

# 燃料電池内部流路の最適化の基礎研究\*

猪阪大輔<sup>\*1</sup>, 舟木治郎<sup>\*2</sup>  
平田勝哉<sup>\*2</sup>, 谷川博哉<sup>\*3</sup>

## Fundamental Study for Optimisation of Inner Flow inside a Fuel Cell

Daisuke INOSAKA<sup>\*1</sup>, Jiro FUNAKI<sup>\*2</sup>,  
Katsuya HIRATA<sup>\*2</sup> and Hirochika TANIGAWA<sup>\*3</sup>

Recently, the technics and needs for fuel cells are developing. This research draws focus to wet surface control of the film in the fuel cell. As wet surface we consider a thin water layer in shallow container, and try to reveal the vibration effect. More specifically, we study liquid surface pattern in forced vertical sloshing. As a result, we can't confirm enough reproducibility on the surface pattern. Because the pattern strongly depends on the minute change of surface tension, and because tested ordinary tap water has moderate temperature effect on surface tension. We successfully to get the reproducibility using the tap water mixing a surface active agent, which decreases the surface tension and decreases the temperature effect. Finally, we show a stability diagram concerning oscillation frequency and oscillation amplitude as governing parameters.

*Key Words:* sloshing, surface tension, fuel cell, pattern, mode

### 1. 緒 言

世界の人口の急激な増加に伴い、エネルギーの消費も増加している。また、日本の電力需要は増加しており、民生用電力量のシェアは 2010 年には 50% を超えると見込まれている。それに伴い、民生用の燃料電池の開発が始められた。最近は生活がかなり高水準になってきたため、コーチェネレーションシステムの一つとして燃料電池が期待されている<sup>(1,2)</sup>。

また、燃料電池の中でも PEFC(固体高分子膜燃料電池)の開発が非常に活発化している。PEFC の長所として、原理的に長寿命でメンテナンスが容易、また常温作動ができるなどがあげられる。一方、短所として、排熱利用制限や CO 被毒、さらには電解質が湿潤状態でないと使えないため、膜の水分管理が非常に重要であることがあげられる<sup>(1,2)</sup>。

そこで、本研究では膜の表面を容器に薄く水を張ることで仮定し、その容器を縦スロッシングさせたときの液面動搖を報告する。重力波を考慮した縦ス

ロッシングについての研究としては、容器内の液体が鉛直振動外力を受けた場合に、自由表面が外力振動の 1/2-subharmonic 応答することを Faraday が 1831 年に発見して以来、液面動搖についてさまざまな研究がなされている<sup>例えば(3)</sup>。しかし、浅い容器、つまり表面張力波を考慮した縦スロッシングの研究はあまり多くない。表面張力波を考慮した縦スロッシングの成果としては、Fauve が波紋、平行線、六角形などのパターンを確認している<sup>(4,5)</sup>。なお、パターン形成の議論はなされていないが、表面張力波については文献<sup>(6)(15)</sup>などがある。今回の研究の目的は、液面動搖を制御するための基礎研究として、縦振動が液面パターンに及ぼす影響を、実験的に調べた。

### 主な記号

<i>A</i>	加振変位振幅[mm]
<i>Bo</i>	ボンド数( $= g \rho D^2 / \sigma$ )
<i>D</i>	容器の内径[mm]
<i>f</i>	加振振動数[Hz]
<i>Fr</i>	フルード数( $= v / (Dg)^{1/2}$ )
<i>g</i>	重力加速度[m/s <sup>2</sup> ]
<i>H</i>	容器の高さ[mm]
<i>h</i>	液面の変位[mm]
<i>Re</i>	レイノルズ数( $= v D / \nu$ )

\*原稿受付 2005 年 6 月 20 日。

<sup>\*1</sup>同志社大学大学院

(〒610-0321 京都府京田辺市多々羅都谷 1-3)

<sup>\*2</sup>同志社大学工学部

<sup>\*3</sup>舞鶴工業高等専門学校

(〒625-8511 京都府舞鶴市字白屋 234)

- $T$  : 作動流体の温度[°C]  
 $v$  : 代表速度( $=A\omega$ )[m/s]  
 $We$  : ウェーバー数( $=\rho v^2 D/\sigma$ )  
 $\nu$  : 作動流体の動粘度[m<sup>2</sup>/s]  
 $\rho$  : 作動流体の密度[kg/m<sup>3</sup>]  
 $\sigma$  : 作動流体の表面張力[N/m]  
 $\omega$  : 角振動数[rad/s]

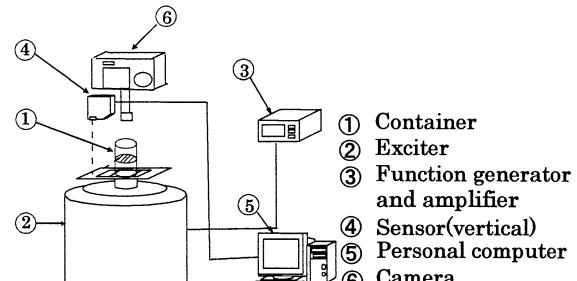


Fig.2 Experimental apparatus.

## 2. 実験装置および方法

### 2.1 実験容器

本実験で用いた容器を Fig.1 に示す。使用した容器は内径  $D=200[\text{mm}]$ 、高さ  $H=300[\text{mm}]$  の円筒である。また、可視化を行いやすいように容器外側の底面には黒色のフィルムを貼る。

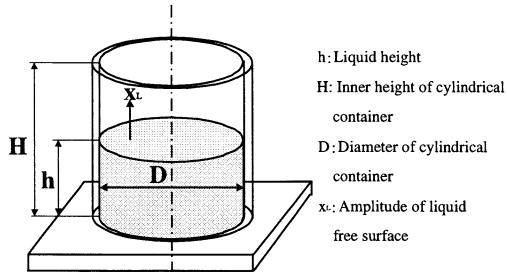


Fig.1 Container.

### 2.2 実験装置

本実験に使用した実験装置を Fig.2 に示す。容器①は透明アクリル樹脂製であり加振器(IVM 製, VE-3201)②の上に作動流体の入った状態で鉛直に固定する。加振器は動電型振動発生機であり、ファンクションジェネレータと增幅器③から信号を送ることにより、②は駆動する。ここで加振振動数と加振振幅は、任意に制御できる。なお、振動数と振幅の測定にはレーザー変位計(キーエンス社製, LK-080)④を用いる。レーザー変位計の信号はパーソナルコンピュータ⑤に取り込む。本実験では、作動流体に水を使用する。モードの確認および可視化にはデジタルカメラ⑥を用いる。

容器は加振器の中心軸上に、固定している。加振器は、 $50[\text{cm}] \times 50[\text{cm}] \times 50[\text{cm}]$  サイズの立方体状セメントブロックに鋼製補助材により鋼接している。

### 2.3 作動流体

使用した作動流体は通常の水道水、あるいは、界面活性剤(ラウリル硫酸ナトリウム)を混合した水道水(濃度 0.1% または 0.15%)の 2 種類である。作動流体を安定化するために、24 時間以上放置した。

### 2.4 実験方法

#### 2.4.1 可視化実験

加振器を振動させた時、容器中の液面形状パターンをデジタルカメラにより観察する。パターンは液体表面での光の反射によって可視化される。液体表面は非常に動きが激しく、焦点を合わせるのが困難であることから、カメラは、液面鉛直方向に 55[cm] の距離を保ち設置する。なお、可視化を行うあたり、光源としてハロゲン光を用いた。ハレーションの影響を極力小さくするため、ハロゲン光は液面から上方 25[cm] で約 45° の位置に設置した。

よりよい可視化を行うためには外部からの不必要的光を遮断する必要がある。そこで、暗幕を用い加振器の周りを囲んだ。これにより、不必要的光の反射を遮断する。

振動数は、10~50[Hz] で 2[Hz] ごとに変化させる。各振動数において、振幅を約 0.1[mm] から徐々に大きくなる。せ、その各状態での液面パターンをデジタルカメラによって可視化している。

#### 2.4.2 表面張力の測定

本実験では、表面張力の測定に、ジョリーのはねばかりを用いる。ジョリーのはねばかりを Fig.3 に示す。測定したい液体をシャーレに入れ、ばねに吊るした金属板のリングをその液体の水面から引き上げることによって、表面張力を測定する。リングの内半径  $r_i[\text{m}]$ 、外半径  $r_o[\text{m}]$ 、液体の表面張力を  $\sigma$  [N/m] とすれば、リングの内外両面に作用する全表面張力と、液柱の重さの和がばねの弾性力  $mg$  に一致するから、

$$2\pi(r_i + r_o)\sigma + \pi(r_i^2 - r_o^2)h\rho g = mg$$

$$\therefore \sigma = \frac{mg}{2\pi(r_i + r_o)} - \frac{r_i - r_o}{2}h\rho g \quad (2)$$

となる。ただし、 $\rho$  は液体の密度、 $h$  は引き上げられた水柱の高さである<sup>(10)</sup>。

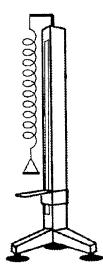


Fig.3 Jolly's spring balance.

### 3. 結果と考察

浅い容器での縦スロッシングにおいて、重要なパラメータとしては作動流体の表面張力と粘性力、重力、慣性力が考えられる。本章では表面張力に焦点を当てた実験結果について説明する。

#### 3.1 水の表面張力の測定結果

ジョリーのはねばかりにより測定した水道水の表面張力と理科年表<sup>(1)</sup>での純水の値を比較した図を、Fig.4に示す。その結果、本実験で測定した表面張力の値は理科年表の値よりも小さくなかった。水道水が蒸留水に比べて表面張力が低くなる理由は、水道水が含む不純物のためと考えられる。

最小二乗法により各近似式の値を求めた。その近似式の傾きは、本実験で使用した水道水では-0.157であり、理科年表の純水は-0.167となりほぼ一致する。

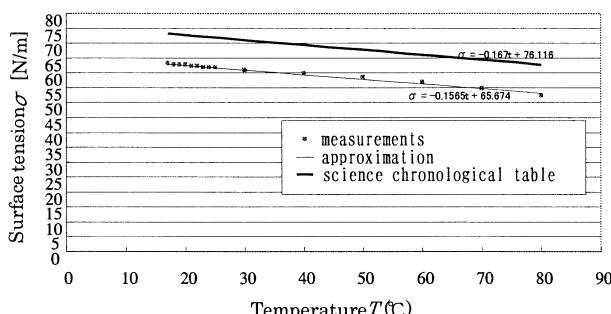


Fig.4 Relation between surface tension and temperature (tap water).

#### 3.2 再現性の確認について

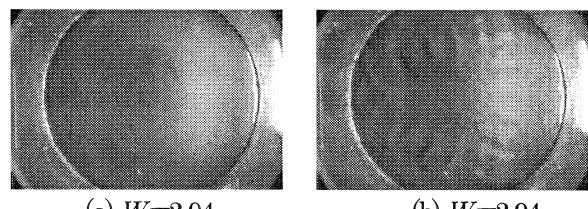
再現性の確認のために、同一のパラメータで、同じ実験を10分間で3回行った。パラメータは水深  $h=3.0[\text{mm}]$ 、温度  $T=23^\circ\text{C}$  (表面張力  $\sigma=61.764 \times 10^3 [\text{N/m}]$ )、振動数  $f=20[\text{Hz}]$  である。1回目の実験結果を Fig.5 に、2回目の実験結果を Fig.6 に、3回目の実験結果を Fig.7 に示す。(a)は  $We=2.04$  での実

験結果であり、(b)は  $We=2.94$  での実験結果である。その結果、再現性の確認が出来ないことがわかる。

この原因として我々は、微小な温度の変化を疑った。例えば、10分間での水の温度の微少な変動幅は  $\pm 0.2^\circ\text{C}$  程度と考える。このとき、表面張力の変動幅は、 $\pm 0.0313 \times 10^3 [\text{N/m}]$  である。この微少な表面張力の変動が大きく影響して再現性を悪くしている可能性がある。

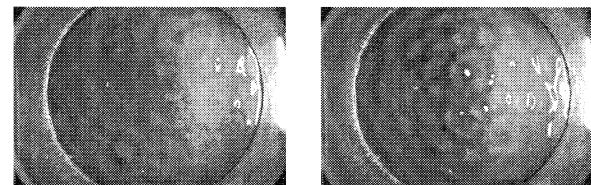
そこで、表面張力の依存性を調べる。界面活性剤を混合した水道水(0.1%または0.15%)の表面張力を測定した。その結果を Fig.8 に示す。この図より、界面活性剤を混合した水道水では表面張力の変化が極端に小さくなることが分かる。つまり、表面張力は  $20^\circ\text{C}$  から  $80^\circ\text{C}$  まで  $\Delta \sigma=0.04 [\text{N/m}]$  以内である。

そこで、この作動流体を用いて一定のパラメータで同様の実験を行ったところ、何度も試みてもすべてで Fig.9 となった。つまり再現性が確認できる。よって、液面パターンの変化は  $0.03 \times 10^3 [\text{N/m}]$  程度の表面張力の変化に強く依存することが分かる。



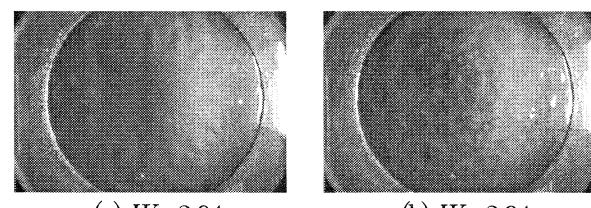
(a)  $We=2.04$   
(b)  $We=2.94$   
( $Re=5.4 \times 10^3, Fr=0.0180, Bo=6334$ )      ( $Re=6.5 \times 10^3, Fr=0.0215, Bo=6334$ )

Fig.5 Surface pattern at the first time( $23^\circ\text{C}$ ).



(a)  $We=2.04$   
(b)  $We=2.94$   
( $Re=5.4 \times 10^3, Fr=0.0180, Bo=6334$ )      ( $Re=6.5 \times 10^3, Fr=0.0215, Bo=6334$ )

Fig.6 Surface pattern at the second time( $23^\circ\text{C}$ )



(a)  $We=2.04$   
(b)  $We=2.94$   
( $Re=5.4 \times 10^3, Fr=0.0180, Bo=6334$ )      ( $Re=6.5 \times 10^3, Fr=0.0215, Bo=6334$ )

Fig.7 Surface pattern at the third time( $23^\circ\text{C}$ ).

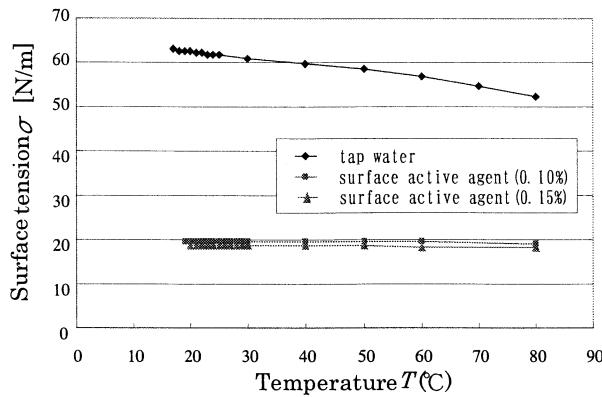
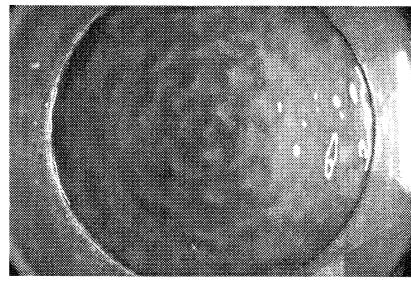


Fig.8 Relation between surface tension and temperature  
(tap water with and without surface active agent).



$W_e=7.824$   
( $Re=6.0 \times 10^3, Fr=0.0197, Bo=20056$ )

Fig.9 Surface pattern 0.1% (surface active agent, 23°C).

### 3.3 モードの分類

実験の再現性を保障するため、以下では界面活性剤を混合した水道水(0.1%)を作動流体として使用する。この作動流体を用いて縦スロッシングを行ったところ、水面の挙動を以下の 6 つに分類することができる。すなわち、

Mode I : None wave.

Mode II : Circular slit.

Mode III : Petal.

Mode IV : Hexagon.

Mode V : Spike.

Mode VI : Droplet.

この内の Mode II – V の代表例を Fig.10~13 に示す。全ての写真を載せることはできないので、代表的な写真を示す。

ここで、None wave とは波が確認できず、液面はいかなる瞬間もほぼ平坦である。Circular slit とは、同心円状の波紋であり、辺縁から中心に向かう進行波である。Petal とは液面が花弁状に見えることから名付けた。花弁は定常波である。Hexagon とは、ハチの巣状の定常波である。Spike とは表面の波の形

状が破壊した、無作為な状態のことである。Droplet とは、液滴が液面のいたる所から放出する。

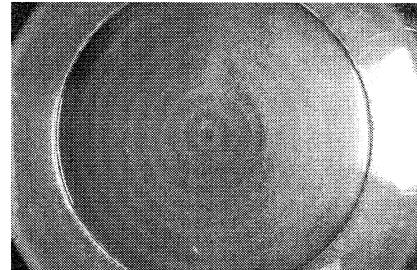


Fig.10 Surface pattern in sloshing mode II  
(0.1% surface active agent, 23°C,  
 $W_e=20.941, Re=9.7 \times 10^3, Fr=0.0323, Bo=20057$ ).

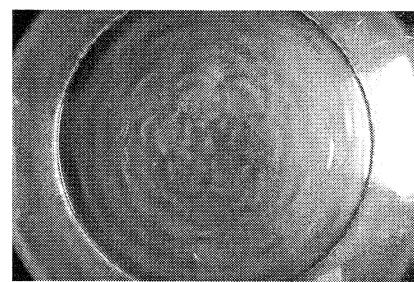


Fig.11 Surface pattern in sloshing mode III  
(0.1% surface active agent, 23°C,  
 $W_e=50.680, Re=15.1 \times 10^3, Fr=0.0503, Bo=20057$ ).

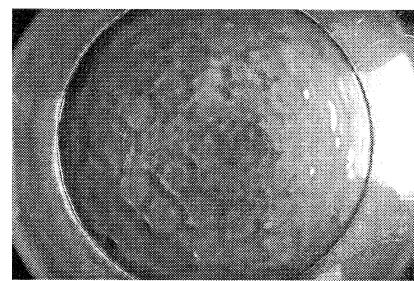


Fig.12 Surface pattern in sloshing mode IV  
(0.1% surface active agent, 23°C,  
 $W_e=83.774, Re=19.4 \times 10^3, Fr=0.0646, Bo=20057$ ).

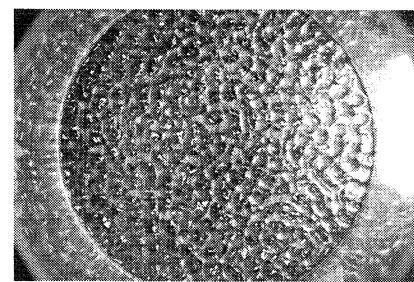


Fig.13 Surface pattern in sloshing mode V  
(0.1% surface active agent, 23°C,  
 $W_e=188.482, Re=29.0 \times 10^3, Fr=0.0969, Bo=20057$ ).

### 3.4 モードの発生領域

可視化写真をもとにスロッシングモードの分類を行った。Fig.14は、その結果を安定領域図としてまとめたものである。

Mode Iは振動数が10~16[Hz]の範囲で確認された。Mode IIは測定振動数の全範囲で確認されたが、波紋一つ一つの間隔は振動数が高いほど狭くなる。Mode IIIはMode IIとMode IVの間に発生領域を持つが、その面積は極めて狭く、特に高振動数では非常に狭い。Mode IIIは、振幅の制御精度の粗さのため46~50[Hz]では確認できなかった。Mode IVは、Mode Iと同様、調べた振動数の全範囲で確認できる。振動数が高いほど、六角形は小さくなり、かつ定常性も強く、形のくずれも小さくなる。Mode Vも、調べた全振動数の範囲で確認された。振動数が高くなるにつれて、小さい振幅で発生し、スパイク自体は小さくなる。Mode VIも、Mode Vとよく似ており、高い振動数ほど、低振幅で現れ、ドロップレットの数は増す。

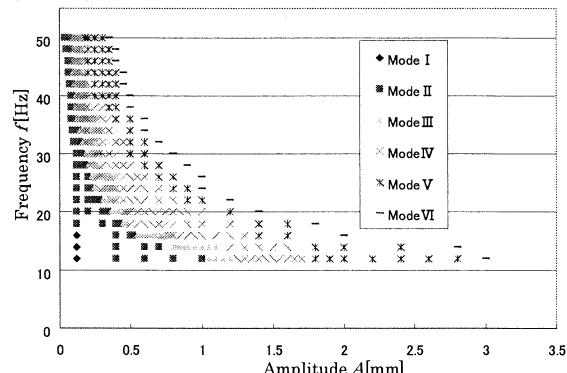


Fig.14 Stability diagram  
( $t=23^{\circ}\text{C}$ ,  $D=200\text{mm}$ ,  $h=3.0\text{mm}$ ).

## 4 結 言

本研究において、得られた結果を以下にまとめる。

- (1) 液面パターンの変化は0.03[N/m]程度の表面張力の微小な変化に強く依存する。
- (2) 水道水を用いたとき、液面のパターン形状は再現性を得ることは難しい。そこで、界面活性剤を混合し、温度依存性を小さくすることにより、再現性を得ることに成功した。
- (3) スロッシングモードを6つに分類した。さらに振動数と振幅を支配パラメータとして、モードの安定領域を明らかにした。この結果は将来の膜液表面の制御に有益となろう。

今後は、燃料電池の高分子膜への応用への高精度化を目指して、実験および数値解析により、水深の影響も検討して行く予定である。

## 謝 辞

本研究を実施するにあたり、本学学部生、福田真也君と坂井駿平君の援助に感謝する。

## 参考文献

- (1) 吉田隆, 固体高分子型燃料電池の開発と応用, 株式会社エヌ・ティー・エス, pp261-272(2000).
- (2) 吉田隆, 固体高分子形燃料電池のすべて, 株式会社エヌ・ティー・エス, pp378-383(2003).
- (3) 谷川博哉, 北野達也, 舟木治郎, 平田勝哉, 日本機会学会論文集, pp.118-125(2003)
- (4) W.S.Edwards and S.Fauve , J.Fluid Mech.278 , pp.123-143(1994).
- (5) H.Arbell and J.Fineberg , Phys.Rev.E.65 , 036223(2002).
- (6) A.B.Ezerskii and M.I.Rabinovich and V.P.Reutov and I.M.Starobinets , Zh.Eksp.Teor.Fiz.91 , 2070(1986)[Sov.Phys.JETP 64 , 1228(1986)].
- (7) S.Ciliberto and S.Douady and S.Fauve , Europhys.Lett.15 , 23(1991).
- (8) B.J.Gluckman and P.Marcq and J.Bridger and J.P.Gollub , Phys.Rev.Lett.71 , 2034(1993).
- (9) E.Bosch and W.van de Water , Phys.Rev.Lett.70 , 3420(1993).
- (10) K.Kumar and K.M.S.Bajaj , Phys.Rev.E 52 , R4606(1995).
- (11) L.Daudet and V.Ego and S.Manneville and J.Bechhoefer , Europhys.Lett.32 , 313(1995).
- (12) A.Kudrolli and J.P.Gollub , Physica D 97 , 133(1996).
- (13) A.Kudrolli and J.P.Gollub , Phys.Rev.E 54 , R1052(1996).
- (14) S.Douady , J.Fluid Mech.221 , p.383(1997).
- (15) D.Binks and W.van de Water , Phys.Rev.Lett.78 , 4043(1997).
- (16) 吉田卯三郎 他, 物理学実験, 三省堂出版, pp80-83(1940).
- (17) 理科年表 CD-ROM 2002, 富士通株式会社.