

令和 6 年 5 月 7 日現在

機関番号：57101

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20K05694

研究課題名（和文）赤外線カメラを用いたレドックスフロー電池のセル内流動状態の可視化

研究課題名（英文）Visualization of flow patterns in a cell of redox flow battery by infrared thermography

研究代表者

田中 大 (Tanaka, Hiroshi)

久留米工業高等専門学校・機械工学科・教授

研究者番号：50342580

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：安全で長寿命な大容量電池として期待されているレドックスフロー電池（RFB）の高性能化・高寿命化を図るためには、電極である多孔質体内に電解液を均一に流動させることが最も重要である。しかし、電極である多孔質体は金属板などの不透明な板によって締結されるため、その内部を直接観察することが困難である。

本研究では、RFBの単一モデルセルを製作し、その締結板外表面の温度分布を赤外線カメラで撮影するとともに、モデルセル内部の温度を熱電対を用いて測定した。さらに、セル内部に設置されるディストリビュータに着目し、その形状が及ぼす作動流体の流動状況への影響を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

RFBは大容量電池として期待されているが、セル内部の電解液の流動状態の可視化についてはほとんど解明されておらず、これまでは多孔質内の流動を数値解析した結果や、ごく狭い流路内の流動状況を可視化した結果しか報告されていない。

今回の研究で用いた手法によって、実機レベルの広い流域におけるセル内の作動流体の流動状況を可視化することができ、RFBの性能解明に関する新しい知見が得られた。さらに、ディストリビュータの形状に着目した研究はこれまでに行われていないが、本研究の結果、ディストリビュータの形状を適切に設計することによって、セル内の流動状態を改善できることが明らかになった。

研究成果の概要（英文）：Redox Flow Batteries (RFBs), which are expected as safe and long-life batteries, can be improved the efficiency and life time by flowing electrolyte uniformly through the porous electrodes. However, since the porous electrodes are usually clamped by opaque material such as metal plates, the direct observation of flow inside the porous electrodes.

In this study, a model cell which approximates the cell of RFB was constructed and tested. Temperatures in the cell were measured by thermocouples and the temperature distribution of the clamping plate was measured by infrared camera for visualization of flow in the electrode. Configuration of distributor inserted in the cell was modeled to investigate the effect of distributor on the flow of working fluid in the electrode.

研究分野：熱工学

キーワード：RFB セル内流動 可視化 赤外線カメラ

## 1. 研究開始当初の背景

RFB の高性能化や高寿命化を図るためには、電極である多孔質体内に電解液を均一に流動させることが最も重要である。これは、電解液が均一に流れない場合、特に電極内によみ点が生じた場合、電極内の局所的な電気抵抗の上昇にともなう電極の焼けや、電池全体の内部電気抵抗の上昇などが発生し、電池性能や電池寿命が著しく低下するためである。したがって、RFB を高性能化および高寿命化させるための設計には、電極である多孔質体内の電解液の流動状態を正確に把握することが不可欠である。しかし、RFB セル内の電極は不透明な隔壁で挟まれた構造であるため、外部からその流動状態を観察することは困難である。

RFB セル内の電極は、金属製の締結板によって挟まれるが、セルからの電解液漏れを防止するためには強い締結力が必要であり、締結板は厚さ数 mm 以上にしなければならない。したがって、上記の手法で用いられたようなチタン箔を締結板として使用することはできない。しかし、厚さが数 mm であっても、締結板外表面の温度分布は、締結板内の厚さおよび長手方向への熱伝導による誤差は生じるものの、電極内の温度分布をある程度反映するのではないかと考えられる。

そこで申請者らは、RFB 単一電極を締結板 (厚さ 4mm のステンレス板) で挟んだ疑似的セルを製作し、セル全体に冷水を流入させることによりセル内を冷却した後に温水をセル内に流入させ、締結板外表面の温度分布を赤外線カメラで測定するとともに、電極内の温度を測定した。その結果、締結板外表面の温度は、締結板内の長手および厚さ方向の熱伝導およびその熱容量のために誤差は生じるものの、電極内の温度と同様の経時変化を示した。また、セル内の電極内部の流動状態を変化させた場合、赤外線カメラで測定した締結板外表面の温度分布も変化し、その流動状態を観察できることを明らかにした。

上記の成果は、RFB セル内の流動状態を赤外線カメラによって可視化するという試みの第一歩であり、かつ、久留米高専の近隣企業との共同研究で行ったものである。そのため、赤外線カメラを除く測定装置は当該企業の所有する物品を用い、さらに実験自体も当該企業の施設内で行った。このため、実験実施に当たっての制約が非常に大きく、実験は非常に限定的な条件下でのみ行ったため、赤外線カメラによる流動状態の可視化が可能であることは確認できたものの、RFB セルを最適に設計するための各種条件 (セルの形状、作動流体の流入口および流出口の位置、数および形状、作動流体の流量、および電極の種類等) の決定は未だ行っていない。さらに、赤外線カメラによる観察用の締結板にはステンレス板を用いたが、ステンレス板の熱伝導率は 20W/mK 程度であるため、より熱伝導率の高い金属板 (例えば熱伝導率が 400W/mK 程度の銅板) に変えることにより、より時間遅れがない状態でセル内部の流動状態を観察できる可能性がある。

## 2. 研究の目的

研究の目的は、RFB セル内の流動状況に与える各種条件の影響を定量的に検証し、RFB セルの最適設計条件を明らかにすることである。特に、セル内の作動流体の流動を均一化するためには RFB セル内の作動流体入口部に設置されるディストリビュータの形状は非常に重要であると考えられる。RFB セルの模式図を図 1 に示す。作動流体は RFB セルの下部流入口から流入し、下部ディストリビュータで横方向に広がり、流路である多孔質内全体を上方向に流れる。流路上部に達した作動流体は上部ディストリビュータで流出口方向に移動して、流出口からセル外部に排出される。1. に記載した通り、作動流体が流路である多孔質内を均一に流動することが RFB セルの高効率化・高寿命化にとって非常に重要であるが、そのためには、下部ディストリビュータにおいて作動流体が横方向に良好に広がる必要があり、ディストリビュータの構造は重要である。しかしこれまで、ディストリビュータの形状を詳細に研究した例はなく、企業の経験に即して円柱状の突起を有した既製品のプラパール (図 2) が使用されていた。

したがって、本研究では、作動流体を下部ディストリビュータにおいて横方向に良好に流動させるため、下部ディストリビュータを数種類設計するとともに、設計したディストリビュータを 3D プリントを用いて造形し、RFB モデルセル内に設置して、RFB セル内の作動流体の流動状態を検証することを目的とする。

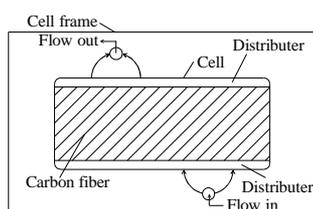


図 1. RFB セルの模式図



図 2. プラパール外観

### 3. 研究の方法

本研究では、炭素繊維を電極とし、単一電極を2枚の締結板で挟んだ装置をモデルセルとして使用した。実験用 RFB 単一モデルセルの断面図を図3に、外観写真を図4に示す。本モデルセルは、中央部に流路となるくりぬき部を有するセルフフレームを、2枚のパッキンを介して2枚の締結板（一方はアクリル製、もう一方は金属（ステンレス製（厚さ 4 mm）又は銅製（厚さ 10 mm）））ではさみ、装置全体を16本のボルト・ナットで締結した構造をしている。セルフフレームのくりぬき部が図1に示す RFB のセルに相当し、このセル内部に電極である炭素繊維およびその上下にディストリビュータを配置した。ボルト・ナットの締結力を管理するため、その締結にはトルクレンチを用いて  $20\text{N}\cdot\text{m}$  のトルクで締結した。一方の締結板であるアクリル板に8つの穴をあけることにより、そこから熱電対を挿入してシリコンシーラントで封入し、図4に示す番号を付した。また、アクリル締結板には下部に作動流体流入口、上部に作動流体流出口を設けた。上部ディストリビュータには既製品のプラパールを用い、下部ディストリビュータには後述する3Dプリンタで造形したディストリビュータを設置した。

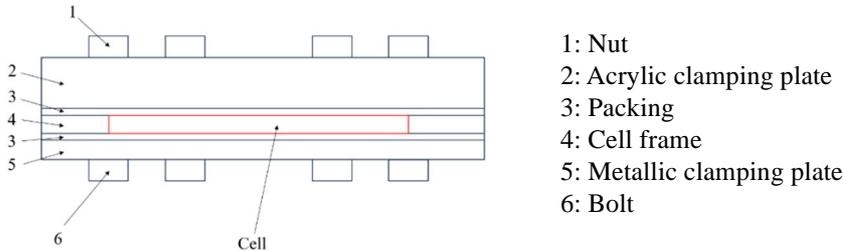


図3. 実験装置の断面図

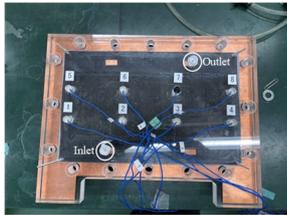


図4. 実験用 RFB 単一モデルセルの外観

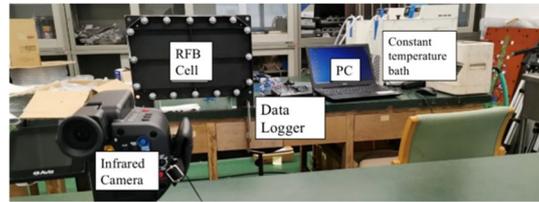


図5. 実験装置外観

実験方法は以下の通りである。実験風景の外観写真を図5に示す。ボルト・ナットを用いて締結した状態の単一モデルセルを立たせた状態で垂直に設置した。2台の恒温槽および流量計を用いて、約  $10^\circ\text{C}$  の冷水をセルに流入させて装置全体を十分に冷却した。その後、約  $50^\circ\text{C}$  の温水を約  $450\text{ ml/min}$  の流量でセルに流入させ、セル内の電極内部の温度を熱電対およびデータロガーで、金属製締結板外表面の温度を赤外線カメラによって1秒間隔で同時に計測した。なお、金属製締結板外表面は、赤外線カメラによる温度計測が可能ないように、あらかじめ黒色塗布した。

本研究において製作したディストリビュータの一部の外観写真を図6に示す。なお、ここに示す5種類以外についても多数のディストリビュータを設計・製作し、単一モデルセルに設置して実験を行ったが、有意な変化が見られなかったものや逆に作動状態を悪化させたものも多数あるため、代表的なものを5種類示す。

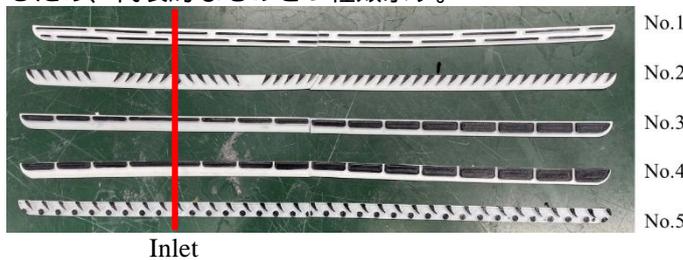


図6. 製作したディストリビュータの外観写真

ディストリビュータは全て、セルフフレームと同じ全厚(2.5 mm)になるように造形した。また、写真で黒塗りにした部分が凸部(2.5 mm)であり、白い部分が厚さ0.5 mmになっている。すべてのディストリビュータはSolidWorksによって設計し、これを3Dプリンタで造形した。樹脂材料はPLA (Poly-Lactic Acid: ポリ乳酸) である。また、3Dプリンタの印刷可能サイズが小さかったため、ディストリビュータは全て左右で2分割して製作し、これを横に並べて実験を行った。本報告書では、図6の上からNo. 1~No. 5とする。また、それぞれの特徴を以下に記述する。なお、図6の直線で示す部分が流入口の位置である。

・ No. 1

既存のディストリビュータであるプラパール(図2)は円柱状の突起が並んでいる構造であるのに対し、作動流体がより横方向に流動するよう、流路が横向きになるように凸部を配置した。

・ No. 2

流入口を境にして、作動流体の斜め上方向への流動を促す凸部の配置とした。また、横方向への流動を良好にするため、ディストリビュータ下部にはやや広めのクリアランスを設けた。

・ No. 3

ディストリビュータ下部において作動流体を横方向に流動させることを狙って、ディストリビュータ下部に広いクリアランスを設けた。また、この下部流路については外側ほど狭くなる構造とした。

・ No. 4

No. 3 と類似した構造であるが、ディストリビュータ上部にはクリアランスを設けない構造とした。

・ No. 5

下部には円柱状の突起を、上部には斜め上への突起を設け、プラパールと No. 2 を組み合わせた構造とした。

なお、比較のために、ディストリビュータ部に何も設置しなかった場合、およびプラパールを設置した場合についても計測を行った。

#### 4. 研究成果

金属製締結板をステンレス板にした場合の結果についてまず述べる。単一モデルセル内部を十分に冷却した後、約 50°C の温水を流入させた直後からの熱電対 (点 1 ~ 点 8) の経時変化を図 7 に示す。図中、none は下部ディストリビュータ部に何も設置しなかった場合、plastic pearl はプラパールを設置した場合であり、No. 1 から No. 5 は図 6 に示すそれぞれのディストリビュータを設置した場合の結果である。実験結果は、温水流入直後 0 sec とし、温水流入後 600 秒間の測定を行った結果である。なお、図 4 に示すように、セルの下部に設置した熱電対が点 1 ~ 点 4、上部に設置した熱電対が点 5 ~ 点 8 である。作動流体が均一に流動する場合、すなわち作動流体の流れに横方向のムラがない場合、理想的には点 1 ~ 点 4 および点 5 ~ 点 8 が全く同じ温度変化をすることになる。逆に、下部ディストリビュータにおける作動流体の横方向への流動が良好でない場合は、これらの熱電対の温度変化に差が出るのが予想される。

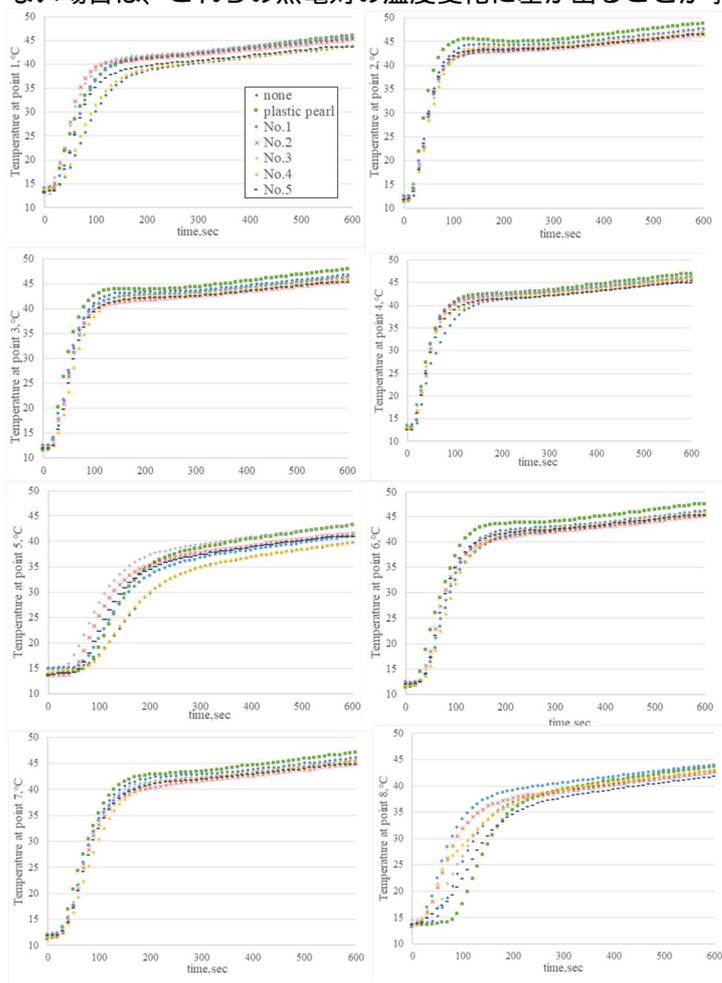


図 7. 熱電対で計測したモデルセル内部の温度変化

全体的な傾向として、流入口の近くの熱電対 (特に点 2) の温度変化は他の点の熱電対よりも速く、逆に、セル上部の両端 (点 5 および点 8) の温度変化は他の点よりもかなり遅くなっている。また、温度変化型の点よりも遅い、すなわち、作動流体の流動が悪くなる点 8 に着目すると、

今回製作した No. 1~No. 5 のディストリビュータは全て、プラパールと比較して温度上昇が速かった。これは、製作したディストリビュータを用いることで、横方向への作動流体の流動が促進され、セル内部での作動状態が改善されたことを示唆している。また、セルの作動流体流入口と流出口をつなぐ部分の熱電対（点2、点3、点6および点7）に着目すると、プラパールを利用した場合の温度変化が最も速くなっている。これは、赤外線画像による可視化の部分でも後述するように、作動流体が流入口から流出口に勢よく流れ、ディストリビュータでの横方向への広がり小さいことを示しており、このことから製作したディストリビュータによる作動流体の流動の均一化の効果が得られたことが分かる。

赤外線カメラで撮影したステンレス製締結板外表面の温度分布を図8に示す。なお、図には温水流入後80秒、100秒および120秒後の結果を示す。プラパールと比較すると、No.2およびNo.5はそれぞれ、ディストリビュータ下部における横方向への作動流体の広がりが確認でき、それに伴って横方向への良好な温度変化が生じているのが確認できる。しかし、No.3およびNo.4では横方向への流動が良好ではなく、左右両端部に温度変化の遅い部分が残っており、作動流体が均一に流れていないことが確認できる。

以上のように、RFBモデルセル内部の温度を熱電対で測定するとともに、ステンレス製締結板外表面の温度を赤外線カメラを用いて計測することによって、ディストリビュータによる作動流体の流動状態の改善効果を確認することが可能であった。

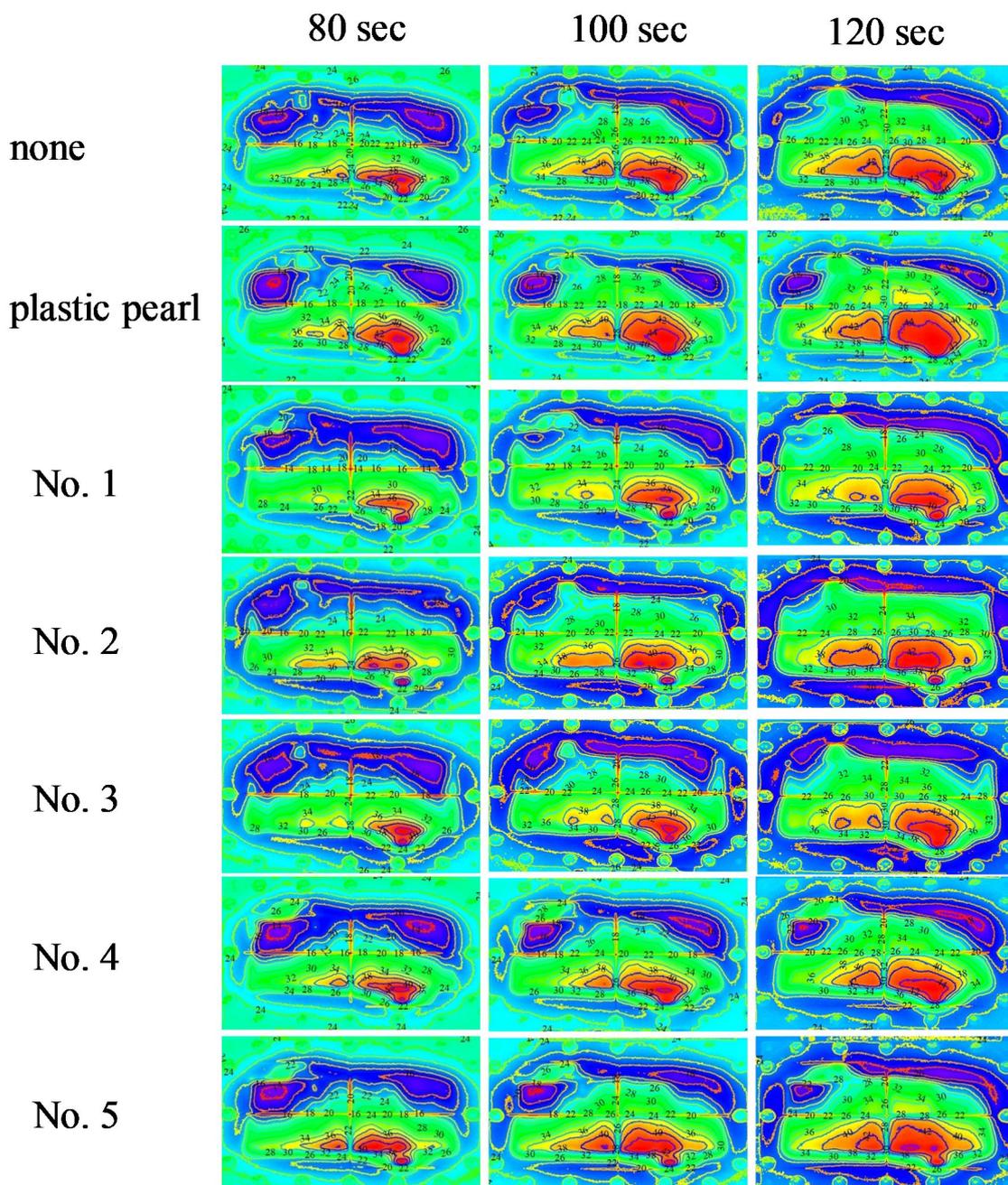


図8. ステンレス製締結板外表面の温度分布

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔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
---------	---------