

令和 6 年 6 月 14 日現在

機関番号：12101

研究種目：若手研究

研究期間：2022～2023

課題番号：22K14188

研究課題名（和文）固体高分子形燃料電池におけるマルチスケール水・蒸気輸送解析の構築

研究課題名（英文）Development of multi-scale simulation for water/vapor transport in PEFC

研究代表者

境田 悟志（Sakaida, Satoshi）

茨城大学・理工学研究科（工学野）・講師

研究者番号：40816170

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：水素と空気中の酸素で発電を行う固体高分子形燃料電池は二酸化炭素を排出しないクリーンな動力源である一方で既存の内燃機関に置き換えるには出力密度を向上させる必要がある。出力密度を向上させるための鍵となるのが電池内の水/蒸気輸送である。本研究では格子ボルツマン法を用いた水・凝縮水輸送解析手法を構築し、各運転条件における凝縮水の滞留プロセスを調べた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

固体高分子形燃料電池は水素社会における核となるエネルギー変換装置である。しかし、現在の固体高分子形燃料電池の価格は高く、これを低減するには出力密度を改善し、単位出力あたりのコストを下げる必要がある。そのためには電池構造の改善、最適化が必要となる。本研究で開発したシミュレーション技術は比較的低スペックなPCでも利用でき、電池設計を容易する可能性を秘めている。

研究成果の概要（英文）：Polymer electrolyte fuel cells (PEFCs), which generate electricity from hydrogen and oxygen in the air, are a clean power source that does not emit carbon dioxide, but their power density should be increased. The key for improving the power density is the water/vapor transport in the fuel cell. In this study, a water/vapor transport simulation using the lattice Boltzmann method was developed to investigate the water accumulation process in the fuel cell under various operating conditions.

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

様式 C - 19 , F - 19 - 1 , Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

水素と空気中の酸素で発電を行う固体高分子形燃料電池は二酸化炭素を排出しないクリーンな動力源である一方で既存の内燃機関に置き換えるには出力密度を向上させる必要がある。そのために電池の高電流密度化が求められている。高電流密度化を行う上で鍵となるのが、電池内の凝縮水輸送である。固体高分子形燃料電池は水素と酸素から発電を行うため、触媒層では副産物として水が生成する。水は固体高分子膜のプロトン伝導に不可欠な物資である一方で、高電流密度域ではガス流路から触媒層への酸素輸送を担うガス拡散層 (GDL) に液水が滞留し酸素輸送が阻害される。その結果、電圧降下が生じ出力密度も低下する。そのため、電池の高電流密度化を実現するためには触媒層で生成された水を適切に排出する必要があり、電池構造の最適化が必要である。そのためには電池内シミュレーションの技術を確立する必要がある。

2. 研究の目的

触媒層で生成された水は微細多孔質層を蒸気で輸送された後、ガス拡散層で凝縮し滞留する。そのため、電池構造を最適化するためには相変化を考慮したシミュレーションが必要となる。このような計算は商用流体解析ソフトで用いられる VOF 法などでも実現可能であるが、固体高分子形燃料電池は構造が複雑かつ数 μm 以下であるため微細なメッシュが必要である。そのため計算負荷が重くなる可能性がある。そこで本研究では並列計算が容易、かつ、複雑形状に適用しやすい格子ボルツマン法を用いたシミュレーション手法を開発し、低い計算負荷での蒸気・凝縮水輸送解析を実現することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では(1)気相と液相を判定する秩序変数に関する方程式、(2) Navier-Stokes 方程式および連続の式、(3)蒸気輸送のための移流拡散方程式の3つを解くことで蒸気・凝縮水輸送を計算した。秩序変数の計算には微分の数少なく比較的計算負荷が小さかった保存型 Allen-Cahn 方程式^[1-3]に凝縮を表現するためのソース項を加えた次式を用いた。

$$\varphi(x, t + \Delta t) = \sum_{i=1}^{15} \{f_i^{eq}(x - c_i \Delta x, t) + AE_i[\varphi(x, t) - \varphi(x - c_i \Delta x, t)]\}, \quad (1)$$

$$f_i^{eq} = E_i \varphi (1 + 3c_{i\alpha} u_\alpha) + 3E_i c_{i\alpha} n_\alpha M \frac{1 - 4\varphi^2}{W} - E_i S. \quad (2)$$

ここで φ は秩序変数であり -0.5 が気相、0.5 が液相を表す。 f_i^{eq} は局所平衡分布関数であり、 α, β はデカルト座標を示す。 S はソース項である。本研究では過飽和は考慮せず、飽和蒸気圧を超えた蒸気量が凝縮すると仮定した。そのため、移流拡散方程式で得られた局所的な蒸気量と飽和蒸気圧の差をソース項に与えた。Navier-Stokes 方程式の解法にはフラクショナルステップ法を用い、稲室らのモデル^[3-5]をベースに仮の速度を求めた後、圧力と界面張力を精度良く解ける Balanced force algorithm^[6]を用い真の速度を求めた。

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_c^*(x, t + \Delta t) = & \sum_{i=1}^{15} c_i \{g_i^{eq}(x - c_i \Delta x, t) + 3A_u E_i c_i \cdot [\mathbf{u}(x, t) - \mathbf{u}(x - c_i \Delta x, t)] + 3E_i c_{i\alpha} V_\alpha(x, t)\} \\ & - \frac{1}{6} (1 - A_u) \lambda (\Delta x)^4 \nabla^2 (\nabla^2 \mathbf{u}(x, t)), \end{aligned} \quad (3)$$

$$\mathbf{u}_f^*(x, t + \Delta t) = \langle \mathbf{u}_c^* \rangle_{c \rightarrow f} - \left(\frac{(\nabla p)_f}{\rho_f^{n+1}} - \frac{\mathbf{F}_f}{\rho_f^{n+1}} \right) \Delta t, \quad (4)$$

$$\nabla \cdot \left(\frac{(\nabla \delta p_c^{n+1})_f}{\rho_f^{n+1}} \right) = -\nabla \cdot \left(\frac{\mathbf{u}_f^*}{\Delta t} \right), \quad (5)$$

$$\mathbf{u}_c^{n+1} = \mathbf{u}_c^* - \left\langle \frac{(\nabla p)_f}{\rho_f^{n+1}} - \frac{\mathbf{F}_f}{\rho_f^{n+1}} \right\rangle_{f \rightarrow c}^{n+1} \Delta t$$

ここで

$$\mathbf{F}_f = \sigma \chi \frac{(\nabla \rho)_f}{\rho_L - \rho_G} \frac{2\rho(x, t)}{\rho_L + \rho_G}, \quad (6)$$

$$g_i^{eq} = E_i \left(3c_{i\alpha} u_\alpha + \frac{9}{2} c_{i\alpha} c_{i\beta} u_\alpha u_\beta - \frac{3}{2} u_\alpha u_\beta \right). \quad (7)$$

下付き添字 c は格子での値を意味し、 f は格子間の仮想的な境界を意味する。 $\langle \rangle_{c \rightarrow f}$ はセル中心

から面中心へ変換する演算子^[6]である。 F_f は界面張力に対応する体積力であり density-scaled CSF モデル^[7]を用いている。 χ は界面の曲率であり σ は界面張力を表す。 u^* は仮りの速度であり、 u^{n+1} は次ステップにおける真の速度である。移流拡散方程式は吉野らのモデル^[8]に凝縮に関するソース項を加えて用いた。これらの計算負荷を低減するためマルチブロック法^[3, 9]を適用し、計算精度が必要な凝縮水周辺を $\Delta x = 1$ とし、それ以外の領域を $\Delta x = 2$ とした。ここで凝縮水周辺の領域は気液界面から 10 格子以内にある気相および液相と定義した。

4. 研究成果

図 1 に用いた計算領域を示す。X 線 CT を用いて取得した GDL 構造をシミュレーションに用いた。現在、酸素拡散性向上を図るため GDL の厚みを薄くする試みがなされていることから、本解析では既存の GDL の厚み約 170 μm より薄い 100 μm とした。GDL の下部には微細多孔質層 (MPL) に見立てた計算領域を設け、GDL の上部にはリブとチャンネルを設けた。チャンネルは流出境界として扱った。リブの温度を 30 $^{\circ}\text{C}$ もしくは 80 $^{\circ}\text{C}$ に設定するとともにチャンネルでの相対湿度を 30%もしくは 90%とすることで温度および相対湿度の影響を調べた。各種損失により触媒層の温度はリブよりも高くなる。そこで本研究では触媒層の温度をリブより+10 $^{\circ}\text{C}$ と仮定した。MPL クラックなどはなく MPL は蒸気で輸送されるとし、触媒層の温度に対応する飽和蒸気を計算領域下部に設け、チャンネルと触媒層の蒸気濃度勾配によって蒸気が GDL へ流入するように設定した。

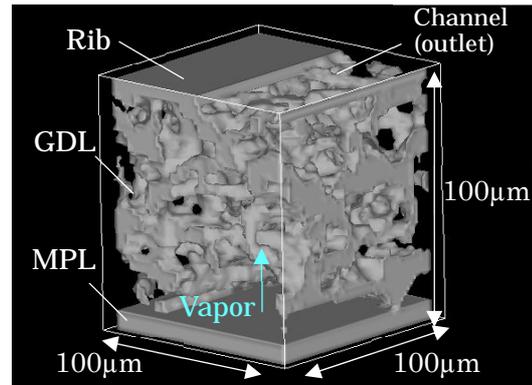


図 1. 計算領域

図 2 に温度 80 $^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 30%における凝縮水分布の時間変化を示す。20 ms からリブ下に位置する MPL-GDL 界面に凝縮水が生成し時間とともにリブ下の MPL-GDL に凝縮水が広がる様子がみられた。凝縮水はチャンネル下にはほとんど見られず、凝縮水の生成は主にリブ下で生じることがわかる。これは、リブ下の MPL-GDL 界面からチャンネルまでの蒸気輸送距離がチャンネル下の MPL-GDL 界面からチャンネルまでの距離と比べて長く、これにより濃度勾配が小さく、蒸気流束が低いことに起因する。図 3 に温度 80 $^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 90%における凝縮水分布の時間変化を示す。20 ms からチャンネル下、リブ下いずれの領域においても MPL-GDL に凝縮水が生成しており、時間とともに GDL 全体に凝縮水が広がった。本シミュレーションでいずれの条件でも MPL-GDL 界面で凝縮水が生成している。飽和蒸気圧は温度によって変化し温度が高い程、1 $^{\circ}\text{C}$ あたりに変化する飽和蒸気圧は大きくなる。MPL-GDL 界面では触媒層での各種損失に温度が高く、チャンネル-GDL 界面では冷却により温度が低くなっている。そのため、MPL-GDL 界面の方が飽和蒸気圧の変化が大きく、MPL-GDL 界面で凝縮水が生成したと考えられる。実際の電池においても MPL に近い GDL の領域が凝縮水の生成場所になっていると考えられるが、実際には本シミュレーションで考慮していない過飽和が生じている可能性もある。そのため、MPL-GDL 界面より少し上の領域が凝縮水生成の起点となっていることも考えられ、今後、実験および解析による更なる研究が必要である。図 4 に温度 30 $^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 90%の凝縮水分布を、図 5 に温度 30 $^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 30%の凝縮水分布を示す。相対湿度 30%においては凝縮水がほとんど生成しなかった一方で、相対湿度 90%では凝縮水が生成した。相対湿度 30%において凝縮水が生成しなかったのは(1)温度が低いため温度変化にともなう飽和蒸気圧の低下幅も小さくなったこと、(2)相対湿度が 30%と触媒層とチャンネル間で濃度勾配ができ、蒸気流束が十分大きかったためと考えられる。よって実際の電池においても低温、低湿度の条件では蒸気輸送に由来する凝縮水生成はほとんど見られず、触媒層で生成された水は主に液水の形で触媒層から MPL, GDL へ輸送され滞留している可能性が考えられる。相対湿度 90%の条件では温度が低く触媒層での飽和蒸気圧が小さいものの、相対湿度 30%と比べ蒸気流束が小さく蒸気の輸送量が少ないため凝縮水が生成したと考えられる。

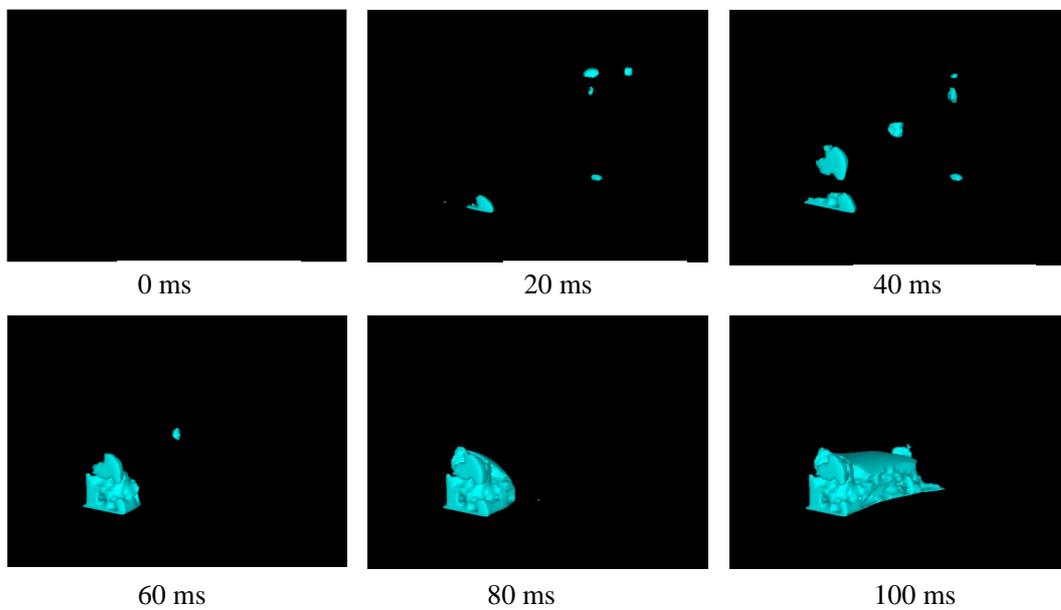


图 2. 温度 80°C , 相对湿度 30%

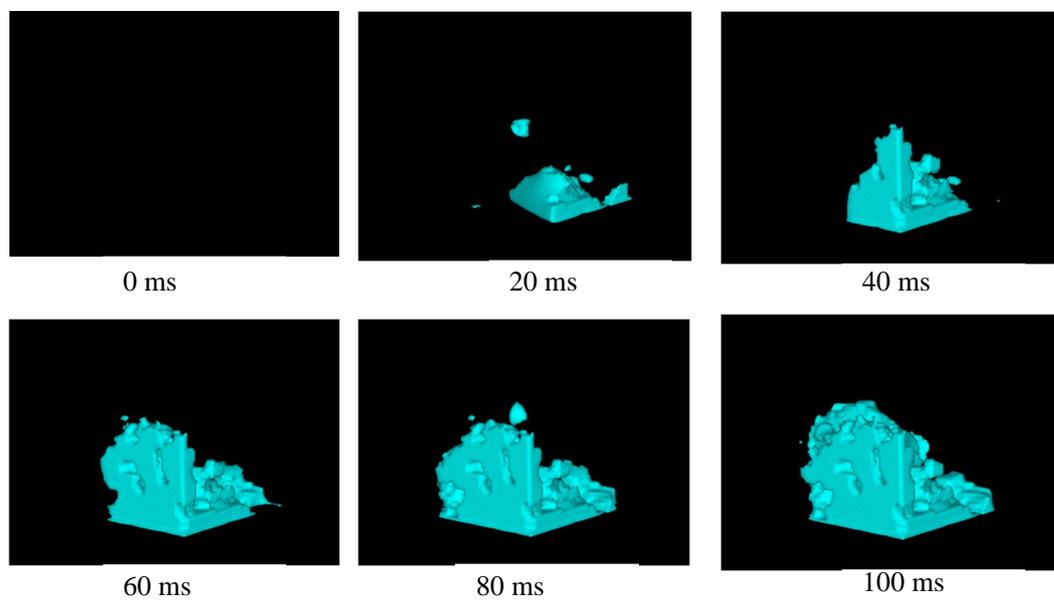


图 3. 温度 80°C , 相对湿度 90%

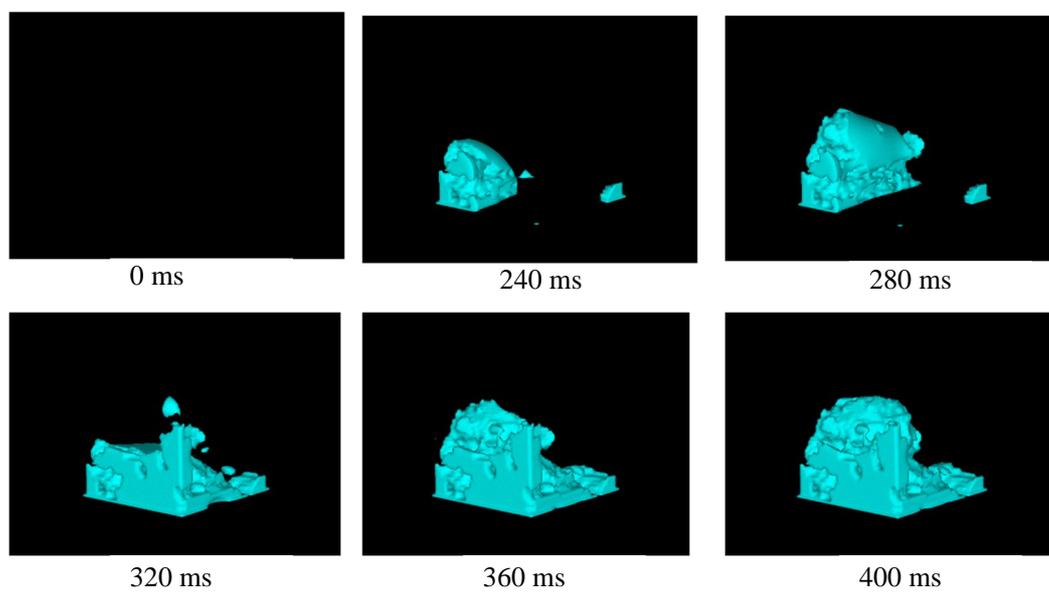


图 4. 温度 30°C , 相对湿度 90%

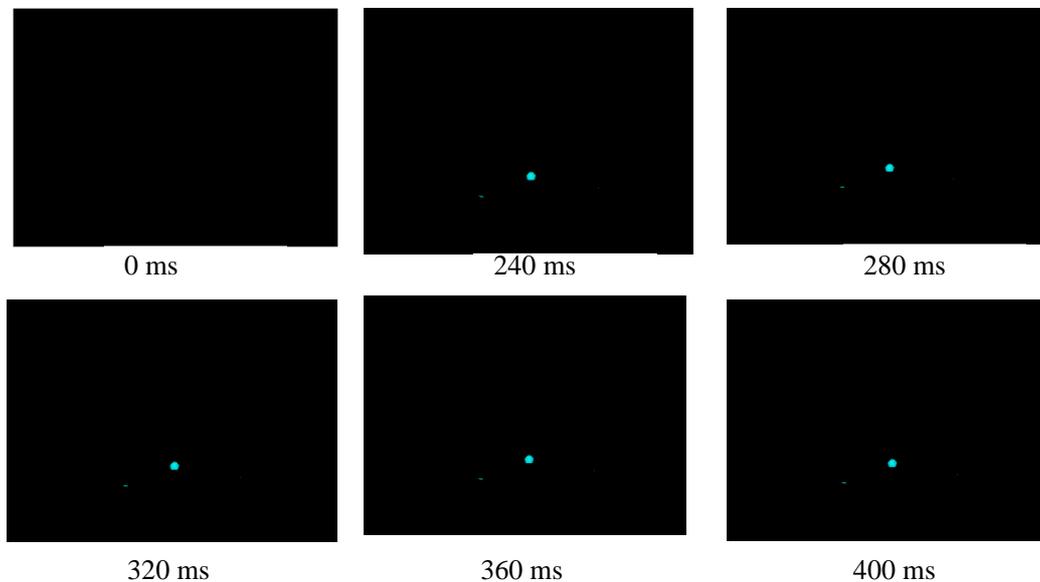


図 5. 温度 30°C , 相对湿度 30%

参考文献

- [1] P.H. Chiu et al., A conservative phase field method for solving incompressible two-phase flows, J. Comput. Phys. 230 (2011), 185-204.
- [2] M. Geier et al., Conservative phase-field lattice Boltzmann model for interface tracking equation, Phys. Rev. E91(2015) 063309 (11pp).
- [3] 稲室ら, 格子ボルツマン法入門 複雑境界および移動境界流れの数値計算法, 丸善出版
- [4] T. Inamuro et al., An improved lattice Boltzmann method for incompressible two phase flows with large density differences, Comput. Fluids 137 (2016), 55-69.
- [5] T. Inamuro et al., Validation of an improved lattice Boltzmann method for incompressible two-phase flows, Comput. Fluids 175 (2018), 83-90.
- [6] M M. Francois et al., A balanced-force algorithm for continuous and sharp interfacial surface tension models within a volume tracking framework, J. Comput. Phys. 213 (2006), 141-173.
- [7] Brackbill et al, A continuum method for modeling surface tension, J. Comput. Phys. , 100 (1992),335-354.
- [8] M. Yoshino et al., Lattice Boltzmann simulations for flow and heat/mass transfer problems in a three-dimensional porous structure, Int. J. for Numerical Methods in Fluids, 43(2003), 183-198.
- [9] T. Inamuro et al., Lattice Boltzmann methods for moving boundary flows, Fluids Dyn. Res. 44 (2012), 024001(21pp).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1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 格子ボルツマン法によるPEFCの流路構造がGDL内水輸送におよぼす影響評価
3. 学会等名 日本機械学会 熱工学コンファレンス2023
4. 発表年 2023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
---------	---------