

## 固体高分子燃料電池の膜物性測定と電流分布解析

学生員 郡 央任\* 学生員 谷内 拓哉\*  
正員 荒木 拓人\* 正員 恩田 和夫\*Measurement of physical properties of membrane  
and analysis of current density distribution at a polymer electrolyte fuel cell

Hironori Koori\*, Student member, Takuya Taniuchi\*, Student member, Takuto Araki\*, Member, Kazuo Onda\*, Member

In order to grasp properly PEFC power generation performances, it is necessary to know factors for water management such as transmissivity and electro-osmotic coefficient of water vapor through the membrane, and factors for power loss such as active and resistive overpotentials. In this study we have measured these factors to analyze our experimental results of PEFC power generation tests by our two-dimensional simulation code. It considers simultaneously the mass, charge and energy conservation equations, and the equivalent electric-circuit for PEFC to give numerical distributions of hydrogen/oxygen concentrations, current density, and gas/cell-component temperatures. The numerical distributions of current density under various operating conditions agreed well with the measured distributions by segmented electrodes, which had grooves for hydrogen/oxygen supply and were mold in our test cell being electrically insulated. Hydrogen/oxygen concentration changes measured by gas chromatography along the gas supply grooves gave also the experimental current distributions, which coincided almost with those by the segmented electrodes. Factors to correct the small difference between the measured and the calculated current density distribution are also discussed from the stand point of the physical meaning of the calculated results considering factors which are not taken into account in our code.

キーワード：固体高分子燃料電池，透過係数，電気浸透係数，膜抵抗，過電圧，電流分布解析

Keywords : Polymer electrolyte fuel cell, Transmissivity, Electro-osmotic coefficient, Membrane resistance, Overpotential, Current density analysis

## 1. まえがき

固体高分子燃料電池(PEFC)は構成が比較的簡単で、出力密度や発電効率がよく、他の燃料電池に比べ低温で運転できるなどの特徴を持っている。また、燃料電池は発電に伴う環境汚染物質の排出が少なく、環境に優しい発電方法と言われている。そのため、PEFCは携帯電話やパソコンなどの携帯用や電気自動車などの電源、また家庭用分散型電源として期待されている。しかし、PEFCの性能はセル温度や加湿条件など様々な運転パラメータに影響されるため、実験や解析により運転条件を最適化する必要がある。

これまで、我々はPEFCの研究開発に有益な発電特性の解析法を確立することを目指してきた<sup>(1)</sup>。PEFCの性能はセル内の水分挙動や過電圧などにより影響されるので、まず、実験的にPEFC単セルを用いて膜物性や過電圧を測定した。

つまり、拡散電極における水蒸気の拡散係数や、膜電極接合体(MEA)における水蒸気の透過係数や電気浸透係数、発電特性を左右するMEAの膜抵抗や過電圧をまず測定した。次に、これら膜物性などの測定結果を整理した式を用い、NguyenらのMEAと拡散電極を一体と考える方法<sup>(2)</sup>をそれぞれに質量や熱の収支を取る計算法に発展させ、PEFCの発電特性を解析した。更に解析結果の信頼性を実験的に確認するため、セル流路に沿う電流分布を測定し、解析電流分布と比較検討した。電流分布は分割電極セルと、ガスクロにより水素や酸素の流れに沿う濃度変化を求める2つの方法で測定し、測定結果の妥当性を検討した。このように、本研究はPEFCの解析法を検討するのみならず、実測したセルの膜物性や過電圧などを解析に反映させ、解析した電流分布を実測分布と比較し、解析の信頼性を確認した。このような研究はこれまで報告されていないので、本研究はPEFCの開発に有益と思われる。

\* 豊橋技術科学大学 電気・電子工学系  
〒441-8580 豊橋市天伯町雲雀ヶ丘 1-1  
Toyohashi Univ. Tech, Electrical and Electronic Eng.,  
1-1 Hibarigaoka, Tenpaku-cyo, Toyohashi 441-8580

## 2. 膜物性や過電圧などの測定

2.1 膜物性の測定法 拡散電極における水蒸気の拡散係数や、MEA における水蒸気の透過係数や電気浸透係数の測定法はセル出入口で平均した水蒸気濃度を用い、セル全体の定常状態における水蒸気移動量を測定して求めた。セル全体の定常状態における水蒸気透過量は、流路ガスと拡散電極の間での物質伝達率  $h(v)$  を考慮すれば図 1 のように表せ、以下の式で記述できる。

$$M_x = h_a(v)(C_a - C_{a,dif})A \quad (1)$$

$$M_x = D_{dif}(C_{a,dif} - C_{a,MEA})A/d_{dif} \quad (2)$$

$$M_x = Tr(C_{a,MEA} - C_{c,MEA})A/d_{MEA} \quad (3)$$

$$M_x = D_{dif}(C_{c,MEA} - C_{c,dif})A/d_{dif} - M_e \quad (4)$$

$$M_x = h_c(v)(C_{c,dif} - C_c)A \quad (5)$$

$$\frac{C_a - C_c}{M_x} = \frac{1}{h_a(v) \cdot A} + \frac{1}{h_c(v) \cdot A} + 2 \frac{d_{dif}}{D_{dif} \cdot A} + \frac{d_{MEA}}{Tr \cdot A}$$

$$= 2R_h(v) + 2R_{dif} + R_{MEA} \quad (6)$$

ここで、 $d_i$  は各層の膜厚、 $D_{dif}$  は拡散電極の拡散係数、 $Tr$  は MEA の透過係数であり、 $C_i$  は構成要素間の水蒸気濃度、 $M_x$  は図 1 に実線で示すアノードからカソードへ移動する水蒸気流量を表す。添え字は、 $dif$  が拡散電極、 $a$  がアノード、 $c$  がカソードを表す。また、 $h_i(v)$  の  $v$  は水蒸気を含む供給ガス速度であり、供給ガス流量  $Q$  をガス流路の断面積で割って得られる。 $h_i(v)$  は  $v$  が速くなるほど大きくなり、今回の実験条件では、 $h_i(v)$  は大きく、 $R_h(v)$  は  $R_{dif}$  や  $R_{MEA}$  と比べて小さいので省略した。

定常状態では各要素における  $M_x$  は一定で、各要素で(1)から(5)式まで 5 個の関係式が成立し、これらを整理すると(6)式が導出できる。測定は、セル温度を 50、60 と変えアノード加湿温度をカソード加湿温度より高く保ち、セル出入口で露点を測定することにより、水蒸気移動量を測定した。流路中の水蒸気濃度は  $C_a$ 、 $C_c$  は出入口の平均とし、アノードからカソードへ移動する水蒸気流量  $M_x$  はアノード、カソードそれぞれの水蒸気移動量を平均して算出した。測定は MEA+拡散電極、拡散電極のみの 2 通りに対して行い、MEA の透過係数は(MEA+拡散電極) - (拡散電極のみの移動量)から求めた。

また、電気浸透係数の測定は上で求めた透過係数、拡散係数を用いて、以下の式から求めることができる。

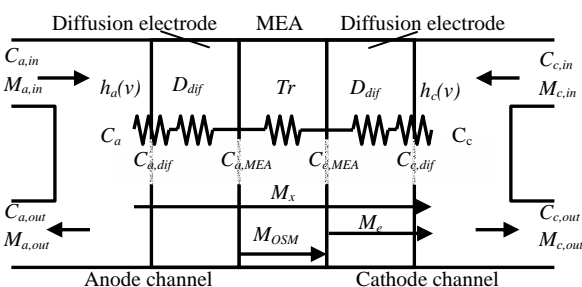


図 1 PEFC 中の水蒸気移動モデル

Fig.1 Transport model of water vapor in PEFC

$$M_x' = h_a(v)(C_a - C_{a,dif})A \quad (7)$$

$$M_x = D_{dif}(C_{a,dif} - C_{a,MEA})A/d_{dif} \quad (8)$$

$$M_x' = Tr(C_{a,MEA} - C_{c,MEA})A/d_{MEA} + M_{OSM} \quad (9)$$

$$M_x' = D_{dif}(C_{c,MEA} - C_{c,dif})A/d_{dif} - M_e \quad (10)$$

$$M_x' = h_c(v)(C_{c,dif} - C_c)A - M_e \quad (11)$$

$M_e$  は生成水、 $M_{OSM}$  は電気浸透による移動量である。5 つの関係式を(1)から(5)と同様に整理すると、 $R_{dif}$ 、 $R_{MEA}$ 、 $R_h(v)$  には前節で整理した値を、 $C_a$  と  $C_c$ 、 $M_x'$  は測定から、また  $M_e$  は通電量から求まるため  $M_{OSM}$  が得られ、電気浸透係数  $n_d$  は(12)式で求まる。

$$n_d = \frac{M_{OSM} \cdot F}{18 \cdot I} \quad (12)$$

ここで  $F$  はファラデー定数、 $I$  はセル電流である。MEA には JAPAN GORE TEX 社の GORE SELECT を用い、拡散電極には Carbon Cloth を用いた。拡散電極の拡散係数と MEA の透過係数を測定整理した後、水素と空気を流し、MEA に電流を流して電気浸透係数を測定した。このとき加湿窒素で測定した拡散係数や透過係数は水素と空気を流した場合でもそのまま適用できると仮定した。

2.2 拡散係数、透過係数と電気浸透係数の測定結果 膜温度  $T_{mem}$  と相対湿度に対する拡散電極における水蒸気の拡散係数  $D_{dif}$  と MEA における透過係数  $Tr$  の測定結果を図 2 に示す。我々の MEA の透過係数は Nguyen らの整理式<sup>(2)</sup>と相対湿度に対して同じ傾向を示すが、値は約 7 倍と大きい。山田ら<sup>(3)</sup>の  $Tr$  は我々の  $Tr$  より更に大きく、相対湿度に対し逆の傾向を示している。後の我々の解析では、Nguyen らの整理式を 7 倍した透過係数  $Tr$  で我々の測定を近似して用いた。空気中の水蒸気拡散係数を  $D_{Air-H_2O}$  と示すと、空隙率  $f$  を持つ拡散電極中の拡散係数  $D_{dif}$  が次式で表されるとすると、我々の拡散電極の  $f$  は約 0.25 となる。

$$D_{dif} = f \cdot D_{Air-H_2O} \quad (13)$$

MEA の電気浸透係数  $n_d$  の測定結果を図 3 に示す。電気浸透係数は相対湿度に対して Nguyen らと同じ傾向を、山田らと逆の傾向を示した。また、我々の MEA は膜温度が 50 では Nguyen らと同程度の値となり、60 では、Nguyen らの約 2 倍の値となった。後の解析では 60 の実験結果と比

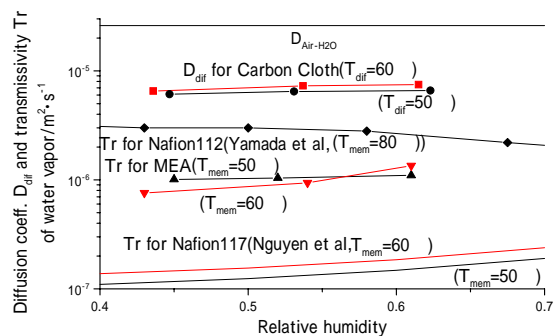


図 2 水蒸気の拡散係数  $D_{dif}$  と透過係数  $Tr$  の膜温度  $T_{mem}$  と相対湿度による変化

Fig.2 Change of diffusion coefficient  $D_{dif}$  and transmissivity  $Tr$  by temperature  $T_{mem}$  and relative humidity

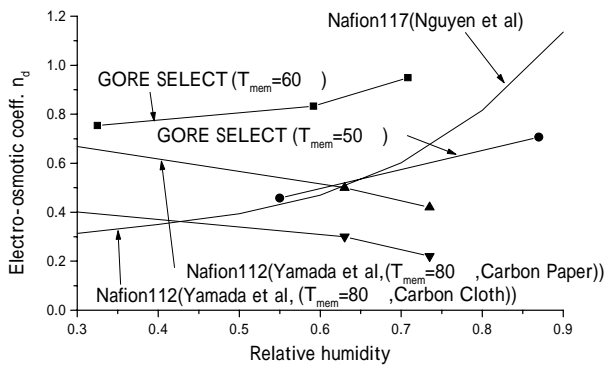


図3 電気浸透係数  $n_d$  の膜温度と相対湿度による変化  
Fig.3 Change of electro-osmotic coefficient by temperature and relative humidity

較した解析を行ったので、 $n_d$  は Nguyen らの整理式<sup>(2)</sup>の2倍とした。

2.3 発電実験装置と膜抵抗、過電圧測定 PEFC の発電特性は膜抵抗と過電圧に大きく支配されるので、これらを図4に示す装置<sup>(1)</sup>で測定した。図4の単セル実験装置において溝付き通電板には恒温水を通し、セル温度一定で実験した。膜抵抗は、アノードとカソードの加湿温度を同じにし、無負荷状態で加湿状態が変わらないようにし、セル温度と加湿温度を変えて測定した。膜抵抗は交流インピーダンス計(SOLARTRON SI1280B)により同じ条件で3回同じ値が得られることを確認して測定した。解析では相対湿度がカソードからアノードまで直線的に分布するとして、抵抗過電圧  $\eta_{ohm}$  は、

$$\eta_{ohm} = \left( \frac{1}{a_a - a_c} \int_{a_c}^{a_a} \rho da \right) d_{MEA} \cdot i \quad (14)$$

(14)式で求めた。ここで、 $a$  は流路中ガスの相対湿度、 $d_{MEA}$  は MEA の厚さを示す。

過電圧の測定では、アノードとカソード共に流量を 600cc/min と多くし、 $H_2$  や  $O_2$  の利用率を低く抑え、流れに沿って電流や過電圧  $\eta_{act}$  が大きく変わらないようにし、式(15)によりセル全体の  $\eta_{act}$  を求め、整理した。

$$\eta_{act} = V_{Nernst} - V_{cell} - \eta_{ohm} \quad (15)$$

ここで、膜抵抗は電流密度を変えると、内部加湿状態の変化と共に変わるので、それぞれの電流密度  $i$  において交流インピーダンス計で測定した。 $V_{cell}$  はセル電圧で  $V_{Nernst}$  は Nernst 起電力で、活物質の分圧は水蒸気分圧を考慮し、出入口の平均で求めた。 $\eta_{act}$  は、酸素分圧  $P_{O_2}$  と電流密度  $i$  を変化させて測定を行った。 $\eta_{act}$  には、濃度過電圧も含まれるが、本研究の実験範囲では拡散過電圧は小さいと見積もられたので活性化過電圧を主体に  $\eta_{act}$  と記した。実験はセル温度 60 で行い、アノードに水素を流し、カソードに酸素濃度  $C_{O_2}$  を 0.05、0.2、1 と変えた酸化剤を流し、大気圧状態でセル温度  $V_{cell}$  を測定し、 $\eta_{act}$  を求めた。

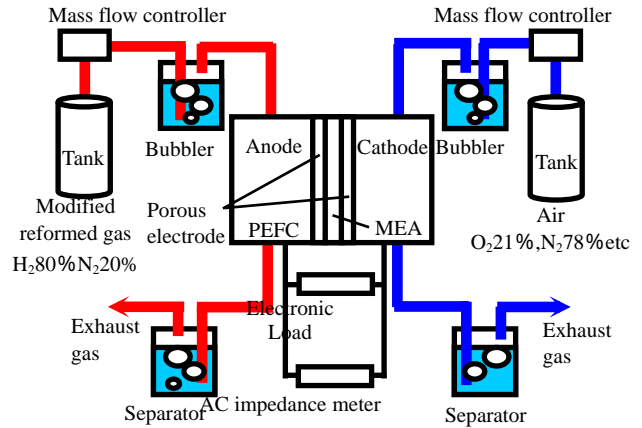


図4 実験装置

Fig.4 Schematic diagram of experiment apparatus

2.4 膜抵抗と過電圧の測定・整理結果 求めた膜抵抗率  $\rho$  の相対湿度  $a$  に対する変化を図5に示す。膜温度が 50 から 80 の間で、膜抵抗に大きな差は見られなかった。Nguyen らと同様に相対湿度が大きくなると膜抵抗率  $\rho$  は小さくなり、実験結果は相対湿度  $a$  の関数として我々独自の(16)式で整理した。

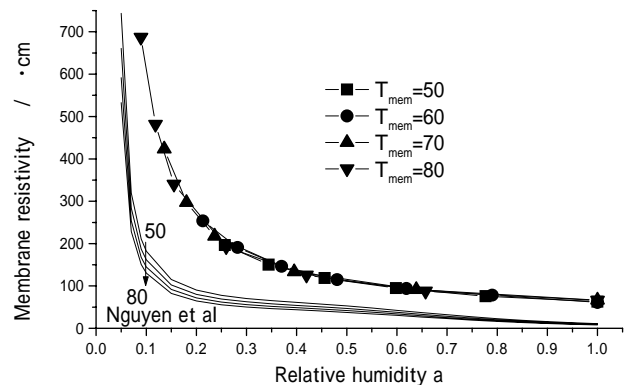


図5 膜抵抗率の温度、相対湿度変化

Fig.5 Change of membrane resistance by temperature and relative humidity

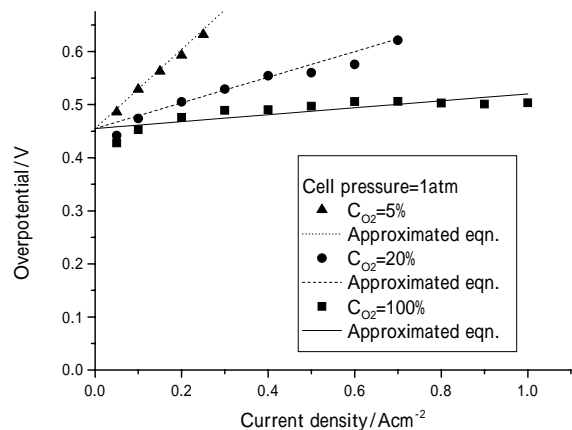


図6 過電圧の酸素濃度と電流密度に対する変化

Fig.6 Change of overpotential by oxygen concentration and current density

$$\rho = 57.3 + 383 \exp\left(-\frac{a - 0.089}{0.049}\right) + 244 \exp\left(-\frac{a - 0.089}{0.268}\right) \quad [\cdot \text{cm}] \quad (16)$$

測定された過電圧の酸素濃度  $C_{O_2}$  と電流密度  $i$  に対する変化を図 6 に示す。酸素濃度を変化させて過電圧を測定したところ、Nguyen の整理式<sup>(2)</sup>とは異なり、電流密度が  $0.1 \text{ A/cm}^2$  以上では、ほぼ直線的に変化した。そこで過電圧  $\eta_{act}$  を以下の(17)式で整理した。

$$\eta_{act} = \frac{0.065}{P_{O_2}^{0.81}} \cdot i [\text{A/cm}^2] + 0.455 [\text{V}] \quad (17)$$

ここで  $P_{O_2}$  は酸素分圧[atm]を、 $i$  は電流密度[A/cm<sup>2</sup>]を示す。

### 3. 電流分布の 2 種類の測定による確認

3.1 測定方法 膜物性などの測定結果を解析に用い、解析の信頼性を確認する 1 つの手段として、電流分布を測定し解析結果と比較検討することにした。PEFC の流れに沿う電流分布は、分割電極セルとガスクロによる活物質の濃度変化測定との 2 つで計測し、相互の電流分布の一致性を確認した。co-flow で流した分割電極セルの構成を図 7 に示す。電極は分割されてアクリルフレーム中に固定され、各分割電極に接続されたシャント抵抗(12m $\Omega$ )の電圧から、流れに沿う電流分布を測定することができる。ガスサンプリングポートは金属管で、電流リードの役割も果たしている。分割電極には MEA と接する側にガス流路が設けてあり、アクリルフレームの流路と併せてサーペンタイン形の 1 流路が構成されている。電流は拡散電極を通り横方向にも流れるが、膜厚方向と横方向の抵抗を測定したところ、横方向の方が 1 桁程度大きかったので、ほとんどが膜厚方向に流れると思われる。一方、ガスクロによる電流分布の測定は、アノードには H<sub>2</sub>80%、N<sub>2</sub>20%の模擬改質ガスを、カソードに空気を流して発電すれば、それぞれ N<sub>2</sub> の流量は変わらないので、N<sub>2</sub> 流量を基準にガスクロにより測定した H<sub>2</sub>、O<sub>2</sub> の濃度変化から H<sub>2</sub> と O<sub>2</sub> の消費量が求められ、これをファラデー定数 F を用いて変換し、分布を測定することができる。ガスは分割電極や溝に沿って開けた穴を通して  $0.25 \text{ cm}^3/\text{min}$  の吸引速度で  $1 \text{ cm}^3$  を採取した。メタンの改質ガスには 20%程度の CO<sub>2</sub> が含まれるが、CO<sub>2</sub> は水に溶け易く基準流量になりにくいので、本研究では N<sub>2</sub> を基準とした。また、セル設計において流路溝の断面が小さく圧力損失が大きいと、拡散電極を通して隣接する溝にガスが流れてしまうため、流路を流れる流量に対して拡散電極を通り抜けるガス流量が計算上 1/10 以下になるように流路の断面を  $1 \times 1 \text{ mm}^2$  とした。

3.2 測定結果 表 1 に示す実験条件で測定した。分割電極とガスクロで測定した電流分布を比較して図 8、9 に示す。図 8 は平均電流密度  $i_m=0.3 \text{ A/cm}^2$ 、図 9 は平均電流密度  $i_m=0.4 \text{ A/cm}^2$  の場合である。ガスクロによる測定結果は分割電極セルによる測定値と同程度のレベルとなったが、ばらつきが大きい。各測定穴で求めた活物質の濃度差から消費された流量(つまり電流)を求めるため、前段の消費

量が大きいと次段では消費量が小さくなり、ばらつき易い。また、表 1 の実験条件では O<sub>2</sub> 利用率 U<sub>O</sub> が H<sub>2</sub> 利用率 U<sub>F</sub> より低いことや、O<sub>2</sub> 消費量は H<sub>2</sub> 消費量の半分であること、空気中の O<sub>2</sub> 濃度が低いなどの理由で、O<sub>2</sub> 濃度の変化が小さいので O<sub>2</sub> 消費量はばらつき易い。以上の結果から分割電極セルによる電流分布はガスクロによる電流分布と同程度のレベルになったので、ガスクロによる濃度測定に伴うばらつきと測定に時間がかかることを考慮し、次章の解析では分割電極セルによる電流分布と比較することとした。

表 1 発電実験条件

Table 1 Experiment conditions for power generation

	Fig.8	Fig.9
Cell temperature[ ]	60	
Anode flow rate[cc/min]	48	
Cathode flow rate[cc/min]	136	
Anode dew temperature[ ]	60	
Cathode dew temperature[ ]	Not humidified	
Average current density $i_m$ [A/cm <sup>2</sup> ]	0.3	0.4
Fuel utilization rate at outlet U <sub>F</sub>	0.6	0.8
Oxygen utilization rate at outlet U <sub>O</sub>	0.4	0.53

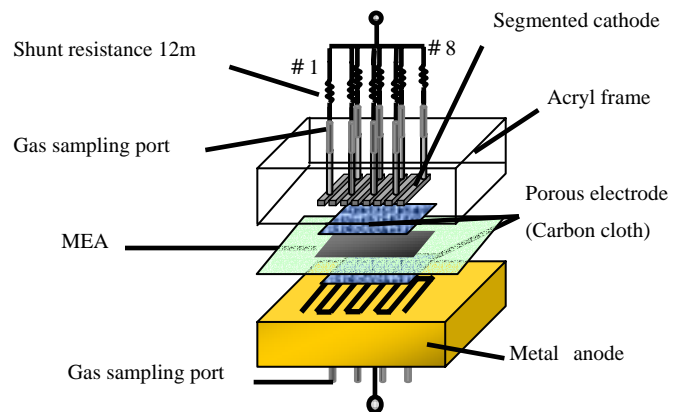


図 7 電流分布測定用分割電極セル

Fig.7 Segmented electrode cell for current distribution measurement

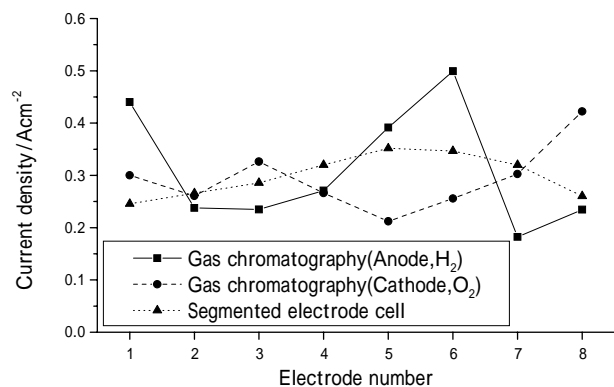


図 8  $i_m=0.3 \text{ A/cm}^2$  のときの電流密度分布比較

Fig 8 Comparison of current density distributions when  $i_m=0.3 \text{ A/cm}^2$

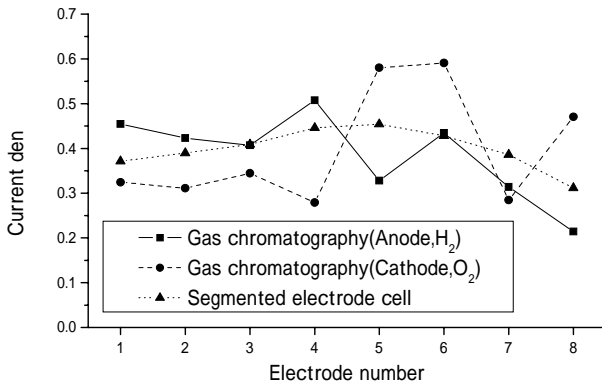


図9  $i_m=0.4A/cm^2$  のときの電流密度分布比較  
Fig 9 Comparison of current density distributions when  $i_m=0.4A/cm^2$

#### 4. 発電性能の解析

4.1 解析方法 2章で測定した膜物性や過電圧を使って、以下に述べるようにPEFCの発電特性を解析し、3章で測定した電流密度分布と比較することにした。流路に沿ったガス流れ方向と膜厚方向の模擬2次元を考慮し、質量や電荷、エネルギーの保存則とPEFCの等価回路を連立させ<sup>(1)</sup>、コントロールボリューム法<sup>(4)</sup>により数値解析した。解析は、以下のようなことを仮定している。

- ・流路中のガス流れは plug flow とする
- ・電極に恒温水を流すため、電極温度は一定とする
- ・生成水によるカソードのフラッディングは無視する

起電力  $V_{Nernst}$  は次式によって与えた。

$$V_{Nernst} = E^{\circ} + \frac{RT_{mem}}{2F} \ln \frac{P_{H_2} P_{O_2}^{0.5}}{P_{H_2O,c}} \quad (18)$$

アノードからカソードに向かう水蒸気の移動量は2章の実験で求めた測定値を用いて、 $i$  を流れ方向局所電流として(19)から(22)式で与えた。

$$M_x = \frac{(C_a - C_c) + R_{MEA} \cdot n \cdot \frac{i}{d} - R_{dif,c} \cdot \frac{i}{2F}}{R_{MEA} + R_{dif,a} + R_{dif,c}} \quad (19)$$

$$R_{MEA} = \frac{d_{MEA}}{Tr \cdot A} \quad (20)$$

$$R_{dif,a} = \frac{d_{dif}}{f \cdot D_{H_2-H_2O} \cdot A} \quad (21)$$

$$R_{dif,c} = \frac{d_{dif}}{f \cdot D_{Air-H_2O} \cdot A} \quad (22)$$

解析法は既に報告した<sup>(1)</sup>ので、流れ方向を  $y$ 、膜厚方向を  $x$  とする MEA に対するエネルギー収支式を過電圧発熱などを含む重要な式の代表として付録に示す。

4.2 解析結果と測定結果の比較 表2の実験条件に示すように平均電流密度と空気流量を変えて分割電極セルにより電流分布を測定した結果を、解析結果と比較して図10、11、12に示す。今回の実験は、電流分布の測定値と解析値の比較を目的に行ったので電流分布が大きく変化する

と思われるカソード無加湿の条件で行った。またガスの流れは co-flow で行った。同図で中間にピークを持つような電流分布になるのは、カソードが無加湿のために、入口で膜抵抗が高く電流密度が低く、やがて水の生成と共に相対湿度が上昇し膜抵抗が減少し電流が流れるようになり、下流では過電圧  $\eta_{act}$  が大きくなるためであることが、解析から示唆される。

解析と実験は同程度のレベルとなるが、下流側で解析値が僅かに大きくなっている。下流で実測値が小さくなる原因としては、過電圧が酸素濃度低下による上昇だけでなく、ここでは考慮していないフラッディングで大きくなっているため、電流密度が下がるとも考えられる。また、電流密度が小さくなると電流分布のピークが下流側に移行するのは、酸素利用率が下がるため乾燥により膜抵抗が増大し、生成水により膜抵抗が下がるのが遅れ、酸素利用率が小さいため過電圧の変化が少ないので、下流側で電流密度が高くなると解釈される。

このように電流分布の解析結果は分割電極セルによる測定結果と概ね一致することが分かり、解析と測定の信頼性を概ね確認することができた。今後、膜物性や過電圧などの測定や整理法を更に改善し、拡散過電圧なども解析に組み込めるよう解析方法を改良し、実際に見合うよう実験条件を広げ、実験と解析の比較検討を進め、PEFCの解析・設計法の確立に努めたい。

#### 5. まとめ

発電実験に用いた膜電極接合体における水蒸気の透過係数や電気浸透係数、拡散電極の水蒸気拡散係数を我々の考えた方法で測定し、更に膜電極接合体の膜抵抗や過電圧を測定し、整理式にまとめた。これらの物性値を用い、これまで我々が開発してきた固体高分子燃料電池の解析コードで電流密度分布を解析した。これら解析結果の信頼性を確認するため、まず分割電極セルと流路に沿う活物質の濃度変化をガスクロにより測定する2種類の方法で電流分布を測定し、測定法の信頼性を検討した。分割電極とガスクロの濃度変化による電流分布は同程度のレベルになったので、測定の容易な分割電極による電流分布と解析結果を比較した。電流分布の解析結果は分割電極セルによる測定結

表2 電流分布を測定した実験条件

Table 2 Experimental conditions to measure current density distributions

	Fig.10	Fig.11	Fig.12
Cell temperature[ ]		60	
Anode flow rate[cc/min]		48	
Cathode flow rate[cc/min]	91	136	182
Anode dew temperature[ ]		60	
Cathode dew temperatuer[ ]		Not humidified	
$U_F$ & $U_O$ ( $i_m = 0.2 A/cm^2$ )	0.4 & 0.4	0.4 & 0.26	0.4 & 0.2
$U_F$ & $U_O$ ( $i_m = 0.3 A/cm^2$ )	0.6 & 0.6	0.6 & 0.4	0.6 & 0.3
$U_F$ & $U_O$ ( $i_m = 0.2 A/cm^2$ )	0.8 & 0.8	0.8 & 0.53	0.8 & 0.4



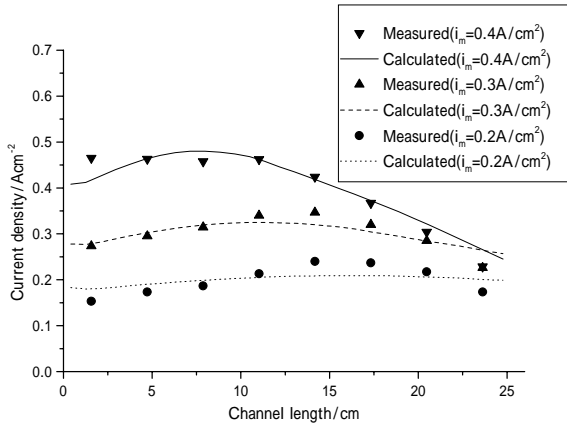


図 10 測定と解析電流分布の比較(空気流量 91cc/min)  
Fig 10 Comparison between measured and calculated current distributions (Air flow rate 91cc/min)

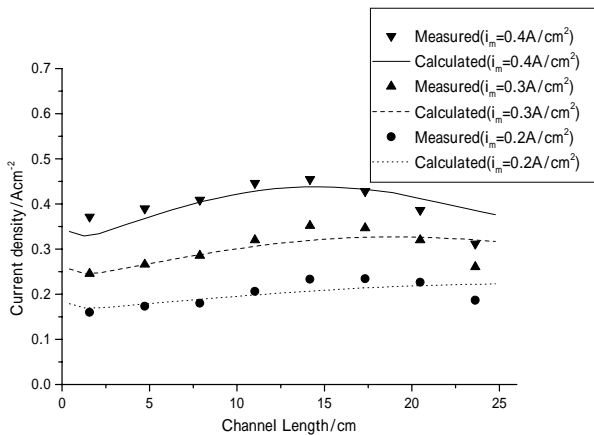


図 11 測定と解析電流分布の比較(空気流量 136cc/min)  
Fig 11 Comparison between measured and calculated current distributions (Air flow rate 136cc/min)

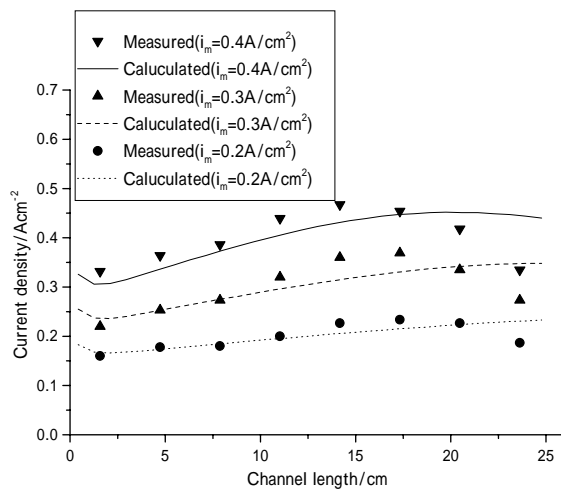


図 12 測定と解析電流分布の比較(空気流量 182cc/min)  
Fig 12 Comparison between measured and calculated current distributions (Air flow rate 182cc/min)

果と同程度のレベルとなったが、下流側ではフラッディングの影響と見られる電流密度の低下が観測された。今後、膜物性や過電圧などの測定や整理法を更に改善し、解析法の改善や実験条件の拡大と合わせて実際の固体高分子燃料電池の設計や解析に役立つ解析コードの確立に努めたい。本研究の一部は、文部科学省 21 世紀 COE プログラム「インテリジェント ヒューマン センシング」の援助により行われた。

(平成 16 年 2 月 23 日受付, 平成 16 年 6 月 16 日再受付)

## 文 献

- (1) T. Aoki, N. Miyauchi, K. Ito, Y. Inui and K. Onda: "Numerical Analysis of Polymer Electrolyte Fuel Cell Using Empirical Equations for Overpotentials", T. IEE Japan, Vol. 122-B, No. 12, p1437 (2002) (in Japanese)  
青木哲也, 宮内信仁, 伊藤衡平, 乾義尚, 恩田和夫:「過電圧実験式を用いた固体高分子燃料電池の特性解析」, 電気学会論文誌, Vol.122-B, No.12, p 1437 (2002)
- (2) T. V. Nguyen and R. E. White; "A Water and Heat Management Model for Proton-Exchange-Membrane Fuel Cells", J. Electrochem. Soc., Vol140, No.8, p2178 (1993)
- (3) H. Yamada and Y. Morimoto; "Electro-osmotic Drag and Diffusion Coefficient of Water in Polymer Electrolyte Membrane" 3N19, J. Electrochem. Soc., 70th Anniversary Convention of Foundation, p.316 (2003) (in Japanese)  
山田晴彦, 森本友:「固体高分子電解質膜の電気浸透係数と拡散係数」 #3N19、電気化学学会創立 70 周年記念大会, p316 (2003)
- (4) S. V. Patankar: "Numerical Heat Transfer and Fluid Flow", pp.24-56 (1985) (in Japanese)  
スハス V. パタンカー:「コンピュータによる熱移動と流れの数値解析」, pp24-56, 森北出版 (1985)

## 記号

- A : 膜面積[cm<sup>2</sup>]
- a : ガス流路における相対湿度
- C : ガス濃度[g/cm<sup>3</sup>]
- D<sub>Air-H<sub>2</sub>O</sub> : 空気中の水蒸気の拡散係数[m<sup>2</sup>/s]
- d : 厚さ[cm]
- d<sub>MEA</sub> : MEA 厚さ[cm]
- E<sup>0</sup> : 標準起電力[V]
- F : ファラデー定数[C/mol]
- f : ガス拡散電極の有効空隙率[-]
- H<sub>m,T</sub> : T[K]での m 種のモル当たりのエンタルピ[J/mol]
- h : 物質伝達率[cm/s]
- i<sub>m</sub> : 平均電流密度[A/cm<sup>2</sup>]
- i<sub>0</sub> : 交換電流密度[A/cm<sup>2</sup>]
- i : 局所電流密度[A/cm<sup>2</sup>]
- k : 熱伝導率[W/cmK]
- M<sub>x</sub>, M<sub>x</sub>' : 水蒸気移動流量[g/s]
- M<sub>e</sub> : 生成水による水蒸気流量[g/s]
- M<sub>OSM</sub> : 電気浸透による水蒸気流量[g/s]
- N : x 方向のモル流速 [ mol/cm<sup>2</sup>s ]
- n<sub>d</sub> : 電気浸透係数[-]
- P : ガスの分圧[atm]
- R : 気体乗数[J/molK]
- R<sub>i</sub> : i の拡散抵抗
- r : 膜抵抗[ cm<sup>2</sup> ]
- T<sub>diff</sub> : 拡散電極温度[K]
- T<sub>mem</sub> : MEA 温度[K]
- Tr : MEA における透過係数[cm<sup>2</sup>/s]
- V<sub>cell</sub> : セル電圧[V]
- V<sub>Nernst</sub> : ネルンスト起電力[V]
- v : 供給ガス速度[m/s]
- w<sub>cell</sub> : セルの幅(流路幅+リブ幅)[cm]

$H_{LHV}$  : 反応による低位エントロピー変化[J/mol]  
 $x$  : 中心間距離[cm]  
 $\eta_{act}$  : 過電圧[V]  
 $\eta_{ohm}$  : 抵抗過電圧[V]  
 $\rho$  : 膜抵抗率[ cm]

添え字

$H_2, O_2, H_2O$  : それぞれ水素、酸素、水  
 $a, c$  : それぞれアノード、カソード  
 $liq, vap$  : それぞれ液体の水、水蒸気  
 $mem$  : MEA  
 $dif$  : 拡散電極

付録

MEA に対するエネルギー収支式

$$\begin{aligned}
 & t_{mem} w_{cell} \frac{d}{dy} \left( k_{mem} \frac{dT_{mem}}{dy} \right) \\
 &= w_{cell} k_{dif,a-mem} \frac{T_{mem} - T_{dif,a}}{\Delta x_{dif,a-mem}} \\
 &+ w_{cell} k_{dif,c-mem} \frac{T_{mem} - T_{dif,c}}{\Delta x_{dif,c-mem}} \\
 &- w_{cell} \{ N_{H_2,a} H_{H_2-T_{dif,a}} - N_{O_2,c} H_{O_2-T_{dif,c}} \\
 &+ N_{vap,a} H_{vap-T_{dif,a}} - N_{vap,c} H_{vap-T_{dif,c}} \\
 &+ N_{liq,a} H_{liq-T_{dif,a}} - N_{liq,c} H_{liq-T_{dif,c}} \} \\
 &- w_{cell} \{ N_{H_2} \Delta H_{LHV} - i(y) (V_{Nernst} - \eta_{ohm} - \eta_{act}) \}
 \end{aligned}$$

( 2 3 )

郡 央 任



( 学生員 ) 1980 年 8 月 3 日生まれ。2003 年 3 月豊橋技術科学大学電気電子工学課程卒業。同年 4 月豊橋技術科学大学大学院工学研究科電気電子工学専攻入学。現在に至る。燃料電池の研究に従事。

谷 内 拓 哉



( 学生員 ) 1982 年 2 月 22 日生まれ。2004 年 3 月豊橋技術科学大学電気電子工学課程卒業。同年 4 月豊橋技術科学大学大学院工学研究科電気電子工学専攻入学。現在に至る。燃料電池の研究に従事。

荒 木 拓 人



( 正員 ) 1975 年 5 月 2 日生まれ。2003 年 3 月京都大学大学院工学研究科博士課程修了。2004 年 1 月豊橋技術科学大学助手 ( 電気電子工学系 )。主として、燃料電池、水電解、二次電池、放電脱硝の研究に従事。電気化学会、機械学会、伝熱学会会員。工学博士。

恩 田 和 夫



( 正員 ) 1941 年 6 月 20 日生まれ。66 年 3 月東京工業大学大学院理工学研究科修士課程修了。同年 10 月電子技術総合研究所入所。95 年 9 月豊橋技術科学大学教授 ( 電気電子工学系 )。主として、燃料電池、水電解、二次電池、放電脱硝の研究に従事。電気化学会、応用物理学会、日本機械学会、エネルギー・資源学会会員。工学博士。