



|              |  |
|--------------|--|
| Title        | Tailored Electrode Structure Design for Enhanced Electrochemical Energy Devices: Topological Optimization of Macro- and Pore-Scale Models with Theoretical Insights from Non-Equilibrium Thermodynamics Based on Entropy Generation Analysis |
| Author(s)    | Alizadehkolagar, Seyedmehrzed  |
| Citation     | 大阪大学, 2025, 博士論文   |
| Version Type | VoR  |
| URL          | <a href="https://doi.org/10.18910/101638">https://doi.org/10.18910/101638</a>  |
| rights       |  |
| Note         |  |

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

### Abstract of Thesis

Name ( ALIZADEHKOLAGAR SEYEDMEHRZAD )

Title

Tailored Electrode Structure Design for Enhanced Electrochemical Energy Devices: Topological Optimization of Macro- and Pore-Scale Models with Theoretical Insights from Non-Equilibrium Thermodynamics Based on Entropy Generation Analysis  
 (電気化学エネルギーデバイスの高性能化に向けた電極構造設計 : エントロピー生成解析を用いた非平衡熱力学的検討とマクロおよび細孔スケールのトポロジー最適化)

#### Abstract of Thesis

Efforts are underway to improve the performance and efficiency of electrochemical devices like fuel cells and batteries, which share porous electrodes as a key component. The structure of these electrodes significantly affects their performance, cost, and durability, making it crucial to control their porosity. Inside, complex interactions between solid, liquid, and gas phases enable transport and reactions of molecules, electrons, ions, and heat. Computer-aided design, tied closely with mathematical modeling and optimization, plays a central role in optimizing these electrode structures for better performance.

A strong theoretical foundation is essential for understanding the physical principles behind these optimizations. Without it, the mechanisms driving performance improvements may remain unclear. Entropy generation analysis, based on non-equilibrium thermodynamics, helps quantify system inefficiencies, guiding design changes to reduce energy loss and improve efficiency. Integrating entropy generation into optimization offers insights into the trade-offs between performance metrics, supporting the creation of more efficient designs.

Chapter 2 begins by optimizing porosity in a two-dimensional reaction-diffusion system to improve reaction rates using topological optimization (TO). Chapter 3 extends this to electrochemical systems, optimizing material distribution to enhance electrode performance, using the Butler-Volmer equation for nonlinear kinetics and comparing two optimization strategies. An entropy generation model further highlights system inefficiencies.

Chapter 4 develops a two-phase flow model for a polymer electrolyte membrane fuel cell (PEMFC), optimizing its catalyst layer (CL) to boost output current density and improve oxygen delivery. Chapter 5 introduces a pore-level optimization framework that combines pore network modeling (PNM) with metaheuristic algorithms to optimize porous reactor designs, enhancing reaction rates and efficiency.

Ultimately, the objective of this thesis is to develop innovative design methodologies that enhance the structural configurations of electrodes and porous media in reactive-transport systems. By advancing the understanding of material distributions and transport phenomena, this thesis seeks to contribute to the development of more efficient, sustainable, and cost-effective electrochemical energy conversion technologies.

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

| 氏名 ( ALIZADEHKOLAGAR SEYEDMEHRZAD ) |       |       |
|-------------------------------------|-------|-------|
|                                     | (職)   | 氏名    |
| 論文審査担当者                             | 主査 教授 | 津島 将司 |
|                                     | 副査 教授 | 赤松 史光 |
|                                     | 副査 教授 | 芝原 正彦 |

## 論文審査の結果の要旨

近年、燃料電池や二次電池などの性能を向上させるための研究開発が進められている。これらの電気化学エネルギー変換デバイスにおいては多孔質構造を有する電極が用いられており、反応生成物ならびに熱と電荷の輸送を伴う電気化学反応輸送場である多孔質電極の構造が電池内部で発生するエネルギー損失の低減のために重要である。そのため電池性能を最大化する多孔質電極の構造を明らかにすることが求められているが、個別の電池系においては、反応生成物ならびに熱と電荷の輸送係数に加えて反応速度も異なることから、多孔質電極について最適化された構造は明らかではなく、電気化学エネルギー変換デバイスとして設計する手法は確立されていない。本論文において申請者は、電気化学エネルギー変換デバイスの高性能化に向けた多孔質電極構造の最適化手法を開発し、導出された電気化学反応場のエントロピー生成解析にもとづいた多孔質電極構造の設計指針を提示している。

第1章では、多孔質電極のモデリングならびにトポロジー最適化を用いた従来の手法についてまとめ、本論文においてトポロジー最適化を用いた多孔質電極の構造設計手法を開発し、マクロスケールに加えて細孔スケールについても考察を行うことの意義を述べている。さらに、最適化された電極構造の特徴を明らかにするために、非平衡熱力学にもとづくエントロピー生成解析を実施することの意義について述べている。

第2章では、多孔質反応輸送場として2成分反応拡散系に着目し、反応率を最大化する空隙率分布をトポロジー最適化により導出し、系内の不可逆損失の指標となるエントロピー生成の空間分布を解析する手法を構築している。構造最適化の過程において系全体のエントロピー生成が減少すること、ならびに、局所エントロピー生成の空間分布が均一化することを明らかにしている。

第3章では、多孔質反応輸送場を電気化学反応拡散系に拡張し、電気化学反応ならびに電荷輸送を伴うエントロピー生成解析手法を構築している。固相、電解質、空隙の空間占有率分布について、反応率最大化と過電圧最小化という異なる評価指標のもとでの最適化構造の比較を行い、いずれにおいても最適化の進行に伴い反応率当たりのエントロピー生成が減少し、系内でエントロピー生成が均一化することを明らかにしている。

第4章では、本論文で開発した最適化手法を固体高分子形燃料電池の多孔質電極である触媒層に適用している。電極内の凝集体構造を考慮した固体高分子形燃料電池の気液二相流モデルを開発した上で、セル電圧を最大化する白金担持カーボン、高分子アイオノマー、空隙の空間占有率分布を提示している。電池内部の流路とリブの空間配置に応じて

最適化された材料分布を形成することでセル性能を向上できることを示している。

第5章では、流動型電気化学エネルギー変換デバイスに用いられる多孔質電極を想定して対流および拡散による物質輸送と化学反応を伴う多孔質反応輸送場について、空間解像度を向上した細孔スケールにおいて構造最適化する手法を構築している。流動損失低減と反応率増大を指向したポアネットワークモデルと遺伝的アルゴリズムを統合した最適化手法を開発し、許容する流動損失に応じて多孔質反応輸送場を構成する細孔径分布ならびに空間分布が異なることを明らかにしている。

第6章では、本論文の成果を総括するとともに、今後の課題についてまとめている。

以上のように、本論文は電気化学エネルギー変換デバイスの高性能化に向けた多孔質電極構造の最適化手法を開発し、導出された電気化学反応場のエントロピー生成解析にもとづいた多孔質電極構造の設計指針を提示しており、より効率的な電気化学エネルギー変換技術の開発に貢献することが期待できる。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。