

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2007-504635

(P2007-504635A)

(43) 公表日 平成19年3月1日(2007.3.1)

(51) Int.C1.	F 1	テーマコード (参考)
HO 1 M 8/06 (2006.01)	HO 1 M 8/06	G 4 G 1 4 0
CO 1 B 3/38 (2006.01)	CO 1 B 3/38	5 H O 2 7
HO 1 M 8/00 (2006.01)	HO 1 M 8/00	Z

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 26 頁)

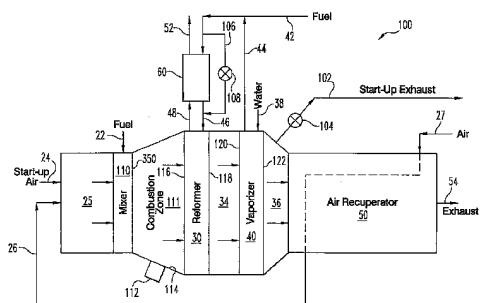
(21) 出願番号	特願2006-533140 (P2006-533140)	(71) 出願人	500037481 バッテル・メモリアル・インスティチュート アメリカ合衆国ワシントン州99352, リッチランド, バッテル・ブルーバード 902, ピー・オー・ボックス 999, パシフィック・ノースウェスト・ラボラト リーズ, インテレクチュアル・プロパティ ー・サービス
(86) (22) 出願日	平成16年5月17日 (2004.5.17)	(74) 代理人	100089705 弁理士 社本 一夫
(85) 翻訳文提出日	平成17年11月30日 (2005.11.30)	(74) 代理人	100076691 弁理士 増井 忠式
(86) 國際出願番号	PCT/US2004/015402	(74) 代理人	100075270 弁理士 小林 泰
(87) 國際公開番号	W02004/104140		
(87) 國際公開日	平成16年12月2日 (2004.12.2)		
(31) 優先権主張番号	60/471,130		
(32) 優先日	平成15年5月16日 (2003.5.16)		
(33) 優先権主張国	米国 (US)		
(31) 優先権主張番号	60/471,286		
(32) 優先日	平成15年5月16日 (2003.5.16)		
(33) 優先権主張国	米国 (US)		
(31) 優先権主張番号	60/546,107		
(32) 優先日	平成16年2月18日 (2004.2.18)		
(33) 優先権主張国	米国 (US)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】迅速始動燃料改質システム及び技術

(57) 【要約】

搭載型燃料処理装置は、マイクロチャネル蒸気改質反応器30及び燃焼ガスで連続的に加熱される水気化器40を含む。改質器30及び気化器40は、共に低い燃焼サイド圧力降下を可能とする交流パネル形状である。燃料は蒸気に直接注入され、迅速低温始動時に、燃焼ガス流量及び蒸気対炭素比の双方とも定常状態運転値よりも実質的に増加する。迅速低温始動は管理可能な電力消費量で30秒以内に達成され得るので、自動車燃料電池用途において用いるための障害を除去する。



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

燃料改質反応器と、異なるマス流量で改質反応器の加熱サイドを通して燃焼ガスを選択的に搬送するための少なくとも 1 のプロワーを含む燃料電池システムを準備する工程と；

反応器の加熱サイドを流通する燃焼ガスで反応器の改質サイドを加熱することにより改質反応器を始動させる始動工程と；

次いで、反応器を運転させて、加熱サイドを流通する燃焼ガスからの熱で吸熱改質反応を改質サイドで行うことにより、リリフォメート流を発生させる工程と；

を含み、始動時に加熱サイドを通る燃焼ガスのマス流量は、運転中に加熱サイドを通る燃焼ガスのマス流量の少なくとも約 5 倍である、プロセス。

10

【請求項 2】

始動時に、前記改質反応器の加熱サイドを横断する圧力降下は、水柱約 10 インチ (25.4 cm) 未満である、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

前記システムは、前記改質反応器の加熱サイドよりも下流側にある加熱サイドを有する気化器を含み、始動時に、気化器の加熱サイド及び改質反応器の加熱サイドを横断する圧力降下の合計は、水柱約 10 インチ (25.4 cm) 未満である、請求項 2 に記載の方法。

【請求項 4】

始動時に、加熱サイドを流通する燃焼ガスのレイノルド数は約 2000 未満である、請求項 2 に記載の方法。

20

【請求項 5】

燃焼ガスは、反応器の加熱サイドを通して、反応器の第 1 面から反応器の第 2 面へ流れ、該第 1 及び第 2 面はそれぞれ、両面間の距離よりも実質的に大きい長さ及び幅を有する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 6】

前記システムは、改質反応器の加熱サイドよりも下流側にある加熱サイドを有する気化器を含み、該気化器は第 1 面及び第 2 面を含み、各面は両面間の距離よりも実質的に大きな長さ及び幅を有し、前記方法は、気化器の加熱サイドを通して気化器の第 1 面から気化器の第 2 面まで燃焼ガスを流通させる工程をさらに含む、請求項 5 に記載の方法。

30

【請求項 7】

前記改質反応器の加熱サイドと前記気化器の加熱サイドとの間に介在する熱交換器はない、請求項 6 に記載の方法。

【請求項 8】

少なくとも 2 個のプロワーがある、請求項 1 に記載の方法

【請求項 9】

前記始動工程は、少なくとも 1 のプロワーが燃料電池システムの定常状態電気出力の約 4% 未満の電力量を消費しながら、改質サイドの内部温度を約 50 以下から約 400 超過まで上昇させることを含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 10】

約 50 未満の開始温度から約 600 超過の昇温された運転温度まで約 30 秒以内にチャネルの内部温度を上昇させるに十分なマス流量で、加熱チャネルを流通するホットガスで燃料改質器の吸熱反応チャネルを加熱することにより、燃料改質器を始動させる始動工程を含む方法。

40

【請求項 11】

前記燃料改質器は燃料電池に接続されており、前記ホットガスは少なくとも 1 の電動プロワーの圧力下で流れ、加熱中の少なくとも 1 のプロワーによる電力総消費量は燃料電池の最大定常状態電力の約 8% 未満である、請求項 10 に記載の方法。

【請求項 12】

加熱後、ホットガスにより供給された熱で昇温された運転温度にて燃料改質器を運転してリリフォメート流を発生させる工程をさらに含み、始動時に加熱サイドを流通するホット

50

ガスのマス流量は、運転時に加熱サイドを流通する燃焼ガスのマス流量の少なくとも約3倍である、請求項10に記載の方法。

【請求項13】

燃料改質器は蒸気改質器である、請求項10、11又は12に記載の方法。

【請求項14】

始動時に加熱サイドを流通するホットガスのマス流量は、運転中に加熱サイドを流通する燃焼ガスのマス流量の少なくとも約5倍である、請求項13に記載の方法。

【請求項15】

液体燃料を過熱された蒸気に噴霧して、蒸気改質器への蒸気流入流を発生させる工程をさらに含む、請求項13に記載の方法。

【請求項16】

前記ホットガスは燃焼排ガスである、請求項10に記載の方法。

【請求項17】

前記改質器は第1面及び第2面を画定し、各面は両面間の距離よりも実質的に大きな長さ及び幅を有し、前記加熱チャネルは両面間の流路である、請求項10に記載の方法。

【請求項18】

燃料電池；

燃料電池用の水素を蒸気及び炭化水素類から発生させるように作用可能である蒸気改質器；および

蒸気を該蒸気改質器に供給するための気化器；を具備し、該蒸気改質器は第1面及び第2面を画定するパネルであり、各面の長さ及び幅は両面間の距離よりも実質的に大きい、システム。

【請求項19】

前記蒸気改質器の第1面から第2面に至る多数の改質器加熱チャネルを具備し、該加熱チャネルの最小寸法は約0.05インチ(0.127cm)未満である、請求項18に記載のシステム。

【請求項20】

前記気化器は第1面及び第2面を画定し且つ該第1面及び第2面の間に多数の気化器加熱チャネルを有するパネルであり、該気化器加熱チャネルは前記改質器加熱チャネルよりも下流側にある、請求項19に記載のシステム。

【請求項21】

システム始動時とシステム運転時とで異なる流量にてホットガスを改質器及び気化器の加熱チャネルを通して搬送するための可変速度プロワー手段をさらに具備する、請求項20に記載のシステム。

【請求項22】

燃料電池と；

燃料電池用リフオメート流出流へ気体状流入蒸気を変換させるための蒸気改質器と；

蒸気改質器の加熱サイドよりも下流側にある加熱サイドを有し、過熱された蒸気を提供するための気化器と；

気化器及び改質器の間にあり、液体燃料を過熱された蒸気に注入して改質器への気体状流入流を発生させるための燃料注入器とを具備するシステム。

【請求項23】

少なくとも1のプロワー及び1個のコントローラをさらに具備し、該コントローラは、少なくとも1のプロワーがシステムの始動段階と運転段階とで実質的に異なるマス流量で加熱サイドを通してホットガスを選択的に搬送せるように作用可能である、請求項22に記載のシステム。

【請求項24】

前記蒸気改質器の加熱サイドと前記気化器の加熱サイドとの間には介在する熱交換器がない、請求項22又は23に記載のシステム。

【請求項25】

10

20

30

40

50

前記気化器及び前記蒸気改質器の少なくとも一方は、加熱サイド流路への入口を画定する入口面及び加熱サイド流路への出口を画定する出口面を画定し、各面は両面間の距離よりも実質的に大きな長さ及び幅を有する、請求項 2 4 に記載のシステム。

【請求項 2 6】

前記加熱サイド流路の最小寸法は約 0.05 インチ (0.127cm) 未満である、請求項 2 5 に記載のシステム。

【請求項 2 7】

改質サイド及び加熱サイドを有する蒸気改質器と；

該改質器の改質サイドよりも上流側にある気化サイド、及び該改質器の加熱サイドよりも下流側にある加熱サイドを有する水気化器と；

10

気化サイド及び改質サイドの間で流体連通させる燃料注入器と；を具備し、

該燃料注入器は、燃料改質運転中に液体燃料を過熱された流に噴霧して、改質サイドへの気体状流入流を発生させ； 気化器及び蒸気改質器の少なくとも一方は加熱サイド流路への入口を画定する入口面及び加熱サイド流路への出口を画定する出口面を画定し、各面は両面間の距離よりも実質的に大きな長さ及び幅を有する、システム。

【請求項 2 8】

前記蒸気改質器の加熱サイドへ燃焼ガスを搬送するための内面を画定する燃焼ガス導管をさらに具備し、蒸気改質器の加熱サイドに隣接する該内面の大部分は実質的に非金属である、請求項 2 7 に記載のシステム。

20

【請求項 2 9】

前記改質サイドから下流側にあり、改質サイドのリリフォート出口において水素から電力を発生させる燃料電池をさらに具備する、請求項 2 7 に記載のシステム。

【請求項 3 0】

前記燃料電池は車輌に電力を付与し、前記蒸気改質器の温度は、ホットガスを加熱サイドに流通させることによって、始動時に、雰囲気温度から昇温された運転温度まで 30 秒以内に上昇可能であり、前記燃料電池からの最大定常状態電力出力の約 4% 未満の電力を消費する、請求項 2 9 に記載のシステム。

【請求項 3 1】

加熱サイドを有する蒸気改質器と；

蒸気改質器の加熱サイドよりも下流側にある加熱サイドを有し、蒸気改質器用の蒸気を発生させるための水気化器と；

30

ホットガスを蒸気改質器の加熱サイドに供給するための燃焼域と；を具備し、

蒸気改質器の加熱サイド及び気化器の加熱サイドはそれぞれ、一対の面の間に多数の流路を有し、各面の長さ及び幅は両面間の距離よりも実質的に大きい、オンデマンド燃料改質システム。

【請求項 3 2】

液体燃料を気化器からの過熱された蒸気に導入して、蒸気改質器への流入流を発生させるために作動可能な燃料注入器をさらに含む、請求項 3 1 に記載のシステム。

【請求項 3 3】

システムが始動運転であるか定常状態運転であるかに依存して、ホットガス流量及び改質器への入口の蒸気と炭素の比率を変動させるように作動可能なコントローラをさらに含む、請求項 3 1 に記載のシステム。

40

【請求項 3 4】

前記コントローラは、改質器の第 1 面の金属温度よりも改質器の第 1 面でのホットガスの温度を少なくとも 200 度高くするように作動可能である、請求項 3 3 に記載のシステム。

。

【請求項 3 5】

定常状態運転中の反応器の第 1 面でのホットガスの温度は、改質器の構成物質に対する最大運転温度よりも高温である、請求項 3 4 に記載のシステム。

【請求項 3 6】

50

始動時のS:C比は、運転中のS:C比よりも少なくとも約4倍大きい、請求項1又は12に記載の方法。

【請求項37】

始動時のS:C比は、運転中のS:C比よりも少なくとも8倍大きい、請求項36に記載の方法。

【請求項38】

反応器の第1面でのホットガスの温度は、運転中の反応器の第1面の温度よりも少なくとも200高い、請求項5に記載の方法。

【請求項39】

入口でのホットガスが最大運転温度よりも少なくとも約200高い場合には、反応器の加熱サイドへの入口から離れる方向に反応器を貫通して熱を伝導させて、入口での金属温度が最大運転温度を超えないようにすることをさらに含む、請求項1に記載の方法。

【請求項40】

一体に結合された複数の薄いシートのスタックを含み、該スタックは両端部に整合ヘッダー開口を有する交互に凹んだシートを含み、該シートの凹部はヘッダー開口の間に複数の第1マイクロチャネル流路と、第1流路とは異なる複数の第2流路とを画定し；整合ヘッダー開口は高い形状アスペクト比であり、第1マイクロチャネル流路の一つへの出入口領域におけるフローの累積断面積は、出入口領域からかなりの距離だけ隔たっている第1流路におけるフローの断面積の約20%以内である、流体処理デバイス。

【請求項41】

整合ヘッダー開口は、前記シートの両端部での開口を連結するラインとほぼ平行である主軸を有する、請求項40に記載の流体処理デバイス。

【請求項42】

前記ヘッダー開口は一般に少なくとも3つの側辺を規定する形状を有し、ここで2つの側辺は第3の側辺よりも実質的に長く、2つより長い側辺は第1流路に比較的隣接していて、より短い側辺は第1流路から比較的離隔している、請求項40に記載の流体処理デバイス。

【請求項43】

前記ヘッダー開口は三角形である、請求項42に記載の流体処理デバイス。

【請求項44】

前記ヘッダー開口のアスペクト比は少なくとも約2:1である、請求項40に記載の流体処理デバイス。

【請求項45】

出入口領域におけるフローの累積断面積が、出入口領域からかなりの距離だけ隔たっているフローの断面積の約10%以内である、請求項40に記載の流体処理デバイス。

【請求項46】

前記デバイスは、2種の1気圧での空気の等モル流間での熱交換効率が80%よりも大きな積層流熱交換器であり、各空気流における圧力降下は水柱約2.5インチ(6.35cm)未満である、請求項40に記載の流体処理デバイス。

【請求項47】

一体に結合された複数の薄いシートのスタックを含み、該スタックは両端部に整合されたヘッダー開口を有する交互に凹んだシートを含み、該シートにおける凹部は複数のヘッダー開口の第1の凹部の間に複数の第1マイクロチャネル流路を画定し、複数のヘッダー開口の他の凹部の間に複数の第2マイクロチャネル流路を画定し；

該整合されたヘッダー開口は高い形状アスペクト比を有し、該第1マイクロチャネル流路への出入口領域でのフローの累積断面積は出入口領域からかなりの距離だけ隔たっている該第1流路におけるフローの断面積の約50%以内である、流体処理デバイス。

【請求項48】

第1の流体流と第2の流体流とを混合するデバイスであって、一体に結合された複数の薄いシートのスタックを含み、該スタックは交互に凹んだシートを含み、シート内の凹部

10

20

30

40

50

はスタックの出口面へ第1の流体を搬送する多数の第1流路の少なくとも一部及びスタックの出口面へ第2の流体を搬送する多数の第2流路の少なくとも一部を画定し、該シートはさらに第1流路へ第1の流体を分配する整合ヘッダーホールの少なくとも1セットを含み；

スタック中において第1及び第2流路は熱接触状態にあり；

それぞれの流路を流出する際に第1及び第2の流体が混合するように第1流路の出口は第2流路の出口と交互に配置されている、混合デバイス。

【請求項49】

前記第1及び第2流路の少なくとも一方は、約0.05インチ(0.127cm)未満の少なくとも1の寸法を有する、請求項48に記載の混合デバイス。

10

【請求項50】

多数の第2流路は、前記スタックの出口面とは反対側にある前記スタックの1又は複数の入口面を有する、請求項48に記載の混合デバイス。

【請求項51】

前記スタックの入口面及び出口面は、それぞれ、両面間の距離よりも実質的に大きな長さ及び幅を有する、請求項50に記載の混合デバイス。

【請求項52】

多数の第2流路は、前記両面の間の距離にほぼ等しい長さを有する、請求項51に記載の混合デバイス。

【請求項53】

少なくとも10本の第1流路と少なくとも10本の第2流路とがある、請求項48に記載の混合デバイス。

20

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

一形態において、本発明は、水素リッチ燃料流を燃料電池に提供するための燃料改質システムに関し、特に迅速に始動可能で且つ効率的運転可能なシステムに関する。

【背景技術】

【0002】

燃料電池は、燃料及び酸化剤の電気化学反応からエネルギーを産出するデバイスであり、高い効率と比較的害のない副産物ゆえに魅力的なエネルギー代替物であると考えられている。多くの燃料電池はセル用の燃料として水素を用いるように設計されているが、車載用または携帯発電機として、補助電源ユニット(APU)又はバックアップ電源として使用するなどの多くの用途においては、多量の必要な水素ガスの獲得及び/又は貯蔵が現行では実用的ではない。これを解決するために、より容易に入手可能な源又はより容易に貯蔵される源から必要な時に水素を製造するように、システムが開発されつつある。

30

【0003】

このようなアプローチの一つに、炭化水素燃料を使用可能な水素に処理又は改質することがある。このようなアプローチの利点は、炭化水素燃料が一般に貯蔵しやすく、例えばガソリン、ディーゼル燃料、天然ガスなどの数種の有用な炭化水素類のための多数の分配インフラ(社会基盤)がすでに存在していることである。典型的に用いられている主要な炭化水素改質反応は、水素の適切な收率を達成するために多量の熱及び/又は高められた反応温度を必要とする。これらの高い温度及び/又は熱需要は、始動時のエネルギー消費量及び速度及び燃料電池が製造された水素から有用なエネルギーを発生させ始めることができるまでの時間遅延などのシステム始動に対する取り組みを提示する。

40

【0004】

例えば、蒸気改質反応は、典型的には触媒の存在下で、炭化水素類を一酸化炭素及び水素に酸化するために蒸気を使用する。蒸気改質は、強い吸熱反応であり、反応速度を改良し、水素の平衡收率を改良するために典型的には高い温度で行われる。蒸気改質に基づく燃料処理システムは、本発明者により自動車用に開発されている(Progress on the Deve

50

lopment of a micro channel steam reformer for Automotive Applications, G. A. Whyatt et al., 2002 AIChE Spring National Meeting参照）。しかし、このシステムは、周囲温度から合理的な蒸気改質速度が達成される650付近の運転温度まで始動させるために20分程度を要している。これは商業的実施を妨げ、搭載型燃料処理装置について米国エネルギー省(the U. S. Department of Energy)により確立された始動時間目標、2005年までに1分以内及び2010年までに30秒以内に合致しない。したがって、改良が必要であり、本発明は劇的に始動時間を短縮することができる蒸気改質に基づく燃料処理システムである。

【0005】

しかし、本発明は、本出願人の先の自動車用蒸気改質燃料処理システムについての始動時間を短縮する努力から生まれたものであるが、本発明はこれに限定されるものではないことは理解されたい。例えば、本発明は、多量の熱を要する他のタイプの燃料処理装置と一緒に適用することもできるし、種々のエネルギー発生用途に用いることもできる。さらに、本発明の燃料処理装置に有用なある種の成分及び技術は、他の流体処理システムにおいても有用である。例としては、2種の流体を効率的に混合する新規な混合装置や、マイクロチャネル流体処理デバイスのマイクロチャネル群へのガス流の分配用の改良されたヘッダー設計などがある。

【0006】

[概要]

本発明は、燃料処理システム及び技術並びに種々の用途に有用な独立の流体処理構成成分及び技術を提供する。本発明の実際の技術的範囲は特許請求の範囲を参照することによってのみ決定することができるが、本明細書に開示された実施形態の特徴である本発明のいくつかの側面は概略以下のとおりである。

【0007】

一側面によれば、燃料電池を運転する方法は、燃料改質反応器及び異なるマス流量にて燃焼ガスを改質反応器の加熱サイドを貫通して選択的に搬送するための少なくとも1のブロワーを含む燃料電池システムを準備し；反応器の加熱サイドを流通する燃焼ガスで反応器の改質サイドを加熱することにより改質反応器を始動させ；次いで、反応器を作動させて、加熱サイドを流通する燃焼ガスからの熱により改質サイドで吸熱改質反応を行わせてリフオーム流を発生させることを含む。一改良点において、始動時に加熱サイドを通る燃焼ガスのマス流量は、運転中に加熱サイドを通る燃焼ガスのマス流量の少なくとも約5倍である。

【0008】

別の側面によれば、方法は、チャネルの内部温度を開始温度から昇温された運転温度まで約30秒以内で昇温させるに十分なマス流量で加熱チャネルを流通するホットガスで燃料改質器の吸熱反応チャネルを加熱することにより燃料改質器を始動させることを含む。ここで開始温度は約50未満であり、昇温された運転温度は約600を超える。

【0009】

別の側面によれば、燃料電池システムは、燃料電池と；蒸気及び炭化水素類から燃料電池によって使用されるための水素を発生するように作動可能な蒸気改質器と；蒸気改質器へ蒸気を供給するための気化器と；を具備する。ここで、蒸気改質器は、各面の長さ及び幅が両面間の距離よりも実質的に大きな第1面及び第2面を画定するパネルである。

【0010】

別の側面によれば、燃料電池システムは、燃料電池と；気体状流入蒸気を燃料電池によって使用されるリフオーム流出流に変換するための蒸気改質器と；過熱された蒸気を提供し、蒸気改質器の加熱サイドから下流側にある加熱サイドを有する気化器と；気化器及び改質器の間にあり、液体燃料を過熱された蒸気に注入して改質器への気体状流入流を発生させるための燃料注入器と、を具備する。

【0011】

別の側面によれば、システムは、改質サイド及び加熱サイドを有する蒸気改質器と；改

10

20

30

40

50

質器の改質サイドよりも上流側にある気化サイド及び改質器の加熱サイドよりも下流側にある加熱サイドを有する水気化器と；気化サイド及び改質サイドの間で流体連通する燃料注入器と；を具備する。燃料注入器は、燃料改質運転中に液体燃料を過熱された流に噴霧して改質サイドへの気体状流入流を発生させるように構成されており；気化器及び蒸気改質器の少なくとも一方は加熱サイド流路に対する入口を画定する入口面及び加熱サイド流路への出口を画定する出口面を画定する。ここで、各面は両面間の距離よりも実質的に大きな長さ及び幅を有する。

【0012】

別の側面によれば、オンデマンド燃料改質システムは、加熱サイドを有する蒸気改質器と；蒸気改質器の加熱サイドよりも下流側にある加熱サイドを有し、蒸気改質器用の蒸気を発生させる水気化器と；ホットガスを蒸気改質器の加熱サイドへ供給する燃焼域と；を具備する。蒸気改質器及び気化器の加熱サイドは、それぞれ、一対の面の間に多数の流路を含み、各面の長さ及び幅は両面間の距離よりも実質的に大きい。

【0013】

別の側面によれば、流体処理デバイスは一体に結合された複数の薄いシートのスタックを含み、該スタックは両端部に整合ヘッダー開口を有する交互に凹んだシートを含む。ここで該シートの凹部は、ヘッダー開口の間の複数の第1流路の少なくとも一部及び該第1流路とは異なる複数の第2流路の少なくとも一部を画定し；第1流路の最小寸法は約0.025インチ(0.0635cm)未満であり；整合ヘッダー開口は高い形状アスペクト比であり、第1流路への入口ヘッダー及び出口ヘッダーの少なくとも一部を形成する。

【0014】

別の側面によれば、流体処理デバイスは一体に結合された複数の薄いシートのスタックを具備し、該スタックは両端部に整合ヘッダー開口を有する交互に凹んだシートを含む。ここで該シートの凹部は、ヘッダー開口の第1のものの間に複数の第1マイクロチャネル流路を画定し、ヘッダー開口の他のものの間に複数の第2マイクロチャネル流路を画定する。整合ヘッダー開口は高い形状アスペクト比であり、第1マイクロチャネル流路への出入口領域の累積断面積は出入口領域からかなりの距離だけ隔たっている第1流路の断面積の約50%以内である。

【0015】

別の側面によれば、第1の流体流と第2の流体流とを混合するデバイスは、一体に結合された複数の薄いシートのスタックを含み、該スタックは交互に凹んだシートを含み、該シートの凹部は第1の流体をスタックの出口面に搬送するための多数の第1流路の少なくとも一部及び第2の流体をスタックの出口面に搬送するための多数の第2流路の少なくとも一部を画定し、該シートは第1の流体を第1流路に分配するための整合ヘッダーホールの少なくとも1セットをさらに含み；第1及び第2流路はスタック内で熱接触しており；第1及び第2の流体がそれぞれの流路から流出するときに混合されるように、第1流路の出口は第2流路の出口と交互に配置されている。

【0016】

これら及び他の側面を以下に議論する。

【好みの実施形態】

【0017】

本発明の特徴は特許請求の範囲に特に指摘するが、以下の記述及び添付図面を参照することにより、本発明自身及び本発明を構成し使用する態様をよりよく理解することができるであろう。

【0018】

本発明の原理を理解しやすくするために、図面に示された実施形態を参照されたい。特定の用語が実施形態を記載するために用いられる。しかし、本発明はこれらに限定されるものではなく、特許請求の範囲を参照することによって評価されるべきである。図示されたデバイスにおける代替やさらなる変形及び本明細書に示されている本発明の原理の応用も意図するものであり、当業者によって通常なされるものである。

10

20

30

40

50

【0019】

一形態において、本発明は、蒸気改質反応器と交流パネル形状の水気化器を具備する燃料処理装置に関する。これらは、燃焼ガスで連続的に加熱され、迅速低温始動時に燃焼ガスは実質的に高められた流量でパネルの両面を貫通して流れ、60秒以内に改質器を運転温度に到達させる。パネルは、迅速低温始動時の全体の電力消費を容易に利用可能なバッテリ電源で賄うことができるよう、始動時の増加した流れのなかでも比較的低い加熱サイド圧力降下となるように設計される。改質反応器及び水気化器は、マイクロチャネル構成要素、すなわち流路が1mm未満の特徴的な寸法を有するマイクロチャネル構成要素であってもよい。

【0020】

さて、図1を参照すると、本発明の一実施形態による燃料電池システム20が示されている。燃料電池システム20は、自動車用途に好適な燃料電池であると考えられているいわゆるPEM(プロトン交換膜)燃料電池90[a. k. a SPE(固体ポリマー電解質)燃料電池]に基づく。システム20は、炭化水素燃料、空気及び水の供給により有用な電気エネルギーを発生させるように構成されており、システム20は燃料改質器30、水気化器40、水性ガスシフト(WGS)反応器70、優先的酸化(PROX)反応器80及びPEM燃料電池90を含む。

【0021】

燃焼燃料22及びPEMセル90からのアノード排気28は、空気26及び/又は24と一緒にになり、得られるホットガス32は改質器30の加熱サイドを流通する。次いで、出口ガス34は気化器40の加熱サイドを通して送られる。燃焼ガスが水回収用の排出口54に到達する前に、ガス36中の残留熱は復熱器50内で捕捉される。水38は気化器40の気化サイドに送られ、燃料42は気化器40から出る蒸気44に混合され、次いで復熱器60内で加熱されて、改質器30への気体状流入物46を発生させる。

【0022】

燃料42は典型的には液体炭化水素であり、任意の慣用の態様で蒸気44に添加されてもよい。例えば、別個の燃料気化器を設けて、蒸気44と混合する前に燃料を気化させてもよい。しかし、別個の燃料気化器は、低温始動時に加熱される必要がある追加の構成要素である。図示した実施形態において、別個の燃料気化器は用いていない。むしろ、液体燃料42は、燃料注入器又は噴霧器を用いて蒸気44に直接導入される。この態様において、過熱された蒸気44からの熱は燃料を気化させる作用をする。

【0023】

改質器30は、気体状流入物46内の炭化水素及び蒸気を反応させて水素及び一酸化炭素を含有するリフオメート48を発生させる触媒を含有する改質サイドを有する蒸気改質反応器である。用いられる燃料42のタイプに応じて任意の種々の蒸気改質触媒を用いることができる。メタノール専用触媒は、リフオメート内で1%CO未満の低温変換用として知られている。他の触媒は広範囲の炭化水素類に対して適用可能であり、ほぼ平衡のCO濃度を有するガス混合物を発生させる。マイクロチャネル蒸気改質器で達成可能な高速の熱および物質移動の利点を得るために、高活性触媒が好ましい。適切な触媒の例示及びマイクロチャネル内で蒸気メタン改質を行う特定の技術は、米国特許6,488,838号明細書に記載されている。

【0024】

リフオメート48は、復熱器60を通過して、その熱の幾分かが再捕捉される。リフオメート48は、PEMセル90を保護するために除去されるべき一酸化炭素などの不純物を含む。システム20において、リフオメート48を流路52、66及び68に沿って水性ガスシフト反応器70を通過させ、次いで酸素を供給するための空気64の添加後、優先的酸化反応器60を通過することにより精製が達成される。水性ガスシフト反応及び優先的酸化反応の両者に対する冷却は、空気62及び60などの適切な冷却流体で与えられる。単一のプロワー又は空気源56をシステム空気需要のすべてに対して用いてもよいが、反応器70、80及び燃料電池90の変動する需要に対応するために個々のプロワーを空気供給ライン56の点線で示した部分に沿って用いることもできる。

【0025】

PEM燃料電池230において、精製された水素68はアノードサイドに供給され、ここで水素は2個の水素イオンと2個の電子とに分割される。水素イオンはアノードからカソードへと、連続的に水で湿潤化される水素化固体電解質を通過することによって移動する。電子は、外部回路内でアノードからカソードへと通過して電力を供給する。カソードにおいて、水素イオン及び電子は空気58中の酸素と反応して、得られる水蒸気及び酸素枯渇空気を含有する排出流27は他の空気排出物と一緒にになり、復熱器50内で加熱され、次いで26を介して燃焼域まで送られてもよい。

【0026】

さて図2を参照すると、図1の燃料電池システム20の燃料改質サブシステム100が概略示されている。燃料改質サブシステム100は、始動時に改質器30及び気化器40の迅速加熱を提供し、次いで運転中のより温和な加熱を賄うように設計されている。より完全には後述するように、図示した実施形態において、始動時及び運転中の加熱を変動させる基本的な機構は、燃焼ガスの流量を変動させることである。空気入口25は、空気26及び必要に応じて（すなわち始動用）補助空気24を受け入れ、適切な1個又は複数個のブロワー（図示せず）を具備するミキサー110を通して空気を運ぶ。ミキサー110はさらに、燃料22を受け入れ、燃料／空気混合物を燃焼域111に提供する。燃焼域111の内面114は、燃料／空気混合物を点火するスパークプラグ112を受け入れるポートを含む。得られるホット燃焼ガスは、改質器30を通してその加熱サイド入口面116からその加熱サイド出口面118まで送られ、次いで気化器40を通してその入口面120からその出口面122まで送られる。気化器40の加熱サイドの出口36は、54で排気される前に空気復熱器50を通して通常送られるが、弁104は復熱器50をバイパスする補助排気102へのアクセスを与える。補助排気102を始動時に部分的に又は完全に用いて、復熱器50を貫通する燃焼ガス流に起因する追加の圧力降下を減少させ又は排斥することができる。

【0027】

腐食を減少させるために、燃焼域111は内面114が非金属性であるように好ましくは構成される。例えば、金属製外シェルを内面が改質器111の入口面116に当接するポイントまで、絶縁材料で裏打ちしてもよい。ラボ設計の簡便さのために、システム200は、燃焼燃料として水素ガスを使用するように構成した。図10～13に関して後述するように、ミキサー110を利用して、水素ガスを空气中に効率的に分配させて、チャンバ111内の均一な燃焼を達成した。他の実施形態において、燃料22はガソリンなどの液体燃料42と同じであり、スパーク燃焼用の液体燃料（すなわち、ガソリン）を注入する噴霧器又は燃料注入器をミキサー110の代わりに用いた。触媒燃焼又はスパークと触媒燃焼との組み合わせを改質器30及び気化器40を加熱するための熱を供給するために用いることもできた。

【0028】

本発明の一側面において、用いられる改質器30及び気化器40は図8及び9に示すような交流パネル形状である。より詳細には、加熱サイドは改質器30及び気化器40のそれぞれの入口面116、120及び出口面118、122の間の多数の小さなフローチャネル425から構成される。これらの入口面及び出口面の長さL及び幅Wはそれぞれ、両面間の距離すなわちパネル厚Tよりも実質的に大きい。例えば、長さL及び幅Wはパネル厚Tの少なくとも2倍、3倍又は5倍であってもよい。

【0029】

改質器30及び気化器40は、一体に結合された複数の薄いシートのスタックから構築されてもよい。ここで、シートの凹部はデバイスを貫通する流路の少なくとも一部を画定する。例えば図8に示すように、改質器30は、頂部プレート及び底部プレートの間に挟持された加熱サイドシート420及び改質サイドシート430の交互スタックを含む。加熱サイドフローチャネル425は、加熱サイドシート420内に形成される。シート420、430の各々は、蒸気／燃料入口46及びリフオメート出口48に整合するヘッダー／ホール（図示せず）を有し、改質サイドシート430はホールの間に改質フローチャネル（図示せず）を画定する。

【0030】

10

20

30

40

50

同様に、図9に示すように、気化器40もまた、加熱サイドシート520及び改質サイドシート530の交互スタックを含み、加熱サイドフローチャネル425は加熱サイドシート520内に形成される。シート520、530の各々は水入口38及び蒸気出口44と整合するヘッダーホール(図示せず)を有し、気化サイドシート530はホール間の気化フローチャネル(図示せず)を画定する。

【0031】

改質器30(及び/又は気化器40)内で効率的な熱移動を増加させるために、改質フローチャネル(気化フローチャネル)又は加熱フローチャネル425のいずれか一方又は両者は、例えば約0.1インチ(0.254cm)未満又は0.5インチ(1.27cm)未満、又は0.025インチ(0.0635cm)未満のマイクロチャネル範囲の最小寸法を有する。別の側面において、加熱フローチャネル425及び/又は改質(又は気化)フローチャネルはそこを通るフローのレイノルド数(Re)が層流の範囲、例えば約2,000以下であるような寸法である。例えば、定常状態運転中の燃焼ガスフローはReが100~500付近であってもよく、迅速始動時(後述する)の燃焼フローはReが1000付近であってもよい。改質器30及び気化器40として用いることができるこれら及び他の適切な流体処理ユニットに対するさらなる詳細は、本出願人の米国特許出願U. S. Application Ser. No.10/164,969(2002年6月6日出願)「流体処理デバイス及び方法」(PCT/US/02/18079)及び米国特許出願U. S. Application Ser. No.10/385,831(2003年3月11日出願)「温度制御を有するマイクロチャネル反応器」に記載されている。

【0032】

図8及び9の交流パネル形状において、装置30、40を通る加熱サイドフローチャネル425は気化器又は改質フローチャネルよりも比較的短い長さである。例えば、それぞれ、気化又は改質フローチャネルの長さの1/4、1/8、1/16又は1/40であってもよい。圧力降下は流路長さと共に増加して、流路容積の減少と共に増加するから、この短い長さは、加熱サイドを貫通する圧力降下を大気圧近傍の比較的低レベルにし、特定の用途において有用なある種の設計上の利点を呈する。

【0033】

例えばシステム200において、始動時の熱需要及び運転時の熱需要の両者は、燃焼ガスにより提供される。運転の1モードにおいて、迅速低温始動を達成するために必要な迅速加熱は、温度での安定運転中のマス流量と比較して大幅に増加したマス流量の燃焼ガスにより与えられる。特定の形態において、これは、始動時のマス流量を定常状態運転中の燃焼ガスのマス流量の少なくとも2倍、少なくとも3倍又は少なくとも5倍に増加させる。7~10倍の増加もまた予測される。単一の可変速度プロワー又は一対のプロワー(例えば、高低フロープロワー)を用いて、燃料22の增量に対応して流量を変動させることができる。場合によっては、始動時に、改質器30を取り巻くか埋め込まれている電気ヒーターなどの補助的な加熱を用いてもよい。

【0034】

改質器の迅速加熱を達成するための追加の機構は、非常に高い燃焼ガス温度で運転することであり、いくつかの実施形態において、改質器30の設計は、燃焼ガス温度を改質器30の最大許容作動温度を大幅に超えさせるように選択される。図2のサブシステムにおいて、最高温度は改質器の入口面116において経験されるであろう。したがって、改質器の面116の温度は最大許容作動温度を超えることはできないから、面116における燃焼ガス温度に対する限界がある。これは、用いられる物質に依存する値であり、約1000時間連続運転後にクリープ及び/又は腐食に起因する劣化が顕著になる温度であるという。後述する実施例において、改質器は316Lステンレススチールから構成されているから、最大作動温度は約650であった。それにもかかわらず、改質器30は、短時間試験で顕著な劣化なしに1000付近の面116における燃焼ガス入口温度に対する耐性があった。これは、1000の温度に暴露されているにもかかわらず、改質器30の入口面116は1000に到達しなかったことを意味する。インコネル合金(Inconel alloy)などの実質的により高温の最大運転温度を有する物質からの改質器の製造もまた意図されるものである。

10

20

30

40

50

【0035】

入口面116でのガス温度が改質器の入口面116での最大作動温度を大きく超えることができる一つの理由は、改質サイドへの効率的な優れた熱移動である。別の理由は、パネルを通しての熱伝達（すなわち、面116から面118へ）である。パネル厚Tが比較的小さい場合には、このパネルを通しての面-面間熱伝達は、改質器の入口面116及び出口面118の間の温度差を大幅に減少させる。したがって、本発明のいくつかの側面において、改質器は、燃焼ガス入口温度が改質器30の最大許容作動温度よりも少なくとも100 高い状態で運転する（少なくとも始動時）。別の側面において、これは少なくとも200 又は300 高い。

【0036】

入手可能な非常に多種の空気移動設備があるが、費用（及び質量）は達成可能な圧力降下と共に一般に増加する。低コストにおいて、種々の廉価なファン及び遠心分離プロワーが水柱5インチ（12.7cm）未満で、より一般的には水柱3インチ（7.62cm）未満で空気を提供することができる。ラジアルプロワーなどのわずかに高価なモデルは一般に水柱8~12インチ（20.32cm~30.48cm）で可能である。かなり高価な回生式プロワーは水柱140インチ（355.6cm）又は5psi付近で可能であり、最後に最も高価で最も大きく最も重いオプションは、100psiまで又はそれ以上の圧力を生じさせるロータリーローブ（rotary lobe）、スライディングベーン（sliding vane）及び往復ピストンコンプレッサなどの容積式圧縮機及びプロワーである。比較的低い燃焼サイドの圧力降下を有するように燃料処理装置100を設計することは、携帯用途に顕著な利点を有する低コストで軽量の設備を用いることを可能とする。

10

20

30

40

【0037】

さらに、ファンを出る空気馬力並びにファンモーターの電力要求は、流体流量及び提供される圧力増加に比例する。よって、水柱4インチ（10.16cm）での所与の空気フローを与えることは、5psi（水柱138インチ（350.52cm））で提供される同じフローのわずかに3%の力を要求するに過ぎない。自動車用途において、例えば、始動時に空気移動に必要な力は、自動車に搭載されるバッテリなどの代替エネルギー源により供給される必要がある。必要とされる電力が大きくなるほど、大型で重いバッテリが必要となる。逆に、始動時に燃焼ガスを駆動させるために消費される電力量が低いほど、始動時に必要であるバッテリ電力は小さい。例えば、50kWのPEM燃料電池用のリフオメートを提供する大きさのシステム100は、大気圧近傍で600scfm付近の始動空気流量を利用すると予測される。水柱10インチ（25.4cm）で運転する75%効率のプロワーについて、これは、慣用の自動車用鉛蓄電池により到達可能な電力である約931W（ワット）を要するであろう。

【0038】

本発明の蒸気改質システムは、種々の設計に実装することができ、いくつかの設計は本明細書に記載のいくつかの利点を達成し得るが、すべての設計がすべての利点を達成するわけではないことは理解されたい。それにもかかわらず、本発明の一側面は、始動時の空気フローエネルギー需要が燃料電池の定常状態電気出力の約8%未満の量であるか、又は4%未満もしくは2%未満の量であるように構成された蒸気改質システム100を有することは理解されたい。追加の又は別の側面は、始動時の改質器及び気化器の加熱サイドを通しての圧力降下が実質的に1psi未満、例えば各ユニットを横断する水柱約10インチ（25.4cm）未満となるようにシステム100を構成することである。別の形態において、各ユニットを通しての圧力降下は各水柱8インチ（20.32cm）未満又は各水柱4インチ（10.16cm）未満である。さらに追加の又は他の側面は、大気温度から運転温度まで（例えば、50 以下から60 0 超過まで）の始動時間が約60秒未満、好ましくは30秒未満、より好ましくは約15秒未満であるようにシステム100を構築することである。

40

【0039】

燃料処理システム100の始動時の制御変数は、気化器へ供給される燃料42及び水38の相対量、換言すれば改質器30への入口46での蒸気対炭素比（S:C）の選択を含む。本発明の一側面において、このS:C比は、システム100の定常状態運転中に用いられるS:C比よりも例えば4倍、6倍又は8倍、実質的に大きい。この増加したS:C比は種々の目的を奏する

50

。第一に、蒸気の比率が高い場合には、図1のWGS反応器70及びPROX反応器80（又は後述する図3の膜分離器210）などの下流側水素精製構成要素に対して熱を移動させる。このことは、別の加熱源と一緒に用いられる場合には、これらを運転温度にまで到達させるために又はこれらの始動時間を短縮させるために用いることができる。

【0040】

始動時の高いS:C比の別の目的は、改質器出口48におけるCO濃度を減少させることである。例えば、図17は、イソオクタン供給物の蒸気改質に対する種々の温度での平衡CO含有率とS:C比との間の関係を示す。18~24の間の目標S:C比は、リフオメート中のCO含有率を4%未満に削減するように選択される。WGS反応器（又は他の精製設備）は温度に到達しているが、多量のCOを変換してリフオメートを精製することはできない。よって、リフオメート48のCO含有率を減少させることは、温度に達成する間に高WGS活性に対する需要を減少させる。

【0041】

多くの用途において、S:C比、燃料供給速度及びプロワー速度を含む制御変数の各々は始動コントローラ（図示せず）により制御されることは理解されたい。コントローラは、システムの運転条件を分析するためのハードウェア（例えばコンピュータ）及びロジック（論理）（例えばソフトウェア）を含む。このコントローラは、例えば燃焼ガス流に沿って及びリフオメート48内にある温度センサなどのシステム全体の入力センサから適切な入力を受けることができ、始動S:C比及び燃焼ガス流量から定常状態パラメータへと変遷する時をロジックが決定する。

【0042】

蒸気改質サブシステム100は種々の燃料電池環境に適合することができることは理解されたい。例えば、別の実施形態に従う燃料電池システム200は図3に示されている。燃料電池システム200は、図1のシステム20と同じように機能して、システム200が水素膜分離器210を用いてリフオメート52を精製することを不要にする。膜は典型的には、選択的に水素を通過させるフィルム又は物質である。保持液（retentate）サイドと呼ばれる膜の流入サイドは、浸透液（permeate）サイドと呼ばれる流出サイドよりも典型的には高い圧力である。浸透液サイドと保持液（retentate）サイドとの間の圧力差は、水素の分離を駆動させることを補助する。適切な膜としては、例えば、パラジウム及びパラジウムと銀又は銅の合金の薄いチューブ又は箔を挙げることができる。水素浸透液と呼ばれる膜210を出る精製水素流214は、クーラー220内で空気流56により冷却された後、燃料電池230に供給される。膜又は保持液（retentate）212を通過しなかった物質は、処理熱を提供するために燃焼用に再循環されてもよい。

【0043】

また別の実施形態において、アルカリ燃料電池、リン酸燃料電池、溶融カーボネート燃料電池などの異なるタイプの燃料電池、例えば、図4は固体酸化物燃料電池310を使用するシステム300を示す。

【0044】

これまで記載してきた燃料改質はただ1個の燃料改質器30を利用していたが、本願は、多数の個々の燃料改質器が用いられる場合も意図している。図5は、単一の気化器40と直列の一群の燃料改質器30を運転するための一態様を概略的に示す。空気は、ダンパー176の位置に応じて大容量プロワーB2又は小容量プロワーB1のいずれかによって、加熱経路170に沿って供給される。迅速始動に対して位置づけられる場合、図5に示したように、大容量プロワーは空気を経路170に下向きに流し、一連のパネル型改質器30を通して流す。一連の燃料注入ポート172は、各改質器30及び気化器40から上流側にある。これらのポート172は燃料を供給し、次いで燃料は各パネルの前方で触媒的に又はスパーク燃焼して各改質器30を加熱する。加熱経路170に沿った温度を測定することができ、注入器172の各セットに供給された燃料の量はすべての改質器30の均一な加熱を確実にするように制御することができる。気化器40を通過後、燃焼ガスは戻り経路174を辿り、直列の第1の改質器30から上流側で空気と熱を交換する。

10

20

30

40

50

【0045】

図6及び7は、通常運転中には直列フローで運転するが始動時には平行フローで運転するように構築された一群の改質器30及び1個の気化器を示す。図6に示すように、始動時に大容量プロワーB2が作動しており、燃料は1セットのポート173を通して供給されている。得られる燃焼ガスは、次いで改質器30及び気化器40を通って平行に流れる。

【0046】

始動後、一連のダンパー180、181及び183、184は、改質器30を小容量プロワーB1から下流側の連続流に置くように作動し、燃料は図5に関して上述したように注入器172を介して供給される。

【0047】

さて図10~13を参照すると、ミキサー110の追加の特徴が示されている。上述したように、燃焼の前に水素ガスを空気に効率的に混合するためにミキサー110は図2のラボ型を用いた。

【0048】

しかし、より一般的には、2種の流体を効率的に混合することが必要である任意の流体処理環境中でミキサー110を用いることができる。ミキサー110は、パネル形状のものであり、気化器40及び改質器30に関して上述したように一体的に結合された複数の薄いシートのスタックから構築されている。図11~13は、個々のシート380、390、400を示し、凹部（エッティングにより形成された）を示すためにクロスハッチングが用いられている。米国特許出願U. S. Application Ser. No.10/164,969号により完全に記載されているように、多数（この場合は5）の個々のミキサー110用のシートが単一のシムの上に並列に存在しており、結合プロセスを促進し、結合後に分離される。結合は、拡散接合でもよく、各シムの左右のマージンは、拡散接合中に圧力を付与するための外部ラムと整合するホールを有する。シートは図10Aに示されるようにスタックされ、各シートは、スタック中で整合して第1の流体ヘッダーを形成する一対のヘッダーホール352を有する。

【0049】

第2の流体フローチャネル354は、背面（図示せず）に入口を有し、混合面350に出口を有し、一対の対面するシート380から構築される。第1の流体フローチャネル392への入口はミキサー110の内部にあり、出口は混合面350上で第1の流体チャネル354の出口と交互に配置されている。示した実施形態において、第1の流体チャネル392は第2の流体チャネル354よりも実質的に狭くなるように構成されていて、これらは混合面350上のこれらの出口において支持リブ394を含む。一形態において、第1の流体フローチャネル392は、第2の流体フローチャネル392の全高の約1/4である。

【0050】

運転時に、第1の流体はミキサー110の頂部（図10視）に入り、内部分配シート400の蛇行チャネル404内を通過する。蛇行チャネル404は、第1の流体を背面に向かって、ミキサー110の背面内部にあるホール402まで搬送する。第1の流体は、シート400内のホール402を通って第1の流体フローチャネル392内に滴下し、次いでチャネル392の長さ方向に、混合面350における出口まで流れる。混合面350上の異なる流体チャネルの交互に配置された出口は、流体を効率的に混合する作用をする。さらに、経路392及び354は、デバイスを貫通して熱接触状態にあり、不均衡配分を引き起こすであろう温度勾配を減少させる。

【0051】

フローチャネルは、両方の流体のフローが層流になるようにマイクロチャネル規模であり、シムは熱移動の大半が並流（co-current flow）であるチャネル354と392との間で生じるように設計されている。高さが小さいほど熱移動係数を増加させ、マイクロチャネル内の熱移動はチャネルの高さに直接関連するので、これはチャネル392の高さを分配チャネル404の高さよりも小さく設計することにより達成され得る。これはさらに、チャネル392内の流体1に対する圧力降下を集中させるように作用し、さらに均一な分配に寄与する。

【0052】

10

20

30

40

50

ミキサー110は種々の用途及び2種類の流体の均一な制御された混合を達成するために必要であるときには基本的にいつでも適用可能であることは理解されるべきである。一つの用途は、燃焼（触媒的又は火炎燃焼のいずれか）に先立ち、2種類の流体を混合することである。空気と燃料との均一な混合物を提供することにより、触媒上での熱の発生は高度に均一であり、触媒を劣化させるかその性能を減少させる触媒上での局所的温度変動を防止すると考えられる。

【0053】

別の例は、蒸気改質器の前段での蒸気と気化燃料との混合である。蒸気改質器に反応物質を導入する前に、蒸気と燃料との均一な混合物及びコークス化を導く局所的に低い蒸気比率を有していることが必要である。均一な混合は、このリスクを減少させ、蒸気を発生させる必要性を減少させることに起因してエネルギーを節約することができる。

10

【0054】

別の例は、往復ピストンエンジンへのガスの導入前に混合することである。いくつかの用途において、主としてNOx減少のために、ピストンエンジンへ流入する空気への気体状添加剤の導入が考えられる。この添加されたガスは、水素又は改質器からのリフォーム又はエンジンに循環して戻される排出ガスであってもよい。ディーゼルエンジンの場合には、このデバイスは、流入する空気及び再循環した排出ガスの均一な混合物を与えるであろう。これは、煤煙発生領域において及びエンジン出力で負の影響が生じる前に、より多量の排出ガス再循環を許容できる（化学量論的空気により近い状態で運転する能力）利点を有するであろう。

20

【0055】

別の用途は、高められた温度のガス流の湿潤化である。蒸気をホットフローガス流に添加することが望ましいならば、蒸気を流体1として流れている流2に添加してもよい。この用途において、復水が均一なフロー条件を乱すかもしれない、温度はデバイス内部での復水を避けるようにすべきである。

【0056】

別の用途は、流体に対する混合時間を短縮することである。いくつかの用途において、2種類の反応体の混合時間は、望ましくない副反応の程度に影響を与える。反応体の迅速な混合は、所望の生成物の收率を最大にする。これは通常、高剪断ミキサーを用いることによって達成される。この混合デバイス110を通してこのようなプロセスに反応体を供給することによって、所望の混合を達成するための時間を最小にすくことができる。流体を混合することが困難な場合には、より短い時間内で完全に均一な混合を達成するために、デバイスを機械的ミキサーと一緒に用いることができる。これは、出力が流体に対する混合時間に関連するプロセスの生産性を増加させるだけでなく、混合集約プロセスに関連する時間及びエネルギーコストを削減することができる。

30

【0057】

さて図14、15及び15Aを参照すると、図2の復熱器50の追加の特徴が示されている。復熱器は、上述のように複数の薄いシートのスタックとして構成されるが、単一のシム（図15）を用いるだけである。シムのエッチングされたサイドは、ヘッダーが互いに面するように、次のシムのエッチングされたサイドに面するように組み立てられる。このようなシム対は、ヘッダーホール615に対して開いている単一の流路650を画定する。この流路650は、シム対がスタック内で図15に示すように底部シムと一緒に方向付けられているかあるいは180°回転しているか（エッチングされたサイドが上に向いたままである）に応じて、第1の流体流路もしくは第2の流体流路のいずれかとして機能する。シムが180°回転する場合には、すべてのヘッダーホール615、625は整合し、スタックの隣接する層内で、流路650に対して開いているヘッダーホール615のセットは流路650に対して閉じているヘッダーホール625と整合することは理解されるべきである。

40

【0058】

したがって、図14は、図15のシム対の交互スタックを有するように構築されたデバイスを示す。マニフォールドが加えられて第1の流体用の入口620及び出口630を作り、他のヘ

50

ッダーホールのセットの底辺640から切り出された部分は第2の流体用の入口610及び出口(図示せず)を作る。シムの各サイドには奇数個のホール615、625(この場合には各サイドに5個)があるので、3個の第1の流体入口620と2個の第1の流体出口630(逆もまた同じ)がある。同様に、向流熱交換器形状内に3個の第2の流体入口610とただ2個の出口(図示せず)がある。

【0059】

図15Aに示すように、ヘッダーホール625及び615は高いアスペクト比構造である。特に、これらは底辺640の長さの少なくとも2倍の高さを有する三角形である。ホール615は、フローチャネル650への各流体用の入口として作用する2個のより長い側辺642を有し、比較的短い底辺640はフローチャネル650から比較的離れて配設されている。複数の支持リブ644は、流路650に開口を広げ、支持構造646は三角形の頂点である。リブ644及び構造646は、スタッツの拡散接合構築の間、隣接するシムの下側と結合し、交互の層へのフローからヘッダーホールをシールすることを保証する。

【0060】

この高いアスペクト比ヘッダーホールを用いることで、流路650の入口(および出口)領域における断面積(すなわち、支持リブ644の間でエッジ642に隣接する流路650の部分)を増加させる。目的は、これらの入口(または出口)領域(すなわち、ヘッダー615の各々に対する)にわたる流体フローに対する累積断面積を、流路650の中心により近い(すなわち、流路650の出入口領域から離れる)流体フローに対する断面積により近く符合させることにある。断面積を符合させることは、流体速度を符合させ、チャネル650を通過するフロー全体に対する入口損失および出口損失を減少させる。これらの断面積を正確に符合させることは現実的ではないかもしれない。一形態において、マイクロチャネルへの入口(または出口)領域内での累積断面積が、入口(または出口)領域から実質的な距離だけ離隔したマイクロチャネル内のフローの断面積の約50%以内にあるように、ヘッダーは設計される。より好ましくは、約30%、20%または10%以内である。

【0061】

例えば、向流マイクロチャネル空気-空気復熱器に対する従来の設計は、四角形の一つの側辺だけが流路に対して開いていた四角形ヘッダーホールを用いていた。結果として、入口および出口領域における速度は、流路熱交換領域の中央における速度の2倍以上であった。流路650の入口および出口での速度変化を減少させることは、圧力降下を減少させる作用をする。例えば、図示した層流熱交換器は、1atm圧力での2種の空気の等モルフロー間で80%を超える効率とすることが可能である。このとき、各空気流での圧力降下は水柱約2.5インチ(6.35cm)未満である。

【0062】

より一般的には、これらのヘッダーホールは、マイクロチャネルへ入る圧力損失およびマイクロチャネルから出る圧力損失が問題となる任意のマイクロチャネルデバイスで用いることができる。

【0063】

本発明の実施形態のいくつかの特定の特徴を示す特別の実施例を参照されたい。しかしながら、これらの実施例は説明のために与えられているものであって、本発明の範囲を制限するものではないことは理解されたい。

【実施例】

【0064】

燃料処理装置を図2に従って構築した。改質器30を316Lステンレススチールシムのスタッツから構築した。スタッツ内の各改質サイド流路をこれらのシムから構築した。触媒フェルトに必要なギャップを与えるセンタースペーサーを、フェルトを保持しフェルトを通過する反応物質(reactant)流路を画定する支持リブを有する対面するエッチングされたシムの間にサンドイッチした。反応物質流路を形成する同様の3種のシム技術は、本出願人の米国特許出願U. S. Application Ser. No. 10/385,831(2003年3月11日出願)により完全に記載されている。拡散接合の後、パネルのエッジにアクセススリットを切り、面の

10

20

30

40

50

間でスペーサーシムにフェルトを長手方向にスライドさせ、次いで、一片の金属でエッジを再度シールすることにより、触媒フェルトをスタックに追加した。一対の対面するシムから燃焼サイドを形成し、0.02インチ(0.0508cm)深さの燃焼フローチャネルを作った。48セットのこれらのシムをスタックして、3.6インチ(9.144cm)高さ、2インチ(5.08cm)幅、0.45インチ(1.143cm)厚のコアシムスタックを有する反応器を形成した。反応器の各サイドに内部ヘッダーを含ませて、2.5インチ(6.35cm)まで幅を増加させる。

【0065】

気化器40もまた、316Lステンレススチールシムのスタックから構築した。一対の対面するエッティングされたシムは蒸気/水流路を提供し、一対の対面するエッティングされたシムは米国特許出願U. S. Application Ser. No. 10/164,969(2002年6月6日出願)により完全に記載されているような燃焼流路を提供した。気化サイド上では、水チャネルを0.005インチ(0.0127cm)深さにエッティングし、蒸気チャネルは、組み合わされたエッティング深さ0.01インチ(0.0254cm)を有していた。燃焼サイドは、組み合わされたエッティング深さ0.01インチ(0.0254cm)のチャネルを有していた。気化器を、29の燃焼ガス層で挟まれた28の蒸気/水層から構築した。結合して、頂部プレートおよび底部プレートを組み込んだ後、気化器は、約5.25インチ(13.335cm)長さ、3インチ(7.62cm)幅、0.185インチ(0.4699cm)厚であった。

【0066】

燃料42はイソオクタンであり、ガソリンを模るために選択された。研究室での利便のために、燃焼燃料22は水素ガスとした。

2種の高速始動試験に対するリフオメートフローおよびシステム温度は図16a~fに示す。燃焼プロセスに対する空気流量は1000s1pmであった。100s1pmの水素フローを、マイクロチャネルミキサーを用いて空気流に混合させ、スパークプラグで着火して必要な熱を発生させた。図16a~cは、バルブ108を閉じ、及び/又は復熱器バイパス106を運転しない状態での試験を表す。図16d~fは、復熱器バイパス106が運転状態にある場合の比較結果を表す。蒸気をシステムからの非凝縮性ガスで置換する場合に、システムから約12秒の短いパルスのガスが流れる。完全なリフオメートフローは、これらの2種の試験で30秒(図16a)と22秒(図16d)に生じた。22秒の始動試験では、フローを分流させてサンプルラインをフラッシュし、次いで、排気されたサンプルシリンドを充填する。リフオメートのガスクロマトグラフィー分析は、72.3%H₂、6.1%CO、19.1%CO₂および0.24%CH₄の乾燥基準組成を与えた。低い変換率(69%)および平衡CO濃度(4%が平衡であった)よりも高いCO濃度は、高速始動試験に関係ない触媒問題に起因するものと考えられた。燃焼サイド(図16b、16e)での温度は、パネル断面を等間隔に横断する8個の熱電対の平均であり、改質サイド(図16c、16f)上の温度は、単一の熱電対を表す。リフオメート製造における振幅は、燃料ポンプのピストンストロークの期間に対応する。パルスダンパーは、脈動を排除することができるが、過渡的応答を遅くし得る。

【0067】

復熱器バイパスでの試験はリフオメート製造を速やかに達成したが、これがバイパスの結果であったとすれば、改質器での燃料のより早い到達を生じた第2の試験での燃料注入ラインにおける空の容積が減少したか否か、明らかではない。復熱器バイパスを利用する同じシステムでの引き続いての試験(データを示さず)は、始動が12秒で達成された。これらの引き続いての試験において、燃料ポンプは、通常の速度よりも速い速度で始動し、燃料改質が生じた形跡があったならば、燃料ポンプをダイヤルで調節して定常状態速度まで下げた。

【0068】

始動時には、蒸気:炭素(S:C)比(100%燃料フローで)が18:1~24:1の範囲となるように目標を置いた。上述のように、蒸気のこの高い比率は下流側のWGS反応器およびPROX反応器に熱を与え、運転温度まで上昇させるであろう。下流側の反応器の概算質量および計画された蒸気比率に基づいて、WGS反応器およびPROX反応器は、このS:C範囲での過剰の熱で運転温度まで約60秒以内に達し得ると予測される。

10

20

30

40

50

【0069】

定常状態において、燃焼サイド流量は100~110slpm (ref 21.1) であり、圧力降下は反応器を横断する方向で1.1インチ (2.794cm) 以下H₂Oであり、気化器を横断する方向で0.14インチ (0.3556cm) 以下H₂Oであった。30秒での現行の迅速始動試験において、完全なリフォームが製造される場合、燃焼サイド空気流量は1000slpmに維持され、水素は経時に減少して燃焼入口を1000未満に維持する。反応器パネルおよび気化器パネルを横断する圧力降下は、高フロー高温条件下でそれぞれ14インチ (35.56cm) および8インチ (20.32cm) であった。

【0070】

いくつかの変更が現行のシステム性能を改良するために計画されている。第一に、反応器をインコネル (Inconel) 合金で製造し、高温運転を可能とする。これは、改質器の熱質量を現行の値の1/3未満まで減少させるであろう。反応器質量の追加の40%は、設計変更により排除されると予測される。用いられている総空気フローは、より低い空気流量により高い燃焼温度を用いることにより減少するであろう。始動時 (並びに定常状態で) の空気フロー容量および圧力要求を減少させるために、燃焼ガスサイド上での減少した速度と一緒に高い温度駆動力が利用されるであろう。現在の目標は、50kWeシステムに対する始動空気フローを5インチ (12.7cm) ~ 10インチ (25.4cm) H₂O範囲の最大圧力降下を伴う450~600scfmフロー範囲にすることである。10インチ (25.4cm) H₂Oで600scfmを与える75%効率のプロワーに対する機械的力の入力は931wであり、空気移動は慣用の自動車用鉛蓄電池の及ぶ範囲内にある。

10

20

30

40

【結語】

本発明を図面および上記に詳細に記載してきたが、これらは発明の説明のためであり、本発明を限定するものではない。わずかに数種の実施形態だけを示し記載してきたが、本発明の範囲内で行われる変化、均等物および変形は保護されるべきである。本明細書に記載した実験、実験例または実験結果は本発明の説明を意図するものであり、本発明の範囲を何ら限定するものではない。さらに、いかなる理論、作用機序、検証または本明細書に記載の知見は、本発明の理解を深めることを意図するものであって、このような理論、作用機序、検証または知見によって本発明を限定するものではない。

【0071】

よって、本記載の特定例および添付図面に本発明の範囲を限定すべきでない。むしろ、本発明の範囲は添付の特許請求の範囲を参照することによって評価されるべきである。特許請求の範囲を読む際に、「1の」「単数の」「少なくとも1の」および「少なくとも一部」などの用語は、特にことわらない限り、ただ一つのものに限定することを意図しない。さらに、用語「少なくとも一部」及び/又は「一部」が用いられる場合、特にことわらない限り、一部及び/又は全体を含み得る。同様に、電気デバイスまたは流体処理ユニットに関して、用語「入口」または「出口」が用いられる場合、文脈に応じて単数形または複数形および1以上の単独チャネルまたは流体ラインを含むことを理解すべきである。最後に、本明細書中に引用したすべての刊行物、特許および特許出願は、たとえ特別におよび個別に参照により全体として本明細書に組み込まれるべきことが示されていたとしても、本明細書の開示と矛盾しない限度において参照されるべきである。

40

【図面の簡単な説明】

【0072】

【図1】図1は、一実施形態による燃料電池システムの一般的概略ダイアグラムである。【図2】図2は、図1の燃料電池システムの改質サブシステムの一般的概略ダイアグラムである。

【図3】図3は、別の実施形態による燃料電池システムの一般的概略ダイアグラムである。

【図4】図4は、さらに別の実施形態による燃料電池システムの一般的概略ダイアグラムである。

【図5】図5は、連続流運転である多数の燃料改質器及び気化器を加熱する装置の一般的

50

概略ダイアグラムである。

【図 6】図 6 は、連続流運転または平行流運転のいずれかである多数の燃料改質器および気化器を加熱するための装置の平行流運転状態を示す一般的概略ダイアグラムである。

【図 7】図 7 は、連続流運転である図 6 の装置を示す一般的概略ダイアグラムである。

【図 8】図 8 は、図 2 の燃料改質器の斜視図である。

【図 9】図 9 は、図 2 の気化器の斜視図である。

【図 10】図 10 は、図 2 のミキサーの斜視図である。

【図 10 a】図 10 a は、前面の詳細を示す図 10 の一部拡大図である。
10

【図 11】図 11 は、図 10 のミキサー用の流体 2 フロー チャネルを作るために用いられるシートの平面図である。

【図 12】図 12 は、図 10 のミキサー用の流体 1 フロー チャネルを作るために用いられるシートの平面図である。

【図 13】図 13 は、図 10 のミキサー用の流体 1 入口 ヘッダーから流体 1 フロー チャネルに至る分配チャネルを形成するために用いられるシートの平面図である。

【図 14】図 14 は、図 2 の空気 / 空気復熱器の斜視図である。

【図 15】図 15 は、図 14 の復熱器を作るために用いられるシートである。

【図 15 a】図 15 a は、2 個の隣接するヘッダー ホールを示す図 15 の一部拡大図である。

【図 16 a】図 16 a ~ c は、実施例に従う復熱器バイパスなしの場合の迅速低温始動時の図 2 のシステムから収集されたデータの代表的プロットである。図 16 a は、リフオメート流量と時間とのプロットである。
20

【図 16 b】図 16 b は、改質器への入口、改質器の出口および気化器の出口での経時的燃焼ガス温度のプロットである。

【図 16 c】図 16 c は、復熱器蒸気 / 燃料入口、気化器蒸気出口、改質器入口、改質器出口および復熱器リフオメート出口での改質サイド温度と時間とのプロットである。

【図 16 d】図 16 d ~ f は、復熱器バイパスを有する場合の迅速低温始動時の図 2 のシステムから収集したデータの代表的プロットである。図 16 d は、リフオメート流量と時間とのプロットである。

【図 16 e】図 16 e は、改質器への入口、改質器の出口および気化器の出口での燃焼ガス温度の経時的プロットである。
30

【図 16 f】図 16 f は、復熱器蒸気 / 燃料入口、気化器蒸気出口、改質器入口、改質器出口および復熱器リフオメート出口での改質サイド温度と時間とのプロットである。

【図 17】図 17 は、始動 S : C 比目標並びに実施例に記載された迅速始動後の測定濃度と一緒に示す、種々の温度でのイソオクタン供給物の蒸気改質に対する平衡 CO 濃度と蒸気対炭素比とのプロットである。

【 図 1 】

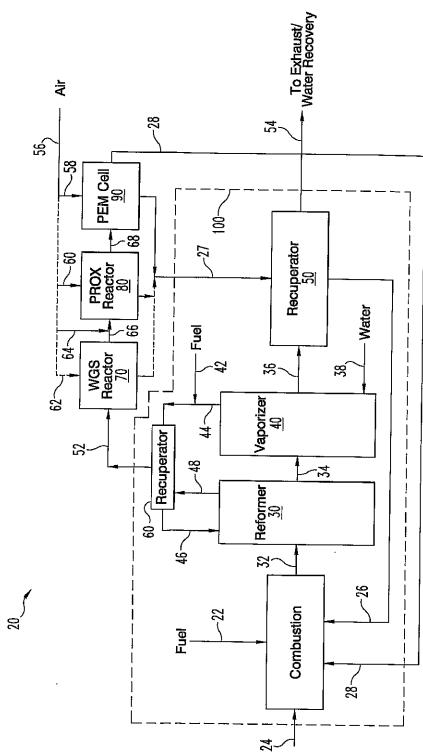


Fig. 1

【 四 2 】

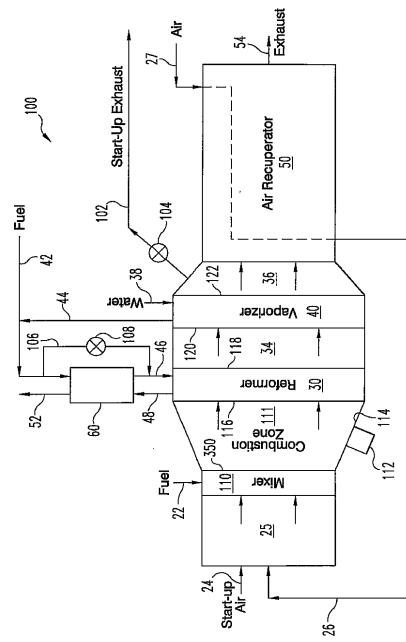


Fig. 2

【図3】

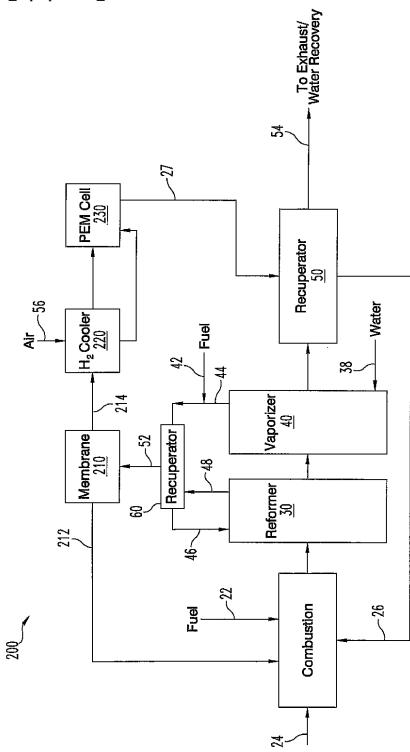


Fig. 3

【 図 4 】

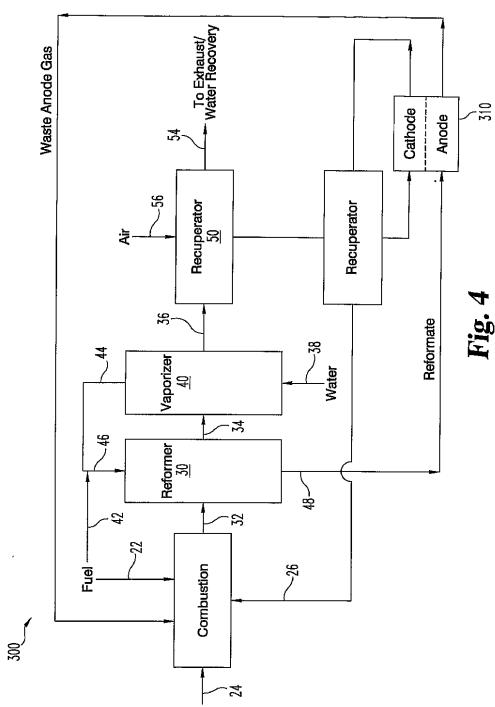


Fig. 4

【図 5】

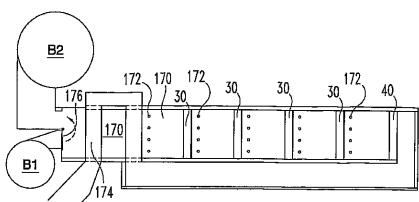


Fig. 5

【図 6】

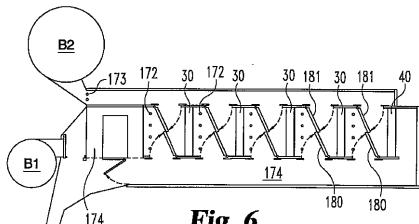


Fig. 6

【図 7】

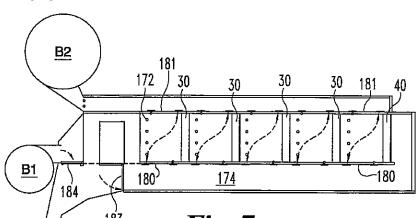


Fig. 7

【図 8】

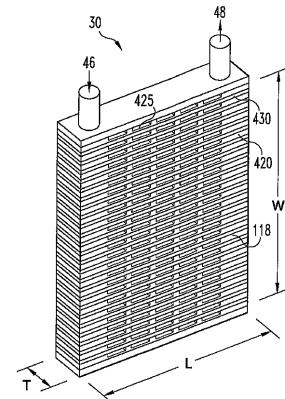


Fig. 8

【図 9】

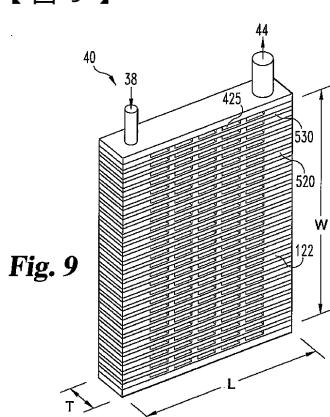


Fig. 9

【図 10】

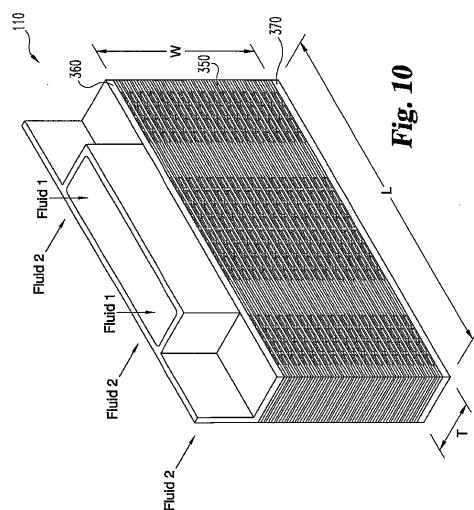


Fig. 10

【図 10 A】

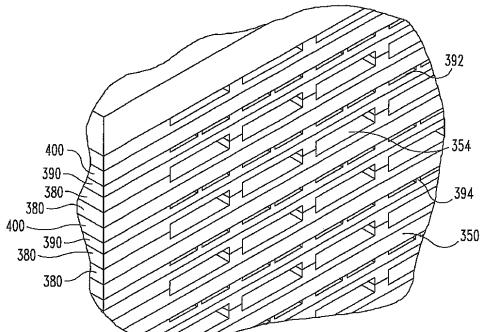


Fig. 10A

【図 11】

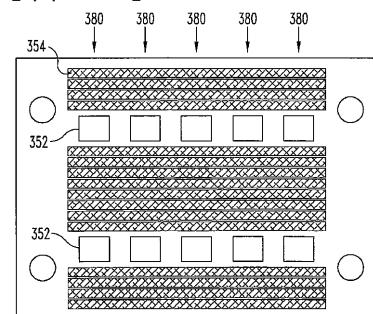


Fig. 11

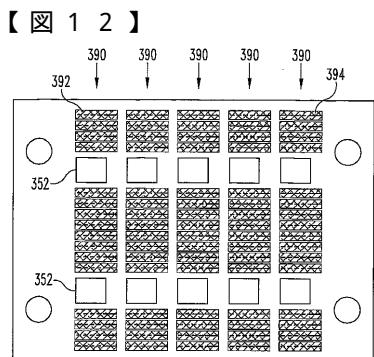


Fig. 12

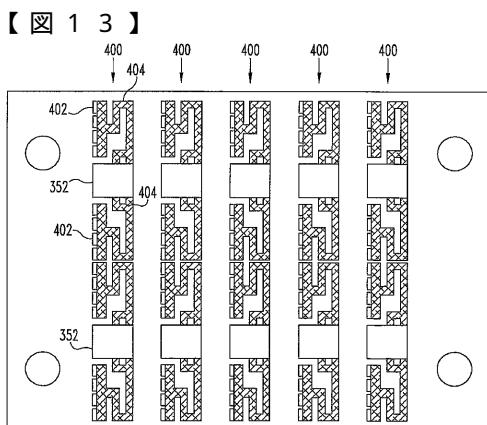


Fig. 13

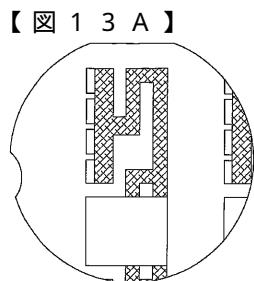


Fig. 13A

【図 1 4】

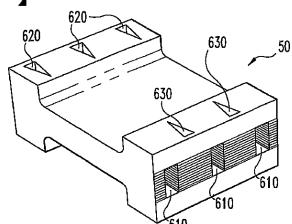


Fig. 14

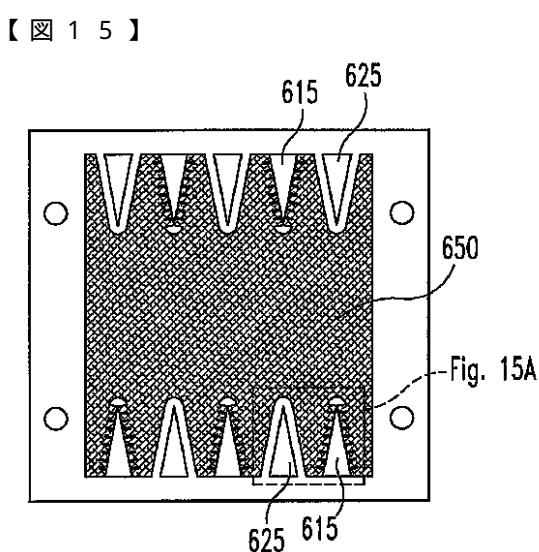


Fig. 15

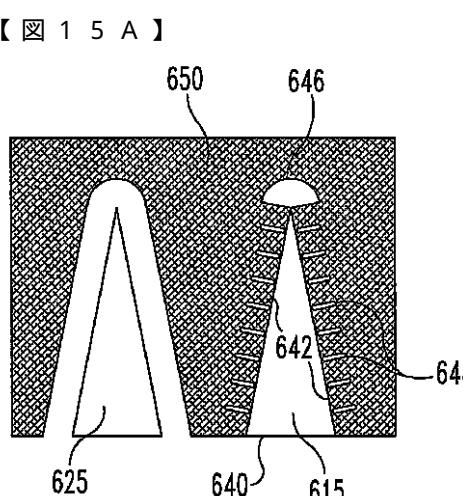


Fig. 15A

【図 16 a】

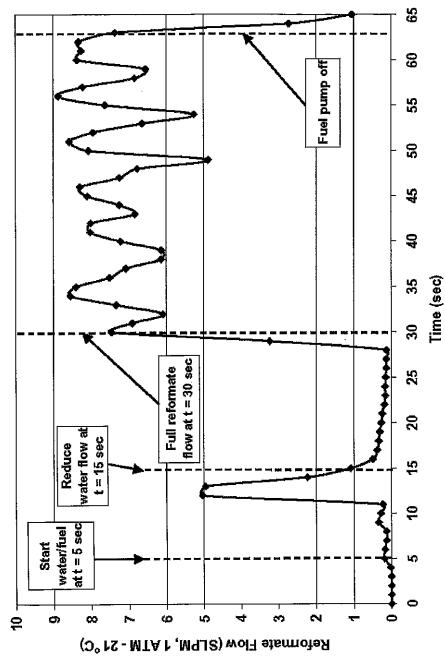


Fig. 16a

【図 16 b】

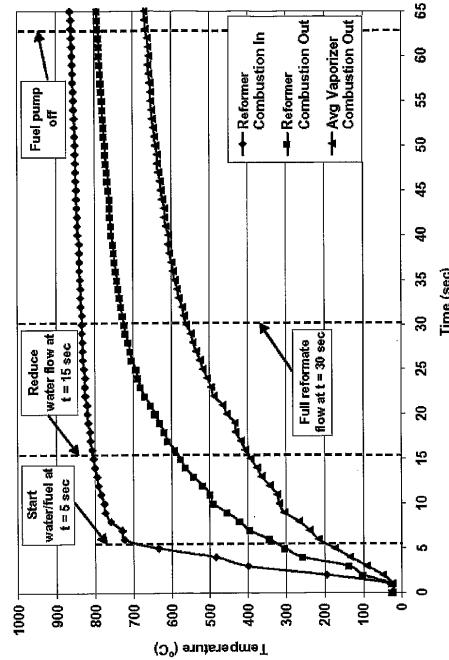


Fig. 16b

【図 16 c】

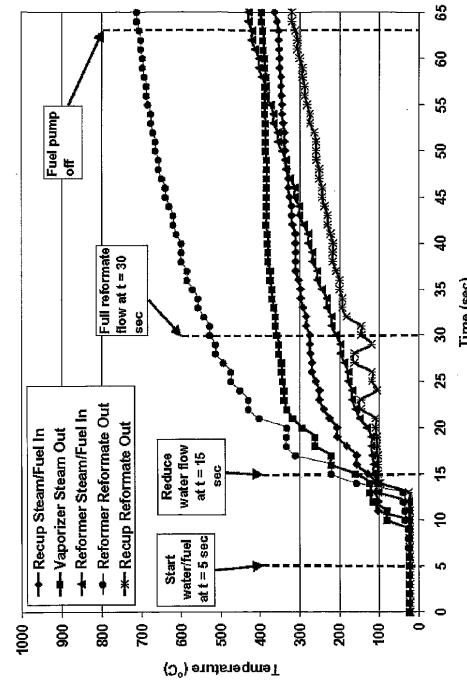


Fig. 16c

【図 16 d】

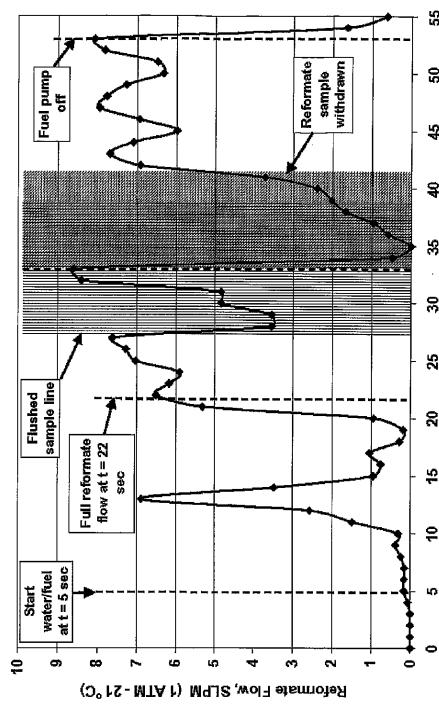


Fig. 16d

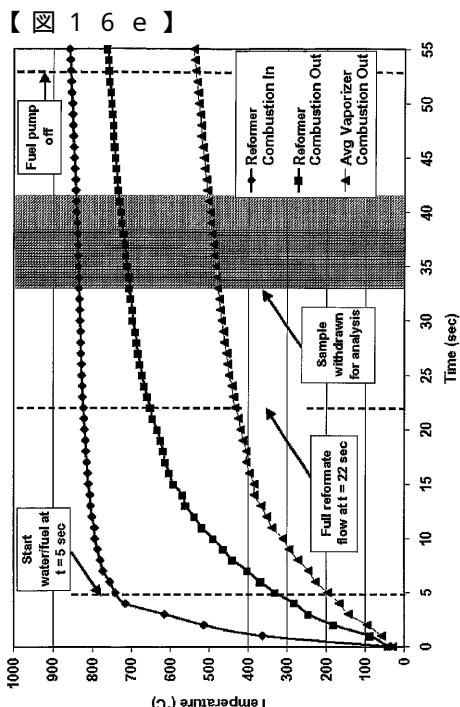


Fig. 16e

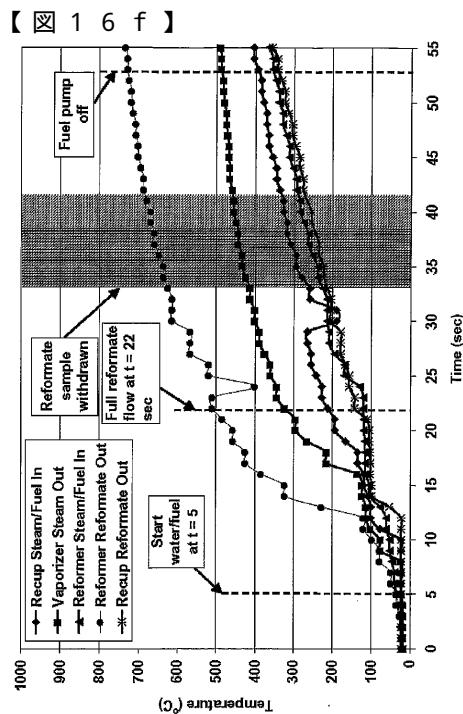


Fig. 16f

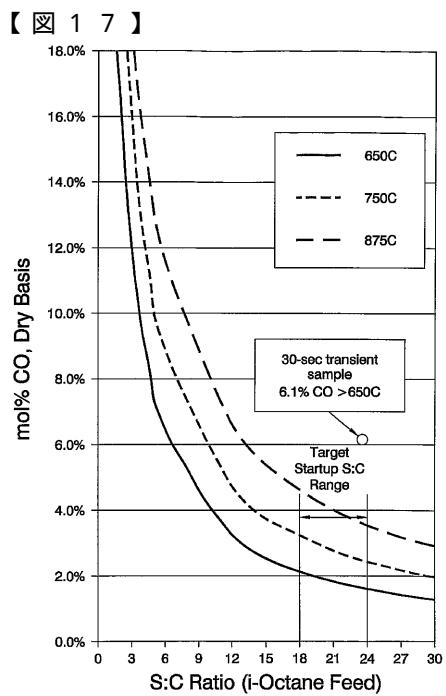


Fig. 17

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/US04/15402
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC(7) : C10J 3/00 US CL : 48/61, 62R, 75, 102R, 103, 105, 106, 107, 102A, 93, 94, 95, 211, 212, 213, 215, 214R, 214A According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) U.S. : 48/61, 62R, 75, 102R, 103, 105, 106, 107, 102A, 93, 94, 95, 211, 212, 213, 215, 214R, 214A		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 5,180,561 A (MORISHIMA et al.) 19 January 1993 (19.01.1993)	1-53
A	US 5,674,301 A (SAKAI et al.) 07 October 1997 (07.10.1997)	1-53
A	US 6,488,838 B1 (TONKOVICH et al.) 03 December 2002 (03.12.2002)	1-53
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/>		See patent family annex.
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "B" earlier application or patent published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		
Date of the actual completion of the international search 20 September 2004 (20.09.2004)	Date of mailing of the international search report 06 OCT 2004	
Name and mailing address of the ISA/US Mail Stop PCT, Attn: ISA/US Commissioner for Patents P.O. Box 1450 Alexandria, Virginia 22313-1450 Facsimile No. (703) 305-3230	Authorized officer Basia Ridley  Telephone No. (371) 272-1700	

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (January 2004)

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LS,MW,MZ,NA,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HU,IE,IT,LU,MC,NL,PL,PT,RO,SE,SI,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,M,A,MD,MG,MK,MN,MW,MX,MZ,NA,NI,NO,NZ,OM,PG,PH,PL,PT,RO,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SY,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,YU,ZA,ZM,ZW

(74)代理人 100080137

弁理士 千葉 昭男

(74)代理人 100096013

弁理士 富田 博行

(74)代理人 100112634

弁理士 松山 美奈子

(72)発明者 ワイアット, グレッグ・エイ

アメリカ合衆国ワシントン州99353, ウエスト・リッチランド, イクウェストリアン・ドライブ 3401

(72)発明者 フィッシャー, クリストファー・エム

アメリカ合衆国ワシントン州98901, ヤキマ, テラス・ハイツ・ドライブ 5913

(72)発明者 デイヴィス, ジェームズ・エム

アメリカ合衆国ワシントン州99352, リッチランド, ロバードー 1309

F ターム(参考) 4G140 EA03 EA06 EB03 EB12 EB16 EB43 EB44 EB46

5H027 AA02 BA01 KK25 KK42 MM12 MM13