

單體MCFC之特性參數對A型樣式流場圖之溫度場之影響

劉旭昉¹、陳林宏¹、袁平²、林怡好³¹黎明技術學院機械系、²黎明技術學院車輛系、³黎明技術學院機械科

*Email: sfl@mail.lit.edu.tw

摘要

陽極在正梯形流量而陰極為均勻流量時(A型流場),基於溫度場分布圖,吾人應選在A型流場中陽極與隔板對流係數落在 $1000 \text{ w/m}^2 \text{ k}$ 附近,而陰極與隔板對流係數應該落在 $200 \text{ w/m}^2 \text{ k}$ 附近。

關鍵字: 熔融碳酸鹽燃料電池、尺寸、溫度場。

一、前言

熔融碳酸鹽燃料電池(MCFC)現在雖然已開發出一米平方大小的尺寸,而發電功率也約有十萬瓦,但因使用溫度過高而使得電池壽命減少,此點亦為熔融碳酸鹽燃料電池電站無法商業化並與火力發電競爭的關鍵,再者,產品價值過高也是其無法與其他工業抗衡的原因。因為MCFC使用的電解質材料易受金屬或氧化物腐蝕,所以MCFC在操作條件下之熱管理相形重要。至目前為止,許多研究分別利用數值方法、數值模型、實驗或套裝軟體針對單體MCFC或堆疊體MCFC作熱質傳之分析,以了解MCFC在工作環境下其各項特性之表現,其中,數值模型被利用來計算的關鍵參數(例如,溫度,壓力,濃度和密度)橫跨疊層的三維分佈。尤其,該模型可以同時考慮堆疊的主導過程,如質量傳遞,化學反應,熱傳遞,並且電壓-電流關係。此外,它也能夠計算的質量分佈在整個堆疊中,而不是假定是均勻分佈的。

Wolf and Wilemski[1]利用數值方法求解單體MCFC之質量平衡式與能量平衡式,並藉由一 94 cm^2 交叉流向之MCFC實驗值比對後證明其正確性。Sampath and Sammells[2]利用質量守恆模式求解出一單體交叉流向MCFC(3 cm^2)之二維電流密度並據此繪出極化曲線,其結果證明在使用一等效阻抗下此理論解與實驗值誤差在4%以內。其中,該作者在能量平衡式中考慮到介於電解質與流體間之熱對流、因質量流入流體而帶入之能量及位於分隔板中之縱向熱傳導等效應。此外,本篇亦分析在 1 m^2 之MCFC下,同向流、逆向流與交叉流的二維電流密度分布與溫度分布來模擬熔融碳酸鹽燃料電池的非等溫性能。此外,

Wilemski and Wolf[3]以相同之數值方法分析各項條件與設計參數及內重組機制對一大面積之單體MCFC電流密度分布與溫度分布之影響,電流密度和電池溫度分佈被發現有高度耦合。

Koh et al.[4]使用套裝軟體Phoenics分析一同向流之單體MCFC之各項特性,其結果顯示溫度場受熱輻射之影響較小,反應氣體之各項特性除了陽極側的比熱外皆可視為常數。Hirata and Hori[5]則利用數值方法探討一單體平板式同向流MCFC在燃料側與氧化劑側入口流率為非均勻狀況下,將產生一個更複雜的溫度分布和電流密度分布的交叉流模式。

在堆疊體MCFC之熱質傳分析方面,He and Chen[6]利用套裝軟體Phoenics分析一堆疊MCFC之三維溫度場、電流密度分布與濃度分布等等。Kobayashi et. al.[7]則利用數值方法與實驗方法比對一堆疊體MCFC之溫度場,其結果顯示在堆疊方向之熱傳導效應對整體燃料電池堆疊溫度場之影響是明顯的。熔融碳酸鹽燃料電池堆疊相對於安全和高效率的發電性能已使用計算流體動力學(CFD)的技術進行了研究。此篇文獻亦分析在同向流、逆向流與交叉流流向下其性能之比較,其結果顯示三種流向下最大溫度點之高低順序依序為交叉流、逆向流與同向流。Yoshita et. al.[8]利用數值方法分析在不同流向安排下一堆疊MCFC之三維溫度場、電流密度分布、濃度分布等特性。其結果顯示同向流具有最大之輸出功率。Koh et. al.[9]使用套裝軟體Phoenics分析在一均勻之電流密度場假設下,一同向流之堆疊MCFC之流力與熱傳之各項特性。其結果除顯示可正確預測流體之壓降外,邊界條件之設定對溫度計算之正確性亦有影響。此外,結果亦驗證電池本體面積大小會直接影響其溫度場之最高溫度的高低。He and Chen[10]利用套裝軟體Phoenics分析一堆疊MCFC之三維溫度場、電流密度分布、濃度分布等特性在暫態時之變化。其結果顯示電流密度在起始時刻變化較快速,之後則顯得緩慢。相對的,溫度之反應較為平緩。Yoshiba et. al.[11]利用數值方法與電路模型分析一同向流堆疊體MCFC開路電壓受電流密度與反應氣體濃度之影響。流量圖形中無論是正面入口區和堆疊方向是因此,非均勻的做法。Bosio et. al.[12]則推導出一等效熱內阻表示式並經由實驗結果比對其正

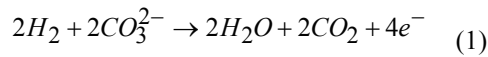


確性。此外，本參考文獻又利用數值方法分析一單體 MCFC 之溫度場與電流密度場，並進而分析一堆疊 MCFC 之溫度與開路電壓。

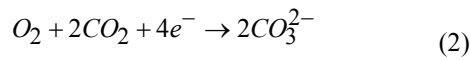
二、分析

交叉流向之單體熔融碳酸鹽燃料電池本體如圖一所示。沿 Z 軸方向依序為分隔板、氧化劑側、含陽極、陰極及電解質之電池本體及燃料側，其中燃料沿 x 軸向流動而氧化劑則沿 y 方向流動。其化學反應式為：

陽極(燃料側)：



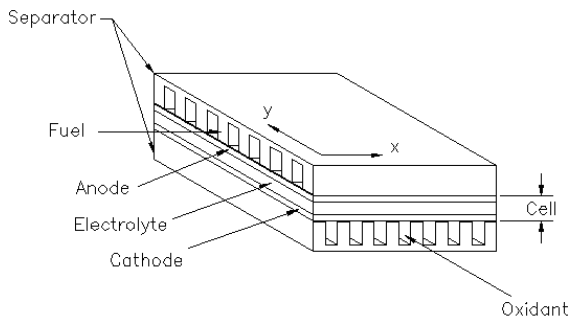
陰極(氧化劑側)：



上述反應之總反應熱在溫度為 298K 時為

$$\Delta H_{298}^\circ = -242 \text{ kJ/mol}。$$

在建立質傳與熱傳方程式前，本論文作以下之假設：1.)考慮為穩態狀況。2.)燃料側與氧化劑側入口速度與溫度均勻分布且為一常數。3.)忽略分隔板與電池本體與外界環境之熱傳。4.)忽略在分隔板與電池本體彼此間之熱輻射。5.)忽略各特性在 Z 軸方向之變化。依據上述之假設及化學反應式之反應莫耳比，本論文分別針對燃料側與氧化劑側之各氣體作質量平衡方程式。



圖一、交叉流向單體熔融碳酸鹽燃料電池

陽極(燃料側)：

$$\frac{dn_{H_2}}{dx} = -\frac{i}{2F}, \quad \frac{dn_{CO_2}}{dx} = +\frac{i}{2F}, \quad \frac{dn_{H_2O}}{dx} = +\frac{i}{2F} \quad (3)$$

陰極(氧化劑側)：

$$\frac{dn_{O_2}}{dy} = -\frac{i}{4F}, \quad \frac{dn_{CO_2}}{dy} = -\frac{i}{2F} \quad (4)$$

燃料側、氧化劑側、電池本體、分隔板之能量平衡式可分別寫為：

燃料側：

$$\frac{d}{dx} \left(\sum (nc_p T)_f \right) = h_f \cdot a_{cf} (T_c - T_f) + h_f \cdot a_{sf} (T_s - T_f) + \frac{d}{dx} \left(\sum (n \cdot c_p)_f \right) T_c \quad (5)$$

氧化劑側：

$$\frac{d}{dy} \left(\sum (nc_p T)_o \right) = h_o \cdot a_{co} (T_c - T_o) + h_o \cdot a_{so} (T_s - T_o) + \frac{d}{dy} \left(\sum (n \cdot c_p)_o \right) T_c \quad (6)$$

電池本體：

$$\left(k\delta \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + k\delta \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} \right)_c + q = h_f \cdot a_{cf} (T_c - T_f) + h_o \cdot a_{co} (T_c - T_o) \quad (7)$$

分隔板：

$$\left(k\delta \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + k\delta \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} \right)_s = h_f \cdot a_{sf}(T_s - T_f) + h_o \cdot a_{so}(T_s - T_o) \quad (8)$$

其中，q 為電池本體單位面積之反應熱，可分別表示為：

$$q = -\Delta H_{298}^\circ \times \frac{i}{2F} - V \times i \quad (9)$$

三、數值方法

本文中使用的 flexpde 作數值分析。flexpde 是有限元素分析軟體在軟體格點數會依陽極及陰極氣體之莫爾流率作增加，如此可以避免負值在又分方程式中出現。收斂標準定值 0.025 步驟二中電池所能得到開路電壓是由 Nernst 方程式獲得，

$$E = E^\circ + \frac{RT}{2F} \ln \left[\frac{X_{O_2}^{1/2} \cdot X_{CO_2} \cdot X_{H_2}}{X_{H_2O} \cdot X_{CO_2}} \right] + \frac{RT}{4F} \ln(P) \quad (10)$$

步驟三中等效熱內阻引用 Bosio[10]的結果計算出來，

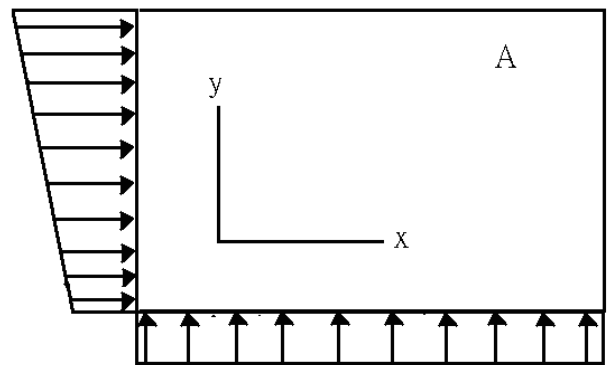
$$R_{eff} = 1.38E^{-7} \frac{e^{(11400/T)}}{0.67} + 0.348E^{-4} + 4.8E^{-8} e^{(6596/T)} \quad (11)$$

$$V = E - R_{eff} \times i \quad (12)$$

其中 V 為單體燃料電池之操作電壓，其值為 0.79。

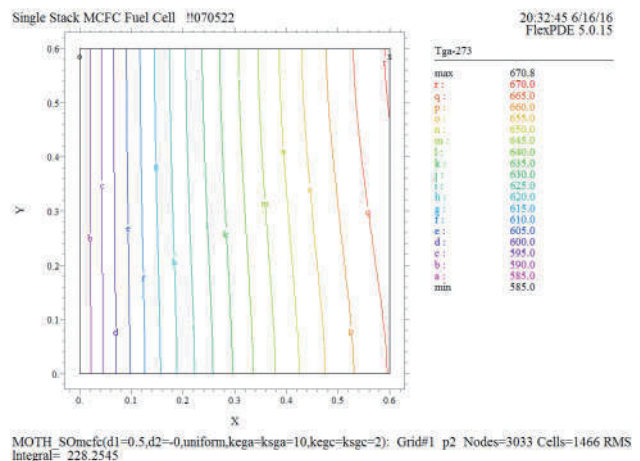
表一、各項參數設定值

$T_{f,i}=879K$	$T_{o,i}=878K$	$Nu=3.77$	$k_s=22$
$k_c=16.2$	$a_{cf} = a_{co}=0.53$	$V=0.79$	$\delta_s=0.001$
$\delta_c=0.001$	$a_{sf} = a_{so}=0.53$	$P=1 \text{ atm}$	



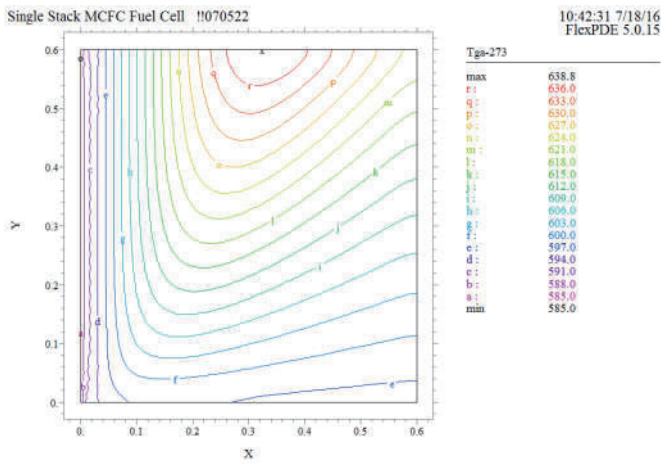
圖二陽極氣體正梯型(非均勻流)及陰極氣體均勻流之流場配置圖

四、結果與討論



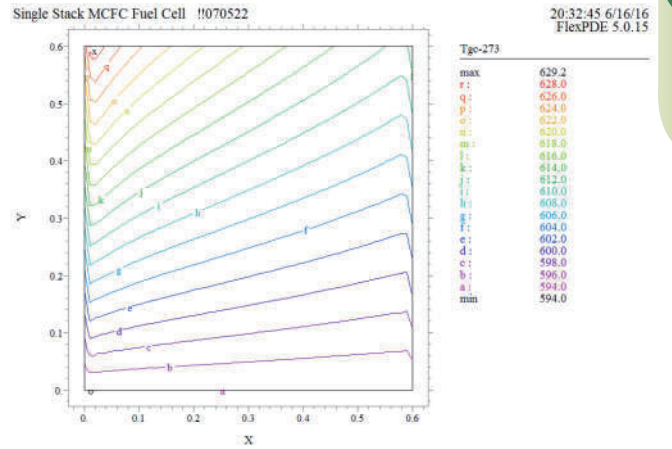
圖三，陽極在正梯形流量陰極為均勻流量時，陽極與隔板對流係數取 $10 \text{ w/m}^2 \text{ k}$ 時陰極與隔板對流係數取 $2 \text{ w/m}^2 \text{ k}$ 時之陽極氣體溫度分布圖。





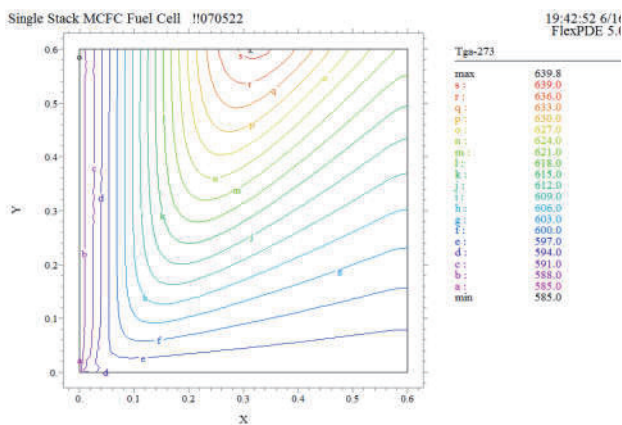
MOTH_070521d(d1=0.5,d2=0,uniform,kega=ksga=1000,kegc=ksgc=200): Grid#1 p2 Nodes=3033 Cells=1466 Integral= 220.0970

圖四，A 型流場陽極與隔板，對流係數取 1000 $w/m^2 k$ 時，陰極與格板取 200 $w/m^2 k$ 時，之陽極氣體溫度分佈圖。



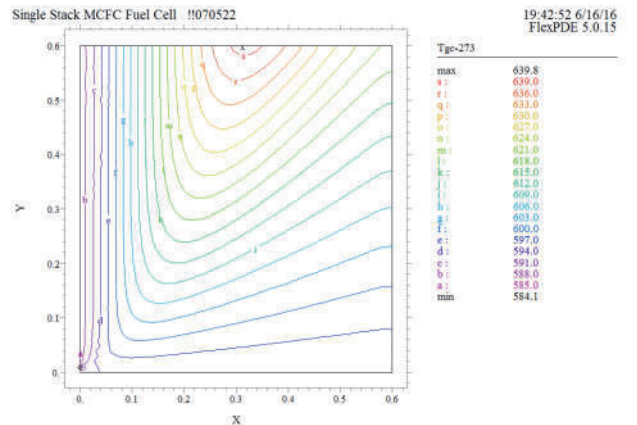
MOTH_S0mfc(d1=0.5,d2=0,uniform,kega=10,kegc=ksgc=2): Grid#1 p2 Nodes=3033 Cells=1466 RMS Integral= 218.3273

圖六，A 型流場，當陽極與隔板對流係數為 10 $w/m^2 k$ ，陰極與隔板對流係數為 2 $w/m^2 k$ 時之陰極氣體溫度分佈圖。



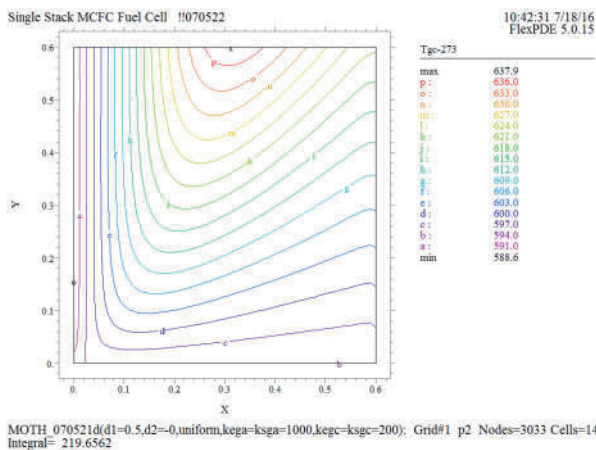
MOTH_S0mfc051018Bos070521d(d1=0.5,d2=0,uniform,kega=100000,kegc=ksgc=20000): Grid#1 p2 Nodes=3033 Cells=1466 Integral= 219.4422

圖五，A 型流場，當陽極與隔板對流係數取為 100000 $w/m^2 k$ 時，陰極與格板取 20000 $w/m^2 k$ 時，陽極氣體溫度分佈圖。

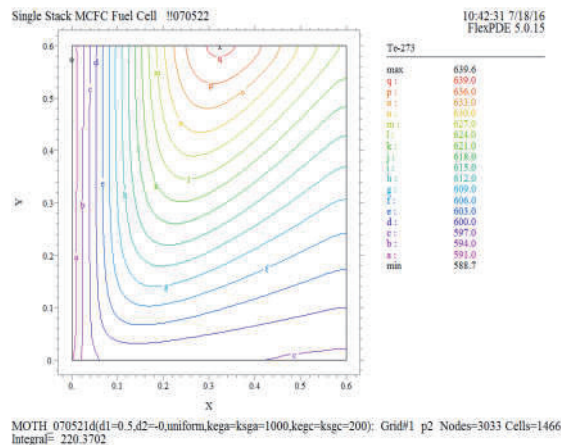


MOTH_S0mfc051018Bos070521d(d1=0.5,d2=0,uniform,kega=100000,kegc=ksgc=20000): Grid#1 p2 Nodes=3033 Cells=1466 Integral= 219.4384

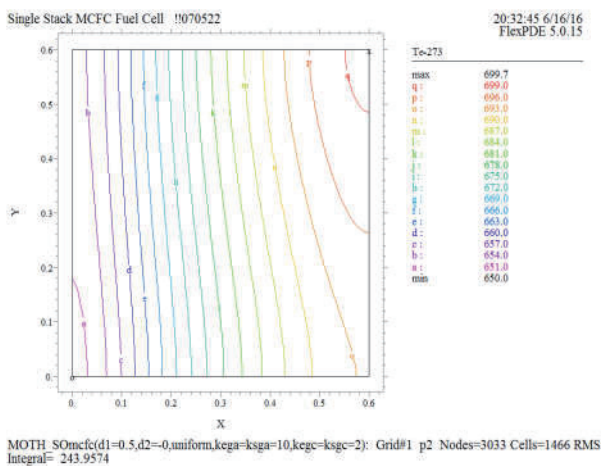
圖七，A 型流場中陽極與隔板對流係數為 1000 $w/m^2 k$ ，而陰極與隔板對流係數為 200 $w/m^2 k$ 時之陰極氣體溫度分佈圖。



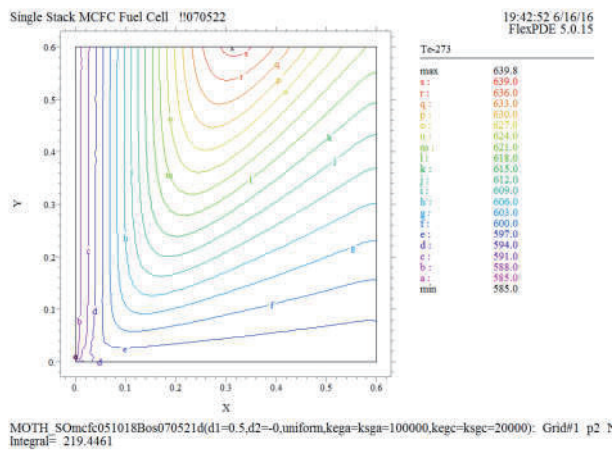
圖八，A 型流場中陽極與隔板對流係數為 $1000\text{w/m}^2\text{ k}$ ，而陰極與隔板對流係數為 $200\text{w/m}^2\text{ k}$ 時之陰極氣體溫度分佈圖。



圖十，A 型流場中陽極與隔板對流係數為 $1000\text{w/m}^2\text{ k}$ ，而陰極與隔板對流係數為 $200\text{w/m}^2\text{ k}$ 時之電解層溫度分佈圖。



圖九，A 型流場中陽極與隔板對流係數為 $10\text{w/m}^2\text{ k}$ ，而陰極與隔板對流係數為 $2\text{w/m}^2\text{ k}$ 時之電解層溫度分佈圖。



圖十一，A 型流場中陽極與隔板對流係數為 $100000\text{w/m}^2\text{ k}$ ，而陰極與隔板對流係數為 $20000\text{w/m}^2\text{ k}$ 時之電解層溫度分佈圖。



由圖三分析得知陽極氣體成階梯狀由 $x=0$ 逐漸增溫到 $y=0.6$ 米，最高溫落於右上角，由圖四分析最高溫落於最上於 $x=0.3$ 米， $y=0.6$ 米，由圖五得知類似於圖四，但三者溫度以圖三 670°C 最高，圖四、圖五最高落於 638°C ，因為選擇上以陽極對流係數落於 $10\text{ w/m}^2\text{ k}$ 到 $1000\text{ w/m}^2\text{ k}$ 為較佳。

由圖六分析得知在 $x=0$ 附近及 $x=0.6$ 的附近，溫度分部較不均勻，最高溫落於左上角，剛好為陽極氣體流量最大時，顯示出冷卻不足，且高溫過早出現。由圖七分析，高溫落於 $x=0.3$ 米， $y=0.6$ 米，分布較均勻，最高溫在 638°C 附近，而圖八情形類似圖七，因為對流係數以接近 $1000\text{ w/m}^2\text{ k}$ 時較佳， $h=10\text{ w/m}^2\text{ k}$ 時，散熱不足。

由圖九分析，溫度分佈雖然較佳，但最高溫落於 699.7°C 比圖十、圖十一高出許多，因為 h 應選擇接近 $1000\text{ w/m}^2\text{ k}$ 時。

綜合圖三到圖十一而言，隨著 h 值變大，其主要影響是對陰極氣體溫度分佈圖有較佳的改善，因為在圖六中每條等溫線幾乎都有兩個 peak 的反轉，這個現象到圖七及圖八就消失。另外一個改善現象，在圖六當 $x=0\text{m}$ ， $y=0.6\text{m}$ 的地方出現最高溫，這個現象並不佳，因為我們不希望陰極出口處馬上就出現高溫，我們希望高溫盡量均勻分布在整個平面上。

五、結論

基於溫度場分布圖，吾人應選在 A 型流場中陽極與隔板對流係數落在 $1000\text{ w/m}^2\text{ k}$ 附近，而陰極與隔板對流係數應該落在 $200\text{ w/m}^2\text{ k}$ 附近。

符號說明

a	單位面積之熱傳面積(m^2/m^2)
c_p	比熱($\text{J}/\text{mol}\cdot\text{K}$)
E	開路電壓
E°	標準開路電壓
F	法拉第常數($=96485\text{ A}\cdot\text{s}/\text{mol}$)
h	熱對流係數
i	電流密度(A/m^2)
k	熱傳導係數
n	單位流道寬度之莫耳流率($\text{mol}/\text{s}\cdot\text{m}$)
P	流體工作壓力($=0.1\text{MPa}$)
R	通用氣體常數($=8.3144\text{ J}/\text{mol}\cdot\text{K}$)
R_{eff}	等效熱內阻
T	溫度(K)

V	單體燃料電池操作電壓
X	氣體莫耳濃度比
δ	厚度
q	為電池本體單位面積之反應熱
e	指數函數
下標	
c	電池本體
f	燃料側
o	氧化劑側。
s	分隔板

誌謝

本研究案為創儀企業有限公司與黎明技術學院產學合作成果，承蒙創儀企業有限公司提供研究經費、設備使用，特致上最高的感謝。

參考文獻

- [1] V. Sampath and A.F. Sammells, "A Performance and Current Distribution Model for Scaled-Up Molten Carbonate Fuel Cells", J. Electrochem. Soc., pp. 79-85, 1980.
- [2] T.L. Wolf and G. Wilemski, "Molten Carbonate Fuel Cell Performance Model, J. Electrochem Soc" ., pp. 48-55, 1983.
- [3] G. Wilemski and T.L. Wolf, "The Role of Heat Transfer in Molten Carbonate Fuel Cell Performance, Proceedings- The Electrochemical society" , vol. 86, no. 12, pp. 334-356, 1986.
- [4] H. Hirata and M. Hori, "Gas-Flow Uniformity and Cell Performance in A Molten Carbonate Fuel Cell Stack, Journal of Power Sources" , vol. 63, pp. 115-120, 1996.
- [5] J.H. Koh, H.K. Seo, Y.S. Yoo, and H.C. Lim, "Consideration of Numerical Simulation Parameters and Heat Transfer Models for A Molten Carbonate Fuel Cell Stack, Chemical Engineering Journal" , vol. 87, pp. 367-379, 2002.
- [6] N. Kobayashi, H. Fujimura, and K. Ohtsuka, "Heat and Mass Transfer in A Molten Carbonate Fuel Cell, JSME International Journal, Series II" , vol. 32, no. 3, pp. 420-427, 1989.
- [7] W. He and Q. Chen, "Three-Dimensional Simulation of A Molten Carbonate Fuel Cell Stack Using Computational Fluid Dynamics Technique, Journal of Power Sources" , Vol. 55, pp. 25-32, 1995.
- [8] W. He and Q. Chen, "Three-Dimensional Simulation of A Molten Carbonate Fuel Cell Stack Under Transient Conditions" , Journal of Power Sources, vol. 73, pp. 182-192, 1998.
- [9] F. Yoshida, N. Ono, Y. Izaki, T. Watanabe, and T. Abe, "Numerical Analyses of The Internal

Conditions of A Molten Carbonate Fuel Cell Stack: Comparison of Stack Performances for Various Gas Flow Types” , Journal of Power Sources, vol. 71, pp. 328-336, 1998.

[10]B. Bosio, P. Costamagna, and F. Parodi, “Modeling and Experimentation of Molten Carbonate Fuel Cell Reactors in A Scale-up Process, Chemical Engineering Science” , vol. 54, pp. 2907-2916, 1999.

[11]F. Yoshida, T. Abe, T. Watanabe,” Numerical Analysis of Molten Carbonate Fuel Cell Stack Performance: Diagnosis of Internal Conditions Using Cell Voltage Profiles, Journal of Power Sources” , vol. 87, pp. 21-27, 2000.

[12]J.H. Koh, B.S. Kang, and H.C. Lim,” Analysis of Temperature and Pressure Fields in Molten Carbonate Fuel Cell Stacks, AIChE Journal” , vol. 47, no. 9, pp. 1941-1956, 2001.

The influence of the characteristic parameters of a MCFC unit on the temperature field of the A-type flow field diagram

S.F. Liu¹, C.L. Hung¹, P. Yuan² and Y.Y. Lin¹

¹Department of Mechanical Engineering,
Lee-Ming Institute of Technology

²Department of Vehicle Engineering, Lee-Ming Institute of Technology

Email: sfl@mail.lit.edu.tw

Abstract

When the anode has a positive trapezoidal flow and the cathode has a uniform flow (type A flow field), we should choose the convection coefficient between the anode and the separator in the type A flow field to near $1000 \text{ w/m}^2\text{k}$ based on the temperature field distribution diagram. Moreover, the convection coefficient between the cathode and the separator should be around $200 \text{ w/m}^2 \text{ k}$.

Keywords: MCFC, Size, Temperature field.

