

## 三次元空気極モデルを用いた 固体高分子形燃料電池過電圧特性シミュレータの開発と応用

○ 服部達哉<sup>1</sup>、鐘 慧峰<sup>1</sup>、坪井秀行<sup>1</sup>、古山通久<sup>1</sup>、畠山 望<sup>1</sup>、遠藤 明<sup>1</sup>、  
高羽洋充<sup>1</sup>、久保百司<sup>1</sup>、Carlos A. Del Carpio<sup>1</sup>、宮本 明<sup>2,1</sup>

<sup>1</sup>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）

<sup>2</sup>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】環境負荷が小さく、高効率な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)は高出力密度、低温作動という特徴を有することから自動車用や家庭用の小型・分散型電源としての実用化が期待されている。このPEFCの実用化に向けた課題としては、大きな空気極過電圧に起因する起電力の低下や高価な白金を触媒として用いることによる高コスト化などが挙げられる。これらの課題の解決には電極反応の反応・生成物輸送を速やかにし、かつ、白金を触媒として効率良く作用させるように、複雑な空気極触媒層構造を最適化することが重要だと考えられる。そこで本研究では最適な空気極微細構造をコンピュータ上で探索するために当研究室で開発した三次元多孔質シミュレータPOCO<sup>2</sup>を用いてPEFC空気極モデルを構築し、作成したモデルに基づく過電圧特性シミュレータの開発を行った。

【方法】PEFC空気極モデルの構築には三次元多孔質シミュレータPOCO<sup>2</sup>を用いた。POCO<sup>2</sup>ではまず、入力した粒径分布に従い多孔質の構成粒子を生成する。これら発生させた構成粒子をモンテカルロ法により計算セル内に発生させることで目的の空隙率や構成成分の混合比を有する多孔質モデルを作成する。

【結果】まずPEFC空気極モデルの構築手順について述べる。1) 電解質で被覆したカーボン担体二次粒子の粒径分布を、正規分布に従って乱数により決定し生成した粒子を目的の充填率まで計算セル内に充填する。2) 次に電解質被膜の厚さを正規分布に従って乱数により決定する。3) 最後にカーボン二次粒子表面にPt 微粒子を乱数により目的の担持量になるまで発生させる。図 1 に構築したPEFC空気極モデルを示す。ここでモデルサイズは  $1 \times 1 \times 7 \mu\text{m}$ 、電解質含有量は 30 wt %、Pt 担持量は  $0.1 \text{ mg cm}^{-2}$  とした。次に作成した空気極モデルの log 微分細孔容積分布を解析し、実験値と比較した結果を表 1 に示す。表から、作成したモデルの log 微分細孔容積が最大となる細孔径が実験値[1] とほぼ一致していることがわかる。よって作成したモデルが現実のPEFC空気極触媒層構造を良好に再現していることが示された。次に開発した過電圧特性シミュレータについて説明する。本シミュレータでは作成したモデルを一次元化しN個のセルに分割する。そして酸素拡散、電極反応、プロトン伝導などの素過程をそれぞれFick の法則、電位に関する式、Butler – Volmer 式などで定式化し各分割セルにおいてこれらの式を解くことで過電圧特性を算出する。図 2 に図 1 で示した空気極モデルの過電圧特性の計算結果を示す。図から開発した過電圧特性シミュレータがPEFC空気極の過電圧特性は高電流密度域では濃度過電圧が大きく影響するという実験的傾向を良く再現していることがわかる。微細構造が過電圧特性に与える影響について発表当日に報告する。

【参考文献】

[1] P. Gode et al., *Electrochimica Acta*, **48**, 4175 (2003).

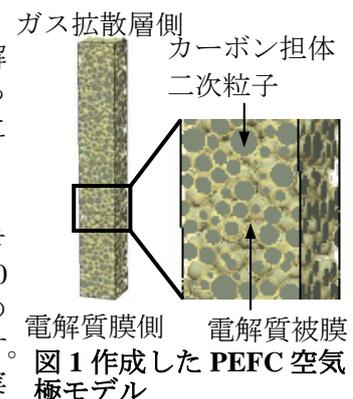


図 1 作成した PEFC 空気極モデル

表 1 log 微分細孔容積が最大となる細孔径の比較

	電解質含有量 (wt%)	細孔径 (nm)
実験値 [1]	30	$1.0 \times 10^2$
計算値	30	$1.2 \times 10^2$

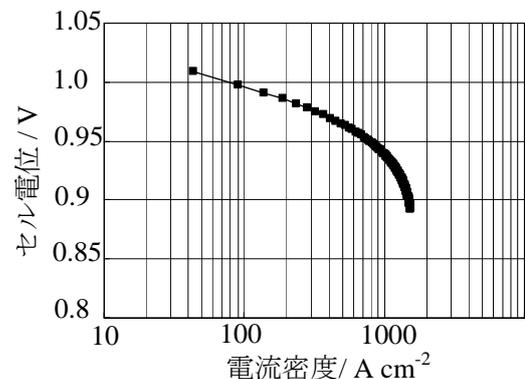


図 2 過電圧特性の計算結果

