

令和 3 年 6 月 18 日現在

機関番号：12101

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2020

課題番号：19K14900

研究課題名(和文) マルチスケール構造を有する固体高分子形燃料電池の大規模水輸送解析手法の開発

研究課題名(英文) Large scale simulation of PEFC with multi-scale structure

研究代表者

境田 悟志 (Sakaida, Satoshi)

茨城大学・理工学研究科(工学野)・助教

研究者番号：40816170

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：固体高分子形燃料電池(PEFC)は水しか排出しないため、二酸化炭素の排出削減に有効である。しかし、生成された水が電池内に滞留すると酸素の供給が阻害され、最終的に発電停止に至る。そのため、PEFCの最大出力は水の滞留により制限される。この問題を解決するためには数値シミュレーションにより電池内の水輸送を最適化する必要がある。しかし、詳細な水輸送の数値シミュレーションには計算負荷の問題があった。本研究ではPEFCのような複雑構造の解析に適応しやすい格子ボルツマン法に対して、計算の安定化、計算負荷の低減を実現するアルゴリズムを構築し実装することで、この問題を解決し、電池内の水輸送解析を実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

PEFCは二酸化炭素を排出しないクリーンなエネルギー変換装置であるが、現在に至るまで、コストの高さが問題となり、普及に至っていない。本研究で開発したシミュレーションモデルを用いることで、固体高分子形燃料電池(PEFC)の出力密度を向上できる電池構造を明らかにすることができる。これにより、出力あたりの単価を下げることができ、PEFCの普及、ひいてはカーボンニュートラルな社会を実現できる。

研究成果の概要(英文)：Polymer electrolyte fuel cells (PEFCs) are clean power sources due to its harmless emission. To make commercially competitive the PEFC, the maximum current density has to be increased. Because the water blocks the diffusion of the oxygen, it is necessary to optimize the water transport in the cell. The simulation is useful approach to clarify optimal cell structure. However, the computational load for the water transport simulation of PEFC is high, and there are some difficulties to investigate the water transport in the PEFC. In this study, the algorithm which reduced the computational load and improved the numerical stability was added to the lattice Boltzmann method (LBM), and I achieved the water transport simulation in the PEFC.

研究分野：熱工学

キーワード：固体高分子形燃料電池 格子ボルツマン法 多孔質

1. 研究開始当初の背景

水素と酸素から発電する固体高分子形燃料電池 (PEFC) は走行時に二酸化炭素を排出しないクリーンなエネルギー変換装置であり、高い効率や始動性の良さから次世代自動車の動力源として注目されている。しかし、PEFCの普及には高電流密度化を実現し、燃料電池システムの出力量を大幅に向上する必要がある。高電流密度化を実現するにあたり、課題となるのがガス拡散層 (GDL) に滞留する凝縮水の存在である。GDLに凝縮水が滞留すると酸素の拡散を阻害し、触媒層への酸素供給が妨げられる。そのため、今後 PEFC を普及させるためには電池構造を最適化し GDL からガス流路へ効率的な水輸送を実現する必要がある。

2. 研究の目的

電池構造の最適化には数値解析が有力な手段となる。GDL (細孔径: 約 $10\mu\text{m}$) に滞留した凝縮水は毛細管力に支配されながら GDL、ガス流路へと輸送される。ガス流路に輸送された凝縮水は一定の大きさに達するとガス流によって GDL、ガス流路界面近傍で分裂し電池外に排出される。そのため数値解析を行うためには GDL、ガス流路を含んだ解析領域が必要となるが、計算負荷の問題からガス流路および GDL を含む解析領域での水輸送解析はほとんど行われていない。そこで、本研究では複雑かつ微細な構造の解析に適した格子ボルツマン法 (LBM) を改良し、GDL、ガス流路を含んだ水輸送解析を実現する。

3. 研究の方法

本研究では稲室らの高密度比 LBM^[1]をベースモデルとして用いた。このモデルは PEFC で扱う水と空気の様な密度比が高い 2 相流を扱う事ができるモデルである。また、単一緩和時間衝突則 (SRT) および 3D15Q モデルを用いていることから、比較的メモリ消費が少ない特徴も持つ。このモデルを用いて、GDL からガス流路への水輸送解析を行う上で問題となるのがタイムステップである。GDL からガス流路を含む大規模な解析領域を用いる場合、計算負荷を小さくするためタイムステップを大きく設定する必要がある。しかし、このモデルでタイムステップを大きくすると気液界面での偽の速度に起因する不安定性により解析が破綻する。そこで、本研究では気液界面での計算を安定化するため VOF (Volume of fluid) 法で実績のある Balanced force algorithm^[2]をこのモデルに適用し、偽の速度を低減することで大きなタイムステップにおける解析の安定化を図った。また、精度が必要な箇所には細かい格子を、必要でない箇所には粗い格子を用いるマルチブロック法^[3]を適用することで更なる計算負荷の低減を図った。

4. 研究成果

Balanced force algorithm の適用により、偽の速度が低減することを確認した。図 1 に解析領域を示す。 $200\mu\text{m} \times 200\mu\text{m} \times 100\mu\text{m}$ の解析領域の中央に静止した直径 $40\mu\text{m}$ の液滴を配置した。液滴の左右の境界を周期境界とし、残りの 4 面を固体壁とした。ここで、図 1 では液滴を見やすくするため固体壁の一部を透明にして表示している。十分時間後における $y = 100\mu\text{m}$ における x - z 断面の速度ベクトルを図 2 に示す。図中の矢印の大きさは速度に対応している。静止した液滴を計算しているにも関わらずベースモデルでは大きな速度がでており、偽の速度が確認できる。一方、開発したモデルでは矢印の大きさは非常に小さい。表 1 に計算領域全体における偽の速度の平均

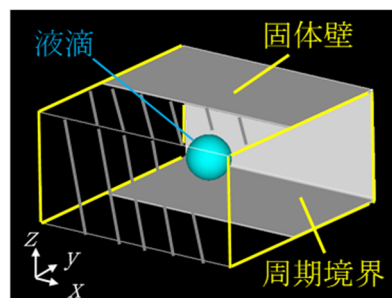


図 1 解析領域

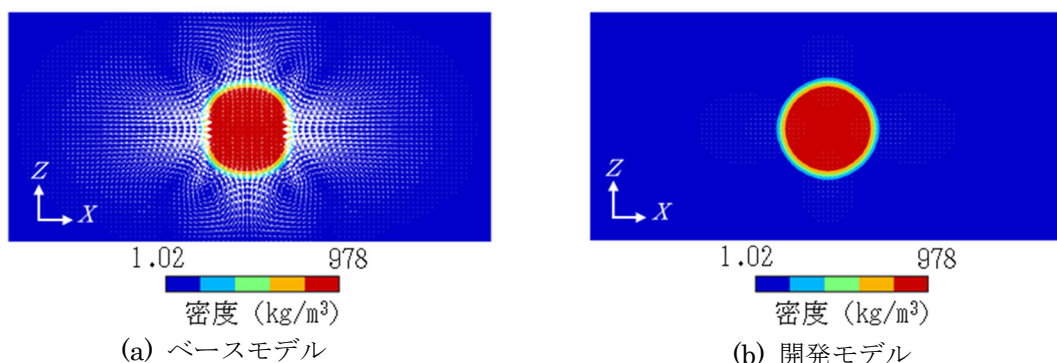


図 2 偽の速度の比較

表 1 偽の速度の平均値, 最大値, 安定的限界のタイムステップ

	平均の偽の速度 (m/s)	最大の偽の速度 (m/s)	最大のタイムステップ (s)
開発モデル	3.02×10^{-3}	6.11×10^{-2}	4.0×10^{-8}
稲室らのモデル(2004)	3.02×10^{-3}	1.44	4.0×10^{-9}

値, 最大値, 安定的に計算できた最大のタイムステップを示す. 開発したモデルでは偽の速度の平均値, 最大値ともに大きく低減していることがわかる. 安定的に計算できるタイムステップの最大値はベースモデルが 4.0×10^{-8} s であるのに対して, 開発したモデルでは 4.0×10^{-8} s であり, 10 倍大きいタイムステップにおいても安定的に計算できており, 計算を約 10 倍高速化できる. **Balanced force algorithm** の適用により偽の速度が低減したため, 安定的に計算できるタイムステップの領域が拡大したものと考えられる.

次に開発したモデルにマルチブロック法を適用し, GDL からガス流路までの水輸送解析を行った. 図 3 に用いた解析領域の断面を示す. GDL の構造は X 線 CT により取得した.

GDL の上部にはリブ・チャンネルからなるガス流路 (リブ幅: $400\mu\text{m}$, チャンネル幅: $400\mu\text{m}$, チャンネル高さ: $400\mu\text{m}$) を設け, 空気を 1m/s で流した. GDL の下部には微細多孔質層 (MPL) を設置した. MPL の中央には MPL クラックを想定した水の流入境界を設け, キャピラリー数 ($Ca = \mu u / \sigma$) $Ca = 3 \times 10^3$ で水を流入させた. ここでキャピラリー数 Ca は粘性力と毛細管力の比を表しており, μ は粘性係数, u は水の速度, σ は表面張力を示す. GDL の接触角は 110° とし, MPL の接触角は 140° とした. また, ガス流路の濡れ性は 80° とした. 本解析には Intel Xeon Gold 6248 (2.50GHz) を用い OpenMP を用いて 16 スレッドで並列計算を行った. 解析結果を図 4 に示す. MPL クラックから流入した水は枝分かれしながらランダムに輸送された (0.8ms). しかし, ガス流路へ水が到達すると, デッドエンドとなっていた水のパスはガス流路へ吸い上げられ, GDL 内部の水の滞留量が減少した (22ms). ガス流路の液滴が一定の大きになると, 空気の流れにより, 水が分裂しガス流路外へ排出された (26ms). その後, MPL クラックから流入した水は枝分かれすることなく GDL からガス流路へ再度輸送された (30ms). X 線ラジオグラフィの結果から, GDL 内部では水の滞留, ガス流路への水の吸い上げ, 再度の水の滞留が一定の周期で繰り返すことがわかっている^[4]. 解析結果は既往の可視化観察の結果と対応しており, 妥当な計算がなされていることがわかる. 解析に要した時間は約 5 日であり, 十分利用可能な計算負荷であることから, 本研究で開発した解析手法により, ガス流路および GDL を含む領域での水輸送解析が可能となった.

最後に, 流路構造が電池性能に与える影響について調べた. 本研究ではガス流路の構造として多孔質に着目した. 図 5 にガス流路として多孔質流路およびリブ・チャンネルからなるストレート流路を用いた時の電池性能を示す. 本実験においてアノード, カソードともにストイキを $10 @ 1\text{A}/\text{cm}^2$ 相対湿度を 100% とした. ここで, カソードに空気を, アノードに水素を供給した. 一般に図 5 に示すように多孔質流路を用いることで, 電池性能は向上する. この要因を調べるためカソードに Helox (He: 79%, O: 21%) を供給することで, GDL および流路での濃度過電圧を調べた; ヘリウム中の酸素の拡散係数は窒素中のそれと比べて 2~3 倍高いので, 空気での

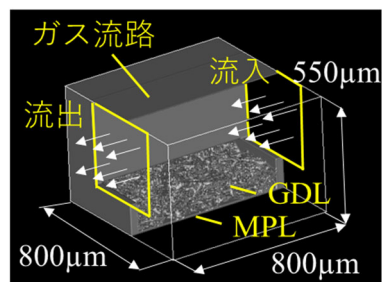


図 3 水輸送解析の計算領域

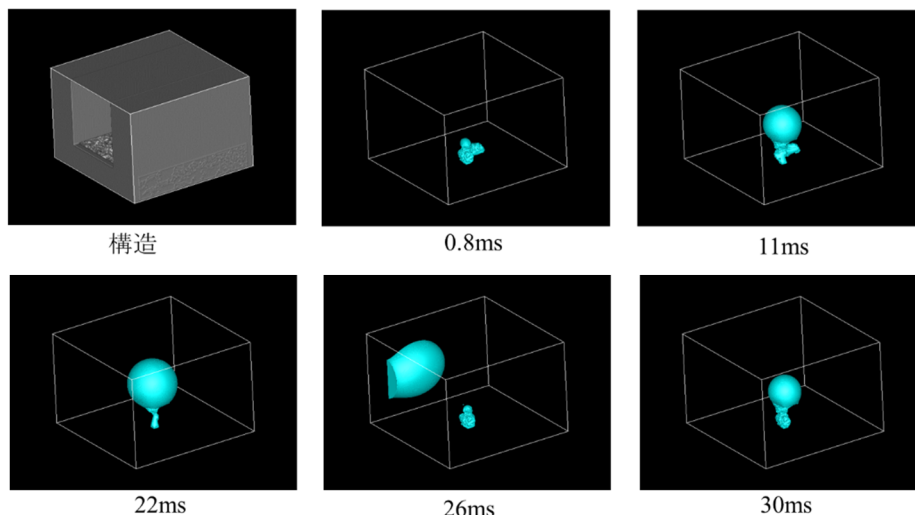


図 4 ガス流路および GDL を含む水輸送解析

電圧と Helox での電圧の差をとることで、ガス流路や GDL での濃度過電圧（バルクロス）を推定できる。図 6 に結果を示す。多孔質流路を用いることでバルクロスの立ち上がりが高電流密度側にシフトしており、多孔質流路を用いることで効率的にガス流路から触媒層へ酸素が供給されたことがわかる。この要因を明らかにするため、開発したモデルを用いて水輸送解析を行った。結果を図 7 に示す。ここで、多孔質流路の構造は X 線 CT を用いて取得した。空気の流れは図 4 と体積流量を揃えるため、0.5m/s とした。多孔質流路を用いた時の GDL 内水輸送はストレート流路の場合とほぼ同一であった。また空気の流速が遅いため、多孔質流路内に長い間水が滞留しており、今回の解析では多孔質流路を用いることで水輸送の改善は確認できなかった。多孔質流路では酸素は GDL 表面の全面から触媒層へ流入できる一方で、ストレート流路ではリブが GDL 表面の半分を覆っており、酸素の流入を防いでいる。多孔質流路による水輸送の大きな改善が見られなかったことから、電池性能の改善は GDL への酸素供給面積が大きくなったことが要因である可能性がある。

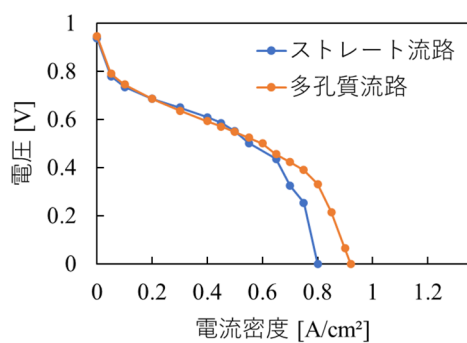


図 5 I-V 曲線

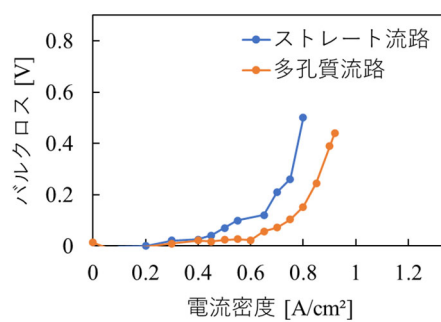


図 6 バルクロス

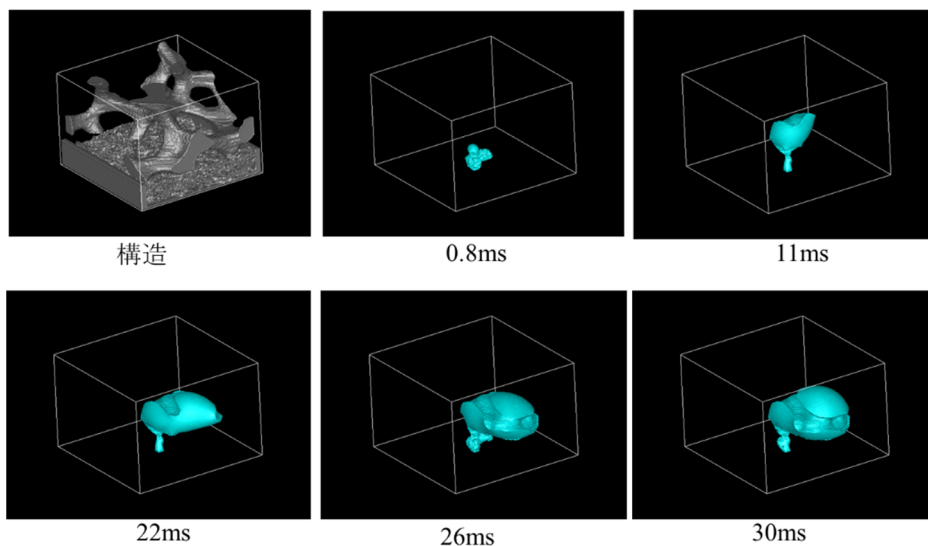


図 7 多孔質流路における電池内水輸送

参考文献

- [1] T. Inamuro ら, J. Comput. Phys, 198 (2004) 628-644.
- [2] T. Francois ら, J. Comput. Phys, 213 (2006) 147-173.
- [3] T. Inamuro ら, Fluid Dyn., 44 (2012) 024001.
- [4] I. Manke ら Appl. Phys. Lett., 90 (2007) 174105.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Satoshi Sakaida , Yutaka Tabe, Kotaro Tanaka, Mitsuru Konno	4. 巻 46
2. 論文標題 Study on water transport in hydrophilic gas diffusion layers for improving the flooding performance of polymer electrolyte fuel cells	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 International journal o f hydrogen energy	6. 最初と最後の頁 7464-7474
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ijhydene.2020.11.202	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 境田悟志
2. 発表標題 固体高分子形燃料電池における濡れ性分布を有するガス拡散層内部の液水挙動解析
3. 学会等名 伝熱シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 境田悟志
2. 発表標題 固体高分子形燃料電池における水輸送解析のための高密度比二相系格子ボルツマン法の開発
3. 学会等名 日本機械学会茨城講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高橋裕理
2. 発表標題 PEFC用ガス拡散層の濡れ性分布が発電性能におよぼす影響
3. 学会等名 日本機械学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 境田 悟志
2. 発表標題 PEFC ガス拡散層における表面親水化処理が セル性能におよぼす影響
3. 学会等名 日本伝熱学会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------