表面燃焼バーナの燃焼ガスを用いた SOFC 直接加熱方式の開発

野家 明彦,* 藤村 秀和, 高橋 心, 小林 成嘉, 床井 博見

株式会社日立製作所日立研究所 (〒319-1292 日立市大みか町七丁目 1-1)

Development of Direct Heating Method of SOFC Using Combustion Gases of Surface Combustion Burner

Akihiko NOIE,* Hidekazu FUJIMURA, Shin TAKAHASHI,
Nariyoshi KOBAYASHI, and Hiromi TOKOI

Hitachi, Ltd. Hitachi Research Laboratory (1-1, Omika-cho 7-chome, Hitachi-shi, Ibaraki 319-1292, Japan)

* Corresponding author: akihiko.noie.fz@hitachi.com

ABSTRACT

For practical use of the Solid Oxide Fuel Cell (SOFC) cogeneration system, we suggested the direct heating method of SOFC module which could balance the cell performance and the soundness of the cell. From heat flux motion analysis of the equivalence ratio distribution on the burner, the best possible burner for direct heating was assumed to be the surface combustion burner which had many cluster nozzles in order to prevent the back fire and a rectification plate in an air header. The distribution of equivalent ratio ϕ at the non-combustion of the surface combustion anode burner was $1.09 \leq \phi \leq 1.25$. The residual oxygen concentration in combustion gases was less than 100 ppm, and the soot did not occur. The mean open circuit voltage of the bundle of the 10 kW class SOFC module was 5.45 V within $\pm 0.7\%$ precision, when the mean central temperature of the bundle was 665.5°C. The difference of the cell temperatures in the axial direction was controlled at less than 66°C and the difference between the temperatures inside and outside of the cells was controlled at less than 4°C. As a result a cell was able to reduce thermal stress and to maintain soundness. We demonstrated the validity of the direct heating method of SOFC module with the combustion gases of the burner.

© The Electrochemical Society of Japan, All rights reserved.

Keywords : SOFC, Fuel Cell Module, Surface Combustion Burner, Direct-heating

1. 緒言

固体酸化物形燃料電池 (SOFC : Solid Oxide Fuel Cell) は他の燃料電池に比べて発電効率がよく、CO₂ 排出量削減効果大きい。さらに、SOFC は 600–1000°C の高温で運転するため、電池反応や燃料の改質反応に貴金属触媒が不要で、内部改質も可能となり、電池構造の簡素化が図れ、コスト低減が期待できる。SOFC の排熱は 400–500°C と高温であり、コージェネレーションシステムの構築に適している。

上記の利点を生かした SOFC コージェネレーションシステムの実用化を目指し、筆者らはサーマルサイクル性およびガスシール性に優れた円筒縦縞型セルを用いた SOFC 発電モジュールの開発を進めている。開発中の 10kW 級 SOFC モジュールの概要を Fig. 1 に示す¹。10kW 級 SOFC モジュールは各々 180 本の円筒セルからなるサブモジュール A とサブモジュール B に分かれる。サブモジュールはアノード室とカソード室および発電室から構成される。発電室の寸法は 400 mmW × 270 mmD × 660 mmH である。

10kW 級 SOFC モジュールの昇温では、セルの発電性能を最大限に引き出し、かつ、セルの健全性を確保するため、上記 2 つの発電室内に設置された 360 本のセルを発電開始温度まで均等に昇温できる加熱方式を開発することが必須である。

Figure 1. Schematic view of 10kW class SOFC module.

発電室内に収められた SOFC セルは、従来、ヒータあるいはバーナの間接加熱により発電開始温度の約 650°C まで加熱され、その後、セルの加熱を停止し、発電によるジュール発熱で定格発電温度の約 900°C まで昇温していた。

しかし、SOFC モジュールの間接加熱では、バーナからの熱を熱交換してモジュールに送るため熱交換器と高温配管が必要となり構造が複雑化し、かつ熱交換器および高温配管からの放熱により熱ロスが大きくなるという問題点があった。

そこで、筆者らは間接加熱方式での問題点を解決するため、バーナの燃焼ガスで直接セルを加熱する方式を採用することにした。直接加熱方式では、熱交換用の機器や配管が不要となり、間接加熱方式と比べてモジュール構造を簡素化できる。簡素化により放熱や熱容量を小さくして熱エネルギーロスを少なくできる。

バーナの燃焼ガスによるセルの直接加熱については、円盤状の小径ペレットセルをアノード側からバーナの燃焼ガスで直接加熱した例が報告されており²、セル昇温に対する有効性が示されている。

しかし、直接加熱方式で実用レベルの大型モジュールを安全に発電温度まで昇温するためには、温度分布、燃焼ガス組成、煤発生の問題点を解決する必要がある。

本報告では SOFC セルの健全性を維持し、かつ発電性能を最大限に発揮できる SOFC 直接加熱方式をモジュールの昇温に適用するため、上記問題点を解決できる新規バーナ構造を提案し、バーナ基礎試験と SOFC モジュール昇温試験で妥当性を実証する。

以下、直接加熱方式を円筒型 SOFC に適用した場合について記述するが、本加熱方式は扁平円筒型 SOFC³にも適用できる。

2. SOFC モジュール昇温方法の検討

2.1 円筒縦縞型セル

モジュールには TOTO 製の円筒縦縞型セル (DIA 16.5 mm × 660 mmL) を用いた。円筒セルの構造を Fig. 2 に示す。セルはカソード支持構造であり、材質はカソードが (La,Sr)MnO₃ (LSM と略記)、カソードの外側にスカンジウム安定化ジルコニア (ScSZ) の固体電解質、さらにその外側のアノードは Ni/イットリウム安定化ジルコニア (YSZ) サーメットで構成されている。カソードと固体電解質の間には LSM/ScSZ、アノードと固体電解質の間には Ni/ScSZ の中間層を設けている。

円筒セルの運転では、セルを発電温度まで昇温した後、アノード側には燃料ガスとして加湿 CH₄ (水蒸気炭素比

S/C = 3)、カソード側には空気導入管を介して空気を供給して発電する。

2.2 セル加熱方式

2.2.1 直接加熱方式の問題点

直接加熱方式による円筒縦縞型セルの昇温では、Fig. 2 に示すように円筒縦縞型セルのアノード側をアノードバーナの燃焼ガスで、カソード側をカソードバーナの燃焼ガスで直接加熱する。バーナの燃料には CH₄ を用いる。直接加熱方式には、以下の問題点がある。

① 熱応力：軸方向に長尺な円筒縦縞型セルを、アノードバーナでセルのアノード側から一方的に加熱した場合、あるいはカソードバーナでセルのカソード側から一方的に加熱した場合には、セルの軸方向および内側と外側の間には大きな温度差が生じると考えられる。セルの主要な構造材料はセラミックスであるため、セルの軸方向および内外の温度差により熱応力が発生し、セルが破損する確率が高くなる⁴。

② 燃焼ガス組成：直接加熱方式では、セルがバーナの燃焼ガスに直接晒される。アノード材料は酸素濃度が所定値以上になると酸化反応が進行する。同様に、カソード材料は酸素濃度が低いと分解反応が起こり、共にセルが劣化し健全性が維持できなくなる。

③ 煤：バーナに供給する予混合気に含まれる燃料の割合が過剰になると、不完全燃焼状態となり煤が発生する。煤がセルに付着した場合には短絡や電気絶縁不良を起こし、燃料供給配管内部に付着した場合には配管が閉塞し、正常な発電ができなくなる。

2.2.2 直接加熱方式の提案

直接加熱方式における上記 3 つの問題点の解決策を検討し、SOFC セルおよびモジュールの昇温に適した新たな直接加熱方式を提案する。

① 熱応力：円筒セルの軸方向および内側と外側の温度差を小さくして熱応力を緩和するため、セルをアノード側とカソード側に設けた加熱用バーナで同時に内外から直接加熱することにした。10 kW 級モジュールを 1000 台 (1 万 kW 分) 破損なく製作できるようにするため、セルの軸方向および内側と外側の温度差は以下の範囲とした。

- ・セルの軸方向温度差：80℃ 以内⁴
- ・セルの内側と外側の温度差：10℃ 以内

② 燃焼ガス組成：バーナの燃焼ガス組成はセル劣化防止の観点から、アノードでは還元雰囲気、カソードでは酸化雰囲気に維持する必要がある。バーナの燃焼ガス組成を維持するには、バーナに供給する予混合気の当量比を所定範囲内に調整しなければならない。当量比 ϕ の定義を以下に示す。

$$\text{当量比 } \phi = \frac{\text{CH}_4 \text{ の完全燃焼に必要な理論空気量}}{\text{バーナに供給した実際の空気量}}$$

当量比 1 の条件では、CH₄ を完全燃焼させるのに必要な空気量 (理論空気量) がバーナに供給され、燃焼ガス中の酸素濃度の理論値は 0% となる。当量比が 1 未満の場合には、理論空気量より多い空気がバーナに供給され、酸素過剰となる。当量比が 1 より大きくなると、バーナに供給される空気が理論空気量よりも少なくなり、酸素不足の状態となる。

Figure 2. Cross sectional view of SOFC.

③ 煤：不完全燃焼による煤発生を防止するため、アノードバーナに供給する予混合気の当量比は煤が発生する下限値 1.67 未満である必要がある⁵。

② 燃焼ガス組成と ③ 煤の観点から、バーナの当量比を決定した。

a) アノードバーナの当量比

燃焼ガス中の残存酸素濃度の目標値は、円筒縦縞型セルのアノードを構成する Ni が酸化することにより体積膨張して、アノードに亀裂が発生したり、固体電解質からアノードが剥離する現象が顕著となる 800 ppm 以下とした。

アノードバーナの当量比の下限値は、上記目標値を達成するため、酸素濃度が 0% となる 1 とした。当量比の上限値は煤の発生下限との裕度をみて 1.4 とした。

- ・ アノードバーナの当量比 ϕ : $1.0 \leq \phi \leq 1.4$

b) カソードバーナの当量比

円筒セルのカソードの劣化は燃焼ガス中の酸素濃度が低くなると顕著となる。カソードバーナの当量比の上限値は、当量比が小さくなると酸素濃度が高くなり、カソードの劣化防止により有効であることから 0.8 とした。

一方、当量比の下限値は、値を小さくしすぎると空気の割合が過剰となりバーナの燃焼温度が低下して失火する恐れがあるため 0.3 とした。

- ・ カソードバーナの当量比 ϕ : $0.3 \leq \phi \leq 0.8$

アノードバーナおよびカソードバーナの当量比を満足できるバーナの構造を検討した。

2.3 加熱用バーナ構造の提案

2.3.1 バーナの概要

2.2.2 で提案した直接加熱方式のバーナ案を実現するため、SOFC モジュールの加熱に適した新規バーナ構造を検討した。Figure 3 にアノードバーナの構造を示す。バーナの特徴を以下に示す。

(1) バーナの特徴

① 燃焼方式

10 kW 級 SOFC モジュールの昇温では、2 つのサブモジュールの水平総断面積 2160 cm^2 を 1 つのバーナで均一に加熱する必要がある。バーナの燃焼方式には、バーナ材の表面全体で燃焼し、2 つのサブモジュールの広い断面を均一加熱できる表面燃焼方式⁶を用いた。バーナの最大燃焼負荷量は、燃焼熱によるバーナ部材の熱劣化を抑制するため 22.7 W/cm^2 とした。バーナの最大熱量は、セルを発電温度まで昇温し、かつ、定格発電時のモジュールへの投入熱量以下とするため 6.63 kW とした。バーナの燃焼面積は、最大燃焼負荷量と最大熱量から 292 cm^2 とした。

② 予混合部

バーナを均一かつ安全に燃焼させるためには、予混合気を完全混合させると共に逆火を防止する必要がある。上記目的を達成するため、バーナ材の上流には多数の同軸噴流ノズル（クラスタノズル）⁷を設けた。クラスタノズルは Fig. 3 に示すように同心軸上に配置された燃料ノズルと空気ノズルから構成される。クラスタノズルの概要を以下に示す。

a) 均一混合：燃料ノズルと空気ノズルに別々に所定量の燃料および空気を供給することで燃料と空気を一定割合で混合し、予混合気の当量比を所定範囲内に調整できる。

Figure 3. Schematic view of surface combustion anode burner.

b) 逆火防止：燃料と空気を別々に供給しノズル出口で混合させるので、バーナ材や予混合部の過熱により仮に逆火が発生した場合にも、ノズル出口より上流では燃焼は起きないので、バーナ燃焼時の安全性を向上できる。

表面燃焼バーナのバーナ材の概要と流量条件を以下に示す。

(2) 表面燃焼バーナ材

アノードバーナ材とカソードバーナ材の特徴を以下に示す。

① アノードバーナ材：アノードバーナは CH_4 の理論燃焼温度が最高となる当量比 1.0 を含む当量比範囲で燃焼させるためバーナ材表面の最高温度は 1000°C 以上となる。アノードバーナ材にはバーナ材表面温度を考慮し、耐熱温度が 1200°C のセラミック多孔質体を選定した。

セラミック多孔質体の気孔率は、小さすぎると予混合気がバーナ材を通過する際の圧力損失が大きくなり流量が低下して発電温度まで昇温できなくなり、大きすぎると耐熱強度が低下するため平均 75% の気孔率とした。気孔率のばらつきが大きいとバーナ材の燃焼面での燃焼状

態が不均一となるため、気孔率の絶対値のばらつきは $\pm 5\%$ 以内（気孔率は70–80%）とした。

アノードバーナではバーナ材表面温度が 1000°C 以上の高温となるため、バーナの燃焼面における燃焼速度が予混合気の噴出速度（流速）を上回る場合に発生する逆火が起こり易い⁸。

そこで、逆火を防止するため、アノードバーナ材を3段積層し、バーナ燃焼面から上流のバーナ材への熱伝導による伝熱を抑制した。

② カソードバーナ材：カソードバーナは当量比が $0.3 \leq \phi \leq 0.8$ の範囲であり、バーナ材表面の最高温度は 1000°C 未満となる。カソードバーナはFig. 2に示すように円筒セルの上部に設置するため、燃焼面は下向きとなる。他はアノードバーナと同様の構造とした。

以上を考慮し、カソードのバーナ材には燃焼時にバーナ材の割れおよび落下がないように耐熱温度 1050°C の金属繊維を用いることにした。

(3) 流量

① CH_4 流量：バーナに供給する CH_4 の流量は、着火によるセルへの熱衝撃の緩和と失火を防止して、バーナ燃焼面における燃焼状態を均一に維持するため最低値を 4NL/min （燃焼負荷量： 9.1W/cm^2 ）、セルを発電開始温度の 650°C 付近まで昇温するのに必要な燃焼量を確保し、かつ定格発電時の燃料流量以下とするため最大値を 10NL/min （燃焼負荷量： 22.7W/cm^2 ）とした。

② 冷却 N_2 流量：アノードバーナでは、バーナ材の過熱による逆火の発生を防止するため、バーナに供給する空気に冷却 N_2 を添加した。冷却 N_2 流量の範囲をバーナの予備燃焼試験結果に基づいて決定した。 N_2 最小流量は、 CH_4 流量 4NL/min の時、 10NL/min 、 CH_4 流量 10NL/min では 20NL/min を選定した。同様に N_2 最大流量は、 CH_4 流量 4NL/min の時、 32NL/min 、 CH_4 流量 10NL/min では 70NL/min とした。

2.3.2 バーナ構造の提案

表面燃焼バーナの特徴を生かし、かつ、熱応力、燃焼ガス組成、煤の問題を解決するためには、燃料ノズルからの燃料噴出流量と空気ノズルからの空気噴出流量の各ノズル出口面での一様化（流量分布一様化）および燃料と空気の混合促進が必須である。

上記2点を実現できるバーナ構造を検討した。

① 流量分布一様化：表面燃焼バーナでは広い面積を均一に加熱するためクラスタノズル数を112個とし、燃料ノズルは内径 1.9mm で長さ 34mm 、空気ノズルは内径 6mm で長さ 4mm とした。ノズル部分における圧力損失は、内径が小さくて長い燃料ノズルの方が空気ノズルに比べて大きくなる。燃料ノズルには $4\text{--}10\text{NL/min}$ の燃料が、空気ノズルには燃料流量と当量比によって決まる所定量の空気が供給される。

燃料ノズルにおける燃料噴出量の水平面分布は、燃料ノズルの圧力損失が大きいため一様化しやすい。

一方、空気ノズルにおける空気噴出量の水平面分布は、空気ノズルの圧力損失が小さく、一様化しにくい。

ノズルからの空気噴出量の水平面分布一様化を図るため、空気ヘッダの入口に整流板を設置する。

② 混合促進：燃料ノズルと空気ノズルから噴出した燃料と空気は共に所定流量で、クラスタノズルが112個で

あることから低流速となり、予混合気は完全混合せず燃料濃度の高い領域が残る。燃料と空気の混合を促進するため、クラスタノズルの出口にパンチングプレートを設置する。

以上の2つの提案により、バーナに必要な当量比分布が得られるかを評価するためバーナの熱流動解析を実施した。

3. バーナの熱流動解析と評価

提案した表面燃焼バーナの構造案による流量分布一様化と混合促進の効果を評価するため、クラスタノズル入口平面での静圧分布と燃焼面の当量比分布の熱流動解析を実施した。

(1) 静圧分布

アノードバーナのクラスタノズル入口平面における燃料と空気の静圧分布を熱流動解析で評価した。整流板とパンチングボードの設置場所および解析面の位置をFig. 3に示す。解析領域はバーナの構造が中心線に対して左右対称であることから、中心線から片方の端部までとした。解析条件は CH_4 流量を最大値の 10NL/min 、当量比 ϕ は理論燃焼温度が最高となる1に近く、セルを効率良く加熱できる1.1とした。空気流量は 86.5NL/min 、冷却 N_2 流量は空気との総流量が少なく流量分布がばらつきやすくなる 20NL/min とした。静圧分布の解析結果をFig. 4に示す。空気の静圧分布は空気ノズル内が $19.0\text{--}19.1\text{Pa}$ 、燃料ノズル内が $18.9\text{--}19.0\text{Pa}$ となり、共に圧力分布が $\pm 1\%$ 以内で一様となった。圧力分布に起因する空気ノズルからの空気の噴出量の分布も均一にできる見通しが得られた。

(2) 当量比分布

次に各ノズルから一様に噴出した空気と燃料が供給されるバーナ材の燃焼面（予混合気噴出面）における非燃焼状態での当量比分布を解析で評価した。

① アノードバーナ：アノードバーナにおける当量比分布をFig. 4の解析条件と同一の CH_4 流量 10NL/min 、当量比 $\phi 1.1$ 、空気流量 86.5NL/min 、冷却 N_2 流量 20NL/min で解析した。予混合気温度が 150°C の場合の解析結果をFig. 5に示す。当量比は、各クラスタノズルから噴出した予混合気は完全には均一混合されず一部1.2を超える領域が存在したが、解析した全領域で $1.0 \leq \phi \leq 1.25$ の範囲となり、セルのアノード劣化および煤発生を防止できる当量比分布が得られる見通しを得た。

アノードバーナの熱流動解析結果に基づき、開発目標である当量比分布 $1.0 \leq \phi \leq 1.4$ を達成するため、アノー

Figure 4. (Color online) Simulated results of pressure distribution in cluster nozzle entrance plane. Gas flow rate: CH_4 10NL/min , Air 86.5NL/min , N_2 20NL/min . Equivalence ratio: 1.1.

Figure 5. (Color online) Simulated results of equivalence ratio distribution in anode burner combustion plane. Gas flow rate: CH₄ 10 NL/min, Air 86.5 NL/min, N₂ 20 NL/min. Equivalence ratio: 1.1.

Figure 6. (Color online) Simulated results of equivalence ratio distribution in cathode burner combustion plane. Gas flow rate: CH₄ 9 NL/min, Air 131.8 NL/min. Equivalence ratio: 0.65.

ドバーナには空気ヘッダに整流板，クラスタノズル平面から高さ 20 mm の位置にパンチングプレート进行を設けることにし，バーナに供給する予混合気の当量比は 1.1 とすることにした。

② カソードバーナ：カソードバーナの当量比分布を $0.3 \leq \phi \leq 0.8$ の範囲で一様にするために，アノードバーナと同様に空気ヘッダ入口に整流板を設置することにした。

カソードバーナの燃焼面（予混合気噴出面）における非燃焼状態での当量比分布を解析で評価した。解析条件は CH₄ 流量が最大値の 9 NL/min，当量比は燃焼ガス温度を高くできる 0.65，空気流量は 131.8 NL/min とした。予混合気温度が 150°C の場合の解析結果を Fig. 6 に示す。

当量比の解析値は全領域で $0.45 \leq \phi \leq 0.75$ の範囲となり，カソードバーナの開発目標である $0.3 \leq \phi \leq 0.8$ を達成できる見通しが得られた。カソードバーナの熱流動解析結果より，カソードバーナの空気ヘッダ入口に整流板を設けると共に，バーナに供給する予混合気の当量比を 0.65 とすることにした。

以上の熱流動解析に基づいて決定したバーナ構造と当量比が，燃焼ガス組成および煤発生防止の開発目標を満足できるかを評価するため，バーナを試作し基礎試験を実施した。

4. バーナ特性評価試験結果と考察

4.1 バーナ基礎試験

4.1.1 非燃焼時の特性

空気ノズルと燃料ノズルから噴出した空気と燃料が予混合された後の非燃焼条件における当量比分布をアノードバーナ材の燃焼面で測定した。測定位置を Fig. 3 に示す。試験には CH₄ の代わりに安全性が高く，かつ空気中の含

Figure 7. (Color online) Experimental results of equivalence ratio distribution in anode burner. Gas flow rate: CO₂ 10 NL/min, Air 86.5 NL/min. Equivalence ratio: 1.1.

有割合が微小で当量比の評価に殆ど影響を与えない CO₂ を用いた。当量比 ϕ は熱流動解析結果に基づき 1.1 とした。アノードバーナ燃焼時の CH₄ 最大流量に相当する CO₂ 流量 10 NL/min，空気流量 86.5 NL/min の条件における当量比分布を，予混合気中の CO₂ 濃度を質量分析計で分析して求めた。結果を Fig. 7 に示す。バーナの当量比分布は $1.09 \leq \phi \leq 1.25$ となり，熱流動解析における当量比分布 $1.0 \leq \phi \leq 1.25$ の範囲内であった。

以上により，バーナの非燃焼条件における当量比分布を，バーナの熱流動解析と非燃焼試験で確認できたので，次に燃焼特性を評価する。

4.1.2 燃焼時の特性

① 燃焼ガス組成：アノードバーナを燃焼させ燃焼ガス組成を評価した。試験条件は CH₄ 流量 4 NL/min，当量比 Φ が非燃焼時と同一の 1.1，空気流量 34.6 NL/min，冷却 N₂ 流量 10 NL/min の場合と，CH₄ 流量 10 NL/min，当量比 Φ 1.1，空気流量 86.5 NL/min，冷却 N₂ 流量 30 NL/min の場合の 2 通りとした。燃焼ガス中の酸素濃度をガスクロマトグラフィー（ガスクロ）で分析して求めた。結果を Table 1 に示す。燃焼ガス中の残存酸素濃度は 0°，中央，180° の 3 箇所いずれもガスクロの酸素濃度検出下限である 100 ppm 以下となり，目標値の 800 ppm 未満を達成した。

② 煤：アノードバーナの燃焼条件を CH₄ 流量 4 NL/min，当量比 Φ 1.1，空気流量 34.6 NL/min，冷却 N₂ 流量 10 NL/min とし，煤発生の有無を確認した。燃焼ガスを 0°，中央，180° の 3 箇所綿織維製フィルタを用いて，スモークテスターで吸引した結果を Fig. 8 に示す。さらに，サンプリングラインを設け，ガラス繊維フィルタを装着し，燃焼ガスを吸引後，EDX により元素分析したが，炭素成分は検出されなかった。

以上，アノードバーナ基礎試験により非燃焼時および燃焼時の特性が開発目標を達成できることを確認した。

次に，バーナ燃焼ガスで SOFC モジュールを直接加熱する方式の妥当性を実証するため，試作バーナを 10 kW 級 SOFC モジュールに内蔵し，モジュールを昇温した。

Table 1. Experimental results of oxygen concentration distribution in anode burner combustion gas. Equivalence ratio: 1.1.

CH ₄ (NL/min)	Oxygen Concentration (ppm)		
	0°	center	180°
4	<100	<100	100
10	<100	<100	<100

Figure 8. (Color online) Soot of anode burner. Gas flow rate: CH₄ 4 NL/min, Air 34.6 NL/min, N₂ 10 NL/min. Equivalence ratio: 1.1. **Figure 9.** (Color online) Schematic view of 10 kW class SOFC module.

4.2 SOFC モジュール昇温試験

10kW 級 SOFC モジュールの概要を Fig. 9 に示す。また、サブモジュール断面の模式図を Fig. 10 に示す。10kW 級 SOFC モジュールはセルの下部にアノードバーナ、上部にカソードバーナを各 1 台設置し、2 つのサブモジュールを同時に直接加熱できる構造とした。円筒セルは並列 2 列、直列 6 列で電気的に接続したバンドル単位でサブモジュール内に収めた。バンドル番号はサブモジュール A のアノード（負極）から直列に接続したサブモジュール B のカソード（正極）の方向に、電流の流れに沿って順に 1–30 とした。

バーナ燃焼ガスの直接加熱によるモジュール昇温の妥当性を、モジュール昇温時の燃焼ガス特性とセル特性およびセルの温度分布から評価した。

① 燃焼ガス特性：SOFC モジュール昇温時におけるアノードバーナ燃焼ガス中の残存酸素濃度および煤発生の有無を確認するため、モジュール内に設置したサンプリング管を通して昇温中の燃焼ガスを採取した。当量比が

Figure 10. Cross sectional view of 10kW class SOFC module.**Table 2.** (Color online) Oxygen concentration and soot in the 10 kW class SOFC module. Equivalence ratio: 1.1.

CH ₄ (NL/min)	Oxygen concentration (ppm)	Sampling area
4	<100	
9	<100	

共に 1.1 の条件において、CH₄ 流量 4 NL/min、空気流量 34.6 NL/min、冷却 N₂ 流量 10 NL/min の場合と、CH₄ 流量 9 NL/min、空気流量 77.9 NL/min、冷却 N₂ 流量 30 NL/min の場合における結果を Table 2 に示す。

燃焼ガス中の残存酸素濃度は共に分析下限値である 100 ppm 未満であった。

同一条件で煤発生の有無を確認したが、フィルタへの煤付着は認められなかった。

② セル特性：SOFC モジュール昇温時のセル特性として、発電開始直前のバンドル中央温度 (T_{center}) およびバンドル電圧のばらつきを評価するため、開回路電圧を測定した。燃料はアノードバーナの燃焼排ガス中に H₂ を添加した。バンドルの中央温度と電圧の測定位置を Fig. 11 に、結果を Fig. 12 に示す。バンドル中央温度は平均値が 665.5°C、標準偏差は 11.9°C で、ばらつきは ±1.8% 以内であった。各バンドルの開回路電圧は平均値が 5.45 V、標準偏差は 0.04 V、ばらつきは ±0.7% 以内と小さく、ほぼ一様の電圧分布が得られた。

③ 昇温過程の温度分布：SOFC モジュールの昇温時におけるセル軸方向の温度差 ΔT の時間変化を Fig. 13 に示す。発電初期までの昇温期間においてセル軸方向の温度差は最大 66°C となり、目標値の 80°C を下回った。セルの内側と外側の温度差 $\Delta T'$ は最大 4°C で、目標値の 10°C を下回った。バンドルの温度分布評価から、モジュール昇温時にセルに発生する熱応力を低減できることを確認した。

Figure 11. Schematic diagram of bundle voltage and center temperature.

Figure 12. (Color online) Experimental results of bundle voltage and center temperature of cells in 10 kW class SOFC module. The bundle average temperature is 665.5°C. The bundle average voltage is 5.45 V.

Figure 13. (Color online) Experimental results of axial direction difference of temperature (ΔT) in 10 kW class SOFC module cell. The value of ΔT is max.66°C.

SOFC モジュール昇温時における燃焼ガス特性とセル特性および温度分布の結果から、直接加熱方式によりセルの健全性を維持し安全に発電温度まで昇温できることを実証できた。

発電運転後のセルについて、目視による外観検査と加圧漏気試験を実施したが、異常は認められなかった。

5. 結 言

SOFC コージェネレーションシステムの実用化のため、SOFC セルの健全性および発電性能を両立できるセル昇温方式を検討し、以下の結論を得た。

- (1) SOFC モジュールを健全に昇温するため、熱応力、燃焼ガス組成、煤発生を考慮した SOFC セル直接加熱方式を提案した。
- (2) SOFC セル直接加熱に適した新規バーナ構造を、熱流動解析に基づき決定した。
 - ・予混合気の完全混合と逆火防止のために、予混合部にクラスタノズルを使用
 - ・クラスタノズルにおける空気噴出量の水平面分布一様化のため、空気ヘッダに整流板を設置
 - ・広いモジュール断面を均一加熱するため、表面燃焼方式を採用
- (3) セル直接加熱用表面燃焼バーナの燃焼特性を基礎試験で評価した。
 - ・非燃焼時の当量比分布： $1.09 \leq \phi \leq 1.25$
 - ・燃焼ガス中の残存酸素濃度：100 ppm 以下
 - ・煤発生無
- (4) 10 kW 級円筒型 SOFC モジュールを表面燃焼バーナで昇温し、燃焼ガス特性とセル特性およびセルの温度分布を評価した。
 - ① 燃焼ガス特性
 - ・酸素濃度および煤ともに目標達成
 - ② セル特性
 - ・開回路電圧：平均 5.45 V、ばらつき $\pm 0.7\%$ 以内
 - ・中央温度：平均 665.5°C、ばらつき $\pm 1.8\%$ 以内
 - ③ 昇温過程のセル温度分布
 - ・軸方向最大温度差：66°C
 - ・内側と外側の最大温度差：4°C

以上からバーナの燃焼ガスによる SOFC 直接加熱方式で、円筒型 SOFC セルを健全に発電温度まで昇温できることを実証した。

謝 辞

本研究の一部は新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) 殿との共同研究にて実施したものです。関係各位に厚く御礼申し上げます。

文 献

1. K. Takahashi, S. Takahashi, A. Gunji, N. Kobayashi, H. Tokoi, T. Abe, T. Saito, and A. Ueno, *The 48th Battery Symposium in Japan, Abstr.*, p. 598 (2007) [in Japanese].
2. H. Kronemayer, D. Barzan, M. Horiuchi, S. Suganuma, Y. Tokutake, C. Schulz, and W. G. Bessler, *J. Power Sources*, **166**, 120 (2007).
3. S. Takahashi, A. Gunji, A. Noie, K. Takahashi, and H. Tokoi, *The 75th Meeting of the Electrochem. Soc. Jpn., Abstr.*, p. 49 (2008).
4. M. Tsuruki, T. Machida, H. Tokoi, and K. Hiwatashi, *Electrochemistry*, **77**, 229 (2009) [in Japanese].
5. J. C. Street and A. Thomas, *Fuel*, **4** (1955).
6. Y. Itaya, K. Miyoshi, S. Maeda, and M. Hasatani, *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **16**, 56 (1990) [in Japanese].
7. H. Inoue, N. Kobayashi, and T. Koganezawa, *23th CIMAC World Congress*, p. 876 (2001).
8. S. Sogo and S. Yuasa, *J. Combustion Soc.*, **51**, 134 (2009) [in Japanese].