

Elaboration of Spatial Current and Temperature Variations in Microtubular Solid Oxide Fuel Cells by Experimental and Numerical Techniques

アイディン, オズギュール

<https://doi.org/10.15017/1807027>

出版情報：九州大学, 2016, 博士（工学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：全文ファイル公表済

氏 名 : AYDIN OZGUR (アイディン オズギュール)

論 文 名 : Elaboration of Spatial Current and Temperature Variations in Microtubular Solid Oxide Fuel Cells by Experimental and Numerical Techniques
(マイクロ円筒固体酸化物形燃料電池の電流分布および温度分布の実験的・数値的解明)

区 分 : 甲

論 文 内 容 の 要 旨

水素を燃料とする燃料電池はエネルギー変換効率が高く、温室効果ガスの削減、並びに排ガス規制の対応手段として期待できるため、燃料電池自動車、家庭用および定置用燃料電池などへの普及が期待されている。高温（500～1000℃）で作動する固体酸化物形燃料電池（SOFC）は、燃料として水素のみならず一酸化炭素や天然ガスを用いることができ、排熱を有効利用すると更なる高出力化・高効率化が期待できるが、高温運転で発生する熱応力による劣化、セル内の電流分布による発電性能低下、並びに燃料濃度分布に伴うニッケル触媒の酸化還元サイクルによる劣化などを防止することが課題になっている。

SOFC のセル内部では、燃料、酸素、並びに生成水の濃度が流れ方向に変化する。特にカソード空気と比較して、供給量が少ないアノード燃料の流れ方向の濃度分布は、電流分布を変化させて温度分布を発生させることが従来から報告されている。セル内部の電流分布と温度分布の発生は、発電性能の低下や熱応力による機械的劣化の原因になる。また低い燃料濃度の条件ではニッケル触媒の酸化還元サイクルによる劣化も発生する。そこで SOFC 内部における燃料濃度、電流、温度の流れ方向分布を明確にすることが重要な課題になっている。本研究ではマイクロ円筒 SOFC に分割電極を適用して、電流および表面温度を分割電極ごとに測定するとともに、発電性能を予測できる数値モデルを作成することにより SOFC の発電特性を解明することを目的とした。

第 1 章は、SOFC における電気化学エネルギー変換プロセスの原理とともに、従来研究の課題と本研究の目的について述べた。

第 2 章ではマイクロ円筒 SOFC の電流－電圧測定、電気化学インピーダンス分光測定、並びに分割電極測定の原理について述べた。また実験に用いた円筒形 SOFC の作製法、分割電極の作製法、表面温度測定および電気化学インピーダンス分光測定の方法についてまとめた。

第 3 章では、種々の流量条件で水素燃料を SOFC 分割電極に供給し、流れ方向の電流分布を測定した。その結果、上流から下流部に向かって燃料消費に起因した電流低下の現象が発生することを明らかにした。燃料供給量を低く設定すると、下流側で燃料不足により濃度過電圧が増大して発電性能が大幅に低下することを明らかにし、ニッケル触媒の酸化還元サイクルによる劣化を防止する必要があることを示した。

第 4 章では、アノードとカソード供給ガスを並行流および対向流にした場合で、SOFC 分割電極の電流－電圧測定、電気化学インピーダンス分光測定、並びに表面温度測定を行い、燃料消費に伴う電流分布の発生がセル温度分布に及ぼす影響を検討した。その結果、並行流と比較して対向流の場合は、流れ方向における電流分布と温度分布が顕著になることがわかった。カソード表面におけ

る対流伝熱と電流分布がセル温度分布に大きな影響を及ぼすことを明らかにした。また電気化学インピーダンス分光測定から、下流部での燃料濃度低下に起因する燃料の物質輸送抵抗の増大を示すとともに、燃料流れ方向の温度分布が電解質イオン伝導抵抗および電極反応速度に大きな影響を及ぼすことを明らかにした。カソード供給空気の冷却効果が温度分布に大きな影響を及ぼすことから、温度分布と電流分布を均一化させる方策として、燃料と空気を並行流で供給すること、並びに供給空気量を酸素利用率増加による過電圧増加が問題にならない程度まで減少させることが重要であることを示した。

第5章では、SOFC内部における質量保存、運動量保存、電荷保存、並びにエネルギー保存を考慮し、連成させた二次元有限要素モデルを用いて高精度に発電性能を予測する手法について検討した。分割電極で測定した電流分布および温度分布と整合するように数値モデルを作成した結果、セル表面温度分布を決定する要因として、電流分布、供給空気による冷却の他に、セル表面からの輻射熱も無視できないことを指摘した。これらを考慮することで、数値モデルの精度が向上しSOFC発電性能の解明に有効であることを明らかにした。

第6章では、改質模擬ガス運転中のSOFC温度分布と発電分布について検討した。水素燃料を用いた場合と比較して、メタンを含む改質模擬ガス燃料を用いた場合は、セル内部でメタン改質に伴う吸熱反応により温度が低下し、流れ方向に温度変動が発生することを明らかにした。燃料ガス供給流量を変化させるとニッケル触媒上での燃料滞留時間に依存した改質反応速度が変化して流れ方向に温度が変動する現象を明らかにした。またニッケル触媒上でメタン改質と電気化学反応が競争的に進むことによりセル電圧が振動する現象を明らかにした。これらの温度分布・電流分布の変動を低減させることが改質模擬ガスを用いるSOFCの耐久性を向上させるうえで重要であることを指摘した。

第7章は、本論文を総括した。