固体酸化物形燃料電池性能に及ぼす燃料ガス流速分布の影響*

神山 雄斗^{*1}, 小林 裕貴^{*1}, 手銭 雄輝^{*1}, 泉 政明^{*2}

Effect of Distribution of Fuel Gas Velocity on Performance of Solid Oxide Fuel Cell

Yuto KOYAMA, Yuki KOBAYASHI, Yuki TESEN and Masaaki IZUMI^{*2}

^{*2} Faculty of Environmental Engineering, The University of Kitakyushu,
1-1 Hibikino, Wakamatsu-ku, Kitakyushu-shi, Fukuoka, 808-0135 Japan

Effect of distribution of fuel gas velocity on performance of SOFC was investigated by experiments and numerical simulations. The fuel gas was supplied to anode-supported cells by two different methods: jet flow and parallel flow, and cell performance was measured at 1000°C as changing H₂ flow rate in each method. In the case of the jet flow, the fuel gas jetted out a blow port and impinged on the fuel electrode surface. On the other hand, in the case of the parallel flow, the fuel gas flowed parallel to the fuel electrode surface. As a result, it was found that the cell-voltage in the case of the parallel flow was greater than that of the jet flow in the higher current density region. And the cell-voltage increased with H₂ flow rate in each case. These differences between the cell-performances were caused by overpotentials related to phenomena in the lower frequency region. Furthermore, the results of the numerical simulation indicated that these differences between the cell-performances had a significant correlation with the electromotive force.

Key Words : Solid Oxide Fuel Cell, Fuel Gas Flow, Velocity Distribution, Over Potential, Electromotive Force

1. 緒 言

地球温暖化やエネルギー資源の枯渇問題などに対する技術的解決手段の一つとして、燃料電池が注目されて久しい。燃料電池の中でも、最も高い発電効率が期待される固体酸化物形燃料電池 (SOFC) は、近年の国の種々のプロジェクトなどの成果⁽¹⁾もあり、漸く 2011 年 10 月に家庭用としての市販を開始した。しかしながら、その普及を促進するためには、耐久性および性能の更なる向上、コスト低減などの課題も残されている。

これら課題の中で耐久性および性能向上のためには、燃料電池内部の現象把握が重要である。なかでもガス流動は SOFC 発電性能、信頼性および寿命に大きな影響を及ぼす因子の一つであり、これまで数値シミュレーション解析を中心とした検討^{(2)・(5)}がなされている。これらの研究では、ガス流動はガス通路断面内の流速分布を考慮しないバルク流として扱っている。しかし、ガスの粘性によりガス通路断面には流速分布が形成されており、その流速分布が燃料電池性能に少なからず影響を与えていると予想される。最近の数値解析による研究⁽⁶⁾では、このガス流速分布の影響が考慮されているものの、実験による検証はなされていない。

本研究では燃料ガス側に着目し、ガス流量の増減、あるいは燃料極面に並行にガスを流す方法と燃料極面に垂直にガスを噴射する方法などを採用することにより、種々のガス流速分布下において SOFC 発電性能を実験と数値解析の両方により比較検討した。

2. 実験方法

2・1 セルおよびガス通路の構造

図 1 に発電性能評価実験時のセルセッティングの概略図を示す。燃料ガスを幅 5 mm、高さ 1 mm、長さ 20 mm

* 原稿受付 2011 年 12 月 24 日

^{*1} 北九州市立大学大学院国際環境工学研究科

^{*2} 正員, 北九州市立大学国際環境工学部 (〒808-0135 福岡県北九州市若松区ひびきの 1-1)

E-mail: izumi@kitakyu-u.ac.jp

のガス通路に噴流と並行流のいずれかの方法で供給した。噴流の場合、燃料ガスを $\phi 0.3 \text{ mm}$ の噴流孔から燃料極表面の中央部に向けて噴射した。一方、並行流の場合は燃料ガスを燃料極面に対して並行に流した。発電性能の評価は同一の燃料極支持型セルを用いて噴流と並行流を切り換えて行った。セルの電解質は $8 \text{ mol } \text{Y}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$ (YSZ)、燃料極は $34 \text{ vol.}\% \text{ Ni-YSZ}$ 、空気極は $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ である。セルの外寸は $32 \text{ mm} \times 24 \text{ mm}$ で、各部の厚さは燃料極 1.2 mm 、電解質約 $30 \text{ }\mu\text{m}$ 、空気極 $100 \sim 200 \text{ }\mu\text{m}$ で、空気極の面積は 1 cm^2 ($10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$) である。

2・2 発電性能評価方法

セルの発電性能評価は作動温度 1273 K において、燃料ガスとして室温加湿した水素 50 ml/min あるいは 150 ml/min 、酸化剤ガスとして空気 400 ml/min を供給して行った。図 2 に燃料ガスおよび空気の流れと、性能評価に用いた測定機器を示す。図に示すように、並行流と噴流はバルブによって切り換えが可能であり、並行流の場合は燃料ガスが Inlet 1 から流入して Exhaust 1 から排出される。噴流の場合は Inlet 2 から流入して Exhaust 1, 2 の二方向から排出される。 I - V 特性の測定にはポテンショスタット/ガルバノスタット（北斗電工製 HA-310）を用いた。また、交流インピーダンス測定はポテンショスタット/ガルバノスタットに接続された周波数特性分析器（エヌエフ回路設計ブロック製 FRA5022）を用いて、 1.0 A/cm^2 時に振幅 0.042 A 、周波数範囲 $100 \text{ mHz} \sim 100 \text{ kHz}$ の条件下で測定した。

Fig. 1 Cell setting

Fig. 2 Schematic view for measuring of cell performance

3. 発電性能測定結果

図 3 に並行流と噴流の各々の場合において水素流量を変化させたときの I - V （電流密度—セル端子電圧）特性を示す。水素流量を 50 ml/min から 150 ml/min に増やすと、並行流および噴流ともに高電流密度域での端子電圧が高くなる。各条件下における 1.0 A/cm^2 時の Cole-Cole plot を図 4 に示す。並行流と噴流の各々において水素流量を増加させると、高周波数域（約 500 Hz 以上）の円弧に差は見られないが、低周波数域（約 500 Hz 以下）の円弧が小さくなるのが分かる。なお、高周波数域で並行流と噴流の円弧に差がみられるのは、両者の測定日が異なったため、経時変化の影響を受けたと考えられる。この影響を除くために、同じ日に水素流量 50 ml/min の条件において両者の性能評価を行い、その結果を図 5 および図 6 に示す。図 5 に示す I - V 特性から分かるように、並行流と噴流の発電性能を比較すると、高電流密度域において並行流の端子電圧が高くなっている。また、図 6 に示す Cole-Cole plot より、高周波数域の円弧に差は見られないが、低周波数域で並行流の円弧が小さいことが分かる。なお、図 6 中の並行流の場合の低周波数域の値のばらつきは、ゆっくりとした不規則な端子電圧の変動により生じたものである。このような端子電圧の変動は一定電流時においてもしばしばみられたが、この原因は把握できていない。

4. ガス流速分布と発電性能の関係

4・1 ガス流速およびガス濃度の数値解析

数値解析ソフト（STAR-CCM+ Ver. 6.02）を用いて、燃料ガス通路内のガス流速分布と、ガス通路および燃料極内の水素および水蒸気の濃度分布を求めた。

図7に解析対象の概略図を示す。解析モデルの寸法は発電実験に用いた燃料極およびガス通路の寸法に一致させている。電気化学反応部はセルの空気極部（10 mm×10 mm）に限定されると仮定して、この部分から電流1 Aに相当する水素の流出および水蒸気の発生を均一に行わせた。座標原点は噴流孔出口部とし、ガス通路の長手方向を x 軸、高さ方向を y 軸、幅方向を z 軸とした。

燃料極の気孔率は28%、燃料極内部の水素と水蒸気の有効相互拡散係数を $0.8067 \text{ cm}^2/\text{s}$ とした。なお、この有効相互拡散係数はChapman-Enskogの式⁽⁷⁾から求めた水素と水蒸気の1273 Kにおける相互拡散係数に、気孔率 ε を乗じるとともに屈曲係数（ $=1/\varepsilon$ ）で除して求めた。また、ガスおよび固体の温度は1273 K、ガス通路出口部の圧力を101.3 kPaに設定した。メッシュはトリムメッシュ（最小サイズ0.05 mm、最大サイズ0.1 mm）を用いた。解析対象内を移動する気体は水素と水蒸気の理想気体とし、流れは層流で壁面摩擦を考慮して解析を行った。解析に用いた水素と水蒸気の物性値を表1に示す。なお、ガス通路入口における水素／水蒸気の割合を97.7／2.3とした。

Fig. 3 I - V characteristics (effect of H_2 flow rate)

Fig. 4 Cole-Cole plot (effect of H_2 flow rate)

Fig. 5 I - V characteristics (parallel flow and jet flow)

Fig. 6 Cole-Cole plot (parallel flow and jet flow)

Fig. 7 Analysis model

Table 1 Physical property of fuel gas

	Molecular weight [kg/kmol]	Viscosity coefficient [μPa s]
H_2	2.015	19.11
H_2O	18.01	45.67

4・2 発電性能と数値解析結果の比較

図8にガス通路内の流速分布の解析例（流量 50 ml/min, 発電電流 1A/cm²）を示す．並行流の場合，ガス通路入口から出口までガス流速分布はほぼ同じである．一方，噴流の場合，噴流孔出口直上の燃料極面（ $y = 1.0$ mm）近傍での x 方向流速は並行流に比べて大きな値となっているが， x 方向に流れるに従って急激に減衰し， $x = 1.0$ mm 近傍では両者はほぼ同じ値となり， $x = 5.0$ mm では並行流の約半分の流速になっていることがわかる．

図9にガス通路（ $0 \text{ mm} < y < 1.0 \text{ mm}$ ）および燃料極内（ $1.0 \text{ mm} < y < 2.2 \text{ mm}$ ）の水素ガス濃度分布の解析例（流量 50 ml/min, 発電電流 1A/cm²）を示す．並行流の場合，上流にあたる $x = -5.0$ mm から下流にいくに従って水素ガス濃度が低下している．一方，噴流の場合，噴流出口付近（ $x = -0.5$ mm, 0.5 mm）で水素ガス濃度が最も高く，下流にいくに従って低下する．なお，解析領域の全圧はほぼ一定であるため，水蒸気濃度は水素濃度のほぼ逆の分布を示す．

このような燃料極内部の水素および水蒸気濃度から平衡状態にあるとして酸素分圧を求め，更にその酸素分圧から起電力，濃度過電圧および活性化過電圧を算出した．なお，活性化過電圧は燃料極および空気極の両極において求めたが，本研究では空気極厚さが薄いため空気極における濃度過電圧は無視した．濃度過電圧は Eguchi らの式⁽⁸⁾ および活性化過電圧は Nagata らの式⁽⁴⁾ を用いて求めた．

Fig. 8 Velocity distributions of fuel gas ($Q = 50 \text{ ml/min}$, $z = 0 \text{ mm}$, 1 A/cm^2)

表2に発電電流 1A/cm² 時の活性化過電圧，濃度過電圧および起電力の計算結果を示す．並行流と噴流で流量を変化させた比較，あるいは同流量で並行流と噴流の比較をみると，濃度過電圧および活性化過電圧の差よりも，起電力に大きな差が発生していることがわかる．更に，空気極における過電圧および電解質でのオーム過電圧を求め，起電力から全過電圧を引いて求めた端子電圧の値を同表に示している．この端子電圧の値は，流量を 50 ml/min から 150 ml/min に増やすと，並行流の場合 0.009 V，噴流の場合 0.014 V 増加している．また，流量 50 ml/min で並行流から噴流に変わると 0.011 V 低下することがわかる．これらの傾向は発電実験とも一致している．従って，ガス流速分布を変えた時のセル端子電圧の変化は，Cole-Cole plot から明らかなように低周波数成分に起因する過電圧による影響であり，数値解析結果からその過電圧は起電力に強く依存しているものと考えられる．ただし，現状の数値解析技術が十分に高いものではなく，特に燃料極内部のガス移動については，今後更に詳細に検討を行い濃度過電圧および活性化過電圧の推定値の高精度化を必要とする．

5. 結 言

燃料極支持型 SOFC の発電性能に及ぼす燃料ガス流速分布の影響を調べるために、燃料ガス流量の増減や、異なる流速分布を持つ並行流場および噴流場において、発電性能の比較を行うとともに、ガス流速およびガス濃度の数値解析を行った。その結果、以下の知見を得た。

- (1) 発電実験から、燃料ガス流量を増すと、高電流密度域での端子電圧が増加し、これは低周波数成分に起因する過電圧の影響であることが分かった。
- (2) 今回の実験条件下における並行流場と噴流場の発電性能の比較では、噴流よりも並行流の方が高電流密度域での端子電圧が高く、この差は低周波数成分に起因する過電圧の影響であることが分かった。
- (3) 数値解析結果から、実験で得られた発電性能差は主に起電力の差に起因していることが示された。

本研究は科学研究費補助金（課題番号 21560222）の支援を受けて行われました。

Fig. 9 Concentration distributions of hydrogen gas ($Q = 50$ ml/min, $z = 0$ mm, 1 A/cm²)

Table 2 Results of numerical analysis (at 1 A/cm²)

	Activation overpotential in fuel electrode [V]	Concentration overpotential in fuel electrode [V]	Electromotive force [V]	Terminal voltage [V]
Parallel flow $Q = 50$ [ml/min]	0.087	0.022	0.968	0.676
Parallel flow $Q = 150$ [ml/min]	0.091	0.027	0.987	0.685
Jet flow $Q = 50$ [ml/min]	0.085	0.020	0.954	0.665
Jet flow $Q = 150$ [ml/min]	0.091	0.027	0.981	0.679

文 献

- (1) 細井敬, “NEDO における SOFC 開発の状況”, 燃料電池, Vol. 10, No.1 (2010), pp. 6-11.
- (2) Achenbach, E., “Three-dimensional and time-dependent simulation of a planar solid oxide fuel cell stack”, *Journal of Power Sources*, Vol. 49 (1994), pp. 333-348.
- (3) Iwata, M., Hikosaka, T., Morita, M., Iwanari, T., Ito, K., Onda, K., Esaki, Y., Sakaki, Y. and Nagata, S., “Performance analysis of planar-type unit SOFC considering current and temperature distributions”, *Solid State Ionics*, Vol. 132 (2000), pp. 297-308.
- (4) Nagata, S., Momma, A., Kato, T. and Kasuga, Y., “Numerical analysis of output characteristics of tubular SOFC with internal reformer”, *Journal of Power Sources*, Vol. 101 (2001), pp. 60-71.
- (5) 泉政明, “固体酸化物燃料電池スタック特性に及ぼすガス流れ方式の影響”, 日本機械学会論文集 B 編, Vol. 71, No.707 (2005), pp. 1901-1908.
- (6) Ni, M., “Modeling of a planer solid oxide fuel cell based on proton-conducting electrolyte”, *International Journal of Energy Research*, Vol. 34, Issue 12 (2010), pp.1027-1041.
- (7) 化学工学会編, 化学工学便覧 (改訂六版), (1999), p.109, 丸善.
- (8) Eguchi, K., Kunisa, Y., Adachi, K. and Arai, H., “Effect of Anodic Concentration Overvoltage on Power Generation Characteristics of Solid Oxide Fuel Cells”, *Journal of Electrochemical Society*, Vol. 143, No. 11 (1996), pp. 3699-3703.