

レドックスフロー電池の充放電性能最大化を目的とした構造最適化

Structural Optimization for Maximizing Charging/Discharging Efficiency of Redox Flow Batteries

研究代表者 大阪大学 大学院工学研究科 助教 矢地 謙太郎

Kentaro Yaji

Redox Flow Battery (RFB) is a rechargeable battery that has attracted attention as a next-generation storage system. It is well-known that achieving high power density is a critical issue for commercialization of RFBs. In this study, we construct a structural optimization method for maximizing the power density of RFBs. To realize this, we focus on generating a freeform flow fields via topology optimization, which is a powerful design methodology based on mathematical optimization technique. The goals of our study are 1) constructing topology optimization for the flow fields of RFBs on the basis of standard topology optimization approach, namely, density approach, 2) developing a data-driven based topology optimization and applying it to a RFB design problem. Through these numerical investigations, we revealed that the interdigitated flow field is a promising flow field design of the RFB under the investigated operating conditions.

要旨

風力や太陽光といった自然エネルギーを貯蔵するための次世代の大規模蓄電システムとして、レドックスフロー電池(RFB: Redox Flow Battery)が注目を集めている。これに伴い、RFBに関する研究開発が世界各国で盛んに行われているものの、実用化にはさらなる充放電性能の向上が求められている。この課題に対し本研究では、RFB内部の流路構造が充放電性能に強く影響することを踏まえ、数理的な最適設計手法を駆使することで、RFBの超高性能化に繋がる革新的な流路構造の創成を目指す。主な研究項目は、1) RFBの流動場を対象としたトポロジー最適化の構築、2) 複雑な解析モデルを考慮した最適設計問題を解くためのデータ駆動型トポロジー最適化の開発とそのRFB設計への展開、の2つである。

1. まえがき

地球環境保全、ならびに省資源化が叫ばれる現代社会において、風力、水力、太陽光など、自然エネルギーを利用した発電システムの導入は世界的な規模で進んでいる⁽¹⁾。このような発電システムを導入する際、蓄電方法が大きな課題とされている。今後、自然エネルギーを利用した発電システムの導入が進んだ場合、大容量の蓄電システムを各都市に自律分散的に配備することが必須となる。

この課題に対し、将来の大規模蓄電システムの有

力候補として、レドックスフロー電池(RFB: Redox Flow Battery)が注目を集めており、世界各国で研究が進められている。図1に示すように、一般にRFBはバナジウム溶液の酸化還元反応を利用した二次電池であり、その主な特徴は、リチウムイオン電池といった既存の蓄電池と比べて、1) 比較的安価、2) 大規模化が容易、3) 安全でメンテナンスが容易、といったことが挙げられる。これらの特徴から、RFBは将来の大規模蓄電システムとして期待されている。しかし一方で、RFBを今後さらに普及させるためには、充放電性能の改善が急務の課題とされている⁽²⁾。

本研究では、RFBの充放電効率の最大化を目的として、その性能を大きく左右する電極構造の最適化を実施する。元来、RFBはカーボンファイバーの多孔質電極を用いているが、多孔質電極とマイクロチャンネルを組み合わせることにより、RFBの性能改善が期待できることが知られている⁽³⁾。そこで本研究では、

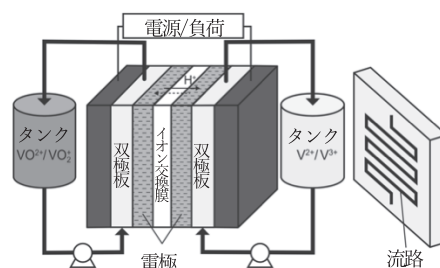


図1 レドックスフロー電池の概略図

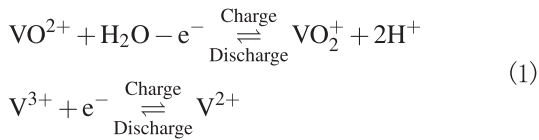
マイクロチャンネルの幾何形状に着目し、数値解析と構造最適化理論によって、数学的根拠に基づく最適な流路形状の創成を図る。これにより、RFBの充放電効率を最大限引き出すことができる真のマイクロチャンネルを明らかにする。

以下2章ではRFBの解析モデルと、本研究で用いた構造最適化の一方法論であるトポロジー最適化について概説し、その上でRFBの流動場を対象とした最適化問題を定式化する。3章では数値計算例を示し、提案手法の妥当性と有効性を検証する。4章では、トポロジー最適化が本質的に抱える課題を明確化した上で、複雑な工学設計問題を間接的に解くための新たなアプローチである「データ駆動型トポロジー最適化」を提唱し、RFBの最適設計に展開した数値計算例を紹介する。

2. レドックスフロー電池の充放電性能最大化を目的としたトポロジー最適化

2.1 レドックスフロー電池の解析モデル

図1に示すように、RFBはイオン交換膜の両側に多孔質電極を配置した構造であり、外部に設置したタンクから活物質を含む電解液を供給して充放電を行う。本研究では、正極と陰極で異なる価数のバナジウム(V)を用いたRFBを対象とする。ここで、陰極と陽極における電気化学反応式は次式で表される。



本研究では簡単のため、陰極のみを対象とする。また、先行研究⁽⁴⁾に基づき、以下の仮定を置く。

1. 電解液流れは定常の非圧縮性粘性流体とし、ストークス近似が成り立つ。
2. 希釈溶液として電解液を扱うことができる。
3. 副反応は無視できる。
4. 化学種輸送におけるイオン泳動は無視できる。

以上の仮定のもと、本研究で扱う支配方程式を以下説明する。

電解液流れにおける流速 \mathbf{u} 、圧力 p は次の支配方程式を満たすものとする。

$$-\nabla p + \mu \nabla^2 \mathbf{u} = \mathbf{F} \quad (2)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (3)$$

ここで、 μ は粘性係数、 \mathbf{F} は外力であり、式(2)はストークス方程式、式(3)は連続の式である。

多孔質体内を流れる場合は、外力 \mathbf{F} を以下で定義する。

$$\mathbf{F} = -\alpha \mathbf{u} \quad (4)$$

ここで、 α は多孔質体の逆透過抵抗係数であり、次式で定義される。

$$\alpha = \frac{\mu}{K} \quad (5)$$

ここで、 K は透水係数であり、次のCarman-Kozeny式から推定される。

$$K = \frac{d_f^2 \varepsilon^3}{16 K_{CK} (1 - \varepsilon)^2} \quad (6)$$

ここで、 d_f は多孔質電極のファイバー直径、 ε は空隙率、 K_{CK} はCarman-Kozeny定数である。

つづいて、化学種輸送に対する支配方程式を導入する。本研究では、バナジウム化学種の濃度 c_i ($i = \{V^{2+}, V^{3+}\}$) は次の定常の移流拡散方程式に従うものとする。

$$\mathbf{u} \cdot \nabla c_i - D_i^{\text{eff}} \nabla^2 c_i = s_i \quad (7)$$

ここで、 D_i^{eff} は有効拡散係数であり、 s_i は各化学種に対しそれぞれ以下で与えられる。

$$s_{V^{2+}} = \frac{aj}{F} \quad (8)$$

$$s_{V^{3+}} = -\frac{aj}{F}$$

ここで、 a は多孔質電極の比表面積であり、 F はファラデー定数を表す。また、電流密度 j はバトラー・フォルマー方程式で与えられる。支配方程式および境界条件の詳細については文献^[1]を参照されたい。

2.2 流動場を対象としたトポロジー最適化

本研究では、構造最適化において最も設計自由度の高い方法論であるトポロジー最適化を用いて流動場の最適化を実施する。トポロジー最適化の基本的なアイデアは、対象とする構造最適化問題の材料分布問題への置き換えにある⁽⁵⁾。すなわち、最適化したい領域を Ω として、それを包含する固定設計領域 D を導入し、そのもとで次式の特異関数 χ_Ω を用いて材料分布問題を考える。

$$\chi_\Omega(\mathbf{x}) = \begin{cases} 1 & \text{if } \mathbf{x} \in \Omega \\ 0 & \text{if } \mathbf{x} \in D \setminus \Omega \end{cases} \quad (9)$$

ここで、 \mathbf{x} は D における位置座標を表す。

本研究で扱うような流体問題では、一般に流体と固体の分布問題を考えることになる。そこで本研究では、 Ω を電解液の領域とし、その Ω との差集合を固体領域とする。

次に、式(9)を実際に用いる方法について述べる。これに先立ち、本来は0か1の離散値を取る特性関数を、連続最適化の枠組みに乗せるために、次の材料分布関数 ρ に置き換える。

$$0 \leq \rho(\mathbf{x}) \leq 1 \quad (10)$$

このように連続値に緩和してトポロジー最適化問題を解く方法は密度法と呼ばれる。この方法の利点は、先程述べた通り連続最適化問題に帰着させて解くことであるが、たとえ連続値に緩和したとしても空間的に0, 1, 0, 1...となるような不連続性を排除できるわけではない。また、連続値を許容するが故に、流体でも固体でもない中間的な領域、いわゆるグレースケールを許容してしまう問題を持つ。このような問題をはらんだまま得られる解は、数学的に最適解であったとしても、工学的には製造性等の問題から意味を持たないことが多い。そこで密度法では、空間的な不連続性を緩和しつつ、グレースケールを除去する手続きをセットで用いることが一般的である。本研究では、空間的な連続性を担保するフィルターとして、次の方程式を用いる⁽⁶⁾。

$$-R^2 \nabla^2 \rho_f + \rho_f = \rho \quad (11)$$

ここで、 $R > 0$ はフィルターの影響半径を表す。式(11)はもとの材料分布関数 ρ を空間的に滑らかな関数 ρ_f へ写像するためのフィルターであり、有限要素法等を用いて設計領域 D 上で解けば良い。また、グレースケールの排除方法については、例えば以下のような射影法が有効である⁽⁷⁾。

$$\hat{\rho}_f = \frac{\tanh(\beta(\rho_f - \eta)) + \tanh(\beta\eta)}{\tanh(\beta(1 - \eta)) + \tanh(\beta\eta)} \quad (12)$$

ここで、 β と η はパラメータであり、これらの値を調整することでグレースケールを排除した構造を得ることが可能となる。ただし、このような二値化を促進する方法の導入は、最適化過程において数値的な不安定性を生む要因となる。なお、本研究では式(11)は用いるが、式(12)のような射影法は用いる必要はなかった。これは、本質的にグレースケールが無い方が最適解として有利であったためと考えられる。このように、必要に応じて式(11)や(12)を導入し使い分

けることがトポロジー最適化では重要となることを付記しておく。

つづいて、上で導入した材料分布関数と支配方程式を紐付ける方法について述べる。本研究では式(11)を用いて ρ を空間的に滑らかにした関数 ρ_f を用いて支配方程式の拡張を行う。前述の通り、流体のトポロジー最適化では流体と固体の分布問題を考えることになる。そこで、 ρ_f を用いて式(4)の外力ベクトル \mathbf{F} を次の仮想的な外力ベクトル \mathbf{F}^{fic} で置き換える。

$$\begin{aligned} \mathbf{F}^{\text{fic}} &= -\alpha_{\rho_f}^{\text{fic}} \mathbf{u} \\ \alpha_{\rho_f}^{\text{fic}} &= \frac{q(1 - \rho_f)}{\rho_f + q} \alpha^{\text{fic}} \end{aligned} \quad (13)$$

ここで、 $q > 0$ は凸性を制御するパラメータであり、流体のトポロジー最適化ではこの値を大きくすることによってグレースケールの生成をある程度制御できることが知られている。ただし、最適化の最初から大きい値に設定していると最適化計算が不安定になりやすいため、最適化の途中で徐々に大きくしていく手法が先行研究ではよく用いられている⁽⁸⁾。なお、本研究においてはこのような手法の導入は必要なかったため、 $q = 0.01$ ですべての最適化計算を実施した。

以上で拡張した支配方程式を用いて、最適化問題を定式化する。本研究では、充放電性能の最大化を目的として、次の最適化問題を解く。

$$\begin{aligned} \underset{\rho}{\text{maximize}} \quad & J = \int_{\Omega_p} c_{\text{V}^{3+}}^s d\Omega \bigg/ \int_{\Omega_p} d\Omega \\ \text{subject to} \quad & 0 \leq \rho(\mathbf{x}) \leq 1 \quad \text{for } \forall \mathbf{x} \in D \end{aligned} \quad (14)$$

ここで、 Ω_p は多孔質電極の領域を表し、 c^s は電極表面の化学種の濃度である⁽³⁾。図2は多孔質領域 Ω_p 、固定設計領域 D および非設計領域で構成される解析

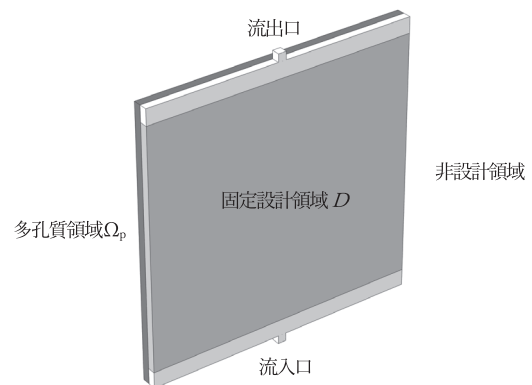


図2 解析領域

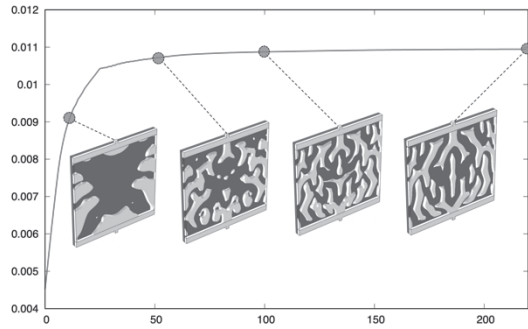


図3 最適化履歴

領域全体を表す。目的汎関数 J は Ω_p における反応率を表しており、これを最大化することによって充放電性能の向上を図る。なお、充放電性能の指標として、本来であれば過電圧や電流密度を目的関数として直接用いることが自然であると考えられるが、そのような評価指標を目的関数に据えて最適化を実施したところ、少なくとも本研究における問題設定においては有望な解を得ることができなかった。これはトポロジー最適化の設計自由度が高すぎるが故に生じる多峰性に起因する問題と考えられる。すなわち、トポロジー最適化は局所最適解の探索を行うことしかできないことから、例えば数値実装に問題が無かったとしても、設計者にとって満足のいく解が得られる保証は一切ない。そのため、どのように最適化問題を定式化し、どのような最適化手法で解くかによって、得られる最適化結果は変わってくる⁽⁹⁾。そのため、本研究では幾つかの目的汎関数の候補を考えた上で、数値計算による検証を行い、最終的に式(14)を用いることにした。直接的に RFB の評価指標を目的汎関数に組み込むための方法については今後の課題としたい。

2.3 数値実装

本研究では有限要素法を用いて支配方程式の解析を行い、解析領域はアイソパラメトリック四辺形一次要素によって離散化する。 u と p について同次補間要素を用いる場合、いわゆる LBB 条件により圧力場に数値振動が生じることから、本研究では GLS 法 (Galerkin/Least-square method) を用いて安定化を行う。また、設計変数の更新には逐次線形計画法を用いる。

3. 数値計算例

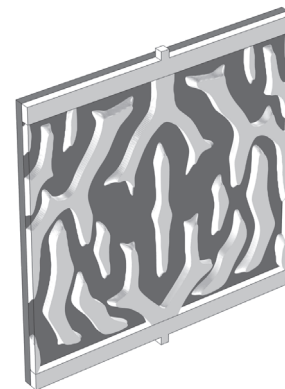
本研究で得られた数値計算例を紹介する。なお、具体的な各種パラメータ値については文献^[1]を参照されたい。

図3に最適化の履歴を示す。本数値計算例では、初期解としてすべて電解液で満たされた状態を設定しており、図に示す通り、最終的に目的汎関数値は収束し、最適解が得られた。

最終的に得られた最適化構造の特徴として、流路が流入口から流出口にかけて繋がっていないことが確認できる。これは解析領域裏側に設けた多孔質電極へ効率的に電解液を輸送するために敢えて流路を分断させる「櫛歯型流路構造」の形態といえる。櫛歯型流路構造については RFB の研究者がすでにその有用性を提唱しており、数値的および実験的検討が成されている。ただし、これらの先行研究では幾何学的に単純な流路構造のみを対象としており、図3で得られたような自由曲面を有する複雑な流路構造につ

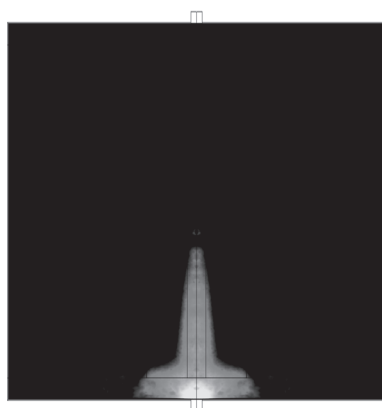


(a) 参照モデル: $J = 504$

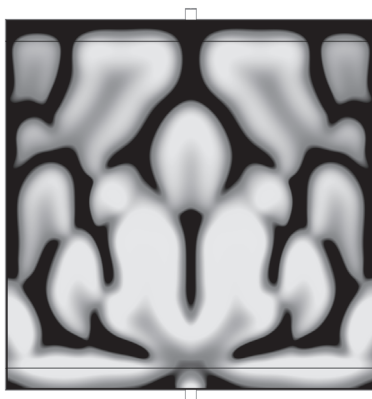


(b) 最適化構造: $J = 702$

図4 参照モデルとの比較(流路構造)



(a) 参照モデル



(b) 最適化構造

図5 化学種濃度分布の比較(色が明るくなるほど反応が活発)

いては検討されていない。

つづいて、得られた最適化構造と既存の流路構造を模した参照モデルとの性能の比較を行った。図4に並行流型を模した参照モデルと得られた最適化結果の流路構造と、それぞれの目的汎関数値を示す。図に示す通り、最適化構造は参照モデルと比較して40%近く高い性能を示しており、今回の問題設定では明らかに平行流型では性能が発揮できていないことが窺える。図5は多孔質電極の中央断面における V^{3+} の ϕ の分布であり、参照モデルでは流入口近傍でしかほとんど反応が起こっていないことが確認できる。一方で最適化構造では、流入口から流出口にかけて全域において反応が活発に起こっていることが確認できる。この結果から、最適化構造では多孔質電極内で効率的に電気化学反応を促進することで高性能化を実現していると考えられる。



(a) 100[Pa]: $J = 576$



(b) 500[Pa]: $J = 702$



(c) 1000[Pa]: $J = 719$

図6 最適化構造の圧力損失に対する依存性

次に、最適化構造の圧力損失依存性を検証した。圧力損失は流入口と流出口の圧力差で定義しており、本数値計算例では境界条件として与えている。図6にそれぞれの圧力損失における各最適化構造の圧力分布の中央断面図とその目的汎関数値を示す。この図からわかるように、圧力損失が大きくなるに従い、流路が全体的に細くなる傾向がある。これは、流路を細

くすることで多孔質電極内を流れる電解液の量を増やすためと推測できる。結果として、圧力損失を大きくすることで目的関数値は改善していく。しかし、圧力損失が大きいということは、電解液を送り出すためのポンプを駆動させるための電力をより必要とするということであり、RFBのシステム全体としては必ずしも圧力損失を大きくすれば良いというわけではない。つまり、小さい圧力損失で可能な限り反応を促進する、というのが本来の要求であり、これは多目的最適化に分類される。このような場合は、例えば反応率と圧力損失の二目的問題として考え、パレート解集合を求めることが有効である。トポロジー最適化において効率的にパレート解集合を求める方法については文献⁽¹⁰⁾を参照されたい。本研究では単目的の方法に留まるが、将来的には多目的最適化問題へと発展させる予定である。

4. マルチフィデリティ設計法に基づくデータ駆動型トポロジー最適化の開発とRFB設計への展開

前章までの研究では、従来のトポロジー最適化の枠組みをベースとしているが、本研究の発展として、データ駆動型の方法論の枠組みについても初期検討を実施した。本章においてその概要と今後の展望を述べる。

データ駆動型の方法論のアイデアを述べる前に、その必要性について述べておく。トポロジー最適化はその設計自由度が高いことから、これまでになく革新的な設計案を生成できる、という利点が多く論文で述べられている。これは正しいが、一方で設計自由度が高すぎるが故に、多くの問題、とりわけ物理現象の強い非線形性を考慮した問題においては、解探索が困難になることが多い。これは解空間の多峰性の問題であり、通常、トポロジー最適化は勾配法に基づき解探索を行うため、例え理論的に正しかったとしても、一度の計算で得られるのは局所最適解に過ぎない。大域的最適解が求まる保証は一切ない。そのため、設計者にとって満足いく解が得られるかどうかは、どのように最適化問題を定式化し、どのような方法で解くかに依存する。特に実際の工学設計問題では、複雑な物理場を扱いながら、複数の評価関数の下で最適化を実施することがほとんどであることから、一つの局所最適解を求めるだけでも膨大な

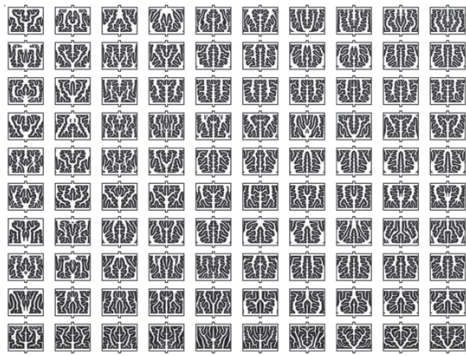
計算コストとパラメータスタディを要してしまうことが多い。それ故、実際の工学設計問題においては、トポロジー最適化を直接的に適用するアプローチでは有望な最適解を得ることが難しい場合がほとんどであると言っても過言ではない。産業界におけるトポロジー最適化の適用範囲が、構造物の軽量高剛性問題といった単純な問題にほぼ限定されているのは、この多峰性の問題にあると筆者は考えている。

このトポロジー最適化が本質的に抱える問題を解決するためのアプローチとして、本研究ではデータ駆動型の方法論の開発に着手した。この方法論の基本的なアイデアは次の3つで構成される。

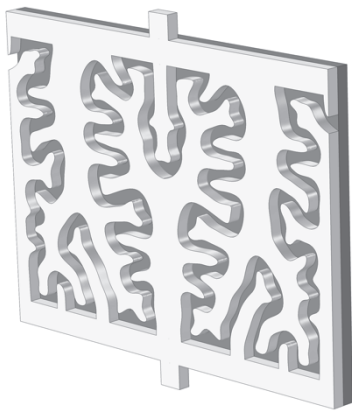
1. 複合領域最適化の一手法であるマルチフィデリティ設計法に基づき最適設計問題を2つの部分問題に分割する。すなわち、忠実度は低い安定して最適化計算を行う低フィデリティ最適化問題と、高精度の結果が得られる高フィデリティ最適化問題について考える。
2. 低フィデリティ最適化では、もとの問題に近似処理を施した擬似的なトポロジー最適化問題を解くことで設計候補を生成する。ここでは近似誤差を補正するための設計パラメータを導入した上で、多種多様な設計候補を網羅的に生成する。
3. 高フィデリティ最適化では、低フィデリティ最適化で得られた設計候補をもとに高精度の解析モデルを用いた最適化計算を実施する。ここでは先に導入した設計パラメータに対するパラメータ最適化によって間接的に所望の最適解を導出する。

本アプローチでは、元の最適化問題を直接的に解くのではなく、間接的に解くことに焦点を当てている。これを実現するために、擬似的なトポロジー最適化問題を導入し、それを「解候補の自動生成器」と捉え、そこから得られる大量の計算結果をもとにしたデータ駆動型最適設計の確立を目指している。なお、各解候補生成は完全に独立して計算可能であることから、容易に並列計算が可能であることを付記しておく。

本研究では、このデータ駆動型トポロジー最適化をRFBの最適設計問題へ展開した。なお、3章で示した通り、直接的にRFBの流動場を対象としたトポロジー最適化を実施することは可能である。しかしながら、図4の結果を得るためには様々な近似処理を



(a)低フィデリティ最適化



(b)高フィデリティ最適化

図6 RFBを対象としたデータ駆動型トポロジー最適化

介在させる必要があり、式(14)の定式化についても、多峰性の問題から直接的に充放電性能に関する評価指標を用いることができないことは既に述べた通りである。そこで、本研究ではもう一つの研究テーマとして、データ駆動型のアプローチによって有望な設計解が得られるか検証した。なお、現状は図4で得られた従来のアプローチで得られた結果との比較はまだ実施できておらず、高フィデリティ最適化においては、高精度の電気化学反応モデルの実装には至っていない。詳細は文献^[2,3]に譲るとして、ここではこれまでで得られた結果をまとめておく。

問題設定については、低フィデリティ最適化として二次元のRFBを対象としたトポロジー最適化問題において、レイノルズ数と物質輸送係数に関するパラメータを設計パラメータとして、解候補を網羅的に生成した。そして、それらの解候補を3次元方向に押し出した上で、3次元の解析モデルによって性能を評価し、有望な設計解を導出した。低フィデリティ最適化で構築したデータベースと最終的に得られた最

適化結果を図6に示す。

図6からわかるように、得られた最適化結果は楕歯型流路構造であり、これは図4の結果と同様である。これはもともと用意した低フィデリティ最適化で得られた結果が楕歯型のみであるため当然の結果であるが、単純な楕歯型流路構造と比較しておよそ20%の性能向上に成功した。今後はより詳細な電気化学反応モデルを組み込むと共に、低フィデリティ最適化モデルの選定方法の確立および多目的最適化への展開を検討する。

5. まとめ

本研究ではRFBの流動場を対象としたトポロジー最適化を構築し、数値計算例によってその有効性を検証した。さらに、データ駆動型アプローチの開発にも着手し、RFBの最適設計に展開可能である見込みを得た。本研究で得られた成果は、RFBの抜本的性能向上に寄与するものと考えている。今後はデータ駆動型アプローチの確立に向けた研究に注力していく予定である。

発表論文

- [1] Chen C., Yaji K., Yamasaki S., Tsushima S., Fujita K. "Computational design of flow fields for vanadium redox flow batteries via topology optimization" *Journal of Energy Storage*, Vol. 26, p. 100990, 2019.
- [2] Yaji K., Yamasaki S., Tsushima S., Fujita K. "A framework of multi-fidelity topology design and its application to optimum design of flow fields in battery systems" *Proceeding of the ASME Design Engineering Technical Conference*, No. IDETC2019-97675, Anaheim, August 2019.
- [3] 矢地謙太郎, 山崎慎太郎, 藤田喜久雄. "流動場設計を目的としたマルチフィデリティトポロジー最適化" 第24回計算工学講演会, No. A-13-01, 埼玉, 2019年5月.

参考文献

- (1) Chu S., Majumdar A. "Opportunities and challenges for a sustainable energy future" *Nature*, Vol. 488, No. 7411, p. 294, 2012.
- (2) Dunn B., Kamath H., Tarascon J.M. "Electrical energy storage for the grid: abattery of choices" *Science*, Vol. 334, No. 6058, pp. 928-935, 2011.
- (3) Xu Q., Zhao T., Leung P. "Numerical investigations of

- flow field designs for vanadium redox flow batteries” *Applied Energy*, Vol.105, pp.47-56, 2013.
- (4) You D., Zhang H., Xhen J. “A simple model for the vanadium redox battery” *Electrochimica Acta*, Vol.54, No.27, pp.6827-6836, 2009.
- (5) Bendsoe M.P., Sigmund O. “Topology optimization: theory, methods, and applications” Springer, 2003.
- (6) Lazarov B.S., Sigmund O. “Filters in topology optimization based on Helmholtz-type differential equations” *International Journal of Numerical Methods in Engineering*, Vol.86, No.6 pp.765-781, 2010.
- (7) Wang F., Lazarov B.S., Sigmund O. “On projection methods, convergence and robust formulations in topology optimization” *Structural and Multidisciplinary Optimization*, Vol.43, pp.767-784, 2011.
- (8) Borrvall T., Petersson J. “Topology optimization of fluids in Stokes flow” *International Journal of Numerical Methods in Fluids*, Vol.41, pp.77-107, 2003.
- (9) Yamasaki S., Yaji K., Fujita K. “Knowledge discovery in database for determining formulation in topology optimization” *Structural and Multidisciplinary Optimization*, Vol.59, pp.595-611, 2019.
- (10) Sato Y., Yaji K., Izui K., Yamada T., Nishiwaki S. “An optimum design method for a thermal-fluid device incorporating multiobjective topology optimization with an adaptive weighting scheme” *Journal of Mechanical Design*, Vol.140, No.3, p.031402, 2018.