

令和元年6月10日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15H03912

研究課題名(和文) 高分子形燃料電池内水輸送現象の階層型連成シミュレーションモデルの構築と検証

研究課題名(英文) Development and validation of hierarchical simulation model for water transport phenomena in polymer electrolyte membrane fuel cell

研究代表者

大島 伸行 (OSHIMA, Nobuyuki)

北海道大学・工学研究院・教授

研究者番号：10217135

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,800,000円

研究成果の概要(和文)：高分子形燃料電池(PEFC)の物質輸送現象の階層型連成シミュレーションモデルの構築として、1)複雑流動場で構成されるセル・スタック性能、2)多孔質や微小流路における気液界面と相変化の挙動予測、および、3)気液界面の分子スケールと連続体スケールにおける非平衡界面モデル、の3つの階層の数理モデルの開発検証について以下の課題研究を行った。PEFCセルの流路を模擬するマイクロチャンネル流動場についての理論および数値解析的検討、気液流動界面の数値解析に関して高精度かつ安定な気液界面計算モデルの構築、分子スケールと連続体近似を連成する統一の界面モデルの理論的研究などに成果を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

地球温暖化防止に向け経産省がまとめた水素・燃料電池戦略ロードマップによれば、FVC(燃料電池車)や水素発電・水素インフラの導入に技術革新の遅れ懸念と将来への強い期待が示されている。主役となる固体高分子形燃料電池(PEFC)ではコストと耐久性が課題であり、流れ数値シミュレーションの観点からは、相変化や化学反応などを伴う複雑なマルチスケール流動現象であり、また、それらの高精度な複合システムシミュレーションの実用化が望まれる。本研究ではこれらの階層型連成シミュレーションの実用化へ向けた成果をえたことで、上記の社会ニーズにこたえるタイムリーな実用化展開への技術開発・研究方針を明らかとした。

研究成果の概要(英文)：As construction of hierarchical coupled simulation model of mass transport phenomena of polymer fuel cell (PEFC), development and validation of the three-layer mathematical models as 1) cell stack performance composed of complex flow field, 2) gas-liquid interface in porous and micro-channel and 3) non-equilibrium interface model in molecular scale and continuum scale of gas-liquid interface. It gives theoretical and numerical results on the micro-channel flow simulating the flow path of PEFC cell, high-precision and stable gas-liquid interface model and unified fluid interface theory between molecular scale and continuum approximation.

研究分野：流体工学

キーワード：数値流体力学 固体高分子形燃料電池 多孔質 気液界面 ミクロチャンネル 連成シミュレーション
分子動力学

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

燃料電池自動車が実用フェーズに入り既存エンジンとの競合が固体高分子形燃料電池（PEFC）の具体的な技術目標となる。一層の性能向上・コスト削減を目指して触媒層・電解質膜などの材料素材開発とともに、ナノ・マイクロ構造を含む形状設計や運転条件の最適化、たとえば、ナノスケールでは高電流密度を維持する物質輸送の最適制御、マクロスケールでは低加湿・低当量比運転による装置簡略化などにも関心が高まっていた。これらの燃料電池システムの性能は触媒ナノスケール界面からマクロ熱流体現象への相互の物質収支、熱収支に強く依存しており、特に気・液・固相の共存する水輸送メカニズムの予測制御は最重要な課題となっていた。申請者らは、これらのマルチスケール流動現象の予測に焦点を当てて、分子動力学・非平衡熱力学モデル・非定常流動シミュレーションを連成する階層型連成シミュレーションの開発戦略に基づき、各階層およびそれらの連成に対して数理モデルの検討、改良を進め、①燃料電池内の複雑な電気化学反応・相変化と物質輸送の連成解析に対して高精度な新しい数値計算法の提案と電池性能予測への応用、②多孔質マイクロ構造の不均一性に依存するキャピラリー特性の理論的定式および気液流動数値計算に基づく検証、③水分子の相変化現象扱う分子動力学モデルによるナノスケール水輸送現象の予測、などの知見を得ていた。

2. 研究の目的

申請者らが階層型連成シミュレーションの開発戦略に基づき開発、検証した各要素成果を基盤として、燃料電池の性能予測シミュレーションへの応用展開を図り、実用的数値モデルとして燃料電池材料の効率的設計への貢献を目指す。その目標実現に向けて、以下の実証課題を具体的な研究目的とした。

課題1 燃料電池シミュレータの実用化：

多孔質・複雑流路に伴う過渡的・間欠的流動現象を反映したセル・スタック性能の高精度な予測実現を目指し、「京」級コンピュータ活用による10億要素規模の高精度な非定常シミュレーションを開発・実証する。また、触媒層・ガス拡散層のナノ・マイクロ構造を反映する複雑物性モデルの導入と検証によって燃料電池MEA複合膜の水輸送・ガス拡散モデルの高精度化を図る。

課題2 多孔質内の気液流動モデル：

多孔質内流動現象の粗視化モデルの理論的定式に従い、流動モデルパラメータの粗視化解像度依存性を明らかにする。液水キャピラリー、物質拡散に対してフェーズフィールド法による気液流直接シミュレーションと2次元MEMS流路実験による検証を示す。また、同様のアプローチによって燃料電池セル・スタックの多数流路を粗視平均化した液水・ガス輸送モデルによる電池性能予測シミュレーションの高精度・効率化を図る。

課題3 気液界面の非平衡熱力学モデル：

フェーズフィールド法の新たな定式モデルに基づき、燃料電池触媒層に適用可能な強い非平衡性と保存則を両立する粗視化近似モデルを提案し、ナノスケール物質輸送現象の律速因子を明らかにする。また、分子動力学モデルによる液水を伴う物質輸送現象の高精度な参照物理データによって粗視化近似モデルの定量化を示す

3. 研究の方法

課題1 燃料電池シミュレータの実用化：

高分子形燃料電池(PEFC)の耐久性能に関わる重要な課題としてカーボン溶出による触媒劣化が挙げられる。これはアノード側の局所的水素欠乏による起電力不均一が要因と考えられており、その抑制にはセパレータおよび多孔質内の非定常・不均一な流動・拡散の予測制御が不可欠である。これをマクロスケール(連続体近似モデル)連成シミュレーションの代表的対象として取

り上げてセルレベルおよびスタックレベルでの電池性能予測の実用性検証を行うための数値シミュレーション技術の検証および実証応用を行った。

燃料電池内の水輸送はMEA各層に分布する3つの相（蒸気、液水、ポリマー含水）を通して実現される典型的なマルチスケール連成現象となる。また、ガス拡散層の微孔加工(MPL:マイクロポラス層)、触媒層の agglomerate 構造や傾斜特性などのナノ・マイクロ構造が電池性能に大きな影響を与えることが指摘される。これらの複雑現象を効果的に数値解析するため、汎用ソフトウェア FrontFlow/red および OpenFOAM への実装を設計試作した。

また、実証計算としてデッドエンドセルでの水素欠乏・電流低下の抑制機構を代表的対象として取り上げ燃料電池シミュレーションによりセルレベルでの性能予測検証を行った。

課題2 多孔質内の気液流動モデル：

マクロスケールの多孔質液水キャピラリー解析には土質工学での経験則に基づく拡散モデルがそのまま適用されてきた。近年実際のガス拡散層での計測やモデル解析からキャピラリー特性を表す Leverett 関数を再評価すべきことが指摘されているが、多孔質マイクロ構造との関係やMPL/触媒層への適用を検討した研究は未だ少ない。マクロスケール多孔質液水キャピラリーモデルおよび流路の液滴・液膜輸送モデルの確立のための基礎的研究を主に進めた。実際の多孔質マイクロ構造やスタック多数流路の気液流動予測のためには高精度な数値計算が必須である。本課題では特に微小流路流動および気液界面の予測精度向上のための理論的研究を主に進めた。

課題3 気液界面の非平衡熱力学モデル：

物質輸送の観点から、ナノサイズのPt触媒表面での $H_2O/O_2/H_2$ 分子の相形態は発電性能に大きな影響を与えると考えられるが、一般的な連続流体の平衡熱力学が成立しないため分子動力学の適用必要となる。カソード酸素輸送と液水分布の関連性に着目して、高精度な分子動力学シミュレーションの実現およびその知見を連続体近似スケール連成に応用するため基盤的研究を行った。上記実証課題の進捗成果より、特に多孔質内の水相変化のナノ・ミクロスケール現象の基礎的理解を得ることを主要課題とし、固体壁面近傍での気液相変化について分子動力学および連続体近似モデルの両面より研究を進めた。

4. 研究成果

課題1 燃料電池シミュレータの実用化

PEFCセルの流路を模擬するマイクロチャンネル流動場についての理論および数値解析的検討により、微小流路の圧損の理論解の導出、多孔質を伴う流動場の高精度数値計算法の構築、また、複雑流動場への応用のための大規模並列計算ソフトウェアへの実装性能評価を得た。

これら数値計算モデルのセルレベルおよびスタックレベルでの電池性能予測の実用性検証例（図1）として、燃料の間欠的供給や乱流促進がセル・スタック流路内のガス組成均一化に与える流動機構をモデルシミュレーションにより解明した。

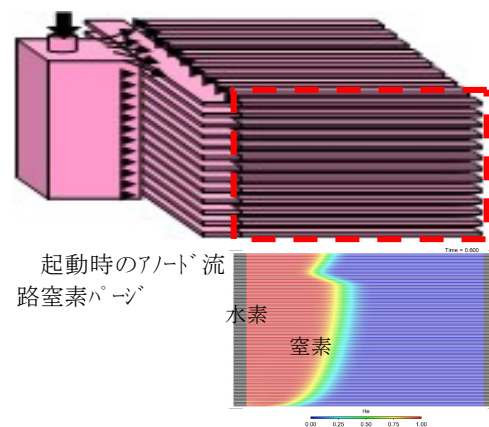


図1 簡略化モデルによるアノード流路とスタック配流分布の予測

課題2 多孔質内の気液流動モデル：

気液流動界面の数値解析に関して高精度かつ安定な気液界面計算モデルの構築のための基盤として、気液界面モデルの数理的検討と数値計算誤差の改良への知見を得るとともに、燃料電池内に想定される強い非平衡性をもつ気液界面の数値シミュレーションの実証例として固体沸面近傍での沸騰現象の直接シミュレーション（図2）により沸騰遷移などの非線形挙動の予測実現性を確認した。

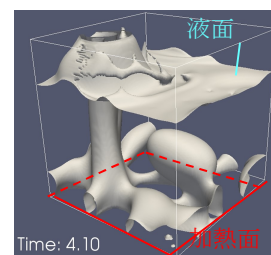


図2 新しい界面モデルによる核沸騰予測

課題3 気液界面の非平衡熱力学モデル：

燃料電池内での水挙動予測には多孔質での気液相変化のモデル化が必須であるが、マイクロ・ナノスケールの気液界面に関する従来研究の多くは弱い平衡界面を対象としたもので、高出力燃料電池に生じるような強い非平衡を扱うものは少ない。一方、マクロ現象としての気液非平衡は「沸騰・凝縮」現象として主に実験観察に基づく経験的モデルが広く適用されており、多孔質や微小流路での流動場にそのまま適用することはできない。そこで、本研究では分子スケールとマクロスケールとの連成可能な方法論に基づき、沸騰・凝縮を伴うような大域的に非平衡な流体界面を扱う新しい数値モデルとして、レベルセット方程式の局所粘性解をフェーズフィールド法における自由エネルギー最小化の考え方を導入して界面内部の局所平衡条件から再定義する新しい定式化を導出した。ここで用いる自由エネルギーの概念は連続体近似が成立しないような分子動力学スケールの現象にも適用可能であるため、これによって分子スケールとマクロスケールの連成モデルとして、等高線方程式の粘性解に基づく拡張されたレベルセット法が構築される。

上記理論モデルを気液相界面に適用することを考え、気相・液相を表す指標関数として比エンタルピー h を採用すると、界面の温度 θ における両相の差 $\Delta h = h(\theta) - h_g(\theta)$ が相変化の潜熱を与える。界面曲率に対して十分薄い($\kappa\delta \sim 0$)とき界面速度パラメータは観測等値面 $h = h_0$ の定義によらない定数とみなせ、界面の蒸発・凝縮による成長流は界面移動に必要な熱量 $Q = \rho s \Delta h$ と関係づけられ、蒸発・凝縮に要する生成が対流・拡散フラックスとバランスして界面分布を与えることを意味している。

また、物理界面厚さが解像できない問題では、人工的界面厚さ δ を格子サイズの定数倍（経験的には3~5程度）とすることで数値を数値的に収束させることができる。このとき、拡張レベルセット方程式人工的厚みを陽に用いない定式となっており、大域的な界面移動に対するモデルには修正を必要としない。これはレベルセット方程式の数学的性質を正しく引き継ぐもので、保存方程式を直接的に扱う従来定式に対しての利点となっている。

今回提案した数理モデルによって保存方程式と界面数理モデルが直接的に関連づけられたことの利点を生かし、乱流予混合火炎や沸騰現象などの強い非平衡性と非一様性をもつ界面問題への適用が期待される。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 11 件)

1. 矢口 ほか 3、テーパ状の微小な円管内層流の速度分布と圧力損失の理論、日本流体力学会誌「ながれ」、37、(2018)、49-59
2. J.Gong, N.Oshima, Effect of initial densities in the lattice Boltzmann model for non-ideal fluid with curved interface, Physics of Fluids, 29, (2017), 1-12, DOI: 10.1063/1.4989638

3. J.Gong, N.Oshima, Y.tabe, Spurious velocity from cutoff and magnification equation in free energy-based LBM for two-phase flow with a large density ratio, Computers and Mathematics with applications, (2017), 1-15, DOI: 10.1016/j.camwa.2016.08.033
4. 大島、姜、反応・相変化の非平衡を統一的に扱う流体数値モデル、日本流体力学会誌「ながれ」、36、(2017)、101-104
5. N.Oshima, A fluid interface model by phase field approach to the diffusive solution of level-set equation, Mechanical Engineering Letters, 3, (2017), 1-8, DOI: 10.1299/ml1.17-00080
6. N.Oshima, A study on the relation between the level-set equation and scalar conservation equation, Mechanical Engineering Letters, 2, (2016), 1-8, DOI: 10.1299/ml1.17-00080
7. K.Kobayashi, K.Konno, H.Yaguchi, H.Fujii, T.Sanada, M.Watanabe, Early stage of nanodroplet impact on solid wall, Physics of Fluids, 28, (2016), 1-10, DOI: 10.1063/1.4942874
8. 市川、大島、田淵、燃料電池スタック起動時におけるアノード側ガス配流の過渡数値解析、日本機械学会論文集、81、(2015)、1-16、DOI: 10.1299/transjsme.15-00089

ほか

[学会発表] (計 35 件)

1. E. Kurihara, F. Kubo, R. Shimori, H. Hamakawa, Analysis of Transport Phenomena in PEFC with Capillary Pressure Continuous Condition, Proc. 29th Intern'l Symposium on Transport Phenomena, (2018), Honolulu
2. L.Wang, N.Oshima, Numerical simulation of liquid-gas boiling flows in quenching process, Proc. 29th Intern'l Symposium on Transport Phenomena, (2018), Honolulu
3. E.Kurihara, R.Shimori, H.Hamakawa, G.Wu, N.Oshima, Numerical calculation of water transport in PEM fuel cell by OpenFOAM, 9th JSME-KSME Thermal and Fluids Engineering Conference, (2017), Seoul

ほか

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：矢口 久雄

ローマ字氏名：Hisao YAGUCHI

所属研究機関名：群馬高等工業専門学校

部局名：機械工学科

職名：准教授

研究者番号 (8 桁)：20568521

研究分担者氏名：栗原 央流

ローマ字氏名：Eru KURIHARA

所属研究機関名：群馬高等工業専門学校

部局名：機械工学科

職名：准教授

研究者番号 (8 桁)：90344481

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：Jiaming GONG

ローマ字氏名：Jiaming GONG

研究協力者氏名 : Lu, WANG

ローマ字氏名 : Lu, WANG

研究協力者氏名 : 市川 靖

ローマ字氏名 : Yasushi ICHIKAWA

研究協力者氏名 : Ashraf UDDIN

ローマ字氏名 : Ashraf UDDIN

研究協力者氏名 : Yeonwon LEE

ローマ字氏名 : Yeonwon LEE