

# 高分子型燃料電池の基本的特性および 電氣的等価回路の評価研究

岸 田 公 治\* ・ 津 村 和 昌\*\*  
岩 橋 慶 孝\*\* ・ 加 藤 芳 明\*\*\*

## Study on Fundamental Characteristics of Polymer Electrolyte Fuel Cell and Evaluation of Equivalent Electric Circuit

Koji KISIDA ・ Kazumasa TSUMURA  
Yoshitaka IWAHASHI ・ Yoshiaki KATOH

Because of prominent features about Polymer Electrolyte Fuel Cell (PEFC), particularly its high power density and the operability at room temperature, studies have been made on the fundamental characteristics of PEFC stack. An equivalent electric circuit of the stack has also been discussed and the parameters have been obtained. It has been confirmed that the current density up to about 1 A/cm<sup>2</sup> is permissive and the stack is capable of producing 0.45W/cm<sup>2</sup>.

### はじめに

1次エネルギー資源の代表である石油の可採年数は、あと40年程度とされている。石油に替わる新エネルギーに求められる条件は、経済性に富み、総合的なエネルギー変換効率が高く、そして地球環境に優しいことである。燃料電池はこれらの条件に見合う新エネルギー発電システムとして最も有望視されている方式であり、世界各地で積極的に開発が進められている。この燃料電池の中で固体高分子型燃料電池 P E F C (Polymer Electrolyte Fuel Cell) は発電効率が約50%、室温から起動することができ、しかも、電流密度が従来の燃料電池(リン酸型燃料電池・熔融炭酸塩型燃料電池)よりも高いことから、移動用電源や電気自動車用電源としても期待されている。

本研究では、P E F C に対しての知見を深めるために基本特性に関する試験を行ない、また、P E F C を電源としたさまざまなシステムを設計する際に、役立つであろう電氣的等価回路素子の電流密度等に対する依存性について検討した結果について報告する。

---

\* 電気工学科    \*\* 電気工学科大学院生    \*\*\* 電気工学科学部生

## 1 研究の目的

わが国での燃料電池の技術開発は、ムーンライト計画としてリン酸型燃料電池から始まり熔融炭酸塩型燃料電池、固体高分子型燃料電池と段階を踏みながら徐々に開発が行なわれてきたが、現在の研究の中心はPEFCに移りつつある。PEFCは単位面積あたりの電流密度が従来の燃料電池に比べて数倍高く取れることから体積出力密度が大きく、小型電源として期待されているが、未だ研究開発の途上にあるため、その特性について十分知られてはいない。

本研究ではPEFCの基本特性を理解するために、燃料利用率変化に対する電圧および出力変化の測定を行なう。この実験から燃料利用率の最適値を求めることができる。PEFCでは他の燃料電池と異なり燃料ガスを加湿する必要があるので、ガス流量が少な過ぎるとカソードの生成水がガス拡散の妨害になったり、逆に多過ぎても固体電解質膜の含水率が過少になる現象によって、電池特性を低下させる結果となってしまうので最適値を知ることは大変重要なことである。また、未利用ガスの排出を小さく抑えることによって燃料の節減にもつながる。

つぎに、PEFCの動特性（応答性等）について理解する必要があることから、電池の電気的等価回路を想定し評価する実験を行なった。この評価測定によってPEFCの溶液抵抗、電荷移動抵抗、二重層容量の知見を得ることが可能である。これによって、PEFCを電源としたさまざまなシステムを設計する際の貴重な情報を得ることができる。図1は今回の実験で用いた固体高分子型燃料電池スタックの試験中の写真である。

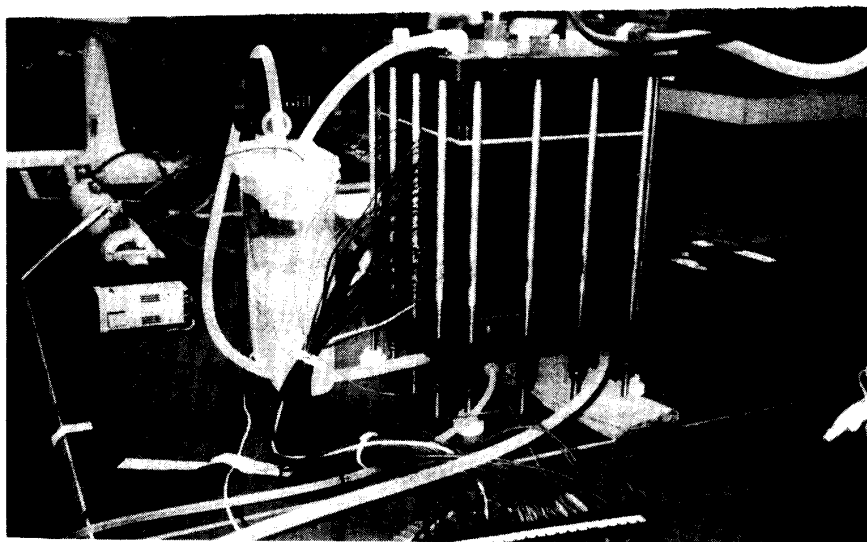


図1 試験中の燃料電池スタック

## 2 固体高分子型燃料電池の原理と特徴

PEFCは従来の燃料電池が電解質に液体を用いているのとは異なり、固体であるスルホン酸基を持つポリスチレン系の陽イオン交換膜（固体高分子膜）を用いる。固体高分子膜はプロトン（ $H^+$ ）を速やかに伝達する特徴を持っている。

PEFCの構造は各社さまざまであるが、基本的な構成は同様であるから、その代表的な単セルの構造概念を図2に示す。すなわち、固体高分子電解質膜の表裏に白金触媒を担持した電極を接合し、それらの電極の背面にガスを供給できる構造の集電体が配設されている。また、カソード側には電池反応生成水を除去するためのウィック、および電池温度を制御するためのクーラント管が配設されている。冷却には水が用いられる。

PEFCの長所および短所は以下に示す通りである。

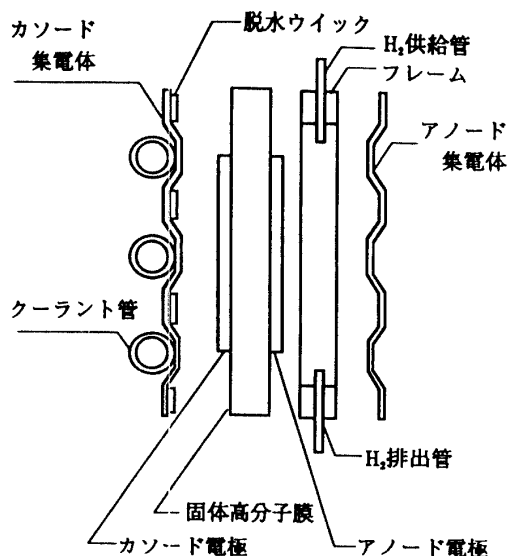


図2 PEFC単セルの構造

長所：(1)電解質が固体で動作温度が低いので腐食の心配が少ない。

(2)室温からの起動が可能。

(3)電解質が固体なので燃料／空気の大きな差圧に耐え得る。

(4)電解質が固体なので薄くすることが可能である。

短所：(1)電解質膜は含水しなければイオン伝導性を示さない。

(2)動作温度が低いため排熱利用が難しい。

(3)COがppmオーダーの微量でも存在すると特性が低下する。

## 3 PEFCスタックの基本特性試験

### 3.1 実験の目的

PEFCは出力密度が高く、また常温から起動することができることから電気自動車などの可搬型電源として期待されている。本研究室でもPEFC駆動電気自動車の開発を進めており、今回の被試験PEFCを車載することを計画した。まず最初の検討事項として、PEFCの基本特性である電流密度変化に対する電圧、電力特性を測定し、電池スタックの基本性能を把握する実験を行なった。

### 3. 2 実験条件

被試験PEFCスタックは公称定格出力1.5kW、単セル面積が225 cm<sup>2</sup>である。この単セルを25枚積層したスタックで3セルごとに冷却板を配設し、冷却水ポンプによって脱イオン水を循環させている。また、冷却水はセルを冷却する目的とあわせて、固体高分子電解質膜の含水率を制御するために燃料ガスを加湿する役目も担っている。運転に使用するガスは燃料極側に純水素、酸化剤側に空気をそれぞれ常圧で供給し、純水素/空気を電流密度が無負荷から300 mA/cm<sup>2</sup>までの間は電流密度300 mA/cm<sup>2</sup>の時の利用率が70%/40%になる流量に固定し、それ以上は測定点ごとの電流密度に対して利用率が70%/40%になるように調整する。測定範囲は電流密度が無負荷から900 mA/cm<sup>2</sup>、測定点は無負荷から300 mA/cm<sup>2</sup>までの間は50 mA/cm<sup>2</sup>ごとに測定し、それ以上は100 mA/cm<sup>2</sup>ごとに測定を行なう。

### 3. 3 結果と考察

図3は電流密度－スタック電圧特性の測定結果である。スタック電圧は無負荷時において約2.4 V、電流密度の増加と共にゆるやかに減少し電流密度が900 mA/cm<sup>2</sup>の点で約1.3 Vという優れた特性を示した。電圧が減少する理由にはいくつかの要因が考えられる。よく知られているように、第一の原因は過電圧の増加である。次にガス流量の増加により固体電解質膜が若干ではあるが湿度の低下を招き、このために特性が低下したことが考えられる。固体電解質膜の含水率が低下すると、プロトンの面内移動抵抗が増加し電池反応がやや緩慢になるからである。最後に

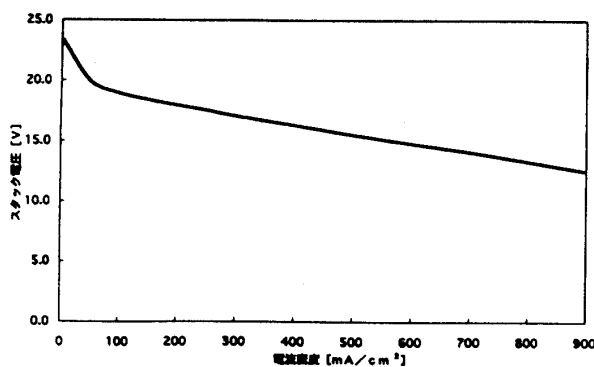


図3 PEFC電流密度－スタック電圧特性

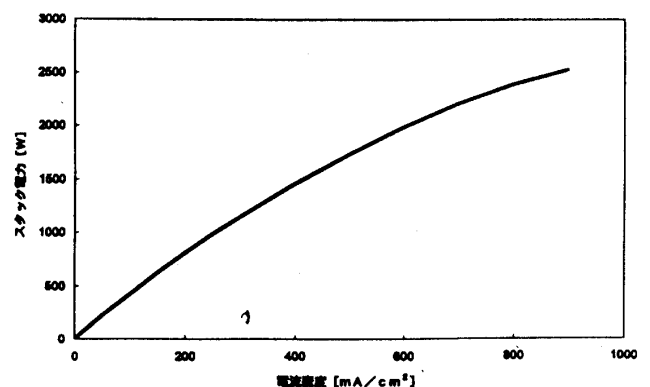


図4 PEFC電流密度－スタック電力特性

考えられる原因は、過電圧の一つであるが、電池反応による生成水がカソード側で部分的に過剰になり、還元反応が円滑化を欠く傾向になると考えられる。

図4は電流密度－スタック電力特性の測定結果である。スタック電力は電流密度の増加と共にゆるやかに上昇し電流密度 $900 \text{ mA/cm}^2$ 時において約 $2400 \text{ W}$ という結果が得られた。また、この際の $1 \text{ cm}^2$ あたりのスタック出力は $0.43 \text{ W}$ であった。

今回使用したPEFCスタックの定格出力 $1.5 \text{ kW}$ を得るには電流密度 $400 \text{ mA/cm}^2$ 、水素／空気利用率 $70\%/40\%$ （常圧）の条件で実現できることが確認できた。

## 4 PEFC等価回路評価試験

### 4.1 研究の目的

PEFCは、電気自動車の電源として将来が期待されていることは前述したが、PEFCを車載用電源とするシステムを設計する場合、あるいはその他の電源システムを設計する場合においてもPEFCの電気的等価回路の知見を得ることは極めて有用なことである。ゆえに、本研究では燃料電池の電気的等価回路を設定し、その中の回路素子の値とその変化を測定、評価することを目的とした。

### 4.2 過電圧と等価回路素子

燃料電池は電流を取り出すと、分極現象のために端子電圧は起電力より過電圧の分だけ低下するという事象がある。過電圧には活性化分極による活性化過電圧 $\eta_a$  (Activation Overvoltage)、反応物質の拡散現象に関連した濃度過電圧 $\eta_c$  (Concentration Overvoltage) および電極と電解液との接触抵抗やその他の電気抵抗で生じる抵抗過電圧 $\eta_r$  (Resistance Overvoltage) の3種類がある。これらの過電圧に対応して等価回路素子を決定する。

PEFCは電解質膜を挟んだ一对の電極表面に電気化学的二重層が存在するから、等価回路中にもかなり大きな容量成分が存在する。また $\eta_r$ に対応する抵抗 $R_e$ 、および $\eta_a$ 、 $\eta_c$ に対応する抵抗 $R_i$ がある。ゆえに等価回路の第一近似として図5が考えられる。負荷遮断時の電圧変化を解析し、 $R_e$ （溶液抵抗）、 $R_i$ （電荷移動抵抗）、 $C$ （二重層容量）の各素子の定数を決定する。

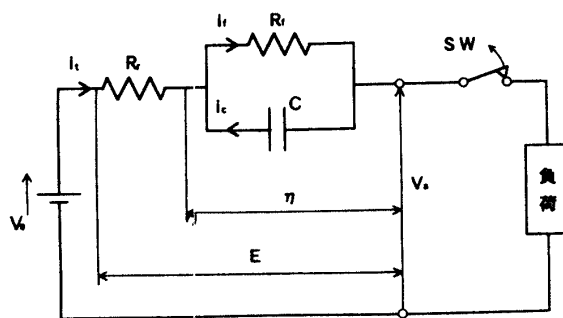


図5 燃料電池の電気的等価回路

### 4. 3 実験条件

PEFCに純水素/空気をそれぞれガス利用率70%/40%で供給し、室温(30℃)で運転を行なう。上記の条件で電流密度を300mA/cm<sup>2</sup>および500mA/cm<sup>2</sup>の2条件について実験した。すなわち、それぞれの負荷状態から急速負荷遮断を行ない、その時点からの電池端子電圧の過渡特性を測定することによって、回路素子の定数を決定することを試みた。なお、負荷遮断時の過渡現象の記録にはデジタルトランジェントレコーダーを使用する。

### 4. 4 結果と考察

負荷遮断時のトランジェントは、過電圧 $\eta$ と二重層容量 $C$ のために遮断と同時に急激なステップ状変化があり、続いて時定数による緩やかな上昇を経て、約2.4Vで一定となった。この測定結果を解析して電流密度に対する溶液抵抗、電荷移動抵抗ならびに二重層容量を求めた。

$R_s$ は、電流密度の変化に関わらず約30mΩで一定の値を示した。これは $R_s$ が電極-電解液間の接触抵抗や電解液その他の電気抵抗(溶液抵抗)であるので、電流密度に依存しないためと考えられる。

$R_t$ は、燃料電池内の化学反応における抵抗(電荷移動抵抗)に相当する。

$R_t$ は電流密度を300mA/cm<sup>2</sup>から500mA/cm<sup>2</sup>へ増加させる間に、80mΩから40mΩへと減少した。これは電流密度の増加の割合に比べ、過電圧の増加の割合が少ないためと考えられる。

$C$ は、アノードおよびカソードに依存する界面電気二重層に起因する電気容量である。燃料電池セル面内の等価電気容量は300mA/cm<sup>2</sup>時で約3200F/m<sup>2</sup>、500mA/cm<sup>2</sup>時で約2900

F/m<sup>2</sup>と非常に高く、 $C$ は電流密度を上げると若干ではあるが減少傾向を示すことが分かった。しかし、誤差の範囲を考慮に入れて考えると、ほぼ一定の値を示しているといえるので、電流密度に対する依存性はないと考えられ、スタックとしての実効容量は、約2.8Fであった。従ってスタックの時定数は0.2s程度である。

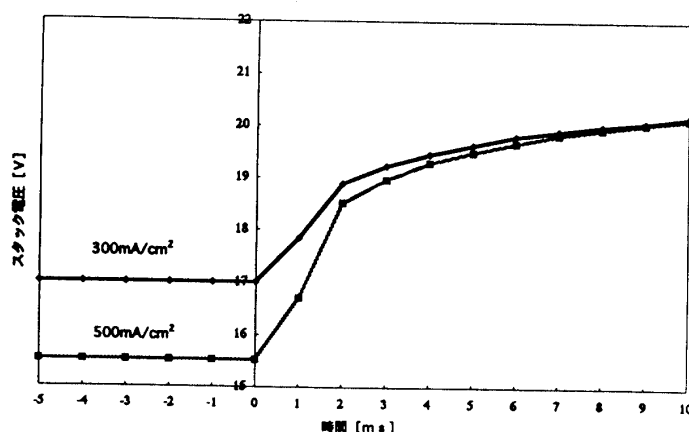


図6 瞬-スタック電圧

## むすび

本研究では、1. 5 KW級PEFCについて、電流密度変化に対するスタック電圧およびスタック電力特性を測定しスタックの基本特性を調べた。また、電圧過渡特性の測定を行ない等価回路素子の値を決定し、電流密度変化に対する依存性を調べた。その結果、基本特性測定実験では、 $500 \text{ mA/cm}^2$ の高電流密度まで緩慢な電圧変化で、極めて優れたV-I特性を示し、それに対応して2. 5 KWの出力容量のあることが示された。

電氣的等価回路評価試験については、 $R_f$  (電荷移動抵抗) および  $C$  (二重層容量) は電流密度依存性が極めて小さいことが分かった。しかし、 $R_s$  (溶液抵抗) は電流密度の増加と共にかなりの減少傾向が認められた。また、スタックの時定数は約0. 2 s で電氣的には極めて早い応答特性を有することが分かった。

以上のように、本研究は、PEFCの基本特性、電氣的等価回路の定数に関して、測定、検討、評価を行ない、PEFCスタックを電源とするシステムの設計・評価に際して、基礎データの一端を提供するものである。

## 参考文献

- 1) 高橋 武彦 : 「燃料電池 (第2版)」, 共立出版株式会社・1992
- 2) 光田 憲郎 : 「固体高分子型燃料電池」, J E M A 第8回新エネルギー講演会・1995
- 3) 光田 憲郎 : 「自動車搭載用燃料電池」, 神戸伝熱セミナー・1993
- 4) 岸田 公治 : 「エネルギー技術」, 関西電力能力開発センター
- 5) 前田 秀雄 : 「固体高分子型燃料電池スタックの特性解析」, 電気化学協会東海支部設立40周年記念講演会・1994

(平成8年12月6日受理)