行政院原子能委員會 委託研究計畫研究報告

固態氧化物燃料電池(SOFC)膜電極組(MEA)特性模擬及數值分析工具之 開發

The development of numerical simulation tool to simulate the performance of membrane-electrolyte-Assembly (MEA) in solid oxide fuel cell (SOFC)

計畫編號:992001INER045

受委託機關(構):國立臺南大學綠色能源科技學系

計畫主持人:郭振坤

核研所聯絡人員:柳輝忠

聯絡電話:06-2605021

E-mail address: jenn.kun@gmail.com

報告日期:99 年12 月

目 錄

目	釒	錄								• • •														 	 	 	 	 		I
中	文扌																													
英	文扌	商要	<u>.</u>			•																• • •		 	 	 ••	 ••	 	ΙI	Ι
	壹	、計	- 畫	絲	東走	巴.	與	目	的	١.														 	 	 	 	 		1
	_	- 、	前	1	<u>-</u>																• • •			 	 	 	 	 		1
	貳	、研	F 究	フ	5 %	去	與:	過	程															 	 	 	 	 		3
	-	- 、	矷	F3	ย	方	法((M	lat	he	ma	ati	ica	ı 1	mo	ode	el)) .						 	 	 	 	 		3
	_	_ 、	基	1	~ 1	段	設																	 	 	 	 	 		5
	3	٤,	紡	往	甲ラ	方	程.	式																 	 	 	 	 		5
	P	四、	邊	7	入作	条	件																	 	 	 	 	 		8
	參	、主	要	多	Ķ Į	見	與、	結	論															 	 	 	 	 	. 1	0
	_	- 、	室	泉	[]	質	量	分	率	在	流	道	板	至	法游	道	間	分	佈	比	較			 	 	 	 · • •	 	. 1	1
		_ \	氧	泉	ίż	農	度	在	流	道	板	至	流	莲	間	目的	分	併	比	較				 	 	 	 · • •	 	. 1	2
	3	٤,	不	F] 1	電	位	的	影	響	•													 	 	 	 · • •	 	. 1	3
	P	四、	不	F	月子	l	隙	率	之	影	響	·												 	 	 	 · • •	 	. 1	4
	Ĩ	丘、	絽	訴	前																			 	 	 	 	 	. 1	5
	肆	、參	去	- 3	 厚	計								_	_								_						. 1	7

中文摘要

本研究主要目的是進行固態氧化物燃料電池(Solid Oxide Fuel Cell, SOFC)膜電極組(Membrane Electrode Assembly, MEA)之研究,以物理耦合軟體COMSOL Multiphysics作為分析工具,並提出合理可行之設計、分析方法與數值分析,探討對固態氧化物燃料電池效能之影響。因固態氧化物燃料電池膜電極組之孔隙率為電池效能優劣之關鍵性技術,孔隙直徑(Pore size)對質子傳遞及MEA電性有一定的影響,本研究利用電極支撐(陽極支撐層)設計取代原有的電解質(Yttria Stabilized Zirconia, YSZ)支撐設計,如此電解質隔膜可以形成薄膜化,以降低歐姆電阻增加功率密度,並探討不同流場型態(逆向流與同向流)對其內部之質傳現象及SOFC效能的影響。分析結果顯示,流場型態為同向流的SOFC整體電池效能較逆向流優異。在孔隙率(Porosity)分析方面,當孔隙率等於0.7與孔隙撓曲度等於4.5的比值,所達到的功率密度為最大值,可有效提升電池效能。

關鍵詞:固態氧化物燃料電池、膜電極組、陽極支撐層、電解質、孔隙率

英文摘要

This study focuses on the research of solid oxide material in solid oxide fuel cell (SOFC) and proposes reasonably practical designs, analyses, and numerical analyses with coupling software in physics, COMSOL Multiphysics, as the analysis tool to discuss the effects on the SOFC performance. This research applies the design of electrode support (anode support) to substitute the original electrolyte support, Yttria Stabilized Zirconia (YSZ), so that the electrolyte membrane could form a membrane to reduce ohmic resistance and increase power density. This study further discusses the effects of various flow fields (counter-flow and co-flow) on internal mass transfer and SOFC performance. The findings show that the cell performance of SOFC with co-flow is better than counterpart with counter-flow. Regarding the analyses of porosity effect with the porosity 0.7 and tortuosity 4.5, the power density reaches the maximum that could enhance the cell performance.

Keywords: SOFC, numerical, mass transfer, electrolyte, porosity, tortuosity

壹、計畫緣起與目的

一、前言

近年來由於經濟的發展以及人口的增加對於能源的需求大量的增加,使得化石燃料的使用更加的頻繁,燃燒化石燃料會造成環境的污染、氣候的變遷,而且它屬於有限的資源。嚴重的環境汙染問題和初級能源價格的攀升,使得世界各地對再生能源的技術更加的重視。而這些新能源的技術要能馬上達到符合經濟效益是有困難的,許多研究專家建議需要找到更好的能源轉換方法和效率才能有效的利用能源。

固態氧化物燃料電池 (Solid Oxide Fuel Cell, SOFC) 是一種高溫燃料電池,是現今所有燃料電池中發電效率最高的。其所使用的燃料種類也最多,可採用氫氣或是碳氫化合物當作燃料。除了具備一般燃料電池低污染、高效率等優點。固態氧化物燃料電池採用固態電解質做為材料,目前普遍使用的是氧化 紅穩定氧化 鋯 (Yttria-stablized zirconia,稱為YSZ),由於YSZ在高溫才有明顯的離子導電度,因此必須在高溫下操作。在高溫條件下操作才可使固態氧化物燃料電池有較大的效率,但是高溫的條件也同時限制了材料的選用,而且電解質部分為陶瓷材料,材料膨脹係數不同容易形成內應力,所以升溫緩慢需要較長的時間啟動。固態氧化物燃料電池的電解質主要作用是在陰極與陽極之間傳遞氧離子和有效隔離燃料及氧化劑,因此需要有足夠的化學穩定性、高度的執點子導電度,與其它電池組件有良好的化學相容性,電解質的熱膨脹係數與其它電池材料在室溫至操作溫度的範圍內相匹配,避免形成內應力等條件。

氧化釔穩定氧化鋯(Yttria-stabilized zirconia, YSZ)為一般最常用於高溫固態氧化物的固態電解質,為非固有缺陷體,具有

優越的化學穩定性、熱穩定性與合理的導電度。YSZ是由氧化 鋯(ZrO₂)添加少量的氧化釔(Y₂O₃)所形成,在形成的過程中為了 平衡 釔離子(+3)和 鋯離子(+4)的 電價 數 而 達到 電中性,在 YSZ 裡 會形成氧離子空洞(oxygen vacancy)。氧離子便是藉這些空洞進 行傳導的動作。由於 YSZ 在低溫的離子導電度較低,因此為了 得到有商業意義的傳出功率密度,必須在高溫的狀態下操作, 然而過高的溫度會引起電池內部的互相作用,降低電池的穩定 性。由於固態氧化物燃料電池(Solid Oxide Fuel Cell, SOFC)是一 種將碳氫化合物的化學反應能通過電化學反應轉換成電能的最 有效裝置。因此,在應用上有相當的吸引力與研究空間。1994年, 平板式 SOFC 的數學模型以 Achenbach[1]典型的物理模型。此文獻探討 在不同流場型態下 SOFC 進行熱流及電流分佈數值模擬,同時計算 SOFC 暫態反應時,電池內部溫度分佈情形。文獻結果顯示,於內重組反應會 吸收大量熱量,逆向流 (Counter-flow)的設計使得電池內部溫度梯度最 大。向流 (Co-flow) 電流密度分佈最均匀,而整體電池效率則以逆向流 最好。1995年,Achenbach [2]針對 SOFC 暫態行為進行理論分析,並針 對工程應用的需求,提出一個簡單的經驗式來預測 SOFC 到達穩態所需 時間。

文獻結果顯示SOFC 到達穩態的時間和材料熱性質、流場結構、以及操作條件相關密切。1995年,由Brinkman[3]等人探討在1759K及2057K 兩個不同溫度下,對氧離子傳導性的影響。先求出離子的平均平方位移 (Mean Square Displacement, MSD),然後再帶入Nernst-Einstein relation,即可求得離子的傳導性。目前普遍採用此關係式求取離子的傳導性。1999~2004年,Yakabe [4-6]等人利用套裝軟體ABAQUS和STAR-CD 進行一

系列平板式SOFC 數值模擬的分析。

這些文獻結果顯示,內重組反應在陽極靠近燃料入口端大量吸收熱能,造成此區域溫度會低於入口溫度,隨後又因為電化學反應放熱而升溫,此溫度升降過程會造成電解質承受極大的熱應力,而導致電解質材料被破壞。並且發現水氣轉移反應有助於降低電池內部的濃度極化現象,而雙極板設計亦會影響歐姆極化及濃度極化。2003年,Suwanwarangkul[7]等人以數值模擬的方式進行Dusty-Gas、Fick's、Maxwell-Stefan 三種濃度極化模式進行數值計算,並將分析結果和實驗結果進行比較。比較結果分析Dusty-Gas模式最佳,Fick's 模式居次,Maxwell-Stefan則最差。但Dusty-Gas模式需要使用數值分析方法求解,比另外兩種模式複雜,所以目前大多研究使用Fick's模式計算濃度極化。2003年,Ackmann[8]等人利用計算流體力學(CFD)的Fluent 進行SOFC 的數值模擬,比較陽極支撐層、陰極支撐層SOFC內部的電流、溫度、反應氣體濃度的分佈。文獻結果顯示,在相同的操作條件下,陽極支撐層SOFC有較高的平均電流密度,而陰極支撐層SOFC,因為氧氣有擴散限制,而導致在流道肋條下方,氧氣含量較不足。

貳、研究方法與過程

一、研究方法(Mathematical model)

固態氧化物燃料電池(SOFC)是利用電化學反應將化學能轉化為電能的發電裝置。

操作原理即是將氧氣通往陰極(空氣電極)且同時被催化為氧離子, 此時的氧離子會經由固態電解質傳遞到陽極(燃料電極),而陽極端則 通入燃料氣體,如氫氣(Hydrogen)、甲烷(Methane)及厭氧消化氣等 碳氫化合物,因氧氣在陰極端因電化學作用解離成氧離(O₂),然後經 由電解質內的氧空缺傳遞到陽極,與燃料氣體反應生成水或CO₂。氧氣在 陰極端因電化學作用解離成氧離子,氧離子在電解質兩側的電位差和濃度差驅動力的作用下,透過電解質中的氧空位傳遞到陽極,與燃料發生氧化反應。在此反應過程中陽極與陰極開始有電位差產生,造成電子流動,如同電池的作用。進行電化學反應產生電能與水。正如燃料(陽極)及氧化劑(陰極)分別通入氫氣與氧氣在三相介面共存的區域上發生電化學反應。

當使用氫氣當作燃料,陽極電化學半反應式如下:

$$H_2 + O_{2-} \rightarrow H_2O + 2e-$$
 (1)

陰極電化學半反應式:

$$O_2 + 4e \longrightarrow 2O_2 \tag{2}$$

電化學總反應式:

$$2H_2 + O_2 \rightarrow 2H_2O \tag{3}$$

本研究以固態氧化物燃料電池的膜電極組為核心,在不同陽極電極的支撐層厚度下,質量傳遞及電流密度分佈情形。選取固態氧化物燃料電池單電池作為本研究的模型,此模型包含空氣電極(陰極)、固態電解質、以及燃料電極(陽極)三合一結構的PEN板(膜電極組),陽極及陰極氣體流道,兩端進氣方向可設定為逆向流或同向流,陽極入口燃料為氫氣,陰極入口燃料為氧氣,以及雙極連接板(Interconnect),如圖1所示。

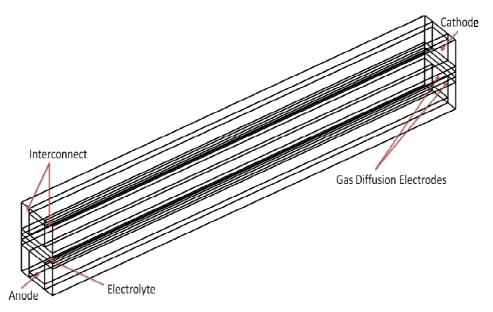


圖1. 固態氧化物燃料電池物理模型圖

模型中,陽極在下層,陰極在上層,氧氣由上層流道入口輸入,經由對流及擴散作用,氣體進入氣體流道板及觸媒層發生電化學反應產生氧離子(O₂-),經由電解質導入陽極,剩餘氣體從出口流出。

二、基本假設

本研究模擬的為固態氧化物燃料電池膜電極組,探討在不同陽極的支撐層厚度下,對質量傳遞、電流密度分佈情形的影響,因此在進行數值模擬前,為了簡化方程式的困難性,針對模型做了以下的假設:

- 1. 所有的氣體混合物均視為理想氣體(Ideal gases)。
- 2. 氣體的流動機制為層流(Laminar flow),並且不可壓縮 (Incompressible)。
- 3. 所有的流道板、觸媒層皆為均匀的材質且具等向性。

三、統御方程式

(一)、 統御方程式

本研究使用電量守恆、質量守恆、動量守恆及濃度守恆方程式來描述 固態氧化物燃料電池中所發生的物理現象。燃料電池電量守恆發生在包 括電解質、觸媒層及氣體流道在內固體部分。其中觸媒層包括了離子導 體(電解質)與電子導體(觸媒)等兩種固態材料,而電解質與氣體流 道板分別僅含離子導體與電子導體成分。導入歐姆定律(Ohm's law), 在YSZ隔膜與氣體流道板內電量平衡可以分別寫成以下方程式:

$$\nabla \cdot \left(-\sigma_1 \nabla \phi_{electronic} \right) = 0 \tag{4}$$

$$\nabla \cdot \left(-\sigma_2 \nabla \phi_{ionic} \right) = 0 \tag{5}$$

其中, σ_1 與 σ_2 分別為導電子度與導離子度, $\phi_{electronic}$ 與 ϕ_{ionic} 則分別為電子相電位能與離子相電位能。

陽極和陰極的氣體擴散電極(簡稱 GDE, Gas diffusion electrodes),在陽極,電流是從燃料電極至電解質,在陰極則是從電解質流到空氣電極。 導入歐姆定律氣體擴散電極層的電荷守恆方程式可以表示為:

$$\nabla \cdot \left(-\sigma_{electronic,eff} \nabla \phi_{electronic} \right) = S_a i_{ct} \tag{6}$$

$$\nabla \cdot \left(-\sigma_{ion,eff} \nabla \phi_{ionic} \right) = S_a i_{ct} \tag{7}$$

其中, $\sigma_{electronic,eff}$ 與 $\sigma_{ion,eff}$ 分別為有效導電子率與等效導離子率, S_a 為體表面積(Specific surface area), i_{cr} 為局部移轉電流。

將電極上電化學與各成份的輸送現象以 Bulter-Volmer 方程式來描述:

$$i_{a,ct} = i_{0,ct} \chi_{H_2} \frac{c_t}{c_{H_2,ct}} \left[\exp\left(\frac{0.5F}{RT}\eta\right) - \exp\left(\frac{-0.5F}{RT}\eta\right) \right]$$

$$\tag{8}$$

$$i_{c,ct} = i_{0,c} \left[\exp\left(\frac{0.5F}{RT}\eta\right) - x_{O_2} \frac{c_i}{c_{O_{xrf}}} \exp\left(\frac{-0.5F}{RT}\eta\right) \right]$$

$$(9)$$

其中, $i_{a,ct}$ 、 $i_{c,ct}$ 分別為陽極及陰極的局部移轉電流, $i_{0,a}$ 、 $i_{0,c}$ 分別為陽極及陰極的交換電流密度, x_{H_2} 、 x_{O_2} 分別為氫氣及氧氣的質量分率, c_t 為體積其工濃度,F為 Faraday's constant,R 為氣體常數,T 為溫度。

(二)、質量守恆方程式

流體流經多孔性電極和氣體流道的質量守恆方程式又稱作連續方程式 (Continuity equation):

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon \rho) + \nabla \cdot (\varepsilon \rho \mathbf{u}) = S_m \tag{10}$$

其中, ρ 與 u 分別為流體平均密度與速度(向量)。除了觸媒層之外,源項 S_m 在其餘子區域則皆為零。上式中將多孔介質之孔隙率 ε 納入方程式內主要是為了要能夠適用包括氣體流道板與觸媒層的多孔區域,每一個子區域設定適當的孔隙率則此方程式可以適用於全區域燃料電池。

(三)、動量守恆方程式

流體流經氣體流道的動量守恆方程式表示為:

$$\rho(\mathbf{u} \cdot \nabla)\mathbf{u} = -\nabla P + \mu \nabla^2 u + \frac{2}{3}\mu \nabla(\nabla \cdot u)$$
(11)

$$\nabla(\rho u) = 0 \tag{12}$$

其中,P為壓力,U為動力黏滯係數。

流體流經多孔氣體擴散電極的動量守恆方程式表示為:

$$\left(\frac{\mu}{\kappa} + Q\right)\mathbf{u} = -\nabla P + \frac{\mu}{\varepsilon}\nabla^2 u + \frac{2}{3}\mu\nabla(\nabla \cdot u) \tag{13}$$

$$\nabla(\rho u) = Q \tag{14}$$

 ε 為多孔介質之孔隙率(Porosity),代表在多孔性的介質中孔隙的體積與整個容積之比值。源項 Q 是氣體因電化學反應而消耗或產生的量。

$$Q = \sum_{i} S_a \frac{i_{ct,i} M_i}{n_i F} \tag{15}$$

其中, $i_{ct,i}$ 為氣體成份 i 的局部移轉電流, n_i 為電子反應數目。氣體流道板與觸媒層屬於多孔介質,因此使用 Brinkman 方程式是比較適合,因為 Brinkman 方程式的來源項(Source term)可以用 Darcy's law,而且 Darcy's law 也是描述在多孔電極內的動量平衡。

$$\mathbf{u} = -\frac{\kappa}{\mu} \nabla P \tag{16}$$

K則為多孔介質的滲透率 (Permeability),代表多孔性介質在單位體

積裡所占的孔隙體積。而當 K 值很大時,達西黏滯力可以忽略,而使得整個方程式呈現 Navier-Stokes 方程式的型態。

(四)、濃度守恆方程式

本研究在陽極有兩種氣體成份為氫 (H_2) 、水 (H_2O) ,在陰極有三種氣體成份為氧 (O_2) 、水 (H_2O) 、氮 (N_2) ,各氣體成份的濃度守恆定律可用 Maxwell-Stefan 方程式來表示:

$$\nabla \cdot \left[w_i \rho \iota - \rho w_i \sum_{j=1}^k D_{ij} \left\{ \frac{M}{M_j} \left(\nabla w_j + w_j \frac{\nabla M}{M} \right) + \left(x_j - w_j \right) \frac{\nabla P}{P} \right\} \right] = S_i$$
(17)

四、邊界條件

本研究針對固態氧化物燃料電池單電池模型的邊界條件,主要包括空氣電極(陰極)、固態電解質(YSZ隔膜)、以及燃料電極(陽極)三合一結構的PEN板(膜電極組),陽極及陰極氣體流道,以及雙極連接板。

(一)、氣體擴散電極層 (Gas diffusion electrodes)

本研究在燃料電極(陽極)的入口端及連接板設定電位為零(Ground) 其邊界條件(Boundary condition)如下:

$$\phi_{electronic} = 0 \tag{18}$$

而空氣電極(陰極)的入口端及連接板的則設定一個電位其邊界條件 如下:

$$\phi_{electronic} = V_{cell}$$
 (19)

此電壓定義為開路電壓 (Operating cell voltage),其餘的邊界無電流通過設定為電絕緣,其邊界條件如下:

$$\mathbf{n} \cdot (-\sigma_{electronic} \nabla \phi_{electronic}) = 0 \tag{20}$$

(二)、固態電解質(YSZ隔膜)

本研究針對離子電流平衡方程式部分,氧離子在燃料/空氣電極層和 電解質表面間傳遞。其餘所有固態電解質外表面的設定為離子的絕緣 體,其邊界條件如下:

$$\mathbf{n} \cdot (-\sigma_{ion} \nabla \phi_{ionic}) = 0 \tag{21}$$

(三)、陽極及陰極氣體流道

本研究在質量與濃度平衡方程式的邊界條件也是考慮電極所包含的 區域,除了設定入、出口端的通有質量分率,其餘的邊界皆設定為隔離 (Insulation)條件,其邊界條件如下:

$$\mathbf{n}_{i} \cdot \left(-\sigma D_{ij} \nabla w_{i} + \rho \mathbf{u} w_{i} \right) = 0 \tag{22}$$

入口端的邊界條件則是設定氣體質量分率表示如下:

$$w_i = w_{i,0}$$
 (23)

在出口端設定的邊界條件如下:

$$\mathbf{n}_{i} \cdot \left(-\sigma D_{ij} \nabla w_{i}\right) = 0 \tag{24}$$

至於動量平衡方程式的邊界條件設定,除了入、出口邊界條件之外, 其餘之邊界皆設定為無滑動條件(No-slip),其邊界條件表示為:

$$\mathbf{n}_{i} \cdot \left(-\sigma D_{ij} \nabla w_{i} + \rho u w_{i}\right) = 0 \tag{25}$$

氣體流道入口端的壓力邊界條件為:

$$P = P_{atm} + dP \tag{26}$$

而氣體流道出口端的壓力邊界條件則表示為:

$$P = P_{atm} (27)$$

參、主要發現與結論

本研究主要目的在於探討固態氧化物燃料電池膜電極組對固態氧化物燃料電池效能之影響,設定流場型態為逆向流(Counter-flow)與同向流(Co-flow),調整之參數為陽極支撐層厚度、電位、孔隙率,探討在不同電壓、濃度變化對固態氧化物燃料電池的質傳效應、電流密度分佈、I-V 曲線及 Power Density 的影響情形。最後將數值模擬出來的結果,進行特性分析並比較。

逆向流與同向流

流道的設計對燃料電池的性能影響是非常大的,除了流道的形狀很重要之外,本研究將討論氣體流向對固態氧化物燃料電池效能的影響。為固態氧化物燃料電池的不同流場型態示意圖,將電池模組設定為逆向流與同向流,逆向流是陽極的氫氣與陰極的空氣為相反之流向;反之同向流的流向則是為相同的。

對氫氣質量分率的影響

圖 2 為逆向流和同向流的流場氫氣質量分率比較,從圖中可以發現,同向流的氫氣質量分率大約在 $L_{channel} = 0.005m$ (X=0.005m) 氣體會均勻分佈在氣體擴散電極,且有助於電化學反應在觸媒層上;而逆向流的氫氣質量分率則是在流道間有較大的濃度變化,對觸媒層的電化學反應較同向流來得差。

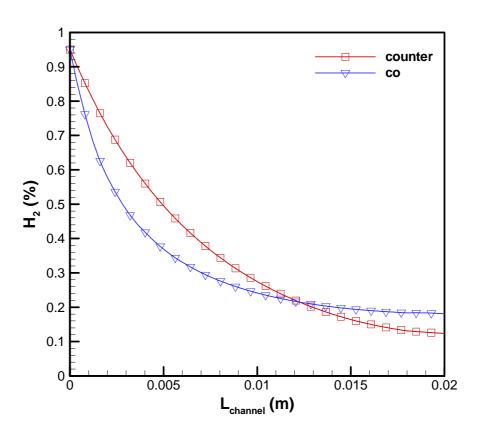


圖 2 逆向流與同向流對氫氣質量分率影響分佈圖

一、氫氣質量分率在流道板至流道間分佈比較

不同陽極支撐層厚度 (Ni/YSZ) 的固態氧化物燃料電池陽極之氫 氣濃度分佈情形。氫氣是從流道逐漸擴散至氣體擴散電極以進行反應。 從圖中可以發現,氫氣會因為電化學反應而消耗,而氫氣的濃度分佈會 隨著氫氣在流道的行進方向逐漸減少,這是因為氫氣會不斷地進行電化 學反應,造成氫氣消耗的影響所致。圖 3 是流場型態為同向流的不同陽 極支撐層厚度比較圖,從圖中可以發現,氫氣在接近流道出口的方向會 呈現谷峰波的曲線。

因為氫氣在進行電化學反應時,會有未反應殘留的氣體分佈在流道 內,且往出口方向流動;而操作的電壓越高,氫氣在觸媒層的電化學反 應就越差,在流道中殘留的氣體也就越多,在流道出入口處由於有壓力 差的影響,所以在出口方向會出現波峰狀的曲線。

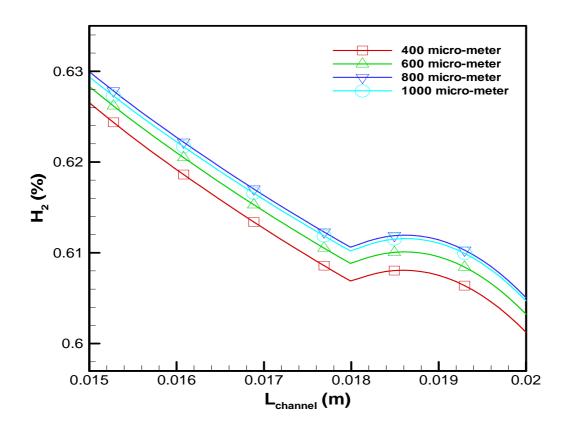


圖 3 不同陽極支撐層厚度氫氣濃度分佈分佈圖

二、氧氟濃度在流道板至流道間的分佈比較

圖4為不同流場型態的氧氣質量分率在陰極多孔電極及流道間(Air channel)的分佈情形。與氫氣一樣,氧氣進入流道後便開始進行電化學反應,也會隨著電化學反應被消耗,而氧氣的濃度分佈會沿著氧氣行進方向逐漸減少。從圖中可以明顯發現,氧氣是從流道擴散至氣體擴散電極,然後抵達觸媒層進行反應,越靠近觸媒層,氧氣濃度就越低。

本研究並無探討改變陰極支撐層厚度對SOFC效能影響,而SOFC陰極的 氧氣輸送機制與質量傳輸有關。從SOFC原理得知,氧氣電化學反應產生 氧離子(O²-)傳遞經由電解質至陽極導入三相介面反應產生電流密度, 所以氧氣濃度分佈不能太差,要改善濃度分佈、電流密度分佈的不足, 就要提高氧氣流量來提升氧氣的質量傳輸。

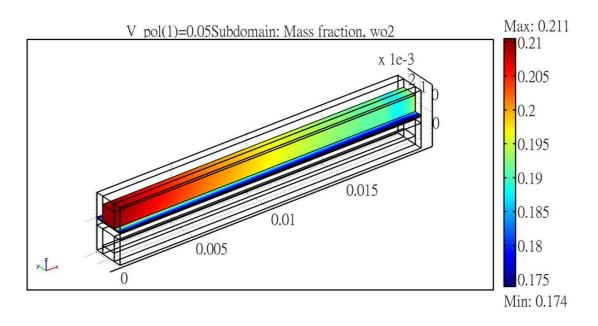


圖 4 氧氣濃度分佈在陰極流道間分佈狀態圖

三、不同電位的影響

SOFC設計中,最重要的是PEN板中的電壓和電流密度分佈。由上節得知,不同陽極支撐層厚度對氫氣濃度分佈有一定的關聯性,本節將探討不同電壓對反應物質量分率的消耗,來得知反應物的消耗量對電流密度及SOFC效能的影響。

不同電壓對氫氣質量分率的影響,輸出操作電壓分別為0.95V、0.7V 及0.5V時對氫氣質量分率的影響,藉此探討在不同電壓下,氫氣質量分 率在流道間分佈及電流密度分佈圖。圖5為不同操作電壓對氫氣質量分率 消耗之分佈圖。從圖中可以明顯地發現,操作電壓輸出在0.95V時,電化 學反應較為和緩,所以進出口的氫氣濃度不會相差很多。當操作電壓輸 出在0.5V時,由於電化學反應劇烈,氫氣的消耗量最多,所以SOFC電流 密度在這三種電壓比較中,可以達到較好的數值。

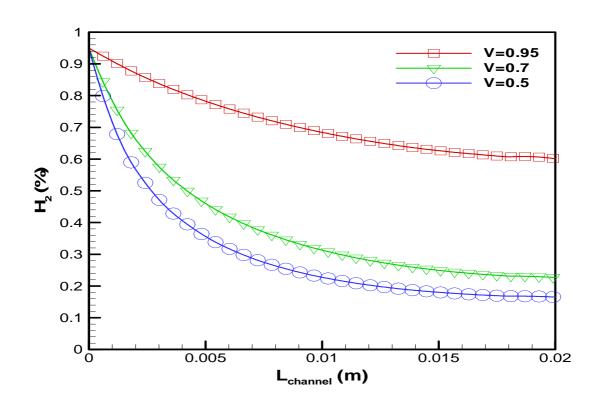


圖 5 不同電壓下對氫氣質量分率消耗之分佈圖

四、不同孔隙率之影響

本研究針對SOFC膜電極組內部材料之多孔性質,如孔隙率(Porosity, ε) 及孔隙撓曲度 (Tortuosity, τ)。燃料電池的電極與觸媒層必須有相當程度的孔隙率,使得空孔須串連起來讓反應氣體能夠在電極內部游動。在本研究的孔隙率分別取0.3、0.5、0.7及孔隙撓曲度為4.5,分析對SOFC效能影響。如圖6為不同孔隙率對SOFC的I-V曲線及功率密度的影響,綜合以上所有曲線圖來探討,結果發現較大之孔隙率與孔隙撓曲度的比值,可有效提升燃料電池效率。高孔隙率表示多孔介質內部空孔可以有效地連貫而讓氣體暢行無阻通過。在三種不同孔隙率的比較分析得知,當孔隙率等於0.7時,比較其他孔隙率與孔隙撓曲度的比值,電流密度能有較好的分佈,而在功率密度方面,輸出電壓在0.6V時,對SOFC輸出功率能達到最好的效能。

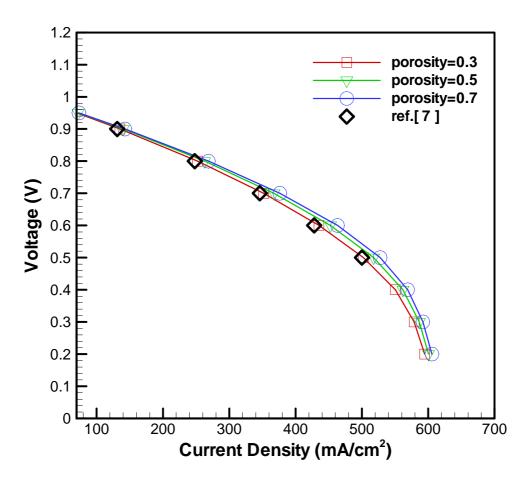


圖 6 不同孔隙率之影響對 SOFC I-V 曲線比較圖

五、結論

本研究主要探討對SOFC膜電極組質傳現象及電池整體性能之影響。 主要結論如下所述:

- 1. 在不同流場型態分析結果顯示,同向流的氫氣質量分率能夠均勻分佈 在膜電極組,使得同向流整體性能表現較逆向流來得優異。
- 2. 在不同電位的影響方面,同向流在輸出操作電壓為 0.6V 時,可以得 到最佳的功率密度。
- 3. 濃度分析結果顯示,陰極流道中,提供的氧氣越多,越能使流道中擁有高濃度的氧氣,將會有更多的氧氣被送達到觸媒層,有利於提高觸媒層表面的氧氣濃度,進而提高 SOFC 效能。

4. 不同孔隙率的分析結果顯示,結果發現較大之孔隙率與孔隙撓曲度的 比值,可有效提升燃料電池效率,在本研究比較分析結果從 I-V 曲線、 功率密度曲線圖可得知,孔隙率等於 0.7 時,與孔隙撓曲度的比值可 得到最大值。

誌謝

本論文為核能研究所編號992001INER045之計畫,由於核能研究所的支持,使本計畫得以順利進行,特此致上感謝之意。

肆、参考文獻

- 1. E. Achenbach, "Three-dimensional and time-dependent simulation of a planar solid oxide fuel cell stack", Journal of Power Sources, Vol 49, pp.333-348, 1994.
- 2. E. Achenbach, "Response of a solid oxide fuel cell to load change", Journal of Power Sources, Vol 57, pp.105-109, 1995.
- 3. H.W. Brinkman, W.J. Briels, H.Verweij, "Molecular Dynamics Simulations of Yttria-Stabilzed Zirconia", Chemical Physics Letters, Vol 247, pp.386-390, 1995.
- 4. H. YaKabe, M. Hishinuma, M. Uratani, Y. Matsuzaki, I. Yasuda, "Evaluation and modeling of performance of anode-supported solid oxide fuel cell", Journal of Power Sources, Vol 86, pp.423-431, 1999.
- 5. H. Yakabe, T. Ogiwara, M. Hishinuma, I.Yasuda, "3-D model calculation for planar SOFC", Journal of Power Sources, Vol 102, pp.144-154, 2001.
- 6. H. Yakabe, T. Sakurai, "3D simulation on the current path in planar SOFCs", Solid State Ionics, Vol 174, pp.295-302, 2004.
- 7. R. Suwanwarangkul, E. Croiset, M.W. Fowler, P.L. Douglas, E. Entchev, M.A. Douglas, "Performance comparison of Fick's, dusty-gas and Stefan-Maxwell model to predict the concentration overpotential of a SOFC anode", Journal of Power Sources, Vol 122, pp.9-18, 2003.
- 8. T. Ackman, L.G.J. de Haart, W. Lehnert, D. Stolten, "Modeling of mass and heart transport in planar substrate type SOFCs", Journal of The Electrochemical Society, Vol 150(6), pp.A783-A789, 2003.