

陽極正梯型流量陰極倒梯型流量(G)MCFC 之 h 參數對溫度場之影響

劉旭昉¹、陳林宏¹、袁平²、林怡好³

¹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

G 型流場特性為陽極流量為正梯型陰極流量為倒梯型，分析本流場之對流係數為 10、100、1000、3000 $\text{w/m}^2\text{k}$ 時，經由陽氣體溫度分布圖及陰氣體溫度分布圖分析後，以對流係數 100 $\text{w/m}^2\text{k}$ 及 1000 $\text{w/m}^2\text{k}$ 時為較佳選擇。

關鍵字：熔融碳酸鹽燃料電池、尺寸、溫度場。

一、緒論

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溫度場之影響是明顯的。熔融碳酸鹽燃料電池堆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。Yoshida 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。其結果顯示，區域電流密度之增加與區域燃料氣體之不足皆會導致較大之區域開路電壓，而數值方法則是計算溫度和電流密度分佈的協流電堆的，並且發現和更大的增加部分內阻較大燃料氣體中的特定細胞功能不全，將導致在一個較大的單電池電壓的差異。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。

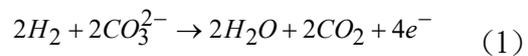
參考文獻 [13] 及 [14] 對交叉型流量的熔

融碳酸鹽燃料電池的溫度場給出了相應的理論值。

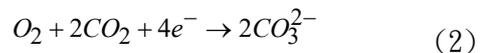
二、分析

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)：

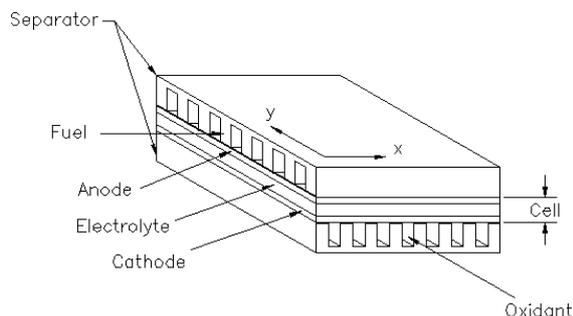


上述反應之總反應熱在溫度為 298K 時為

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

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)：

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

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

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

本文中使用了 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叉分方程式中出現。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。

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

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

表一、各項參數設定值

(10)

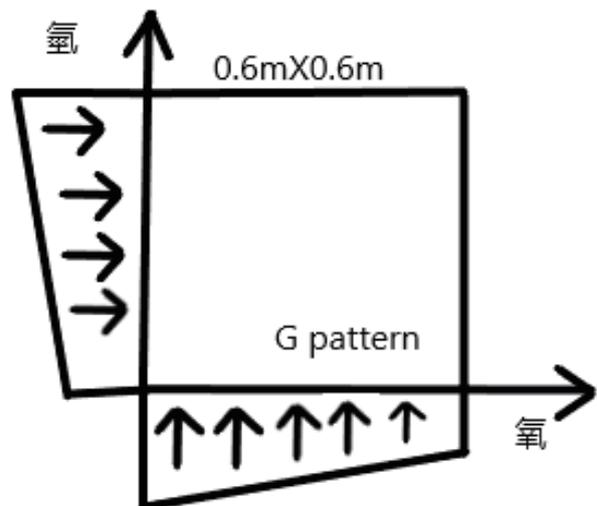
步驟三中等效熱內阻引用 Bosio[10] 的結果計算出來，

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

步驟四中電流密度可由下式獲得，

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

其中 V 為單體燃料電池之操作電壓，其值為 0.79。



圖二陽極均勻型流量陰極倒梯型流量之流場配置圖(F 型流場)

四、結果與討論



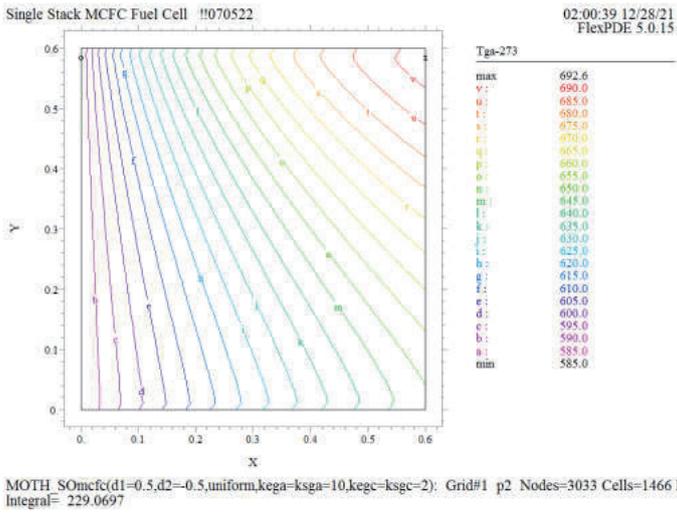


圖 4-1 當陽極正梯型流量陰極倒梯型流量之陽極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $10 \text{ w/m}^2 \text{ k}$ 時之陽極氣體溫度分布圖(此時陰極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $2 \text{ w/m}^2 \text{ k}$)

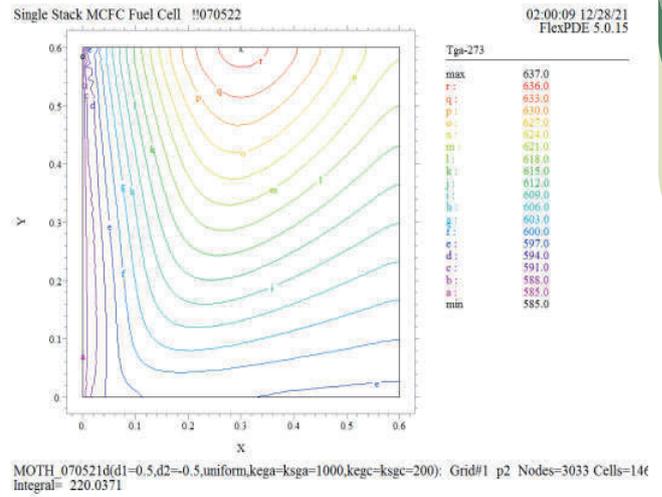


圖 4-3 當陽極正梯型流量陰極倒梯型流量之陽極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $1000 \text{ w/m}^2 \text{ k}$ 時之陽極氣體溫度分布圖(此時陰極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $200 \text{ w/m}^2 \text{ k}$)

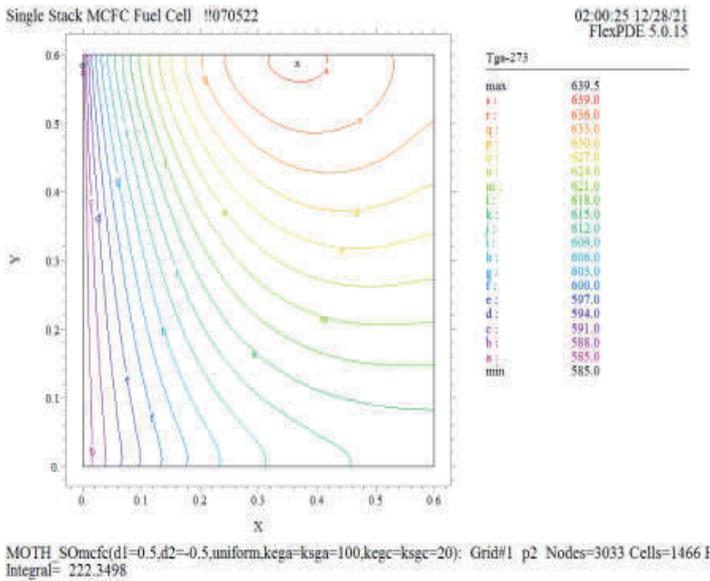


圖 4-2 當陽極正梯型流量陰極倒梯型流量之陽極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $100 \text{ w/m}^2 \text{ k}$ 時之陽極氣體溫度分布圖(此時陰極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $20 \text{ w/m}^2 \text{ k}$)

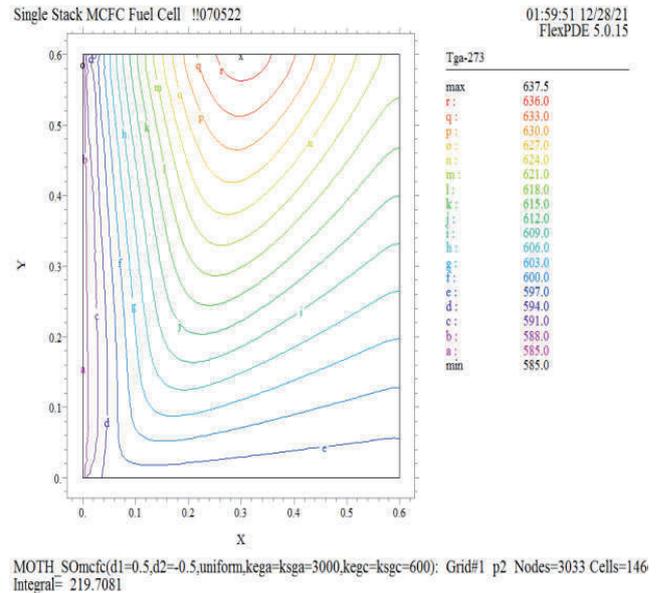


圖 4-4 當陽極正梯型流量陰極倒梯型流量之陽極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $3000 \text{ w/m}^2 \text{ k}$ 時之陽極氣體溫度分布圖(此時陰極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $600 \text{ w/m}^2 \text{ k}$)

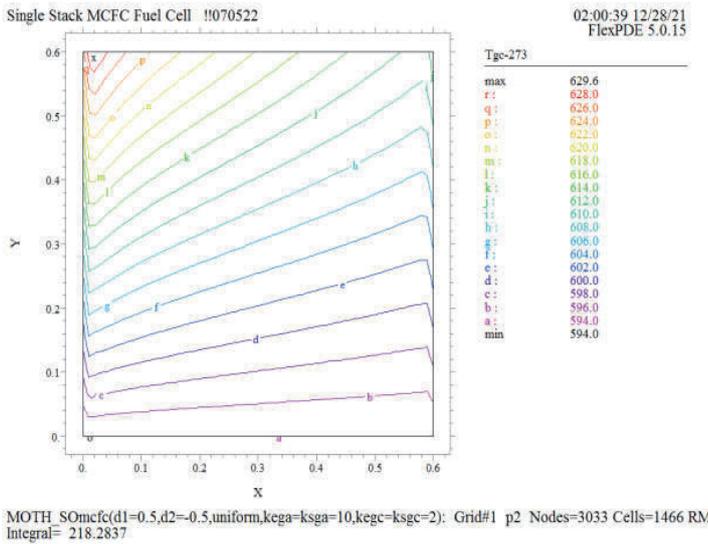


圖 4-5 當陽極正梯型流量陰極倒梯型流量之陽極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $10 \text{ w/m}^2 \text{ k}$ 時之陰氣體溫度分布圖(此時陰極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $2 \text{ w/m}^2 \text{ k}$)

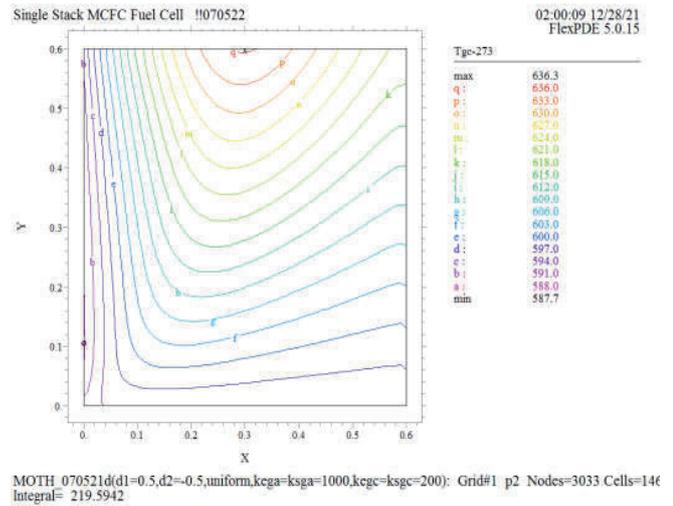


圖 4-7 當陽極正梯型流量陰極倒梯型流量之陽極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $1000 \text{ w/m}^2 \text{ k}$ 時之陰氣體溫度分布圖(此時陰極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $200 \text{ w/m}^2 \text{ k}$)

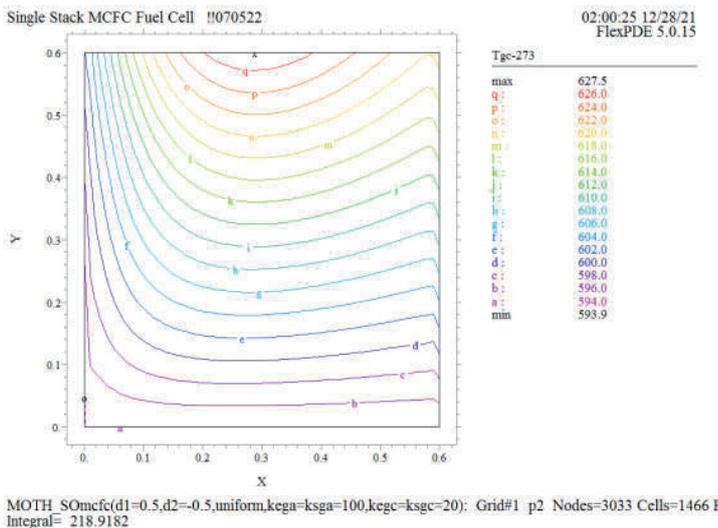


圖 4-6 當陽極正梯型流量陰極倒梯型流量之陽極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $100 \text{ w/m}^2 \text{ k}$ 時之陰氣體溫度分布圖(此時陰極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $20 \text{ w/m}^2 \text{ k}$)

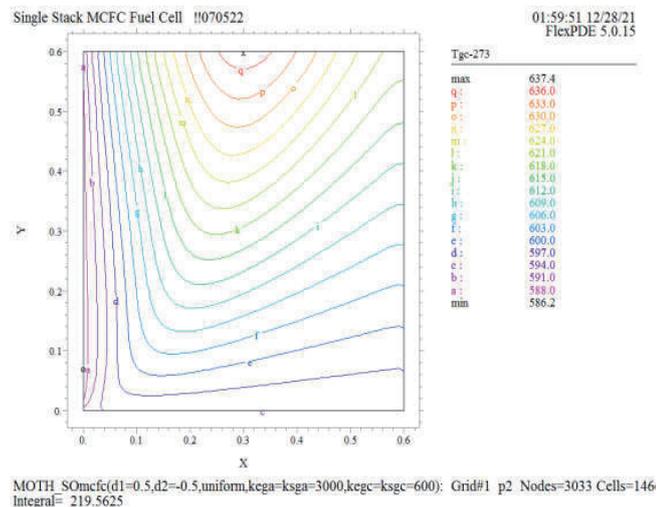


圖 4-8 當陽極正梯型流量陰極倒梯型流量之陽極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $3000 \text{ w/m}^2 \text{ k}$ 時之陰氣體溫度分布圖(此時陰極氣體與電解層及分隔板之對流係數為 $600 \text{ w/m}^2 \text{ k}$)



本文探討 G 型流場，而 G 型流場是指陽極氣體氫氣呈現正梯型分布流動，而陰極氣體氧氣為倒梯型分布流動時的流場狀態。

由圖 4-1 到圖 4-8 共分成二個組別，分別為陽氣體溫度分布圖、陰氣體溫度分布圖，每組探討 h 對流係數分別為在陽極氣體與電解層及分隔板，採用 10、100、1000、3000 $w/m^2 k$ 而在陰極相對應的對流係數為 2、20、200、600 $w/m^2 k$ 。

在圖 4-1 中陽極氣體(氫氣)溫度由最高溫在右上角攝氏 692.6°C，最低溫在左側陽極入口處攝氏 585°C，等溫線均勻由左邊呈扇形向右上角展開，基本上代表氧作較佳的混合反應，由於氧氣在左下角的濃度較大，也代表左下角氧氣流量較大，具有冷卻作用，因為陽極入口的氫氣呈現正梯型狀，而陰極氣體呈現倒梯型，因此左側的溫度分布就無法有完整規則性。在圖 4-1 到圖 4-4，由於受到陽極流量影響，對流係數 h 越大，在陽極側的流量分佈曲線就越不均勻平順，最高溫與最低溫差依序為 117.6°C、54.5°C、52°C、52.5°C。在 h 為 10 時，陽極側對流太小，最熱點出現在右上角，隨著 h 值逐漸變大，最高溫向左移動圖 4-2、圖 4-3、圖 4-4 都有類似情形。在圖 4-2、圖 4-3、圖 4-4 最高溫大約為 637°C

，因此可以得知，在陽極氣體與電解層及分隔板之對流係數最大取到 1000 就可以得到很好的效果。

圖4-5、圖4-6、圖4-7、圖4-8分別代表陽極對流係數 h 為10、100、1000、3000 $w/m^2 k$ 時的陰極氣體（氧氣）的溫度分布圖。在圖4-5中，所代表為當陽極正梯型流量陰極倒梯型流量之陽極氣體與電解層及分隔板之對流係數為10時之陰氣體溫度分布圖，等溫線在 $x=0$ 及 $x=0.6$ 米處有明顯的peak尖銳反轉點出現，並且最高溫出現在

$x=0$ ， $y=0.6$ 米的陽極氣體出口處，這代表氧化反應尚未完全充分，最高溫為627.5°C但是在圖4-6到4-8中，最高溫可到637.4°C。陽極氣體與電解層及分隔板之對流係數為100 $w/m^2 k$ 時的圖4-3，等溫線比較smooth平順，綜合以上所述陽極對流係數 h 以100到1000 $w/m^2 k$ 為最佳

五、結論

G 型流場特性為陽極流量為正梯型陰極流量為倒梯型，分析本流場之對流係數為 10、100、1000、3000 $w/m^2 k$ 時，經由陽氣體溫度分布圖及陰氣體溫度分布圖分析後，以對流係數 100 $w/m^2 k$ 及 1000 $w/m^2 k$ 時為較佳選擇。

符號說明

a	單位面積之熱傳面積(m^2 / m^2)
c_p	比熱($J / mol \cdot K$)
E	開路電壓
E°	標準開路電壓
F	法拉第常數(=96485 $A \cdot s / mol$)
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 ($mol / s \cdot m$)
P	流體工作壓力(=0.1MPa)
R	通用氣體常數 (=8.3144 $J / mol \cdot K$)
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

下標

c 電池本體

f 燃料側

o 氧化劑側。

s 分隔板

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. Yoshiba, 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. Yoshiba, 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.

[13] S.F. Liu, H.S. Chu, and P. Yuan, "Effect of inlet flow maldistribution on the thermal and electrical performance of a molten carbonate fuel cell unit", *Journal of Power Sources* vol. 161, pp. 1030-1040, 2006.

[14] Z.B. GOU, S.S. XU, and J. CHENG, "Numerical Analysis of Single Molten



Carbonate Fuel Cell Performance of Three Flow Manifolds”, Proceedings of the CSEE, vol.31,pp. 69-73, 2011.

The influence of the h parameter in the anode positive trapezoidal flow and cathode inverted trapezoidal flow (G) on the temperature field of a MCFC

S.F. Liu^{1*}, 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

G-type flow field characteristic is that the anode flow is positive trapezoid and the cathode flow is inverted trapezoid. When the convection coefficient of this flow field is 10, 100, 1000, 3000 w/m²k, the temperature distribution of anode gas and cathode gas are analyzed. After analyzing the temperature distribution diagram, the best choice is when the convection coefficient is 100 w/m² k and 1000 w/m² k.

Keywords: MCFC, Size, Temperature field