

小容量固体高分子形燃料電池の低温動作特性

Characteristics of small sized PEFC under low temperature

小林 大悟^{*1}
Daigo KOBAYASHI高橋 成治^{*1}
Shigeharu TAKAHASHI種市 崇志^{*1}
Takayuki TANEICHI谷 辰夫^{*2}
Tatsuo TANI

Abstract

The fuel cell is generating system that can supply clean energy and steady electric power. In the near future, application to wide field will be expected as for PEFC system. For instance, it is power supply of domestic use and fuel cell vehicle, power supplies of personal computer and cellular phone, and soon.

In this paper, characteristics of PEFC under low temperature have been acquired and discussed. Moreover, it depends on moisture density in hydrogen gas and air, cell temperature. To do excellent operation, it is found that the control of cell temperature and moisture content is important.

キーワード：固体高分子形燃料電池，低温動作，加湿器，水分濃度，恒温槽

Keyword: Polymer electrolyte fuel cell, low temperature, humidifier, moisture content, thermostatic chamber

1. はじめに

近年、化石燃料の枯渇化や温暖化への関心が高まり、クリーンなエネルギーの開発など地球環境保全への取り組みが活発に行われている。その中で、固体高分子形燃料電池は高効率で温室効果ガスを排出しないことや安定的にエネルギー供給が可能であることから、家庭用や自動車用電源、パソコンやモバイル用小型電源など多方面での利用が期待されている。このように多方面での利用の為に低温や高温をはじめとする様々な環境下での安定的動作が求められる。固体高分子形燃料電池には、電流密度が小さいことや伝導性確保のための水分管理の必要性など解決すべき課題は多い^{1), 2)}。

このような背景から、筆者らが居住している長野県諏訪地域の冬期の外気温度が氷点下になる環境に着目し、低温時における固体高分子形燃料電池の発電特性を把握し、さらに高性能な燃料電池開発の指針を得ることを目的とし研究を行ってきた³⁾。

本論文は定格容量 10W の小容量固体高分子形燃料電池の低温発電特性を実験によって求め考察したものである。すなわち、小容量固体高分子形燃料電池を恒温槽に収納して庫内温度を $-15\sim 50^{\circ}\text{C}$ に変化させるとともに、燃料である水素ガスと空気の水分濃度を外部加湿器によって $0\sim 7\%$ 変化させ低温発電特性を求めている。

2. 実験システムの概要

2.1 実験システム

本研究の実験システムは、おもに小容量固体高分子形燃料電池、恒温槽、燃料電池へ供給する水素と空気ボン

^{*1} 諏訪東京理科大学電子システム工学科学生

^{*2} 諏訪東京理科大学電子システム工学科教授

(〒391-0292 長野県茅野市豊平 5000-1)

E-mail: tani@rs.suwa.tus.ac.jp

(原稿受付：2010年2月24日)

べ、流量計、加湿器、電子負荷装置から構成されている。

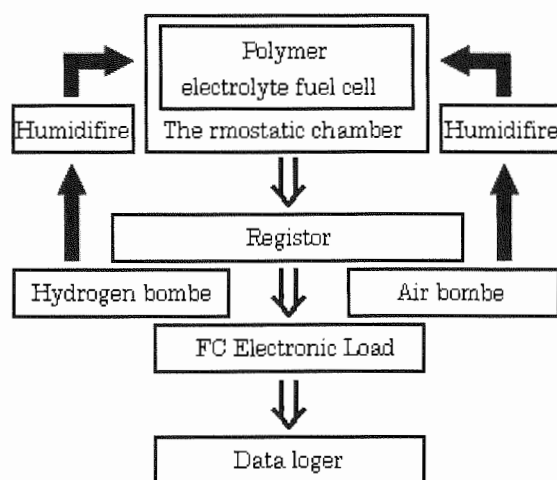


Fig.1 Block diagram of system

Fig. 1 は実験システムのブロック図である。庫内温度を $-15\sim 50^{\circ}\text{C}$ まで可変できる小型恒温槽（福島工業（株）製 FMU-0521）に次の項で述べる小容量固体高分子形燃料電池を収納する。燃料である水素ガスと空気はそれぞれ水素ボンベ（太陽日産（株）製 3MK、純度 99.999%以上 規格： $\text{N}_2<0.05\text{ppm}$ 、 $\text{CO}<0.01\text{ppm}$ 、 $\text{THC}<0.01\text{ppm}$ 、 $\text{O}_2<0.02\text{ppm}$ 、 $\text{CO}_2<0.01\text{ppm}$ ）と空気ボンベ（太陽日産（株）製 3MK、規格： $\text{CO}<1\text{ppm}$ 、 $\text{CO}_2<1\text{ppm}$ 、 $\text{THC}<1\text{ppm}$ ）より、2 台の流量計を介して 2 台の加湿器（（株）ACE 製 HG-110-S）に導入され、水分濃度を調整した後、小容量燃料電池へ供給される。

燃料電池の出力は、燃料電池用電子負荷装置（NF Corporation 製 AS-510）両端子の電圧と電流をデータロガー（YOKOGAWA（株） DA100-21）に取り込み演算・表示している。また、恒温槽内外にそれぞれ 5 個、3 個の熱電対（坂口電熱（株）製 PR6452A/100 型）を取り付けて、それぞれの平均値を求めて庫内温度と外気温度として上記のデータロガーで記録した。また、燃料電池のセル温度も後ほど述べるような要領で測定し記録している。

1) 小容量固体高分子形燃料電池

Table. 1 は本実験に用いた小容量固体高分子形燃料電池の仕様である。スタックは燃料電池セルを 4 個直

列接続して構成（面積が 25cm^2 ）されており、定格電流、電圧がそれぞれ 6.0A 、 2.5V で定格出力容量は 10W である。

Table.1 Spec of Fuel Cell

Model	4-cell stack 25cm^2
Electrolytic membrane	Polymer electrolyte Fuel Cell
Method to supply	Passive model
Stack area	25cm^2
Rated current	6.0A
Rated voltage	2.5V
Rated power	10W
Manufacturer	BCS technology Co.

2) 加湿器

Fig. 2 は本研究で用いた加湿器のブロック図である。燃料電池の燃料である水素ガスと空気はそれぞれ水素ガス、空気ボンベから流量計を介して 2 台の加湿器に導入される。流量計は層流差圧式質量流量計（（株）ACE 製 DPFC-250）である。この流量計は小型層流素子を通るときに発生する、ガスの圧力差を測定（同時に温度・圧力補正）して流量を表示するとともに流量制御も行っている。

2 台の加湿器（（株）ACE 製 HG100-1、循環水強制冷却装置付き）は水素ガス、空気を温水シャワーの中を通し、加湿する方式を採用している。低温時には加湿器内にある循環水強制冷却装置によってシャワー温度が制御され、これら燃料ガスの水分濃度が決められる。実験中の水素ガス、空気の水分濃度は同じ濃度であり、流量の範囲は $5\text{ml}\sim 20\text{ml}/\text{min}$ （ 0°C 、1 気圧換算）、精度が保障されている使用温度は $-15\sim 80^{\circ}\text{C}$ （露点精度 $\pm 1.0^{\circ}\text{C}$ ）である。なお、加湿器から燃料電池へ導く配管は温度制御されており、恒温槽の庫内温度、セル温度を計測して、所定の温度が設定されている。

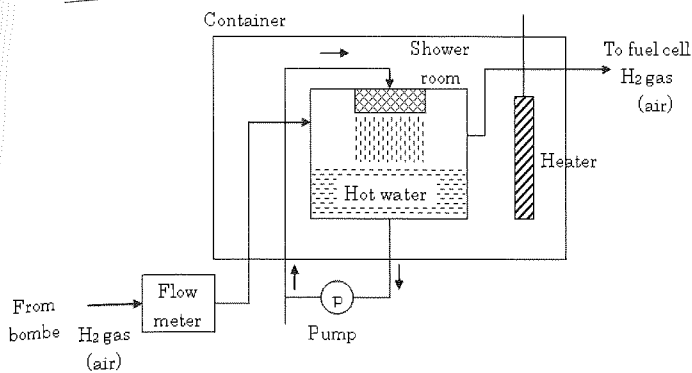


Fig.2 Block diagram of humidifier

2.2 実験方法

恒温槽内温度の変化可能な恒温槽に小容量燃料電池を収納し、測定に先立ってセル温度が設定温度に達し熱平衡状態になるまで約 60 分間動作させた。燃料電池のセル温度の測定は、シース熱電対(坂口電熱株式会社 T35 型)をセルの中心に 3mm の小孔を開けて装着して行い、データロガーに取り込んでいる。セル温度とは燃料電池本体のセル中心部の温度である。供給する水素ガスと空気の流量の割合は 1:3、2:3、3:1 とし、また、供給水素ガス流量は 100~250 ml/min の範囲とした。燃料電池に電子負荷装置で 0.5~1A (40mA/cm²) の電流負荷をかけ 5 分間運転後、電子負荷装置を用いて 5 秒間で 0.1A の割合で変化させ、出力電力、出力電圧を測定した。

Fig. 3 は本実験で用いた実験システムの外観である。左から、水素ボンベ、空気ボンベ、燃料電池を収納する恒温槽、燃料電池用電子負荷装置、加湿器を含めた燃料電池ガス供給装置である。



Fig.3 Experimental equipment

水分濃度の算出は次のように式(1)~(3)を用いて行った。これらの式は加湿器のシャワー出口の流量と濃度の関係である。(3) 式から、水分濃度 (1 気圧下) を導出した。

$$\text{基本式} \quad Q_0 / (Q_0 + Q_1) = P_t / P_o = C_0 \quad (1)$$

$$\text{総流量} \quad Q_T = Q_2 + Q_0 \quad (2)$$

$$\text{発生濃度} \quad C_T = Q_0 / Q_T = C_1 \quad (3)$$

ここで、 Q_0 : 水分ガス流量(cc/min)、 Q_1 : シャワー供給流量(cc/min)、 P_t : 温度 $t^{\circ}\text{C}$ 時の水の蒸気圧(Pa)、 P_o : 大気圧(Pa)、 C_0 : シャワー内の発生濃度(%)、 Q_2 : ドライガス(cc/min)、 C_T : 発生濃度(%)、 Q_o : 発生量(cc/min)、 Q_T : 総流量(cc/min)、 C_1 : 水分濃度(%)

3. 実験結果および考察

3.1 室温における出力電流に対する出力電力の関係

燃料電池では、出力電力は水素ガス流量、水素ガス流量対空気流量の割合、両燃料ガスの水分濃度によって影響を受ける。筆者等は最少水素ガス流量に対する最大出力電力を与える最適な動作条件を明確にするため、室温における実験を行った。本実験では、恒温槽の庫内温度は室内温度に近い 20°C 一定で、次の条件のもとで燃料電池を動作させた。すなわち、水素ガス流量は 100~250 ml/min であり、水素ガス流量対空気流量の割合は 1:3、2:3、3:1 の 3 種類である。また、両燃料ガスの水分濃度は同じであり 0.02% から 5.53% まで広範に変化させた。

代表的な特性を Fig. 4 に示す。同図は庫内温度を 20°C 、水素ガス流量を 150 ml/min、両燃料ガスの水分濃度を約 0.74% 一定にしたときの、出力電流と出力電力の関係である。図の横軸は出力電流 (A) であり、縦軸は出力電力 (W) である。図中のパラメータは水素ガス流量対空気流量の割合である。図から、出力電流が 6.0~8.0 A の範囲に出力電力の最大値が存在し、その値は約 6.0 W であることが分かる。両燃料ガスの流量の割合の違いによる出力電力の違いは 7% 程度で、水素ガス流量対空気流量が 1 対 3 のとき、最も良好な出力電力値であったため、本研究では、水素ガス流量と空気流量の割合を 1 対 3 に

固定して一連の実験を進めた。また、水素ガス流量と水分濃度の変化も出力電力に影響を与える。水素ガス流量については、流量増加に伴って出力電力が増加するが、定格容量 10W の 60% 程度の出力である 150ml/min のデータを図示した。さらに、水分濃度については、0.74% 程度のとき出力電力が最大値を示したため、この値の特性を図示した。なお、庫内温度 20℃ のとき、燃料電池のセル温度は室温を数度上回る 23℃ であった。

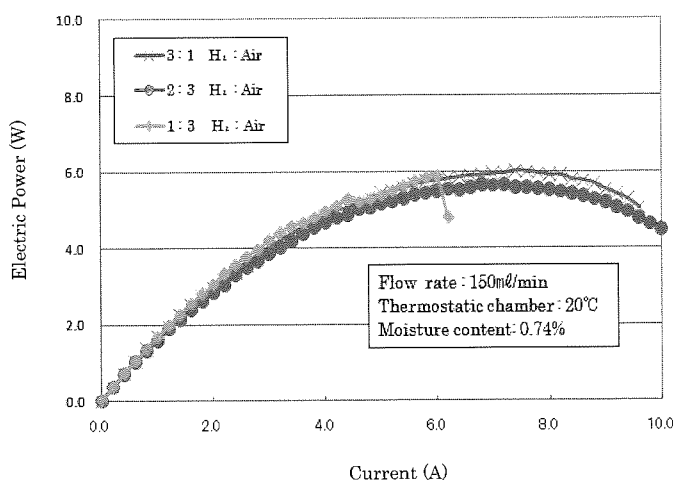


Fig.4 Current vs. electric power under room temp of 20℃

3.2 セル温度に対する最大出力電力の関係

Fig. 5 は小容量燃料電池のセル温度に対する最大出力の関係である。図の横軸は燃料電池のセル温度 (℃) であり、縦軸は最大出力電力 (W) である。図のパラメータは燃料の水素ガス流量 F (100、150、250ml/min の 3 種類) であり、このときの両燃料ガス (水素ガス、空気) の水分濃度は同一である。上記のそれぞれの水素ガス流量に対応する水分濃度は 0.12、0.69、1.15% である。

図より 3 種類の水素ガス流量に対して、出力電力の最大値とそれを与える燃料電池のセル温度が存在することが分かる。水素ガス流量が 100ml/min のときの出力電力の最大値とセル温度は、それぞれ 5.5W、20℃ 付近にあり、水素ガス流量を 150、250ml/min に増加させたときの最大出力電力とセル温度は、それぞれ 7.6、9.8W と 25、50℃ 付近であった。

また、これらのセル温度を上昇、降下させることにより、出力電力はいずれも減少する。たとえば、セル温度

が -15℃ のとき、最大出力電力は平均して 75% 減少した。セル温度を下がるに従って、出力電力が減少する原因は、あらかじめ燃料ガス (水素ガス、空気) に水分を含ませて燃料電池に供給していることによって、電解質膜やその周辺のパイプなどに付着している水分が徐々に凍結して電解質膜の伝導性を低下させることによるものと思われる。

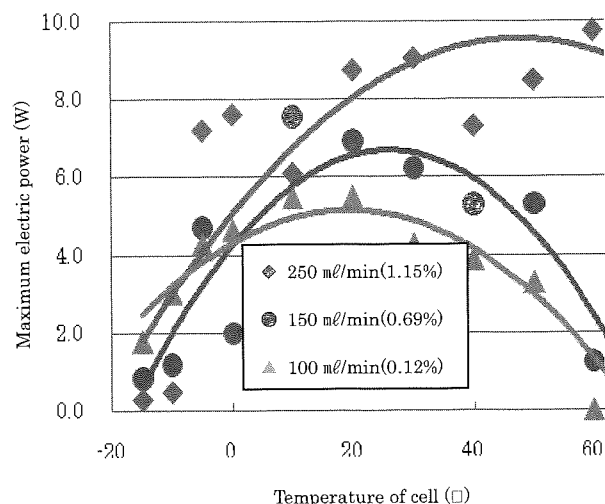


Fig.5 Relationship between cell temperature and maximum electric power

3.3 水分濃度に対する最大出力電力の関係

固体高分子形燃料電池のセルを構成する電解質と水分濃度には次のような反応がある。電解質を通過するのは水素イオンのみであり、水素イオンが陽極から陰極へ移動するには、周辺の水分と結びついて水和する必要がある。このことは、水素イオンは陽極から水分を伴って陰極に移動することになり、出力電力は水素ガスの流量、セル温度に大きく影響される。

Fig. 6 は水素ガスと空気的水分濃度に対する最大出力電力の関係である。図の横軸は水素ガスの水分濃度 (%) であり、縦軸は最大出力電力 (W) である。図のパラメータは水素ガス流量 F (100、150、250ml/min の 3 種類) であり、これらの流量に対応した、セル温度はそれぞれ 20、25、50℃ 付近である。図より、水素ガス流量が 100、150、250ml/min のときの最大出力電力は、両燃料ガスの濃度がそれぞれ 0.12、0.69、1.15% のときであり、そ

のときのセル温度は上記のように 20～50℃付近であった。すなわち、出力電力の最大値は、燃料ガス（水素ガス、空気）の水分濃度や水素ガス流量に敏感であることが分かった。これは水素ガスや電解質膜の水分含有量が少なくなると水素イオンの移動速度が緩慢になり、水分含有量が多くなると電解質膜に水分子が付着して水素ガスの電解質膜への供給がスムーズでなくなることが原因であると思われる。これらのことから、固体高分子形燃料電池発電を良好に動作させるには、燃料ガスの水分濃度を管理することが極めて大切であることが分かった。

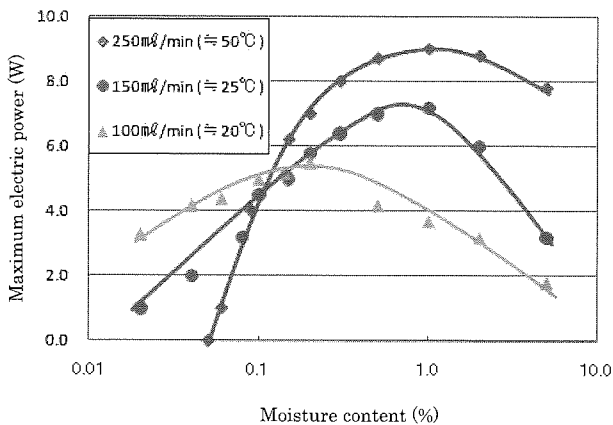


Fig. 6 Relationship between moisture content and maximum electric power

3.4 流量に対する最大出力電力と変換効率の関係

本実験で用いた小容量固体高分子形燃料電池の水素流量に対する最大出力電力と変換効率の関係を求めた。

純粋水素ガス 1mol (22.4ℓ) が有するエネルギーは 65.9Wh である事が知られている⁴⁾。この量の 1 時間当りの流量は 373.5 ml/min であり、水素ガスのエネルギーが全て出力電力に変換されたとすると、1 時間当たり 65.9Wh となる。これらの関係から燃料電池の変換効率を求めた。

Fig. 7 は水素ガス流量に対する最大出力電力と変換効率の関係である。図の横軸は水素ガス流量 (ml/min) であり、縦軸は最大出力電力 (W) と変換効率 (%) である。最大出力電力と変換効率は、水素ガス流量が 100、150、200、250ml/min のとき値をプロットしている。たとえ

ば、水素ガス流量が 250ml/min のときの最大出力電力は 9.8W であり、その時のセル温度と燃料ガス（水素ガスと空気）の水分濃度はそれぞれ 50℃、1.15% である。また、その時の変換効率は 22% である。セル温度を -15～70℃ と広範囲に変化させて繰り返し実験を進めたことに起因したためか、変換効率が比較的低かった。水素流量に対する最大出力電力は、水素流量の増量によって増加するが、変換効率は減少する。このことから水素ガスが反応しきれず、それが原因で発電に結び付かなかったものとする。

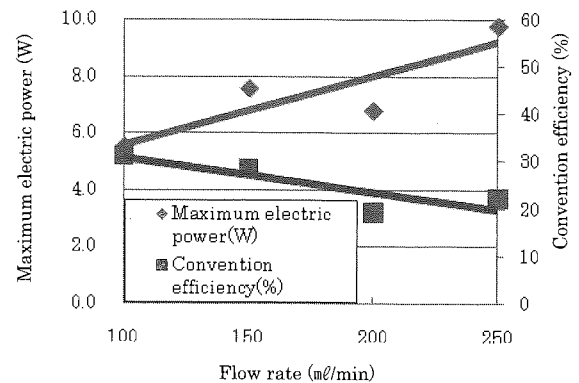


Fig. 7 Relationship between flow rate of hydrogen and convention efficiencies, maximum electric power

3.5 セル温度、水分濃度、流量と最大出力電力の関係

Fig. 8 は燃料電池のセル温度、水素ガス流量、最大出力電力の関係である。図の X 軸はセル温度 (℃)、Y 軸は水素ガス流量 (ml/min)、Z 軸は最大出力電力 (W) である。このときの水素ガス流量対空気流量の割合は 1:3 であり、水分濃度は出力電力が最大値になるよう変化した。この図から出力電力の最大値は水素ガス流量が 230～250ml/min で、セル温度が 50～70℃ のときに得られ、定格出力に近い 9.8W であることが分かる。

水素ガス流量を 250ml/min に保ち、セル温度を下げると出力電力値も減少した。たとえば、セル温度が 0℃ になると 50～70℃ で得られた出力電力が 30～40% 減少した。

一方、水素ガスの供給量を減少させると、それに伴って出力電力も大幅に減少する。たとえば、水素ガス流量が 100ml/min のときの出力電力は、流量 250ml/min のそれに比べ 40% 程度減少した。また、流量が 100ml/min の

とき、セル温度が約 20℃で出力電力が最大値を示し、この温度よりセル温度が低くなっても、また高くなっても出力電力は減少した。特に出力電力はセル温度が 50℃を超えると大幅に減少したが、燃料の水素ガスに含まれる水分含有量の計測が微妙となり、正確に計測できなかったことが原因の一つと考えられる。

Fig. 9 は燃料電池のセル温度が 50℃一定のときの水素ガス流量、水分濃度、最大出力電力の関係である。図の X 軸は水分濃度(%), Y 軸は水素ガス流量(ml/min), Z 軸は最大出力電力(W)である。このときの水素ガス流量対空気流量比は Fig. 8 と同じである。この図から、水素ガス流量と水分濃度が最大出力電力に大きな影響を与えることが分かる。たとえば、水素ガス流量を 100ml/min から 250ml/min に増やすことにより約 50%出力電力が増加した。一方、水素ガス流量が 100ml/min のとき、水分濃度を 0.02%から 2.0%に変化させると出力電力が約 20%減少した。

これらのことより、小容量燃料電池の出力電力は水素ガス流量、セル温度、水分濃度に敏感であり、これら要素の管理が極めて重要であることがわかった。

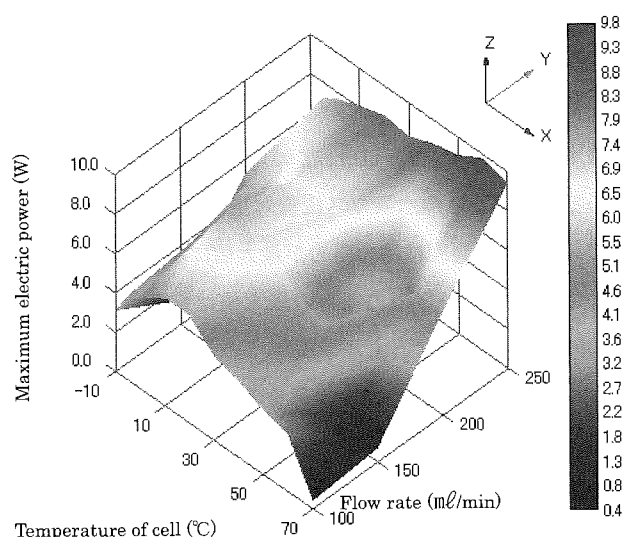


Fig.8 Relationship between cell temperature, flow rate and maximum electric power

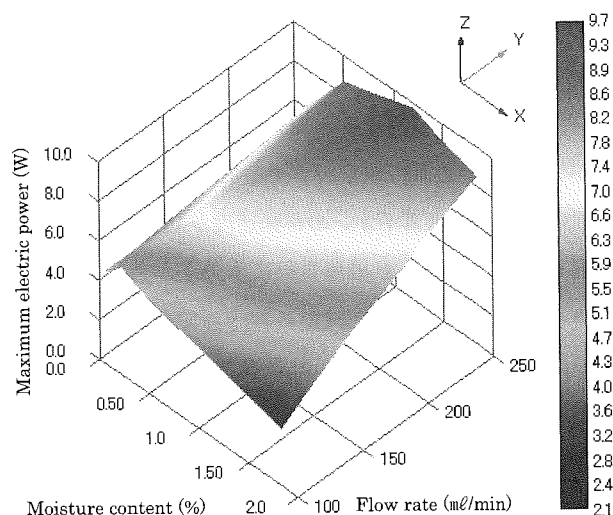


Fig.9 Relationship between moisture content, flow rate and maximum electric power
(Cell temp. : 50℃constant)

4. おわりに

筆者らは小容量固体高分子形燃料電池(定格容量 10W)の低温時と燃料ガスの水分濃度の違いによる出力特性を、庫内温度が -15~50℃に可変可能な恒温槽と 2 台の外部加湿器を用いて取得した。その結果、次の事が明らかになった。

1) 燃料である水素ガスの流量が 250、150、100ml/min の時、燃料電池の最大出力電力はそれぞれ 9.8、7.6、5.5W であり、対応するその時のセル温度はおおよそ 50、25、20℃であった。また、セル温度が低温度に移行するに従い、出力電力が大幅に低下する。

本研究では、セル温度が -15℃での出力電力は、上記 3 種類の水素ガス流量の最大出力電力に比べ約 75%低下することが分かった。燃料電池燃料の水素ガスの有効利用を図るためには、水素ガス流量に適した温度管理が重要である。冬期に外気温度が 0℃以下になる山岳地域などでの温度管理は重要で、あらかじめ保温対策などを講ずる必要がある。

2) 燃料である水素ガスや空気ガスに含まれる水分濃度は燃料電池の出力に影響することが分かった。水素ガス流量が 100、150、250ml/min の時、それぞれの流量に対する最大出力が得られる最適な水素ガスと空気ガスに含まれる水分濃度はそれぞれ 0.12、0.69、1.15%で

あった。冬期に外気温度が 0℃以下で相対湿度が低くなる地域での燃料の水素ガスと空気がスの水分濃度管理は重要であり、加湿機能を有する燃料ガス供給装置も考慮すべきである。

3) 小容量燃料電池のセル温度、燃料ガスの水分濃度、水素ガス流量と最大出力電力の関係を 3 次元グラフで表示した。その結果、これらの 3 要素は最大出力電力に大きな影響を与えており、しかも鋭敏であることが分かった。たとえばセル温度 50℃の時、燃料の水素ガス流量を 100ml/min を 2 倍に増加させることにより、出力電力が 50%近く増加する、また、水素ガスの水分濃度を 0.02%から 2.0%に変化させることにより、出力電力が約 20%減少するなどである。

特に低温環境の下では出力電力が低下するため、燃料電池をある温度範囲に保温して動作させる対策や温度、湿度などの環境に比較的鈍感な固体高分子形燃料電池を開発する必要がある。

本研究が今後の高性能燃料電池発電の研究開発の指針になることに期待したい。最後に本研究の遂行にあたり協力いただいた関係各位に謝意を表する次第である。

5. 参考文献

- 1) 独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構：「燃料電池に係わる問い合わせ機関一覧」
<http://www.nedo.go.jp/nedata/17fy/12/1/00121001.html>
- 2) 経済産業省産業技術環境局・研究開発課：「燃料電池実用化戦略研究会報告 2001」(2001.1. 21. 燃料電池実用化戦略研究会)
<http://www.meti.go.jp/report/downloadfiles/g10122bj.pdf>
- 3) 立花誠二、関口直俊：「固体高分子形燃料電池のアノードセパレーターの流路と燃料の供給量の変化に対する出力特性」日本太陽エネルギー学会太陽/風力エネルギー講演論文集 P. 229～222 (2006 年 10 月)
- 4) 燃料電池発電システム編集委員会編：「燃料電池発電システム」オーム社 P. 174 (1993 年 3

月)

- 5) 小林大悟、高橋成治、種市崇志、谷辰夫：「固体高分子形燃料電池の低温動作特性」日本太陽エネルギー学会 太陽/風力エネルギー講演論文集 No. 116 P. 479～482 (2009 年 11 月 長崎市)
- 6) 関口直俊：「太陽エネルギーによる水素製造・貯蔵・利用システムに関する研究」学位論文 P. 58 (東京理科大学工学研究科 平成 10 年 3 月)
- 7) 黒澤、霜越、鮎澤、谷：「小容量燃料電池の温度特性測定」平成 21 年電気学会全国大会 No. 7-013 (2009 年 3 月 北海道大学)