G112

SOFC の高効率化に向けた熱物質輸送・電気化学反応の特性評価 Evaluation of Heat/Mass Transfer and Electrochemical Reaction Characteristics Toward Improved Performance of SOFC

○学 鈴木 雅幸 (東大院) 正 深淵 康二 (東大工)
正 鹿園 直毅 (東大工) 正 笠木 伸英 (東大工)

Masayuki SUZUKI, Koji FUKAGATA, Naoki SHIKAZONO and Nobuhide KASAGI
The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo

The effects of heat and mass transfer on the electrochemical reaction in a flat-tube-type solid oxide fuel cell (SOFC) are investigated numerically to achieve higher cell performance. The result of the simulation shows that fuel is not sufficiently diffused in the porous media, and this fact causes shortage of the fuel near the three-phase-boundary, and also increased activation and concentration overpotentials. When the cell length is shorter, the heat loss at the cell inlet makes the cell temperature level lower, and this results in the increases in both activation overpotential and electrolyte ohmic loss. Improved thermal insulation at the cell inlet keeps the cell temperature homogeneous and higher, and leads to a drastic increase in the cell output voltage.

Key Words: Solid oxide fuel cell, Numerical simulation, Heat and mass transfer, Electrochemical reaction

1. 緒言

固体酸化物燃料電池 (solid oxide fuel cell : SOFC) は、その発電効率の高さから次世代エネルギーシステムの一つとして期待されている。過去の SOFC に関する研究では、主として材料開発に重点が置かれ⁽¹⁾、発電効率やセルの耐久性の向上が図られてきた。一方、SOFC 単セル内部の熱・物質輸送に関する研究も、数値解析を中心に多数報告されている⁽²⁾⁽³⁾⁽⁴⁾。しかし、熱物質輸送の改善による SOFC の高効率化への設計指針は、十分得られていない。

本研究では、数値解析により SOFC 単セル内部の熱物質移動、および電気化学反応の特性を明らかにする。さらに、熱・物質輸送特性のセル形状依存性を評価し、発電効率の向上に向けたセルの設計指針を得ることを目的とする。

2. 解析対象・条件

本研究では、体積あたりの出力密度が高く、ガスシールが容易な中温作動 Flat-tube 型 SOFC を解析対象とした。図 1 に解析に用いたセルモデルを示す。空気と燃料は、互いに並行流でセルに供給されるものとした。単セルはスパン方向に周期的構造を持つ。さらに、セルに供給される気体のレイノルズ数は 10 程度と小さいため、流れの対称性を考慮し、解析領域を周期構造の半周期分とした。セル形状のパラメータとして、気体流れ方向セル長さ l_x と、セル構造支持体のリブ幅 $l_{z,rib}$ を選択した。表 1 に解析で想定したセル作動条件を示す。セル温度に関しては、まず一様条件下 (700 °C) においてセル内部の物質輸送がセル性能に及ぼす影響を調べた。その上で、セル入口温度 600 °C の条件の下、反応熱の輸送により生じるセル内の温度分布が出力電圧に与える影響を評価した。

3. 計算手法

セル内部の熱・物質輸送の支配方程式として、多孔質内流れの連続の式、Navier-Stokes 方程式、エネルギー方程式、および濃度輸送方程式を用いた。流体の物性値は局所の物質濃度、及び温度の関数に依存するものとし、多孔質内部の有効物質拡散係数は Parallel pore model⁽⁵⁾ を用いて求めた。各支配方程式の離散化には有限体積法を導入した。

電気化学反応の計算では、起電力、過電圧、電流およびセル内部抵抗を回路網としてモデル化し、インターコネクタと空気極表面で等電位になるよう、局所の電流密度を求めた。起電力及び活性化分極の計算には Nernst の式、ならびに Butler-Volmer の式を用いた。また、電解質や電極などセル各要素の内部抵抗は、Campanari & Iora⁽³⁾ の解析と同じ値とした。

Fig. 1 Computational model of flat-tube-type SOFC.

Table 1 Cell operating condition.

Gas inlet pressure	Electrolyte average current Density	Air composition (N ₂ : O ₂)	Fuel composition (H ₂ : H ₂ O : CO ₂)	O ₂ , H ₂ utilization rate
1.0 atm	0.5 A/cm ²	4 : 1	8 : 1 : 2	0.3, 0.85

Table 2 Output voltages for different size cells ($T_{cell} = 700$ °C).

	Case 1	Case 2	Case 3	Case 4	Case 5
Length (l_x) [mm]	100	50	150	100	100
Rib width ($l_{z,rib}$) [mm]	1.5	1.5	1.5	0.5	3.5
Output voltage [V]	0.463	0.471	0.460	0.492	0.412

4. 解析結果・考察

4.1 セル内部物質輸送の影響 (セル温度一定条件下)

表 2 にセル形状を変えた場合の出力電圧の変化を示す。x 方向セル長さ l_x を変えた場合、短いセルの方が若干高い出力電圧を示すが、それほど大きな差異は観察されない。これに対し、構造支持体のリブ幅 $l_{z,rib}$ を変えた場合、リブ幅の広いセルで顕著な出力電圧の低下が生じる。

図 2 に y-z 断面内における燃料の速度ベクトル、および水素の濃度分布を示す。また、図 3 に電解質と燃料極の三相界面における水素濃度分布を示す。y-z 断面内では、電気化学反応に伴い二次流れが生じる。しかし、二次流れはセル内部における燃料の x 方向平均速度に比べ、最大でも 1/100 程度と極め

Fig. 2 Fuel velocity vector and H₂ molar fraction contour in the cell (Case 1, y-z plane at x = 50).

Fig. 3 H₂ molar fraction on the three-phase-boundary (Case 1, 5).

て小さい。各 y-z 断面内における物質輸送は移流に比べ分子拡散が支配的であり、二次流れはセル内部の物質輸送にほとんど影響を及ぼさない。一方、分子拡散による物質輸送は、多孔質のセル構造支持体内で阻害され、大きな燃料濃度勾配が生じる。これは、多孔質内部の有効物質拡散係数が流体のみの場合と比べ、1/10 程度まで低下することに起因する。このため、特にリブ幅の広いセルではリブ直上の三相界面への燃料供給、および発生した水蒸気の離脱が不十分であり、活性化分極や濃度分極が増加し、出力電力が低下する。一方、x 方向セル長さ l_x を変えた場合では、多孔質内部の物質輸送に大きな変化はなく、出力電圧はそれほど変化しない。

4.2 セル内部熱輸送の影響

表 2 に示した 5 種類のセル形状のうち、出力電圧の高い Case 1, 2, 4 について、セル内温度分布を考慮した解析を行った。図 4 に、各々のセルの電解質温度分布と出力電圧 V_{cell} を示す。Case 1 と 4 は、互いにほぼ同じ温度分布を示し、出力電圧は物質輸送の促進が図られる Case 4 の方が高い値を示す。これに対し、Case 2 は他の 2 つに比べ、セル最高温度が 100°C 以上低く、出力電圧は Case 4 に比べ 0.1 V 程度低い値を示す。

セルの温度分布は局所の発熱量と、熱伝導・熱伝達によるセル内の熱移動のバランスにより決定される。セル内局所の発熱密度は電流密度に大きく依存し、セル形状を変えてもそれほど変化しない。一方、セルに供給される空気、および燃料流量は、x 方向セル長さに比例する。このため、気体供給量の少ない短いセルでは、セル入口近傍で急峻な温度勾配を示す。また、図 5 に示されるように、セル入口の温度勾配の増加に伴い、短いセルでは熱伝導による入口の放熱量 $Q_{loss,in}$ が総発熱量 Q_{gen} に占める割合が増加し、セル温度は全体的に低くなる。これにより、温度依存性の高い電解質のオーム損失や活性化分極が増加し、出力電圧が低下する。従って、セル入口での放熱量を削減し、セル温度を高く保つことにより発電特性を向上できると考えられる。

一方、構造支持体リブ幅を狭くした場合、熱伝導に大きく寄与する固体部分断面積が減少するため、セル入口の放熱量

Fig. 4 Electrolyte temperature and output voltage (Case 1, 2, 4).

Fig. 5 Heat generation Q_{gen} and cell inlet heat losses $Q_{loss,in}$ for different size cells.

は減少する。しかし、放熱量の変化はセル長さを変えた場合に比べて小さく、全体の温度分布はほとんど変わらない。

以上を踏まえ、セル入口での放熱削減の効果を評価するため、Case 2 のセル入口固体部分を断熱条件とした場合 (Case 2#) の解析を行った。解析の結果、図 4 に示すように Case 2# では Case 2 に比べ、セル全体の温度が均一かつ高温に保たれる。これに伴い、活性化分極や電解質のオーム損失が低減され、出力電圧の飛躍的な向上が実現された。また、全体のセル温度は上昇するが、損失低減により発熱量が減少し、最高温度は Case 2 に比べ 70°C 程度上昇するにとどまった。

以上より、セル入口を断熱しセル温度を均一かつ高温に保つことで、発電特性が改善されると結論付けられる。セル入口を断熱した場合、熱伝導が入口近傍の温度分布に及ぼす影響が大きく、熱伝導を促進することによりセルの発電効率を向上できる⁽⁴⁾。熱伝導の促進には、気体流れ方向セル固体断面積を増やすことが有効であるが、物質輸送の解析結果が示すようにセル内の物質拡散を阻害してしまう。このため、より多くの解析をもとに、熱・物質輸送促進の双方に有効なセル断面形状を決定する必要がある。

5. 結言

体積あたりの出力密度が高く、信頼性の高い Flat-tube 型 SOFC の高効率化に向け、数値解析による熱物質輸送・電気化学反応の特性評価を行い、以下の知見を得た。

- (1) 多孔質セル支持体内部では、有効物質拡散係数が小さくなるため顕著な物質濃度勾配が生じ、燃料濃度の低下に伴い濃度分極や活性化分極が増加する。
- (2) セル温度分布は、入口を断熱し放熱を削減することで均一かつ高温に保たれ、活性化分極や電解質のオーム損失の減少に伴い発電特性が向上する。

参考文献

- (1) 田川, 固体酸化物燃料電池と地球環境, アグネ承風社, 1998.
- (2) Yakabe, H., & Sakurai, T., Solid State Ionics, 174 (2005), 295-302.
- (3) Campanari, S., & Iora, P., J. Power Sources, 132 (2004), 113-126.
- (4) Suzuki, M. et al., Proc. 6th KSME-JSME Therm. Fluids Eng. Conf., (2005).
- (5) 化学工学協会, 化学工学便覧改訂 5 版, 丸善, 1988, 155.