

令和 6 年 6 月 12 日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20K04323

研究課題名（和文）共電解を利用した炭化水素合成セル中のマルチフィジックス解析モデル開発

研究課題名（英文）Development of a multiphysics numerical model for a hydrocarbon synthesis cell using co-electrolysis

研究代表者

荒木 拓人（ARAKI, Takuto）

横浜国立大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：90378258

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：固体酸化物形セルに水蒸気と二酸化炭素を供給し同時電解（共電解）を利用するシステムは、シンプルなプロセスから高いエネルギー効率で炭化水素系燃料を合成可能なため、再生可能エネルギーからのインフラ適合性の高い燃料製造、電力負荷平準デバイスとして期待できる。ただし、水蒸気・二酸化炭素電解反応および逆水性シフト反応は吸熱反応であり、セル内の温度や反応分布の要因は複雑であるため、共電解中の固体酸化物形セル内の電解・反応・温度分布のマルチフィジックス解析スキームを開発し、その性能に対する支配因子を整理した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究において開発された共電解中の固体酸化物形セル内の発電・反応・温度分布のマルチフィジックス解析スキームは学術的にも新しく、多数の学術論文や学会発表に至った。また本研究を遂行中にも共電解を用いた実証試験がいくつかスタートするなど注目を浴びている技術であり社会的意義も大きい。

研究成果の概要（英文）：A system in which water vapor and carbon dioxide are supplied to a solid oxide cell for co-electrolysis can synthesize hydrocarbon fuels with high energy efficiency from a simple process, and is expected to be a highly infrastructure-compatible fuel production and power load leveling device from renewable energy sources. However, the steam/carbon dioxide electrolysis and reverse aqueous shift reactions are endothermic reactions, and the factors affecting the temperature and reaction distribution in the cell are complex. Therefore, we have developed a multiphysics analysis scheme for the electrolysis, reaction, and temperature distribution in a solid oxide cell during co-electrolysis, and organized the dominant factors for its performance.

研究分野：熱工学

キーワード：水蒸気電解 二酸化炭素共電解 メタネーション 逆シフト反応

# 様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

## 1. 研究開始当初の背景

固体酸化物形セルに水蒸気と二酸化炭素を供給し同時電解(共電解)を利用するシステムは、シンプルでプロセスから高いエネルギー効率で炭化水素系燃料を合成可能なため、再生可能エネルギーからのインフラ適合性の高い燃料製造、電力負荷平準デバイスとして期待できる。さらに木材チップやバガス、下水プラントなどからのバイオマス由来の水素・水蒸気・二酸化炭素・炭化水素混合ガスを貯蔵・利用しやすい炭化水素燃料としてアップグレードすることで、バイオマスの利用も促進できる。ただし、水蒸気・二酸化炭素電解反応および逆水性シフト反応は吸熱反応であり、セル内の温度や反応分布の要因は複雑であるため、その系統的な理解やセル構造の最適化はほとんどされていなかった。

## 2. 研究の目的

二酸化炭素・水蒸気を共電解中の固体酸化物形セル内の発電・反応・温度分布のマルチフィジックス解析スキームを開発し、実験的にその妥当性を検証すると共に、その性能・劣化に対する支配因子を整理することとした。

## 3. 研究の方法

二酸化炭素・水蒸気を共電解中の固体酸化物形セル内の発電・反応・温度分布およびその支配因子を明らかにするために下記の検討を行う。

(1) 反応過電圧、エントロピー変化、水性シフト反応、メタネーション反応、ガス拡散、イオン輸送のすべてを考慮し、連成させた数値解析コードを開発する。

(2) 共電解セルの下流に温度を低下させながらメタン濃度を増加させるような一体型セルを想定した実験系を製作する。その系において熱電対により共電解運転中の温度分布を測定し、数値解析結果と比較し、それぞれの運転条件における支配的なパラメータを検討した。必要に応じてガスクロマや質量分析計を用いた濃度分布測定を行う。

## 4. 研究成果

開発解析モデルでは、原料極(アノード)、電解質、空気極(カソード)の3層間におけるイオン・電子の流れを考慮した。また、多孔質内において速やかに気体の物質が供給・排出されると仮定し、濃度過電圧以外の反応過電圧と抵抗過電圧を全体の過電圧として考えた。

各層における電子・イオン抵抗過電圧は2次元オームの式を用いた。

各イオン種、電子の有効伝導率には空隙率、イオン電導相(YSZ)の体積割合、屈曲度を考慮した。

反応過電圧には反応物質の活量で補正された Butler-Volmer 形式の式を用いた。この式では理想気体定数、温度、反応系における移動電子数、定数、体積反応電流密度、交換電流密度を考慮

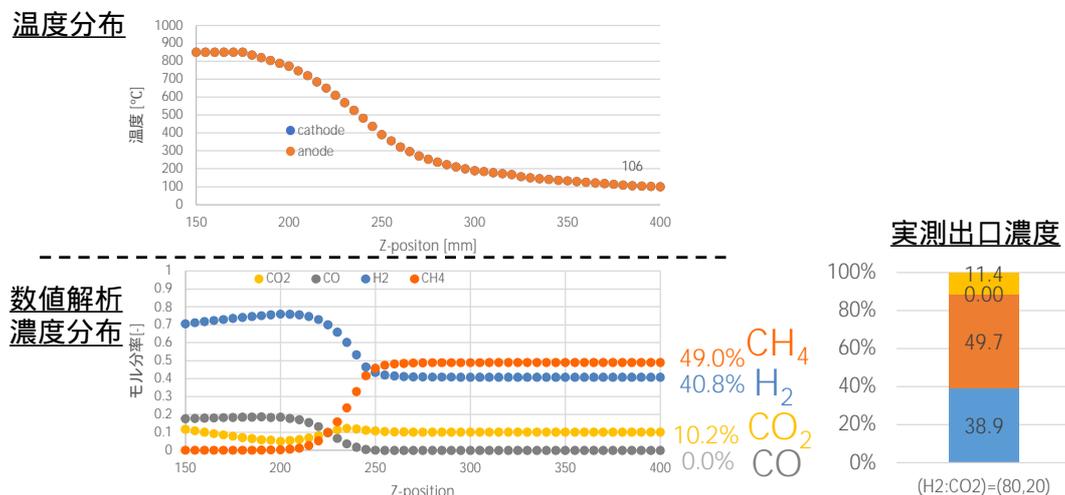


図1 温度分布と数値解析による濃度分布，実測出口濃度(右)

した．交換電流密度は電極毎にアレニウス型の温度関数として  $\Delta E$  は活性化エネルギー [J/mol] を示す．活性化エネルギーは  $\Delta E_a=120$  [kJ/mol] ,  $\Delta E_c=130$  [kJ/mol] とした．境界条件は両極ともに白金表面で等電位とした．

メタネーション反応, シフト反応の標準触媒担持量あたりの反応速度は, 実測より下記のように与えた．

$$k_{me} = 4.01 \times 10^4 \times \exp\left(-10.8 \times \frac{1000}{T}\right),$$
$$k_{sft} = 1.10 \times 10^2 \times \exp(-8.9 \times 1000/T).$$

以上のように開発したモデルを, 電解セルの下流で温度を低下させることで, 反応平衡をメタン側に寄せメタン濃度を増加させるような一体型セルに適用し, 濃度分布を計算した．その際の温度分布を図 1 の左上に, 基準条件において数値解析から求めた濃度分布を左下に示した．特に 200~250mm で水素濃度と一酸化炭素濃度が低下しメタン濃度が上昇していることがわかる．この領域では温度が 700 から 400 前後まで低下しており, 前述のメタン生成平衡反応の温度依存性によってメタンが生成したと考えられる．一方, 二酸化炭素は 230mm 前後まで濃度が上昇しその下流側で濃度が下がるような特異的な濃度分布を示した．これは逆シフト反応による平衡と逆シフト反応速度, そしてメタネーション反応速度のバランスが温度域によって変化することによる．出口メタン濃度に与える支配因子としては, 中低温領域での逆シフト反応速度であると考えられる．

さらに, 実際にこのような共電解・メタネーション一体型セルの模擬セルを制作し, 出口濃度を実測した．その出口濃度を図 1(右)に示すが, 数値解析結果とよく一致しており本研究で作成した数値解析モデルの妥当性が示された．

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 9件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 0件）

|  |                         |
|--|-------------------------|
| 1. 著者名<br>水藤 文健、永田 陽平、荒木 拓人、柳澤 和貴、毛里 昌弘、牧 美里、吉田 潤平   | 4. 巻<br>53              |
| 2. 論文標題<br>社会インフラCO <sub>2</sub> 源に残留する空気成分によるSOEC 共電解システムエネルギー効率への影響  | 5. 発行年<br>2022年         |
| 3. 雑誌名<br>自動車技術会論文集  | 6. 最初と最後の頁<br>973 ~ 978 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.11351/jsaeronbun.53.973   | 査読の有無<br>有              |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-               |
| 1. 著者名<br>高寺亮伍, 川中涼介, 李坤朋, 荒木拓人, 森昌史   | 4. 巻<br>22-1            |
| 2. 論文標題<br>再生可能エネルギー利用社会に向けたSOEC形メタノール製造システムの検討  | 5. 発行年<br>2022年         |
| 3. 雑誌名<br>燃料電池 = The journal of fuel cell technology   | 6. 最初と最後の頁<br>77-84     |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>なし   | 査読の有無<br>無              |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-               |
| 1. 著者名<br>Li Kumpeng, Suito Fumiyasu, Ryogo Takatera, Atsuhito Ota, Araki Takuto, Okuyama Yuji, Mori Masashi   | 4. 巻<br>103             |
| 2. 論文標題<br>Numerical Analysis of the Local Current Efficiency Distribution in a Protonic Ceramic Fuel Cell Considering Gas Concentration Distributions | 5. 発行年<br>2021年         |
| 3. 雑誌名<br>ECS Transactions   | 6. 最初と最後の頁<br>853 ~ 860 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1149/10301.0853ecst   | 査読の有無<br>無              |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-               |
| 1. 著者名<br>Nagai Kohei, Osa Takayuki, Inoue Gen, Tsujiguchi Takuya, Araki Takuto, Kuroda Yoshiyuki, Tomizawa Morio, Nagato Keisuke                      | 4. 巻<br>12              |
| 2. 論文標題<br>Sample-efficient parameter exploration of the powder film drying process using experiment-based Bayesian optimization                       | 5. 発行年<br>2022年         |
| 3. 雑誌名<br>Scientific Reports   | 6. 最初と最後の頁<br>-         |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1038/s41598-022-05784-w   | 査読の有無<br>無              |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-               |

|  |                     |
|--|---------------------|
| 1. 著者名<br>河村 駿希, 太田 篤人, 荒木 拓人          | 4. 巻<br>70          |
| 2. 論文標題<br>共電解を用いたPower to Gasシステムの評価  | 5. 発行年<br>2020年     |
| 3. 雑誌名<br>エネルギーと動力                     | 6. 最初と最後の頁<br>29-38 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>なし         | 査読の有無<br>有          |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著<br>-           |

|  |                     |
|--|---------------------|
| 1. 著者名<br>プロトン伝導体/酸化物イオン伝導体形水蒸気電解による水素製造システムの効率検討  | 4. 巻<br>20          |
| 2. 論文標題<br>プロトン伝導体/酸化物イオン伝導体形水蒸気電解による水素製造システムの効率検討 | 5. 発行年<br>2020年     |
| 3. 雑誌名<br>燃料電池                                     | 6. 最初と最後の頁<br>76-83 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>なし                     | 査読の有無<br>有          |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難             | 国際共著<br>-           |

|   |                     |
|---|---------------------|
| 1. 著者名<br>李 坤朋, 森 昌史, 荒木 拓人                     | 4. 巻<br>99-2        |
| 2. 論文標題<br>SOEC形メタン混合ガス製造システムと都市ガス13Aへの添加可能量の検討 | 5. 発行年<br>2020年     |
| 3. 雑誌名<br>日本エネルギー学会誌                            | 6. 最初と最後の頁<br>20-27 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>なし                  | 査読の有無<br>有          |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難          | 国際共著<br>-           |

|  |                             |
|--|-----------------------------|
| 1. 著者名<br>Otsuki Yota, Tamada Yusuke, Inoue Shoki, Shigemasa Kaito, Araki Takuto   | 4. 巻<br>45                  |
| 2. 論文標題<br>Measurement of solidification heat from supercooled water freezing during PEFC cold start and visualization of ice distribution | 5. 発行年<br>2020年             |
| 3. 雑誌名<br>International Journal of Hydrogen Energy   | 6. 最初と最後の頁<br>15600 ~ 15610 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1016/j.ijhydene.2020.04.004   | 査読の有無<br>有                  |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-                   |

|   |                             |
|---|-----------------------------|
| 1. 著者名<br>Li Kunpeng, Araki Takuto, Kawamura Toshiki, Ota Atsuhito, Okuyama Yuji  | 4. 巻<br>45                  |
| 2. 論文標題<br>Numerical analysis of current efficiency distributions in a protonic ceramic fuel cell using Nernst-Planck-Poisson model | 5. 発行年<br>2020年             |
| 3. 雑誌名<br>International Journal of Hydrogen Energy  | 6. 最初と最後の頁<br>34139 ~ 34149 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1016/j.ijhydene.2020.09.143  | 査読の有無<br>有                  |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-                   |

|  |                               |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Otsuki Yota, Shigemasa Kaito, Araki Takuto   | 4. 巻<br>160                   |
| 2. 論文標題<br>Measurement of temperature difference on catalyst layer surface under rib and channel in PEFC using micro sensors | 5. 発行年<br>2020年               |
| 3. 雑誌名<br>International Journal of Heat and Mass Transfer  | 6. 最初と最後の頁<br>120169 ~ 120169 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1016/j.ijheatmasstransfer.2020.120169   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-                     |

|   |                               |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Shigemasa Kaito, Sato Hayate, Otsuki Yota, Kurosu Masato, Araki Takuto  | 4. 巻<br>365                   |
| 2. 論文標題<br>Investigating the vapour transport phenomena inside the cathode gas diffusion layer media by controlling local temperature gradient inside an operating proton exchange membrane fuel cell | 5. 発行年<br>2021年               |
| 3. 雑誌名<br>Electrochimica Acta   | 6. 最初と最後の頁<br>137383 ~ 137383 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1016/j.electacta.2020.137383   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-                     |

|  |                           |
|--|---------------------------|
| 1. 著者名<br>Yue Like, Wang Shixue, Araki Takuto, Utaka Yoshio, Wang Yulin  | 4. 巻<br>46                |
| 2. 論文標題<br>Effect of water distribution in gas diffusion layer on proton exchange membrane fuel cell performance | 5. 発行年<br>2021年           |
| 3. 雑誌名<br>International Journal of Hydrogen Energy   | 6. 最初と最後の頁<br>2969 ~ 2977 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1016/j.ijhydene.2020.06.184   | 査読の有無<br>有                |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>該当する              |

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>川中涼介, 荒木拓人, 阿部孝之, 高寺亮伍, 李坤朋            |
| 2. 発表標題<br>一体化 SOEC 共電解セル中の実測メタネーション反応速度を考慮した数値解析 |
| 3. 学会等名<br>動力・エネルギー技術の最前線講演論文集: シンポジウム            |
| 4. 発表年<br>2022年                                   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>荒木拓人                                       |
| 2. 発表標題<br>プロトン伝導型 SOFC 内の局所ホール電流密度分布計算               |
| 3. 学会等名<br>大阪科学技術センター, 燃料電池・FCH部会 第 276 回定例研究会 (招待講演) |
| 4. 発表年<br>2022年                                       |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>後藤隆瑛, 荒木拓人, 川中涼介                           |
| 2. 発表標題<br>一体化 SOEC 共電解セル中の伝熱機構を考慮した数値解析および実験装置の設計と製作 |
| 3. 学会等名<br>動力・エネルギー技術の最前線講演論文集: シンポジウム                |
| 4. 発表年<br>2023年                                       |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号) | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号) | 備考 |
|---------------------------|-----------------------|----|
|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|