

機関番号：10101
研究種目：若手研究(B)
研究期間：2009～2010
課題番号：21760146
研究課題名(和文) PEM燃料電池の多孔構造・チャネル内における気液二相流動シミュレーション
研究課題名(英文) Two Phase Flow Simulation of Gas and Liquid in the Porous Structures and the Channels of PEM Fuel Cells
研究代表者 田部 豊 (TABE YUTAKA) 北海道大学・大学院工学研究科・准教授 研究者番号：80374578

研究成果の概要(和文)：固体高分子形燃料電池において、複雑な電池構造内の三次元解析を可能とすることにより二相流動挙動を明らかにするとともに、最適な電池構造の提案までを目指し、格子ボルツマン解析コードの大規模・高速化を行なった。さらに本コードを用い、ガス拡散層の濡れ性が凝縮水排出挙動に及ぼす影響を明らかにするとともに、リブに異なる濡れ性を与えることで、ガス拡散層内の排水に有利な電池構造が実現可能であることを示した。

研究成果の概要(英文)：This study developed the three dimensional lattice Boltzmann simulation code of the two phase flow in a PEM fuel cell. The objective is to evaluate the gas and liquid behavior in the complicated porous structures and to present optimum cell structures. The developed code clarified the effects of wettability of gas diffusion layer on the drain behavior of condensed water. The simulation also indicated that hydrophilic ribs of separator improves the drainage performance of the gas diffusion layer.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：エネルギー工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：燃料電池、気液二相流動、シミュレーション、多孔体、ガス流路

1. 研究開始当初の背景

固体高分子形燃料電池は次世代の自動車等の移動動力用電源、民生用の定置型分散電源、携帯電話・ノートパソコン向けのマイクロ電源として期待され、ここ数年、活発に研究・開発が行われている。しかし、コスト低減、耐久性向上等の個々の材料に対する課題

とともに、実用化にあたっては電池全体としての水管理の最適化が重要な課題として残されている。固体高分子形燃料電池では、高分子膜のプロトン伝導性を高く維持するために適切な加湿が必要である一方、発電により生成される凝縮水が反応・生成ガスの供給と排出を妨げるフラッド現象を引き

起こし、性能の低下ならびに不均一な発電による部材の劣化を生じさせる。凝縮水は、細孔径数 μm ~数十 μm の多孔質体であるガス拡散層内を通り、一辺が 0.2mm ~ 1mm 程度のマイクロセパレータチャンネルに排出された後、空気により排出される。このような凝縮水挙動に対して、ガス拡散層の直接可視化による表面観察、X線または中性子線による内部観察など、実験的な研究が近年発展してきたものの、数 μm の極めて高空間分解が必要とされること、構造が非常に複雑なことなどから、二相流動挙動の解明は困難な状況にある。そこで、数値解析による評価が極めて有効であるが、表面張力および空気-水の高密度比二相流の相互作用を強く受ける電池内凝縮水挙動に対して有効な解析手法は未だ確立されていない。

2. 研究の目的

固体高分子形燃料電池内の凝縮水・ガス流動挙動、およびそれらに及ぼす電池構造・運転条件の影響を明らかにするとともに、水管理問題を含めた燃料電池の最適構造・システム設計を行うための解析手法を確立することが本研究の目的である。まず、三次元の複雑多孔体構造およびマイクロチャンネル内において、密度比の大きい流体の相互作用および表面張力の影響を強く受ける電池内二相流動挙動を明らかにするために、格子ボルツマン解析の大規模・高速化、電池内多孔体構造のモデル構築を行う。次に解析結果と実験結果の比較から解析手法、モデルの妥当性を検証するとともに、水管理に適した電池構造の提案を行う。

3. 研究の方法

本研究で二相流の計算手法として用いた格子ボルツマン法 (LBM) は、流体を有限個の速度を持つ仮想粒子の集合体 (格子気体モデル) で近似し、仮想粒子の衝突と並進を表す格子ボルツマン方程式を逐次計算することによって仮想粒子の分布関数を追跡していくシミュレーション技法である。アルゴリズムが簡単で並列計算に適しているなどの特長があり、複雑な流れ場となる多孔質内の流れなどへの適用も可能である。また、二相系の LBM は界面形状の時間変化を陽的に追跡する必要がなく、質量保存に優れているという特徴を持つ。本研究で用いたモデルは、LBM に projection 法を導入することで水と空気のような密度比 1,000 倍程度までの高密度比二相流の扱いを可能としたものである⁽¹⁾。本モデルでは、二相を識別する関数である index function ϕ を求めるための速度分布関数 f_i と、圧力勾配のない場の流速の予測値 \mathbf{u}^* を求めるための速度分布関数 g_i を用い、時間 t で格子点 \mathbf{x} 上の粒子速度 \mathbf{c}_i を持つ粒子の分

布関数 $f_i(\mathbf{x}, t)$ および $g_i(\mathbf{x}, t)$ の時間発展を以下の格子ボルツマン方程式で計算する。

$$f_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta x, t + \Delta t) = f_i(\mathbf{x}, t) - \frac{1}{\tau_f} [f_i(\mathbf{x}, t) - f_i^{eq}(\mathbf{x}, t)]$$

$$g_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta x, t + \Delta t) = g_i(\mathbf{x}, t) - \frac{1}{\tau_g} [g_i(\mathbf{x}, t) - g_i^{eq}(\mathbf{x}, t)]$$

$$- 3E_i c_{i\beta} \left(1 - \frac{\rho_G}{\rho} \right) g \Delta x + 3E_i c_{i\alpha} \frac{1}{\rho} \left[\frac{\partial}{\partial x_\beta} \left\{ \mu \left(\frac{\partial u_\beta}{\partial x_\alpha} + \frac{\partial u_\alpha}{\partial x_\beta} \right) \right\} \right] \Delta x$$

ここで、 f_i^{eq} , g_i^{eq} は局所平衡分布関数であり、 ϕ および \mathbf{u}^* は次式から求められる。

$$\phi = \sum_{i=1}^{15} f_i \quad \mathbf{u}^* = \sum_{i=1}^{15} \mathbf{c}_i g_i \quad Sh \frac{\mathbf{u} - \mathbf{u}^*}{\Delta t} = -\frac{\nabla p}{\rho}$$

密度 ρ は index function ϕ から、真の速度 \mathbf{u} は $\nabla \cdot \mathbf{u}^* = 0$ となるように予測値 \mathbf{u}^* を上式で補正して得られる。ここで、 p は Poisson 方程式を解くことにより求められる。

本研究で行った並列化は、Message Passing Interface (MPI) を用い、Poisson Solver の高速化は、従来コードで用いていた SOR 法を共役勾配 (CG) 法に変更することにより行った。なお、CG アルゴリズムの適用にはフリーで公開されている PETSc (Portable, Extensible Toolkit for Scientific Computation) を用いた。

参考文献

- (1) Inamuro, T. et al., J. Comput. Phys. 198 (2004), 628-644.

4. 研究成果

(1) 計算コードの改良 計算の大規模化・高速化を行い燃料電池内二相流の 3 次元で解析可能とした後、3 次元多孔質体内流動解析において、与える計算条件によっては計算途中で破綻してしまう場合があり、それが複雑な形状をもつ多孔質体表面の境界角部における濡れ性表現が原因であることがわかった。そこでまず、固体障害物の表面における濡れ性の設定法に改良を施し、計算の信頼性の向上を図った。

本モデルでは二相 (気相と液相) を識別す

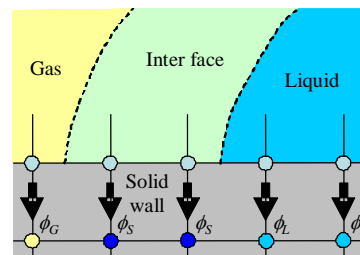


図1 壁表面上での ϕ の設定方法

る関数である ϕ を計算することで二相流内の密度を求めるが、その際 ϕ を壁内にも与えることで壁表面の濡れ性を表現している。2次元の場合、図1のように境界上の ϕ の相状態に対応させて壁内の ϕ を設定していくという改良を施し、複雑な形状の境界角部においてもこれが適用できるように処理することで、計算破綻の問題を解決してきている。そこで本研究では、この2次元での改良を3次元にも施し、次元が増えることで形状パターンも増え、処理が複雑になる境界角部に対してもこれが適用できるように処理に工夫をした。その結果、計算途中での破綻が改善されることを確認している。

(2) ガス拡散層内の凝縮水挙動解析 大規模・高速化、濡れ性の与え方の改良を行ったコードを用いて、ガス拡散層(GDL)内の大規模計算を行った。GDLのような多孔質体内での二相流は主に毛管力と粘性力に強く影響を受け、その相対的な大きさを表す指標であると考えられるキャピラリー数($Ca = u\mu/\sigma$)によって二相流の分布や挙動が決まると知られている。図2は Ca による多孔質体内凝縮水分布を表す3次元解析結果である。計算領域の格子数は $26 \times 26 \times 26$ であり、領域の一辺の長さは1.0 mmである。計算領域の内部にはGDL繊維(空隙率は約80%)を配置した。側壁面と障害物の表面は全て均一な疎水性とし、上面は自由流出とした。マイクロポーラスレイヤー(MPL)を模擬した穴から主に水が発生流入すると想定し、下面中央部の一辺400 μm の正方形の穴から速度 u_L^{in}

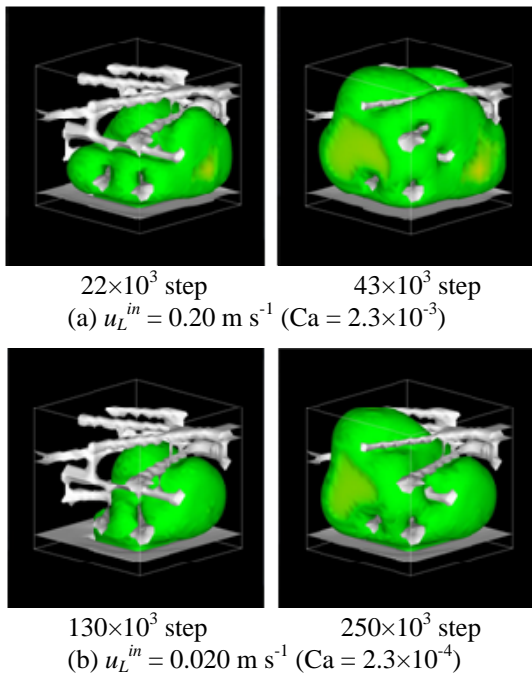


図2 流入速度のGDL内凝縮水挙動に及ぼす影響

で水を流入させた。図2(a)は水の流入速度 $u_L^{in} = 0.20 \text{ m s}^{-1}$ 、 $Ca = 2.3 \times 10^{-3}$ の解析結果である。流入した水は下部の気孔を埋めながら上部に進出していく(図2(a)左)。その後も水は成長を続け、下部から順に空孔を埋めていく(図2(a)右)。図2(b)は水の流入速度 $u_L^{in} = 0.020 \text{ m s}^{-1}$ 、 $Ca = 2.3 \times 10^{-4}$ に低下させたときの解析結果である。流入した水は、(a)の結果よりも大きい空孔を選択的に通過しながら空間を埋めて上部に進出していく。以上より、3次元での凝縮水流動解析において、 Ca の低下と共に粘性力よりも毛管力の影響が顕著になり、水の空孔選択性が增大する挙動を示すことを確認した。

図3は、繊維表面の濡れ性による多孔質体内凝縮水分布を表す3次元解析結果である。計算領域は図2と全く同じ条件で、繊維の濡れ性を親水性の(a) $\theta_c = 70^\circ$ と疎水性の(b) $\theta_c = 150^\circ$ とし、下面から水を一樣流入($u_L^{in} = 0.020 \text{ m s}^{-1}$)させたときの、 250×10^3 stepでの結果である。繊維が親水性の図3(a)では、流入した水が反応面に対して平行に配置されている繊維に沿って横方向に水が広がる傾向が強くなり、側壁に水が付着している様子が観察できる。一方で図3(b)の疎水性繊維では、流入した水が繊維の方向性による影響をあまり受けずに、比較的大きな空孔を選択的に埋めながら z 方向正の向きに進出していく傾向が強い様子を確認できる。この図3の結果を xy 断面で切り出し、断面ごとの凝縮水量を算出し、 z 軸方向の凝縮水分布を示したものが図4である。グラフの破線は親水性繊維の、

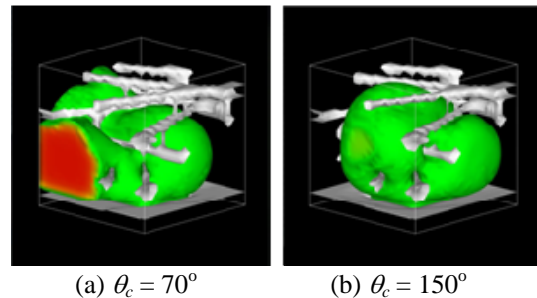


図3 GDLの濡れ性が凝縮水挙動に及ぼす影響

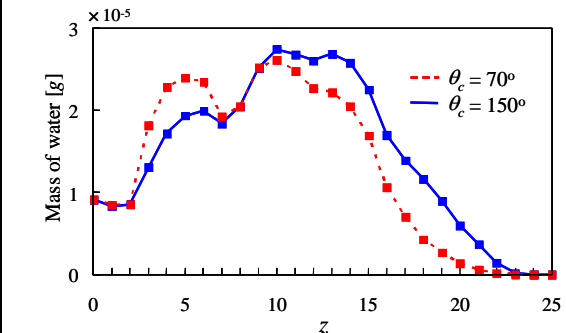
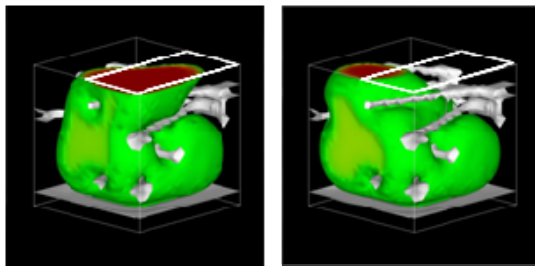


図4 GDLの濡れ性が z 方向凝縮水分布に及ぼす影響



(a) $\theta_c = 70^\circ$ (b) $\theta_c = 150^\circ$

図5 リブの濡れ性が凝縮水挙動に及ぼす影響

実線は疎水性繊維の結果である。両者ともに $z = 10$ で最大値を示し、大まかな分布形状は似ているが、分布量に違いが見られる。親水性繊維の方が下面流入口付近に滞留する凝縮水が多く、上面出口付近に達する凝縮水が少ない。一方で疎水性繊維の方は下部に滞留が少なく、上面付近に達する水が多くなっている。これより反応面で生成した凝縮水を外部に排出し燃料ガスの拡散を促進するGDLの役割を考えると、疎水性GDLの方が排水性能において有利だと考えられる。以上の3次元凝縮水流動解析より、繊維表面の濡れ性が、電池内の水管理において有効なパラメータとなりえることを示し、濡れ性を制御することで、燃料電池内部の水分布をフラッディングが起こりにくい有利な形にできる可能性があることを示した。

(3) 凝縮水挙動に及ぼすリブの濡れ性の影響 ここまでの解析結果を踏まえ、排水性に優れた電池内構造を検討するための解析を行った。図5は、GDLに隣接するリブとチャンネルによる3次元凝縮水流動解析の結果である。図3までの解析と全く同じ形の計算領域の上面にリブを模擬した固体壁とチャンネルを模擬した自由流出を配置した(太線で囲んだ部分がリブ)。GDL繊維の濡れ性と水流入速度は共通とし、疎水性の $\theta_c = 150^\circ$ と $u_L^{\text{in}} = 0.020 \text{ m s}^{-1}$ とした。リブの濡れ性を親水性の(a) $\theta_c = 70^\circ$ と疎水性の(b) $\theta_c = 150^\circ$ とした。表示は共に $300 \times 10^3 \text{ step}$ の結果である。リブが親水性の図5(a)では、リブ近傍に達した水がリブに吸い上げられ接触し、リブとの接触面を広げながらチャンネルへも排出される様子が見られ、疎水性の図5(b)では、成長した水がリブにはほとんど接触せず大きな空孔を選択的に埋めながらそのままチャンネルへ排出される様子が見られる。チャンネルへの流出界面の面積は図5(b)の方が大きく見え、排水量も多いように見えるが、この時点での排水量は図5(a)の親水性リブの方が3.5倍ほど多いことを算出し確認している。この解析結果より、リブに異なる濡れ性を与えることで、GDLからチャンネルへ流出する凝縮水挙動に影響を与えられることがわかり、親水

性リブの水を吸い上げる効果が燃料電池の排水性能の向上に役立つ可能性があることを示した。

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計5件)

- ①佐々木隆行、田部豊、近久武美、格子ボルツマン法によるPEFC内におけるガス拡散層内気液二相流動シミュレーション、日本機械学会第23回計算力学講演会、2010. 9. 24、北見工業大学(北見)
- ②Yasser, B. S., Tabe, Y., Chikahisa, T., Liquid Water and Gas Flow Simulation in a Channel of PEM Fuel Cells using the Lattice Boltzmann Method, FUELCELL2010 8th International Conference on Fuel Cell Science, Engineering and Technology, 2010. 6. 16, New York Marriotto at the Brooklyn Bridge (New York)
- ③佐々木隆行、田部豊、近久武美、PEFCにおける複雑繊維構造内液滴挙動のLBMシミュレーション、日本機械学会北海道支部第48回講演会、2009. 11. 28、北海道大学(札幌)
- ④Yasser, B. S., Tabe, Y., Chikahisa, T., Liquid Water and Gas Flow Simulation in a Channel of PEM Fuel Cells using the Lattice Boltzmann Method, 日本機械学会2009年度年次大会、2009. 9. 16、岩手大学(盛岡)
- ⑤田部豊、李勇柱、ベンサラヤーササー、近久武美、高密度比格子ボルツマン法によるPEM燃料電池多孔質体内の気液流動シミュレーション、日本機械学会2009年度年次大会、2009. 9. 16、岩手大学(盛岡)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田部 豊 (TABE YUTAKA)
北海道大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：80374578

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし