

燃料電池セパレータの薄型化に向けた流路の検討

富村哲也*, 水谷誠司*, 庄山昌志*

Investigation of Flow Channel for thin Bipolar Plate of PEFC

Tetsuya TOMIMURA, Seiji MIZUTANI and Masashi SHOYAMA

The aim of this paper is to investigate the flow channel of bipolar plate of PEFC from the viewpoint of hydrodynamics. It was examined to use the differential pressure measurements of the flow channels and the computer simulation. We assumed the simple model considered the expansion depth of the appearance. The expansion depth of appearance was estimated from Darcy-Weisbach equation using the experimental data. As results of the experiment and the simulation, possibility of the adaptation to the real cell was suggested.

Key words: PEFC, Bipolar Plate, Flow Channel, Reynolds Number, Differential Pressure

1. はじめに

近年, エネルギー問題や環境問題が注目される中, 燃料電池という言葉も広く世の中に浸透してきている. 家庭用燃料電池システムにおいては近く市場投入されるといわれている. このような中, 燃料電池は, コスト, 耐久性などまだ多くの課題が残されており, 多数の研究が現在も進められている. 燃料電池の研究分野は多岐にわたり, 電気化学, 電気工学, 流体力学などさまざまな分野で研究が進められており, セパレータという部材に関する研究においても, 材料に関する研究, 構造等に関する研究, 水管理に関する研究などがある¹⁻³⁾.

我々は, これまで PEFC 用の樹脂セパレータに関して研究を進めてきた⁴⁻⁶⁾. 熱可塑性樹脂をバインダーとして作製したセパレータを用い, 発電試験を行いその性能を評価してきた.

本報告は, 今後さらに低コスト化, コンパクト化が図られると想定されるセパレータについて, 流体力学的視点から, 差圧を測定することによりセル内の状態を評価することが可能か検討することを目的としている.

* 電子・機械研究課

2. 実験方法

2. 1 模擬流路による差圧測定

セパレータ薄肉化に伴い流路形状(断面形状, 深さ・幅など)の変更が必要となることが予測される. 模擬流路を構成するために, 図 1 (a) に示す JARI 製単セルホルダーを用いた. 図 1 (b) に示すような形状に厚さ 0.2mm の PTFE シートをそれぞれ加工し, PTFE シート b の切り抜いた部分に PTFE シートもしくはカーボンペーパー(ガス拡散層: Gas Diffusion Layer: GDL に相当)をはめ込むことにより, 図 1 (c) および (d) の 2 つの模擬流路(case1, case2)を構成した. この模擬流路をセルホルダーに組み込んだ模擬セルで air ガス(dry, wet)を流した際に発生する差圧を測定することにより, 流体力学的な視点から検討を行う.

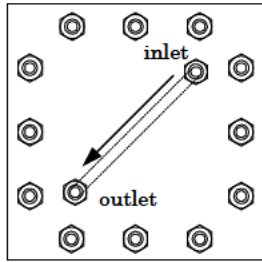
2. 2 差圧データの取り扱い

流体力学の分野では一般的に用いられているレイノルズ数(Re)を式(1)より求めることができる.

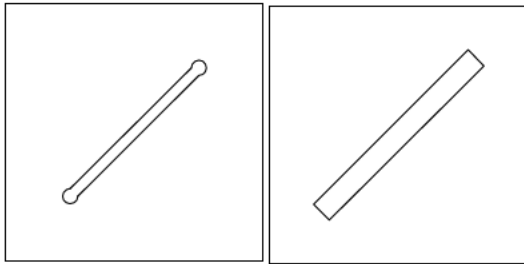
$$\begin{aligned} \text{Re} &= \frac{\text{密度}[\text{kg}/\text{m}^3] \times \text{流速}[\text{m}/\text{s}] \times \text{代表長さ}[\text{m}]}{\text{粘度}[\text{Pa} \cdot \text{s}]} = \frac{\rho \cdot V \cdot d}{\mu} \quad (1) \\ &= \frac{\text{流速}[\text{m}/\text{s}] \times \text{代表長さ}[\text{m}]}{\text{動粘性係数}[\text{m}^2/\text{s}]} = \frac{V \cdot d}{\nu} \end{aligned}$$

但し、代表長さは、円管の場合はその直径を用いるが、セパレータ流路の場合は矩形であるため、等価水力直径 D_h (hydraulic diameter) を用いる。これは、ある流路の断面と等価な円管の直径のことであり、 $4A/L$ (A : 流路断面積, L : 断面長) として用いる⁷⁾。また、密度および粘度は温度、湿度の関数とした^{3,8,9)}。

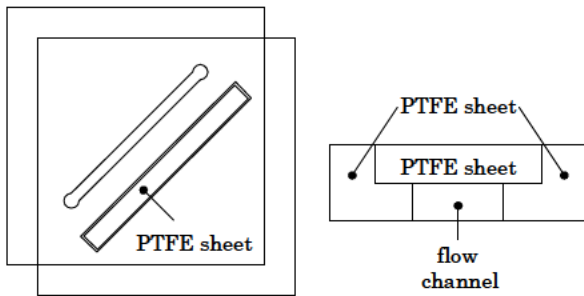
レイノルズ数は、慣性力と摩擦力との比で定義さ



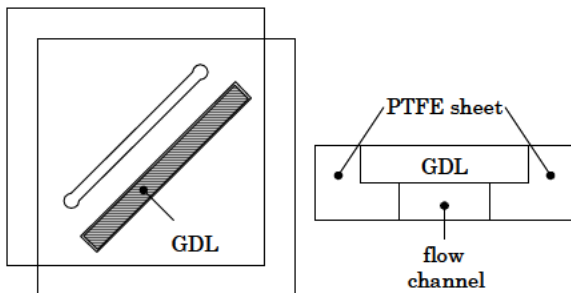
(a) セルホルダー



(b) PTFE sheet a, b



(c) 模擬流路構成 (case1)



(d) 模擬流路構成 (case2)

図1 模擬流路概略図

れる無次元数であり、その値がおおよそ 2000 以下の場合には層流、おおよそ 2000 以上の場合には乱流といわれている¹⁰⁾。PEFCにおけるこの値は、シミュレーション等を用いた研究などから層流の領域にあるとして扱われている¹¹⁾。

3. 結果および検討

3. 1 模擬流路による差圧の検討

図1(c)に示す模擬流路(case1)において、深さ0.2mm、幅30mmの模擬流路が構成される。この模擬流路を用いて、ガス流量(0.2, 0.4, 0.6, 0.8 NL/min)に対する差圧を測定した。但し、模擬流路の温度は30°Cとし、流したairガスはdryガス(露点-40°C以下)とwetガス(露点25°C)を用いた。それぞれの条件におけるレイノルズ数を計算した結果を表1に示す。表より今回の測定条件が一般に層流と呼ばれる範囲(<2000)に入っていることがわかる。図2にレイノルズ数に対する差圧の変化を示す。図よりdry, wetどちらのガスの場合においても差圧は流量増加に伴い増加していることがわかる。図2に示す差圧測定の結果を用いて検討を進める。PEFCにおいては加湿ガスを用いるため、気液

表1 実験条件におけるレイノルズ数

flow(NL/min)	0.2	0.4	0.6	0.8
dry	129	257	385	513
wet	133	265	399	531

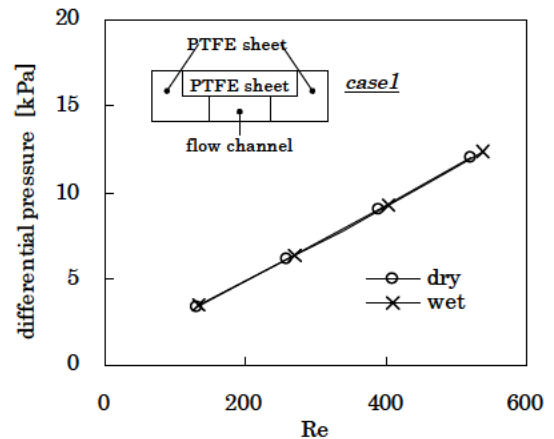


図2 Re に対する差圧の変化

二相流を用いて検討している報告³⁾もあるが、今回はモデルを簡略化するために、単相層流の円管流れ

の損失を求めるダルシー・ワイズバッハの式 (2) を用いる。

$$\Delta P = \lambda \cdot \frac{l}{D_h} \cdot \frac{\rho V^2}{2} \quad (2)$$

- ΔP : 差圧 (kPa)
- λ : 管摩擦係数
- ρ : 密度 (kg/m³)
- V : 平均流速 (m/s)
- D_h : 等価水力直径 (m)
- l : 2点間距離 (m)

但し、管摩擦係数はレイノルズ数の逆数に比例すると仮定し、 $\lambda = C/Re$ 、係数 C は 64、 l は 0.14m とした。

図 3 に式 (2) を用いて計算した差圧と Re の関係を示す。図より、実験結果と計算結果はほぼ一致している。しかしながら、レイノルズ数が大きくなるにつれて、差圧は実験結果より計算結果の方が大きくなる傾向にある。この原因のひとつは、実験における差圧測定は、模擬流路の 2 点間距離以外にセルホルダーから配管までの距離および形状変化など差圧変化に関わる要因があるためと考えている。また、計算に用いた λ は C/Re ($C=64$) と仮定したが、実験より得られた差圧から式 (2) を用いて λ を計算し、最小二乗法より係数 C を求めた結果 63.4 であり、この仮定には問題がないことを確認した。

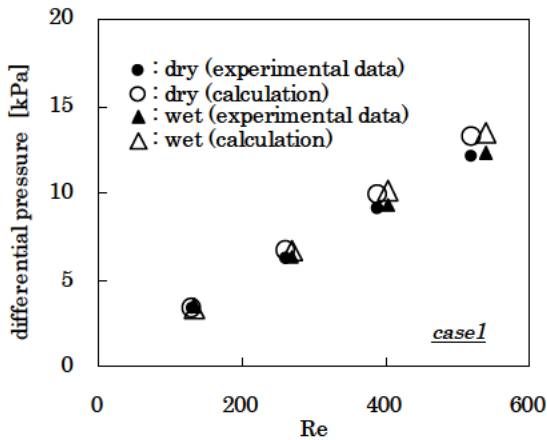


図 3 Re に対する計算より求めた差圧の変化

3. 2 GDL の影響に関する検討

PEFC のガスの流れに関する研究において、流路

が閉塞しても発電可能な状態が続く場合があるという報告¹²⁾がなされている。これは、ガスがセパレータの流路とは別に GDL 内を流れるガス流れが存在するためにガス拡散が継続しているためであると結論付けている。そこで、図 1 (d) に示す模擬流路 (case2) において、より実際のセルを模擬した流路を構成し、差圧測定を行った。ガス流量は case1 の場合と同様、0.2, 0.4, 0.6, 0.8 NL/min である。

Re に対する差圧測定の結果を図 2 に示した結果も含めて図 4 に示す。図より、0.2 mm×30 mm の流路の一面を GDL にすることで、差圧は低くなる傾向にある。これは、他の報告¹²⁾でもあるように、GDL 内にガスの流れが存在するためにこのような結果になったと考えられる。

GDL の影響を検討するために、図 5 に示すような簡単なモデルを用いて検討した。実際、模擬流路として構成される $a \times b$ の断面積を有する流路に対して、GDL を想定した見かけの流路拡張深さ x を考える。この場合、等価水力直径は以下のように仮定した。

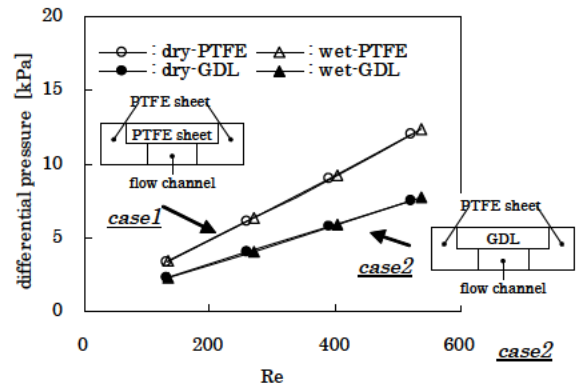


図 4 Re に対する差圧の変化 (2 種類の模擬流路)

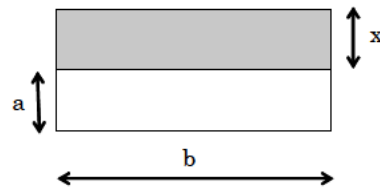


図 5 流路深さ拡張モデルの概略図

$$D_h = \frac{4 \times A}{L} = \frac{4 \cdot [b \cdot (a+x)]}{2 \cdot (a+b+x)} = \frac{2b(a+x)}{a+b+x} \quad (3)$$

但し、図 1 (c) の場合は $x=0$ となる。この等価水力直径 (D_h) を用いて、式 (2) より GDL を入れた場合の見かけの流路拡張深さ x を求める。式 (2) を用いるに際し、見かけの流路拡張深さ x は、等価水力直径 (D_h) および流速 (V) の計算に関係するため単純に解を求めることが出来ない。そのため、Newton-Raphson 法¹³⁾を用いて x の近似解を求める。

まず、基本式として式 (2) を用い、 $f(x)$ を

$$f(x) = \Delta P - \lambda \cdot \frac{l}{D_h} \cdot \frac{\rho V^2}{2} = 0 \quad (4)$$

とする。但し、 ΔP は実験により得られた差圧とする。流量を Q とし、流速 V 、等価水力直径 D_h 、レイノルズ数 Re は以下のようになる。

$$V = \frac{Q}{b(a+x)}$$

$$D_h = \frac{4 \times A_c}{P} = \frac{4 \cdot [b \cdot (a+x)]}{2 \cdot (a+b+x)} = \frac{2b(a+x)}{(a+b+x)}$$

$$Re = \frac{V \cdot D_h}{\nu} = \frac{\frac{Q}{b(a+x)} \cdot \frac{2b(a+x)}{a+b+x}}{\nu} = \frac{2Q}{\nu(a+b+x)}$$

層流を想定しているので λ は Re の逆数に比例しその係数を C とすると、

$$\lambda = \frac{C}{Re} = \frac{C}{\frac{2Q}{\nu(a+b+x)}} = \frac{C \cdot \nu}{2Q} \cdot (a+b+x)$$

式 (3) に上記パラメータを代入すると、 $f(x)$ は、

$$f(x) = \Delta P - \frac{C \cdot \nu}{2Q} \cdot (a+b+x) \cdot \frac{l \cdot \rho}{2} \cdot \frac{b^2(a+x)^2}{2b(b+x)} = 0$$

$$f(x) = \Delta P - \frac{C \cdot \nu \cdot l \cdot \rho}{4Q} \cdot (a+b+x) \cdot \frac{Q^2(a+b+x)}{2b(a+x)[b(a+x)]^2}$$

$$= \Delta P - \frac{C \cdot \nu \cdot l \cdot \rho \cdot Q}{8b^3} \cdot \frac{(a+b+x)^2}{(a+x)^3}$$

一方、 $f(x)$ の一次微分 $f'(x)$ は、

$$f'(x) = -\frac{C \cdot \nu \cdot l \cdot \rho \cdot Q}{8b^3} \cdot \left[\frac{2(a+b+x)}{(a+x)^3} + (a+b+x)^2 \cdot \frac{-3}{(a+x)^4} \right]$$

$$= \frac{C \cdot \nu \cdot l \cdot \rho \cdot Q}{8b^3} \cdot \left[\frac{3(a+b+x)^2}{(a+x)^4} - \frac{2(a+b+x)}{(a+x)^3} \right]$$

求める近似解および誤差 E は以下のようになる。

$$x_{i+1} = x_i - \frac{f(x_i)}{f'(x_i)}$$

$$E = \left| 1 - \frac{x_i}{x_{i+1}} \right|$$

誤差 E をある程度小さな値になるまで繰り返し計算を行うことで $f(x_i) = 0$ となる x_i を求めることが可能である。

Newton-Raphson 法を用いて計算された x の結果を図 6 に示す。流路を構成する一面が GDL である場合 (case2) とそうでない場合 (case1) も、 Re の増加に伴い x の値は飽和する傾向にある。case1 の場合、仮定したモデルから見かけの流路拡張深さ x はゼロであるのに対して、マイナス数 μm ～ プラス数 μm 程度の値を示している。流路を構成する一面を GDL にすること (case2) で明らかに x の値は増加していることがわかり、相対的な評価として用

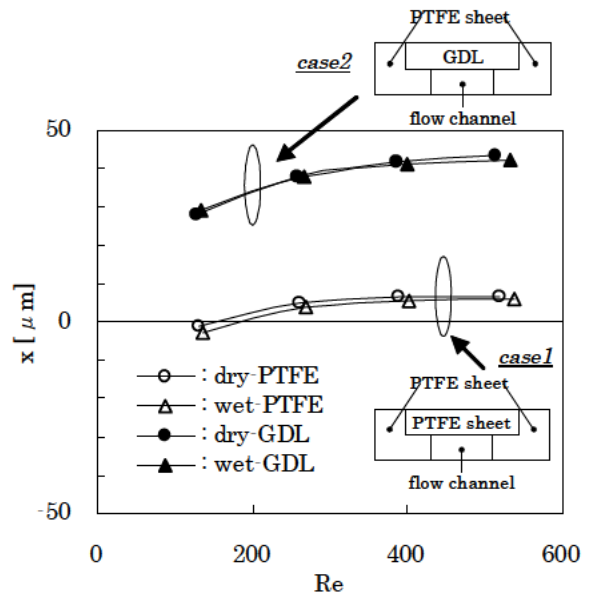


図 6 Re に対する見かけの流路拡張深さ x の変化
 いるには有用だと考える。また、この x の値の増加は、GDL 中にガスの流れがあることも示唆している

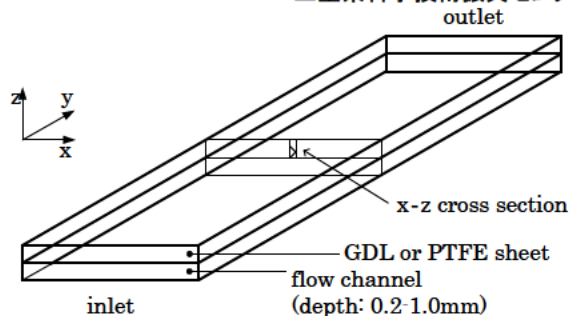


図7 3次元モデル (CFD シミュレーション)

表3 シミュレーションに用いた主なパラメータ

parameter	value
gas / channel temp.	303.15 (K)
channel length	0.08 (m)
porosity	0.6
Sutherland's coefficient A	1.49E-06 (Pa·s)
Sutherland's coefficient B	117

と考えられる。しかしながら、 x の絶対値は2点間距離 l や、管摩擦係数 λ の値により変化し、かつ近似解であるため厳密な値として評価するにはやや不正確であると考えられる。

ここで、見かけの流路拡張深さ x の物理的な意味を考えてみる。実際のGDLは多孔質層であるため、セパレータ流路と同様のガスの流れは起こらず異なる摩擦抵抗が存在すると考えられる。また、GDL内では流路から放射状にガスは流れ込むことが考えられる。そのため、 x はGDLの空隙率および面方向への広がりを含んでいる値になっていると考える。

3.3 薄型化に向けた検討

薄膜化に向けた検討として、CFD (Computational Fluid Dynamics) を用いて流路形状の検討を進める。図7に示すような簡単な3次元モデルを構築し、図2に示す模擬流路の試験結果をシミュレーションし、CFDの計算結果の妥当性を確認した。境界条件は表3に示すとおりである。

図8にCFDにより得られた差圧のシミュレーション結果を示す。図より模擬流路の実験結果の傾向を再現するシミュレーション結果が得られている。case1 (流路上面: PTFE) と case2 (流路上面: GDL) との差圧の差異は実験結果に比べシミュレーションの方が小さくなっている。これは、GDLの空隙率などパラメータに依存しているものだと考えている。

次に、薄肉化した際に予測される流路深さの減少に関して同様の3次元モデルによるシミュレーション

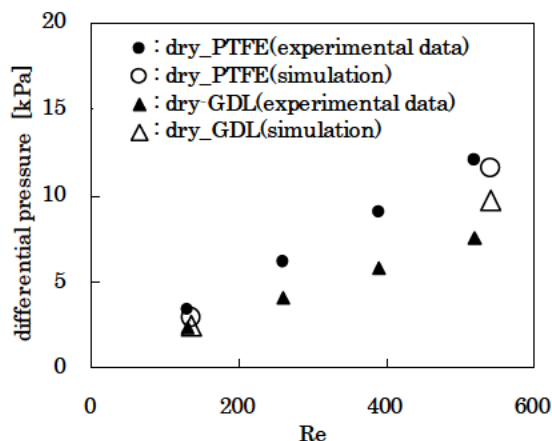


図8 レイノルズ数に対する差圧の変化

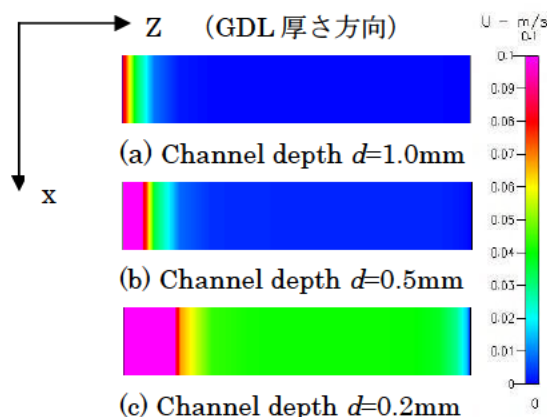


図9 シミュレーション結果 (GDL内の流速分布: 流路方向)

ンを用いて検討を進める。流路深さ d を1, 0.5, 0.2mmと変化させた場合のGDL内の流速をシミュレーションし、図7に示す $x-z$ 平面上の流路中心部分におけるGDL内部の流路方向の流速分布を図9に示す。但し、流路深さの変更に伴うガス流量の変化はないとした。図より、すべての流路深さ d において、流路近傍はガスの流れが存在している。また、流路から離れるに従い流速は小さくなる傾向にある。 d の減少に従ってガスの流れはGDL内部にまで広がっていることがわかる。よって、セパレータの薄肉化によって流路深さが減少することによりGDL内部のガスの流れも変わることが予測された。これにより、GDL内部のガスの流れが発電性能に影響を与えるのならば、流路深さの減少に伴い流路の本数を増やすなどの変更が必要になることが確認された。

4. 結論

セパレータの薄型化に向けた検討として、流体力

学的視点から流路について検討を行った。その結果以下のことが明らかになった。

- (1) 模擬流路を用いた差圧測定の結果より、見かけの拡張深さを用いることにより、GDLへの流れを考慮することができ、実セルへの適応の可能性が示唆された。
- (2) シミュレーションを用いて、差圧測定結果を検討することにより、模擬流路の実験結果を説明することができた。
- (3) シミュレーションを用いて、セパレータの薄肉化に伴う流路の形状変更の影響を検討した結果、流路深さが減少することでGDLに流れるガス量が増加する可能性が示唆された。

今後の課題として、今回用いた見かけの流路拡張深さ x とセルの発電性能にどのような相関関係があるのか検討する必要がある。

参考文献

- 1) 住友金属工業：“固体高分子形燃料電池セパレータ量産化技術開発”。平成15年度～16年度NEDO成果報告書(2005)
- 2) F. Y. Zhang et al.：“Liquid Water Removal from a Polymer Electrolyte Fuel Cell”. J. Electrochem, Soc., A225-A232 (2006)
- 3) A. Theodorakakos et al.：“Dynamics of water droplets detached from porous surfaces of relevance to PEM fuel cells”. J. Power Sources, 300, pp.673-687 (2006)

- 4) 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)”。三重県科振工研報. 29, pp.11-15 (2005)
- 5) 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2報)”。三重県科振工研報. 30, pp.82-86 (2006)
- 6) 富村哲也ほか：“PEFC用セパレータの交流インピーダンス測定による特性評価”。三重県科振工研報. 31, pp.43-46 (2007)
- 7) 日本機械学会編：“管路・ダクトの流体抵抗”。日本機械学会. (1979)
- 8) 日本機械学会編：“気液二相流技術ハンドブック”。コロナ社. p.1436 (1989)
- 9) 国立天文台編：“理科年表”。丸善. p.452 (1999)
- 10) 長倉三郎ほか編：“岩波理化学辞典第5版”。岩波書店. (2006)
- 11) S. Maharudrayya et al.：“Pressure losses in laminar flow through serpentine channels in fuel cell stacks”. J. Power Sources, 138, pp.1-13 (2004)
- 12) 安田陽介ほか：“PEFCにおけるガス拡散層およびセパレータチャンネル内の気液流動特性と電池性能”。第47回電池討論会講演予稿集. pp.208-209 (2006)
- 13) 片桐重延ほか：“新・数学とコンピュータシリーズ5 数値計算”。東京電機大学出版局. (1995)

(本研究は法人県民税の超過課税を財源としていません)