

固体酸化物形燃料電池(SOFC)のマクロ反応場の研究開発

1. はじめに

1839年のGrove卿による希硫酸電解質の燃料電池の成功後、1853年にはガラスや磁器を電解質とした、固体酸化物形燃料電池(Solid Oxide Fuel Cell: SOFC)の原型が提案されている。1897年にはNernstランプが発明され、固体酸化物フィラメント中でのイオン伝導も見出されている。爾来、SOFCは平板型、円筒型、円筒平板形等さまざまな形状で開発されてきている。SOFCは高温作動により、貴金属触媒なしでも十分な電気化学反応速度で内部抵抗を低く抑えての高効率発電が可能であり、水素に加え都市ガス、LPG、灯油等の炭化水素の改質燃料も比較的容易に使用できる燃料選択の自由度も高く、良質な高温排熱を有効利用できる高効率コージェネレーション機器でもあることから、家庭用、業務用、産業用電源として注目されている。これまで、電解質、電極材料等の要素技術について活発に研究開発が行われてきており、今後市場へのSOFCシステムの本格的な投入が加速する段階となつて、単電池(セル)を数十~数百個直列および並列に接続し所定の電力を得る、システムとしてのさらなる高効率化や耐久性向上が求められている。

本稿では、要素技術とシステム開発の橋渡しとなるような機械工学的観点から、SOFCのマクロ反応場の分布すなわちセル全体の電流(発電)分布とそれに起因する温度分布の研究およびマクロ反応場を三次元的に拡大する燃料極支持型ハニカム構造を有するSOFCの研究開発を紹介したい。

2. SOFCの電流分布および温度分布

SOFCでは、発電中の燃料ガス組成の分布により、電極全体が有効利用されず、また炭素析出による燃料極触媒性能低下や温度分布による熱応力に伴う熱機械的劣化が生じる。触媒が酸化還元により膨張収縮を繰り返し、セルの亀裂や、触媒微粒子のネットワーク切断による内部抵抗増大も進行する。

本研究では、実測に基づく研究例が非常に少ないSOFCの電流分布を、直接計測により得るため、燃料極(-極)を支持体として電解質を塗布、焼成後、空気極材料(+極)を3分割して塗布し焼成したマイクロ円筒型セルを作製している(図1)。単セルの電流電圧特性を模擬し、各分割電極を等電位に保ちながら制御することで、電流分布の計測に成功し、燃料流れ下流方向に、燃料欠乏に起因する電流の減少が観測できた(図1)⁽¹⁾。温度分布と電流分布の理論的な相関について、発電中の内部抵抗による電極電位の低下分(過電圧)に伴う不可逆的な発熱量と可逆的のエントロピー収支による熱の出入りを考慮した。後者は、電気化

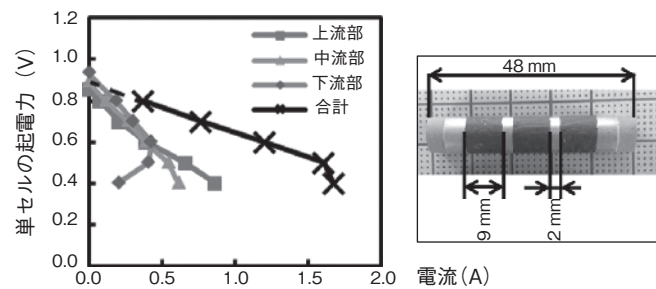


図1 分割空気極を有する燃料極支持マイクロ円筒型セルと燃料流れ方向の電流電圧特性(800℃ at 0A, 燃料利用率64% at 0.4V)。

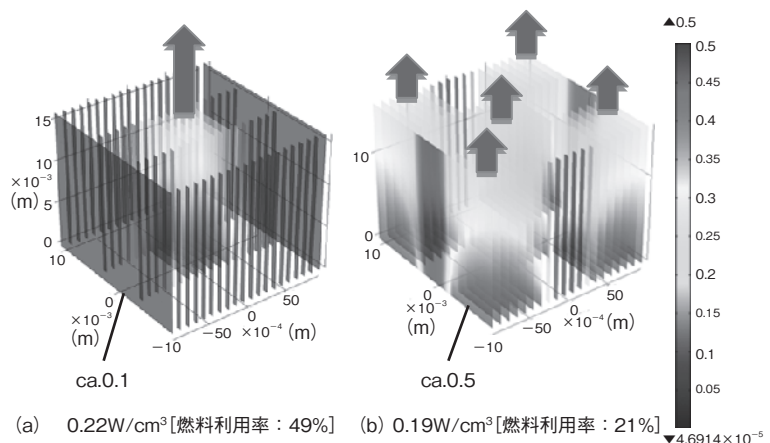


図2 セル内水素分圧分布(最大出力時)と流路配置の関係(850℃ at 0A)。矢印は燃料流路と流れ方向を示す。

学反応による電流に伴って熱輸送が起きる電気化学ペルチェ効果とも言え、熱力学データから得られる⁽²⁾。ここで熱伝導方程式を適用するとセル内の温度と電流の関係式が得られる。水素供給の場合、各部電流・温度の実測から、シンプルなモデルでもこの関係式の妥当性が得られた。よって、発電中のセル温度分布測定による電流分布解析法や実用システム用の電流分布診断法が開発できるのではないかと考えている。目下、本手法を、都市ガス供給を想定し改質メタン燃料供給時の電流分布および温度分布計測に展開しており、吸熱反応による温度低下を考慮することで、セル下流域で生成水増加や燃料中水素の消費によると考えられるメタン水蒸気改質の促進傾向が得られている。

3. 燃料極支持型ハニカム構造を有するSOFC

1980年代よりハニカム支持構造のSOFCは提案されてきているが、本研究では高出力が期待できるものの従来発電試験例のなかった、多孔質燃料極を支持体とするハニカムセルの発電特性と流路配置との相関を調べている。流路配置による最大出力の違いが観測され、有限要素法シミュレーションに

よる考察から、図2(a)のような比較的疎な燃料流路配置では(b)のような密な配置に比べ、1流路当たりの燃料分量を増加させやすくなることで十分な反応場が形成される傾向が得られた⁽³⁾。また(a)のセルでは、同材料、同作製法のマイクロ円筒型燃料極支持型セルに比べ、同燃料利用率において、5倍以上の最大体積出力密度が得られた。水素ガスが多孔質燃料極中を燃料流路から主に拡散によって広がり、反応場がハニカムセル中に拡張されるためと考えられる。スケールアップしたモデルにおいても同様に、マクロ反応場を拡大するために、多孔質ハニカム電極が有効であるとともに、流路配置の最適化により反応場を十分に確保することが可能となる。

(原稿受付 2014年6月10日)

[中島裕典 九州大学]

●文献

- (1) Shimizu, A., Nakajima, H. and Kitahara, T., Current Distribution Measurement of a Microtubular Solid Oxide Fuel Cell, *ECS Transactions*, 57-1 (2013), 727.
- (2) Nakajima, H., *Mass Transfer-Advanced Aspects*, (2011), Chapter 12, InTech.
- (3) Kotake, S., Nakajima, H., and Kitahara, T., Flow Channel Configurations of an Anode-Supported Honeycomb Solid Oxide Fuel Cell, *ECS Transactions*, 57-1 (2013), 815.