

---

## 電気自動車用燃料電池の開発と実車試験

### Fuel cell of high performance for vehicular application

代表研究者	山梨大学工学部教授 Prof., Faculty of Eng., Yamanashi Univ., Satoshi Moroo	本尾 哲
共同研究者	東京大学教養学部助教授 Assoc. Prof., College of Arts and Sciences, Univ. of Tokyo Ryo HIRASAWA	平澤 冷
	横浜国立大学工学部助教授 Assoc. Prof., Faculty of Eng., Yokoyama National Univ. Ken-ichiro Ota	太田 健一郎
	山梨大学工学部助教授 Assoc. Prof., Faculty of Eng., Yamanashi Univ. Nagakazu FURUYA	古屋 長一

A tricycle was planned to be driven by 2 kW-H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> fuel cell of sulfuric acid type within 2 years. Gas diffusion electrodes of high performance were established. Half cell test of the performance is 2 A/cm<sup>2</sup> at 0.7 V with 0.56 mg Pt/cm<sup>2</sup>. The limiting current density is 2.5 A/cm<sup>2</sup>.

The performance was 1.0 A/cm<sup>2</sup> at 0.6 V with oxygen as oxidant and 0.2 A/cm<sup>2</sup> at 0.6 V with air as oxidant for a small cell with electrodes of effective area of 12.5 cm<sup>2</sup>. 4 kg/cm<sup>2</sup> was necessary for a cell with air electrode to get the same performance as with oxygen electrode.

The performance was 0.54 A/cm<sup>2</sup> at 0.60 V (0.56 mg Pt/cm<sup>2</sup>) with oxygen as oxidant for a cell with electrodes of active area of 100 cm<sup>2</sup> (100 mm×100 mm). Bipolar plate with coolant flow system was designed and examined in this cell.

A 1.1 kW-H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> fuel cell stack consists of 39 cells. This cell was tested for a power source for the tricycle. The tricycle was capable of cruising at 30 km/h.

---

### 研究目的

代表研究者らは著しく高い電流出力を有するガス拡散電極を開発した。この電極を大型化、量産し、積層して高出力密度燃料電池を作成する。自動三輪車にこの電池を搭載し実車試験を行なう。走行試験を行ない燃料電池自動車の可能性を実証することを目的とした。

低公害車（無騒音・無大気汚染）へのアプローチの一つとして電気自動車が挙げられる。電気自動車の電源として鉛蓄電池、ニッケル-鉄蓄電池などの諸電池が実用または試験されている。蓄電池を用いた電気自動車は、蓄電池の出力密度が低

いために全重量に対する蓄電池の重量の比率（以下重量比と略記）が著しく大きい。本研究で実車試験に使用した自動三輪車を例にとると、全重量140 kg（充電用トランス・整流器を含む）、蓄電池重量46 kg、重量比は33%であるが、充電用トランス・整流器（重量不詳）を考慮に入れると重量比は優に50%を越えるものと思われる。さらに走行距離は1充電当たり30 kmと短く、充電時間は8時間と長時間を要する。ガソリンエンジン車に比べ1充電当たりの走行距離が著しく低く、充電時間が長いことから、電気自動車が普及しない理由の一端が理解できる。

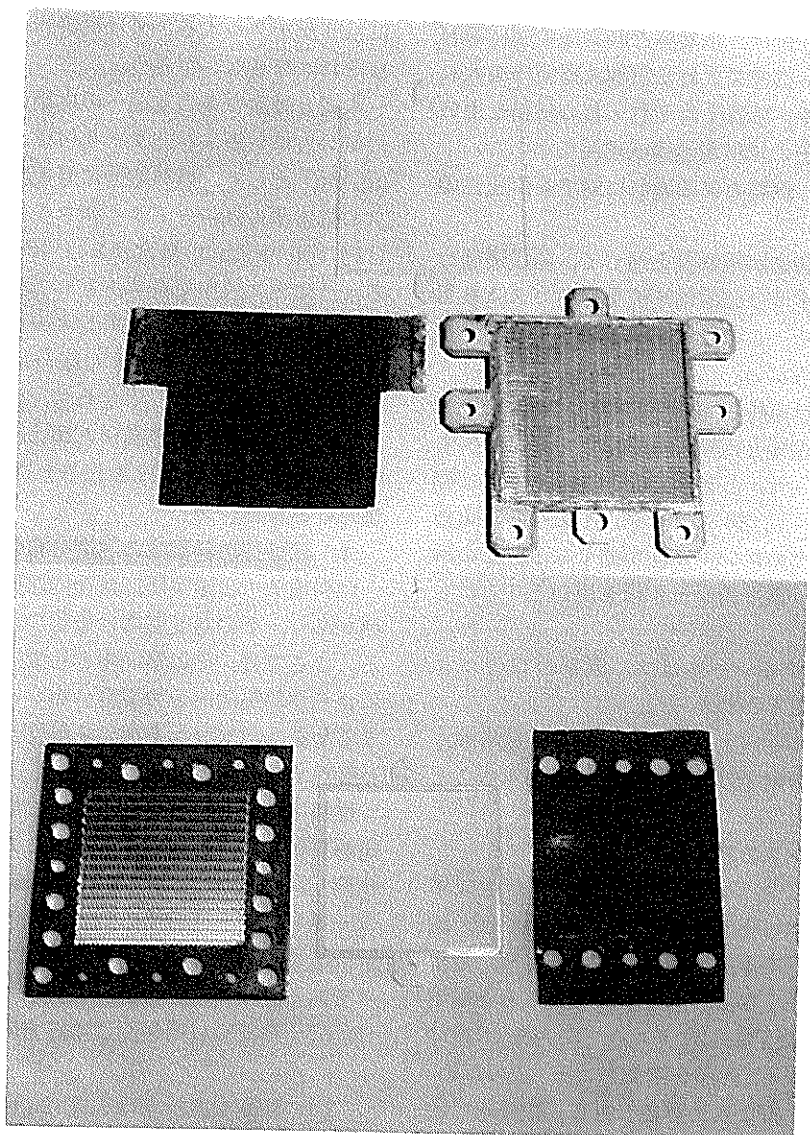


写真1. アルミニウム製及びステンレス製のバイポーラプレートと1スタック分の燃料電池構成部品.

て検討した。

燃料電池の構造は単セルを多数スタックして出力密度を増加する。その単セルにおおの、水素、酸素、を供給する。さらに電池のエネルギー効率を40~50%にすると、電池出力とほぼ等しい熱を電池から取り除かなければならない。これらの必要条件と軽量、振動に対して強いことを加味して、材料はアルミニウムとした。しかしながらアルミニウムは強度的に小さいのでバイポーラ

プレートを薄くすることはできない。燃料電池の小型化だけを考えて強度の高いステンレス製のバイポーラプレートも製作した。

バイポーラプレートの構造は三室構造とし、中心に冷却剤の流れる冷却剤室、両側に水素と酸素室をそれぞれ設けたものとした。材料であるAl、またはSUSをろう付けして一体構造とした。1枚当たりの厚さは約5.2mm(Al)、4.3mm(SUS)である。このバイポーラプレートの両側に水素極

と酸素極を取り付け、水素極と酸素極の間に電解液である 25% 硫酸を入れる電解液室用枠を入れてスタックする。写真 1 にそれぞれの材料を用いた 1 スタック分の燃料電池構成部品を示した。

## 2. 電解液、燃料ガスの漏れに対する耐圧性の向上

水素または酸素が電解質を通して、直接燃焼しないために本電池は硫酸電解液を燃料ガスよりも高圧にしている。このため電解液のシール性が良くなければならない。

シール部分は電極と電解液室材料、電解液の導入部である。電極と電解液室材料との間には何もなくても密着させ、しめつけ圧力を高くすれば漏れはない。しかし、20 スタック以上になると電極の厚さむらのためにシール性が悪くなる。この解決のためにフッ素系のシール材を用いることにした。

ガス類に対するシールはフッ素系の O リングで十分であることがわかった。

以上、シール性向上をはかった結果、電解液、ガス類の流路の耐圧は  $5 \text{ kg/cm}^2$  以上とすることが可能であった。

## 3. 水バランスの最適化

燃料電池内で水素、酸素が反応し水が生成する。この生成水は電池外に排出されなければ、硫酸電解液を希釈する。体積が増加するため、電解液室の内圧が高くなる。低濃度硫酸となると電気抵抗が高くなる結果、IR ドロップが大きくなり、電池出力の低下と、発熱を増加させる。このため、水バランスをとることは重要である。生成水は約半分がパージする水素ガスと酸素ガスによって排出される。あとの半分が電解液中に残ってしまう。このため、硫酸リーク弁を設けて  $1 \text{ kg/cm}^2$  以上の圧力となったら、硫酸が電池外に排出される方式とした。水素と酸素はリサイクルせずに大気中に少量ずつパージした。水素は約  $100 \text{ ml/min}$ 、酸素は  $400 \text{ ml/min}$  である。パージする水素量は使用量の 1% 以下である。これらのパージにより、それぞれのガス室中に凝縮した水とガス中に含まれている水が電池外に放出される。今回、放出ガスは大気中にそのまま出したが、実際

にはリサイクルするか又は燃焼器をつけて酸化しななければならないだろう。

水素と酸素ガスの電池への供給は  $150 \text{ kg/cm}^2$  のポンペにレギュレーターを付け、2 次圧を  $0.5 \text{ kg/cm}^2$  として、燃料電池に直接配管した。両ガスの排出側にはニードルバルブを付け、水素ガスは約  $100 \text{ ml/min}$ 、酸素ガスは  $400 \text{ ml/min}$  となるようにガス放出量をニードルで調節した。以上の方法により、両ガスともレギュレータの働きで  $0.5 \text{ kg/cm}^2$  の圧力で必要な場合は必要な量だけ電池内に供給できる。すなわち、燃料ガスの使用量は電池の電流出力が高いときには多くなるが、電流出力が 0 のときはそれぞれのガスのパージ量だけとなる。

## 4. 硫酸型燃料電池の温度分布の解析

燃料電池では過電圧、各種内部抵抗に基づく発熱があり、その温度制御は重要な課題となっている。ここでは、その第一歩として、局所的な発熱により燃料電池内部の温度分布がどのように変化するかを、パソコンを用いる簡便な数値解析により計算することを試みた。

燃料電池としては自動車用として開発中の硫酸電解質型とし、燃料（アノード）ガスは水素、酸化剤（カソード）ガスは酸素のみとし、電極はカーボンブラックを用いるガス拡散電極とした。解析法は陽的差分法を用い、重要な仮定は次の通りである。

- (1) 熱流束は電極面に垂直方向の一次元とする。
- (2) 初期温度分布は一様 ( $20^\circ\text{C}$ ) とする。
- (3) 発熱はカソード/電解質界面でのみ起こるものとする。

数値計算の安定性、集束性については問題のないことを確認した上で、各物性値、熱力学値を入れ、燃料電池のガス温度、電極、電解質温度について計算を実施した。アノードガス、カソードガス温度を変化させるため、計算の都合上、電極/ガス界面での温度差の比を変数とした。この比が 0.7 では電解質温度が  $124^\circ\text{C}$ 、アノードガス温度が  $88^\circ\text{C}$ 、カソードガス温度が  $92^\circ\text{C}$  間で上昇するが、温度差の比が 0.3 では電解質温度  $68^\circ\text{C}$ 、ア

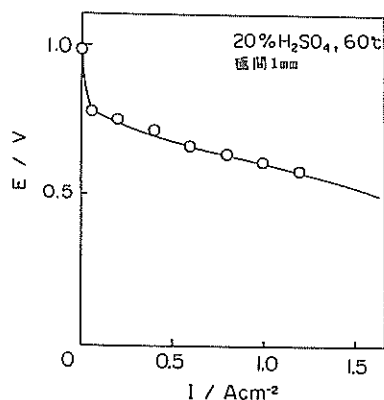


図2. 小型電極 (12.5 cm<sup>2</sup>) における出力特性.

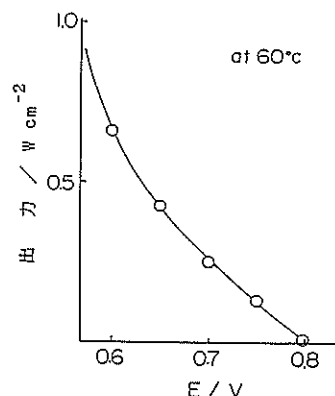


図3. 小型電極 (12.5 cm<sup>2</sup>) の電圧と電力の関係.

ノードガス 32°C, カソードガス 34°C となった。これは温度差の比, すなわち, 電極/ガス界面での熱伝達が温度制御の重要なポイントであることを示しているものと思われる。各物性値の不明確さから実際の電池の温度分布を確認することはできなかったが, 本解析により次の点が明らかとなった。

- (1) 電極, 電解質の温度はほぼ同じとなるが, 電解質温度が燃料電池中で最も高くなる。
- (2) アノードガス, カソードガスともにほぼ同一温度となる。
- (3) 温度勾配は電極/ガス界面で最も大きくなる。
- (4) 温度が定常になるのに反応開始後数分を要する。

以上の結果は燃料電池作動時の結果をほぼ説明できる。さらに燃料電池を大型化するとき役立つものである。

#### 5. ガス拡散電極の高電流密度化

燃料電池を組み上げる前のステップとして小型電極 (12.5 cm<sup>2</sup>) で単電池の高性能化を行った。

硫酸型燃料電池の出力がどの程度まで大きくなるかを求めておくことは重要である。半電池試験のデータから白金使用量 0.56 mg/cm<sup>2</sup>, 60°C, 1 atm の H<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> での条件で可能と思われる値として, 0.6 V, 1.0 A (0.6 W/cm<sup>2</sup>) を推定した。

その結果, 12.56 cm<sup>2</sup> の電極において 0.56

mg/cm<sup>2</sup> の白金担持量で粉末プレス法を用いて 600 kg/cm<sup>2</sup>, 380°C のプレス条件下で, 0.6 V で 1.1 A/cm<sup>2</sup> (0.66 W/cm<sup>2</sup>) の単電池が可能であることが明らかとなった。図2に出力特性を, 図3に出力電圧と電力の関係を示す。

#### 6. 大型電極 (100 cm<sup>2</sup>) の高電流密度化と量産化

大型電極 (100 cm<sup>2</sup>) でも目標の電池性能を出せるように電極の作製行程の検討を行なった。小型電極との作製上の最大の違いはプレス装置と治具の大型化である。そのため電極をプレスする治具の加熱時間, 冷却時間が著しく異なり, 小型電極での最適条件がそのまま適用できない。さらに小型電極では作製可能である方法でも大型化できないなどの問題も出てきた。例えば, 最も安定に性能が出せる粉末法をそのまま大型化することは不可能である。なぜならば反応層粉末を均一な厚さにすることは 12.5 cm<sup>2</sup> ぐらいまでできても, 100 cm<sup>2</sup> となると均一な厚さにできない。このような大型化に伴う問題点を回避するために新しい電極作製方法を試みた。

転写プレス法, カーボンプレス法, ロールプレス法, 浮遊プレス法などである。各方法における実験結果をまとめたものが表1である。カーボンプレス法がすべての項目について優れていることがわかる。しかしながら, カーボンペーパーを使用するため, 高価になってしまう。燃料電池を組み上げるための電極の量産は次に優れているロー

表1. 各種ガス拡散電極の作製方法の性能比較

	粉末プレス	塗布プレス	ロールプレス	カーボンプレス
出力特性	◎	◎	◎	◎
作製方法の難容	○	○	◎	◎
反応層の均一性	△	△	◎	◎
反応層の薄層化	△	◎	△	◎
電極の強度	○	○	○	◎

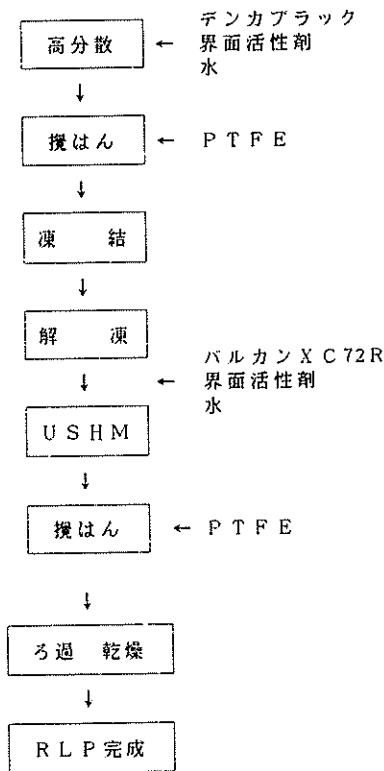


図4. 反応層粉末 (RLP) の製造法.

ロールプレス法で行なうことにした。ロールプレス法で  $0.6\text{ V}-0.5\text{ A/cm}^2$ ,  $0.5\text{ V}-0.9\text{ A/cm}^2$  ( $0.45\text{ W/cm}^2$ ) の電池出力密度を持つ単セルが実現できた。

図4にロールプレス法の電極作製フローシートの反応層用原料粉末の調製工程を示した。親水性カーボンブラックと PTFE, 疎水性カーボンブラックと PTFE を別々に混合し, 凝集させ, 反応層中に電解液網とガス供給網を微細に作ろうとしたものである。

図5にガス拡散層用原料粉末調製工程のフ

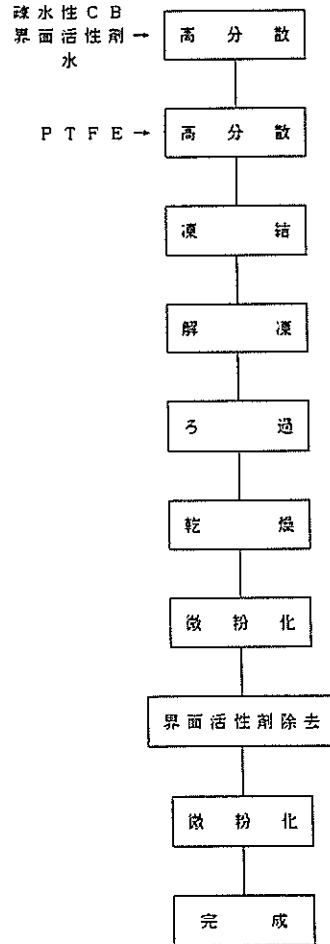


図5. ガス拡散層原料粉末 (GSP) の製造法.

ローシートを示した。ガス拡散層原料粉末は導電性とガス透過性, 電解液の不浸透性を持つ必要から, 疎水性カーボンブラックと PTFE の分散した混合物となるように工程を考えてある。図6にそれぞれの原料粉末を用いたロール法のフロー

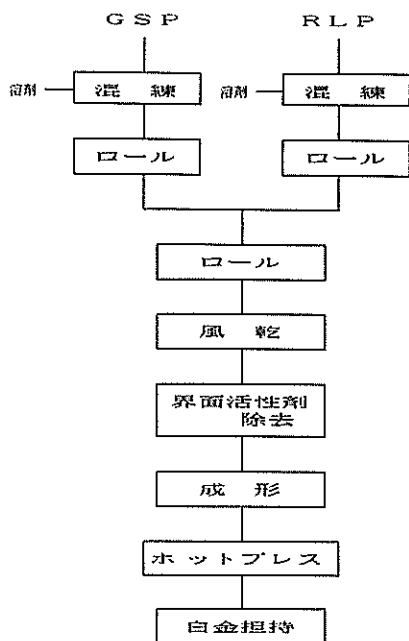


図6. 電極作製工程のフローチャート.

シートを示した。上記のそれぞれの原料粉末は溶剤（ソルベントナフサ）とともに混練されロールされる。各シートを合わせた後、さらにロールする。風乾後、界面活性剤を除き、Cu網とともにホットプレスされる。ホットプレスの圧力は  $600 \text{ kg/cm}^2$ 、温度は  $380^\circ\text{C}$  である。プレスされた電極は塩化白金酸水溶液を塗布する方法で白金担持を行なった。白金の担持量は水素、酸素ともに  $0.56 \text{ mg/cm}^2$  である。

量産品の電極の性能試験は極間  $10 \text{ mm}$  の単セルを構成して行なった。この方法によれば、燃料電池として組み上げた場合の性能が簡単に評価できる。図7に一例を示す。極間  $10 \text{ mm}$  の単セルであるから電解液抵抗分による IR 損だけ出力は低下している。この値から  $9 \text{ mm}$  の抵抗分の IR を上のせした値が実際に燃料電池として組んだときに出力されるわけである。 $9 \text{ mm}$  分の液抵抗を実測すると、 $0.85 \Omega\text{cm}$  となったのでこの値を補正值とした。

実際に多数に電極を作った場合、図7の性能は再現できることが明らかとなった。しかしながら量産品の性能は小型電極、さらに大型電極でも試

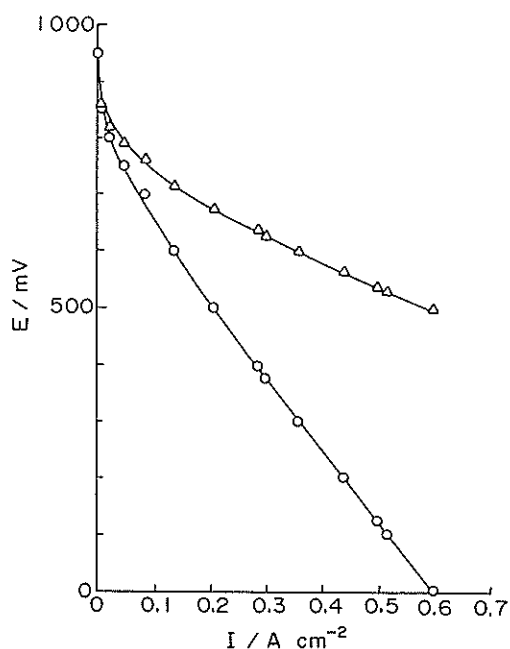


図7. 単セル試験の一例, 電極の性能評価.

験品の性能に及んでいない。理由は製造上の問題であると考えられる。

### 7. 発電テスト

ロールプレス法で量産した白金が  $0.56 \text{ mg/cm}^2$  担持された  $100 \text{ cm}^2$  電極を用い 39 セルから成る電池を構成した。39 セルとしたのは電池を搭載する三輪車の仕様電圧が  $24 \text{ V}$  であることによる。写真2に電池の外観を示す。

$60^\circ\text{C}$  での電池出力は  $1.3 \text{ kW}$  ( $20 \text{ V}-65 \text{ A}$ ) であった。図8に出力電圧と出力電流の関係を示す。図9に電池の電力特性を示した。 $25 \text{ V}$  では  $0.7 \text{ kW}$ 、 $20 \text{ V}$  では  $1.3 \text{ kW}$  となる。各スタックの電池性能は多少のバラツキがあった。図10に各単セルの出力のバラツキを示した。測定結果が二つに分かれているのは同時に 39 スタック分データを測ることができないためである。性能の高いものは  $25^\circ\text{C}$  でも  $0.6 \text{ V}$  で  $0.5 \text{ A/cm}^2$  ( $0.3 \text{ W/cm}^2$ ) 以上の出力となっている。悪いものは  $0.4 \text{ V}$  で  $0.5 \text{ A/cm}^2$  ( $0.2 \text{ W/cm}^2$ ) である。電極の性能はほぼ満足のいくものであるが、同一性能の電極を多数作ることが今後の課題である。図11は各セルの電圧のバラツキを電池出力に対して測定した

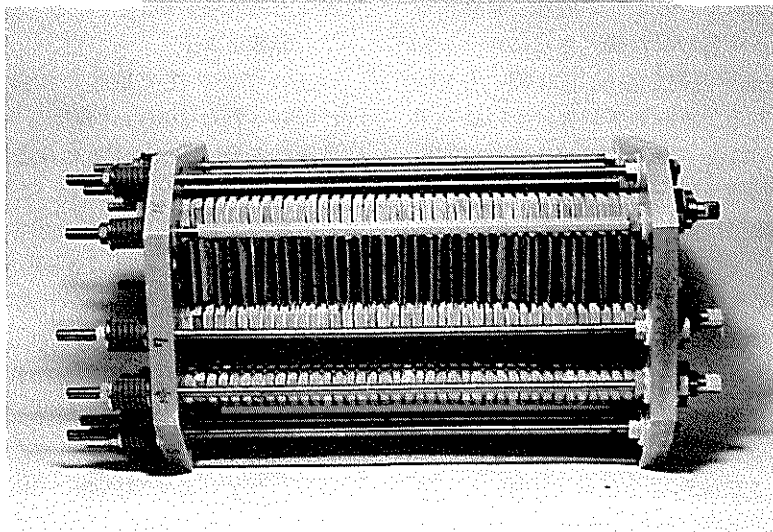
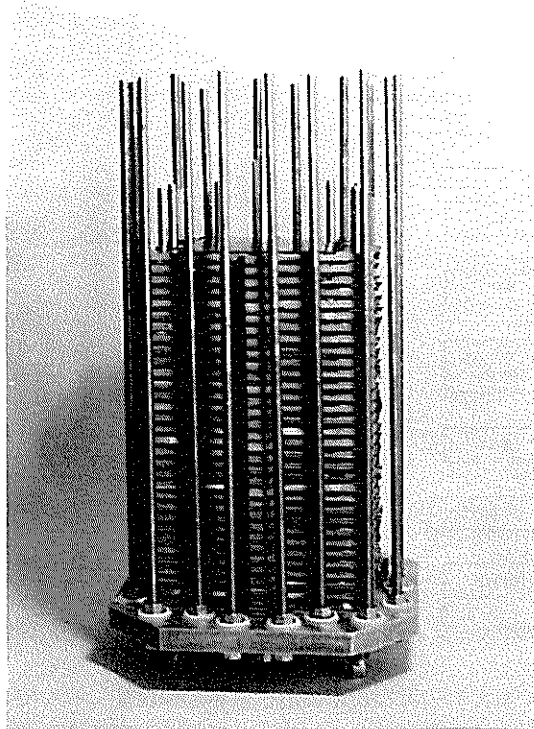


写真 2. アルミニウム製バイポーラプレートを用いた 39 スタック燃料電池の組み立て及び完成写真.

ものである。出力を増加させると各セルの電圧のバラツキが大きくなっている。これらのバラツキは電極の性能のバラツキである。供給水素、酸素の不足ではないことは中心部の電圧が特に他に比

べ低くないことから明らかである。すなわち、燃料ガスの供給は十分である。60°C での電池出力の平均は 0.53 V, 0.54 A/cm<sup>2</sup> (0.29 W/cm<sup>2</sup>) で、性能の高い電極は 0.6 V, 0.54 A/cm<sup>2</sup> (0.324

W/cm<sup>2</sup>), 低いものは 0.45 V, 0.54 A/cm<sup>2</sup> (0.25 W/cm<sup>2</sup>) であった。電極の均一化をすれば, 50 スタックで目的の 2 kW の出力が達成できる。

次に, ステンレス製のバイポーラプレートを用いた 49 スタックの電池について述べる。ロール法で 0.56 mg/cm<sup>2</sup> の白金を担持させた電極を作製した。組み上がった電池は 1 スタック 6.5 mm でアルミ製のものよりコンパクトであった。しかし重さは 45 kg と重くなった。この電池の出力は 1.37 kW (21 V-65 A) であった。写真 3 に電池の

写真を示した。

### 8. 実車テスト

上記 39 スタックの電池を, 三輪車に搭載した実車テストを行なった。電池の重量は 14 kg, 電池出力は水素, 酸素で 60°C で 1.1 kW であった。冷却系としてフロンを用いたラジエーターを付けた。このラジエーターはファンなしで自然冷却とした。写真 4 に燃料電池とラジエーターを載せた三輪車を示した。

三輪車の重さは 98 kg となった。70 kg の人間

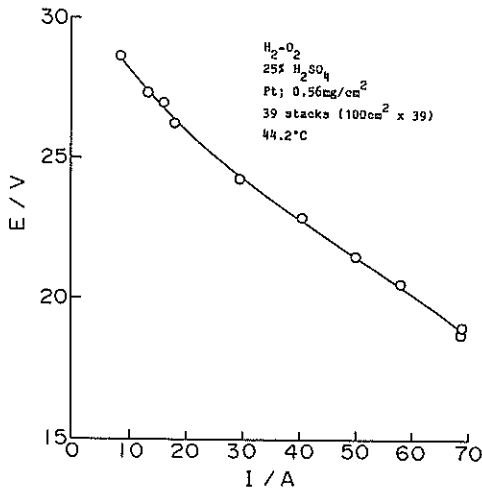


図 8. 39 スタック燃料電池の電流-電圧性能.

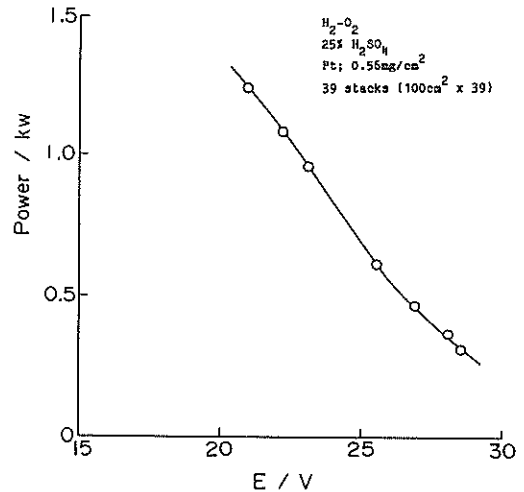


図 9. 39 スタック燃料電池の電圧と出力の関係.

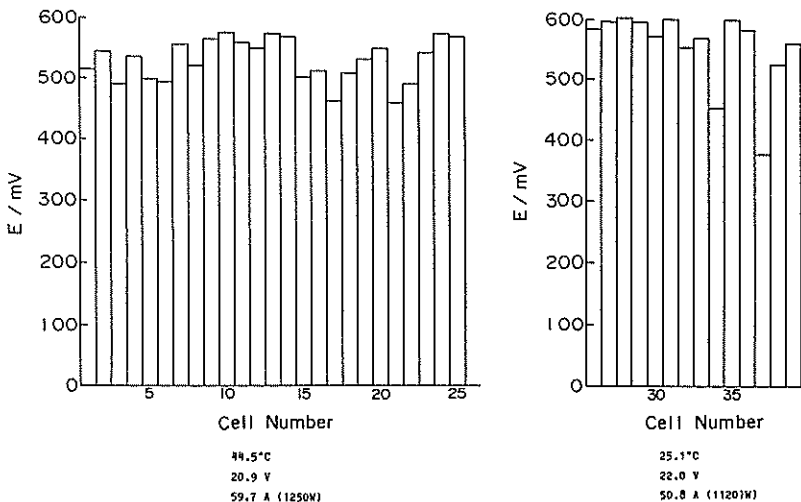


図10. 各セルの性能比較.



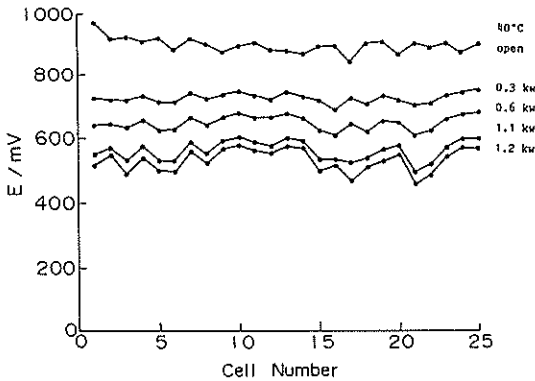


図11. 燃料電池の出力と各セルの電圧の比較.

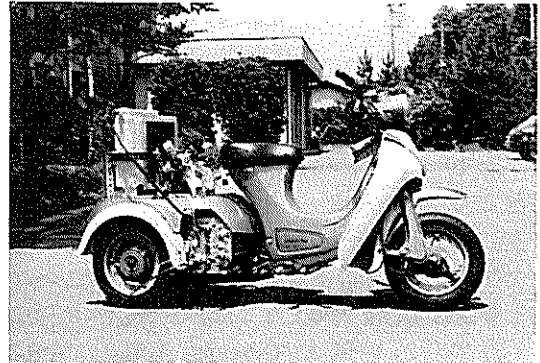


写真4. 燃料電池を搭載した三輪車.

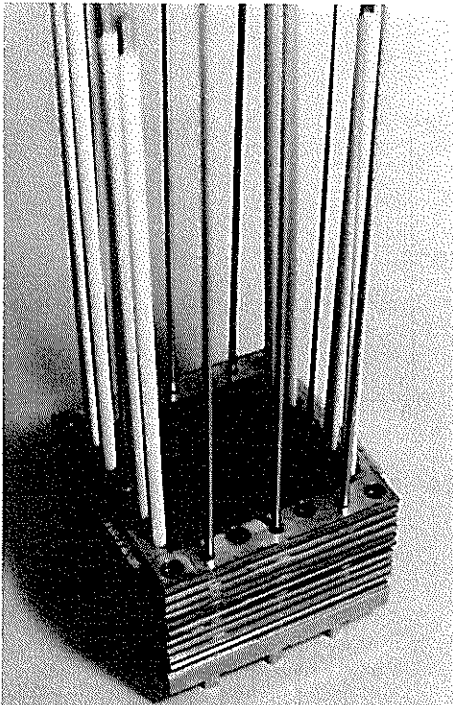


写真3. 組み立て中のステンレス製バイポーラプレートを用いた49スタック燃料電池.

を乗せ、外気温 10°C で水素と酸素をセルに供給し、数秒後には走行が可能となり、ただちに 20 km/h の速度となった。すなわち、コールドスタートが可能であることがわかった。

本テストでは最高速度 30 km/h で連続走行が可能であり、フロンを用いた冷却系は 60°C 以上にはならなかった。この速度は、この三輪車がバッテリーを用いた時の最高速度と同じである。



写真5. 走行中の燃料電池三輪車.

30 km/h 走行時の燃料電池の出力は 20 V-56 A (1.1 kW) であり、発電テストと同一出力となっていた。このとき用いた水素と酸素は内容積 2 l のボンベで 150 kg/cm<sup>2</sup> に加圧されたものである。この水素、酸素ガスで 5 km の距離を走行することが可能であった。写真5に走行中の三輪車を示した。燃料電池と冷却用のラジエター、燃料ポンベが2本、搭載されているのが見える。

ステンレス製の電池を三輪車に載せ、走行テストを行なった。速度は 32 km/h となり、フロン冷却も十分であった。平地走行 30 km/h では 27 V-43 A (1.16 kW) であった。約 5% の登りでは 21.6 V-62 A (1.34 kW) で 20 km/hr であった。平地において常圧 300 l の水素で 7 km の走行が可能であった。燃料電池の性能は走行前と走行後では変化していないことがわかった。しかしながら個々のセルについては性能の増減がみら

れ、平均して変化なしという結果である。熱伝導の悪いステンレスでも十分冷却効果があることがわかった。45 kg という電池の重さにもかかわらず最高速度はアルミ製の場合と変わらず、十分実用的であることが実証できた。

以上の実車試験によって硫酸型燃料電池は燃料電池自動車用電源としての可能性が十分であることが実証できた。

#### 9. 今後の課題

本研究により硫酸型燃料電池の可能性が実証できた。しかしながら、燃料電池を実用化させるためには、次のことについてさらに研究を進める必要があろう。

1. ガス拡散電極の設計理論の確立によって量産化に伴う性能低下とバラツキの改良
2. 電極の寿命の確認と長寿命化

#### 謝 辞

本研究は昭和 60 年度から 61 年度の 2 年間にわたる日産科学振興財団の研究助成により行なわれたものであり、同財団と選考委員の先生方および推薦いただいた電気化学協会に深く感謝いたします。

また、三輪車を提供いただいたダイハツ工業(株)の佐伯真次氏、実験にご協力いただいた山梨大学工学部応用化学科電気化学講座の学生諸君に深くお礼を申し上げます。

#### 研究発表

- 1) 電気化学協会第 53 回大会, 講演要旨集, A104 (1986. 4).
- 2) 電気化学協会第 53 回大会, 講演要旨集, A105 (1986. 4).
- 3) 電気化学協会 86 年秋期大会, 講演要旨集, G204 (1986. 10).
- 4) 電気化学協会第 54 回大会, 講演要旨集, C127 (1987. 4).