九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

ガラスシールの強度解析と評価手法の提案 : 平板型SOFCの耐久性向上へ向けて

脇田, 雄斗

https://hdl.handle.net/2324/7157350

出版情報：Kyushu University, 2023, 博士（工学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：

（様式２）

氏　　名　：脇田　雄斗

論文題名　：ガラスシールの強度解析と評価手法の提案

～平板型 SOFC の耐久性向上へ向けて～

区　　分　：甲

論　文　内　容　の　要　旨

固体酸化物型燃料電池（SOFC）は高い発電効率を有するが、劣化や高コストが課題である。特に、ガラスシールの不具合によるガスリークがセルの劣化を引き起こす問題が大きい。シール不具合に起因するガスリークは発電効率の低下も招く。従って、シール技術開発は SOFC 分野の中で優先度が高い。堅牢なシールを求めてガラスシールのぬれ性、形状、機械強度に関する研究が個別に進められてきた。しかし、このような個別研究ではぬれ性、形状、機械強度の関係が不明である。シール形状はシールの機械強度を左右する重要な設計パラメータであり、ぬれ性とシール形状の関係が明らかになれば、ガラスのぬれ性からシール形状、シール形状からシール強度をシステマティックに予測できる。そこで本研究では、ガラスシールの 3 要素（ぬれ性、形状、機械強度）を一貫して評価、解析することで、これら 3 要素の関係を定量化し、その上でガラスのぬれ性、形状からスタッキング時のシール破壊を予測する手法を提案することに挑戦した。

1 章では SOFC のシール構造や技術を整理し、ガラスシールの課題を挙げるとともに、ガラスシールの 3 要素（ぬれ性、形状、機械強度）からシール破壊を予想する手法の重要性を説いた。

2 章では、ガラスのぬれ性からガラスシール形状の予測を行った。ガラスのぬれ物性を測定するパンケーキ試験と、実際のガラスシール形状を可視化測定するサンドイッチ試験を組み合わせた。パンケーキ試験より得られたぬれ物性である表面張力と接触角を組み込んだ理論モデルによる数値解析結果は、パンケーキ試験で得られるガラスシール形状を再現できた。特に、ガラスシール形成時の最高温度が高く、ガラスの流動性の影響が小さい場合に理論モデルによるシール形状の予測精度が上がる。

3 章では、ガラスとインターコネクタの物性を実測した上でガラスシールの応力解析を行い、シールの内部亀裂の破壊パターンが以下に示す 2 つに分けられることを示した。①ぬれ性が高い（接触角が 90°）、あるいは中間の場合（接触角が 90°）には、ガラスシールの側面中央に最大引張応力が生じ、ここを起点に、シールとインターコネクタ界面と平行にガラス内部へ亀裂が進展する、②ぬれ性が低い場合（接触角が 90°より大きい場合）には、シ

ールとインターコネクタの界面端部近傍に最大引張応力が生じ、ここを起点に、界面に対して一定の角度方向へガラス内部に亀裂が進展する。

4 章では、5 章のシール表面への初期亀裂を組み込んだ応力解析と評価（応力拡大係数と破壊靭性値との比較による機械強度評価）の際に必要となる初期亀裂の位置、方向、長さを導出した。初期亀裂の位置は応力集中部に、方向は周方向引張応力が最大となる向きに仮定した。アコースティックエミッションを組み込んだ可視化破壊試験から得られるシール破壊時のガラスシールの形状、温度（すなわち熱応力条件）、別途計測したガラスとインターコネクタの力学物性、及び亀裂長さを仮置きした初期亀裂を組み込んだ応力解析を行った。この際に、応力解析結果より得られる応力拡大係数が事前に測定した破壊靭性値と一致するよう初期亀裂長さを再設定しながら応力解析を繰り返し、初期亀裂長さを求めた。得られた初期亀裂長さは 4 μm となった。

加えて、4 章の可視化破壊試験結果は 3 章で示した破壊パターンの証明にもなった。ガラスのぬれ性が高い場合には、ガラスシールの側面中央を起点にシールとインターコネクタ界面と平行にガラス内部へ亀裂が進展してガラスシールが破壊した。また、ぬれ性が低い場合には、ガラスシールとインターコネクタ界面の端部を起点に界面に対して一定の角度方向にガラス内部へ亀裂が進展してガラスシールが破壊した。これらの結果は 3 章で示した破壊パターンと合致する。

5 章では、4 章で決定した初期亀裂（位置・方向・長さ）を組み込みこんだセルスタック（単セルが積層されたもの）を対象に、応力解析を実施した。ぬれ性、シール厚さ、シール幅をパラメータにした複数の幾何条件下で応力拡大係数を求め、ガラスシール強度を評価して、以下に示すガラスシール設計指針を導いた。①スタック積層方向のなかで中央に位置するセルのガラスシールの応力拡大係数が最も小さい。逆に、スタック積層方向のなかで最端部に位置するセルのシールにおける応力拡大係数が最も大きいが、単セルスタックのそれよりは小さい。②従って、単セル状態でガラスシール破壊が起きなければ、スタッキング時のガラスシール強度をある程度担保できる。③ガラスのぬれ性が低い（接触角が 90° より大きい）場合にガラスシールの応力拡大係数が最大で、次いでぬれ性が高い（接触角が 90° 未満）場合となり、ぬれ性が中間（接触角が 90° ）の場合に最小となる。実設計ではガラスのぬれ性を中間に制御することは難しく、ガラスのぬれ性が高くかつ中間に近付けることが指針となる。④ガラスシールの幅が狭いほど、また厚さが薄いほど応力拡大係数は小さくなり、シール破壊の抑制につながる。実用的にはガスシール性と電気絶縁性を担保できる範囲でシール幅を狭く、厚さを薄くすることが指針となる。⑤ガラスシールとインターコネクタの熱膨張率差の許容上限は従来 1 ppm/K とされてきたが、以上の指針を踏まえた最適化により熱膨張率差の許容上限の拡大も可能で、材料の選択性が広がる。

6 章では全体を総括し、その上で具体的な SOFC シール設計指針を提示し、今後の展望を示した。