(19)日本国特許庁(JP)　(12)公開特許公報(A)　(11)特許出願公開番号
特開2005-100975
(P2005-100975A)
(43)公開日　平成17年4月14日(2005.4.14)

(51)Int.Cl.[7]	F I		テーマコード（参考）
H01M 8/04	H01M 8/04	K	5H026
H01M 8/10	H01M 8/04	N	5H027
	H01M 8/10		

審査請求 未請求　請求項の数 18　OL　（全 43 頁）

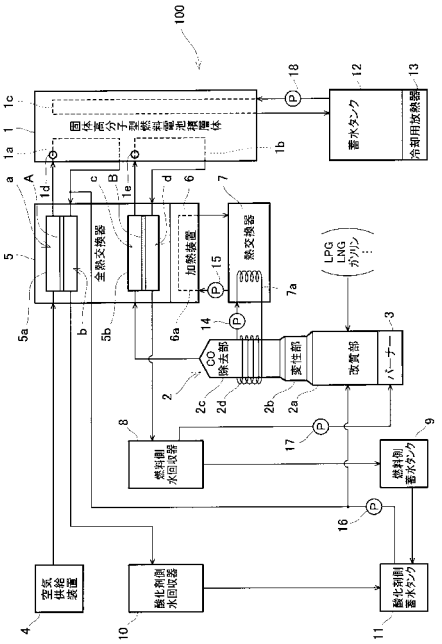
(21)出願番号　特願2004-244776 (P2004-244776)
(22)出願日　平成16年8月25日 (2004.8.25)
(31)優先権主張番号　特願2003-299863 (P2003-299863)
(32)優先日　平成15年8月25日 (2003.8.25)
(33)優先権主張国　日本国(JP)

(71)出願人　000005821
松下電器産業株式会社
大阪府門真市大字門真１００６番地
(74)代理人　100065868
弁理士　角田　嘉宏
(74)代理人　100106242
弁理士　古川　安航
(74)代理人　100110951
弁理士　西谷　俊男
(74)代理人　100114834
弁理士　幅　慶司
(74)代理人　100122264
弁理士　内山　泉
(74)代理人　100125645
弁理士　是枝　洋介

最終頁に続く

(54)【発明の名称】固体高分子型燃料電池システム及びその運転方法

(57)【要約】
【課題】　長期に渡って安定した電力を供給可能な固体高分子型燃料電池システム及びその運転方法を提供する。
【解決手段】　本発明の固体高分子型燃料電池システム１００は、燃料ガス及び酸化剤ガスが供給されて所定の発電部位が所定温度で動作して発電する燃料電池１と、前記供給される燃料ガス及び酸化剤ガスを加湿する加湿手段５，６とを備える固体高分子型燃料電池システムであって、前記燃料ガス及び酸化剤ガスが前記加湿手段により前記所定温度より高い露点を有するように加湿されて前記燃料電池に供給される。
【選択図】　図１



【特許請求の範囲】
【請求項１】
燃料ガス及び酸化剤ガスが供給されて所定の発電部位が所定温度で動作して発電する燃料電池と、前記供給される燃料ガス及び酸化剤ガスを加湿する加湿手段とを備える固体高分子型燃料電池システムであって、
前記燃料ガス及び酸化剤ガスが前記加湿手段により前記所定温度より高い露点を有するように加湿されて前記燃料電池に供給される、固体高分子型燃料電池システム。
【請求項２】
前記所定の発電部位が、前記燃料電池における前記供給される前記燃料ガス及び酸化剤ガスが前記発電のための電気化学反応に最初に消費される部位である、請求項１記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項３】
前記露点の範囲が、前記燃料電池においてフラッディング現象を誘発しない上限としての露点と前記所定温度の下限としての露点とで定まる範囲である、請求項１記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項４】
前記露点の範囲が、５０℃以上でありかつ７０℃以下である、請求項１記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項５】
前記加湿手段が、前記燃料電池から排出される排出物を利用して前記所定温度より高い露点を有するように前記燃料ガス及び酸化剤ガスを加湿する、請求項１記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項６】
前記加湿手段が、前記燃料電池から排出される排出物と水との混合物を利用して前記所定温度より高い露点を有するように前記燃料ガス及び酸化剤ガスを加湿する、請求項１記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項７】
前記排出物が、前記燃料電池から排出される燃料ガスと酸化剤ガスとの少なくとも何れかである、請求項５又は請求項６記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項８】
前記燃料電池から排出される燃料ガス及び酸化剤ガスから水を回収する水回収器を更に備え、
前記水回収器で回収された水が前記混合物の水として用いられる、請求項６記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項９】
前記加湿手段が全熱交換器と該全熱交換器を加熱可能な加熱装置とを備え、
前記排出物又は前記混合物と前記燃料ガス及び酸化剤ガスとが前記全熱交換器に供給されて互いに全熱交換されかつ前記全熱交換器が前記加熱装置で加熱されて前記所定温度より高い露点を有するように前記燃料ガス及び酸化剤ガスが加湿される、請求項５又は請求項６記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項１０】
前記加熱装置が、前記燃料ガス又は前記燃料電池から排出される燃料ガスを燃焼して発生する熱を利用して前記全熱交換器を加熱する、請求項９記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項１１】
前記加熱装置が、前記燃料ガス又は前記燃料電池から排出される燃料ガスと前記酸化剤ガス又は前記燃料電池から排出される酸化剤ガスとの触媒燃焼によって発生する熱を利用して前記全熱交換器を加熱する、請求項９記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項１２】
前記燃料電池が、熱媒体が通流されて前記所定温度で動作して発電し、

前記加熱装置が、前記燃料電池から排出される前記熱媒体の熱を利用して前記全熱交換器を加熱する、請求項９記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項１３】
前記燃料ガスの前駆体から前記燃料ガスを生成する改質器を更に備え、
前記加熱装置が、前記前駆体を燃焼して発生する熱を利用して前記全熱交換器を加熱する、請求項９記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項１４】
前記燃料ガスの前駆体から前記燃料ガスを生成する改質器を更に備え、
前記加熱装置が、前記改質器から排出される廃熱を利用して前記全熱交換器を加熱する、請求項９記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項１５】
前記加熱装置が、前記全熱交換器を直接的に加熱する直接加熱型加熱装置である、請求項９記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項１６】
前記加熱装置が、前記全熱交換器を間接的に加熱する間接加熱型加熱装置である、請求項９記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項１７】
前記燃料電池と前記加湿手段とが一体化されかつ一括断熱されている、請求項１記載の固体高分子型燃料電池システム。
【請求項１８】
燃料ガス及び酸化剤ガスが供給されて所定の発電部位が所定温度で動作して発電する燃料電池と、前記供給される燃料ガス及び酸化剤ガスを加湿する加湿手段とを用いる固体高分子型燃料電池システムの運転方法であって、
前記燃料ガス及び酸化剤ガスを前記加湿手段により前記所定温度より高い露点を有するように加湿し、
前記加湿した前記所定温度より高い露点を有する前記燃料ガス及び酸化剤ガスを前記燃料電池に供給する、固体高分子型燃料電池システムの運転方法。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、燃料電池システム及びその運転方法に関し、特に、固体高分子型燃料電池システム及びその運転方法に関する。
【背景技術】
【０００２】
近年、炭酸ガス濃度の上昇による地球温暖化や排気ガスの排出量の増加による酸性雨等の影響により、地球規模での環境問題に対する関心が高まっている。そのため、電源開発の分野においては、高効率で、かつ炭酸ガスを排出しないクリーンなエネルギー変換が可能な燃料電池システムに対する注目が集まっている。そして、種々ある燃料電池システムの中でも、動作温度が低く、又、出力密度が高い固体高分子型燃料電池システムに対する注目は高く、そのため、民生用電源や自動車動力用電源等としての利用が期待されている。
【０００３】
固体高分子型燃料電池システムは、発電のための化学反応が行われる反応場として電解質膜－電極接合体（以下、単にＭＥＡという）が用いられる、燃料電池システムの一種である。この固体高分子型燃料電池システムは、通常、個々の固体高分子型燃料電池（以下、単にセルという）が所定数積層されてなる固体高分子型燃料電池積層体（以下、単にスタックという）と、このスタックを動作させるための後述する所定の付属装置とを有して構成されている。以下、セル、スタック、及び固体高分子型燃料電池システムの構成について、この順番に説明する。
【０００４】

スタックを構成するためのセルには、発電のための触媒反応が行われる反応場として利用されるＭＥＡが配設されている。このＭＥＡは、水素イオンを選択的に輸送する固体高分子電解質膜の両面に白金族金属触媒を担持したカーボン粉末を主成分とする一対の触媒層（アノード触媒層及びカソード触媒層）が形成され、更に、この一対の触媒層を挟むようにして、通気性と電子伝導性を併せ持つ、主に炭素繊維からなるガス拡散電極（アノードガス拡散電極及びカソードガス拡散電極）が配設されることによって構成されている。そして、更に、シール用ガスケットが前記ＭＥＡの周囲の固体高分子電解質膜を挟むように配設されてＭＥＡ－ガスケット組み立て体が形成され、このＭＥＡ－ガスケット組み立て体が、燃料ガス（水素ガス、又は、水素リッチな改質ガス）が流れる燃料ガス用流路が設けられたアノードセパレータと酸化剤ガス（空気）が流れる酸化剤ガス用流路が設けられたカソードセパレータとで挟み込まれることによって、セルが構成されている。

【０００５】

上述した通り、スタックは、セルが所定数積層されてなるセルの積層体である。固体高分子型燃料電池システムにおいてスタックが形成される理由は、セルの起電力が、出力電流密度にも依存するが、常用域において約０．６～０．８Ｖ程度と低電圧であるためである。即ち、セルを積層してスタックを形成することによって、電子機器等を動作させるのに必要十分な電圧を得るようにしている。通常、このスタックは、セルが数十～数百段積層されてなる積層体である。ところで、このスタックは、セルが発電時に発熱することに起因して、セルの積層数に応じた発熱量で発熱する。そして、このスタックの発熱の発熱密度はセル単体に比して大きいため、通常、１～３セル毎に冷却水流路を設けて、水又はエチレングリコール等の冷却用冷媒を用いてスタックを強制的に冷却する。つまり、冷却用冷媒を用いることによって、発熱するスタックの温度を好適な温度状態に維持している。従って、このスタックには、燃料ガス、酸化剤ガス、及び水（又はエチレングリコール等）の三種類の流体が給排されることになる。そのため、カソードセパレータ及びアノードセパレータには、これらの３種類の流体につき各一対(場合により複数対)のマニフォルド（共通貫通孔）が設けられている。各々の流体は、このマニフォルドから各々のセパレータに設けられた溝に導入されて、各セル及び水冷部に分岐される構成となっている。例えば、燃料ガスであれば、燃料ガス供給マニフォルドからアノードセパレータの燃料ガス用流路に導入され、その流路の内部を流れる過程でＭＥＡにおける発電のための触媒反応に消費される。尚、発電に利用されなかった余剰の燃料ガスは、燃料ガス排気マニフォルドを経由して廃棄される、といった具合である。そして、これらのセルと冷却部とを交互に重ねて積層し、その積層体を集電板と絶縁板とを介して端板で挟み、その後、締結ボルトで両端から固定することによって、一般的なスタックが構成される。

【０００６】

一方、固体高分子型燃料電池システムとは、前記スタックを運転して所定の電力を取り出すための発電装置全体を意味する。具体的には、固体高分子型燃料電池システムにおいて直接的にスタックを駆動する構成要素は、ＬＰＧ、ＬＮＧ、ガソリン等の入手可能な燃料前駆体を水蒸気改質法によって燃料ガスに転換する改質器、この改質されて得る燃料ガスをスタックに供給するための燃料ガス供給装置、酸化剤ガスとして利用する空気を加湿する酸化剤ガス加湿装置、加湿された酸化剤ガスをスタックに供給する酸化剤ガス供給装置、スタックに循環冷却水を供給する冷却水供給装置、電力を負荷する電気負荷装置等である。尚、燃料ガスの加湿は、改質器において、水蒸気改質法で燃料ガスに水を添加することによって行われるのが通常である。一方、酸化剤ガスの加湿は、スタックから排出される酸化剤ガス（以下、カソード排気ガスという）に含まれる生成水を利用して、空気供給装置によって送られる酸化剤ガスとの間で全熱交換を行わせ、これによって所望の加湿量を得るのが通常である。この全熱交換は、水は容易に透過するが、ガスを透過しない性質を有する全熱交換膜を介して行われる。この全熱交換膜としては、セルで用いられる固体高分子電解質膜（例えば、パーフルオロスルフォン酸膜）が好適に用いられる。そして、上記各構成要素とスタックとが固体高分子型燃料電池システムを構築すべく接続されることによって、固体高分子型燃料電池システムが構成される。

【０００７】
ここで、固体高分子型燃料電池システムにおけるセルの発電原理について概説する。
【０００８】
前述の如くして構成されたセルでは、アノードセパレータの燃料ガス用流路に燃料ガスを、一方、カソードセパレータの酸化剤ガス用流路に酸化剤ガスを各々供給して、前記ＭＥＡのアノード触媒層側の主面に燃料ガスを、又、カソード触媒層側の主面に酸化剤ガスを各々暴露する。この時、供給された燃料ガスは、アノードセパレータの燃料ガス用流路を通過し、更にアノードガス拡散電極を通過してＭＥＡ上に形成されたアノード触媒層に接触し、このアノード触媒層における触媒反応によって、水素イオンと電子とに解離する。この解離した電子は、アノードガス拡散電極を介してアノードセパレータに回収された後、固体高分子型燃料電池システムに接続された電子機器等に供給される。一方、解離した水素イオンは、固体高分子電解質膜の内部を通過してカソード触媒層に移動する。そして、カソード触媒層に移動した水素イオンは、そのカソード触媒層において、カソードガス拡散電極を通過してカソード触媒層に達した酸化剤ガスと、固体高分子型燃料電池システムに接続された前記電子機器等を経由してカソードセパレータに移動し、更にカソードガス拡散電極を通過してカソード触媒層に到達した電子とを用いる、水を生成する触媒反応に利用される。そして、上記一連の触媒反応によって燃料ガス由来の電子が連続的に発生し、これによって、セルは電池としての所定の機能を発現するようになる。
【０００９】
尚、固体高分子電解質膜は、十分に湿潤した状態において安定した水素イオン輸送能を発現する。そのため、固体高分子型燃料電池システムを動作させる際には、固体高分子電解質膜を湿潤させるための水を供給する必要がある。通常、この水は、セルに供給する燃料ガス及び酸化剤ガスを加湿することにより、これらの燃料ガス及び酸化剤ガスの供給と同時に供給される。又、上記触媒反応を良好に進行させるためには、スタックを少なくとも６０℃以上の温度、望ましくは、６０℃から８０℃の温度に加熱する必要がある。そのため、固体高分子型燃料電池システムでは、スタックを６０℃から８０℃の温度に加熱しながら、発電運転が行われる。
【００１０】
ところで、セルを正常に動作させるためには、上述の如く固体高分子電解質膜を十分に湿潤した状態に維持する必要がある一方で、ＭＥＡにおいて生成する水によるアノード触媒層及びカソード触媒層のフラッディング現象（アノード触媒層及びカソード触媒層が水で閉塞される現象）を防止する必要がある。その理由は、フラッディング現象が発生すると、例えば燃料ガスが水素イオンと電子とに解離する触媒反応や、解離して発生した水素イオンの固体高分子電解質膜の内部におけるカソード側への移動が進行し難くなり、これによってセルの発電量が著しく低下するからである。
【００１１】
そこで、このフラッディング現象の発生を防止するため、燃料ガス及び酸化剤ガスの吸入部と排出部との間に圧力損失（圧力降下）を与えることによって燃料ガス及び酸化剤ガスの露点を常にスタックの動作温度以下の露点に保ち、これによって過剰な水をセルの外部へ排出する方法が提案されている（例えば、特許文献１参照）。
【００１２】
ここで、この提案について具体的に説明すると、気体の水吸収能力は圧力の低下と共に高まるため、燃料ガス及び酸化剤ガスの排出部に近づくにつれてそれらのガスのガス圧が低くなるように設定することにより、触媒反応に伴いセル内で逐次生成される水を効果的にセルの外部へ排除することが可能になる。即ち、燃料ガス及び酸化剤ガスをスタックの動作温度以下の露点を有する状態に保つことにより、セル内で生成した水が燃料ガス及び酸化剤ガスの中に蒸散する余地が生まれるので、過剰な水を余剰の燃料ガス及び酸化剤ガスと共にセルから排出することが可能になる。この場合、固体高分子電解質膜は容易に水を透過させるため、例えば燃料ガスをスタックの動作温度以下の露点を有する状態に保ち、カソード側で生成した水が固体高分子電解質膜を逆拡散した後に燃料ガス中に蒸散する

ように構成しても、過剰な水を余剰の燃料ガスと共にセルの外部へ排出することが可能となる。尚、かかる燃料ガス若しくは酸化剤ガスの圧力降下は、それらのガスの吸入部にオリフィスを設ける手段や、流路長の延長、流路断面積の変更、流路内面の少なくとも一部の摩擦係数の増加、流路内の燃料ガスの流量を燃料ガスがアノード側で水素イオンと電子とに解離される量より実質的に高く設定する等の手段によって具現化する。

【００１３】

上述した、この従来の燃料ガス及び酸化剤ガスを常にスタックの動作温度以下の露点を有する状態に保つ提案によれば、カソード側で生成される水をセルの外部へ効果的に排除することが可能になり、確かにアノード触媒層及びカソード触媒層が水で閉塞されるフラッディング現象を防止することが可能になる。つまり、アノード触媒層及びカソード触媒層における触媒反応がスムーズに進行し、セルの発電量を適正な発電量とすることが可能になる。

【特許文献１】特願平０４－５０２７４９号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【００１４】

しかしながら、発明者らは、特にスタックの発電効率を重視するために低電流密度で定格運転される用途（特に、定置用コージェネレーションシステム）においては、上述した従来の運転方法には致命的な欠陥があることを発見した。即ち、燃料ガス及び酸化剤ガスの両方のガスがスタック内の全ての発電部位においてその発電部位の動作温度より高い露点を有していない場合、ＭＥＡにおける前記露点を有していない燃料ガス及び酸化剤ガスが暴露されている部分の固体高分子電解質膜が乾燥して、そのために固体高分子電解質膜が経時的に損傷し、その寿命が保てなくなるという現象が発生することを発見した。この場合、触媒反応によって発生した水素イオンの固体高分子電解質膜における移動量がその損傷によって経時的に低下していくので、スタックの発電量は経時的に低下する。

【００１５】

本発明は、上記のような課題を解決するためになされたものであり、低電流密度で定格運転される用途において用いられる固体高分子型燃料電池システムに関し、長期に渡って安定した電力を供給可能な固体高分子型燃料電池システム及びその運転方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【００１６】

そして、これらの目的を達成するために、本発明に係る固体高分子型燃料電池システムは、燃料ガス及び酸化剤ガスが供給されて所定の発電部位が所定温度で動作して発電する燃料電池と、前記供給される燃料ガス及び酸化剤ガスを加湿する加湿手段とを備える固体高分子型燃料電池システムであって、前記燃料ガス及び酸化剤ガスが前記加湿手段により前記所定温度より高い露点を有するように加湿されて前記燃料電池に供給される。かかる構成とすると、水蒸気過飽和状態の燃料ガス及び酸化剤ガスがセルの内部に供給されることになり、これによってセルの内部に配設されている固体高分子電解質膜が十分に加湿されるので、その乾燥を全面的に防止することが可能になる。その結果、固体高分子電解質膜の経時的な損傷が防止され、常に安定した電圧を得ることが可能になる。

【００１７】

この場合、前記所定の発電部位が、前記燃料電池における前記供給される前記燃料ガス及び酸化剤ガスが前記発電のための電気化学反応に最初に消費される部位である。かかる構成とすると、セルの内部に配設されている固体高分子電解質膜が実質的にかつ十分に加湿されるので、固体高分子電解質膜の経時的な損傷が実質的に防止され、常に安定した電圧を得ることが可能になる。

【００１８】

又、上記の場合、前記露点の範囲が、前記燃料電池においてフラッディング現象を誘発しない上限としての露点と前記所定温度の下限としての露点とで定まる範囲である。かか

る構成とすると、より一層効果的に固体高分子電解質膜の経時的な損傷を防止することが可能になる。

【００１９】

又、上記の場合、前記露点の範囲が、５０℃以上でありかつ７０℃以下である。かかる構成としても、より一層効果的に固体高分子電解質膜の経時的な損傷を防止することが可能になる。

【００２０】

又、上記の場合、前記加湿手段が、前記燃料電池から排出される排出物を利用して前記所定温度より高い露点を有するように前記燃料ガス及び酸化剤ガスを加湿する。かかる構成とすると、燃料電池から排出される排出物には水分が含まれているので、その排出物と供給する燃料ガス及び酸化剤ガスとを全熱交換することによって、スタックに供給する燃料ガス及び酸化剤ガスを水蒸気過飽和状態にすることが可能になる。

【００２１】

又、上記の場合、前記加湿手段が、前記燃料電池から排出される排出物と水との混合物を利用して前記所定温度より高い露点を有するように前記燃料ガス及び酸化剤ガスを加湿する。かかる構成とすると、水を豊富に含む排出物と供給する燃料ガス及び酸化剤ガスとを全熱交換することによって、スタックに供給する燃料ガス及び酸化剤ガスを容易に水蒸気過飽和状態とすることが可能になる。

【００２２】

この場合、前記排出物が、前記燃料電池から排出される燃料ガスと酸化剤ガスとの少なくとも何れかである。かかる構成とすると、燃料電池から排出される燃料ガス又は酸化剤ガスには水分が含まれているので、スタックに供給する燃料ガス及び酸化剤ガスを水蒸気過飽和状態にすることが可能になる。

【００２３】

又、この場合、前記燃料電池から排出される燃料ガス及び酸化剤ガスから水を回収する水回収器を更に備え、前記水回収器で回収された水が前記混合物の水として用いられる。かかる構成とすると、水の利用効率が改善された固体高分子型燃料電池システムを提供することが可能になる。

【００２４】

又、上記の場合、前記加湿手段が全熱交換器と該全熱交換器を加熱可能な加熱装置とを備え、前記排出物又は前記混合物と前記燃料ガス及び酸化剤ガスとが前記全熱交換器に供給されて互いに全熱交換されかつ前記全熱交換器が前記加熱装置で加熱されて前記所定温度より高い露点を有するように前記燃料ガス及び酸化剤ガスが加湿される。かかる構成とすると、燃料ガス及び酸化剤ガスの加湿が好適に実施されるようになる。

【００２５】

この場合、前記加熱装置が、前記燃料ガス又は前記燃料電池から排出される燃料ガスを燃焼して発生する熱を利用して前記全熱交換器を加熱する。かかる構成とすると、燃料ガス又は燃料電池から排出される燃料ガスを燃焼して得られる熱は高温であるため、全熱交換器の加熱が効率良く行われるようになる。又、スタックに供給する燃料ガスはその全てが発電に利用されるのではなく一部は排出されるが、その排出される燃料ガスを再利用するので、燃料ガスを有効に利用することが可能になる。

【００２６】

又、この場合、前記加熱装置が、前記燃料ガス又は前記燃料電池から排出される燃料ガスと前記酸化剤ガス又は前記燃料電池から排出される酸化剤ガスとの触媒燃焼によって発生する熱を利用して前記全熱交換器を加熱する。かかる構成とすると、触媒燃焼によって全熱交換器を効率良く加熱することが可能になる。つまり、水蒸気過飽和状態の燃料ガス及び酸化剤ガスを効率良く得ることが可能になる。

【００２７】

又、この場合、前記燃料電池が、熱媒体が通流されて前記所定温度で動作して発電し、前記加熱装置が、前記燃料電池から排出される前記熱媒体の熱を利用して前記全熱交換器

を加熱する。かかる構成とすると、熱の利用効率が改善された固体高分子型燃料電池システムを提供することが可能になる。

【００２８】

又、この場合、前記燃料ガスの前駆体から前記燃料ガスを生成する改質器を更に備え、前記加熱装置が、前記前駆体を燃焼して発生する熱を利用して前記全熱交換器を加熱する。かかる構成とすると、燃料ガス前駆体の一部を事前に全熱交換器の加熱に利用するため、排出される燃料ガスの排出量を低減することが可能になる。

【００２９】

又、この場合、前記燃料ガスの前駆体から前記燃料ガスを生成する改質器を更に備え、前記加熱装置が、前記改質器から排出される廃熱を利用して前記全熱交換器を加熱する。かかる構成とすると、改質器から排出された廃熱は高温であるため、全熱交換器の加熱が効率良く行われるようになる。又、廃熱を再利用することになり熱の使用効率が向上するので、発電効率の良い固体高分子型燃料電池システムを構築することが可能になる。

【００３０】

又、上記の場合、前記加熱装置が、前記全熱交換器を直接的に加熱する直接加熱型加熱装置である。かかる構成とすると、全熱交換器の加熱効率が改善される。その結果、全熱交換器を加熱するために必要な熱の熱量を最小限に抑えることが可能になる。

【００３１】

又、上記の場合、前記加熱装置が、前記全熱交換器を間接的に加熱する間接加熱型加熱装置である。かかる構成とすると、全熱交換器を加熱する際、全熱交換器の温度が緩やかに変化するようになる。その結果、全熱交換器の加熱温度を精密に制御することが可能になる。

【００３２】

又、上記の場合、前記燃料電池と前記加湿手段とが一体化されかつ一括断熱されている。かかる構成とすると、全熱交換器を加熱する際の、その全熱交換器における熱損失を最小限に抑えることが可能になる。その結果、水蒸気過飽和状態の燃料ガス及び酸化剤ガスを容易にかつ効率良く生成することが可能になる。

【００３３】

又、本発明に係る固体高分子型燃料電池システムの運転方法は、燃料ガス及び酸化剤ガスが供給されて所定の発電部位が所定温度で動作して発電する燃料電池と、前記供給される燃料ガス及び酸化剤ガスを加湿する加湿手段とを用いる固体高分子型燃料電池システムの運転方法であって、前記燃料ガス及び酸化剤ガスを前記加湿手段により前記所定温度より高い露点を有するように加湿し、前記加湿した前記所定温度より高い露点を有する前記燃料ガス及び酸化剤ガスを前記燃料電池に供給する。かかる構成とすると、水蒸気過飽和状態の燃料ガス及び酸化剤ガスをセルの内部に供給するので、セルの内部に配設されている固体高分子電解質膜を十分に加湿することが可能となり、その乾燥を全面的に防止することが可能になる。その結果、固体高分子電解質膜の経時的な損傷が防止され、常に安定した電圧を得ることが可能になる。

【００３４】

本発明の上記目的、他の目的、特徴、及び利点は、添付図面参照の下、以下の好適な実施態様の詳細な説明から明らかにされる。

【発明の効果】

【００３５】

本発明は以上に述べたような手段で実施され、低電流密度で定格運転される用途において用いられる固体高分子型燃料電池システムに関し、長期に渡って安定した電力を供給可能な固体高分子型燃料電池システム及びその運転方法を提供することができるという効果を奏する。

【発明を実施するための最良の形態】

【００３６】

以下、本発明の実施の形態について、図面を参照しながら説明する。

【００３７】
（実施の形態１）
本発明の実施の形態１では、改質器を備える固体高分子型燃料電池システムに関し、改質器から排出される廃熱の一部を利用して過加湿状態の燃料ガス及び酸化剤ガスを生成しこれを燃料電池に供給する実施形態について説明する。
【００３８】
図１は、本発明の実施の形態１に係る固体高分子型燃料電池システムの構成を模式的に示すブロック図である。
【００３９】
先ず、本発明の実施の形態１に係る固体高分子型燃料電池システムの構成について、図１を参照しながら説明する。
【００４０】
図１に示すように、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム１００は、燃料ガス及び酸化剤ガスが配管１ａ及び配管１ｂに供給されて発電する固体高分子型燃料電池積層体１（以下、スタック１）と、都市ガスや液化プロパンガス等の燃料ガス前駆体を改質して発電に用いる燃料ガスを生成する改質部２ａと変成部２ｂとＣＯ除去部２ｃとからなる改質器２と、改質器２を改質反応に必要な温度に加熱しかつ保温する改質器用バーナー３と、発電に用いる酸化剤ガスをスタック１に送出する空気供給装置４と、スタック１に供給する燃料ガス及び酸化剤ガスをスタック１から排出されるアノード排気ガス及びカソード排気ガスとの全熱交換によって加湿及び加熱する全熱交換器５と、全熱交換器５をスタック１における所定の発電部位の動作温度より高い温度に加熱する加熱装置６と、ＣＯ除去部２ｃから排出される廃熱を用いて加熱装置６を加熱する熱交換器７と、スタック１から全熱交換器５を経て排出される燃料ガス（即ち、アノード排気ガス）に含まれる水を回収する燃料側水回収器８と、燃料側水回収器８によって回収された水を蓄水する燃料側蓄水タンク９と、スタック１から全熱交換器５を経て排出される酸化剤ガス（即ち、カソード排気ガス）に含まれる水を回収する酸化剤側水回収器１０と、酸化剤側水回収器１０によって回収された水を蓄水する酸化剤側蓄水タンク１１とを備えて構成されている。
【００４１】
又、この固体高分子型燃料電池システム１００は、発電動作中に発熱するスタック１を所定の温度に維持するための冷却水を蓄える蓄水タンク１２と、蓄水タンク１２に蓄えた冷却水の熱を外部へ放出して冷却水を冷却する冷却用放熱器１３とを備えている。
【００４２】
更に、この固体高分子型燃料電池システム１００は、ＣＯ除去部２ｃの外側面に螺旋状に止着された配管２ｄの内部に充填された熱媒体を熱交換器７の内部に配設された配管７ａの内部へ送出するポンプ１４と、熱交換器７の内部に蓄水される熱媒体を加熱装置６の内部に配設された配管６ａの内部へ送出するポンプ１５と、酸化剤側蓄水タンク１１に蓄水される水を改質部２ａ及びスタック１と全熱交換器５とを接続するカソード排気ガスが流れる配管へ送出するポンプ１６と、燃料側水回収器８で除湿されたアノード排気ガスを改質器用バーナー３へ送出するポンプ１７と、蓄水タンク１２に蓄水される水をスタック１の内部に配設された配管１ｃの内部へ送出するポンプ１８とを備えている。
【００４３】
ここで、全熱交換器５の構成について説明する。
【００４４】
図１に示すように、全熱交換器５は、酸化剤ガスを加湿及び加熱するカソード側加湿回路５ａと、燃料ガスを加湿及び加熱するアノード側加湿回路５ｂを有して構成されている。
【００４５】
カソード側加湿回路５ａには、酸化剤ガスを導入する酸化剤ガス導入領域ａと、カソード排気ガスを導入するカソード排気ガス導入領域ｂとが形成されている。そして、酸化剤ガス導入領域ａとカソード排気ガス導入領域ｂとは、カソード側全熱交換膜Ａによって隔

離されている。このカソード側全熱交換膜Ａとしては、ここでは、スタック１で用いられている固体高分子電解質膜と同様の固体高分子電解質膜が用いられている。つまり、カソード側加湿回路５ａは、酸化剤ガス導入領域ａに導入された酸化剤ガスとカソード排気ガス導入領域ｂに導入されたカソード排気ガスとの間のカソード側全熱交換膜Ａを介した全熱交換によって、酸化剤ガス導入領域ａに導入された酸化剤ガスを所定の温度及び湿度に調整可能に構成されている。

【００４６】

一方、アノード側加湿回路５ｂには、燃料ガスを導入する燃料ガス導入領域ｃと、アノード排気ガスを導入するアノード排気ガス導入領域ｄとが形成されている。そして、燃料ガス導入領域ｃとアノード排気ガス導入領域ｄとは、アノード側全熱交換膜Ｂによって隔離されている。このアノード側全熱交換膜Ｂとしても、ここでは、スタック１で用いられている固体高分子電解質膜と同様の固体高分子電解質膜が用いられている。つまり、アノード側加湿回路５ｂは、燃料ガス導入領域ｃに導入された燃料ガスとアノード排気ガス導入領域ｄに導入されたアノード排気ガスとの間のアノード側全熱交換膜Ｂを介した全熱交換によって、燃料ガス導入領域ｃに導入された燃料ガスを所定の温度及び湿度に調整可能に構成されている。

【００４７】

尚、全熱交換器５には加熱装置６が着設されており、この加熱装置６が動作することによって、全熱交換器５の全体がスタック１における所定の発電部位の動作温度より高い温度に加熱されるように構成されている。

【００４８】

又、上述したように、スタック１と全熱交換器５とを接続するカソード排気ガスが流れる配管の所定位置には、酸化剤側蓄水タンク１１からポンプ１６を介して延出する配管が接続されている。つまり、固体高分子型燃料電池システム１００では、酸化剤側蓄水タンク１１に蓄えられた水をカソード排気ガスが流れる配管内に送出可能に構成されている。

【００４９】

次に、本発明の実施の形態１に係る固体高分子型燃料電池システムの動作について、図１を参照しながら説明する。

【００５０】

図１に示すように構成された固体高分子型燃料電池システム１００では、ＬＰＧ，ＬＮＧ，ガソリン又は都市ガス等の燃料ガス前駆体が改質器２の改質部２ａに供給される。すると、改質部２ａに供給された燃料ガス前駆体は、その改質部２ａで所定の改質が行われた後、変性部２ｂに供給される。そして、変性部２ｂで所定の変性が行われて生成された燃料ガスは、ＣＯ除去部２ｃに供給される。ＣＯ除去部２ｃに供給された燃料ガスからはＣＯ（一酸化炭素）が除去され、その後、改質器２から排出される。この際、改質器２は、改質器用バーナー３によって前記燃料ガス前駆体を燃料ガスに改質するのに必要な温度に加熱及び保温されている。つまり、改質器２では、所定の温度環境下で前記燃料ガス前駆体が改質されて、これによって発電に用いる燃料ガスが生成される。

【００５１】

改質器２で生成された燃料ガスは、全熱交換器５に配設されたアノード側加湿回路５ｂの燃料ガス導入領域ｃに導入される。燃料ガス導入領域ｃに導入された燃料ガスは、アノード排気ガス導入領域ｄに導入されるスタック１から排出されたアノード排気ガスとの間の全熱交換により、スタック１における所定の発電部位の動作温度より高い露点を有するように調整される。燃料ガスがこのように調整され得るのは、アノード排気ガスが改質器２の改質部２ａにおいて得る水とスタック１の発電によって生成する水との全熱交換に必要十分な量の水分を含有していることと、全熱交換器５が加熱装置６によってスタック１における所定の発電部位の動作温度より高い温度に加熱されるからである。ここで、スタック１における所定の発電部位とは、燃料ガス及び酸化剤ガスがスタック１に供給される供給部位である。より具体的に説明すると、このスタック１における所定の発電部位とは、概念的には図１に示す燃料ガス及び酸化剤ガスの供給部位１ｄ及び１ｅを示しており、

供給される燃料ガスと酸化剤ガスとが固体高分子電解質膜を介した電気化学反応に最初に消費され得る部位（領域）を意味している。尚、この部位（領域）を、以下の説明においても単に所定の発電部位と表現する。又、スタック１における所定の発電部位の動作温度とは、上述した所定の発電部位における発電中のセル温度であり、このセル温度は前記所定の発電部位における冷却水の温度と近似しているため、実際には前記所定の発電部位におけるスタック１を冷却する冷却水の温度である。この冷却水の温度は、サーミスタ等の温度検知手段によって容易に測定可能である。尚、この所定の発電部位における冷却水の温度を、以下の説明においても単に動作温度と表現する。

【００５２】

ここで、全熱交換器５の加熱方法について説明すると、改質器２には改質部２ａ（反応温度＝６００～８００℃）、変性部２ｂ（反応温度＝２５０～３００℃）、ＣＯ除去部２ｃ（反応温度＝１５０～２００℃）の３つのセクションがあり、ここでは、ＣＯ除去部２ｃから排出される廃熱を用いて加熱装置６を加熱し、これによって加熱装置６は全熱交換器５を加熱する。より具体的には、ＣＯ除去部２ｃの外側面に溶接によって止着された配管２ｄの内部に充填された一次熱媒体（温度的要請から、シリコーンオイル等の油冷用媒体が適する）がＣＯ除去部２ｃから排出される廃熱によって加熱された後、前記一次熱媒体がポンプ１４の動作により熱交換器７の配管７ａの内部に所定の流量で送出される。これによって、熱交換器７の内部の二次熱媒体（取り扱いの容易さから、水が適する）が一定の温度（例えば、スタック１における所定の発電部位の動作温度が７０℃である場合には７８℃）に加熱される。そして、この一定の温度とされた二次熱媒体を加熱装置６に設けられている配管６ａの内部に流すことで加熱装置６は全熱交換器５を間接的に加熱し、これによって、全熱交換器５、即ちカソード側加湿回路５ａ及びアノード側加湿回路５ｂが所望の温度に保たれるようになる。尚、加熱装置６の温度制御は、例えば、前記二次熱媒体の温度が一定になるように前記一次熱媒体の循環量をポンプ１４で制御することによって行われる。

【００５３】

さて、燃料ガスが燃料ガス導入領域ｃにおいて上述の如く加湿及び加熱されてスタック１における所定の発電部位の動作温度より高い露点を有するように調整されると、その調整された燃料ガスは燃料ガス導入領域ｃからスタック１に送り込まれる。そして、スタック１に送り込まれた燃料ガスは、スタック１の内部に設けられている燃料ガス用流路１ｂを通過した後、全熱交換器５におけるアノード側加湿回路５ｂのアノード排気ガス導入領域ｄに送り込まれる。ここで、上述したように、このアノード排気ガス導入領域ｄに送り込まれるアノード排気ガスには全熱交換に必要な水が十分に含有されているので、アノード排気ガスは燃料ガスの加湿過程において好適に用いられる。その後、全熱交換器５における全熱交換に用いられたアノード排気ガスは、燃料側水回収器８に送り込まれる。燃料側水回収器８に送り込まれ、スタック１から全熱交換器５を経て排出されたアノード排気ガスは、燃料側水回収器８によって除湿される。燃料側水回収器８によってアノード排気ガスから得られた水は、燃料側蓄水タンク９に蓄えられる。この燃料側蓄水タンク９に蓄えられた水は、後述する酸化剤側蓄水タンク１１に送出される。又、除湿された乾燥状態のアノード排気ガスは、ここではポンプ１７によって改質器用バーナー３に供給され、この改質器用バーナー３での燃焼に用いられる。

【００５４】

一方、スタック１の発電運転に必要な酸化剤ガスを得るために、酸化剤ガスが全熱交換器５に供給される。つまり、前記酸化剤ガスは、空気供給装置４によって全熱交換器５におけるカソード側加湿回路５ａの酸化剤ガス導入領域ａに送り込まれる。すると、酸化剤ガス導入領域ａに導入された酸化剤ガスは、カソード排気ガス導入領域ｂに導入されるスタック１から排出されたカソード排気ガスとの間の全熱交換により、燃料ガスの場合と同様にして、スタック１における所定の発電部位の動作温度より高い露点を有するように調整される。この際、図１に示すように、スタック１と全熱交換器５とを接続するカソード排気ガスが流れる配管の所定位置には後述する酸化剤側蓄水タンク１１からポンプ１６を

介して延出する配管が接続されており、この延出する配管を通して、スタック１から排出されるカソード排気ガスに酸化剤側蓄水タンク１１から送出される水が加えられる。このように、スタック１から排出されるカソード排気ガスに水を添加するのは、そのスタック１から排出されるカソード排気ガスに全熱交換器５での全熱交換に必要な水が十分に含まれていないからである。尚、スタック１から排出されるカソード排気ガスに対する水の添加形態は、カソード排気ガスに対して水を噴霧する形態としても良いし、カソード排気ガスが流れる配管内に水を液状のままで導入する形態としても良い。これによって、発電に必要な好適な酸化剤ガスが生成される。そして、その調整された酸化剤ガスは、酸化剤ガス導入領域ａからスタック１に送り込まれる。このスタック１に送り込まれた酸化剤ガスは、スタック１の内部に設けられている酸化剤ガス用流路１ａを通過する。酸化剤ガス用流路１ａを通過し、スタック１から排出された発電に用いられなかったカソード排気ガスは、上述の如く水が添加された後、全熱交換器５のカソード側加湿回路５ａに設けられているカソード排気ガス導入領域ｂに送り込まれる。この送り込まれたカソード排気ガスは、全熱交換器５における燃料ガスとの全熱交換に用いられる。その後、全熱交換器５から排出される全熱交換に用いられなかったカソード排気ガスは、酸化剤側水回収器１０に送り込まれる。そして、この酸化剤側水回収器１０に送り込まれたカソード排気ガスは、酸化剤側水回収器１０によって除湿される。この際、酸化剤側水回収器１０によって得られた水は、酸化剤側蓄水タンク１１に蓄えられる。この酸化剤側蓄水タンク１１に蓄えられる水は、改質器２の改質部２ａにおける改質反応や、スタック１から排出されるカソード排気ガスへの添加に用いられる。尚、酸化剤側水回収器１０によって除湿されたカソード排気ガスは、大気中に放出される。

【００５５】

又、スタック１において発電が行われている間、スタック１は発熱する。そこで、スタック１の温度を一定に維持するために、ポンプ１８を動作させて、蓄水タンク１２に蓄えた冷却水をスタック１の内部に設けられた冷却水用流路１ｃを通過するように循環させる。つまり、前記冷却水は、ポンプ１８が動作することにより蓄水タンク１２からスタック１の内部に形成されている冷却水用流路１ｃを通過し、その後、再び蓄水タンク１２に戻るように移動する。尚、スタック１の発熱により温度上昇した蓄水タンク１２に戻された冷却水は、冷却用放熱器１３によって所定の温度に冷却される。

【００５６】

以上、固体高分子型燃料電池システム１００が上述の如く動作することによって、スタック１の図１では特に図示しない電力出力端子には、所定の電力が発生する。そして、使用者は、固体高分子型燃料電池システム１００に設けられ、スタック１の前記出力端子と電気的に接続された外部接続端子と、電子機器等の電源端子とを電気的に接続することによって、その電子機器等を正常に動作させることが可能になる。

【００５７】

上記の如く構成された固体高分子型燃料電池システム１００では、例えば、スタック１における所定の発電部位の動作温度が７０℃である場合、ＣＯ除去部２ｃからの廃熱を熱源として用いて全熱交換器５の温度を７８℃に維持し、これによってスタック１に供給する燃料ガス及び酸化剤ガスの露点を７２℃に調整する。その結果、その所定の発電部位の動作温度が７０℃に維持されたスタック１の内部では結露が発生し、これによってＭＥＡにおける固体高分子電解質膜の乾燥が全面的に防止される。つまり、固体高分子電解質膜が経時的に損傷し、その寿命が保てなくなるという現象を防止することが可能になる。その結果、低電流密度で定格運転される用途において用いられる固体高分子型燃料電池システムに関し、スタックで用いられる固体高分子電解質膜が常に必要十分な水分を含有しかつ維持し、長期に渡って安定した電力が供給可能な固体高分子型燃料電池システムを提供することが可能になる。

【００５８】

（実施の形態２）

本発明の実施の形態２では、改質器を備える固体高分子型燃料電池システムに関し、ア

ノード排気ガス又は燃料ガス前駆体等の可燃性ガスの一部を燃焼して得る熱を利用して過加湿状態の燃料ガス及び酸化剤ガスを生成しこれを燃料電池に供給する実施形態について説明する。

【００５９】

図２は、本発明の実施の形態２に係る固体高分子型燃料電池システムの構成を模式的に示すブロック図である。

【００６０】

図２に示すように、本発明の実施の形態２に係る固体高分子型燃料電池システム２００は、熱交換器７を加熱するための熱交換器用バーナー１９を有している。そして、全熱交換器５の加熱が、ＬＰＧや、ＬＮＧ、ガソリン、又は都市ガス等の燃料ガス前駆体、又は、燃料側水回収器８から排出されるアノード排気ガス等の可燃性ガスの一部が熱交換器用バーナー１９に供給され、その供給された燃料ガス前駆体又はアノード排気ガスを燃焼して熱交換器７の内部の熱媒体を加熱し、その加熱された熱媒体を全熱交換器５に着設された加熱装置６に供給することによって行われる。つまり、図２に示すように、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム２００では、前記燃料ガス前駆体が供給される図２では図示されない供給口と改質器２の改質部２ａとを接続する配管の途中に接続された配管と、燃料側水回収器８からポンプ１７を介して延出する配管に接続された配管とが三方弁２１に接続され、この三方弁２１と熱交換器用バーナー１９とが配管によって接続されている。そして、三方弁２１を適宜操作することにより、燃料ガス前駆体又はアノード排気ガスが配管を通じて熱交換器用バーナー１９に供給されるように構成されている。尚、熱交換器用バーナー１９の設置に伴って、図１に示した固体高分子型燃料電池システム１００における配管２ｄ、ポンプ１４及び配管７ａは削除されている。その他の点については、実施の形態１の場合と同様である。

【００６１】

このように構成された本実施の形態の固体高分子型燃料電池システム２００では、燃料ガス前駆体の大部分は改質器２で消費されるが、その一部は熱交換器用バーナー１９において熱媒体の加熱のために消費されることになる。又、熱交換器用バーナー１９にアノード排気ガスが供給される場合は、アノード排気ガスは、改質器用バーナー３と熱交換器用バーナー１９とにおいて各々消費される。従って、熱交換器用バーナー１９によって得られる熱は高温であるため、全熱交換器５の加熱が効率良く行われるようになる。又、スタック１に供給する燃料ガスはその全てが発電に利用されるのではなく一部はアノード排気ガスとして排出されるが、この排出されるアノード排気ガスの一部を全熱交換器５の加熱にも利用するため、燃料ガスの利用効率を改善することが可能になる。尚、スタック１から排出されるアノード排気ガスの排出量はスタック１に供給される燃料ガスの２０～３０％であり（例えば、燃料利用率が８０％であれば、アノード排気ガスの排出量は２０％）、通常はこれを廃棄せずに改質器２で燃焼して再利用する。ここで、スタック１から排出されるアノード排気ガスは多量の水を含むため高い燃焼温度を得ることが難しく、燃焼用ガスとしての品質は低い。しかしながら、本実施の形態では燃料側水回収器８によってアノード排気ガスが除湿されるため、燃焼用ガスとしての品質は向上している。つまり、熱交換器用バーナー１９において高い燃焼温度を得ることが可能である。尚、燃料側水回収器８を用いない場合でも、熱媒体の加熱に用いる分には何ら問題は生じない。

【００６２】

尚、本実施の形態では、アノード排気ガスを用いる場合、燃料側水回収器８から排出されるアノード排気ガスの一部を熱交換器７の加熱に用いるため、改質器２の温度維持に必要なアノード排気ガスが不足する場合がある。この場合、アノード排気ガスの不足分は、改質器用バーナー３に燃料ガス前駆体を供給することによって補う。これによって改質器２の改質効率は向上する。

【００６３】

又、実施の形態１において示した形態と比して改質器２と熱媒体の加熱との各々の熱収支が相互に独立しているため、各々独立した制御が可能となる。例えば、改質器２が起動

時或いは立ち下げ時において熱的に平衡していない状態でもスタック１へ供給する燃料ガス及び酸化剤ガスの加湿は独立して行うことが可能であり、全体としての制御が容易となる。

【００６４】

又、改質器２で生成された燃料ガスを熱交換器７における熱媒体の加熱に使用することも可能であるが、燃料ガスは改質前の燃料ガス前駆体よりも質の高いエネルギー源であるため、単に熱交換器用バーナー１９において燃焼させることが目的であれば、燃料ガス前駆体又はアノード排気ガスを消費した方が全体の発電効率上有利となる。尚、例えば車載用で高圧水素を燃料として用いる場合には、改質器２が不用になるため必然的に燃料ガスの一部を用いて熱媒体の加熱を行うことになる。この実施形態については、実施の形態５として後述する。しかし、この場合には、熱媒体の加熱のために高圧水素以外の別の燃料（ガソリン等）を搭載し、これを燃焼させる形態が有利となる。

【００６５】

（実施の形態３）

本発明の実施の形態３では、改質器を備える固体高分子型燃料電池システムに関し、燃料側水回収器及び酸化剤側水回収器によって除湿されたアノード排気ガスとカソード排気ガスとを触媒燃焼させて得る熱を利用して過加湿状態の燃料ガス及び酸化剤ガスを生成しこれを燃料電池に供給する実施形態について説明する。

【００６６】

図３は、本発明の実施の形態３に係る固体高分子型燃料電池システムの構成を模式的に示すブロック図である。

【００６７】

図３に示すように、本発明の実施の形態３に係る固体高分子型燃料電池システム３００は、全熱交換器５を直接的に加熱するために全熱交換器５に着設される触媒燃焼加熱装置２０を有している。この触媒燃焼加熱装置２０は、アノード排気ガスとカソード排気ガスとを導入するための触媒燃焼領域２０ａと、アノード排気ガスとカソード排気ガスとの触媒燃焼を行わせる触媒燃焼プレート２０ｂとを有している。ここで、触媒燃焼領域２０ａは、アノード排気及びカソード排気ガスを導入するための空間である。又、触媒燃焼プレート２０ｂは、触媒燃焼領域２０ａに導入されたアノード排気ガス及びカソード排気ガスによる触媒燃焼が行われる反応部位である。尚、触媒燃焼プレート２０ｂは、触媒燃焼を行うために必要十分な表面積を有している必要がある。そのため、図３に示すように、触媒燃焼プレート２０ｂの表面はここでは凹凸状に形成されている。又、この触媒燃焼プレート２０ｂを構成する材料としては、成形コージュライト等の一般に触媒燃焼用基材として使用される材料が好適である。そして、成形コージュライト等の触媒燃焼用基材の表面に、主に白金族からなる触媒層を形成した後に焼結することにより、触媒燃焼プレート２０ｂが形成される。

【００６８】

本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム３００は、触媒燃焼加熱装置２０を駆動するために、燃料側水回収器８と改質器用バーナー３とを接続する配管の途中から触媒燃焼領域２０ａに通じる配管が配設されると共に、酸化剤側水回収器１０から触媒燃焼領域２０ａに通じる配管が配設され、これらの配管を利用してスタック１から排出されたアノード排気ガス及びカソード排気ガスが触媒燃焼加熱装置２０に供給されるように構成されている。尚、触媒燃焼加熱装置２０の設置に伴って、図１に示した固体高分子型燃料電池システム１００における配管２ｄ、ポンプ１４及び１５、配管７ａ及び熱交換器７、配管６ａ及び加熱装置６は削除されている。その他の点については、実施の形態１の場合と同様である。

【００６９】

このように構成された本実施の形態の固体高分子型燃料電池システム３００では、スタック１から排出されかつ燃料側水回収器８で除湿されたアノード排気ガスの一部と、スタック１から排出されかつ酸化剤側水回収器１０で除湿されたカソード排気ガスとを触媒燃

焼加熱装置２０の触媒燃焼領域２０ａに導入し、その内部で触媒燃焼させて、アノード側加湿回路５ｂ及びカソード側加湿回路５ａを直接的に加熱する。尚、触媒燃焼加熱装置２０の燃焼温度の制御は、全熱交換器５の温度が一定となるように触媒燃焼領域２０ａへのアノード排気ガス又はカソード排気ガスの導入量を制御することによって行われる。又、全熱交換器５の動作温度はスタック１における所定の発電部位の動作温度に対して５～１０℃高くする必要があるが、アノード排気ガスとカソード排気ガスとの触媒燃焼はこの温度域で実現可能である。そして、このアノード排気ガスとカソード排気ガスとの触媒燃焼は全熱交換器５に着設された触媒燃焼プレート２０ｂで行われるため、これによって全熱交換器５を極めて効率良く加熱することが可能になる。又、触媒燃焼に使用するアノード排気ガス及びカソード排気ガスの量は僅少であり、固体高分子型燃料電池システム３００全体の発電効率を損なわない。又、触媒燃焼加熱装置２０は小型化が容易であるため、スタック１と一体化することによって固体高分子型燃料電池システム３００全体を小型化することが可能になる。尚、触媒燃焼加熱装置２０で使用されなかった余剰のアノード排気ガス及びカソード排気ガスの混合気体は、触媒燃焼加熱装置２０の外部に排出される。

【００７０】

尚、本実施の形態では、触媒燃焼加熱装置２０にアノード排気ガスとカソード排気ガスとを供給する形態について説明したが、アノード排気ガスに代えて改質器２が排出する燃料ガスを、カソード排気ガスに代えて空気供給装置４が供給する酸化剤ガスを、各々触媒燃焼加熱装置２０に供給する形態としても良い。又、アノード排気ガスと酸化剤ガスとの組み合わせ、或いは、燃料ガスとカソード排気ガスとの組み合わせのようにしても良い。このような構成としても、本実施の形態の場合と同様の効果を得ることが可能である。

【００７１】

（実施の形態４）

本発明の実施の形態４では、改質器を備える固体高分子型燃料電池システムに関し、発電中のスタックを冷却することによって温度上昇した冷却水の熱を利用して過加湿状態の燃料ガス及び酸化剤ガスを生成しこれを燃料電池に供給する実施形態について説明する。

【００７２】

図４は、本発明の実施の形態４に係る固体高分子型燃料電池システムの構成を模式的に示すブロック図である。

【００７３】

図４に示すように、本発明の実施の形態４に係る固体高分子型燃料電池システム４００は、発電中のスタック１を冷却して温度上昇した冷却水の熱で全熱交換器５を加熱するために、スタック１内に配設されている冷却水用流路１ｃの冷却水出口側の端部と加熱装置６の配管６ａの一端とが所定の配管によって接続されると共に、前記配管６ａの他端と蓄水タンク１２とが所定の配管によって接続され、これらの所定の配管を利用してスタック１から排出される温度上昇した冷却水が加熱装置６に供給されるように構成されている。尚、スタック１から排出される温度上昇した冷却水の熱を利用して全熱交換器５を加熱するため、図１に示した固体高分子型燃料電池システム１００における配管２ｄ、ポンプ１４及び１５、熱交換器７及び配管７ａは削除されている。その他の点については、実施の形態１の場合と同様である。

【００７４】

このように構成された本実施の形態の固体高分子型燃料電池システム４００では、スタック１から排出される温度上昇した冷却水を導入して加熱装置６を加熱し、この加熱された加熱装置６によって全熱交換器５のアノード側加湿回路５ｂ及びカソード側加湿回路５ａを間接的に加熱する。尚、加熱装置６の温度制御は、全熱交換器５の温度が一定となるように蓄水タンク１２への冷却水の戻り量を制御することによって行われる。又、全熱交換器５の動作温度はスタック１における所定の発電部位の動作温度に対して５～１０℃高くする必要があるが、スタック１から排出される冷却水の温度はスタック１の発電に伴って発生する熱により必要十分な温度まで上昇しているので、全熱交換器５を十分に加熱することが可能である。そして、本実施の形態によれば、スタック１を冷却して温度上昇し

た冷却水の熱が全熱交換器５の加熱に利用されるので、冷却用放熱器１３への負荷が低下し、エネルギー利用効率の良い固体高分子型燃料電池システムを構築することが可能になる。又、配管２ｄや熱交換器７、熱交換器用バーナー１９、触媒燃焼加熱装置２０等の構成要素が不要となり、装置構成を簡素化することができるので、安価な固体高分子型燃料電池システムを構築することが可能になる。

【００７５】

（実施の形態５）

本発明の実施の形態５では、改質器を備えず水素ボンベ等の水素供給手段を備える固体高分子型燃料電池システムに関し、アノード排気ガス又は燃料ガス（水素ガス）等の可燃性ガスの一部を燃焼して得る熱を利用して過加湿状態の燃料ガス及び酸化剤ガスを生成しこれを燃料電池に供給する実施形態について説明する。

【００７６】

図５は、本発明の実施の形態５に係る固体高分子型燃料電池システムの構成を模式的に示すブロック図である。

【００７７】

図５に示すように、本発明の実施の形態５に係る固体高分子型燃料電池システム５００の構成は、実施の形態２で示した固体高分子型燃料電池システム２００の構成と基本的に同一である。即ち、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム５００では、可燃性ガスが熱交換器用バーナー１９に供給され、この熱交換器用バーナー１９における可燃性ガスの燃焼によって熱交換器７が加熱され、この熱交換器７の加熱によって加熱装置６が加熱されることにより、全熱交換器５が所定の温度に加熱される。しかし、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム５００には、実施の形態１～４で設置されていた改質器２が設置されていない。そして、改質器２の代わりに、水素を供給可能な水素ボンベ２２が配設されている。つまり、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム５００では、水素ボンベ２２から供給される水素が用いられて、スタック１の発電運転が行われる。又、全熱交換器５の加熱が、水素ボンベ２２から供給される水素ガス、又は、燃料側水回収器８から排出されるアノード排気ガス等の可燃性ガスの一部が熱交換器用バーナー１９に供給され、その供給された水素ガス又はアノード排気ガスを燃焼して熱交換器７の内部の熱媒体を加熱し、その加熱された熱媒体を全熱交換器５に着設された加熱装置６に供給することによって行われる。つまり、図５に示すように、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム５００では、水素ボンベ２２の特に図示されない水素ガス供給口に接続された配管と、燃料側水回収器８からポンプ１７を介して延出する配管とが三方弁２１に接続され、この三方弁２１と熱交換器用バーナー１９とが所定の配管によって接続されている。そして、三方弁２１を適宜操作することにより、水素ガス又はアノード排気ガスが所定の配管を通じて熱交換器用バーナー１９に供給されるように構成されている。

【００７８】

又、本実施の形態では、スタック１への燃料ガスの供給が水素ボンベ２２によって行われる。この場合、水素ボンベ２２からスタック１に供給される水素ガスは、通常、乾燥状態とされている。そして、この乾燥状態の水素ガスを燃料ガスとして用いてスタック１に供給する場合、スタック１から排出されるアノード排気ガスは、スタック１の発電に伴って生成する水の一部を含有しているものの、全熱交換器５のアノード側加湿回路５ｂにおける全熱交換で必要となる量の水を含有していない。そこで、本実施の形態では、酸化剤側蓄水タンク１１に蓄えられている水を、スタック１と全熱交換器５とを接続するカソード排気ガスが流れる配管と、スタック１と全熱交換器５とを接続するアノード排気ガスが流れる配管との両方に添加する構成としている。そのため、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム５００では、酸化剤側蓄水タンク１１からポンプ１６を介して延出する配管が、スタック１と全熱交換器５とを接続するカソード排気ガスが流れる配管と、スタック１と全熱交換器５とを接続するアノード排気ガスが流れる配管との両方の配管に接続されている。これにより、スタック１から排出されるアノード排気ガスには、全熱交

換器５における全熱交換に必要十分な量の水が添加される。尚、水素ボンベ２２の設置に伴って、図２に示した固体高分子型燃料電池システム２００における改質器２、改質器２の改質部２ａに対して酸化剤側蓄水タンク１１に蓄えられている水を供給するための配管、及び燃料側水回収器８で除湿されたアノード排気ガスを改質器用バーナー３に供給するための配管は削除されている。その他の点については、実施の形態２の場合と同様である。

【００７９】

このように構成された本実施の形態の固体高分子型燃料電池システム５００では、熱交換器用バーナー１９に水素ガスが供給される場合、水素ガスの大部分はスタック１での発電のために消費されるが、その一部は熱交換器用バーナー１９において熱媒体の加熱のために消費される。又、熱交換器用バーナー１９にアノード排気ガスが供給される場合、アノード排気ガスの全量が熱交換器用バーナー１９において消費される。従って、熱交換器用バーナー１９における水素ガス又はアノード排気ガスの燃焼によって得られる熱は高温であるため、全熱交換器５の加熱が効率良く行われるようになる。又、実施の形態２の場合と同様、スタック１に供給する水素ガスはその全てが発電に利用されるのではなく一部はアノード排気ガスとして排出されるが、この排出されるアノード排気ガスを全熱交換器５の加熱に利用するため、水素ガスの利用効率を改善することが可能になる。尚、スタック１から排出されるアノード排気ガスは多量の水を含むため燃焼用ガスとしての品質は低いが、本実施の形態でも燃料側水回収器８によりアノード排気ガスが除湿されるため、熱交換器用バーナー１９において高い燃焼温度を得ることが可能となっている。更に、本実施の形態では、燃料ガスの供給源として水素ボンベ２２を用いるため、移動可能な固体高分子型燃料電池システム５００を提供することが可能になる。このような移動可能な固体高分子型燃料電池システム５００は、車載用燃料電池システムとして好適である。

【００８０】

（実施の形態６）

本発明の実施の形態６では、改質器を備えず水素ボンベ等の水素供給手段を備える固体高分子型燃料電池システムに関し、燃料側水回収器及び酸化剤側水回収器によって除湿されたアノード排気ガスとカソード排気ガスとを触媒燃焼させて得る熱を利用して過加湿状態の燃料ガス及び酸化剤ガスを生成しこれを燃料電池に供給する実施形態について説明する。

【００８１】

図６は、本発明の実施の形態６に係る固体高分子型燃料電池システムの構成を模式的に示すブロック図である。

【００８２】

図６に示すように、本発明の実施の形態６に係る固体高分子型燃料電池システム６００の構成は、実施の形態３で示した固体高分子型燃料電池システム３００の構成と基本的に同一である。即ち、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム６００では、酸化剤側水回収器１０で除湿されたカソード排気ガスと燃料側水回収器８で除湿されたアノード排気ガスとが触媒燃焼加熱装置２０に供給され、この触媒燃焼加熱装置２０におけるアノード排気ガスとカソード排気ガスとの触媒燃焼によって触媒燃焼加熱装置２０が加熱され、この触媒燃焼加熱装置２０の加熱によって全熱交換器５が所定の温度に加熱される。又、実施の形態５の場合と同様、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム６００においても改質器２は設置されておらず、改質器２の代わりに水素を供給可能な水素ボンベ２２が配設されている。つまり、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム６００でも、水素ボンベ２２から供給される水素が用いられて、スタック１の発電運転が行われる。又、実施の形態５の場合と同様、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム６００においても、スタック１から排出されるアノード排気ガス及びカソード排気ガスに対して、酸化剤側蓄水タンク１１に蓄えられている水が添加される。そのため、酸化剤側蓄水タンク１１からポンプ１６を介して延出する配管が、スタック１と全熱交換器５とを接続するカソード排気ガスが流れる配管と、スタック１と全熱交換器５とを接続す

るアノード排気ガスが流れる配管との両方の配管に接続されている。尚、水素ボンベ２２の設置に伴って、図３に示した固体高分子型燃料電池システム３００における改質器２、改質器２の改質部２ａに対して酸化剤側蓄水タンク１１に蓄えられている水を供給するための配管、及び燃料側水回収器８で除湿されたアノード排気ガスを改質器用バーナー３に供給するための配管は削除されている。その他の点については、実施の形態３及び実施の形態５の場合と同様である。

【００８３】

このように構成された本実施の形態の固体高分子型燃料電池システム６００では、実施の形態３の場合と同様、スタック１から排出されかつ燃料側水回収器８で除湿されたアノード排気ガスと、スタック１から排出されかつ酸化剤側水回収器１０で除湿されたカソード排気ガスとを触媒燃焼加熱装置２０の触媒燃焼領域２０ａに導入し、その内部で触媒燃焼させて、アノード側加湿回路５ｂ及びカソード側加湿回路５ａを直接的に加熱する。又、触媒燃焼加熱装置２０の燃焼温度の制御は、触媒燃焼領域２０ａへのアノード排気ガス又はカソード排気ガスの導入量を制御することによって行われる。そして、このアノード排気ガスとカソード排気ガスとの触媒燃焼は全熱交換器５に着設された触媒燃焼プレート２０ｂで行われるため、全熱交換器５を極めて効率良く加熱することが可能になる。この際、触媒燃焼に使用するアノード排気ガス及びカソード排気ガスの量は僅少であるため、固体高分子型燃料電池システム６００全体の発電効率を損なうことは無い。即ち、このような構成としても、実施の形態３及び実施の形態５の場合と同様の効果を得ることが可能である。

【００８４】

尚、本実施の形態においても、実施の形態３の場合と同様、触媒燃焼加熱装置２０にアノード排気ガスとカソード排気ガスとを供給する形態について説明したが、アノード排気ガスに代えて水素ボンベ２２が供給する水素ガスを、カソード排気ガスに代えて空気供給装置４が供給する酸化剤ガスを、各々触媒燃焼加熱装置２０に供給する形態としても良い。又、アノード排気ガスと酸化剤ガスとの組み合わせ、或いは、水素ガスとカソード排気ガスとの組み合わせのようにしても良い。このような構成としても、本実施の形態の場合と同様の効果を得ることが可能である。

【００８５】

（実施の形態７）

本発明の実施の形態７では、改質器を備えず水素ボンベ等の水素供給手段を備える固体高分子型燃料電池システムに関し、発電中のスタックを冷却することによって温度上昇した冷却水の熱を利用して過加湿状態の燃料ガス及び酸化剤ガスを生成しこれを燃料電池に供給する実施形態について説明する。

【００８６】

図７は、本発明の実施の形態７に係る固体高分子型燃料電池システムの構成を模式的に示すブロック図である。

【００８７】

図７に示すように、本発明の実施の形態７に係る固体高分子型燃料電池システム７００の構成は、実施の形態４で示した固体高分子型燃料電池システム４００の構成と基本的に同一である。即ち、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム７００では、発電中のスタック１を冷却することによって温度上昇した冷却水が加熱装置６の配管６ａに導入され、この導入される温度上昇した冷却水の熱によって加熱装置６が加熱され、この加熱された加熱装置６によって全熱交換器５が所定の温度に加熱される。又、実施の形態５及び実施の形態６の場合と同様、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム７００においても改質器２は設置されておらず、改質器２の代わりに水素を供給可能な水素ボンベ２２が配設されている。つまり、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム７００でも、水素ボンベ２２から供給される水素が用いられて、スタック１の発電運転が行われる。又、実施の形態５及び実施の形態６の場合と同様、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池システム７００においても、スタック１から排出されるアノード排気ガス

及びカソード排気ガスに対して、酸化剤側蓄水タンク１１に蓄えられている水が添加される。尚、スタック１から排出されるアノード排気ガス及びカソード排気ガスに水を添加する構成については、実施の形態５及び実施の形態６の場合と同様である。又、水素ボンベ２２の設置に伴って、図４に示した固体高分子型燃料電池システム４００における改質器２、改質器２の改質部２ａに対して酸化剤側蓄水タンク１１に蓄えられている水を供給するための配管、及び燃料側水回収器８で除湿されたアノード排気ガスを改質器用バーナー３に供給するための配管及びポンプ１７は削除されている。その他の点については、実施の形態４、実施の形態５及び実施の形態６の場合と同様である。

【００８８】

このように構成された本実施の形態の固体高分子型燃料電池システム７００では、実施の形態４の場合と同様、スタック１から排出される温度上昇した冷却水を導入して加熱装置６を加熱し、この加熱された加熱装置６によって全熱交換器５のアノード側加湿回路５ｂ及びカソード側加湿回路５ａを間接的に加熱する。又、加熱装置６の温度制御は、全熱交換器５の温度が一定となるように蓄水タンク１２への冷却水の戻り量を制御することによって行われる。そして、実施の形態４の場合と同様、本実施の形態によっても、スタック１を冷却して温度上昇した冷却水の熱が全熱交換器５の加熱に利用されるので、冷却用放熱器１３への負荷が低下し、エネルギー利用効率の良い固体高分子型燃料電池システムを構築することが可能になる。又、固体高分子型燃料電池システムの構成を簡素化することができるので、安価な固体高分子型燃料電池システムを構築することが可能になる。即ち、このような構成としても、実施の形態４、実施の形態５及び実施の形態６の場合と同様の効果を得ることが可能である。

【００８９】

（実施の形態８）

本発明の実施の形態８では、実施の形態１～７で示した固体高分子型燃料電池システム１００～７００に関し、スタック１と全熱交換器５とを一体化し、その一体化されたスタック１と全熱交換器５との全体を断熱剤によって覆うことによって、全熱交換器５から排出される燃料ガス及び酸化剤ガスからの熱の放出を低減する形態を示す。

【００９０】

本実施の形態によれば、全熱交換器５によってスタック１における所定の発電部位の動作温度より高い露点を有するように調整された燃料ガス及び酸化剤ガスがスタック１に供給される際、全熱交換器５とスタック１とを接続する前記燃料ガス及び酸化剤ガスが流れる配管からの放熱が断熱剤によって阻止されるため、前記調整された燃料ガス及び酸化剤ガスの状態を変化させずにスタック１に供給することが可能になる。つまり、ＭＥＡ及び固体高分子電解質膜が十分にかつ効果的に加湿されるため、長期的に安定して動作する固体高分子型燃料電池システム１００～７００を構築することが可能になる。又、全熱交換器５を加熱する際の加熱損失を最小限に抑えることが可能になる。そのため、全熱交換器５において水蒸気過飽和状態の燃料ガス及び酸化剤ガスを容易にかつ効率良く生成することが可能になる。

【００９１】

（実施例１）

セルを３０個積層して形成したスタックを用い、電池寿命特性に対する燃料ガス及び酸化剤ガスの含水量の影響に関する試験を行った。

【００９２】

図８は、スタックを電流密度が０．７Ａ／ｃｍ^{2}となるようにして動作させた場合の電池寿命特性を示すグラフである。一方、図９は、スタックを電流密度が０．２Ａ／ｃｍ^{2}となるようにして動作させた場合の電池寿命特性を示すグラフである。尚、図８及び図９に示すグラフの横軸は運転時間（Ｈｒ）を、縦軸は各セルの電池電圧の平均値（ｍＶ）を示している。又、本試験では、スタックを動作させる際の燃料利用率（Ｕｆ）を７５％とし、空気利用率（Ｕｏ）を４０％とし、スタックにおける所定の発電部位の動作温度を７０℃とした。

【００９３】
尚、図８では、供給する燃料ガスの露点（以下、Ｔｄａ）及び酸化剤ガスの露点（以下、Ｔｄｃ）に関し、曲線VIIIａはＴｄａ＝Ｔｄｃ＝６０℃、曲線VIIIｂはＴｄａ＝Ｔｄｃ＝６４℃、曲線VIIIｃはＴｄａ＝Ｔｄｃ＝６６℃、曲線VIIIｄはＴｄａ＝Ｔｄｃ＝６８℃、曲線VIIIｅはＴｄａ＝Ｔｄｃ＝７０℃とした場合の電池寿命特性を示している。又、図９では、曲線IXａはＴｄａ＝Ｔｄｃ＝７４℃、曲線IXｂはＴｄａ＝Ｔｄｃ＝７２℃、曲線IXｃはＴｄａ＝Ｔｄｃ＝６８℃、曲線IXｄはＴｄａ＝Ｔｄｃ＝６５℃、曲線IXｅはＴｄａ＝Ｔｄｃ＝６０℃とした場合の電池寿命特性を示している。

【００９４】
図８から明らかなように、スタックが高電流密度（０．７Ａ／ｃｍ^2）で使用される場合には、燃料ガス及び酸化剤ガスの露点がスタックにおける所定の発電部位の動作温度と比して低くなるにつれて、より良好な電池寿命特性が得られることが分かった。一方、図９から明らかなように、スタックが低電流密度（０．２Ａ／ｃｍ^2）で使用される場合には、燃料ガス及び酸化剤ガスの露点がスタックにおける所定の発電部位の動作温度と比して高くなるにつれて、より良好な寿命特性が得られることが分かった。つまり、発電効率を重視するために低電流密度で定格運転される定置用コージェネレーションシステム等の用途においては、供給する燃料ガス及び酸化剤ガスの露点をスタックにおける所定の発電部位の動作温度より高くすることによって、良好な電池寿命特性が得られることが判明した。

【００９５】
次に、上記現象について更に詳細に解析するために、スタックの寿命低下を引き起こす原因の調査に関する試験を行った。

【００９６】
図１０は、スタック（セル）の寿命低下の原因を調査する試験方法について説明するための模式図である。この図１０は、スタック（セル）から取り出したＭＥＡ３０ａを支持するＭＥＡユニット３０の状態を示している。そして、燃料ガス接触経路３０ｂは、ＭＥＡ３０ａの第１の主面１０１と、燃料ガス供給口３０ｃ又は３０ｄを介して導入された燃料ガスとが接触していた経路を示している。又、ＭＥＡ３０ａの第２の主面１０２には、酸化剤ガス供給口３０ｅ又は３０ｆを介して導入された酸化剤ガスが接触していた、ここでは図示されない燃料ガス接触経路３０ｂと同様の酸化剤ガス接触経路が存在している。

【００９７】
本試験は、スタックを７０℃で２０００時間連続運転した後に一旦その運転を停止し、停止したそのスタックからセルを１個抜き取り、その後、再度７０℃で２０００時間運転するという間欠運転を繰り返して行うことによって実施した。そして、前記抜き取った各々のセルからＭＥＡを各々摘出し、そのＭＥＡを図１０に示すようにNO.１～NO.１８の１８枚に切断し、その切断された個々のＭＥＡについて電池開放電圧の測定と外観の観察を行うことによってＭＥＡの損傷箇所及び損傷原因の特定を行い、これによってスタックの寿命低下の原因を調査した。尚、スタックを運転する際の燃料ガス及び酸化剤ガスのフローパターンとしては、燃料ガス供給口３０ｃから３０ｄの方向へ燃料ガスを流しかつ酸化剤ガス供給口３０ｅから３０ｆの方向へ酸化剤ガスを流すフローパターン１と、燃料ガス供給口３０ｄから３０ｃの方向へ燃料ガスを流しかつ酸化剤ガス供給口３０ｅから３０ｆの方向へ酸化剤ガスを流すフローパターン２との両方について実施した。又、前記電池開放電圧とは無負荷時における電池電圧であり、通常、初期状態で１セル当たり０．９８Ｖ程度の値を示すものである。電池開放電圧の低下は、主にＭＥＡにおける固体高分子電解質膜の損傷によることが分かっている。

【００９８】
図１１～図１６は、スタックの寿命低下の原因を調査した試験結果を示すグラフである。ここで、図１１は電流密度０．７Ａ／ｃｍ^2（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝６８℃，フローパターン１）で運転した場合の試験結果であり、図１２は電流密度０．７Ａ／ｃｍ^2（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝６０℃，フローパターン１）で運転した場合の試験結果である。又、図１３は電

流密度０．２Ａ／ｃｍ^2（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝７２℃，フローパターン１）で運転した場合の試験結果であり、図１４は電流密度０．２Ａ／ｃｍ^2（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝７０℃，フローパターン１）で運転した場合の試験結果であり、図１５は電流密度０．２Ａ／ｃｍ^2（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝６８℃，フローパターン１）で運転した場合の試験結果であり、図１６は電流密度０．２Ａ／ｃｍ^2（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝７０℃，フローパターン２）で運転した場合の試験結果である。又、図１１～図１６では、運転時間が０時間である場合の曲線と、運転時間が２０００時間である場合の曲線と、運転時間が４０００時間である場合の曲線と、運転時間が６０００時間である場合の曲線と、運転時間が８０００時間である場合の曲線と、運転時間が１００００時間である場合の曲線とを、各々試験結果として示している。尚、図１１～図１６に示したグラフの横軸は図１０で示したサンプルナンバーであり、縦軸は電池開放電圧（ｍＶ）を示している。

【００９９】

本試験により得られた結果について、図面を参照しながら説明する。

【０１００】

図１１及び図１２に示すように、電流密度が０．７Ａ／ｃｍ^{2}の場合には、サンプリングした１８枚のＭＥＡ全てについて、スタックにおける所定の発電部位の動作温度での飽和水蒸気量に対して燃料ガス及び酸化剤ガスが比較的乾燥状態（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝６０℃；図１２参照）であっても、又、燃料ガス及び酸化剤ガスが比較的湿潤状態（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝６８℃；図１１参照）であっても、長時間運転後における電池開放電圧の低下は認められなかった。即ち、電流密度が０．７Ａ／ｃｍ^{2}である場合に発生する電池寿命の低下は、ＭＥＡ又は固体高分子電解質膜の物理的損傷によるものではなく、主にアノード触媒層及びカソード触媒層若しくはアノードガス拡散電極及びカソードガス拡散電極の経時的な濡れの進行（経時的に親水性が増大していく現象）によってガス透過が妨げられる、経時的フラッディング現象によるものと考えられる。

【０１０１】

一方、図１３～図１６に示すように、電流密度が０．２Ａ／ｃｍ^{2}である場合には、燃料ガス及び酸化剤ガスの含水量がスタックにおける所定の発電部位の動作温度での飽和水蒸気量を超える運転条件（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝７２℃；図１３参照）では長時間運転後における電池開放電圧の低下は認められなかったが、その他の運転条件（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝７０℃；図１４及び図１６参照、Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝６８℃；図１５参照）では、局部的或いはＭＥＡの全体で電池開放電圧の低下が認められた。そして、その電池開放電圧の低下の程度は、燃料ガス及び酸化剤ガスに含まれる水分量が低いほど甚だしいことが確認された（図１５参照）。又、この時、サンプリングした１８枚のＭＥＡの外観を詳細に観察した結果、燃料ガス及び酸化剤ガスに含まれる水量の不足に起因するＭＥＡ又は固体高分子電解質膜の物理的な損傷が認められた。又、その損傷の発生部位は、図１４及び図１５ではサンプルNO.１及びNO.６であり、図１６ではサンプルNO.６及びNO.１３であることから、燃料ガス及び酸化剤ガスをスタックに供給する供給口付近であることが判明した。

【０１０２】

以上の試験結果から、低電流密度で運転される固体高分子型燃料電池システムにおいては、燃料ガス及び酸化剤ガスをスタックにおける所定の発電部位の動作温度での飽和水蒸気量以下の乾燥状態として運転することによってＭＥＡ又は固体高分子電解質膜が物理的に破壊され、これによってスタック（セル）の寿命低下が引き起こされることが明らかになった。つまり、発電時に生成される水量は電流密度に依存するため、固体高分子型燃料電池システムが高電流密度で運転される場合にはＭＥＡ又は固体高分子電解質膜の乾燥よりもフラッディング現象が問題となり、従って、この発電に伴って生成する水を排除するために供給する燃料ガス及び酸化剤ガスの露点をスタックにおける所定の発電部位の動作温度より低くすることは推奨されることである。しかし、固体高分子型燃料電池システムを低電流密度で運転する場合には、上記とは逆に、フラッディング現象よりもＭＥＡ又は固体高分子電解質膜の乾燥が、電池寿命が低下する要因となることが判明した。

【０１０３】

上述したように、ＭＥＡ又は固体高分子電解質膜の損傷部位は、燃料ガス及び酸化剤ガスをスタックに供給する供給口付近に集中する。これは、スタック（セル）においては両極とも燃料ガス及び酸化剤ガスの入口付近が最も乾燥しやすい部分であることに起因する。即ち、カソード側においては、発電のための触媒反応に伴って発生する生成水によって酸化剤ガスが供給口から排出口に進むにつれて水蒸気過飽和状態になっていくためである。又、アノード側においては、燃料ガスも供給される水蒸気も発電のための触媒反応によって消費されるが、特にカソード側で過剰となる生成水は容易に固体高分子電解質膜を逆拡散するために、実際には供給された水蒸気の消費速度より燃料ガスの消費速度が速く、結果的に燃料ガスが供給口から排出口に進むにつれて水蒸気過飽和状態になっていくためである。従って、供給する燃料ガス及び酸化剤ガスの含水量はスタックへの導入口において既に過飽和状態である必要があり、これが保証されて初めてＭＥＡの全領域に渡って乾燥部位が無くなり、スタックの寿命の低下が防止され得ると結論付けられた。

【０１０４】

燃料ガス及び酸化剤ガスが乾燥状態にある場合においてＭＥＡ又は固体高分子電解質膜が破壊される現象については、未だその発生メカニズムは完全には判明していない。しかし、本発明者らは、ＭＥＡ又は固体高分子電解質膜の損傷は、ＭＥＡで発生した熱の発生様式及び冷却様式が関係していると推測している。以下、ＭＥＡ等が破壊される発生メカニズムに関する考察結果について述べる。

【０１０５】

ＭＥＡ等の冷却は、良熱伝導体でもあるアノードガス拡散電極及びカソードガス拡散電極を介してセパレータの冷却によってなされる伝熱冷却と、触媒反応で生成する水若しくは水蒸気による熱交換冷却とが協調して行われる。即ち、ＭＥＡで発生した熱は、第１次的にＭＥＡが内包する水或いは接する水によって除去され、第２次的にアノードガス拡散電極及びカソードガス拡散電極、及びセパレータに伝熱された後に、冷却水によって除去される。つまり、水又は水蒸気はスタックの内部で冷却用熱媒体（冷媒）として働く。尚、燃料ガス及び酸化剤ガスの比熱は水に比べ圧倒的に小さいため、冷媒としての作用は無視し得る程度であると考えられる。

【０１０６】

一方、厚みが約３０～５０μｍである固体高分子電解質膜は、通常、水素イオン伝導体であると同時に若干の燃料ガス（水素ガス）透過性を示す。そして、その透過量は、固体高分子電解質膜の含水率が上昇するほど低下する。つまり、含有水によって燃料ガスの透過が妨げられる。従って、スタックにおける所定の発電部位での動作温度以下の露点に調整された乾燥した燃料ガス及び酸化剤ガスが供給されて固体高分子型燃料電池システムが運転される場合、固体高分子電解質膜には、発電のための触媒反応に伴って発生する熱と、燃料ガスの透過による触媒燃焼に伴って発生する熱とが共存することになる。

【０１０７】

ところで、セルの発電効率は、実際の電池電圧を理論起電力（１．４８Ｖ）で除した数値で与えられる。例えば、セル電圧が０．７４Ｖの場合には、そのセルの発電効率は５０％である。そして、発電のための触媒反応に伴う発熱は、全エネルギー量からこの発電効率を差し引いた分である。上記の場合、前記触媒反応に伴う発熱量は、全エネルギーの５０％である。ところが、固体高分子電解質膜を透過する燃料ガスがカソード側で触媒燃焼する場合には、その触媒燃焼によって生じたエネルギーは全て熱に転換する。そのため、この両者が共存する環境、即ち、燃料ガス及び酸化剤ガスが乾燥状態で供給される発電では、スタック（セル）の発電量に比して、その発熱量が多くなる。つまり、ＭＥＡの乾燥部位においては、発熱量が多く、その冷却が不十分となる。そして、乾燥部位においてＭＥＡが益々乾燥するという悪循環が生じるため、時間の経過と共に燃料ガスの透過が促進され、これによって生じる過剰な発熱により、固体高分子電解質膜の損傷が発生すると考えている。

【０１０８】

又、ＭＥＡの一領域を考えた場合、ＭＥＡに接する燃料ガス及び酸化剤ガスの露点がス

タックにおける所定の発電部位の動作温度（つまり、前記所定の発電部位における冷却水の温度）と同等であり、つまり発電中のＭＥＡの温度より低い場合には、固体高分子電解質膜に接する、或いは固体高分子電解質膜が内包する水は気化して燃料ガス及び酸化剤ガス中に溶存していく余地がある。即ち、固体高分子電解質膜からは水が奪われる。一方、その奪われた水が存在していた箇所は、この微小領域で生成した水によって直接的に、若しくはＭＥＡの他の部位で余剰となった水の移動によって間接的に補償されるであろうが、前記水の奪われる速度がこの補償される速度に対して早い場合には、この領域の固体高分子電解質膜は一方的に乾燥が進行するはずである。

【０１０９】

又、スタック（セル）においては、カソード側において発電のための触媒反応に伴って生成される水によって、供給される酸化剤ガスが供給口から排出口に進むにつれて水蒸気過飽和状態となっていく。又、アノード側においては、燃料ガスも供給される水蒸気も発電のための触媒反応によって消費されるが、特にカソード側で過剰となる水が容易に固体高分子電解質膜を逆拡散してくるため、実際には供給された水蒸気の消費速度よりも燃料ガスの消費速度が速く、結果的に供給口から排出口に進むにつれて水蒸気過飽和状態になっていく。

【０１１０】

これらの観点から燃料ガス及び酸化剤ガスの供給口近傍におけるＭＥＡについて考えると、供給される燃料ガス及び酸化剤ガスの露点がスタックにおける所定の発電部位の動作温度と等しくとも、この露点はＭＥＡの温度より低いわけであるから、ＭＥＡから見て水蒸気を溶かす余地のある燃料ガス及び酸化剤ガスが連続的に供給され、かつＭＥＡの他の領域と異なり上流からの余剰水の補充がないわけであるから、乾燥が進行するのは自明である。

【０１１１】

従って、供給する燃料ガス及び酸化剤ガスの露点は、スタックにおける所定の発電部位の動作温度よりも高い温度（つまり、過飽和状態）である必要がある。そして、これが保証されて初めて、ＭＥＡの全領域に渡って乾燥部位が無くなり、その経時的な劣化を防止し得るのである。

【０１１２】

そこで、供給する燃料ガス及び酸化剤ガスが含有する望ましい水蒸気量についてであるが、図１４のグラフに示した実験結果によれば、燃料ガス及び酸化剤ガスの露点をスタックにおける所定の発電部位の動作温度と等しくした場合では水蒸気量は不足であり、これより更に高い露点（つまり、過飽和状態）を有していることが好ましい。これは、発電中のＭＥＡの温度は、スタックの動作温度に比して若干高いためである。

【０１１３】

（実施例２）

実施例１の場合と異なる仕様を有する他の１ｋｗ級固体高分子型燃料電池システムを用いて、その固体高分子型燃料電池システムに供給する燃料ガス、酸化剤ガス、及び水の収支について実測した。尚、本実施例で用いた固体高分子型燃料電池システムの仕様は、電極面積が１６９ｃｍ^{2}であり、セルの積層段数が５０段であり、定格電流密度が０．２Ａ／ｃｍ^{2}である。又、基本的な運転条件として、燃料ガスには水蒸気改質法によって生成した２０％の二酸化炭素を含有する水素ガスを用い、酸化剤ガスには空気を用いた。更に、燃料ガス及び酸化剤ガスの露点を６４℃とした。この場合、燃料利用率は７５％であり、空気利用率は５０％であった。

【０１１４】

このように構成された固体高分子型燃料電池システムにおける理論物質収支は、以下の通りである。即ち、発電に係る基本的な化学反応式は式（１）に示す通りである。

【０１１５】

$H_2+(1/2)O_2 \rightarrow H_2O$・・・（１）

この場合、発電に係る化学反応における単位時間当たりの反応モル数は、式（２）に示

すように求められる。

【０１１６】

５０（段）×１６９（ｃｍ^2）×０．２（Ａ／ｃｍ^2）／（９６５００×２）＝０．００８７５６４（ｍｏｌ／秒）・・・（２）

従って、発電に必要となる水素量は、式（３）に示すように求められる。

【０１１７】

０．００８７５６４（ｍｏｌ／秒）×６０（秒）×２２．４（Ｌ）／０．７５（Ｕｆ）＝１５．６９（ＮＬ／分）・・・（３）

これより、発電に必要となる燃料ガスの供給量は、式（４）に示すように求められる。

【０１１８】

１５．６９（ＮＬ／分）／０．８（水素分圧）＝１９．６１（ＮＬ／分）・・・（４）

又、発電に必要となる酸素量は、式（５）に示すように求められる。

【０１１９】

（１／２）×０．００８７５６４（ｍｏｌ／秒）×６０（秒）×２２．４（Ｌ）／０．５（Ｕｏ）＝１１．７６（ＮＬ／分）・・・（５）

これより、発電に必要となる空気の供給量は、式（６）に示すように求められる。

【０１２０】

１１．７６（ＮＬ／分）／０．２（酸素分圧）＝５８．８４（ＮＬ／分）・・・（６）

一方、水の収支に関しては、以下の通りとなる。即ち、６４℃における飽和水蒸気分圧は１７９．３８ｍｍＨｇであるので、アノード側の必要加湿量は式（７）に示すように求められる。

【０１２１】

１９．６１（ＮＬ／分）×（１／（７６０（ｍｍＨｇ）－１７９．３８（ｍｍＨｇ））－１）×（１８／２２．４（Ｌ））＝４．８７（ｇ／分）・・・（７）

又、カソード側の必要加湿量は、式（８）に示すように求められる。

【０１２２】

５８．８４（ＮＬ／分）×（１／（７６０（ｍｍＨｇ）－１７９．３８（ｍｍＨｇ））－１）×（１８／２２．４（Ｌ））＝１４．６１（ｇ／分）・・・（８）

又、発電に伴って生成する水の量の理論値は、式（９）に示すように求められる。

【０１２３】

０．００８７５６４（ｍｏｌ／秒）×６０（秒）×１８＝９．４５（ｇ／分）・・・（９）

この固体高分子型燃料電池システムにおける実質的な水の収支を測定するため、上記の運転条件によって定格運転し、この際に排出されたカソード排気ガス及びアノード排気ガスに含まれる水を氷冷水で冷却して回収した。この際の各々の排出水量は、カソード排気ガスについては２０．５２ｇ／分（＝投入水＋５．９１ｇ；露点換算７１．５℃）であり、アノード排気ガスについては７．６５ｇ／分（＝投入水＋２．７８ｇ；露点換算８４℃）であった。そして、回収が不能であった水の量は、式（１０）に示すように求められた。つまり、この場合の水の回収率は９７％であった。

【０１２４】

（４．８７（ｇ／分）＋１４．６１（ｇ／分）＋９．４５（ｇ／分））－（１９．５２（ｇ／分）＋８．６５（ｇ／分））＝０．７６（ｇ／分）・・・（１０）

一般的に、固体高分子型燃料電池システムにおいては、アノード側に投入した水が水素の移動と同方向に移動する同伴水移動と、カソード側における生成水が電解質膜を介してアノード側に移動する逆拡散移動とが存在するとされている。又、実際の運転状況においては、複雑かつダイナミックな水の移動があると考えられる。しかし、量についてのみ着目した場合、アノード側及びカソード側共に投入した水の量以上の排水量があり、生成水が適当に分配されていることが判明した。

【０１２５】

又、この結果は、概ね７０％以上の効率で生成水を回収することによって、上記固体高

分子型燃料電池システムが水量的には自立して動作することを示している。

【０１２６】

（実施例３）

全熱交換器の基礎特性を調査するため、上記１ｋｗ級固体高分子型燃料電池システムを駆動するためのカソード側全熱交換器を試作し、以下に示す試験を行った。ここで、本実施例で用いるカソード側全熱交換器は、スタックから排出されるカソード排気ガス（一次側空気）とスタックに供給する酸化剤ガス（二次側空気）とを全熱交換膜（ここでは、ジャパンゴアテックス社製３０μ厚ゴアセレクト）で仕切って全熱交換を行わせる膜式全熱交換器である。又、本実施例では、全熱交換部の一段に付き一段の温度調節用水回路が各々の背面に設けられている、スタック近似の3流体形全熱交換器とした。又、全熱交換部の一段当たりの熱交換面積は１５０ｃｍ^{2}とし、これを２０段積層することによって総熱交換面積を３０００ｃｍ^{2}とした。尚、本全熱交換器の流路を構成するセパレータとしては切削カーボンセパレータ（東海カーボン社製）を用い、接膜部媒体としてはシリカゲルで親水処理を施した厚み０．４ｍｍの炭素繊維布（日本カーボン社製）を用いた。

【０１２７】

このように構成された全熱交換器を用いて、先ず、温水加湿試験と、供給する酸化剤ガスとカソード排気ガスとの全熱交換試験との２種類の試験を行った。ここで、温水加湿試験とは、上記系において、一次側を水封した場合における供給可能な露点を二次側空気の流量と全熱交換器の内部温度との関係において明らかにする試験であり、上記全熱交換器の膜面積によって最大どの程度の空気が加湿可能であるかを検証する試験である。一方、全熱交換試験では、上記１ｋｗ級固体高分子型燃料電池システムの定格流量に準じ、水を受け取る側である二次側の空気流量（つまり、スタックへの空気供給側）を５８．８４ＮＬと設定し、水を供給する側である一次側の空気流量（つまり、スタックからの空気排出側であり、Ｕｏ＝５０である場合に供給空気×０．９の流量となる）を５２．９５ＮＬと設定した。又、二次側空気としては乾燥状態のドライエアを用い、一次側空気としては温度制御されたバブラーを通して加湿された空気を用いた。又、全熱交換器が有する内部温水回路には温度制御された温水を２Ｌ／分の割合で流し、これによって全熱交換器の内部温度を制御した。そして、このように構成した試験系によって、全熱交換器の内部温度と供給可能な露点とを、一次側供給露点との関係において明らかにする試験とした。

【０１２８】

図１７は、温水加湿試験の試験結果について示している。又、図１８は、全熱交換試験の試験結果について示している。尚、図１７及び図１８において、横軸は全熱交換器の内部温度（℃）を示しており、縦軸は二次側排出露点（℃）を示している。

【０１２９】

図１７に示すように、温水加湿試験の試験結果によれば、全熱交換器の一次側が水封された場合、定格流量の２倍程度までは、概ね全熱交換器の内部温度（温水温度）と等しい露点の水蒸気を供給することが可能であることが分かった。一方、定格流量の３倍以上では、全熱交換器の内部温度と等しい露点の水蒸気を供給することは不可能であることが分かった。ここで、二次側空気の流量が増大した場合に供給可能な露点が低下する理由は、熱交換部において潜熱冷却が発生し、これによって熱交換部の温度が低下するためであると考えられる。又、この状態は、熱交換部の温度低下に対する熱の補償が、セパレータや他の媒介物の熱伝導率の制約によって十分に実施されていない状態であると考えられる。以上が本実施例における全熱交換器の基礎的な性質であり、一次側に水が供給され、この水を気化するための必要十分な熱が供給されれば、定格流量において十分な性能を発揮することが分かった。

【０１３０】

一方、図１８に示すように、全熱交換試験の試験結果によれば、全熱交換器の内部温度の低い領域における二次側排出露点は内部温度依存型となり、内部温度の高い領域では一次側供給露点に応じた一定の値を取ることが分かった。これは、内部温度の低い領域では一次側供給水蒸気が結露して一次側流路に滞留するので温水加湿器と同様な挙動を示し、

結露が発生しない内部温度の高い領域では投入した水蒸気との平衡によって露点が一義的に決まるもとの解された。結果として、実施例２に示したカソード排気ガスの水量（露点換算７１℃）では、内部温度を如何に上昇させても、スタックに供給する酸化剤ガスの露点は６４℃程度に留まることが分かった。

【０１３１】

次に、供給する酸化剤ガスと水を添加したカソード排気ガスとの全熱交換試験について説明する。

【０１３２】

この全熱交換試験では、上記１ｋｗ級固体高分子型燃料電池システムの定格流量に準じ、水を受け取る側である二次側の空気流量（つまり、スタックへの空気供給側）を５８．８４ＮＬと設定し、水を供給する側である一次側の空気流量（つまり、スタックからの空気排出側であり、Ｕｏ＝５０である場合に供給空気×０．９の流量となる）を５２．９５ＮＬと設定した。又、二次側空気としては、乾燥状態のドライエアを用いた。又、一次側空気としては、７１℃に温度制御された、バブラーを通して加湿されかつ１０ｇ／分に割合で６０℃の水が添加された空気を用いた。更に、全熱交換器が有する内部温水回路には温度制御された温水を２Ｌ／分の割合で流し、これによって全熱交換器の内部温度を制御した。

【０１３３】

図１９は、上記全熱交換試験の試験結果について示している。尚、図１９において、横軸は全熱交換器の内部温度（℃）を示しており、縦軸は二次側排出露点（℃）を示している。

【０１３４】

図１９に示すように、供給する酸化剤ガスと水を添加したカソード排気ガスとの全熱交換では、供給する酸化剤ガスの露点は、温水加湿器を用いた場合と概ね類似する挙動を示すことが分かった。又、全熱交換器の内部温度が７０℃以下である場合には、内部温度に対して直線性の良い露点が得られることが分かった。

【０１３５】

以上の試験結果から明らかなように、膜式全熱交換器においては、一次側に対して充分な水が供給されれば、全熱交換器の内部温度の調節のみによって概ね所望の露点が得られることが分かった。そして、カソード排気ガスに含まれる水のみでは平衡による制約があり、一次側に液体状態の水を添加することによって、温水加湿器の場合と同様の性能を示すことが分かった。

【０１３６】

（実施例４）

上記１ｋｗ級固体高分子型燃料電池システムを駆動するためのアノード側全熱交換器を試作し、以下に示す試験を行った。ここで、本実施例で用いるアノード側全熱交換器は、スタックから排出されるアノード排気ガス（一次側オフガス）とスタックに供給する燃料ガス（二次側燃料ガス）とを全熱交換膜（ここでは、ジャパンゴアテックス社製３０μ厚ゴアセレクト）で仕切って全熱交換を行わせる膜式全熱交換器である。又、本実施例では、全熱交換部の一段に付き一段の温度調節用水回路が各々の背面に設けられている、スタック近似の3流体形全熱交換器とした。又、全熱交換部の一段当たりの熱交換面積は１５０ｃｍ^{2}とし、これを８段積層することによって総熱交換面積を１２００ｃｍ^{2}とした。尚、本実施例に係る全熱交換器の他の仕様については、実施例３の場合と同様である。

【０１３７】

このように構成されたアノード側全熱交換器を用いて、以下に示す試験を行った。即ち、二次側には、水素と二酸化炭素とを４：１の割合で混合した後、これを温度制御されたバブラーに通して加湿した１９．６ＮＬの模擬燃料ガスを投入した。又、一次側には、水素と二酸化炭素とを１：１の割合で混合した後、これを８０℃に温度制御されたバブラーに通して加湿し、更にその後６４℃まで冷却して二層流化した７．８ＮＬの模擬アノード排気ガスを投入した。又、内部温水回路には温度制御された温水を２Ｌ／分の割合で流し

、これによって全熱交換器の内部温度を制御した。尚、上記の各流量は、Ｕｆを７５％とした場合においてスタックが要求する燃料ガス量及びアノード排気ガス量である。又、一次側のバブラー温度は、実施例２で求められたアノード排気ガス中の水量の露点換算値を考慮し、安全率を考慮してこれより数℃減じた温度である。そして、本実施例では、このように構成した試験系において、二次側供給露点を、Ｓ／Ｃ＝２．７，２．９，３．１の各々に相当する温度である５８℃，６０℃，６２℃とした場合における二次側排出露点について調査した。

【０１３８】

図２０は、上記全熱交換試験の試験結果について示している。尚、図２０において、横軸は全熱交換器の内部温度（℃）を示しており、縦軸はスタックに供給する燃料ガスの露点（℃）を示している。

【０１３９】

図２０に示すように、上記Ｓ／Ｃに相当する各試験区分において、アノード全熱交換器から排出される模擬燃料ガスの露点に大きな相違は認められなかった。そして、全熱交換器の内部温度が７０℃以下においては、模擬燃料ガスの露点は内部温度に概ね近似した露点となった。これは、アノード排気ガスに含まれる水の量は実施例２において示したように７～８ｇ程度であり、その一方で、Ｓ／Ｃ（スチーム／カーボン比、即ち、投入する燃料ガスに対する水の割合）＝２．７、排出露点７０℃である場合で必要となる追加の加湿量は２．３ｇであり、従って追加の加湿量がアノード排気ガスに含まれる水量の１／４程度でしかないために、実施例３に示したように、事実上の温水加湿器として動作するためであると解された。

【０１４０】

（実施例５）

上述した実施例１の結果から、長期に安定的にスタックを正常に運転するためには、供給する燃料ガス及び酸化剤ガスの両方が、スタックにおける所定の発電部位の動作温度より高い露点を有している必要があることが明らかとなった。実際の固体高分子型燃料電池システム（１ｋｗ級燃料電池コージェネシステム）においては、供給する燃料ガス及び酸化剤ガスへの水のリソースは、スタックから排出される発電にともなって生成する生成水である。即ち、カソード排気ガスと供給する酸化剤ガスとを全熱交換することによって、供給する酸化剤ガスの加熱及び加湿を行っている。この時、全熱交換で用いられなかった余剰の水は、凝縮器によって液化された後、蓄水タンク内に貯蔵される。又、排出されるアノード排気ガスに含まれる水を凝縮器によって液化し、この液化した水を貯蔵して改質器に送り込むことで、燃料ガス前駆体の改質と、その改質によって得られた燃料ガスの加湿とを同時に行っている。しかしながら、実施例３に示したように全熱交換器に加熱手段が無く、かつ水リソースをカソード排ガス中の水蒸気のみから得る方法では供給可能な露点に制約があり、スタックに供給する酸化剤ガスの露点をスタックの酸化剤ガス供給部における動作温度より高くすることは困難である。又、スタックに供給する燃料ガスに関しても、改質器における改質効率の制約から一定以上の水の添加は好ましくないため、燃料ガスの露点をスタックの燃料ガス供給部における動作温度より高い露点とすることはできない。例えば、メタン改質型の改質器の場合、改質効率を８０％以上に保つためにはＳ／Ｃ＝２．７が必要であるが、この場合における燃料ガスの露点の実測値は５８℃程度であった。この燃料ガスの露点は、通常のスタックの運転温度である６０～８０℃より低いため、電池寿命を勘案した場合に必要となる露点に対して不足である。

【０１４１】

以上より明らかなように、スタックの発電運転を継続する際に生成し続ける生成水の量は、連続的に供給する燃料ガス及び酸化剤ガスをスタックにおける所定の発電部位の動作温度より高い露点に保つために十分な量である。しかし、従来の固体高分子型燃料電池システムでは、凝縮水の全熱交換器への再投入が無く、かつ全熱交換器の運転温度が低いため、発電に伴って生成する生成水を十分に利用できていないことが、上述した計算及び実測値の結果から明らかである。

【０１４２】
そこで、図１に模式的に示したブロック図を有する、改質器から排出される廃熱の一部を利用して全熱交換器の加熱を行う形態の固体高分子型燃料電池システムを試作し、その諸特性の評価に供した。このシステム系は、改質器最後段のＣＯ除去部の壁面にパイプを溶接し、これを熱交換器に導き、ここに一次熱媒体（シリコーンオイル等が好適）を循環させて壁面より熱を吸収して、熱交換器において二次熱媒体である水を加熱し、その加熱された二次熱媒体（温水）を循環して加熱装置を加熱し、これによって全熱交換器の温度をスタックにおける所定の発電部位の動作温度より高い温度に加熱する。アノード側全熱交換器では、スタックから排出されるアノード排気ガスと、スタックに投入される燃料ガスとの間で、全熱交換が行われる。そして、スタックに供給する燃料ガスの露点をスタックにおける所定の発電部位の動作温度より高くした後にスタックに導き、そのスタックの内部において結露させてセル内の燃料ガス導入部に導く。この際、実施例４に示した通り、アノード側においては、アノード排気ガスに含まれる水の量は、燃料ガスの加湿に必要な水の量を超えている。そのため、全熱交換後のアノード排気ガスに含まれる余剰の水は、燃料側水回収器を経た後に燃料側蓄水タンクに一定量備蓄され、その余剰分は酸化剤側蓄水タンクに送出される。

【０１４３】
一方、実施例３に示した通り、カソード側全熱交換器では、スタックから排出されるカソード排気ガスのみによってスタックに供給する酸化剤ガスを所望の露点に調整することは不可能である。そこで、スタックの運転負荷条件に応じた適量の水を酸化剤側蓄水タンクから供給してカソード排気ガスに混合し、全熱交換器において空気供給装置から送出される酸化剤ガスの露点をスタックにおける所定の発電部位の動作温度より高くした後にスタックに導き、そのスタックの内部において結露させささせてセル内の酸化剤ガス導入部に導く。

【０１４４】
図１に模式的に示したシステム系で、２０段のカソード排気ガス／供給酸化剤ガス全熱交換器と、８段のカソード排気ガス／供給燃料ガス全熱交換器とを有する全熱交換器を用い、この全熱交換器の温度が７０℃に保たれるように一次熱媒体流量と二次熱媒体流量とを適切な方法で制御し、改質器から供給される燃料ガスを２１．３リットル／分、空気供給装置から供給される酸化剤ガス量を１００リットル／分として、１ｋｗ級スタック（６６段、電極面積１４４ｃｍ^2）をＭＥＡ電流密度０．１８Ａ／ｃｍ^2、空気利用率４０％、燃料利用率７５％、動作温度６５±０．３℃で駆動した場合、前記全熱交換器からスタックに供給される酸化剤ガスの露点は６８．２℃で、燃料ガスの露点は６８．０℃であった。そして、前記動作温度より高い露点をもつ燃料ガス及び酸化剤ガスがスタックの内部で前記動作温度にまで冷却されて、過飽和の状態で各セルに供給されていることが確認できた。又、この時の全熱交換器における圧力損失は酸化剤ガス側で１３８ｍｍＡｑ、燃料ガス側で９３ｍｍＡｑであって、スタックの圧力損失（酸化剤ガス側７８０ｍｍＡｑ、燃料ガス側６９０ｍｍＡｑ）に対して十分に低いものであり、空気供給装置及び燃料ガス供給ポンプに過剰な負荷がかかることはなく、安定した制御及び運転が可能であった。この固体高分子型燃料電池システムを１００００時間まで連続運転した場合における各々のセルの電圧平均劣化率は３．２ｍＶ／１０００ｈｒであり、従来の構成を有する１ｋｗ級燃料電池コージェネシステムにおける電圧平均劣化率１８ｍＶ／１０００ｈｒに比して格段に向上していることを確認した。

【０１４５】
尚、本実施例においては、改質器から熱を吸収して全熱交換器の加熱を行うため、改質器における改質効率が若干低下した。具体的には、改質効率が従来例では８０．３％に対して、本実施例では７９．４％であった。しかしながら、スタック効率の劣化率が従来例では１．２％／１０００ｈｒ（１８ｍＶ／１４８０ｍＶ）に対して、本実施例では０．２２％／１０００ｈｒ（３．２ｍＶ／１４８０ｍＶ）であったため、概ね１０００時間運転以降にはシステム系全体の効率は本実施例の方が優れており、改質器の改質効率の低下を

補って余りあるメリットが得られた。

【０１４６】

（実施例６）

実施例５における形態に代えて、図２に模式的に示したブロック図を有する固体高分子型燃料電池システムを試作した。即ち、全熱交換器を加熱するための熱を改質器から得るのではなく、燃料ガス、燃料ガス前駆体、若しくはスタックから排出されるアノード排気ガスを燃焼させて全熱交換器加熱用媒体を加熱し、これを循環させて全熱交換器を所望の温度に加熱する形態である。この形態の実施例５に比する利点は、全熱交換器の運転状況が改質器の運転状況に依存しないことであって、定格運転時以外の、システムの立ち上げ時、或いは立ち下げ時、又は負荷変動運転時に、改質器が熱的に安定していない状況においても、全熱交換器を独立に制御可能である点にある。改質後の燃料ガスは改質前の燃料ガス前駆体に比して良質なガスと言えるため、本来的には全熱交換器の加熱に使うものであれば燃料ガス前駆体を使用した方がシステム効率上有利である。しかしながら、燃料電池の限界燃料利用率は、システム圧力損失との整合、ＭＥＡの一酸化炭素耐性、電池の圧力損失設計、対フラッディング特性、負荷変動対応能力等の複雑なファクターで決定され、又、改質器の駆動に必要な燃焼量も、転換率、ＣＯ除去性能その他を確保するために、負荷に比例して一律ではない。この点に鑑みて、定格運転時には燃料ガス前駆体を優先的に使用し、負荷変動等の要因でアノード排気ガスが余る状況ではアノード排気ガスを優先的にこの目的に使用することが、エネルギーバランスを最適化するために必要である。本実施例では、この点に鑑みて、両方を状況に応じて切り換えて用いることが可能な構成とした。

【０１４７】

実施例５におけるシステム系と本実施例によるシステム系とを、８時間運転しては４時間停止する間欠運転モードで加速試験した場合の運転時間５０００時間までの平均劣化率は、実施例５において８．７ｍＶ／１０００ｈｒであったのに対し、本実施例においては４．５ｍＶ／１０００ｈｒであった。又、運転負荷を定格（ＭＥＡ電流密度０．２Ａ／ｃｍ^2）で２時間運転し、その後定格の２５％（同０．０５Ａ）にまで出力を絞って２時間運転し、再び定格に戻す繰り返し負荷変動運転モードにおいて比較試験したところ、運転時間６０００時間（１５００サイクル）までの平均劣化率は、実施例５において７．５ｍＶ／１０００ｈｒであったのに対して、本実施例においては３．９ｍＶ／１０００ｈｒであった。この結果より、実施例５において、間欠運転時、負荷変動時に改質器が熱的に非平衡状態である場合に発生するスタックの乾燥運転が本実施例においては改善されていることが明らかであった。

【０１４８】

（実施例７）

実施例６における形態に代えて、図３に模式的に示したブロック図を有する固体高分子型燃料電池システムを試作した。即ち、本実施例は、全熱交換器の外部で燃料、若しくはスタックから排出されるアノード排気ガスを燃焼させて全熱交換器用加熱媒体を加熱し、この全熱交換器用加熱媒体を循環させて全熱交換器を所望の温度に加熱する形態（間接加熱型）ではなく、全熱交換器の内部で燃料ガス若しくは排出されるアノード排気ガスと酸化剤ガス若しくはカソード排気ガスとを触媒燃焼させて、これによって全熱交換器を所望の温度に加熱する形態（直接加熱型）の固体高分子型燃料電池システムを示している。

【０１４９】

アノード排気ガス（水素ガス）は６０℃以上で触媒燃焼が可能であることから、全熱交換器において要求される温度範囲で制御性良く温度調節することが可能である。又、バーナー等を用いた高温燃焼に因るよりも、特段の熱設計、放熱対策、安全設計を行うことなく、簡便かつ効率的に全熱交換器を加熱することが可能になる。

【０１５０】

本実施例と、図１で示した間接加熱型との大きな相違点は、本実施例における固体高分子型燃料電池システムが、触媒が担持されたセラミック布発熱体を有している点である。

この構成によって、供給された燃料ガス若しくは排出されるアノード排気ガスと酸化剤ガスとの混合気は前記セラミック布発熱体内で触媒燃焼し、その背面のガス流路を直接的に加熱する。これによって、アノード排気ガス及びカソード排気ガスから供給する燃料ガス及び酸化剤ガスへの十分な水の移転がなされる。

【０１５１】

本実施例で示した直接加熱型の間接加熱型に比するメリットは、表面積が大きく厚みの薄い熱交換セパレータのガス流路背面で触媒燃焼を起こさせ、その熱を損失なく直接的にアノード排気ガス及びカソード排気ガスに伝えることができる点である。又、間接加熱型よりもバーナー損失が少なく、かつ間接加熱型で必要な冷媒用配管、循環ポンプからの熱的或いは動力的損失が無いことである。更に、上述の目的を達成するためのエネルギーロスが僅少である点である。

【０１５２】

本実施例では、ジニトロジアミン白金水溶液をシリカゾル水溶液（日産化学製スノーテックス０　シリカ２０Ｗｔ／Ｖｏｌ）に対して、その含まれる白金量がシリカに対して２：１００になるように混和した後、これを３０倍に水で希釈した触媒スラリー液にセラミッククロス（住友スリーエム社製ネクステル０．６ｔ）を浸漬し、これを５００℃で５時間空気中においてアニール焼成することによって、目付け量０．３ｍｇ／ｃｍ^{2}に白金触媒が担持されたセラミック布発熱体を得た。そして、この白金触媒が担持されたセラミック布発熱体を、従来の温調水回路を設けていた温調面に敷設して用い、２０段のカソード排気ガス／供給酸化剤ガス全熱交換器と、８段のアノード排気ガス／供給燃料ガス全熱交換器とを備える直接加熱型全熱交換器を構成した。尚、全熱交換器用セパレータ材料としては、組成が７０％のカーボンフィラーと３０％の樹脂分を有する高分子電解質型燃料電池用プレス成形セパレータ（日清紡社製試作品）を用いた。このセパレータ材料に関しては、実施例１に示した材料の中でも特に耐熱性、熱伝導率、熱伝達率の高い材料が望ましく、樹脂成形品に関して言えば、フィラーにはガラス製よりもカーボン製の物が好ましく、その含有量が高いほど熱伝導、熱伝達が高まって有利であった。この点、カーボンフィラーを多く含むスーパーエンプラは選択肢の一つであり、短繊維カーボンフィラーを７０％含むＰＰＳアロイ（大日本インキ社製試作品）の射出成形品についても上記と同様の全熱交換器を組み立てて実施例３及び実施例４に示した場合と同様の動作確認を行った。その結果、特段の問題が発生しないことが確認された。

【０１５３】

その後、スタック、改質器等と接続して固体高分子型燃料電池システムを構築し、これを以降の特性評価に供した。

【０１５４】

具体的には、実施例２の場合と同一の仕様を有する他の１ｋｗ級固体高分子型燃料電池システムを用いた。ここで、本実施例で用いた固体高分子型燃料電池システムの仕様は、電極面積が１６９ｃｍ^{2}であり、セルの積層段数が５０段であり、定格電流密度が０．２Ａ／ｃｍ^{2}である。又、基本的な運転条件として、燃料ガスには水蒸気改質法によって生成した２０％の二酸化炭素を含有する水素ガスを用い、酸化剤ガスには空気を用いた。又、燃料利用率は７５％であり、空気利用率を５０％とした。又、改質器はＳ／Ｃ＝２．７で運転され、その露点は５８℃であった。

【０１５５】

スタックの温度は１０Ｌ／分の割合で供給される温調水（冷却水）によって維持され、投入水温が６４℃に対して、排出水温は６７℃であった。そこで、実施例３及び実施例４で示した全熱交換器基礎特性図に則り、アノード側及びカソード側共にスタックに供給する燃料ガス及び酸化剤ガスの露点が６７℃以上となるように、全熱交換器の内部温度が６９℃となるよう全熱交換器に投入するアノード排気ガス等の供給量を制御しながら運転した。尚、この際に必要となったアノード排気ガス等の供給量は、３．３Ｌ／分であった。ここで、水素の燃焼エネルギーは３．０５ｋｃａｌ／Ｌであるので、３．３Ｌのアノード排気ガス（この内、水素は１．６５Ｌ）の燃焼エネルギーは、５．０３ｋｃａｌと計算さ

れた。又、水の蒸発潜熱は０．５４ｋｃａｌ／ｇであるので、この系における全熱交換器での追加加湿量は、９．３１ｇ／分と計算された。

【０１５６】

このように構成された固体高分子型燃料電池システムにおける理論物質収支は、以下の通りである。即ち、発電に係る基本的な化学反応式は式（１１）に示す通りである。

【０１５７】

H_2＋（１／２）O_2 → H_2O・・・（１１）

この場合、発電に係る化学反応における単位時間当たりの反応モル数は、式（１２）に示すように求められる。

【０１５８】

５０（段）×１６９（cm^2）×０．２（Ａ／cm^2）／（９６５００×２）＝０．００８７５６４（ｍｏｌ／秒）・・・（１２）

従って、発電に必要となる水素量は、式（１３）に示すように求められる。

【０１５９】

０．００８７５６４（ｍｏｌ／秒）×６０（秒）×２２．４（Ｌ）／０．７５（Ｕｆ）＝１５．６９（ＮＬ／分）・・・（１３）

これより、発電に必要となる燃料ガスの供給量は、式（１４）に示すように求められる。

【０１６０】

１５．６９（ＮＬ／分）／０．８（水素分圧）＝１９．６１（ＮＬ／分）・・・（１４）

又、発電に必要となる酸素量は、式（１５）に示すように求められる。

【０１６１】

（１／２）×０．００８７５６４（ｍｏｌ／秒）×６０（秒）×２２．４（Ｌ）／０．５（Ｕｏ）＝１１．７６（ＮＬ／分）・・・（１５）

これより、発電に必要となる空気の供給量は、式（１６）に示すように求められる。

【０１６２】

１１．７６（ＮＬ／分）／０．２（酸素分圧）＝５８．８４（ＮＬ／分）・・・（１６）

一方、水の収支に関しては、以下の通りとなる。即ち、６７℃における飽和水蒸気分圧は２０５．０５ｍｍＨｇであるので、アノード側の必要加湿量は式（１７）に示すように求められる。

【０１６３】

１９．６１（ＮＬ／分）×（１／（７６０（ｍｍＨｇ）－２０５．０５（ｍｍＨｇ））－１）×（１８／２２．４（Ｌ））＝５．８２（ｇ／分）・・・（１７）

又、カソード側の必要加湿量は、式（１８）に示すように求められる。

【０１６４】

５８．８４（ＮＬ／分）×（１／（７６０（ｍｍＨｇ）－２０５．０５（ｍｍＨｇ））－１）×（１８／２２．４（Ｌ））＝１７．４６（ｇ／分）・・・（１８）

又、上述したように、本実施例において改質器はＳ／Ｃ＝２．７で運転され、その露点は５８℃である。即ち、５８℃における飽和水蒸気分圧は１３６．１５ｍｍＨｇであるので、燃料ガスの水量は式（１９）に示すように求められる。

【０１６５】

１９．６１（ＮＬ／分）×（１／（７６０（ｍｍＨｇ）－１３６．１５（ｍｍＨｇ））－１）×（１８／２２．４（Ｌ））＝３．４３（ｇ／分）・・・（１９）

ここで、アノード側の必要加湿量から燃料ガスの水量を差し引いた量がアノード側の追加加湿量であり、その追加加湿量は５．８２ｇ／分－３．４３ｇ／分＝２．３９ｇ／分と計算された。従って、カソード側の追加加湿量は、９．３１ｇ／分－２．３９ｇ／分＝６．９０ｇ／分と計算された。そして、この数値をカソード側の必要加湿量である１７．４６ｇ／分から差し引いた１０．５６ｇ／分が加熱及び凝縮水の再投入を行わなかった場合

における単純全熱交換による加湿量であり、それを露点換算すると約５８℃と計算された。つまり、本実施例の加湿系によって、カソード側に関しては単純全熱交換で得られる露点５８℃を、一方、アノード側に関しては改質機露点５８℃を、各々６７℃に引き上げていることになる。尚、本実施例に係る固体高分子型燃料電池システムも、実施例６に述べた場合と同様の良好な寿命特性を有していた。

【０１６６】

又、間接加熱型に比する直接加熱型の利点は、その起動時間の短さである。即ち、間接加熱型においてはバーナーで熱媒体を加熱し、これを循環させて全熱交換器を保温するものであるから、バーナー及び熱媒体の熱容量にもよるが、略１５分程度の起動時間が必要であったが、本実施例では、これが約１／２０に短縮された。更に、上述の計算より明らかなように、燃料ガス及び酸化剤ガスの加湿に必要なエネルギーの量はスタックに導入される燃料ガス及び酸化剤ガスの量に比例しており、燃料利用率、空気利用率に変動がない限りは、これはスタックの負荷に比例する。同様に、アノード排気ガスの量も、スタックの負荷に比例している。従って、スタックから排出されるアノード排気ガスを用いて、効率良く燃料ガス及び酸化剤ガスの加湿が行われるということは、負荷変動に対して殆どタイムラグが無く、かつ高い直線性をもって略自動的に負荷変動に追従することを意味している。又、間接加熱型の場合に必要であった、負荷に応じたバーナーやポンプの制御が不用となる等、合理性の高いシステム系であることは自明である。

【０１６７】

（実施例８）

実施例２において示したスタックでは、スタックに供給する燃料ガス及び酸化剤ガスの露点が６４℃であるのに対して、カソード排出ガスの露点は７１．５℃であり、アノード排出ガスの露点は８４℃であった。従って、セル内における燃料ガス流路及び酸化剤ガス流路と冷却水流路との方向を合わせておき、燃料ガスの供給口及び酸化剤ガスの供給口の近傍に冷却水を供給し、燃料ガス排出口及び酸化剤ガス排出口の近傍から冷却水を排出する並行流レイアウトにおいては、その冷却水の投入温度が６４℃以下でありかつ排出温度が７１．５℃を超えない限り、実施例１に述べた理由により、セル内では水蒸気飽和の条件が保たれる。

【０１６８】

そこで、図４に示すブロック図を備える固体高分子型燃料電池システムを構築し、上述した流路構成を有する電極面積が１６９ｃｍ^{2}でありセルの積層段数が５０段であるスタックを運転した。尚、基本的な運転条件として、定格電流密度を０．２Ａ／ｃｍ^{2}とし、燃料ガスには水蒸気改質法によって生成した２０％の二酸化炭素を含有する水素ガスを用い、酸化剤ガスには空気を用いた。又、燃料利用率は７５％であり、空気利用率を５０％とした。又、全熱交換器には、実施例５で示した全熱交換器と同一仕様である、内部温調水回路を有する２０段のカソード排気ガス／供給酸化剤ガス全熱交換器と、８段のカソード排気ガス／供給燃料ガス全熱交換器とを有する全熱交換器を用いた。更に、改質器はＳ／Ｃ＝２．７とした。

【０１６９】

このように構成した固体高分子型燃料電池システムにおいて、スタックに供給する冷却水の温度が６０℃となるように、又、スタックの発熱によって加熱されたスタックから排出される冷却水の温度が６９℃になるように、外部温調水回路の流量制御を行った。又、この冷却水の流動形態を、スタックから排出された冷却水を全熱交換器の内部温調水回路に導いて全熱交換器を加熱した後に蓄水タンクに戻し、この蓄水タンクにおいて６０℃まで冷却した後にスタックに再供給する形態とした。この際、定格運転時には冷却水の流量を２Ｌ／分まで絞ると、上述の温度条件によって運転することが可能であった。又、この場合、全熱交換器には６８．５℃の温度の冷却水が供給されたが、全熱交換器から排出された冷却水の温度は６６℃であったため、２０００×２．５＝５．０ｋｃａｌの熱が全熱交換器の加熱に消費された計算となった。この値を水の蒸発潜熱値である０．５４ｋｃａｌ／ｇで除した９．２５ｇ／分が追加加湿量であるが、この計算結果は実施例７で述べた

直接加熱方式の場合の実験値と概ね一致した。又、熱電対によって計測された全熱交換器の内部温度は中心値で６７．５℃であり、前述した全熱交換器の基礎特性によれば、概ね露点が６６℃である燃料ガス及び酸化剤ガスが全熱交換器からスタックに供給されていると推定された。そして、本実施例に係る固体高分子型燃料電池システムも、実施例６で述べた場合と同様の良好な寿命特性を有していた。

【０１７０】

（実施例９）

実施例８において、スタックから排出される冷却水の温度は６９℃であり、全熱交換器に供給される冷却水の温度は６８．５℃であった。従って、冷却水の温度は、スタックから全熱交換器に移動する際に、０．５℃低下していた。この移動の際に生じる冷却水の温度低下は、単純に配管からの放熱による温度低下である。

【０１７１】

ところで、実際の固体高分子型燃料電池システムでは、定格運転の他、微弱運転、負荷変動運転等のスタックの発熱量が少ない発電運転も行われる。そして、このようなスタックの発熱量が少ない運転条件においても、上述した燃料ガス及び酸化剤ガスの露点とスタックの内部温度との良好な関係を維持することが強く望まれる。

【０１７２】

この点に鑑みて検討した最も合理的なレイアウトは、全熱交換器とスタックとを密着又は近接させて短い配管で接続し、これを一括して断熱する形態である。このような形態を採ることにより、スタックと全熱交換器とが最短距離の配管で接続されるので、特別な制御を行わずに、上述した良好な関係を満たすことが可能になる。この全熱交換器とスタックとを密着又は近接させかつ一括して断熱する形態の固体高分子型燃料電池システムでは、３０％負荷（発熱量３００Ｗ）において冷却水の流量を０．７Ｌ／分とした場合、スタックに供給される冷却水の温度は５９℃となり、スタックから排出される冷却水の温度は６７℃となった。そして、全熱交換器には、熱損失が殆ど発生することなく、約６７℃の冷却水が供給された。又、全熱交換器に供給された冷却水はその全熱交換器において１．６ｋｃａｌの熱を失って２℃温度低下して蓄水タンクに戻されたが、この時の全熱交換器の内部温度は６６℃であったため、概ね露点が６５℃の燃料ガス及び酸化剤ガスがスタックに供給されていると推定された。この露点は、スタックにおける燃料ガス及び酸化剤ガスの供給部の温度に対して５℃高い温度である。つまり、本実施例に係る固体高分子型燃料電池システムも、実施例６で述べた場合と同様の良好な寿命特性を有していることが判明した。

【０１７３】

（実施例１０）

実施例５～８で示した形態に代えて、図５～７に模式的に示したブロック図を有する固体高分子型燃料電池システムを試作した。即ち、本実施例では、燃料前駆体を改質して燃料ガスを生成する形態ではなく、例えば水素ボンベ等の燃料ガス供給手段を備える形態の固体高分子型燃料電池システムを示している。このような固体高分子型燃料電池システムとしては、例えば、水素ボンベを備えた車載用の固体高分子型燃料電池システムが挙げられる。

【０１７４】

この水素ボンベ等の燃料ガス供給手段を備える固体高分子型燃料電池システムでは、実施例５～８のような水蒸気改質法によって生成される一定の水を含む燃料ガスをスタックに供給する場合と異なり、燃料ガスは絶乾状態でスタックに供給される。そのため、アノード排気ガスに含まれる水のみでは、燃料ガスを所望の露点に加湿することは不可能である。そこで、本実施例では、燃料側水回収器で回収された水を酸化剤側蓄水タンクに送出し、この酸化剤側蓄水タンク内の水を用いて燃料ガスと酸化剤ガスとの両方を加湿する形態とした。

【０１７５】

以下、図６に示す構成を有する直接加熱型の固体高分子型燃料電池システムを用いた場

合の実施例について説明する。

【０１７６】

本実施例では、実施例６の場合と同一の仕様を有する固体高分子型燃料電池システムを用いた。ここで、本実施例で用いた固体高分子型燃料電池システムの仕様は、電極面積が１６９ｃｍ^{2}であり、セルの積層段数が５０段であり、最大電流負荷が０．８Ａ／ｃｍ^{2}であり、最大出力電力が４．５ｋＷである。又、基本的な運転条件として、燃料ガスとしては水素ボンベから供給される純水素を用い、酸化剤ガスには空気を用いた。又、燃料利用率は８５％であり、空気利用率を５０％とした。

【０１７７】

又、スタックの温度は、スタックに供給する冷却水の温度を６４℃とした場合に、スタックから排出される冷却水の温度が６７℃となるように、外部温調回路を制御することによって、適宜温度調節した。

【０１７８】

又、全熱交換器としては、実施例７で示した全熱交換器と同一の仕様を備える、カソード排気ガス／供給酸化剤ガス全熱交換器については８０段、アノード排気ガス／供給燃料ガス全熱交換器については３２段の積層数を有する全熱交換器を用いた。そして、実施例３及び実施例４で示した全熱交換器の基礎特性図に準じて、アノード側及びカソード側共にスタックへ供給する燃料ガス及び酸化剤ガスの露点が６７℃以上となるように、上記の全熱交換器の内部温度を６９℃とするべく、全熱交換器を加熱するためのアノード排気ガスの使用量を制御しながら運転した。

【０１７９】

又、後述するように、本実施例において許容される水損失は３１％である。そのため、アノード側及びカソード側の水回収器は、少なくとも飽和水蒸気が２０５ｍｍＨｇ×０．３１＝６３ｍｍＨｇ以下になる温度範囲まで、スタックから排出されるアノード排気ガス及びカソード排気ガスを冷却する必要がある。この冷却条件を満たす温度は、飽和水蒸気量曲線によれば、概ね４３℃である。そこで、本実施例では、アノード側及びカソード側の水回収器に大容量の放熱器を設け、ファンによって空冷する様式とした。

【０１８０】

このように構成された固体高分子型燃料電池システムにおける電流負荷０．１Ａ／ｃｍ^{2}当たりの理論物質収支は、以下の通りである。即ち、発電に係る基本的な化学反応式は式（２０）に示す通りである。

【０１８１】

H_2＋（１／２）O_2 → H_2O・・・（２０）

この場合、発電に係る化学反応における単位時間当たりの反応モル数は、式（２１）に示すように求められる。

【０１８２】

５０（段）×１６９（ｃｍ^2）×０．１（Ａ／ｃｍ^2）／（９６５００×２）＝０．００４３７８２（ｍｏｌ／秒）・・・（２１）

従って、発電に必要となる水素量は、式（２２）に示すように求められる。

【０１８３】

０．００４３７８２（ｍｏｌ／秒）×６０（秒）×２２．４（Ｌ）／０．８５（Ｕｆ）＝６．９２（ＮＬ／分）・・・（２２）

これより、発電に必要となる燃料ガスの供給量は、式（２３）に示すように求められる。

【０１８４】

６．９２（ＮＬ／分）／０．８（水素分圧）＝８．６５（ＮＬ／分）・・・（２３）

又、発電に必要となる酸素量は、式（２４）に示すように求められる。

【０１８５】

（１／２）×０．００４３７８２（ｍｏｌ／秒）×６０（秒）×２２．４（Ｌ）／０．５（Ｕｏ）＝５．８８（ＮＬ／分）・・・（２４）

これより、発電に必要となる空気の供給量は、式（２５）に示すように求められる。

【０１８６】

５．８８（ＮＬ／分）／０．２（酸素分圧）＝２９．４２（ＮＬ／分）・・・（２５）

又、スタックから排出される水素量は、式（２６）に示すように求められる。

【０１８７】

６．９２（ＮＬ／分）×０．１５＝１．０３８（ＮＬ）・・・（２６）

一方、水の収支に関しては、以下の通りとなる。即ち、発電に伴って生成する生成水の量は、式（２７）に示すように求められる。

【０１８８】

０．００４３７８２（ｍｏｌ／秒）×６０（秒）×１８＝４．７２（ｇ／分）・・・（２７）

又、６７℃における飽和水蒸気分圧は２０５．０５ｍｍＨｇであるので、アノード側の必要加湿量は式（２８）に示すように求められる。

【０１８９】

６．９２（ＮＬ／分）×（１／（７６０（ｍｍＨｇ）－２０５．０５（ｍｍＨｇ））－１）×（１８／２２．４（Ｌ））＝２．０５（ｇ／分）・・・（２８）

又、カソード側の必要加湿量は、式（２９）に示すように求められる。

【０１９０】

２９．４２（ＮＬ／分）×（１／（７６０（ｍｍＨｇ）－２０５．０５（ｍｍＨｇ））－１）×（１８／２２．４（Ｌ））＝８．７３（ｇ／分）・・・（２９）

以上から、本実施例の固体高分子型燃料電池システムが自立運転するために必要となる水の回収率は、式（３０）に示すように求められる。

【０１９１】

（２．０５（ｇ／分）＋８．７３（ｇ／分））／（４．７２（ｇ／分）＋２．０５（ｇ／分）＋８．７３（ｇ／分））＝６９（％）・・・（３０）

この固体高分子型燃料電池システムを自立運転させた際、スタックからは、電流密度０．１Ａ当たり約１ＮＬのアノード排気ガスが排出された。そして、この排出されたアノード排気ガスの略全量を全熱交換器の加熱のために用いた場合、全熱交換器の温度は約６９℃となり、スタックに供給する燃料ガス及び酸化剤ガスの露点は６７℃となった。この全熱交換器の温度と露点との関係は、電流密度を増減した場合でも一定であった。つまり、負荷に対して概ね直線性をもって燃料ガス及び酸化剤ガスを加湿することが可能であった。

【０１９２】

又、水素の燃焼エネルギーは３．０５ｋｃａｌ／Ｌであるので、１ＮＬ当たりのアノード排気ガスの燃焼エネルギーは、約３ｋｃａｌと計算された。そして、この値を水の蒸発潜熱値である０．５４ｋｃａｌ／ｇで除すことにより、一分間当たりの追加加湿量が約５．５ｇと計算された。

【０１９３】

一方、実施例７での結果によれば、カソード側における単純全熱交換効率は約６０％である。この結果から、カソード側における追加加湿量は、８．７３×０．４＝３．４９ｇ／分程度と推定される。そして、このカソード側における追加加湿量の値にアノード側の必要加湿量の値である２．０５ｇ／分を加えた数値は、上述した一分間当たりの追加加湿量（約５．５ｇ）と概ね一致する。この結果から、本実施例に係る固体高分子型燃料電池システムでは、スタックと全熱交換器とが過不足無く動作しているものと解された。尚、アノード側での必要加湿量の内の幾分かはアノード排気ガスからの単純全熱交換分であると考えられるが、アノード排気ガスの流量はスタックに供給する燃料ガスの流量に比べて少ないので、カソード側程の寄与度は無い。つまり、本実施例に係る固体高分子型燃料電池システムも、実施例６で述べた場合と同様の良好な寿命特性を有していることが判明した。

【０１９４】

尚、以上の説明では固体高分子型燃料電池システムについての一例を挙げて説明したが、その他の形式の燃料電池システムであっても、本発明を実施又は応用することが可能である。

【産業上の利用可能性】

【０１９５】

本発明に係る固体高分子型燃料電池システム及びその運転方法は、低電流密度で定格運転される用途において用いられる固体高分子型燃料電池システムに関し、長期に渡って安定した電力を供給可能な固体高分子型燃料電池システム及びその運転方法として有用である。

【図面の簡単な説明】

【０１９６】

【図１】本発明の実施の形態１に係る固体高分子型燃料電池システムの構成を模式的に示すブロック図である。

【図２】本発明の実施の形態２に係る固体高分子型燃料電池システムの構成を模式的に示すブロック図である。

【図３】本発明の実施の形態３に係る固体高分子型燃料電池システムの構成を模式的に示すブロック図である。

【図４】本発明の実施の形態４に係る固体高分子型燃料電池システムの構成を模式的に示すブロック図である。

【図５】本発明の実施の形態５に係る固体高分子型燃料電池システムの構成を模式的に示すブロック図である。

【図６】本発明の実施の形態６に係る固体高分子型燃料電池システムの構成を模式的に示すブロック図である。

【図７】本発明の実施の形態７に係る固体高分子型燃料電池システムの構成を模式的に示すブロック図である。

【図８】スタックを電流密度が０．７Ａ／ｃｍ^{2}となるようにして動作させた場合の電池寿命特性を示すグラフである。

【図９】スタックを電流密度が０．２Ａ／ｃｍ^{2}となるようにして動作させた場合の電池寿命特性を示すグラフである。

【図１０】スタックの寿命低下の原因を調査する試験方法について説明するための模式図である。

【図１１】電流密度０．７Ａ／ｃｍ^2（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝６８℃，フローパターン１）でスタックを運転した場合の寿命低下の原因を調査した試験結果を示すグラフである。

【図１２】電流密度０．７Ａ／ｃｍ^2（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝６０℃，フローパターン１）でスタックを運転した場合の寿命低下の原因を調査した試験結果を示すグラフである。

【図１３】電流密度０．２Ａ／ｃｍ^2（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝７２℃，フローパターン１）でスタックを運転した場合の寿命低下の原因を調査した試験結果を示すグラフである。

【図１４】電流密度０．２Ａ／ｃｍ^2（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝７０℃，フローパターン１）でスタックを運転した場合の寿命低下の原因を調査した試験結果を示すグラフである。

【図１５】電流密度０．２Ａ／ｃｍ^2（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝６８℃，フローパターン１）でスタックを運転した場合の寿命低下の原因を調査した試験結果を示すグラフである。

【図１６】電流密度０．２Ａ／ｃｍ^2（Ｔｄａ＝Ｔｄｃ＝７０℃，フローパターン２）でスタックを運転した場合の寿命低下の原因を調査した試験結果を示すグラフである。

【図１７】温水加湿試験の試験結果を示すグラフである。

【図１８】全熱交換試験の試験結果を示すグラフである。

【図１９】全熱交換試験の試験結果を示すグラフである。

【図２０】全熱交換試験の試験結果を示すグラフである。

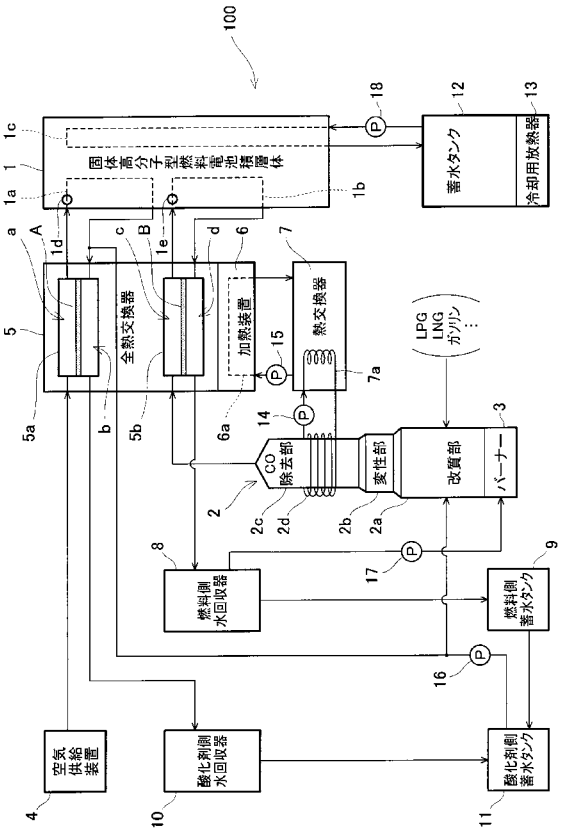
【符号の説明】

【０１９７】

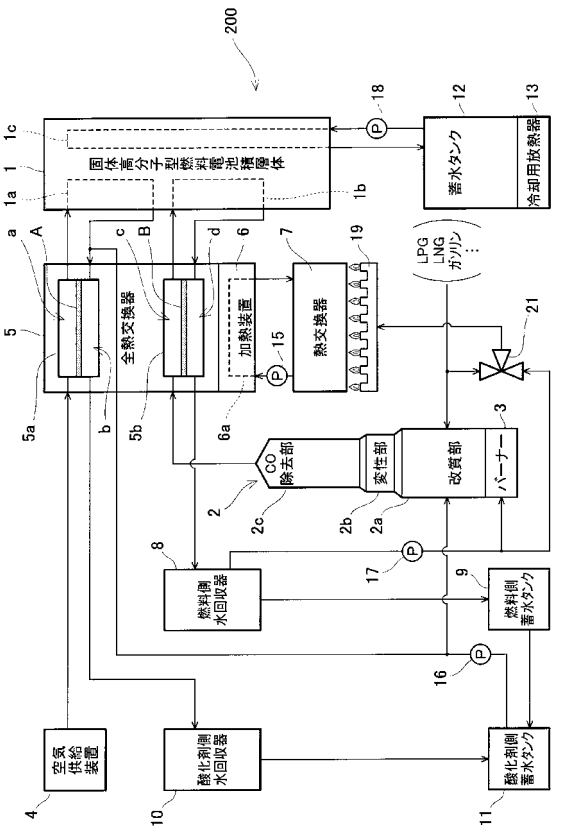
１　固体高分子型燃料電池積層体（スタック）

１ａ　酸化剤ガス用流路
１ｂ　燃料ガス用流路
１ｃ　冷却水用流路
２　改質器
２ａ　改質部
２ｂ　変性部
２ｃ　ＣＯ除去部
２ｄ　配管
３　改質器用バーナー
４　空気供給装置
５　全熱交換器
５ａ　カソード側加湿回路
５ｂ　アノード側加湿回路
６　加熱装置
６ａ　配管
７　熱交換器
７ａ　配管
８　燃料側水回収器
９　燃料側蓄水タンク
１０　酸化剤側水回収器
１１　酸化剤側蓄水タンク
１２　蓄水タンク
１３　冷却用放熱器
１４～１８　ポンプ
１９　熱交換器用バーナー
２０　触媒燃焼加熱装置
２０ａ　触媒燃焼領域
２０ｂ　触媒燃焼プレート
２１　三方弁
２２　水素ボンベ
３０　ＭＥＡユニット
３０ａ　ＭＥＡ
３０ｂ　燃料ガス接触経路
３０ｃ，３０ｄ　燃料ガス供給口
３０ｅ，３０ｆ　酸化剤ガス供給口
１０１　第１の主面
１０２　第２の主面
１００～７００　固体高分子型燃料電池システム
Ａ　カソード側全熱交換膜
Ｂ　アノード側全熱交換膜
ａ　酸化剤ガス導入領域
ｂ　カソード排気ガス導入領域
ｃ　燃料ガス導入領域
ｄ　アノード排気ガス導入領域

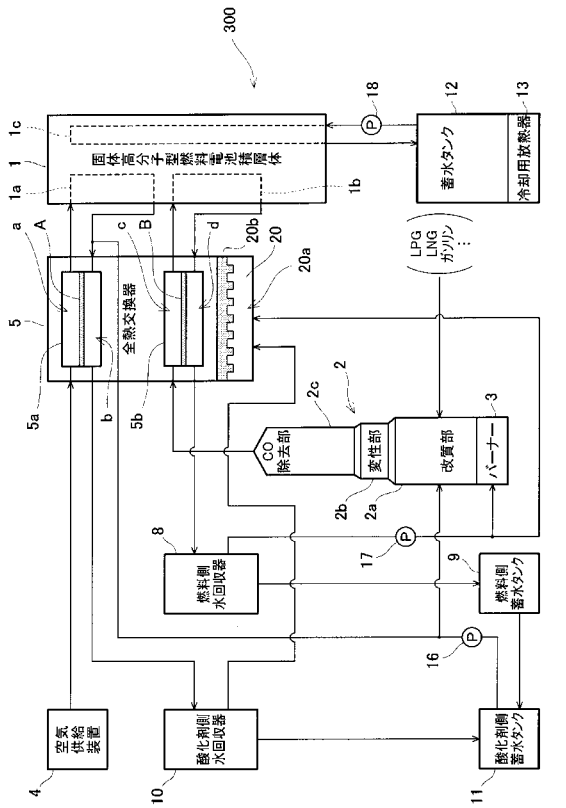
【図１】


100
固体高分子型燃料電池積層体
蓄水タンク
冷却用放熱器
全熱交換器
加熱装置
熱交換器
CO除去部
変性部
改質部
バーナー
LPG
LNG
ガソリン
燃料側水回収器
燃料側蓄水タンク
空気供給装置
酸化剤側水回収器
酸化剤側蓄水タンク

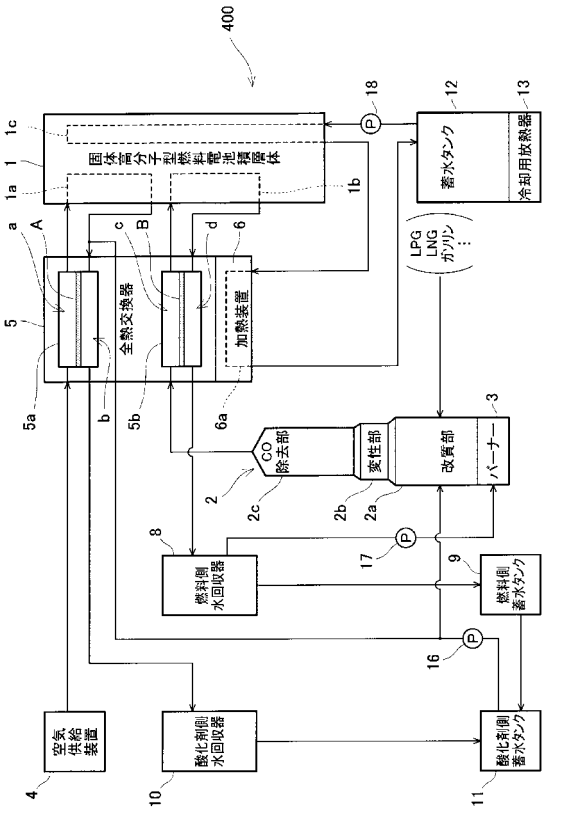
【図２】


200
固体高分子型燃料電池積層体
蓄水タンク
冷却用放熱器
全熱交換器
加熱装置
熱交換器
CO除去部
変性部
改質部
バーナー
LPG
LNG
ガソリン
燃料側水回収器
燃料側蓄水タンク
空気供給装置
酸化剤側水回収器
酸化剤側蓄水タンク

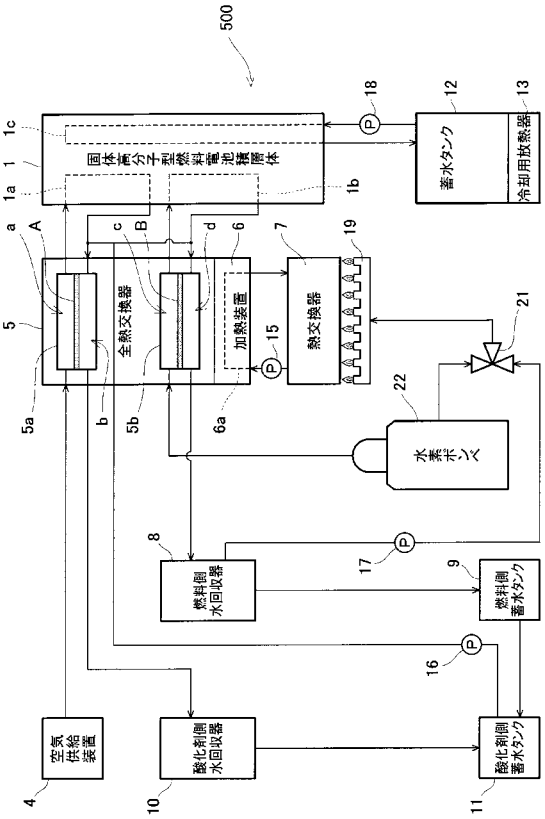
【図３】


300
固体高分子型燃料電池積層体
蓄水タンク
冷却用放熱器
全熱交換器
CO除去部
変性部
改質部
バーナー
LPG
LNG
ガソリン
燃料側水回収器
燃料側蓄水タンク
空気供給装置
酸化剤側水回収器
酸化剤側蓄水タンク

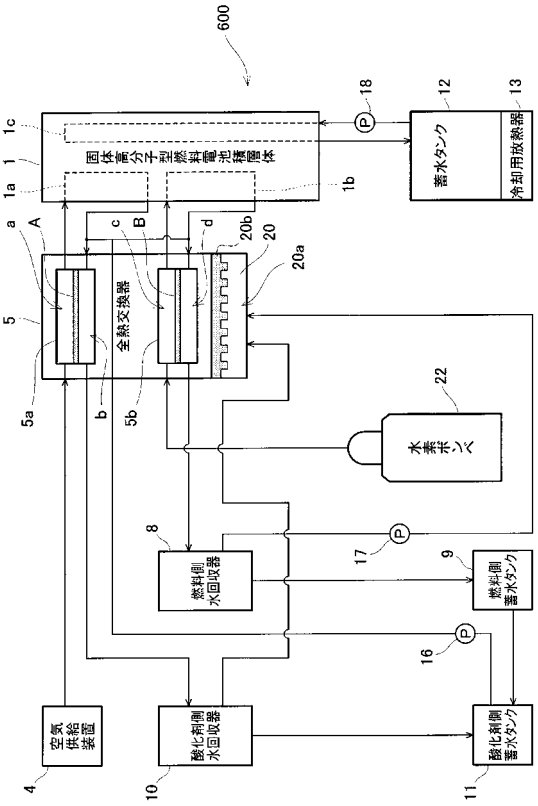
【図４】


400
固体高分子型燃料電池積層体
蓄水タンク
冷却用放熱器
全熱交換器
加熱装置
CO除去部
変性部
改質部
バーナー
LPG
LNG
ガソリン
燃料側水回収器
燃料側蓄水タンク
空気供給装置
酸化剤側水回収器
酸化剤側蓄水タンク

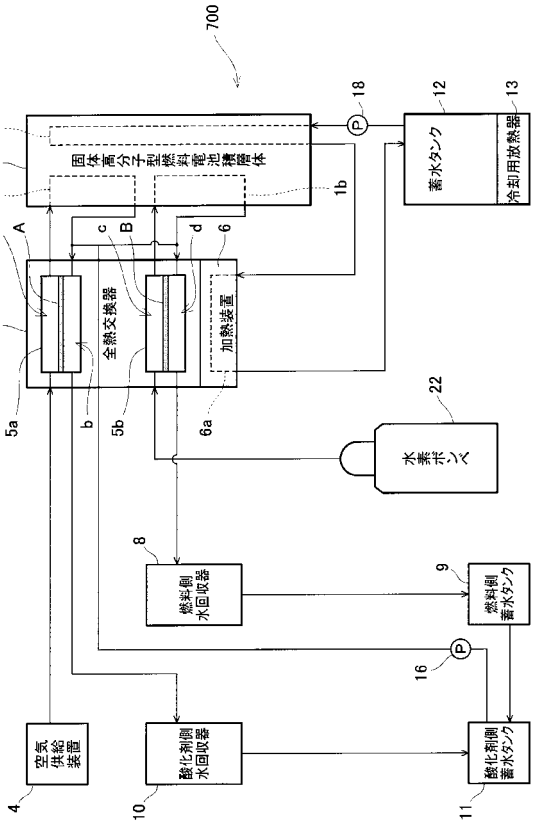
【図５】


500
固体高分子型燃料電池積層体
蓄水タンク
冷却用放熱器
全熱交換器
加熱装置
熱交換器
水素ボンベ
燃料側水回収器
燃料側蓄水タンク
空気供給装置
酸化剤側水回収器
酸化剤側蓄水タンク

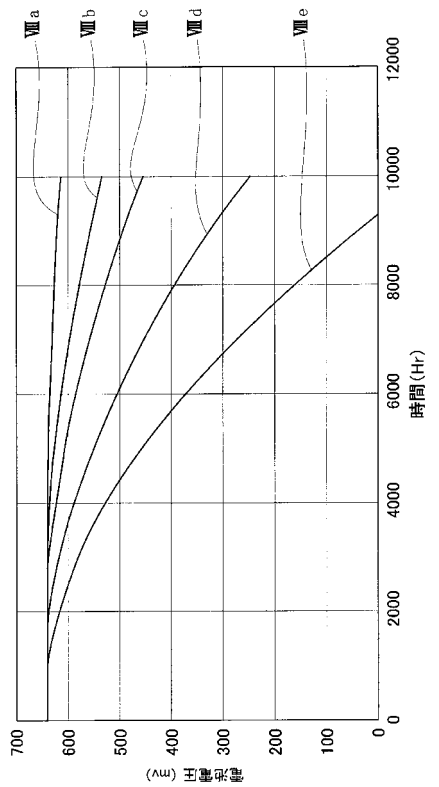
【図６】


600
固体高分子型燃料電池積層体
蓄水タンク
冷却用放熱器
全熱交換器
水素ボンベ
燃料側水回収器
燃料側蓄水タンク
空気供給装置
酸化剤側水回収器
酸化剤側蓄水タンク

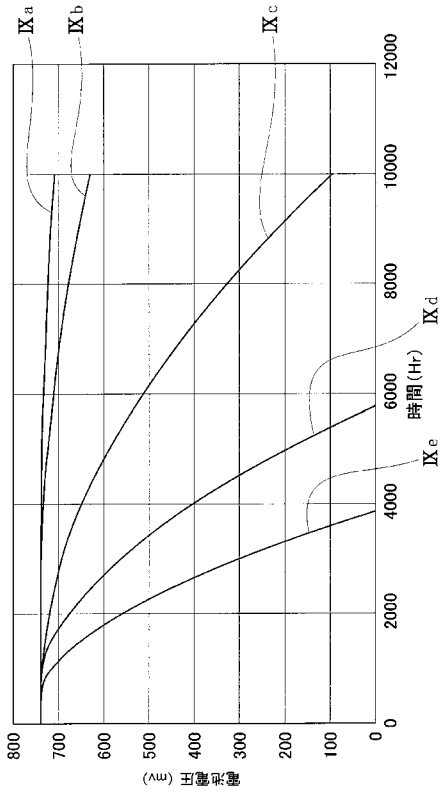
【図７】


700
固体高分子型燃料電池積層体
蓄水タンク
冷却用放熱器
全熱交換器
加熱装置
水素ボンベ
燃料側水回収器
燃料側蓄水タンク
空気供給装置
酸化剤側水回収器
酸化剤側蓄水タンク

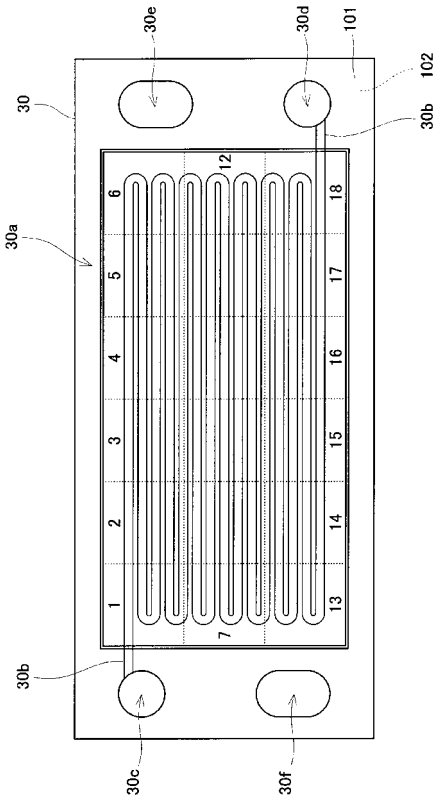
【図８】


Ⅷa
Ⅷb
Ⅷc
Ⅷd
Ⅷe
0
2000
4000
6000
8000
10000
12000
時間(Hr)
0
100
200
300
400
500
600
700
電池電圧(mV)

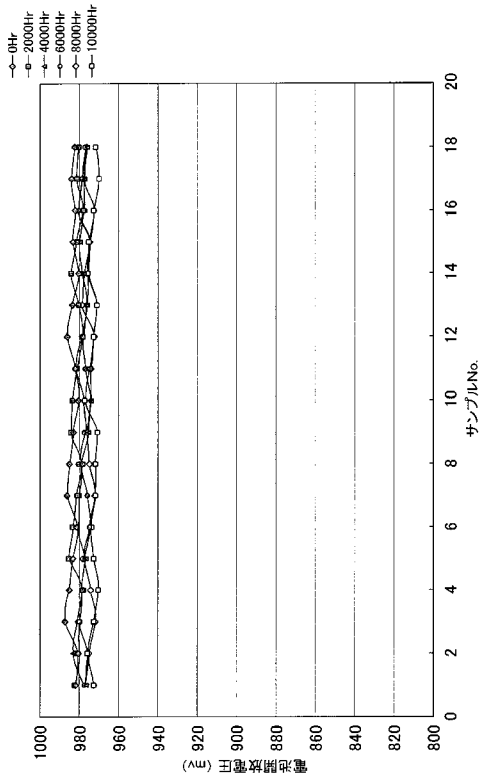
【図９】



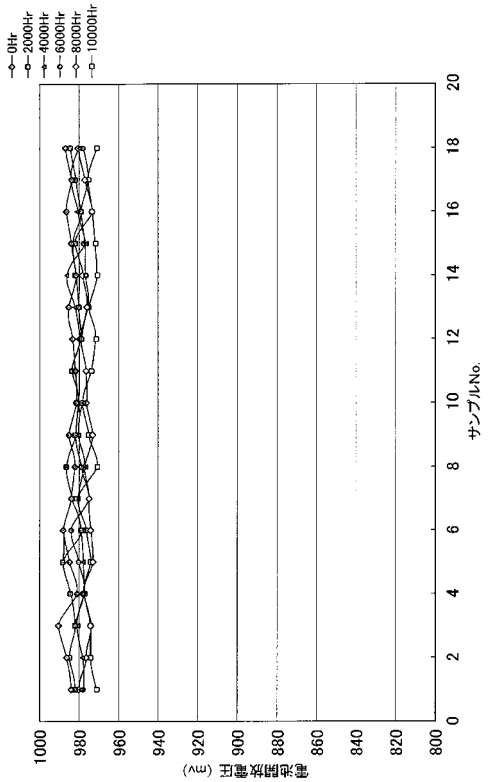
【図１０】



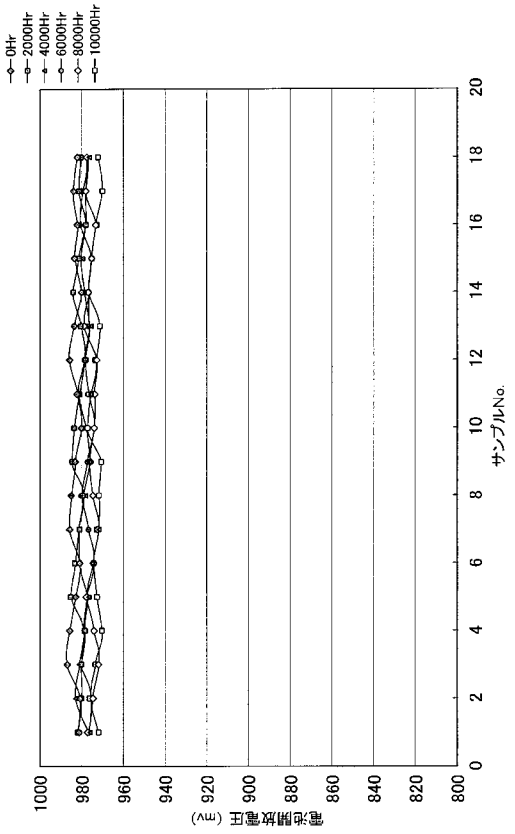
【図１１】



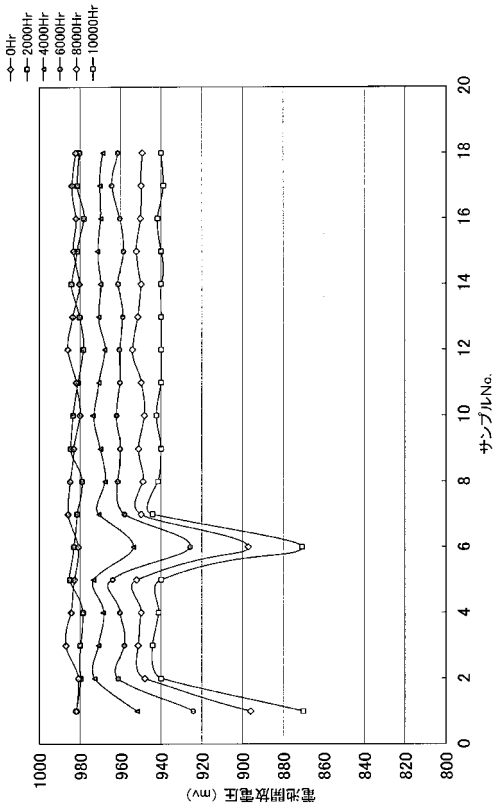
【図１２】



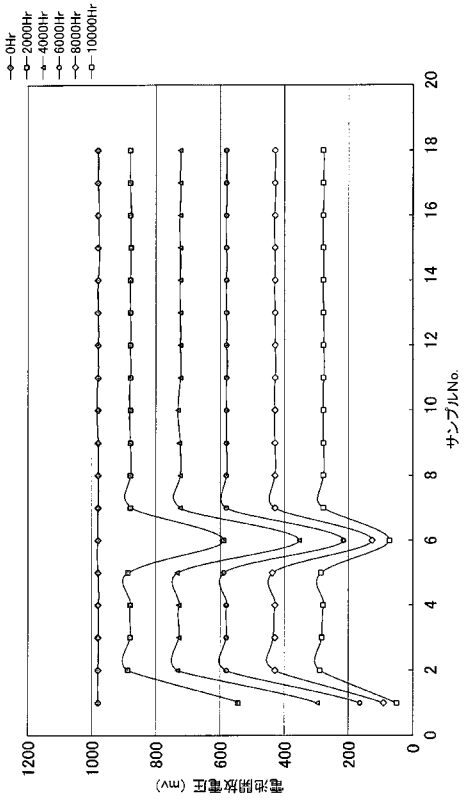
【図１３】



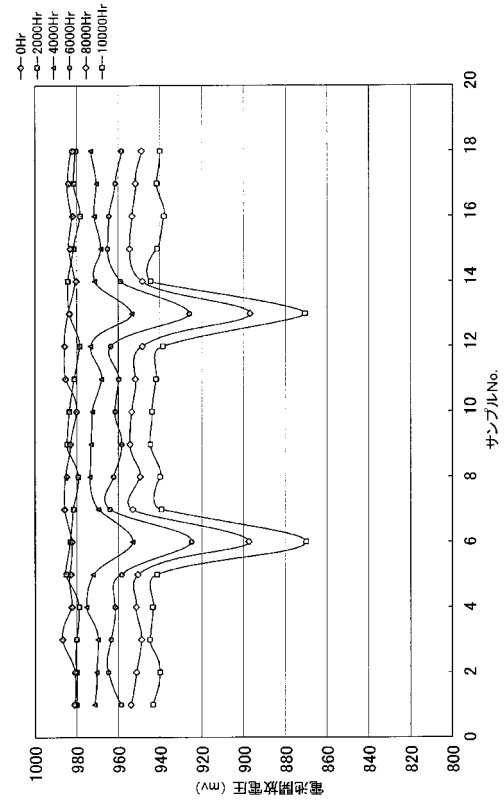
【図１４】



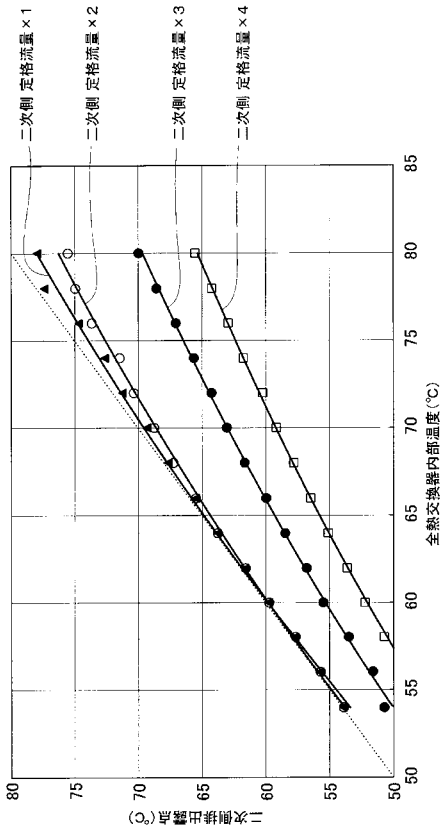
【図１５】



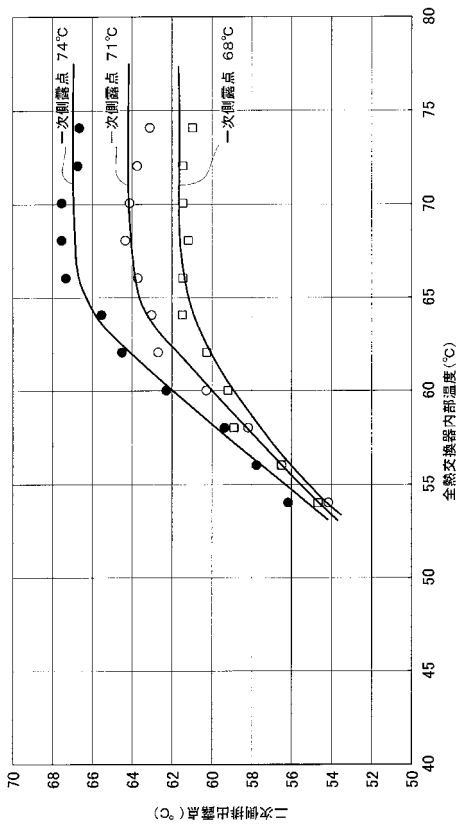
【図１６】



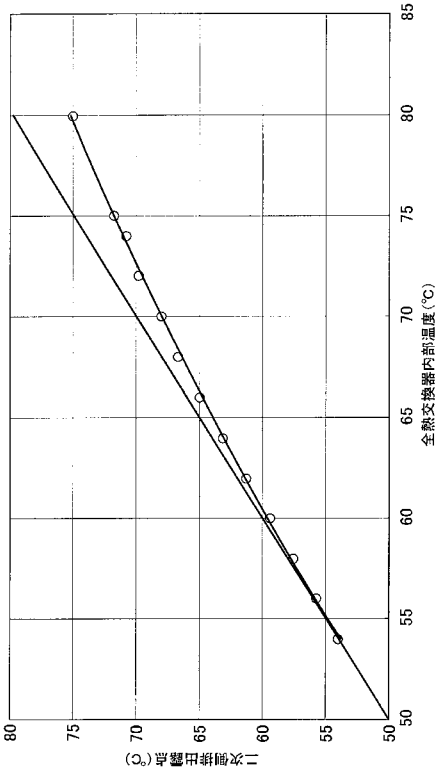
【図１７】



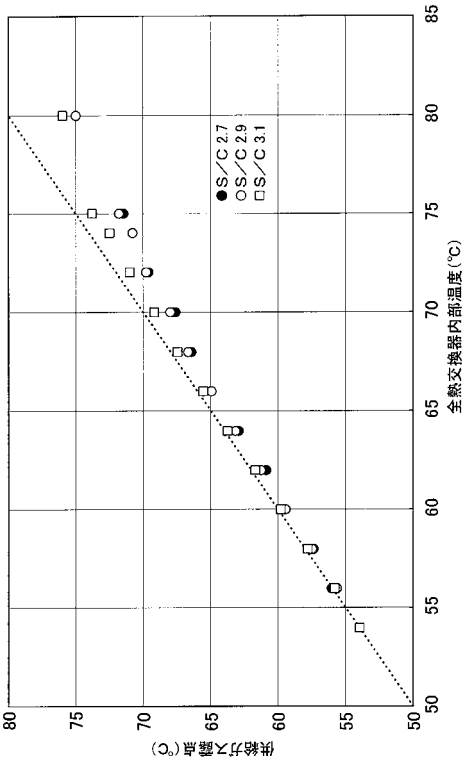
【図１８】



【図１９】



【図２０】



フロントページの続き

(72)発明者　小林　晋
大阪府門真市大字門真１００６番地　松下電器産業株式会社内
(72)発明者　松本　敏宏
大阪府門真市大字門真１００６番地　松下電器産業株式会社内
(72)発明者　富澤　猛
大阪府門真市大字門真１００６番地　松下電器産業株式会社内
(72)発明者　粉川　勝蔵
大阪府門真市大字門真１００６番地　松下電器産業株式会社内
(72)発明者　神原　輝壽
大阪府門真市大字門真１００６番地　松下電器産業株式会社内

Ｆターム(参考) 5H026 AA06　HH08
5H027 AA06　BA01