

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3784751号
(P3784751)

(45) 発行日 平成18年6月14日(2006. 6. 14)

(24) 登録日 平成18年3月24日(2006. 3. 24)

(51) Int. Cl.		F I	
HO 1 M	8/06	(2006. 01)	HO 1 M 8/06 G
HO 1 M	8/04	(2006. 01)	HO 1 M 8/04 J
HO 1 M	8/12	(2006. 01)	HO 1 M 8/12

請求項の数 2 (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2002-176727 (P2002-176727)	(73) 特許権者	000004226 日本電信電話株式会社 東京都千代田区大手町二丁目3番1号
(22) 出願日	平成14年6月18日(2002. 6. 18)	(74) 代理人	100075753 弁理士 和泉 良彦
(65) 公開番号	特開2004-22380 (P2004-22380A)	(74) 代理人	100081341 弁理士 小林 茂
(43) 公開日	平成16年1月22日(2004. 1. 22)	(72) 発明者	横尾 雅之 東京都千代田区大手町二丁目3番1号 日本電信電話株式会社内
審査請求日	平成16年7月22日(2004. 7. 22)	(72) 発明者	武 哲夫 東京都千代田区大手町二丁目3番1号 日本電信電話株式会社内
		審査官	前田 寛之
		最終頁に続く	

(54) 【発明の名称】 固体酸化物形燃料電池システム

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

炭化水素を含むガスを燃料とし、前記炭化水素の電気化学的部分酸化反応を利用して発電を行い、前記電気化学的部分酸化反応の生成物である一酸化炭素及び水素と未反応の炭化水素とを排出する部分酸化型固体酸化物形燃料電池と、前記未反応の炭化水素の水蒸気改質反応により一酸化炭素及び水素を発生させるスタック改質器と、前記部分酸化型固体酸化物形燃料電池での電気化学的部分酸化反応及び前記スタック改質器での水蒸気改質反応により生成した一酸化炭素及び水素の電気化学的酸化反応を利用して発電を行う水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池とを有する固体酸化物形燃料電池システムであって、前記部分酸化型固体酸化物形燃料電池の前段に前記炭化水素の部分酸化反応により一酸化炭素及び水素を生成させる部分酸化型改質器を設置することを特徴とする固体酸化物形燃料電池システム。

【請求項2】

炭化水素を含むガスを燃料とし、前記炭化水素の電気化学的完全酸化反応を利用して発電を行い、前記電気化学的完全酸化反応の生成物である二酸化炭素及び水蒸気と未反応の炭化水素とを排出する完全酸化型固体酸化物形燃料電池と、前記未反応の炭化水素の水蒸気改質反応により一酸化炭素及び水素を発生させるスタック改質器と、前記スタック改質器での水蒸気改質反応により生成した一酸化炭素及び水素の電気化学的酸化反応を利用して発電を行う水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池とを有する固体酸化物形燃料電池システムであって、前記完全酸化型固体酸化物形燃料電池の前段に前記炭化水素の部分酸化反応に

10

20

より一酸化炭素及び水素を生成させる部分酸化型改質器を設置することを特徴とする固体酸化物形燃料電池システム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、固体酸化物形燃料電池システムに関するものである。

【0002】

【従来の技術】

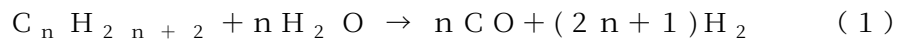
図5は、従来の固体酸化物形燃料電池システムを示す図である。

【0003】

システムに供給された天然ガス（ CH_4 ：88%、 C_2H_6 ：6%、 C_3H_8 ：4%、 C_4H_{10} ：2%）は、昇温されてプレ改質器6に供給される。

【0004】

プレ改質器6は、図6に示したように、複数の水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池セルを重ねてなるセルスタック22（水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池セルセルスタック）とスタック改質器7とからなるセルモジュール21に隣接して配置されている。このプレ改質器6では、 C_2H_6 、 C_3H_8 、 C_4H_{10} の全てと CH_4 の一部が下記反応式（1）に示す水蒸気改質反応、



により水素（ H_2 ）と一酸化炭素（ CO ）とに変換される。水蒸気改質反応（1）は吸熱反応であり、この熱には隣接して配置された水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池セルスタック22からの排熱が利用される。プレ改質器6の触媒は、アルミナ担体にニッケルを担持したものである。

【0005】

プレ改質器6の排出ガスは、スタック改質器7に供給され、プレ改質器6で未反応の全ての CH_4 は水蒸気改質反応により H_2 と CO に変換される。

【0006】

スタック改質器7は、図6に示すように、水蒸気改質型酸化物形燃料電池セルスタック22と入れ子状に配置されている。プレ改質器6とスタック改質器7は、ともに水蒸気を利用して炭化水素を改質する水蒸気改質器であり、両者の相違は、配置される場所の違いにあり、構造的には同種の触媒を主体としたものである。スタック改質器7と水蒸気改質型酸化物形燃料電池セルスタック22とが入れ子状に配置されていることにより、スタック改質器7で行う水蒸気改質に必要な熱を効率良く水蒸気改質型酸化物形燃料電池セルスタック22からスタック改質器7に伝える。スタック改質器7の触媒は、プレ改質器6と同様にアルミナ担体にニッケルを担持したものである。

【0007】

スタック改質器7の排出ガスは、水蒸気改質型酸化物形燃料電池セルスタック22（図5においては、これをまとめて水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池8で示す）に供給される。水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池8では、下記反応式（2）に示す、プレ改質器6とスタック改質器7で生成した一酸化炭素の電気化学的酸化反応、



及び下記反応式（3）に示す、プレ改質器6とスタック改質器7で生成した水素の電気化学的酸化反応、



を利用して発電が行われる。

【0008】

水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池8の排出ガスの一部はプレ改質器6に供給され、該排出ガス中に含まれる水蒸気は、プレ改質器6及びスタック改質器7の水蒸気改質反応に利用される。

【0009】

10

20

30

40

50

このような固体酸化物形燃料電池システムにおいては、例えば、水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 8 での燃料利用率を 80%、発電電圧を 0.65 V とすると、その直流端の発電効率は 51% となる。

【0010】

【発明が解決しようとする課題】

このように、システムに供給する全ての炭化水素を水蒸気と反応させることによって得られた H_2 と CO の電気化学的酸化反応を利用して発電を行う従来の固体酸化物形燃料電池システムでは、水蒸気改質反応により炭化水素から H_2 と CO を生成する過程において大きなエクセルギー損失を伴うために、発電効率が低下するという問題があった。

【0011】

本発明は上記の問題に鑑みてなされたものであり、本発明の目的は、エクセルギー損失が少なく、発電効率が高い固体酸化物形燃料電池システムを提供することにある。

【0012】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するために、本発明においては、請求項 1 に記載のように、炭化水素を含むガスを燃料とし、前記炭化水素の電気化学的部分酸化反応を利用して発電を行い、前記電気化学的部分酸化反応の生成物である一酸化炭素及び水素と未反応の炭化水素とを排出する部分酸化型固体酸化物形燃料電池と、前記未反応の炭化水素の水蒸気改質反応により一酸化炭素及び水素を発生させるスタック改質器と、前記部分酸化型固体酸化物形燃料電池での電気化学的部分酸化反応及び前記スタック改質器での水蒸気改質反応により生成した一酸化炭素及び水素の電気化学的酸化反応を利用して発電を行う水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池とを有する固体酸化物形燃料電池システムであって、前記部分酸化型固体酸化物形燃料電池の前段に前記炭化水素の部分酸化反応により一酸化炭素及び水素を生成させる部分酸化型改質器を設置することを特徴とする固体酸化物形燃料電池システムを構成する。

【0013】

また、本発明は、請求項 2 に記載のように、炭化水素を含むガスを燃料とし、前記炭化水素の電気化学的完全酸化反応を利用して発電を行い、前記電気化学的完全酸化反応の生成物である二酸化炭素及び水蒸気と未反応の炭化水素とを排出する完全酸化型固体酸化物形燃料電池と、前記未反応の炭化水素の水蒸気改質反応により一酸化炭素及び水素を発生させるスタック改質器と、前記スタック改質器での水蒸気改質反応により生成した一酸化炭素及び水素の電気化学的酸化反応を利用して発電を行う水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池とを有する固体酸化物形燃料電池システムであって、前記完全酸化型固体酸化物形燃料電池の前段に前記炭化水素の部分酸化反応により一酸化炭素及び水素を生成させる部分酸化型改質器を設置することを特徴とする固体酸化物形燃料電池システムを構成する。

【0014】

【発明の実施の形態】

本発明の実施の形態においては、炭化水素の直接的な電気化学的酸化反応を利用して発電を行う固体酸化物形燃料電池を用い、エクセルギー損失の大きい炭化水素の水蒸気改質反応の割合を減らすことによって、発電効率の高い固体酸化物形燃料電池システムを提供する。

【0015】

以下、図面を用いて本発明の実施の形態について詳細に説明する。

【0016】

実施の形態 1

図 1 は本発明の第一の実施形態の固体酸化物形燃料電池発電システムを示す図である。

【0017】

炭化水素を含み、水分を含まない、すなわちドライな燃料ガスである天然ガスは、炭化水素の部分酸化反応を利用して H_2 と CO を生成する部分酸化型改質器 1 に供給される。部

10

20

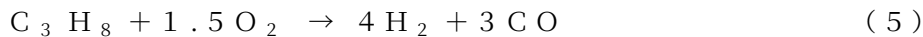
30

40

50

分酸化型改質器 1 には空気も供給され、空気中の酸素を利用して C_2H_6 、 C_3H_8 、 C_4H_{10} の全てが下記反応式 (4) ~ (6) に示す部分酸化反応により水素 (H_2) と一酸化炭素 (CO) に変換される。

【0018】



これらの部分酸化による改質反応は発熱反応なので、部分酸化改質器 1 に熱を供給する必要はないので、部分酸化型改質器 1 は、図 3 のように、セルモジュール 11 と隣接して配置しても構わないし、図 4 のように、セルモジュール 11 と独立して配置しても構わない。

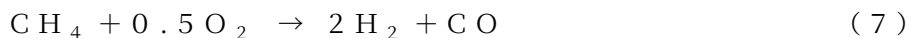
10

【0019】

部分酸化型改質器 1 の触媒は、プレ改質器 6 (図 5) 及びスタック改質器 3 の触媒と同様にアルミナ担体にニッケルを担持したものである。すなわち、この触媒に、水蒸気と炭化水素が供給されれば水蒸気改質が起こり、空気と炭化水素が供給されれば部分酸化による改質が起こる。

【0020】

CH_4 、 CO 及び H_2 を含有する、部分酸化型改質器 1 の排出ガスは、下記反応式 (7) に示す CH_4 の電気化学的部分酸化反応、



を利用して発電を行う部分酸化型固体酸化物形燃料電池 2 に供給される。

20

【0021】

部分酸化型固体酸化物形燃料電池 2 と、スタック改質器 3 と、水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 4 との配置は、図 3 及び図 4 に示したように、セルモジュール 11 内で、部分酸化型固体酸化物形燃料電池 2 は、複数の部分酸化型固体酸化物形燃料電池セル又は完全酸化型固体酸化物形燃料電池セル (本実施形態においては前者) を重ねてなるセルスタック 12 に分割され、水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 4 も同様にセルスタック 13 に分割され、セルスタック 12 とセルスタック 13 とがスタック改質器 3 を挟んだ形で入れ子状の配置となっている。

【0022】

部分酸化型固体酸化物形燃料電池 2 においては、 CH_4 の一部について電気化学的に部分酸化反応が起こり、発電が行われる。部分酸化型固体酸化物形燃料電池 2 の発電温度は $1000^\circ C$ 程度である。

30

【0023】

部分酸化型固体酸化物形燃料電池 2 の排出ガスはスタック改質器 3 に供給され、部分酸化型固体酸化物形燃料電池 2 で未反応の全ての CH_4 は水蒸気改質反応により H_2 と CO に変換される。このように、水蒸気改質反応により H_2 と CO に変換される燃料ガスは CH_4 のみであるので、従来技術に比べて、水蒸気改質反応の割合は少なくなり、エクセルギー損失も少なくなる。

【0024】

スタック改質器 3 の排出ガスは、水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 4 に供給され、部分酸化型改質器 1、部分酸化型固体酸化物形燃料電池 2、及びスタック改質器 3 で生成した H_2 と CO の電気化学的酸化反応 (上記反応式 (3) と (2)) が起こり、発電が行われる。

40

【0025】

水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 4 の排出ガスの一部は、図 3 及び図 4 に示したように、スタック改質器 3 の直前に戻され、水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 4 の排出ガスに含まれる水蒸気が、スタック改質器 3 の水蒸気改質反応に利用される。

【0026】

このような固体酸化物形燃料電池システムにおいて、例えば、部分酸化型固体酸化物形燃

50

料電池 2 で部分酸化型改質器 1 から供給された CH_4 の 50% が部分酸化反応により発電に利用され、水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 4 で部分酸化型改質器 1、部分酸化型固体酸化物形燃料電池 2、及びスタック改質器 3 で生成した H_2 と CO の 80% が発電に利用されたとする。このとき、部分酸化型固体酸化物形燃料電池 2 の発電電圧を 1.0 V、水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 4 の発電電圧を 0.65 V とすると、システムとしての発電効率は 52% となる。燃料電池として水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 8 のみを用いた従来の固体酸化物形燃料電池システム（図 5）よりも発電効率が 1% 上昇する。

【0027】

実施の形態 2

図 2 は本発明の第二の実施形態の固体酸化物形燃料電池発電システムを示す図である。

10

【0028】

炭化水素を含み、水分を含まない、すなわちドライな燃料ガスである天然ガスは、炭化水素の部分酸化反応を利用して H_2 と CO を生成する部分酸化型改質器 1 に供給される。部分酸化型改質器 1 には空気も供給され、空気中の酸素を利用して C_2H_6 、 C_3H_8 、 C_4H_{10} の全てが上記反応式（4）～（6）に示す部分酸化反応により H_2 と CO に変換される。

【0029】

これらの部分酸化による改質反応は発熱反応なので、部分酸化改質器 1 に熱を供給する必要はないので、部分酸化型改質器 1 は、図 3 のように、セルモジュール 11 と隣接して配置しても構わないし、図 4 のように、セルモジュール 11 と独立して配置しても構わない。

20

【0030】

部分酸化型改質器 1 の触媒は、プレ改質器 6（図 5）及びスタック改質器 3 の触媒と同様にアルミナ担体にニッケルを担持したものである。すなわち、この触媒に、水蒸気と炭化水素が供給されれば水蒸気改質が起こり、空気と炭化水素が供給されれば部分酸化による改質が起こる。

【0031】

CH_4 、 CO 及び H_2 を含有する、部分酸化型改質器 1 の排出ガスは、下記反応式（8）に示す CH_4 の電気化学的完全酸化反応、



30

を利用して発電を行う完全酸化型固体酸化物形燃料電池 5 に供給される。

【0032】

完全酸化型固体酸化物形燃料電池 5 と、スタック改質器 3 と、水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 4 との配置は、図 3 及び図 4 に示したように、セルモジュール 11 内で、完全酸化型固体酸化物形燃料電池 5 は、複数の部分酸化型固体酸化物形燃料電池セル又は完全酸化型固体酸化物形燃料電池セル（本実施形態においては後者）を重ねてなるセルスタック 12 に分割され、水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 4 も同様にセルスタック 13 に分割され、セルスタック 12 とセルスタック 13 とがスタック改質器 3 を挟んだ形で入れ子状の配置となっている。

【0033】

40

完全酸化型固体酸化物形燃料電池 5 においては、 CH_4 の一部について電気化学的完全酸化反応が起こり、発電が行われる。完全酸化型固体酸化物形燃料電池 5 の発電温度は、部分酸化型固体酸化物形燃料電池 2 と異なり、600℃程度である。

【0034】

完全酸化型固体酸化物形燃料電池 5 の排出ガスは、スタック改質器 3 に供給され、完全酸化型固体酸化物形燃料電池 5 で未反応の全ての CH_4 は水蒸気改質反応により H_2 と CO に変換される。この場合にも、水蒸気改質反応により H_2 と CO に変換される燃料ガスは CH_4 のみであるので、従来技術に比べて、水蒸気改質反応の割合は少なくなり、エクセルギー損失も少なくなる。

【0035】

50

スタック改質器 3 の排出ガスは、水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 4 に供給される。部分酸化型改質器 1 及びスタック改質器 3 で生成した H_2 と CO の電気化学的酸化反応（上記反応式（3）と（2））が起こり、発電が行われる。

【0036】

水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 4 の排出ガスの一部は、図 3 及び図 4 に示したように、スタック改質器 3 の直前に戻され、水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 4 の排出ガスに含まれる水蒸気が、スタック改質器 3 の水蒸気改質反応に利用される。

【0037】

このような固体酸化物形燃料電池システムにおいて、例えば、完全酸化型固体酸化物形燃料電池 5 で部分酸化型改質器 1 から供給された CH_4 の 50% が完全酸化反応により発電に利用され、水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 4 では、部分酸化型改質器 1 及びスタック改質器 3 で生成した H_2 と CO の 80% が発電に利用されたとする。このとき、完全酸化型固体酸化物形燃料電池 5 の発電電圧を 0.9 V、水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 4 の発電電圧を 0.65 V とすると、システムとしての発電効率は 62% となる。燃料電池として水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池 8 のみを用いた従来の固体酸化物形燃料電池システム（図 5）よりも発電効率が 10% 向上する。

10

【0038】

以上説明したように、本発明に依れば、炭化水素の電気化学的酸化反応を利用して発電を行う固体酸化物形燃料電池を用いることによって、高効率な固体酸化物形燃料電池システムを提供することができる。

20

【0039】

【発明の効果】

本発明の実施により、エクセルギー損失が少なく、発電効率が高い固体酸化物形燃料電池システムを提供することが可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】本発明の第一の実施形態の固体酸化物形燃料電池システムを示す図である。

【図 2】本発明の第二の実施形態の固体酸化物形燃料電池システムを示す図である。

【図 3】本発明の第一の実施形態及び第二の実施形態の固体酸化物形燃料電池システムの内部構成を示す図である。

【図 4】本発明の第一の実施形態及び第二の実施形態の固体酸化物形燃料電池システムの内部構成を示す図である。

30

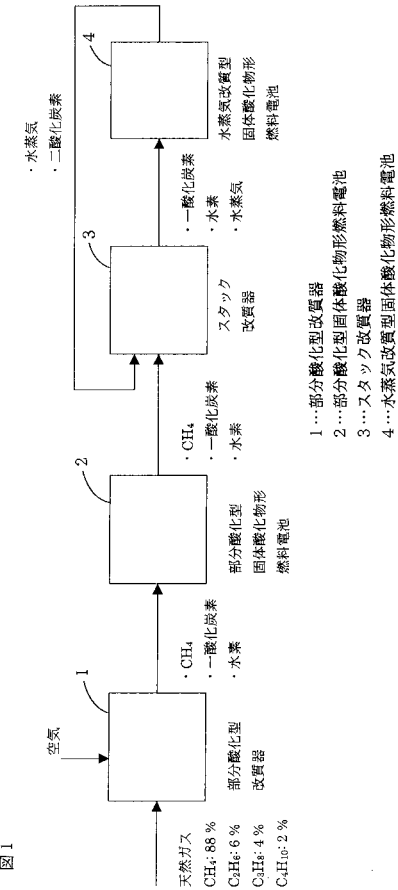
【図 5】従来の固体酸化物形燃料電池システムを示す図である。

【図 6】従来の固体酸化物形燃料電池システムの内部構成を示す図である。

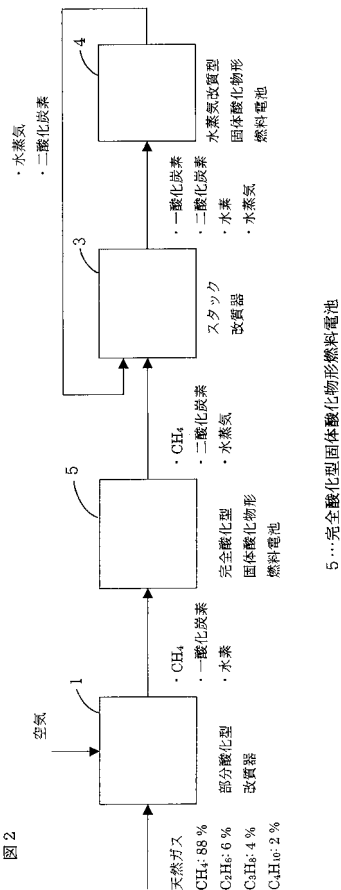
【符号の説明】

1…部分酸化型改質器、2…部分酸化型固体酸化物形燃料電池、3…スタック改質器、4…水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池、5…完全酸化型固体酸化物形燃料電池、6…プレ改質器、7…スタック改質器、8…水蒸気改質型固体酸化物形燃料電池、11…セルモジュール、12、13…セルスタック、21…セルモジュール、22…セルスタック。

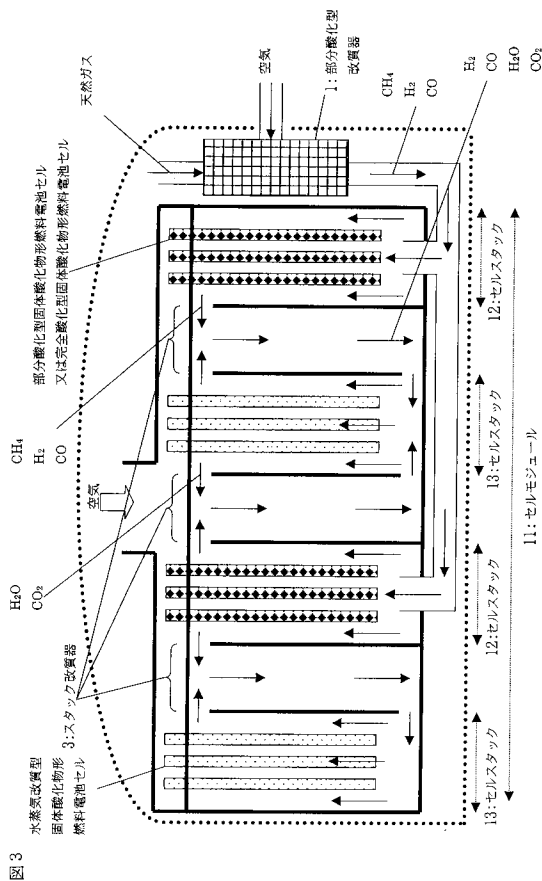
【図 1】



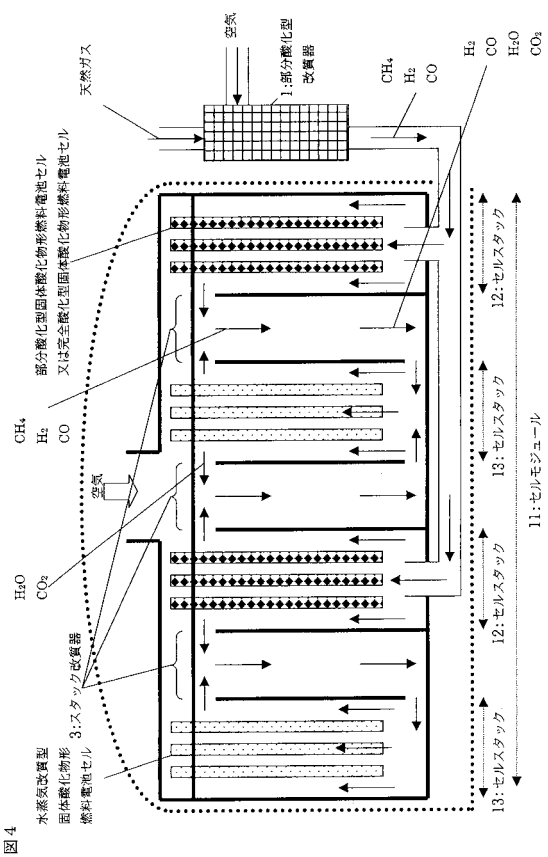
【図 2】



【図 3】



【図 4】



【図 5】

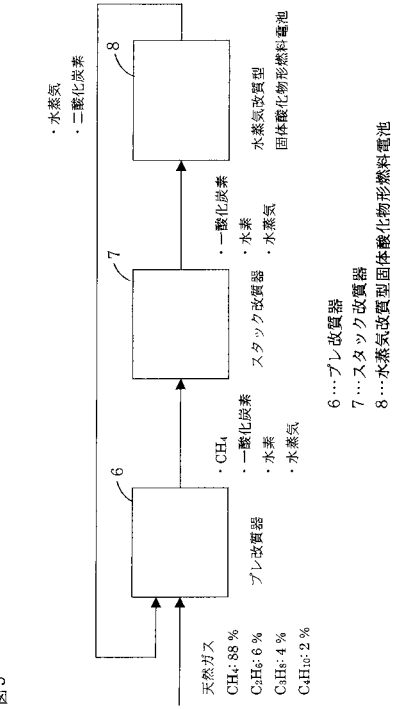


図 5

【図 6】

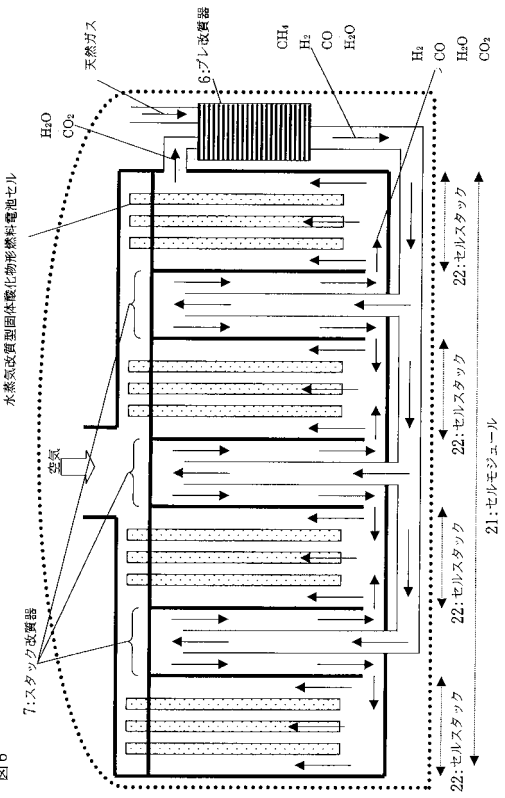


図 6

フロントページの続き

- (56)参考文献 特開平03-208258 (JP, A)
特開平06-089735 (JP, A)
特開平07-176314 (JP, A)
特開平07-335238 (JP, A)
特開2000-268832 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01M 8/06

H01M 8/04

H01M 8/12