

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年5月25日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2011～2012

課題番号：23760190

研究課題名（和文） 固体酸化物形燃料電池のセル内電流分布の解明

研究課題名（英文） Elucidation of the current distribution in a solid oxide fuel cell

研究代表者

中島 裕典（NAKAJIMA HIRONORI）

九州大学・工学研究院・機械工学部門

研究者番号：70432862

研究成果の概要（和文）：固体酸化物形燃料電池（SOFC）単セル内では、燃料や酸素の消費によって、これらの濃度が不均一となり電流分布が生じる。これにより発電が有効に行われない部分が生じたり、燃料枯れによる Ni 触媒の酸化劣化、温度分布の発生により熱応力に伴うセルの機械的劣化が進行する問題がある。そこで本研究では、単セルの表面温度を計測し、熱伝導方程式に基づいてセル内電流分布要因を明確にした。また、分割電極の作製により温度計測による電流分布計測解析手法の妥当性が示され、その確立ができた。

研究成果の概要（英文）：Depletion of fuel and oxygen in a solid oxide fuel cell greatly affects the cell performance, giving rise to current distribution in a cell. The current distribution affects the cell thermo-mechanical durability since it leads to temperature distribution in the cell. The current distribution also prevents effective use of whole electrode area in the cell geometry. Oxidation of nickel catalyst is caused as well. Thus we measure surface temperature to clarify the current distribution by way of the heat conduction equation. The current distribution is confirmed by segmented cells, verifying the current distribution analysis method by temperature measurements.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：電流分布 固体酸化物形燃料電池 温度分布

1. 研究開始当初の背景

固体酸化物形燃料電池（SOFC）は500～1000℃という作動温度から発電効率が高く、水素以外にもLPG、都市ガス、灯油などの炭化水素燃料からの発電が比較的容易である点から、大型発電所への設置や一般家庭用分散型電源として実用化が期待されている。またその作動温度により良質な高温廃熱を利用できることから、高効率コージェネレーション機器としても期待されている。SOFC単セル内では、燃料や酸素の消費、炭化水素燃料の内部改質反応の不均一性によって、これらの濃度が不均一となり、電流分布が生じる。こ

れにより発電が有効に行われない部分が生じたり、温度分布の発生により熱応力に伴うセルの機械的劣化が進行する。

これまで、SOFCの電流分布について、数値解析による算出結果が多く報告されている。しかし、発電中セルの実測に基づいた電流分布の研究例はほとんどない。

2. 研究の目的

本研究では、固体酸化物形燃料電池（SOFC）の発電性能および耐久性向上のため、実測に基づいてセル内電流分布を解明することを目的とする。過電圧および電気化学ペルチェ

熱による SOFC 単セルの自己発熱・吸熱量と電流密度との関係を導出し、これにより各部電極表面温度と各部電流密度の関係式を得る。ここで電極表面温度を実測し、この式からセル各部の電流密度を求める。さらに分割電極を有するセルを製作し、各部電流電圧特性を計測することで、電流分布を得て、比較を行う。供給ガス組成、流量とセル内電流分布の関係を、セル内温度分布を明確にした上で解明し、セル内で均一に発電するための発電条件やセル構造の指針を明確にする。

3. 研究の方法

燃料極支持形円筒形マイクロ SOFC を管状電気炉で 500-800°C に加熱し、マスフローコントローラー) により種々の燃料極、空気極ガス供給条件を設定して、電子負荷器により所定の電流を取り出す (図 1)。

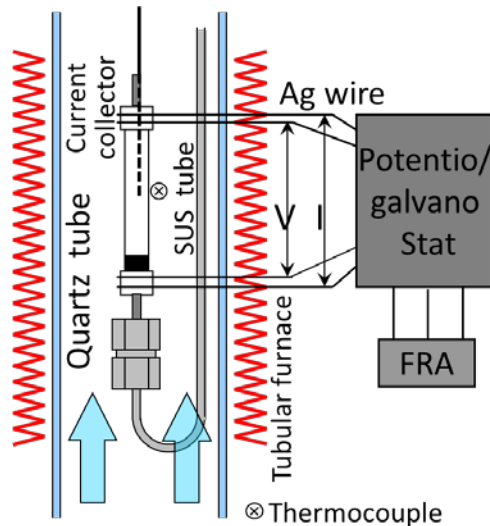


図 1 実験装置

この時のインピーダンスを周波数応答解析装置(FRA)により測定し、電気等価回路モデルによる非線形最小自乗フィッティングを行う (図 2)。これにより種々の燃料極、

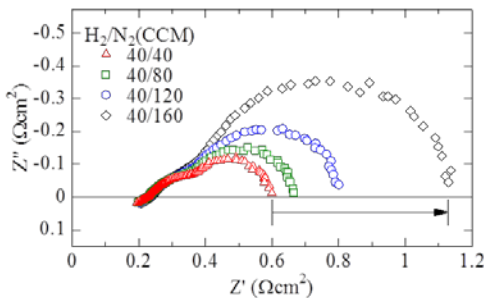


図 2 インピーダンスプロット

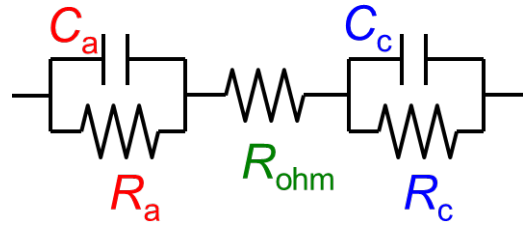


図 3 等価回路

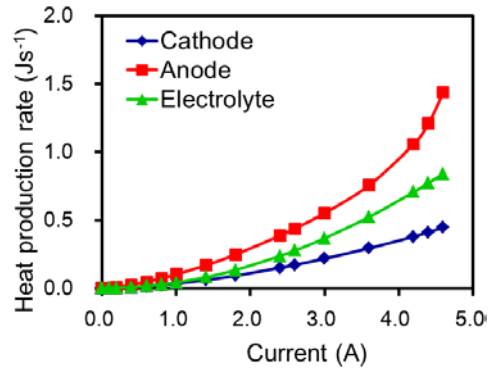


図 4 過電圧による発熱量

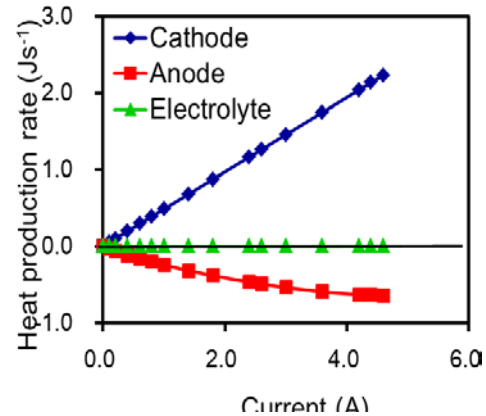


図 5 電気化学ペルチェ熱

空気極ガス組成、ガス流量および電流におけるインピーダンスを数個の抵抗成分とコンデンサ容量成分に分離する (図 3)。各抵抗成分の、電流についての積分により、燃料極、空気極、電解質個別過電圧解析を行い、各部の過電圧による不可逆的な発熱量を求める (図 4)。次に、燃料極、空気極個別の可逆的エントロピー収支から、ペルチェ素子と同様の電気化学ペルチェ熱を導出して (電気化学ペルチェ効果)、各電極における可逆的な熱の流入、流出を分離して求める (図 5)。

以上から過電圧および電気化学ペルチェ熱によるセル各部の自己発熱および吸熱量を求める。ここから、熱伝導方程式を適用し、各電極表面温度 (図 6) と電流密度の関係式を求める。

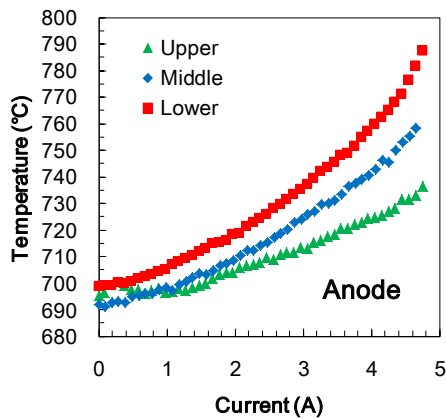


図6 セル各部温度

また、電解質薄膜化や高導電率の支持体による内部抵抗低減の観点から注目されている燃料極支持型の、円筒形マイクロSOFCを作製した。Ni/8YSZ (8mol%YSZ)燃料極支持体を製作し、これを8YSZスラリーでディップコーティングした後、1420°Cで2時間共焼結を行った。さらに空気極としてLa_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃(LSM)スラリーを塗布し1150°Cで2時間焼成した。このセルについて、水素ガスおよび空気を供給し、特性を評価した。さらに、空気極を分割したセルを作製し(図7)、各部セル電圧が等しくなるように複数台の電子負荷器を設定しながら、種々のセル電圧において各部の電流を観測した。



図7 分割セル

4. 研究成果

過電圧と可逆的エントロピー変化による発熱量を熱伝導方程式に代入して得た温度と実測温度(図6)を比較し、電流分布を求めることができた。その結果、燃料消費により水素分圧が低下して、ガス供給の下流方向に向かって減少する温度及び電流分布が得られた(図8)。特に燃料濃度の増加により、セル全体での出力は増大するものの、上流側で電流集中が生じて、電流分布が顕著になる

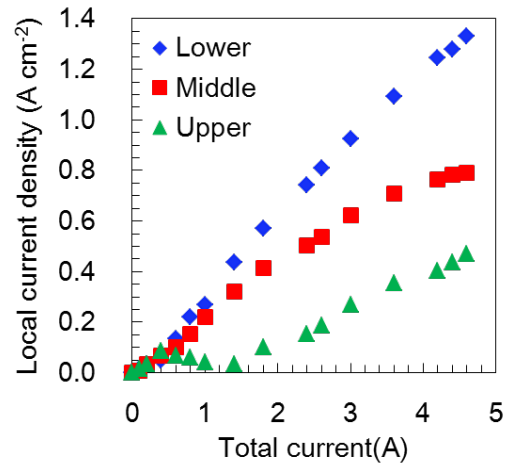


図8 電流分布 (H₂/N₂:40/40cc/min, Air: 2000 cc/min)

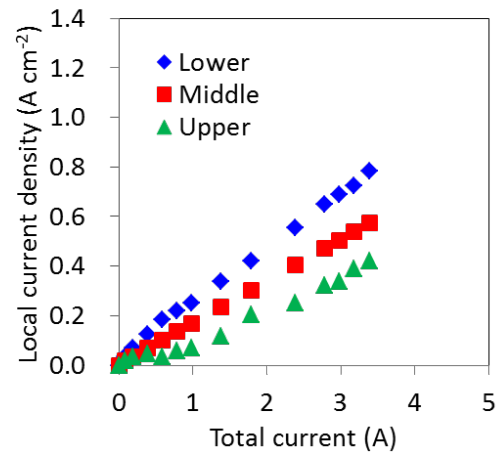


図9 電流分布 (H₂/N₂:40/160cc/min, Air: 2000 cc/min)

ことがわかった(図8, 9)。したがって、セルの有効利用や耐久性向上のためには、燃料濃度の最適化による出力と電流分布のバランスが重要となることがわかった。また、単セル出力と単セル長さ(面積)の最適化により出力と電流分布のバランスを設定する必要がある。

さらに、分割空気極を有するセルにより、高電流域で燃料消費が大きくなる場合に下流部での電流が減少していく様子が示された(図10)。これにより、温度計測から得られた電流分布と同様に、ガス供給の下流方向に向かって燃料枯れにより電流が減少する様子がわかった。以上から、従来報告例のほとんどない、温度計測による電流分布計測

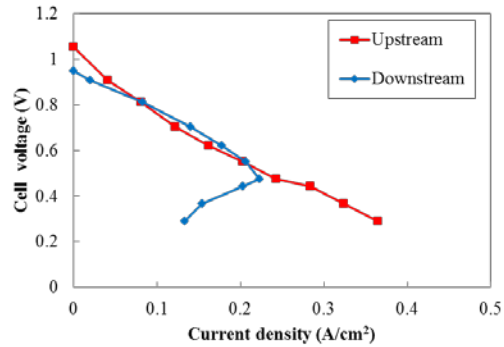


図 10 セル上流部および下流部における電流 (H₂/N₂:20/20cc/min, Air: 2000 cc/min)

解析手法の妥当性が示され、その確立ができた。

この手法により、実用 SOFC スタックの温度計測によって構成単セルの電流分布をリアルタイムで把握することができ、燃料供給や出力といった運転条件の最適化や、セル耐久性の向上、セル異常の検知が可能となる。また新型高性能高耐久セルスタック構造開発のツールとして有望であると考えられる。

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計 1 件)

Akira Shimizu, Hironori Nakajima, and Tatsumi Kitahara, Current Distribution Measurements in an Anode-Supported Microtubular Solid Oxide Fuel Cell, 13th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells(SOFC-XIII), 2013.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中島 裕典 (NAKAJIMA HIRONORI)

九州大学・工学研究院機械工学部門・助教
研究者番号：70432862

(2) 研究分担者

特にありません

(3) 連携研究者

特にありません