

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2010-180098

(P2010-180098A)

(43) 公開日 平成22年8月19日(2010.8.19)

(51) Int.Cl.

C 0 1 B 3/04 (2006.01)

F 1

C 0 1 B 3/04

B

テーマコード (参考)

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願2009-25153 (P2009-25153)
(22) 出願日 平成21年2月5日(2009.2.5)(71) 出願人 000003207
トヨタ自動車株式会社
愛知県豊田市トヨタ町1番地
(74) 代理人 100099759
弁理士 青木 篤
(74) 代理人 100077517
弁理士 石田 敬
(74) 代理人 100087413
弁理士 古賀 哲次
(74) 代理人 100123593
弁理士 関根 宣夫
(74) 代理人 100144417
弁理士 堂垣 泰雄

最終頁に続く

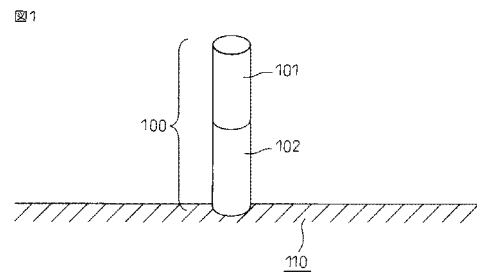
(54) 【発明の名称】 水素生成装置

(57) 【要約】

【課題】アンモニアから水素を効率的に生成する水素生成装置を提供する。

【解決手段】本発明の水素生成装置は、アンモニア供給部；空気供給部；及びアンモニア供給部から供給されたアンモニアの一部を、空気供給部から供給された空気によって酸化させて、酸化熱を発生させ、且つこの酸化熱を用いて、アンモニア供給部から供給されたアンモニアの他の一部を、水素と窒素とに分解する、アンモニア部分酸化 - 分解部を有する。ここで、本発明の水素生成装置では、アンモニア部分酸化 - 分解部が、カーボンナノチューブを保持しており、このカーボンナノチューブ(100)が、アンモニア酸化触媒が担持されている部分(101)、及びアンモニア分解触媒が担持されている部分(102)を有し、且つこれらの部分(101、102)が、完全には重なっておらず、少なくとも部分的に、カーボンナノチューブ上において別個の部分形成している。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

アンモニアをアンモニア部分酸化 - 分解部に供給する、アンモニア供給部、空気をアンモニア部分酸化 - 分解部に供給する、空気供給部、及び前記アンモニア供給部から供給されたアンモニアの一部を、前記空気供給部から供給された空気によって酸化させて、酸化熱を発生させ、且つ前記酸化熱を用いて、前記アンモニア供給部から供給されたアンモニアの他の一部を、水素と窒素とに分解する、アンモニア部分酸化 - 分解部、を有し；且つ

前記アンモニア部分酸化 - 分解部が、カーボンナノチューブを保持しており、前記カーボンナノチューブが、アンモニア酸化触媒が担持されている部分、及びアンモニア分解触媒が担持されている部分を有し、且つこれらの部分が、完全には重なっておらず、少なくとも部分的に、前記カーボンナノチューブ上において別個の部分形成している、水素生成装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、水素生成装置、特に自動車に搭載するのに適した水素生成装置に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、クリーンエネルギーである水素をエネルギー源として用いることが多く提案されており、特に水素を燃料とする燃料電池で駆動される自動車の開発が活発に行われている。水素を燃料とする燃料電池からの排ガスは、内燃機関からの排ガスに含有されている窒素酸化物、粒子状物質（PM）、二酸化炭素等を含んでいないので、このような燃料電池は環境汚染及び地球温暖化を抑制できるクリーンエネルギーとして最適である。

【0003】

しかしながら水素は貯蔵の際の体積が大きく、特に自動車用の燃料電池にあっては、燃料である水素の供給手段が課題となっている。

【0004】

これに関して、特許文献 1 及び 2 に記載の様に、アンモニア等を分解して水素を生成する方法が注目されている。例えば特許文献 1 では、触媒反応によりアンモニア及びヒドrazin の少なくとも一方からなる水素源を窒素と水素とに分解して燃料電池に供給する分解器を有する燃料電池用水素生成装置を提案している。ここで、この燃料電池用水素生成装置では、1 つの態様において、燃料電池からの排ガス中の未反応のアンモニア及び水素を燃焼器において触媒反応で燃焼させ、そしてこの燃焼器からの排ガスの熱を、アンモニア等を分解する分解器に供給している。特許文献 1 では、この態様によれば、分解器を加熱するための熱源が不要となりエネルギー効率が向上するとしている。

【0005】

また、特許文献 3 及び 4 では、メタン、アンモニア等の含水素化合物から水素を得るために、含水素化合物を炭素繊維を充填した反応器に供給し、この反応器にマイクロ波を照射することを提案している。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0006】

【特許文献 1】特開 2003 - 40602 号公報

【特許文献 2】特開 2005 - 145748 号公報

【特許文献 3】特開 2006 - 188397 号公報

【特許文献 4】特開 2006 - 83042 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

10

20

30

40

50

【 0 0 0 7 】

本発明では、アンモニアから水素を効率的に生成する水素生成装置を提供する。

【課題を解決するための手段】

【 0 0 0 8 】

本件発明者等は、アンモニアから水素を生成する水素生成装置について検討した結果、下記の本発明に想到した：

本発明の水素生成装置は、アンモニアをアンモニア部分酸化 - 分解部に供給する、アンモニア供給部、空気をアンモニア部分酸化 - 分解部に供給する、空気供給部、及びアンモニア供給部から供給されたアンモニアの一部を、空気供給部から供給された空気によって酸化させて、酸化熱を発生させ、且つこの酸化熱を用いて、アンモニア供給部から供給されたアンモニアの他の一部を、水素と窒素とに分解する、アンモニア部分酸化 - 分解部を有し；且つアンモニア部分酸化 - 分解部が、カーボンナノチューブを保持しており、このカーボンナノチューブが、アンモニア酸化触媒が担持されている部分、及びアンモニア分解触媒が担持されている部分を有し、且つこれらの部分が、完全には重なっておらず、少なくとも部分的に、カーボンナノチューブ上において別個の部分形成している。

10

【図面の簡単な説明】

【 0 0 0 9 】

【図 1】本発明の水素生成装置のアンモニア部分酸化 - 分解部に保持されるカーボンナノチューブを示す概念図である。

【図 2】本発明の水素生成装置の例を示す図である。

20

【図 3】燃料電池と組み合わされた本発明の水素生成装置の例を示す図である。

【発明を実施するための形態】

【 0 0 1 0 】

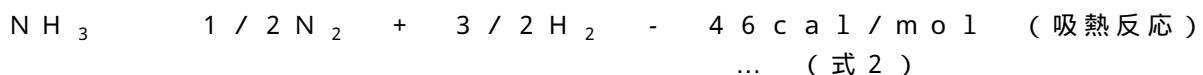
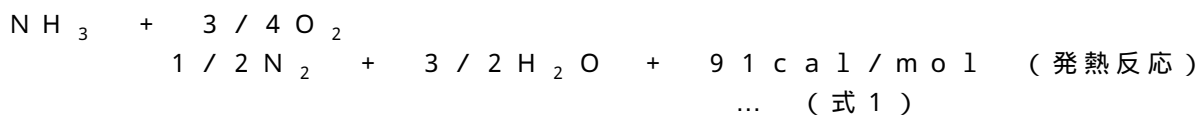
本発明の水素生成装置

本発明の水素生成装置は例えば、図 2 に示す構成を有することができる。ここで、図 2 で示される本発明の水素生成装置 (1 0) は、アンモニアをアンモニア部分酸化 - 分解部 (4) に供給する、アンモニア供給部 (3) ；空気をアンモニア部分酸化 - 分解部 (4) に供給する、空気供給部 (1) ；及びアンモニア供給部 (3) から供給されたアンモニアの一部を、空気供給部 (1) から供給された空気によって酸化させて、酸化熱を発生させ、且つこの酸化熱を用いて、アンモニア供給部 (3) から供給されたアンモニアの他の一部を、水素と窒素とに分解する、アンモニア部分酸化 - 分解部 (4) を有する。

30

【 0 0 1 1 】

この本発明の水素生成装置によれば、アンモニア部分酸化 - 分解部において、アンモニアの一部を空気中の酸素によって酸化 (下記の式 1) させて、酸化熱を発生させ、且つこの酸化熱を用いて、アンモニアの他の一部を、水素と窒素とに分解 (下記の式 2) することによって、単純な構成でアンモニアから水素を発生させることができる。



40

【 0 0 1 2 】

なお、上記の式 2 で示すアンモニアの分解反応を実質的な速度で進行させるには一般に 350 以上の温度が必要であり、そのうえこの反応は吸熱反応であるので、なんらかの手段で反応に必要な熱を供給する必要がある。これに関して、本発明の水素生成装置のアンモニア部分酸化 - 分解部では、上記の式 1 で示すようにアンモニアの一部を空気中の酸素によって酸化させて、必要な熱を供給するものである。したがって、例えば本発明の水素生成装置を自動車に搭載する場合において、排ガスの温度が低く、十分な熱量の熱源として使用できないときにも、アンモニアを酸化させて必要な熱を供給することができる。

【 0 0 1 3 】

50

また、本発明の水素生成装置では、アンモニア部分酸化 - 分解部が、カーボンナノチューブを保持している。例えば図 1 で示すように、このカーボンナノチューブ (1 0 0) は、アンモニア酸化触媒が担持されている部分 (1 0 1) 、及びアンモニア分解触媒が担持されている部分 (1 0 2) を有し、且つ随意に基材 (1 1 0) 上に配置されている。また更に、これらの部分は、完全には重なっておらず、少なくとも部分的に、カーボンナノチューブ上において別個の部分形成している。

【 0 0 1 4 】

したがって本発明の水素生成装置では、カーボンナノチューブのアンモニア酸化触媒を担持している部分において、アンモニアの一部を空気中の酸素によって酸化させて、酸化熱を発生させ、且つカーボンナノチューブのアンモニア分解触媒を担持している部分において、アンモニアの他の一部を、水素と窒素とに分解することができる。

10

【 0 0 1 5 】

ここで、このカーボンナノチューブ上では、アンモニアの酸化反応及び分解反応の両方が起こるので、アンモニアの酸化反応で得られた酸化熱を、カーボンナノチューブの良好な熱伝導性によって、吸熱反応であるアンモニアの分解反応が起こる部分に供給することができる。また更に、このカーボンナノチューブでは、アンモニアの酸化反応が起こる部分と分解反応が起こる部分とが分かれているので、アンモニアの酸化反応で生成した水の排出を促進し、この水がアンモニア分解反応に好ましくない影響を与えることを防ぐことができる。

【 0 0 1 6 】

本発明の水素生成装置は、燃料電池、特に自動車のための燃料電池に水素を供給するために用いることができる。この場合、例えば図 3 に示すようにして、本発明の水素生成装置を用いることができる。

20

【 0 0 1 7 】

図 3 に示す態様では、点線で囲まれている本発明の水素生成装置 (1 0) で得られる水素含有ガスを燃料電池 (5) のアノード側に供給し、且つ空気供給部 (1 ') から燃料電池 (5) のカソード側に空気を供給して、燃料電池 (5) で電力を発生させることができる。ここで、燃料電池のための空気供給部 (1 ') は、本発明の水素生成装置のための空気供給部 (1) と共通であってもよい。また、燃料電池のアノード側からの排ガスには、未反応の水素及びアンモニアが含まれていることから、これらの成分を排ガス燃焼部 (6) において燃焼させ、それによって排気を浄化し、且つ / 又は熱エネルギーを得ることができる。なお、随意に、排ガス燃焼部 (6) で得られた熱エネルギーをアンモニア部分酸化 - 分解部に供給して、アンモニアの酸化及び分解反応を促進することができる。

30

【 0 0 1 8 】

また、本発明の水素生成装置は、アンモニアを燃料として用いるアンモニア燃焼エンジン、特に自動車用のアンモニア燃焼エンジンのために用いることができる。エンジンにおいてアンモニアを燃料として用いる場合、アンモニアは着火性が低いことから、エンジンの低負荷運転時及び高負荷運転時には、アンモニアの燃焼が不十分となることがある。したがってこの場合、アンモニアの燃焼を補助するために、助燃剤を添加する必要がある。この助燃剤としては、炭化水素化合物及び水素を挙げることができる。ここで、本発明の水素生成装置によってアンモニアを分解して得た水素を、アンモニア燃焼のための助燃剤として用いる場合、助燃剤の先駆物質及び燃料として、アンモニアのみを用いることができる点で好ましい。なお、随意に、エンジンからの排ガスの熱エネルギーをアンモニア部分酸化 - 分解部に供給して、アンモニアの酸化及び分解反応を促進することができる。

40

【 0 0 1 9 】

本発明の水素生成装置の各部

以下では、本発明の水素生成装置の各部について説明する。

【 0 0 2 0 】

(アンモニア供給部)

本発明の水素生成装置で用いられるアンモニア供給部は、アンモニアをアンモニア部分

50

酸化 - 分解部に供給できる任意の部分であってよい。したがって、このアンモニア供給部は例えば、アンモニアタンク、特に液体状のアンモニアを保持しているアンモニアタンクであってよい。また、この場合、アンモニア供給部は随意に、ポンプ、弁等を有して、アンモニアの供給量を制御できるようにすることが好ましい。

【0021】

(空気供給部)

本発明の水素生成装置で用いられる空気供給部は、空気をアンモニア部分酸化 - 分解部に供給できる任意の部分であってよい。したがって、この空気供給部は、周囲雰囲気から空気を取り込む空気取り込み口、ポンプ、弁等からなっていてよい。

【0022】

(アンモニア部分酸化 - 分解部)

本発明の水素生成装置で用いられるアンモニア部分酸化 - 分解部は、アンモニア供給部から供給されたアンモニアの一部を、空気供給部から供給された空気によって酸化させて、酸化熱を発生させ、且つこの酸化熱を用いて、アンモニア供給部から供給されたアンモニアの他の一部を、水素と窒素とに分解できる任意の部分であってよい。

【0023】

アンモニア部分酸化 - 分解部において酸化されるアンモニアの割合は、アンモニア分解反応の進行に必要な熱量に依存して決定することができ、またアンモニア部分酸化 - 分解部に供給される空気の量を制御して調節できる。

【0024】

(アンモニア部分酸化 - 分解部(カーボンナノチューブ))

アンモニア部分酸化 - 分解部に保持されているカーボンナノチューブは、アンモニア酸化触媒が担持されている部分、及びアンモニア分解触媒が担持されている部分を有する任意のカーボンナノチューブであってよい。

【0025】

ここで、アンモニア酸化触媒が担持されている部分とアンモニア分解触媒が担持されている部分とは、接近していること、又は一部が重なっていることが、熱の移動を促進するために好ましい。また、これらの部分は互いに離れていてもよい。ただし、これらの部分は、完全には重なっておらず、少なくとも部分的に、カーボンナノチューブ上において別個の部分形成している。

【0026】

カーボンナノチューブに担持されているアンモニア酸化触媒としては、アンモニアの酸化反応を促進する傾向が大きい任意の触媒、特にアンモニア分解触媒と比較してアンモニアの酸化反応を促進する傾向が大きい任意の触媒を選択することができ、例えば白金を選択することができる。また、カーボンナノチューブに担持されているアンモニア分解触媒としては、アンモニアの分解反応を促進する傾向が大きい任意の触媒、特にアンモニア酸化触媒と比較してアンモニアの分解反応を促進する傾向が大きい任意の触媒を選択することができ、例えばルテニウム、ロジウム、及び卑金属からなる群より選択される金属を選択することができる。この卑金属としては特に、鉄、コバルト、及びニッケルを挙げることができる。

【0027】

アンモニア酸化触媒が担持されている部分及びアンモニア分解触媒が担持されている部分を有するカーボンナノチューブは、セラミック製のハニカム基材等の基材上に配置して用いること、ペレット状に成形して用いること等ができる。ここで用いられる基材は、熱伝導性が大きく、且つ/又は耐熱性が高い(例えば900以上)ことが一般に好ましい。したがって、ここで用いられる基材は例えば、カーボン等の無機材料、ステンレス、合金等の金属等で作られていることが好ましい。

【0028】

カーボンナノチューブを基材上に配置して用いる場合、図1に示すようにカーボンナノチューブの一方の端部のみが基材上に接するようにしてカーボンナノチューブを基材上に

10

20

30

40

50

立てて配置し、且つカーボンナノチューブの基材から遠い側に、アンモニア酸化触媒が担持されている部分が位置するようにすることが好ましい。これは、このようにしてカーボンナノチューブを基材上に配置した場合には、アンモニア酸化触媒におけるアンモニアの酸化反応によって生じる水の排出が促進されることによる。

【0029】

アンモニア酸化触媒が担持されている部分及びアンモニア分解触媒が担持されている部分を有するカーボンナノチューブは、任意の方法で製造することができる。例えばこのようなカーボンナノチューブは、基材にカーボンナノチューブを立てて配置し、カーボンナノチューブの基材に近い部分を樹脂等で埋設して保護し、カーボンナノチューブの基材から遠い側のみにアンモニア酸化触媒を担持し、カーボンナノチューブの基材に近い部分を埋設している樹脂等を除去し、そしてカーボンナノチューブ全体にアンモニア分解触媒を担持して得ることができる。

10

【0030】

また、このようなカーボンナノチューブは例えば、カーボンナノチューブの製造過程においてアンモニア酸化触媒及びアンモニア分解触媒を順次添加して得ることもできる。

【符号の説明】

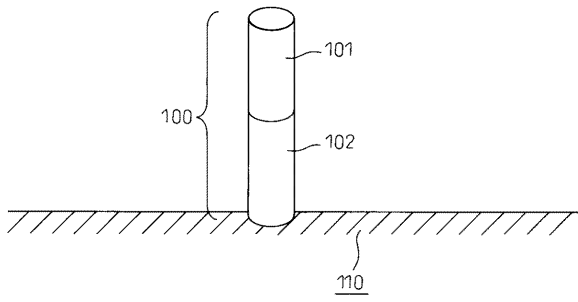
【0031】

- 1、1' 空気供給部
- 3 アンモニア供給部
- 4 アンモニア部分酸化 - 分解部
- 5 燃料電池
- 6 排ガス燃焼部
- 10 本発明の水素生成装置
- 100 カーボンナノチューブ
- 101 アンモニア酸化触媒が担持されている部分
- 102 アンモニア分解触媒が担持されている部分
- 110 基材

20

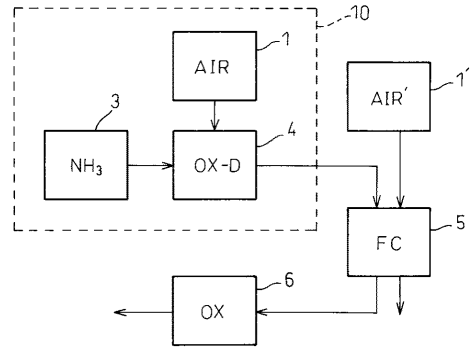
【 図 1 】

図1



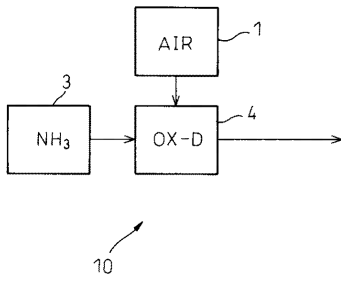
【 図 3 】

図3



【 図 2 】

図2



フロントページの続き

(72)発明者 中西 治通

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(72)発明者 有川 英一

愛知県名古屋市中村区名駅1-1-4 JRセントラルタワーズ38F 株式会社テクノプロ・エンジニアリング内