

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第3640906号
(P3640906)

(45) 発行日 平成17年4月20日(2005.4.20)

(24) 登録日 平成17年1月28日(2005.1.28)

(51) Int. Cl.⁷

F I

HO 1 M 8/04
CO 1 B 3/38HO 1 M 8/04 X
HO 1 M 8/04 G
HO 1 M 8/04 J
CO 1 B 3/38

請求項の数 9 (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願2001-154791 (P2001-154791)
 (22) 出願日 平成13年5月24日(2001.5.24)
 (65) 公開番号 特開2002-8699 (P2002-8699A)
 (43) 公開日 平成14年1月11日(2002.1.11)
 審査請求日 平成13年5月24日(2001.5.24)
 (31) 優先権主張番号 10025667.8
 (32) 優先日 平成12年5月24日(2000.5.24)
 (33) 優先権主張国 ドイツ(DE)

(73) 特許権者 500074800
 バラード パワー システムズ アーゲー
 Ballard Power Systems AG
 ドイツ国 キルヒハイム/テックナーベルン
 ノイエ シュトラッセ 95
 Neue strasse 95 Kirchheim/Teck-Nabern
 Deutschland
 (74) 代理人 100090583
 弁理士 田中 清
 (74) 代理人 100098110
 弁理士 村山 みどり

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池装置におけるガス生成装置の作動方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

2つのガス生成ユニット(2a、2b)を有しており、それを介して始動物質流が直列的に流れ、第1及び第2定格電力(P_{rated_1} 、 P_{rated_2})と第1及び第2の予め定められた作動温度(T_{rated_1} 、 T_{rated_2})を有しており、第1ガス生成ユニット(2a)が第2ガス生成ユニット(2b)より低い熱的マスを有するガス生成装置を作動する方法であって、

始動期中に、第1ガス生成ユニット(2a)のみが作動され、第1ガス生成ユニット(2a)が電力 $P_{start_1} > P_{rated_1}$ で、及び/又は作動温度 $T_{start_1} > T_{rated_1}$ で作動され、始動期の終了後に、少なくとも第2ガス生成ユニット(2b)が作動されることを特徴とする前記方法。

10

【請求項 2】

始動期が終了した後、低及び中負荷の場合に、第2ガス生成ユニット(2b)のみが作動され、第2ガス生成ユニット(2b)の定格電力 P_{rated_2} を超える電力が必要とされる場合に、第1ガス生成ユニット(2a)が追加的にのみ作動されることを特徴とする請求項1記載の方法。

【請求項 3】

ガス生成ユニット(2a、2b)が間接的に加熱され、吸熱蒸気改質に適しており、第1ガス生成ユニット(2a)が、始動期中に温度 $T_{start_1} > T_{rated_1}$ で作動され、最大でも同時に要求される電力に相当する量の作動媒質を与えられること、及び

20

始動期の終了後に、ガス生成ユニット(2a、2b)が予め定められた作動温度(T_{rated_1} 、 T_{rated_2})で作動されることを特徴とする請求項1記載の方法。

【請求項4】

始動期中に、少なくとも第1ガス生成ユニット(2a)には、作動媒質に加えて、酸素含有媒質も供給され、少なくとも第1ガス生成ユニット(2a)が部分酸化または自熱作動に適しており、始動期中、最大でも電力 P_{start_1} に相当する量の作動媒質または酸素含有媒質が供給されることを特徴とする請求項1記載の方法。

【請求項5】

始動期の終了後、第1ガス生成ユニット(2a)には、酸素含有媒質が供給されないか、または始動期中に達成された最大量に比べて減少した量の酸素含有媒質のみが供給されることを特徴とする請求項3記載の方法。

10

【請求項6】

始動期の終了後、予め定められた負荷が上昇した場合、第1ガス生成ユニット(2a)に、予め定められた時間、酸素含有媒質が供給されることを特徴とする請求項4記載の方法。

【請求項7】

始動期の終了後、第2ガス生成ユニット(2b)の定格電力 P_{rated_2} を超える電力が要求される場合に、第1ガス生成ユニット(2a)に酸素含有媒質が供給されることを特徴とする請求項2または4記載の方法。

【請求項8】

20

第1ガス生成ユニット(2a)を温かく保持するための装置が設けられていることを特徴とする請求項1記載の方法。

【請求項9】

第1ガス生成ユニット(2a)の生成ガス流が通過して流れる燃料電池装置(1)の構成部材が予め定められた作動温度に達するや否や、始動期が終了することを特徴とする請求項1記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、2つのガス生成ユニットを有しており、それを介して始動物質流が直列的に流れ、第1及び第2定格電力と第1及び第2の予め定められた作動温度を有しており、第1ガス生成ユニットが第2ガス生成ユニットより低い熱的マスを有する燃料電池装置におけるガス生成装置の作動方法に関する。

30

【0002】

【従来の技術】

水素生成を開始するために、ガス生成装置はいろいろな方法で始動される。例えば、WO96/00186A1には、反応器の内部の発熱反応により始動される自熱または部分酸化反応器が開示されている。

【0003】

さらに、熱的に結合された領域における発熱反応及び/又は温熱伝導ガスにより加熱される蒸気改質のための反応器が既知である(例えば、DE3345958A1)。

40

【0004】

しかしながら、このタイプの反応器は高熱マス(mass)を有しており、そのため、予め定められた作動温度に過熱されるまでに非常に長い時間を要する。この欠点を避けるために、その他のサブユニットと比べて減少した熱的マスを有する少なくとも1のサブユニットを有する多段改質器が、一般的なEP0968958A1により既に既知である。

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明の目的は、特に改良された冷態始動特性を有する、燃料電池装置におけるガス生成

50

装置を作動するための改良された方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0006】

この目的は、請求項1に記載の特徴により達成される。好都合な具体例は、その他の請求項の特徴を構成する。

【0007】

本発明によれば、それを介して始動物質流が直列的に流れる少なくとも2つのガス生成ユニットがガス生成装置に設けられており、第1ガス生成ユニットが第2ガス生成ユニットより低い熱的マスを有する。さらに、始動期中に、第1ガス生成ユニットのみが作動され、第1ガス生成ユニットは、ガス生成装置の通常の作動において遭遇する値よりも高い電力で、及び/又はより高い温度において作動される。始動期の終了後、少なくとも第2ガス生成ユニットがその後作動される。

10

【0008】

したがって、冷態始動のために、全体のガス生成装置のサブユニットのみが使用される。このことは、始動直後に水素が熱的に離隔したユニットにおいて生成され、一方残りの水素生成領域はまだ冷たいことを意味する。これにより加熱されるべきマスは劇的に減少する。

【0009】

低熱マス及び始動期中の第1ガス生成ユニットの過負荷作動の結果、ガス生成装置の冷態始動時間は短縮される。特に自動車分野における可動式適用においては、冷態始動は非常に素早く行われなければならない。さらに、減少された熱的マスは、触媒的に加熱された装置における始動期に要求される酸素量を減少させる。

20

【0010】

第1ガス生成ユニットを使用する可能性は、始動期、全負荷作動に加えて、始動期中の過負荷作動の結果制限される第1ガス生成ユニットの有効寿命が、このユニットが切り替えられるかまたは部分負荷期において減少された負荷を実施し、十分な有効寿命を有する燃料電池装置を提供することが全体的に可能であるという事実によって補償されるという利点を有する。

【0011】

実質的な負荷変更の場合の部分負荷領域においても作動される第1ガス生成ユニットの可能性は、十分な量の水素が短い時間の間に与えられることができ、そのようにして装置の動力学を改良することができるという利点を有している。さらに、第1ガス生成ユニットの低熱マスは必要な場合には適当な方法でこのユニットを温かく保持することが可能であり、すなわち、周囲温度及び作動温度の間の温度にそれを保持することが可能であるという利点を有している。このようにして、冷態始動時間はさらに短縮されることができる。

30

【0012】

その他の利点は、従属形式の請求項及び以下の記載から明らかとなるであろう。添付の図面を参照しながら、本発明をさらに詳しく説明する。

【発明の実施の形態】

【0013】

図1(A)及び(B)において全体が1で示されている燃料電池装置は、二段ガス生成ユニット2a、2b、ガス浄化ユニット3、アノードスペース5及びカソードスペース6を有する燃料電池4及び排ガス処理ユニット7を有する。ガス生成ユニット2a、2bにおいて、水素リッチガスは、蒸気改質により燃料から生成される。蒸気改質は吸熱反応であるため、すなわちエネルギーを供給されなければならないので、適当な温度制御スペース12a、12bが、両ガス生成ユニット2a、2b内に与えられる。温度制御スペース12a、12bは、熱伝導隔壁13を介して、対応するガス生成ユニット2a、2bの実際の反応スペースに接続される。例えば熱伝導媒質、例えば熱伝導油が温度制御スペース12a、12bを通ることができる。または、温度制御スペース12a、12b内に適当なバーナーユニットを設けることも可能である。これらは、温度制御スペース12a、12

40

50

bを介して流れるガスの燃焼可能成分が酸素含有媒質により酸化される触媒バーナーユニットであることが好ましい。例示的具体例において、媒質は、温度制御スペース12a、12bのそれぞれを各々介して、それぞれの場合において燃料ガスとは反対の方向に流れる。しかしながら、2つの温度制御スペース12a、12bの少なくとも1つを介する流れは、流れと同じ方向であることができる。さらに、媒質は2つの温度制御スペース12a、12bを連続的に流れることも可能である。

【0014】

水素リッチガスは、通常、燃料電池4のアノードスペース5内に存在する触媒に悪影響を与える一酸化炭素をも含む。その理由により、ガス浄化ユニット3が、ガス生成ユニット2と燃料電池4のアノードスペース5との間に設けられる。このガス浄化ユニットは、酸素の添加による一酸化炭素の選択的触媒酸化反応のための装置であることが好ましい。しかしながら、その他の適当なガス浄化ユニット3、例えば膜浄化ユニットを使用することも可能である。一酸化炭素の選択的触媒酸化反応のための装置を使用する際には、それは、必要な熱エネルギーを供給するために、バーナーとして、ガス生成ユニット2a、2bの温度制御スペース12a、12bの一方または両方の中に直接集積されることもできる。

10

【0015】

燃料電池4を流れた後、アノード排ガスは、カソードスペース6からの排出空気と混合され、排ガス処理ユニット7に送給される、そこで燃料電池排ガスの燃焼可能な成分が、適当な触媒、好ましくは貴金属触媒においてできるだけ完全に転化される。カソード排ガスの代わりに、その他の酸素含有ガスが排ガス処理ユニット7の上流のアノード排ガスと混合されることも可能である。

20

【0016】

燃料は、燃料タンク8を出て、ガス生成ユニット2内に送給される。液体燃料は燃料タンク8に運ばれることが好ましい。しかしながら、代替的には、ガス状の燃料を使用することも可能であり、その場合、燃料タンク8は、圧縮ガスまたは液化ガス貯蔵庫として設計される。液体燃料を使用する場合、通常、蒸発ユニット9も設けられ、液体燃料がガス生成ユニット2a、2bに入る前に、それを気体相に転化させる。さらに、水タンク10が設けられる。水は別の蒸発ユニット11内で蒸発され、その後、蒸気がガス生成ユニット2a、2bに入る前に、ガス状燃料と混合される。または、液体燃料及び水を混合して、その後、これらの成分は、一段の共通蒸発ユニット内で蒸発されることも可能である。

30

【0017】

図示した例示的具体例において、蒸発ユニット9、11は、排ガス処理ユニット7からの温排ガスにより加熱される。しかしながら、代替的に、蒸発ユニット9、11は、その他の熱伝導媒質により加熱されることもできる。排ガス処理ユニット7は、蒸発ユニット9、11内で完全にまたは部分的に集積されることも可能である。

【0018】

図示された燃料電池装置1が作動する方法を、例示的具体例を参照して以下に説明する。なお、図1において、(A)は、始動期の作動状態を示し、(B)は、通常の間作動状態、すなわち、始動期が終了した後の作動状態を示す。図示された例において、ガス生成ユニット2a、bは、80kWの総定格電力 $P_{rated_ges} = P_{rated_1} + P_{rated_2}$ を有している。このことは、全負荷において延長された作動中に、燃料電池4が電力80kWを発生させるために必要とする量の水素を、ガス生成ユニット2a、2bが生成し得ることを意味している。図1(B)に図示される通常の間作動において、第1ガス生成ユニット2aは、定格電力 $P_{rated_1} = 30kW$ に寄与しており、その一方で、第2ガス生成ユニット2bは、残りの定格電力 $P_{rated_2} = 50kW$ に寄与している。動的作動において、燃料電池装置1がより少ない電力を与える場合には、それに対応するより少ない作動媒質がガス生成ユニット2a、2bに送給され、それに対応するより少ない水素がまた生成される。通常の間作動において、2つのガス生成ユニット2a、2bは、予め定められた作動温度 T_{rated_1} 、 T_{rated_2} 、例えば、 T_r

40

50

$a_{t e d_1} = T_{r a t e d_2} = 280$ に保持される。

【0019】

本発明によれば、2つのガス生成ユニット2a、2bは、第1ガス生成ユニット2aが第2ガス生成ユニット2bより低い熱的マスを有するように設計されている。同時に、始動期中に、第1ガス生成ユニット2aのみが作動される。このユニットは低い熱的マスを有しているので、始動作動の場合よりすばやく要求される作動温度に上昇されることができる。それは、ガス生成ユニット2aにおいて触媒反応により直接的に、またはバーナー、熱伝導媒質または電氣的加熱により間接的に加熱することにより、種々の方法で実施され得る。しかしながら、代替的に、第1ガス生成ユニット2aは、作動休止期中に最低温度において保持されることができるが、それはまた、より低い熱的マスによって簡易化される。

10

【0020】

本発明のその他の特徴は、始動期中において、第1ガス生成ユニット2aが、電力 $P_{s t a r t_1} > P_{r a t e d_1}$ により、及び/または作動温度 $T_{s t a r t_1} > T_{r a t e d_1}$ において作動されるという事実にある。作動温度 $T_{s t a r t_1}$ 、例えば $T_{s t a r t_1} = 300$ の上昇の結果、それを介して第1ガス生成ユニット2aからの温生成ガス蒸気流が流れる下流の部材、特に第2ガス生成ユニット2bはより素早く加熱される。同時に、第1ガス生成ユニット2aは、作動温度 $T_{s t a r t_1}$ の上昇の結果、例えば $P_{s t a r t_1} = 40$ kWのような過負荷において作動され得る。したがって、始動期中は、第1ガス生成ユニット2aのみが作動されるが、それにもかかわらず40kWの最大電力を与えることが可能である。このことは、第1ガス生成ユニット2aの有効寿命の短縮をもたらすが、一方でその結果改良された冷態始動特性を確実なものとすることができることは事実である。

20

【0021】

第1ガス生成ユニット2aのみが始動期中に作動されるが、第2ガス生成ユニット2bは生成ガス流から分離されない。むしろ、第2ガス生成ユニット2bは、切り替えられて、始動期中に、第1ガス生成ユニット2a内で転化され得る作動媒質と同量の作動物質のみが供給される。したがって、実質的に完全に転化された作動媒質流は、第2ガス生成ユニット2bを介して流れ、そのため、第2ガス生成ユニット2bは、総定格電力に実質的に寄与しない ($P_{s t a r t_2} = 0$ kW)。第2ガス生成ユニット2bに対して、図1 (A) に示される作動温度 $T_{r a t e d_2}$ は与えられないが、それは、一般的に外部から加熱されず、そのため明確に定められた作動温度も存在しないからである。むしろ、第2ガス生成ユニット2bは第1ガス生成ユニット2aから得られる温生成ガス流によって直接単純に加熱され、緩慢な温度上昇が確立される。しかしながら、始動期中、燃料電池装置1における充分な熱的または電氣的エネルギーが既に入手可能であるとき、第2ガス生成ユニット2bは始動期中においてさえも直接または間接的に加熱されることができる。

30

【0022】

図2 (A)、(B) は、第2例示的具体例を示し、図2 (A) は再び燃料電池装置の始動期を示し、図2 (B) は燃料電池装置の通常作動期を示すが、図1 (A)、(B) において示したものと同一部品は、対応する同じ参照符号で示す。第1例示的具体例の場合とは異なって、2つのガス生成ユニット2a、2bがそれ自体公知の自熱式作動方法により作動される。これは、ガス生成ユニット2a、2b全体が自熱式方法により作動されるような方法で、吸熱流改質が、発熱的部分酸化と組み合わせられることを意味している。温度制御スペースは、この場合与えられない。部分酸化のために必要な酸素含有媒質は、ガス生成ユニット2a、2bに対して上流に供給される。温度制御スペースは、この場合設けられない。部分酸化のために要求される酸素含有媒質は、ガス生成ユニット2a、2bに対して上流に供給される。供給される酸素含有媒質の量は、ガス生成ユニット2a、2bにおける酸化比率、したがって各作動温度をも決定する。使用される酸素含有媒質は空気であることが好ましい。下記の記述は酸素のみについて示すものであるが、いずれかの所望の酸素含有媒質を使用することが可能であることはもちろんである。

40

50

【0023】

もう一度繰り返すと、始動期（図2（A））において、第1ガス生成ユニット2aにおいて転化され得る量の作動媒質のみが供給される。同時に、酸素が第1ガス生成ユニット2a中にのみ送給される。始動期中に、上昇した作動温度 $T_{rated_1} = 300$ が確実になるような方法で一定量の酸素が設定される。既に上記で説明したように、始動期中に、第1ガス生成ユニット2aは、過負荷モード、例えば図示した例において、定格電力 $P_{start_1} = 40$ kWにおいて作動する。作動媒質は、実質的には第1ガス生成ユニット2aにおいて実質的に完全に転化され、追加の酸素は添加されないため、第2ガス生成ユニット2bにおいては転化反応が実質的には起こらず、このユニットは再び総定格電力に実質的に寄与しないものとなる（ $P_{start_2} = 0$ kW）。しかしながら、第2ガス生成ユニット2bは再び、少なくとも第1ガス生成ユニット2bから得られる温生成ガス流により加熱される。

10

【0024】

始動期の終了後、始動期に到達した温度より低い作動温度 $T_{rated_1} = 280$ が第1ガス生成ユニット2aにおいて達成されるように、供給される酸素量が減少する。同時に、酸素が第2ガス生成ユニット2bの上流にも添加される。酸素は作動温度 $T_{rated_2} = 280$ が第2ガス生成ユニット2bにおいても確立されるような量で添加される。

【0025】

定格電力及び作動温度について述べた数値は、例に過ぎず、本発明の解決手段の範囲から逸脱しない範囲で、普通の条件に適用されることができるとはもちろんである。さらに、既に説明した蒸気改質及び自熱作動モード及びガス生成ユニットが例示的具体例のそれとは異なる適当な方法で組み合わされることができるとは部分酸化段のほかに、特にいずれかの所望のガス生成ユニット2a、2bを用いることが可能である。

20

【0026】

好適具体例において、第1ガス生成ユニット2aは、始動期及び第2ガス生成ユニット2bの定格電力 P_{rated_2} を越える負荷要求がある作動期中のみ使用される。対照的に、部分負荷作動において、実質的に全電力が第2ガス生成ユニット2bにより与えられる。この目的のために、例えば部分負荷範囲において、酸素の第1ガス生成ユニット2aへの酸素の供給は、減少されるかまたは完全に停止される。

30

【0027】

その他の例示的具体例において、第1ガス生成ユニット2aは、実質的な負荷変更がある時に活性化され得、最短の時間で充分量の水素を提供する。この目的のために、例えば負荷変更があるときに、予め定められた量の酸素が第1ガス生成ユニット2aに短い時間添加される。

【0028】

始動期のみ、さらに、全負荷変化及び/又は実質的な負荷変化の場合に、第1ガス生成ユニット2aの使用は、第1ガス生成ユニット2aの全体的な有効寿命が再び増加するという利点を有している。それは、始動期中の過負荷作動のために減少した有効寿命が、ユニットが切り替えられるかまたは少なくとも部分負荷期に減少された負荷において少なくとも作動される結果、再び延長されるからである。したがって、ガス生成ユニット2a、2bの両方が始動期が短くなったにもかかわらず、均一で十分な有効寿命を有する燃料電池装置を製造することが可能である。

40

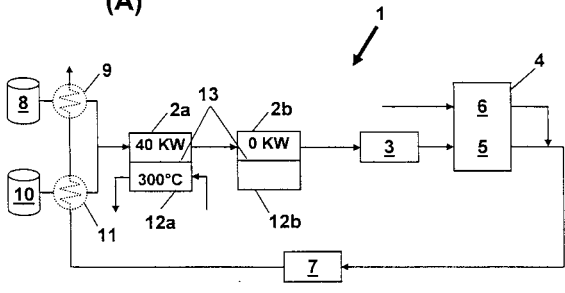
【図面の簡単な説明】

【図1】（A）は始動期における燃料電池装置の第1好適具体例の簡易化したブロック図であり、（B）は（A）の燃料電池装置の通常の作動を示す図である。

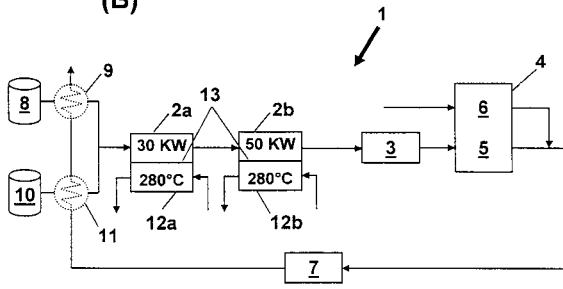
【図2】（A）は始動期における燃料電池装置の第2好適具体例の簡易化したブロック図であり、（B）が（A）の燃料電池装置の通常の作動を示す図である。

【 図 1 】

(A)

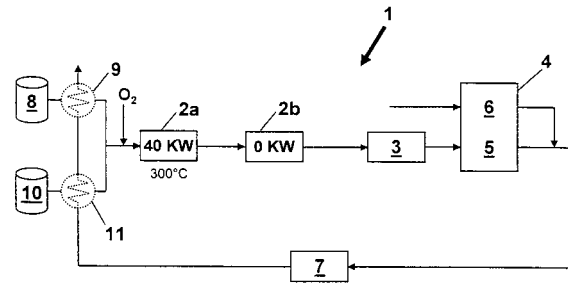


(B)

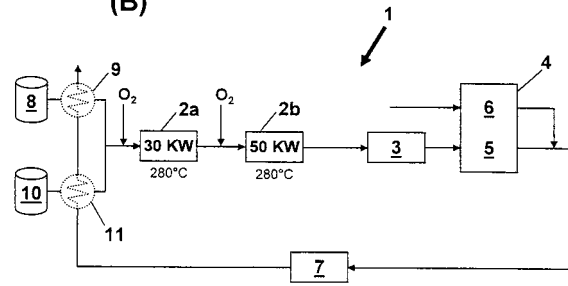


【 図 2 】

(A)



(B)



フロントページの続き

- (72)発明者 シュテファン ボーンベルク
ドイツ国 72660 ボイレン ホーエンノイフェンシュトラッセ 32
- (72)発明者 マーティン シュスラー
ドイツ国 89073 ウルム ヘンプフェルガッセ18
- (72)発明者 ハンス-フリーダー ヴァルツ
ドイツ国 73337 バート ユーバーキンゲン パノラマシュトラッセ 3

審査官 守安 太郎

- (56)参考文献 特開平11-130405(JP,A)
特開2002-154805(JP,A)
特開2001-348206(JP,A)
特開2001-302210(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl.⁷, DB名)

H01M 8/04
C01B 3/32,3/38