

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4782985号
(P4782985)

(45) 発行日 平成23年9月28日(2011.9.28)

(24) 登録日 平成23年7月15日(2011.7.15)

(51) Int.Cl.	F 1
HO 1 M 8/06 (2006.01)	HO 1 M 8/06 G
HO 1 M 8/02 (2006.01)	HO 1 M 8/02 N
HO 1 M 8/12 (2006.01)	HO 1 M 8/12

請求項の数 14 (全 11 頁)

(21) 出願番号	特願2003-564967 (P2003-564967)	(73) 特許権者	500101988 セラミック・フェュエル・セルズ・リミテッド
(86) (22) 出願日	平成15年1月23日 (2003.1.23)	(74) 代理人	100100158 弁理士 鮫島 瞳
(65) 公表番号	特表2005-516374 (P2005-516374A)	(74) 代理人	100068526 弁理士 田村 恒生
(43) 公表日	平成17年6月2日 (2005.6.2)	(74) 代理人	100138863 弁理士 言上 恵一
(86) 國際出願番号	PCT/AU2003/000029	(72) 発明者	カール・フォーガー オーストラリア3101ビクトリア州キュー、マカートニー・アベニュー2番 最終頁に続く
(87) 國際公開番号	W02003/065488		
(87) 國際公開日	平成15年8月7日 (2003.8.7)		
審査請求日	平成17年12月19日 (2005.12.19)		
審判番号	不服2009-20372 (P2009-20372/J1)		
審判請求日	平成21年10月22日 (2009.10.22)		
(31) 優先権主張番号	PS 0243		
(32) 優先日	平成14年1月31日 (2002.1.31)		
(33) 優先権主張国	オーストラリア(AU)		

(54) 【発明の名称】燃料電池の熱管理方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

燃料電池内において発熱性の発電反応により発生する熱が当該燃料電池に対する負荷需要に応じて変化するように燃料電池の温度を制御する方法であつて、

所定の濃度のメタンを含有する燃料電池供給ストリームを生成させるため、オートサーマル改質器内で燃料供給ストリームを処理する工程と、

上記燃料電池供給ストリーム中に含まれるメタンを燃料電池内において吸熱性の改質反応により改質し、上記吸熱性の改質反応を、上記発熱性の発電反応により生成された熱のヒートシンクとして使用する工程と、を有し、

燃料電池内において、当該燃料電池の所望の温度制御に適するメタン改質レベルに達するように、上記燃料電池供給ストリーム中のメタン濃度を、オートサーマル改質器のオペレーションを制御することにより変動させることを特徴とする方法。

【請求項 2】

オートサーマル改質器からの排出ストリームにおけるメタン濃度を、連続的にかつ急速に変化させ、そのことにより燃料電池内におけるメタンの内部改質の程度を、燃料電池温度の変動に応じて制御することを特徴とする請求項1記載の方法。

【請求項 3】

上記燃料供給ストリームが、天然ガス、LPG若しくはディーゼルである請求項1記載の方法。

【請求項 4】

上記オートサーマル改質器が、触媒部分酸化反応とスチーム改質反応とを組み合わせた請求項1記載の方法。

【請求項5】

上記燃料電池供給ストリーム中のメタンの濃度が、オートサーマル改質器の改質部の温度を制御することにより制御される請求項4記載の方法。

【請求項6】

上記触媒部分酸化反応の程度が、反応に利用される酸素の量を調整することにより制御される請求項4記載の方法。

【請求項7】

上記オートサーマル改質器内のスチーム改質の程度が、反応に利用される水の量を制御することにより調整される請求項4記載の方法。 10

【請求項8】

上記オートサーマル改質器からの排出物中のメタンの濃度が、上記オートサーマル改質器が作動する温度及び／又は圧力を調整することにより制御される請求項1記載の方法。

【請求項9】

上記オートサーマル改質器に、触媒により被覆されたチャンネル及び被覆されないチャンネルの一連のチャンネルが設けられ、

当該一連のチャンネルは、上記燃料供給ストリームと上記オートサーマル改質器内の触媒との間の、要求される接触の程度に基づいて、上記燃料供給ストリームが、選択されたチャンネルを流れるように構成され、 20

そのことにより上記燃料電池フィードストリーム中のメタン濃度を制御する請求項1記載の方法。

【請求項10】

上記オートサーマル改質器が、活性が上記燃料供給ストリーム中の炭素に対する酸素の比により変化する触媒を含む請求項1記載の方法。

【請求項11】

上記オートサーマル改質器におけるスチーム改質の程度が、上記燃料供給ストリーム中の炭素に対するスチームの比を制御することにより調整される請求項1記載の方法。

【請求項12】

上記オートサーマル改質器が、活性が上記燃料供給ストリーム中の炭素に対するスチームの比により変化する触媒を含む請求項1記載の方法。 30

【請求項13】

上記燃料電池供給ストリームのメタン濃度が、体積で少なくとも10%である請求項1記載の方法。

【請求項14】

請求項1記載の方法を実行するに適した燃料電池システムであって、

メタン濃度が制御された排出ストリームを生成するため、可変のオペレーションが可能であり、燃料電池の上流において該燃料電池と連通するように設けられたオートサーマル改質器と、

内部でメタンを改質するために適用され、上記オートサーマル改質器の下流において該オートサーマル改質器と連通するように設けられた燃料電池と、を備えるシステム。 40

【発明の詳細な説明】

【発明の詳細な説明】

【0001】

本発明は、燃料電池の熱管理方法及び燃料電池の熱管理を容易にする燃料電池システムに関する。

【0002】

燃料電池は、ガス状の燃料（燃料及び酸化剤）を電気化学的プロセスにより直接電気に変換する。一般的に、燃料電池内における発電反応は発熱反応である。この発熱反応により、燃料電池の温度は上昇することとなる。燃料電池は高温において作動するけれども、 50

この温度の上昇により、燃料電池の効率が低下し、熱散逸を引き起こす。そのため、燃料電池を冷却する手段が常に必要とされている。

【0003】

燃料電池を冷却するための方法には、冷却剤を使用することが含まれる。ここで、冷却剤は、燃料電池と熱交換しつつ循環する。冷却剤により吸収された熱は、例えば熱交換器を使用することにより燃料電池から放出される。その後、この冷却剤を燃料電池に再循環させても良い。この一般的な方法の実施の形態として、実際発電に必要とされる量より多い酸化剤（例えば、空気）を燃料電池に供給することにより冷却しても良い。しかし、この方法は、燃料電池システム内に別個の冷却回路を必要とし、燃料電池内の十分な冷却剤フローを可能とするため、通路のサイズが増加することになる。これにより、通常大きなファン／コンプレッサを使う必要が生じ、寄生損失が増加することになるだろう。特に、大きく及び／又は多数の熱交換器が必要とされる場合、これらの要因により、燃料電池システムのサイズ及び複雑さが増し、全コストが上昇する。さらに、燃料電池に対するガス状供給物が冷却剤として使用される場合、過剰の流量が必要とされるため、このシステム内において圧力が損失してしまう。

10

【0004】

燃料電池との熱交換において、冷却剤を循環させることのみに依存する方法以外で、燃料電池の温度を制御することが望まれる。特に、燃料電池内で起こる反応に依存する燃料電池熱管理手段を提供することが望まれるだろう。これにより、先に述べた従来の冷却技術と比較して、簡略化されたコンパクトなシステム設計とすることが可能、効率を改善し、そしてコストを削減することができるであろう。

20

【0005】

一般的に、水素（通常スチームにより湿度が与えられている）が、低温用燃料電池に使用されてきた。溶融炭酸型燃料電池や固体酸化物燃料電池のような高温用燃料電池は、炭化水素燃料に対して作動することができる。炭化水素燃料は、1以上の燃料電池システムにおいて水素に変換される。スチーム改質は、炭化水素燃料から水素を生成するためのよく知られた方法である。しかし、スチーム改質は吸熱反応であり、システムの他の部分から熱を移動させることが必要である。このシステムは、改質反応を減速することもできる。また、スチーム改質プロセスは、上流において原料を処理し硫化物を取り除く必要がある。これは、改質触媒の被毒を防止するためである。そこで、これらの欠点を持たない燃料電池システムを提供することが望まれるだろう。

30

【0006】

従って、本発明は、燃料電池内において発熱性の発電反応により発生する熱が当該燃料電池に対する負荷需要に応じて変化するように燃料電池の温度を制御する方法であって、所定の濃度のメタンを含有する燃料電池供給ストリームを生成させるため、オートサーマル改質器内で燃料供給ストリームを処理する工程と、

上記燃料電池供給ストリーム中に含まれるメタンを燃料電池内において吸熱性の改質反応により改質し、上記吸熱性の改質反応を、上記発熱性の発電反応により生成された熱のヒートシンクとして使用する工程と、を有し、

燃料電池内において、当該燃料電池の所望の温度制御に適するメタン改質レベルに達するように、上記燃料電池供給ストリーム中のメタン濃度を、オートサーマル改質器のオペレーションを制御することにより変動させることを特徴とする方法を提供する。

40

【0007】

燃料電池における発電反応は発熱反応であり、一方燃料電池内におけるメタンの改質（本明細書では、内部改質と称する。）は吸熱反応である。本発明は、発熱反応を利用して、吸熱反応に必要なエネルギーを供給することに基づき、燃料電池内で起こっている反応により、燃料電池を熱管理する。本発明の重要な点は、燃料電池供給ストリーム中のメタン濃度及び燃料電池内で内部改質に利用されるメタンの量を制御するためオペレーションを変更できるオートサーマル改質器を使用することである。吸熱性の内部改質反応は、燃料電池内の発熱性の発電反応により発生する熱のヒートシンクとして作用するので、内部

50

改質に利用可能なメタンの量を制御することにより、燃料電池の温度を制御することができる。これにより上述の燃料電池冷却システムを用いる必要性が減少する。実際には、本発明に係る熱管理方法とともに、より小さなスケールのシステムが用いられる。外部熱交換システムは今なお必要とされるけれども、これによりサイズを非常に小さくすることができ、コストとスペースを大きく抑えることができる。

【0008】

本発明の実施形態におけるオートサーマル改質器を使用することにより、燃料供給ストリームとして様々な炭化水素燃料を使用することができる。また、燃料供給ストリームをオートサーマル改質器に投入する前に燃料供給ストリームの脱硫を行うことは本質的なことではないが、オートサーマル改質器の下流に脱硫ユニットを備えていても良い。これは、燃料電池供給ストリームを燃料電池に投入する前に、燃料電池供給ストリームを処理するためである。これに関して、以下に、より詳細に説明している。

10

【0009】

本発明の大きな効果は、オートサーマル改質器からの排出ストリームにおけるメタン濃度を連続的で急速な方法に基づき変化させ、そのことにより燃料電池内におけるメタンの内部改質の程度を燃料電池温度の変動に応じて制御することができる。この温度変動は、燃料電池に対する負荷需要 (load demand) が変化するとき起こる。例えば、燃料電池に対する負荷需要が増加するにしたがって、温度が増加する。これは、発熱性の発電反応が増加するためである。この場合、結果として得られる燃料電池供給ストリームが非常に高濃度のメタンを有するように、オートサーマル改質器を作動させる。燃料電池内で大部分において内部改質を行い、それにより燃料電池内の発熱性発電反応により発生する付加的な熱を消費する。逆に、燃料電池が負荷がより低い状況下にあるとき、燃料電池内の発電反応により生成される熱の量は、負荷がより高い状況下の場合より少ない。この場合、燃料供給ストリーム中のメタンの濃度を減少させる。これは、燃料電池内の発電反応により生成される熱を消費するのに必要なメタン内部改質は少ないためである。メタンの排出が連続的に調整されるオートサーマル改質器を使用することにより、負荷追従 (load following) による燃料電池の熱管理を可能とする。

20

【0010】

また、本発明は、燃料電池の熱管理を可能とする燃料電池システムであって、メタン濃度が制御された排出ストリームを生成するため、可変のオペレーションが可能であり、燃料電池の上流において該燃料電池と連通するように設けられたオートサーマル改質器と、

30

内部でメタンを改質するために適用され、上記オートサーマル改質器の下流において該オートサーマル改質器と連通するように設けられた燃料電池と、を備える燃料電池システムを提供する。

【0011】

燃料電池システムの様々なコンポーネントが、従来のガス供給導管により互いに連通する。これらは、熱交換器、制御バルブ、マニホールド、ポンプ及び圧縮器のような補助的コンポーネントを必要に応じて備えていても良い。「上流」と「下流」という用語は、システムの様々なコンポーネントの、互いのコンポーネントに対する位置関係を表す。また、添付の図面はこれを例示する。

40

【0012】

オートサーマル改質器からの排出ストリーム、即ち燃料電池供給ストリームは、上記オートサーマル改質器のオペレーションにより変化する、ある濃度のメタンを有する。燃料電池内で適切なレベルの内部改質が行われ、それにより所望の冷却が行われるような十分なメタンを燃料電池供給ストリームが含んでいることは、本発明の重要な特徴である。例えば、燃料電池が負荷が高い状況下で作動する場合、所望のレベルの冷却を行う為には、燃料電池供給ストリーム中のメタンの濃度は、燃料電池が負荷がより低い状況下にある場合の冷却に必要な、燃料電池供給ストリーム中のメタン濃度と比較して、より高くなればならない。

50

【0013】

通常、燃料供給ストリームは、より高級な炭化水素を少量含むメタンを大部分（一般的には体積で少なくとも 85 %）含む天然ガスである。LPG 及びディーゼルのような、より高級な炭化水素を使用しても良い。

【0014】

負荷需要が高い状況下では、燃料電池の外部でのメタン改質を減少させることが必要であることは明らかであろう。これは、燃料電池から熱を取り除くためには、燃料電池内において、吸熱性内部改質反応のためのメタンがより多く必要とされるからである。負荷が低い状況下では、燃料電池の外部でのメタン改質がより多くなることにより、燃料電池は熱的に自立する。これは、燃料電池内での改質に必要なメタンがより少ないためである。

10

【0015】

オートサーマル改質器は、触媒部分酸化とスチーム改質反応を結びつける。触媒部分酸化により、吸熱性（スチーム）改質反応のための熱を与える。

【0016】

通常、触媒部分酸化は、第1触媒ゾーンにおいて、燃料供給ストリームの触媒酸化に適した触媒上で行われる。一般的に、この触媒には、アルミナのような耐熱性金属酸化物上に設けられ、モノリシックな物体上に支持された、プラチナ、パラジウム、ロジウム、好みしくはプラチナとパラジウムが含まれる。有用な触媒支持体及びオートサーマル改質反応器が、この技術分野において知られており、商業的に入手可能である。触媒部分酸化を行うために使用される触媒は、硫黄化合物の存在下で効果的であることが好ましい。この第1触媒ゾーンの温度は一般的に 400 ~ 900 である。

20

【0017】

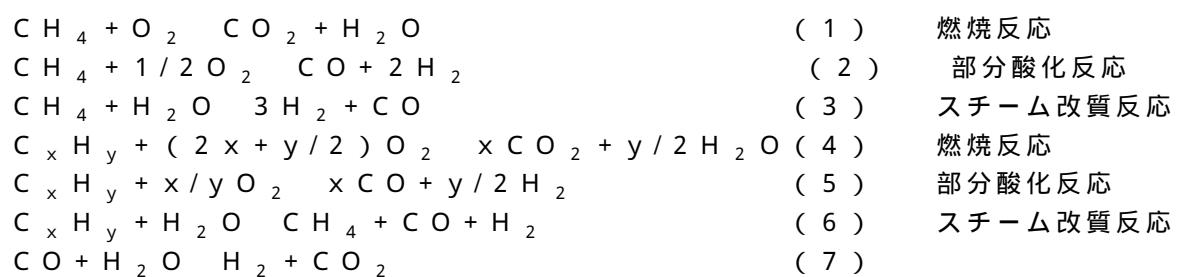
オートサーマル改質器のスチーム改質用触媒は、一般的に第2触媒ゾーンに設けられる。スチーム改質反応に使用される触媒は、スチーム改質に有用であると知られた如何なる触媒、例えばニッケル、コバルト、プラチナ、ルテニウム、およびそれらの複合物を含んでいても良い。触媒を、微粒子ベッドの形態で使用しても良いし、部分酸化触媒に関して言及したように、内部キャリアー支持体上に支持しても良い。

【0018】

次の式は、メタン（反応 1 - 3）とより高級な炭化水素 ($C_x H_y$)（反応 4 - 6）の触媒部分酸化及びスチーム改質をまとめたものである。

30

【0019】



【0020】

反応式 (7) は、水 - ガスシフト反応である。これは通常平衡反応である。

40

【0021】

本発明の実施の形態において、部分酸化反応及びスチーム改質反応のための触媒が、オートサーマル改質のために使用される容器内の単一反応ゾーンに存在する。

【0022】

オートサーマル改質器を作動させる方法は、炭化水素燃料供給ストリームの特性及び燃料電池供給ストリームの所望のメタン含有量に依存することは、上記式から明らかである。勿論、燃料電池供給ストリームは直接燃料電池の負荷需要に関連する。燃料供給ストリームが天然ガスである場合、燃料電池の負荷が高い状況下において、オートサーマル改質器は、基本的により高級な炭化水素だけが改質されるように作動する。結果として、燃料電池供給ストリーム中のメタンの濃度は最大となり、内部改質及びセル冷却のための能力

50

が最大となる。対照的に、燃料供給ストリームが天然ガスであり、セルを冷却する必要性が低い場合、例えば始動時や燃料電池が負荷が低い状況下にある場合、オートサーマル改質器は、メタン改質を活発に行い、そのことにより燃料電池供給ストリーム中のメタン濃度が減少するように作動させる。これを行うために、オートサーマル改質器の改質を高温で行っても良い。

【0023】

燃料供給ストリームが、大部分をより高級な炭化水素により形成されているとき、例えば、ディーゼルが燃料として使用されるとき、オートサーマル改質器の改質を比較的低い温度（一般的に550以下）で行い、より高級な炭化水素からメタンを生成しても良い。オートサーマル改質器の改質部の温度を制御することにより、燃料電池供給ストリーム中のメタン濃度を制御しても良い。10

【0024】

本発明のある実施の形態では、反応に利用可能な酸素の量を調整することにより、触媒部分酸化の程度を制御する。通常、空気は酸素供給源として使用されるので、部分酸化のための触媒を通過する空気流量、及びその触媒に対する酸素供給を制御することにより、上記のことを行っても良い。オートサーマル改質器に空気を供給する為に一般的に使用される送風機を調整することにより、これを行っても良い。通常、燃料供給の炭素含有量に基づいて、炭素に対する酸素の比（質量）を、0.1～0.7の範囲に調整する。

【0025】

燃料供給ストリーム中の炭素に対するスチームの比を制御することにより、オートサーマル改質器内のスチーム改質の程度を調整しても良い。例えば、反応に利用される水（スチームの形態をしている）の量を調整することにより、これを行っても良い。部分的に、水がその生成物であるような部分酸化反応を操作することによりこれを行っても良い。しかし、通常スチームは燃料電池のアノード排出ストリームからオートサーマル改質器に供給される。そのため、付加的に若しくは別の実施形態として、オートサーマル改質器に対するスチームの量を、アノード排気ストリームの再循環を制御することにより変化させても良い。また、以下のオートサーマル改質器を使用することによりスチーム改質の程度を制御することも可能である。そのオートサーマル改質器は、活性が燃料供給ストリーム中の炭素に対するストリームの比とともに変化するような（スチーム改質）触媒を含むオートサーマル改質器である。30

【0026】

オートサーマル改質器が作動する温度及び／又は圧力を調整することにより、オートサーマル改質器の排出物中のメタン濃度を操作することも可能である。一般的に、作動温度は300～900、好ましくは400～800である。通常、圧力は1～10気圧、好ましくは1～5気圧である。

【0027】

即ち、オートサーマル改質器の作動を制御するこれらの方法は、反応物の濃度効果及び／又はオートサーマル改質器内の触媒を通過する、燃料供給ストリーム中の反応物の滞留時間に依存する。触媒の、燃料供給ストリームと接触する表面領域を制御することにより同じ効果が得られる。オートサーマル改質器に、触媒コートされたチャンネルおよびコートされていないチャンネルの一連のチャンネルを設け、燃料供給ストリームとオートサーマル改質器における触媒との間の接触の、要求される程度に基づいて、燃料供給ストリームが、選択されたチャンネルを通るように、これらのチャンネルを配置し、上記のことにより、燃料電池フィードストリーム中のメタン濃度を制御してもよい。40

【0028】

別の実施形態では、オートサーマル改質器は、活性が燃料供給ストリーム中の炭素に対する酸素の比により変化するような（部分酸化）触媒を有する。適切な触媒には、貴金属である活性材料が含まれる。ガドリニウムドープセリア触媒を使用してもよく、それは商業的に入手可能である。一般的に、炭素に対する酸素の比（体積で）は、0.2～0.7の間にある。この比の下限は、燃料供給ストリームに存在するより高級な炭化水素を改質50

することに対応する。この比の上限は、およそ 75 % の改質を表す。この場合、炭化水素のほとんどが水素及び一酸化炭素に変換される

【0029】

実際、多数の様々な方法を、オートサーマル改質器の排出物を所望のように制御しつつ実行しても良い。

【0030】

燃料電池供給ストリームのメタン濃度を変化させ、燃料電池の熱管理を行う。一般的に、燃料電池負荷が最大の状況下で十分な冷却を行うために、燃料電池供給ストリームのメタン含有量は、体積比で少なくとも 10 %、好ましくは少なくとも 15 % (体積比) である。これは、湿量基準で測定されたものである。燃料電池が完全な負荷より小さい負荷で作動する場合、メタンの濃度はより低くても十分である。これらの体積は、オートサーマル改質器を作動させるとき、窒素汚染がいくらか起こる事が考慮されたものである。燃料電池供給ストリーム中の非常に高レベルのメタンは、吸熱性の改質反応の結果過剰の冷却が引き起こされる可能性を有する。この問題は、特に全体的にセラミックの固体酸化物燃料電池において直面するようである。これは、セラミック材料の熱伝導性が小さいためである。しかし、この問題は、燃料電池セルスタック内の金属若しくは金属性コンポーネントを、下部の近接する燃料電池間に、例えばガスセパレータとして挿入し、スタックに亘る熱伝導性を改善することにより抑制することができる。別の実施形態として、またそれに対加させて、各燃料電池アッセンブリの過剰の冷却を抑制するための他の手段を提供しても良い。これには、燃料電池供給ストリームの予備加熱が含まれる。

10

20

【0031】

燃料電池供給ストリームに存在するメタンを燃料電池内で改質する。一般的に改質は燃料電池のアノード上で行われる。改質反応を触媒するためにアノードを適用することが好み。アノードは、ニッケル / ジルコニアサーメットのようなニッケル材料を含み、メタンの改質反応を触媒してもよい。ニッケルオンマグネシウム酸化物若しくはニッケルオノアルミナを使用することもできる。改質触媒を、燃料電池のアノードサイド内の燃料フローチャンネルに設けてもよい。

【0032】

システムの始動時において、オートサーマル改質器で改質するためのスチームが存在しない。故に、初期状態では、オートサーマル改質器は、部分酸化反応器として機能しない。外部からスチームをいくらか投入しても良い。しかし、これは本質的なものではない。スチームが、部分酸化反応により発生するにしたがって、オートサーマル改質器内の改質を促進しても良い。燃料電池が稼働しているとき、スチームをアノード排出ストリームからオートサーマル改質器へ戻しても良い。

30

【0033】

本発明において、燃料電池供給ストリームにおけるメタン濃度を、燃料電池の温度に従って調整する。この温度は、負荷需要に従って変化する。制御には、燃料電池内の吸熱性改質反応の程度及びその熱管理に対して大きな影響を与えるオートサーマル改質器を適切に調節しつつ、燃料電池温度を測定することが含まれる。このような方法で、燃料電池の温度を、所定の負荷需要に対して最適化しても良い。一般的に、燃料電池の稼働温度の基準は、約 800 - 850 であるだろう。

40

【0034】

先に述べたような、従来の冷却剤に基づいた技術を使用して、燃料電池の冷却を行うことができる。燃料電池の温度が急激に上昇する場合、これは特に適切である。しかし、主に負荷が低い状況下において燃料電池内の反応が自立型 (self-sustaining) である本発明の実施形態では、そのような技術に頼る機会が減少する。これは、必要であれば、補助的な冷却システムを簡略化してサイズを減少させることができることを意味する。本発明は、急速感応性手段を提供することを目的とする。この急速感応性手段は、急速な負荷追従が可能である燃料電池熱管理手段である。

【0035】

50

燃料電池及びそれに関連するアッセンブリは、如何なる適切な形態を取ることができる。内部改質反応において、メタンを略変換させるに十分な温度で燃料電池を作動させることができが好ましい。これにより、熱管理システムの効率を最大とする。燃料電池に設けられた改質触媒は、そのオペレーションの間燃料電池に与えられる最大濃度のメタンを改質する能力を有することが好ましい。これにより、本発明の燃料電池システムの効率に影響する。

【 0 0 3 6 】

燃料供給ストリームの硫黄含有量及び燃料電池供給ストリームの硫黄含有量にしたがつて、脱硫ユニットを備えることが好ましい。この脱硫ユニットは、燃料電池供給ストリームが燃料電池に投入される前に、燃料電池供給ストリームから硫黄含有化合物を取り除くためのものである。燃料電池供給ストリームに存在する硫化水素及び硫黄含有有機化合物により、燃料電池内で内部改質するために使用される触媒が被毒されうる。硫黄含有化合物を硫化水素に変換するための水素化触媒（例えばCo-Mo）と、硫化水素吸収体（例えば酸化亜鉛）とからなる従来の脱硫ユニット用いても良い。水素化触媒の場合、水素を連続的に供給し、硫黄含有化合物を硫化水素に変換させる必要がある。脱硫ユニットを、従来の作動条件下で作動させても良い。燃料電池供給ストリームを燃料電池に運ぶ前に、スチームの硫黄含有量を一般的に体積で約1 ppm以下、より好ましくは0.2 ppm以下のレベルまで減少させる。

【 0 0 3 7 】

使用時には、脱硫ユニットに対する投入物温度は、一般的にオートサーマル改質器の排出温度より低い。これは、脱硫ユニットに運ばれる前に、オートサーマル改質器の排出ストリームが冷却されるからである。さらに、脱硫ユニットの排出温度は、一般的に、燃料電池に必要とされる投入温度より非常に低い。この場合、脱硫ユニットの排出ストリームは、燃料電池に運ばれる前に予め加熱される。

【 0 0 3 8 】

燃料電池供給ストリームは、従来の手段により燃料電池のアノードに運ばれる。予め加熱された酸化剤（例えば空気）を燃料電池のカソードに供給する。燃料電池の排出ガスを、触媒性酸化剤を使用して処理しても良い。アノード排出ストリームを再循環させることにより、スチームをオートサーマル改質器及び／又は（内部改質するための）燃料電池に与えても良い。熱ガス用送風機を使用して、アノード排出ストリームを、オートサーマル改質器用の燃料供給ストリームに戻し、これと混合しても良い。

【 0 0 3 9 】

一般的に、燃料ストリームが供給される燃料電池は、燃料ストリームが供給される多層燃料電池のうちの一つである。この多層燃料電池は、平面型SOFCの場合、一般的に燃料電池スタックと称される。しかし、本発明は、単一の燃料電池を使用して実行されるブロセスにも拡張することもできる。様々な平面型SOFCコンポーネント及びシステムの一例として、SOFC及びその材料を、我々の国際特許出願PCT/AU96/00140、PCT/AU96/00594、PCT/AU98/00437、PCT/AU98/00719及びPCT/AU98/00956に記載している。これらの内容は、これらに対応する米国特許第5,942,349号、特許出願09/155061号、09/445735号、09/486501号、及び09/554709号を含め、本願に引用して援用している。他に、我々の国際特許出願PCT/AU99/01140、PCT/AU00/00630及びPCT/AU00/631にも開示している。

【 0 0 4 0 】

本発明は、本発明に係る燃料電池システムの実施形態を概略的に示した添付の図面に例示されているが、これはこのように限定するものではない。より詳細には、図面は、オートサーマル改質器（2）に運ばれる燃料供給ストリーム（1）を示している。オートサーマル改質器（2）に運ばれる前に、燃料供給ストリーム（1）は加熱される（不図示）。オートサーマル改質器（2）において、燃料供給ストリーム（1）は、触媒部分酸化及びスチーム改質がなされ、それにより、ある濃度のメタンを有する燃料電池供給ストリーム

10

20

30

40

50

を生成する。酸化剤である空気(3)を、熱風用送風器を使用してオートサーマル改質器(2)に供給し、燃料供給ストリームの触媒部分酸化を行う。初期状態では、オートサーマル改質器(2)は、スチームを利用することができないので、枯渇した状態である。示された実施の形態では、オートサーマル改質器(2)を、400-650の温度で作動させる。その後、脱硫ユニット(5)に供給される前に、オートサーマル改質器(2)から排出される燃料電池供給ストリームを、冷却器(4)を使用して冷却する。この脱硫ユニット(5)は、およそ380で作動している。さらに、脱硫ユニット(5)は、燃料電池供給ストリーム中に存在する硫黄含有有機化合物を硫化水素に変換するための水素化触媒と、硫化水素吸収体(一般的にZnO)とを含む。脱硫された燃料電池供給ストリームを、燃料予備加熱器(6)を使用して550-650の温度まで予め加熱し、燃料電池のアノード(7)まで運ぶ。図面には示していないけれども、この燃料電池は、多層燃料電池を含む燃料電池セルスタックである。アノードからの排出物を、熱風用送風機(8)を使用して、オートサーマル改質器(2)まで再循環させても良い。燃料電池アノード(7)及びカソード(10)からの排出ストリームを排熱回復ユニット(12)に供給し、最終排出ストリーム(13)を得ることができる。

【0041】

空気(9)を、熱風用送風機を介して燃料電池のカソード(10)に供給する。燃料電池内において、電気を発熱反応により発生させる。アノード(7)において、燃料電池供給ストリームに存在するメタンを吸熱反応により内部改質する。反応に必要な熱は、燃料電池内で起こる発熱性発電反応により供給される。制御ユニット(不図示)は、燃料電池の温度を測定し、オートサーマル改質器のオペレーションを変更して、燃料電池供給ストリーム中のメタン濃度を適切なレベルに調整する。適切なレベルとは、燃料電池内のメタンの内部改質が適切な程度で行われ、そのことにより燃料電池の温度の制御が可能となるようなレベルである。燃料電池に対する負荷需要が増加する場合、温度も増加する。この場合、燃料電池供給ストリーム中のメタンを増加させ、そのことにより燃料電池内の内部改質が増加するように、オートサーマル改質器(2)を作動させる。結果として燃料電池内で吸熱性改質反応が増加することにより、燃料電池により発生した付加的な熱を消費する。燃料電池に対する負荷需要が低下するとき、その温度も低下し、オートサーマル改質オペレーションを調整して、燃料電池供給ストリーム中のメタン濃度を減少させる。このメタンの濃度は、燃料電池内で発電反応により発生した熱を消費するのに必要な内部改質に対するメタン量と比例している。

【0042】

この明細書及びこれに続く請求の範囲を通して、"comprise"のような用語及び"comprises"や"comprising"のような変化形は、規定された構成要素若しくはステップ又は構成要素若しくはステップのグループを含有することを意味し、他の構成要素若しくはステップ又は構成要素若しくはステップのグループを除外するものではない。

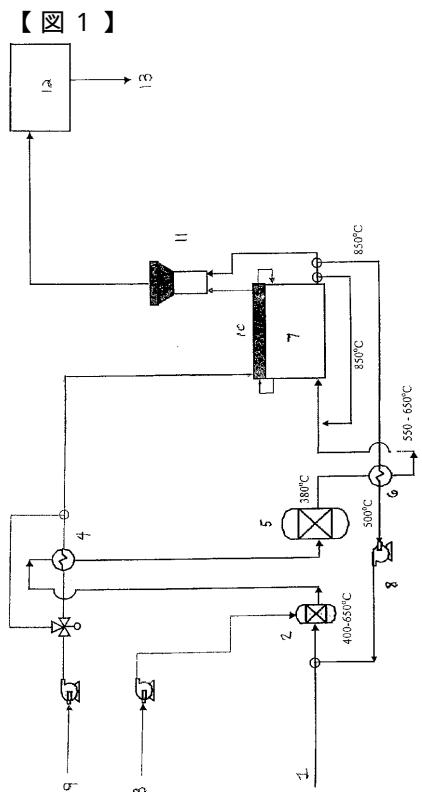


FIGURE 1

フロントページの続き

合議体

審判長 吉水 純子

審判官 大橋 賢一

審判官 野田 定文

(56)参考文献 特表2003-507860(JP,A)

特開2000-84410(JP,A)

米国特許第(US,A)4522894

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01M 8/00-8/24