



Title	燃料電池・ガスタービンエネルギーシステムの最適化 及び要素性能の高度化に関する研究
Author(s)	西田, 耕介
Citation	大阪大学, 2004, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/1654
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

燃料電池・ガスタービンエネルギーシステムの
最適化及び要素性能の高度化に関する研究

平成 15 年

西 田 耕 介

目 次

第 1 章 緒 論	1
1.1 緒 言	1
1.2 従来の研究	2
1.2.1 水噴射，蒸気噴射ガスタービンシステムに関する研究	2
1.2.2 固体酸化物形燃料電池・ガスタービン複合発電システムに関する研究	3
1.2.3 燃焼におけるエントロピー生成解析	4
1.2.4 固体酸化物形燃料電池の開発動向と性能解析	4
1.3 本研究の目的と各章の概要	5
第 2 章 再生型蒸気噴射ガスタービンシステムの性能解析	17
2.1 緒 言	17
2.2 記 号	19
2.3 解析条件および手法	19
2.4 水噴射ガスタービンシステムの性能解析	21
2.4.1 系統図	21
2.4.2 熱効率および比出力による性能評価	24
2.5 再生型蒸気噴射ガスタービンシステムの性能解析	24
2.5.1 系統図	25
2.5.2 熱効率および比出力による性能評価	27
2.5.3 蒸気流量の変化に伴う性能特性	27
2.6 エクセルギー評価	30
2.7 再生型蒸気噴射ガスタービン熱電可変システム	32
2.7.1 熱電可変システム系統図	33
2.7.2 熱電可変システムの熱および電力の出力特性	33
2.8 結 言	35
第 3 章 固体酸化物形燃料電池・ガスタービン複合発電システムの性能解析	39
3.1 緒 言	39

3.2	記 号	40
3.3	システムの構成と解析条件	41
3.4	標準型 SOFC-GT 複合システム	42
3.4.1	系統図	42
3.4.2	熱効率による性能評価	44
3.5	内部熱回収型 SOFC-GT 複合システム	46
3.5.1	系統図	47
3.5.2	熱効率による性能評価	48
3.6	多段型 SOFC-GT 複合システム	49
3.6.1	2 段型 SOFC-GT 複合システム系統図	49
3.6.2	2 段型システムの熱効率による性能評価	50
3.6.3	3 段型 SOFC-GT 複合システム系統図	52
3.6.4	3 段型システムの熱効率による性能評価	55
3.7	エクセルギー評価	56
3.8	結 言	57
第 4 章	燃焼過程におけるエントロピー生成の解析	61
4.1	緒 言	61
4.2	記 号	62
4.3	基礎方程式	63
4.3.1	燃焼の数値計算に用いる基礎式	63
4.3.2	エントロピー保存式	63
4.4	解析手法および条件	65
4.5	層流予混合火炎におけるエントロピー生成解析	65
4.5.1	水素燃料の火炎におけるエントロピー生成	65
4.5.2	メタン燃料の火炎におけるエントロピー生成	67
4.5.3	当量比のエントロピー生成に及ぼす影響	69
4.5.4	流入温度のエントロピー生成に及ぼす影響	69
4.5.5	燃焼過程におけるエクセルギー損失	72
4.6	層流拡散火炎におけるエントロピー生成解析	73
4.7	結 言	76
第 5 章	固体酸化物形燃料電池の内部プロセス解析とエクセルギー損失評価	79
5.1	緒 言	79
5.2	記 号	80

5.3	解析対象	82
5.4	基礎方程式	83
5.4.1	セル内の濃度分布および温度分布	83
5.4.2	理論起電力およびセル電圧	84
5.4.3	濃度分極	84
5.4.4	活性化分極	85
5.4.5	抵抗分極	85
5.4.6	熱効率	85
5.5	エントロピー保存式	85
5.5.1	電極，電解質内部のエントロピー保存式	86
5.5.2	電極・電解質界面でのエントロピー生成	86
5.6	解析手法	87
5.7	境界条件	87
5.8	電極，電解質内部の温度分布および濃度分布	88
5.9	作動条件のセル性能に及ぼす影響	90
5.10	電極，電解質のエントロピー生成とエクセルギー損失	94
5.10.1	電極，電解質内部におけるエントロピー生成	94
5.10.2	電極・電解質界面のエントロピー生成	96
5.10.3	エクセルギー損失評価	96
5.11	結 言	98
第 6 章	円筒型内部改質 SOFC の性能解析	101
6.1	緒 言	101
6.2	記 号	102
6.3	解析対象	104
6.4	基礎方程式	106
6.4.1	改質器および燃料，空気流路	106
6.4.2	セルの電極，電解質内部	108
6.5	解析手法および条件	110
6.6	結果および検討	112
6.6.1	改質器および燃料，空気流路内の温度，濃度分布	112
6.6.2	電極内のガス濃度分布	115
6.6.3	理論起電力，セル電圧および分極の分布	115
6.6.4	電流密度分布	115

6.6.5	単セルの性能	115
6.6.6	改質器触媒密度がセルの性能に及ぼす影響	118
6.7	結 言	121
第 7 章	結 論	125
謝 辞		129

第 1 章

緒 論

1.1 緒 言

大量のエネルギー消費による化石燃料の枯渇や二酸化炭素の排出による地球温暖化など，前世紀が残したエネルギー・環境問題に直面する 21 世紀の人類にとって，エネルギー供給の安定化や環境保全は最重要課題である．我が国における主要エネルギーの大部分は大規模発電システムからの電力供給によるが，従来型大型発電所は，電力の最大需要地である都市部から離れた遠隔地に集中して立地しているため，電力を供給する際に送配電損失が発生すること，発電所の排熱を利用しようとしても熱の長距離輸送が困難であることなど，エネルギー有効利用の面で課題を抱えている．このような背景の中，現在分散型エネルギーシステムが注目されている．分散型エネルギーシステムとは，電力需要地の近辺に設置された小規模電源による発電システムで，発電装置からの排熱を蒸気や温水の形で給湯，空調などに有効利用することが可能となること，送配電損失の低減が図れることなどの特徴を有する．また，電力需要には日格差，年格差，地域差があり，小規模地域あるいは家庭ごとで負荷変動に柔軟に対応できる利点がある．分散型システムの発電装置にはマイクロガスタービンや燃料電池などがあげられ，実用化および高性能化に向けて研究，開発が進められている．

マイクロガスタービン（Micro gas turbine，以下 MGT と略記する）とは，慣例として発電出力が 300kW 程度以下のものを総称しているが，近年では小型化が進み，30～100kW 級 MGT の普及が進展している^[1]．MGT の発電効率は，再生サイクルを採用することにより 25～30%（LHV）に達し，小型ガスタービンとしては比較的高い発電効率が期待できる．また，タービンの排熱から温水を取り出すなどコージェネレーションシステムとして利用すれば，総合熱効率は 70～80%に達し，大型火力発電所で採用されるコンバインドサイクル発電の発電効率を大幅に上回る．一方，燃料電池は従来の熱機関に比べて発電効率高く，環境適合性に優れていることから，将来の水素エネルギー社会をターゲットにしたエネルギー変換装置としての可能性がある．燃料電池は電解質の種類によって，固体高分子

形 (PEFC)，リン酸形 (PAFC)，熔融炭酸塩形 (MCFC)，固体酸化物形 (SOFC) に分類され，それぞれ利用方法が異なる．PEFC は低温作動のため起動が早く，出力密度が高いため小型軽量化が可能となり，自動車用動力源あるいは家庭用小型コージェネレーションシステムの電源として利用できる．MCFC や SOFC は高温作動のため排熱を利用することができ，MGT との複合発電により高効率分散型システムの実現が可能となる．米国エネルギー省 (U.S. DOE) の NETL (National Energy Technology Laboratory) は，環境負荷低減及び高効率化による 21 世紀の電力供給システムの確立を目的とした Vision 21 プログラムの中で，発電効率 75% (LHV，天然ガス使用) の発電プラントの実現を目指し，燃料電池・ガスタービンハイブリッドシステムの研究，開発を進めている [2,3] ．

分散型発電を主目的とする MGT や燃料電池を利用した小規模エネルギーシステムの開発およびその高性能化の要請を受け，本研究では，(1) 従来のガスタービンシステムよりも高性能なシステムを提案し，その検証を行うこと，(2) システムの主要要素である燃焼器および燃料電池の高度化のための指針を示すことを目的として以下の研究を行う．

1. 再生型蒸気噴射ガスタービンシステムの性能解析
2. 固体酸化物形燃料電池・ガスタービン複合発電システムの性能解析
3. 燃焼過程におけるエントロピー生成の解析
4. 固体酸化物形燃料電池の内部プロセス解析とエクセルギー損失評価
5. 円筒型内部改質 SOFC の性能解析

1, 2 の研究では，小型ガスタービンシステムとして再生型蒸気噴射ガスタービンシステム，燃料電池をトッピングとするガスタービンシステムとして固体酸化物形燃料電池 (SOFC)・ガスタービン複合発電システムにそれぞれ着目し，既存のシステムよりも高性能なシステム構成を提案し，性能解析を行う．3, 4 の研究では，燃焼および SOFC における内部プロセスを解析し，非平衡熱力学に基づいたエントロピー生成解析により，要素内部で損失が生じる要因を究明する．5 の研究では，SOFC 単セルの内部に改質器を組み込ませた円筒型内部改質 SOFC について性能解析を行い，電極反応による発熱と改質反応による吸熱の熱需給の最適化を図る．

1.2 従来の研究

1.2.1 水噴射，蒸気噴射ガスタービンシステムに関する研究

水噴射，蒸気噴射ガスタービンシステムは，水あるいは蒸気をガスタービンの作業流体中に添加し，出力を増加させることを目的としたシステムである．比較的簡便なシステム構成で単純や再生サイクルよりも高い発電効率を期待することができるため，小規模で電

気を多く利用することを目的とする高発電効率小型ガスタービンシステムに適すると考えられる。

水あるいは蒸気をガスタービンの作業流体に添加する蒸気混入型ガスタービンシステムは、これまでに様々な型式が提案されており、多くのシステム解析が行われてきた^[4-32]。水をガスタービン作業流体に添加するシステムでは、HAT (Humid air turbine) サイクル^[4-16]、RWI (Recuperated water injected) サイクル^[5, 13, 17-19]、EGT (Evaporative gas turbine) サイクル^[20]、REVAP (Regenerative evaporation) サイクル^[21]、MAT (Moisture air turbine) サイクル^[22] などがある。一方、蒸気を作業流体に添加するシステムでは、タービン下流の排熱ボイラで生成した過熱蒸気を燃焼器に噴射し、単純サイクルの出力および効率の向上を目的とした STIG (Steam injected gas turbine) サイクルと呼ばれる蒸気噴射システムがあり、従来から性能解析や経済性評価など多くの研究が行われてきた^[8, 9, 13, 23-29]。再生熱交換器を有する蒸気噴射システムでは、DRIASI (Dual recuperated intercooled aftercooled steam injected) サイクル^[30] や部分再生二流体ガスタービンシステム (Partial regenerative dual fluid gas turbine system)^[31] が提案されている。Wang ら^[32] は STIG サイクルに吸気冷却、再生サイクルを導入したシステムの解析を行っている。

また、実機のガスタービンに STIG サイクルが導入されたものとして、General Electric (GE) LM-5000、LM-2500、Allison 501-KH などがある^[25, 29, 33, 34]。

1.2.2 固体酸化物形燃料電池・ガスタービン複合発電システムに関する研究

高温型燃料電池である固体酸化物形燃料電池 (Solid oxide fuel cell, 以下 SOFC と記す) は作動温度が約 900 ~ 1000 °C であり、その作動温度がガスタービン入口温度 (TIT) に近いいため、SOFC とガスタービンを複合した高効率発電システムを構成することが可能となる。

SOFC・ガスタービン複合発電システム (以下、SOFC-GT 複合システムと略記する) に関しては、これまでに多くの性能解析が行われている^[35-57]。SOFC-GT 複合システムの性能が、システムおよび SOFC の作動条件に大きく影響されることから、Palsson ら^[35]、Massardo ら^[36]、森ら^[37] はシステムの圧力比や空気比、タービン入口温度 (TIT)、SOFC の入口温度や燃料利用率がシステムの効率に及ぼす影響を検討している。また、材料の制約、寿命、コスト面から SOFC の作動温度の低温化が進められており、Palsson ら^[38] は、低温型 SOFC-GT 複合システムを対象として解析を行っている。

システムの構成については、高効率化のための構成として HAT、STIG サイクルと組み合わせた SOFC-HAT システム^[39, 40]、SOFC-STIG システム^[36, 40-42]、蒸気タービン (ST) サイクルを導入した SOFC-GT/ST システム^[36, 40, 43]、再熱を行う RH (Reheat)-SOFC-GT システム^[44, 45] などが提案されている。また、Campanari ら^[46] は排熱回収としてヒートポンプを設置した SOFC-GT-HP システム、波江ら^[47] や Riensche ら^[48] は、排ガス中の CO₂

の分離を目的とする SOFC-GT 複合システムの解析を行っている．SOFC の構造においても，アノードガスおよびカソードガスの再循環^[42, 43, 47, 49-53] やセルを直列に連結するスタック構造^[54] などにより高性能化が図られている．円筒型 SOFC の場合には，セルの内部に空気予熱のための流路が設けられており，効率的な熱の需給を行う構造を持つ^[51-53] ．

一方，分散型エネルギーシステムとしてマイクロガスタービン（MGT）の開発，普及が進められていることから，MGT との組み合わせによる SOFC-MGT 複合システムを対象とした解析も行われている^[46, 51-53, 55] ．SOFC-MGT 複合システムにおける部分負荷特性も解析されており^[51-53, 56, 57] ，部分負荷運転時でも高い発電効率が期待できることを明らかにしている．Siemens-Westinghouse 社は，220kW（SOFC 出力 176kW，GT 出力 47kW）SOFC-GT 複合システムの実証プラントの試運転を行っており^[58, 59] ，発電効率は 57%（LHV）に達している．

1.2.3 燃焼におけるエントロピー生成解析

エネルギーシステムの各構成要素における熱，物質の輸送や反応過程を解析し，要素内部におけるエントロピー生成を分析することにより，システム高性能化のための指針を示すことができる．これまでに熱交換器や燃焼器等の熱機器における不可逆損失の低減のための形状，作動条件の最適化が行われてきた．

Bejan^[60] は，チャンネル内対流熱伝達における熱伝導，粘性に起因するエントロピー生成を解析し，熱伝達による不可逆損失の評価および低減のための解析手法を考案した．また，エントロピー生成の最小化手法を熱交換器の設計に適用し，最適な流路の経路長を求めている^[61] ．San ら^[62] は平行平板間の流れ，Poulikakos ら^[63] は平板上および円柱回りの流れを対象とし，熱伝導，粘性，物質拡散に起因するエントロピー生成を解析し，流れ場の形状の最適化によるエントロピー生成の最小化を行っている．

燃焼過程におけるエントロピー生成の解析も行われている^[64-69] ．Puri^[64] ，Hiwase ら^[65] は液滴燃焼，Datta ら^[66] は噴霧燃焼，Arpaci ら^[67] は平面火炎におけるエントロピー生成およびエクセルギー損失の解析を行っており，エクセルギー損失を低減させるための燃焼を制御するパラメータを検討している．Datta ら^[68] は，層流拡散火炎におけるエントロピー生成速度を解析し，入口空気温度および空燃比がエントロピー生成に及ぼす影響を分析している．その結果，拡散火炎のエクセルギー損失の大部分が温度勾配による熱伝導に起因することを明らかにしている．Dunbar ら^[69] は，拡散火炎におけるエクセルギー損失の約 75%が熱伝導に起因することを示している．

1.2.4 固体酸化物形燃料電池の開発動向と性能解析

固体酸化物形燃料電池（SOFC）は分散型エネルギーシステムにおけるエネルギー変換装置として，現在注目されている．SOFC は他の燃料電池と比べて発電効率が高く，作動

温度が約 1000℃ と高いので電極触媒を必要としない。また、電池の排熱を利用して燃料の内部改質を行うことが可能である。

現在開発されている SOFC は、幾何学的な形状により円筒型、平板型、モノリス型に分類される^[70-73]。円筒型 SOFC には長い円筒状の単セルを複数本束ねて並列に接続する円筒縦編型と、1 本の支持管上に複数の短い円筒状の単セルを直列に接続する円筒横編型の 2 種類のセルがあり、円筒縦編型は Siemens-Westinghouse 社^[72, 74, 75]、円筒横編型は三菱重工^[76]によってそれぞれ開発が進められている。平板型 SOFC は Ztec, SOFCo, Siemens, Sulzer Hexis, Rolls Royce, Global Thermoelectric, Ceramic Fuel Cells Ltd 等多数のメーカーによって開発されており^[71, 77-81]、その構造は平面状のインタコネクタの両面に燃料、空気供給用の溝を設け、そのインタコネクタで平板セルを挟み、多数段積層してスタックを構成する。Sulzer Hexis は小型コージェネレーションシステム用として 1kW 級円盤型 SOFC を製作している^[71, 78, 79]。Allied Signal 社^[82, 83]、三菱重工^[84]が開発しているモノリス型（一体型）は平板型的一种で、波状の燃料極/電解質/空気極 3 層一体膜を平板のインタコネクタで挟み積層する並行流型と、平板状の電極、電解質板を波状のセパレータで挟み積層する直交流型の 2 種類の構造がある。

SOFC の高性能化のため、これまでにセルの性能特性や内部の熱、物質、電子等の輸送現象に関する数値解析が行われてきた^[85-93]。Campanari^[85]、Nagata ら^[86]、Boersma ら^[87]は円筒型 SOFC を対象とし、作動条件がセルの性能に及ぼす影響や、内部改質がセルの出力特性や内部の温度分布に及ぼす影響を分析している。Achenbach^[88]、Iwata ら^[89]、Yakabe ら^[90, 91]は平板型 SOFC を対象とし、チャンネルが直交流、並行流、対向流の場合について、それぞれセルの性能や内部の温度、濃度、電流密度分布を解析している。また、Ferguson ら^[92]は、円筒型、平板型、円盤型各セルの性能を比較し、形状やそのパラメータが性能に及ぼす影響を分析している。Aguilar ら^[93]は円筒型 SOFC において、間接内部改質を行った場合の改質反応と電極反応の熱需給について検討している。

1.3 本研究の目的と各章の概要

本研究では、小規模エネルギーシステムの開発およびその高性能化の要請を受け、再生型蒸気噴射ガスタービンシステムと固体酸化物形燃料電池 (SOFC)・ガスタービン複合発電システムに着目し、従来型システムよりも高性能なシステム構成を提案し、性能解析を行う。また、エクセルギー解析に基づいてシステム各構成要素のエクセルギー損失を評価することにより、本研究で考案したシステムが既存のシステムに比べて高効率となる原因を示し、高性能エネルギーシステムの構築のための指針及び性能の限界を明らかにする。

また、小型ガスタービンや燃料電池・ガスタービン複合システムでは、主要要素である

燃焼器，燃料電池のエクセルギー損失が支配的となることから，燃焼および SOFC における内部プロセスを解析し，要素内部で損失が生じる要因を究明する．本解析では，内部プロセス解析と非平衡熱力学に基づいたエントロピー生成解析を組み合わせ，熱伝導，物質拡散，反応，電子，イオンの輸送の各プロセス単位で燃焼，SOFC 内部のエクセルギー損失を定量的に分析する手法を確立し，要素性能の高度化のための基本的指針を明らかにする．

さらに，SOFC 単セルに改質器を組み込んだ円筒型内部改質 SOFC について性能解析を行い，改質器の触媒密度を制御することで電極反応による発熱と改質反応による吸熱の熱需給の最適化を図るなど，高性能 SOFC の開発のための可能性を追求する．

本論文の構成および概要は次の通りである．

第 2 章では，再生サイクルを蒸気噴射ガスタービンシステムに導入した再生型蒸気噴射ガスタービンシステムを解析し，圧力比や蒸気流量がシステムの熱効率や比出力に及ぼす影響を評価する．また，エクセルギー解析により従来型システムの性能と比較し，効率向上のためのシステムの構成方針を示すことによって，再生型蒸気噴射システムが高効率小型ガスタービンシステムとして優れた性能を持つことを明らかにする．さらに，再生型蒸気噴射ガスタービンシステムを熱電可変システムとして適用した場合について，システムにおける熱と電力の出力内訳や総合効率を評価する．

第 3 章では，SOFC・ガスタービン複合システム高効率化のための複合方式として多段型複合方式を提案し，提案システムおよび従来から検討されているシステムについて性能の定量的評価・比較を行う．熱効率による性能評価では，圧力比およびタービン入口温度 (TIT) がシステムの熱効率に及ぼす影響を示し，最高効率を得るための方針を示す．また，エクセルギー解析により，各々のシステム各要素でのエクセルギー損失特性を定量的に評価し，複合方式改善によるシステム高性能化の原因や方針およびその効果を明らかにする．

第 4 章では，層流予混合および拡散火炎を対象として，燃焼場におけるエントロピー生成を粘性消散，熱伝導，物質拡散，反応の各過程ごとに解析し，それぞれの過程が燃焼におけるエントロピー生成に及ぼす影響を評価する．燃焼のエクセルギー損失に寄与する過程を特定し，またその特性が火炎の構造や燃料の種類，当量比および流体の流入温度によって異なることを明らかにすることにより，エクセルギー損失低減のための方針を示す．

第 5 章では，SOFC の電極，電解質内部における熱伝導，物質拡散，酸素イオン・電子の輸送および単極反応の各プロセスを解析し，セル内部の温度分布およびガス成分の濃度分布を示す．また，温度，圧力，ガス濃度がセルの熱効率，端子電圧に及ぼす影響も示す．さらに，エントロピー生成およびエクセルギー損失を解析することにより，電極，電解質内部でエクセルギーが損失する原因を明らかにする．

第 6 章では，円筒型セルの内部に改質器を組み込んだ円筒型内部改質 SOFC を対象として，熱，物質，イオン，電子の移動および改質，電極反応過程を解析し，セル内部の温度，

濃度，電位，電流密度分布を明らかにする．また，セル内部で急激な温度勾配が生じるのを防ぐため，改質器の触媒密度を下げた場合について解析し，セル内部の濃度，温度分布を示す．

第7章では，本研究で得られた結論を総括する．

文 献

- [1] 石井国義, マイクロガスタービンシステム, オーム社, 2002.
- [2] Dennis, R., Samuelsen, S., Williams, M., Holcombe, N. and Layne, A., “The National Energy Technology Laboratory’s Hybrid Power Systems Program”, *ASME Paper*, GT-2002-30668, 2002.
- [3] Rao, A. D., Robson, F. L. and Geisbrecht, R. A., “Power Plant System Configurations for the 21st Century”, *ASME Paper*, GT-2002-30671, 2002.
- [4] Rao, A. D., “Process for Producing Power”, US patent, No.7829763, 1989.
- [5] Chiesa, P., Lozza G., Macchi, E. and Consonni, S., “An Assessment of the Thermodynamic Performance of Mixed Gas-Steam Cycles: Part B – Water-Injected and HAT Cycles”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.117, pp.499–508, 1995.
- [6] Xiao, Y., Cai, R. and Lin, R., “Modeling HAT Cycle and Thermodynamic Evaluation”, *Energy Conversion and Management*, Vol.38, No.15–17, pp.1605–1612, 1997.
- [7] Gallo, W. L. R., Bidini, G., Bettagli, N. and Facchini, B., “Effect of Turbine-Blade Cooling on the HAT (Humid Air Turbine) Cycle”, *Energy*, Vol.22, No.4, pp.375–380, 1997.
- [8] Gallo, W. L. R., “A Comparison between the HAT Cycle and Other Gas-Turbine Based Cycles: Efficiency, Specific Power and Water Consumption”, *Energy Conversion and Management*, Vol.38, No.15–17, pp.1595–1604, 1997.
- [9] Jordal, K. and Torisson, T., “Comparison of Gas Turbine Cooling with Dry Air, Humidified Air and Steam”, *ASME Paper*, 2000-GT-169, 2000.
- [10] 伊藤猛宏, 山口朝彦, 杉田成久, “HAT サイクルの熱力学的評価”, 日本機械学会論文集 (B 編), Vol.63, No.607, pp.1111–1118, 1997.

- [11] Kim, T. S., Song, C. H., Ro, S. T. and Kauh, S. K., “Influence of Ambient Condition on Thermodynamic Performance of the Humid Air Turbine Cycle”, *Energy*, Vol.25, pp.313–324, 2000.
- [12] Lazzaretto, A. and Segato, F., “Thermodynamic Optimization of the HAT Cycle Plant Structure – Part I: Optimization of the “Basic Plant Configuration” ”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.123, pp.1–7, 2001.
- [13] Traverso, A. and Massardo, A. F., “Thermoeconomic Analysis of Mixed Gas-Steam Cycles”, *Applied Thermal Engineering*, Vol.22, pp.1–21, 2002.
- [14] Parente, J., Traverso, A. and Massardo, A. F., “Saturator Analysis for an Evaporative Gas Turbine Cycle”, *Applied Thermal Engineering*, Vol.23, pp.1275–1293, 2003.
- [15] Parente, J., Traverso, A. and Massardo, A. F., “Micro Humid Air Cycle Part A: Thermodynamic and Technical Aspects”, *ASME Paper*, GT2003-38326, 2003.
- [16] Parente, J., Traverso, A. and Massardo, A. F., “Micro Humid Air Cycle Part B: Thermoeconomic Analysis”, *ASME Paper*, GT2003-38328, 2003.
- [17] El-Masri, M. A., “A Modified, High-Efficiency, Recuperated Gas Turbine Cycle”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.110, pp.233–242, 1988.
- [18] Camporeale, S. M. and Fortunato, B., “Performance of a Mixed Gas-Steam Cycle Power Plant Obtained Upgrading an Aero-Derivative Gas Turbine”, *Energy Conversion and Management*, Vol.39, No.16–18, pp.1683–1692, 1998.
- [19] Camporeale, S. M. and Fortunato, B., “Aero-Thermodynamic Simulation of a Double-Shaft Industrial Evaporative Gas Turbine”, *ASME Paper*, 2000-GT-171, 2000.
- [20] Horlock, J. H., “The Evaporative Gas Turbine [EGT] Cycle”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.120, pp.336–343, 1998.
- [21] De Ruyck, J., Bram, S. and Allard, G., “REVAP Cycle: A New Evaporative Cycle without Saturation Tower”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.119, pp.893–897, 1997.
- [22] Utamura, M., Takehara, I. and Karasawa, H., “MAT, A Novel, Open Cycle Gas Turbine for Power Augmentation”, *Energy Conversion and Management*, Vol.39, No.16–18, pp.1631–1642, 1998.

- [23] Fraize, W. E. and Kinney, C., “Effects of Steam Injection on the Performance of Gas Turbine Power Cycles”, *ASME J. of Engineering for Power*, Vol.101, pp.217–227, 1979.
- [24] Brown, D. H. and Cohn, A., “An Evaluation of Steam Injected Combustion Turbine Systems”, *ASME J. of Engineering for Power*, Vol.103, pp.13–19, 1981.
- [25] Larson, E. D. and Williams, R. H., “Steam-Injected Gas Turbines”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.109, pp.55–63, 1987.
- [26] Macchi, E., Consonni, S., Lozza, G. and Chiesa, P., “An Assessment of the Thermodynamic Performance of Mixed Gas-Steam Cycles: Part A – Intercooled and Steam-Injected Cycles”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.117, pp.489–498, 1995.
- [27] Rice, I. G., “Steam-Injected Gas Turbine Analysis: Steam Rates”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.117, pp.347–353, 1995.
- [28] Krause, A., Tsatsaronis, G. and Sauthoff, M., “On the Cost Optimization of a District Heating Facility Using a Steam-Injected Gas Turbine Cycle”, *Energy Conversion and Management*, Vol.40, pp.1617–1626, 1999.
- [29] De Paepe, M. and Dick, E., “Technological and Economical Analysis of Water Recovery in Steam Injected Gas Turbines”, *Applied Thermal Engineering*, Vol.21, pp.135–156, 2001.
- [30] Bolland, O. and Stadaas, J. F., “Comparative Evaluation of Combined Cycles and Gas Turbine Systems with Water Injection, Steam Injection and Recuperation”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.117, pp.138–145, 1995.
- [31] 宇治茂一, “部分再生二流体ガスタービンシステム”, 日本機械学会論文集 (B 編), Vol.66, No.648, pp.2200–2208, 2000.
- [32] Wang, F. J. and Chiou, J. S., “Performance Improvement for a Simple Cycle Gas Turbine GENSET – a Retrofitting Example”, *Applied Thermal Engineering*, Vol.22, pp.1105–1115, 2002.
- [33] Saad, M. A. and Cheng, D. Y., “The New LM2500 Cheng Cycle for Power Generation and Cogeneration”, *Energy Conversion and Management*, Vol.38, No.15–17, pp.1637–1646, 1997.

- [34] Leibowitz, H. and Tabb, E., “The Integrated Approach to a Gas Turbine Topping Cycle Cogeneration System”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.106, pp.731–736, 1984.
- [35] Palsson, J., Selimovic, A. and Sjunnesson, L., “Combined Solid Oxide Fuel Cell and Gas Turbine Systems for Efficient Power and Heat Generation”, *J. of Power Sources*, Vol.86, pp.442–448, 2000.
- [36] Massardo, A. F. and Lubelli, F., “Internal Reforming Solid Oxide Fuel Cell–Gas Turbine Combined Cycles (IRSOFC-GT): Part A – Cell Model and Cycle Thermodynamic Analysis”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.122, pp.27–35, 2000.
- [37] 森則之, 阿部俊夫, 渡辺隆夫 “固体電解質型燃料電池複合発電システムの研究 (第 1 報, 数値シミュレーションによるシステム性能の解析)”, 日本機械学会論文集 (B 編), Vol.66, No.652, pp.3256–3261, 2000.
- [38] Palsson, J., Selimovic, A. and Hendriksen, P., “Intermediate Temperature SOFC in Gas Turbine Cycles”, *ASME Paper*, 2001-GT-0091, 2001.
- [39] Rao, A. D. and Samuelsen, G. S., “A Thermodynamic Analysis of Tubular Solid Oxide Fuel Cell Based Hybrid Systems”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.125, pp.59–66, 2003.
- [40] Kuchonthara, P., Bhattacharya, S. and Tsutsumi, A., “Combinations of Solid Oxide Fuel Cell and Several Enhanced Gas Turbine Cycles”, *J. of Power Sources*, Vol.124, pp.65–75, 2003.
- [41] Kuchonthara, P., Bhattacharya, S. and Tsutsumi, A., “Energy Recuperation in Solid Oxide Fuel Cell (SOFC) and Gas Turbine (GT) Combined System”, *J. of Power Sources*, Vol.117, pp.7–13, 2003.
- [42] Onda, K., Iwanari, T., Miyauchi, N., Ito, K., Ohba, T., Sakaki, Y. and Nagata, S., “Cycle Analysis of Combined Power Generation by Planar SOFC and Gas Turbine Considering Cell Temperature and Current Density Distributions”, *J. of The Electrochemical Society*, Vol.150, pp.A1578–A1585, 2003.

- [43] 森則之, 阿部俊夫, 渡辺隆夫 “固体電解質型燃料電池複合発電システムの研究 (第2報, 構成が異なる発電システムの性能解析)”, 日本機械学会論文集 (B 編), Vol.66, No.652, pp.3262–3267, 2000.
- [44] Johansson, K. B., Båfält, M. H. and Pålsson, J., “Solid Oxide Fuel Cells in Future Gas Turbine Combined Power Plants”, *CIMAC Congress 1998*, pp.277–285, 1998.
- [45] Winkler, W. and Lorenz, H., “The Design of Stationary and Mobile Solid Oxide Fuel Cell–Gas Turbine Systems”, *J. of Power Sources*, Vol.105, pp.222–227, 2002.
- [46] Campanari, S. and Macchi, E., “Performance Prediction of Small-Scale Tri-Generation Plants Based on Integrated SOFC and Microturbine Systems”, *ASME Paper*, 2000-GT-318, 2000.
- [47] 波江貞弘, 汐崎浩毅, 野村雅宣, 川越陽一, 熊倉孝尚, “CO₂ 分離を目的とする固体電解質燃料電池複合サイクルの研究”, 日本機械学会論文集 (B 編), Vol.59, No.565, pp.2702–2708, 1993.
- [48] Riensche, E., Achenbach, E., Froning, D., Haines, M. R., Heidug, W. K., Lokurlu, A. and Andrian, S., “Clean Combined-Cycle SOFC Power Plant – Cell Modelling and Process Analysis”, *J. of Power Sources*, Vol.86, pp.404–410, 2000.
- [49] Harvey, S. P. and Richter, H. J., “Gas Turbine Cycles with Solid Oxide Fuel Cells Part I: Improved Gas Turbine Power Plant Efficiency by Use of Recycled Exhaust Gases and Fuel Cell Technology”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.116, pp.305–311, 1994.
- [50] Harvey, S. P. and Richter, H. J., “Gas Turbine Cycles with Solid Oxide Fuel Cells Part II: A Detailed Study of a Gas Turbine Cycle with an Integrated Internal Reforming Solid Oxide Fuel Cell”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.116, pp.312–318, 1994.
- [51] Campanari, S., “Full Load and Part-Load Performance Prediction for Integrated SOFC and Microturbine Systems”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.122, pp.239–246, 2000.
- [52] Costamagna, P., Magistri, L. and Massardo, A. F., “Design and Part-Load Performance of a Hybrid System Based on a Solid Oxide Fuel Cell Reactor and a Micro Gas Turbine”, *J. of Power Sources*, Vol.96, pp.352–368, 2001.

- [53] Magistri, L., Costamagna, P., Massardo, A. F., Rodgers, C. and McDonald, C. F., “A Hybrid System Based on a Personal Turbine (5kW) and a Solid Oxide Fuel Cell Stack: A Flexible and High Efficiency Energy Concept for the Distributed Power Market”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.124, pp.850–857, 2002.
- [54] Selimovic, A. and Palsson, J., “Networked Solid Oxide Fuel Cell Stacks Combined with a Gas Turbine Cycle”, *J. of Power Sources*, Vol.106, pp.76–82, 2002.
- [55] Massardo, A. F., McDonald, C. F. and Korakianitis, T., “Microturbine/Fuel-Cell Coupling for High-Efficiency Electrical-Power Generation”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.124, pp.110–116, 2002.
- [56] Palsson, J. and Selimovic, A., “Design and Off-Design Predictions of a Combined SOFC and Gas Turbine System”, *ASME Paper*, 2001-GT-0379, 2001.
- [57] Chan, S. H., Ho, H. K. and Tian, Y., “Modelling for Part-Load Operation of Solid Oxide Fuel Cell–Gas Turbine Hybrid Power Plant”, *J. of Power Sources*, Vol.114, pp.213–227, 2003.
- [58] Veyo, S. E., Shockling, L. A., Dederer, J. T., Gillett, J. E. and Lundberg, W. L., “Tubular Solid Oxide Fuel Cell/Gas Turbine Hybrid Cycle Power Systems: Status”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.124, pp.845–849, 2002.
- [59] Lundberg, W. L., Veyo, S. E. and Moeckel, M. D., “A High-Efficiency Solid Oxide Fuel Cell Hybrid Power System Using the Mercury 50 Advanced Turbine Systems Gas Turbine”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.125, pp.51–58, 2003.
- [60] Bejan, A., “A Study of Entropy Generation in Fundamental Convective Heat Transfer”, *ASME J. of Heat Transfer*, Vol.101, pp.718–725, 1979.
- [61] Bejan, A., “The Concept of Irreversibility in Heat Exchanger Design: Counterflow Heat Exchangers for Gas-to-Gas Applications”, *ASME J. of Heat Transfer*, Vol.99, pp.374–380, 1977.
- [62] San, J. Y., Worek, W. M. and Lavan, Z., “Entropy Generation in Combined Heat and Mass Transfer”, *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol.30, pp.1359–1369, 1987.
- [63] Poulikakos, D. and Johnson, J. M., “Second Law Analysis of Combined Heat and Mass Transfer Phenomena in External Flow”, *Energy*, Vol.14, pp.67–73, 1989.

- [64] Puri, I. K., “Second Law Analysis of Convective Droplet Burning”, *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol.35, pp.2571–2578, 1992.
- [65] Hiwase, S. D., Datta, A. and Som, S. K., “Entropy Balance and Exergy Analysis of the Process of Droplet Combustion”, *J. of Physics D: Applied Physics*, Vol.31, pp.1601–1610, 1998.
- [66] Datta, A. and Som, S. K., “Thermodynamic Irreversibilities and Second Law Analysis in a Spray Combustion Process”, *Combust. Sci. and Tech.*, Vol.142, pp.29–54, 1999.
- [67] Arpaci, V. S. and Selamet, A., “Entropy Production in Flames”, *Combust. Flame*, Vol.73, pp.251–259, 1988.
- [68] Datta, A., “Entropy Generation in a Confined Laminar Diffusion Flame”, *Combust. Sci. and Tech.*, Vol.159, pp.39–56, 2000.
- [69] Dunbar, W. R. and Lior, N., “Sources of Combustion Irreversibility”, *Combust. Sci. and Tech.*, Vol.103, pp.41–61, 1994.
- [70] 田川博章, 固体酸化物燃料電池と地球環境, アグネ承風社, 1998.
- [71] 燃料電池開発情報センター, 固体酸化物型燃料電池 (SOFC) のすべて, 1999.
- [72] U.S. Department of Energy, *Fuel Cell Handbook (Fifth Edition)*, Morgantown, WV, 2000.
- [73] Yamamoto, O., “Solid Oxide Fuel Cells: Fundamental Aspects and Prospects”, *Electrochimica Acta*, Vol.45, pp.2423–2435, 2000.
- [74] George, R. A., “Status of Tubular SOFC Field Unit Demonstrations”, *J. of Power Sources*, Vol.86, pp.134–139, 2000.
- [75] Haynes, C. and Wepfer, W. J., “ ‘Design for Power’ of a Commercial Grade Tubular Solid Oxide Fuel Cell”, *Energy Conversion and Management*, Vol.41, pp.1123–1139, 2000.
- [76] 久留長生, 池田浩二, 高塚汎, 森康, 岩本啓一, “円筒型 SOFC の開発状況”, 三菱重工技報, Vol.37, No.1, pp.30–33, 2000.
- [77] Hashimoto, N., “Global SOFC Activities and Evaluation Programmes”, *J. of Power Sources*, Vol.49, pp.103–114, 1994.

- [78] Hoogers, G., *Fuel Cell Technology Handbook*, CRC Press, Boca Raton, 2003.
- [79] Larminie, J. and Dicks, A., *Fuel Cell Systems Explained*, John Wiley and Sons, Chichester, 2000.
- [80] Tietz, F., Buchkremer, H. P. and Stöver, D., “Components Manufacturing for Solid Oxide Fuel Cells”, *Solid State Ionics*, Vol.152-153, pp.373–381, 2002.
- [81] Gardner, F. J., Day, M. J., Brandon, N. P., Pashley, M. N. and Cassidy, M., “SOFC Technology Development at Rolls-Royce”, *J. of Power Sources*, Vol.86, pp.122–129, 2000.
- [82] Hirschenhofer, J. H., Stauffer, D. B. and Engleman, R. R., *Fuel Cells A Handbook (Revision 3)*, U.S. Department of Energy, Morgantown, WV, 1994.
- [83] Badwal, S. P. S. and Foger, K., “Solid Oxide Electrolyte Fuel Cell Review”, *Ceramics International*, Vol.22, pp.257–265, 1996.
- [84] 高塚汎, 池田浩二, 武信弘一, 岩本啓一, 宮本均, “固体電解質型燃料電池発電技術の開発”, *三菱重工技報*, Vol.36, No.1, pp.34–37, 1999.
- [85] Campanari, S., “Thermodynamics Model and Parametric Analysis of a Tubular SOFC Module”, *J. of Power Sources*, Vol.92, pp.26–34, 2001.
- [86] Nagata, S., Momma, A., Kato, T. and Kasuga, Y., “Numerical Analysis of Output Characteristics of Tubular SOFC with Internal Reformer”, *J. of Power Sources*, Vol.101, pp.60–71, 2001.
- [87] Boersma, R. J., Sammes, N. M. and Fee, C., “Integrated Fuel Cell System with Tubular Solid Oxide Fuel Cells”, *J. of Power Sources*, Vol.86, pp.369–375, 2000.
- [88] Achenbach, E., “Three-Dimensional and Time-Dependent Simulation of a Planar Solid Oxide Fuel Cell Stack”, *J. of Power Sources*, Vol.49, pp.333–348, 1994.
- [89] Iwata, M., Hikosaka, T., Morita, M., Iwanari, T., Ito, K., Onda, K., Esaki, Y., Sakaki, Y. and Nagata, S., “Performance Analysis of Planar-Type Unit SOFC Considering Current and Temperature Distributions”, *Solid State Ionics*, Vol.132, pp.297–308, 2000.

- [90] Yakabe, H., Hishinuma, M., Uratani, M., Matsuzaki, Y. and Yasuda, I., “Evaluation and Modeling of Performance of Anode-supported Solid Oxide Fuel Cell”, *J. of Power Sources*, Vol.86, pp.423–431, 2000.
- [91] Yakabe, H., Ogiwara, T., Hishinuma, M. and Yasuda, I., “3-D Model Calculation for Planar SOFC”, *J. of Power Sources*, Vol.102, pp.144–154, 2001.
- [92] Ferguson, J. R., Fiard J. M. and Herbin, R., “Three-Dimensional Numerical Simulation for Various Geometries of Solid Oxide Fuel Cells”, *J. of Power Sources*, Vol.58, pp.109–122, 1996.
- [93] Aguiar, P., Chadwick, D. and Kershenbaum, L., “Modelling of an Indirect Internal Reforming Solid Oxide Fuel Cell”, *Chem. Eng. Sci.*, Vol.57, pp.1665–1677, 2002.

第 2 章

再生型蒸気噴射ガスタービンシステムの性能解析

2.1 緒 言

小型ガスタービンを利用した高効率分散型エネルギーシステムの開発において、システムの小型化，軽量化が重要視されるため，構成の簡便な単純あるいは再生サイクルを用いることが多い．単純および再生サイクルは，蒸気を発生させるだけの排ガス温度を有するため，排熱ボイラをガスタービンシステムの下流に設置し，蒸気の生成を行うことが可能となる．その蒸気を利用する手段は，空調や工業用プロセス蒸気などの熱の用途に用いる方法とガスタービンあるいは蒸気タービンの作業流体として用いる方法がある．蒸気噴射ガスタービンシステムは，排熱ボイラで生成した蒸気をガスタービンの作業流体に噴射する比較的簡便なシステムの構成で，単純や再生サイクルよりも高い発電効率を期待することができるため，小規模で電気を多く利用することを目的とする高発電効率小型ガスタービンシステムに適すると考えられる．

水あるいは蒸気をガスタービンの作業流体に添加する蒸気混入型ガスタービンシステムは，これまでに様々な型式が提案されており，多くのシステム解析が行われてきた^[1-29]．水をガスタービン作業流体に添加するシステムでは，HAT (Humid air turbine) サイクル^[1-13]，RWI (Recuperated water injected) サイクル^[2,10,14-16]，EGT (Evaporative gas turbine) サイクル^[17]，REVAP (Regenerative evaporation) サイクル^[18]，MAT (Moisture air turbine) サイクル^[19] などがある．Rao^[1] によって考案された HAT サイクルは，圧縮機出口の圧縮空気を Humidifier あるいは Saturator と呼ばれる加湿器に通し，タービンの排熱を利用して空気の加湿を行うシステムである．Traverso ら^[10] は，加湿器を用いることにより水と空気の混合によるエクセルギー損失を小さくできることを示している．RWI サイクルは再生サイクルの圧縮機出口の空気に水噴射を行うシステムであり，再生熱交換器の上流で水噴射を行うことにより圧縮空気の温度を下げ，熱交換器での熱回収を増大させる効果がある．Chiesa ら^[2]，El-Masri^[14] は RWI サイクルに ICR (Intercooled recuperated) サイクルを導入したシステムの解析を行っている．EGT，REVAP サイクルは RWI サイク

ルと同様のシステム構成であり，これらの水噴射システムは，加湿器を設置せずに水を作業流体に添加するという点で HAT サイクルと異なる．Utamura ら^[19]によって提案された MAT サイクルは，圧縮機入口の吸気に水噴霧を行い，吸気の冷却により圧縮動力を低減させることを目的としたシステムである．

蒸気を作業流体に添加するシステムでは，タービン下流の排熱ボイラで生成した過熱蒸気を燃焼器に噴射し，単純サイクルの出力および効率の向上を目的とした STIG (Steam injected gas turbine) サイクルと呼ばれる蒸気噴射システムがあり，従来から性能解析や経済性評価など多くの研究が行われてきた^[5, 6, 10, 20–26]．Macchi ら^[23]は STIG サイクルに中間冷却サイクルを導入した ISTIG (Intercooled steam injected gas turbine) サイクル，Rice^[24]は STIG サイクルに再熱サイクルを導入したシステムの性能解析を行っている．再生熱交換器を有する蒸気噴射システムでは，DRIASI (Dual recuperated intercooled aftercooled steam injected) サイクル^[27]や部分再生二流体ガスタービンシステム (Partial regenerative dual fluid gas turbine system, 以下 PRDF と記す)^[28]が提案されている．DRIASI サイクルは，蒸気噴射，再生，水噴射を組み合わせたシステム構成をもち，タービンの排ガスを用いて再生熱交換器における空気予熱および排熱ボイラにおける蒸気の生成を行うシステムである．PRDF は圧縮空気の一部に排熱ボイラで発生させた蒸気を噴射し，その空気を再生熱交換器で予熱して，燃焼器に供給するシステムである．Wang ら^[29]は STIG サイクルに吸気冷却，再生サイクルを導入したシステムの解析を行っている．

実機のカスタービンに STIG サイクルが導入されたものとして，General Electric (GE) LM-5000，LM-2500，Allison 501-KH などがある^[22, 26, 30, 31]．各出力はそれぞれ 32.6，19.2，4.9MW (蒸気噴射を行わない場合)，50.7，26.4，6.8MW (蒸気噴射を行う場合)であり，蒸気噴射により単純サイクルの出力が 1.4～1.5 倍程度増加する．

蒸気噴射ガスタービンシステムに関して，これまでに提案されている多くのシステムは高圧力比で最高効率になる特性を持ち，圧力比を低くすることが望まれる小型ガスタービンに適したシステムの構成方法の検討はなされていない．本章では，低圧力比で高効率となる特性を有する再生サイクルを蒸気噴射ガスタービンシステムに導入した再生型蒸気噴射ガスタービンシステムについて，排熱ボイラで生成した過熱蒸気を燃焼器に噴射する構成と圧縮機出口に噴射する構成の 2 種類のシステムを示し，圧力比や蒸気流量が各システムの熱効率や比出力に及ぼす影響を評価する．さらに，再生型蒸気噴射システムと再生型システム (以下では，水噴射や蒸気噴射を行わない再生型ガスタービンシステムを，単に再生型システムと記す)，水噴射システムおよび従来型蒸気噴射システムである STIG システムについて，熱効率やエクセルギー解析により性能特性の比較を行い，各システム性能特性が異なる原因を明確にし，効率向上のためのシステムの構成方針を示す．これらによって，再生型蒸気噴射システムが高効率小型ガスタービンシステムとして優れた性能を

持つことを明らかにする．また，蒸気噴射ガスタービンシステムは，熱と電力の負荷バランスを変化させて併給する蒸気噴射ガスタービン熱電可変システムとしての利用が可能であり，本章で検討する再生型蒸気噴射ガスタービンシステムを熱電可変システムとして適用した場合について，システムにおける熱と電力の出力内訳や総合効率を評価する．

2.2 記 号

本章で用いる記号を以下に記す．

AC	空気圧縮機
C	燃焼器
FC	燃料圧縮機
GT	ガスタービン
HE	熱交換器
HRSG	排熱回収ボイラ
r	圧力比

2.3 解析条件および手法

システムの解析条件を表 2.1 に示す．タービンの冷却は行わないものとする．また，システムの性能は定常状態を解析し，構成要素における放熱および圧力損失は無視する．解析はプロセスシミュレーター HYSYS^[32] を用いて行う．システム解析の手順を図 2.1 に示す．まず，圧縮機，熱交換器，燃焼器，タービンおよび排熱ボイラの各要素からなるシステム

表 2.1: システムの解析条件

Fuel	CH ₄
Inlet temperature of fuel and air	25.0
Inlet pressure of fuel and air	1.0 atm
Adiabatic efficiency of compressor and turbine	80.0 %
Turbine inlet temperature (TIT)	1200
Temperature effectiveness of heat exchanger	83.0 %
Pinch point of HRSG	> 5.0

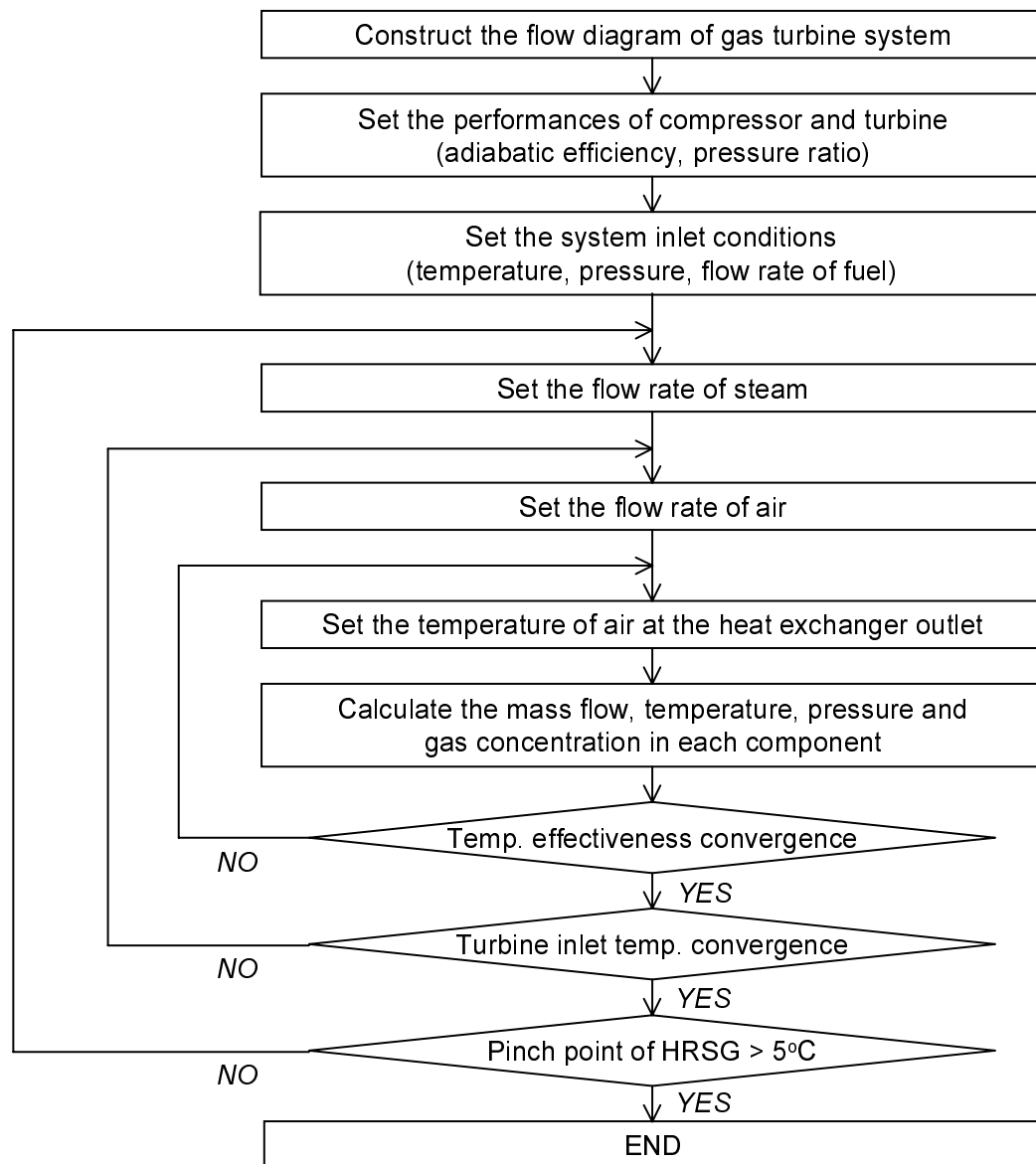


図 2.1 システム解析の手順

を構築し，圧縮機，タービンの断熱効率および圧力比，システム入口の温度，圧力，燃料および蒸気流量を設定する．次に空気流量および熱交換器出口の空気温度を仮定し，流体計算を開始する．流体計算では，ガス成分やその物性値を考慮し，質量，エネルギー保存則に基づいて各構成要素における温度，圧力，ガス濃度などの状態量を計算する．気液平衡状態の計算は Peng-Robinson 状態方程式に基づいて行う．タービン入口温度（TIT）および熱交換器の温度効率が予め設定した数値に収束するまで，空気流量と熱交換器出口の

空気温度を変化させてループ計算を行う．最後に排熱ボイラのピンチポイントの温度差が条件を満足していれば計算を終了する．本研究では，これらの計算によって得られたデータから要素におけるエクセルギー損失を求め，熱効率およびエクセルギー効率によりシステムの性能評価を行う．

2.4 水噴射ガスタービンシステムの性能解析

水噴射ガスタービンシステムには，圧縮機入口の空気に水噴射することによる吸気冷却の効果や，再生器入口に水噴射することによる排熱回収量の増加の効果がある．本節では，再生型システムと水噴射を組み合わせた水噴射ガスタービンシステムについて，構成の異なった2種類のシステムの性能評価，比較を行う．

2.4.1 系統図

水噴射ガスタービンシステムI型の系統図を図2.2に示す．空気圧縮機の入口で標準状態の乾き空気を仮定し，飽和湿り空気となるまで水を噴射する．単位燃料流量あたりの水噴射量は，圧縮機内に水が混入できないため少なく， $0.5 \sim 0.6 \text{ kg/kg-fuel}$ 程度である．水噴射を行うことにより圧縮機入口温度を 25°C からおよそ 8°C 程度まで下げることができ，それにより圧縮機出口温度は低下する．水噴射I型には，吸気冷却による圧縮動力を低減させる効果と，圧縮機出口温度の低下による熱交換器での排熱回収量を増加させる効果があり，

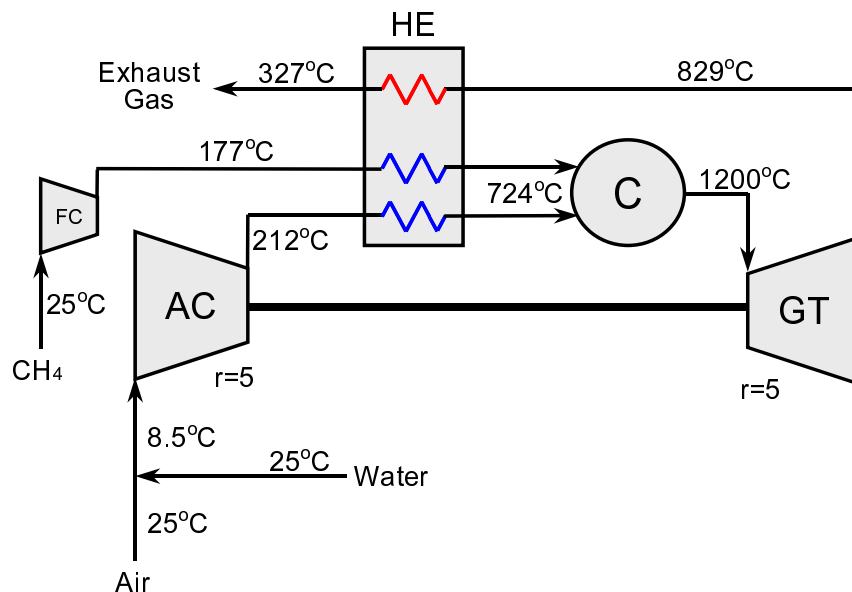


図 2.2 水噴射ガスタービンシステム I 型

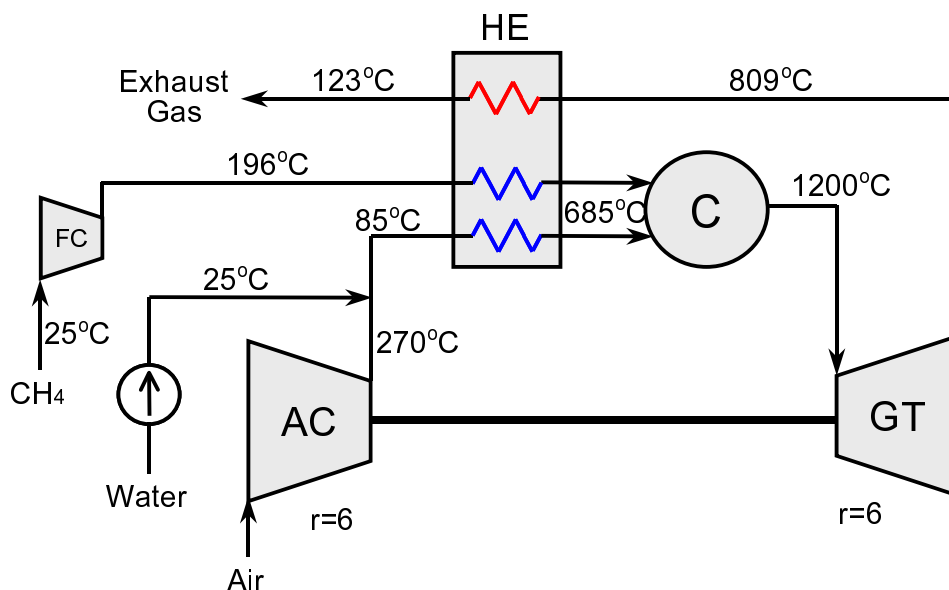


図 2.3 水噴射ガスタービンシステム II 型

水噴射 I 型の熱効率も再生型よりも高くなる。空気の入口条件が乾き空気ではなく、相対湿度 60% の湿り空気であるとする、飽和湿り空気となるまでの水の供給量は少なくなるため、水噴射の効果による効率の上昇は乾き空気の場合よりも小さくなる。MAT サイクルは圧縮機の吸気に微細水滴を混入させるシステムで、吸気冷却および蒸気混入により出力は増加する。水噴射 I 型は再生型システムに MAT サイクルを導入したシステムであり、MAT サイクルの吸気冷却作用により再生型システムの効率を高めたものである。

水噴射システム II 型の系統図を図 2.3 に示す。このシステムは RWI サイクルと同様の構成をもつシステムである。従来から提案されている HAT サイクルの場合、圧縮機出口に加湿器を設置し、タービンの排熱で生成した温水に圧縮空気を接触させることにより水を空気に混入させる。さらにその後、高湿度の空気は再生熱交換器に入り、タービンの排熱を

表 2.2: 水噴射 I 型の最適条件および性能

Pressure ratio	5.0
Air ratio	4.85
Water/fuel mass ratio	0.57 kg/kg
Specific power	251.8 kW/(kg/s)
Exergy efficiency	41.4 %
Thermal efficiency (HHV)	38.5 %

表 2.3: 水噴射 II 型の最適条件および性能

Pressure ratio	6.0
Air ratio	3.59
Water/fuel mass ratio	8.0 kg/kg
Specific power	316.1 kW/(kg/s)
Exergy efficiency	43.4 %
Thermal efficiency (HHV)	40.2 %

回収する．これにより，タービンの排熱回収を再生熱交換器における空気予熱および加湿器における水の加熱の 2 段階で行ったことになる．本章における水噴射 II 型は，圧縮機出口の高温の圧縮空気に水を直接噴射することにより，加湿器の設置を省略している．噴射された水は，高温の圧縮空気および再生熱交換器で回収するガスタービンの排熱によって加熱され，燃焼器入口では完全に過熱蒸気になる．再生熱交換器入口の圧縮空気は噴射された水で冷却されるため，排ガスの最終温度は 120 程度まで下がり，その際に必要な水の噴射量は I 型に比べて大幅に多くなり，8.0kg/kg-fuel である．多量の水を噴射するため，

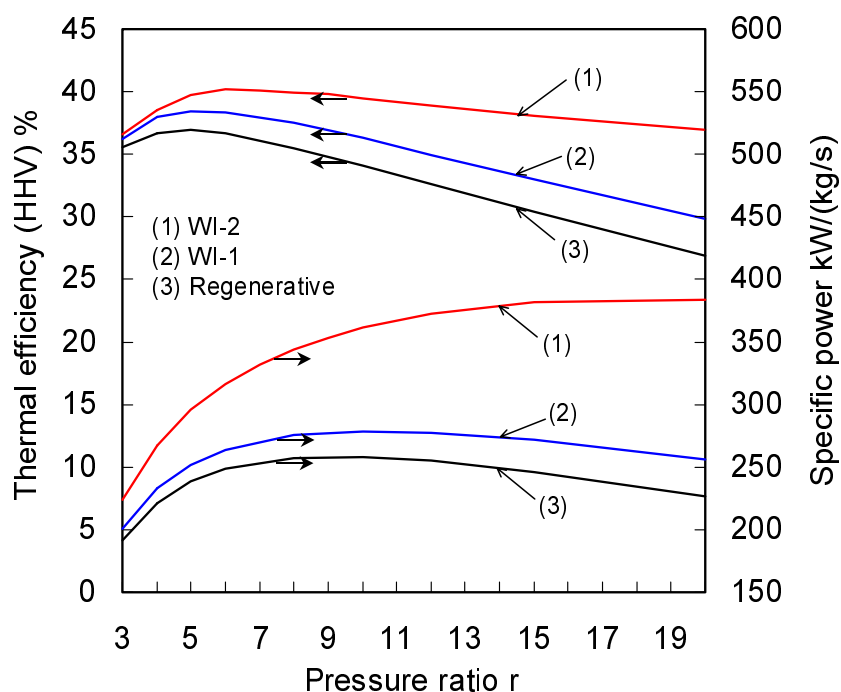


図 2.4 水噴射ガスタービンシステムの熱効率および比出力

システムの空気比は再生型に比べて大幅に減少する．排ガスの排熱（顕熱）の多くは水によって回収されるため，水噴射によって再生型の効率は向上する．しかし，排ガス中に大量の蒸気が含まれることになり，排ガスにおける潜熱損失が増大する．

水噴射システム I 型および II 型の最適条件および性能を表 2.2，表 2.3 に示す．

2.4.2 熱効率および比出力による性能評価

図 2.4 に水噴射ガスタービンシステムについて，圧力比と熱効率および比出力の関係を示す．図中の WI-1，WI-2 はそれぞれ水噴射システム I 型，II 型を表す．また，Regenerative は水噴射を行わない再生型システムである．水噴射システムの熱効率は再生型よりも高くなり，特に，水噴射 II 型の熱効率は高く，最高効率は圧力比 6 のとき 40.2% (HHV) である．また，両水噴射システムとも圧力比の低いところで高効率となる傾向がある．比出力は水噴射 II 型が大きく，これは水噴射量が多く，空気比が小さくなるためである．

2.5 再生型蒸気噴射ガスタービンシステムの性能解析

蒸気噴射ガスタービンシステムは，ガスタービンの排熱を排熱ボイラで回収し，蒸気を生成することで排ガスを有効に利用することを目的としたシステムである．本節では，再

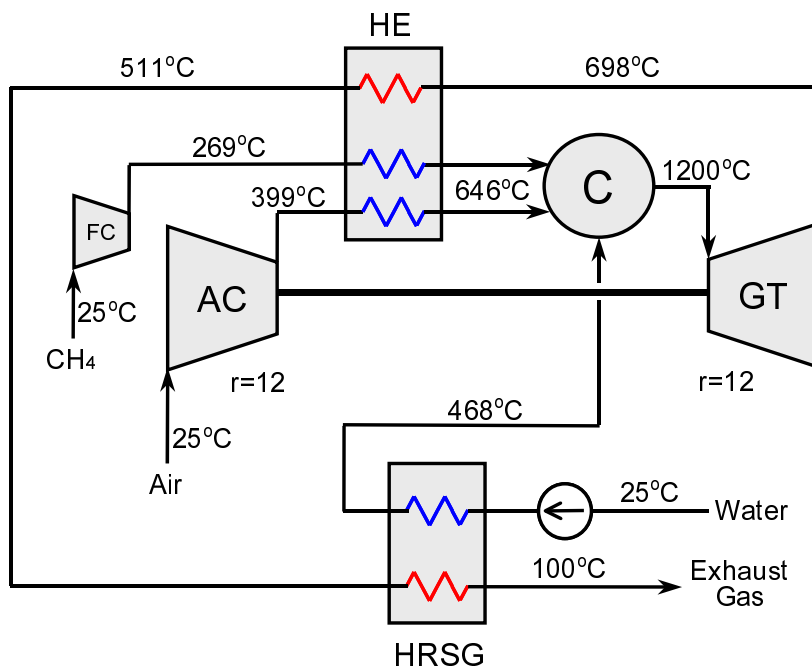


図 2.5 再生型蒸気噴射ガスタービンシステム I 型

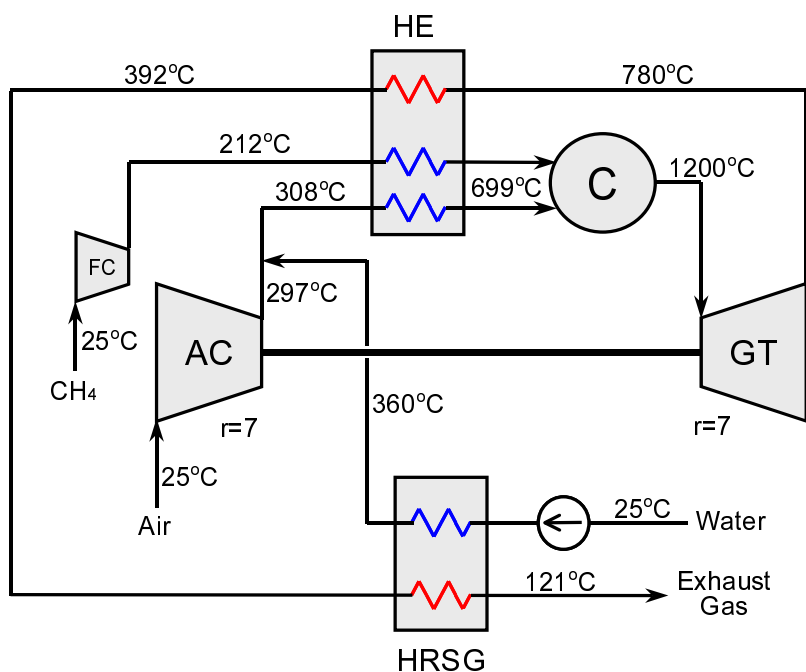


図 2.6 再生型蒸気噴射ガスタービンシステム II 型

生サイクルと蒸気噴射システムを組み合わせた再生型蒸気噴射ガスタービンシステムについて、蒸気の噴射位置の異なった 2 種類のシステム構成を示し、圧力比や蒸気流量が各システムの性能に及ぼす影響を熱効率や比出力により評価する。また、再生を行わない蒸気噴射システムである STIG システムとの性能の比較を行う。

2.5.1 系統図

再生型蒸気噴射ガスタービンシステム I 型の系統図を図 2.5 に示す。排熱回収ボイラで生成した過熱蒸気の全量が燃焼器に噴射される。蒸気の生成により排ガスの最終温度は 100 程度まで下がり、その際の単位燃料流量あたりの蒸気流量は 9.0kg/kg-fuel である。従来

表 2.4: 再生型蒸気噴射 I 型の最適条件および性能

Pressure ratio	12.0
Air ratio	2.83
Steam/fuel mass ratio	9.0 kg/kg
Specific power	385.4 kW/(kg/s)
Exergy efficiency	43.9 %
Thermal efficiency (HHV)	40.7 %

表 2.5: 再生型蒸気噴射 II 型の最適条件および性能

Pressure ratio	7.0
Air ratio	3.77
Steam/fuel mass ratio	7.5 kg/kg
Specific power	320.6 kW/(kg/s)
Exergy efficiency	45.6 %
Thermal efficiency (HHV)	42.4 %

から提案されている STIG システムは、単純型システムの排熱で生成した蒸気を燃焼器に注入する方式であるが、本章で検討した再生型蒸気噴射 I 型は再生型システムと蒸気噴射を融合したものである。

再生型蒸気噴射システム II 型の系統図を図 2.6 に示す。II 型では、排熱回収ボイラで生成した過熱蒸気の全量が圧縮機出口に噴射される。システムに供給された水が排熱ボイラと熱交換器の 2 段階で排熱を回収するため、蒸気流量は I 型に比べると少なく、その流量は 7.5kg/kg-fuel である。このシステムと従来型の STIG システムと異なる点は再生型と融

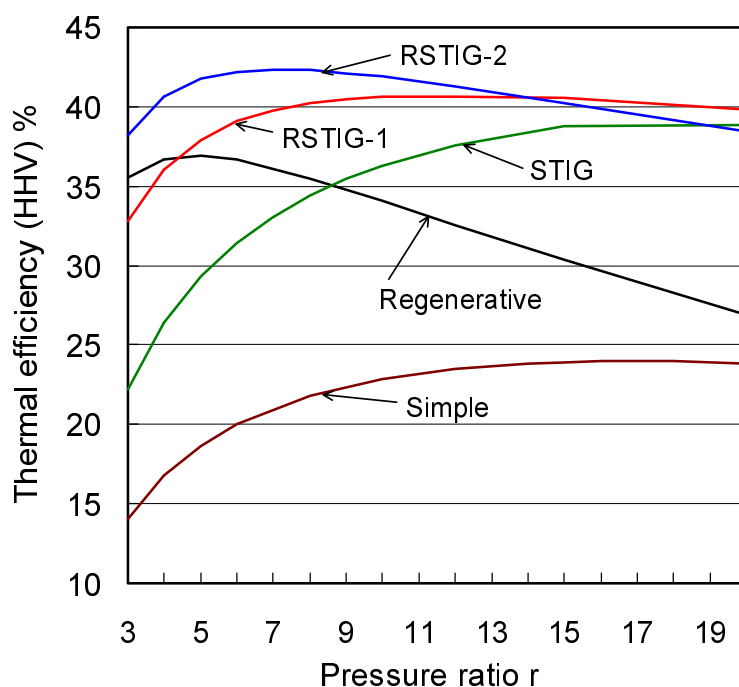


図 2.7 再生型蒸気噴射ガスタービンシステムの熱効率

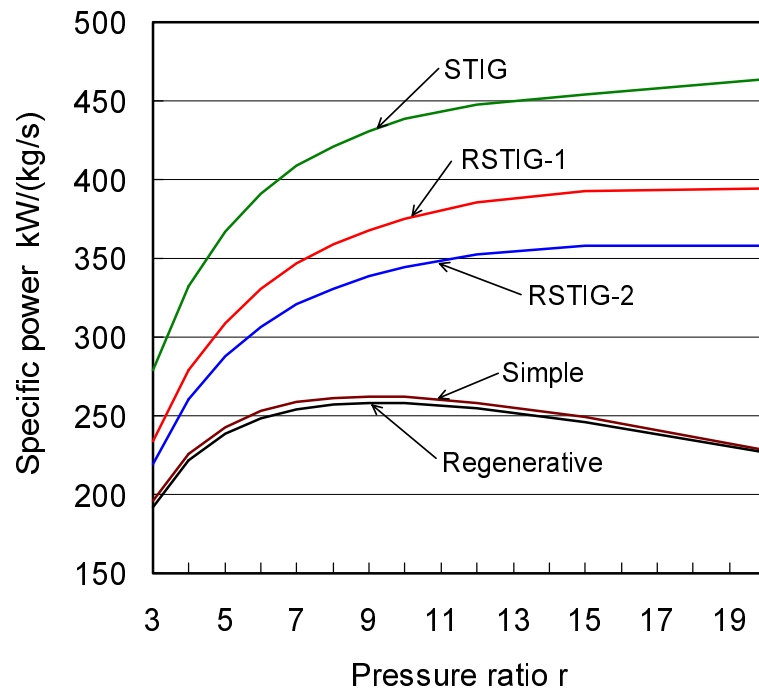


図 2.8 再生型蒸気噴射ガスタービンシステムの比出力

合させていることと，熱交換器の上流側に蒸気噴射を行うことである．

再生型蒸気噴射システム I 型および II 型の最適条件および性能を表 2.4，表 2.5 に示す．

2.5.2 熱効率および比出力による性能評価

図 2.7，図 2.8 に再生型蒸気噴射ガスタービンシステムの圧力比と熱効率および比出力の関係を示す．図中の RSTIG-1 および RSTIG-2 はそれぞれ再生型蒸気噴射システム I 型，II 型を表す．また，Simple，Regenerative はそれぞれ蒸気噴射を行わない単純型，再生型システム，STIG は STIG システムである．STIG システムの熱効率は圧力比を高めるとともに上昇するのに対し，本章で検討した再生型蒸気噴射システムには低圧力比で高効率となる特性がある．また，再生型蒸気噴射システムの熱効率は既存の単純型，再生型および STIG システムよりも高く，I 型と II 型を比較すると II 型のほうが最高効率は高くなる．II 型は最高効率をとる圧力比が I 型に比べて低く，圧力比 7 のとき 42.4% (HHV) を得る．一方，比出力に関しては，噴射蒸気量の最も多い STIG システムが大きくなる傾向がある．II 型は噴射蒸気量が他の蒸気噴射型に比べて少なく，そのため比出力は小さくなる．

2.5.3 蒸気流量の変化に伴う性能特性

図 2.9，図 2.10(a),(b) に STIG および再生型蒸気噴射システムについて，システムに噴射する蒸気流量をパラメータとした場合の圧力比と熱効率の関係を示す．蒸気流量は単位燃

料に対するシステムに噴射する蒸気の質量流量の比で示している．各蒸気噴射システムとも蒸気流量の増加によって著しく熱効率は増加する傾向はあるが，その特性はシステムによって異なる．図 2.9 に示される STIG システムでは，蒸気流量が 0 のとき，各圧力比において単純型システムと同じ効率を示すが，蒸気流量の増加により効率は上昇し，圧力比 15，蒸気流量 10.5kg/kg-fuel のとき最高効率 38.8% (HHV) を得る．蒸気流量を 12.0kg/kg-fuel まで増加させると，圧力比を高めても熱効率は上昇しなくなる．その原因は排ガス中の潜熱による損失が増大するためである．図 2.10(a),(b) に示される再生型蒸気噴射システムでは，蒸気流量の増加による効率向上の効果は，特に高圧力比のときに著しく大きくなる．I 型の場合，圧力比が 4 以下の領域では，蒸気流量の増加とともに効率は低下する．圧力比 12，蒸気流量 9.0kg/kg-fuel のとき最高効率 40.7% (HHV) に到達し，そのときの最高効率を得るための最適蒸気流量は STIG システムの場合よりも少なくなる．蒸気流量が 10.5kg/kg-fuel まで増加すると熱効率は低下し，その原因は STIG システムの場合と同様である．II 型の場合，圧力比 7，蒸気流量 7.5kg/kg-fuel のとき最高効率 42.4% (HHV) に到達し，最適蒸気流量は I 型の場合よりも少なくなる．蒸気流量を 7.5kg/kg-fuel 以上にすると，排熱ボイラでピンチポイントの温度差が小さくなり，蒸気の生成が不可能となる．

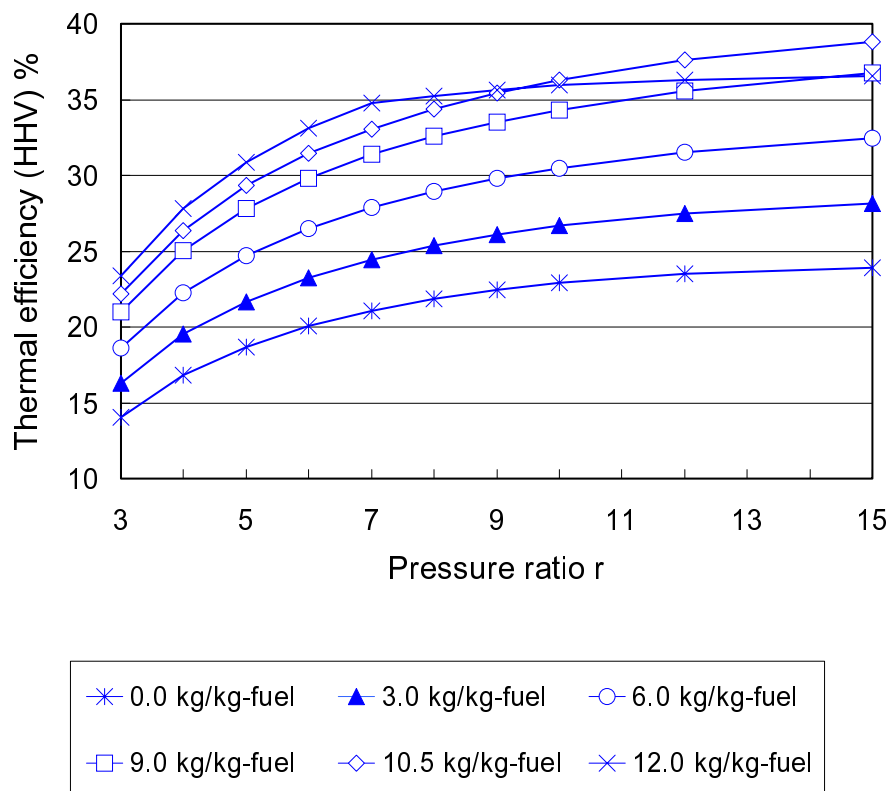
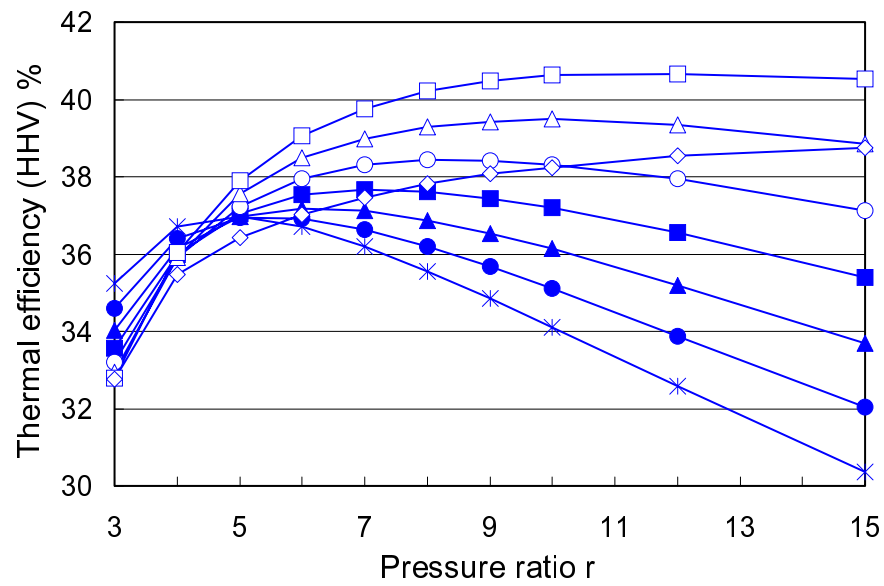
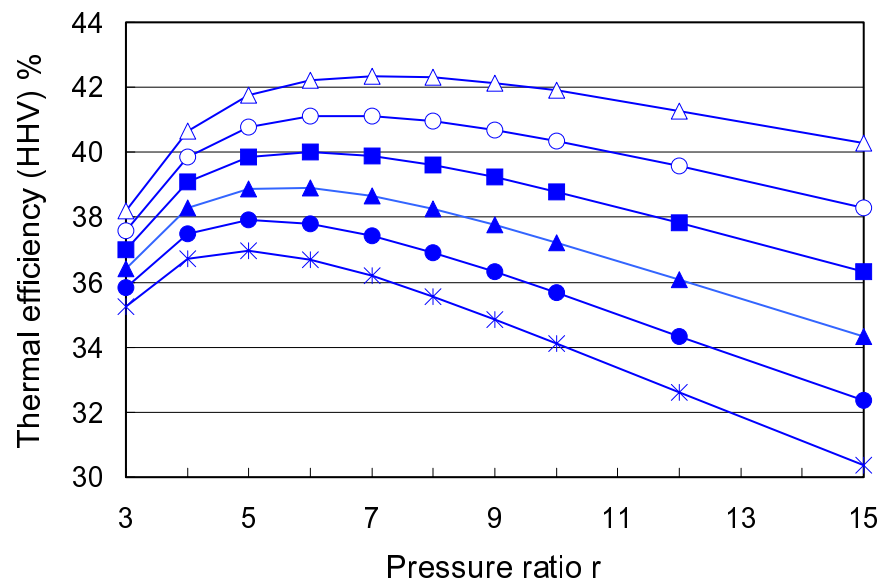


図 2.9 STIG システムにおける蒸気流量と熱効率の特性



(a) RSTIG-1



(b) RSTIG-2

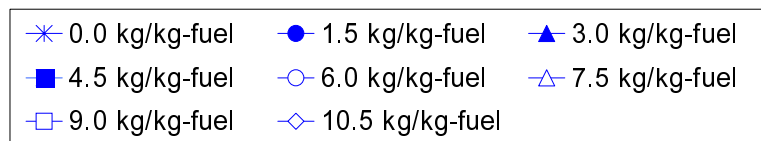
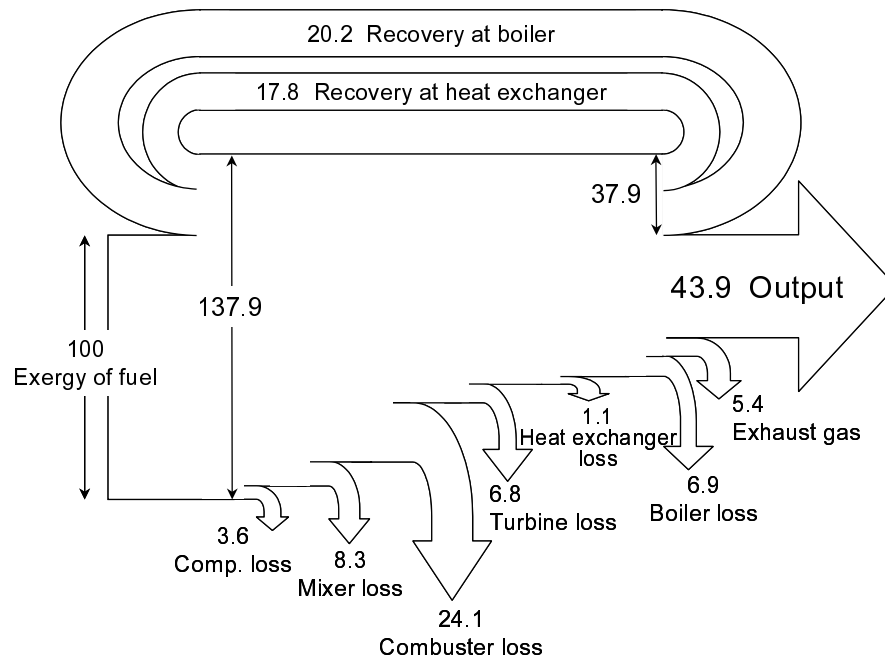


図 2.10 再生型蒸気噴射システムにおける蒸気流量と熱効率の特性

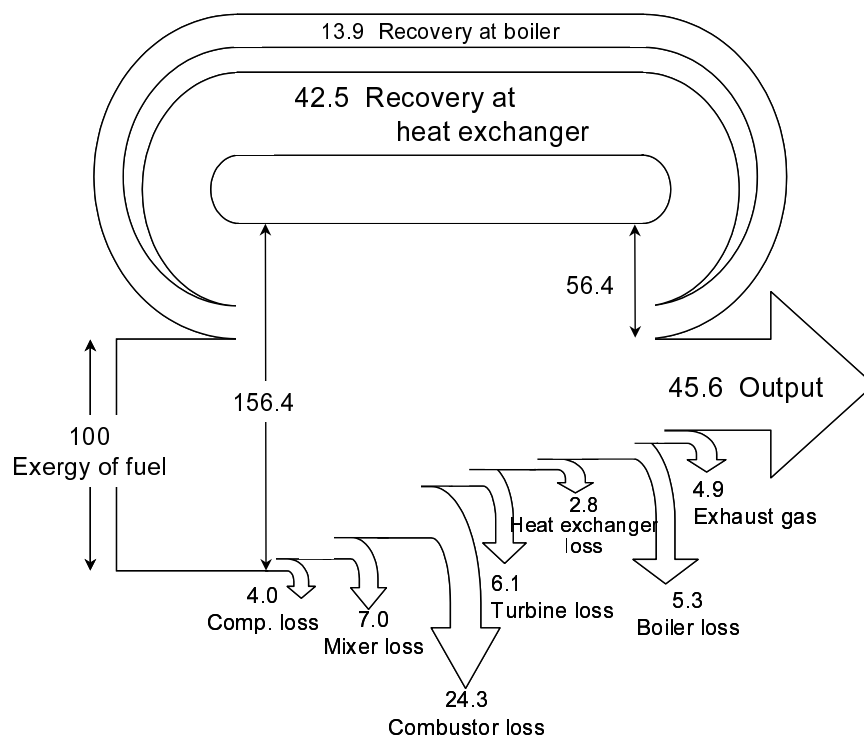
2.6 エクセルギー評価

図 2.11(a),(b) に、再生型蒸気噴射システム I 型, II 型のエクセルギーフローを示す。システムに投入されるエクセルギーに対する各要素でのエクセルギー損失, 熱交換器および排熱ボイラで回収されるエクセルギーおよび出力の割合を%値で示している。各システムの圧力比, 蒸気流量は, 表 2.4, 2.5 に示された値を用いている。両システムとも, 燃焼器におけるエクセルギー損失の割合が大きくなる傾向がある。また, II 型は I 型に比べて熱交換器で回収するエクセルギー量が大きく, その原因は, I 型の場合は空気のみで排熱を回収するのに対し, II 型の場合は空気および蒸気の両方で排熱を回収できることによる。

図 2.12 に単純型, 再生型, 水噴射, STIG および再生型蒸気噴射システムの構成要素でのエクセルギー損失特性を示す。図はシステムに投入されるエクセルギーに対する各要素でのエクセルギー損失および出力の割合を示している。各システムの圧力比および水, 蒸気流量は, 最高効率のときの条件を選んでいる。単純型, 再生型, STIG システムの圧力比は, それぞれ 17, 5, 15, STIG システムの蒸気流量は 10.5kg/kg-fuel である。水噴射および再生型蒸気噴射システムの圧力比, 蒸気流量は, 表 2.2, 2.3, 2.4, 2.5 に示された値である。再生型蒸気噴射システムが再生型システムに比べて高効率となるのは, 蒸気の生成によって排ガスのエクセルギーを回収し, 排ガスのエクセルギー損失を低減していることによる。また, 再生型蒸気噴射システムの効率は水噴射システムの効率よりも高くなる傾向がある。水噴射 II 型の場合, 熱交換器内で水が蒸発する際に排ガスとの温度差が大きくなり, そのため熱交換器での損失が増大するが, 再生型蒸気噴射システムは, 蒸気発生および再生熱交換器で温度差の少ない熱交換が可能となり, 損失を小さくできる。蒸気噴射システムでは, 再生型蒸気噴射システム II 型の効率が最も高くなる。これは, システムに噴射する蒸気流量を他の蒸気噴射システムに比べて少なくでき, また蒸気発生で温度差の小さい熱交換を行うことにより, 排熱ボイラにおける潜熱によるエクセルギー損失を小さくできるためである。STIG システムは蒸気流量が多く, また, 排熱ボイラ内で高温のタービン排熱を水によって回収し, ボイラ内の高温側と低温側の温度差が大きくなるため, 排熱ボイラの損失は大きくなる。水噴射や蒸気噴射システムの場合, 混合過程における損失が大きくなる傾向があり, これは, 水や蒸気を噴射する際の伝熱等による不可逆損失が原因であると考えられる。



(a) RSTIG-1



(b) RSTIG-2

図 2.11 再生型蒸気噴射システムのエクセルギーフロー

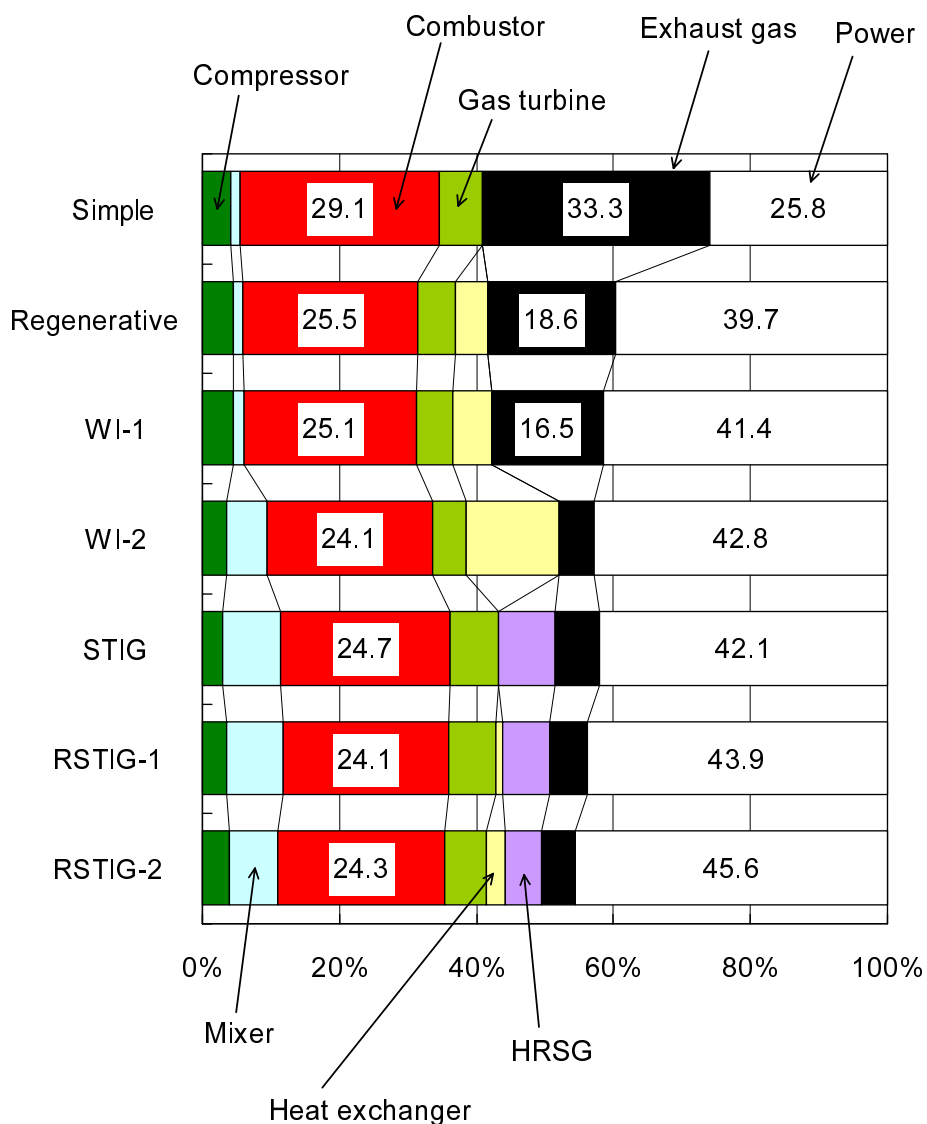


図 2.12 各システムのエクセルギー損失の比較

2.7 再生型蒸気噴射ガスタービン熱電可変システム

蒸気噴射ガスタービンシステムの場合，排熱ボイラで生成した蒸気を外部へ取り出し，プロセス蒸気として利用することもでき，ガスタービンシステムに噴射する蒸気とプロセス蒸気として用いる蒸気の流量を制御することにより，出力割合を変えて熱と電力を併給することが可能となる．本節では，再生型蒸気噴射ガスタービンシステムを対象とし，熱と電力の出力割合を変化させて同時に供給する蒸気噴射型熱電可変システムとして適用した場合について出力内訳および総合効率の評価を行う．

2.7.1 熱電可変システム系統図

図 2.13 に熱と電力を併給する際の蒸気噴射型熱電可変システムの系統図を示す．システムに供給される水は排熱回収ボイラの蒸発器で飽和蒸気となり，一部プロセス蒸気としてシステムの外部へ取り出されて利用される．残った蒸気は過熱器で過熱蒸気となり，再生型蒸気噴射システム I 型の場合は燃焼器へ，II 型の場合は圧縮機出口へそれぞれ噴射される．

2.7.2 熱電可変システムの熱および電力の出力特性

図 2.14(a),(b) に，再生型蒸気噴射熱電可変システム I 型，II 型について，ガスタービンシステムに噴射する蒸気流量と外部に取り出すプロセス蒸気流量の割合を変えたときの熱および電力による出力の内訳を熱効率で示す．各システムに供給する水の総流量および圧縮機の圧力比は，電力のみ出力する場合の熱効率最大時の値（表 2.4，2.5 に示された値）を用いている．排熱ボイラの蒸発器で生成した蒸気の全量をプロセス蒸気として用いる場合，ガスタービンシステムへは蒸気が噴射されないため，電力による出力は再生型システムと同出力となり最小となる．一方，熱負荷は大幅に増加し，熱電可変システムの総合効率はいずれのシステムも 70% (HHV) を上回り，最大となる．また，出力内訳も電力に比べて熱負荷の占める割合のほうが大きくなる．蒸気の全量をガスタービンシステムに噴射する場合，電力の熱効率は最大値となるがプロセス蒸気の生成は行われず，熱負荷がないため，システムの総合効率は電力のみの熱効率となり最小となる．

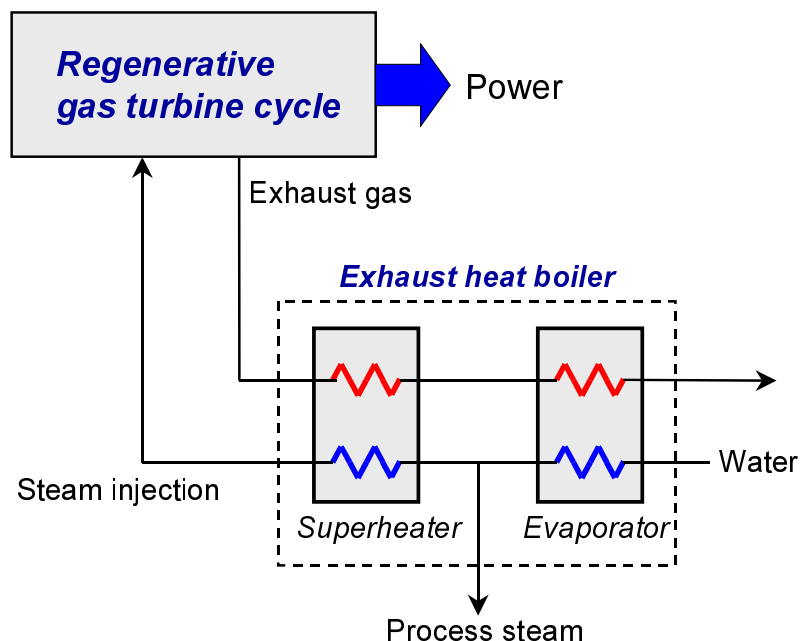
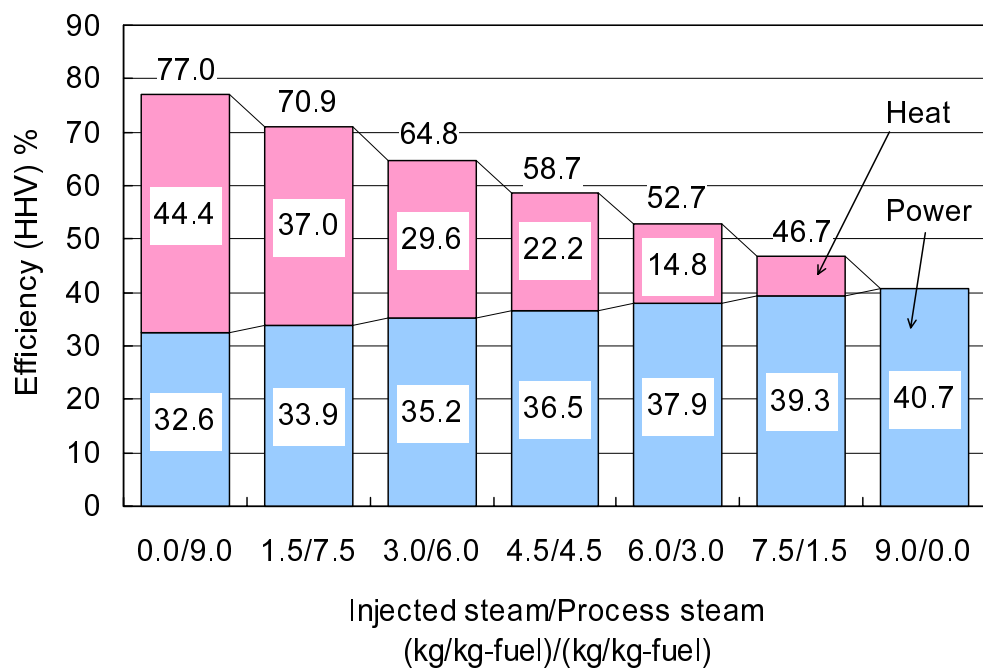
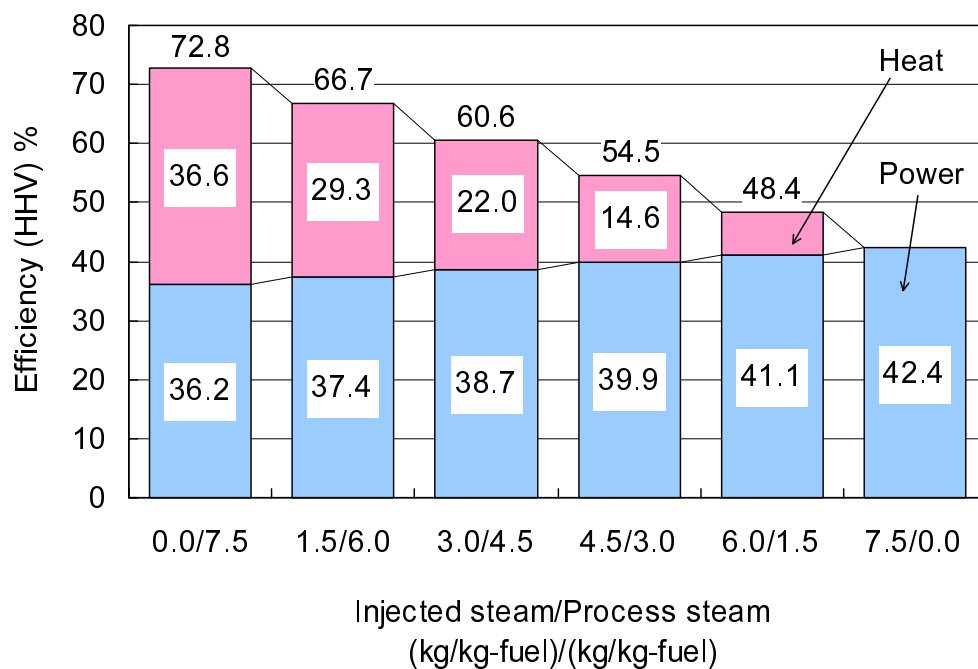


図 2.13 再生型蒸気噴射ガスタービン熱電可変システム



(a) RSTIG-1



(b) RSTIG-2

図 2.14 再生型蒸気噴射熱電可変システムの出カ内訳

2.8 結 言

本章では，構成の異なった２種類の再生型蒸気噴射ガスタービンシステムの性能特性を示し，それらのシステムと再生型システム，水噴射型システムおよびSTIGシステムの性能を熱効率やエクセルギー評価により定量的に比較した．その結果，再生型蒸気噴射システムについて，以下の知見を得た．

- (1) 再生型蒸気噴射ガスタービンシステムは，排熱ボイラでの蒸気の生成により，排ガスのエクセルギーの回収を容易にし，再生熱交換器での熱回収も比較的容易であるため，再生型システムよりも効率は改善される．また，再生型蒸気噴射システムは，作業流体中に蒸気が混入するため，再生型に比べて空気比が小さくなり，それにより比出力が大きくなる．
- (2) 水噴射ガスタービンシステムに比べて，再生型蒸気噴射ガスタービンシステムの熱効率は高くなる．水噴射システムⅡ型は，熱交換器内で水が蒸発し，温度差の大きい熱交換を行うため，エクセルギー損失が大きくなるが，再生型蒸気噴射システムは，蒸気発生および再生熱交換器で温度差の少ない熱交換が可能となり，比較的エクセルギー損失が小さくなることが原因である．
- (3) 従来型の再生熱交換器を持たないSTIGシステムに比べて，再生型蒸気噴射システムは蒸気流量が少なく，排熱ボイラで温度差の小さい熱回収を行うため，熱効率は高くなり，効率が最大となる最適圧力比は低くなる．また，蒸気を圧縮機出口に噴射する再生型蒸気噴射Ⅱ型は，蒸気を燃焼器に噴射するⅠ型よりも熱効率は高くなる．その原因は再生器で蒸気による熱回収を行い，システムに供給する蒸気流量を少なくすることにより，排熱ボイラ内で温度差の小さい熱交換を可能にし，潜熱による損失を小さくできるためである．さらに，Ⅱ型にはⅠ型よりも低圧力比で最高効率を得る特性がある．
- (4) 再生型蒸気噴射システムは，熱電可変システムとして，熱と電力の出力割合を変えて併給することが可能となり，熱負荷最大時には，システム総合効率は70% (HHV) を上回る．電力として得られる比率は，STIGシステムより多くできる．

文 献

- [1] Rao, A. D., “Process for Producing Power”, US patent, No.7829763, 1989.
- [2] Chiesa, P., Lozza G., Macchi, E. and Consonni, S., “An Assessment of the Thermodynamic Performance of Mixed Gas-Steam Cycles: Part B – Water-Injected and HAT

- Cycles”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.117, pp.499–508, 1995.
- [3] Xiao, Y., Cai, R. and Lin, R., “Modeling HAT Cycle and Thermodynamic Evaluation”, *Energy Conversion and Management*, Vol.38, No.15–17, pp.1605–1612, 1997.
- [4] Gallo, W. L. R., Bidini, G., Bettagli, N. and Facchini, B., “Effect of Turbine-Blade Cooling on the HAT (Humid Air Turbine) Cycle”, *Energy*, Vol.22, No.4, pp.375–380, 1997.
- [5] Gallo, W. L. R., “A Comparison between the HAT Cycle and Other Gas-Turbine Based Cycles: Efficiency, Specific Power and Water Consumption”, *Energy Conversion and Management*, Vol.38, No.15–17, pp.1595–1604, 1997.
- [6] Jordal, K. and Torisson, T., “Comparison of Gas Turbine Cooling with Dry Air, Humidified Air and Steam”, *ASME Paper*, 2000-GT-169, 2000.
- [7] 伊藤猛宏, 山口朝彦, 杉田成久, “HAT サイクルの熱力学的評価”, 日本機械学会論文集 (B 編), Vol.63, No.607, pp.1111–1118, 1997.
- [8] Kim, T. S., Song, C. H., Ro, S. T. and Kauh, S. K., “Influence of Ambient Condition on Thermodynamic Performance of the Humid Air Turbine Cycle”, *Energy*, Vol.25, pp.313–324, 2000.
- [9] Lazzaretto, A. and Segato, F., “Thermodynamic Optimization of the HAT Cycle Plant Structure – Part I: Optimization of the “Basic Plant Configuration” ”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.123, pp.1–7, 2001.
- [10] Traverso, A. and Massardo, A. F., “Thermoeconomic Analysis of Mixed Gas-Steam Cycles”, *Applied Thermal Engineering*, Vol.22, pp.1–21, 2002.
- [11] Parente, J., Traverso, A. and Massardo, A. F., “Saturator Analysis for an Evaporative Gas Turbine Cycle”, *Applied Thermal Engineering*, Vol.23, pp.1275–1293, 2003.
- [12] Parente, J., Traverso, A. and Massardo, A. F., “Micro Humid Air Cycle Part A: Thermodynamic and Technical Aspects”, *ASME Paper*, GT2003-38326, 2003.
- [13] Parente, J., Traverso, A. and Massardo, A. F., “Micro Humid Air Cycle Part B: Thermoeconomic Analysis”, *ASME Paper*, GT2003-38328, 2003.

- [14] El-Masri, M. A., “A Modified, High-Efficiency, Recuperated Gas Turbine Cycle”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.110, pp.233–242, 1988.
- [15] Camporeale, S. M. and Fortunato, B., “Performance of a Mixed Gas-Steam Cycle Power Plant Obtained Upgrading an Aero-Derivative Gas Turbine”, *Energy Conversion and Management*, Vol.39, No.16–18, pp.1683–1692, 1998.
- [16] Camporeale, S. M. and Fortunato, B., “Aero-Thermodynamic Simulation of a Double-Shaft Industrial Evaporative Gas Turbine”, *ASME Paper*, 2000-GT-171, 2000.
- [17] Horlock, J. H., “The Evaporative Gas Turbine [EGT] Cycle”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.120, pp.336–343, 1998.
- [18] De Ruyck, J., Bram, S. and Allard, G., “REVAP Cycle: A New Evaporative Cycle without Saturation Tower”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.119, pp.893–897, 1997.
- [19] Utamura, M., Takehara, I. and Karasawa, H., “MAT, A Novel, Open Cycle Gas Turbine for Power Augmentation”, *Energy Conversion and Management*, Vol.39, No.16–18, pp.1631–1642, 1998.
- [20] Fraize, W. E. and Kinney, C., “Effects of Steam Injection on the Performance of Gas Turbine Power Cycles”, *ASME J. of Engineering for Power*, Vol.101, pp.217–227, 1979.
- [21] Brown, D. H. and Cohn, A., “An Evaluation of Steam Injected Combustion Turbine Systems”, *ASME J. of Engineering for Power*, Vol.103, pp.13–19, 1981.
- [22] Larson, E. D. and Williams, R. H., “Steam-Injected Gas Turbines”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.109, pp.55–63, 1987.
- [23] Macchi, E., Consonni, S., Lozza, G. and Chiesa, P., “An Assessment of the Thermodynamic Performance of Mixed Gas-Steam Cycles: Part A – Intercooled and Steam-Injected Cycles”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.117, pp.489–498, 1995.
- [24] Rice, I. G., “Steam-Injected Gas Turbine Analysis: Steam Rates”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.117, pp.347–353, 1995.

- [25] Krause, A., Tsatsaronis, G. and Sauthoff, M., “On the Cost Optimization of a District Heating Facility Using a Steam-Injected Gas Turbine Cycle”, *Energy Conversion and Management*, Vol.40, pp.1617–1626, 1999.
- [26] De Paepe, M. and Dick, E., “Technological and Economical Analysis of Water Recovery in Steam Injected Gas Turbines”, *Applied Thermal Engineering*, Vol.21, pp.135–156, 2001.
- [27] Bolland, O. and Stadaas, J. F., “Comparative Evaluation of Combined Cycles and Gas Turbine Systems with Water Injection, Steam Injection and Recuperation”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.117, pp.138–145, 1995.
- [28] 宇治茂一, “部分再生二流体ガスタービンシステム”, 日本機械学会論文集 (B編), Vol.66, No.648, pp.2200–2208, 2000.
- [29] Wang, F. J. and Chiou, J. S., “Performance Improvement for a Simple Cycle Gas Turbine GENSET – a Retrofitting Example”, *Applied Thermal Engineering*, Vol.22, pp.1105–1115, 2002.
- [30] Saad, M. A. and Cheng, D. Y., “The New LM2500 Cheng Cycle for Power Generation and Cogeneration”, *Energy Conversion and Management*, Vol.38, No.15–17, pp.1637–1646, 1997.
- [31] Leibowitz, H. and Tabb, E., “The Integrated Approach to a Gas Turbine Topping Cycle Cogeneration System”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.106, pp.731–736, 1984.
- [32] Hyprotech Ltd., *HYSYS Plant Ver.2.1.1*, 1999.

第 3 章

固体酸化物形燃料電池・ガスタービン複合発電システムの性能解析

3.1 緒 言

燃料電池は従来の小型ガスタービンに比べて発電効率が高く、環境適合性に優れていることから、小規模分散型エネルギーシステムをターゲットにしたエネルギー変換装置として開発が期待されている。高温型燃料電池である固体酸化物形燃料電池 (Solid oxide fuel cell, 以下 SOFC と記す) は作動温度が約 900 ~ 1000 であり、その作動温度がガスタービン入口温度 (TIT) に近いこと、SOFC とガスタービンを複合した高効率発電システムを構成することが可能となる。

SOFC・ガスタービン複合発電システム (以下、SOFC-GT 複合システムと略記する) に関しては、これまでに多くの解析が行われている^[1-23]。SOFC-GT 複合システムの性能が、システムおよび SOFC の作動条件に大きく影響されることから、Palsson ら^[1]、Massardo ら^[2]、森ら^[3] はシステムの圧力比や空気比、タービン入口温度 (TIT)、SOFC の入口温度や燃料利用率がシステムの効率に及ぼす影響を検討している。また、材料の制約、寿命、コスト面から SOFC の作動温度の低温化が進められており、Palsson ら^[4] は、SOFC の作動温度が 800 程度である低温型 SOFC-GT 複合システムを対象として解析を行っている。

システムの構成については、高効率化のための構成として SOFC と HAT (Humid air turbine) サイクルを組み合わせた SOFC-HAT システム^[5,6]、SOFC と STIG (Steam injected gas turbine) サイクルを組み合わせた SOFC-STIG システム^[2,6-8]、SOFC-GT 複合システムの下流に蒸気タービン (ST) サイクルを導入した SOFC-GT/ST システム^[2,6,9]、高圧、低圧各タービンの前に SOFC を設置し、1 段目タービン後の SOFC で再熱を行う RH (Reheat)-SOFC-GT システム^[10,11] などが提案されている。また、Campanari ら^[12] は SOFC-GT 複合システムの下流に排熱回収としてヒートポンプを設置した SOFC-GT-HP システム、波江ら^[13] や Riensche ら^[14] は、排ガス中の CO₂ の分離を目的とする SOFC-GT 複合システムの解析を行っている。SOFC の構造においても、アノードガスおよびカソードガスの再

循環^[8,9,13,15-19] やセルを直列に連結するスタック構造^[20] などにより高性能化が図られている．円筒型 SOFC の場合には，セルの内部に空気予熱のための流路が設けられており，効率的な熱の需給を行う構造を持つ^[17-19]．

分散型エネルギーシステムとしてマイクロガスタービン（Micro gas turbine，以下 MGT と記す）の開発，普及が進められていることから，MGT との組み合わせによる SOFC-MGT 複合システムを対象とした解析も行われている^[12,17-19,21]．Campanari ら^[17]，Costamagna ら^[18]，Massardo ら^[21] は 50kW 級 MGT を対象とし，総出力がそれぞれ 260kW，300kW，390kW の SOFC-MGT 複合システムで発電効率が 60%（LHV）を上回ることを示している．Magistri ら^[19] は 5kW 級 MGT を対象とし，総出力 36kW の SOFC-MGT 複合システムにおいて，発電効率が 56%（LHV）と算出している．また，SOFC-MGT 複合システムにおける部分負荷特性も解析されており^[17-19,22,23]，部分負荷運転時でも高い発電効率が期待できることを明らかにしている．Siemens-Westinghouse 社は，220kW（SOFC 出力 176kW，GT 出力 47kW）SOFC-GT 複合システムの実証プラントの試運転を行っており^[24,25]，発電効率（LHV）は 57%である．300kW（SOFC 出力:251kW，GT 出力:67kW）および 1MW（SOFC 出力:818kW，GT 出力:218kW）プラントも計画中であり，発電効率（LHV）はそれぞれ 57%，59%を見積もっている．

本章では，SOFC-GT 複合システムの高効率化のための SOFC とガスタービンの高性能複合方式として多段型複合方式を提案し，その提案システムおよび従来から検討されているシステムについて，性能の定量的評価・比較を行う．熱効率による性能評価では，圧力比および TIT と熱効率の特性を明確にし，最高効率を得るための方針を示す．また，エクセルギー解析により，各々のシステム各要素でのエクセルギー損失特性を定量的に評価し，複合方式改善によるシステム高性能化の原因や方針およびその効果を明らかにする．

3.2 記 号

本章で用いる記号を以下に記す．

AB	アフターバーナ	
AC	空気圧縮機	
C	燃焼器	
E	理論起電力	V
F	ファラデー定数	$\text{kJ}/(\text{V} \cdot \text{mol})$
G	ギブスの自由エネルギー	kJ/mol
H	エンタルピー	kJ/mol

FC	燃料圧縮機	
GT	ガスタービン	
HE	熱交換器	
HRSG	排熱回収ボイラ	
r	圧力比	
SOFC	固体酸化物形燃料電池	
u_f	燃料利用率	
V	単セル電圧	V
η_{cell}	セル発電効率	
η_{th}	理論熱効率	
η_v	電圧効率	

3.3 システムの構成と解析条件

SOFC とガスタービンの複合方式の改善によるシステムの高性能化を図ることを目的とし、次節以降で、標準型、内部熱回収型、多段型各 SOFC-GT 複合システムについて性能解析を行う。システムの性能解析はプロセスシミュレーター HYSYS^[26] を用いて、ガス成分やその物性値を考慮して行う。システムの解析条件を表 3.1、表 3.2 に記す。

SOFC の性能および作動条件を表 3.1 のように設定する。燃料はメタンとし、内部改質

表 3.1: SOFC の性能および作動条件

Type of fuel cell	Solid oxide fuel cell (Internal reforming)
Fuel	CH ₄
Operating temperature	950 (inlet)/1050 (outlet)
Unit cell voltage	0.7 V
Fuel utilization ratio	80 %
Electric generation efficiency	48 % (HHV) $\left(\frac{\text{DC output}}{\text{HHV of CH}_4} = 0.48 \right)$
Fuel reforming	Steam reforming S/C ratio = 3.0

表 3.2: ガスタービンシステムの作動条件

Atmospheric temperature	25
Atmospheric pressure	1.0 atm
Adiabatic efficiency of compressor and turbine	80 %
Temperature effectiveness of heat exchanger	≤ 90 %
Pinch point of HRSG	≥ 30

を行うものとする．電池入口および出口の燃料，空気等の温度は，それぞれ 950 ， 1050 とする．セル電圧は温度，圧力および電極のガス組成によって変化するが，本解析では化学種分圧による補正を考慮せず，電池温度 1000 に相当する単セル電圧を 0.7V と予測し，一定値とする．燃料利用率（SOFC に供給される燃料に対して反応する燃料の割合）は 80% とする．セルの発電効率，SOFC に供給される燃料の高位発熱量（HHV）に対する直流電気出力の割合で定義する．また，発電効率は式 (3.1) に示すように，理論熱効率，電圧効率および燃料利用率の積で求まる．

$$\eta_{cell} = \eta_{th} \cdot \eta_v \cdot u_f = \frac{\Delta G}{\Delta H} \cdot \frac{V}{E} \cdot u_f \quad (3.1)$$

以下に示されるネルンストの式

$$\Delta G = -nFE \quad (3.2)$$

（ n は燃料 1mol が電極反応によって消費される際に関与する電子数であり，メタンの場合 $n=8$ である）により，式 (3.1) は式 (3.3) のように変形でき，単セル電圧 0.7V，燃料利用率 80% に相当する発電効率を 48%（HHV）と見積もる．

$$\eta_{cell} = -\frac{8FE}{\Delta H} \cdot \frac{V}{E} \cdot u_f = \frac{8 \times 96.487 \times 0.7 \times 0.8}{890.3} = 0.48 \quad (3.3)$$

燃料改質の方法は水蒸気改質とし，電池内での炭素析出を避けるため，水蒸気と燃料中の炭素のモル比を 3.0 とする．以上の設定値は，従来の標準的な数値である^[27]．

表 3.2 にガスタービンシステムの作動条件を示す．システムの性能は定常状態を解析し，また，構成要素における放熱および圧力損失は考慮しないものとする．

3.4 標準型 SOFC-GT 複合システム

3.4.1 系統図

SOFC とガスタービンの複合方式が最も単純である標準型 SOFC-GT 複合システムの系統図を図 3.1 に示す．圧縮機で圧縮された燃料，空気および改質用水蒸気は，再生熱交換器

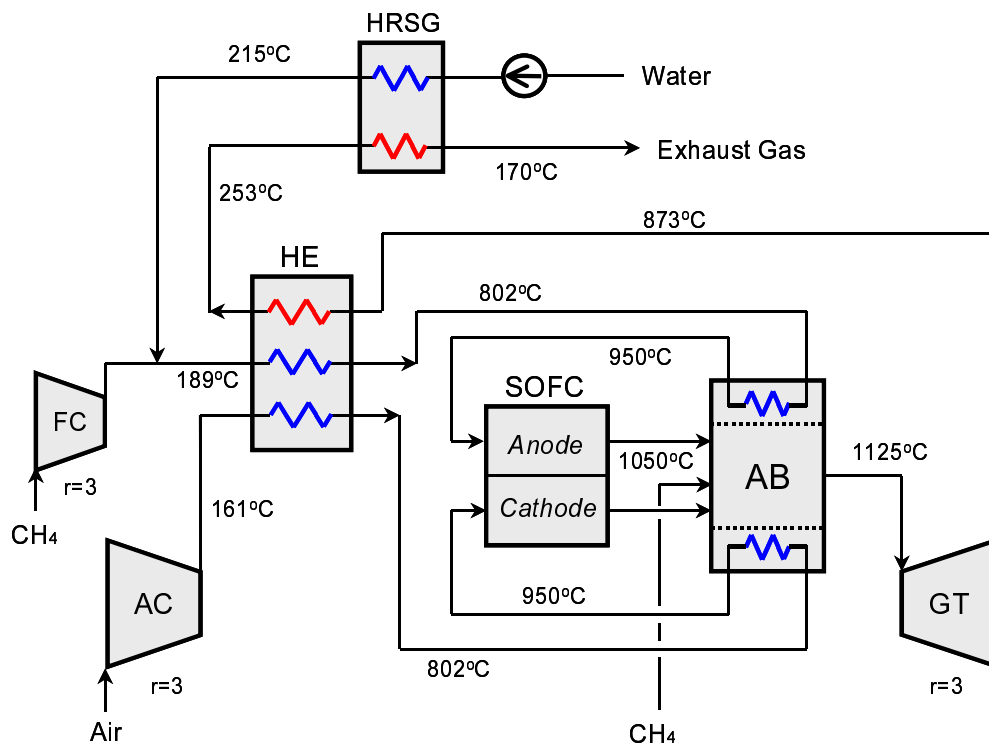


図 3.1 標準型 SOFC-GT 複合システム

(HE)において800 程度まで予熱され、さらにアフターバーナ (AB)で950 (SOFCの作動温度)まで予熱される。その後、燃料および空気はSOFCで反応し、1050 の排ガスが次にアフターバーナに供給される。アフターバーナ内ではSOFCでの未反応燃料および外部から供給される追い炊き燃料を燃焼させ、燃焼ガスの温度は1125 まで上昇する。その際、発熱の一部を燃料および空気の予熱に用いる。1125 の燃焼ガスはタービンに供給され、870 程度の高温ガスが排出される。タービンの排熱は、再生熱交換器における燃料、空気の予熱および排熱ボイラ (HRSG)における蒸気の生成に用いられる。排熱ボイラでは215 の燃料改質用の蒸気を生成させ、その後、燃料側に混入させるものとする。タービン排熱で蒸気を生成し、作業流体中に蒸気噴射することには、タービン出力増加の効果がある。SOFC内部では温度上昇を100 に抑制するため、電池内の空気流量は過剰となり、空気利用率は低くなる。燃料、空気の予熱および排熱ボイラでの改質用蒸気の生成はタービンの排熱を用いるが、950 まで予熱を行うため、タービンの排熱のみで予熱を行うことは不可能となる。そのため、アフターバーナに直接、追い炊き燃料を供給して再熱を行い、アフターバーナ内で予熱の一部を補う必要がある。標準型 SOFC-GT 複合システムの最適条件および性能を表 3.3 に示す。

表 3.3: 標準型 SOFC-GT 複合システムの最適条件および性能

Pressure ratio		3.0
Turbine inlet temperature		1125
Fuel flow ratio	SOFC	0.70
	AB	0.30
Air ratio	SOFC	5.85
	System	4.11
Power ratio	SOFC	0.58
	GT	0.42
Thermal efficiency (HHV)		58.6 %

3.4.2 熱効率による性能評価

タービン入口温度 (Turbine inlet temperature, 以下 TIT と記す) をパラメータとした場合の圧力比と熱効率の関係を図 3.2(a), (b) に示す。標準型の場合, SOFC から排出される未反応燃料をアフターバーナで完全に燃焼させると, SOFC の排ガス温度は 1125 まで上昇する。TIT が 1125 以下の場合を図 3.2(a) に, 1125 以上の場合を図 3.2(b) に示す。

TIT が 1125 以下の場合, 圧力比によって再生熱交換器で回収できる熱量が変化し, それによりアフターバーナでの予熱に必要な追い炊き燃料の流量が変化するため, 図中の A 領域と B 領域で効率の特性が異なる。B 領域では, 再生熱交換器の温度効率を上限の 90% に維持し, 予熱に必要な追い炊き燃料を最小限供給するという条件のもと, 各圧力比でシステムの効率が最適となるように計算した結果をプロットしている。圧力比が低くなるにつれて再生熱交換器での排熱回収が増加するため, 追い炊き燃料は少なくできる。しかし, 圧力比がある値以下になると, 再生器出口の排ガス温度が低くなるため, 排熱ボイラでのピンチポイントの温度差が下限の 30 未満にならないよう, 再生熱交換器の温度効率を 90% 以下に下げる必要性が生じる。図中の A 領域では, 排熱ボイラのピンチポイント温度差を 30 に維持できるように熱交換器の温度効率を設定し, さらに予熱に必要な追い炊き燃料を最小限供給するという条件のもと, 各圧力比で効率が最適となるように計算した結果をプロットしている。

一方, 1125 以上の場合, TIT を上昇させるための追い炊き燃料が多量に必要となるため, TIT の上昇とともに熱効率は低下する。

システムの熱効率は圧力比の低い領域で高効率となる。このとき, 追い炊き燃料は比較的少なくでき, 再生熱交換器の温度効率を 90% に維持できる条件である。また, TIT の上昇により効率が向上するとは限らず, TIT 上昇のために燃料を供給するのは効率低下の原

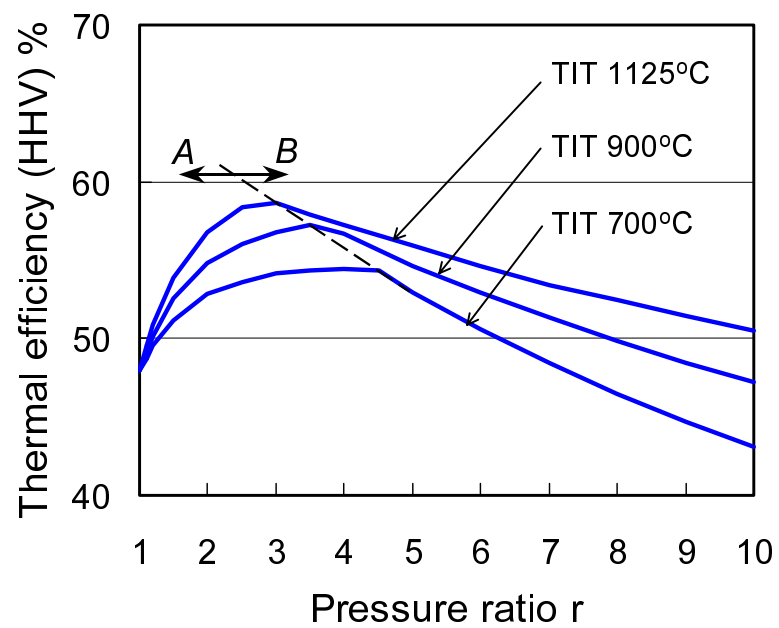
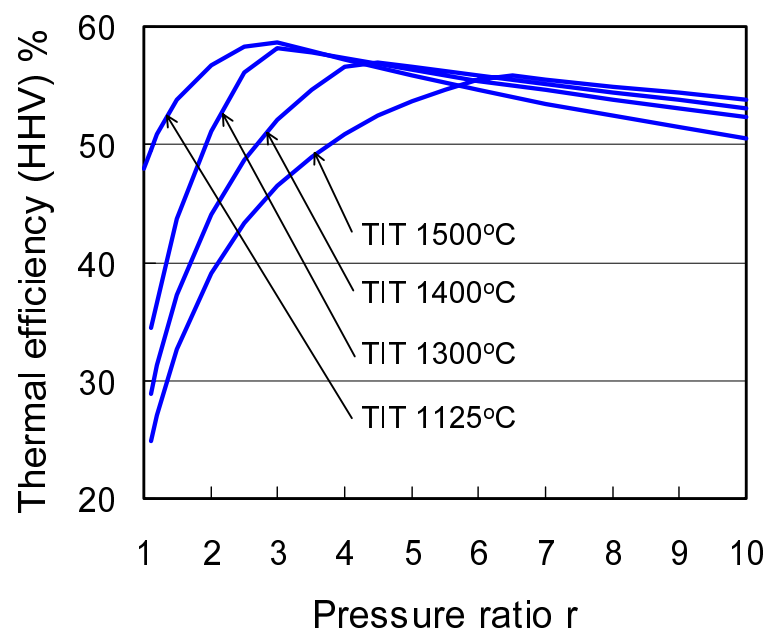
(a) $TIT \leq 1125$ (b) $TIT \geq 1125$

図 3.2 標準型 SOFC-GT 複合システムの熱効率

因となる．最適点の効率 η は TIT 1125 ，圧力比 3 のとき 58.6%であり，その条件での諸量は表 3.3 に記している．

3.5 内部熱回収型 SOFC-GT 複合システム

内部熱回収型 SOFC-GT 複合システムは，SOFC 内で発生した排熱を用いてセルの内部で燃料および空気の予熱を行うシステムである．空気を予熱するセル構造は従来からも提案されているが^[17-19]，本システムでは，燃料，空気の両方を予熱する方式とする．このシステムは SOFC の内部で熱の循環が行われるので，電池を冷却するための空気量を少なくでき，システムの空気比を下げる効果がある．また，燃料改質の蒸気の供給方式は，SOFC の外部から排熱ボイラで発生させた蒸気を投入する方式（蒸気投入方式）と蒸気を含んだアノード排ガスの一部を回収し，アノード入口まで再循環させる方式（燃料循環方式）が考えられる．蒸気投入方式に比べて燃料循環方式の場合，排熱回収ボイラの設置が不要であり，またアノード排ガス中の未反応燃料の一部が再び反応に用いられるため，燃料利用率が向上する利点がある．本節では，内部熱回収型 SOFC-GT 複合システムについて，蒸気投入方式と燃料循環方式の性能を比較する．

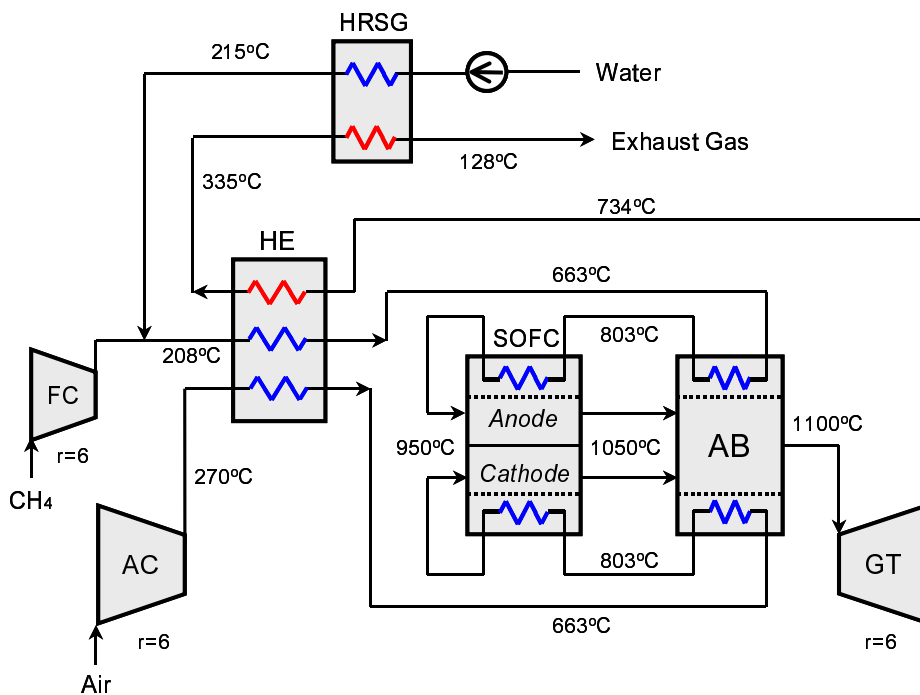


図 3.3 内部熱回収型 SOFC-GT 複合システム（蒸気投入方式）

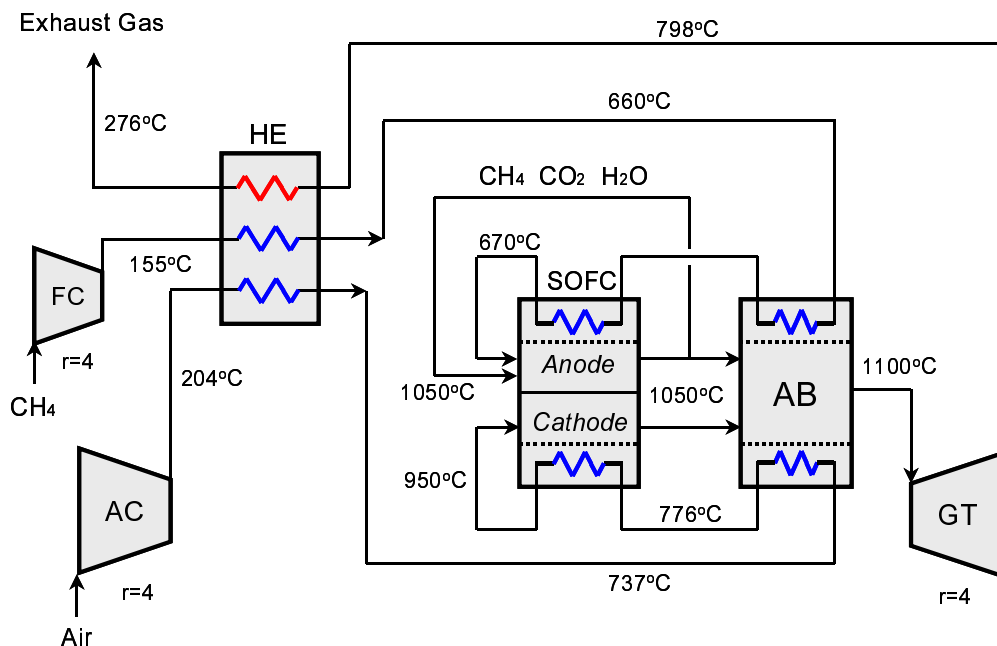


図 3.4 内部熱回収型 SOFC-GT 複合システム（燃料循環方式）

3.5.1 系統図

図 3.3，図 3.4 に内部熱回収型 SOFC-GT 複合システムの系統図を示す．図 3.3 は蒸気投入方式，図 3.4 は燃料循環方式である．燃料，空気の予熱は SOFC 内部でも行うので，アフターバーナ出口で 800 程度まで予熱を行えばよい．ただし，燃料循環方式の場合，1050

表 3.4: 内部熱回収型 SOFC-GT 複合システム（蒸気投入方式）の最適条件および性能

Pressure ratio		6.0
Turbine inlet temperature		1100
Fuel utilization ratio		80.0 %
Air ratio		2.01
Power ratio	SOFC	0.72
	GT	0.28
Thermal efficiency (HHV)		66.7 %

表 3.5: 内部熱回収型 SOFC-GT 複合システム（燃料循環方式）の最適条件および性能

Pressure ratio		4.0
Turbine inlet temperature		1100
Anode gas recycle ratio		60.0 %
Fuel flow ratio (Anode inlet)	supplied fuel	0.88
	circulated fuel	0.12
Fuel utilization ratio		91.0 %
Air ratio		2.39
Power ratio	SOFC	0.79
	GT	0.21
Thermal efficiency (HHV)		69.5 %

のアノード排ガスの 60% をアノード入口へ再循環させるため、燃料は電池入口で 670 まで予熱すればよい。内部熱回収型の場合、アフターバーナでの予熱に用いる追い炊き燃料は不要となる。燃料循環方式は排熱ボイラを設置しないため、最終の排ガス温度は蒸気投入方式よりも高くなる傾向があるが、排ガス中に含まれる水蒸気が少ないので潜熱による損失は小さくなる。また、改質用蒸気はアノード排ガスの 60% を再循環させることにより、電池入口で S/C 比を 2.4 に維持する。内部熱回収型 SOFC-GT 複合システムの最適条件および性能を表 3.4、表 3.5 に示す。

3.5.2 熱効率による性能評価

内部熱回収型の圧力比と熱効率の関係を図 3.5 に示す。また、図中では蒸気投入方式 (Steam addition layout) と燃料循環方式 (Fuel circulation layout) の熱効率を比較している。蒸気投入方式の場合は、排熱ボイラのピンチポイントが 30 未満になるのを避けるため、再生用熱交換器の温度効率を 85% としている。TIT はともに 1100 とする。システムの熱効率は低圧力比で高くなる傾向があり、各方式の効率を比較すると、蒸気投入方式に比べ燃料循環方式のほうが高くなる。最高効率は、蒸気投入方式の場合 66.7% (圧力比 6)、燃料循環方式の場合 69.6% (圧力比 4) であり、これらの最適条件の諸量は表 3.4、表 3.5 に示している。

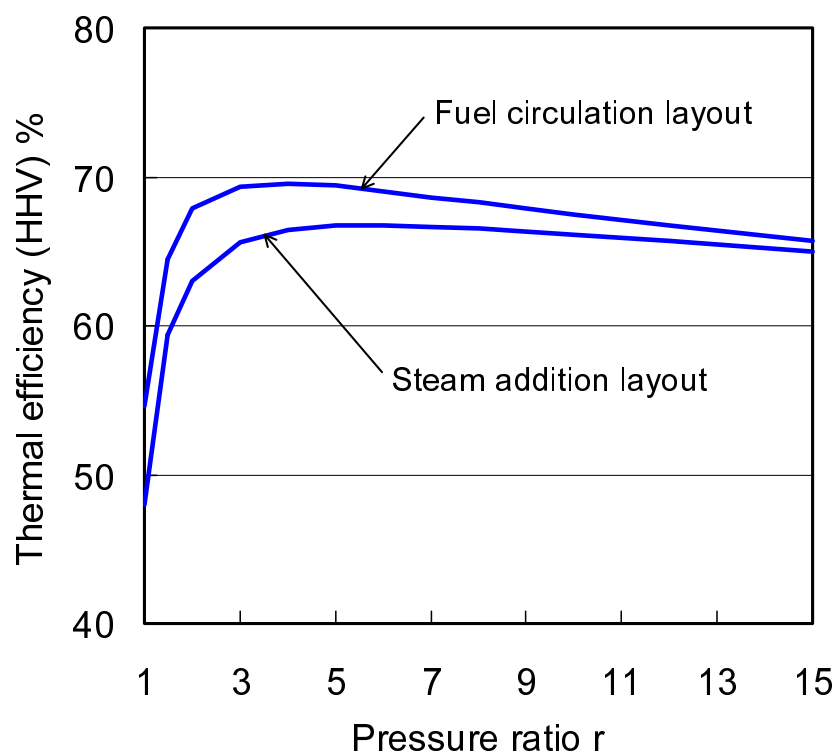


図 3.5 内部熱回収型 SOFC-GT 複合システムの熱効率

3.6 多段型 SOFC-GT 複合システム

多段型 SOFC-GT 複合システムには、複数の SOFC を直列に並べることで空気利用率を高め、システム全体の空気比を下げる効果があり、後段の SOFC に供給される空気の予熱が不要となる。また、1 段目の SOFC から排出される未反応燃料の一部が後段での電池の反応に用いられるため、SOFC 全体の燃料利用率は単体の 80% よりも高くできる。本節では、2 段型および 3 段型 SOFC-GT 複合システムについて性能を評価する。

3.6.1 2 段型 SOFC-GT 複合システム系統図

2 段型 SOFC-GT 複合システムの系統図を図 3.6 に示す。SOFC 入口、出口の温度はそれぞれ 950℃、1050℃ であるので、2 つの電池間に熱交換器を設置して前段からの排ガスを冷却し、その熱を燃料、空気の予熱に用いるものとする。それにより、燃料および空気は、アフターバーナ出口で 850℃ 程度まで予熱すればよく、また、後段の SOFC に供給される

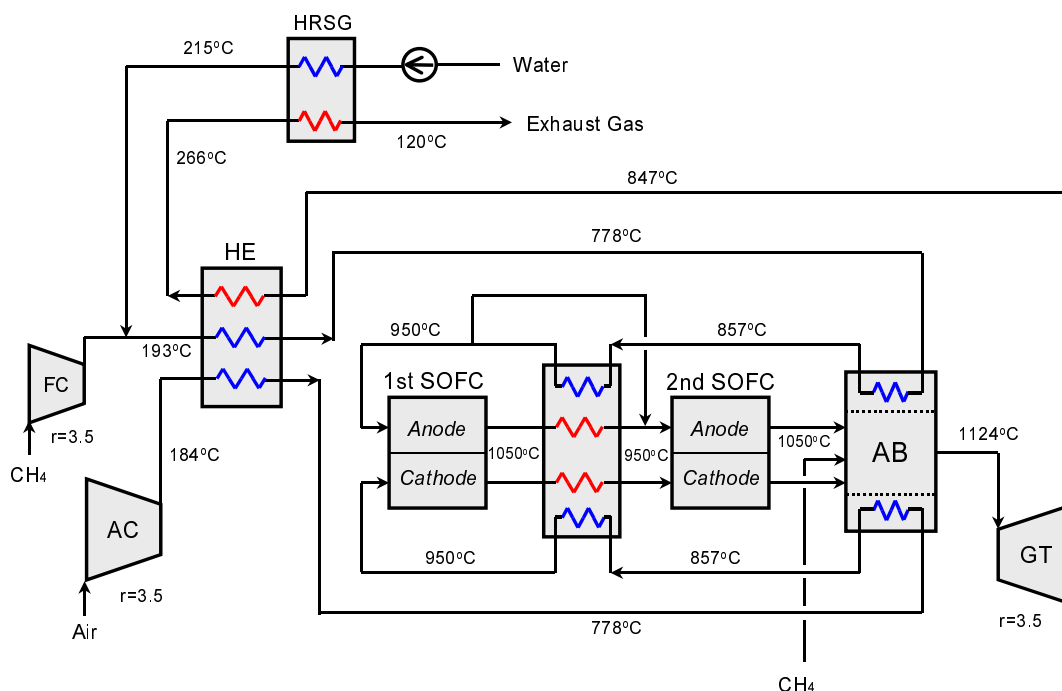


図 3.6 2 段型 SOFC-GT 複合システム

燃料，空気を予熱する必要がないため，予熱に用いる追い炊き燃料は標準型の場合に比べて大幅に少なくできる．2 段型 SOFC-GT 複合システムの最適条件および性能を表 3.6 に示す．

3.6.2 2 段型システムの熱効率による性能評価

2 段型システムの圧力比と熱効率の関係を図 3.7 に示す．パラメータである TIT については，電池の未反応燃料をすべて燃焼させたときの燃焼ガス温度（1124℃）を上限とする．圧力比の選び方によって，アフターバーナに追い炊き燃料を供給する必要のある再熱領域（図中の A 領域および B 領域を合わせた部分）と供給する必要のない非再熱領域（図中の Non reheat の部分）が存在する．また，多段型の場合も，再熱領域内では標準型の場合と同様に A 領域と B 領域に分けられる．A 領域と B 領域の特性の違いは，標準型の場合と同様である．圧力比の低い非再熱領域では，タービン出口温度が高く，タービンの排熱のみで燃料，空気の予熱および改質用蒸気の生成を行うことが可能であるため，追い炊き燃料は不要である．一方，圧力比の高い再熱領域では，タービン排熱のみで予熱が行えないため，アフターバーナに追い炊き燃料を供給し，熱量を補う必要がある．TIT を低く設定す

表 3.6: 2 段型 SOFC-GT 複合システムの最適条件および性能

Pressure ratio		3.5
Turbine inlet temperature		1124
Fuel flow ratio	1st SOFC	0.47
	2nd SOFC	0.42
	AB	0.11
Fuel utilization ratio		88.5 %
Air ratio	SOFC	3.10
	System	2.75
Power ratio	1st SOFC	0.34
	2nd SOFC	0.37
	GT	0.30
Thermal efficiency (HHV)		66.9 %

ると、アフターバーナ内において燃焼ガス温度を下げる必要があるため、燃料、空気で回収する熱量は増加する。それに伴って再生熱交換器での予熱に必要な熱量が少なくなるため、タービンの排熱は余剰し、システムの熱効率は低下する。2 段型の場合も圧力比の低い領域で高効率となり、最適点の効率は TIT 1124 の場合 66.9% であり、その条件での諸量を表 3.6 に記している。多段型において、熱効率が標準型に比べ著しく改善される原因は、アフターバーナでの予熱に必要な追い炊き燃料を少なくできること、システム全体の空気比を小さくでき、システムの排熱が減少すること、SOFC1 段目から排出される燃料が後段で利用できるため、総合的な燃料利用率が増加することによる。

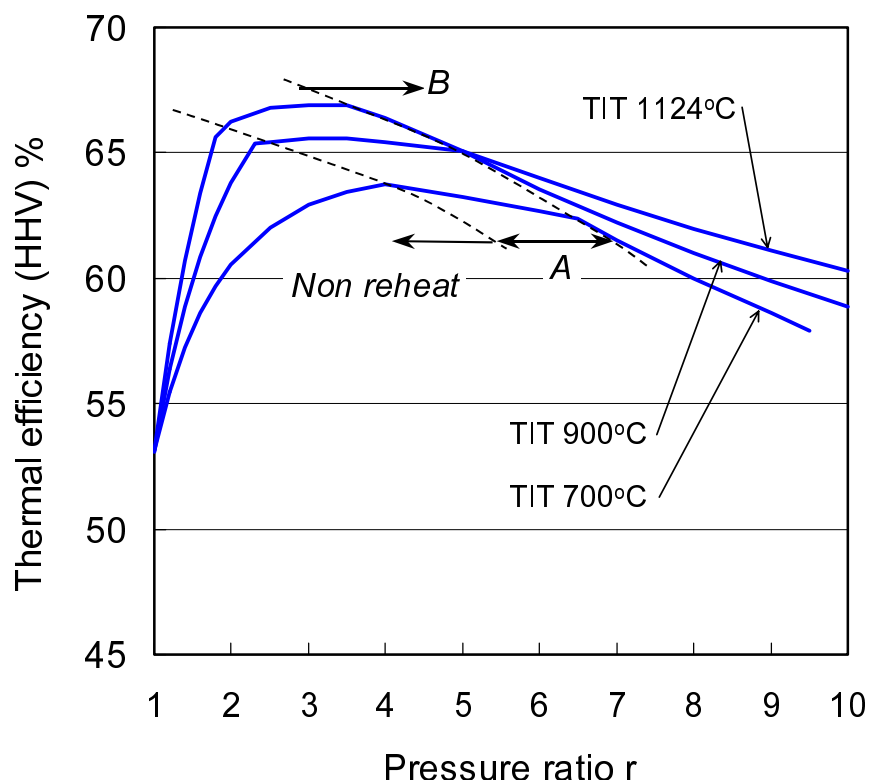


図 3.7 2 段型 SOFC-GT 複合システムの熱効率

3.6.3 3 段型 SOFC-GT 複合システム系統図

3 段型 SOFC-GT 複合システムの系統図を図 3.8 に示す。2 段型に比べて、SOFC 全体の燃料、空気の利用率はさらに向上する。各 SOFC 間で予熱を行うため、燃料および空気はアフターバーナ出口で 770 程度まで予熱すればよく、予熱に必要な追い炊き燃料は 2 段型に比べて少なくできる。また、多段型システムの場合、2 段目あるいは 3 段目の SOFC で行う燃料改質は、前段から排出されるアノード排ガス中に含まれる水蒸気で行うことが可能である。それゆえ、1 段目の電池に外部から蒸気を投入すれば、2 段目および 3 段目の電池には蒸気を投入する必要はなくなる。改質用蒸気の供給系統として、SOFC の全段に蒸気を投入する方式（全段蒸気投入方式）を図 3.9 に、1 段目のみに蒸気を供給する方式（1 段目蒸気投入方式）を図 3.10 に示す。1 段目蒸気投入方式は、全段蒸気投入方式よりも排熱ボイラで生成させる蒸気量を減らすことができる利点がある。本節では、3 段型 SOFC-GT

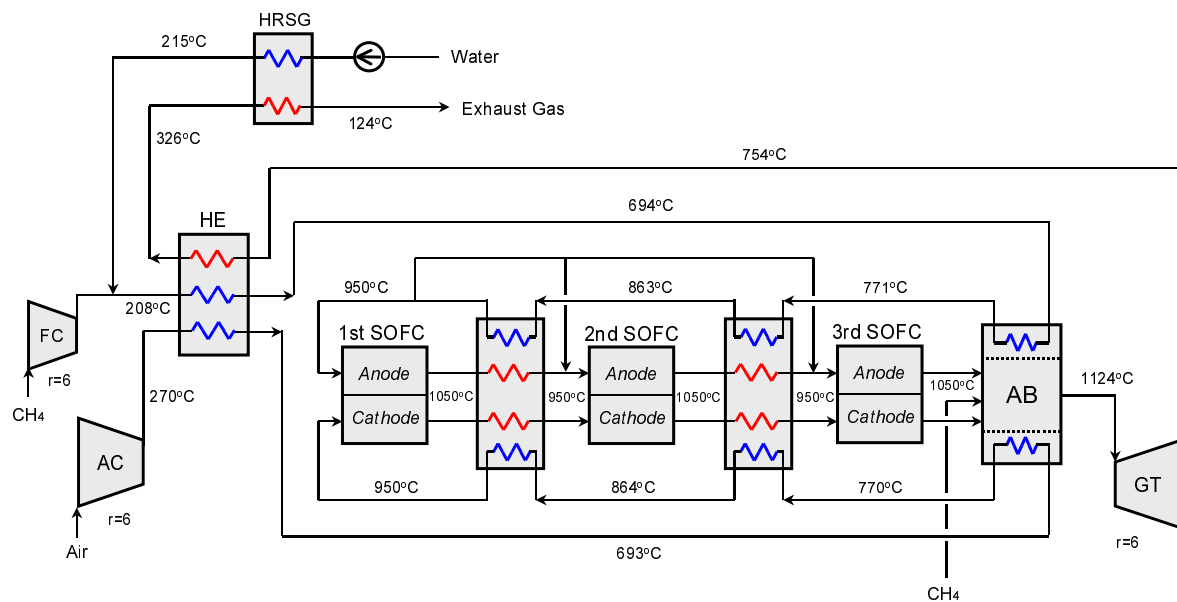


図 3.8 3 段型 SOFC-GT 複合システム

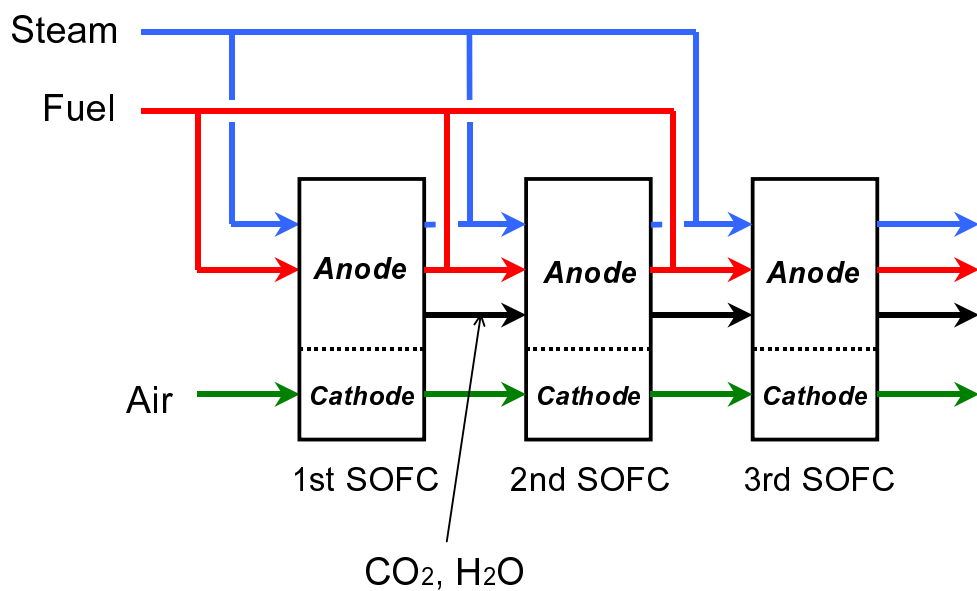


図 3.9 全段蒸気投入方式 (S/C mole ratio = 3.0)

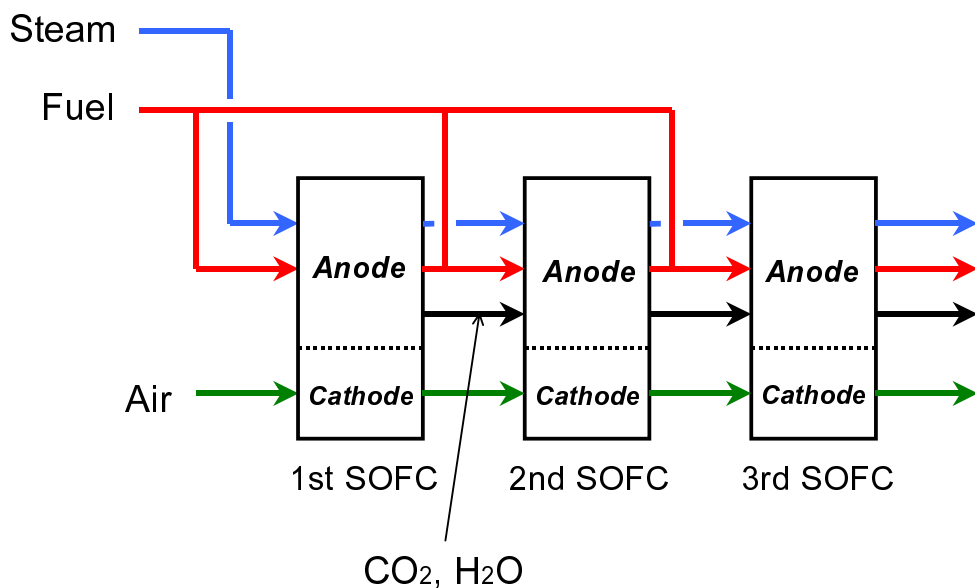


図 3.10 1 段階蒸気投入方式 (S/C mole ratio = 1.1)

表 3.7: 3 段階 SOFC-GT 複合システム (全段階蒸気投入方式および 1 段階蒸気投入方式) の最適条件および性能

		All cells steam addition	1st cell steam addition
Pressure ratio		6.0	4.0
Turbine inlet temperature		1124	1124
Fuel flow ratio	1st SOFC	0.32	0.37
	2nd SOFC	0.29	0.31
	3rd SOFC	0.31	0.32
	AB	0.08	0.0
Fuel utilization ratio		91.7 %	92.1 %
Air ratio	SOFC	2.05	2.18
	System	1.89	2.18
Power ratio	1st SOFC	0.23	0.25
	2nd SOFC	0.24	0.26
	3rd SOFC	0.27	0.27
	GT	0.26	0.22
Thermal efficiency (HHV)		68.8 %	70.9 %

複合システムについて，全段蒸気投入方式と1段目蒸気投入方式の2方式について検討する．各方式の最適条件および性能を表3.7に示す．

3.6.4 3段型システムの熱効率による性能評価

3段型の圧力比と熱効率の関係を図3.11に示す．また，図中では全段蒸気投入方式（All cells steam addition）と1段目蒸気投入方式（1st cell steam addition）の熱効率を比較している．Non reheat 領域，A 領域およびB 領域の特性は図3.7と同様である．熱効率は2段型に比べて3段型のほうが高くなる．また，3段型についても2段型と同様，低圧力比で追い炊き燃料が不要となる非再熱領域が存在する．3段型の2方式を比較すると，1段目蒸気投入方式のほうが全段蒸気投入方式よりも最高効率が高くなる．全段蒸気投入方式は，排熱ボイラで生成する蒸気量が多く，図中のA 領域で排熱ボイラでのピンチポイントの温度差を30 以上に維持するために最小限の追い炊き燃料を供給する必要がある．A 領域で圧力比を高めても効率がほとんど向上しないのは，供給される追い炊き燃料が増加することによる．一方，1段目蒸気投入方式は蒸気流量が少ないためにA 領域は存在せず，全段

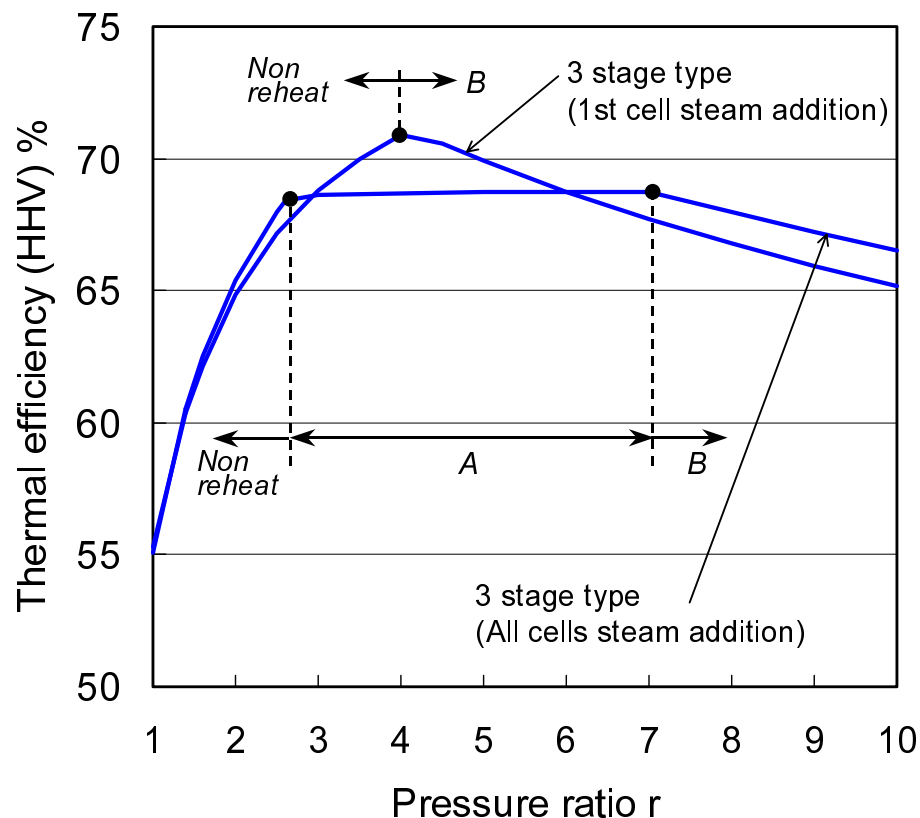


図 3.11 3 段型 SOFC-GT 複合システムの熱効率

蒸気投入方式よりも最高効率は高くなる．3 段型の最高効率はそれぞれ，全段蒸気投入方式の場合 68.8%（圧力比 6），1 段目蒸気投入方式の場合 70.9%（圧力比 4）である．これらの最適条件の諸量は表 3.7 に示している．

3.7 エクセルギー評価

各 SOFC-GT 複合システムのエクセルギー評価を図 3.12 に示す．全投入燃料の保有するエクセルギーに対するシステム各要素でのエクセルギー損失および出力の内訳を%値で示している．各システム圧力比，TIT などの条件は，前述の最高効率をとるときの最適値を選

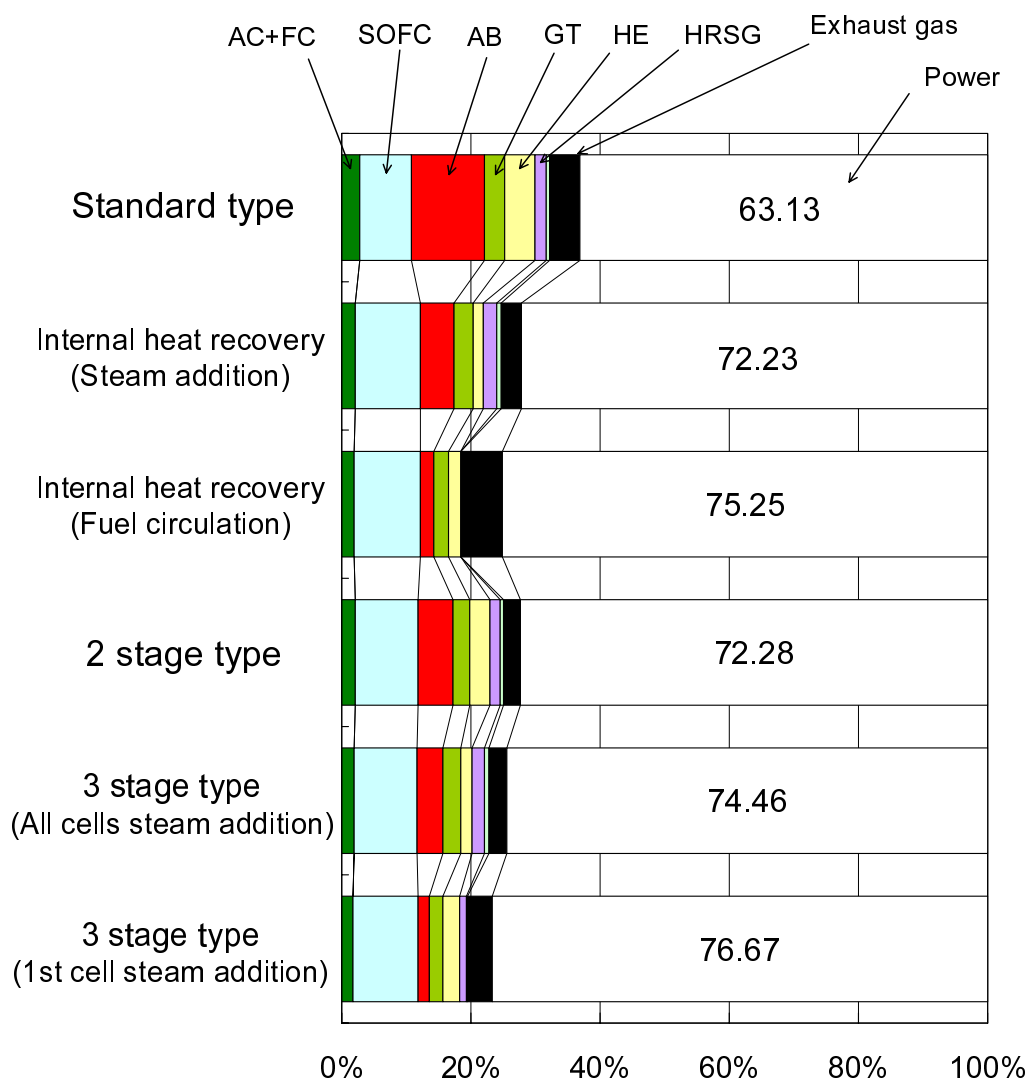


図 3.12 SOFC-GT 複合システムのエクセルギー損失の比較

んでいる．SOFC-GT 複合システムの場合，主反応器である SOFC のエクセルギー損失は 10%程度である．一方，SOFC を持たないガスタービンシステムの場合，主反応器である燃焼器のエクセルギー損失は 25～30%程度あり，要素全損失の中でも占める割合は最も大きい．SOFC-GT 複合システムが従来のガスタービンシステムに比べて高効率となるのは，主反応器である SOFC のエクセルギー損失が小さいことが主原因である．また，SOFC-GT 複合システムの高効率化において，アフターバーナでのエクセルギー損失を低減することが，システムの効率向上に効果的である．標準型はシステムに投入する全燃料のうちの 30%が，燃料，空気予熱のための追い炊き燃料としてアフターバーナに投入されるので，アフターバーナでの損失は大きくなる．さらに，空気が過剰となるので排ガス流量は多く，排ガスによる損失は大きくなる．一方，内部熱回収型は追い炊き燃料が不要で，特に燃料循環方式には燃料利用率を高める効果がある．また，多段型には SOFC 全体の燃料利用率を高め，追い炊き燃料の割合を少なくする効果がある．これらの効果と空気利用率の向上により，標準型に比べ，内部熱回収型や多段型ではアフターバーナおよび排ガスによるエクセルギー損失を小さくでき，システムの効率は改善される．

3.8 結 言

本章では，SOFC-GT 複合システムにおいて高性能化を図るために多段型複合方式を提案し，各複合システムの性能を定量的に評価，比較した．その結果，以下の知見を得た．

- (1) 標準型，内部熱回収型，多段型のいずれのシステムも低圧力比で高効率となる傾向がある．また，標準型および多段型システムは，TIT や圧力比の条件に応じて，アフターバーナへ追い炊き燃料を供給し，燃料，空気の予熱をアフターバーナ内の燃焼ガスを用いて行う必要がある．多段型は，圧力比の低い領域で追い炊き燃料が不要である．
- (2) SOFC-GT 複合システムの主反応器である SOFC のエクセルギー損失は，従来のガスタービンシステムにおける燃焼器のエクセルギー損失よりも大幅に小さくなる．SOFC-GT 複合システムが従来のガスタービンよりも高効率となるのは，主反応器のエクセルギー損失が小さいことによる．
- (3) 標準型の効率が低くなる原因は，アフターバーナにおけるエクセルギー損失が大きいことによる．多段型や内部熱回収型にシステムの構成を改善することにより燃料および空気の利用率は向上し，アフターバーナでの損失および排ガスによる損失を小さくできる．
- (4) 本章で提案した 3 段型 (1 段目蒸気投入方式) SOFC-GT 複合システムの熱効率は，内部熱回収型よりも高く，70% (HHV) を超える．

文 献

- [1] Palsson, J., Selimovic, A. and Sjunnesson, L., “Combined Solid Oxide Fuel Cell and Gas Turbine Systems for Efficient Power and Heat Generation”, *J. of Power Sources*, Vol.86, pp.442–448, 2000.
- [2] Massardo, A. F. and Lubelli, F., “Internal Reforming Solid Oxide Fuel Cell–Gas Turbine Combined Cycles (IRSOFC-GT): Part A – Cell Model and Cycle Thermodynamic Analysis”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.122, pp.27–35, 2000.
- [3] 森則之, 阿部俊夫, 渡辺隆夫 “固体電解質型燃料電池複合発電システムの研究 (第 1 報, 数値シミュレーションによるシステム性能の解析)”, 日本機械学会論文集 (B 編), Vol.66, No.652, pp.3256–3261, 2000.
- [4] Palsson, J., Selimovic, A. and Hendriksen, P., “Intermediate Temperature SOFC in Gas Turbine Cycles”, *ASME Paper*, 2001-GT-0091, 2001.
- [5] Rao, A. D. and Samuelsen, G. S., “A Thermodynamic Analysis of Tubular Solid Oxide Fuel Cell Based Hybrid Systems”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.125, pp.59–66, 2003.
- [6] Kuchonthara, P., Bhattacharya, S. and Tsutsumi, A., “Combinations of Solid Oxide Fuel Cell and Several Enhanced Gas Turbine Cycles”, *J. of Power Sources*, Vol.124, pp.65–75, 2003.
- [7] Kuchonthara, P., Bhattacharya, S. and Tsutsumi, A., “Energy Recuperation in Solid Oxide Fuel Cell (SOFC) and Gas Turbine (GT) Combined System”, *J. of Power Sources*, Vol.117, pp.7–13, 2003.
- [8] Onda, K., Iwanari, T., Miyauchi, N., Ito, K., Ohba, T., Sakaki, Y. and Nagata, S., “Cycle Analysis of Combined Power Generation by Planar SOFC and Gas Turbine Considering Cell Temperature and Current Density Distributions”, *J. of The Electrochemical Society*, Vol.150, pp.A1578–A1585, 2003.
- [9] 森則之, 阿部俊夫, 渡辺隆夫 “固体電解質型燃料電池複合発電システムの研究 (第 2 報, 構成が異なる発電システムの性能解析)”, 日本機械学会論文集 (B 編), Vol.66, No.652, pp.3262–3267, 2000.

- [10] Johansson, K. B., Båfält, M. H. and Pålsson, J., “Solid Oxide Fuel Cells in Future Gas Turbine Combined Power Plants”, *CIMAC Congress 1998*, pp.277–285, 1998.
- [11] Winkler, W. and Lorenz, H., “The Design of Stationary and Mobile Solid Oxide Fuel Cell–Gas Turbine Systems”, *J. of Power Sources*, Vol.105, pp.222–227, 2002.
- [12] Campanari, S. and Macchi, E., “Performance Prediction of Small-Scale Tri-Generation Plants Based on Integrated SOFC and Microturbine Systems”, *ASME Paper*, 2000-GT-318, 2000.
- [13] 波江貞弘, 汐崎浩毅, 野村雅宣, 川越陽一, 熊倉孝尚, “CO₂ 分離を目的とする固体電解質燃料電池複合サイクルの研究”, *日本機械学会論文集 (B 編)*, Vol.59, No.565, pp.2702–2708, 1993.
- [14] Riensche, E., Achenbach, E., Froning, D., Haines, M. R., Heidug, W. K., Lokurlu, A. and Andrian, S., “Clean Combined-Cycle SOFC Power Plant – Cell Modelling and Process Analysis”, *J. of Power Sources*, Vol.86, pp.404–410, 2000.
- [15] Harvey, S. P. and Richter, H. J., “Gas Turbine Cycles with Solid Oxide Fuel Cells Part I: Improved Gas Turbine Power Plant Efficiency by Use of Recycled Exhaust Gases and Fuel Cell Technology”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.116, pp.305–311, 1994.
- [16] Harvey, S. P. and Richter, H. J., “Gas Turbine Cycles with Solid Oxide Fuel Cells Part II: A Detailed Study of a Gas Turbine Cycle with an Integrated Internal Reforming Solid Oxide Fuel Cell”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.116, pp.312–318, 1994.
- [17] Campanari, S., “Full Load and Part-Load Performance Prediction for Integrated SOFC and Microturbine Systems”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.122, pp.239–246, 2000.
- [18] Costamagna, P., Magistri, L. and Massardo, A. F., “Design and Part-Load Performance of a Hybrid System Based on a Solid Oxide Fuel Cell Reactor and a Micro Gas Turbine”, *J. of Power Sources*, Vol.96, pp.352–368, 2001.
- [19] Magistri, L., Costamagna, P., Massardo, A. F., Rodgers, C. and McDonald, C. F., “A Hybrid System Based on a Personal Turbine (5kW) and a Solid Oxide Fuel Cell Stack:

- A Flexible and High Efficiency Energy Concept for the Distributed Power Market”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.124, pp.850–857, 2002.
- [20] Selimovic, A. and Palsson, J., “Networked Solid Oxide Fuel Cell Stacks Combined with a Gas Turbine Cycle”, *J. of Power Sources*, Vol.106, pp.76–82, 2002.
- [21] Massardo, A. F., McDonald, C. F. and Korakianitis, T., “Microturbine/Fuel-Cell Coupling for High-Efficiency Electrical-Power Generation”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.124, pp.110–116, 2002.
- [22] Palsson, J. and Selimovic, A., “Design and Off-Design Predictions of a Combined SOFC and Gas Turbine System”, *ASME Paper*, 2001-GT-0379, 2001.
- [23] Chan, S. H., Ho, H. K. and Tian, Y., “Modelling for Part-Load Operation of Solid Oxide Fuel Cell–Gas Turbine Hybrid Power Plant”, *J. of Power Sources*, Vol.114, pp.213–227, 2003.
- [24] Veyo, S. E., Shockling, L. A., Dederer, J. T., Gillett, J. E. and Lundberg, W. L., “Tubular Solid Oxide Fuel Cell/Gas Turbine Hybrid Cycle Power Systems: Status”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.124, pp.845–849, 2002.
- [25] Lundberg, W. L., Veyo, S. E. and Moeckel, M. D., “A High-Efficiency Solid Oxide Fuel Cell Hybrid Power System Using the Mercury 50 Advanced Turbine Systems Gas Turbine”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.125, pp.51–58, 2003.
- [26] Hyprotech Ltd., *HYSYS Plant Ver.2.1.1*, 1999.
- [27] U.S. Department of Energy, *Fuel Cell Handbook (Fifth Edition)*, Morgantown, WV, 2000.

第 4 章

燃焼過程におけるエントロピー生成の解析

4.1 緒 言

ガスタービン等のエネルギー変換システムの性能評価や不可逆損失の低減を行う上で、エントロピー生成およびエクセルギー損失の解析は有効な手法である。エネルギーシステムの各構成要素における熱、物質の輸送や反応過程を解析し、要素内部におけるエントロピー生成を分析することにより、システムの高性能化のための指針を示すことが可能となる。これまでもエントロピー生成解析により、熱交換器や燃焼器等の熱機器における不可逆損失の低減のための形状、作動条件の最適化が行われてきた。

Bejan^[1] は、チャンネル内対流熱伝達における熱伝導、粘性に起因するエントロピー生成を解析し、熱伝達による不可逆損失の評価および低減のための解析手法を考案した。また、エントロピー生成の最小化手法を熱交換器の設計に適用し、最適な流路の経路長を求めている^[2]。San ら^[3] は平行平板間の流れ、Poulikakos ら^[4] は平板上および円柱回りの流れを対象とし、熱伝導、粘性、物質拡散に起因するエントロピー生成を解析し、流れ場の形状の最適化によるエントロピー生成の最小化を行っている。

燃焼過程におけるエントロピー生成の解析も行われている^[5-10]。Puri^[5]、Hiwase ら^[6] は液滴燃焼、Datta ら^[7] は噴霧燃焼、Arpaci ら^[8] は平面火炎におけるエントロピー生成およびエクセルギー損失の解析を行っており、エクセルギー損失を低減させるための燃焼を制御するパラメータを検討している。Datta ら^[9] は、層流拡散火炎におけるエントロピー生成速度を解析し、入口空気温度および空燃比がエントロピー生成に及ぼす影響を分析している。その結果、拡散火炎のエクセルギー損失の大部分が温度勾配による熱伝導に起因することを明らかにしている。Dunbar ら^[10] は、拡散火炎におけるエクセルギー損失の約 75% が熱伝導に起因することを示している。

燃焼のエクセルギー損失は、ガスタービン等の燃焼システム構成要素の全エクセルギー損失中で占める割合が最も大きい。反応を伴う多成分の流れ系における不可逆損失は、粘性消散、熱伝導、物質拡散、反応によって生じるエントロピー生成が原因であり^[11]、各過

程によるエントロピー生成を解析することにより，燃焼におけるエクセルギー損失が大きくなる原因を分析することができる．これまでの燃焼におけるエントロピー生成の解析では，火炎構造の違いによる特性が明確にされておらず，また，燃焼場を総括反応により解析しているため，現実の素反応や多成分拡散が考慮されていない．本章では，素反応および多成分拡散を考慮した層流予混合および拡散火炎を対象として，燃焼場の局所におけるエントロピー生成を粘性消散，熱伝導，物質拡散，反応の各過程ごとに解析し，それぞれの過程が燃焼のエントロピー生成に及ぼす影響を評価する．また，燃料の種類，当量比および流体の流入温度が各過程のエントロピー生成に及ぼす影響を示すとともに，エクセルギー解析により，燃焼におけるエクセルギー損失特性を定量的に分析する．燃焼のエクセルギー損失に寄与する過程を特定し，またその特性が火炎の構造やパラメータによって異なることを明らかにすることにより，エクセルギー損失低減のための方針を示す．

4.2 記 号

本章で用いる記号を以下に記す．

g	重力加速度
H	エンタルピー
H_i	i 成分のエンタルピー
$\dot{j}_i$	i 成分の質量流束
n_i	i 成分のモル数
p	圧力
q	熱流束
r_i	i 成分の反応量
S	エントロピー
S_i	i 成分のエントロピー
T	温度
U	内部エネルギー
v	速度
w_i	i 成分の質量分率
μ_i	i 成分の化学ポテンシャル
ρ	密度
τ	粘性力
ϕ	当量比

4.3 基礎方程式

4.3.1 燃焼の数値計算に用いる基礎式

以下の質量，運動量，エネルギー，化学種成分の各保存式に基づいて燃焼過程の数値計算を行う．

$$\text{質量保存式：} \quad \frac{D\rho}{Dt} = -\rho(\nabla \cdot \mathbf{v}) \quad (4.1)$$

$$\text{運動量保存式：} \quad \rho \frac{D\mathbf{v}}{Dt} = -\nabla p - (\nabla \cdot \boldsymbol{\tau}) + \rho \mathbf{g} \quad (4.2)$$

$$\text{エネルギー保存式：} \quad \rho \frac{DH}{Dt} = -(\nabla \cdot \mathbf{q}) - (\boldsymbol{\tau} : \nabla \mathbf{v}) + \frac{Dp}{Dt} \quad (4.3)$$

$$\text{化学種成分保存式：} \quad \rho \frac{Dw_i}{Dt} = -(\nabla \cdot \mathbf{j}_i) + r_i \quad (4.4)$$

4.3.2 エントロピー保存式

不可逆損失が起こる系ではエントロピーが増大する．このエントロピーの生成に対する定量的な表現を，エントロピー保存式を導くことによって得ることができる^[11]．

エントロピー保存式についても質量，運動量，エネルギー，化学種成分保存式と同様に，次のような一般的な保存式の形で表現できる．

$$\rho \frac{DS}{Dt} = -\nabla \cdot \mathbf{j}_S + \frac{\Phi}{T} \quad (4.5)$$

$\mathbf{j}_S$ は拡散によるエントロピーの流束， Φ/T はエントロピーの内部生成速度である．また，各項については，左辺は対流項，右辺第 1 項は拡散項，右辺第 2 項は生成項を表す．

式 (4.5) のエントロピー保存式を定量的に表現するため，式 (4.6) に示される不可逆過程の熱力学の基礎式を用いる．

$$dU = TdS - pdV + \sum_i \mu_i dn_i \quad (4.6)$$

dU ， dS は，それぞれ内部エネルギー，エントロピー変化， pdV は仕事である．

式 (4.6) と質量保存式（式 (4.1)），エネルギー保存式（式 (4.3)），化学種成分保存式（式 (4.4)）からエントロピー保存式は式 (4.7) の形で表現できる．

$$\rho \frac{DS}{Dt} = \frac{1}{T} \left[-(\boldsymbol{\tau} : \nabla \mathbf{v}) - (\mathbf{q}_c \cdot \nabla \ln T) - \left(\sum_i \mathbf{j}_i \cdot \nabla \mu'_i \right) - \left(\sum_i \mu_i \cdot r_i \right) \right] - \left[\nabla \cdot \left(\frac{\mathbf{q}_c}{T} + \sum_i \mathbf{j}_i \cdot S_i \right) \right] \quad (4.7)$$

式 (4.7) 中の $\mathbf{q}_c$, μ_i , μ'_i については , 式 (4.8) ~ (4.10) により求める .

$$\mathbf{q}_c = \mathbf{q} - \sum_i H_i \mathbf{j}_i \quad (4.8)$$

$$H_i = TS_i + \mu_i \quad (4.9)$$

$$\nabla \mu'_i = \nabla \mu_i + S_i \nabla T \quad (4.10)$$

式 (4.8) における $\mathbf{q}_c$ は , 全熱流束から物質の拡散によるエンタルピー輸送を引いたもので , 温度勾配による熱伝導が支配的となる .

式 (4.5) と比較すれば , 式 (4.7) の左辺は対流項 , 右辺第 1 項は生成項 , 第 2 項は拡散項を意味することがわかる . 式 (4.5) における Φ は次の形をとる .

$$\Phi = \Phi_1 + \Phi_2 + \Phi_3 + \Phi_4 \quad (4.11)$$

$$\Phi_1 = -(\boldsymbol{\tau} : \nabla \mathbf{v}) \quad (4.12)$$

$$\Phi_2 = -(\mathbf{q}_c \cdot \nabla \ln T) \quad (4.13)$$

$$\Phi_3 = - \left(\sum_i \mathbf{j}_i \cdot \nabla \mu'_i \right) \quad (4.14)$$

$$\Phi_4 = - \left(\sum_i \mu_i \cdot r_i \right) \quad (4.15)$$

Φ_1 から Φ_4 の各エントロピー生成項と流れ系の各過程の関係については , Φ_1 は粘性消散に起因するエントロピー生成 , Φ_2 は温度勾配による熱伝導に起因するエントロピー生成 , Φ_3 は物質の拡散に起因するエントロピー生成 , Φ_4 は反応に起因するエントロピー生成を意味する . また , 式 (4.7) の右辺第 2 項の拡散項から , エントロピーの拡散は温度勾配による熱伝導および物質の拡散に起因することがわかる .

4.4 解析手法および条件

質量，運動量，エネルギー，化学種成分の各保存式をもとに，素反応および多成分拡散を考慮して層流予混合および拡散火炎を解析する．各保存式は差分法により離散化して数値計算を行う．また，熱力学的諸量および輸送係数は CHEMKIN データベース^[12,13]を用いて求める．

層流予混合火炎の解析では，定常 1 次元層流予混合火炎を対象とし，CHEMKIN の汎用プログラム^[14]を用いて行う．燃料は水素，メタンの 2 種類とし，水素の燃焼では 8 成分 (H_2 , O_2 , H_2O , N_2 , O , H , OH , HO_2) の化学種および 16 の素反応式^[15]，メタンの燃焼では 32 成分の化学種および 186 の素反応式^[16]を考慮する． NO_x に関する素反応は考慮しないものとする．計算領域は 100mm とし，この領域に不等間隔格子を配置する．計算格子幅は最小のところで 0.001mm である．層流拡散火炎の解析では，軸対称噴流拡散火炎を対象とし，燃料は窒素で希釈した水素（体積分率で $H_2:N_2=0.3:0.7$ ）とする．考慮した化学種および素反応は予混合火炎の場合と同様である．計算領域は軸方向 100mm，半径方向 70mm とし，不等間隔格子を配置する．計算格子幅は最小のところで 0.005mm である．

燃焼過程におけるエントロピー生成の解析では，エントロピー保存式をもとに，粘性消散，熱伝導，物質拡散，反応の各過程に起因するエントロピー生成量を定量的に算出する．エントロピー保存式は，前述の燃焼過程の数値計算によって得られた化学種のモル分率，速度，温度を用いて解くことができる．

4.5 層流予混合火炎におけるエントロピー生成解析

本節では，1 次元層流予混合火炎におけるエントロピー生成およびエクセルギー損失を解析し，燃料，当量比および流体の流入温度がエントロピー生成に及ぼす影響を明らかにする．

4.5.1 水素燃料の火炎におけるエントロピー生成

燃料として水素を用いた場合の予混合火炎における化学種のモル分率および温度の分布を図 4.1 に示す．当量比は $\phi=1.0$ ，流入温度は 25 である． x は火炎面に対して垂直方向の任意の距離である．主要な反応域が存在する $x=1.0 \sim 1.5\text{mm}$ の領域では，温度が著しく上昇し， H_2O および活性化学種の濃度が増加する．また，生成物濃度や温度が平衡状態となる位置はおおよそ $x=10\text{mm}$ であり，主要な反応域から平衡状態になるまでの距離は長くなる．燃焼速度は 2.17m/s であり，文献^[17]に記されている値とほぼ一致する．

図 4.2 にエントロピー生成速度を各過程ごとに示す．Viscous dissipation は粘性消散，Heat

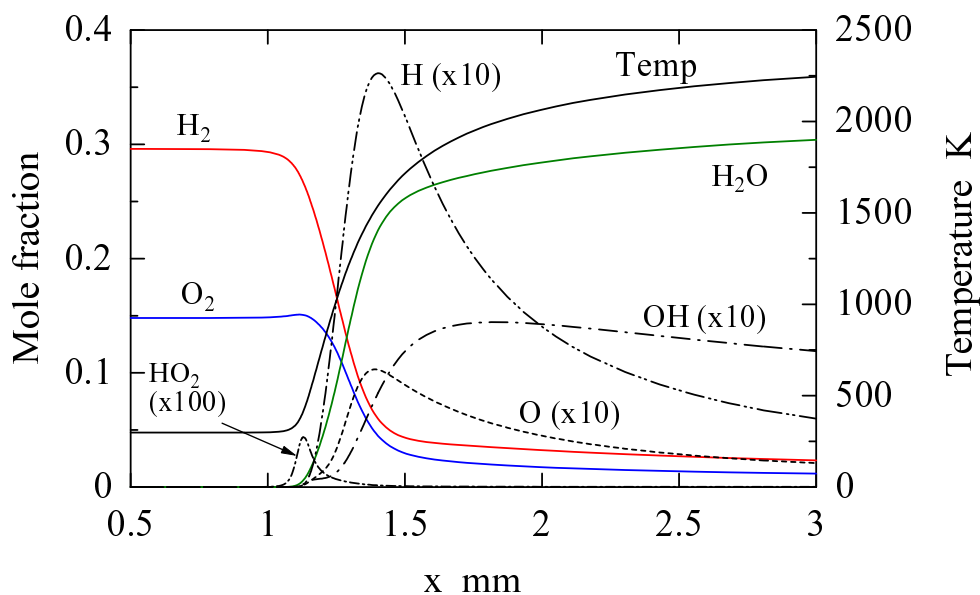


図 4.1 予混合火炎における濃度，温度分布（燃料:水素， $\phi=1.0$ ，流入温度:25 K）

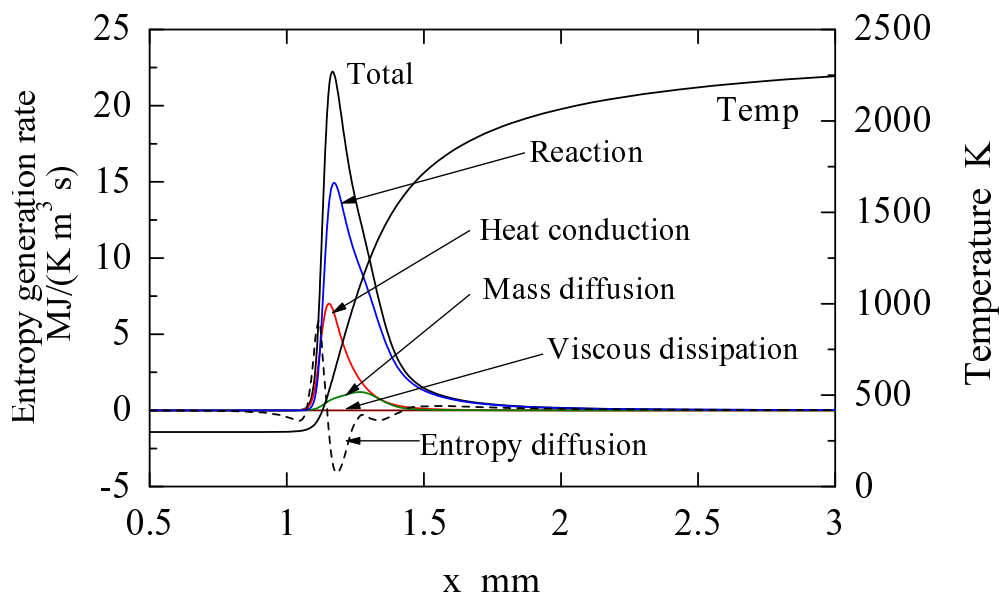


図 4.2 予混合火炎におけるエントロピー生成速度（燃料:水素， $\phi=1.0$ ，流入温度:25 K）

conduction は熱伝導, Mass diffusion は物質拡散, Reaction は反応に起因するエントロピー生成速度をそれぞれ意味し, Total はそれらの合計を表す. また, Entropy diffusion は拡散によるエントロピーの流出 (負値) あるいは流入量 (正值) である. エントロピー生成速度は, $x=1.0 \sim 1.5\text{mm}$ の領域で大きくなり, 図 4.1 における火炎の反応域の位置とほぼ一致する. エントロピー生成速度を積算することによって求めた各過程のエントロピー生成量を比較すると, 反応に起因するエントロピー生成量が最も多くなり全体の 72.6% を占める. 熱伝導に起因するエントロピー生成量は全体の 21.6% で 2 番目に多い. 物質拡散に起因するエントロピー生成量は, 反応, 熱伝導に比べると少なく, 粘性消散に起因するエントロピー生成は他のものに比べて無視できるほど小さい.

4.5.2 メタン燃料の火炎におけるエントロピー生成

燃料としてメタンを用いた場合の予混合火炎における化学種のモル分率および温度の分布を図 4.3 に示す. 当量比は $\phi=1.0$, 流入温度は 25 である. $x=2.0 \sim 2.5\text{mm}$ の領域に主要な反応域が存在し, 温度が著しく上昇する. その中でも活性化学種の濃度は, 温度が約 1700K に達する領域で著しく増加する. 燃焼速度は 0.38m/s であり, 文献^[17] に記されている値とほぼ一致する.

図 4.4 にエントロピー生成速度を各過程ごとに示す. $x=2.5\text{mm}$ より上流側では, 熱伝導に起因するエントロピー生成が大きく, 活性化学種の生成が著しい $x=2.5\text{mm}$ より下流側では, 反応に起因するエントロピー生成が支配的となる. 反応によるエントロピー生成速度の最大値は, 熱伝導に起因するエントロピー生成速度の最大値の約 2 倍である. 各過程のエントロピー生成量を比較すると, 反応に起因する生成量が最も大きく, 全体の 55.3% を占める. 熱伝導に起因するエントロピー生成量は全体の 37.9% を占め, 比較的大きくなるが, 反応による生成量に比べると小さい. 式 (4.7) のエントロピー生成項において, 反応によるエントロピー生成速度は反応域の温度が上昇するとともに減少する. 全体のエントロピー生成量に対する反応によるエントロピー生成量の割合が, 水素の燃焼の場合に比べて小さくなるのは, メタンの燃焼のほうが主要な反応域の温度が高くなるためと考えられる.

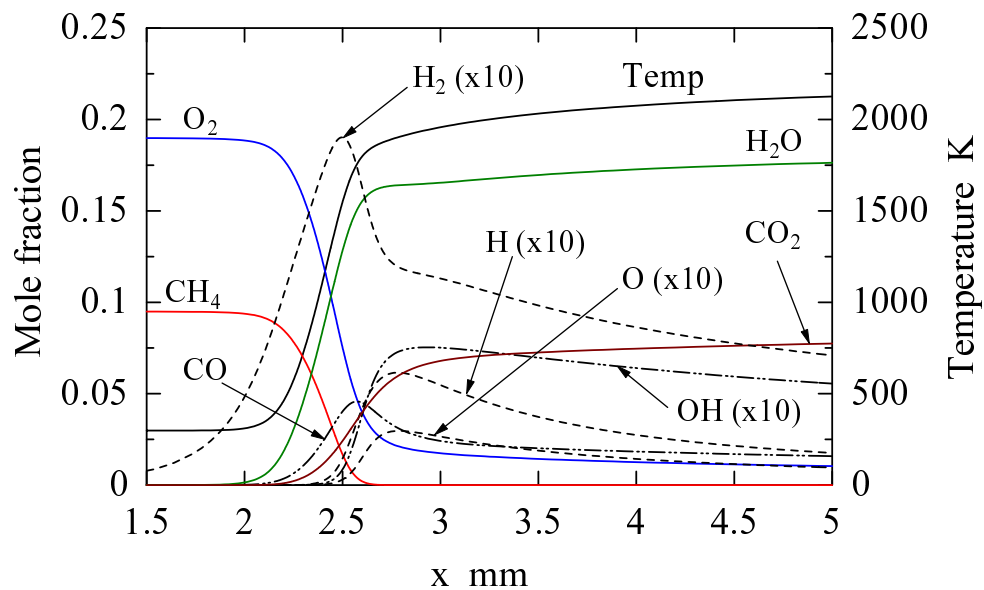


図 4.3 予混合火炎における濃度，温度分布（燃料:メタン， $\phi=1.0$ ，流入温度:25 ）

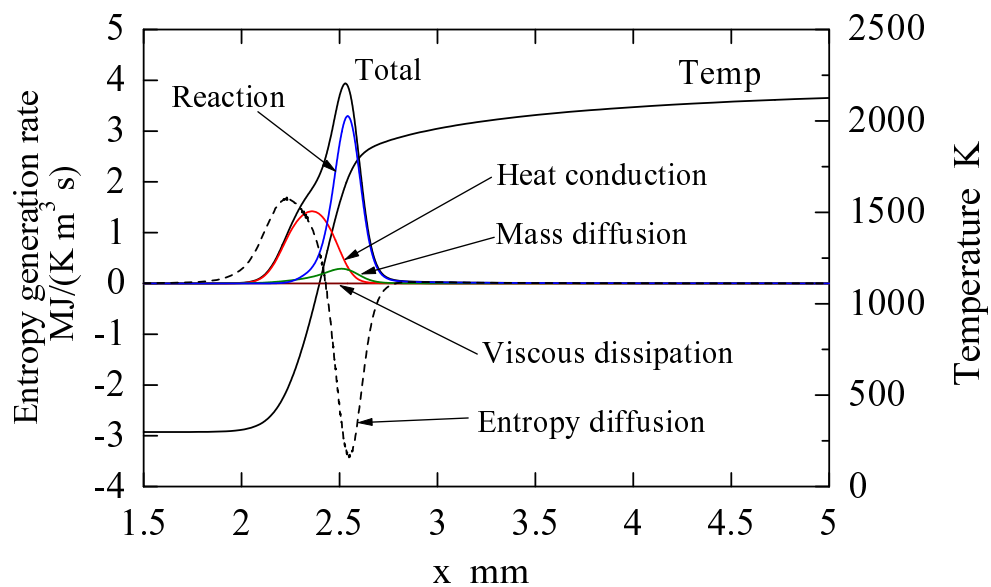


図 4.4 予混合火炎におけるエントロピー生成速度（燃料:メタン， $\phi=1.0$ ，流入温度:25 ）

4.5.3 当量比のエントロピー生成に及ぼす影響

当量比を $\phi=0.7$ とした場合のメタンを燃料とする予混合火炎の化学種濃度および温度の分布を図 4.5 に示す。 $\phi=1.0$ の場合に比べて、反応域での温度勾配が緩やかになり、反応域の領域幅が広がる傾向がある。

図 4.6 にエントロピー生成速度を各過程ごとに示す。 $\phi=1.0$ の場合に比べて反応域が広がることにより、エントロピーの生成領域幅が広がることからわかる。全体のエントロピー生成量に対する各過程によるエントロピー生成量の割合は、 $\phi=1.0$ の場合と比べてほぼ同じであるが、当量比を減少させることによって温度が下がるため、エントロピー生成量は増加する。

4.5.4 流入温度のエントロピー生成に及ぼす影響

流体の流入温度を 500 K とした場合のメタンを燃料とする予混合火炎の化学種濃度および温度の分布を図 4.7 に示す。流入温度 25 K の場合に比べて、反応域での温度、化学種濃度の変化は著しくなり、主要な反応域の幅は小さくなる。また、最終温度も 2457K まで上昇する。

図 4.8 にエントロピー生成速度を各過程ごとに示す。流入温度 25 K の場合に比べて反応域が狭くなることにより、各過程のエントロピー生成領域幅も狭くなる。流入温度 25 K の場合に比べて反応域での温度勾配が著しくなるため、熱伝導に起因するエントロピー生成速度は流入温度 25 K の場合よりも大きくなるが、反応域が狭いため、熱伝導によるエントロピー生成量は大幅に小さくなる。各過程に起因するエントロピー生成量を比較すると、反応に起因するエントロピー生成量が最も大きく、全体の 73.3% を占める。熱伝導に起因するエントロピー生成量は全体の 17.6% である。

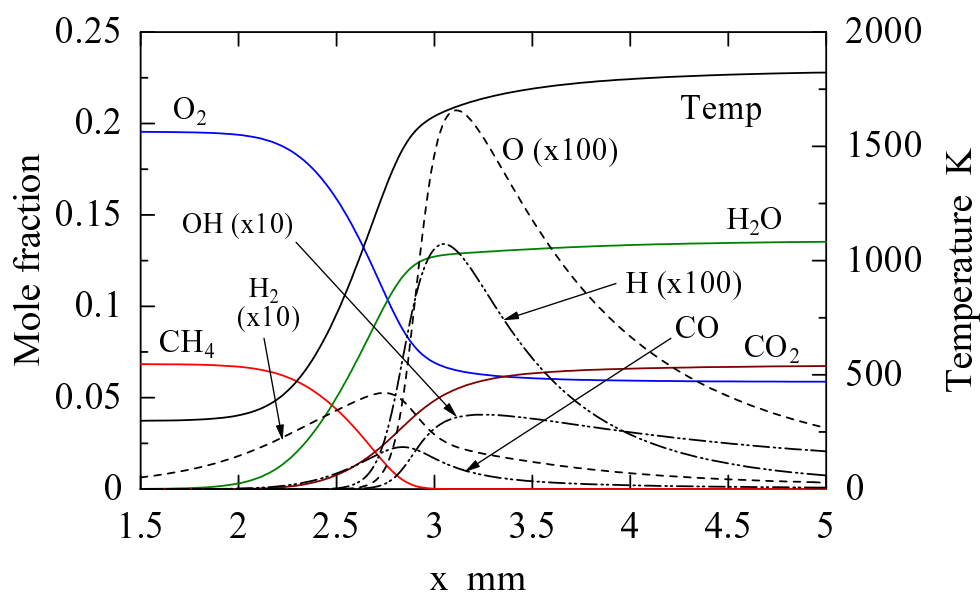


図 4.5 予混合火炎における濃度，温度分布（燃料:メタン， $\phi=0.7$ ，流入温度:25 ）

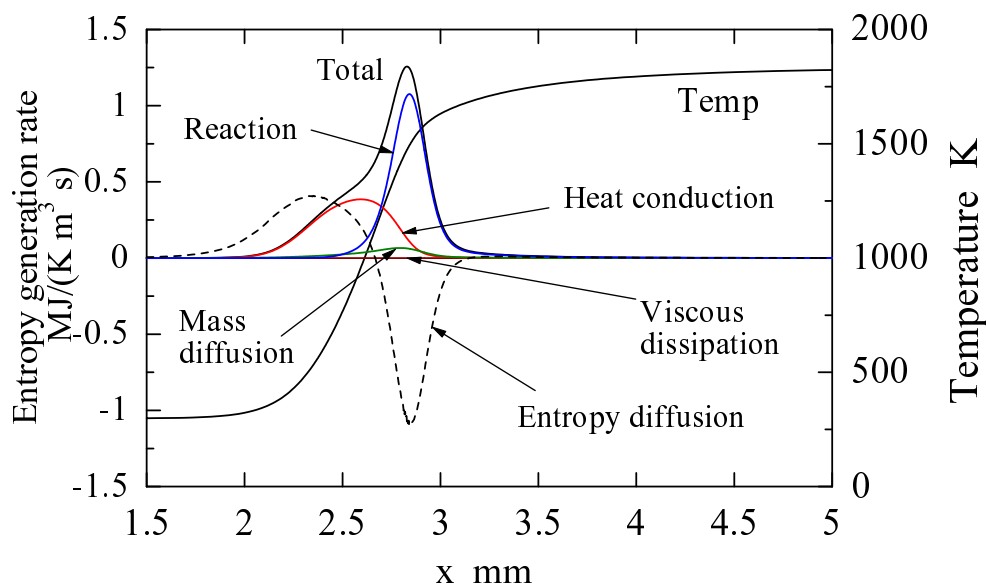


図 4.6 予混合火炎におけるエントロピー生成速度（燃料:メタン， $\phi=0.7$ ，流入温度:25 ）

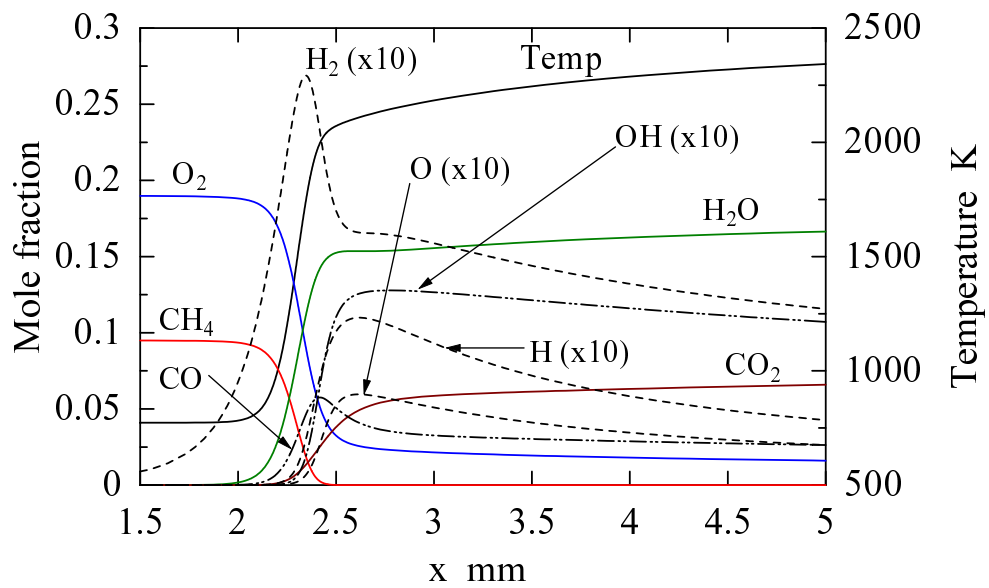


図 4.7 予混合火炎における濃度，温度分布（燃料:メタン， $\phi=1.0$ ，流入温度:500 K）

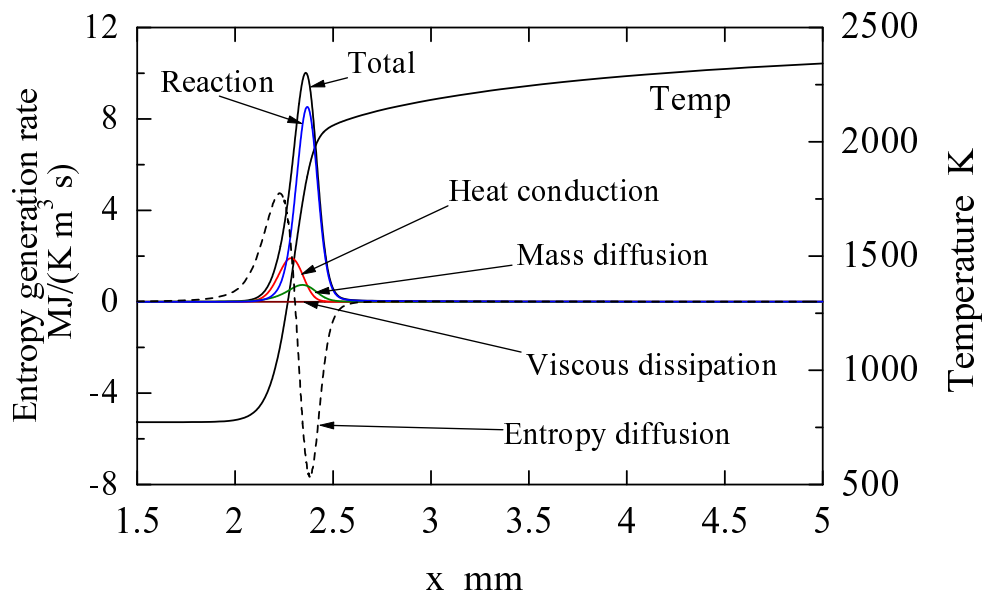


図 4.8 予混合火炎におけるエントロピー生成速度（燃料:メタン， $\phi=1.0$ ，流入温度:500 K）

4.5.5 燃焼過程におけるエクセルギー損失

燃焼場の局所におけるエントロピー生成速度を積算し，エントロピー生成量を求めることによって，燃焼におけるエクセルギー損失を算出することができる．エントロピー生成量とエクセルギー損失の関係は次式のようになる．

$$E_{loss} = T_0 \cdot dS \quad (4.16)$$

E_{loss} はエクセルギー損失， T_0 は標準状態の温度， dS はエントロピー生成量である．

予混合火炎における熱伝導，物質拡散，反応の各過程のエクセルギー損失率を図 4.9 に示す．粘性消散のエクセルギー損失は無視できるほど小さいため，図中では省略している．エクセルギー損失率は，燃料のエクセルギーに対する各過程に起因するエクセルギー損失の割合として定義する．水素，メタンの燃料のエクセルギーは，それぞれ $237.2\text{kJ}/(\text{mol-fuel})$ ， $818.0\text{kJ}/(\text{mol-fuel})$ である．

燃料のエクセルギーのうち水素燃料の場合 20%，メタン燃料の場合 27.5% が損失し，その 90% 以上が熱伝導および反応に起因する．中でも反応に起因するエクセルギー損失が最も大きくなる．当量比を $\phi=1.0$ から $\phi=0.7$ に下げることにより，反応および熱伝導に起因するエクセルギー損失が増大し，それにより，全エクセルギー損失も 32.8% まで増加する．

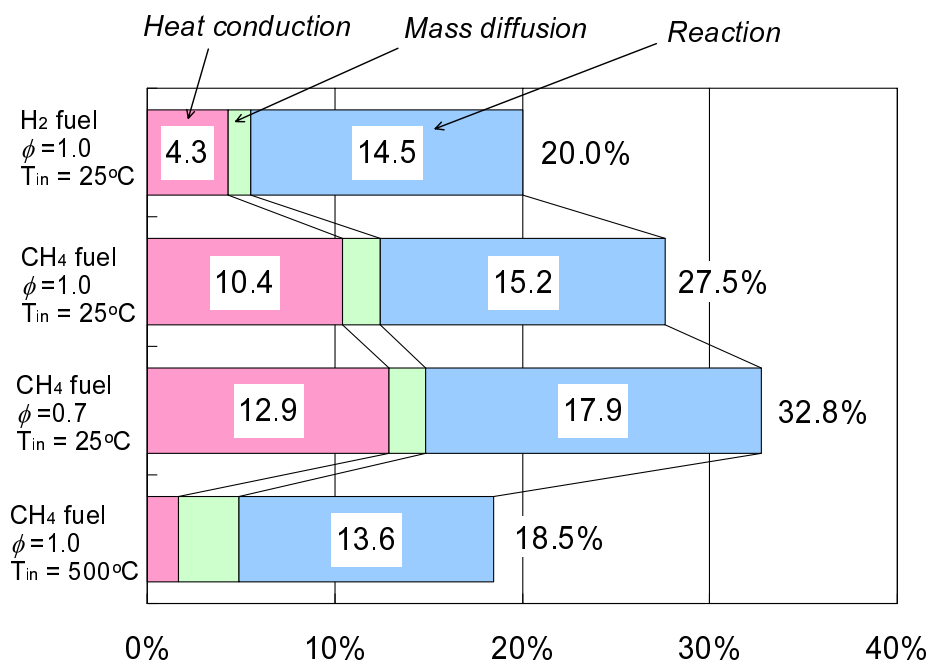


図 4.9 予混合火炎におけるエクセルギー損失率

一方，流入温度を 25 から 500 に上昇させると，熱伝導に起因するエクセルギー損失が大幅に少なくなり，全エクセルギー損失も 18.5%まで減少する．

4.6 層流拡散火炎におけるエントロピー生成解析

本節では，軸対称噴流拡散火炎におけるエントロピー生成を解析する．火炎構造および計算領域を図 4.10 に示す．円管ノズルの内側を燃料，その周囲を空気が並行に流れる．ノズルの内径および外径は，それぞれ 4.8mm，6.0mm とする．また，ノズルから噴出される燃料の流速分布は平均流速 3.5m/s の放物線分布，周囲空気の流速は 1.7m/s の一様流速とし，燃料，空気の流入温度はそれぞれ 25 とする． z はノズル先端からの軸流方向の距離， r は中心軸からの半径方向の距離を表す． $z=100\text{mm}$ 断面， $r=70\text{mm}$ 断面では自由流出境界

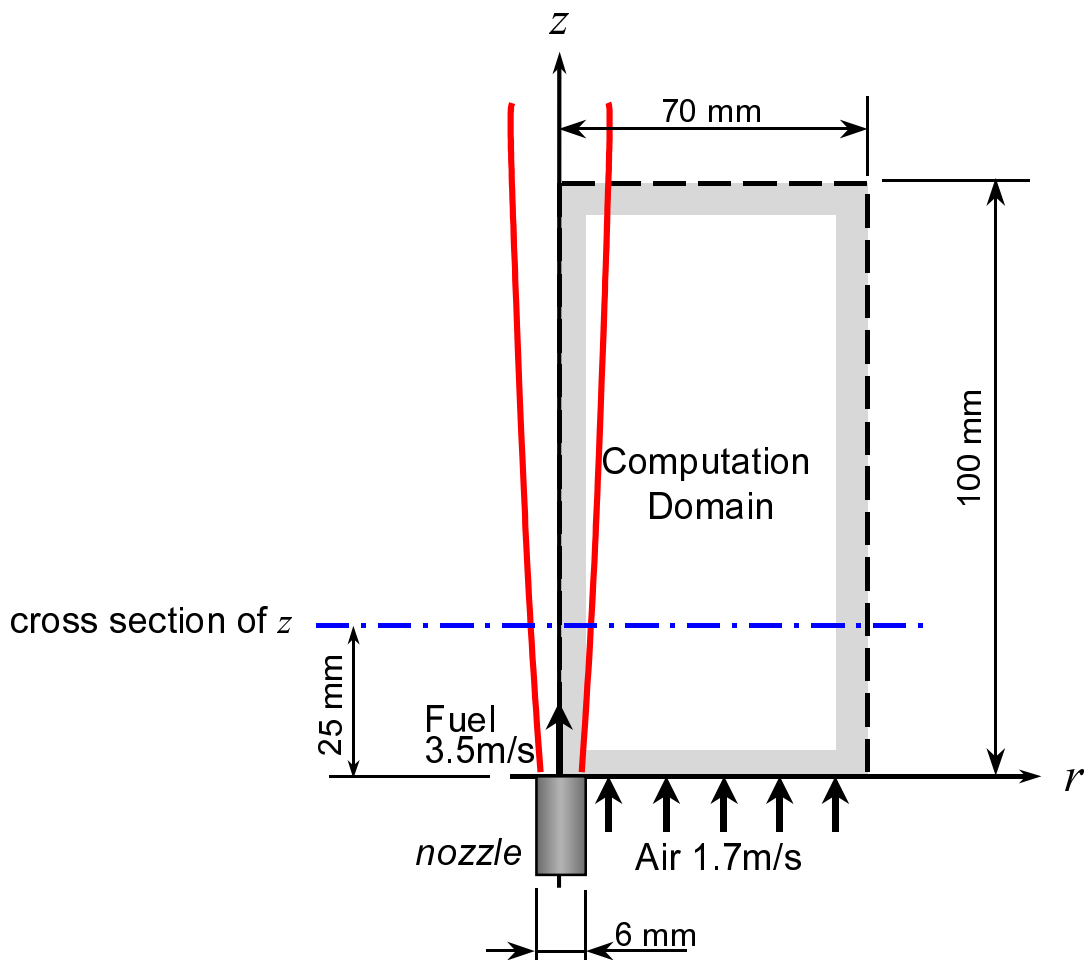


図 4.10 噴流拡散火炎の構造および計算領域

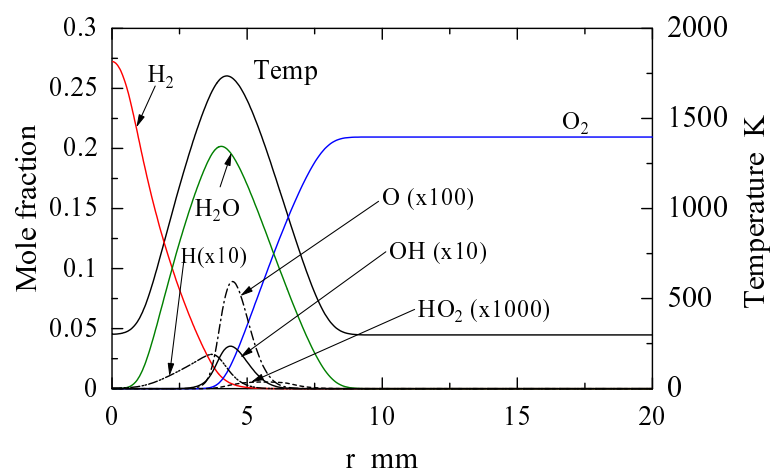
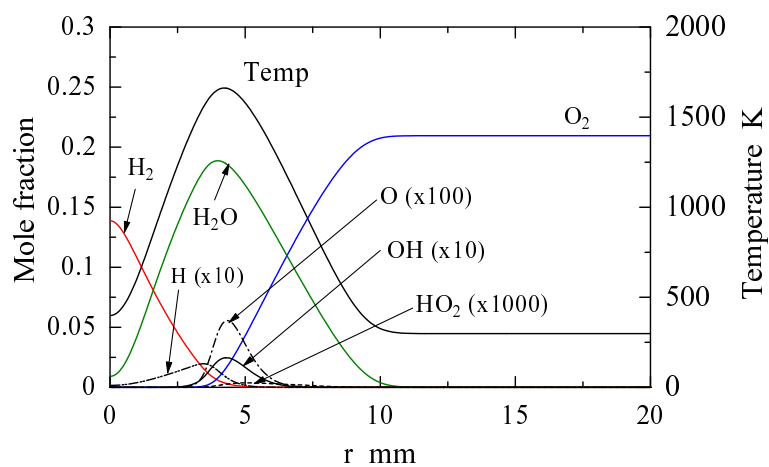
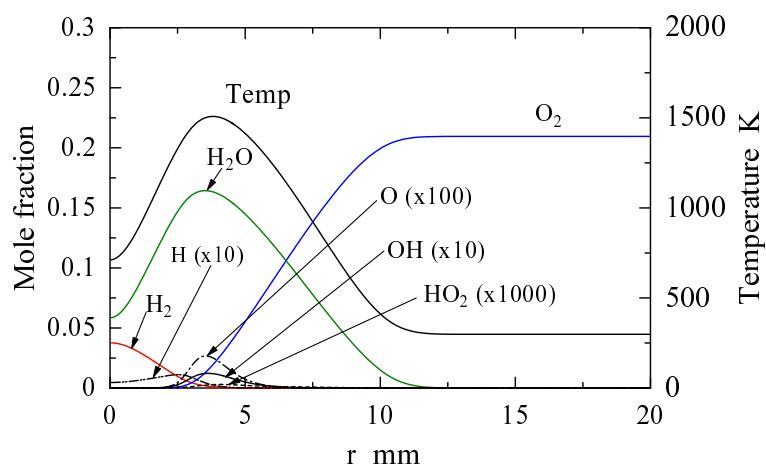
(a) $z=25\text{mm}$ (b) $z=50\text{mm}$ (c) $z=75\text{mm}$

図 4.11 噴流拡散火炎における濃度，温度分布

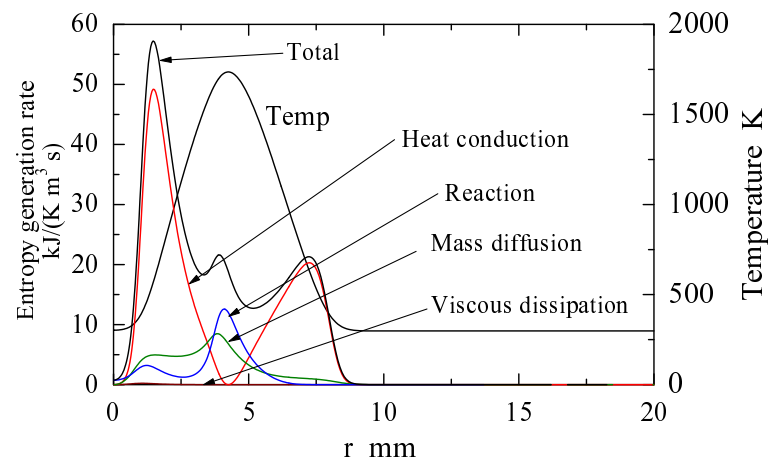
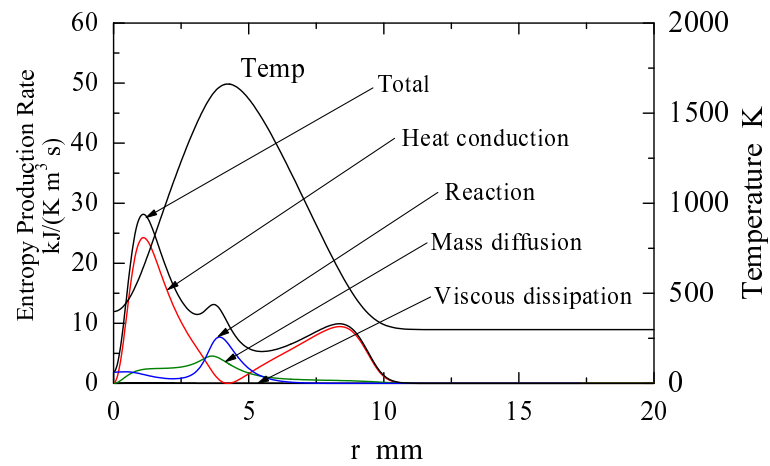
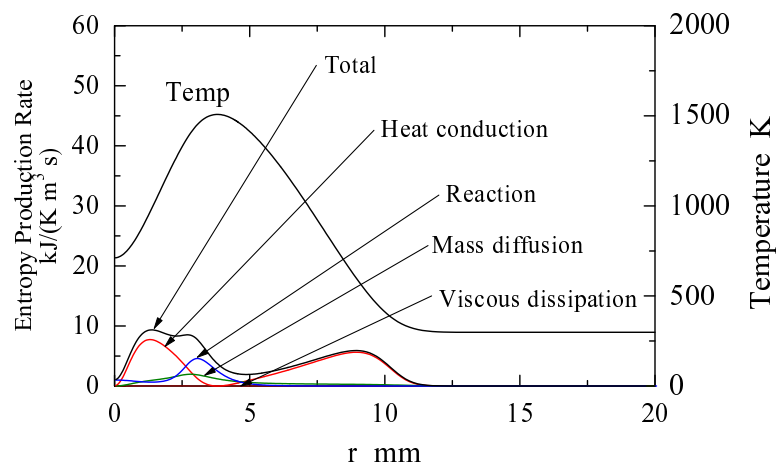
(a) $z=25\text{mm}$ (b) $z=50\text{mm}$ (c) $z=75\text{mm}$

図 4.12 噴流拡散火炎におけるエントロピー生成速度

とする。

噴流拡散火炎の $z=25, 50, 75\text{mm}$ 断面における化学種のモル分率および温度の分布を図 4.11 に示す。主要な反応域は $r=3.0 \sim 4.0\text{mm}$ 付近に存在し、温度および H_2O の濃度が最も高くなる。下流へ進むにつれて水素濃度は低くなり、それに伴って反応量も減少する。また、反応域での温度勾配は緩やかになる。

図 4.12 に各断面における粘性消散，熱伝導，物質拡散，反応に起因するエントロピー生成速度を示す。温度勾配が著しくなる領域において、熱伝導に起因するエントロピー生成速度が大きくなり、それにより、全体のエントロピー生成速度も大きくなる。 H_2O および活性化学種の濃度が大きく、温度がピークに達する領域では、反応に起因するエントロピー生成速度が最大になる。しかし、反応に起因するエントロピー生成速度の最大値は、熱伝導の最大値よりも小さくなる。物質拡散によるエントロピー生成量は、反応によるエントロピー生成量と同程度である。下流に進むにつれて、反応域での温度勾配が緩やかになるため、熱伝導によるエントロピー生成速度は著しく減少し、それにより全体のエントロピー生成速度も減少する。

拡散火炎では、熱伝導に起因するエントロピー生成量が支配的となり、それに比べて反応によるエントロピー生成量は小さくなる。全エントロピー生成量に対する反応に起因するエントロピー生成量の割合が、予混合火炎の場合に比べて小さくなるのは、予混合火炎の場合は比較的温度の低い領域でも反応が起こるのに対し、拡散火炎の場合は温度がピークに達する領域で主要な反応が起こるためである。

4.7 結 言

本章では、素反応および多成分拡散を考慮した層流予混合、拡散火炎を対象として、粘性消散，熱伝導，物質拡散，反応の各過程に起因するエントロピー生成およびエクセルギー損失を定量的に解析した。それにより、燃焼のエクセルギー損失に寄与する過程を特定し、またその特性が火炎の構造やパラメータによって異なることを明らかにした。得られた知見を以下に記す。

- (1) 予混合火炎では、反応に起因するエントロピー生成が支配的となる。全エントロピー生成量に対する反応に起因する生成量の割合は、メタン燃料の場合よりも水素燃料の場合のほうが大きくなる。また、燃料のエクセルギーのうち、水素燃料の場合 20.0%、メタン燃料の場合 27.5%が燃焼過程で損失し、その 90%以上が反応および熱伝導に起因する。
- (2) 当量比を減少させることにより火炎温度が低くなるため、反応および熱伝導に起因す

るエントロピー生成量が増大し，それにより全エントロピー生成量も増加する．各過程によるエントロピー生成の内訳は，当量比を減少させてもほぼ同じである．

- (3) 流体の流入温度を上昇させることにより，熱伝導に起因するエントロピー生成量が大幅に少なくなり，それにより全エントロピー生成量も減少する．熱伝導によるエントロピー生成量が減少するため，全エントロピー生成量に対する反応に起因する生成量の割合は大きくなる．
- (4) 拡散火炎では，熱伝導に起因するエントロピー生成が支配的となり，反応によるエントロピー生成の割合は予混合火炎の場合に比べて小さくなる．これは，予混合火炎の場合は比較的温度の低い領域でも反応が起こるのに対し，拡散火炎の場合は温度がピークに達する領域で主要な反応が起こるためである．物質拡散によるエントロピー生成量は，反応による生成量と同程度である．

文 献

- [1] Bejan, A., “A Study of Entropy Generation in Fundamental Convective Heat Transfer”, *ASME J. of Heat Transfer*, Vol.101, pp.718–725, 1979.
- [2] Bejan, A., “The Concept of Irreversibility in Heat Exchanger Design: Counterflow Heat Exchangers for Gas-to-Gas Applications”, *ASME J. of Heat Transfer*, Vol.99, pp.374–380, 1977.
- [3] San, J. Y., Worek, W. M. and Lavan, Z., “Entropy Generation in Combined Heat and Mass Transfer”, *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol.30, pp.1359–1369, 1987.
- [4] Poulikakos, D. and Johnson, J. M., “Second Law Analysis of Combined Heat and Mass Transfer Phenomena in External Flow”, *Energy*, Vol.14, pp.67–73, 1989.
- [5] Puri, I. K., “Second Law Analysis of Convective Droplet Burning”, *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol.35, pp.2571–2578, 1992.
- [6] Hiwase, S. D., Datta, A. and Som, S. K., “Entropy Balance and Exergy Analysis of the Process of Droplet Combustion”, *J. of Physics D: Applied Physics*, Vol.31, pp.1601–1610, 1998.
- [7] Datta, A. and Som, S. K., “Thermodynamic Irreversibilities and Second Law Analysis in a Spray Combustion Process”, *Combust. Sci. and Tech.*, Vol.142, pp.29–54, 1999.

- [8] Arpaci, V. S. and Selamet, A., “Entropy Production in Flames”, *Combust. Flame*, Vol.73, pp.251–259, 1988.
- [9] Datta, A., “Entropy Generation in a Confined Laminar Diffusion Flame”, *Combust. Sci. and Tech.*, Vol.159, pp.39–56, 2000.
- [10] Dunbar, W. R. and Lior, N., “Sources of Combustion Irreversibility”, *Combust. Sci. and Tech.*, Vol.103, pp.41–61, 1994.
- [11] Hirschfelder, J. C., Curtiss, C. F. and Bird, R. B., *Molecular Theory of Gases and Liquids*, John Wiley N.Y., USA, 1954.
- [12] Kee, R. J., Rupley, F. M. and Miller, J. A., *Chemkin-II: A Fortran Chemical Kinetics Package for the Analysis of Gas Phase Chemical Kinetics*, Sandia Report, SAND89-8009B, 1991.
- [13] Kee, R. J., Dixon-Lewis, G., Warnatz, J., Coltrin, M. E. and Miller, J. A., *A Fortran Computer Code Package for the Evaluation of Gas-Phase Multicomponent Transport Properties*, Sandia Report, SAND86-8246, 1986.
- [14] Kee, R. J., Grcar, J. F., Smooke, M. D. and Miller, J. A., *A Fortran Program for Modeling Steady Laminar One-dimensional Premixed Flames*, Sandia Report, SAND85-8240, 1985.
- [15] Takagi, T. and Xu, Z., “Numerical Analysis of Laminar Diffusion Flames – Effects of Preferential Diffusion of Heat and Species”, *Combust. Flame*, Vol.96, pp.50–59, 1994.
- [16] Gas Research Institute, *GRI-Mech 3.0*, 1999.
- [17] Lewis, B. and Elbe, G., *Combustion, Flames and Explosions of Gases*, Academic Press, Orlando, FL, pp.382–387, 1961.

第 5 章

固体酸化物形燃料電池の内部プロセス解析とエクセルギー損失評価

5.1 緒 言

固体酸化物形燃料電池 (Solid oxide fuel cell, 以下 SOFC と記す) は分散型エネルギーシステムにおけるエネルギー変換装置として, 現在注目されている. SOFC は他の燃料電池に比べて発電効率がよく, 高温の排熱を有することから, ガスタービンと組み合わせたハイブリッドシステムを構築することが可能となり, その発電効率は従来のガスタービンシステムを大幅に上回る.

SOFC の高性能化のため, これまでにセルの性能特性や内部の熱, 物質, 電子等の輸送現象に関する数値解析が行われてきた^[1-9]. SOFC は形状により円筒型と平板型に大別され, Campanari^[1], Nagata ら^[2], Boersma ら^[3] は円筒型 SOFC を対象とし, 作動条件がセルの性能に及ぼす影響や, 内部改質がセルの出力特性や内部の温度分布に及ぼす影響を分析している. Achenbach^[4], Iwata ら^[5], Yakabe ら^[6,7] は平板型 SOFC を対象とし, チャネルが直交流, 並行流, 対向流の場合について, それぞれセルの性能や内部の温度, 濃度, 電流密度分布を解析している. また, Ferguson ら^[8] は, 円筒型, 平板型, 円盤型各セルの性能を比較し, 形状やそのパラメータが性能に及ぼす影響を分析している. Aguiar ら^[9] は円筒型 SOFC において, 間接内部改質を行った場合の改質反応と電極反応の熱需給について検討している.

これまでの SOFC の単セルあるいはスタックの解析モデルでは, 電解質によって隔てられたアノード及びカソードの単極反応に伴う発熱あるいは吸熱やそれによる電解質内部の熱伝導が考慮されておらず, 電極, 電解質内部における温度分布は明らかにされていない. 熔融炭酸塩形燃料電池 (MCFC) については, 吉葉^[10] が単極反応熱に伴う電極, 電解質内部の熱輸送および温度分布を解析し, 解析モデルを構築する際の妥当性や精度の検証を行っている. 電極反応および他の不可逆過程による発熱やそれらによる熱輸送は, 電極, 電解質内部の温度分布に影響を与え, 特に, 内部改質型 SOFC の場合は, アノード側で吸熱の

改質反応が起こるため，セル内部で温度差が生じると考えられる．また，発電に直接関わる電極及び電解質の内部におけるエクセルギー損失解析はこれまでに行われておらず，セル内部のエクセルギー損失を解析することにより，性能向上のための指針を示すことが可能となる．本章では，SOFC の電極，電解質内部における熱伝導，物質拡散，酸素イオン・電子の輸送および各電極の単極反応の各プロセスを解析し，セル内部の温度分布およびガス成分の濃度分布を示す．また，SOFC の性能は作動条件によって大きく変化することから，温度，圧力，ガス濃度がセルの熱効率，端子電圧に及ぼす影響を示す．さらに，上記の各プロセスに起因するエントロピー生成およびエクセルギー損失を解析することにより，電極，電解質内部でエクセルギーが損失する原因を明らかにする．

5.2 記 号

本章で用いる記号を以下に記す．

D_{ij}	細孔内での 2 成分系の拡散係数	m^2/s
$D_{ij,free}$	自由空間での 2 成分系の拡散係数	m^2/s
E	理論起電力	V
F	ファラデー定数	$\text{J}/(\text{V mol})$
ΔG	ギブスの自由エネルギー変化	J/mol
h	混合ガスのエンタルピー	J/kg
h_i	i 成分のエンタルピー	J/kg
ΔH	エンタルピー変化	J/mol
i_c	電流密度	A/m^2
j_i	i 成分の質量流束	$\text{kg}/(\text{m}^2 \text{ s})$
M_i	分子量	kg/mol
m_i	i 成分の質量流量	$\text{kg}/(\text{m}^2 \text{ s})$
p_i	i 成分の分圧	atm
R	一般気体定数	$\text{J}/(\text{mol K})$
r_i	電極反応における反応量	mol/s
s	混合ガスのエントロピー	$\text{J}/(\text{kg K})$
s_i	i 成分のエントロピー	$\text{J}/(\text{kg K})$
ΔS	エントロピー変化	$\text{J}/(\text{K mol})$
s_{an}	アノード界面の導電率	S/m^2
s_{ca}	カソード界面の導電率	S/m^2

T	絶対温度	K
V_{act}	活性化分極	V
V_{cell}	単セル電圧	V
V_{conc}	濃度分極	V
V_r	抵抗分極	V
v	速度	m/s
w_i	i 成分の質量分率	
z_{an}	アノード厚さ	m
z_{ca}	カソード厚さ	m
z_{el}	電解質厚さ	m
z_i	荷電粒子 i の価数	
ε_p	空隙率	
η_{cell}	セルの実用効率	%
η_{th}	セルの理論熱効率	%
λ	熱伝導率	W/(m K)
μ	混合ガスの粘性係数	kg/(m s)
μ_i	i 成分の化学ポテンシャル	J/kg または J/mol
$\tilde{\mu}_i$	i 成分の電気化学ポテンシャル	J/mol
ρ	密度	kg/m ³
ρ_{an}	アノード抵抗率	Ω m
ρ_{ca}	カソード抵抗率	Ω m
ρ_{el}	電解質抵抗率	Ω m
ρ_r	抵抗率	Ω m
τ_t	細孔内屈曲率	

上付き添字

0 標準状態

下付き添字

1 カソード主流側
2 カソード・電解質界面
3 アノード・電解質界面
4 アノード主流側
 an アノード

ca	カソード
el	電解質
i	化学種 i 成分
j	化学種 j 成分

5.3 解析対象

解析の対象とする SOFC 単セルを図 5.1 に示す．セルの構造は，2 つの電極（アノード，カソード）及び電解質から成る．燃料は水素，酸化剤は空気とする．反応に用いられる水素および酸素は，アノード，カソードにそれぞれ供給され，電極内を拡散する．カソードでは，酸素が電子と結合し，酸素イオンを生成する．酸素イオンは電解質内を移動し，アノードと電解質の界面に達すると水素と反応し，水蒸気を生成する．その際，電子は酸素から放出される．電極反応の主な反応場は，電極・電解質界面に存在する三相界面となる．

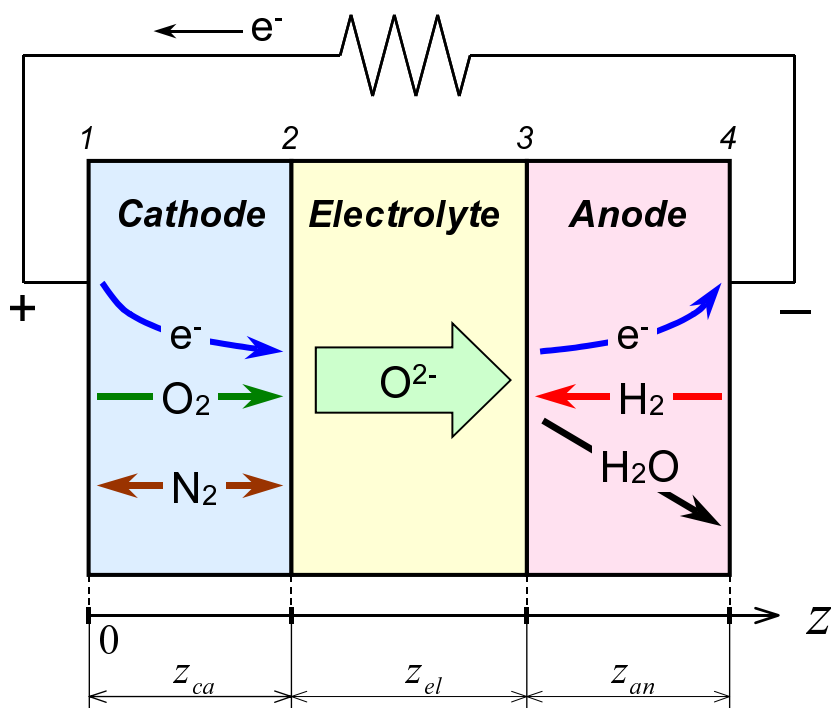
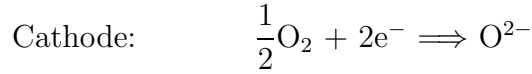
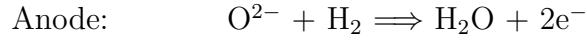


図 5.1 SOFC 単セル解析モデル

表 5.1: セル要素の厚みおよび熱伝導率

Component	Thickness	Thermal conductivity
Anode (Ni/YSZ cermet)	$z_{an} = 100 \times 10^{-6} \text{ m}$	11.0 W/(m K)
Cathode (LaSrMnO ₃)	$z_{ca} = 2.0 \times 10^{-3} \text{ m}$	2.2 W/(m K)
Electrolyte (YSZ)	$z_{el} = 40 \times 10^{-6} \text{ m}$	2.7 W/(m K)

しかし，カソード材料は電子，酸素イオンの両方を通す混合導電体であるため，酸素のイオン化は，カソード内部およびカソード・電解質界面の両方で起こる可能性があり，その支配的な反応場は多孔の条件によって異なる．本解析では，アノード，カソードの各単極反応は，電極・電解質界面でのみ起こると仮定する．各単極反応は次の通りである．



電極および電解質の厚み，熱伝導率は表 5.1 のように定める．各要素の厚みは，Siemens-Westinghouse 社製カソード支持型の円筒型 SOFC の厚み^[11] とする．また各材料の熱伝導率は文献^[2] による．本章では，電解質膜に対して垂直な z 軸方向の内部プロセスを解析する．境界条件として両電極の外側で同じ温度を与えるものとし，ゼーベック効果による熱起電力および電極，電解質内部のトムソン効果は考慮しないものとする．

5.4 基礎方程式

SOFC の内部プロセス解析に用いる基礎方程式を以下に記す．

5.4.1 セル内の濃度分布および温度分布

i 成分の質量流量を m_i とすると，Fick の拡散法則から式 (5.1) が得られ，電極内部の濃度分布を求めることができる．

$$j_i = m_i - w_i \sum_i m_i = -\rho \mathcal{D}_{ij} \frac{dw_i}{dz} \quad (5.1)$$

m_i と電流密度 i_c には以下の関係がある．

$$m_{\text{H}_2} = -M_{\text{H}_2} \cdot \frac{i_c}{2F} \quad (5.2)$$

$$m_{O_2} = M_{O_2} \cdot \frac{i_c}{4F} \quad (5.3)$$

$$m_{H_2O} = M_{H_2O} \cdot \frac{i_c}{2F} \quad (5.4)$$

式 (5.1) における電極内の拡散係数は式 (5.5) により求める^[12,13]。本解析では、 $\varepsilon_p/\tau_t = 0.1$ とする。

$$D_{ij} = D_{ij,free} \cdot \frac{\varepsilon_p}{\tau_t} \quad (5.5)$$

エネルギー保存式を解くことにより、電極および電解質内部の温度分布を得る。電極内の温度分布は式 (5.6) によって求める。多孔体である電極内では、 z 方向の各点において固体部分と気体部分の温度が等しいものとする。

$$\rho v \frac{dh}{dz} = -\frac{d}{dz} \left[-\lambda \frac{dT}{dz} + \sum_i h_i \left(-\rho D_{ij} \frac{dw_i}{dz} \right) \right] + \rho_r \cdot i_c^2 \quad (5.6)$$

左辺は対流項、右辺第 1 項は拡散項、第 2 項はジュール発熱の項である。各電極材料の抵抗率は、後述の式 (5.17)、(5.18) により求める。

また、電解質内の温度分布は式 (5.7) によって求める。

$$\frac{d}{dz} \left(-\lambda \frac{dT}{dz} \right) = \rho_{el} \cdot i_c^2 \quad (5.7)$$

電解質の抵抗率は、後述の式 (5.19) により与える。

5.4.2 理論起電力およびセル電圧

単セルの理論起電力 E は式 (5.8) により求めることができる^[14]。

$$E = -\frac{\Delta G^0}{2F} + \frac{RT}{2F} \ln \frac{p_{H_2} \cdot p_{O_2}^{1/2}}{p_{H_2O}} \quad (5.8)$$

SOFC の実際の電圧は、分極による電圧降下が生じるため、理論起電力よりも低くなる。実際の単セル電圧は式 (5.9) で求める^[14]。

$$V_{cell} = E - (V_{conc,an} + V_{conc,ca} + V_{act,an} + V_{act,ca} + V_r) \quad (5.9)$$

5.4.3 濃度分極

濃度分極は、電極内のガスの濃度変化によって生じる電圧降下であり、電極・電解質界面と主流側のガス分圧による起電力の差である。アノードおよびカソードの濃度分極は、それぞれ式 (5.10)、(5.11) で求める^[2]。

$$V_{conc,an} = \frac{RT}{2F} \ln \frac{p_{H_2O,3} \cdot p_{H_2,4}}{p_{H_2,3} \cdot p_{H_2O,4}} \quad (5.10)$$

$$V_{conc,ca} = \frac{RT}{4F} \ln \frac{p_{O_2,1}}{p_{O_2,2}} \quad (5.11)$$

5.4.4 活性化分極

活性化分極は、電極反応が活性化エネルギーを必要とするために現れるもので、反応の遅れによって生じる電圧降下である。アノード、カソード各電極における活性化分極を、電流密度に対してそれぞれ式 (5.12) , (5.13) により求める^[15]。

$$i_c = \frac{RT}{3F} s_{an} \left[\exp \left(\frac{2FV_{act,an}}{RT} \right) - \exp \left(\frac{-FV_{act,an}}{RT} \right) \right] \quad (5.12)$$

$$i_c = \frac{RT}{4F} s_{ca} \left[\exp \left(\frac{2FV_{act,ca}}{RT} \right) - \exp \left(\frac{-2FV_{act,ca}}{RT} \right) \right] \quad (5.13)$$

電極界面の導電率 s_{an} , s_{ca} は次式で与える^[16,17]。

$$s_{an} = 125.6 \times 10^{10} \exp \left(\frac{-138000}{RT} \right) \cdot p_{O_2,3}^{0.15} \quad (5.14)$$

$$s_{ca} = 62.7 \times 10^6 \exp \left(\frac{-136000}{RT} \right) \cdot p_{O_2,2}^{0.5} \quad (5.15)$$

5.4.5 抵抗分極

抵抗分極は、電極内の電気抵抗および電解質内の酸素イオン移動の際の抵抗による電圧降下である。抵抗分極は式 (5.16) により求める。

$$V_r = i_c \cdot (\rho_{an} z_{an} + \rho_{ca} z_{ca} + \rho_{el} z_{el}) \quad (5.16)$$

アノード、カソードおよび電解質の抵抗率は、式 (5.17), (5.18), (5.19) により与える^[18]。

$$\rho_{an} = 0.00298 \exp \left(\frac{-1392}{T} \right) \quad (5.17)$$

$$\rho_{ca} = 0.008114 \exp \left(\frac{600}{T} \right) \quad (5.18)$$

$$\rho_{el} = 0.00294 \exp \left(\frac{10350}{T} \right) \quad (5.19)$$

5.4.6 熱効率

セルの熱効率は、内部に供給された水素の高位発熱量 (HHV) に対する直流電気出力の割合で定義し、次式で求める。

$$\eta_{cell} = \frac{\Delta G}{\Delta H^0} \cdot \frac{V_{cell}}{E} \times 100 \quad (5.20)$$

5.5 エントロピー保存式

エントロピー生成およびエクセルギー損失解析に用いるエントロピー保存式を以下に記す。

5.5.1 電極，電解質内部のエントロピー保存式

電極内部のエントロピー保存式を式 (5.21) に示す．

$$\rho v \frac{ds}{dz} = \frac{1}{T} \left[\frac{4}{3} \mu \left(\frac{dv}{dz} \right)^2 + \frac{\lambda}{T} \left(\frac{dT}{dz} \right)^2 - \sum_i \left\{ \left(-\rho \mathcal{D}_{ij} \frac{dw_i}{dz} \right) \cdot \frac{d\mu'_i}{dz} \right\} + \rho_r \cdot i_c^2 \right] - \frac{d}{dz} \left[-\frac{\lambda}{T} \frac{dT}{dz} + \sum_i \left\{ \left(-\rho \mathcal{D}_{ij} \frac{dw_i}{dz} \right) \cdot s_i \right\} \right] \quad (5.21)$$

右辺第 1 項は生成項，第 2 項は拡散項であり，生成項は，粘性消散，熱伝導，物質拡散，電気抵抗によるジュール発熱の各過程に起因するエントロピー生成から成る． $d\mu'_i/dz$ は式 (5.22) により求める．

$$\frac{d\mu'_i}{dz} = \frac{d\mu_i}{dz} + s_i \frac{dT}{dz} \quad (5.22)$$

電解質内部のエントロピー保存式を式 (5.23) に示す．

$$\frac{1}{T} \left[\frac{\lambda}{T} \left(\frac{dT}{dz} \right)^2 + \rho_{el} \cdot i_c^2 \right] - \frac{d}{dz} \left(-\frac{\lambda}{T} \frac{dT}{dz} \right) = 0 \quad (5.23)$$

左辺第 1 項は生成項，第 2 項は拡散項であり，生成項は，熱伝導およびイオンの移動の際のジュール発熱に起因するエントロピー生成を表す．

5.5.2 電極・電解質界面でのエントロピー生成

電極・電解質界面でのエントロピー生成 dS [J/(K s)] は，電極反応に起因し，式 (5.24) により求める．

$$dS = -\frac{1}{T} \sum_i (\tilde{\mu}_i \cdot r_i) \quad (5.24)$$

イオンや電子など荷電粒子のポテンシャルエネルギーは，化学ポテンシャル μ_i ではなく， μ_i に電気エネルギーを足した電気化学ポテンシャル $\tilde{\mu}_i$ で表現する必要がある．電気化学ポテンシャルは次式で求める^[19]．

$$\tilde{\mu}_i = \mu_i + z_i F E_i \quad (5.25)$$

z_i は荷電粒子 i の価数， E_i は荷電粒子 i にかかる電位であり， $z_i F E_i$ は粒子 1mol の電気エネルギーを意味する．なお，中性分子は $z_i=0$ である．

5.6 解析手法

SOFC の内部プロセス解析では，熱伝導，物質拡散，イオン・電子の移動，各電極の単極反応を考慮する．また，各ガス成分の物性値は CHEMKIN データベース^[20,21]を用いる．解析手順を以下に記す．

- (1) セルの電流密度を仮定し，境界条件として両電極の外側で圧力，温度，ガス濃度を仮定する．両電極の外側では同じ温度，圧力を与えるものとする．また，圧力は電極内部で一定とする．本解析では，典型的な計算条件を表 5.2 のように定める．
- (2) 仮定した電流密度から各ガス成分の流量を求め，式 (5.1) の拡散式を解くことにより，電極内部の濃度分布を得る．電極内の温度，濃度変化は小さいため，拡散式で ρD_{ij} を一定値として，濃度分布を解析的に算出する．
- (3) 理論起電力および濃度，活性化，抵抗分極を計算する．また，各分極からセルの端子電圧，電気出力，熱効率を算出する．
- (4) エネルギー保存式を解き，電極および電解質内部の温度分布を得る．ただし電極・電解質界面における境界条件は，後述の式 (5.26), (5.27) を与える．
- (5) 上述までの解析で求めた電極，電解質内部の圧力，温度，濃度，電位分布からエントロピー保存式を解き，各場所でのエントロピー生成速度をプロセスごとに算出する．また，エントロピー生成速度をセルの内部で積分し，セル全体のエントロピー生成量を求めることにより，エクセルギー損失を算出する．

5.7 境界条件

温度分布を求める際の電極・電解質界面における境界条件を式 (5.26), (5.27) に示す．

アノード・電解質界面:

$$\left(\lambda_{an} \frac{dT_{an}}{dz} - \lambda_{el} \frac{dT_{el}}{dz} \right) + V_{act,an} \cdot i_c + (\Delta G_{an} - \Delta H_{an}) \cdot \frac{i_c}{2F} = 0 \quad (5.26)$$

カソード・電解質界面:

$$\left(\lambda_{el} \frac{dT_{el}}{dz} - \lambda_{ca} \frac{dT_{ca}}{dz} \right) + V_{act,ca} \cdot i_c + (\Delta G_{ca} - \Delta H_{ca}) \cdot \frac{i_c}{2F} = 0 \quad (5.27)$$

左辺第 1 項は熱伝導による熱収支，第 2 項は活性化分極による発熱，第 3 項の $\Delta G - \Delta H$ ($= -T\Delta S$) は，単極反応のエントロピー変化による発熱あるいは吸熱を表す．

アノード，カソードの単極反応を総括した，水素の燃焼反応における反応前後のエントロピー変化は，水素，酸素，水蒸気の熱力学データベースを用いて計算で求めることがで

表 5.2: 計算条件

Fuel	H ₂
Current density	3000 A/m ²
Anode side:	
Pressure	1 atm
Temperature	1273.15 K
H ₂ /H ₂ O mole fraction	0.9/0.1
Cathode side:	
Pressure	1 atm
Temperature	1273.15 K
O ₂ /N ₂ mole fraction	0.21/0.79

表 5.3: 単極反応のエントロピー変化による発熱量
(p_{O_2} : 0.21atm , Temperature: 1000)

$(-T\Delta S)_{an}$	-14832.3 J/(mol-fuel)
$(-T\Delta S)_{ca}$	74352.0 J/(mol-fuel)
$-T\Delta S$	59519.7 J/(mol-fuel)

きるが，それぞれの単極反応のエントロピー変化の内訳は，実験で求める必要がある^[22]．単極反応のエントロピー変化による発熱量 $-T\Delta S$ ($= \Delta G - \Delta H$) は，文献^[22] よりカソード側を仮定すると，表 5.3 のようになる．

5.8 電極，電解質内部の温度分布および濃度分布

電極，電解質の内部プロセスを解析することにより，電極，電解質内の温度分布および電極内のガス成分の濃度分布を求める．計算条件は，表 5.2 に示した条件を用いている．

図 5.2，図 5.3 に電極，電解質内部における温度分布および濃度分布を示す．電極，電解質内部の温度は，カソード側の単極反応が発熱反応であるため，カソード・電解質界面で最大となる．しかし，セル内部の最大温度差は約 0.03K と小さく，電極，電解質の内部プロセスが温度分布に及ぼす影響は小さい．電極内部の濃度については，アノード側の水素濃度はほとんど変化しないが，カソード側の酸素濃度は，拡散によってモル分率が 0.21 か

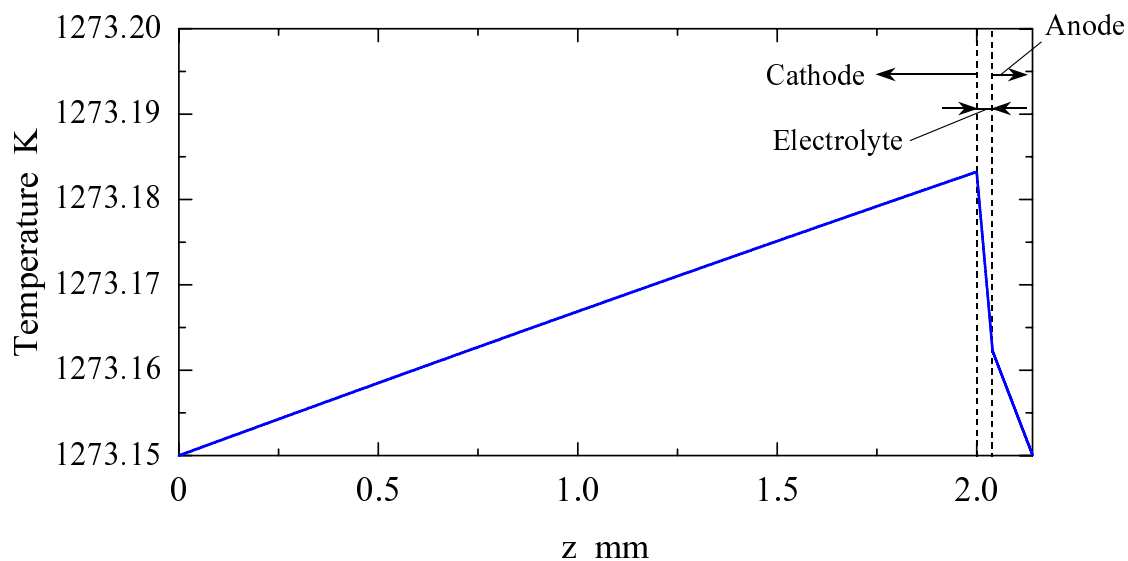


図 5.2 電極，電解質内部の温度分布

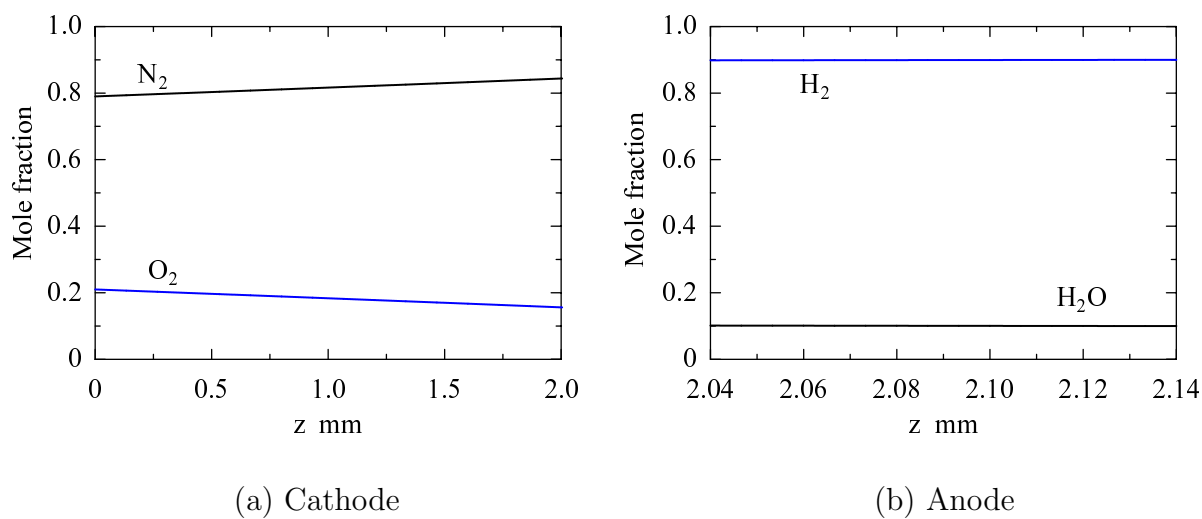


図 5.3 電極内部の濃度分布

ら 0.16 まで減少し，アノード側の水素に比べて濃度変化が大きい．この原因は，電極の厚みがアノードに比べてカソードのほうが厚いこと，酸素の拡散係数が水素の拡散係数に比べて小さいことによると考えられる．

5.9 作動条件のセル性能に及ぼす影響

温度，圧力および H_2 ， O_2 濃度とセルの熱効率の関係を図 5.4～図 5.7 に示す．各図中には，理論効率および実用効率を示すと同時に，表 2 の典型的な計算条件で解析した際に得られた熱効率もプロットしている．また，グラフの右軸には，セルの熱効率に対する電圧値を記す．

図 5.4 にセルの作動温度と熱効率の関係を示す．図中の記号は，(a) は濃度分極，(b)，(c) はカソード，アノードの活性化分極，(d)，(e)，(f) はカソード，電解質，アノードの抵抗分極を示す．理論効率は温度の上昇とともに低下するのに対し，実用効率は，約 1400K まで温度の上昇とともに増加する．セルの損失の大部分は，電極反応による活性化分極が占める．本解析では，アノード，カソード内の電流は厚み方向のみにしか流れないので，電極の抵抗分極による電圧降下は小さい．しかしながら，実際のセルでは，電流が電極およびインタコネクタの表面上を流れるため，抵抗分極による電圧降下は活性化分極と同様に大きく，セルの損失に大きな影響を及ぼす^[11]．

圧力と熱効率の関係を図 5.5 に示す．圧力を高めると熱効率は上昇し，1atm から 10atm に上げると，実用効率は 56.6% から 64.3% まで，およそ 8% 向上する．

アノード，カソード各電極の水素，酸素濃度とセルの熱効率の関係を図 5.6，図 5.7 に示す．アノード側の水素濃度を高めることにより熱効率は向上する．水素のモル分率が 0 および 1.0 付近のところでは，効率が著しく変化する．

また，カソード側の酸素濃度を高めることにより熱効率は上昇する．酸素のモル分率が 0.1 以下に低下すると，効率は著しく低下し，電流密度 $3000A/m^2$ の場合，酸素のモル分率 0.064 以下ではカソード・電解質界面に酸素が供給されなくなり，カソード側の電極反応が生じなくなる．図 5.8 に，カソード外側の酸素濃度と限界電流密度の関係を示す．カソード内の酸素の濃度勾配が小さくなると拡散する酸素量が減少するため，電流密度は減少する．限界電流密度は，カソード・電解質界面における酸素のモル分率を 0 とし，カソード内の酸素濃度差を最大としたときの電流密度である．カソード外側の酸素濃度が低下するとともに，限界電流密度は減少する．

電流密度とセルの熱効率の関係を図 5.9 に示す．計算条件は表 5.2 の条件を用いている．図中における記号の表記は図 5.4 と同様である．電流密度の増加とともに活性化分極，抵抗分極が増加するため，実用効率は減少する．

SOFC 単セルの性能を表 5.4 に示す．計算は表 5.2 の条件を用いている．実際の SOFC 単セルの端子電圧は，Siemens-Westinghouse 社製円筒型 SOFC^[11] でおよそ 0.7V（作動温度 1000℃，電流密度 $3000A/m^2$ ），Sasaki ら^[23] の円筒型 SOFC の性能試験で 0.72V である．また，Campanari^[1] や Nagata ら^[2] による円筒型 SOFC の数値解析ではそれぞれ単セル電

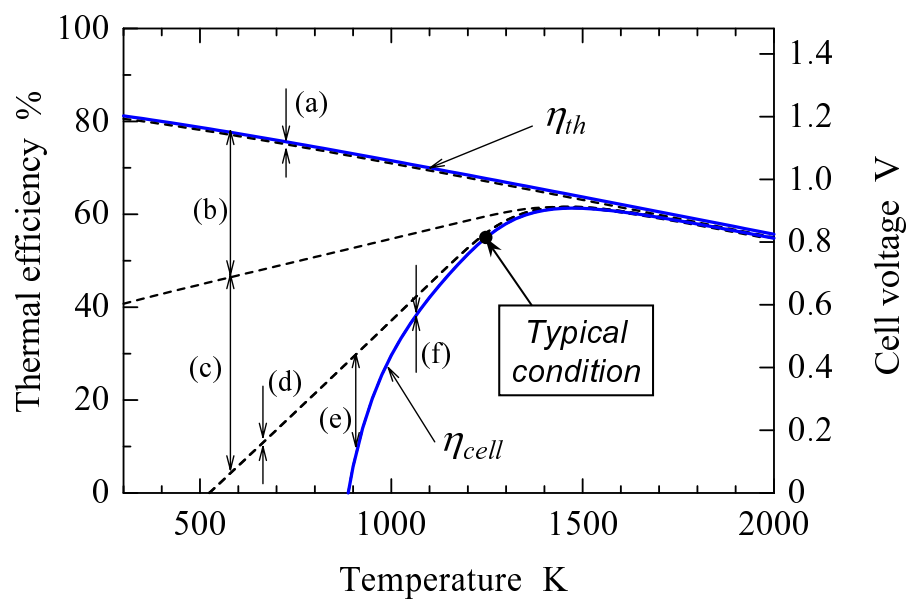


図 5.4 作動温度がセルの熱効率に及ぼす影響 (電流密度: $3000\text{A}/\text{m}^2$, 圧力: 1atm , モル分率: $\text{H}_2/\text{H}_2\text{O}=0.9/0.1$, $\text{O}_2/\text{N}_2=0.21/0.79$)

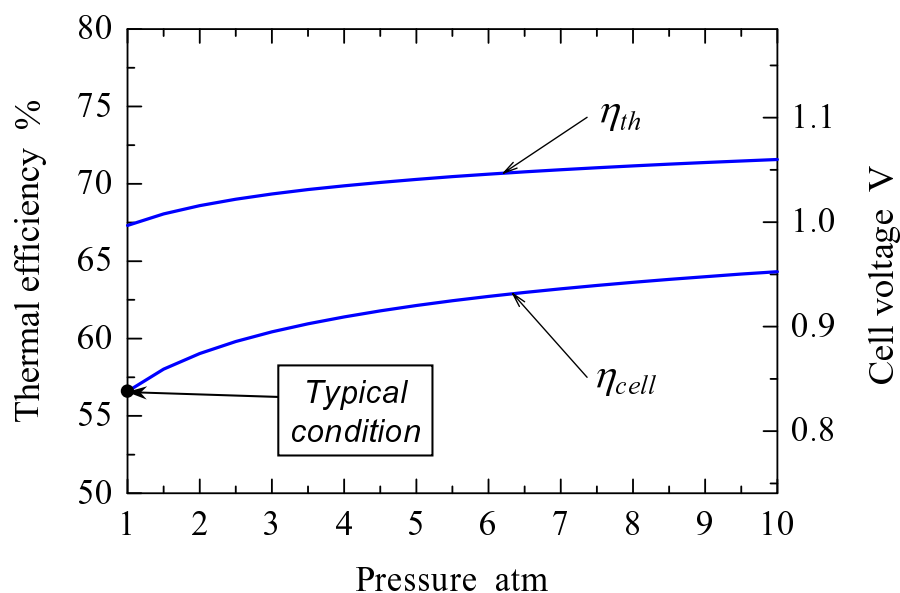


図 5.5 圧力がセルの熱効率に及ぼす影響 (電流密度: $3000\text{A}/\text{m}^2$, 温度: 1273K , モル分率: $\text{H}_2/\text{H}_2\text{O}=0.9/0.1$, $\text{O}_2/\text{N}_2=0.21/0.79$)

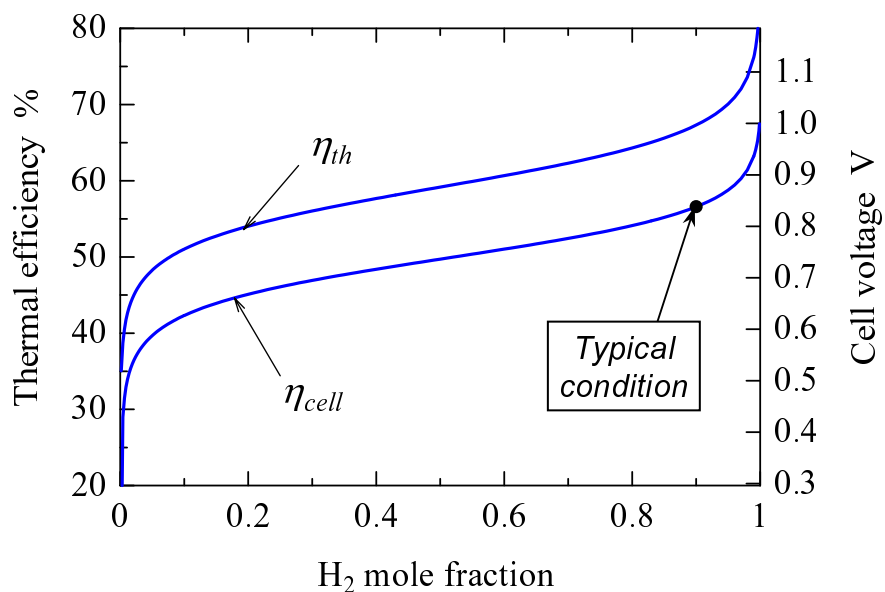


図 5.6 アノード側 H_2 濃度がセルの熱効率に及ぼす影響 (電流密度: $3000\text{A}/\text{m}^2$, 圧力: 1atm , 温度: 1273K , モル分率: $\text{O}_2/\text{N}_2=0.21/0.79$)

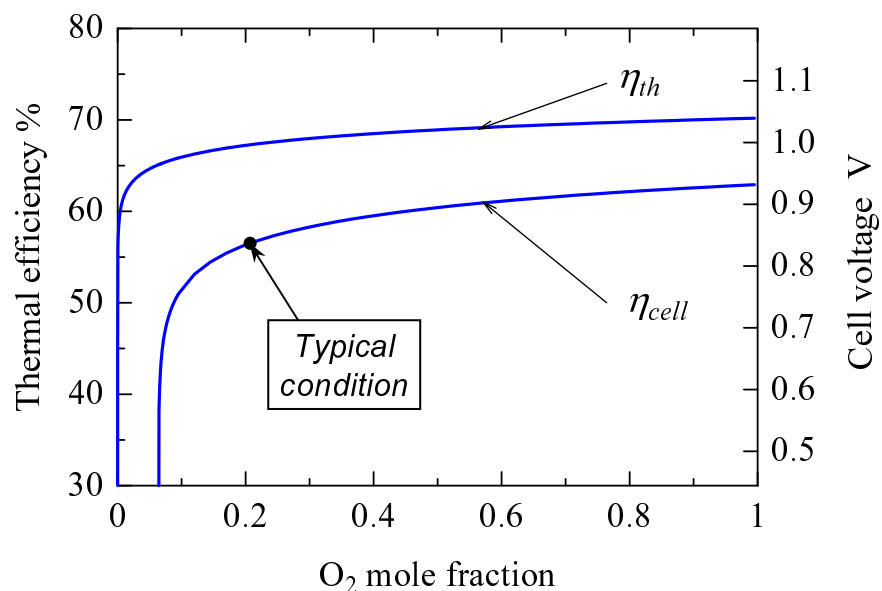


図 5.7 カソード側 O_2 濃度がセルの熱効率に及ぼす影響 (電流密度: $3000\text{A}/\text{m}^2$, 圧力: 1atm , 温度: 1273K , モル分率: $\text{H}_2/\text{H}_2\text{O}=0.9/0.1$)

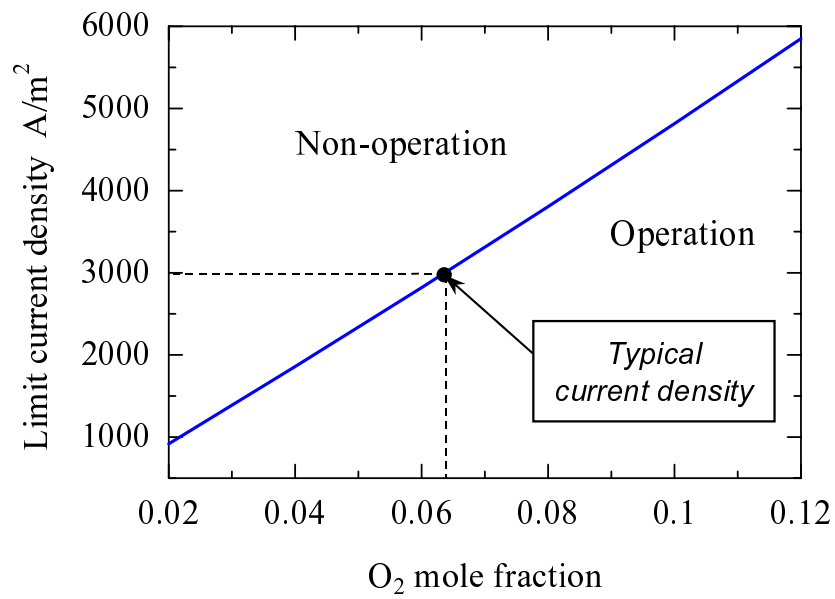


図 5.8 カソード側 O_2 濃度と限界電流密度の関係（圧力: 1atm, 温度: 1273K, モル分率: $H_2/H_2O=0.9/0.1$ ）

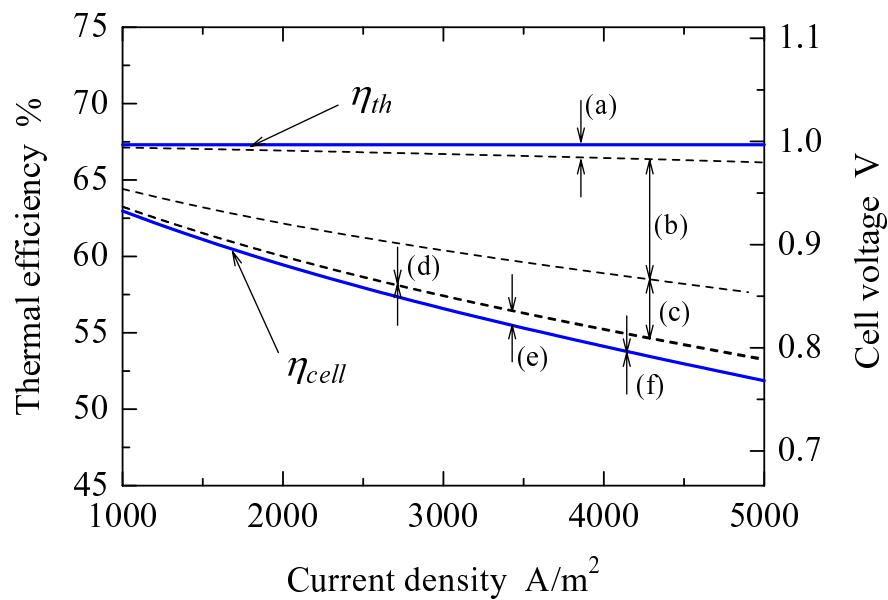


図 5.9 電流密度とセルの熱効率の関係（圧力: 1atm, 温度: 1273K, モル分率: $H_2/H_2O=0.9/0.1$, $O_2/N_2=0.21/0.79$ ）

表 5.4: SOFC 単セルの性能

Electromotive force	1.0 V
Concentration polarization	9.0×10^{-3} V
Anode	9.0×10^{-4} V
Cathode	8.1×10^{-3} V
Activation polarization	0.14 V
Anode	0.04 V
Cathode	0.09 V
Ohmic polarization	0.013 V
Anode	3.0×10^{-6} V
Cathode	7.8×10^{-4} V
Electrolyte	0.012 V
Cell voltage	0.84 V
Power density	2.5 kW/m ²
Thermal efficiency (HHV)	
Theoretical	67.3 %
Practical	56.6 %

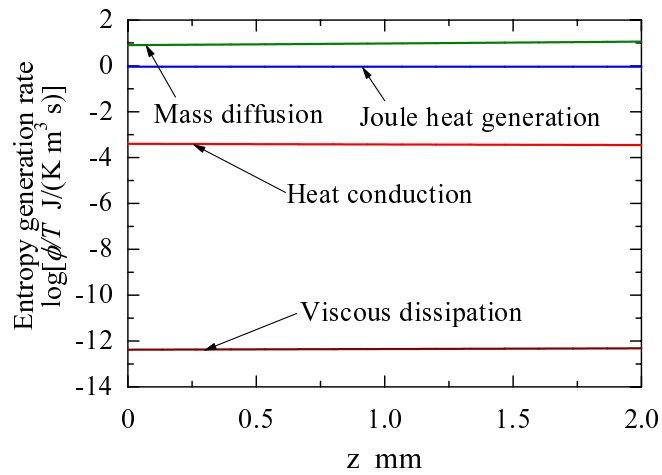
圧を 0.64V , 0.67V と見積もっている．本解析で求めた単セルの電圧は 0.84V であり，実際のセルに比べて高くなる．この原因は，条件として仮定したアノード側の水素濃度が，実際のセルの流れ方向で平均した水素濃度よりも高いこと，電極やインタコネクタの表面上を電流が流れることによって生じる抵抗分極が考慮されていないことによると考えられる．

5.10 電極，電解質のエントロピー生成とエクセルギー損失

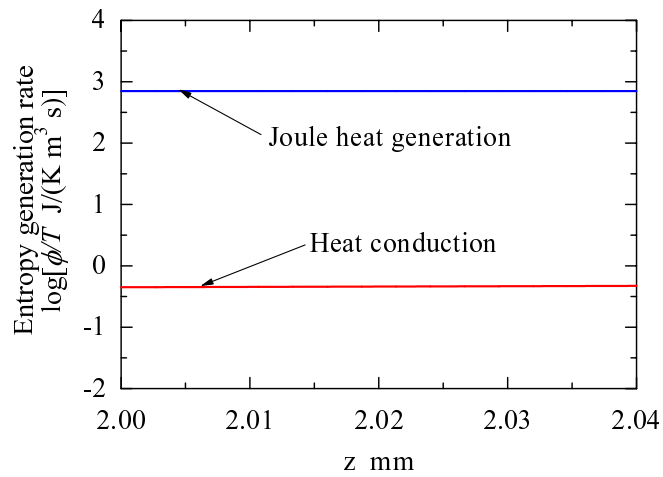
電極，電解質内部プロセスの解析から得られた濃度，温度，電位分布をもとに，エントロピー生成解析を行い，電極，電解質内部におけるエクセルギー損失を求める．計算条件は，前節と同様，表 5.2 の条件を用いる．

5.10.1 電極，電解質内部におけるエントロピー生成

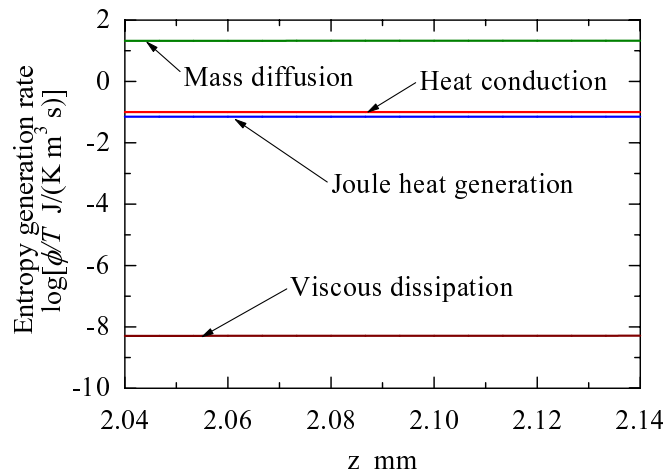
電極，電解質内部における各プロセスのエントロピー生成速度を図 5.10 に示す．エントロピー生成速度 ϕ/T は，常用対数で示されている．電極でのエントロピー生成の起因とな



(a) Cathode



(b) Electrolyte



(c) Anode

図 5.10 電極，電解質内部におけるエントロピー生成速度

表 5.5: 電極・電解質界面におけるエントロピー生成速度

Cathode/Electrolyte	$2.19 \times 10^{-1} \text{ J}/(\text{K m}^2 \text{ s})$
Anode/Electrolyte	$1.04 \times 10^{-1} \text{ J}/(\text{K m}^2 \text{ s})$
Total	$3.23 \times 10^{-1} \text{ J}/(\text{K m}^2 \text{ s})$

るプロセスには，粘性消散，熱伝導，物質拡散，電気抵抗によるジュール発熱がある．電極，電解質の内部では，速度，温度，濃度勾配に大きな変化が生じないため，各プロセスのエントロピー生成速度の分布は，ほぼ一定となる．カソードにおける各過程のエントロピー生成速度を比較すると，物質拡散に起因するエントロピー生成が最も多く，その順序は，ジュール発熱，熱伝導，粘性消散である．電解質では，酸素イオン移動時の抵抗によるジュール発熱および熱伝導に起因するエントロピー生成があり，ジュール発熱に起因するエントロピー生成速度が大きく，セルの全構成要素の中でも最も大きくなる．アノードのエントロピー生成の起因となるプロセスはカソードと同様であり，アノードにおいても物質拡散に起因するエントロピー生成が最も大きくなる．アノードはカソードに比べて温度勾配が著しく，そのため，熱伝導に起因するエントロピー生成速度はカソードよりも大きくなる．

5.10.2 電極・電解質界面のエントロピー生成

電極・電解質界面の電極反応に起因するエントロピー生成速度を表 5.5 に示す．各値は式 (5.24) に基づいて計算したものである．カソード側のほうがアノード側よりもエントロピー生成速度が大きくなる傾向がある．

5.10.3 エクセルギー損失評価

図 5.11 に，SOFC で消費される全エクセルギーに対する，各プロセスのエクセルギー損失および出力の内訳を%値で示す．粘性消散および熱伝導による損失は無視できるほど小さいため，図中における表示は省略する．SOFC で消費されるエクセルギーとは，セルに供給される燃料および空気が保有するエクセルギーと，セルから排出される水蒸気が保有するエクセルギーの差であり，ギブスの自由エネルギー変化で求めることができる．消費されるエクセルギーのうちの約 16% は損失となり，その大部分は電極反応に起因することがわかる．物質拡散やジュール発熱に起因する損失は電極反応による損失に比べて極めて小さい．また，物質拡散，電極反応，ジュール発熱によるエクセルギー損失比率は，表 5.4 における濃度分極，活性化分極，抵抗分極の比率にそれぞれ等しくなる．

図 5.12 に電極，電解質の内部および電極・電解質界面におけるエクセルギー損失をプロ

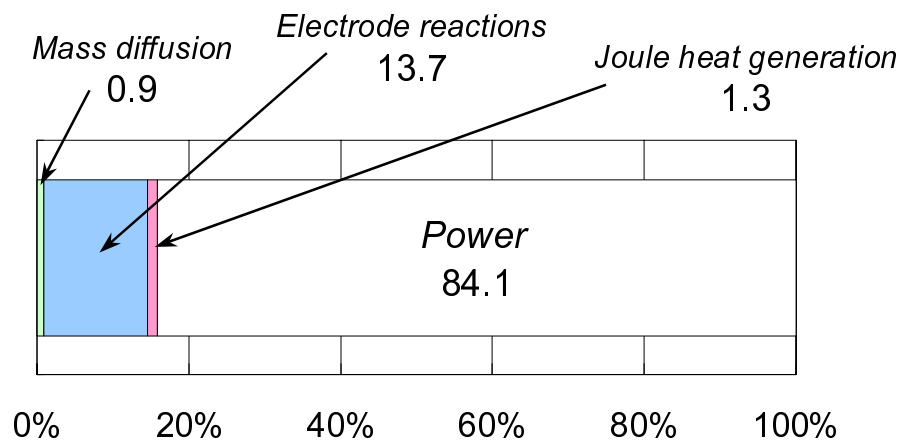


図 5.11 SOFC の内部プロセスに起因するエクセルギー損失

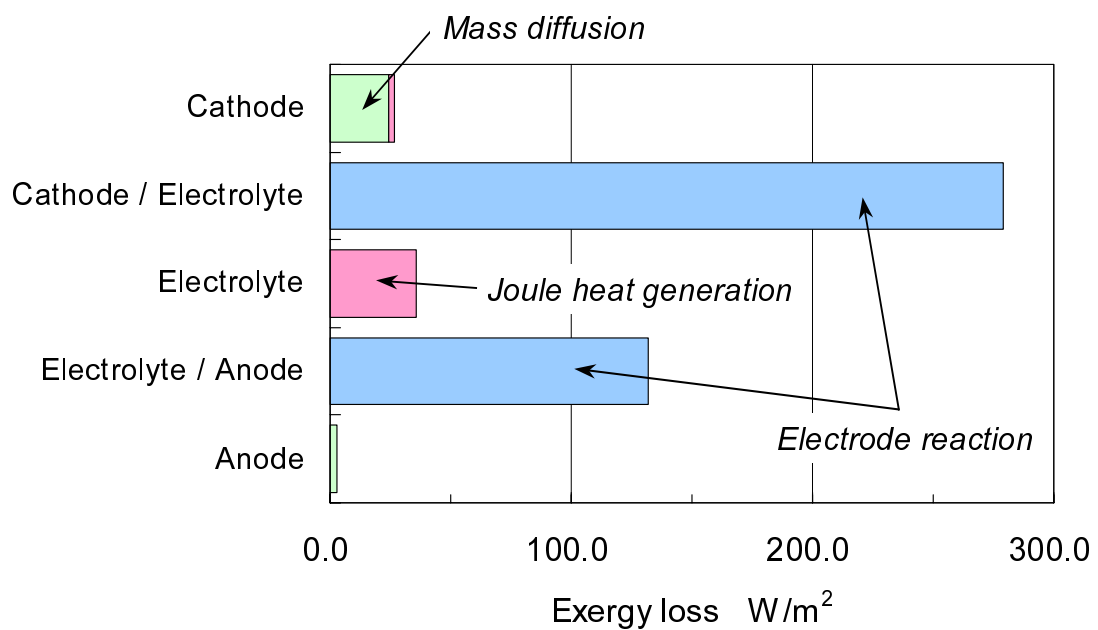


図 5.12 セル要素におけるエクセルギー損失

セスごとに示す。図 5.11 と同様，粘性消散および熱伝導による損失の表示は省略する。カソード・電解質の界面およびアノード・電解質の界面における各極の電極反応に起因するエクセルギー損失が支配的で，全損失の約 86% を占める。中でも，カソード・電解質界面での損失のほうが大きくなる。カソードでは物質拡散によるエクセルギー損失，電解質内

部ではジュール発熱による損失が支配的であるが、全体に占める割合は小さい。

5.11 結 言

本章では、SOFCの電極、電解質内部におけるプロセスの解析を行うことにより、温度分布およびガス成分の濃度分布を求め、また、作動条件がセルの性能に及ぼす影響を示した。さらに、内部プロセスに起因するエントロピー生成を解析することにより、電極、電解質でエクセルギーが損失する原因を明らかにした。主な結果を以下に記す。

- (1) 電極、電解質内における温度変化は小さく、内部プロセスが温度分布に及ぼす影響は小さい。また、電極内部のガスの濃度変化は、電極の厚さやガスの拡散係数によって影響を受け、カソードの厚みが大きい場合では、酸素濃度の変化が大きくなる傾向がある。
- (2) 温度、圧力の上昇とともにセルの実用効率は向上する。また、水素、酸素濃度の増加により熱効率は上昇する。カソード側の酸素濃度が大幅に減少すると、一定の電流密度を維持してセルを作動させることができなくなる。電流密度はカソード内の酸素の濃度差に影響を受け、限界電流密度は、酸素濃度の低下とともに減少する。
- (3) 電極、電解質内部におけるエクセルギー損失の大部分は、電極・電解質界面における電極反応の損失によって占められる。中でもカソード・電解質界面での反応に起因するエクセルギー損失が最も大きくなる。電極では物質拡散に起因する損失、電解質ではジュール発熱に起因する損失が支配的であるが、電極反応による損失に比べると小さく、熱伝導や粘性消散による損失は無視できるほど小さくなる。

文 献

- [1] Campanari, S., “Thermodynamics Model and Parametric Analysis of a Tubular SOFC Module”, *J. of Power Sources*, Vol.92, pp.26–34, 2001.
- [2] Nagata, S., Momma, A., Kato, T. and Kasuga, Y., “Numerical Analysis of Output Characteristics of Tubular SOFC with Internal Reformer”, *J. of Power Sources*, Vol.101, pp.60–71, 2001.
- [3] Boersma, R. J., Sammes, N. M. and Fee, C., “Integrated Fuel Cell System with Tubular Solid Oxide Fuel Cells”, *J. of Power Sources*, Vol.86, pp.369–375, 2000.

- [4] Achenbach, E., “Three-Dimensional and Time-Dependent Simulation of a Planar Solid Oxide Fuel Cell Stack”, *J. of Power Sources*, Vol.49, pp.333–348, 1994.
- [5] Iwata, M., Hikosaka, T., Morita, M., Iwanari, T., Ito, K., Onda, K., Esaki, Y., Sakaki, Y. and Nagata, S., “Performance Analysis of Planar-Type Unit SOFC Considering Current and Temperature Distributions”, *Solid State Ionics*, Vol.132, pp.297–308, 2000.
- [6] Yakabe, H., Hishinuma, M., Uratani, M., Matsuzaki, Y. and Yasuda, I., “Evaluation and Modeling of Performance of Anode-supported Solid Oxide Fuel Cell”, *J. of Power Sources*, Vol.86, pp.423–431, 2000.
- [7] Yakabe, H., Ogiwara, T., Hishinuma, M. and Yasuda, I., “3-D Model Calculation for Planar SOFC”, *J. of Power Sources*, Vol.102, pp.144–154, 2001.
- [8] Ferguson, J. R., Fiard J. M. and Herbin, R., “Three-Dimensional Numerical Simulation for Various Geometries of Solid Oxide Fuel Cells”, *J. of Power Sources*, Vol.58, pp.109–122, 1996.
- [9] Aguiar, P., Chadwick, D. and Kershenbaum, L., “Modelling of an Indirect Internal Reforming Solid Oxide Fuel Cell”, *Chem. Eng. Sci.*, Vol.57, pp.1665–1677, 2002.
- [10] 吉葉史彦, “MCFC における単極反応熱の解析 (不可逆過程の熱力学を適用した電解質内温度分布解析)”, 日本機械学会論文集 (B 編), Vol.67, No.664, pp.3153–3160, 2001.
- [11] U.S. Department of Energy, *Fuel Cell Handbook (Fifth Edition)*, Morgantown, WV, 2000.
- [12] 化学工業会編, 化学工学便覧 (改訂 6 版), 丸善, 1999.
- [13] 加賀保男, 大野吉弘, 中島武憲, “固体電解質形燃料電池構成要素のガス透過特性評価に関する研究”, 電気学会論文誌 B, Vol.109, No.4, pp.145–152, 1989.
- [14] 田川博章, 固体酸化物燃料電池と地球環境, アグネ承風社, 1998.
- [15] Sawata, A., Tsuneyoshi, K., Mizusaki, J. and Tagawa, H., “Oxygen Chemical Potential Profile in a Solid Oxide Fuel Cell and Simulation of Electrochemical Performance”, *Solid State Ionics*, Vol.40/41, pp.415–420, 1990.

- [16] Setoguchi, T., Okamoto, K., Eguchi, K. and Arai, H., “Effects of Anode Material and Fuel on Anodic Reaction of Solid Oxide Fuel Cells”, *J. of Electrochem. Soc.*, Vol.139, No.10, pp.2875–2880, 1992.
- [17] 山本治, 武田保雄, 菅野了次, 富田善之, “高温固体電解質燃料電池用ペロブスカイト型酸化物カソード $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MO}_3$ (M=Mn, Fe, Co) の電極反応”, *日本化学会誌*, Vol.8, pp.1324–1328, 1988.
- [18] Massardo, A. F. and Lubelli, F., “Internal Reforming Solid Oxide Fuel Cell–Gas Turbine Combined Cycles (IRSOFC-GT): Part A – Cell Model and Cycle Thermodynamic Analysis”, *ASME J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol.122, pp.27–35, 2000.
- [19] 渡辺正, 中林誠一郎, 電子移動の化学, 朝倉書店, 1996.
- [20] Kee, R. J., Rupley, F. M. and Miller, J. A., *Chemkin-II: A Fortran Chemical Kinetics Package for the Analysis of Gas Phase Chemical Kinetics*, Sandia Report, SAND89-8009B, 1991.
- [21] Kee, R. J., Dixon-Lewis, G., Warnatz, J., Coltrin, M. E. and Miller, J. A., *A Fortran Computer Code Package for the Evaluation of Gas-Phase Multicomponent Transport Properties*, Sandia Report, SAND86-8246, 1986.
- [22] 竹原善一郎, 金村聖志, “燃料電池の電極反応とエネルギー収支”, *表面*, Vol.26, No.12, pp.910–920, 1988.
- [23] Sasaki, K., Hori, Y., Kikuchi, R., Eguchi, K., Ueno, A., Takeuchi, H., Aizawa, M., Tsujimoto, K., Tajiri, H., Nishikawa, H. and Uchida, Y., “Current-Voltage Characteristics and Impedance Analysis of Solid Oxide Fuel Cells for Mixed H_2 and CO Gases”, *J. of Electrochem. Soc.*, Vol.149, No.3, pp.A227–A233, 2002.

第 6 章

円筒型内部改質 SOFC の性能解析

6.1 緒 言

固体酸化物形燃料電池 (Solid oxide fuel cell, 以下 SOFC と略記する) は, 他の燃料電池と比べて発電効率がよく, 作動温度が約 1000℃ と高いので電極触媒を必要としない。また, 電池の排熱を利用して燃料の内部改質を行うことが可能である。これまでに開発されている SOFC は, 幾何学的な形状により円筒型, 平板型, モノリス型に分類される^[1-4]。円筒型 SOFC には長い円筒状の単セルを複数本束ねて並列に接続する円筒縦縞型と, 1 本の支持管上に複数の短い円筒状の単セルを直列に接続する円筒横縞型の 2 種類のセルがあり, 円筒縦縞型は Siemens-Westinghouse 社^[3,5,6], 円筒横縞型は三菱重工^[7]によってそれぞれ開発が進められている。平板型 SOFC は Ztec, SOFCo, Siemens, Sulzer Hexis, Rolls Royce, Global Thermoelectric, Ceramic Fuel Cells Ltd 等多数のメーカーによって開発されており^[2,8-12], その構造は平面状のインタコネクタの両面に燃料, 空気供給用の溝を設け, そのインタコネクタで平板セルを挟み, 多数段積層してスタックを構成する。Sulzer Hexis は小型コージェネレーションシステム用として 1kW 級円盤型 SOFC を製作している^[2,9,10]。Allied Signal 社^[13,14], 三菱重工^[15]が開発しているモノリス型 (一体型) は平板型的一种で, 波状の燃料極/電解質/空気極 3 層一体膜を平板のインタコネクタで挟み積層する並行流型と, 平板状の電極, 電解質板を波状のセパレータで挟み積層する直交流型の 2 種類の構造がある。

SOFC で使用可能な燃料は水素および一酸化炭素であり, メタンが主成分である天然ガスを用いる場合は燃料改質を行う必要がある。SOFC の内部改質の方式には, 改質触媒を電池室に直接充填する直接内部改質方式と, 触媒を充填した改質器をセルの本体あるいは周辺に組み込む間接内部改質方式がある^[16,17]。全てのメタンを直接内部改質で改質すると電極上で著しい温度勾配が生じ, セルの破損を引き起こすため, 間接内部改質により予めメタンを改質しておく必要がある^[1,17]。円筒型 SOFC にはセルの内側を空気が流れるカソード支持型と燃料が流れるアノード支持型の 2 種類のセル構造があり, カソード支持型を採

用している Siemens-Westinghouse 社製円筒型 SOFC の場合、セルの前段あるいはスタック間に改質器を設置し、メタンの大部分を予め改質することによって、セルへの熱の負担を軽減している^[1,5]。一方、アノード支持型の場合は燃料がセルの内側を流れるため、単セルの内部に管状の改質器を組み込むことが可能となる。この場合、発熱である電極反応と吸熱である改質反応との間の効果的な熱需給により、メタンの改質を各単セルの内部で行うことができる。Aguilar ら^[17]、Nagata ら^[18]は、数値計算により内部改質器を有する円筒型 SOFC の性能特性やセル内部の温度分布を解析している。

本章では、円筒型セルの内部に改質器を組み込んだ円筒型内部改質 SOFC を対象として、熱、物質、イオン、電子の移動および改質、電極反応過程を解析し、セル内部の温度、濃度、電位、電流密度分布を明らかにする。改質反応は強い吸熱反応であり、また、その反応速度が速いため、改質器入口で急激な温度低下が生じる。改質器での急激な温度低下は、電極、電解質内部で著しい温度勾配を生じさせる原因となり、セラミック材料を用いる SOFC にとって望ましくない^[17]。本研究では、改質器内の急激な温度低下を防ぐため、改質器の触媒密度を下げた場合についての性能解析も行い、セル内部の濃度、温度分布を示す。

6.2 記号

本章で用いる記号を以下に記す。

A	断面積	m^2
E	理論起電力	V
E_a	活性化エネルギー	J/mol
F	ファラデー定数	$\text{J}/(\text{V mol})$
ΔG	ギブスの自由エネルギー変化	J/mol
h	混合ガスのエンタルピー	J/kg
h_i	i 成分のエンタルピー	J/kg
I	電流	A
i	電流密度	A/m^2
i_{H_2} i_{CO}	部分電流密度	A/m^2
K	平衡定数	
k_{a,H_2} $k_{a,CO}$	定数	A/m^2
k_0	頻度因子	$\text{mol}/(\text{h g MPa}^{1+a})$
M_i	分子量	kg/mol
m_i	i 成分の質量流量	$\text{kg}/(\text{m}^2 \text{ s})$

Nu	ヌッセルト数	
P	ぬれぶち長さ	m
p	圧力	MPa
p_i	i 成分の分圧	MPa
R	一般気体定数	J/(mol K)
$R_{act,H_2}, R_{act,CO}$	反応抵抗	$\Omega \text{ m}^2$
R_{an}	アノード抵抗	Ω
R_{ca}	カソード抵抗	Ω
R_{el}	電解質抵抗	Ω
r_i	i 成分の反応量	kg/(m ³ s)
r_{CH_4}	改質による反応量	mol/(h g)
T_a	空気流路内の温度	K
T_{cell}	セル温度	K
T_f	燃料流路内の温度	K
T_r	改質器内の温度	K
T_{wall}	改質器壁面温度	K
u	速度	m/s
V_{act}	活性化分極	V
V_{cell}	単セル電圧	V
V_{conc}	濃度分極	V
V_p	分極	V
w_i	i 成分の質量分率	
X_i	i 成分のモル濃度	
α	熱伝達率	J/(m ² s K)
λ	熱伝導率	W/(m K)
ρ	密度	kg/m ³

上付き添字

0 標準状態

下付き添字

a 空気流路
 f 燃料流路
 r 改質器

<i>an</i>	アノード
<i>ca</i>	カソード
<i>el</i>	電解質

6.3 解析対象

解析の対象とする円筒型内部改質 SOFC の模式図を図 6.1 に示す．円筒型セルの中央部に内部改質器が設置されており，メタン燃料はまず改質器に供給される．燃料改質は水蒸気改質とし，また改質の際に炭素が析出するのを防ぐため，メタンと同時に水蒸気を供給する．改質反応は強い吸熱反応であるため，セル内部の電極反応によって生成した熱は改質器へ移動する．メタンの改質反応により H_2 と CO が生成し，これらが SOFC の燃料となる． H_2 と CO を含む改質ガスは改質器出口で折り返し，燃料流路へ供給される． H_2 および CO はアノード電極を拡散して酸素イオンと反応し，電極反応によって生成した H_2O および CO_2 は燃料流路へ排出される．一方，空気は円筒型セルの外側へ供給される．空気流路内の O_2 はカソード電極を拡散し，電子と結合して酸素イオンとなり，電解質へ入る．電極反応によってセル内部で温度が著しく上昇するのを防ぐため，空気流量は過剰にする必要がある．

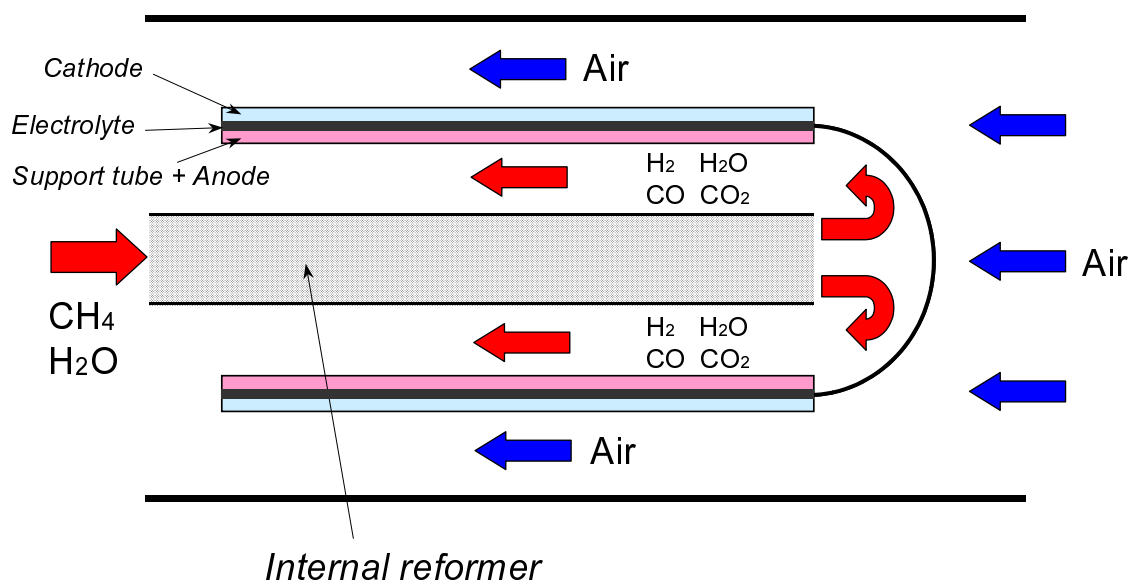


図 6.1 円筒型内部改質 SOFC の模式図

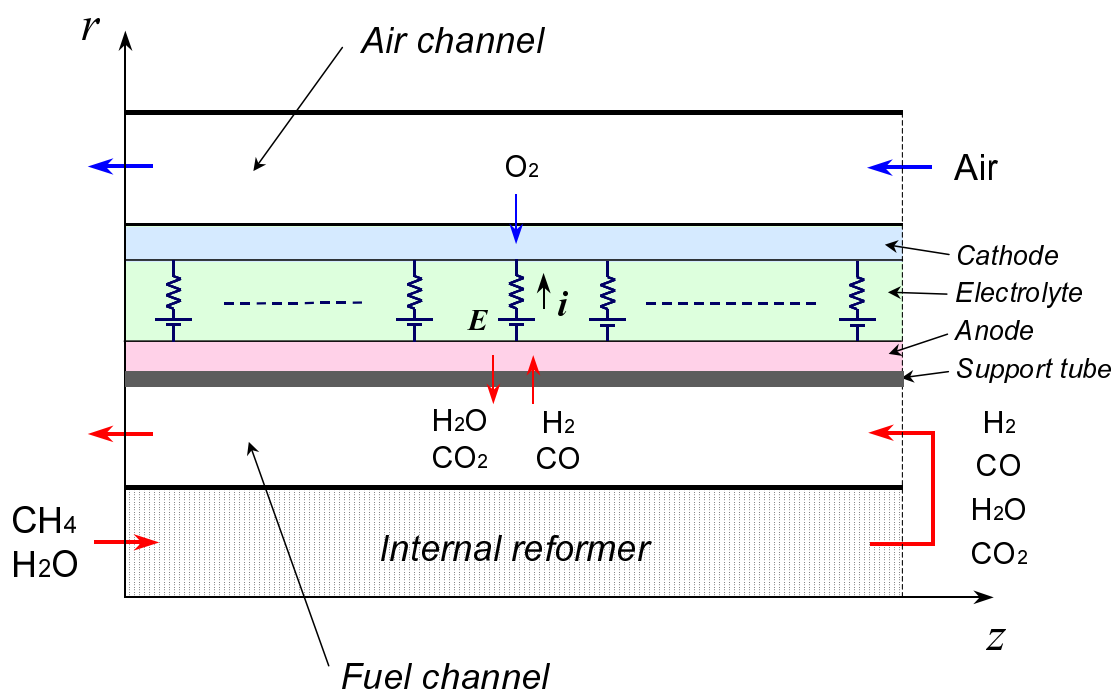


図 6.2 円筒型内部改質 SOFC の解析モデル

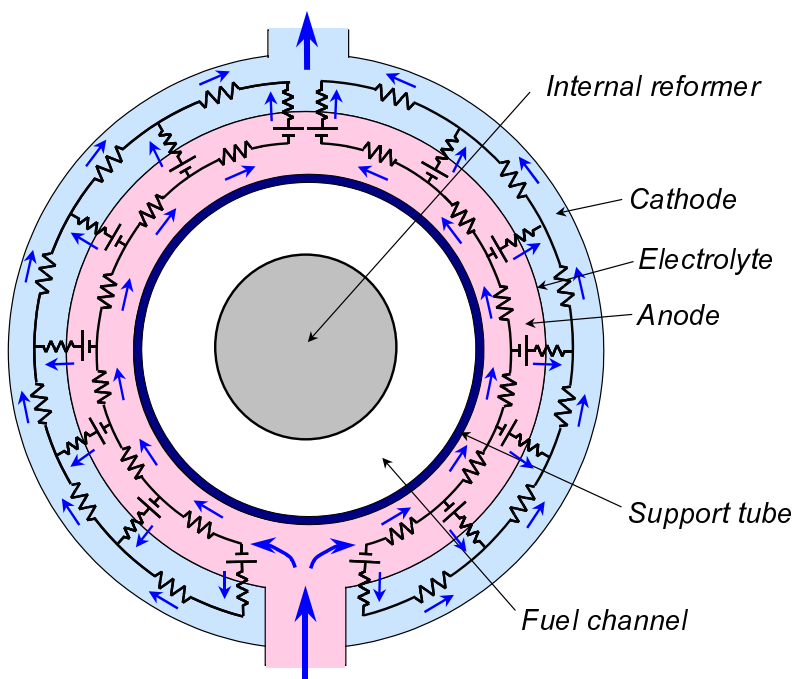


図 6.3 円筒型セル内部の回路モデル

図 6.2 に解析モデルを示す．改質器および燃料，空気流路内では，質量，エネルギー，化学種成分保存式に基づき， z 方向について流体計算を行う．反応に関しては，改質器で改質反応およびシフト反応，燃料流路でシフト反応を考慮する．また，セルの内部ではアノード，カソード両電極内のガス拡散を r 方向について計算する．セル内の温度は厚み方向で一定とし， z 方向の温度分布を考慮する．

セル内部を流れる電流の回路モデルを図 6.3 に示す．電流は円筒型セルの内部を周方向に流れるものとし，周方向の電流分布はキルヒホッフの法則より逐次に計算する．

6.4 基礎方程式

円筒型内部改質 SOFC の解析に用いる基礎方程式を以下に記す．

6.4.1 改質器および燃料，空気流路

改質器および燃料，空気流路内の流体計算に用いる基礎方程式を表 6.1 に示す．各流路内における流れ方向の温度，ガスの濃度分布は，質量，エネルギー，化学種成分保存式により求める．

(1) ガスの質量流量と電流密度の関係 燃料，空気流路と電極の界面ではガスの流入，流出があり， i 成分の質量流量 m_i と電流密度 i には以下の関係がある．燃料流路とアノードの界面における H_2 ， H_2O ， CO ， CO_2 の質量流量は式 (6.1)，(6.2) に，空気流路とカソードの界面における O_2 の質量流量は式 (6.3) に示す．また， i_{H_2} ， i_{CO} はそれぞれ H_2 と CO の電極反応の比率で分配された部分電流密度であり，式 (6.4) の関係がある．

$$m_{H_2} = -M_{H_2} \cdot \frac{i_{H_2}}{2F} \quad m_{H_2O} = M_{H_2O} \cdot \frac{i_{H_2}}{2F} \quad (6.1)$$

$$m_{CO} = -M_{CO} \cdot \frac{i_{CO}}{2F} \quad m_{CO_2} = M_{CO_2} \cdot \frac{i_{CO}}{2F} \quad (6.2)$$

$$m_{O_2} = -M_{O_2} \cdot \frac{i}{4F} \quad (6.3)$$

$$i = i_{H_2} + i_{CO} \quad (6.4)$$

(2) 反応計算 反応計算に関しては，改質器内で改質反応およびシフト反応，燃料流路内でシフト反応を考慮する．改質およびシフト反応の反応式は以下の通りである．

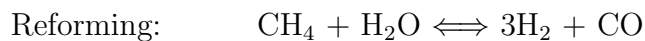


表 6.1: 改質器および燃料, 空気流路内の解析に用いる基礎式

<i>Reformer</i>	
Mass :	$\frac{d}{dz}(\rho u) = 0$
Energy :	$\rho u \frac{dh}{dz} = \frac{P_r}{A_r} \alpha_r (T_{wall} - T_r)$
Species :	$\rho u \frac{dw_i}{dz} = r_i$
<i>Fuel channel</i>	
Mass :	$\frac{d}{dz}(\rho u) = \frac{P_f}{A_f} \sum_i m_i$
Energy :	$\frac{d}{dz}(\rho u h) = \frac{P_f}{A_f} \left[\sum_i (m_i h_i) + \alpha_f (T_{cell} - T_f) \right] - \frac{P_r}{A_f} \alpha_f (T_f - T_{wall})$
Species :	$\frac{d}{dz}(\rho u w_i) = \frac{P_f}{A_f} m_i + r_i$
<i>Air channel</i>	
Mass :	$\frac{d}{dz}(\rho u) = \frac{P_a}{A_a} \sum_i m_i$
Energy :	$\frac{d}{dz}(\rho u h) = \frac{P_a}{A_a} \left[\sum_i (m_i h_i) + \alpha_a (T_{cell} - T_a) \right]$
Species :	$\frac{d}{dz}(\rho u w_i) = \frac{P_a}{A_a} m_i$

表 6.2: 改質用触媒の特性および反応速度パラメータ^[19]

Catalyst	Ni/ZrO ₂ cermet
Porosity, %	55
Zirconia, vol %	30
Mean pore size, μm	1.05
Bulk density, g/cm^3	4.374
Reaction order of CH ₄	1.0
Reaction order of H ₂ O	$\alpha = -1.28$
Activation energy, kcal/mol	$E_a = 17.8$
Frequency factor, $\text{mol-CH}_4/(\text{h g-catalyst MPa}^{1+a})$	$k_0 = 490.0$

改質の反応計算では，温度および CH_4 ， H_2O の分圧から触媒 1g に対する CH_4 の反応量 r_{CH_4} を式 (6.5) により求める^[19]．改質用触媒の特性および計算に必要な反応速度パラメータは表 6.2 に示す．改質による反応量は，改質器内の触媒密度により変化する．

$$r_{\text{CH}_4} = k_0 \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) p_{\text{CH}_4} p_{\text{H}_2\text{O}}^a \quad (6.5)$$

シフト反応は，反応速度が早いため，流路内の各点で常に平衡に達していると仮定する．反応計算では，温度から平衡定数を求め，平衡定数と各成分の体積モル濃度が式 (6.6) を満たすように反応量を算出する．

$$K_{\text{shift}} = \exp\left(-\frac{\Delta G_{\text{shift}}}{RT}\right) = \frac{X_{\text{H}_2} X_{\text{CO}_2}}{X_{\text{CO}} X_{\text{H}_2\text{O}}} \quad (6.6)$$

K_{shift} ， ΔG_{shift} はそれぞれシフト反応の平衡定数，ギブスの自由エネルギー変化である．

(3) 熱伝達率 各流路における熱伝達率は式 (6.7) により求める^[20]．

$$\alpha = \frac{Nu \cdot \lambda}{d_h} \quad (6.7)$$

燃料および空気流路では $Nu = 3.66$ とする^[18]．多孔質である改質器では，熱は壁面および触媒の両方から流体に伝わるため， Nu は燃料，空気流路での値よりも大きくなる．改質器における Nu は式 (6.8) により求める^[21]．

$$Nu = 12 \frac{1 + \kappa}{\kappa} \left(\kappa = \frac{\lambda_{\text{fluid}}}{\lambda_{\text{solid}}} \right) \quad (6.8)$$

κ は改質器内の流体部分と固体部分の熱伝導率の比である．本解析では $\kappa=0.4$ とする．

6.4.2 セルの電極，電解質内部

(1) 理論起電力，セル電圧および分極 理論起電力，セル電圧，濃度分極，カソード側活性化分極および電極，電解質の抵抗率の計算は前章と同様である．本解析では改質を考慮しているため，SOFC の燃料は H_2 および CO の 2 種類となる．それにより，アノード側の活性化分極は H_2 と CO のそれぞれについて計算する必要がある． H_2 ， CO の反応抵抗は，温度および H_2 ， CO の分圧から式 (6.9)，(6.10) を用いて求める^[22]．

$$\frac{1}{R_{\text{act},\text{H}_2}} = \frac{2F}{RT} k_{a,\text{H}_2} \left(\frac{p_{\text{H}_2}}{p^0} \right)^m \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (6.9)$$

$$\frac{1}{R_{\text{act},\text{CO}}} = \frac{2F}{RT} k_{a,\text{CO}} \left(\frac{p_{\text{CO}}}{p^0} \right)^m \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (6.10)$$

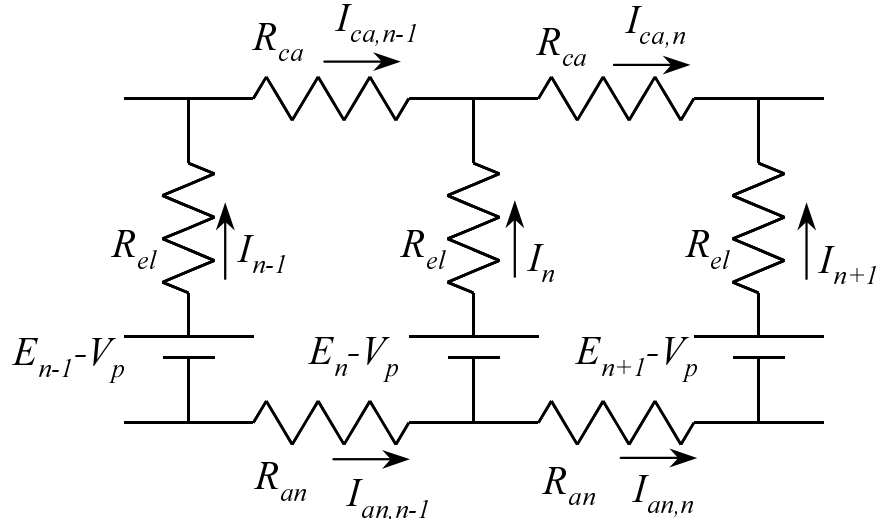


図 6.4 電極，電解質内部の回路モデル

$m=0.25$, $k_{a,H_2} = 2.13 \times 10^8$, $k_{a,CO} = 2.98 \times 10^8 \text{ A/m}^2$, $E_a=110000 \text{ J/mol}$ とする .

H_2 , CO の反応抵抗および電流密度から , アノード側の活性化分極を式 (6.11) により算出する [17] .

$$V_{act,an} = R_{act,H_2} \cdot i_{H_2} = R_{act,CO} \cdot i_{CO} \quad (6.11)$$

(2) 電極内部の濃度分布 電極内部の濃度分布は , 前章と同様に式 (5.1) より求める . ただし , アノードでは H_2 , H_2O , CO , CO_2 の 4 成分を考慮するため , 拡散係数は有効拡散係数を用いる .

(3) セル内の周方向電流分布 電流はセルの内部を周方向に流れるものとし , 周方向の電流分布はキルヒホッフの第 1 法則 (式 (6.12) , 式 (6.13)) および第 2 法則 (式 (6.14)) を用いて , 逐次に計算する . 図 6.4 に計算で用いる電極 , 電解質内部の回路モデルを示す .

$$I_{an,n} = I_{an,n-1} - I_n \quad (6.12)$$

$$I_{ca,n} = I_{ca,n-1} + I_n \quad (6.13)$$

$$(E_n - V_p) - R_{el}I_n - R_{ca}I_{ca,n} = (E_{n+1} - V_p) - R_{el}I_{n+1} - R_{an}I_{an,n} \quad (6.14)$$

E は理論起電力 , I_{an} , I_{ca} , I_{el} はアノード , カソード , 電解質を流れる電流 , R_{an} , R_{ca} , R_{el} はそれぞれの抵抗である . V_p は濃度分極と活性化分極の和であり , 式 (6.15) により求める .

$$V_p = V_{conc,an} + V_{conc,ca} + V_{act,an} + V_{act,ca} \quad (6.15)$$

6.5 解析手法および条件

解析手順を図 6.5 に示す．まず，セルの構造および燃料，空気の流入条件（温度，圧力，流速，濃度），電流密度を設定する．次に，改質器壁面の温度およびセル内部の温度，電流密度の初期分布を仮定し，計算を開始する．流体計算は，改質器，燃料流路，空気流路の順で行い，その後，燃料，空気流路内のガスの温度，濃度を用いてセル内部の計算を行う．セル内部の計算では電極内のガス拡散を考慮し，理論起電力，分極，電流分布を求め

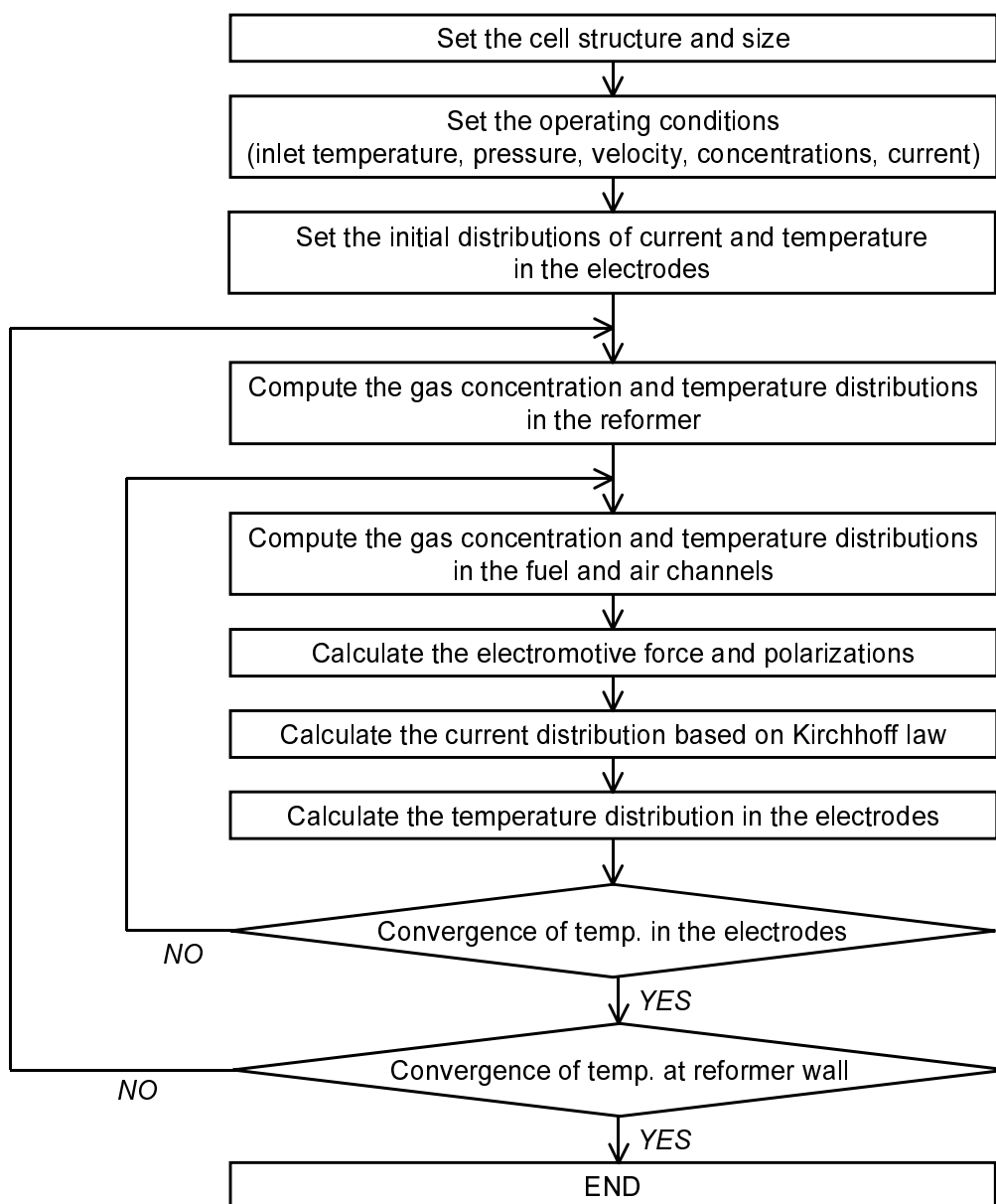


図 6.5 解析手順

表 6.3: セルの大きさ

Cell length	300 mm
Diameter of reformer	6.0 mm
Outer diameter of fuel channel	10.0 mm
Inner diameter of air channel	16.4 mm
Outer diameter of air channel	22.0 mm
Support tube thickness	2.0 mm
Anode thickness	0.15 mm
Cathode thickness	1.0 mm
Electrolyte thickness	0.05 mm

表 6.4: 計算条件

Reformer inlet	Pressure	1.0 atm
	Temperature	1173 K
	Velocity	0.9 m/s
	Gas composition (Mole fraction)	CH ₄ : 0.25 H ₂ O: 0.75
Air channel inlet	Pressure	1.0 atm
	Temperature	1173 K
	Velocity	1.5 m/s
	Gas composition (Mole fraction)	O ₂ : 0.21 N ₂ : 0.79
Current density		3000 A/m ²

る．電流分布の計算は周方向，流れ方向について行い，周方向の電流分布はキルヒホッフの法則により求め，流れ方向の電流分布は各点の電位差が等しくなるように計算する．また，求めた電流分布からジュール発熱，電極反応による発熱を考慮して，セル内部の温度分布を解析する．電流分布が変化すると，セルの温度および電極・流路界面で流入，流出するガス流量が流れ方向の各点で変化し，それにより燃料，空気流路における温度，濃度分布も変わるため，燃料，空気流路の計算とセル内部の計算の間でループ計算が必要となる．ループ計算はセル内の温度分布が収束するまで行う．また，改質器と燃料流路間でルー

ブ計算を行い，改質器壁面温度が収束すれば，全計算を終了する．各ガス成分の物性値は CHEMKIN データベース^[23,24]により求める．

セルの大きさを表 6.3 に示す．セルの長さは 300mm とし，半径方向の寸法は改質器外径 6.0mm，燃料流路外径 10.0mm，空気流路内径 16.4mm，空気流路外径 22.0mm とする．改質器の外壁の厚みはないものとする．また，各セル要素の厚みは，支持管 2.0mm，アノード 0.15mm，カソード 1.0mm，電解質 0.05mm とする．

表 6.4 に計算条件を示す．改質器，空気流路に流入される燃料，空気の圧力，温度は，1atm，900 とする．燃料はメタンとし，S/C 比（＝水蒸気モル数/燃料中の炭素モル数）が 3 となるように水蒸気を同時に供給する．燃料および空気の流速は，それぞれ 0.9m/s，1.5m/s とし，その場合の空気比は 4.2 となる．電流密度は 3000A/m² とする．

6.6 結果および検討

6.6.1 改質器および燃料，空気流路内の温度，濃度分布

図 6.6 に改質器，燃料，空気流路およびセル内部の温度分布を示す．改質器入口付近では，強い吸熱である改質反応が起こるため，温度が急激に低下する．燃料，空気流路内やセル内部では，電極反応の発熱により，流れ方向（ z 座標が減少する方向）に沿って温度は上昇する．しかしながら，改質反応が起こる領域では，熱が改質器へ移動するため，温度は著しく低下する．セルの最大温度差はおよそ 220K に達し， $z=0.05 \sim 0.07$ m 付近で急激な温度勾配が生じる．SOFC の材料となるセラミックは，熱伝導率が小さく，急激な温度勾配下では熱応力により破損する^[1]．そのため，セル内部で生じる大きな温度差は材料面で望ましくない．

改質器および燃料，空気流路内の濃度分布を図 6.7，図 6.8，図 6.9 に示す．各ガスの濃度はモル分率で示している．改質器では， $z=0.06$ m 付近で CH₄ 濃度がほぼ 0 になり，改質反応が終了する．燃料流路内では，アノード側の電極反応で H₂，CO が消費され，H₂O，CO₂ が生成されるため，流れ方向に沿って H₂，CO 濃度が減少し，H₂O，CO₂ 濃度が増加する．また，空気流路内では，カソード側の電極反応で O₂ が消費されるため，O₂ 濃度が減少する．しかし，空気流量が過剰のため，O₂ 濃度は大きく減少しない．

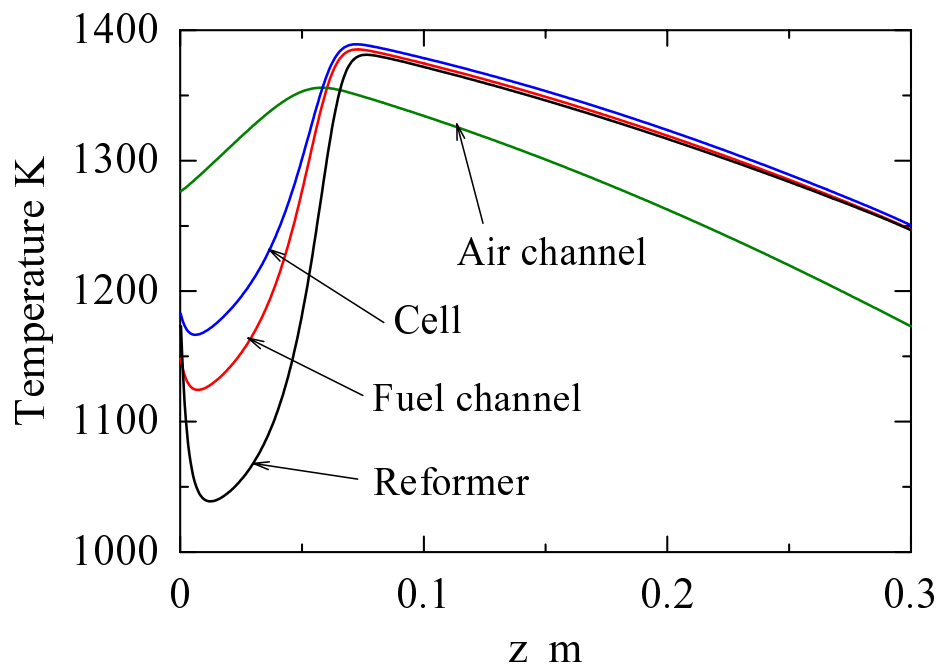


図 6.6 改質器，燃料，空気流路およびセル内部の温度分布

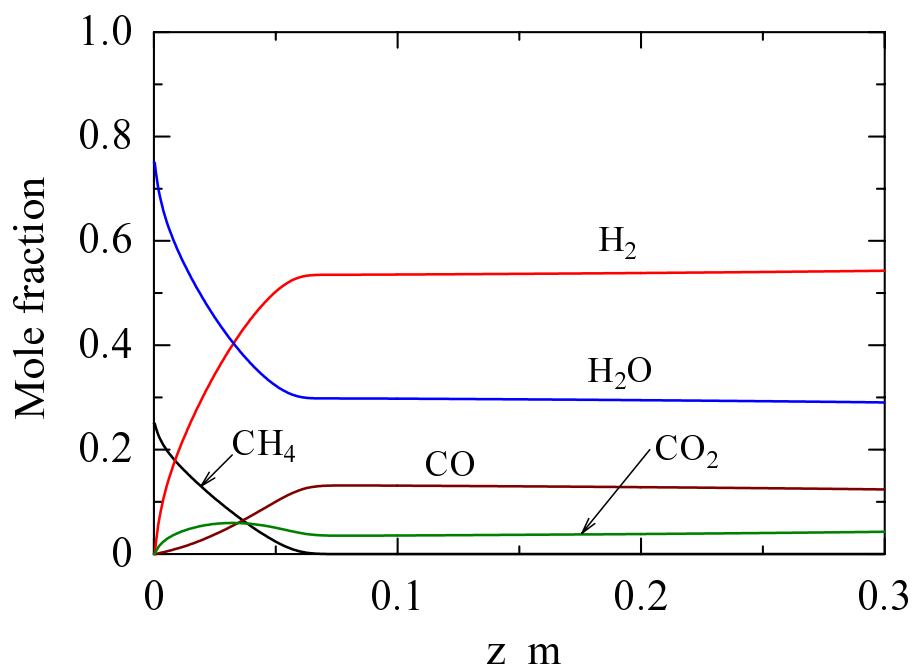


図 6.7 改質器内の濃度分布

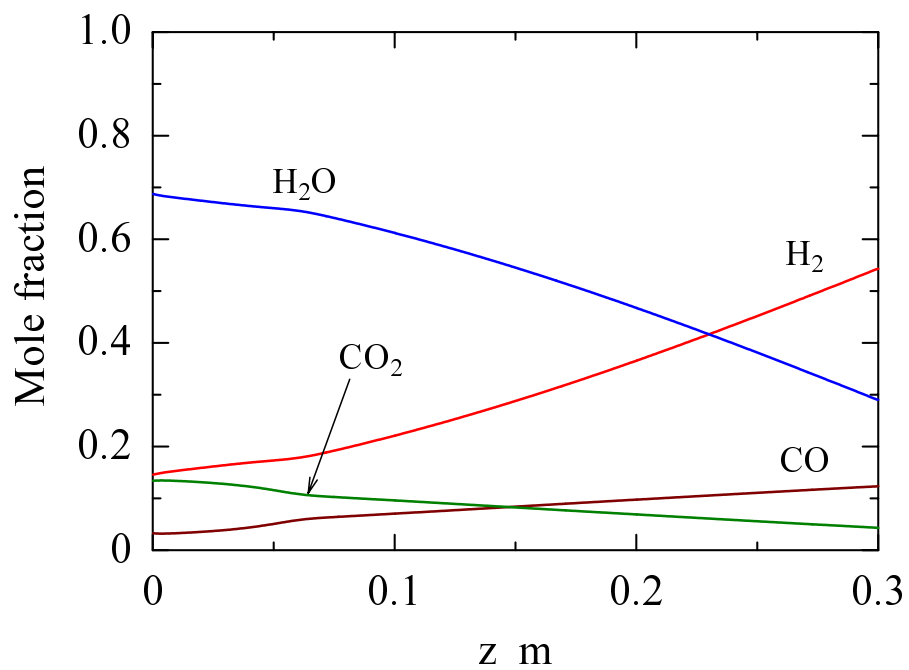


図 6.8 燃料流路内の濃度分布

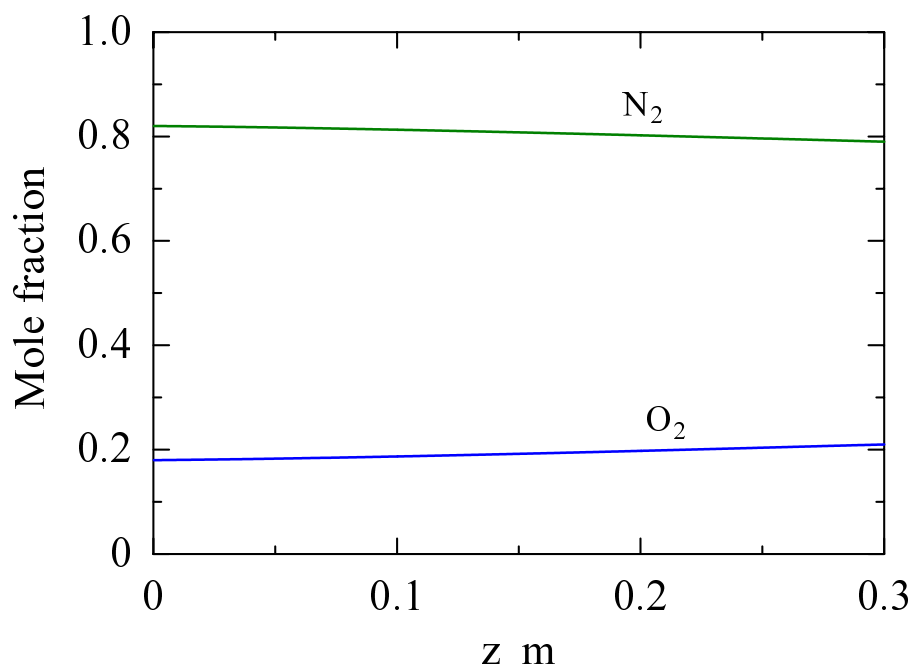


図 6.9 空気流路内の濃度分布

6.6.2 電極内のガス濃度分布

図 6.10 に電極内における H_2 , CO , O_2 の濃度分布を示す。(a), (b) にはアノード内の H_2 , CO のモル分率, (c) にはカソード内の O_2 のモル分率を示している。アノード内部では H_2 , CO が, カソード内部では O_2 が半径方向 (H_2 , CO は r 座標が増加する方向, O_2 は r 座標が減少する方向) にそれぞれ拡散する。改質反応が生じる $z=0 \sim 0.06m$ の領域では, セル内部の温度が低下するため, シフト反応により CO 濃度が減少し, H_2 濃度が増加する。そのため, z 軸方向の H_2 の濃度勾配は緩やかになり, CO の濃度勾配は著しくなる。また, 改質反応が起こる温度の低い領域では, セルの内部抵抗が大きくなるため, 電流密度は著しく減少する。そのため, H_2 , CO , O_2 が電極内を拡散する量は減少し, 半径方向の濃度勾配は小さくなる。

6.6.3 理論起電力, セル電圧および分極の分布

理論起電力, 各分極, セル電圧の分布を図 6.11 に示す。燃料, 空気の流れ方向 (z 座標が減少する方向) に沿ってセルの温度が高くなり, また H_2 , O_2 濃度が減少するため, 理論起電力は低下する。しかしながら, 改質反応が起こる $z=0 \sim 0.06m$ の領域ではセルの温度が低下するため, 理論起電力は高くなる。セルの内部で生じる電圧降下の大部分は, カソード側の活性化分極および抵抗分極に起因する。活性化分極は, 活性化エネルギーによる電極反応の遅れ, 抵抗分極は, 電流が電極, 電解質内部を流れることに起因する電圧降下である。改質反応が起こる領域では, セルの温度が低下することにより, 活性化分極が大きくなる。

6.6.4 電流密度分布

図 6.12 に電流密度分布を示す。燃料, 空気流の上流側では理論起電力が高くなるため, 電流密度も大きくなる。改質反応が起こる $z=0 \sim 0.06m$ の領域では, セルの温度が低くなるため, 電極反応の反応抵抗および電気抵抗が増大し, 電流密度は著しく減少する。

6.6.5 単セルの性能

単セルの性能を表 6.5 に示す。電流密度が $3000A/m^2$ のとき単セルの端子電圧はおよそ $0.67V$ であり, Siemens-Westinghouse 社製円筒型 SOFC の性能とほぼ同じである [3]。燃料および空気利用率は, それぞれ 73.4% , 17.5% である。また, その場合の単セルの熱効率は 42.8% (HHV) となる。

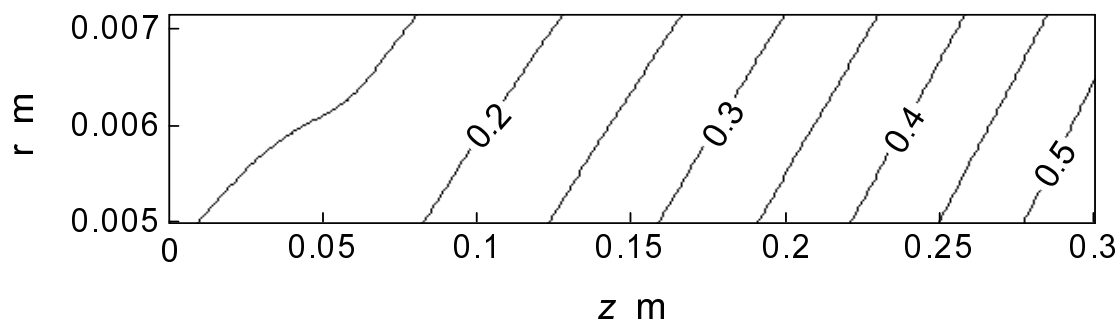
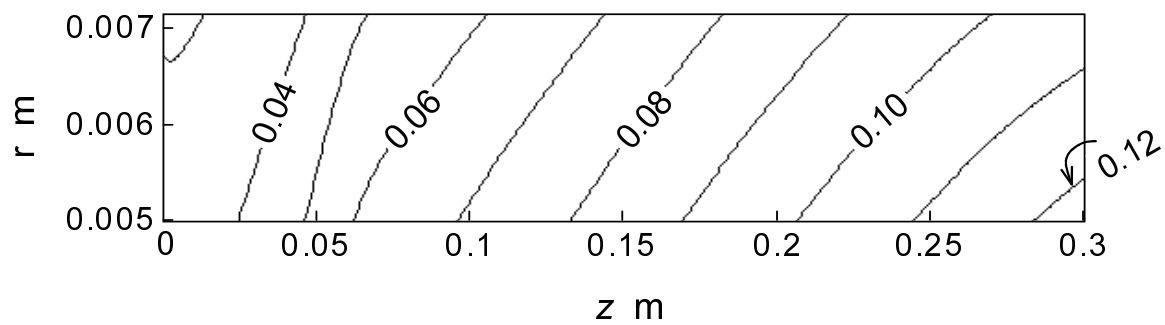
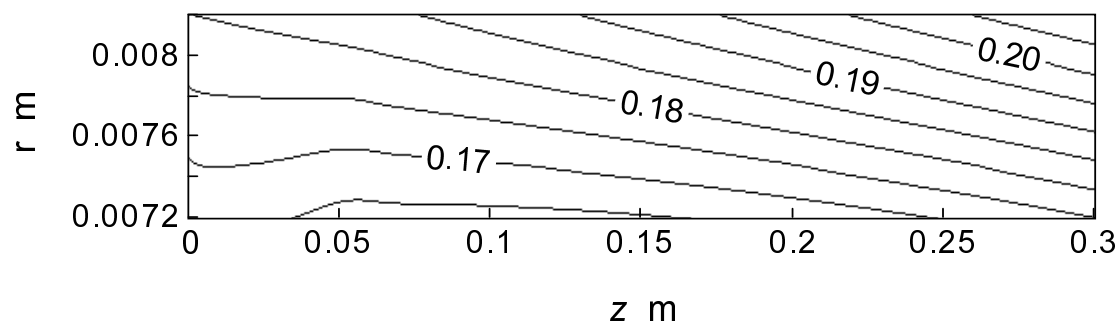
(a) アノード内 H_2 濃度分布(b) アノード内 CO 濃度分布(c) カソード内 O_2 濃度分布

図 6.10 電極内のガス濃度分布

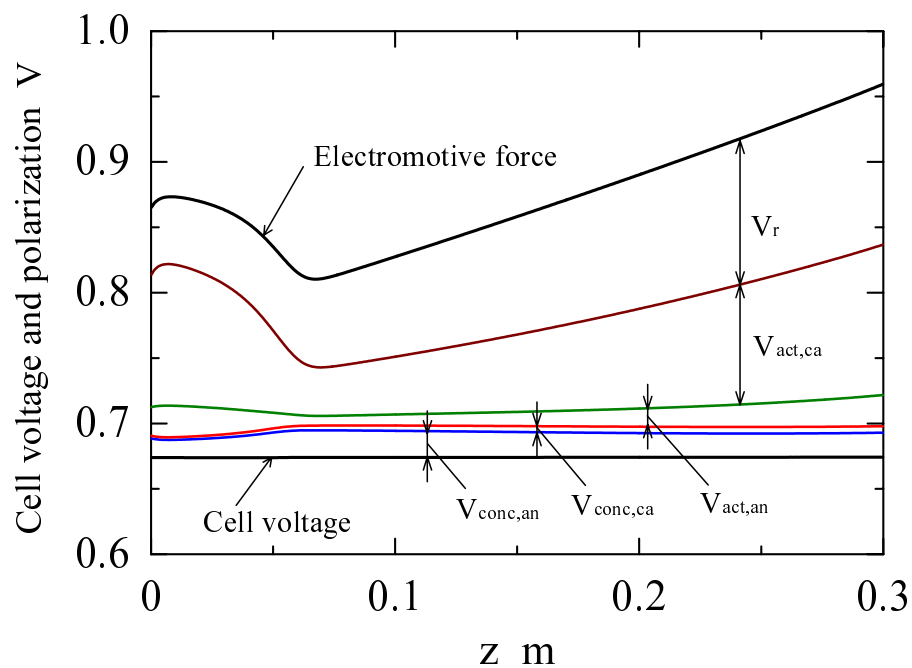


図 6.11 理論起電力，セル電圧および分極の分布

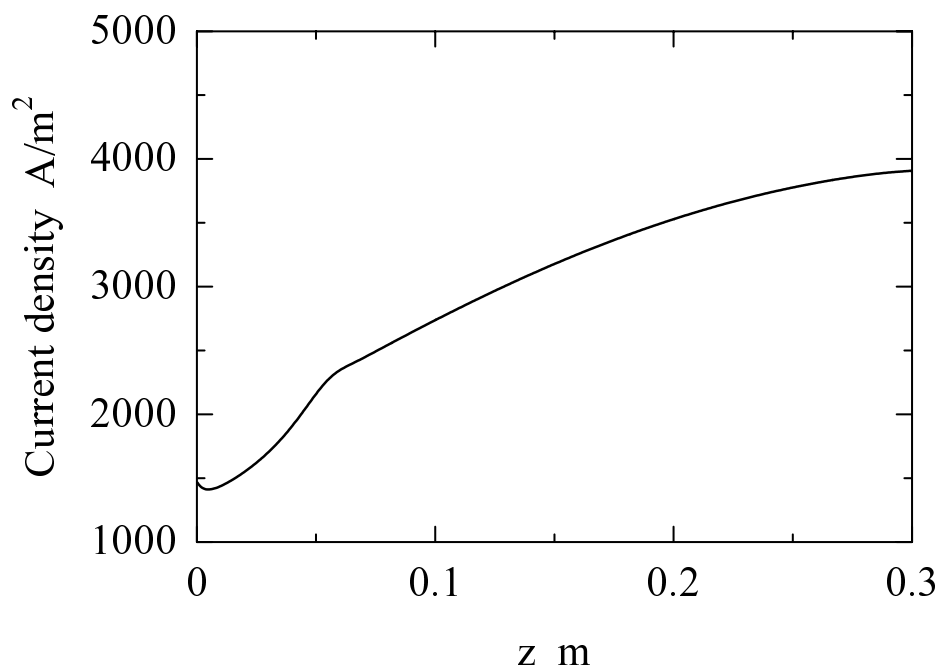


図 6.12 電流密度分布

表 6.5: 単セルの性能

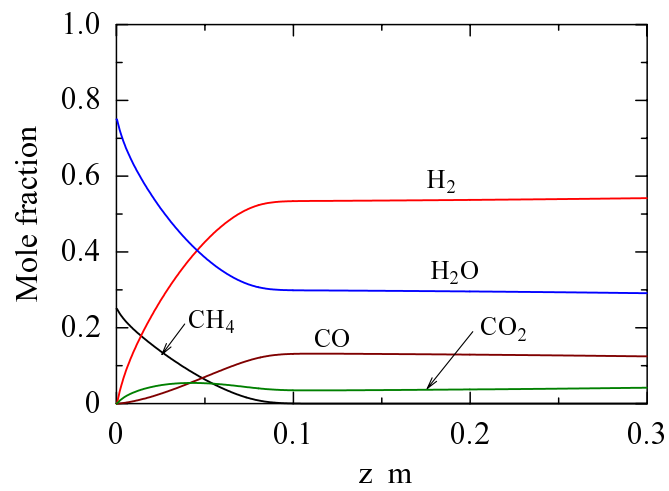
Current density	3000 A/m ²
Cell voltage	0.67 V
Power	25.1 W
Fuel utilization ratio	73.4 %
Air utilization ratio	17.5 %
Thermal efficiency (HHV)	42.8 %

6.6.6 改質器触媒密度がセルの性能に及ぼす影響

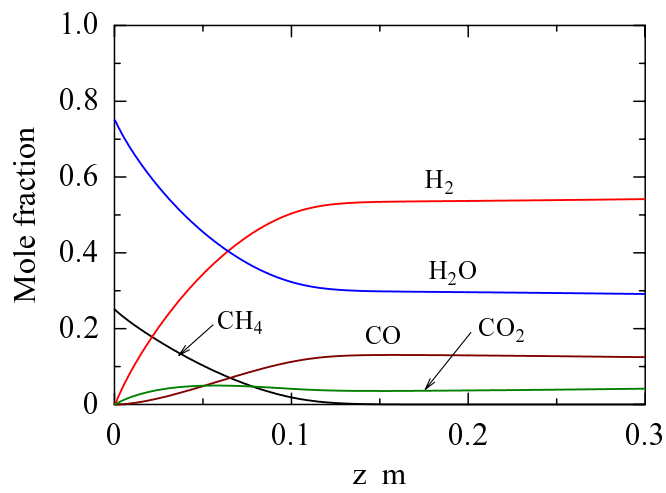
図 6.13 に改質用触媒の密度を下げた場合の改質器内部の濃度分布を示す．(a)，(b)，(c) には表 6.2 の触媒密度を 50%，25%，10%にしたときの改質器内のガスのもル分率をそれぞれ示している．触媒密度を下げることににより反応速度が低下するため，反応領域は長くなる．触媒密度が 50%，25%，10%と下がるにつれて，改質反応の反応領域は，それぞれ 0.08m，0.13m，0.25m と長くなる．

改質用触媒の密度を下げた場合の改質器，燃料，空気流路およびセル内部の温度分布を図 6.14 示す．(a)，(b)，(c) には表 6.2 の触媒密度を 50%，25%，10%にしたときの改質器，燃料，空気流路，セル内部の温度分布をそれぞれ示している．触媒密度を下げることににより反応速度が遅くなるため，改質器の入口付近で生じる温度低下は小さくなり，10%まで減少させると，改質器入口付近で温度は下がらなくなる．また，触媒密度を下げ，改質反応による著しい温度低下を小さくすることにより，セルの内部で生じる温度差も小さくできる．触媒密度を 50%，25%，10%に下げると，セル内部の最大温度差はそれぞれ 200K，155K，82K と小さくなり，セルの最高温度もそれぞれ 1396K，1380K，1331K と低くできる．セル内部で急激な温度勾配が生じるのを防ぎ，また最高温度を下げることは，セラミック材料を用いる SOFC にとって効果的であると考えられる．

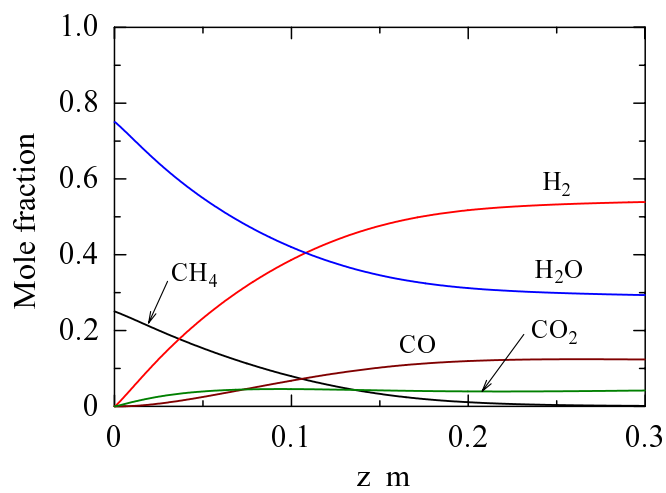
図 6.15 に改質器の触媒密度がセルの性能に及ぼす影響を示す．触媒密度を下げてても，セルの熱効率，端子電圧にはほとんど影響がないことがわかる．



(a) 50% relative catalyst density

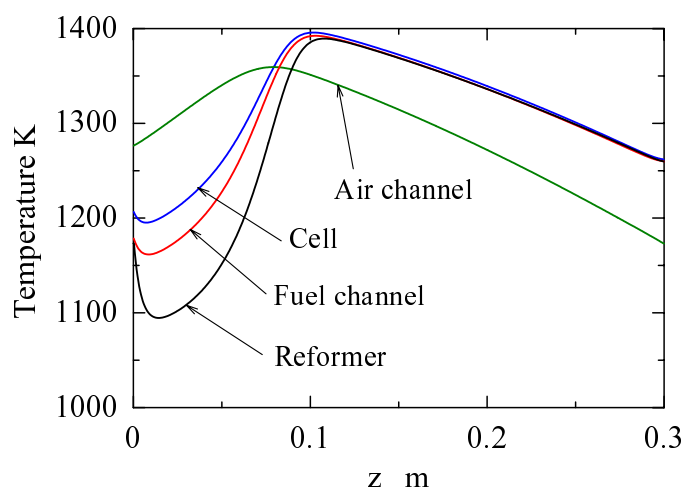


(b) 25% relative catalyst density

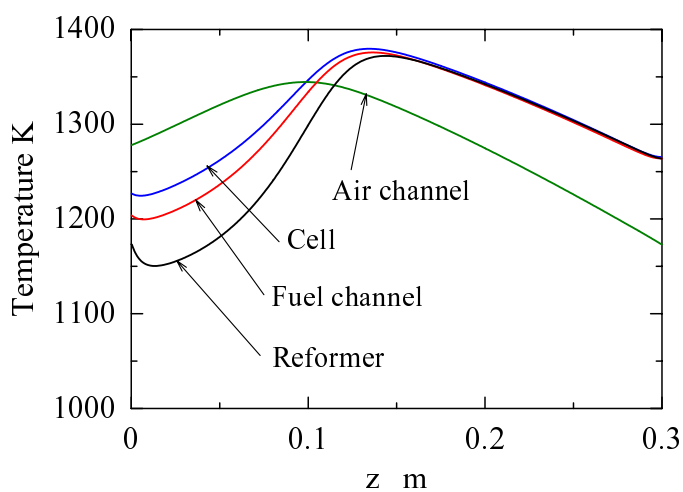


(c) 10% relative catalyst density

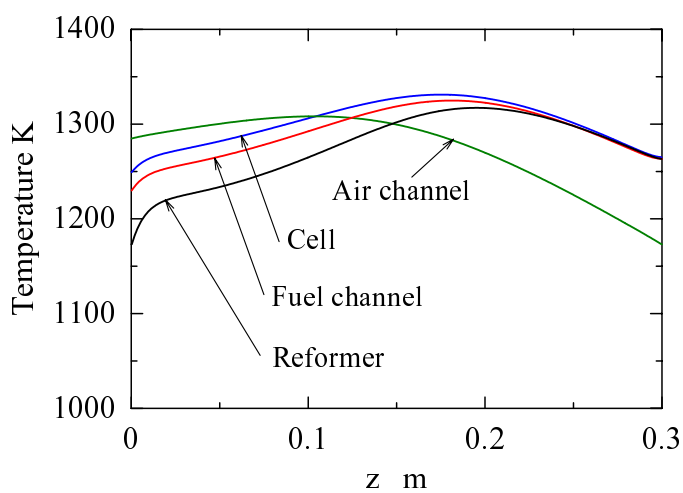
図 6.13 触媒密度が改質器の濃度分布に及ぼす影響



(a) 50% relative catalyst density



(b) 25% relative catalyst density



(c) 10% relative catalyst density

図 6.14 触媒密度が改質器，燃料，空気流路およびセル内部の温度分布に及ぼす影響

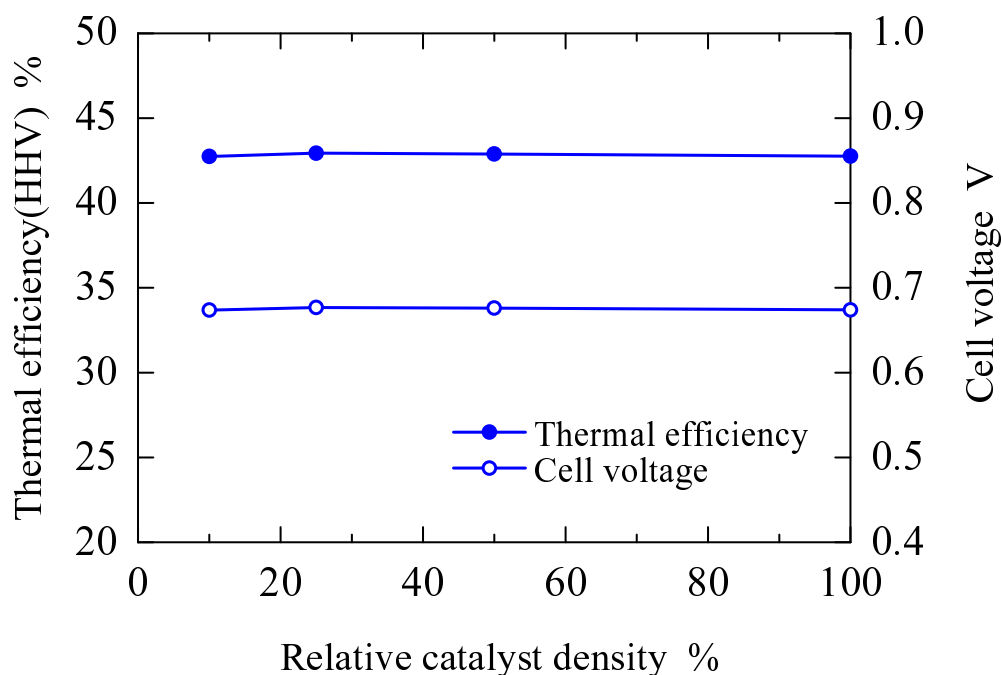


図 6.15 改質器触媒密度がセル性能に及ぼす影響

6.7 結 言

本章では、円筒型内部改質 SOFC を対象として、熱、物質、イオン、電子の移動および改質、電極反応過程を解析し、セル内部の温度、濃度、電位、電流密度分布を明らかにした。また、改質器の触媒密度を下げた場合のセルの性能に及ぼす影響も検討した。主な結果を以下に記す。

- (1) 燃料の改質反応は強い吸熱反応であり、反応速度も速いため、改質器入口付近で温度が急激に低下する。また、改質器内部の急激な温度低下により、セル内部で著しい温度勾配が生じる。電極、電解質材料にセラミックを用いる SOFC にとって急激な温度変化は、熱応力による破損につながり望ましくない。
- (2) 電圧降下の大部分は、カソード側の活性化分極および抵抗分極による。活性化分極は電極反応に起因する電圧降下であり、抵抗分極は電流が電極、電解質内部を流れることに起因する電圧降下である。
- (3) 改質器に充填された触媒の密度を下げることににより、改質反応の反応速度を遅くできるため、改質器入口付近で生じる急激な温度低下を小さくできる。また、改質器内部の

温度低下を小さくすることにより，セル内部で急激な温度勾配が生じるのを防ぎ，最高温度も下げることができる．触媒密度を下げてセル内部で生じる温度勾配を小さくすることは，セラミック材料を用いる SOFC にとって効果的であると考えられる．

文 献

- [1] 田川博章, 固体酸化物燃料電池と地球環境, アグネ承風社, 1998.
- [2] 燃料電池開発情報センター, 固体酸化物型燃料電池 (SOFC) のすべて, 1999.
- [3] U.S. Department of Energy, *Fuel Cell Handbook (Fifth Edition)*, Morgantown, WV, 2000.
- [4] Yamamoto, O., “Solid Oxide Fuel Cells: Fundamental Aspects and Prospects”, *Electrochimica Acta*, Vol.45, pp.2423–2435, 2000.
- [5] George, R. A., “Status of Tubular SOFC Field Unit Demonstrations”, *J. of Power Sources*, Vol.86, pp.134–139, 2000.
- [6] Haynes, C. and Wepfer, W. J., “ ‘Design for Power’ of a Commercial Grade Tubular Solid Oxide Fuel Cell”, *Energy Conversion and Management*, Vol.41, pp.1123–1139, 2000.
- [7] 久留長生, 池田浩二, 高塚汎, 森康, 岩本啓一, “円筒型 SOFC の開発状況”, 三菱重工技報, Vol.37, No.1, pp.30–33, 2000.
- [8] Hashimoto, N., “Global SOFC Activities and Evaluation Programmes”, *J. of Power Sources*, Vol.49, pp.103–114, 1994.
- [9] Hoogers, G., *Fuel Cell Technology Handbook*, CRC Press, Boca Raton, 2003.
- [10] Larminie, J. and Dicks, A., *Fuel Cell Systems Explained*, John Wiley and Sons, Chichester, 2000.
- [11] Tietz, F., Buchkremer, H. P. and Stöver, D., “Components Manufacturing for Solid Oxide Fuel Cells”, *Solid State Ionics*, Vol.152-153, pp.373–381, 2002.
- [12] Gardner, F. J., Day, M. J., Brandon, N. P., Pashley, M. N. and Cassidy, M., “SOFC Technology Development at Rolls-Royce”, *J. of Power Sources*, Vol.86, pp.122–129, 2000.

- [13] Hirschenhofer, J. H., Stauffer, D. B. and Engleman, R. R., *Fuel Cells A Handbook (Revision 3)*, U.S. Department of Energy, Morgantown, WV, 1994.
- [14] Badwal, S. P. S. and Foger, K., “Solid Oxide Electrolyte Fuel Cell Review”, *Ceramics International*, Vol.22, pp.257–265, 1996.
- [15] 高塚汎, 池田浩二, 武信弘一, 岩本啓一, 宮本均, “固体電解質型燃料電池発電技術の開発”, *三菱重工技報*, Vol.36, No.1, pp.34–37, 1999.
- [16] 電気学会編, 燃料電池発電, コロナ社, 1994.
- [17] Aguiar, P., Chadwick, D. and Kershenbaum, L., “Modelling of an Indirect Internal Reforming Solid Oxide Fuel Cell”, *Chem. Eng. Sci.*, Vol.57, pp.1665–1677, 2002.
- [18] Nagata, S., Momma, A., Kato, T. and Kasuga, Y., “Numerical Analysis of Output Characteristics of Tubular SOFC with Internal Reformer”, *J. of Power Sources*, Vol.101, pp.60–71, 2001.
- [19] Lee, A. L., Zabransky, R. F. and Huber, W. J., “Internal Reforming Development for Solid Oxide Fuel Cells”, *Ind. Eng. Chem. Res.*, Vol.29, pp.766–773, 1990.
- [20] Bird, R. B., Stewart, W. E. and Lightfoot, E. N., *Transport Phenomena*, John Wiley and Sons, New York, 1960.
- [21] Lee, D. Y. and Vafai, K., “Analytical Characterization and Conceptual Assessment of Solid and Fluid Temperature Differentials in Porous Media”, *Int. J. of Heat and Mass Transfer*, Vol.42, pp.423–435, 1999.
- [22] Achenbach, E., “Three-Dimensional and Time-Dependent Simulation of a Planar Solid Oxide Fuel Cell Stack”, *J. of Power Sources*, Vol.49, pp.333–348, 1994.
- [23] Kee, R. J., Rupley, F. M. and Miller, J. A., *Chemkin-II: A Fortran Chemical Kinetics Package for the Analysis of Gas Phase Chemical Kinetics*, Sandia Report, SAND89-8009B, 1991.
- [24] Kee, R. J., Dixon-Lewis, G., Warnatz, J., Coltrin, M. E. and Miller, J. A., *A Fortran Computer Code Package for the Evaluation of Gas-Phase Multicomponent Transport Properties*, Sandia Report, SAND86-8246, 1986.

第 7 章

結 論

本研究では、分散型エネルギーシステムの開発およびその高性能化の要請を受け、再生型蒸気噴射ガスタービンシステムおよび固体酸化物形燃料電池 (SOFC)・ガスタービン複合発電システム (以下、SOFC-GT 複合システムと記す) に着目し、従来型システムよりも高性能なシステム構成を提案し、性能解析を行った。システムの最適な作動条件を示し、また、エクセルギー解析に基づきシステム各構成要素のエクセルギー損失を評価することにより、本研究で考案したシステムが従来型システムに比べて高効率となる原因を示し、高性能エネルギーシステム構築のための指針及び性能限界を明らかにした。

また、小型ガスタービンや燃料電池・ガスタービン複合システムでは、主要要素である燃焼器、燃料電池のエクセルギー損失が支配的となることから、燃焼および SOFC における内部プロセスを解析し、要素内部で損失が生じる原因を示した。本解析では、内部プロセス解析と非平衡熱力学に基づいたエントロピー生成解析を組み合わせ、熱伝導、物質拡散、反応、電子、イオンの輸送の各プロセス単位で燃焼、SOFC 内部のエクセルギー損失を定量的に分析する手法を確立し、要素性能の高度化のための基本的指針を明らかにした。

さらに、SOFC 単セルに改質器を組み込ませた円筒型内部改質 SOFC について性能解析を行い、改質器の触媒密度を制御することで電極反応による発熱と改質反応による吸熱の熱需給の最適化を図るなど、高性能 SOFC の開発の可能性を示した。

得られた結果は各章の終わりでまとめているが、要約すると以下のとおりである。

第 2 章では、構成の異なった 2 種類の再生型蒸気噴射ガスタービンシステムの性能特性を示し、それらのシステムと再生型システム、水噴射型システムおよび STIG システムの性能を熱効率やエクセルギー評価により定量的に比較した。その結果、再生型蒸気噴射システムについて、以下の知見を得た。

- (1) 再生型蒸気噴射ガスタービンシステムは、排熱ボイラでの蒸気の生成により、排ガスのエクセルギーの回収を容易にし、再生熱交換器での熱回収も比較的容易であるため、再生型システムよりも効率は改善される。また、再生型蒸気噴射システムは、作業流

体中に蒸気が混入するため，再生型に比べて空気比が小さくなり，それにより比出力が大きくなる．

- (2) 水噴射ガスタービンシステムに比べて，再生型蒸気噴射ガスタービンシステムの熱効率は高くなる．水噴射システム II 型は，熱交換器内で水が蒸発し，温度差の大きい熱交換を行うため，エクセルギー損失が大きくなるが，再生型蒸気噴射システムは，蒸気発生および再生熱交換器で温度差の少ない熱交換が可能となり，比較的エクセルギー損失が小さくなることが原因である．
- (3) 従来型の再生熱交換器を持たない STIG システムに比べて，再生型蒸気噴射システムは蒸気流量が少なく，排熱ボイラで温度差の小さい熱回収を行うため，熱効率は高くなり，効率が最大となる最適圧力比は低くなる．また，蒸気を圧縮機出口に噴射する再生型蒸気噴射 II 型は，蒸気を燃焼器に噴射する I 型よりも熱効率は高くなる．その原因は再生器で蒸気による熱回収を行い，システムに供給する蒸気流量を少なくすることにより，排熱ボイラ内で温度差の小さい熱交換を可能にし，潜熱による損失を小さくできるためである．さらに，II 型には I 型よりも低圧力比で最高効率を得る特性がある．
- (4) 再生型蒸気噴射システムは，熱電可変システムとして，熱と電力の出力割合を変えて併給することが可能となり，熱負荷最大時には，システム総合効率は 70% (HHV) を上回る．電力として得られる比率は，STIG システムより多くできる．

第 3 章では，SOFC-GT 複合システムにおいて高性能化を図るために多段型複合方式を提案し，その提案システムおよび従来から検討されているシステムの性能を定量的に評価，比較した．その結果，以下の知見を得た．

- (1) 標準型，内部熱回収型，多段型のいずれのシステムも低圧力比で高効率となる傾向がある．また，標準型および多段型システムは，タービン入口温度 (TIT) や圧力比の条件に応じて，アフターバーナへ追い炊き燃料を供給し，燃料，空気の予熱をアフターバーナ内の燃焼ガスを用いて行う必要がある．多段型は，圧力比の低い領域で追い炊き燃料が不要である．
- (2) SOFC-GT 複合システムの主反応器である SOFC のエクセルギー損失は，従来のガスタービンシステムにおける燃焼器のエクセルギー損失よりも大幅に小さくなる．SOFC-GT 複合システムが従来のガスタービンよりも高効率となるのは，主反応器のエクセルギー損失が小さいことによる．
- (3) 標準型の効率が低くなる原因は，アフターバーナにおけるエクセルギー損失が大きいことによる．多段型や内部熱回収型にシステムの構成を改善することにより燃料および空気の利用率は向上し，アフターバーナでの損失および排ガスによる損失を小さく

できる．

- (4) 本章で提案した 3 段型 (1 段目蒸気投入方式) SOFC-GT 複合システムの熱効率は，内部熱回収型よりも高く，70% (HHV) を超える．

第 4 章では，素反応および多成分拡散を考慮した層流予混合，拡散火炎を対象として，粘性消散，熱伝導，物質拡散，反応の各過程に起因するエントロピー生成およびエクセルギー損失を定量的に解析した．それにより，燃焼のエクセルギー損失に寄与する過程を特定し，またその特性が火炎の構造やパラメータによって異なることを明らかにした．得られた知見を以下に記す．

- (1) 予混合火炎では，反応に起因するエントロピー生成が支配的となる．全エントロピー生成量に対する反応に起因する生成量の割合は，メタン燃料の場合よりも水素燃料の場合のほうが大きくなる．また，燃料のエクセルギーのうち，水素燃料の場合 20.0%，メタン燃料の場合 27.5%が燃焼過程で損失し，その 90%以上が反応および熱伝導に起因する．
- (2) 当量比を減少させることにより火炎温度が低くなるため，反応および熱伝導に起因するエントロピー生成量が増大し，それにより全エントロピー生成量も増加する．各過程によるエントロピー生成の内訳は，当量比を減少させてもほぼ同じである．
- (3) 流体の流入温度を上昇させることにより，熱伝導に起因するエントロピー生成量が大幅に少なくなり，それにより全エントロピー生成量も減少する．熱伝導によるエントロピー生成量が減少するため，全エントロピー生成量に対する反応に起因する生成量の割合は大きくなる．
- (4) 拡散火炎では，熱伝導に起因するエントロピー生成が支配的となり，反応によるエントロピー生成の割合は予混合火炎の場合に比べて小さくなる．これは，予混合火炎の場合は比較的温度の低い領域でも反応が起こるのに対し，拡散火炎の場合は温度がピークに達する領域で主要な反応が起こるためである．物質拡散によるエントロピー生成量は，反応による生成量と同程度である．

第 5 章では，SOFC の電極，電解質内部におけるプロセスの解析を行うことにより，温度分布およびガス成分の濃度分布を求め，また，作動条件がセルの性能に及ぼす影響を示した．さらに，内部プロセスに起因するエントロピー生成を解析することにより，電極，電解質でエクセルギーが損失する原因を明らかにした．主な結果を以下に記す．

- (1) 電極，電解質内における温度変化は小さく，内部プロセスが温度分布に及ぼす影響は小さい．また，電極内部のガスの濃度変化は，電極の厚さやガスの拡散係数によって影響を受け，カソードの厚みが大い場合では，酸素濃度の変化が大きくなる傾向が

ある．

- (2) 温度，圧力の上昇とともにセルの実用効率は向上する．また，水素，酸素濃度の増加により熱効率は上昇する．カソード側の酸素濃度が大幅に減少すると，一定の電流密度を維持してセルを作動させることができなくなる．電流密度はカソード内の酸素の濃度差に影響を受け，限界電流密度は，酸素濃度の低下とともに減少する．
- (3) 電極，電解質内部におけるエクセルギー損失の大部分は，電極・電解質界面における電極反応の損失によって占められる．中でもカソード・電解質界面での反応に起因するエクセルギー損失が最も大きくなる．電極では物質拡散に起因する損失，電解質ではジュール発熱に起因する損失が支配的であるが，電極反応による損失に比べると小さく，熱伝導や粘性消散による損失は無視できるほど小さくなる．

第 6 章では，円筒型内部改質 SOFC を対象として，熱，物質，イオン，電子の移動および改質，電極反応過程を解析し，セル内部の温度，濃度，電位，電流密度分布を明らかにした．また，改質器の触媒密度を下げた場合のセルの性能に及ぼす影響も検討した．主な結果を以下に記す．

- (1) 燃料の改質反応は強い吸熱反応であり，反応速度も速いため，改質器入口付近で温度が急激に低下する．また，改質器内部の急激な温度低下により，セル内部で著しい温度勾配が生じる．電極，電解質材料にセラミックを用いる SOFC にとって急激な温度変化は，熱応力による破損につながり望ましくない．
- (2) 電圧降下の大部分は，カソード側の活性化分極および抵抗分極による．活性化分極は電極反応に起因する電圧降下であり，抵抗分極は電流が電極，電解質内部を流れることに起因する電圧降下である．
- (3) 改質器に充填された触媒の密度を下げることににより，改質反応の反応速度を遅くできるため，改質器入口付近で生じる急激な温度低下を小さくできる．また，改質器内部の温度低下を小さくすることにより，セル内部で急激な温度勾配が生じるのを防ぎ，最高温度も下げることができる．触媒密度を下げてセル内部で生じる温度勾配を小さくすることは，セラミック材料を用いる SOFC にとって効果的であると考えられる．

謝 辞

本研究は、大阪大学大学院工学研究科機械物理工学専攻 エネルギー工学講座熱工学領域在学中に行ったものです。その間、終始一貫して懇切丁寧なる御指導、御鞭撻を賜ったこと、本論文を執筆するに際して綿密な校閲を賜りましたことに対し、本講座 高城敏美 教授に深い敬意と心からの感謝の意を表します。また、本論文をまとめるに際し、御校閲と御指導を賜りました大阪大学 香月正司 教授、片岡 勲 教授に心より感謝の意を表します。

本研究を遂行するにあたり貴重な御意見、御協力を賜りました本講座 岡本達幸 助教授、小宮山正治 講師、木下進一 助手に心より感謝致します。

燃料電池・ガスタービン複合システムの性能解析を行うにあたり、有益な御意見、御討議を賜りました三菱重工業 辻正 氏、燃料電池の数値解析を行うにあたり御協力を賜りました本講座 山田大円、吉積尚志、久保真徳 諸氏に深く感謝します。また、所属する研究室の皆様の多大なる御協力のもとに研究を進めることができましたことに感謝致します。

最後に、本研究の一部は、独立行政法人科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業 (CREST) の一環として行われた研究であることを記し、謝意を表します。