

三次元多孔質シミュレータによる 燃料電池の電気化学プロセスシミュレーション

○服部達哉¹, 笠原浩太¹, 佐々木賢治¹, 鐘慧峰¹, 鄭昌鎬¹,

坪井秀行¹, 古山通久¹, 遠藤明¹, 久保百司^{1,2}, Carlos A. Del Carpio¹, 宮本明^{1,3}

¹ 東北大学大学院工学研究科応用化学専攻 (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-11-1302)

² 科学技術振興機構さきがけ (〒332-0012 埼玉県川口市本町 4-1-8)

³ 東北大学未来科学技術共同研究センター (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-10)

【緒言】高効率エネルギー変換技術である燃料電池の中でも、固体高分子形燃料電池(PEFC)は出力密度が高く、また 100°C以下の低温で作動するため、小型・分散型電源としての実用化が期待されている。PEFC の実用化に向けた課題としては起電力の低下を引き起こす過電圧を低減し、触媒として用いられる高価な白金の使用量を低減することなどが重要である。これらの課題の解決に対して、触媒反応ダイナミクスなどを検討可能な計算化学手法に大きな期待が寄せられているが、理論的手法を用いた従来の研究では、理想的なモデルを用いた電子・原子レベルの特性の解析にとどまっており、またこれまで、これら電子・原子レベルの知見と燃料電池の実特性とを直接結びつける手法は全く存在しなかった。そこで本研究では電子・原子レベルの知見と燃料電池の実過電圧特性とを結ぶことを目的として μm スケールのPEFC 空気極電極触媒層モデルに基づくPEFC 過電圧特性シミュレータの開発を行った。

【方法】本研究で開発した過電圧特性シミュレータは、当研究室で既に開発している三次元多孔質シミュレータ、微細構造評価プログラムの結果を基にしている。三次元多孔質シミュレータでは乱数により単位格子内にカーボン担体二次粒子を発生させ電解質で覆い、PEFC 空気極モデルを作成する。微細構造評価プログラムでは、作成したモデルを特定方向に分割し各分割面の電解質、カーボン担体二次粒子、気相などの断面積を算出することで、作成したモデルの微細構造を定量的に評価する。

【結果】図1に三次元多孔質シミュレータで作成したPEFC 空気極モデルを、図2に微細構造評価結果を示す。カーボン担体二次粒子の平均粒径を $0.2\mu\text{m}$ 、充填率を0.4、電解質膜の平均厚さを $0.05\mu\text{m}$ とした。本シミュレータでは以下の仮定に基づいている。1)OERは二次粒子の表面でのみ起こる。2)OERにより発生する水分子は全て気相中に拡散していく。3)酸素は電解質と気相の混合層を拡散する。4)カーボン担体二次粒子の電位は全て等しい。これらの仮定に基づいて、電流に関する連続の式、Butler-Volmerの式、酸素の物質収支式などを解くことで過電圧を算出する。図3には計算結果を示す。

以上本研究により、コンピュータ上に良好に再現された μm スケールのPEFC 空気極モデルに基づいた過電圧特性シミュレータの開発に成功した。これにより電子・原子レベルの現象が燃料電池の実過電圧特性に及ぼす影響を検討することが可能となった。具体的には、量子分子動力学計算により電極反応ダイナミクスを解析することで活性化エネルギーを、古典分子動力学法により拡散係数やプロトン伝導度を算出し、これらの知見を過電圧特性シミュレータ中で使用することで電子・原子レベルの現象が実過電圧特性に及ぼす影響を検討した。

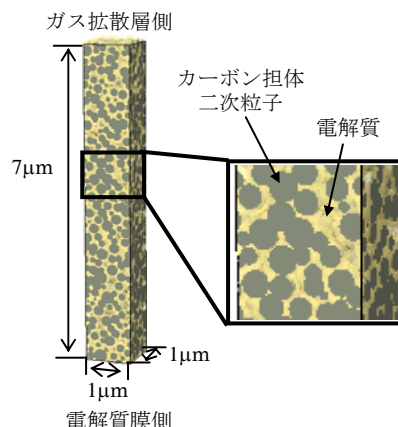


図1 作成したPEFC 空気極モデル

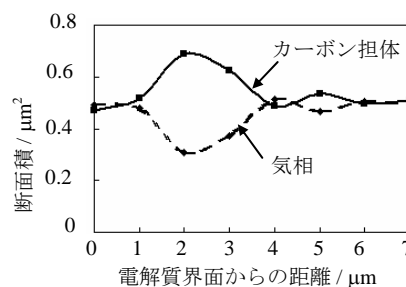


図2 微細構造評価結果

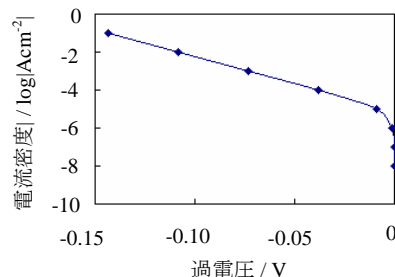


図3 電流密度の対数 vs 過電圧プロット