

中性子ラジオグラフィによる燃料電池研究

村川 英樹

神戸大学大学院 工学研究科 機械工学専攻

自己紹介

出身地: 神奈川県横浜市

2001年3月 東京工業大学 工学部 機械科学科卒



2006年3月 東京工業大学 大学院理工学研究科 原子核工学専攻 学位取得

2006年4月～2007年9月 学術振興会特別研究員(PD)
レンセラー工科大学(米国)客員研究員

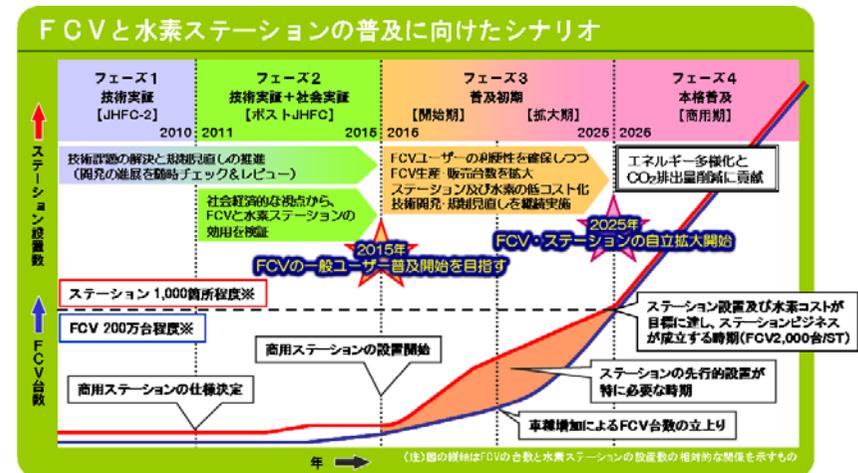
2007年10月～ 神戸大学大学院 工学研究科 助教

現在に至る

燃料電池の種類

種類	固体高分子型 (PEFC)	リン酸型 (PAFC)	熔融炭酸塩型 (MCFC)	固体酸化物型 (SOFC)
電解質膜	高分子膜	リン酸水溶液	熔融炭酸塩 Li ₂ CO ₃ , K ₂ CO ₃ , Na ₂ CO ₃	固体電解質 ZrO ₂ (Y ₂ O ₃)
作動温度	60 ~ 80 °C	190 ~ 200 °C	600 ~ 700 °C	800 ~ 1000 °C
燃料	水素 天然ガス(改質) メタノール(改質)	天然ガス(改質) メタノール(改質)	水素 天然ガス 石炭ガス化ガス	水素 天然ガス 石炭ガス化ガス
酸化剤	酸素 (空気)			
電化担体	H ⁺	H ⁺	CO ₃ ²⁻	O ²⁻
発電効率 (HHV')	30~40%	40~45%	50~65%	55~70%
排熱利用	温水	温水, 蒸気	ガスタービン 蒸気タービン	ガスタービン 蒸気タービン
特徴	低温動作可能 高出力密度		内部改質が可能	内部改質が可能

燃料電池自動車の普及に向けて

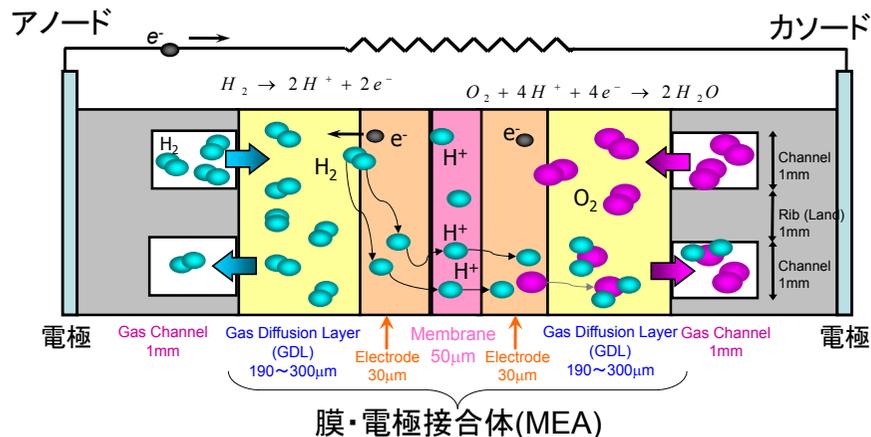


燃料電池実用化推進協議会(FCCJ)HPより
<http://fccj.jp>

固体高分子型燃料電池

固体高分子型燃料電池: Polymer Electrolyte Fuel Cell (PEFC)

- ・ 100°C以下の比較的低温で動作可能
- ・ 高出力特性



関西蔵前懇話会 2013年6月13日

PEFCの技術的課題

解決すべき技術課題:

1. 反応機構の解明・測定評価手法
 - ・ MEA内の観察
 - ・ 電解質膜の水輸送特性
 - ・ **セル運転状態における内部の水の状態計測技術**
2. 劣化機構解明と対策
 - ・ 運転条件下での白金溶解の詳細な機構解明
3. シミュレーション
 - ・ 電極反応の理論的取り扱い
 - ・ 燃料電池内部の現象再現

関西蔵前懇話会 2013年6月13日

研究ターゲット

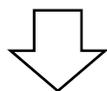
凝縮水の滞留:

- ・ カソード側に凝縮水が存在することによる、PEFCの性能低下の可能性
- ・ 抵抗分極の低減には、MEAへ適度な湿分の供給が必要

PEFCでは適切な水管理が重要

可視化用PEFC ... 材質の違いが発電性能に影響を及ぼす可能性

MRI ... 小型で特殊なセルが必要



金属中の水を計測可能な中性子ラジオグラフィを用いた発電時のPEFC内水分分布計測

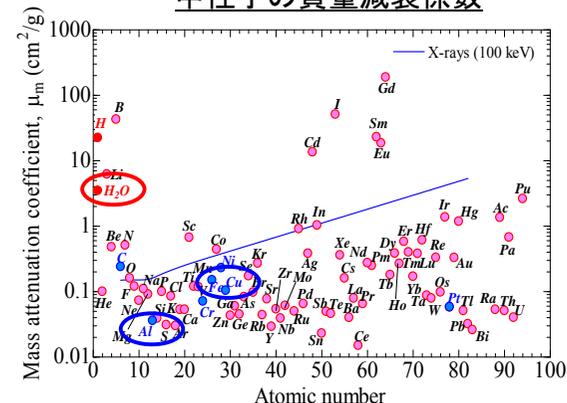
関西蔵前懇話会 2013年6月13日

中性子ラジオグラフィによる可視化と計測

$$I = I_0 \exp(-\rho \mu_m t)$$

ρ : Density (g/m³)
 μ_m : Mass attenuation coefficient (cm²/g)

中性子の質量減衰係数



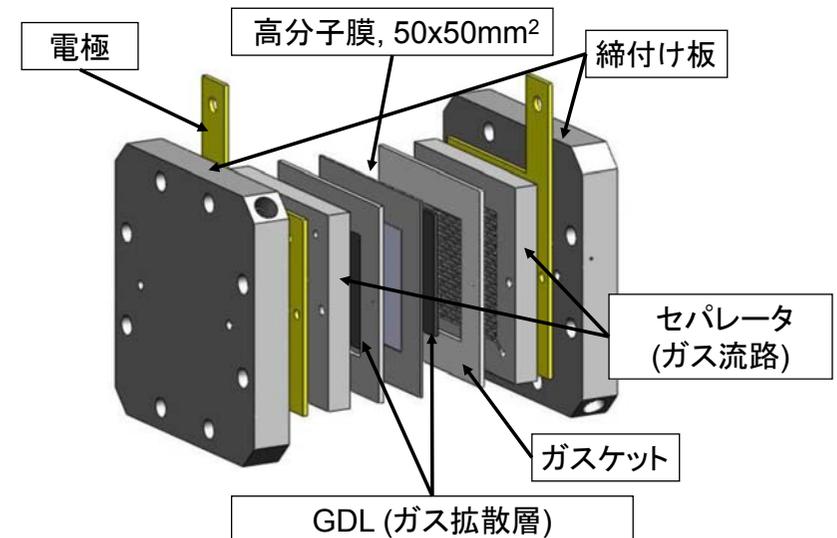
関西蔵前懇話会 2013年6月13日

中性子ラジオグラフィの技術開発

可視化領域	10	20	30	50	70	100	200[μm]
開発技術	ピンホール 全断面積計測	マイクロCT	ダイナミックCT	ダイナミックCT			高画素数可視化
計測対象	MEA内水輸送 過渡変化を計測	MEA, GLD内 膜厚方向2次元, 3次元分布の計測	GLD内, 並列流路内 3次元分布の可視化	GLD内, 並列流路内 3次元分布の可視化			A4サイズ程度の 燃料電池の可視化
開発目標	空間分解能: 5 μm	空間分解能 30 μm以下	1秒/1CTの実現 3次元連続計測	1秒/1CTの実現 3次元連続計測			A4サイズ程度の計 測可能なシステム
成果	幅5μmのスリットに よる計測システム	CT計測: 画素寸法12μm	1秒/1CT, 2.6秒毎 の連続CT	1秒/1CT, 2.6秒毎 の連続CT			4kx4kピクセル のカメラシステム
発電特性, 圧力損失	<div style="border: 1px solid red; padding: 5px; display: inline-block;"> 電池性能と水分布の相関評価 成果 ネットワークモデルによる 気流分布解析手法を構築 </div>						

関西蔵前懇話会 2013年6月13日

日本自動車研究所(JARI)準拠 PEFC



関西蔵前懇話会 2013年6月13日

ダイナミックCT計測システム

中性子源
日本原子力研究開発機構
研究用原子炉JRR-3

可視化用3セルスタック電池
JARI(日本自動車研究所)
標準スタックに準拠

高速度カメラ
センサタイプ: C-MOS
画素数: 1280 × 1024
輝度諧調: 8 bit

高速データ転送システム
データ転送速度
: 262 MB/ sec

関西蔵前懇話会 2013年6月13日

ダイナミックCT計測システム

中性子源
日本原子力研究開発機構
研究用原子炉JRR-3

可視化用3セルスタック電池
JARI(日本自動車研究所)
標準スタックに準拠

高速度カメラ
センサタイプ: C-MOS
画素数: 1280 × 1024
輝度諧調: 8 bit

高速データ転送システム
データ転送速度
: 262 MB/ sec

・1秒間に1回のCT計測を実現
 ・2.6秒毎に1時間以上の連続計測が可能
 (1秒/CT, 100fpsの場合)

関西蔵前懇話会 2013年6月13日

ダイナミックCT計測例



セルスタックに下から水を注入して、連続CT計測
(三次元ボリュームレンダリング結果)

関西蔵前懇話会 2013年6月13日

発電状態における燃料電池のダイナミックCT

発電条件

- ・可視化用3セルスタック
- ・水素流量 : 209cc/min
- ・流路形状: 単一蛇行流路
- ・空気流量 : 622 cc/min
- ・電池温度 : 常温

CT撮影条件

- ・1CTあたりの撮影時間 : 9sec

・フレームレート: 50fps

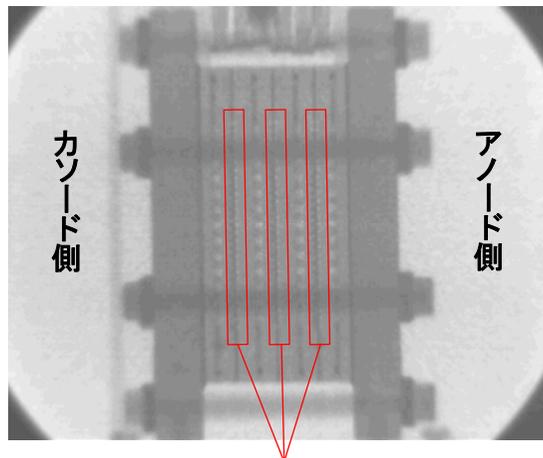
・画素寸法: 107 μ m

※15秒間隔で連続CT撮影



関西蔵前懇話会 2013年6月13日

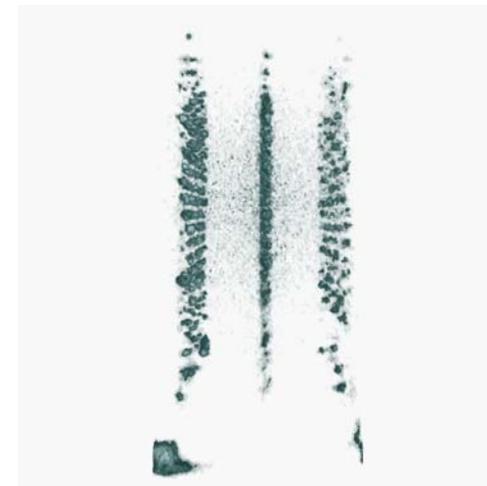
撮影画像(発電後)



MEA, ガス流路

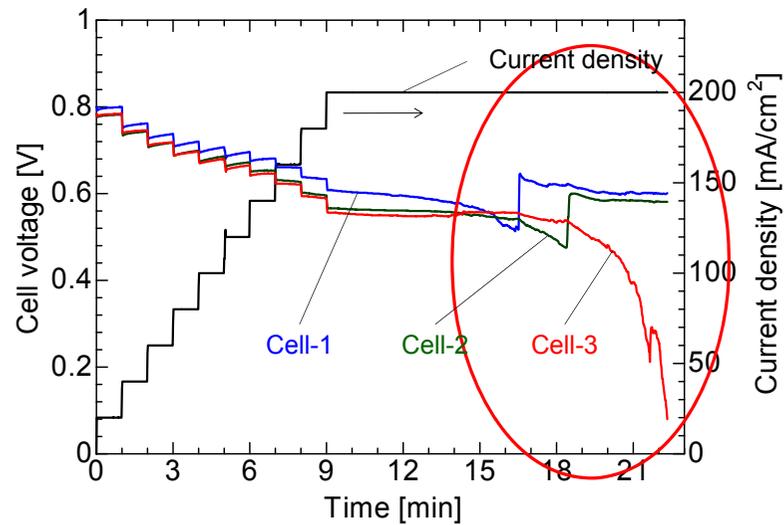
関西蔵前懇話会 2013年6月13日

CT再構成結果



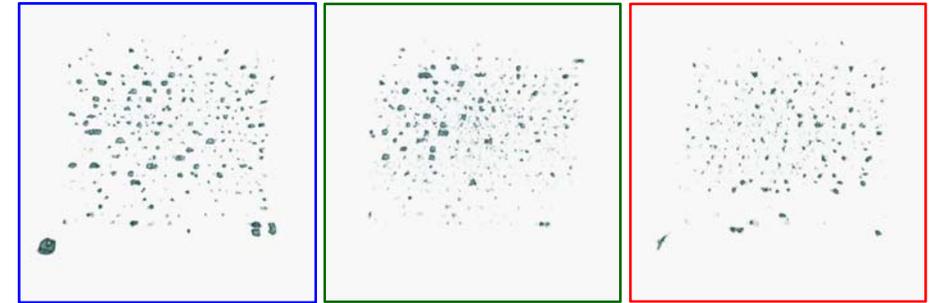
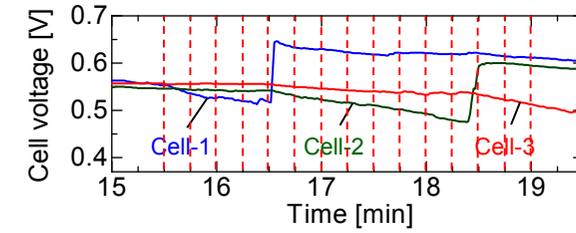
関西蔵前懇話会 2013年6月13日

セル電圧変化



関西蔵前懇話会 2013年6月13日

CT再構成結果



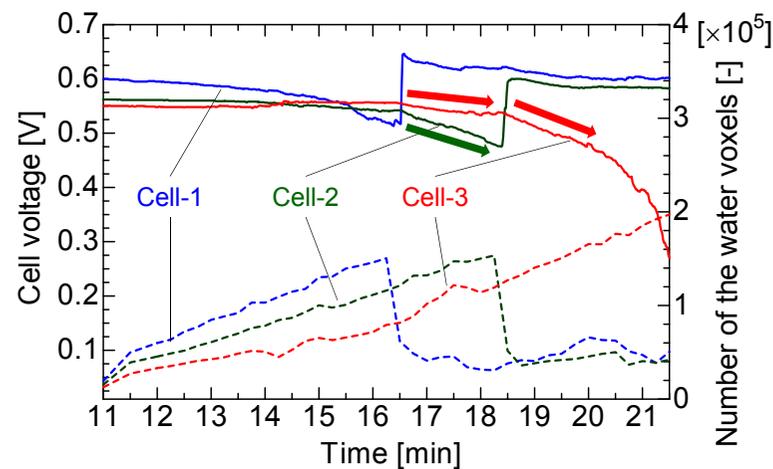
Cell-1

Cell-2

Cell-3

関西蔵前懇話会 2013年6月13日

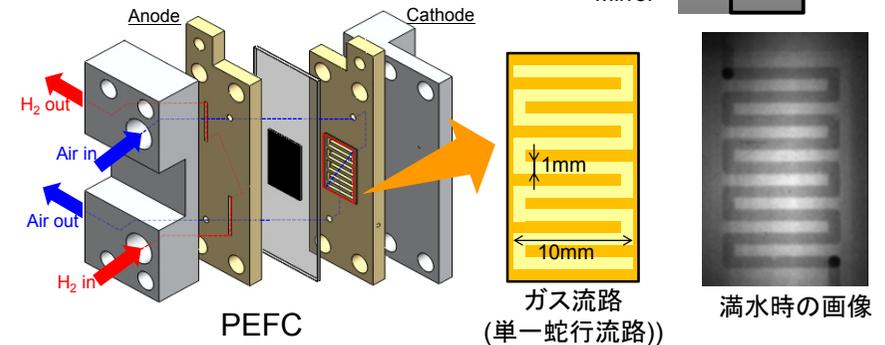
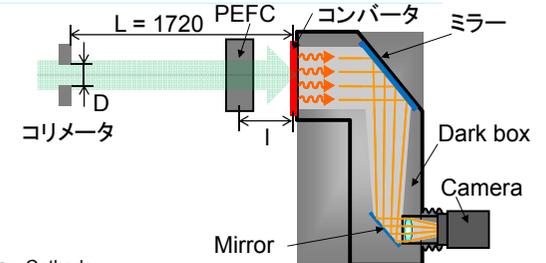
セル電圧と水分量の変化



関西蔵前懇話会 2013年6月13日

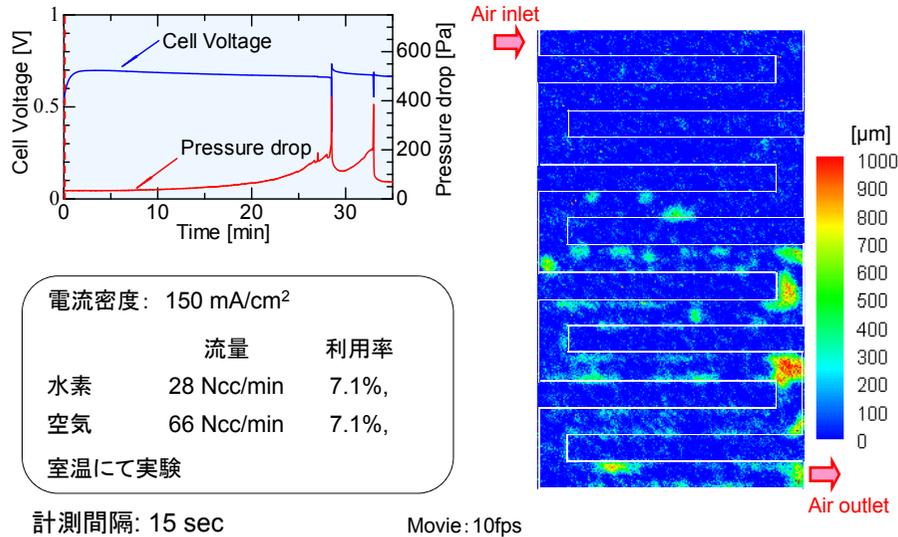
面内方向二次元水分布計測

中性子源: B4-port in KUR
露光時間: 14.6 sec
計測間隔: 15 sec
ピクセルサイズ: 25.6 [μm]
L/D = 172



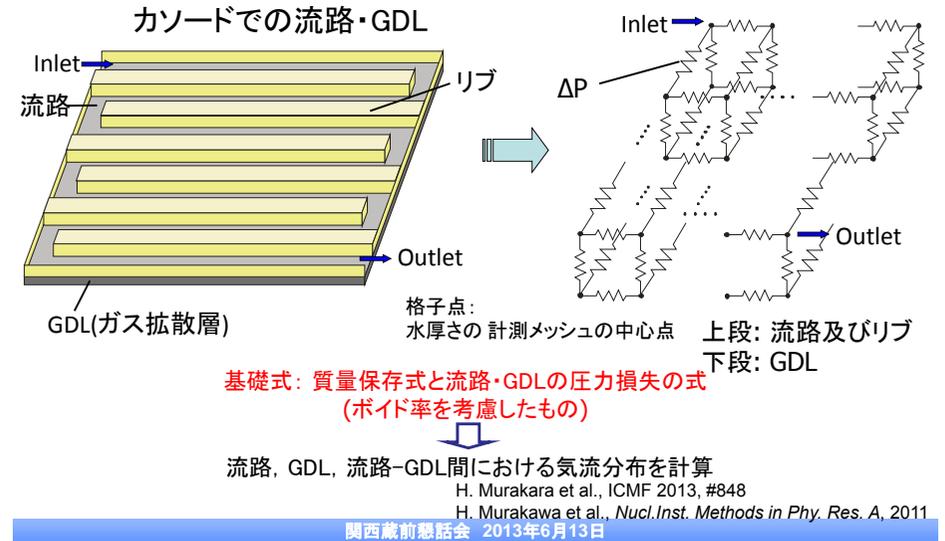
関西蔵前懇話会 2013年6月13日

発電時の水分布とセル電圧



流路-GDL間のネットワーク解析

滞留水による電池性能への影響を評価



局所圧力損失のモデル化

流路:

$$\Delta P = \lambda \frac{L \rho u^2}{D} + \xi \frac{\rho u^2}{2} + \zeta \frac{\rho u^2}{2}$$

- 第1項: 流路内圧力損失 (水が存在しない条件)
- 第2項: ベンド部の圧力損失¹
- 第3項: 水によって生じる圧力損失

¹S.Maharudrayya, et al., Journal of Power Sources, 138 (2004)

- λ : 管摩擦係数
- L : ノード間長さ
- ξ : ベンド部の損失係数
- ζ : 水による損失係数
- ρ : 密度
- u : 気流速度
- D : 水力等価直径

ζ : 数値流体解析によって導出

GDL: ダルシー則

$$J_g = -\frac{\kappa}{\mu} \nabla P$$

$$\kappa = \frac{((1-s)d_{por})^2 ((1-s)\varepsilon)^3}{36\kappa_k (1-(1-s)\varepsilon)^2}$$

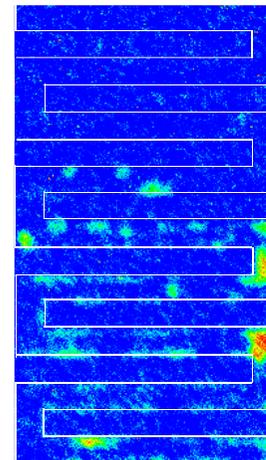
- s : 水の飽和度 (= 1- α)
- J_g : ガスの見かけ速度
- κ : 透過率
- μ : 粘度
- d_{por} : 平均気孔径
- κ_k : Kozeny定数
- ε : 空孔率

GDLの物性値

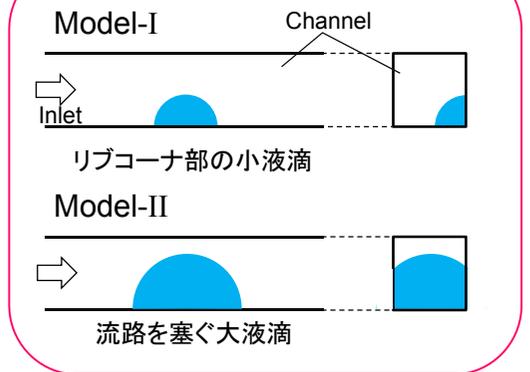
ε	0.78
GDLの厚み	190 [μ m]
κ_k	5
d_{por}	12.9 [μ m]
κ	9×10^{-12} [m ²]

流路における液滴形状のモデル化

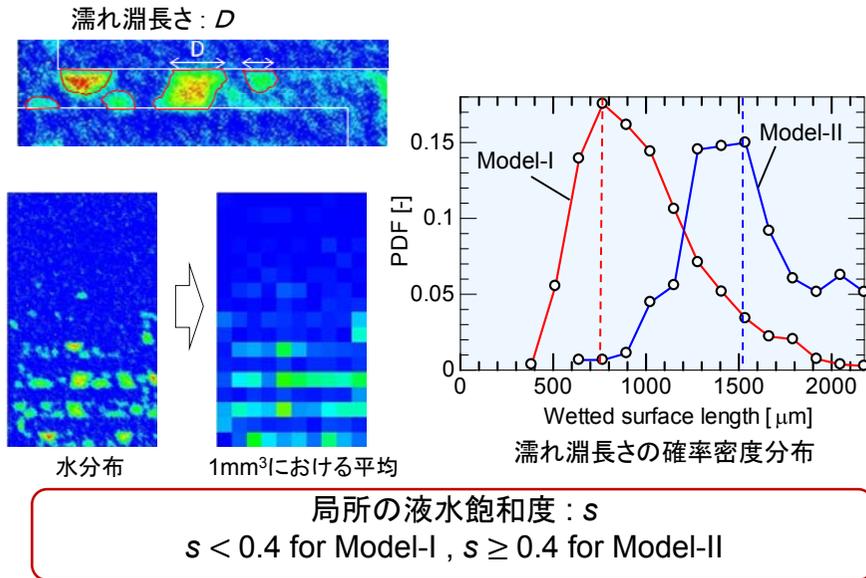
- 小さな液滴がリブコーナ部に存在
- 小さな液滴が合体し流路を塞ぐ大液滴に成長



液滴形状のモデル

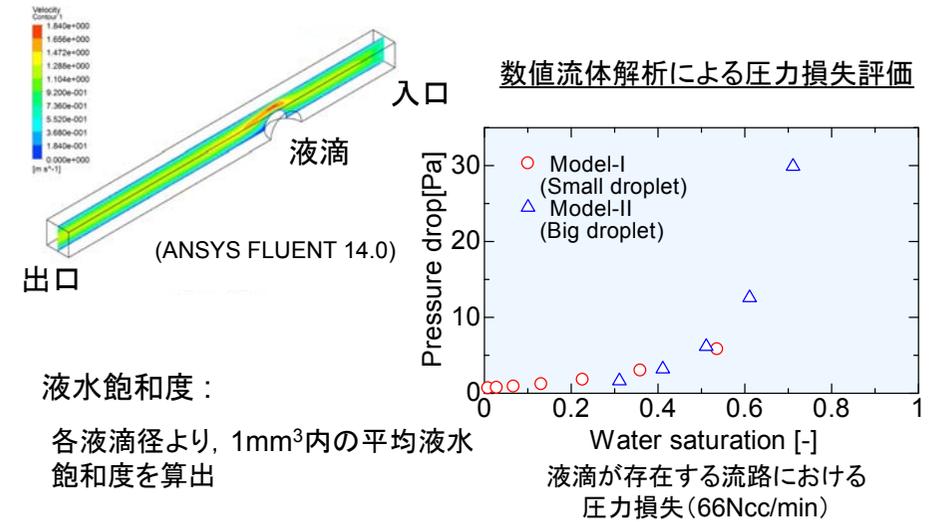


液飽和度によるモデルの分類



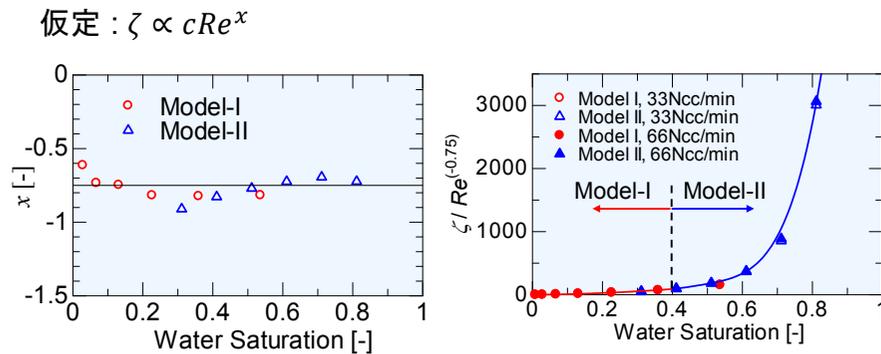
関西蔵前懇話会 2013年6月13日

水によって生じる局所圧力損失



関西蔵前懇話会 2013年6月13日

水によって生じる局所圧力損失係数



ζ に関する整理式:

$$\zeta = (4.52 \times 10^2 s^2 + 4.68 \times 10s) \times Re^{-0.75} \quad (0 \leq s < 0.4)$$

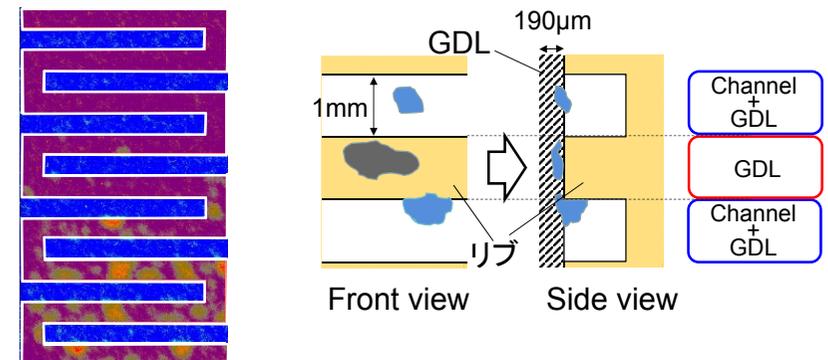
$$\zeta = (1.75 \times 10^5 s^4 - 3.27 \times 10^5 s^3 + 2.30 \times 10^5 s^2 - 7.16 \times 10^4 s + 8.32 \times 10^3) \times Re^{-0.75} \quad (0.4 \leq s < 1)$$

関西蔵前懇話会 2013年6月13日

GDLにおける水の滞留のモデル化

GDLの物性値: 空孔率: 0.78, 厚さ: 190 μm

⇒ GDLに滞留可能な最大水厚みは約150μm

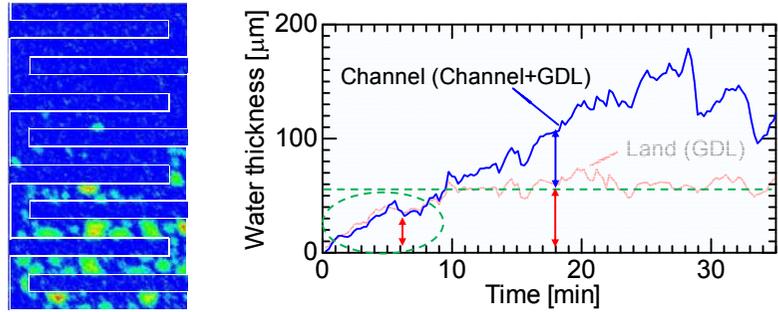


リブ: GDL内で水は均一に分布

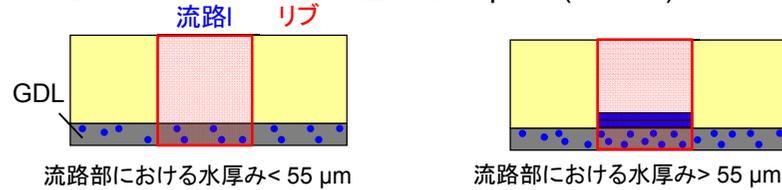
Channel: 流路とGDL内の水の割合は?

関西蔵前懇話会 2013年6月13日

GDL内の水の変化

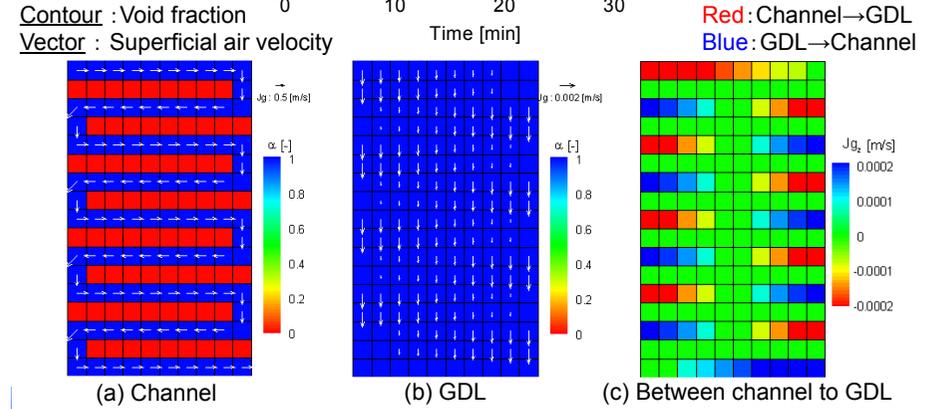
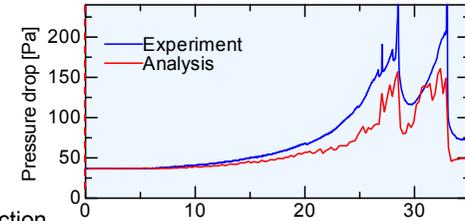


水の滞留は主にGDL内で始まる
GDL内に滞留する水の最大値は約55 μm . ($s=0.35$)

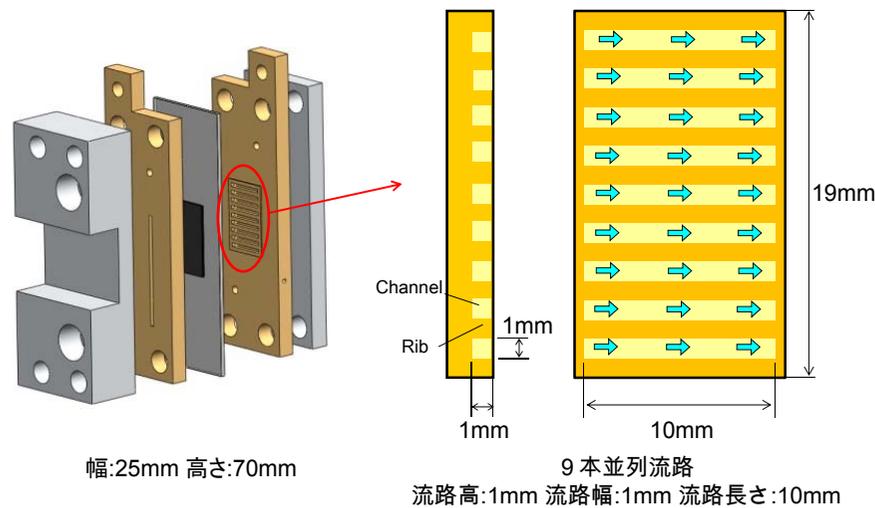


関西蔵前懇話会 2013年6月13日

ネットワークモデルによる解析結果

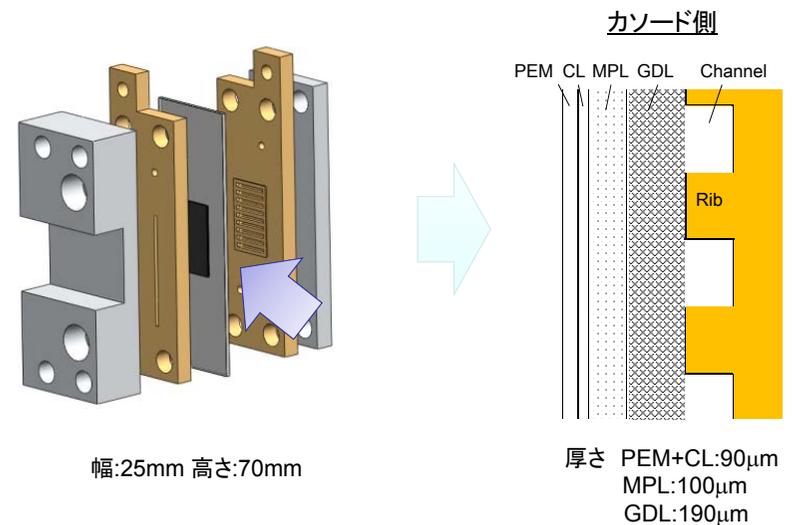


膜厚方向水分布計測



関西蔵前懇話会 2013年6月13日

膜厚方向水分布計測



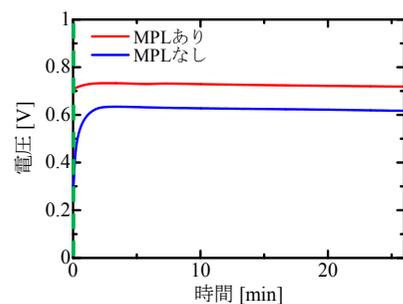
関西蔵前懇話会 2013年6月13日

膜厚方向水挙動

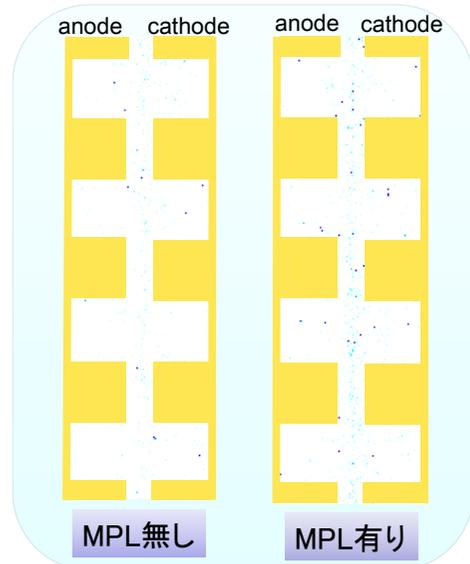
発電条件

電池温度: 30~35°C

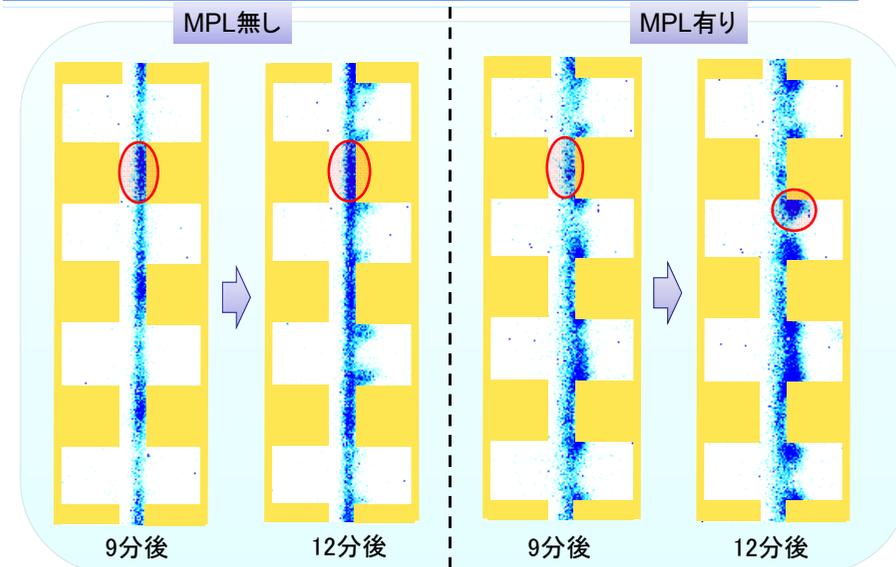
電流密度: 158mA/cm²



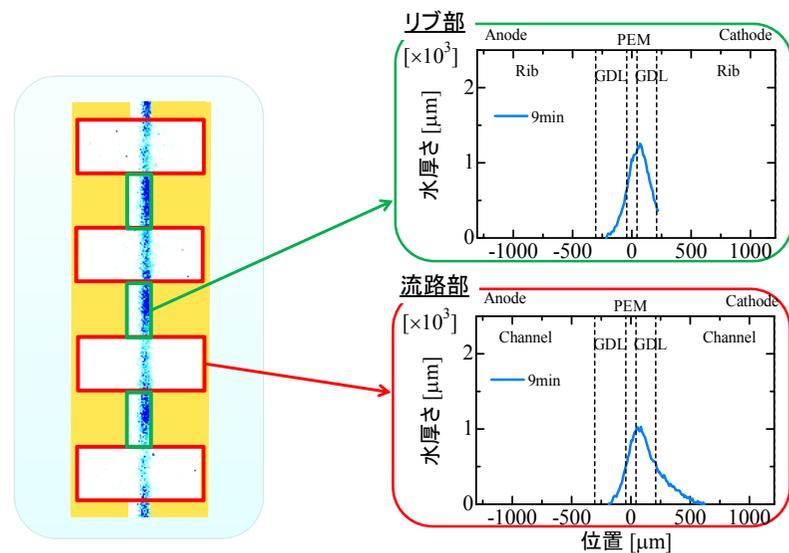
発電開始から発電停止までの27分間の面方向における水の積分量を示す



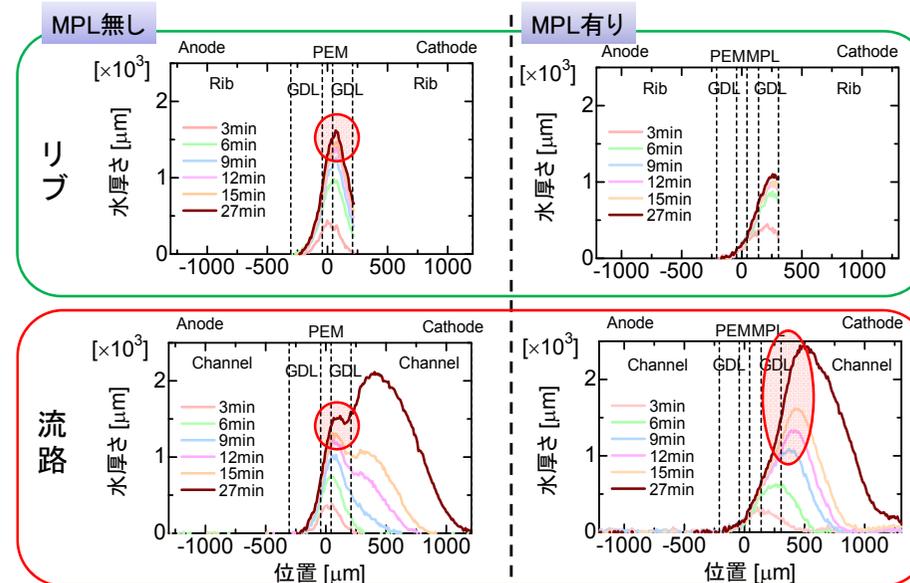
膜厚方向水挙動



膜厚方向水分布の時間変化



膜厚方向水分布の時間変化



まとめ

中性子ラジオグラフィを用いた燃料電池研究について紹介した.

- ・燃料電池研究のため, 中性子ラジオグラフィ技術開発(ダイナミックCT計測, 高空間分解能化)に取り組んできた.
- ・電池内の水挙動と電池性能との関係について研究している.
- ・膜厚方向の水輸送現象の解明は, コスト低減(高電流密度運転)のためには不可欠な研究課題である.