

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号
特許第6751365号
(P6751365)

(45) 発行日 令和2年9月2日(2020.9.2)

(24) 登録日 令和2年8月18日(2020.8.18)

(51) Int.Cl.	F I
CO 1 B 3/38 (2006.01)	CO 1 B 3/38
CO 1 B 3/56 (2006.01)	CO 1 B 3/56 Z
HO 1 M 8/0612 (2016.01)	HO 1 M 8/0612
HO 1 M 8/04746 (2016.01)	HO 1 M 8/04746
HO 1 M 8/04 (2016.01)	HO 1 M 8/04 J

請求項の数 3 (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2017-61506 (P2017-61506)	(73) 特許権者	000220262
(22) 出願日	平成29年3月27日 (2017.3.27)		東京瓦斯株式会社
(65) 公開番号	特開2018-162197 (P2018-162197A)		東京都港区海岸1丁目5番20号
(43) 公開日	平成30年10月18日 (2018.10.18)	(74) 代理人	110001519
審査請求日	令和1年8月9日 (2019.8.9)		特許業務法人太陽国際特許事務所
		(72) 発明者	大橋 雅史
			東京都港区海岸一丁目5番20号 東京瓦斯株式会社内
		(72) 発明者	稲垣 信
			東京都港区海岸一丁目5番20号 東京瓦斯株式会社内
		審査官	中田 光祐

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 水素製造装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

炭化水素を原料して供給されると共に、原料である炭化水素を改質して水素を主成分とする改質ガスを生成する改質器と、

前記改質器と接続され、前記改質器にて生成された改質ガスを不純物と純水素とに分離して純水素を精製する水素精製器と、

前記水素精製器において前記改質ガスのオフガスを前記改質器に燃料として還流させる還流流路と、

前記還流流路の途中に接続され、前記炭化水素を燃料として前記改質器に供給する供給流路と、

前記還流流路において、前記供給流路が接続された位置よりも前記改質器側に配設された流量制御弁と、

前記改質器の燃焼室の温度を検出する温度検出センサと、

前記温度検出センサで検出された前記燃焼室の温度に基づいて前記流量制御弁の開度を調整する制御部と、

を備える水素製造装置。

【請求項2】

前記還流流路と前記供給流路の接続位置に配設されたバッファタンクと、

前記バッファタンクの内部圧力を検出する圧力検出センサと、

前記供給流路に設けられたポンプと、

をさらに備える請求項 1 記載の水素製造装置。

【請求項 3】

前記制御部は、前記圧力検出センサで検出された前記内部圧力に基づいて前記ポンプをオンオフ駆動させることにより当該内部圧力を所定値以上に保つ請求項 2 記載の水素製造装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、水素製造装置に関する。

【背景技術】

10

【0002】

従来、水素を得るための水素製造装置としては、原料炭化水素を改質装置で水素リッチな改質ガスに改質した後、P S A (Pressure Swing Adsorption) 装置で高純度水素を製造する水素製造装置が提案されている

【0003】

P S A 装置において、製品水素として用いられなかった残余の水素を含むガスは、改質器の加熱（加熱バーナの燃料）用のオフガスとして改質器に還流されている。

【0004】

ところで、このオフガスは流量やガス組成の変動が大きく、改質器を所定温度まで加熱することができない場合がある。そこで、原料炭化水素の一部を燃料として改質器に供給し、その不足分の熱を補うことが行われている。

20

【0005】

この際、改質器に供給される空気を電気ヒーターで予熱することによって、すなわち、改質器に供給される空気の予熱温度を調整することにより改質器の燃焼温度を安定させる構成が提案されている（特許文献 1 参照）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0006】

【特許文献 1】特開 2003 - 335502 号公報

【発明の概要】

30

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

しかし、上記特許文献 1 記載の水素製造装置は、オフガスの流量を制御していないため、改質器の燃焼温度を安定させる点では改善の余地がある。

【0008】

一方、改質器の燃焼温度を安定させるために、改質器にオフガスを供給するオフガス供給ラインと、原料炭化水素の一部をバーナ用燃料として供給する燃料炭化水素供給ラインの双方にマスフローコントローラを配設することにより、改質器の燃焼温度を精度良く制御することも考えられる。この場合には、オフガス供給ラインと燃料炭化水素ラインの双方にマスフローコントローラを配設することになり、装置のコストアップが問題となる。

40

【0009】

本発明は、上記事情に鑑みて成されたものであり、簡単な構成で改質器の燃焼温度を安定させた水素製造装置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】

【0010】

第 1 態様では、炭化水素を原料して供給されると共に、原料である炭化水素を改質して水素を主成分とする改質ガスを生成する改質器と、前記改質器と接続され、前記改質器にて生成された改質ガスを不純物と純水素とに分離して純水素を精製する水素精製器と、前記水素精製器において前記改質ガスのオフガスを前記改質器に燃料として還流させる還流流路と、前記還流流路の途中に接続され、前記炭化水素を燃料として前記改質器に供給す

50

る供給流路と、前記還流流路において、前記供給流路が接続された位置よりも前記改質器側に配設された流量制御弁と、前記改質器の燃焼室の温度を検出する温度検出センサと、前記温度検出センサで検出された前記燃焼室の温度に基づいて前記流量制御弁の開度を調整する制御部と、を備える。

【0011】

第1態様によれば、供給流路が還流流路に接続され、還流流路の供給流路接続位置よりも改質器側に流量制御弁を設けたため、起動時に炭化水素を燃料として改質器に供給する場合にも、定常運転時にオフガスを改質器に供給する場合にも、1つの流量制御弁でガス流量を精度良く調整することができる。特に、制御部が温度検出センサで検出された改質器の燃焼室の温度に基づいて流量制御弁の開度を制御することにより、改質器の温度（燃焼量）を精度良く制御することができる。

10

【0012】

また、オフガスと燃料としての炭化水素を一本に合流された還流流路で改質器に供給し、一本とされた還流流路上に一個の流量制御弁を設けただけなので、装置構成を簡略化することができる。

【0013】

第2態様では、第1態様において、前記還流流路と前記供給流路の接続位置に配設されたバッファタンクと、前記バッファタンクの内部圧力を検出する圧力検出センサと、前記供給流路に設けられたポンプと、をさらに備える。

【0014】

20

第2態様によれば、還流流路と供給流路の接続位置に設けられたバッファタンクの内部圧力を圧力検出センサで検出する。したがって、検出されたバッファタンクの内部圧力に基づいて改質器に燃料として供給されるガスが不足していると判断された場合のみポンプを駆動してバッファタンクに炭化水素を供給する。すなわち、バッファタンクの内部圧力を所定値以上に保つ。

【0015】

これにより、オフガスの供給量が不足している場合のみ、炭化水素を供給流路から供給することになり、改質器の燃焼用燃料としての炭化水素の使用量を抑制することができる。

【0016】

30

第3態様では、前記制御部は、前記圧力検出センサで検出された前記内部圧力に基づいて前記ポンプをオンオフ駆動させることにより当該内部圧力を所定値以上に保つ。

【0017】

第3態様によれば、制御部は圧力検出センサで検出されたバッファタンクの内部圧力に基づいてポンプをオンオフ駆動する。この結果、バッファタンクの内部圧力が所定値以上に維持される。

【0018】

これにより、オフガスの供給量が不足している場合のみ、炭化水素を供給流路から供給することになり、改質器の燃焼用燃料としての炭化水素の使用量を抑制することができる。

40

【発明の効果】

【0019】

本態様では、簡単な構成で改質器の燃焼温度を安定させることができる。

【図面の簡単な説明】

【0020】

【図1】本発明の一実施形態に係る水素製造装置の全体構成を示す図である。

【図2】図1に示される多重筒型改質器の詳細を示す図である。

【発明を実施するための形態】

【0021】

以下、図面を参照しながら、本発明の一実施形態について説明する。

50

【 0 0 2 2 】

図 1 に示すように、本実施形態に係る水素製造装置 1 0 は、多重筒型改質器 1 2 と、除湿器 1 4 と、圧縮機 1 6 と、水素精製器 1 8 と、とを備えている。この水素製造装置 1 0 は、炭化水素原料から水素を製造するものである。本実施形態では、炭化水素原料の一例として都市ガスが用いられる場合について説明する。

【 0 0 2 3 】

図 2 に示すように、多重筒型改質器 1 2 は、多重に配置された複数の筒状壁 3 0、3 2、3 4、3 6（以下、「複数の筒状壁 3 0 ~ 3 6」という）を有して構成されている。複数の筒状壁 3 0 ~ 3 6 は、例えば円筒状や楕円筒状に形成される。複数の筒状壁 3 0 ~ 3 6 のうち内側から一番目の筒状壁 3 0 の内部には、燃焼室 3 8 が形成されており、この燃焼室 3 8 の上部には、バーナ 4 0 が下向きに配置されている。バーナ 4 0 には、後述する還流流路 7 0 から燃料ガスが供給されると共に、図示しない供給管から空気が供給されるものである。

10

【 0 0 2 4 】

一番目の筒状壁 3 0 と二番目の筒状壁 3 2 との間には、燃焼排ガス流路 4 2 が形成されている。燃焼排ガス流路 4 2 の下端部は、燃焼室 3 8 と連通されており、燃焼排ガス流路 4 2 の上端部には、ガス排出管 4 4 が接続されている。燃焼室 3 8 から排出された燃焼排ガスは、燃焼排ガス流路 4 2 を下側から上側に流れ、ガス排出管 4 4 を通じて外部に排出される。

【 0 0 2 5 】

二番目の筒状壁 3 2 と三番目の筒状壁 3 4 との間には、第一流路 4 6 が形成されている。この第一流路 4 6 の上部は、予熱流路 4 8 として形成されており、この予熱流路 4 8 の上端部には、原料供給管 5 0 及び改質用水供給管 5 2（図 1 では図示省略）が接続されている。二番目の筒状壁 3 2 と三番目の筒状壁 3 4 との間には、螺旋部材 5 4 が設けられており、この螺旋部材 5 4 により、予熱流路 4 8 は、螺旋状に形成されている。

20

【 0 0 2 6 】

この予熱流路 4 8 には、原料供給管 5 0 から都市ガスが供給されると共に、改質用水供給管 5 2 から改質用水が供給される。都市ガス及び改質用水は、予熱流路 4 8 を上側から下側に流れると共に、二番目の筒状壁 3 2 を介して燃焼排ガスと熱交換され水が気化される。この予熱流路 4 8 では、都市ガス及び気相の改質用水（水蒸気）が混合されることにより、混合ガスが生成される。

30

【 0 0 2 7 】

第一流路 4 6 における予熱流路 4 8 の下側には、改質触媒層 5 6 が設けられており、予熱流路 4 8 にて生成された混合ガスは、改質触媒層 5 6 に供給される。改質触媒層 5 6 では、燃焼排ガス流路 4 2 を流れる燃焼排ガスからの熱を受けて混合ガスが水蒸気改質反応により水素を主成分とする改質ガスが生成される。

【 0 0 2 8 】

三番目の筒状壁 3 4 と四番目の筒状壁 3 6 との間には、第二流路 5 8 が形成されている。第二流路 5 8 の下端部は、第一流路 4 6 の下端部と連通されている。第二流路 5 8 の下部は、改質ガス流路 6 0 として形成されており、第二流路 5 8 の上端部には、改質ガス排出管 6 2 が接続されている。

40

【 0 0 2 9 】

第二流路 5 8 における改質ガス流路 6 0 よりも上側には、CO 変成触媒層 6 4 が設けられており、改質触媒層 5 6 にて生成された改質ガスは、改質ガス流路 6 0 を通過した後、CO 変成触媒層 6 4 に供給される。CO 変成触媒層 6 4 では、改質ガスに含まれる一酸化炭素と水蒸気が反応して、水素と二酸化炭素に変換され、一酸化炭素が低減される。

【 0 0 3 0 】

CO 変成触媒層 6 4 の上側には、酸化剤ガス供給管 6 6 が設けられており、第二流路 5 8 における CO 変成触媒層 6 4 よりも上側には、CO 選択酸化触媒層 6 8 が設けられている。酸化剤ガス供給管 6 6 を通じて取り入れられた酸化剤ガス、及び、CO 変成触媒層 6

50

4を通過した改質ガスは、CO選択酸化触媒層68に供給される。CO選択酸化触媒層68では、例えば白金やルテニウム等の貴金属触媒上で一酸化炭素が酸素と反応して二酸化炭素に変換され、一酸化炭素が低減される。CO変成触媒層64及びCO選択酸化触媒層68で一酸化炭素が除去された改質ガスは、改質ガス排出管62を通じて排出される。

【0031】

除湿器14は、図1に示すように、多重筒型改質器12にて生成された改質ガスが送られるものである。除湿器14は、多重筒型改質器12から送られた改質ガスを冷却する機能を有し、改質ガスに含まれた水蒸気を冷却時に凝結して結露させ、その結露水をドレンから排出することで、改質ガスから水蒸気を分離するものである。

【0032】

10

圧縮機16は、除湿器14から送られた改質ガスをポンプで圧縮し、改質ガスの圧力を高めて送り出すものである。

【0033】

水素精製器18には、一例として、PSA装置が使用されている。水素精製器18は、圧縮機16で圧縮された改質ガスが送り込まれるものである。この水素精製器18では、改質ガスが不純物と水素とに分離され、水素が精製される。また、水素精製器18からのオフガスには、製品水素として用いられなかった残余の水素等が含まれ、多重筒型改質器12まで連通する還流流路70を介して多重筒型改質器12に供給されバーナ40(図2参照)の燃料として利用される。

【0034】

20

また、この還流流路70の途中には、原料となる都市ガスを燃料として供給する供給流路72が接続されている。還流流路70において、供給流路72の接続点よりも下流(多重筒型改質器12)側には、流量制御弁74が設けられている。

【0035】

一方、多重筒型改質器12には燃焼室38の温度を検出する温度検出センサ76が設けられている。

【0036】

また、水素製造装置10には、温度検出センサ76が検出した燃焼室38の温度に基づいて流量制御弁74の開度を調整する制御部78が設けられている。制御部78による流量制御弁74の制御については後述する。

30

【0037】

さらに、水素製造装置10には、還流流路70と供給流路72との接続位置にオフガスや都市ガスを貯留可能なバッファタンク82が設けられている。また、供給流路72には、ポンプ84が配設され、ポンプ84を駆動することによって都市ガスがバッファタンク82に供給される構成である。さらに、バッファタンク82には、内部圧力を検出する圧力検出センサ86が設けられている。制御部78では圧力検出センサ86で検出された内部圧力に基づいて燃料ガス(オフガスと都市ガス)の過不足を検出し、不足の場合にはポンプ84を駆動させてバッファタンク82に都市ガスを補給する構成である。

【0038】

以上の水素製造装置10は、例えば、燃料電池システムに適用され、水素製造装置10で製造された水素は、燃料電池システム中の燃料電池に供給され、燃料電池による発電に利用される。

40

【0039】

次に、本実施形態の作用及び効果について説明する。

【0040】

水素製造装置10の多重筒型改質器12で生成された改質ガスは、除湿器14によって含有する水蒸気が削減された後、圧縮機16で昇圧される。圧縮機16で昇圧された改質ガスは、水素精製器18で不純物と水素とに分離され水素が精製される。これにより、水素濃度が99%以上の純水素製品が得られる。

【0041】

50

ここで、水素製造装置 10 の起動時には、バッファタンク 82 内にバーナ 40 に供給するオフガスが不足する。これにより、圧力検出センサ 86 で検出されたバッファタンク 82 の内部圧力が閾値を下回り、制御部 78 はポンプ 84 に駆動信号を出力する。この結果、ポンプ 84 が駆動されて供給流路 72 からバッファタンク 82 に都市ガスが供給される。一方、水素製造装置 10 の定常運転によりバッファタンク 82 内のオフガス量が増加し、圧力検出センサ 86 で検出されたバッファタンク 82 の内部圧力が閾値を超えると、制御部 78 はポンプ 84 に停止信号を出力し、バッファタンク 82 に対する都市ガスの供給を停止する。

【0042】

このように、還流流路 70 と供給流路 72 の接続（合流）位置にバッファタンク 82 を設けると共に、圧力検出センサ 86 によって検出されたバッファタンク 82 の内部圧力が閾値を下回っていると制御部 78 で判定された場合のみ、供給流路 72 に設けられたポンプ 84 を駆動してバッファタンク 82 に都市ガスを供給する。

【0043】

この際、内部圧力と閾値との差圧に基づいてポンプ 84 の出力を比例制御することによって、バッファタンク 82 の内部圧力を一定値（所定値）に保つことができる。あるいは、ポンプ 84 の出力を一定とし、内部圧力が閾値以下の場合に駆動するオンオフ制御を行うことによって、内部圧力を所定値以上とすることができる。この場合は安価なポンプを用いることができる。

【0044】

したがって、バッファタンク 82 に十分な燃料ガスがある場合、例えば定常運転時等にはバッファタンク 82 に都市ガスが供給されることはない。すなわち、多重筒型改質器 12 に対する燃料としての都市ガスの供給量を抑制することができる。

【0045】

また、水素製造装置 10 の起動時、定常運転時を問わず、バッファタンク 82 内には、常時所定量以上（内部圧力が所定値以上）の燃料ガス（オフガスあるいは都市ガス）が確保されることとなる。

【0046】

さらに、定常運転時には、水素精製器 18 から排出されるオフガスは、バッファタンク 82 に所定量以上貯留されると共に、還流流路 70 を介して多重筒型改質器 12 にバーナ 40 の燃料として供給される。ここで、温度検出センサ 76 で検出された燃焼室 38 の温度に基づいて制御部 78 が流量制御弁 74 の開度を変更する。具体的には、燃焼室 38 の温度が基準温度よりも低い場合には、その温度差に基づいて流量制御弁 74 の開度を増加させ、燃焼室 38 の温度が基準温度よりも高い場合には、その温度差に基づいて流量制御弁 74 の開度を減少させるように制御部 78 が制御する。

【0047】

一方、水素製造装置 10 の起動時には、バッファタンク 82 内にオフガスが不足するため、ポンプ 84 の駆動により原料用の都市ガスの一部が供給流路 72 からバッファタンク 82 に供給され、所定量の都市ガスがバッファタンク 82 に貯留される。また、バッファタンク 82 に供給された都市ガスは、還流流路 70 を介して多重筒型改質器 12 のバーナ 40 に燃料として供給される。この際も、温度検出センサ 76 で検出された多重筒型改質器 12 の燃焼室 38 の温度に基づいて流量制御弁 74 の開度が調整されるため、燃焼室 38 の温度を所定範囲内に安定させることができる。

【0048】

このように異なる熱量のガス（都市ガスとオフガス）を共通の流量制御弁 74（制御部 78）で精度良く流量制御可能である。

【0049】

また、水素製造装置 10 は、還流流路 70 の途中に供給流路 72 を合流（接続）させ、その接続位置よりも下流側に流量制御弁 74 を設けているため、起動時に都市ガスを多重筒型改質器 12 に燃料として供給する場合にも、定常運転時にオフガスを多重筒型改質器

10

20

30

40

50

１２に供給する場合にも、１つの流量制御弁７４でガス流量を調整することができる。すなわち、供給流路７２と還流流路７０のそれぞれにマスフローコントローラーを設ける必要がなくなり、水素製造装置１０の構成を簡略化しつつ、燃焼室３８の温度を安定させることができる

【００５０】

次に、本実施形態の変形例について説明する。

【００５１】

上記実施形態では、還流流路７０と供給流路７２との接続位置にバッファタンク８２を設け、バッファタンク８２の内部圧力を検出することによって供給流路７２からの都市ガス供給量を調整していたが、バッファタンク８２がない構成とすることもできる。

10

【００５２】

また、上記実施形態では、炭化水素原料の一例として都市ガスが用いられているが、メタンを主成分とする都市ガス以外の炭化水素原料、例えば、プロパンなどの炭化水素を主成分とするガスや、炭化水素系液体が用いられても良い。

【００５３】

また、都市ガス以外の炭化水素原料が用いられる場合に、改質器は、多重筒型改質器１２以外の構造（使用される炭化水素原料に適した構造）に変更されても良い。

【００５４】

さらに、上記実施形態では、水素精製器１８として、ＰＳＡ装置が使用されているが、例えば水素分離膜を有する水素精製装置などが使用されても良い。

20

【００５５】

また、本実施形態に係る水素製造装置１０は、燃料電池システムに好適に用いられるが、燃料電池システム以外の機器やシステムに用いられても良い。

【００５６】

さらに、改質ガスに含まれる水蒸気を低減させる除湿器は、圧縮機１６の下流側にも設けても良い。あるいは、圧縮機１６の下流側にのみ除湿器を設けるだけでも良い。また、水蒸気を低減させるために、水蒸気分離膜や吸湿剤を利用してもよい。

【００５７】

以上、本発明の一実施形態について説明したが、本発明は、上記に限定されるものでなく、上記以外にも、その主旨を逸脱しない範囲内において種々変形して実施可能であることは勿論である。

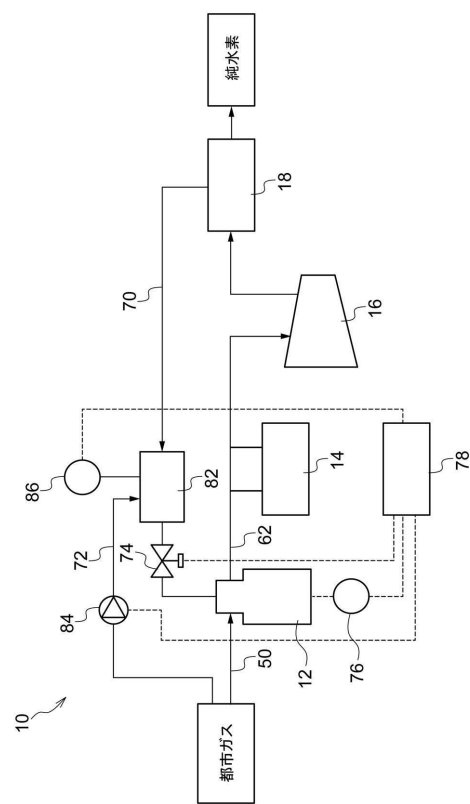
30

【符号の説明】

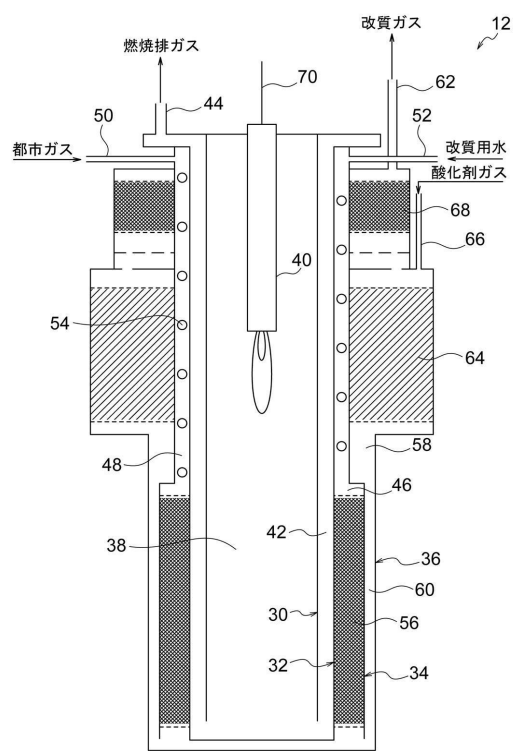
【００５８】

１０...水素製造装置、１２...多重筒型改質器（改質器）、１８...水素精製器、３８...燃焼室、７０...還流流路、７２...供給流路、７４...流量調整弁、７６...温度検出センサ、７８...制御部、８２...バッファタンク、８４...ポンプ、８６...圧力検出センサ

【図 1】



【図 2】



フロントページの続き

(56)参考文献 特開2015-174808(JP,A)
特開2004-352511(JP,A)
特開2004-338975(JP,A)
特開2011-129363(JP,A)
特開平09-227103(JP,A)
特開2015-017023(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C01B	3/00 - 6/34
H01M	8/04 - 8/0668