

固体高分子形燃料電池内の水分挙動に及ぼすガス流路形状の影響*

(第1報, 格子ガス法を用いた二次元数値解析による検討)

谷川 洋文^{*1}, 宮崎 祐樹^{*2}, 鶴田 隆治^{*3}

Effect of Gas Channel on Water Formation in Polymer Electrolyte Fuel Cell (1st Report, Two-Dimensional Analyses with Lattice Gas Automaton Method)

Hirofumi TANIGAWA^{*4}, Yuki MIYAZAKI and Takaharu TSURUTA

^{**}Department of Mechanical and Control Engineering, Kyushu Institute of Technology,
1-1 Sensui-cho, Tobata-ku, Kitakyushu-shi, Fukuoka, 804-8550 Japan

Effect of water production on the performance of the fuel cell has been studied numerically. We have done two-dimensional simulations by using the Lattice Gas Automaton (LGA) method in order to analyze the gas flow and water distributions in the different type of flow passages. Three kinds of flow passage, that is, serpentine-type, straight-type and column-type were selected and their performances were compared. The results show that the serpentine-type flow is effective for the drainage and the electric generation performance and the electrode of hydrophilic surface is effective for reducing the plugging phenomenon. It is found that the LGA method is a promising tool for the analysis of the fuel cell performance.

Key Words: Polymer Electrolyte Fuel Cell, Lattice Gas Automaton, Visualization

1. 緒言

固体高分子形燃料電池を日常生活温度領域で作動させた場合、カソード(酸素極)側で生成した水蒸気は、電極構造体内で凝縮・残留し、反応面を塞いで反応を阻害するとともに、供給酸素の流動抵抗となり、発電効率の低減をもたらす。一方で、燃料電池を構成する固体高分子膜は、湿潤状態でのみ高いイオン伝導率を示して出力が維持される。すなわち、固体高分子形燃料電池内部の水分管理は、燃料電池の性能向上に関連して重要な課題であり、数多くの実験ならびに数値解析による検討結果が報告されている。実験に関しては、MPL(Micro-Porous Layer)の有無が発電性能に及ぼす影響⁽¹⁾⁽²⁾、自己加湿形MEA(Membrane Electrode Assembly)としてWTR(Water Transfer Region)を組み込む燃料電池に関する実験⁽³⁾、発電性能向上のために最適なWML(Water Management Layer)の製作⁽⁴⁾等が報告されている。解析的には、有限要素法を用いた酸

素・水素の分布⁽⁵⁾、電流密度・生成水分分布解析⁽⁶⁾、有限体積法を用いた膜内の水分分布解析⁽⁷⁾⁽⁸⁾、PEM(Proton Exchange Membrane)と触媒層を1次元、GDL(Gas Diffusion Layer)と流路を3次元で表したモデルの開発⁽⁹⁾、高温作動時のセル内部の温度・性能分布⁽¹⁰⁾、流路・リブ幅が性能に与える影響⁽¹¹⁾等が報告されている。また、格子ボルツマン法を用いた繊維配置によるGDLモデルの開発とその評価⁽¹²⁾が報告されている。しかしながら数値解析においては、ガス流路内の凝縮水の挙動と発電性能を関連付けた検討は行われていない。そこで本研究では、水素と酸素による発電反応を水の生成と連成してモデル化し、ガス流動と水分挙動を視覚的に捉えられる“格子ガス法”を解析手法とした燃料電池内物質移動二次元シミュレータによる解析から、ガス流路形状および濡れ性が電極構造体内部の凝縮水挙動と発電特性に及ぼす影響について検討を行った。

2. 記号

- r : 低温水粒子間の無次元相互作用距離
 r_w : 低温水粒子-構造体間無次元相互作用距離
 x, y : 無次元座標

* 原稿受付 2009年2月20日。

^{*1} 正員, 九州工業大学大学院工学研究院機械知能工学研究系
(〒804-8550 北九州市戸畑区仙水町1-1)。

^{*2} 学生員, 九州工業大学大学院工学研究院機械知能工学専攻。

^{*3} 正員, フェロー, 九州工業大学大学院工学研究院機械知能工学研究系。

E-mail: tanigawa@mech.kyutech.ac.jp

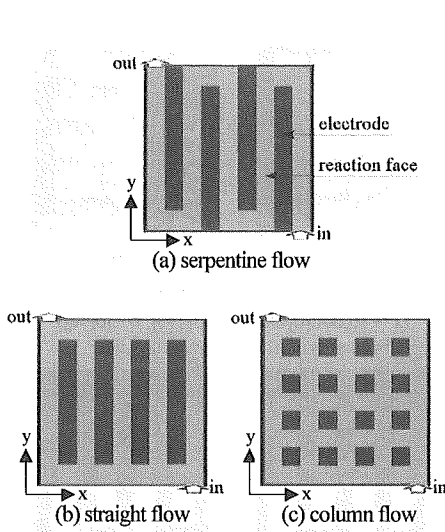


Fig.1 Analytical system

- α : 接触角 [degree]
- β : プロトン発生率 [%]
- η : 流出抵抗 [%]
- τ^* : 無次元時間 [cycle]

3. 数値解析

図1に解析系を示す。酸素極側の電極構造体を二次元でモデル化し、主要な酸素ガス流路の形状であるサーペンタイン型、ストレート型、コラム型を解析対象とし、生成水の挙動と性能評価を行った。

本研究で使用する格子ガス法 (LGA法) は、流体を仮想粒子の集まりとして扱い、隣り合う粒子間の衝突を考慮し、流体の流れパターンなどを自己組織化させ、統計的に解析するものである。非圧縮性の流れという限定条件がつくが、格子ガス法に基づき粒子間の衝突を繰り返すことは、ナビエ・ストークス方程式を解いた場合とマクロレベルで定性的に同じ流れ特性を与えることになる。衝突規則は、正三角形で分割された格子点上に粒子を配置した FHP モデル⁽¹³⁾を適用した。また本解析では、相変化を取り扱うため、数格子 (距離 r) 離れた位置の粒子との相互作用 (引力) を考慮する LG モデル⁽¹⁴⁾を導入した。粒子は、この衝突規則と相互作用に基づき、計算毎に格子間を移動する。またこの計算の繰り返しが時間の進行を意味する。計算は、ガス流路内に酸化ガス粒子、水粒子がない状態からスタートする。仮想粒子の1つである酸素ガスは、下面の開口部からほぼ一定の流量 (計算1ステップあたり平均 268[個]) で流入し、上面の開口部から流出する。

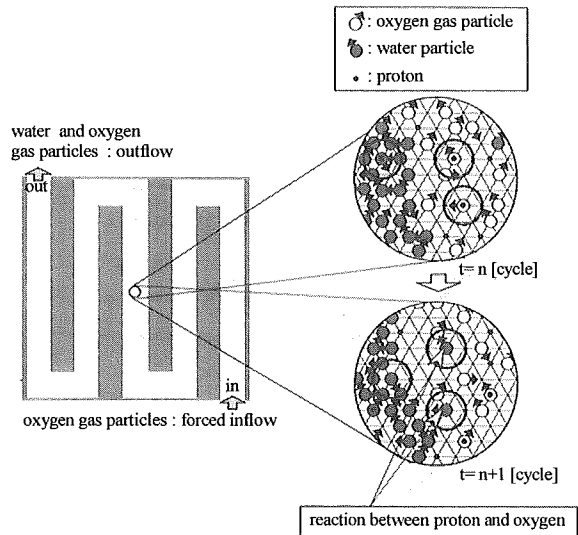


Fig.2 Boundary conditions for flow and reaction

出口開口部には、流出を妨げる粒子を配置し、流出量を変えられるようにしている。この開口部の格子数に対する流出を妨げる粒子数の割合を、流出抵抗 η [%] と定義する (後述の水粒子も同条件で流出)。計算領域全体の格子数は水平方向 1792、鉛直方向 1760 である。

二次元解析モデルであるため、電極構造体を除く流路内 (反応面) にプロトンが任意の確率で時間的・空間的にランダムに発生する境界条件を与える。この反応面格子中、プロトンが発生する格子の割合をプロトン発生率 β と定義する。酸素ガスは、このプロトン上を通過するともう1つの仮想粒子である水粒子に置き換わるとする。この仮想粒子の置換が電極内での反応、すなわち発電を模擬する (図2)⁽¹⁵⁾。なお、サーペンタイン型を基準とした反応面積比は、それぞれ、ストレート型 1.09、コラム型 1.32 である。解析では、酸素ガス粒子間、酸素ガス粒子と電極構造体間、酸素ガス粒子と水粒子間は衝突規則のみを考慮し、水粒子間は衝突規則と相互作用 (引力: 距離 $r=4$) を考慮する。また、水粒子と電極構造体表面間には、衝突規則と、さらに相互作用 (引力: 距離 r_W) を考慮するかしないかで、それぞれ親水性表面、疎水性表面を模擬する。本解析では、サーペンタイン型、ストレート型、コラム型の電極構造体表面をすべて疎水面としている。なお、本解析1サイクルの実時間オーダーを求めると、10,000 サイクルが 0.3 秒に相当する。本報での計算サイクルは最長でも 100 万サイクルであることから、本解析結果は、発電初期の過渡的な現象を捉えているものと考えられる。

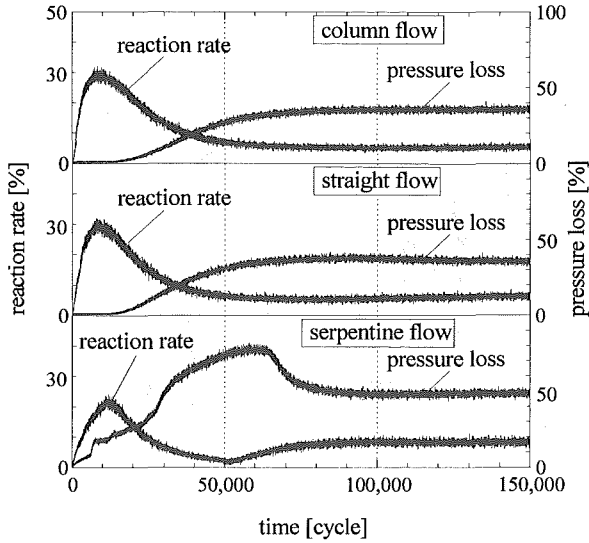


Fig.3 Time transients of the fuel cell performance and the pressure loss ($\beta=0.01[\%]$, $\eta=30[\%]$)

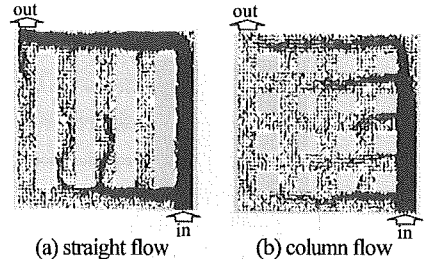


Fig.4 Flow patterns

($\tau^*=10,000[\text{cycle}]$, $\beta=0.01[\%]$, $\eta=30[\%]$)

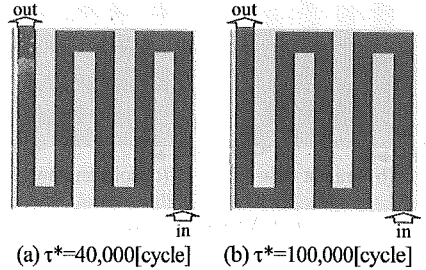


Fig.5 Water distributions

(serpentine flow, $\beta=0.01[\%]$, $\eta=30[\%]$)

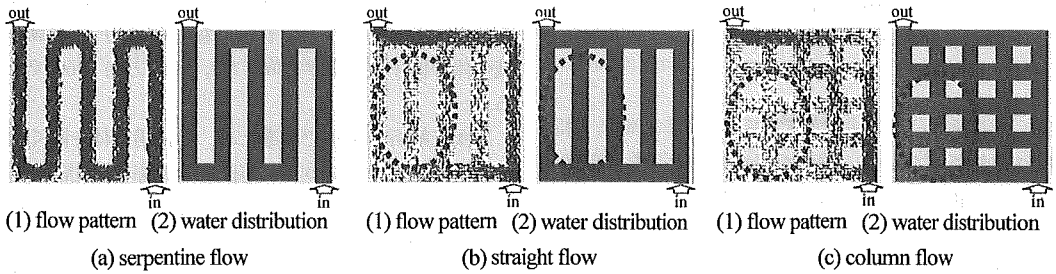


Fig.6 Flow patterns and water distributions

($\tau^*=100,000[\text{cycle}]$, $\beta=0.01[\%]$, $\eta=30[\%]$)

4. 結果および考察

4・1 ガス流路形状の凝縮水挙動および性能に及ぼす影響 図3に発電効率(反応効率)と圧力損失の時間変化を示す。本解析では、計算1サイクル当たりの水粒子の生成量が電極内での反応量すなわち発電量に対応していると仮定しており、境界条件として与えるプロトン発生数に対する生成水粒子数の比率[%]で発電効率を定義する。また圧力損失は、系内部における流量が保存されていることから、入口の流入境界条件で設定した酸素粒子中、入口で反射して流出した酸素粒子の割合[%]で圧力損失の程度を評価する。発電初期($\tau^* < 20,000[\text{cycle}]$)では、サーペンタイン型と比較して、他の2つの流路の方が高い発電効率となっている。

図4に発電初期($\tau^*=10,000[\text{cycle}]$)における酸素ガス流動パターンを示す。ストレート型、コラム型では流路がマルチパスであり、発電初期では酸素ガスは色々な流路を選択して流動している。これに対して、サーペンタイン型の流路はワンパスであり、4つの曲がり部が存在するため流動抵抗が大きく、圧力損失は大きい。その結果、プロトンと酸素ガスが出会う確率が上がり、発電効率が高くなったと考えられる。特にコラム型においては、この流動により、サーペンタイン型と比較した反応面積の増加分が効果的に効率の上昇に寄与している。

図3に示す圧力損失の時間変化を見ると、サーペンタイン型の圧力損失は、 $\tau^*=25,000[\text{cycle}]$ を過ぎたあたりで急上昇し、 $\tau^*=65,000[\text{cycle}]$ を過ぎたあたりで急低下している。この理由をみるために、図5に

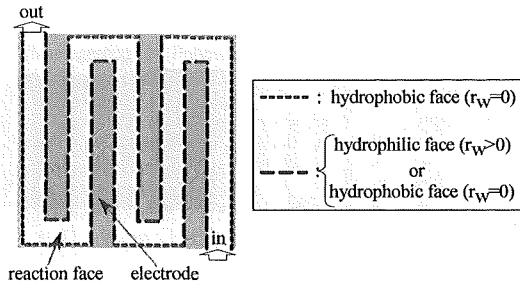


Fig.7 Analytical system for wettability effect

$\tau^*=40,000[\text{cycle}]$, $100,000[\text{cycle}]$ におけるサーペンタイン型の生成水分分布を示す。 $\tau^*=40,000[\text{cycle}]$ では、出口付近で生成水が流路を塞いでおり(プラグギングの発生)、 $\tau^*=100,000[\text{cycle}]$ では、その閉塞水が排出されている。この閉塞水の生成・排出が圧力損失の急上昇・急低下をもたらしたものと考えることができる。

次に、図3に示す発電効率の時間変化を見ると、ストレート型、コラム型の発電効率は、それぞれ $\tau^*=10,000[\text{cycle}]$ をピークに低下し、また $\tau^*=70,000[\text{cycle}]$ を過ぎたあたりで、サーペンタイン型の発電効率よりも低くなっている。この挙動を理解するにあたり、図6に $\tau^*=100,000[\text{cycle}]$ におけるサーペンタイン型、ストレート型、コラム型の酸素ガス流動パターンならびに生成水分分布を示す。ストレート型、コラム型ともに酸素ガスは、発電初期とは異なり(図4)、流動抵抗が小さく、かつ最短ルートを選択して流れている(偏流の発生)。図6中のストレート型、コラム型のガス流動パターン、生成水分分布において、丸く点線で囲んだ部分には流動がほとんど見られない。この“よどみ部”は、反応に寄与しないスペースとなり、生成水が溜まりやすい領域となっている(排水性の低下)。その結果、反応確率は低下し、発電効率が低下したものと考えられる。

4・2 電極流路濡れ性の凝縮水挙動および性能に及ぼす影響 図7に解析系を示す。セパレーター流路形状はサーペンタイン型とし、電極流路側面の濡れ性を変えた解析から、生成水の挙動と性能評価を行った。濡れ性以外の解析条件は、ガスの流出条件を自由流出とした以外は前述の条件と同じである。濡れ性は、 $r=4$ または $r=6$ に固定し、 r_w を変えて変化させている。具体的にその程度を明示するために、引力距離の比 r_w/r をパラメーターとし、電極流路側面上の凝縮水の接触角を調べ、その関係を図8に示す。接触角は、 r_w/r の増加に比例して小さくなり、電極流路側面間の引力

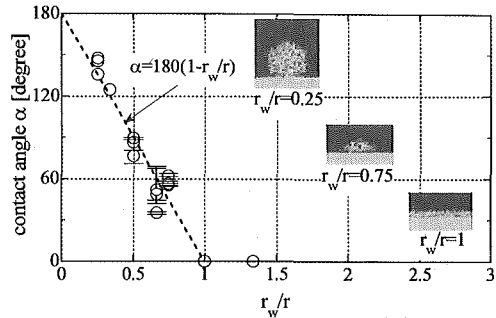


Fig.8 Effect of r_w/r on the contact angle α

距離 r_w と水粒子間の引力距離 r が釣り合う $r_w/r=1$ でゼロとなっている。すなわち、本解析における電極流路側面の濡れ性の程度は、 r_w/r をパラメーターとすることで、撥水面($r_w/r=0$)から親水面($r_w/r>1$)まで変えることが可能である。

図9に電極流路側面の濡れ性の発電効率と圧力損失の時間変化に及ぼす影響を示す。圧力損失の時間変化に着目すると、濡れ性によらず発電初期($\tau^*<200,000[\text{cycle}]$)に急上昇と急低下を示している。これは前述と同様に閉塞水の生成・排出によるものと考えられる(図4)。この閉塞時間は流路の濡れ性により異なり、撥水面の場合がもっとも短く、濡れ性が高くなるにつれて長くなる傾向にある。

発電効率は、発電初期にピークに達し、濡れ性によらずプラグギングにより2~3%まで低下している。プラグギング解消後は、ピーク時の80%程度まで再上昇している。このプラグギング発生時の(圧力損失上昇時)の発電効率の低下は、プラグギングによる流入抵抗の増加が、供給される酸素ガス流量を低下させたことに起因する。

なお本解析では、閉塞水の排出後に周期的な圧力損失ならびに発電効率の時間変動が見られた。これらの変動周期は、濡れ性が良くなるにつれて長くなり、また変動振幅は、濡れ性ととも小さくなる傾向にある。

図10に、圧力損失ならびに発電効率の時間変動時における生成水分分布を、電極流路表面の濡れ性の違いにより比較して示す。それぞれ(1)が圧力損失の大きい時、(2)が圧力損失の小さい時の生成水分分布である。電極流路側面が撥水面の場合(図10(a))、圧力損失が大きい時に流路出口付近に生成水の塊(水塊)が存在している。この水塊が内部ガス(酸素、水)の流動抵抗となり、圧力損失の上昇をもたらしたものと考えられる。圧力損失が小さい時では、ガス流路内に水塊は存在していない。次に電極流路側面が親水面の場合(図

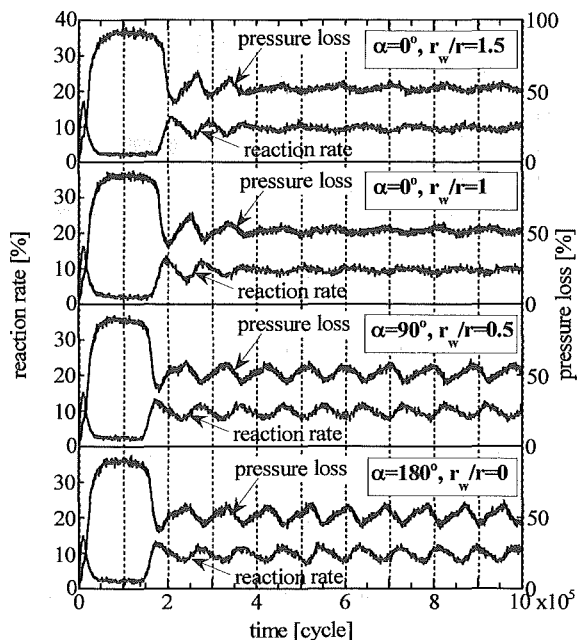


Fig.9 Time transients of the fuel cell performance and the pressure loss
($r=4$, $\beta=0.02[\%]$, $\eta=0[\%]$)

10(b)には、圧力損失が大きい時と同様に流路出口付近の親水面側に生成水の塊(水塊)が存在しているが、疎水面の場合と比較して水塊の流路を塞ぐ面積割合は小さくなっている。ただし、圧力損失が小さい時においても、流路出口付近の親水面側に膜状に広がった水塊が存在している。

電極流路側面を撥水性にすると、水塊は、壁面との接触角が大きくなるため(図8)、流れ方向に広がらず、流れと直交方向に成長する。その結果、水塊は、壁面との吸着力よりもガス流からの抗力が相対的に大きくなった時、流路から排出される。これに対し、電極流路側面を親水性にすると、水塊は、壁面との接触角が小さくなるため、流れ方向に成長する。水塊は、ガス流動によって排出されにくく、流路に残留することとなる。以上により、疎水面での圧力損失変動は、周期が短いものの振幅は大きく、親水面では、振幅が小さいものの周期は長くなるということがわかる。

以上、水素と酸素による発電反応を水の生成と連成してモデル化した“格子ガス法”を解析手法とした燃料電池内物質移動二次元シミュレータは、ガス流動と水分挙動を視覚的に捉え、ガス流路形状および濡れ性の影響を電池特性と関連づけて評価できる有効なツールと言える。

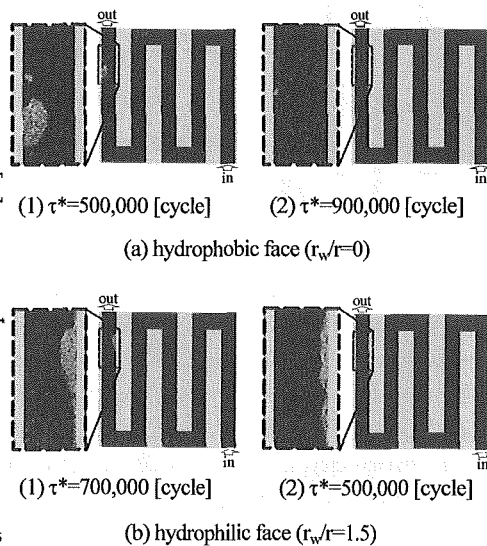


Fig.10 Water distributions
($r=4$, $\beta=0.02[\%]$, $\eta=0[\%]$)

5. 結論

燃料電池酸素極側の電極構造体を二次元でモデル化し、格子ガス法による解析を行った。その結果、本解析によって主要な酸素ガス流路の形状であるサーペント型、ストレート型、コラム型の発電効率、生成水の排水性、圧力損失の特徴を検討できることがわかった。またそれらの比較から、サーペント型は、圧力損失は大きいものの排水性が良く、反応面を有効に活用できることが明らかになった。さらに、サーペント型流路を対象とし、電極流路側面の濡れ性の異なる解析を行った結果、親水面が圧力損失変動および発電効率変動とも小さくなる結果を得た。

格子ガス法を用いた燃料電池内物質移動二次元シミュレータは、ガス流動と水分挙動を視覚的に捉え、電池特性と関連づけて評価できる有効なツールである。

6. 謝辞

本研究で開発したシミュレータは、NEDO 固体高分子形燃料電池実用化戦略的技術開発/次世代技術開発(平成17年度~18年度)の補助を受けて開発したものである。ここに記して謝意を表す。

文献

- (1) N.Holmström, J.Ihonen, A.Lundblad and G. Lindbergh, The Influence of the Gas Diffusion Layer on Water Management in Polymer Electrolyte Fuel Cells, *FUEL CELLS 07*, No.4(2007),306-313
- (2) H. Nakajima, T. Konomi and T. Kitahara, Direct water balance analysis on a polymer electrolyte fuel cell (PEFC): Effects of hydrophobic treatment and micro-porous layer addition to the gas diffusion layer of a PEFC on its performance during a simulated start-up operation, *Journal of Power Sources*,171 (2007),457-463
- (3) E.-D. Wang, P.-F. Shi and C.-Y. Du, A novel self-humidifying membrane electrode assembly with water transfer region for proton exchange membrane fuel cells, *Journal of Power Sources*,175(2008),183-188
- (4) T. Jian-hua, S. Zhao-yuan, S. Jin-song and S. Zhong-qiang, Preparation of water management layer and effects of its composition on performance of PEMFCs, *Energy Conversion and Management*, 49 (2008),1500-1505
- (5) N. Vasileiadis, D.J.L. Brett, V. Vesovic, A.R. Kucernak, E. Fontes and N.P. Brandon, Numerical Modeling of a Single Channel Polymer Electrolyte Fuel Cell, *Journal of Fuel Cell Science and Technology*, Vol.4(2007),336-344
- (6) J.J. Hwang, C.H. Chao, C.L. Chang, W.Y. Ho and D.Y. Wang, Modeling of two-phase temperatures in a two-layer porous cathode of polymer electrolyte fuel cells, *International Journal of Hydrogen Energy*,32 (2007),405 - 414
- (7) H.-M. Jung, K.-S. Lee and S. Um, Macroscopic analysis of characteristic water transport phenomena in polymer electrolyte fuel cells, *International Journal of Hydrogen Energy*,33 (2008),2073 - 2086
- (8) C.-Y. Jung, C.-S. Lee and S.-C. Yi, Computational analysis of transport phenomena in proton exchange membrane for polymer electrolyte fuel cells, *Journal of Membrane Science*,309 (2008), 1-6
- (9) S. Cordiner, V. Mulone and F. Romanelli, Thermal-Fluid-Dynamic Simulation of a Proton Exchange Membrane Fuel Cell Using a Hierarchical 3D-1D Approach, *Journal of Fuel Cell Science and Technology*, Vol.4(2007), 317-327
- (10) J. Peng, J.Y. Shin and T.W. Song, Transient response of high temperature PEM fuel cell, *Journal of Power Sources*,179 (2008),220-231
- (11) S. Shimpalee and J.W. Van Zee, Numerical studies on rib & channel dimension of flow-field on PEMFC performance, *International Journal of Hydrogen Energy*, 32, (2007), 842 - 856
- (12) G. Inoue, T. Yoshimoto, Y. Matsukuma and M. Minemoto, Development of simulated gas diffusion layer of polymer electrolyte fuel cells and evaluation of its structure, *Journal of Power Sources*,175 (2008),145-158
- (13) U. Frisch, D. d'Humieres, B. Hasslacher, P. Lallemand, Y. Pomeau and J.-P. Rivet, Lattice Gas Hydrodynamics in Two and Three Dimensions, *Complex Systems*, 1(1987),649-707
- (14) C. Appert and S. Zaleski, Lattice gas with a liquid-gas transition, *Physical Review Letters*, Vol.64, No.1 (1990), 1-4
- (15) H. Tanigawa and T. Tsuruta, Lattice gas analysis on two-phase flow in cathode of polymer electrolyte fuel cells, *Proc. of the 7th ASME-JSME Thermal Engng. Conf.*, HT2007-32759(CD-ROM) (2007),1-7