

京都大学	博士（工学）	氏名	馬 榆墨 (Ma Yulei)
論文題目	Chemical Reaction Engineering Modeling of Flow Field in Polymer Electrolyte Fuel Cell (固体高分子形燃料電池の流れ場の反応工学的モデリング)		
<p>(論文内容の要旨)</p> <p>本論文は、固体高分子形燃料電池（PEFC）の更なる普及拡大に向けて、固体高分子形燃料電池セル内部の流れ場において、反応と物質輸送によって生じる温度、圧力、湿度、電位、組成などの分布を実験と数値シミュレーションで検討し、物質移動抵抗を含まない本質的な酸素還元反応速度の解析を行い、流れ場内の様々な現象をモデル化し、流路の設計指針と固体高分子形燃料電池システムの操作条件の設計指針を提示できる新たな方法を提案したものであり、緒論と本文4章、総論より成っている。</p> <p>緒論では、固体高分子形燃料電池に関する動向と本研究の位置付けを説明するとともに、セル内部現象のモデル構築と操作条件の最適化に関する既往の研究を調査した結果をまとめ、反応工学の視点から、流れ場における物質輸送速度およびカソード触媒層における反応速度と物質輸送速度の定量的な解析を行うことが本論文の主目的であることを明確にしている。</p> <p>第1章では、既往のカソード触媒層の無次元モデルを用いて、酸素還元反応速度の白金担持密度依存性の測定結果を解析することで、物質移動抵抗を含まない本質的な酸素還元反応速度定数ならびに酸素有効拡散係数とプロトン有効伝導度を求める方法を提案し、実際に実験で計測したデータを解析し、求めた有効輸送物性値が文献値と矛盾しないことと、モデルで予測した分極特性が実験結果と良好に一致することを示している。また、触媒層内の反応抵抗と物質輸送抵抗を理論的・定量的に検討し、白金担持密度がセル性能に与える影響を明らかにすることにより、白金利用率の向上を図れることを示している。</p> <p>第2章では、並行流路を備えたセルと蛇行流路を備えたセルの性能を実験で比較し、カソード流路とガス拡散層内のマクロ混合がセル性能に与える影響を、セルを反応器と見なして反応工学の視点から、滞留時間分布の概念を用いて解析している。電極面積とガス体積流量の比などの実験条件が異なる場合について、数値流体力学（CFD）で求めた滞留時間分布に基づいて、セルを理想反応器の組み合わせでモデル化することを提案している。実際に、並行流路と蛇行流路をもつセルを押出し流れ反応器（PFR）と完全混合流れ反応器（CSTR）を直列に接続した組み合わせモデルで表現し、それぞれの性能の差異をPFRとCSTRの空間時間の割合の違いのみで表現できること、そして組み合わせモデルで求められる分極曲線の計算値が実験結果と良好に一致することを示している。従来セル性能予測モデルと比べ、本章に提案したモデルはパラメーターが一つであるため、計算負荷が低く、操作条件の最適化などの実用化的数値シミュ</p>			

京都大学	博士（工学）	氏名	馬 榆墨 (Ma Yulei)
<p>レーションに使用可能であることを述べている。</p> <p>第3章では、複雑流路とガス拡散層内の伏流現象を解析している。燃料電池自動車製品に採用されている絞り流路を取り上げ、その狭隘部のサイズ、個数、配置方法に着目し、モデル流路を作製してセルでの分極曲線や圧力降下を実測するとともに、流路構造の異なる絞り流路と従来の並行流路について、数値流体力学モデルを構築し、実験で測定したセル性能を数値シミュレーションで再現している。流路構造による伏流効果（対流効果）とガスの拡散効果を比較し、伏流現象は流れがガス拡散層に潜る効果と流路間を短絡する効果ならびに流路断面組成を均一化する効果をもつことを示し、流路に狭隘部を設けることでセル性能が向上することを定量的に示している。狭隘部下流で流路内に生じた渦がガスの混合を促進し、セル性能を向上させることを示すなど、流路構造の設計に新たな視点を与えている。また、異なるガス流量の条件において、絞り流路の伏流量がセル性能に与える影響を検討し、狭隘部におけるVenturi効果がセル性能を悪化させることと、狭隘部を適切な間隔で隣接流路に交互配置することにより、流路間の伏流量が増し、渦の混合効果とともにガス拡散層内の酸素輸送を促進できることを示すなど、最適な操作条件の設計方針を提示している。</p> <p>第4章では、水分管理の視点から、水素循環流れに伴う固体高分子形燃料電池システムで、水素と空気の供給方向と水素単通反応率の影響を検討している。膜厚方向のモデルと流路方向のモデルを組み合わせてセルモデルを構築し、異なるガス供給方向、単通反応率、加湿温度などの操作条件におけるセル全体の電流密度、物質組成、膜含水率などの分布を数値シミュレーションにより推算し、実測したセルの分極特性を再現している。また、物質収支からシステム内の湿度と透過水流束分布を求めている。数値計算モデルより、並流と向流というガス供給方向の違いから生じるセル性能の差異がプロトン交換膜の平衡含水率の違いに起因することを明らかにし、高分子膜の平衡含水率の相対湿度依存性が非線形であるために、平均湿度が0.37以上の場合には、向流の性能が並流よりも良くなることを示している。また、単通反応率が反応速度と物質輸送速度に与える影響を定量的に解析し、セル出力が最大となる最適反応率が存在することを示している。</p> <p>総論では、本研究で得られた成果を整理し、固体高分子形燃料電池内の流れ場における物質輸送性の向上や操作条件の最適化に向け、今後の展望についても述べている。</p>			

氏名	馬 榆墨 (Ma Yulei)
----	-----------------

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、固体高分子形燃料電池における酸素還元反応速度を解析するとともに、伏流などの流れ場内の現象をモデル化し、流路と操作条件を設計する新たな方法を提案することを目的としたものであり、以下の成果を得ているものである。

1. セル分極特性の白金担持密度依存性からカソード触媒層の現象を支配する無次元数を求め、有効酸素拡散係数と有効プロトン伝導度を導出している。また、白金担持量が高いほど、物質輸送抵抗がセル性能に及ぼす影響が大きいことを定量的に解析できるモデルは、カソード性能の評価や触媒層の設計などに役立つことが期待できる。
2. 反応工学の視点から、セル性能を予測できる計算負荷の低い反応器モデルを提案している。数値流体力学計算から求めた滞留時間分布関数に基づき、押し出し流れ反応器と完全混合流れ反応器の割合でマクロ混合状態を表現し、並行流路と蛇行流路の性能差異を再現している。また、ガス流路の入口においてガス混合を促進し、出口においてガス混合を抑制するような構造が望ましいという設計指針を提案している。
3. 従来の並行流路と比べ、絞り流路は、ガスをガス拡散層に潜りこませる効果と狭隘部下流に生じた渦の混合効果により、流路内の未反応の酸素を効率よく触媒層に輸送できることを示している。狭隘部における Venturi 効果がセル性能を悪化させることと、狭隘部を適切な間隔で隣接流路に交互配置することにより、流路間の伏流を増し、渦の混合効果とともにガス拡散層内の酸素輸送を促進できることを示している。
4. 高分子膜の平衡含水率の相対湿度依存性が非線形であるために、平均湿度が 0.37 以上の場合には、向流の性能が並流よりも良くなることを示している。適切な水素単通反応率を設定することによって、セル内の湿度分布を改善し、プロトン移動抵抗を顕著に低減できることを示している。また、良好なセル性能を得られる単通反応率の設定範囲を提案している。

以上、本論文は反応工学モデルが固体高分子形燃料電池内の物質輸送と反応の解析に有効なことを示し、複雑な流路を簡便な反応器モデルで表現できることを示すなど、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、令和 5 年 2 月 20 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。

なお、本論文は、京都大学学位規定第 14 条 2 項に該当するものと判断し、公表に際しては、(2024 年 3 月 31 日までの間)当該論文の全文に代えてその内容を要約したものとすることを認める。