

学位論文題名

熔融炭酸塩形燃料電池 (MCFC) スタック性能解析による
実プラントの発電特性評価とシステムに関する研究

学位論文内容の要旨

熔融炭酸塩形燃料電池 (MCFC) は $600 \sim 700^{\circ}\text{C}$ 程度の高温で作動するため、ガスタービンとの複合発電を行うことにより高効率発電が可能である。また、 NO_x 、 SO_x 等の環境汚染物質の排出量が少ないこと等から、天然ガスや石炭ガス化ガス、並びに、廃棄物転換ガス等を燃料に用いた発電システムとして、国内外において研究・開発が進められている。MCFC 発電システムの実用化のためには、実プラントにおいて主要機器となるスタックの高性能化及び長寿命化が不可欠であり、これらの課題に向けたスタック構造の改良並びに発電試験が行われている。

スタックの発電試験では、スタックの性能評価を目的とした各セル電圧測定、スタック内部温度分布を把握するためのセパレータ板における温度測定、及び、スタック内部の発電状態を把握するためのガス組成分析により、発電性能評価並びに運転時の温度管理等を行ってきた。MCFC スタックにおいては、発電反応に関わる電気化学反応、複雑な形態の熱・物質移動、及び、セル間における熱応力等が相互作用を及ぼしており、スタックの長期に及ぶ安定した発電を行うためには、その内部状態を数値モデルにより解析し、スタック運転条件の管理及びスタック運転手法の確立を行うことが重要である。

スタック内部状態に関する数値解析モデルを作成するためには、起電部分における複雑な熱・物質移動体系をモデル化すること、及び、スタック内部における発熱量を定量化することが必要がある。これまで行われてきたスタック内部状態解析モデルに関する研究では、スタック内における発熱分布を一定とし、スタックを平行加熱平板として簡略化した取り扱いにとどまり、実スタックの発電特性の評価や、スタック内部の温度分布を把握することが出来なかった。

本研究では、スタック内部における熱・物質移動形態を詳細に表すモデルを提案するとともに、スタックと同一仕様で構成される単セル発電試験結果から導出された電池の性能表示式を、スタック内部の局所における電流対電圧特性に適用することにより、スタック運転条件とスタック発電性能、及び、スタック内部の温度分布の関係を明らかにし、実プラントである 10 及び 100kW スタックに適用できるモデルを構築した。また、作成したモデルを用い、スタック基本構造に関する最適化の検討、高積層スタックの異常発電状態についての発生要因とスタック内部状態に関する検討、及び、実スタックにおける発電特性や発電可能なガス条件の制約が発電システム全体の熱効率に与える影響について検討を行った。

本章は 7 章で構成されている。

第 1 章は序論であり、本研究の背景とスタック内部状態解析モデルの有効性を述べるとともに、本研究の目的と概要を述べた。

第 2 章では、MCFC の発電原理とスタックの構造について述べた後、スタック内部の熱・物質移動形態に関する詳細なモデルを作成した。スタック性能及びスタック内部にお

ける発熱分布の定式化には、スタックと同一仕様の単セル試験から導出された性能表示式をスタック局所における電流対電圧の関係に適用し、スタック内部のガス組成分布、温度分布、及び電流密度分布とスタック発電性能の関係を明確化した。また、起電部分の発熱分布に関する解析精度を検討するため、電極及び電解質板内部での発熱量について、アノード及びカソードの単極毎に分離し、エントロピー輸送が電解質内部の温度分布に与える影響を評価した。その結果、電流密度が $3000\text{A}/\text{m}^2$ 程度以下、電解質板の熱伝導率が $2\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ 程度以上であれば、スタック内部における発熱分布はセル平面内の2次元方向のみに分布すると仮定しても、高い解析精度が得られることを明らかにした。

第3章では、実プラントである 10 kW 級スタックについて、数値モデルを適用した発電特性評価を行い、スタックの平均電圧と積層方向中心セルの温度分布について実測値と解析値の良好な一致を確認した。また、スタックホルダー部分における熱伝導効果を解析モデルに加えることにより、スタックの上下端近傍におけるセパレータ温度分布の実測値を精度良く表すことが可能であることを確認した。これらの実プラントにおけるスタック発電性能及び温度分布についての実測値及び解析値の比較から、本スタック内部状態解析モデルの有効性を明らかにした。

第4章では、実プラントを構成するスタックの基本構造としてガス流れ方式に着目し、3つの平行流型スタック及び2つの直交流型スタックの発電性能及び温度分布について、スタック内部状態解析モデルを適用した発電特性評価を行い、各ガス流れ方式を有するスタックについて性能比較を行った。その結果、スタック出力からカソードガスリサイクルブローアの動力を差し引いた正味の出力が最も高いこと、及び、スタック内部における最高温度の監視が容易であることから、外部改質型MFCスタックの場合、並行流型が有利であることを明らかにした。

第5章では、 100 kW 級実プラントの高積層スタックについて、スタック内部状態解析モデルを適用した発電特性評価を行った。特に、スタック発電試験時に観測されたセル面内における特異な電圧分布の要因について解析を行い、セルの部分的な内部抵抗の上昇が、セル面内における特異な電圧分布を発生させる一因になることを明らかにした。また、特定のセルへの燃料供給が不十分となった場合のセル面内電圧分布は、部分的な内部抵抗の上昇に起因する電圧分布とは定性的に異なることを明らかにした。

第6章では、スタック発電特性がMFC発電システム全体に与える影響を解析すること、及び、スタックの発電限界条件を考慮したシステム設計が可能となるよう、スタック内部状態解析モデルをシステム熱効率解析に適用した。特に、①アノード入口部における炭素非析出条件、②アノード出口における水素濃度下限値として $1\text{mol}\%$ 、③カソード入口部における炭酸ガス分圧上限値として 0.1MPa 、④カソード圧力損失の上限値として 3kPa の値を、それぞれスタックの発電可能なガス条件として設定したシステム熱効率解析を行った。その結果、天然ガスを燃料としたシステムにおいて、回転数制御型の空気圧縮機を適用した場合、幅広い負荷範囲において従来まで提案されているシステムより高い熱効率を示すことを明らかにした。また、石炭ガス化ガスを燃料としたシステムにおいて、シフト反応が未平衡状態となった場合、アノード熱交換システムにおける燃料利用率は、アノードガスリサイクルシステムにおける燃料利用率より高く設定することが可能であり、アノード熱交換システムのガス条件がスタック発電に有利であることを明らかにした。

第7章では、本研究の結論を取り纏めるとともに、今後の展望について述べた。

以上

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 菱 沼 孝 夫

副 査 教 授 工 藤 一 彦

副 査 教 授 池 川 昌 弘

学 位 論 文 題 名

熔融炭酸塩形燃料電池 (MCFC) スタック性能解析による 実プラントの発電特性評価とシステムに関する研究

燃料電池は高効率システムの可能性があり、大気汚染もないことから多くの方式が国内外で開発途上にある。その中でも高温型である熔融炭酸塩形燃料電池 (MCFC) はガスタービンとの複合発電を行うことにより 50%以上の効率を得ることが出来ることから分散電源として実用化が急がれている。地球温暖化防止のための炭酸ガス排出量削減にはエネルギー消費の大半を占める発電プラントの一層の効率向上が必要であり、燃料電池の実用化はエネルギーの高効率利用に大きく貢献すると考えられる。燃料電池の原理が発明されてから 1 世紀以上経過しているが実用化されたのは宇宙用電源に限られており、実用化は今後の開発にかかっている。MCFC に関する研究は国内外で開発が行われている。我が国においても 1980 年代から本格的開発が始まり、数、数十、数百 kW クラスの電池が開発され、分散電源の一つとして実用化されようとしている。電池は電解質として Li および Na の炭酸塩を含浸したマトリックスを Ni および NiO の多孔質体より成るアノードおよびカソードでサンドイッチし更に両側をガスの流路形成と集電のためのセパレーターより単セルが構成され、多層積層することにより電力を得ている。実用化にとって電池の高性能化と長寿命化が重要な課題であり、電池構造の改良及び発電試験による性能評価が行われ電気化学からの検討が行われているが、複雑な構造におけるガス流れと伝熱を含めた熱・物質移動と電池システムとしての検討はほとんど行われていなかった。

本研究は電池スタック内部における熱・物質移動現象を単セル試験により解明し、その結果に基づく 3 次元シミュレーションモデルを提案した。本モデルを実用プラントである 10 及び 100 kW スタックに適用し電池スタックの運転条件と電池発電性能及び内部の温度分布との関係を明らかにすることが出来た。さらにガス流れ、電池高積層スタックの基本構造、天然ガス改質および石炭ガス化燃料電池システムに関する最適化の検討を行い、高効率プロセスを提案している。本論文の結論を纏めると下記の通りになる。

1. 単セル試験に基づく電池内部の熱・物質移動に関するシミュレーションモデルを提案し、ガス組成分、温度及び電流密度分と発電性能との関係を明らかにした。アノ

ードおよびカソードでの発熱量を比較した結果、電流密度 $3000\text{A}/\text{m}^2$ 以下電解質の熱伝導が $2\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 以上であれば両者は区別する必要が無く電池セル平面内の 2 次元でとり扱うことが出来る。

2. シミュレーションモデルを 3 次元に拡張し、解析結果と 10, 100 kW 積層電池試験結果と比較したところ、スタックの平均電圧と積層方向中心セルの温度分布は良い一致を示す。
3. 電池スタックの基本構造としてカソードとアノードのガスの流れ方向について平行流と直交流についてシミュレーションにより検討したところ、平行流方式において温度分布がより均一となるため発電性能が優れている。
4. 100kW 高積層電池の試験で電流密度の異常な低下が認められた。電池性能のシミュレーション結果、熱応力などによる接触抵抗の増加がセルの部分的な内部抵抗の上昇させることを明らかにした。
5. 燃料として天然ガスを改質することにより水素を燃料電池に供給する天然ガス外部改質型燃料電池システムおよび石炭をガス化し水素を供給する石炭ガス化燃料電池システムについてシミュレーションし負荷変動に対して高い効率を維持する最適プロセスを提案した。

以上のように本論文は熔融炭酸塩形燃料電池において熱・物質移動に関するシミュレーションモデルを提案し、実プラントに適用し、実証することによって、その実用化のための設計の指針を与えたものであり、熱工学、エネルギー変換工学に対して貢献するところ大なるものがある。

よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。