

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2003年8月14日 (14.08.2003)

PCT

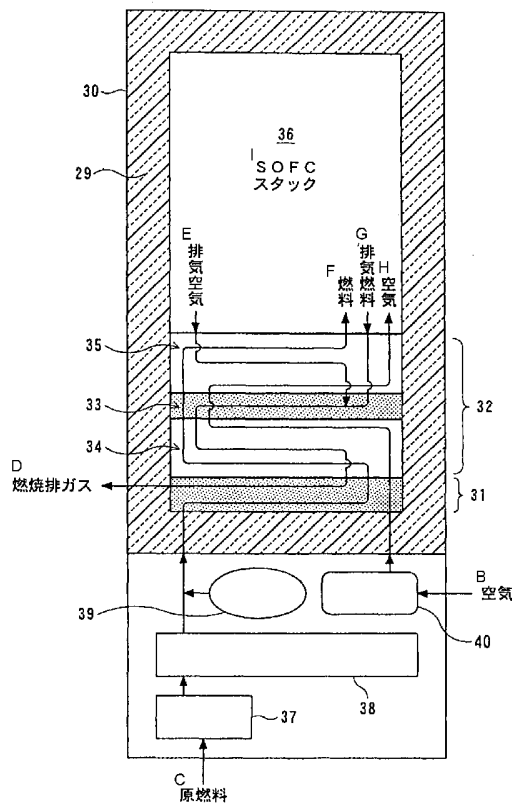
(10) 国際公開番号
WO 03/067698 A1

- (51) 国際特許分類: H01M 8/24, 8/04, 8/12 [JP/JP]; 〒105-8527 東京都港区海岸一丁目5番20号 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP03/01156
- (22) 国際出願日: 2003年2月5日 (05.02.2003)
- (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2002-28847 2002年2月5日 (05.02.2002) JP
特願2002-69314 2002年2月5日 (05.02.2002) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 東京瓦斯株式会社 (TOKYO GAS COMPANY LIMITED)
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 荻原 崇 (OGIWARA, Takashi) [JP/JP]; 〒105-8527 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). 松崎 良雄 (MATSUZAKI, Yoshio) [JP/JP]; 〒105-8527 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). 安田 勇 (YASUDA, Isamu) [JP/JP]; 〒105-8527 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). 伊東 健太郎 (ITO, Kentaro) [JP/JP]; 〒105-8527 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).

[続葉有]

(54) Title: SOLID OXIDE TYPE FUEL CELL SYSTEM

(54) 発明の名称: 固体酸化物形燃料電池システム



B...AIR
C...RAW FUEL
D...COMBUSTION WASTE GAS
E...EXHAUST AIR
F...FUEL
G...EXHAUST FUEL
H...AIR
I...SOFC STACK

(57) Abstract: A solid oxide type fuel cell system comprising an insulated container and, arranged therein, (a) a solid oxide type fuel cell stack, (b) a preliminary reformer capable of converting C₂ or higher hydrocarbons contained in a hydrocarbon fuel to methane, hydrogen and carbon monoxide and (c) a catalytic combustion integrated heat exchanger wherein air and/or fuel to be introduced in the fuel cell stack is heated by combustion gas resulting from combustion of an exhaust fuel with an exhaust air; and a catalytic combustion integrated heat exchanger therefor. These enable having both the advantages of preliminary reformer and catalytic combustion integrated heat exchanger, thereby practically eliminating any heat loss as an SOFC system. The catalytic combustion integrated heat exchanger enables heating air and fuel to be introduced in the SOFC stack while suppressing the maximum temperature reached; is useful as a heat exchanger in an SOFC, in particular, support layer type SOFC, of about 850°C or below operation temperature; enables use of inexpensive materials as constituent materials of system constituting equipment; and enables miniaturizing the whole system.

[続葉有]



WO 03/067698 A1



(74) 代理人: 加茂 裕邦 (KAMO, Hirokuni); 〒220-0004 神奈川県横浜市西区北幸2-5-2 1 新井ビル3階 加茂特許事務所 Kanagawa (JP).

(81) 指定国 (国内): CA, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SI, SK, TR).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

— 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正書受領の際には再公開される。

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(57) 要約:

断熱容器内に、(a) 固体酸化物形燃料電池スタックと、(b) 炭化水素系燃料から C_2 以上の炭化水素をメタン、水素及び一酸化炭素に変える予備改質器と、(c) 該燃料電池スタックに導入する空気及び/又は燃料を排気燃料を排気空気で燃焼した燃焼ガスにより加熱する触媒燃焼一体型熱交換器と、を配置してなる固体酸化物形燃料電池システム、及び、そのための触媒燃焼一体型熱交換器。本発明によれば、予備改質器及び触媒燃焼一体型熱交換器の利点を合わせて有し、SOFCシステムとして熱損失を可及的に無くすることができる。本発明の触媒燃焼一体型熱交換器によれば、SOFCスタックに導入する空気、燃料の最高到達温度を抑えて加熱でき、運転温度が $850^{\circ}C$ 程度以下であるSOFC、特に支持膜式SOFCにおける熱交換器として有用であり、システム構成機器の構成材料として安価な材料の使用を可能とし、システム全体として小型化できる。

明細書

固体酸化物形燃料電池システム

技術分野

本発明は、断熱容器内に、固体酸化物形燃料電池スタックと共に、予備改質器及び触媒燃焼一体型熱交換器を備えてなる固体酸化物形燃料電池システム、並びに、そのための触媒燃焼一体型熱交換器に関する。

背景技術

固体酸化物形燃料電池 (Solid Oxide Fuel Cells : 以下適宜 S O F C と略称する) は、固体電解質として酸化物イオン (O^{2-}) 導電体を用いる点に特徴を有し、固体酸化物電解質を挟んで燃料極と酸素極の両電極を配置して構成される。その運転時に、燃料極側に燃料を供給し、酸素極側に酸化剤を供給して電気化学反応を起こさせることにより電力が取り出される。酸素極側に供給する酸化剤としては空気のほか、酸素富化空気、酸素等も用いられるが、以下適宜、酸素極を空気極とし、酸化剤を空気として説明する。

図 1 は、S O F C の単電池における固体酸化物電解質、燃料極、空気極の配置関係及びその作動原理を説明する図である。単電池は固体酸化物電解質を挟んで燃料極及び空気極が配置されて構成される。空気極に導入される空気中の酸素は空気極で酸化物イオン (O^{2-}) となり、固体酸化物電解質を通過して燃料極に至る。ここで、燃料極に導入される水素等の燃料と反応して電子を放出し、電気と水等の反応生成物を生成する。空気極での利用済み空気は空気極オフガスとして排出され、燃料極での利用済み燃料は燃料極オフガスとして排出される。本明細書においては、空気極オフガスを排気空気、燃料極オフガスを排気燃料と指称している。

図 2 及び図 3 は平板方式の S O F C の態様例を模式的に示した図である。S O F C には円筒方式や一体積層方式などもあるが、原理的には平板方式の場合と同じである。図 2 は自立膜式 S O F C の場合、図 3 は支持膜式 S O F C の場合である。図 2 及び図 3 では単電池の場合を示しているが、単電池 1 個の電圧は低いいため、通常、単電池を複数層積層して構成される。本明細書及び図面中、単電池を複数層積層した構造体を固体酸化物形燃料電池スタック (= S O F C スタック)、

あるいは単にスタックと指称している。

自立膜式S O F Cの場合、図2のとおり、単電池1の上に順次、シール材2及びセパレータ3が配置され、単電池の下に順次、セパレータ4、シール材5及びセパレータ6が配置されており、これらが密に積層されて構成される。シール材2、5としてはガラス等のセラミック材料が用いられ、セパレータ3、6としてはM g A l ₂ O ₄ - M g O等のセラミック材料が用いられ、セパレータ4としてはランタンクロマイト等のセラミック材料が用いられる。

自立膜式においては、固体酸化物電解質膜自体でその構造を保持するようになっている。このため、固体酸化物電解質膜は、その膜厚自体を厚くする必要があり、その厚さは通常100 μ m程度と厚く構成される。また、その作動温度は800～1000℃の範囲、通常1000℃程度と高く、スタック内に1000℃を超える高温場が形成される。このため、その構成材料が高価な耐熱合金やセラミックスに制限される。セラミックスの場合は、スタック内の温度差に起因して割れが生じるなどの問題があり、また、断熱容器に収容する場合、その断熱材が厚くなり、S O F Cシステムとして大型化してしまう。

他方、支持膜式S O F Cの場合には、図3のとおり、単電池7はスペーサ8の枠内に保持され、その上部に順次、接合材9、セル支持体10、スペーサ11及びセパレータ12が配置される。単電池7の下部にも順次接合材、セル支持体、スペーサ及びセパレータが配置されるが、図3ではそれらの部材の記載は省略している。支持膜式においては、固体酸化物電解質膜として、例えばL a G a O ₃系やジルコニア系などの材料を用いて、その膜厚を例えば10 μ m程度というように薄くし、これを膜厚の厚い燃料極で支持するように構成されている。

本発明者らは、このような支持膜式S O F Cについて特に注目し、開発を進めており、これまで幾つかの成果を得ている(特開2002-367615)。支持膜式においては、固体酸化物電解質膜の膜厚を薄く構成できることなどから、前記自立膜式の場合に比べてより低温、すなわち650～850℃程度の範囲、例えば750℃というような低温運転ができる。このため、スペーサ8、接合材9、セル支持体10、スペーサ11、セパレータ12等の構成材料としてステンレス鋼、例えばフェライト系ステンレス鋼などの安価な材料の使用を可能とし、また小型化が可能であるなどの諸利点を有する。

ところで、S O F Cでは、水素のほか、一酸化炭素も燃料となる。このため、炭化水素を成分とする都市Pガス、LPガスなどを原燃料とする場合、それら原燃料を改質して水素や一酸化炭素に変えて用いられる。炭化水素のうち、メタンは、S O F Cの燃料極におけるNi等の触媒で内部改質されて水素や一酸化炭素となりS O F Cの燃料として利用される。

しかし、原燃料にメタン以外の炭化水素、すなわちエタン、エチレン、プロパン、ブタン等の炭素数C₂以上の炭化水素が含まれていると、S O F Cへの配管や燃料極上で炭素を生成し、これが電気化学反応を阻害して電池性能を劣化させてしまう。C₂以上の炭化水素に起因するこれらの問題は、長期間、繰り返し作動して使用するS O F Cにおいて致命的となる。

都市ガス、LPガス、天然ガス、ガソリン、あるいは灯油などにはメタン以外の炭化水素、すなわちC₂以上の炭化水素が含まれている。例えば都市ガスの場合、その組成の一例として、メタン88.5%、エタン4.6%、プロパン5.4%、ブタン1.5%（%はv o l %。以下同じ。）が含まれており、主成分であるメタンに加え、炭素数C₂~C₄の炭化水素が約11.5%も含まれている。このため、これらをS O F Cの原燃料とするには、それら炭素数C₂以上の炭化水素を改質し、C₂以上の炭化水素をメタン、水素、一酸化炭素に変えて、除去しておく必要がある。

炭化水素の改質法には水蒸気改質法や部分燃焼法がある。これらの改質法は、炭化水素を水素を主成分とする改質ガスに変える技術であり、炭化水素が例えばメタンである場合の水蒸気改質反応は、式： $CH_4 + H_2O = 3H_2 + CO$ で示される。ところが、S O F Cにおいては、水素及び一酸化炭素はもちろん、メタンもその燃料極上で内部改質されて水素と一酸化炭素となり、燃料となるため、S O F Cの燃料極へ導入する段階での燃料はC₂以上の炭化水素が除去されていればよく、水素及び一酸化炭素を主成分とする改質ガスにまで改質する必要はない。

このように、S O F C用の原燃料の改質は、炭素数C₂以上の炭化水素がメタン、水素、一酸化炭素等の他の成分に変えられて除去されていけば足りるので、炭化水素をすべて水素や一酸化炭素に変える必要はない。このため、S O F Cシステムにおいては、原燃料から炭素数C₂以上の炭化水素をメタン、水素、一酸化炭素等の他の成分に変えて除去するための改質を行う改質器が用いられる。すな

わち、S O F C用の原燃料の改質器においては、炭化水素をすべて水素や一酸化炭素に変える必要はなく、原燃料中の炭素数 C_2 以上の炭化水素をメタン、水素、一酸化炭素などに変え、その結果として C_2 以上の炭化水素が除去される。

本明細書及び図面において、この目的に用いる改質器を予備改質器と言ひ、また、予備改質器による予備改質前の燃料を原燃料と指称している。

図4は、S O F Cスタックと共に、水蒸気改質法による予備改質器を配置し、原燃料として都市ガス、L Pガス等を用いる場合におけるシステムを模式的に示した図である。図4のとおり、順次、脱硫器13、水蒸気発生器14、予備改質器15、S O F Cスタック16が配置される。水蒸気発生器14は予備改質器15に一体化される場合もある。原燃料に硫黄化合物が含まれていると、硫黄化合物によりS O F Cの燃料極が被毒する。都市ガスやL Pガスには付臭剤としてメルカプタンその他の形の硫黄化合物が含まれており、また、天然ガスやガソリン等にも産地等の如何により差はあるが硫化水素等の硫黄化合物が含まれてまれている。脱硫器13は、原燃料から硫黄化合物を除去するために用いられるが、原燃料が硫黄分を含まないか、既に除去されている場合には脱硫器13は必要でない。原燃料は、脱硫器13で脱硫した後、水蒸気発生器14で生成した水蒸気と共に予備改質器15に供給され、ここで C_2 以上の炭化水素が改質され、メタン、水素、一酸化炭素などに変えられる。改質ガスはS O F Cスタック16の燃料極に導入される。

ところで、前記のように、自立膜式S O F Cの運転温度は $800\sim 1000^{\circ}C$ 程度、通常 $1000^{\circ}C$ 程度と高く、また、支持膜式S O F Cの運転温度は $850^{\circ}C$ 程度以下であり、自立膜式S O F Cの運転温度よりは低い、なお高温である。このため、S O F Cスタック、予備改質器などからの熱損失を可及的に少なくする必要があり、このためそれらを断熱容器に収めるか、断熱材で被うことが考えられる。加えて、その運転時に、そのような範囲内で一定の温度に保持する必要があることから、S O F Cに導入する空気、燃料は加熱して供給することが望まれる。

本発明においては、S O F Cシステムとして、S O F Cスタック、S O F C用予備改質器及びS O F C用触媒燃焼一体型熱交換器を併せて使用することにより、両機器すなわち該予備改質器及び該触媒燃焼一体型熱交換器の利点を合わせ

て有し、且つ、S O F Cシステムとして熱損失を無くすか、あるいは可及的に無くしてなるS O F Cシステム及びそのためのS O F C用触媒燃焼一体型熱交換器を提供することを目的とする。

発明の開示

本発明は、断熱容器内に、(a)固体酸化物形燃料電池スタックと、(b)炭化水素系燃料から C_2 以上の炭化水素をメタン、水素及び一酸化炭素に変えることで除去するための予備改質器と、(c)該燃料電池スタックに導入する空気及び／又は燃料（すなわち、空気及び燃料のうちいずれか一方または両方）を、排気燃料を排気空気で燃焼した燃焼ガスにより加熱する触媒燃焼一体型熱交換器と、を配置してなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池システムである。ここで、上記“断熱容器内”とは、S O F Cスタックに加え、それらの機器類を断熱材で被う場合を含む意味である。

また、本発明は、固体酸化物形燃料電池システムにおいて、S O F Cスタックの近傍に配置して使用するに適した下記(1)～(6)の触媒燃焼一体型熱交換器を提供するものである。

(1) 固体酸化物形燃料電池スタックの近傍に配置する触媒燃焼一体型熱交換器であって、該熱交換器が、該スタックからの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とからなり、該スタックに導入する空気を、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第1熱交換器で予熱した後、該スタックからの排気空気及び／又は排気燃料により第2熱交換器で加熱して該スタックに導入するようにしてなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池用触媒燃焼一体型熱交換器。

(2) 固体酸化物形燃料電池スタックの近傍に配置する触媒燃焼一体型熱交換器であって、該熱交換器が、該スタックからの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とからなり、該スタックに導入する燃料を、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第1熱交換器で予熱した後、該スタックからの排気空気及び／又は排気燃料により第2熱交換器で加熱して該スタックに導入するようにしてなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池用触媒燃焼一体型熱交換器。

(3) 固体酸化物形燃料電池スタックの近傍に配置する触媒燃焼一体型熱交換

器であって、該熱交換器が、該スタックからの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とからなり、該スタックに導入する空気及び燃料を、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第1熱交換器で予熱した後、該スタックからの排気空気及び／又は排気燃料により第2熱交換器で加熱して該スタックに導入するようにしてなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池用触媒燃焼一体型熱交換器。

(4) 固体酸化物形燃料電池スタックの近傍に配置する触媒燃焼一体型熱交換器であって、該熱交換器が、該スタックからの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とからなり、該スタックに導入する空気を、該スタックからの排気空気及び／又は排気燃料により第2熱交換器で予熱した後、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第1熱交換器で加熱して該スタックに導入するようにしてなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池用触媒燃焼一体型熱交換器。

(5) 固体酸化物形燃料電池スタックの近傍に配置する触媒燃焼一体型熱交換器であって、該熱交換器が、該スタックからの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とからなり、該スタックに導入する燃料を、該スタックからの排気空気及び／又は排気燃料により第2熱交換器で予熱した後、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第1熱交換器で加熱して該スタックに導入するようにしてなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池用触媒燃焼一体型熱交換器。

(6) 固体酸化物形燃料電池スタックの近傍に配置する触媒燃焼一体型熱交換器であって、該熱交換器が、該スタックからの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とからなり、該スタックに導入する空気及び燃料を、該スタックからの排気空気及び／又は排気燃料により第2熱交換器で予熱した後、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第1熱交換器で加熱して該スタックに導入するようにしてなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池用触媒燃焼一体型熱交換器。

図面の簡単な説明

図1は、SOFCの単電池における固体酸化物電解質、燃料極、空気極の配置関係及びその作動原理を説明する図である。

図 2 は、平板方式の自立膜式 S O F C の構造を模式的に示した図である。

図 3 は、平板方式の支持膜式 S O F C の構造を模式的に示した図である。

図 4 は、S O F C スタックとともに、水蒸気改質法による予備改質器を配置し、原燃料として都市ガス、L P ガス等を用いる場合におけるシステムを模式的に示した図である。

図 5 は、水蒸気改質法による予備改質器の態様を説明する図である。

図 6 は、水蒸気改質法による予備改質器の態様を説明する図である。

図 7 は、水蒸気改質法による予備改質器の態様を説明する図である。

図 8 は、水蒸気改質法による予備改質器の態様を説明する図である。

図 9 は、部分燃焼改質法による予備改質器の態様を説明する図である。

図 10 は、部分燃焼改質法による予備改質器の態様を説明する図である。

図 11 は、触媒燃焼一体型熱交換器の構成態様を説明する図である。

図 12 は、触媒燃焼一体型熱交換器の構成態様を説明する図である。

図 13 は、触媒燃焼一体型熱交換器の構成態様を説明する図である。

図 14 は、触媒燃焼一体型熱交換器の構成態様を説明する図である。

図 15 は、触媒燃焼一体型熱交換器の構成態様を説明する図である。

図 16 は、触媒燃焼一体型熱交換器の構成態様を説明する図である。

図 17 は、触媒燃焼一体型熱交換器の構成態様を説明する図である。

図 18 は、触媒燃焼一体型熱交換器の構成態様を説明する図である。

図 19 は、S O F C システムの態様例を示す図である。

図 20 は、S O F C システムの態様例を示す図である。

図 21 は、S O F C システムの態様例を示す図である。

図 22 は、S O F C システムの態様例を示す図である。

図 23 は、実施例 1 ~ 2 の S O F C システムで用いた予備改質器を示す図である。

図 24 は、実施例 1 ~ 2 の S O F C システムで用いた燃焼触媒一体型熱交換器を示す図である。

図 25 は、図 23 の A - A 線断面図である。

図 26 は、実施例 1 における予備改質器についての結果を示す図である。

図 27 は、実施例 3 の S O F C システムで用いた予備改質器を示す図である。

図28は、実施例3における予備改質器についての結果を示す図である。

発明を実施するための形態

本発明に係る固体酸化物形燃料電池システムは、断熱容器内に、SOFCスタックを配置すると共に、SOFCスタックに導入する原燃料から C_2 以上の炭化水素を除去するための予備改質器を配置し、且つ、SOFCスタックに導入する空気及び／又は燃料（すなわち、空気及び燃料のうちのいずれか一方または両方）を加熱する触媒燃焼一体型熱交換器を備えて構成される。以下、本発明で用いる予備改質器及び触媒燃焼一体型熱交換器の態様について順次説明する。

予備改質器の態様

本発明で用いる予備改質器は、SOFCスタックで使用する原燃料中の炭素数 C_2 以上の炭化水素をメタン、水素、一酸化炭素などに変え、その結果として原燃料から C_2 以上の炭化水素を除去するための改質器である。これにより、 C_2 以上の炭化水素に起因する炭素の生成を防止してSOFCスタックへの配管や燃料極上での炭素の析出を防止し、SOFCシステムにおける発電を長期にわたり安定して継続することができる。

本予備改質器では、加熱が必要な場合と必要でない場合があるが、加熱が必要な場合、加熱源としてSOFCスタックからの排気空気及び／又は排気燃料（すなわち、排気空気及び排気燃料のうちのいずれか一方または両方）、あるいは排気燃料を排気空気中で燃焼させて生成した燃焼ガスを利用する。

予備改質器には、水蒸気改質法による場合は改質触媒が充填され、部分燃焼改質法による場合は酸化触媒が充填される。水蒸気改質法による場合の改質触媒としては、原燃料から C_2 以上の炭化水素をメタン、水素、一酸化炭素などに変えることにより、 C_2 以上の炭化水素を除去し得る触媒であれば特に限定はなく、例えばNi系触媒（例えばアルミナにNiを担持した触媒）、Ru系触媒（例えばアルミナにRuを担持した触媒）などが挙げられる。

部分燃焼改質法による場合、予備改質器に充填する酸化触媒としては、原燃料を部分的に酸化させて、原燃料から C_2 以上の炭化水素をメタン、水素、一酸化炭素などに変えることにより、 C_2 以上の炭化水素を除去し得る触媒であれば特に限定はなく、例えば白金、パラジウム等の貴金属触媒などが用いられる。それら貴金属触媒はアルミナ等の担体に担持した形で用いられる。

原燃料としては、都市ガス、LPガス、天然ガス等の気体燃料やガソリン、灯油、アルコール類等の液体燃料が用いられる。本予備改質器において、それらの原燃料を改質すると、改質ガス中にはメタン、水素、一酸化炭素のほか、二酸化炭素、水蒸気等が含まれているが、エタン、その他の C_2 以上の炭化水素が除去されているので、SOFCスタックの燃料極に至るまでの配管やSOFCスタックの燃料極上への炭素の析出が防止される。

本明細書においては、予備改質器による改質前の燃料を原燃料と称し、予備改質器による改質後の燃料を改質ガス又は燃料と称している。

水蒸気改質法による予備改質器の態様

水蒸気改質法による予備改質器においては、通常、改質反応を促進するために加熱が必要である。その加熱量は原燃料中の C_2 以上の炭化水素の量如何により左右される。 C_1 炭化水素であるメタンの水素、一酸化炭素、二酸化炭素への変換反応は吸熱反応であるのに対して、 C_2 以上の炭化水素のメタンへの変換反応は発熱反応であり、このため、LPガスなどのように C_2 以上の炭化水素が多い場合には、全体として発熱反応になる。

すなわち、原燃料が例えば都市ガスの場合、都市ガス中の C_2 以上の炭化水素は、LPガスなどに比べれば少ない。このため、水蒸気改質法による予備改質器においては、都市ガスの場合、 C_2 以上の炭化水素がメタンへ変換されることによる発熱量よりも、メタンが水素、一酸化炭素、二酸化炭素へ変換されることによる吸熱量が支配的になり、全体では吸熱反応となる。これに対して、LPガスなどのようにメタンの量に比べて C_2 以上の炭化水素の量が多い場合には、全体として発熱になる。このため、原燃料中に含まれる C_2 以上の炭化水素の割合に応じて、加熱源による加熱を減らすか、あるいは不要とすることができる。

本予備改質器において、改質に必要な加熱源として、SOFCスタックからの排気空気及び／又は排気燃料を利用する。その加熱源として排気燃料を排気空気中で排気燃料を燃焼させた燃焼ガスを用いてもよい。本予備改質器の運転時における改質触媒の温度は $300\sim 600$ ℃程度の範囲であるのが好ましく、また、S/C比は、特に限定はないが、 $1.5\sim 6.0$ の範囲であるのが好ましい。

図5～図8は、水蒸気改質法による予備改質器の態様を説明する図である。このうち図5及び図6の態様では、改質触媒を充填した予備改質器17に、原燃料

とともに水を供給し、両者を反応させて C_2 以上の炭化水素を除去した改質ガスを生成させる。加熱源として、SOFCスタックからの排気空気及び／又は排気燃料を利用し、熱交換器18により間接的に予備改質器17中の改質触媒を加熱する。その加熱源として、排気燃料を排気空気で燃焼させた燃焼ガスを利用することもできる。図6はこの場合の態様を示している。

SOFCシステムの作動時における排気空気及び排気燃料の温度は、SOFCスタックの温度と同程度に高く、また両者の燃焼ガスは更に高い温度となるので、これらにより改質に必要な熱を賄うことができる。予備改質器に供給する水は、予め加熱して水蒸気として供給してもよく、予備改質器内で加熱して水蒸気としてもよい。水を予め水蒸気にして供給する場合、原燃料についても予め加熱して予熱し、両者の混合ガスを予備改質器に導入するようにしてもよい。

図7は、水蒸気改質法による予備改質器の他の態様であり、加熱源として、SOFCスタック19からの排気空気及び／又は排気燃料、あるいは両者の燃焼ガスを利用し、且つ、SOFCスタック19からの排気燃料の一部を分岐管20によりリサイクルさせ、これを予備改質器17に供給する原燃料に混合することで加熱する態様である。熱交換器18において、加熱源により予備改質器17を間接的に加熱する。この場合、排気燃料にはSOFCスタック19で生成した水蒸気が含まれているので、予備改質用の水蒸気源としても利用される。

排気燃料の温度はSOFCスタック19の温度と同程度に高く、加えて排気燃料にはSOFCスタック19で生成した水蒸気が含まれているので、リサイクル排気燃料だけで予備改質器17で必要な熱量及び水蒸気量を賄うこともできる。すなわち、排気燃料のリサイクル率を増やすことで、改質に必要な熱量及び水蒸気量を調整することができる。この態様では、別途加熱源は不要であり、このため熱交換器も必要としない。図8はこの場合の態様を示している。

本予備改質器を、断熱容器内に配置されたSOFCスタックの近傍で、且つ、同断熱容器内に配置することにより、それらの熱をより効率的且つ容易に利用することができる。

部分燃焼改質法による予備改質器の態様

予備改質器が部分燃焼改質法による予備改質器の場合は、原燃料の部分酸化反応を利用するため、通常、加熱は必要としないが、補助的に加熱するようにして

もよい。部分燃焼改質法による場合、予備改質器は、空気比 λ （原燃料を完全燃焼させる上で理論的に必要な最小限の空気量に対する実際に供給する乾き空気の量）を1未満として運転される。

図9、図10は、部分燃焼改質法による予備改質器の態様を説明する図である。酸化触媒を充填した予備改質器21に、原燃料とともに空気を供給し、両者を反応させて C_2 以上の炭化水素を除去した改質ガスを生成させる。部分燃焼改質法による場合には、基本的に発熱反応であるので、温度が上昇する。このため、加熱源により加熱してもよいが、加熱は必須でない。上記空気に代えて、酸素富化空気や酸素を用いてもよい。

図9(a)は加熱をしない場合、図9(b)は加熱をする場合の態様を示している。図9(b)の態様での加熱源としては、SOFCスタックからの排気空気及び/又は排気燃料を利用する。その加熱源として両者の燃焼ガス、すなわち排気燃料を排気空気で燃焼した燃焼ガスを利用してもよい。

図10は、SOFCスタック23からの排気空気を分岐管24によりリサイクルさせ、予備改質器21で改質する燃料に混合して利用する態様である。これにより部分燃焼用の酸素として排気空気中の酸素を利用する。この場合、排気空気のリサイクル率を増やすことで新たな空気の供給を不要とすることもできる。

以上のとおり、部分燃焼改質法による予備改質器では、加熱が必要な場合と必要でない場合があるが、加熱が必要な場合、その加熱源としてSOFCスタックからの排気空気及び/又は排気燃料、あるいは排気燃料を排気空気で燃焼した燃焼ガスを利用する。本予備改質器を、断熱容器内に配置されたSOFCスタックの近傍で、且つ、同断熱容器内に配置することにより、それらの熱をより効率的且つ容易に利用することができる。

触媒燃焼一体型熱交換器の態様

本発明で用いる触媒燃焼一体型熱交換器は、SOFCからの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とを一体にして構成され、SOFCに導入する空気及び/又は燃料（すなわち、空気及び燃料のいずれか一方または両方）を加熱するようにしてなることを特徴とする。触媒燃焼層には燃焼触媒が充填、配置され、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスは第1熱交換器での加熱源として用いられる。

触媒燃焼層に充填する燃焼触媒としては、排気燃料を排気空気で燃焼させ得る触媒であれば特に限定はなく、例えば白金、パラジウム等の貴金属触媒などが用いられる。それら貴金属触媒はアルミナ等の担体に担持した形で用いられる。また、触媒燃焼層における空間速度については特に限定はないが、好ましくは $1000 \sim 60000 \text{ h}^{-1}$ の範囲とすることができる。

加えて、SOFCからの排気空気及び／又は排気燃料（すなわち、排気空気及び排気燃料のいずれか一方または両方）を第2熱交換器の加熱源として用いる。SOFCからの排気空気、排気燃料は、第2熱交換器において、それぞれ、その全部とは限らず、その一部を利用するようにしてもよい。

本触媒燃焼一体型熱交換器において、燃料及び／又は空気は、SOFCスタックに導入するその全部を加熱する場合のほか、それぞれその一部を加熱するようにしてもよい。本触媒燃焼一体型熱交換器は、SOFCスタックの近傍に配置して用いられる。また、SOFCシステムで用いる場合には、SOFCスタック、予備改質器と共に断熱材で被うか、断熱容器内に収容して用いられる。

本熱交換器における第1熱交換器及び第2熱交換器への各流体の流通の仕方については、下記(1)～(2)の態様で行うことができる。

(1) SOFCスタックに導入する空気及び／又は燃料を、まず第1熱交換器において、触媒燃焼層でSOFCスタックからの排気燃料を排気空気で燃焼させて生成した燃焼ガスにより予熱する。次いで、第2熱交換器において、SOFCスタックからの排気空気及び／又は排気燃料により加熱してSOFCスタックに供給するように構成する。

(2) SOFCスタックに導入する空気及び／又は燃料を、上記(1)の態様とは逆に、まず第2熱交換器で予熱した後、第1熱交換器で加熱する。すなわち、SOFCに導入する空気及び／又は燃料を、まず第2熱交換器において、SOFCスタックからの排気空気及び／又は排気燃料により予熱し、次いで、第1熱交換器において、触媒燃焼層でSOFCスタックからの排気空気及び排気燃料の燃焼ガス、すなわち排気燃料を排気空気で燃焼させて生成した燃焼ガスにより加熱してSOFCスタックに供給するように構成する。

図11～図18は本発明に係る触媒燃焼一体型熱交換器の構成態様例を説明する図である。図11～図14はSOFCスタックに導入する空気、燃料を第1熱

交換器で予熱した後、第2熱交換器で加熱してSOFCスタックに供給する場合、図15～18はSOFCスタックに導入する空気、燃料を第2熱交換器で予熱した後、第1熱交換器で加熱してSOFCスタックに供給する場合である。

図11～図18では、第1熱交換器と触媒燃焼層と第2熱交換器が、順次、下部から上部に配置されている。しかし、これらの位置関係は、例えば、①それらの上下関係を図11～図18とは逆に配置する、②触媒燃焼層の側部に第1熱交換器と第2熱交換器を配置するなど、触媒燃焼層を中心に適宜の配置とすることができる。また、これら第1熱交換器、第2熱交換器としては多管式、コイル式、平板式、二重管式など適宜選定して使用される。

図11の態様は、空気又は燃料を加熱する場合である。触媒燃焼層25でSOFCスタック28からの排気空気及び排気燃料を燃焼させる。そして、SOFCスタック25に導入する空気又は燃料を、まず第1熱交換器26において、触媒燃焼層25で生成した燃焼ガスにより間接的に熱交換させて予熱する。次いで、第2熱交換器27において、排気空気又は排気燃料と間接的に熱交換させて加熱した後、SOFCスタック28に導入するように構成される。第2熱交換器における加熱源が排気空気である場合、第2熱交換器を経た排気空気はSOFCスタック28からの排気燃料と共に触媒燃焼層25に導入され、第2熱交換器における加熱源が排気燃料である場合、第2熱交換器27を経た排気燃料はSOFCスタック25からの排気空気と共に触媒燃焼層25に導入される。

図12の態様は、図11の態様と同じく空気又は燃料を加熱する場合であるが、排気空気及び排気燃料を共に第2熱交換器26の加熱源として利用する点で図11の態様と異なる。SOFCスタック25に導入する空気又は燃料を、まず第1熱交換器26において、触媒燃焼層25で生成した燃焼ガスにより間接的に熱交換させて予熱する。次いで、第2熱交換器27において、排気空気及び排気燃料と間接的に熱交換させて加熱した後、SOFCスタック25に導入するように構成される。排気空気及び排気燃料は、第2熱交換器における加熱源として利用された後、共に触媒燃焼層25に導入される。

図13の態様は、空気及び燃料共に加熱する場合である。触媒燃焼層25でSOFCスタック28からの排気空気及び排気燃料を燃焼させる。そして、SOFCスタック25に導入する空気及び燃料を、まず第1熱交換器26において、触

媒燃焼層 25 で生成した燃焼ガスにより間接的に熱交換させて予熱する。次いで、第 2 熱交換器 27 において、排気空気又は排気燃料と間接的に熱交換させて加熱した後、S O F C スタック 28 に導入するように構成される。第 2 熱交換器における加熱源が排気空気である場合、第 2 熱交換器を経た排気空気は S O F C スタック 28 からの排気燃料と共に触媒燃焼層 25 に導入され、第 2 熱交換器における加熱源が排気燃料である場合、第 2 熱交換器 27 を経た排気燃料は S O F C スタック 25 からの排気空気と共に触媒燃焼層 25 に導入される。

図 14 の態様の場合、上記態様と同じく空気及び燃料を加熱する場合であるが、排気空気及び排気燃料を共に第 2 熱交換器 26 の加熱源として利用する点で図 13 の態様と異なる。S O F C スタック 25 に導入する空気及び燃料を、まず第 1 熱交換器 26 において、触媒燃焼層 25 で生成した燃焼ガスにより間接的に熱交換させて予熱する。次いで、第 2 熱交換器 27 において、排気空気及び排気燃料と間接的に熱交換させて加熱した後、S O F C スタック 25 に導入するように構成される。排気空気及び排気燃料は、第 2 熱交換器における加熱源として利用された後、共に触媒燃焼層 25 に導入される。

以上、図 11 ~ 図 14 の態様においては、第 2 熱交換器で用いる加熱源は S O F C スタックからの排気空気又は排気燃料、あるいはその両方であるので、その温度は S O F C スタックの運転温度と同等の温度であり、この加熱源で加熱される空気、燃料は S O F C スタックの運転温度に近い温度で S O F C スタックに導入される。

図 15 ~ 18 は、S O F C スタックに導入する空気、燃料を第 2 熱交換器で予熱した後、第 1 熱交換器で加熱して S O F C スタックに供給する態様である。

図 15 の態様の場合、S O F C スタックに導入する空気又は燃料を、まず第 2 熱交換器において、S O F C スタックからの排気空気又は排気燃料と間接的に熱交換させて予熱する。次いで、第 1 熱交換器において、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスと間接的に熱交換させて加熱した後、S O F C スタックに導入するように構成される。

図 16 の態様の場合、S O F C スタックに導入する空気又は燃料を、まず第 2 熱交換器において、S O F C スタックからの排気空気及び排気燃料と間接的に熱交換させて予熱する。次いで、第 1 熱交換器において、触媒燃焼層で生成した燃

焼ガスと間接的に熱交換させて加熱した後、S O F Cスタックに導入するように構成される。

図17の態様の場合、S O F Cスタックに導入する空気及び燃料を、まず第2熱交換器において、S O F Cスタックからの排気空気又は排気燃料と間接的に熱交換させて予熱する。次いで、第1熱交換器において、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスと間接的に熱交換させて加熱した後、S O F Cスタックに導入するように構成される。

図18の態様の場合、S O F Cスタックに導入する空気及び燃料を、まず第2熱交換器において、S O F Cスタックからの排気空気及び排気燃料と間接的に熱交換させて予熱する。次いで、第1熱交換器において、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスと間接的に熱交換させて加熱した後、S O F Cスタックに導入するように構成される。

以上、図15～図18の態様においても、図11～図14の態様の場合と同様、第1熱交換器での加熱源は触媒燃焼層で生成した燃焼ガスであるので、この加熱源で加熱された空気又は燃料はS O F Cスタックの運転温度に近い温度でS O F Cスタックに導入される。

本発明に係る触媒燃焼一体型熱交換器によれば、S O F Cからの排気燃料を排気空気により触媒燃焼層で燃焼させ、その燃焼熱を利用してS O F Cスタックに導入する燃料、空気、あるいはその両方を加熱することにより、S O F Cスタックの運転時における最高到達温度を820℃程度以下に抑えることができる。これにより、触媒燃焼一体型熱交換器自体はもちろん、S O F Cスタック、予備改質器、配管等の構成材料として、自立膜式S O F Cのような高価な材料を必要とせず、例えばステンレス鋼などの安価な材料が使用できる。また、これらを収容する断熱容器の断熱材の厚さを薄くでき、且つ、S O F Cシステム全体としての小型化を可能とすることができる。

また、本発明の触媒燃焼一体型熱交換器は、特に支持膜式S O F Cに対して使用される。すなわち、支持膜式S O F Cの運転温度は650～850℃の範囲、一例として750℃であり、そして本触媒燃焼一体型熱交換器によれば、S O F Cスタックの運転時における最高到達温度を820℃程度以下に抑えることができることから、本触媒燃焼一体型熱交換器は支持膜式S O F Cに対して好適に適

用される。また、自立膜式SOFCについても、850℃程度以下で運転されるものであれば上記と同様にして適用できる。

固体酸化物形燃料電池システムの態様

本発明の固体酸化物形燃料電池システムは、以上で述べた予備改質器及び触媒燃焼一体型熱交換器をSOFCスタックと共に、これら機器相互を結ぶ配管等を含めて断熱容器内に收容して組み込むことにより構成される。断熱容器を構成する断熱材としては、ガラスウールやスラグウール、各種耐火物その他適宜の材料が用いられる。図19～図22は本システムの構成態様例を説明する図である。

図19は、断熱材29を配置して構成された断熱容器30内に、SOFCスタック36、予備改質器31及び触媒燃焼一体型熱交換器32を組み込んだ態様である。断熱容器30内に、下部から上部へ、順次、予備改質器31、触媒燃焼一体型熱交換器32及びSOFCスタック36が組み込まれている。触媒燃焼一体型熱交換器32は触媒燃焼層33、第1熱交換器34及び第2熱交換器35により構成されている。SOFCスタック36からの排気燃料及び排気空気を触媒燃焼層33で燃焼させた燃焼ガスを予備改質器31からの改質ガスの予熱に利用した後、予備改質器31の加熱源として利用する。

排気燃料と排気空気は、触媒燃焼層33に供給され、両者はここで混合して燃焼し、燃焼ガスが第1熱交換器34、これに続く予備改質器31での加熱源として利用される。触媒燃焼層33には燃焼触媒が充填されており、排気燃料と排気空気が該燃焼触媒に直かに導入され、混合して燃焼する。燃焼ガスは、触媒燃焼層33内の燃焼触媒を通過して第1熱交換器34に導入されるが、図19では該燃焼ガスの流れを便宜上導管で示している。この点、以下で述べる図20～図22の態様の場合も同じである。

第1熱交換器34においては、空気及び予備改質器31で改質された燃料（すなわち改質ガス）が該燃焼ガスにより間接的に加熱される。予備改質器31においては、混合された水を含む原燃料が該燃焼ガスにより間接的に加熱されて改質される。第1熱交換器34及び予備改質器31での加熱が間接的加熱である点は、以下で述べる図20～図22の態様の場合も同じである。第1熱交換器34及び予備改質器31を経た燃焼ガスは燃焼排ガスとして排出される。

37は原燃料用ブロア、38は脱硫器、38は純水タンク、40は空気用ブロ

アである。燃料に硫黄化合物が含まれていると、SOFCの燃料極を被毒するため、脱硫器38で脱硫した後、予備改質層31に供給される。原燃料に硫黄化合物を含まないか、既に除去されている場合には脱硫器38は必要でない。この点、以下で述べる図20～図22の態様でも同じである。

原燃料は、プロア37、脱硫器37（必要な場合）を経て、純水タンクからの水と混合され、予備改質層31中の改質触媒に直かに導入され、改質触媒に直かに接して改質される。図19では、原燃料及び水、改質触媒中での生成改質ガスの流れを便宜上導管で示している。この点、以下で述べる図20～図22の態様の場合も同じである。改質触媒層31から排出される改質済み燃料は、順次第1熱交換器34及び第2熱交換器35で加熱され、SOFCスタックの燃料極に導入される。

図20はSOFCスタックからの排気燃料の一部を燃料としてリサイクルさせる場合である。SOFCスタック36からの排気燃料の一部をリサイクル導管41により分岐させて予備改質器31に供給する原燃料に混合して再利用する。リサイクルしない残余の排気燃料は、触媒燃焼層33で排気空気により燃焼させる。そして、第1熱交換器34において、生成燃焼ガスにより、予備改質器31での改質済み燃料（改質ガス）を加熱する。生成燃焼ガスは、空気プロア40からの空気の予熱にも使用してよく、図20はこの場合を示している。ここで予熱された空気は、第2熱交換器35で排気空気によりさらに加熱され、SOFCスタック36に供給される。

図21は、SOFCスタック36に導入する燃料をスタックの周囲（周り）42で加熱する場合である。予備改質器31で改質された燃料は、触媒燃焼層からの燃焼ガスにより加熱され、更にスタック36の周囲で加熱された後、スタック36に供給される。この場合、燃料は予備改質器31を出た後、触媒燃焼一体型熱交換器32を経ずにスタックの周囲に供給してもよい。この点、図22の場合も同様である。

スタック36の周囲42での燃料の加熱は、(1)燃料をスタック36と断熱容器30の間のスペースに流通させる、(2)スタック36と断熱容器と30の間のスペースに管状導管を配置し、燃料を該導管中に流通させる、など適宜の手法で実施される。空気は、第1熱交換器34で触媒燃焼層からの燃焼ガスにより予熱

された後、更に第2熱交換器で排気空気により加熱され、スタック36に供給される。

燃料をスタックの周り42で加熱するのに代えて、空気をスタックの周り42で加熱するようにしてもよい。この場合、空気は空気用ブロワ40から直接スタックの周囲42に供給してもよい。この点、図22の態様でも同様である。

図22は、SOFCスタックに導入する燃料をスタックの周囲(周り)42で加熱する点では図21の態様と同様であるが、スタック36からの排気燃料の一部を燃料としてリサイクルさせる場合である。SOFCスタックからの排気燃料の一部をリサイクル導管43により分岐させて予備改質器31に供給する原燃料に混合して再利用する。リサイクルしない残余の排気燃料は、触媒燃焼層33で排気空気により燃焼させる。そして、生成燃焼ガスにより、第1熱交換器34で空気を予熱(加熱)する。生成燃焼ガスは予備改質器31で改質された燃料の加熱にも使用してよい。

断熱容器内でのSOFCスタック、予備改質器及び触媒燃焼一体型熱交換器の配置関係は、図19~22の態様とは限らず、例えば、(1)SOFCスタックを下部に配置し、その上に、順次、触媒燃焼一体型熱交換器及び予備改質器を配置する、(2)SOFCスタックを中央部に置き、その下に触媒燃焼一体型熱交換器を配置し、SOFCスタックの上に予備改質器を配置する、(3)SOFCスタックを中央部に置き、その下に予備改質器を配置し、SOFCスタックの上に触媒燃焼一体型熱交換器を配置する、など適宜の配置を採ることができる。また、触媒燃焼一体型熱交換器自体についても、第1熱交換器をSOFCスタックの側部に配置するなど適宜の配置とすることができる。

実施例

以下、実施例に基づき本発明をさらに詳しく説明するが、本発明がこれらに限定されないことはもちろんである。なお、実施例に関連する図において、各流体の配管には適宜弁等を配置し、また各必要箇所に常法に従い温度検出用センサを配置したが、関連図ではそれらの記載は省略している。

実施例1

図23は予備改質器の構成例を示す図で、縦断面図として示している。本予備改質器は、前記図5~図7の態様において、水を予備改質器内で加熱して水蒸気

とする場合の予備改質器に相当している。図 2 3 中、矢印は各流体の流通方向を示している。

図 2 3 のとおり、直径を順次大きくした円筒 4 4、4 5、4 6、4 7、4 8 が間隔を置いて多重に配置されている。内筒 4 4 内に熱交換器（水加熱器）が構成され、管状の熱交換管 4 9 がコイル状に配置されている。熱交換器を囲んだ円筒 4 4 と円筒 4 5 の間で改質触媒層 5 0 が構成され、改質触媒層 5 0 には予備改質用の改質触媒が充填されている。5 1 は水導入管であり、ここから導入された水は、熱交換管 4 9 中を通り、ここで加熱されて水蒸気となる。水蒸気はその導出管 5 2 から水蒸気流通用の孔 5 3、混合室（混合部）5 4 を経て改質触媒層 5 0 に導入される。5 5 は加熱用ガスの導入管である。加熱用ガスとしては、S O F C スタックからの排気空気、排気燃料、あるいは排気燃料を排気空気で燃焼した燃焼ガス（すなわち、排気燃料及び排気空気の燃焼ガス）が用いられる。加熱用ガスは、熱交換器内の熱交換管 4 9 の外周を流通して熱交換管 4 9 中を流れる水を間接的に加熱した後、上部で折り返して、円筒 4 6 と 4 7 の間の空間を下方に流通し、その排出管 5 6 から排出される。5 7 は原燃料の導入管である。導入管 5 7 から導入された原燃料は、図 2 3 中矢印で示すように、円筒 4 7 と 4 8 の間の空間を下方に流通して、その下部で折り返して、円筒 4 5 と 4 6 の間の空間を上方に流通し、混合室（混合部）5 4 で水蒸気と混合される。混合ガスは改質触媒層 5 0 に導入され、改質触媒層 5 0 中で原燃料が水蒸気により改質される。すなわち、原燃料中の C_2 以上の炭化水素が改質され、 C_1 炭化水素であるメタン、水素、一酸化炭素、二酸化炭素に変換され、これにより C_2 以上の炭化水素が除去された燃料（改質ガス）となる。改質ガスは排出管 5 8 から排出され、S O F C スタックの燃料極に導入される。各円筒の上部及び下部には、各流体の上下の流通経路に対応して蓋が密に配置され、流路を形成している。

以上の構造を有する予備改質器の構成部材をすべてステンレス鋼：S U S 3 1 0 S（J I S 規格）を用いて構成し、改質触媒層 5 0 に、改質触媒として N i / $A l_2O_3$ [アルミナに N i を担持したもの：球状（平均直径 ≈ 2 mm)] に対して L a を 5 m o l % 添加した触媒を用いた。N i と $A l_2O_3$ の比率は重量比で 5 0 : 5 0 である。

実施例 2

図 2 4、図 2 5 は燃焼触媒一体型熱交換器の構成例である。図 2 4 は縦断面、図 2 5 は、図 2 4 中 A-A 線断面図である。図 2 4 中、矢印は各流体の流通方向を示している。

図 2 4 のとおり、中央下部に第 1 熱交換器 5 9、中央上部に第 2 熱交換器 6 0 が配置されている。両熱交換器はチューブプレートとコルゲートフィンを交互に積み重ねたプレートフィン型の熱交換器である。両熱交換器において、S O F C スタックに導入する空気を間接熱交換により加熱する。第 2 熱交換器 6 0 の側部には混合部（混合室）6 1 が配置され、これに続きバッフル（多孔板）6 2 を介して触媒燃焼層 6 3 が配置されている。触媒燃焼層 6 3 は、第 1 熱交換器 5 9 の側部まで延ており、バッフル（多孔板）6 4 を介して第 1 熱交換器 5 9 に連通している。触媒燃焼層 6 3 には燃焼触媒が充填される。

6 5 は S O F C スタックからの排気燃料の導入管、6 6 は S O F C スタックからの排気空気の導入管、6 7 は排気空気の入口ヘッダ、6 8 は燃焼ガスの出口ヘッダ、6 9 は燃焼ガスの排出管である。7 0 は空気導入管、7 1 は空気の入口ヘッダ、7 2 は連通孔、7 3 は空気の出口ヘッダ、7 4 は空気導出管である。

7 5 は、第 1 熱交換器 5 9、燃焼触媒層 6 3 及び燃焼ガス出口ヘッダ 6 8 を構成する部材の保持部材であり、7 6 は、第 2 熱交換器 6 0、混合部 6 1、バッフル 6 2、燃焼触媒層 6 3 及び排気空気入口ヘッダ 6 7 を構成する部材の保持部材である。本燃焼触媒一体型熱交換器を組み立てるに際して、保持部材 7 5 及び 7 6 のそれぞれに、それら各構成部材を保持した後、両保持部材間にメタルガスケット 7 7 を介在させて一体化し固定する。図示は省略しているが、その固定はボルトあるいはボルトーナットにより締め付けることにより行う。その後、触媒充填用ポート 7 8 の開口から燃焼触媒を充填し、栓により開口を密にシールする。

S O F C スタックからの排気空気は、排気空気導入管 6 6 からヘッダ 6 7 を経て第 2 熱交換器 6 0 に導入され、ここで、第 1 熱交換器 5 9 で加熱（予熱）された空気を更に間接的に加熱した後、混合部 6 1 に導入される。ここでの熱交換により排気空気自体の温度は低下する。混合部 6 1 において、排気燃料導入管 6 5 からの排気燃料が、第 2 熱交換器 6 0 を経た排気空気と混合され、混合ガスはバッフル 6 2 を経て触媒燃焼層 6 3 に導入される。触媒燃焼層 6 3 において、排気燃料が排気空気により燃焼し、燃焼ガスはバッフル 6 4、第 1 熱交換器 5 9、燃

焼ガス出口ヘッダ68を経て、排出管69から排出される。排出された燃焼排ガスはSOFCシステムの予備改質器に送られ、その加熱源として用いられる。

空気は、空気導入管70、空気入口ヘッダ71を経て、第1熱交換器59のチューブプレートにチューブに導入され、ここで前記燃焼ガスにより間接的に加熱（予熱）された後、連通孔72を介して第2熱交換器60のチューブプレートにチューブに導入される。空気は、前記排気空気により更に間接的に加熱された後、空気出口ヘッダ73、空気導出管74から排出される。排出された空気はSOFCスタックの空気極に導入され、発電に供される。

以上の構造を有する触媒燃焼一体型熱交換器の構成部材をすべてステンレス鋼：SUS310Sを用いて構成し、触媒燃焼層63に、燃焼触媒としてPd/Al₂O₃触媒〔アルミナにPdを担持した触媒、Pd=0.5重量%、球状（平均直径≒2mm）〕を充填した。

本燃焼触媒一体型熱交換器を、SOFCスタックに導入する空気を加熱する熱交換器として適用するのに代えて、SOFCスタックに導入する燃料を加熱する熱交換器として適用する場合には、70～74は燃料用のものとなる。すなわち、70は燃料導入管、71は燃料入口ヘッダ、73は燃料出口ヘッダ、74は燃料導出管として構成される。ここで、燃料導入管70に導入する燃料は、原燃料を予備改質器で改質した燃料である。

また、本燃焼触媒一体型熱交換器をSOFCスタックに導入する空気及び燃料を加熱する熱交換器として構成する場合には、空気及び燃料を、それぞれ別個に、第1熱交換器59、第2熱交換器60に通して加熱する。この場合には、第1熱交換器59及び第2熱交換器60の各チューブプレートを空気用及び燃料用の2系統に構成し、①空気導入管、空気入口ヘッダ、空気出口ヘッダ及び空気導出管、②燃料導入管、燃料入口ヘッダ、燃料出口ヘッダ及び燃料導出管は、両系統に対応して構成される。

実施例3

試験用SOFCシステムとして、支持膜式SOFCスタック実機と、実施例1（図23）の予備改質器と、実施例2（図24、図25）の燃焼触媒一体型熱交換器を組み合わせ、前述図21のように断熱容器30内に収容した。断熱容器は断熱材29としてガラスウールを配した断熱容器である。図21のとおり、断

熱容器 30 内に、上部から下部へ順次、支持膜式 SOFC スタックの実機 36、
燃焼触媒一体型熱交換器 32、予備改質器 31 を組み合わせて配置した。

原燃料として脱硫済み都市ガスを用いた（このため、脱硫器 38 は配置して
ない）。原燃料をプロア 37 により導入管 57 から導入し、予備改質器 31 で改質
した燃料を、排出管 58 から、導管によりスタック 36 の周囲 42 のスペースに
流通させて加熱し、SOFC スタックの燃料極に導入するようにした。このため、
スタックの外壁と断熱容器の内壁をステンレス鋼：SUS310S で構成し、そ
の間のスペースに該燃料を流通させた。空気をプロア 40 により空気導入管 70
から導入して燃焼触媒一体型熱交換器で加熱し、空気導出管 74 から、導管によ
り SOFC スタックの空気極に導入するようにした。水は、純水タンク 39 から、
水導入管 51 へ供給した。

こうして構成した SOFC システムを用いて試験を実施した。予備改質器 31
における試験条件は、原燃料＝都市ガス 13A（脱硫済み）、燃料利用率＝80%、
酸化剤＝空気、酸化剤利用率＝30%、S/C 比＝2.0、空間速度（水蒸気込
み）＝3000 h⁻¹ とした。予備改質器 31 に導入した各ガスの成分、組成及び
流量（NLM＝Normal Liter per Minute、以下同じ）は表 1 のとおりである。図
23 中、本予備改質器の各箇所計測された温度を併記している。

表 1

ガス成分	SOFC排ガス NLM	都市ガス NLM	都市ガス組成 (%)
CH ₄	0	12.6	88.53
C ₂ H ₆	0	0.653	4.59
C ₃ H ₈	0	0.767	5.39
C ₄ H ₁₀	0	0.213	1.50
H ₂ O	65.3	0	0
CO	0	0	0
CO ₂	17.02	0	0
H ₂	0	0	0
O ₂	54.4	0	0
N ₂	327.6	0	0

また、本触媒燃焼一体型熱交換器における試験条件は以下のとおりである。触媒燃焼層での空間速度（水蒸気込み）＝ 30000 h^{-1} 。試験条件のうち、関係ガスの組成、流量、温度等の条件は表2のとおりである。表2中、①～③のガスは、それぞれ図24に示す①～③の箇所のガスに対応し、また図24中、本触媒燃焼一体型熱交換器の各箇所で計測された温度を併記している。

表2

ガス成分 及び温度	導入空気① NLM	排気空気② NLM	排気燃料③ NLM	排気燃料③ (%)
CH ₄	0	0	0	0
C ₂ H ₆	0	0	0	0
C ₃ H ₈	0	0	0	0
C ₄ H ₁₀	0	0	0	0
H ₂ O (gas)	0	0	32.70	54.0
CO	0	0	2.268	3.8
CO ₂	0	0	14.76	24.4
H ₂	0	0	10.79	17.8
O ₂	87.1	60.95	0	0
N ₂	327.6	327.6	0	0
温度	室温	750℃	750℃	750℃

本試験における予備改質器についての結果

図26は、本試験における予備改質器についての結果を示す図である。横軸は時間、左縦軸はガス濃度、右縦軸は予備改質器からの改質ガス出口（改質触媒層出口部）における温度である。予備改質器の出口の改質ガスの温度は試験開始当初から395℃であり、200時間超経過してもほぼ一定で変化していない。

CH₄の濃度については、試験開始時以降、測定時ごとに多少の上下変動があるだけで、ほぼ53%の水準を維持している。H₂の濃度についても、試験開始時以降、測定時ごとに多少の上下変動があるだけで、ほぼ30%の水準を維持している。CO₂の濃度は、試験開始当初から14.6%で220時間超経過しても変わらず、CO成分、C₂～C₄成分は、試験開始当初から殆ど含まれていない。

試験後の改質触媒層中の触媒について炭素（C）分析を行った。その結果、炭

素（C）は検出されなかった。また、生成改質ガスを700℃に昇温してSOFCスタックに供給したが、配管や燃料極に炭素（C）の析出はなかった。このように、本発明によれば、エタン以上の炭化水素、すなわちC₂以上の炭化水素がきわめて有効に除去され、これら炭化水素による炭素析出、すなわちスタックへ導入する以前の配管やSOFCの燃料極での炭素析出を無くすることができる。

本試験における触媒燃焼一体型熱交換器についての結果

触媒燃焼一体型熱交換器においては、SOFCスタック（図21中36）からの排気空気を、第2熱交換器（図21中35、図24中60）でSOFCスタックに導入する空気と熱交換して温度を下げ、混合部（図24中61）で排気燃料と混合して燃焼触媒層（図21中33、図24中63）で燃焼させた。この燃焼により最高820℃まで温度が上昇した。この最高温度は、触媒燃焼層と第1熱交換器の間のバッフル部（図24中64）で観察された。こうして、構成機器の最高到達温度を820℃に抑えることができた。室温で供給した空気は703℃まで加温された。本試験を連続して220時間続けたが、これらの温度に実質上変化はなかった。

実施例4

実施例3で用いた触媒燃焼一体型熱交換器に、SOFCスタックに導入する空気に代えて、SOFCスタックに導入する燃料を導入した以外は、実施例3と同様にして試験した。その結果、予備改質器及び触媒燃焼一体型熱交換器ともに実施例3と同様の効果が得られた。

実施例5

試験用SOFCシステムとして、実施例3で用いた図23の予備改質器（すなわち実施例1の予備改質器）に代えて、図27に示す予備改質器を用い、これをSOFCスタック実機、触媒燃焼一体型熱交換器と共に、前述図22のように組み込んだ。

図27のとおり、本予備改質器は、円筒形容器79中に改質触媒を充填してなり、原燃料導入管80の途中にSOFCスタックからの排気燃料をリサイクルさせる導管81が連結されている。円筒形容器79はステンレス鋼：SUS310Sを用いて構成し、これに改質触媒として実施例1と同じ改質触媒を充填した。

原燃料は、SOFCスタックのリサイクル導管81により排気燃料を混合した

後、円筒形容器 7 9 に導入され、リサイクル排気燃料中の水蒸気により改質される。本予備改質器において、排気燃料の 60% をリサイクルさせて（すなわち、燃料リサイクル率 = 60%）、原燃料に混入し、SOFC スタックの燃料として再利用するように構成した。原燃料として脱硫済み都市ガス（室温）を用いた。改質ガスは、排出管 8 2 から排出され、スタックの周り 4 2 のスペースに流通させて更に加熱し、SOFC スタック 3 6 の燃料極に導入するようにした。

触媒燃焼一体型熱交換器においては、スタック 3 6 からの排気燃料のうち、残余の 40% を排気空気で燃焼させ、その燃焼ガスを第 1 熱交換器 3 4 の熱源として用いた。これら以外は実施例 3 と同様にして実施した。各ガスの成分、組成及び流量を表 3 に示している。リサイクル排気燃料（= 循環ガス）の流量以外は表 1、表 2 と同じである。

表 3

ガス成分	SOFC排ガス NLM	都市ガス NLM	都市ガス組成 (%)	再循環ガス NLM
CH ₄	0	12.6	88.53	0
C ₂ H ₆	0	0.653	4.59	0
C ₃ H ₈	0	0.767	5.39	0
C ₄ H ₁₀	0	0.213	1.50	0
H ₂ O	65.3	0	0	32.7
CO	0	0	0	2.268
CO ₂	17.02	0	0	14.76
H ₂	0	0	0	10.79
O ₂	54.4	0	0	0
N ₂	327.6	0	0	0

図 2 8 は本試験における予備改質器について結果を示す図である。図 2 8 中、横軸、左縦軸、右縦軸は図 2 6 の場合と同じである。図 2 8 のとおり、燃焼ガス、すなわち SOFC スタックからの排気燃料のうち残余の 40% を排気空気で燃焼させて生成した燃焼ガスの温度は 530℃ であり、240 時間超経過してもほぼ一定で変化していない。

CH₄ の濃度については、試験開始以降、多少の上下変動があるだけで、ほぼ 2

7%の水準を維持している。H₂の濃度についても、試験開始以降、測定時ごとに多少の上下変動があるだけで、ほぼ52%の水準を維持している。CO₂の濃度は試験開始当初から19%程度で240時間超経過しても変わらず、さらに、COの濃度については、試験当初から5%程度で、240時間超経過しても殆ど変化はない。特に、C₂H₆、C₃H₈、n-C₄H₁₀、i-C₄H₁₀等のC₂以上の成分については、試験開始時以降検出されなかった。このように、本発明によれば、エタン以上、すなわちC₂以上の炭化水素がきわめて有効に除去され、これら炭化水素による炭素析出、すなわちスタックへ導入する以前の配管やSOFCの燃料極での炭素析出を無くすることができた。

本試験における触媒燃焼一体型熱交換器における結果については、この試験でも実施例3と同様の結果が得られた。こうして、各機器の最高温度を820℃に抑えることができた。本試験を連続して240時間余続けたが、これらの温度に実質上変化はなかった。

発明の効果

本発明のSOFCシステムによれば、断熱容器内にSOFCスタック、予備改質器及び触媒燃焼一体型熱交換器を併せて配置することにより、予備改質器及び触媒燃焼一体型熱交換器の利点を合わせて有し、且つ、SOFCシステムとして熱損失を無くすか、可及的に無くすることができる。

また、本発明の予備改質器によれば、SOFCスタックに導入する燃料からC₂以上の炭化水素がきわめて有効に除去され、スタックの燃料極へ導入するまでの配管やスタックの燃料極における炭素析出を無くすることができる。

加えて、本発明の触媒燃焼一体型熱交換器によれば、SOFCスタックに導入する空気及び／又は燃料の最高到達温度を抑えて加熱できることから、運転温度が850℃程度以下であるSOFC、特に支持膜式SOFCにおける熱交換器として非常に有用であり、またシステム構成機器の構成材料として安価な材料の使用を可能とし、且つ、システム全体として小型化を図ることができるなど、SOFCシステムの実機を構成するに際して非常に有用である。

請求の範囲

1. 断熱容器内に、(a)固体酸化物形燃料電池スタックと、(b)炭化水素系燃料から C_2 以上の炭化水素をメタン、水素及び一酸化炭素に変えることで除去するための予備改質器と、(c)該燃料電池スタックに導入する空気及び／又は燃料を該燃料電池スタックからの排気燃料を排気空気で燃焼した燃焼ガスにより加熱する触媒燃焼一体型熱交換器と、を配置してなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池システム。
2. 前記予備改質器が、改質触媒を充填した水蒸気改質法による予備改質器であり、且つ、その加熱源として前記燃料電池スタックからの排気空気及び／又は排気燃料を利用するようにしてなる予備改質器であることを特徴とする請求項1に記載の固体酸化物形燃料電池システム。
3. 前記予備改質器が、改質触媒を充填した水蒸気改質法による予備改質器であり、且つ、その加熱源として前記燃料電池スタックからの排気燃料を排気空気中で燃焼させた燃焼ガスを利用するようにしてなる予備改質器であることを特徴とする請求項1に記載の固体酸化物形燃料電池システム。
4. 前記予備改質器が、改質触媒を充填した水蒸気改質法による予備改質器であり、且つ、水を予め加熱して水蒸気にするとともに、炭化水素系燃料を予め加熱して予熱し、両者の混合ガスを予備改質器に導入することにより炭化水素系燃料から C_2 以上の炭化水素を除去するようにしてなる予備改質器であることを特徴とする請求項1に記載の固体酸化物形燃料電池システム。
5. 前記予備改質器が、改質触媒を充填した水蒸気改質法による予備改質器であり、且つ、前記燃料電池スタックからの排気燃料の一部をリサイクルして炭化水素系燃料に混合して反応させることにより該炭化水素系燃料から C_2 以上の炭化水素を除去するようにしてなる予備改質器であることを特徴とする請求項1に記載の固体酸化物形燃料電池システム。
6. 前記予備改質器が、改質触媒を充填した水蒸気改質法による予備改質器であり、且つ、加熱源を用いることなく、改質反応による熱を利用して炭化水素系燃料から C_2 以上の炭化水素を除去するようにしてなる予備改質器であることを特徴とする請求項1に記載の固体酸化物形燃料電池システム。

7. 前記予備改質器が、酸化触媒を充填した部分燃焼改質法による予備改質器であり、炭化水素系燃料を空気で部分燃焼させることにより C_2 以上の炭化水素を除去するようにしてなる予備改質器であることを特徴とする請求項1に記載の固体酸化物形燃料電池システム。
8. 前記予備改質器が、酸化触媒を充填した部分燃焼改質法による予備改質器であり、炭化水素系燃料を空気で部分燃焼させることにより C_2 以上の炭化水素を除去するようにし、且つ、加熱源として前記燃料電池スタックからの排気燃料及び／又は排気燃料を利用して該予備改質器を補助的に加熱するようにしなることを特徴とする請求項1に記載の固体酸化物形燃料電池システム。
9. 前記予備改質器が、酸化触媒を充填した部分燃焼改質法による予備改質器であり、炭化水素系燃料を空気で部分燃焼させることにより C_2 以上の炭化水素を除去するようにし、且つ、加熱源として前記燃料電池スタックからの排気燃料を排気空気で燃焼させた燃焼ガスを利用するようにしてなることを特徴とする請求項1に記載の固体酸化物形燃料電池システム。
10. 前記触媒燃焼一体型熱交換器が、燃料電池スタックからの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とからなり、燃料電池に導入する空気を、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第1熱交換器で予熱した後、燃料電池スタックからの排気空気及び／又は排気燃料により第2熱交換器で加熱して燃料電池に供給するようにしてなる触媒燃焼一体型熱交換器であることを特徴とする請求項1に記載の固体酸化物形燃料電池システム。
11. 請求項10に記載の固体酸化物形燃料電池システムにおいて、燃料電池に導入する炭化水素系燃料を、燃料電池スタックの周囲で加熱した後、燃料電池に導入するようにしてなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池システム。
12. 前記触媒燃焼一体型熱交換器が、燃料電池スタックからの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とからなり、燃料電池に導入する燃料を、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第1熱交換器で予熱した後、燃料電池スタックからの排気空気及び／又は排気燃料により第2熱交換器で加熱して燃料電池スタックに供給するようにしてなる触媒燃焼一体型熱交換器であることを特徴

とする請求項1に記載の固体酸化物形燃料電池システム。

- 1 3. 請求項1 2に記載の固体酸化物形燃料電池システムにおいて、燃料電池に導入する空気を、燃料電池スタックの周囲で加熱した後、燃料電池に導入するようにしてなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池システム。
- 1 4. 前記触媒燃焼一体型熱交換器が、燃料電池スタックからの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とからなり、燃料電池スタックに導入する空気及び燃料を、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第1熱交換器で予熱した後、燃料電池スタックからの排気空気及び／又は排気燃料により第2熱交換器で加熱して燃料電池に供給するようにしてなる触媒燃焼一体型熱交換器であることを特徴とする請求項1に記載の固体酸化物形燃料電池システム。
- 1 5. 前記触媒燃焼一体型熱交換器が、燃料電池スタックからの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とからなり、燃料電池に導入する空気を、燃料電池スタックからの排気空気及び／又は排気燃料により第2熱交換器で予熱した後、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第1熱交換器で加熱して燃料電池に供給するようにしてなる触媒燃焼一体型熱交換器であることを特徴とする請求項1に記載の固体酸化物形燃料電池システム。
- 1 6. 前記触媒燃焼一体型熱交換器が、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、燃料電池スタックからの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、第2熱交換器とからなり、燃料電池スタックに導入する燃料を、燃料電池スタックからの排気空気及び／又は排気燃料により第2熱交換器で予熱した後、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第1熱交換器で加熱して燃料電池に供給するようにしてなる触媒燃焼一体型熱交換器であることを特徴とする請求項1に記載の固体酸化物形燃料電池システム。
- 1 7. 前記触媒燃焼一体型熱交換器が、燃料電池スタックからの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とからなり、燃料電池スタックに導入する空気及び燃料を、燃料電池スタックからの排気空気及び／又は排気燃料により第2熱交換器で予熱した後、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第1熱交換器で

加熱して燃料電池に供給するようになつてなる触媒燃焼一体型熱交換器であることを特徴とする請求項 1 に記載の固体酸化物形燃料電池システム。

18. 前記燃料が都市ガス、LPガス、天然ガス、LPガス、ガソリン又はアルコール類である請求項 1 に記載の固体電解質形燃料電池システム。
19. 前記固体酸化物形燃料電池システムにおける固体酸化物形燃料電池が支持膜式の固体酸化物形燃料電池である請求項 1 に記載の固体酸化物形燃料電池システム。
20. 固体酸化物形燃料電池の近傍に配置する触媒燃焼一体型熱交換器であつて、該熱交換器が、燃料電池からの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第 1 熱交換器と、第 2 熱交換器とからなり、燃料電池に導入する空気を、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第 1 熱交換器で予熱した後、燃料電池からの排気空気及び／又は排気燃料により第 2 熱交換器で加熱して燃料電池に供給するようになつてなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池用触媒燃焼一体型熱交換器。
21. 固体酸化物形燃料電池の近傍に配置する触媒燃焼一体型熱交換器であつて、該熱交換器が、燃料電池からの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第 1 熱交換器と、第 2 熱交換器とからなり、燃料電池に導入する燃料を、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第 1 熱交換器で予熱した後、燃料電池からの排気空気及び／又は排気燃料により第 2 熱交換器で加熱して燃料電池に供給するようになつてなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池用触媒燃焼一体型熱交換器。
22. 固体酸化物形燃料電池の近傍に配置する触媒燃焼一体型熱交換器であつて、該熱交換器が、燃料電池からの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第 1 熱交換器と、第 2 熱交換器とからなり、燃料電池に導入する空気及び燃料を、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第 1 熱交換器で予熱した後、燃料電池からの排気空気及び／又は排気燃料により第 2 熱交換器で加熱して燃料電池に供給するようになつてなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池用触媒燃焼一体型熱交換器。
23. 固体酸化物形燃料電池の近傍に配置する触媒燃焼一体型熱交換器であつて、該熱交換器が、燃料電池からの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、

触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とからなり、燃料電池に導入する空気を、燃料電池からの排気空気及び／又は排気燃料により第2熱交換器で予熱した後、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第1熱交換器で加熱して燃料電池に供給するようにしてなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池用触媒燃焼一体型熱交換器。

24. 固体酸化物形燃料電池の近傍に配置する触媒燃焼一体型熱交換器であって、該熱交換器が、燃料電池からの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とからなり、燃料電池に導入する燃料を、燃料電池からの排気空気及び／又は排気燃料により第2熱交換器で予熱した後、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第1熱交換器で加熱して燃料電池に供給するようにしてなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池用触媒燃焼一体型熱交換器。

25. 固体酸化物形燃料電池の近傍に配置する触媒燃焼一体型熱交換器であって、該熱交換器が、燃料電池からの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とからなり、燃料電池に導入する空気及び燃料を、燃料電池からの排気空気及び／又は排気燃料により第2熱交換器で予熱した後、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスにより第1熱交換器で加熱して燃料電池に供給するようにしてなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池用触媒燃焼一体型熱交換器。

26. 前記固体酸化物形燃料電池が支持膜式の固体酸化物形燃料電池である請求項20～25のいずれか1項に記載の固体酸化物形燃料電池用触媒燃焼一体型熱交換器。

図 1

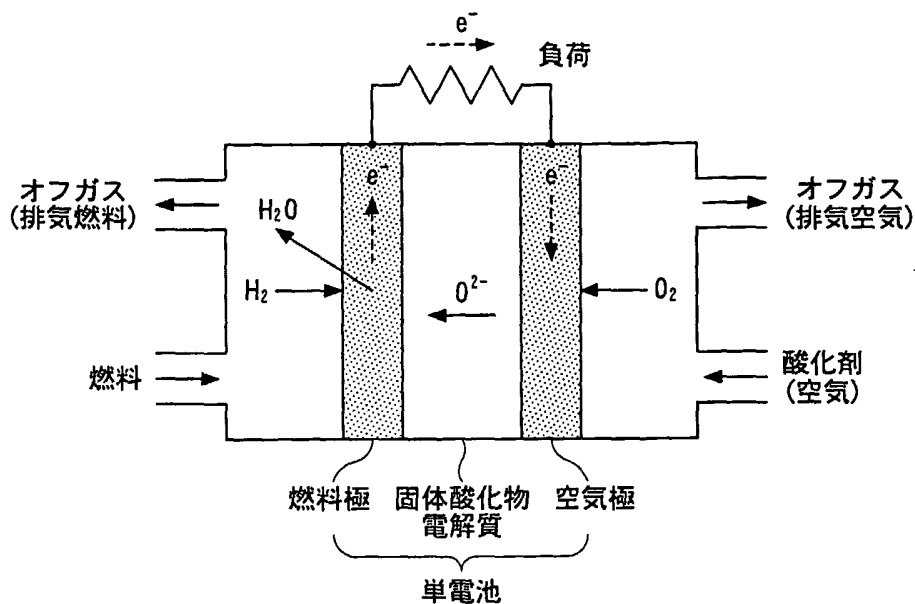


図 2

自立膜式 SOFC

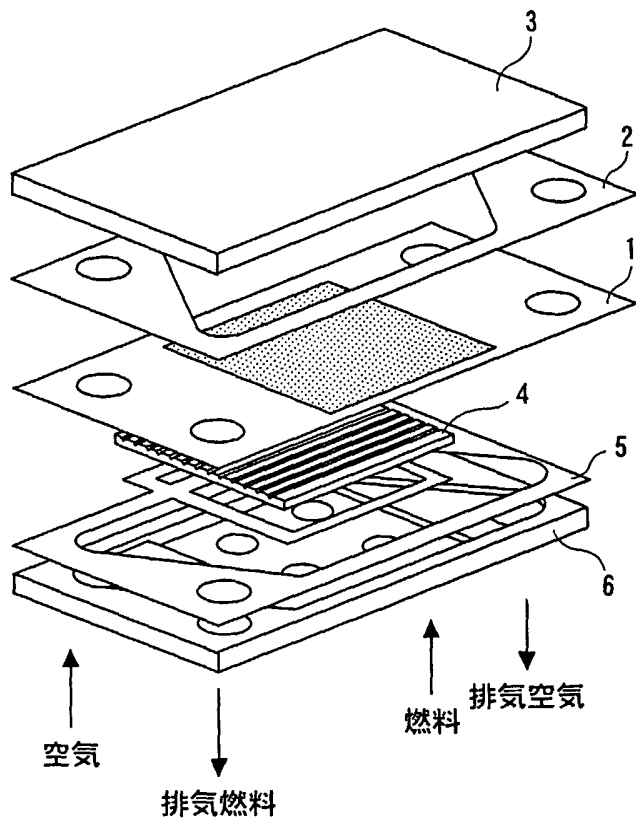


図 3

支持膜式 SOFC

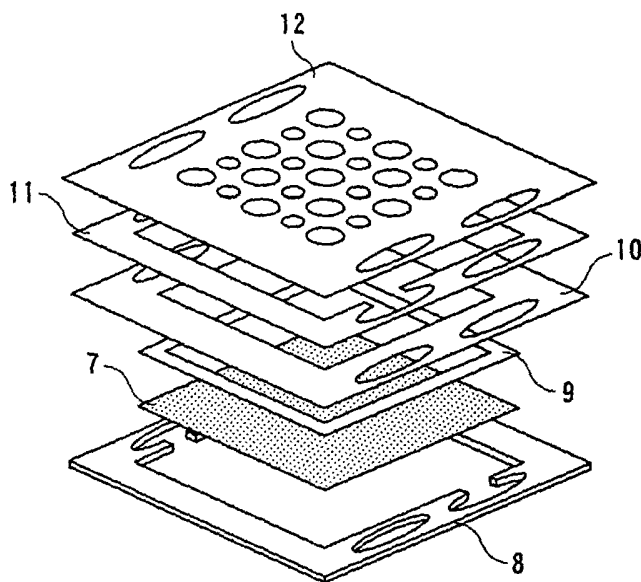


図 4

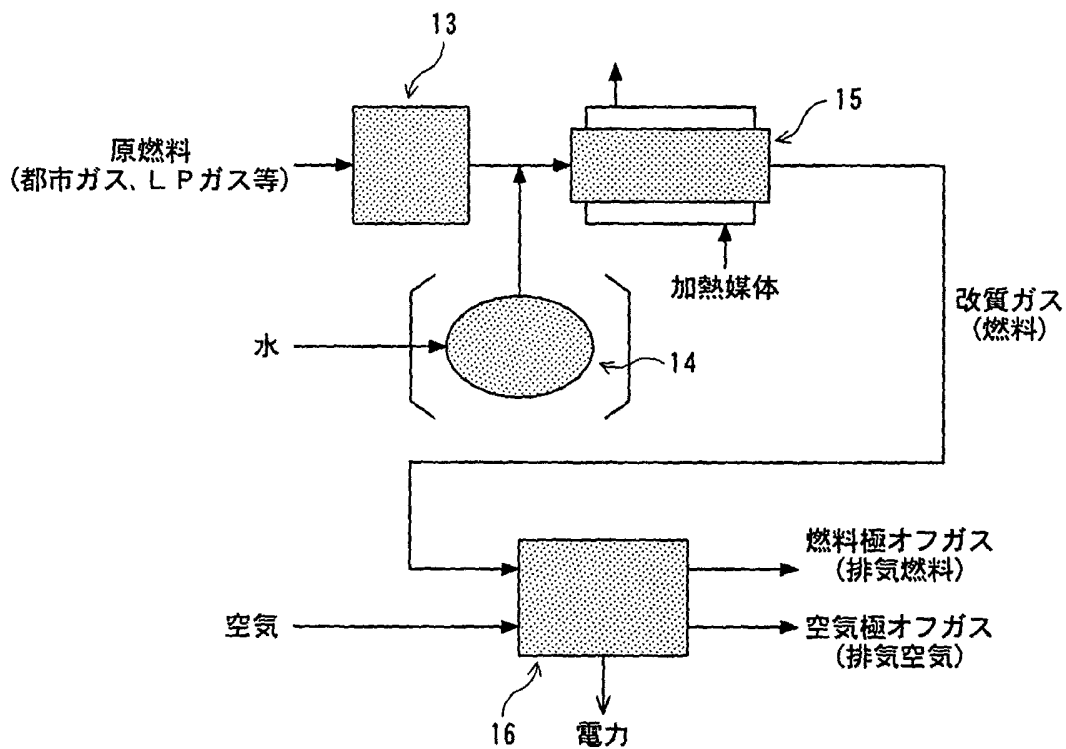


図 5

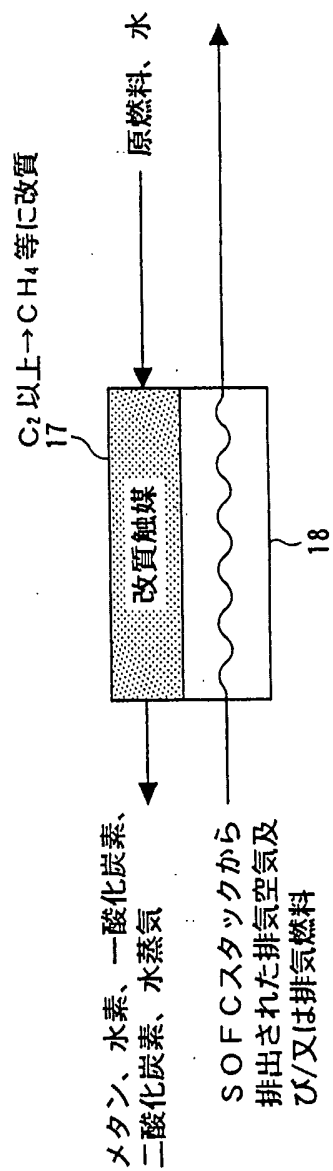


図6

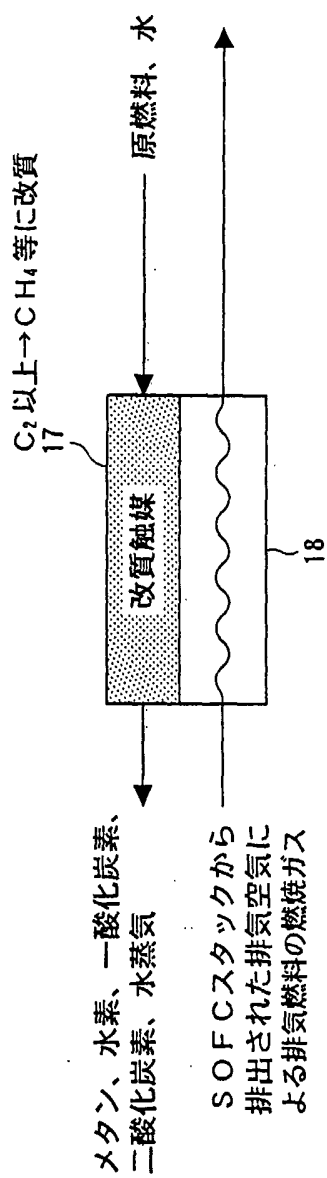


図7

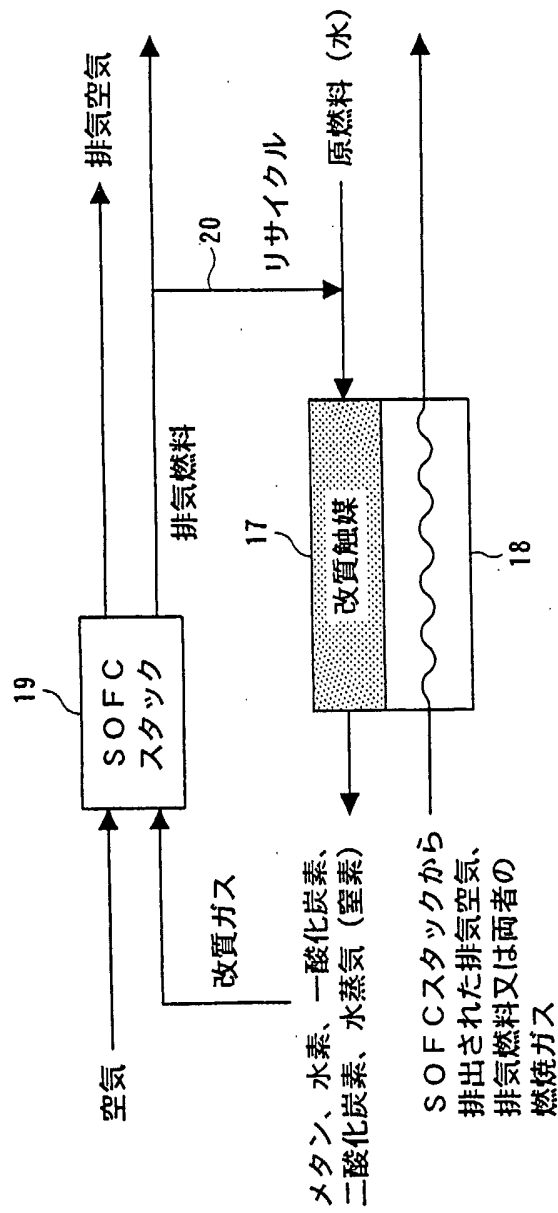


図 8

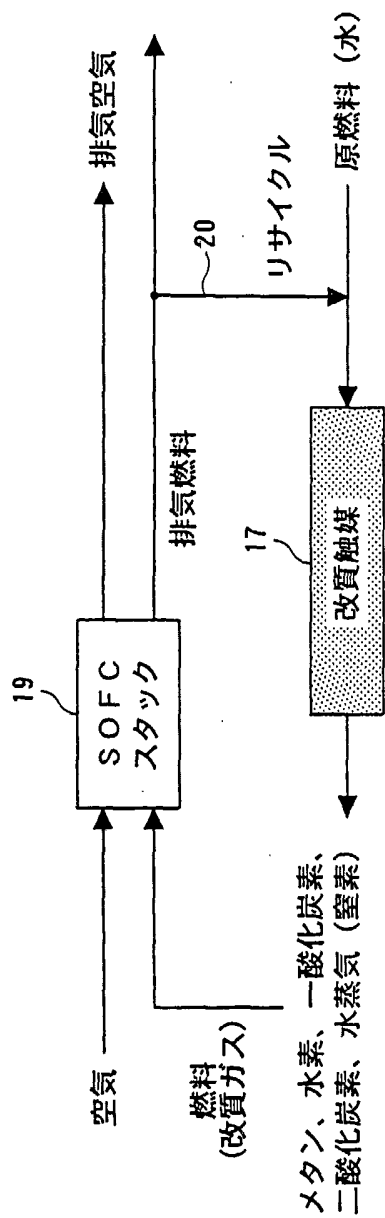


図9 (a)

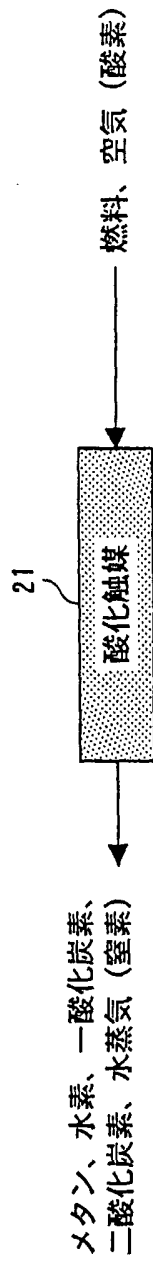


図9 (b)

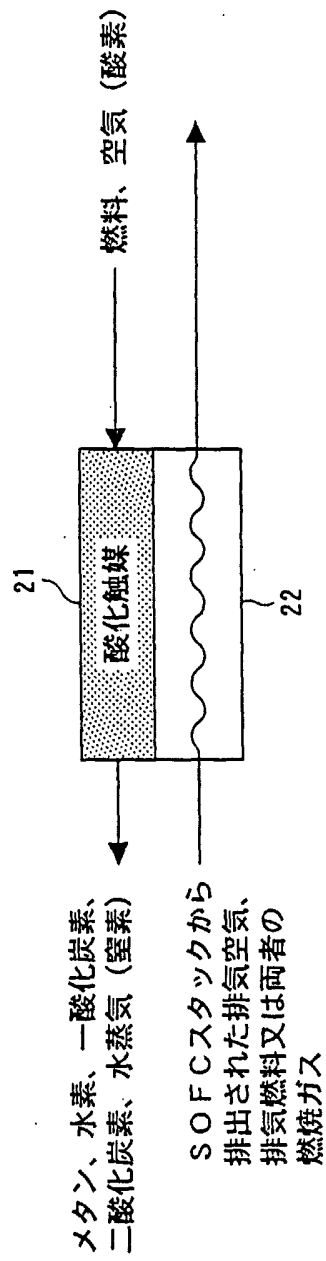


図10

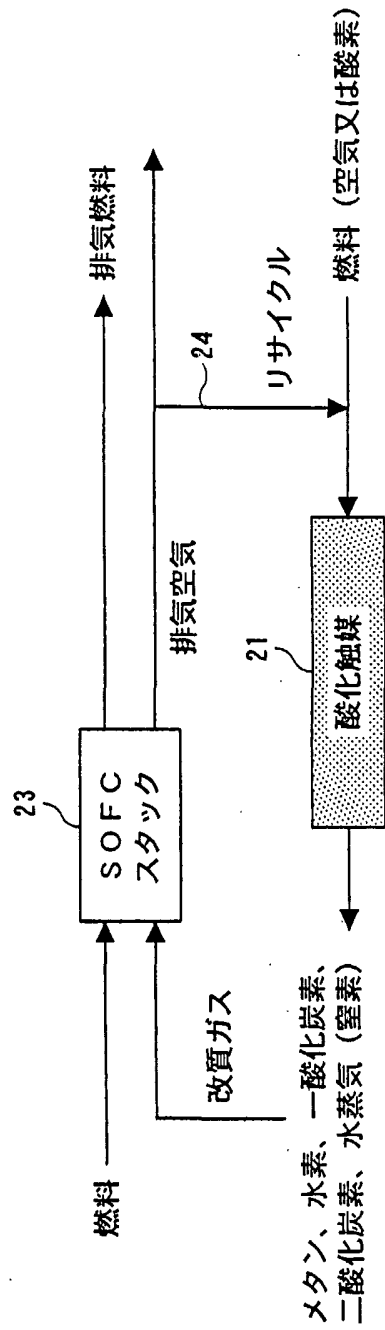


図11

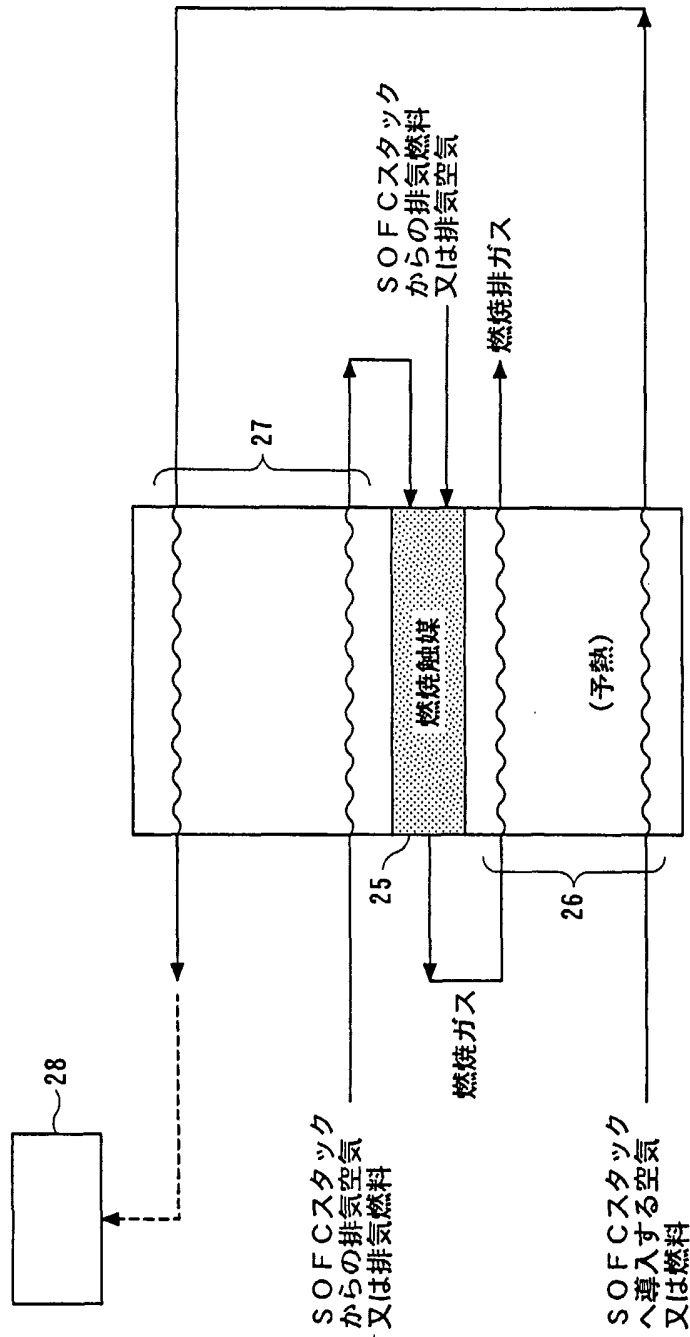


図12

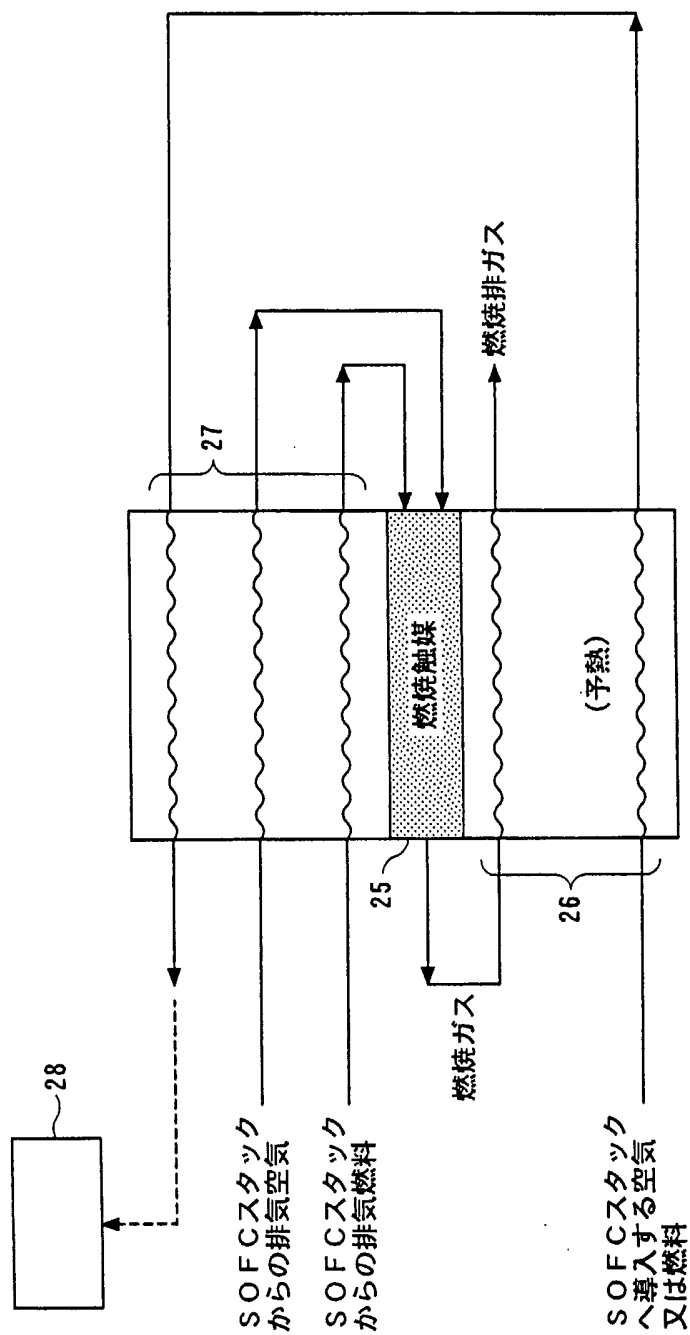


図13

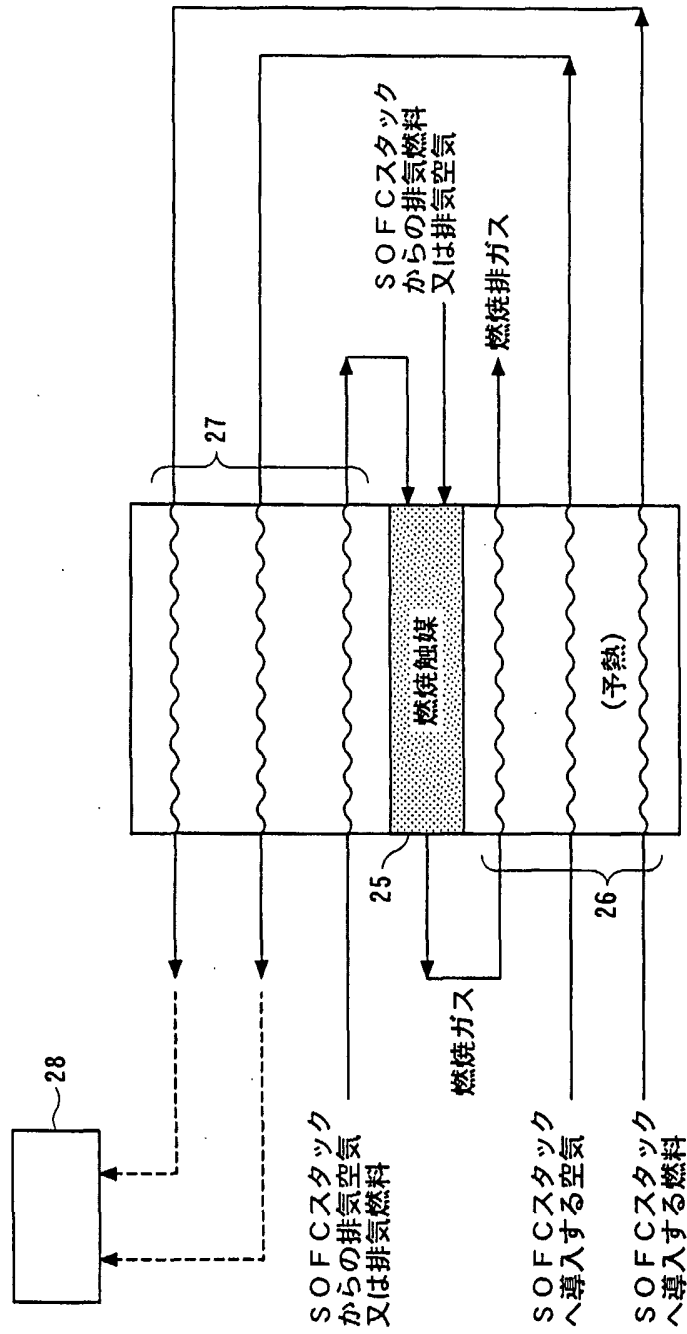


図14

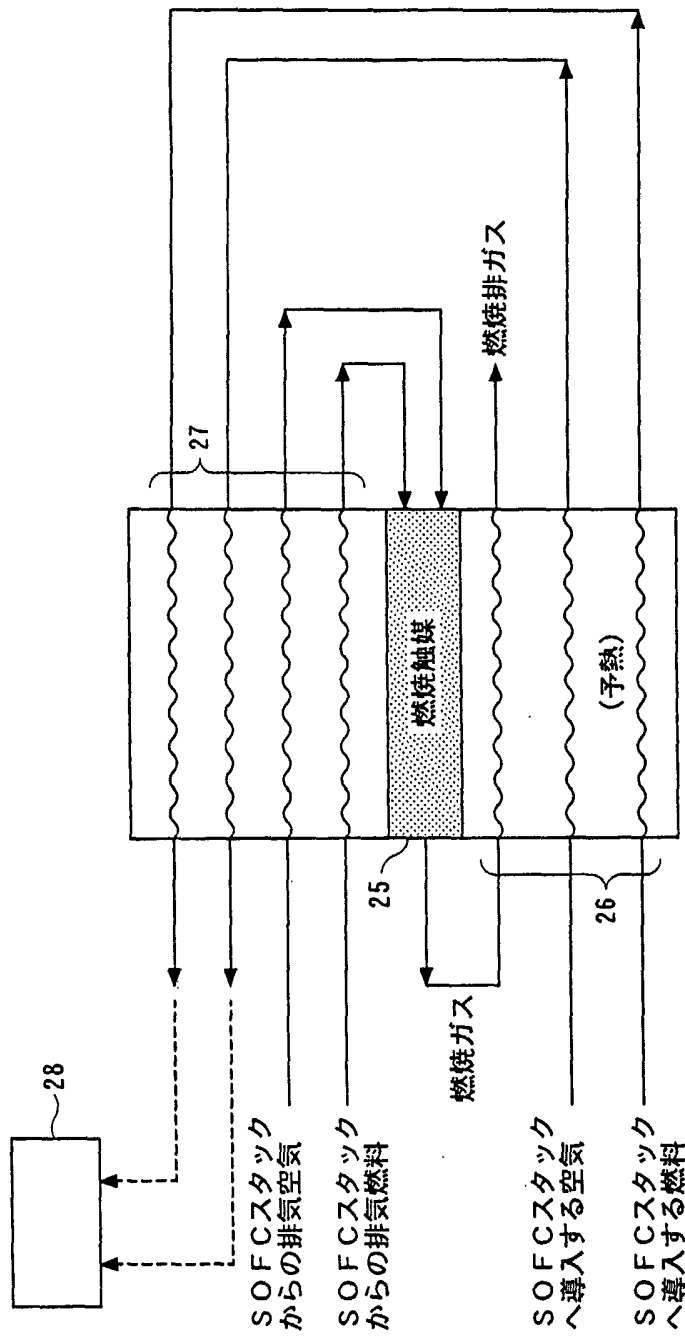


図15

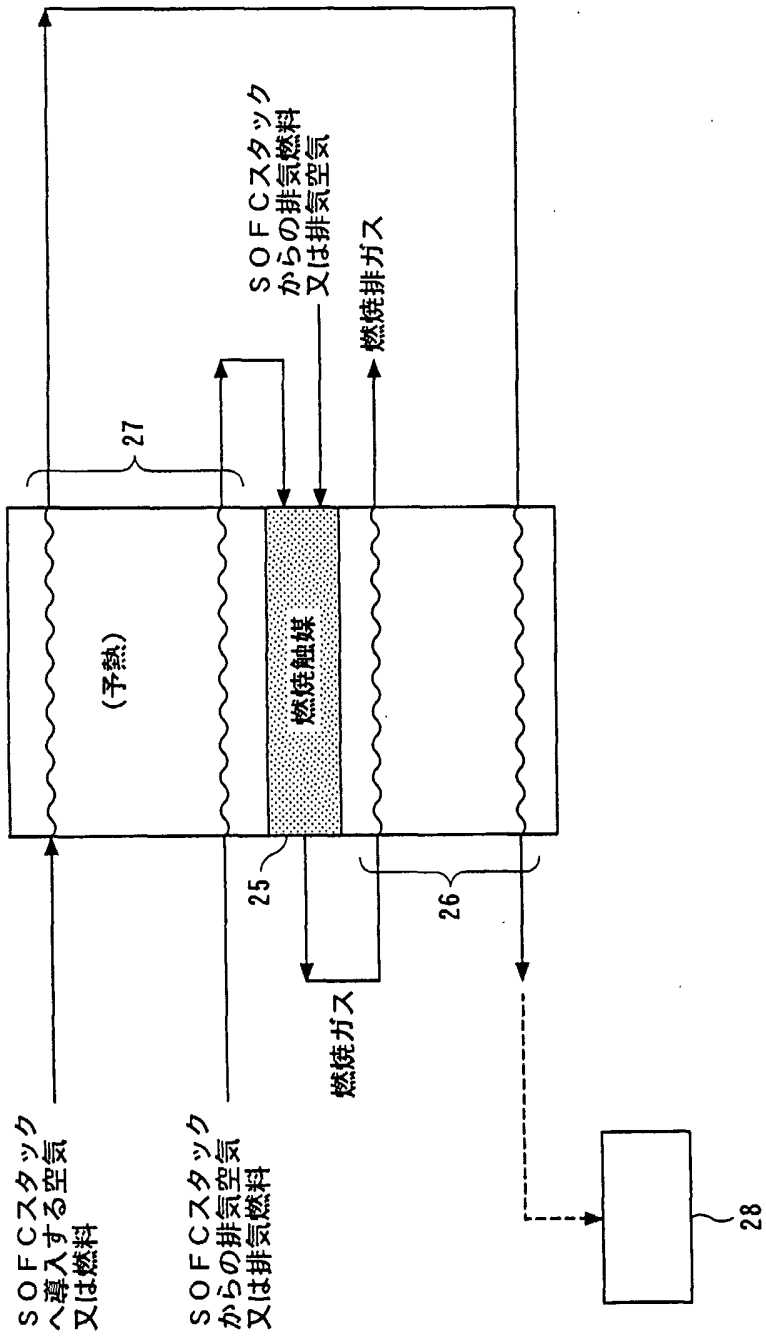


図16

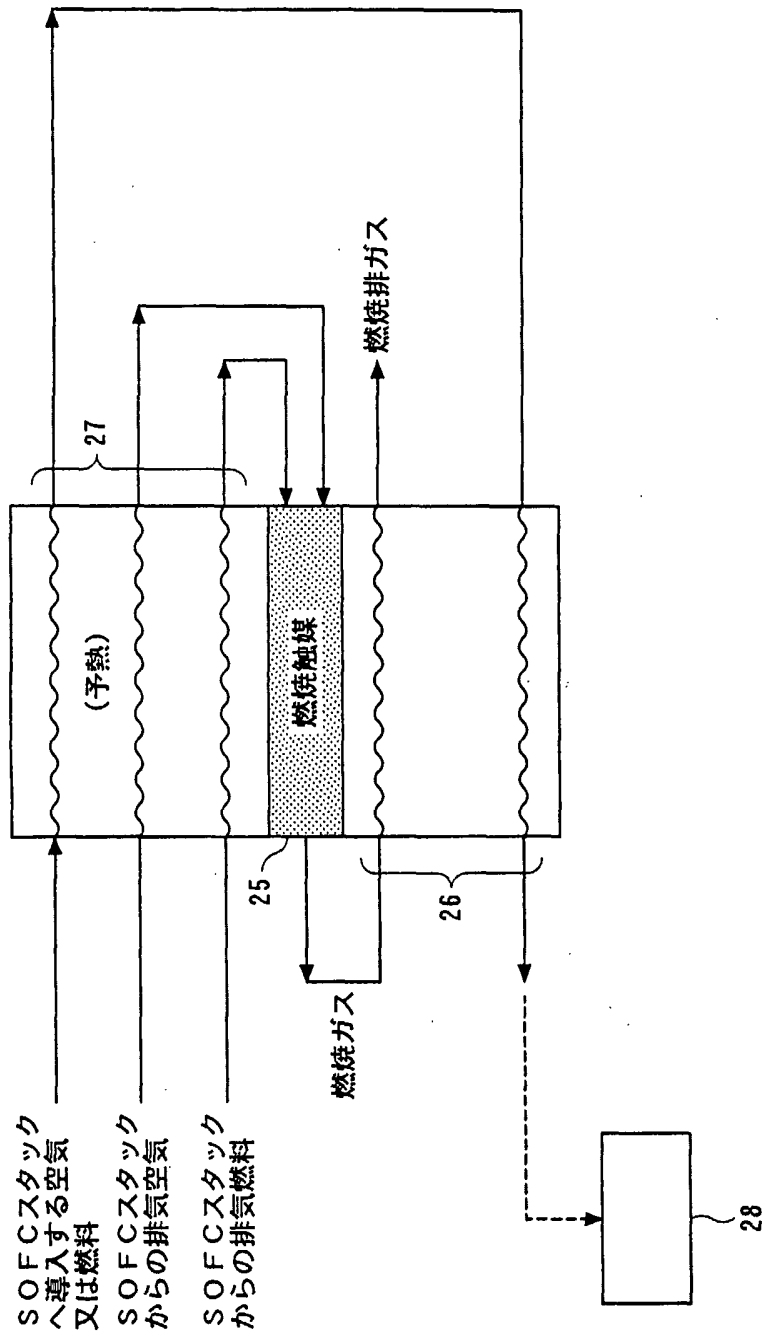


図17

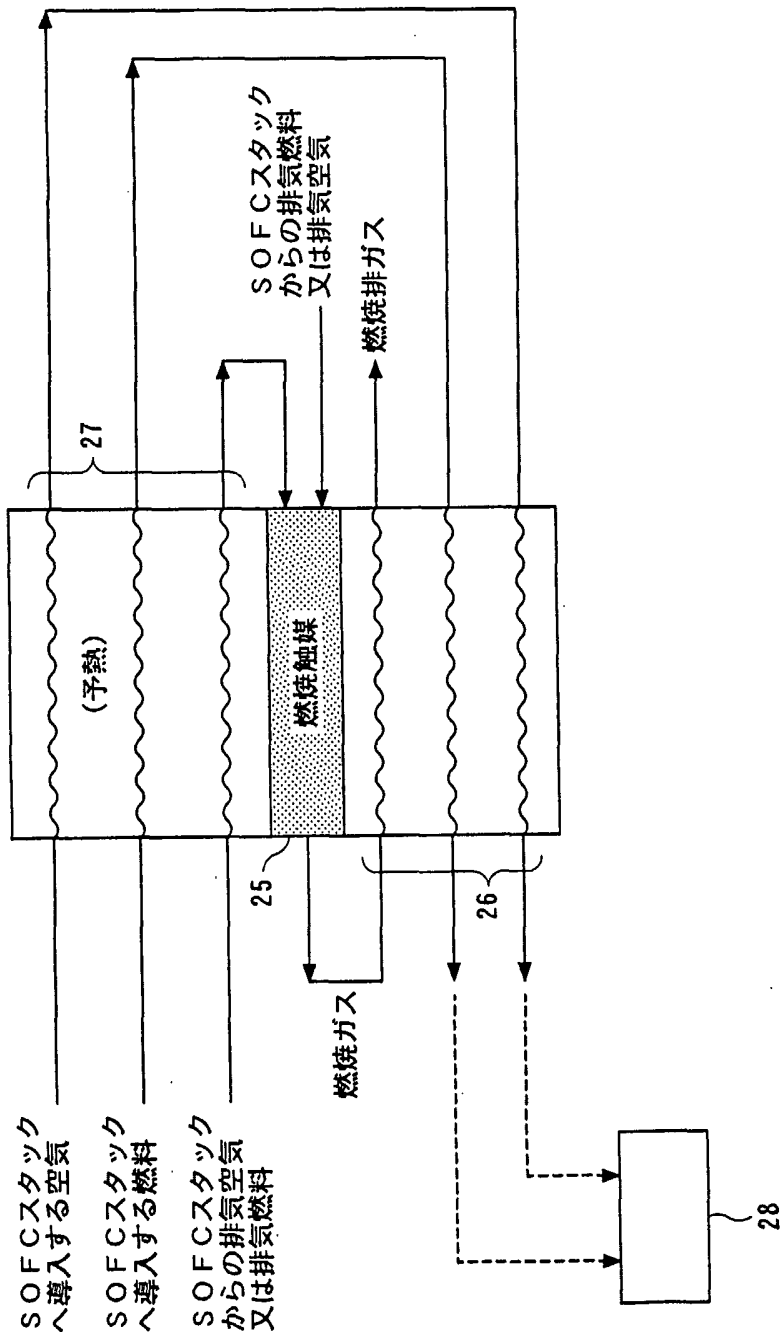


図18

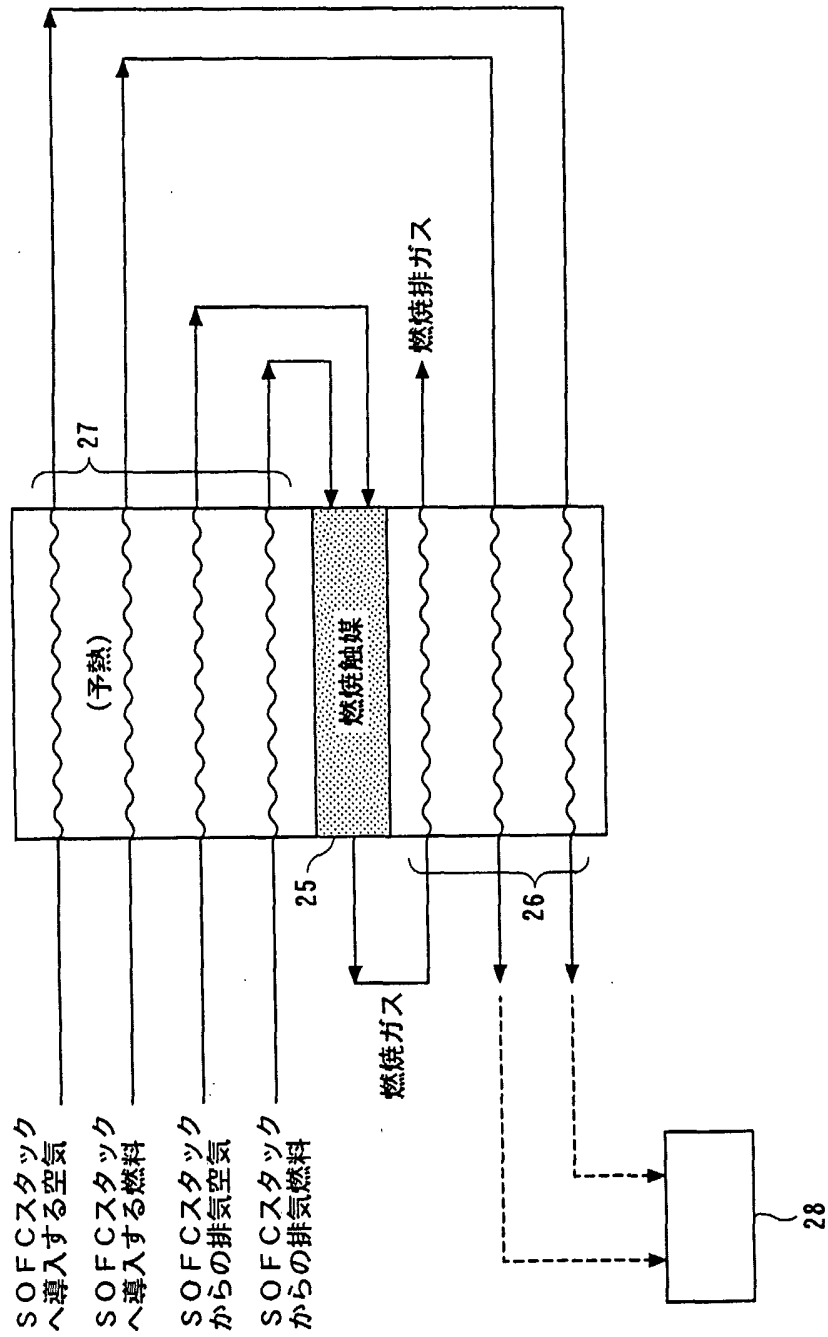


図 19

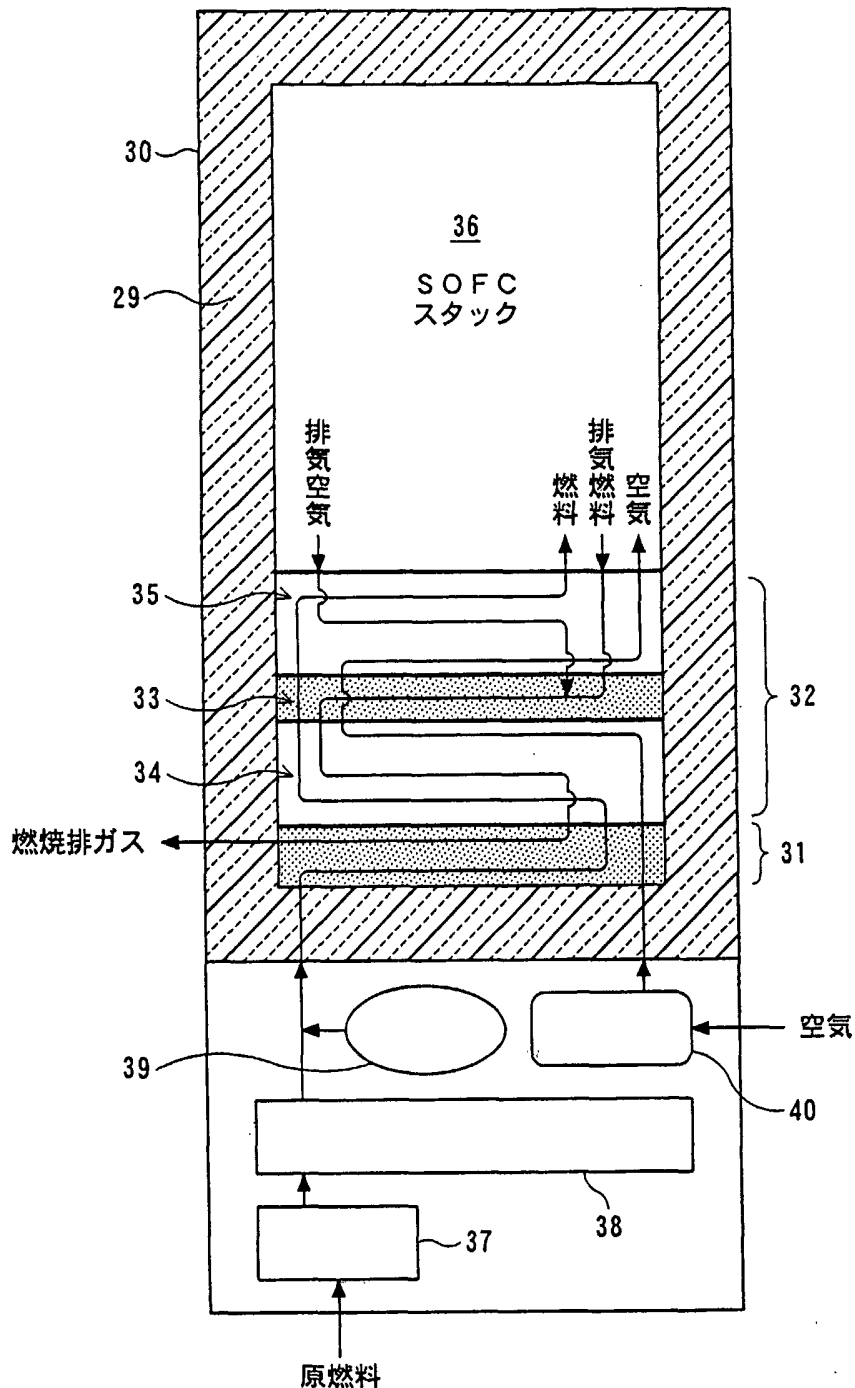


図 21

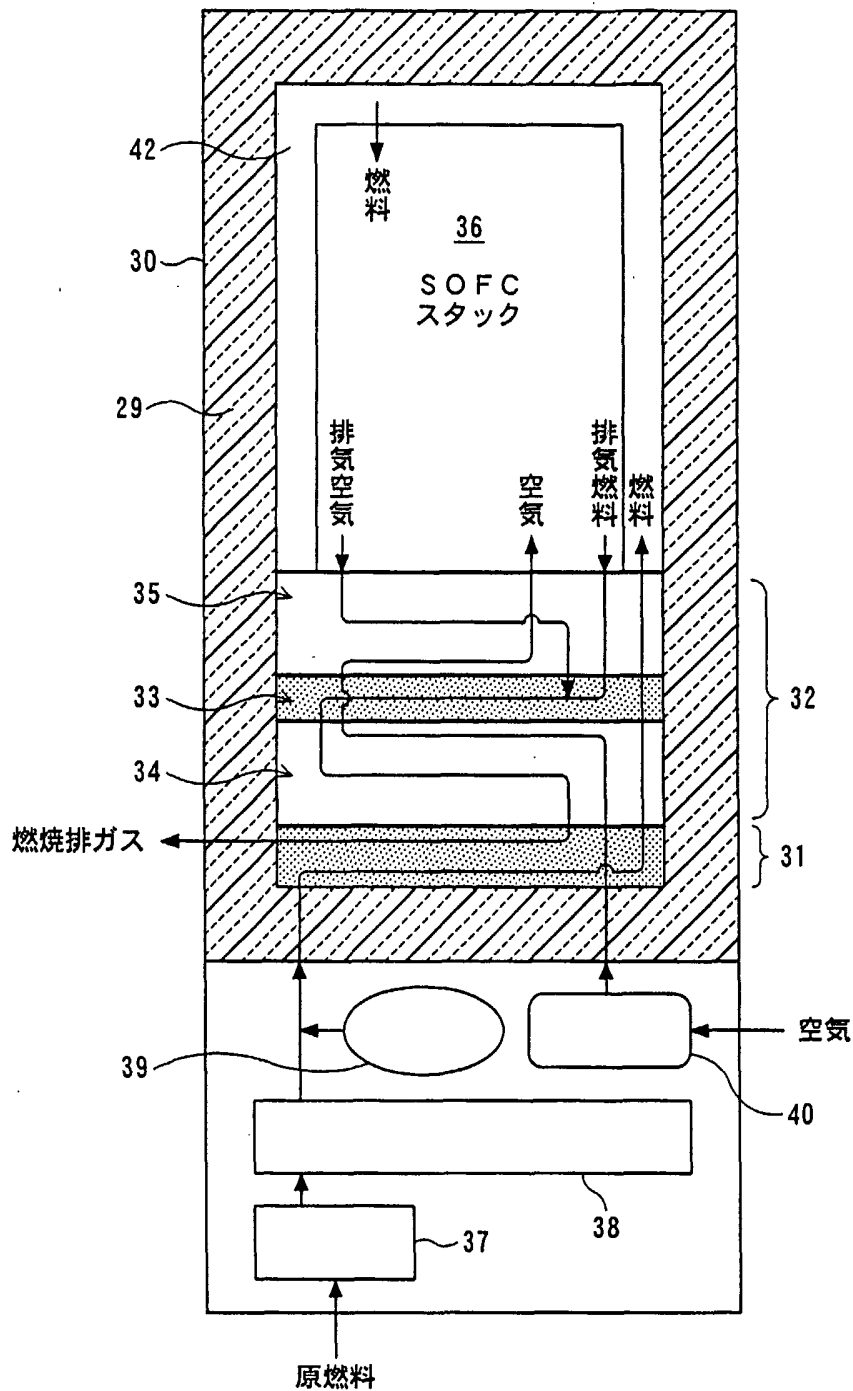


図 22

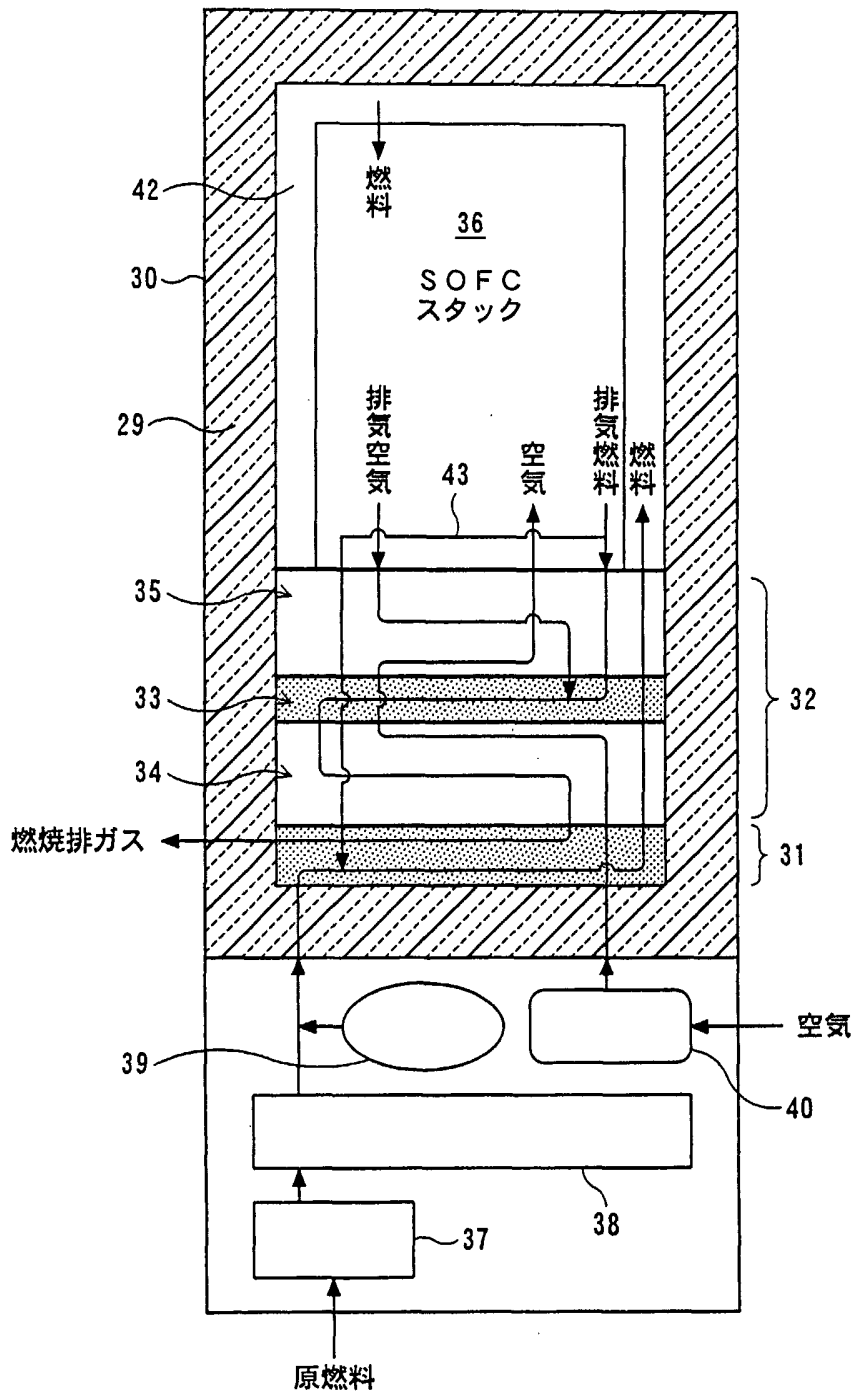


図 23

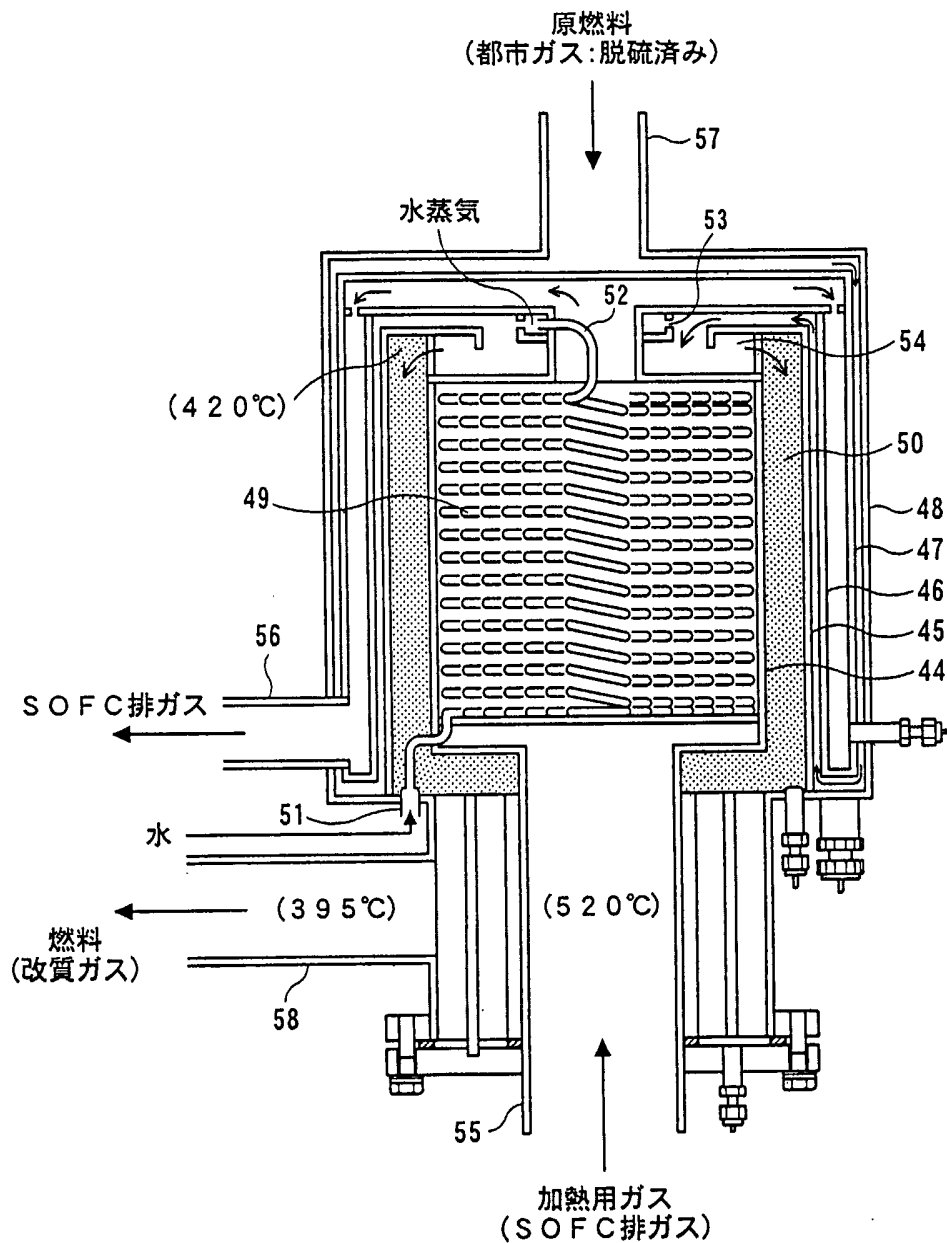


図 24

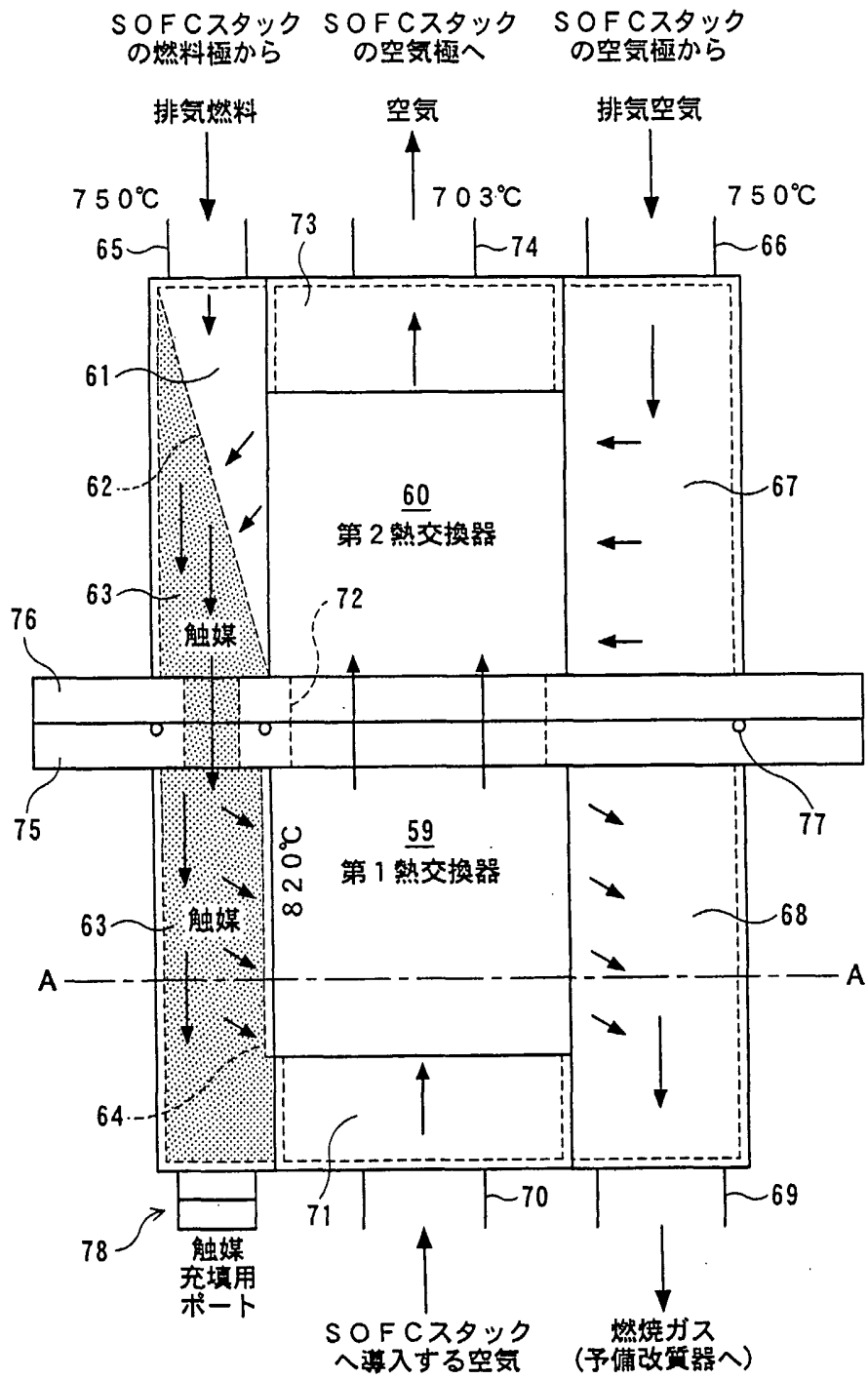


図 25

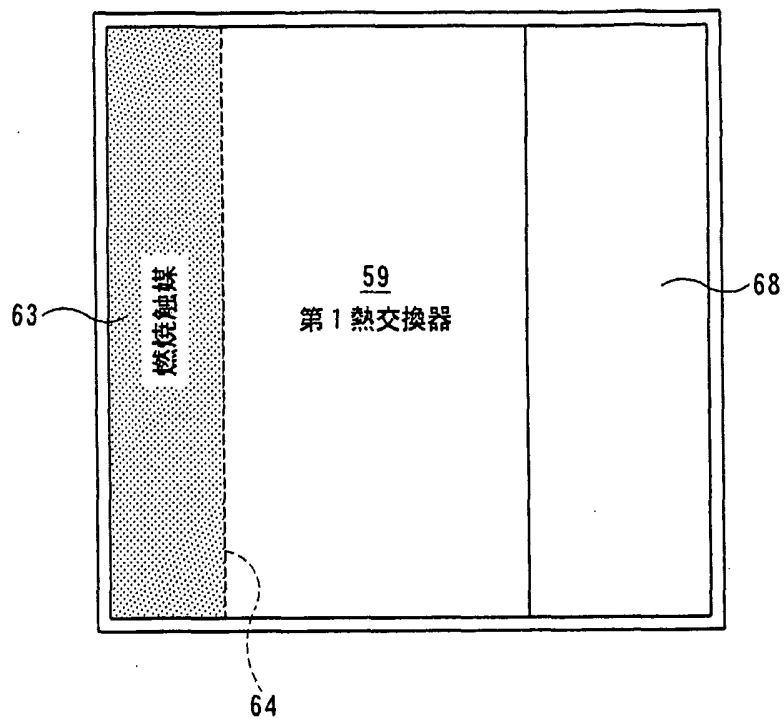


図 26

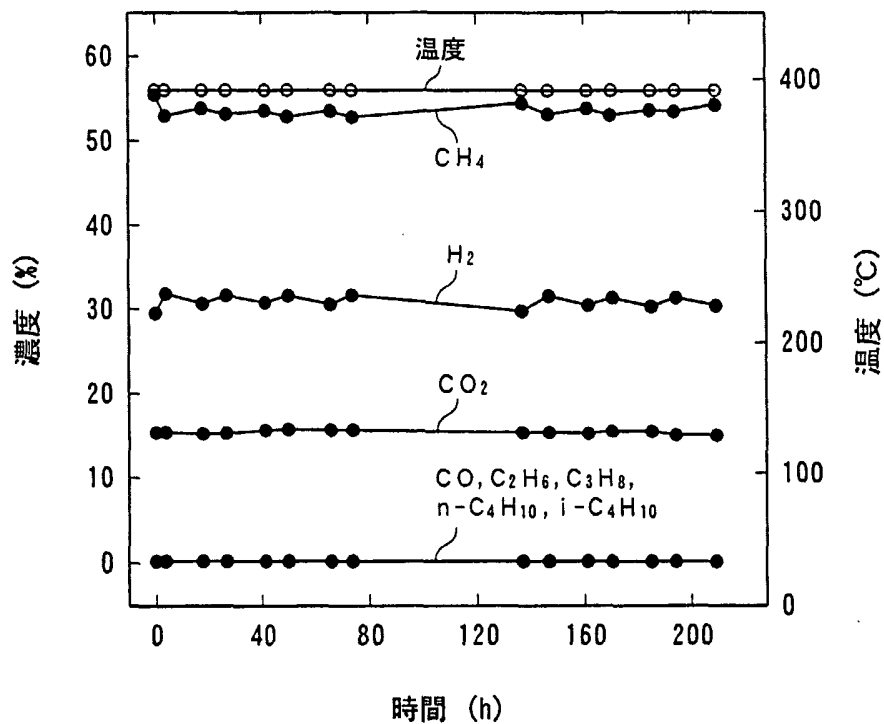


図 27

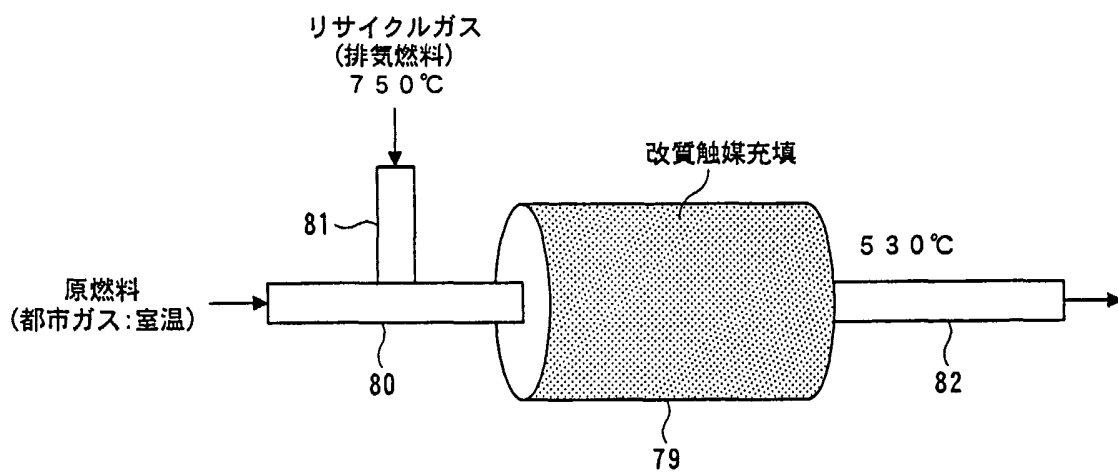
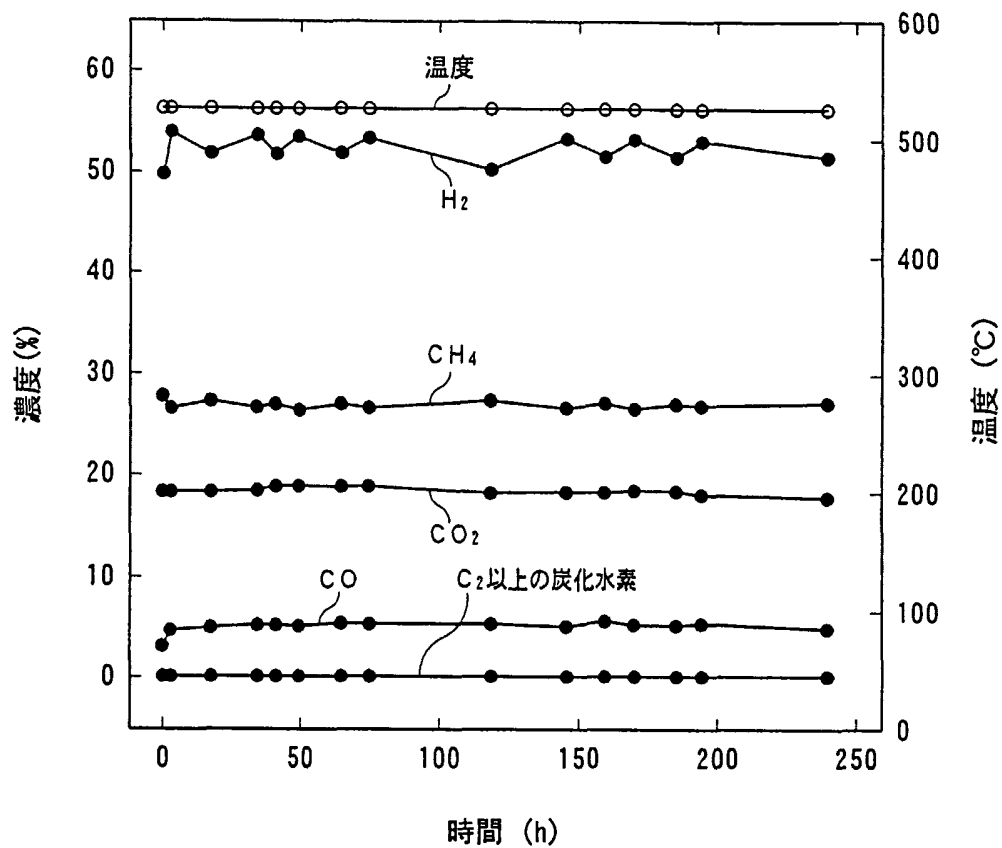


図 28



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/01156

<p>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl⁷ H01M8/24, 8/04, 8/12</p> <p>According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC</p>														
<p>B. FIELDS SEARCHED</p> <p>Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl⁷ H01M8/24, 8/04, 8/12</p> <p>Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched</p> <table border="0"> <tr> <td>Jitsuyo Shinan Koho</td> <td>1926-1996</td> <td>Toroku Jitsuyo Shinan Koho</td> <td>1994-2003</td> </tr> <tr> <td>Kokai Jitsuyo Shinan Koho</td> <td>1971-2003</td> <td>Jitsuyo Shinan Toroku Koho</td> <td>1996-2003</td> </tr> </table> <p>Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)</p>			Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003	Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003				
Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003											
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003											
<p>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>Category*</th> <th>Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th>Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>A</td> <td>JP 7-176315 A (Tokyo Gas Co., Ltd.), 14 July, 1995 (14.07.95), (Family: none)</td> <td>1-19, 20-26</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 9-508747 A (Ceramatec, Inc.), 02 September, 1997 (02.09.97), & WO 95/21469 A1 & US 5480738 A & EP 742960 A1</td> <td>1-19, 20-26</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2001-507501 A (Siemens Westinghouse Power Corp.), 05 June, 2001 (05.06.01), & WO 01/2011 A1 & EP 1197225 A1</td> <td>1-19, 20-26</td> </tr> </tbody> </table>			Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	A	JP 7-176315 A (Tokyo Gas Co., Ltd.), 14 July, 1995 (14.07.95), (Family: none)	1-19, 20-26	A	JP 9-508747 A (Ceramatec, Inc.), 02 September, 1997 (02.09.97), & WO 95/21469 A1 & US 5480738 A & EP 742960 A1	1-19, 20-26	A	JP 2001-507501 A (Siemens Westinghouse Power Corp.), 05 June, 2001 (05.06.01), & WO 01/2011 A1 & EP 1197225 A1	1-19, 20-26
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.												
A	JP 7-176315 A (Tokyo Gas Co., Ltd.), 14 July, 1995 (14.07.95), (Family: none)	1-19, 20-26												
A	JP 9-508747 A (Ceramatec, Inc.), 02 September, 1997 (02.09.97), & WO 95/21469 A1 & US 5480738 A & EP 742960 A1	1-19, 20-26												
A	JP 2001-507501 A (Siemens Westinghouse Power Corp.), 05 June, 2001 (05.06.01), & WO 01/2011 A1 & EP 1197225 A1	1-19, 20-26												
<p><input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.</p>														
<p>* Special categories of cited documents:</p> <table border="0"> <tr> <td>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</td> <td>"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</td> </tr> <tr> <td>"E" earlier document but published on or after the international filing date</td> <td>"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</td> </tr> <tr> <td>"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)</td> <td>"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</td> </tr> <tr> <td>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</td> <td>"&" document member of the same patent family</td> </tr> <tr> <td>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</td> <td></td> </tr> </table>			"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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	"E" earlier document but published on or after the international filing date	"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	"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)	"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	"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family	"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed			
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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													
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"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													
"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)	"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													
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family													
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed														
<p>Date of the actual completion of the international search 13 May, 2003 (13.05.03)</p>		<p>Date of mailing of the international search report 10 June, 2003 (10.06.03)</p>												
<p>Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office</p>		<p>Authorized officer</p>												
<p>Facsimile No.</p>		<p>Telephone No.</p>												

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/01156

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 5-47395 A (Chubu Electric Power Co., Inc. et al.), 26 February, 1993 (26.02.93), (Family: none)	1-19,20-26
A	JP 4-56072 A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 24 February, 1992 (24.02.92), (Family: none)	1-19,20-26
A	JP 2001-106513 A (Daikin Industries, Ltd.), 17 April, 2001 (17.04.01), (Family: none)	1-19,20-26
P,A	JP 2002-289244 A (Toto Ltd.), 04 October, 2002 (04.10.02), (Family: none)	1-19,20-26

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/01156

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

Claims 1-19 relate to a solid oxide type fuel cell system comprising an insulated container and, arranged therein, a solid oxide type fuel cell stack, a preliminary reformer and a catalytic combustion integrated heat exchanger capable of heating air and/or fuel to be introduced in the fuel cell stack by combustion gas resulting from combustion of the exhaust fuel from the fuel cell stack with exhaust air. On the other hand, claims 20-26 relate to a catalytic combustion integrated heat exchanger for solid oxide type fuel cell, comprising a catalytic combustion layer capable of effecting combustion of an exhaust fuel from a fuel cell with exhaust air, a first heat exchanger wherein the combustion gas formed (continued to extra sheet)

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.

2. As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.

3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

- Remark on Protest**
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/01156

Continuation of Box No.II of continuation of first sheet(1)

in the catalytic combustion layer is used as a heat source and a second heat exchanger, the catalytic combustion integrated heat exchanger adapted to feed air and/or fuel to be fed to the fuel cell to the first heat exchanger and the second heat exchanger. It is apparent that the technical features of claims 1-19 and those of claims 20-26 are different from each other.

Therefore, two inventions classified into claims 1-19 and claims 20-26 are described in the claims of this international application.

<p>A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))</p> <p style="text-align: center;">Int. Cl⁷ H01M 8/24, 8/04, 8/12</p>													
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))</p> <p style="text-align: center;">Int. Cl⁷ H01M 8/24, 8/04, 8/12</p>													
<p>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</p> <p>日本国実用新案公報 1926-1996年</p> <p>日本国公開実用新案公報 1971-2003年</p> <p>日本国登録実用新案公報 1994-2003年</p> <p>日本国実用新案登録公報 1996-2003年</p>													
<p>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)</p>													
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1" style="width:100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="width:10%; padding: 5px;">引用文献の カテゴリー*</th> <th style="width:70%; padding: 5px;">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</th> <th style="width:20%; padding: 5px;">関連する 請求の範囲の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td style="text-align: center; vertical-align: top; padding: 5px;">A</td> <td style="padding: 5px;">JP 7-176315 A (東京瓦斯株式会社) 1995.07.14 (ファミリーなし)</td> <td style="text-align: center; vertical-align: top; padding: 5px;">1-19, 20-26</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center; vertical-align: top; padding: 5px;">A</td> <td style="padding: 5px;">JP 9-508747 A (セラマテック, インコーポレーテッド) 1997.09.02&WO 95/21469 A1 &US 5480738 A&EP 742960 A1</td> <td style="text-align: center; vertical-align: top; padding: 5px;">1-19, 20-26</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center; vertical-align: top; padding: 5px;">A</td> <td style="padding: 5px;">JP 2001-507501 A (シーメンス・ウエスチングハウス・パワー・コーポレイション) 2001.06.05 &WO 01/2011 A1&EP 1197225 A1</td> <td style="text-align: center; vertical-align: top; padding: 5px;">1-19, 20-26</td> </tr> </tbody> </table>		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 請求の範囲の番号	A	JP 7-176315 A (東京瓦斯株式会社) 1995.07.14 (ファミリーなし)	1-19, 20-26	A	JP 9-508747 A (セラマテック, インコーポレーテッド) 1997.09.02&WO 95/21469 A1 &US 5480738 A&EP 742960 A1	1-19, 20-26	A	JP 2001-507501 A (シーメンス・ウエスチングハウス・パワー・コーポレイション) 2001.06.05 &WO 01/2011 A1&EP 1197225 A1	1-19, 20-26
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 請求の範囲の番号											
A	JP 7-176315 A (東京瓦斯株式会社) 1995.07.14 (ファミリーなし)	1-19, 20-26											
A	JP 9-508747 A (セラマテック, インコーポレーテッド) 1997.09.02&WO 95/21469 A1 &US 5480738 A&EP 742960 A1	1-19, 20-26											
A	JP 2001-507501 A (シーメンス・ウエスチングハウス・パワー・コーポレイション) 2001.06.05 &WO 01/2011 A1&EP 1197225 A1	1-19, 20-26											
<p><input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>													
<table style="width:100%;"> <tr> <td style="width:50%; vertical-align: top; padding: 5px;"> <p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>「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</p> <p>「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</p> <p>「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)</p> <p>「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</p> </td> <td style="width:50%; vertical-align: top; padding: 5px;"> <p>の日の後に公表された文献</p> <p>「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</p> <p>「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</p> <p>「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</p> <p>「&」 同一パテントファミリー文献</p> </td> </tr> </table>		<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>「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</p> <p>「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</p> <p>「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)</p> <p>「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</p>	<p>の日の後に公表された文献</p> <p>「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</p> <p>「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</p> <p>「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</p> <p>「&」 同一パテントファミリー文献</p>										
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>「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</p> <p>「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</p> <p>「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)</p> <p>「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</p>	<p>の日の後に公表された文献</p> <p>「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</p> <p>「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</p> <p>「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</p> <p>「&」 同一パテントファミリー文献</p>												
<p>国際調査を完了した日</p> <p style="text-align: center;">13.05.03</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p style="text-align: center; font-size: 1.2em;">10.06.03</p>												
<p>国際調査機関の名称及びあて先</p> <p style="text-align: center;">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</p>	<table style="width:100%;"> <tr> <td style="width:70%; text-align: center; padding: 5px;"> <p>特許庁審査官 (権限のある職員)</p> <p style="text-align: center;">原 賢一</p> </td> <td style="width:10%; text-align: center; padding: 5px;"> <p>4 X</p> </td> <td style="width:20%; text-align: center; padding: 5px;"> <p>9 0 6 2</p> </td> </tr> <tr> <td colspan="3" style="text-align: center; padding: 5px;"> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3477</p> </td> </tr> </table>	<p>特許庁審査官 (権限のある職員)</p> <p style="text-align: center;">原 賢一</p>	<p>4 X</p>	<p>9 0 6 2</p>	<p>電話番号 03-3581-1101 内線 3477</p>								
<p>特許庁審査官 (権限のある職員)</p> <p style="text-align: center;">原 賢一</p>	<p>4 X</p>	<p>9 0 6 2</p>											
<p>電話番号 03-3581-1101 内線 3477</p>													

C (続き) . 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 請求の範囲の番号
A	JP 5-47395 A (中部電力株式会社 外1名) 1993.02.26 (ファミリーなし)	1-19, 20-26
A	JP 4-56072 A (三菱重工業株式会社) 1992.02.24 (ファミリーなし)	1-19, 20-26
A	JP 2001-106513 A (ダイキン工業株式会社) 2001.04.17 (ファミリーなし)	1-19, 20-26
P, A	JP 2002-289244 A (東陶機器株式会社) 2002.10.04 (ファミリーなし)	1-19, 20-26

第I欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT 17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第II欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1-19は、断熱容器内に、固体酸化物形燃料電池スタックと、予備改質器と、該燃料電池スタックに導入する空気及び/又は燃料を該燃料電池スタックからの排気燃料を排気空気で燃焼した燃焼ガスにより加熱する触媒燃焼一体型熱交換器と、を配置してなる固体酸化物形燃料電池システムであるのに対し、請求の範囲20-26は、燃料電池からの排気燃料を排気空気で燃焼させる触媒燃焼層と、触媒燃焼層で生成した燃焼ガスを熱源とする第1熱交換器と、第2熱交換器とからなり、燃料電池に供給する空気及び/又は燃料を第1熱交換器、第2熱交換器に供給する固体酸化物形燃料電池用触媒燃焼一体型熱交換器であり、請求の範囲1-19と請求の範囲20-26の技術的特徴が異なることは明らかである。

従って、この国際出願の請求の範囲には、1-19と20-26に区分される2個の発明が記載されている。

1. 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。