電効率を低下させる原因となる。図5にはシミュレーションで得られたカソードガス拡散層表面での水分分布の様子が示してある。図中の Saturation はガス拡散層の水による目詰まりの率を表しており、ガス拡散層にあるポーラス構造のすべての孔が水で目詰まりを起こしたとき、最大値1をとる。この図よりガス流路幅7mmのとき、水がガス流路の部分に多く発生しているのがわかる。また、ガス流路幅10mmのものでは7mmのものほどではないが比較的多く水がたまっている。これら7mm、10mmのものは、ガス流路の断面積が大きい

ためガスが滞留し水を排出しきれなかったのではないかと考えられる。ガス流路幅1mmではわずかに水がたまっているものになる程度ではない。ガス流路幅4mmでは水がほとんどたまっていない。

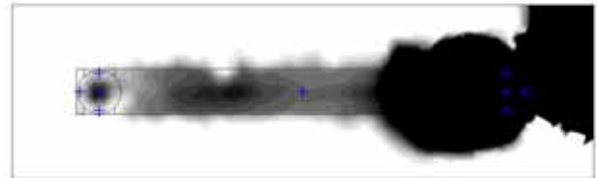
これらより、水分分布の結果で最も良いといえるのはガス流路幅4mmのときである。



(1) ガス流路幅 1mm



(2) ガス流路幅 4mm



(3) ガス流路幅 7mm



(4) ガス流路幅 10mm

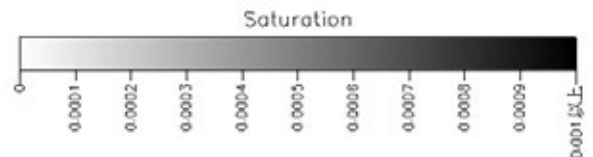


図5 カソードガス拡散層表面での水分分布

次に温度分布、電圧分布のシミュレーション結果について報告する。

温度分布に斑があると、それが部材のひずみの原因となる。また電圧分布に斑があると、その部分で電位差を生じるため部分的に電流が流れてしまい、燃料電池の発電効率を低下させる原因となる。表4

はカソードガス拡散層表面における温度分布の斑によって生じた温度の最大値と最小値の差，電圧分布の斑によって生じた電圧の最大値と最小値の差を示したものである．

表4 シミュレーション結果（カソードガス拡散層表面）

流路幅	温度の最大値と最小値の差 [K]	電圧の最大値と最小値の差 [ $\mu$ V]
1mm	35.8	7.46
4mm	59.7	5.24
7mm	69.7	9.37
10mm	72.2	12.00

この表から温度についてはガス流路幅が小さい程温度差を生じず，良い値を示している．しかし，ガス温度は70 に設定してあるため，どの流路幅についても100 を越してしまい，ガス流だけでは排熱がうまくいかないことがわかる．

電圧についてはどの流路幅に関しても非常に小さい値でこの程度の斑であればそれほど燃料電池に影響を及ぼすとは考えられないが，4mm のときが最も良い値を示しているといえる．

今回の実験において，表4にある流路幅以外についてのシミュレーションはしていないが，7mm よりも1mmの方が各項目において結果が良いことから負荷電流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る．

### 3．まとめ

セパレータ用複合体の抵抗率は，ばらつきはあるものの20m $\cdot$ cm以下の値を示した．これは、目標としている抵抗率を満足するものであった．

また，この複合体をプレス成型してセパレータを作製した．

シミュレーションによる結果からはセパレータに施すガス流路幅は，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，1mmから4mmが適していることがわかった．

### 4．今後の課題

今後は，異なる複合体を用いたセパレータを作製

し，それらを用いて燃料電池を組み上げ，発電性能等を評価する．それにより得られた結果を基にさらなるセパレータ用複合体の性能向上の指針を得ることを目指す．

また，シミュレーションによりガス流路長等の検討を行うとともに，独自に設計した流路パターンを持つセパレータから組まれる積層燃料電池を作製することを目指す．

### 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ました．

### 参考文献

- 1) “小型・低コストPEFC用エラストックセパレータの開発”．平成13年度即効型地域新生コンソーシアム研究開発事業成果報告書(2003)
- 2)中北他：“エラストックセパレータ搭載PEFCの発電性能評価”．平成15年度電気関係学会東海支部連合大会講演論文集．p.80(2003)
- 3)“燃料電池2005”．日経BP社．pp.115-118(2005)
- 4)“燃料電池2004”．日経BP社．p.85(2004)
- 5)“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arbon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)
- 6)富村他：“カーボンブラック・ポリエチレン複合体のパーコレーション閾値前後の抵抗率の温度依存性”．電気学会論文誌，120-A，No.12，pp.1108-1113(2003)