(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2019年8月15日(15.08.2019)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2019/155901 A1

(51) 国際特許分類:
H01M 8/0668 (2016.01) *H01M 8/04791* (2016.01)
B01D 53/047 (2006.01) *H01M 8/10* (2016.01)
B01D 53/22 (2006.01) *H01M 8/12* (2016.01)
H01M 8/00 (2016.01) *H01M 8/2495* (2016.01)
H01M 8/04746 (2016.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2019/002372

(22) 国際出願日： 2019年1月24日(24.01.2019)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(30) 優先権データ：
特願 2018-019502 2018年2月6日(06.02.2018) JP

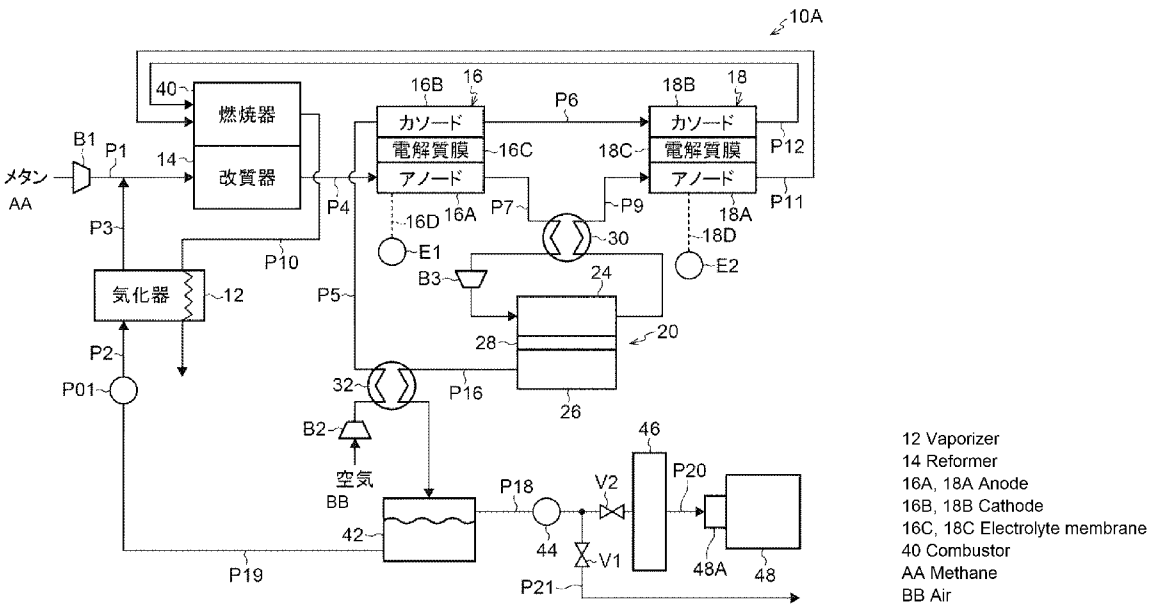
(71) 出願人: 東京瓦斯株式会社(**TOKYO GAS CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒1058527 東京都港区海岸一丁目５番２０号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 中島 達哉 (**NAKAJIMA, Tatsuya**); 〒1058527 東京都港区海岸一丁目５番２０号 東京瓦斯株式会社内 Tokyo (JP). 道幸 立樹(**DOHKOH, Tatsuki**); 〒1058527 東京都港区海岸一丁目５番２０号 東京瓦斯株式会社内 Tokyo (JP). 白井 麻理恵(**SHIRAI, Marie**); 〒1058527 東京都港区海岸一丁目５番２０号 東京瓦斯株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人太陽国際特許事務所 (**TAIYO, NAKAJIMA & KATO**); 〒1600022 東京都新宿区新宿４丁目３番１７号 特許業務法人太陽国際特許事務所 Tokyo (JP).

(54) **Title:** CARBON DIOXIDE PRODUCTION SYSTEM

(54) 発明の名称： 二酸化炭素製造システム



(57) **Abstract:** This carbon dioxide production system 10A is provided with: a fuel cell stack 16; a separation unit 20 which separates an anode off gas into a regenerated fuel gas and a non-fuel gas that contains at least carbon dioxide and water; a second heat exchanger 32 which separates water from the non-fuel gas; a water tank 42; and a carbon dioxide recovery tank 48 which recovers carbon dioxide after the separation of water.

(57) 要約：二酸化炭素製造システム１０Ａは、燃料電池セルスタック１６と、アノードオフガスを、少なくとも二酸化炭素及び水を含む非燃料ガスと再生燃料ガスとに分離する分離部２０と、非燃料ガスから水を分離する第２熱交換器３２、水タンク４２と、水が分離された後の二酸化炭素を回収する二酸化炭素回収タンク４８を備えている。

WO 2019/155901 A1

［続葉有］

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一　国際調査報告（条約第21条(3)）

明　細　書

発明の名称 ： 二酸化炭素製造システム

技術分野

[0001] 本発明は二酸化炭素製造システムに関する。

背景技術

[0002] 燃料電池システムにおいて、炭素化合物燃料を用いる場合には、二酸化炭素が発生する。この二酸化炭素は、アノードから排出されるアノードオフガスにも含まれており、アノードオフガスを再生燃料として発電に供する場合には、アノードオフガスから二酸化炭素を除去することが行われる。

[0003] 例えば、特開平６－２０３８４５号公報には、アノードオフガスを凝縮させて水蒸気を分離し、水蒸気が分離されたアノードオフガスを二酸化炭素分離装置へ導入し、分離膜により二酸化炭素を分離して回収する技術が開示されている。

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] カソードオフガスが混ざる燃焼排ガスと比較して、二酸化炭素濃度が高い燃料電池システムのアノードオフガスから二酸化炭素を分離して回収することで、容易に高濃度の二酸化炭素を回収することができる。この場合、再生燃料ガスを効率的に発電に再利用すると共に、二酸化炭素の回収にも工夫が求められる。

[0005] 本発明は上記事実を考慮して成されたもので、アノードオフガスから二酸化炭素を容易に分離すると共に、発電用の再生燃料ガスを効率的に再利用することが目的である。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明の第１の態様に係る二酸化炭素製造システムは、炭素化合物を含み燃料極へ供給される燃料ガスと、酸素を含み空気極へ供給される酸化剤ガスと、により発電し、前記燃料極からアノードオフガスが排出される燃料電池

と、前記アノードオフガスを、少なくとも二酸化炭素及び水を含む非燃料ガスと再生燃料ガスとに分離する分離部と、前記非燃料ガスから水を分離する水分離部と、前記水分離部で水が分離された後の二酸化炭素を回収する二酸化炭素回収部と、を備えている。

[0007] 第１の態様に係る二酸化炭素製造システムでは、燃料極へ供給された燃料ガスと空気極へ供給された酸化剤ガスにより、燃料電池での発電が行われる。燃料ガスには、炭素化合物が含まれており、燃料極からは少なくとも二酸化炭素及び水を含むアノードオフガスが排出される。なお、ここでの燃料ガスは、炭素化合物を含むものであれば特に限定されず、例えば、炭化水素化合物を改質して得られる改質ガスであっても、炭化水素化合物そのものであっても、一酸化炭素そのものであってもよい。

[0008] 分離部は、アノードオフガスを、少なくとも二酸化炭素及び水を含む非燃料ガスと再生燃料ガスとに分離する。凝縮により水を分離する場合と比較して、再生燃料ガスを高温に維持できるので、熱エネルギーのロスを少なくして効率的に再生燃料ガスを発電に供することができる。また、アノードオフガスから二酸化炭素のみを分離する場合と比較して、分離手段の選択の自由度を高くすることができる。

[0009] 非燃料ガスは、水分離部で水が分離され、水が分離された後の非燃料ガスを二酸化炭素回収部で回収する。再生燃料ガスと分離した後の非燃料ガスでは、水と二酸化炭素が主成分となっているので、凝縮により容易に水を分離することができる。

[0010] 本発明の第２の態様に係る二酸化炭素製造システムは、前記分離部から送出される前記再生燃料ガスを用いて発電する第２燃料電池を備えている。

[0011] 第２の態様に係る二酸化炭素製造システムによれば、再生燃料ガスを用いて第２燃料電池で発電するので、発電効率を高めることができる。

[0012] 本発明の第３の態様に係る二酸化炭素製造システムは、前記分離部は、前記非燃料ガスを透過させる分離膜により非透過側と透過側とに区画され、前記透過側から前記非燃料ガスを吸引して前記二酸化炭素回収部へ送出させる

吸引ポンプを備えている。

[0013] 第３の態様に係る二酸化炭素製造システムによれば、吸引ポンプでの吸引を行うことにより、非燃料ガスの透過側への透過を促進することができる。

[0014] 本発明の第４の態様に係る二酸化炭素製造システムは、炭素化合物を含み燃料極へ供給される燃料ガスと、酸素を含み空気極へ供給される酸化剤ガスと、により発電し、前記燃料極からアノードオフガスが排出される燃料電池と、前記アノードオフガスを、少なくとも二酸化炭素を含む非燃料ガスと再生燃料ガスとに分離する分離部と、前記分離部で分離された後の非燃料ガスを回収する二酸化炭素回収部と、前記二酸化炭素回収部で回収される非燃料ガス中の二酸化炭素の濃度及び非燃料ガスの流量の少なくとも一方が設定範囲となるように調整する二酸化炭素調整部と、を備えている。

[0015] 第４の態様に係る二酸化炭素製造システムでは、燃料極へ供給された燃料ガスと空気極へ供給された酸化剤ガスにより、燃料電池での発電が行われる。燃料ガスには、炭素化合物が含まれており、燃料極からは少なくとも二酸化炭素及び水を含むアノードオフガスが排出される。分離部は、アノードオフガスを、少なくとも二酸化炭素を含む非燃料ガスと再生燃料ガスとに分離する。そして、二酸化炭素調整部によって、二酸化炭素回収部で回収される非燃料ガス中の二酸化炭素の濃度及び非燃料ガスの流量の少なくとも一方が、設定範囲となるように調整される。これにより、所望の設定範囲での濃度、流量の二酸化炭素を回収することができる。

[0016] 本発明の第５の態様係る二酸化炭素製造システムは、前記分離部から送出される前記再生燃料ガスを用いて発電する第２燃料電池を備えている。

[0017] 第５の態様に係る二酸化炭素製造システムによれば、再生燃料ガスを用いて第２燃料電池で発電するので、発電効率を高めることができる。

[0018] 本発明の第６の態様に係る二酸化炭素製造システムは、前記二酸化炭素調整部は、前記燃料電池での発電量を調整すること、を特徴とする。

[0019] 第６の態様に係る二酸化炭素製造システムによれば、燃料電池での発電量を調整することにより、アノードオフガス中の二酸化炭素濃度、二酸化炭素

流量が変わることから、二酸化炭素回収部で回収する時間当たりの二酸化炭素の量や濃度を調整することができる。

[0020] 本発明の第７の態様に係る二酸化炭素製造システムは、前記二酸化炭素調整部は、システム全体における発電量を調整すること、を特徴とする。

[0021] 第７の態様に係る二酸化炭素製造システムによれば、システム全体における発電量を調整することにより、アノードオフガス中の二酸化炭素濃度、二酸化炭素流量が変わることから、二酸化炭素回収部で回収する時間当たりの二酸化炭素の量や濃度を調整することができる。

[0022] 本発明の第８の態様に係る二酸化炭素製造システムは、前記分離部は、前記アノードオフガスを、少なくとも二酸化炭素及び水を含む非燃料ガスと再生燃料ガスとに分離し、前記非燃料ガスから水を分離する水分離部、を更に備えている。

[0023] 第８の態様に係る二酸化炭素製造システムによれば、凝縮により水を分離する場合と比較して、再生燃料ガスを高温に維持できるので、効率的に再生燃料ガスを発電に供することができる。また、アノードオフガスから二酸化炭素のみを分離する場合と比較して、分離手段の選択肢を広げることができる。

[0024] 非燃料ガスは、水分離部で水が分離され、水が分離された後の非燃料ガスを二酸化炭素回収部で回収する。再生燃料ガスと分離した後の非燃料ガスでは、水と二酸化炭素が主成分となっているので、水を分離するための手段の選択肢を広げることができる。

[0025] 本発明の第９の態様に係る二酸化炭素製造システムは、前記水分離部は、凝縮により前記非燃料ガスから水蒸気を除去し、前記二酸化炭素調整部は、前記水分離部での凝縮量を調整すること、を特徴とする。

[0026] 第９の態様に係る二酸化炭素製造システムによれば、水分離部での凝縮量を調整することにより、二酸化炭素回収部で回収する二酸化炭素の濃度を調整することができる。

[0027] 本発明の第１０の態様に係る二酸化炭素製造システムは、前記水分離部の

下流側に圧力スイング吸着部を有し、前記濃度調整部は、前記圧力スイング吸着部における吸着条件を調整すること、を特徴とする。

[0028] 第１０の態様に係る二酸化炭素製造システムによれば、圧力スイング吸着部における吸着条件を調整することにより、二酸化炭素回収部で回収する二酸化炭素の濃度を調整することができる。

[0029] 本発明の第１１の態様に係る二酸化炭素製造システムは、前記二酸化炭素調整部は、前記燃料極へ送出する前記燃料ガス量を調整すること、を特徴とする。

[0030] 第１１の態様に係る二酸化炭素製造システムによれば、燃料極へ送出する前記燃料ガス量を調整することにより、アノードオフガス中の二酸化炭素濃度、二酸化炭素流量が変わることから、二酸化炭素回収部で回収する時間当たりの二酸化炭素の量や濃度を調整することができる。

[0031] 本発明の第１２の態様に係る二酸化炭素製造システムは、原料ガスを改質して前記燃料ガスを生成する改質器を有し、前記二酸化炭素調整部は、前記改質器へ供給する改質水の量を調整すること、を特徴とする。

[0032] 第１２の態様に係る二酸化炭素製造システムによれば、改質器へ供給する改質水の量を調整することにより、二酸化炭素回収部で回収する時間当たりの二酸化炭素の量や濃度を調整することができる。

[0033] 本発明の第１３の態様に係る二酸化炭素製造システムは、前記分離部は、前記非燃料ガスを透過させる分離膜により非透過側と透過側とに区画され、前記透過側から前記非燃料ガスを吸引して前記二酸化炭素回収部へ送出させる吸引ポンプを備えている。

[0034] 第１３の態様に係る二酸化炭素製造システムによれば、吸引ポンプで透過側の圧力を下げることにより、二酸化炭素の濃度を下げることなく二酸化炭素を回収することができる。

[0035] 本発明の第１４の態様に係る二酸化炭素製造システムは、前記分離部は、前記非燃料ガスを透過させる分離膜により非透過側と透過側とに区画され、前記透過側から前記非燃料ガスを吸引して前記二酸化炭素回収部へ送出させ

る吸引ポンプを備え、前記二酸化炭素調整部は、前記吸引ポンプでの吸引流量を調整すること、を特徴とする。

[0036] 第１４の態様に係る二酸化炭素製造システムによれば、吸引ポンプでの吸引流量を調整することにより、二酸化炭素回収部で回収する二酸化炭素の流量を調整することができる。

発明の効果

[0037] 本発明に係る二酸化炭素製造システムによれば、アノードオフガスから二酸化炭素を効率よく分離すると共に、発電用の再生燃料ガスを効率的に再利用することができる。

図面の簡単な説明

[0038] [図1]第１実施形態に係る二酸化炭素製造システムの概略図である。

[図2]第１実施形態に係る二酸化炭素製造システムの制御系のブロック図である。

[図3]第１実施形態の二酸化炭素流量調整処理のフローチャートである。

[図4]第２実施形態に係る二酸化炭素製造システムの概略図である。

[図5]第２実施形態に係る二酸化炭素製造システムの制御系のブロック図である。

[図6]第２実施形態の二酸化炭素濃度調整処理のフローチャートである。

[図7]第３実施形態に係る二酸化炭素製造システムの概略図である。

[図8]第４実施形態に係る二酸化炭素製造システムの概略図である。

発明を実施するための形態

[0039] 以下、図面を参照して本発明の実施形態の一例を詳細に説明する。

[0040] 〔第１実施形態〕

図１には、本発明の第１実施形態に係る二酸化炭素製造システム１０Ａが示されている。二酸化炭素製造システム１０Ａは、主要な構成として、気化器１２、改質器１４、第１燃料電池セルスタック１６、第２燃料電池セルスタック１８、分離部２０、第１熱交換器３０、第２熱交換器３２、燃焼器４０、水タンク４２、吸引ポンプ４４、ＰＳＡ（Pressure Swing Adsorption）

装置４６、及び二酸化炭素回収タンク４８を備えている。また、図２に示されるように、二酸化炭素製造システム１０Ａを制御する制御部５０を備えている。

[0041] 改質器１４には、原料ガス管Ｐ１の一端が接続されており、原料ガス管Ｐ１の他端は図示しないガス源に接続されている。ガス源からは、原料供給ブロワＢ１によりメタンが改質器１４へ送出される。なお、本実施形態では、原料ガスとしてメタンを用いるが、改質が可能なガスであれば特に限定されず、炭化水素燃料を用いることができる。炭化水素燃料としては、天然ガス、ＬＰガス（液化石油ガス）、石炭改質ガス、低級炭化水素ガスなどが例示される。低級炭化水素ガスとしては、メタン、エタン、エチレン、プロパン、ブタン等の炭素数４以下の低級炭化水素が挙げられ、本実施形態で用いるメタンが好ましい。なお、炭化水素燃料としては、上述した低級炭化水素ガスを混合したものであってもよく、上述した低級炭化水素ガスは天然ガス、都市ガス、ＬＰガス等のガスであってもよい。

[0042] 気化器１２には、水供給管Ｐ２が接続されており、水供給ポンプＰＯ１により、水（液相）が送り込まれる。気化器１２では、水が気化される。気化には、後述する燃焼器４０の熱が用いられる。気化器１２からは、水蒸気が送出され、水蒸気を送出する水蒸気管Ｐ３は、原料ガス管Ｐ１と合流されている。

[0043] メタン及び水蒸気は原料ガス管Ｐ１で合流され、改質器１４へ供給される。改質器１４は、燃焼器４０、第１燃料電池セルスタック１６、及び第２燃料電池セルスタック１８と隣接されており、これらとの間で熱交換を行うことで加熱される。

[0044] 改質器１４では、メタンを改質し、水素を含む６００℃程度の温度の燃料ガスを生成する。改質器１４は、第１燃料電池セルスタック１６のアノード（燃料極）１６Ａと接続されている。改質器１４で生成された燃料ガスは、燃料ガス管Ｐ４を介して第１燃料電池セルスタック１６のアノード１６Ａに供給される。なお、改質器１４で未反応の原料ガス成分も、燃料ガスに含ま

れてアノード１６Ａへ供給される。

[0045] 第１燃料電池セルスタック１６は固体酸化物形の燃料電池セルスタックであり、積層された複数の燃料電池セルを有している。第１燃料電池セルスタック１６は本発明における燃料電池（第１燃料電池）の一例であり、本実施形態では、作動温度が６５０℃程度とされている。個々の燃料電池セルは、電解質層１６Ｃと、当該電解質層１６Ｃの表裏面にそれぞれ積層されたアノード１６Ａ、及びカソード（空気極）１６Ｂと、を有している。

[0046] なお、第２燃料電池セルスタック１８についての基本構成は、第１燃料電池セルスタック１６と同様であり、アノード１６Ａに対応するアノード１８Ａ、カソード１６Ｂに対応するカソード１８Ｂ、及び電解質層１６Ｃに対応する電解質層１８Ｃを有している。

[0047] 第１燃料電池セルスタック１６のカソード１６Ｂには、酸化剤ガス管Ｐ５から酸化剤ガス（空気）が供給される。酸化剤ガス管Ｐ５へは、酸化剤ガスブロワＢ２により空気が導入されている。酸化剤ガス管Ｐ５には、第２熱交換器３２が設けられており、空気が後述する非燃料ガスとの熱交換により加熱され、カソード１６Ｂへ供給される。

[0048] カソード１６Ｂでは、下記（１）式に示すように、酸化剤ガス中の酸素と電子とが反応して酸素イオンが生成される。生成された酸素イオンは電解質層を通って第１燃料電池セルスタック１６のアノード１６Ａに到達する。

[0049] （空気極反応）

$$1/2O_2 + 2e^- \rightarrow O^{2-} \quad \cdots (1)$$

[0050] また、カソード１６Ｂには、カソード１６Ｂから排出されるカソードオフガスを第２燃料電池セルスタック１８のカソード１８Ｂへ案内するカソードオフガス管Ｐ６が接続されている。

[0051] 一方、第１燃料電池セルスタック１６のアノード１６Ａでは、下記（２）式及び（３）式に示すように、電解質層を通ってきた酸素イオンが燃料ガス中の水素及び一酸化炭素と反応し、水(水蒸気)及び二酸化炭素と電子が生成される。アノード１６Ａで生成された電子がアノード１６Ａから外部回路を

通ってカソード１６Ｂに移動することで、各燃料電池セルにおいて発電される。また、各燃料電池セルは、発電時に発熱する。第１燃料電池セルスタック１６から電力を取り出す電力ケーブル１６Ｄには、電力計Ｅ１が接続されている。電力計Ｅ１により、第１燃料電池セルスタック１６から出力される電力が計測される。第１燃料電池セルスタック１６での発電量は、制御部５０で制御されている。

[0052] （燃料極反応）

$H_2 + O^{2-} \rightarrow H_2O + 2e^-$ …（２）

$CO + O^{2-} \rightarrow CO_2 + 2e^-$ …（３）

[0053] 第１燃料電池セルスタック１６のアノード１６Ａにはアノードオフガス管Ｐ７の一端が接続されており、アノードオフガス管Ｐ７には、アノード１６Ａからアノードオフガスが排出される。アノードオフガスには、未改質の原料ガス成分、未反応の水素、未反応の一酸化炭素、二酸化炭素及び水蒸気等が含まれている。

[0054] なお、本発明の燃料電池としては、固体酸化物形の燃料電池(SOFC：Solid Oxide Fuel Cell)に限られるものではなく、アノードオフガスに二酸化炭素及が含まれる他の燃料電池、例えば溶融炭酸塩形燃料電池(MCFC)、リン酸形燃料電池(PAFC)、高分子電解質形燃料電池(PEFC)であってもよい。

[0055] アノードオフガス管Ｐ７の他端は、後述する第１熱交換器３０を経て分離部２０の流入部２４と接続されている。分離部２０は、アノードオフガスから二酸化炭素及び水を後述する分離膜２８で分離するものである。分離部２０は、流入部２４及び透過部２６を有している。流入部２４と透過部２６は、分離膜２８で区画されている。流入部２４がアノードオフガスの非透過側となり、透過部２６が透過側となる。

[0056] ここで、分離膜２８について説明する。本実施形態では、分離膜２８は二酸化炭素及び水を透過する機能を有するものを用いる。二酸化炭素及び水を透過する機能を有するものであれば、特に限定されないが、例えば、有機高分子膜、無機材料膜、有機高分子－無機材料複合膜、液体膜などが挙げられ

る。

[0057] アノードオフガスは、アノードオフガス管Ｐ７を経て分離部２０の流入部２４へ供給される。アノードオフガスに含まれる二酸化炭素及び水は、分離膜２８を透過して透過部２６へ移動する。二酸化炭素及び水の濃度が低減されて流入部２４側に残ったアノードオフガスは、再生燃料ガスとなって、流入部２４から送出される。再生燃料ガス管Ｐ９は、第２燃料電池セルスタック１８のアノード１８Ａと接続されており、再生燃料ガスは、再生燃料ガス管Ｐ９を経て、第２燃料電池セルスタック１８のアノード１８Ａに供給される。

[0058] アノードオフガス管Ｐ７を流れるアノードオフガスと再生燃料ガス管Ｐ９を流れる再生燃料ガスとは、第１熱交換器３０で熱交換が行われる。第１熱交換器３０では、アノードオフガスが冷却され、再生燃料ガスが加熱される。

[0059] 分離部２０の透過部２６には、水タンク４２に一端が接続された非燃料ガス管Ｐ１６の他端が接続されている。

[0060] 分離部２０では、流入部２４から分離膜２８を透過して二酸化炭素及び水（気相）が透過部２６へ移動する。

[0061] 二酸化炭素、水（気相）、及び、その他分離膜２８を透過したアノードオフガス中の気体は、非燃料ガスとして透過部２６から送出される。送出された非燃料ガスは、非燃料ガス管Ｐ１６により、第２熱交換器３２を経て水タンク４２へ送出される。

[0062] 水タンク４２には、凝縮により液化した水、及び、水が除去され主成分を二酸化炭素とする非燃料ガス（以下「二酸化炭素リッチガス」という）が分離された状態で貯留されている。水タンク４２の上部の気体貯留部分には、回収管Ｐ１８の一端が接続され、水タンク４２の下部の液体貯留部分には、水を気化器１２へ供給する水循環管Ｐ１９の一端が接続されている。二酸化炭素リッチガスは、回収管Ｐ１８へ送出される。

[0063] 回収管Ｐ１８の他端には、ＰＳＡ装置４６が接続されている。ＰＳＡ装置

４６では、二酸化炭素リッチガスから二酸化炭素以外の成分が吸着により除去され（以下このガスを「二酸化炭素ガス」という）、ＣＯ２管Ｐ２０へ送出する。ＣＯ２管Ｐ２０の一端はＰＳＡ装置４６に接続され、ＣＯ２管Ｐ２０の一他端は二酸化炭素回収タンク４８に接続されている。ＰＳＡ装置４６から送出された二酸化炭素ガスは、ＣＯ２管Ｐ２０を経て二酸化炭素回収タンク４８へ貯留される。二酸化炭素回収タンク４８の入口には、流量計４８Ａが設けられている。流量計４８Ａにより、二酸化炭素回収タンク４８へ流入する気体の流量が計測される。なお、ＣＯ２管Ｐ２０は、別のシステムへ供給するための配管に接続されていてもよい。また、二酸化炭素回収タンク４８の充填量や圧力を計測してもよい。

[0064] 回収管Ｐ１８には、吸引ポンプ４４が接続されている。吸引ポンプ４４は、上流側の気体を吸引して下流側へ送出する。吸引ポンプ４４により、透過部２６から非燃料ガスが吸引され、所定の圧力でＰＳＡ装置４６へ送出される。吸引ポンプ４４の出力に応じて、流入部２４から分離膜２８を透過して透過部２６へ移動する非燃料ガスの流量が制御される。

[0065] 回収管Ｐ１８の吸引ポンプ４４よりも下流側には、分岐管Ｐ２１が接続されている。分岐管Ｐ２１には、開閉弁Ｖ１が設けられている。また、回収管Ｐ１８の分岐管Ｐ２１が接続された部分よりも下流側には、開閉弁Ｖ２が設けられている。回収管Ｐ１８へ送出された二酸化炭素リッチガスは、開閉弁Ｖ１が閉鎖され、開閉弁Ｖ２が開放されている時には、ＰＳＡ装置４６へ送出される。また、二酸化炭素リッチガスは、開閉弁Ｖ１が開放され、開閉弁Ｖ２が閉鎖されている時には、分岐管Ｐ２１へ送出される。分岐管Ｐ２１は、外部に開放されている。二酸化炭素回収タンク４８へ二酸化炭素を充填することができない場合や、二酸化炭素の回収を停止したい場合などには、分岐管Ｐ２１へ二酸化炭素リッチガスを送出して、外部へ放出させることができる。通常は、二酸化炭素リッチガスは、ＰＳＡ装置４６へ送出される。

[0066] 第２熱交換器３２では、非燃料ガスと空気とで熱交換が行われ、空気は加熱され、非燃料ガスは冷却される。冷却された非燃料ガス中の水蒸気は凝縮

し、水タンク４２へ流入して貯留される。水蒸気が分離され、二酸化炭素濃度が高くなった二酸化炭素リッチガスは、回収管Ｐ１８から送出され、ＰＳＡ装置４６を経て二酸化炭素回収タンク４８に回収される。

[0067] 第２燃料電池セルスタック１８のアノード１８Ａ及びカソード１８Ｂでは、第１燃料電池セルスタック１６と同様の反応により発電が行われる。第２燃料電池セルスタック１８から電力を取り出す電力ケーブル１８Ｄには、電力計Ｅ２が接続されている。電力計Ｅ２により、第２燃料電池セルスタック１８から出力される電力が計測される。第１燃料電池セルスタック１６での発電量は、制御部５０で制御されている。

[0068] アノード１８Ａ及びカソード１８Ｂから排出された使用済のガスは、配管Ｐ１１、カソードオフ燃焼導入管Ｐ１２により燃焼器４０へ送出され、燃焼器４０で焼却に供される。本実施形態の二酸化炭素製造システム１０Ａは、第１燃料電池セルスタック１６で使用された燃料であるアノードオフガスが再生されて、燃料ガスとして第２燃料電池セルスタック１８で再利用される多段式の二酸化炭素製造システムとなっている。

[0069] 燃焼器４０からは、燃焼排ガスが送出される。燃焼排ガスは、燃焼排ガス管Ｐ１０内を流通し、気化器１２を経て排出される。

[0070] 制御部５０は、二酸化炭素製造システム１０Ａの全体を制御するものであり、ＣＰＵ、ＲＯＭ、ＲＡＭ、メモリ等を含んで構成されている。メモリには、後述する二酸化炭素流量整処理や、通常運転時の処理に必要なデータや手順等が記憶されている。図２に示されるように、制御部５０は、原料供給ブロワＢ１、水供給ポンプＰＯ１、吸引ポンプ４４、第１燃料電池セルスタック１６、及び第２燃料電池セルスタック１８、電力計Ｅ１、Ｅ２、流量計４８Ａ、及びＰＳＡ装置４６と接続されている。原料供給ブロワＢ１、水供給ポンプＰＯ１、酸化剤ガスブロワＢ２、吸引ポンプ４４、及び、ＰＳＡ装置４６は、制御部５０により出力が制御される。

[0071] 次に、本実施形態の二酸化炭素製造システム１０Ａの動作について説明する。

[0072] 二酸化炭素製造システム１０Ａにおいては、ガス源からの燃料であるメタン及び水タンク４２からの水が、気化器１２へ供給される。気化器１２では、供給されたメタン及び水が混合されると共に、燃焼排ガス管Ｐ１０を流通する燃焼排ガスから熱を得て加熱され、水が気化され水蒸気となる。

[0073] メタン及び水蒸気は、気化器１２から配管Ｐ１を介して改質器１４へ送出される。改質器１４では、水蒸気改質反応により、水素を含む６００℃程度の燃料ガスが生成される。燃料ガスは、燃料ガス管Ｐ４を介して第１燃料電池セルスタック１６のアノード１６Ａに供給される。

[0074] 第１燃料電池セルスタック１６のカソード１６Ｂには、空気が酸化剤ガス管Ｐ５を経て供給される。これにより、第１燃料電池セルスタック１６では、前述の反応により発電が行われる。この発電に伴い燃料電池セルスタック１６のアノード１６Ａからは、アノードオフガスが排出される。また、カソード１６Ｂからは、カソードオフガスが排出される。カソードオフガスは、カソードオフガス管Ｐ６を通って第２燃料電池セルスタック１８のカソード１８Ｂへ供給される。

[0075] アノード１６Ａから排出されたアノードオフガスは、アノードオフガス管Ｐ７に導かれ、第１熱交換器３０を経て、分離部２０の流入部２４へ流入される。第１熱交換器３０では、アノードオフガスの温度は、約６５０℃からある程度、例えば２００℃程度まで低下する。ここでの温度は、アノードオフガス中の水の気相状態が維持される温度である。アノードオフガス中の二酸化炭素及び水（気相）は、分離膜２８を透過して透過部２６側へ移動することにより分離される。流入部２４からは再生燃料ガスが送出され、第１熱交換器３０を経て、６００℃程度に昇温され、再生燃料ガス管Ｐ９により第２燃料電池セルスタック１８のアノード１８Ａへ供給される。

[0076] 第２燃料電池セルスタック１８では、前述の反応により発電が行われる。アノード１８Ａ、カソード１８Ｂでの使用済ガスは、配管Ｐ１１、Ｐ１２により各々燃焼器４０へ送出され、燃焼器４０で焼却に供される。燃焼器４０からの燃焼排ガスは、気化器１２での熱交換を経て排出される。

[0077] 一方、吸引ポンプ４４は、所定の出力で透過部２６から非燃料ガスを吸引する。ここでの吸引ポンプ４４の出力は、二酸化炭素製造システム１０Ａにおいて要求される発電量等に応じて設定される。非燃料ガスは、分離膜２８を透過して透過部２６へ流入し、透過部２６から送出される。送出された非燃料ガスは、第２熱交換器３２で、酸化剤ガス管Ｐ５を通過する空気との間での熱交換により冷却される。これにより、非燃料ガス中の水蒸気が凝縮されて、非燃料ガスから分離される。非燃料ガス及び凝縮された水は、水タンク４２へ送出される。非燃料ガスから水が分離された後の二酸化炭素リッチガスは、水タンク４２から回収管Ｐ１８へ送出され、ＰＳＡ装置４６へ送出され、ＰＳＡ装置４６を経て二酸化炭素回収タンク４８に回収される。

[0078] 本実施形態の二酸化炭素製造システム１０Ａは、分離膜２８で二酸化炭素と水（気相）を分離した後に、第２熱交換器３２での熱交換により水を凝縮させるので、分離膜での分離前に水を凝縮させる場合と比較して、再生燃料ガスの温度を高く維持したまま、流入部２４から送出させることができる。したがって、第２燃料電池セルスタック１８での発電用の再生燃料ガスを効率的に再利用することができる。

[0079] また、透過部２６から、排出された非燃料ガス中の水蒸気を凝縮により容易に分離して、二酸化炭素濃度の高い非燃料ガスを回収することができる。

[0080] また、発電を行うことができ、発電に伴って二酸化炭素も製造することができるので、二酸化炭素を必要とされる場所において容易に製造することができる。

[0081] ここで、二酸化炭素回収タンク４８で回収する二酸化炭素の流量調整について説明する。運転中に当該二酸化炭素の流量調整を行う場合には、不図示の入力部から、所望の二酸化炭素流量値を入力する。入力された値（設置値）は、制御部５０へ送られ、制御部５０では、図３に示す二酸化炭素流量調整処理が実行される。

[0082] ステップＳ１０で、流量計４８Ａの計測（流量計測値）を取得し、ステップＳ１２で、設定値と比較する。ステップＳ１４で、流量計測値と設定値の

比較結果に基づいて、吸引ポンプ４４の出力を調整する。調整は、流量計測値が設定値よりも小さい場合には、吸引ポンプ４４の出力を上げて、分離膜２８を透過させる非燃料ガスの量を増加させ、流量計測値が設定値よりも大きい場合には、吸引ポンプ４４の出力を下げて、分離膜２８を透過させる非燃料ガスの量を減少させる。このように、流量計測値に基づいて、吸引ポンプ４４をフィードバック制御することにより、二酸化炭素回収タンク４８で回収する二酸化炭素ガスの流量を、所望の設定範囲にすることができる。二酸化炭素流量調整処理が必要なくなった場合には、入力部から、処理の終了を入力する。ステップＳ１６で、終了の入力があったかどうかを判断し、判断が肯定された場合には、二酸化炭素流量調整処理を終了する。

[0083] なお、本実施形態では、吸引ポンプ４４の出力を調整することにより、二酸化炭素回収タンク４８で回収する二酸化炭素ガスの流量を設定値に近づけたが、原料供給ブロワＢ１や水供給ポンプＰＯ１の出力を調整してもよい。また、吸引ポンプ４４、原料供給ブロワＢ１、及び、水供給ポンプＰＯ１のすべてを調整してもよいし、いずれか複数の機器の組み合わせで調整してもよい。

[0084] また、二酸化炭素回収タンク４８に二酸化炭素を適切に充填するために、二酸化炭素回収タンク４８内の圧力を計測したり、充填量を計測したりしてもよい。

[0085] 原料供給ブロワＢ１の出力を調整する場合には、流量計測値が設定値よりも小さい場合には、原料供給ブロワＢ１の出力を上げて、分離部２０へ流入するアノードオフガスの流量を増加させ、これにより、分離膜２８を透過させる非燃料ガスの量を増加させる。また、流量計測値が設定値よりも大きい場合には、原料供給ブロワＢ１の出力を下げて、分離部２０へ流入するアノードオフガスの流量を減少させ、これにより、分離膜２８を透過させる非燃料ガスの量を減少させる。

なお、原料供給ブロワＢ１の出力を調整する場合には、適宜発電量の調整も行われる。

[0086] また、水供給ポンプＰＯ１の出力を調整する場合には、流量計測値が設定値よりも小さい場合には、水供給ポンプＰＯ１の出力を上げて、分離部２０へ流入するアノードオフガスの流量を増加させ、これにより、分離膜２８を透過させる非燃料ガスの量を増加させる。また、流量計測値が設定値よりも大きい場合には、水供給ポンプＰＯ１の出力を下げて、分離部２０へ流入するアノードオフガスの流量を減少させ、これにより、分離膜２８を透過させる非燃料ガスの量を減少させる。

[0087] また、二酸化炭素回収タンク４８で回収する二酸化炭素ガスの流量を設定値に近づけるために、二酸化炭素製造システム１０Ａでの発電量を調整してもよい。発電量としては、二酸化炭素製造システム１０Ａで発電される電力全体（第１燃料電池セルスタック１６で発電される電力と第２燃料電池セルスタック１８で発電される電力の和、すなわち、電力計Ｅ１での計測値と電力計Ｅ２での計測値Ｅ２の和）に基づいて調整してもよいし、第１燃料電池セルスタック１６で発電される電力（電力計Ｅ１での計測値）に基づいて調整してもよい。

[0088] 二酸化炭素製造システム１０Ａで発電される電力全体で調整する場合には、流量計測値が設定値よりも小さい場合には、第１燃料電池セルスタック１６での発電量と第２燃料電池セルスタック１８での発電量の和（電力計Ｅ１での計測値と電力計Ｅ２での計測値Ｅ２の和）を増加させる。一方、流量計測値が設定値よりも大きい場合には、第１燃料電池セルスタック１６での発電量と第２燃料電池セルスタック１８での発電量の和（電力計Ｅ１での計測値と電力計Ｅ２での計測値Ｅ２の和）を減少させる。

[0089] なお、二酸化炭素製造システム１０Ａで発電される電力全体で調整する場合には、第１燃料電池セルスタック１６で発電される電力を調整して所望の二酸化炭素の流量が得られるようにすると共に、第２燃料電池セルスタック１８で発電される電力を調整して二酸化炭素製造システム１０Ａで発電される電力全体が所望の値になるように調整することができる。

[0090] また、第１燃料電池セルスタック１６で発電される電力で調整する場合に

は、流量計測値が設定値よりも小さい場合には、第１燃料電池セルスタック１６での発電量（電力計Ｅ１での計測値）を増加させる。一方、流量計測値が設定値よりも大きい場合には、第１燃料電池セルスタック１６での発電量（電力計Ｅ１での計測値）を減少させる。

なお、第１燃料電池セルスタック１６で発電される電力で調整する場合には、第２燃料電池セルスタック１８で発電される電力を調整してもよいし、第２燃料電池セルスタック１８での調整を行わず成り行きとしてもよい。

[0091] また、本実施形態では、ＰＳＡ装置４６を備えたが、ＰＳＡ装置４６は、必ずしも設置する必要はない。ＰＳＡ装置４６を設置して二酸化炭素やその他の成分の吸着条件を調整することにより、二酸化炭素回収タンク４８で回収する二酸化炭素の濃度を調整することができる。

[0092] なお、本実施形態では、１つの二酸化炭素製造システム内における第１燃料電池セルスタック１６と第２燃料電池セルスタック１８の間で二酸化炭素の回収を行ったが、複数の燃料電池システム間において二酸化炭素の回収を行ってもよい。すなわち、複数の燃料電池システムの間において燃料電池セルスタックのアノードを直列に接続し、上流側の燃料電池システムの燃料電池セルスタックのアノードから排出され下流側の燃料電池システムのアノードへ供給される前のアノードオフガスから、二酸化炭素を分離して回収してもよい。

[0093] ［第２実施形態］

次に、本実施形態の第２実施形態について説明する。本実施形態では、第１実施形態と同様の部分については同一の符号を付して、詳細な説明を省略する。

[0094] 図４に示されるように、本実施形態の二酸化炭素製造システム１０Ｂは、ＰＳＡ装置４６を有していない。また、気化器１２から燃焼排ガス管Ｐ１０を通って排出された燃焼排ガスが燃焼排ガス排気管Ｐ１０Ａと温度調整管Ｐ１０Ｂとに分岐されている。燃焼排ガス排気管Ｐ１０Ａからは、燃焼排ガスが外部へ排気される。温度調整管Ｐ１０Ｂは、酸化剤ガスブロワＢ２の上流

側へ接続されている。温度調整管Ｐ１０Ｂには、流量調整弁５４が設けられ、開度によって酸化剤ガスブロワＢ２へ送出される燃焼排ガスの流量が調整される。流量調整弁５４は、図５に示されるように、制御部５０と接続され、制御部５０により開度が調整される。

[0095] 二酸化炭素回収タンク４８の入口には、流量計４８Ａに代えて組成検出計４８Ｂが設けられている。組成検出計４８Ｂは、二酸化炭素回収タンク４８に流入される気体の二酸化炭素濃度を検出可能とされている。組成検出計４８Ｂは、制御部５０と接続され、検出した二酸化炭素濃度値を制御部５０へ送信する。

[0096] 次に、本実施形態の二酸化炭素製造システム１０Ｂの動作について説明する。

[0097] 二酸化炭素製造システム１０Ｂにおいては、第１実施形態と同様に発電が行われる。二酸化炭素製造システム１０Ｂでは、二酸化炭素回収タンク４８で回収する二酸化炭素の濃度調整を行うことができる。当該二酸化炭素の濃度調整を行う場合には、不図示の入力部から、所望の二酸化炭素濃度値を入力する。入力された値（設定値）は、制御部５０へ送られ、制御部５０では、図６に示す二酸化炭素流量調整処理が実行される。

[0098] ステップＳ２０で、組成検出計４８Ｂの計測値（組成計測値）を取得し、ステップＳ２２で、設定値と比較する。ステップＳ２４で、組成計測値と設定値の比較結果に基づいて、流量調整弁５４または酸化剤ガスブロワＢ２を調整する。

[0099] 調整は、組成計測値が設定値よりも小さい場合には、流量調整弁５４を閉鎖して酸化剤ガスブロワＢ２の出力を上げる。これにより、酸化剤ガス管Ｐ５を通る酸化剤ガスの流量が増加して、第２熱交換器３２での熱交換により凝縮される水蒸気が増加し、二酸化炭素回収タンク４８で回収される二酸化炭素ガスの濃度が高くなる。組成計測値が設定値よりも大きい場合には、流量調整弁５４を開放する。これにより、酸化剤ガス管Ｐ５を通る酸化剤ガスの温度が上昇して、第２熱交換器３２での熱交換により凝縮される水蒸気が

減少し、二酸化炭素回収タンク４８で回収される二酸化炭素ガスの濃度が低くなる。

[0100] このように、組成計測値に基づいて、酸化剤ガスブロワＢ２、流量調整弁５４をフィードバック制御することにより、二酸化炭素回収タンク４８で回収する二酸化炭素ガスの濃度を、所望の設定範囲にすることができる。二酸化炭素濃度調整処理が必要なくなった場合には、入力部から、処理の終了を入力する。ステップＳ２６で、終了の入力があったかどうかを判断し、判断が肯定された場合には、二酸化炭素濃度調整処理を終了する。

[0101] 〔第３実施形態〕

次に本発明の第３実施形態について説明する。なお、第１、２実施形態と同一の部分には同一の符号を付し、説明を省略する。

[0102] 図７には、本発明の第３実施形態に係る二酸化炭素製造システム１０Ｃが示されている。二酸化炭素製造システム１０Ｃは、第１実施形態で説明した二酸化炭素製造システム１０Ａと比較して、第２燃料電池セルスタック１８を有していない点が異なっている。

[0103] 分離部２０に接続された再生燃料ガス管Ｐ９は、第１熱交換器３０の上流側に設けられた分岐部Ｄ１で分岐されている。分岐された一方の循環ガス管Ｐ９－１は、第１熱交換器３０を経て配管Ｐ１へ接続されている。分岐された他方の再生燃料ガス管Ｐ９－２は、燃焼器４０へ接続されている。分岐部Ｄ１では、循環ガス管Ｐ９－１と再生燃料ガス管Ｐ９－２へ再生燃料ガスが分流されている。

[0104] 循環ガス管Ｐ９－１を経て改質器１４へ導入された再生燃料ガスは、メタン、及び気化器１２から供給された水蒸気と混合され、改質器１４へ供給される。再生燃料ガス管Ｐ９－２を経て燃焼器４０へ導入された再生燃料ガスは、燃焼器４０で燃焼される。なお、カソード１６Ｂから排出されたカソードオフガスは、カソードオフガス管Ｐ６を介して燃焼器４０へ導入される。

[0105] 本実施形態の二酸化炭素製造システム１０Ｃは、第１燃料電池セルスタック１６で使用済みの燃料であるアノードオフガスが再生されて、再度、第１

燃料電池セルスタック１６で再利用される循環式の二酸化炭素製造システムとなっている。本実施形態においても、第１実施形態と同様の効果を奏することができる。

[0106] 〔第４実施形態〕

次に、本発明の第４実施形態について説明する。なお、第１－３実施形態と同一の部分には同一の符号を付し、説明を省略する。

[0107] 図８には、本発明の第４実施形態に係る二酸化炭素製造システム１０Ｄが示されている。二酸化炭素製造システム１０Ｄは、第３実施形態で説明した二酸化炭素製造システム１０Ｃと同様に、第１燃料電池セルスタック１６で使用済みの燃料であるアノードオフガスが再生されて、再度、第１燃料電池セルスタック１６で再利用される循環式の二酸化炭素製造システムとなっている。

[0108] 二酸化炭素製造システム１０Ｄは、第３実施形態で説明した二酸化炭素製造システム１０Ｃと比較して、第２実施形態と同様に、ＰＳＡ装置４６を有していない。また、気化器１２から燃焼排ガス管Ｐ１０を通って排出された燃焼排ガスが燃焼排ガス排気管Ｐ１０Ａと温度調整管Ｐ１０Ｂとに分岐されている。燃焼排ガス排気管Ｐ１０Ａからは、燃焼排ガスが外部へ排気される。温度調整管Ｐ１０Ｂは、酸化剤ガスブロワＢ２の上流側へ接続されている。温度調整管Ｐ１０Ｂには、流量調整弁５４が設けられ、開度によって酸化剤ガスブロワＢ２へ送出される燃焼排ガスの流量が調整される。

[0109] 本実施形態の二酸化炭素製造システム１０Ｄにおいても、第２実施形態と同様の効果を奏することができる。

[0110] なお、本発明は、前述の第１～４実施形態に限定されず、本発明の技術的思想内で、当業者によって、前述の各実施形態を組み合わせて実施される。また、本発明において、例えば、熱交換器、ブロワ、ポンプの設置位置、組み合わせなどはこれらの実施形態に限定されない。

[0111] また、二酸化炭素回収タンク４８は、二酸化炭素の吸収剤や吸着剤を収容したものであってもよい。また、二酸化炭素液化装置であってもよいし、二

酸化炭素固化装置であってもよい。

[0112] また、本実施形態では、メタン等の炭化水素原料を改質器１４で改質して燃料ガスを得たが、炭素化合物を含む燃料ガスを外部で生成し、燃料電池システムへ供給してもよい。炭素化合物としては、メタンなどの炭化水素の他、一酸化炭素も含まれる。さらに、改質器１４を搭載せずに、メタン等の炭化水素原料を燃料ガスとして直接第１燃料電池セルスタック１６へ供給して、発電を行ってもよい。

符号の説明

[0113] 日本出願２０１８－０１９５０２開示はその全体が参照により本明細書に取り込まれる。本明細書に記載された全ての文献、特許出願、および技術規格は、個々の文献、特許出願、および技術規格が参照により取り込まれることが具体的かつ個々に記された場合と同程度に、本明細書中に参照により取り込まれる。

請求の範囲

[請求項1] 炭素化合物を含み燃料極へ供給される燃料ガスと、酸素を含み空気極へ供給される酸化剤ガスと、により発電し、前記燃料極からアノードオフガスが排出される燃料電池と、

前記アノードオフガスを、少なくとも二酸化炭素及び水を含む非燃料ガスと再生燃料ガスとに分離する分離部と、

前記非燃料ガスから水を分離する水分離部と、

前記水分離部で水が分離された後の二酸化炭素を回収する二酸化炭素回収部と、

を備えた二酸化炭素製造システム。

[請求項2] 前記分離部から送出される前記再生燃料ガスを用いて発電する第２燃料電池を備えた、請求項１に記載の二酸化炭素製造システム。

[請求項3] 前記分離部は、前記非燃料ガスを透過させる分離膜により非透過側と透過側とに区画され、

前記透過側から前記非燃料ガスを吸引して前記二酸化炭素回収部へ送出させる吸引ポンプを備えた、請求項１または請求項２に記載の二酸化炭素製造システム。

[請求項4] 炭素化合物を含み燃料極へ供給される燃料ガスと、酸素を含み空気極へ供給される酸化剤ガスと、により発電し、前記燃料極からアノードオフガスが排出される燃料電池と、

前記アノードオフガスを、少なくとも二酸化炭素を含む非燃料ガスと再生燃料ガスとに分離する分離部と、

前記分離部で分離された後の非燃料ガスを回収する二酸化炭素回収部と、

前記二酸化炭素回収部で回収される非燃料ガス中の二酸化炭素の濃度及び非燃料ガスの流量の少なくとも一方が設定範囲となるように調整する二酸化炭素調整部と、

を備えた二酸化炭素製造システム。

[請求項5] 前記分離部から送出される前記再生燃料ガスを用いて発電する第２燃料電池を備えた、請求項４に記載の二酸化炭素製造システム。

[請求項6] 前記二酸化炭素調整部は、前記燃料電池での発電量を調整すること、を特徴とする、請求項５に記載の二酸化炭素製造システム。

[請求項7] 前記二酸化炭素調整部は、システム全体における発電量を調整すること、を特徴とする、請求項４または請求項５に記載の二酸化炭素製造システム。

[請求項8] 前記分離部は、前記アノードオフガスを、少なくとも二酸化炭素及び水を含む非燃料ガスと再生燃料ガスとに分離し、

前記非燃料ガスから水を分離する水分離部、を更に備えた、

請求項４～請求項７のいずれか１項に記載の二酸化炭素製造システム。

[請求項9] 前記水分離部は、凝縮により前記非燃料ガスから水蒸気を除去し、前記二酸化炭素調整部は、前記水分離部での凝縮量を調整すること、を特徴とする、請求項８に記載の二酸化炭素製造システム。

[請求項10] 前記水分離部の下流側に圧力スイング吸着部を有し、前記二酸化炭素調整部は、前記圧力スイング吸着部における吸着条件を調整すること、を特徴とする、請求項８または請求項９に記載の二酸化炭素製造システム。

[請求項11] 前記二酸化炭素調整部は、前記燃料極へ送出する前記燃料ガス量を調整すること、を特徴とする、請求項４～請求項１０のいずれか１項に記載の二酸化炭素製造システム。

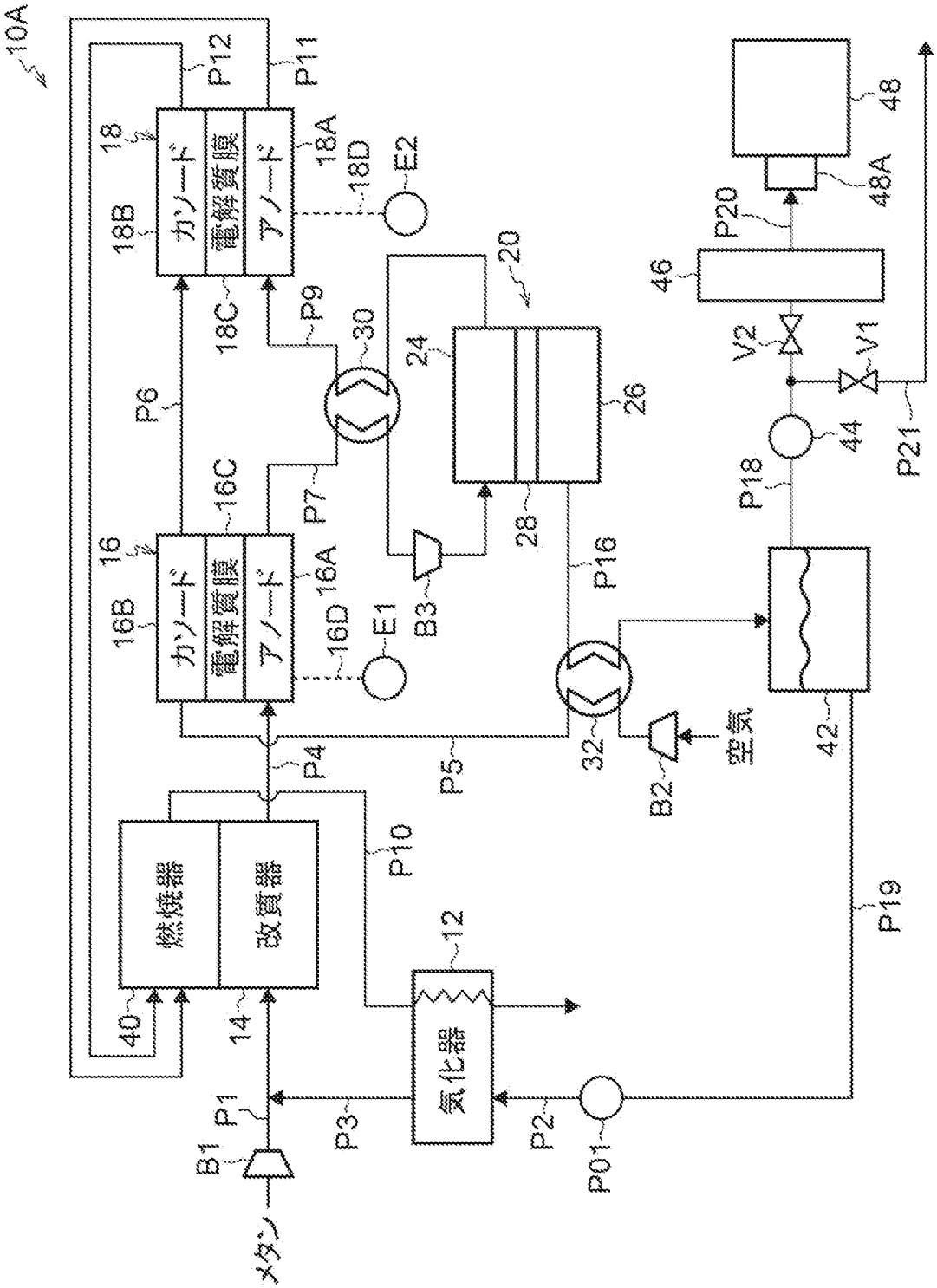
[請求項12] 原料ガスを改質して前記燃料ガスを生成する改質器を有し、前記二酸化炭素調整部は、前記改質器へ供給する改質水の量を調整すること、を特徴とする、請求項４～請求項１１のいずれか１項に記載の二酸化炭素製造システム。

[請求項13] 前記分離部は、前記非燃料ガスを透過させる分離膜により非透過側と透過側とに区画され、

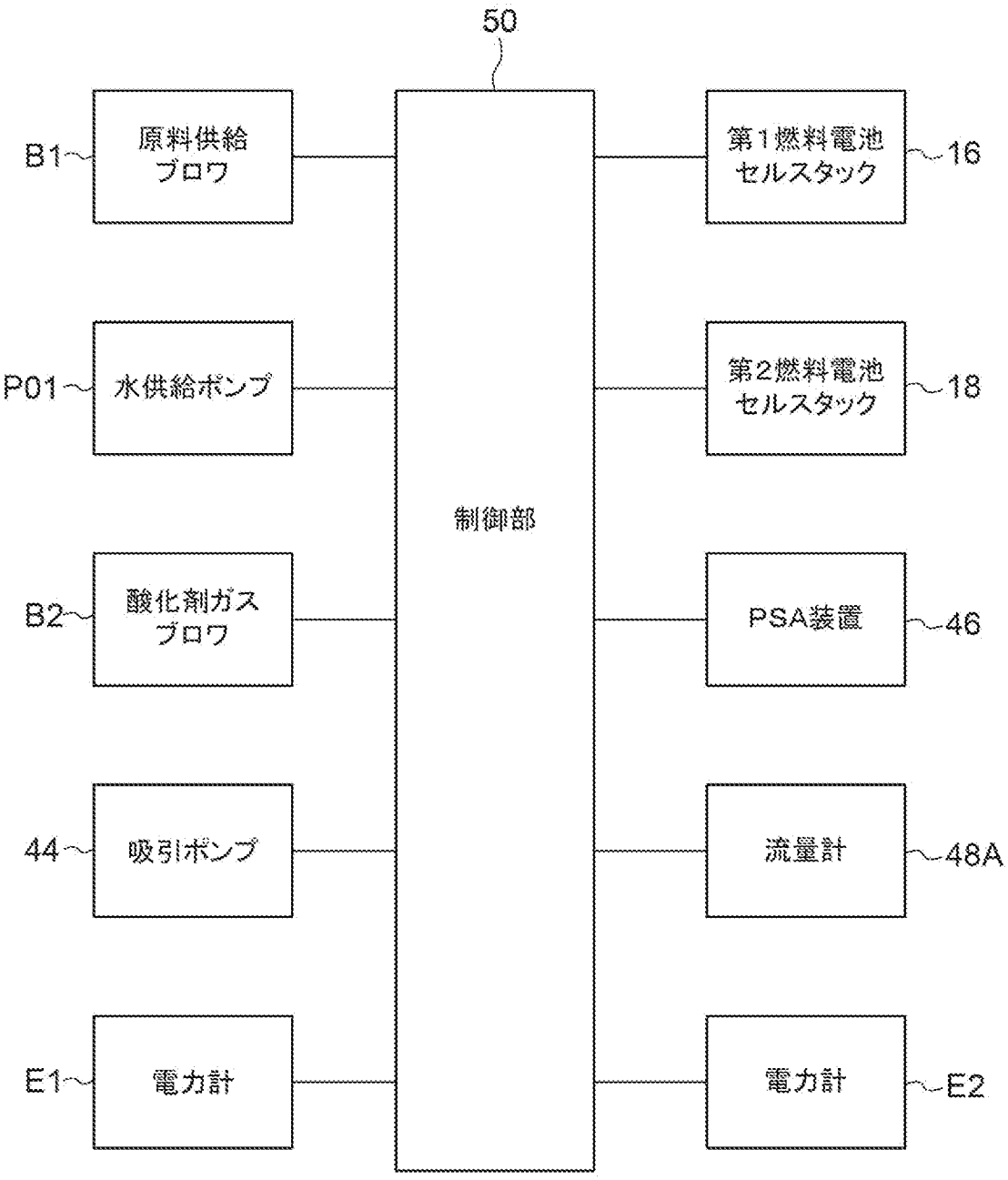
前記透過側から前記非燃料ガスを吸引して前記二酸化炭素回収部へ送出させる吸引ポンプを備えた、請求項４～請求項１２のいずれか１項に記載の二酸化炭素製造システム。

[請求項14] 前記二酸化炭素調整部は、前記吸引ポンプでの吸引流量を調整すること、を特徴とする、請求項１３に記載の二酸化炭素製造システム。

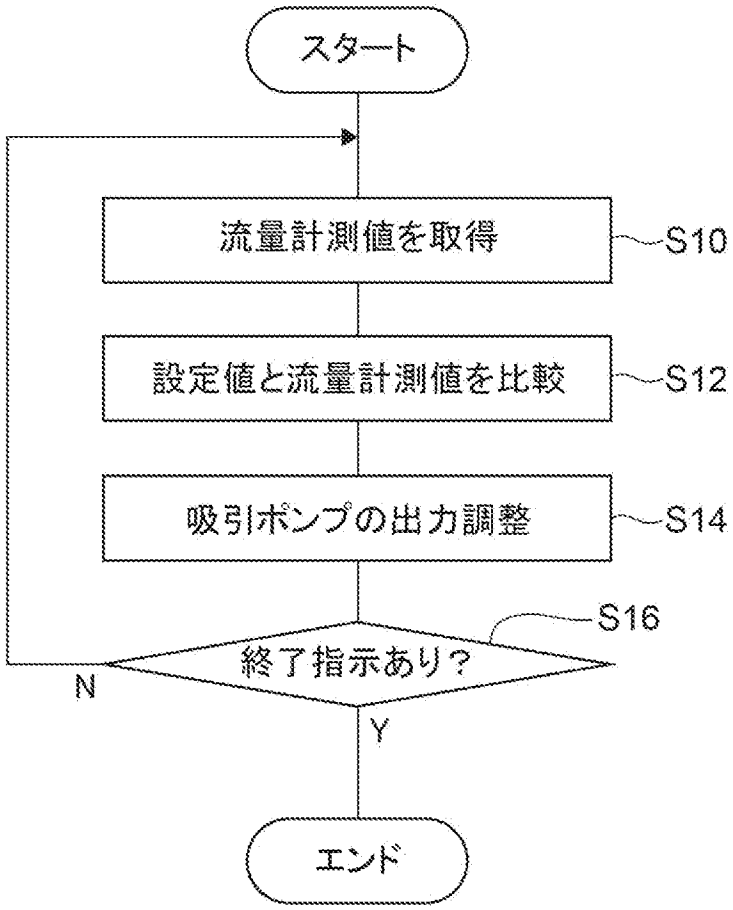
[図1]


10A
P12
P11
18
18A
18B
カソード
電解質膜
アノード
18C
18D
E2
P9
30
20
24
26
P6
P7
16C
16
16A
16B
16D
E1
B3
28
P16
P18
44
P21
V2
V1
46
P20
48
48A
P4
P5
32
B2
空気
42
燃焼器
改質器
P10
12
P19
40
14
気化器
P1
P3
P2
P01
B1
メタン

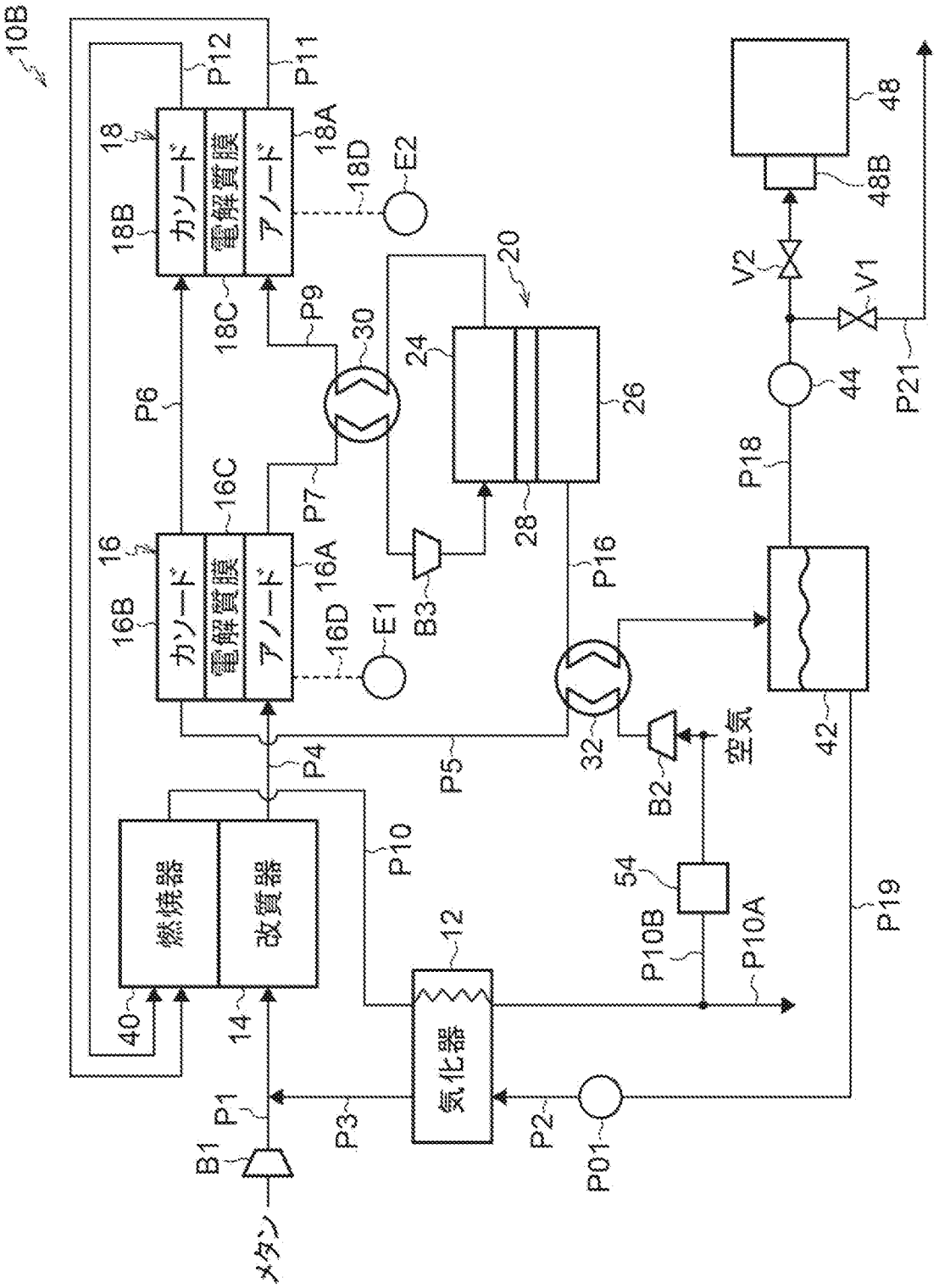
[図2]


50
制御部
B1
原料供給ブロワ
P01
水供給ポンプ
B2
酸化剤ガスブロワ
44
吸引ポンプ
E1
電力計
第1燃料電池セルスタック
16
第2燃料電池セルスタック
18
PSA装置
46
流量計
48A
電力計
E2

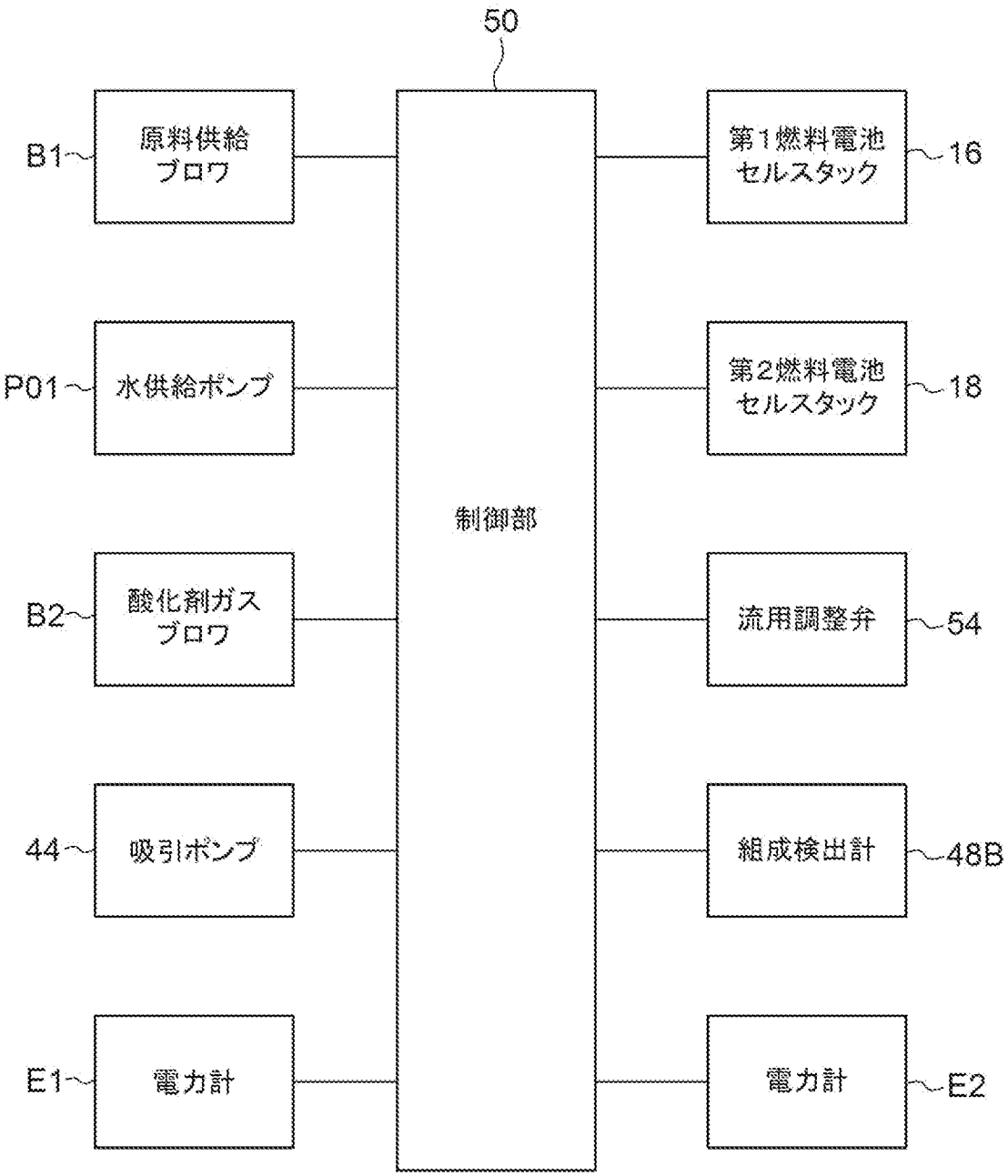
[図3]


スタート
流量計測値を取得
S10
設定値と流量計測値を比較
S12
吸引ポンプの出力調整
S14
S16
終了指示あり？
N
Y
エンド

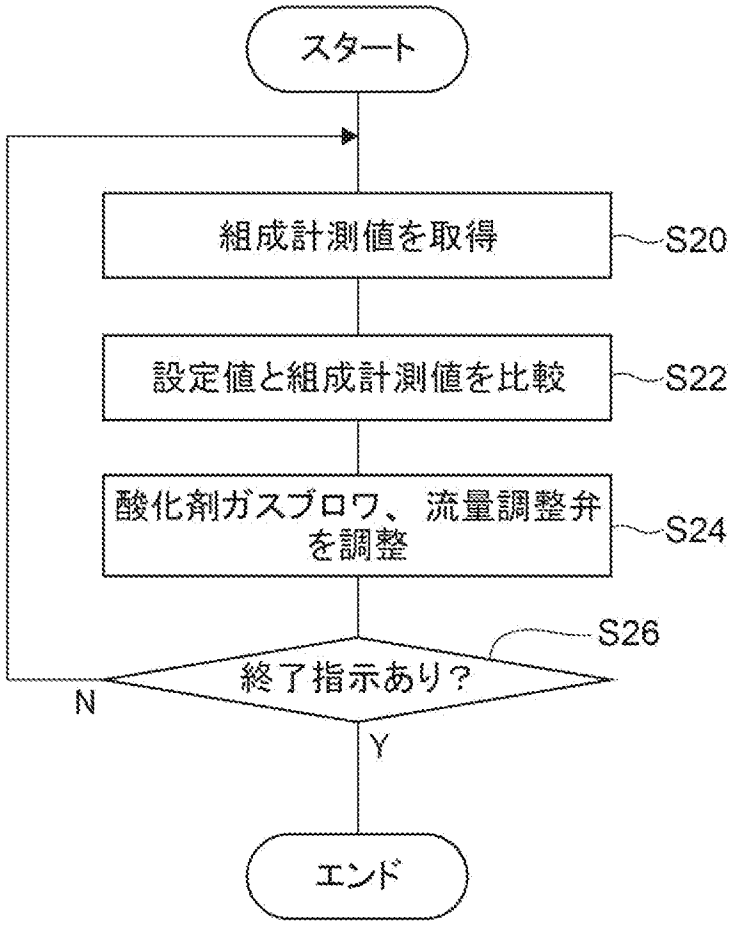
[図4]


10B
P12
P11
18
18A
18B
カソード
電解質膜
アノード
18D
E2
18C
P9
20
30
24
26
P6
P7
16C
16
16A
16B
16D
E1
B3
28
P16
P18
48
48B
V2
V1
44
P21
32
B2
空気
42
P4
P5
P10
54
P10B
P10A
P19
燃焼器
改質器
12
気化器
40
14
P1
P3
P2
P01
B1
メタン

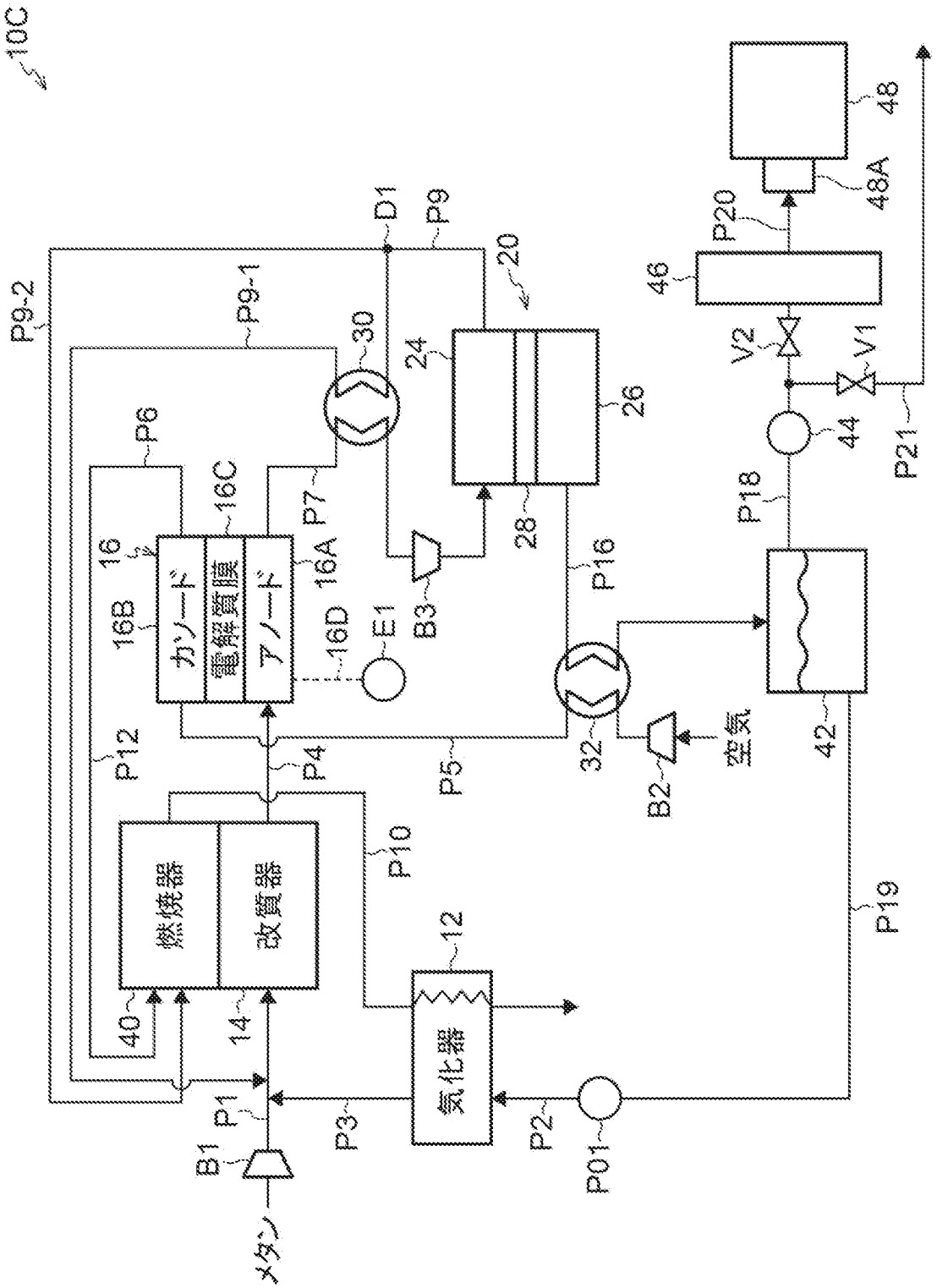
[図5]


50
B1
原料供給ブロワ
P01
水供給ポンプ
B2
酸化剤ガスブロワ
44
吸引ポンプ
E1
電力計
制御部
第1燃料電池セルスタック
16
第2燃料電池セルスタック
18
流用調整弁
54
組成検出計
48B
電力計
E2

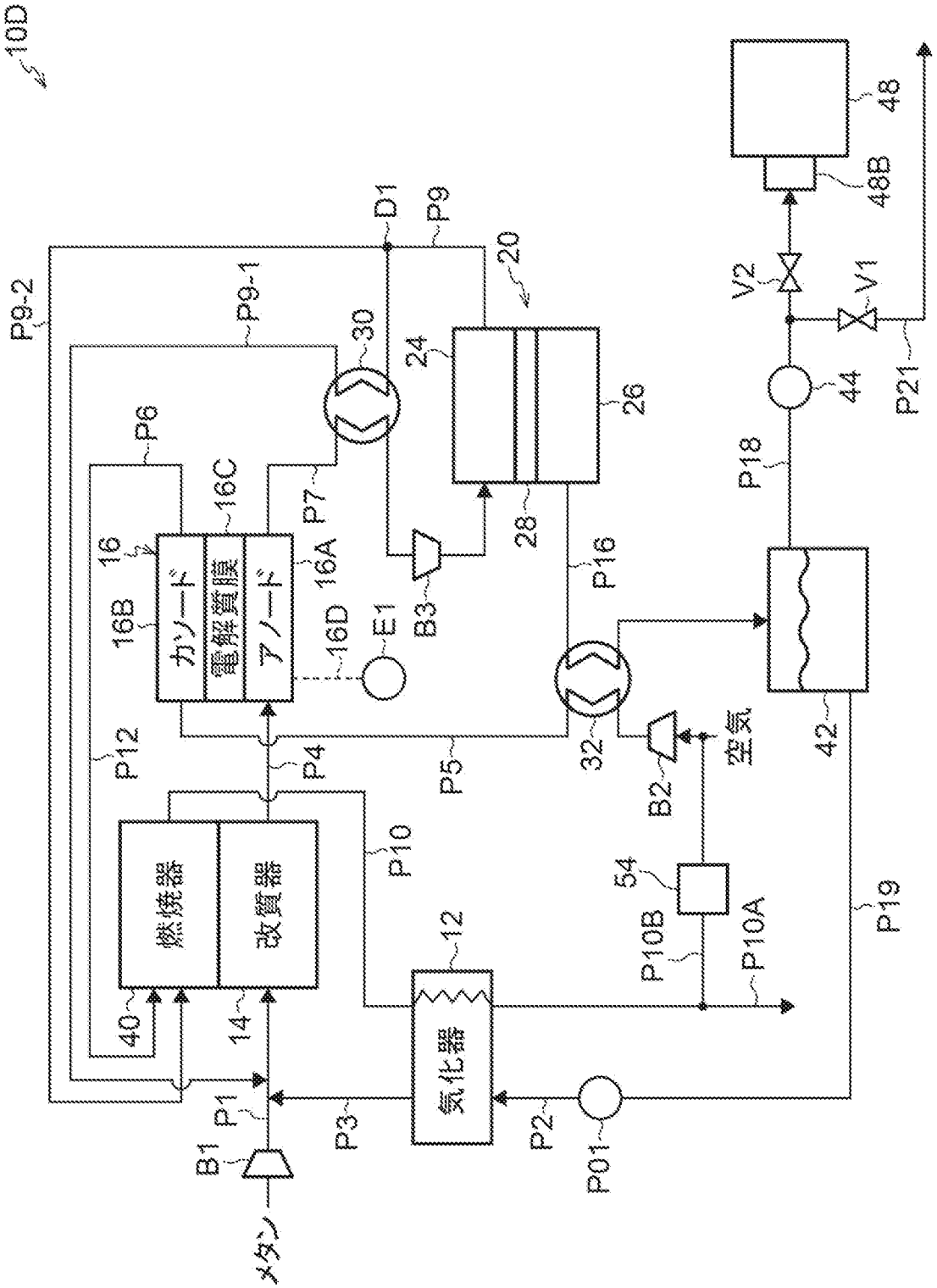
[図6]


スタート
組成計測値を取得
S20
設定値と組成計測値を比較
S22
酸化剤ガスブロワ、流量調整弁を調整
S24
S26
終了指示あり？
N
Y
エンド

[図7]


10C
P9-2
P9-1
D1
P9
20
30
24
26
48
48A
P20
46
V2
V1
44
P21
P6
16C
16
16A
P7
28
P16
P18
16B
カソード
電解質膜
アノード
16D
E1
B3
P12
P4
P5
32
B2
空気
42
P10
P19
燃焼器
改質器
12
40
14
気化器
P1
P3
P2
P01
B1
メタン

[図8]


10D
D1
P9
P9-2
P9-1
20
30
24
26
48
48B
V2
V1
44
P21
P18
P6
16C
16
16B
カソード
電解質膜
アノード
16A
P7
16D
E1
B3
28
P16
P12
P4
P5
32
B2
空気
42
燃焼器
改質器
P10
54
P10B
P10A
P19
40
14
12
気化器
P1
P3
P2
P01
B1
メタン

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2019/002372

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl. H01M8/0668(2016.01)i, B01D53/047(2006.01)i, B01D53/22(2006.01)i, H01M8/00(2016.01)i, H01M8/04746(2016.01)i, H01M8/04791(2016.01)i, H01M8/10(2016.01)n, H01M8/12(2016.01)n, H01M8/2495(2016.01)n

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)
Int.Cl. H01M8/0668, B01D53/047, B01D53/22, H01M8/00, H01M8/04746, H01M8/04791, H01M8/10, H01M8/12, H01M8/24951

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2019
Registered utility model specifications of Japan	1996-2019
Published registered utility model applications of Japan	1994-2019

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.
Y A	JP 2016-184504 A (TOKYO GAS CO., LTD.) 20 October 2016, paragraphs [0124]-[0134], fig. 6 (Family: none)	1-3 4-14
Y	JP 2012-71290 A (HITACHI, LTD.) 12 April 2012, paragraphs [0002], [0045]-[0047], fig. 8 (Family: none)	1-3

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ 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
"E" earlier application or patent but 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
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
08 April 2019 (08.04.2019)	23 April 2019 (23.04.2019)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Telephone No.

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１９／００２３７２

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　H01M8/0668(2016.01)i, B01D53/047(2006.01)i, B01D53/22(2006.01)i, H01M8/00(2016.01)i, H01M8/04746(2016.01)i, H01M8/04791(2016.01)i, H01M8/10(2016.01)n, H01M8/12(2016.01)n, H01M8/2495(2016.01)n

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　H01M8/0668, B01D53/047, B01D53/22, H01M8/00, H01M8/04746, H01M8/04791, H01M8/10, H01M8/12, H01M8/2495

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１９年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１９年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１９年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
Y A	JP 2016-184504 A（東京瓦斯株式会社）2016.10.20, 段落[0124]-[0134],第６図（ファミリーなし）	1-3 4-14
Y	JP 2012-71290 A（株式会社日立製作所）2012.04.12, 段落[0002], [0045]-[0047],第８図（ファミリーなし）	1-3

☐　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 ０８．０４．２０１９	国際調査報告の発送日 ２３．０４．２０１９
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 郵便番号１００－８９１５ 東京都千代田区霞が関三丁目４番３号	特許庁審査官（権限のある職員）　３Ｈ　５７８０ 笹岡　友陽 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３３１６

様式ＰＣＴ／ＩＳＡ／２１０（第２ページ）（２０１５年１月）