

氏 名	井上 達也
博士の専攻分野の名称	博士（工学）
学 位 記 番 号	医工農博甲第143号
学 位 授 与 年 月 日	令和6年3月22日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第4条第1項該当
専 攻 名	工学専攻 エネルギー物質科学コース
学 位 論 文 題 目	Study on Gas Diffusion Layer and Cell Design for Performance Improvement of Polymer Electrolyte Fuel Cell (固体高分子型燃料電池の高性能化のためのガス拡散層と セル設計に関する研究)
論 文 審 査 委 員	主査 教 授 内田 誠 特任教授 飯山 明裕 教 授 犬飼 潤治 教 授 柿沼 克良 教 授 柳 博 准教授 鳥山 孝司

学位論文内容の要旨

本研究は、固体高分子型燃料電池(以下、PEFC)において、カソードの流路設計およびガス拡散層の構造がセルの出力および出力安定性の向上に与える影響と、そのメカニズムの解明を行った。

第1章では、研究の背景と研究目的について述べた。エネルギー変換効率が高く、CO_x、NO_xを排出しない PEFC は、自動車の動力源としても注目されており、燃料電池車(以下、FCV)の開発が各社で進められている。FCV 用 PEFC の課題として、出力密度や耐久性の向上、コスト低減が挙げられる。出力密度を向上させるためには、カソード流路およびガス拡散層(以下 GDL)内に液水が滞留して酸素拡散が阻害される現象、すなわちフラッディングによる電圧低下の抑制が不可欠である。フラッディングは特に、セパレータに形成された流路間の壁面、すなわちリブと接する GDL 内部において顕著である。これを抑制するために、リブ幅を狭くする、3D メッシュ状のセパレータなど様々な流路形状が開発されたが、フラッディングを抑制できる反面、加工コスト増大や圧損増加による補器損失の増大が課題である。一方で、過去に提案された対向櫛歯状流路 (Interdigitated Flow-field、以

下 IDFF) は、GDL 内での供給ガスの強制対流により、一般的な流路での圧力勾配による拡散と比べて優れた酸素供給と水蒸気排出が特徴である反面、過飽和な液水による流路の閉塞、あるいは乾燥ガス供給下でのセル抵抗増大による性能低下が課題であった。M. Watanabe らは、流路形状を IDFF としつつ、従来セパレータ上に形成されていた流路を GDL 上に形成し、リブを GDL と同じ多孔質構造とすることで、従来設計で課題とされたセパレータ表面のリブと GDL との界面におけるフラiddiing を回避し、性能向上できる可能性を示した。この新設計セルは、従来のセパレータ表面にサーペンタイン流路や IDFF が形成された設計と比べて、液水が凝集しやすい高電流域での出力が向上したことから、新設計特有の多孔質状のリブの液水管理への貢献に着目し、出力安定性向上のメカニズムを明らかにすることに注力した。

第 2 章では、電極面積が $3.0 \times 9.7 \text{ cm}$ と $1.0 \times 1.0 \text{ cm}$ の 2 つのサイズの実験セルを作製し、様々な動作条件で発電試験を行った。 $3.0 \text{ cm} \times 9.7 \text{ cm}$ のセルでは、IDFF を GDL 表面に形成した新しい設計と、サーペンタイン流路をセパレータ表面に形成した従来設計の 2 種類のセルで、空気利用率の変化に対するセル電圧の安定性と圧力損失の挙動を比較した。実験結果から、新設計セルは、空気利用率の変化に対して従来設計セルより高い電圧を示すと同時に、過剰な液水がセル内部に残留していてもセル電圧が低下しないことを示した。 $1.0 \text{ cm} \times 1.0 \text{ cm}$ のセルでは、IDFF と平行流路の 2 種類をそれぞれ、セパレータおよび GDL 表面に形成した、計 4 種類のセルを試作し、酸素の割合、空気流量、相対湿度を含む詳細な運転条件の変化に対するセル性能の安定性を比較した。新設計のセルは高加湿だけでなく低加湿条件に対しても高い性能安定性を持つことが示された。またメカニズムは以下の通り提案された。新設計セルが高加湿条件では、余剰水の一部が多孔質リブに拡散すると同時に、多孔質リブが固体リブより低い熱伝導率であるために GDL 内部温度が高くなることで、GDL フラット部に液水が滞留しにくく、酸素拡散パスが確保されやすい。一方低加湿条件では、高加湿運転時に多孔質リブ内に滞留した液水が徐々に GDL フラット部へ拡散することで、GDL および膜電極接合体（以下、MEA）の乾燥を遅らせ、また、液水が抜けたリブ内部を、供給された乾燥ガスの一部が通過することで、GDL フラット部および MEA の乾燥を抑制することができる。

第 3 章では、新設計セルの性能安定性向上のメカニズムを検証するため、X 線イメージングを用いた発電中のセル内部における液水分布の可視化と、数値シミュレーションを用いた発電中のセル内部における温度分布およびガス流れの可視化を行った。X 線イメージングでは、120%RH から 40%RH へ湿度変化させた際の液水分布の変化を、IDFF を GDL 表面に形成した新設計セルと、セパレータ表面に形成した従来設計セルで比較した。その結

果、高加湿条件で多孔質リブ内に液水の一部が拡散し、また低加湿条件では GDL フラット部に液水層が存在することが確認された。流体力学および電気化学に基づく数値シミュレーションからは、GDL 内温度が全体的に従来設計セルより高く、また算出された露点よりも GDL 温度が高い領域もより大きいことが示された。同時に、低加湿条件において供給ガスの一部が GDL フラット部を介さず、多孔質リブ内を通過することが示された。以上の結果は提案したメカニズムから推察される現象と合致するものであり、メカニズムの妥当性が示された。

第 4 章では、第 2 章で使用した $1.0 \times 1.0 \text{ cm}$ セルの電極サイズを拡張して $1.0 \times 10 \text{ cm}$ とし、より大きなセルでの再現性を検証した。電流・電圧特性と相対湿度変化に対する出力を比較した実験結果から、新設計セルが持つ性能安定性が再現され、かつ電極サイズが大きくなることでセル全体の性能向上に寄与することが確認された。一方、 $1.0 \text{ cm} \times 1.0 \text{ cm}$ セルの結果と比較すると、従来設計セルに対する性能安定性の優位性は小さくなった。これは、IDFF 特有の強制対流がセル面内で局所的に発生しており、電極サイズが大きくなる程、強制対流の有効範囲が相対的に小さくなるためと考えられる。強制対流は、IDFF の入口側流路の終点付近で発生するため、流路のセクションを複数に分け、楕円形状の数を増やすなどの設計改善により、更なる出力向上が期待できることが示された。

第 5 章では、まとめと今後の展望について述べた。本研究の IDFF を GDL 表面に形成した設計の流路構造が、FC システムのコスト増加や補器損失を抑えつつ、セル性能の向上を可能とすることが見出され、流路形状などの更なる改良により燃料電池の小型化・低コスト化に寄与すること予測できた。

論文審査結果の要旨

本論文は、PEFC のカソード流路および GDL に着目し、高加湿および低加湿条件での発電性能の安定化による出力向上のための、カソード流路設計の提案および出力向上のメカニズム解明を目的とした研究である。

第 1 章では、この研究の背景と目的について説明している。PEFC に対する社会的ニーズと自動車への適用、PEFC の性能に影響を及ぼすカソード流路設計の現状と課題、そこから見出した本研究の動機について述べた。世の中のカソード流路と GDL の設計におけるトレンドと課題に対して、本研究の立ち位置と課題解決の方向性をより明確にすべきとの指摘があった。

第 2 章では、主に電極面積が $1.0 \times 1.0 \text{ cm}$ の小型セルを用いて、IDFF と GDL 表面に流路を形成するという新しい組合せが持つ、発電性能における優位性について、流路形状および流路形成位置の違い、酸素濃度やガス流量、相対湿度を含む発電条件の違いという観点から多角的に分析した。特に高加湿および低加湿環境下での発電性能の安定性が高いことを見出し、その性能安定性向上が、IDFF と多孔質状のリブの組み合わせに起因する、従来の流路設計と異なる新たなメカニズムによるものであることを提案した。電極面積が $1.0 \times 1.0 \text{ cm}$ のセルは一般的に均一場セルとして触媒開発用途などで使われるが、本研究では均一場セルではなく、対向櫛歯状流路の一部を切り出し、運転条件に対する性能限界を正確に評価するために同サイズセルを採用したことを、明示すべきとの指摘があった。

第 3 章では、第 2 章で提案した出力安定性向上のメカニズムの妥当性を検証するために、実験および数値計算による複合的なアプローチを用いて、発電中のセル内部現象の解明を行った。実験的手法では、低強度の X 線を用いて、発電中のセルに供給する酸素の加湿度を変化させた際の、GDL および多孔質リブ内部の液水分布を連続的に可視化した。また、計算的手法では、第 2 章で使用した $1.0 \times 1.0 \text{ cm}$ セルを模擬した発電シミュレーションにより、発電セルの GDL 内部における温度分布とガスの流れを可視化した。これらの分析結果から、第 2 章で提案した、IDFF と多孔質リブの組み合わせによる新たな出力安定性向上のメカニズムが妥当なものであることを示した。1 点、液水可視化の X 線種について、補足説明が必要との指摘があった。

第 4 章では、セルの電極サイズを $1.0 \times 10 \text{ cm}$ に拡張し、IDFF と多孔質リブの組み合わせが、実用サイズに近いセルでも性能向上に寄与することを示した。また、さらなる性能向上に向けた設計上の課題について述べた。性能向上に寄与する現象の発生領域が限定的であった点を考察する際、本研究で実施していた数値シミュレーション結果を示すことで、

より理解が深まるので追記すべきとの指摘があった。

第 5 章では、本研究における上記の成果をまとめ、実用化に向けた今後の課題について示した。本研究を実用化することで得られるメリットと、実用化するための今後の課題と取り組みについてより明確に記載すべき、との指摘があった。

以上の内容は国際学会誌 **Journal of Power Sources** および **Journal of Electrochemical Society** にそれぞれ 1 報掲載された。また、2022 年 10 月に開催された第 63 回電池討論会で口頭発表を行い、2023 年 5 月に開催された国際学会 **The 6th International Electric Vehicle Technology Conference** にて論文提出および口頭発表を行い、**Young Investigators Award** を受賞した。

井上氏は、学位論文審査、最終試験ともに審査員の質問に的確に回答・解説を行い、博士の学位取得にふさわしい、専門学力と問題発見・解決能力を有していることが判断された。以上の結果を総合的に判断し、審査員全員の合意のもと学位論文審査・最終試験ともに合格と判定した。