

Synchrotron X線 CT を用いた GDL 内液水分布モード可視化解析 Visualization and Analysis of Water Distribution Modes inside GDL using a Synchrotron X-ray CT

樋口 勝, 杉本 俊樹, 峰岸 泰之, 渡邊 健太郎, 荒木 拓人
Masaru Higuchi, Toshiki Sugimoto, Yasuyuki Minegishi, Kentaro Watanabe, Takuto Araki

横浜国立大学
Yokohama National University

固体高分子形燃料電池 (PEFC) の発電性能向上のために, 構成部材の一つであるガス拡散層 (GDL) 内の様々な液水輸送モードを把握する必要がある. そこで本研究では, 水蒸気の凝縮及び液滴の圧入によって GDL 内に発生する液水分布を SPring-8 の高輝度放射光 BL20B2 ビームラインを用いて可視化を行った. 可視化結果から, 各モードにおいて液滴の体積や分布に大きな違いがあることがわかった.

キーワード: 固体高分子形燃料電池, ガス拡散層, 3次元 CT

背景と研究目的:

燃料電池及び水素技術は, エネルギー供給の安定化・効率化, 環境問題等を解決するための重要な技術の一つとして, その実用化への期待が高く活発に研究が行われている. その中でも PEFC は, 高出力密度, 低温作動等の特徴を活かした家庭用, 可搬型電源及び自動車用電源としての普及が期待されており, その実用化もされ, 着実に研究成果を上げている. しかしながら, 更なる普及には多くの課題が存在し, 特に PEFC セル内部の水分管理は重要な課題の一つである. 例えば, カソード側の GDL は, ガス流路から触媒層間の反応物質(酸素, 生成水)の輸送媒体としての役割を担い, その特性はセル性能に大きな影響を及ぼす. 電解質の乾燥(プロトン伝導性低下)や, 微細多孔体内で凝縮した水分が滞留して酸素輸送を阻害することでセル電圧の低下を招く. 前者には GDL の熱輸送特性や水蒸気拡散特性, 後者には GDL の含水条件下における酸素拡散特性や液水排出特性がそれぞれ大きな影響を及ぼしている.

また, PEFC 内部の温度や温度勾配によって生成水の凝縮場所や輸送量は影響を受けるが, これが触媒層と GDL の界面付近を水蒸気として拡散的に輸送されるのか, 液滴として表面張力によって輸送されるのかはまだ判明していない. X線・中性子線 CT による *in situ* での知見も蓄積されつつあるが[1, 2], GDL 内水分管理の最適化のためには様々な含水モードそれぞれの特性を把握する必要がある. そこで本研究では GDL 内部での水分輸送状態を把握するために, BL20B2 にて 3次元 X線 CT 可視化手法を用いて, 水蒸気凝縮及び液滴圧入による GDL 中における液水の分布及び排出過程を観察し, 双方の輸送のモードについて検討することを目的とする.

実験:

試料は東レ TGP-H-060 カーボンペーパー-GDL を用いた. GDL は炭素繊維を積層した繊維質多孔体であり, 厚さは 0.19 mm である. これを直径 3.5 mm の円盤状にし, 1~5 枚積層した.

イメージングの際, X線エネルギーは 13 keV とし, 露光時間は 150 秒とした. 再構成には 1500 枚の画像を用いた.

GDL の含水方法として今回は凝縮法, 液滴圧入法, 乾燥法の 3 種を用いた. 図 1 にはそのうち凝縮法装置の可視化領域周辺の拡大図を示す. 凝縮法では, 多孔体試料は円筒状の亚克力ホルダーに設置し, 試料の上下には円筒状の金属が接触しており, 下の円筒はヒーターと, 上の円筒は冷却フィンと接触している. ヒーターの下にはバネがあり, これの変位で圧縮荷重をかける. ヒーターを加熱しフィンを冷却する事で装置内部に温度勾配が生じる. この時, 加湿したガスを装置内部に流す事で, GDL 内部に水蒸気を凝縮させる.

液滴圧入の試験では, 多孔体試料は円筒状の亚克力ホルダーに設置し, ホルダー上部からは

空気を流し，下部からは液水を圧入する．圧入はマイクロシリンジをシリンジポンプに設置して実施する．試料の下にはアクリル製の円筒形スペーサーとバネを挿入し，バネの変位で圧縮荷重をかける．

乾燥法では，真空含水させた GDL をアクリルホルダーに設置し，自然乾燥させた．

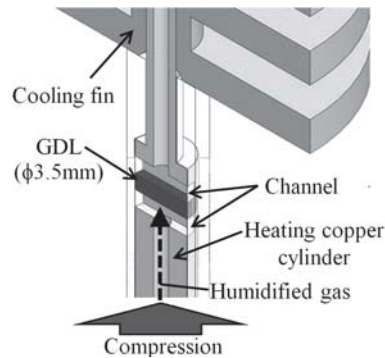


図 1. 凝縮法装置の可視化領域周辺における拡大図

結果および考察：

GDL 内の液水の大きさについて定量的な評価を行うために，各含水法における液滴の面方向断面面積分布を図 2 に示した．縦軸は液滴個数に各液滴の断面積を乗じた各区分ごとの液滴面積の合計を示している．この図から，凝縮法では 10^3 から $10^5 \mu\text{m}^2$ 付近に幅広く分布しているのに対し，圧入法では $10^5 \mu\text{m}^2$ 付近にピークが存在し， $10^4 \mu\text{m}^2$ 以下の小さな液滴はほとんど存在しないことがわかる．これは，図 3 の 3 次元液水分布画像からもわかる．

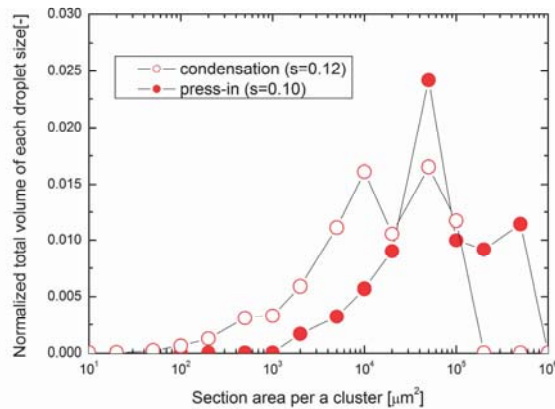


図 2. 各含水法における液滴断面面積分布

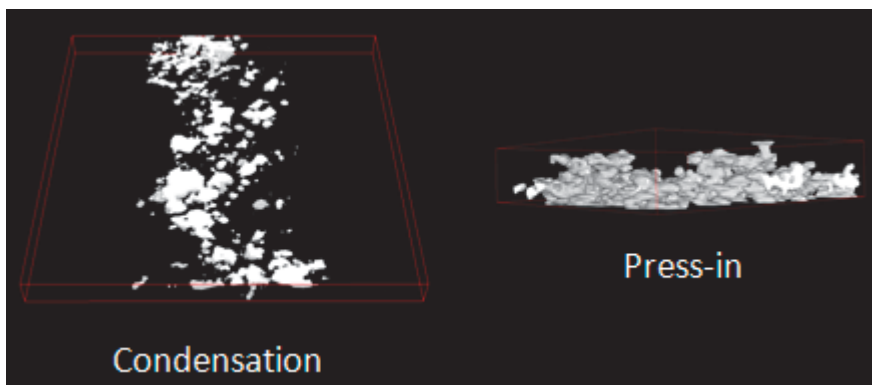


図 3. 各含水法における 3 次元液水分布画像

各含水時の GDL の可視化結果を用いた数値解析から算出した厚さ方向の拡散係数を図 4 に示した。このとき拡散係数は乾燥時の値で規格化しており、数値解析モデル中では液水飽和度 s とパラメータ m の関数として表すことが多い。この図から、凝縮法の結果は $m=3$ の曲線、圧入法、乾燥法の結果はともに $m=2$ の曲線の近傍を示した。凝縮法では GDL 内に大小様々な独立した液滴が存在するため、屈曲度が増加し拡散係数が低下したと考えられる。圧入法では液水が数か所に集中し、拡散方向に柱状に分布していたためその他の場所では拡散特性が高く、全体の拡散係数が高くなったと考えられる。乾燥法では乾燥状態の GDL の場合でも拡散経路とならないような小さい空隙に液水が存在していたために液水が拡散に大きな影響を与えず、高い拡散特性を示したと考えられる。

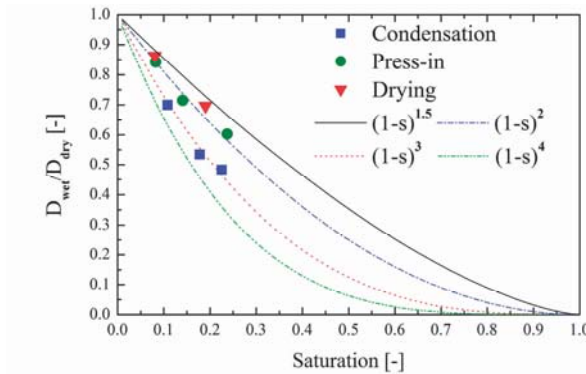


図 4. 各含水法における厚さ方向の拡散係数

参考文献：

- [1] J. Eller and F. N. Büchi, *J. Electrochim. Soc.*, **158** (8), B963 (2011).
- [2] P. Deevanhxay, et al., 第 49 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, D-222 (2012).