

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02013/145674

発行日 平成27年12月10日 (2015.12.10)

(43) 国際公開日 平成25年10月3日 (2013.10.3)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
HO 1 M 8/06 (2006.01)	HO 1 M 8/06 R	4 G 1 6 9
HO 1 M 8/12 (2006.01)	HO 1 M 8/06 B	5 H 0 2 6
BO 1 J 23/42 (2006.01)	HO 1 M 8/12	5 H 1 2 7
	BO 1 J 23/42 Z	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 23 頁)

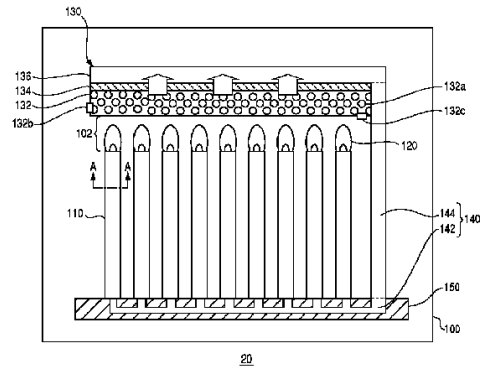
出願番号 特願2014-507416 (P2014-507416)	(71) 出願人 000004444 J X 日鉱日石エネルギー株式会社 東京都千代田区大手町二丁目6番3号
(21) 国際出願番号 PCT/JP2013/001965	(74) 代理人 100105924 弁理士 森下 賢樹
(22) 国際出願日 平成25年3月22日 (2013.3.22)	(72) 発明者 佐藤 康司 東京都千代田区大手町二丁目6番3号 J X日鉱日石エネルギー株式会社内
(31) 優先権主張番号 特願2012-70089 (P2012-70089)	(72) 発明者 三好 康太 東京都千代田区大手町二丁目6番3号 J X日鉱日石エネルギー株式会社内
(32) 優先日 平成24年3月26日 (2012.3.26)	(72) 発明者 中川 幸次郎 東京都千代田区大手町二丁目6番3号 J X日鉱日石エネルギー株式会社内
(33) 優先権主張国 日本国 (JP)	

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池モジュール及び燃料電池システム

(57) 【要約】

本発明のある態様の燃料電池モジュール20は、燃料電池110と、芳香族化合物の核水素化体の脱水素反応を行う脱水素反応部132と、脱水素反応部132で生成された水素と、核水素化体の脱水素化体とを分離する水素分離部134と、水素分離部134で分離された水素を燃料電池110に供給する水素供給部140と、燃料電池110、脱水素反応部132、水素分離部134及び水素供給部140を収容する単一の筐体100と、を備える。脱水素反応部132は、燃料電池110で発生する熱、及び燃料電池110のオフガスの燃焼で発生する熱の少なくとも一方により加熱される。



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

燃料電池と、  
芳香族化合物の核水素化体の脱水素反応を行う脱水素反応部と、  
前記脱水素反応部で生成された水素と、前記核水素化体の脱水素化体とを分離する水素分離部と、  
前記水素分離部で分離された水素を前記燃料電池に供給する水素供給部と、  
前記燃料電池、前記脱水素反応部、前記水素分離部及び前記水素供給部を収容する単一の筐体と、を備え、  
前記脱水素反応部は、前記燃料電池で発生する熱、及び前記燃料電池のオフガスの燃焼で発生する熱の少なくとも一方により加熱されることを特徴とする燃料電池モジュール。

10

## 【請求項 2】

前記脱水素反応部及び前記水素分離部を内部に含む反応容器を備え、  
前記水素分離部は、膜状であり、前記水素分離部で分離された水素が流入する水素室を前記反応容器内に画定する請求項 1 に記載の燃料電池モジュール。

## 【請求項 3】

前記水素分離部は、前記反応容器の内部を 2 つの空間に区画し、  
一方の空間は、脱水素触媒が充填されて前記脱水素反応部を構成し、  
他方の空間は、前記水素分離部で分離された水素が流入する水素室を構成している請求項 2 に記載の燃料電池モジュール。

20

## 【請求項 4】

前記脱水素反応部は、前記燃料電池の上方に配置され、  
前記水素分離部は、前記脱水素反応部の上方に配置されている請求項 2 又は 3 に記載の燃料電池モジュール。

## 【請求項 5】

前記脱水素反応部は、前記反応容器の外部から供給される前記核水素化体の供給口を有し、  
前記水素分離部は、前記供給口における前記核水素化体の流入方向に対して略平行に延在している請求項 2 乃至 4 のいずれか 1 項に記載の燃料電池モジュール。

30

## 【請求項 6】

主表面上に前記燃料電池が搭載される台座を備え、  
前記水素供給部は、前記台座内に設けられた水素流路と、当該水素流路及び前記水素室を接続する管部とを有する請求項 2 乃至 5 のいずれか 1 項に記載の燃料電池モジュール。

## 【請求項 7】

前記台座の主表面と直交する方向への前記反応容器の投影面の面積は、当該方向への前記台座の投影面の、燃料電池モジュールの定格出力当たりの面積に対して 0.5 ~ 1.3 倍である請求項 6 に記載の燃料電池モジュール。

## 【請求項 8】

前記水素分離部は、前記脱水素反応部側の主表面の有効透過面積が、前記直交する方向への投影面積の 1.2 倍以上である請求項 7 に記載の燃料電池モジュール。

40

## 【請求項 9】

前記水素分離部は、水素透過係数が  $1.0 \times 10^{-7} \text{ mol} / \text{m}^2 / \text{s} / \text{Pa}$  以上である請求項 1 乃至 8 のいずれか 1 項に記載の燃料電池モジュール。

## 【請求項 10】

前記脱水素反応部における、前記核水素化体から前記脱水素化体への転換率が 90% 以上である請求項 1 乃至 9 のいずれか 1 項に記載の燃料電池モジュール。

## 【請求項 11】

前記水素分離部を通過したガス中に含まれる前記脱水素化体のモル分率が 5% 以下である請求項 1 乃至 10 のいずれか 1 項に記載の燃料電池モジュール。

## 【請求項 12】

50

前記燃料電池のオフガスを燃焼させる燃焼部をさらに備え、

前記燃料電池は、前記筐体内における前記脱水素反応部の下方空間に前記オフガスを排出し、

前記燃焼部は、前記下方空間において前記オフガスを燃焼させる請求項 1 乃至 11 のいずれか 1 項に記載の燃料電池モジュール。

【請求項 13】

前記燃料電池は、筒状の形状を有し、一端が前記水素供給部に接続され、他端が前記下方空間に開放され、当該他端側に前記燃焼部が配置されている請求項 12 に記載の燃料電池モジュール。

【請求項 14】

前記燃料電池は、円筒型又は円筒平板型の固体酸化物形燃料電池である請求項 1 乃至 13 のいずれか 1 項に記載の燃料電池モジュール。

【請求項 15】

請求項 1 乃至 14 のいずれか 1 項に記載の燃料電池モジュールと、  
前記水素分離部で分離された気体状の前記脱水素化体を凝縮させる凝縮部と、  
前記凝縮部で生成される液体状の前記脱水素化体を収容する脱水素化体収容槽と、  
を備えることを特徴とする燃料電池システム。

【請求項 16】

熱媒体の貯蔵槽と、  
気体状の前記脱水素化体と前記熱媒体との間で熱交換を行う熱交換部と、  
をさらに備える請求項 15 に記載の燃料電池システム。

【請求項 17】

前記熱交換部よりも前記熱媒体の流れ方向の下流側に設けられ、前記オフガスの燃焼排ガスと前記熱媒体との間で熱交換を行う第 2 の熱交換部をさらに備える請求項 16 に記載の燃料電池システム。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、芳香族化合物の核水素化体を用いて発電する燃料電池モジュールと、当該燃料電池モジュールを備える燃料電池システムに関する。

【背景技術】

【0002】

従来、太陽光や風力等の再生可能エネルギーの利用が盛んに検討されている。このような再生可能エネルギーは、エネルギーの供給地と消費地とが離れている場合が多い。エネルギー供給地は、多くは砂漠や山岳地帯などの過疎地であり、エネルギー消費地は多くは都市部である。それゆえ、エネルギーの供給地から消費地への輸送方法として送電網による送電は効率的でなく、化学エネルギーに変換して輸送することが望ましい。

【0003】

化学エネルギーの媒体としては、液体水素あるいは高圧水素ガスが候補として挙げられる。しかしながら、液体水素や高圧水素ガスは、水素の液化や圧縮のためにエネルギーが必要であるため、エネルギー変換効率の点で不利である。その上、液体水素や高圧水素ガスは、石油等の液体化石燃料に比べて重量あるいは体積当たりのエネルギー密度が著しく低いという問題がある。

【0004】

これに対し、いわゆる有機ハイドライドを化学エネルギーの媒体として利用することが現在有望視されている。すなわち、ベンゼン、トルエン、ナフタレン等に代表される可逆的に水素化可能な芳香族化合物に、自然エネルギーが潤沢にある地域で、この自然エネルギーから得られる電力によって核水素化反応を行う。これにより、芳香族化合物を、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、デカリンに代表される環状有機化合物、すなわち有機ハイドライドに変換する。そして、この有機ハイドライドを消費地へ輸送する。消費地

10

20

30

40

50

では、有機ヒドライドの脱水素反応により水素を取り出し、得られた水素を発電等のエネルギー変換に利用する。また、脱水素反応後に生成される有機ヒドライドの脱水素化体、すなわち芳香族化合物を回収しエネルギー供給地へ輸送して、再びエネルギー媒体として利用する。

【0005】

このように、エネルギー媒体として有機ヒドライドを用いることで、循環型エネルギー変換/輸送モデルを実現することができる。このエネルギー変換/輸送モデルのなかで、例えばトルエン-メチルシクロヘキサン系では、可搬媒体全体の重量に対する可逆的に運搬できる水素重量の割合が7%を越える。したがって、有機ヒドライドを用いた場合、液体水素や70MPa程度の高圧水素に匹敵する重量エネルギー密度を、冷却や高圧容器を用いる必要がない比較的温和な条件で得ることができる。

10

【0006】

有機ヒドライドの脱水素化体に水素を添加する方法としては、例えば太陽光発電や風力発電により得られた電力で水の電気分解を行い、この電気分解で得られた水素を用いて有機ヒドライドを得る方法が挙げられる。また、有機ヒドライドの脱水素体を気化させたガスを直接電極上に送り込むことで、水素ガスの状態を経由せずに有機ヒドライドを得る手法も報告されている(非特許文献1参照)。

【0007】

一方、消費地において有機ヒドライドから電力等の利用可能なエネルギーを可逆的に得る方法、すなわち、脱水素化体の大部分を回収・再利用できるように有機ヒドライドを脱水素化する方法としては、有機ヒドライドから脱水素反応により水素ガスを分離し、得られた水素ガスで燃料電池等の発電素子を動作させる方法が専ら提案されている。例えば、特許文献1には、有機ヒドライドの脱水素反応により水素を製造する脱水素手段と、脱水素手段で製造された水素を燃料として用いる燃料電池とを組み合わせた構造が開示されている。

20

【0008】

有機ヒドライドの水素分離反応を経由せずに、有機ヒドライドの有する水素を直接用いて発電できるダイレクト型燃料電池も考案されてはいるが(非特許文献2, 3、特許文献2参照)、電極幾何面積あたりの電流密度や単セル当たりの電圧特性に代表される発電特性、電極幾何面積当たりに取り出せる電力(出力密度)等に未だ大幅な改善の余地があり、実用的な出力密度とエネルギー変換効率を両立するに至っていない。

30

【先行技術文献】

【特許文献】

【0009】

【特許文献1】特開2005-203266号公報

【特許文献2】米国特許出願公開第2008/0152960号明細書

【非特許文献】

【0010】

【非特許文献1】市川勝, J. Jpn. Inst. Energy, 85巻, 517(2006)

40

【非特許文献2】Physical Chemistry Chemical Physics, 8, 1724-1730(2006)

【非特許文献3】Z. Shi, J. Power Sources, 176, 122-127(2008)

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0011】

上述した、有機ヒドライドから脱水素反応により水素ガスを分離する方法では、この脱水素反応が吸熱反応であるため、脱水素反応に要する熱量を何らかの燃焼反応等によって外部から供給する必要があった。上述した特許文献1には、脱水素反応の反応熱に燃料

50

電池の排熱を利用することが開示されている。

【0012】

これに対し本発明者らは、有機ヒドライドの脱水素反応と燃料電池の発電とを効率的に進行させる上で、従来の構造には改善の余地があることを認識するに至った。

【0013】

本発明はこうした課題に鑑みてなされたものであり、その目的は、有機ヒドライドの脱水素反応と燃料電池の発電とを効率的に進行させることができる技術を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0014】

本発明のある態様は燃料電池モジュールである。当該燃料電池モジュールは、燃料電池と、芳香族化合物の核水素化体の脱水素反応を行う脱水素反応部と、前記脱水素反応部で生成された水素と、前記核水素化体の脱水素化体とを分離する水素分離部と、前記水素分離部で分離された水素を前記燃料電池に供給する水素供給部と、前記燃料電池、前記脱水素反応部、前記水素分離部及び前記水素供給部を収容する単一の筐体と、を備え、前記脱水素反応部は、前記燃料電池で発生する熱、及び前記燃料電池のオフガスの燃焼で発生する熱の少なくとも一方により加熱されることを特徴とする。

【0015】

本発明の他の態様は燃料電池システムである。当該燃料電池システムは、上述の態様の燃料電池モジュールと、前記水素分離部で分離された気体状の前記脱水素化体を凝縮させる凝縮部と、前記凝縮部で生成される液体状の前記脱水素化体を収容する脱水素化体収容槽と、を備えることを特徴とする。

【発明の効果】

【0016】

本発明によれば、有機ヒドライドの脱水素反応と燃料電池の発電とを効率的に進行させることができる技術を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0017】

【図1】実施の形態1に係る燃料電池システムの概略構造を示す模式図である。

【図2】燃料電池モジュールの概略構造を示す模式図である。

【図3】図2のA-A線に沿った断面図である。

【図4】台座と反応容器の寸法を説明するための概念図である。

【図5】図5(A)～図5(C)は、水素分離部の膜形状を説明するための模式図である。

。

【図6】脱水素反応部のゲージ圧と水素分離部における水素流量との関係を示す図である。

。

【図7】実施の形態2に係る燃料電池システムの概略構造を示す模式図である。

【発明を実施するための形態】

【0018】

以下、本発明の実施の形態を、図面を参照して説明する。なお、すべての図面において、同様な構成要素には同様の符号を付し、適宜説明を省略する。

【0019】

(実施の形態1)

図1は、実施の形態1に係る燃料電池システムの概略構造を示す模式図である。図1に示すように、本実施の形態に係る燃料電池システム1は、核水素化体貯蔵槽10、燃料電池モジュール20、第1排ガス処理部30、第2排ガス処理部32、第1熱交換部40(熱交換部)、第2熱交換部42(第2の熱交換部)、第3熱交換部44、凝縮部50、脱水素化体収容槽60、及び貯湯槽70を備える。

【0020】

核水素化体貯蔵槽10は、燃料電池モジュール20に供給される芳香族化合物の核水素

10

20

30

40

50

化体、すなわち有機ヒドライドを貯蔵する。燃料電池モジュール20に貯蔵される有機ヒドライドは、外部の核水素化体供給ラインから供給される。本実施の形態に係る燃料電池システム1で用いられる有機ヒドライドは、水素化反応/脱水素反応を可逆的に起こすことにより水素を添加/脱離できる有機化合物であれば特に限定されず、アセトン-イソプロパノール系、ベンゾキノ-ヒドロキノ系、芳香族炭化水素を含む芳香族化合物系など広く用いることができる。これらの中で、エネルギー輸送時の運搬性、毒性、安全性、保存安定性などの側面、体積あるいは重量当たり輸送できる水素量、有機ヒドライドの脱水素化体への水素添加及び水素化体からの脱水素反応の容易性、Gibbs自由エネルギー変化が著しく大きくない等のエネルギー変換効率の観点から、トルエン-メチルシクロヘキサン系に代表される芳香族化合物系が好ましい。

10

#### 【0021】

有機ヒドライドとして用いることができる芳香族化合物の核水素化体は、例えば少なくとも1つの芳香環を核水素化した化合物である。具体的には、例えば、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、ジフェニルエタン、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、キノリン、イソキノリン、N-アルキルピロール、N-アルキルインドール、N-アルキルジベンゾピロールなどの核水素化体が挙げられる。上述した化合物における芳香環の1乃至4の水素原子がアルキル基で置換されていてもよい。ただし、上記芳香族化合物中の「アルキル」は、炭素数1~6の直鎖アルキル基又は分岐アルキル基である。例えば、ベンゼンとしては、トルエン、エチルベンゼンなどのアルキルベンゼン、キシレン、ジエチルベンゼンなどのジアルキルベンゼン、メシチレンなどのトリアルキルベンゼンが挙げられる。また、ナフタレンとしては、メチルナフタレンなどのアルキルナフタレンが挙げられる。芳香族化合物及びその核水素化体は、核水素化体貯蔵槽10や燃料電池モジュール20の構造の簡便化の観点から、常温で液体であることが好ましい。上述した化合物のうち複数を混合したものをを用いる場合は、混合物として液体であればよい。

20

#### 【0022】

例えば、トルエン-メチルシクロヘキサン系の場合、1分子のメチルシクロヘキサン(核水素化体)から3分子の水素を取り出すことができる。また、ガソリン等の石油類に性質が類似しているため、従来液体燃料と同様の扱いが可能である。なお、以下では適宜、芳香族化合物の核水素化体、すなわち有機ヒドライドを、「核水素化体」と称する。また、核水素化体の脱水素化体、すなわち、有機ヒドライドの脱水素化体を、「脱水素化体」と称する。以下、本実施の形態では、メチルシクロヘキサン(以下では適宜、「MCH」と称する)を核水素化体の例にとり、トルエン(以下では適宜、「TL」と称する)を脱水素化体の例にとって説明する。

30

#### 【0023】

核水素化体としてのMCHは、ポンプ80により核水素化体貯蔵槽10から燃料電池モジュール20に送出される。

#### 【0024】

燃料電池モジュール20は、筐体100、燃料電池110、燃焼部120、反応容器130等を備える。燃料電池110、燃焼部120及び反応容器130は、単一の筐体100に収容されて一体化されている。核水素化体貯蔵槽10から供給されたMCHは、反応容器130に流入する。そして、反応容器130中でMCHの脱水素反応が行われ、水素とTLとが生成される。生成された水素ガスは気体状のTLと分離され、燃料電池110に供給される。また、燃料電池110には、外部からポンプ82により空気等の酸化剤が供給される。燃料電池110は、供給された水素と酸化剤とを用いて電気化学反応により発電するとともに、オフガスを筐体100の内部空間に排出する。燃焼部120は、当該内部空間においてオフガスを燃焼する。燃料電池モジュール20の構成については後に詳細に説明する。

40

#### 【0025】

燃焼部120によるオフガスの燃焼によって発生した燃焼排ガスは、第1排ガス処理部30に排出される。第1排ガス処理部30は、例えば、Pt、Pd等をアルミナ、シリカ

50

等の担体に担持させてなる燃焼触媒を有する。第1排ガス処理部30は、この燃焼触媒に燃焼排ガスを接触させることで燃焼排ガスを燃焼させ、燃焼排ガス中のCO濃度を低下させて外気に開放する。

#### 【0026】

反応容器130内で水素と分離された気体状のTLは、圧力調整部34を経て、気液分離手段としての凝縮部50に送出される。なお、反応容器130から凝縮部50へは、気体状のTLに加え、分離されなかった水素、未反応のMCH、メタンやベンゼン等の副生成物などを含む混合ガスが送出される。圧力調整部34は、例えばオリフィス、ニードルバルブ、キャピラリー等で構成される。反応容器130内で高圧の状態にある混合ガスは、圧力調整部34において圧力が開放され、圧力調整部34の下流側で略常圧となる。したがって、凝縮部50を簡便な構成とすることができる。気体状のTLは、凝縮部50において凝縮して液体となり、他の気体と分離される。分離された液体状のTLは、ポンプ86により凝縮部50から脱水素化体収容槽60に送出され、脱水素化体収容槽60内に収容される。脱水素化体収容槽60に収容されたTLは、外部の脱水素化体回収ラインに送り出され、再び有機ハイドライドの脱水素化体として水素輸送に供される。

10

#### 【0027】

本実施の形態の燃料電池システム1は、内部が隔壁92により2つの空間に区画された単一のタンク90を有する。そして、タンク90内の一方の空間が核水素化体貯蔵槽10を構成し、他方の空間が脱水素化体収容槽60を構成している。隔壁92は可動式であり、MCH及びTLの収容量に応じて、核水素化体貯蔵槽10及び脱水素化体収容槽60の容積を変更することができる。

20

#### 【0028】

凝縮部50において、液体状のTLと分離された気体は、第2排ガス処理部32に送出される。第2排ガス処理部32は、第1排ガス処理部30と同様の構造を有し、凝縮部50から送られてきた気体を燃焼触媒と接触させて当該気体を燃焼させた後、外気に開放する。

#### 【0029】

貯湯槽70は、熱媒体としての熱回収水を貯蔵する貯蔵槽である。貯湯槽70には、外部から上水が供給される。また、貯湯槽70には循環流路72が設けられている。循環流路72には、ポンプ84が設けられており、ポンプ84により貯湯槽70内の熱回収水が循環流路72に送り出され、循環流路72を通過して再び貯湯槽70に戻される。循環流路72には、熱回収水の流れ方向の上流側から順に、第3熱交換部44、第1熱交換部40、第2熱交換部42が設けられている。

30

#### 【0030】

第3熱交換部44では、第2排ガス処理部32から送り出された排ガスと、貯湯槽70から送り出された熱回収水との間で熱交換が行われ、排ガスにより熱回収水が加熱される。この熱回収水は、第3熱交換部44よりも下流側に設けられた第1熱交換部40に送出される。第1熱交換部40では、反応容器130から排出された、気体状のTLを含む混合ガスと、熱回収水との間で熱交換が行われ、熱回収水がさらに加熱される。第1熱交換部40で加熱された熱回収水は、第1熱交換部40よりも下流側に設けられた第2熱交換部42に送出される。第2熱交換部42では、第1排ガス処理部30において完全燃焼された、オフガスの燃焼排ガスと、熱回収水との間で熱交換が行われ、熱回収水がさらに加熱される。第2熱交換部42を通過した熱回収水は、貯湯槽70に戻される。これにより、貯湯槽70に湯水が貯留される。

40

#### 【0031】

貯湯槽70に溜められた湯水は、外部に送り出されて暖房や給湯等に利用される。したがって、本実施の形態に係る燃料電池システム1は、燃料電池モジュール20等からの排熱を回収して、暖房や給湯等に利用するコジェネレーションシステムを構成している。

#### 【0032】

続いて、本実施の形態に係る燃料電池モジュール20の構造について詳細に説明する。

50

図2は、燃料電池モジュールの概略構造を示す模式図である。図3は、図2のA-A線に沿った断面図である。本実施の形態に係る燃料電池モジュール20は、上述した筐体100、燃料電池110、燃焼部120、及び反応容器130に加え、水素供給部140、台座150を備える。

#### 【0033】

燃料電池110は、供給された水素と酸化剤とを用いて電気化学反応を行う発電素子である。また、燃料電池110は、核水素化体の脱水素反応に必要な熱を反応容器130に供給する熱源としても機能する。この熱源としての機能を発揮するために、燃料電池110は、核水素化体の脱水素反応の下限温度（例えば250）以上の温度で動作する燃料電池であることが好ましい。ここで、燃料電池の動作温度とは、燃料電池の発電部における代表的な温度を意味する。例えば、複数の発電セルが積層されたセルスタックの形態では、その中心付近の温度が動作温度として好ましく用いられる。

10

#### 【0034】

この要件を満たす燃料電池の好ましい例としては、固体酸化物形燃料電池(SOFC)、熔融炭酸塩形燃料電池(MCFC)等の高温型燃料電池や、リン酸形燃料電池(PAFC)、リン酸含浸系電解質を用いる燃料電池、中温固体高分子形燃料電池(MT-PEFC)等の中温型燃料電池を挙げることができる。特に、300~600の中温域で動作可能なSOFCが好ましい。SOFCの中でも、その動作温度範囲の比較的低温域で動作する燃料電池は、目下様々な研究者によって鋭意開発されており、特に当該温度域で酸素イオンあるいはプロトン伝導する固体電解質材料や、空気極触媒材料に関して多数報告されている(江口浩一監修、「固体酸化物形燃料電池:SOFCの開発」、シーエムシー出版、p122~p173)。燃料電池110としては、一例としてLSGM(LaSrGaMgO)系電解質を用いたアノード支持円筒型SOFC(Journal of Power Sources, Volume 199, 1 February 2012, Pages 117-123 Naoki Watanabe, Toshiharu Ooe, Tatsumi Ishihara)が好ましく用いられる。

20

#### 【0035】

燃料電池としてSOFCを用いる場合、動作温度の範囲は、好ましくは300~600であり、より好ましくは350~550である。燃料電池の動作温度を300以上とすることで、脱水素反応に必要な熱を反応容器130により確実に与えることができる。また動作温度を600以下とすることで、反応容器130への熱供給量が過剰となることを回避して、副反応の進行や、供給された熱が反応容器130で有効に利用されない事態が生じることを防ぐことができる。

30

#### 【0036】

本実施の形態の燃料電池110は、円筒型のSOFCである。なお、燃料電池110は、円筒平板型等であってもよい。燃料電池110は、台座150の主表面上に搭載されている。本実施の形態では、複数の燃料電池110が台座150に搭載されている。台座150内には水素供給部140の一部を構成する水素流路142が設けられており、燃料電池110の一端(下端)が水素流路142に接続されることで、燃料電池110が水素供給部140に接続されている。燃料電池110は、台座150上で上方に突出し、他端(上端)が筐体100の内部空間のうち反応容器130の下方に位置する、下方空間102に開放されている。

40

#### 【0037】

各燃料電池110は、中心に管状の水素流通空間110aを有し、その外側に、アノード112、電解質膜114、カソード116がこの順に積層された構造を有する。すなわち、アノード112の内周面によって水素流通空間110aが形成されている。カソード116には、燃料電池110の軸方向に沿ってスリット116aが設けられており、スリット116a内に集電体118が設けられている。

#### 【0038】

水素供給部140から供給される水素は、水素流通空間110a内を燃料電池110の

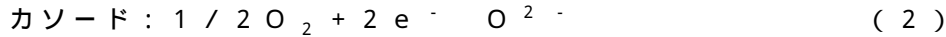
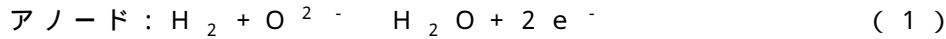
50



一端側から他端側に流動しながら、アノード 112 の内周面からアノード 112 に供給される。アノード 112 に供給されずに残った水素は、燃料電池 110 の他端から筐体 100 内における下方空間 102 にオフガスとして排出される。また、ポンプ 82 により筐体 100 内に供給された酸化剤としての空気は、筐体 100 の内部空間に露出するカソード 116 の外周面からカソード 116 に供給される。

【0039】

水素及び空気が供給されると、アノード 112 で以下の式 (1) で示す電極反応が起きる。一方、カソード 116 で以下の式 (2) で示す電極反応が起きる。



10

【0040】

アノード 112 では、上記式 (1) に示されるように、供給された水素が電子を放出するとともに、カソード 116 から電解質膜 114 中を移動してきた酸素イオンと反応して水が生成される。電子は、外部回路 (図示せず) を通ってカソード 116 に移動する。一方、カソード 116 では、上記式 (2) に示されるように、供給された空気中に含まれる酸素がアノード 112 側から移動してきた電子と反応して酸素イオンとなる。酸素イオンは電解質膜 114 の内部をアノード 112 に向かって移動する。このように、外部回路ではアノード 112 からカソード 116 に向かって電子が移動するため、電力が取り出される。

【0041】

燃焼部 120 は、バーナー等の公知の燃焼装置で構成され、燃料電池 110 の他端側に、すなわち下方空間 102 に配置されている。燃焼部 120 は、下方空間 102 において、燃料電池 110 の開放端から放出されたオフガスと、筐体 100 の内部空間に存在する酸化剤としての空気との混合ガスを燃焼させる。オフガスの燃焼によって発生した熱は、下方空間 102 の上部に位置する反応容器 130 に供給される。これにより、反応容器 130 の温度を、より確実に、核水素化体の脱水素反応に好適な温度に維持することができる。

20

【0042】

なお、本実施の形態では、燃料電池 110 の発電時に発生する熱、及び燃料電池 110 のオフガスの燃焼で発生する熱により反応容器 130 を加熱しているが、燃料電池 110 で発生する熱で核水素化体の脱水素反応に必要な熱を十分に確保できる場合には、燃焼部 120 を省略することができる。また、本実施の形態では、燃焼部 120 を設けて、燃料電池 110 で利用しなかった余剰燃料ガスを燃焼させることで、核水素化体の脱水素反応に必要な熱を反応容器 130 に供給している。そのため、燃料電池 110 の動作温度は、必ずしも核水素化体の脱水素反応の下限温度よりも高温である必要はない。ただし、脱水素反応に必要な熱をより確実に確保するという観点から、本実施の形態のように燃料電池 110 の動作温度を脱水素反応の下限温度以上に設定することが好ましい。

30

【0043】

また、熱の授受を効率的に行うために、発熱点である燃料電池 110 もしくは燃焼部 120 と、吸熱点である反応容器 130 (より詳しくは、後述する脱水素反応部) を空間的にできるだけ接近させることが好ましい。本実施の形態では、円筒型の燃料電池 110 を採用し、オフガスが排出される側の端部を、反応容器 130 の下方に位置する下方空間 102 に配置し、さらに下方空間 102 に燃焼部 120 を配置している。そのため、燃料電池 110 もしくは燃焼部 120 で発生した熱を効率的に反応容器 130 に伝達させることができる。

40

【0044】

なお、本実施の形態では、燃焼部 120 でオフガスを燃焼させて反応容器 130 に熱を供給する上で好適であるという理由で、円筒型や円筒平板型等の筒状の形状を有する燃料電池 110 を採用し、一端側を水素供給部 140 に接続し、他端側を開放させた片側 (下端) 固定構造としている。しかしながら、燃料電池 110 の形状はこれに限定されず、様

50

々な形状を採ることができる。例えば、燃料電池 110 のみで脱水素反応に必要な熱を賄う構成においては、平板型等の燃料電池を採用してもよい。

【0045】

反応容器 130 は、脱水素反応部 132、水素分離部 134 及び水素室 136 を内部に含む。本実施の形態では、膜状の水素分離部 134 が水素室 136 を画定している。例えば、図 2 及び図 5 に示すように、反応容器 130 の内部が膜状の水素分離部 134 により 2 つの空間に区画されており、一方の空間が脱水素反応部 132 を構成し、他方の空間が水素室 136 を構成している。

【0046】

脱水素反応部 132 は、上述の一方の空間に充填された脱水素触媒 132a と、反応容器 130 の外部、すなわち核水素化体貯蔵槽 10 から供給される MCH の供給口 132b と、核水素化体の脱水素反応により生成された TL が排出される排出口 132c とを有する。脱水素反応部 132 は、脱水素触媒 132a の触媒反応によって、供給口 132b から内部に流入した MCH の脱水素反応を行う。これにより、MCH から水素ガスと気体状の TL との混合ガスが得られる。脱水素触媒 132a としては、Pt、Rh、Ru、Pd、Ni 等の脱水素活性を有する金属と、必要に応じて、触媒上でのコーク生成を抑制するための  $K_2O$ 、 $Rb_2O$ 、 $Cs_2O$ 、 $MgO$ 、 $CaO$ 、 $SrO$ 、 $BaO$ 、 $Sc_2O_3$ 、 $Y_2O_3$ 、 $La_2O_3$ 、 $CeO_2$  等の助触媒とを、アルミナ等の担体に担持した固体触媒床を挙げることができる。なお、触媒上でのコーク生成の抑制を目的として、脱水素反応部 132 で生成され水素分離部 134 で分離された水素の一部を、脱水素反応部 132 に供給してもよい。

10

20

【0047】

脱水素触媒 132a がアルミナ担持 Pt 触媒である場合、触媒反応温度は、好ましくは 250 以上 500 以下であり、より好ましくは 300 以上 450 以下である。触媒反応温度を 250 以上とすることで、実用的な脱水素反応を実施できる程度の反応速度をより確実に得ることができる。また、触媒反応温度を 500 以下とすることで、脱水素反応と競争して、MCH の脱メチル化反応や炭素析出反応が起こることを、抑制することができる。脱水素反応部 132 は、燃料電池 110 で発生する熱、及び / 又は燃料電池 110 のオフガスの燃焼で発生する熱により加熱されて、触媒反応温度に維持される。脱水素反応部 132 における、核水素化体から脱水素化体への転換率は、好ましくは 90 % 以上であり、より好ましくは 93 % 以上であり、さらに好ましくは 95 % 以上である。

30

【0048】

燃料電池モジュール 20 における温度制御の主な対象としては、脱水素反応部 132 と燃料電池 110 が挙げられるが、少なくとも脱水素反応部 132 の温度について、熱電対などの温度計測手段を用いて脱水素反応部 132 内の所定部位の温度をモニターしながら、所定温度範囲内に制御されることが好ましい。例えば、脱水素反応部 132 の温度が 250 未満となった場合、脱水素反応部 132 の温度を上げるべく、燃料電池 110 で消費されない余剰水素量を増大させる。すなわち、燃料電池 110 の後述する Uf を低減させる。具体的には、例えば燃料電池モジュール 20 への MCH の投入量の増大や、燃料電池 110 の掃引電流の低減等により Uf を低減させる。脱水素反応部 132 の温度が 500 を越えた場合、脱水素反応部 132 の温度を下げるべく、燃料電池 110 の許容上限を超えない範囲で Uf を増大させる。具体的には、例えば Uf を低減させる場合と逆の制御を実施する。

40

【0049】

水素分離部 134 は、脱水素反応部 132 で生成された水素と、同時に生成される脱水素化体としての TL とを分離する。上述のように、本実施の形態では、水素分離部 134 は水素分離膜で構成されており、水素分離膜が水素と TL の混合ガスから水素を選択的に透過させることで、水素を主成分とする燃料ガスが生成される。水素分離部 134 を構成する水素分離膜としては、Pd 等の金属薄膜や、シリカ、ゼオライトなどの多孔質膜等を挙げることができる。水素分離膜の好ましい例としては、CVD (Chemical V

50

apor Deposition)により形成したシリカ薄膜(野村幹弘著、「表面技術」vol.59, No.1, p28, 2008年)が挙げられる。

【0050】

一般に、燃料として利用できる物質は、低温～中温型燃料電池では水素のみ、SOFC等の高温型燃料電池では水素と一酸化炭素が含まれる。また、高温型燃料電池において水蒸気改質反応で得られた改質ガスが燃料として用いられる場合であって、改質器出口ガスに余剰の水分が含まれる場合は、メタンや低級の炭化水素も燃料として用いることができる。一方、本実施の形態では、燃料電池110はSOFCであり動作温度は比較的高温であるが、燃料電池110に供給される燃料ガス中に水分が存在しないため、基本的に燃料として利用できる物質は水素のみである。

10

【0051】

したがって、燃料ガス中に含まれる炭化水素の濃度が高いと、燃料電池で炭素析出(コーキング)等が発生し、燃料電池の劣化破壊が引き起こされる懸念がある。このため、燃料電池110に供給される燃料ガスは、TLや、脱水素反応部132で起こる副反応によって生じるメタン、ベンゼン等の含炭素化合物の含有量が一定の範囲以下となっていることが望ましい。こうした観点から、燃料電池110をSOFCとした場合、水素分離部134を通過したガス中に含まれるTLのモル分率は、5%以下であることが好ましく、3%以下であることがより好ましく、1%以下であることがさらに好ましい。

【0052】

本実施の形態において、水素分離部134は、脱水素反応部132の供給口132bにおけるMCHの流入方向に対して略平行に延在している。そして、反応容器130の燃焼部120側を向く面の全体を脱水素反応部132としている。これにより、燃料電池110及び/又は燃焼部120から脱水素反応部132への熱伝達をより確実に行うことができ、また、脱水素反応部132の全体をより均一に加熱することができる。さらに、水素分離部134の有効透過面積を確保することができる。なお、前記「略平行」とは、水素分離部134が例えば図5(B)に示すジグザグ形状や図5(C)に示すブリーツ形状を有する場合、水素分離部134の局所的な傾きを無視し、水素分離部134の延在方向、言い換えれば、MHCの流入方向上流側に位置する水素分離部134の端部と下流側に位置する水素分離部134の端部とを結ぶ直線が、MHCの流入方向に対しておおよそ平行であることを意味する。

20

30

【0053】

また、水素分離部134は、脱水素反応部132の隔壁の一部を構成し、燃料電池モジュール20の内部で水素とTLとを分離している。これにより、脱水素反応部132から燃料電池モジュール20の外部へ水素とTLの混合ガスを取り出して、モジュール外部で水素とTLとを分離する構成に比べて、高温の水素ガスが有するエンタルピーの損失を抑制することができる。

【0054】

水素分離部134で分離された気体状のTLを主成分とするガス、すなわち、水素分離部134を透過しなかったガスは、脱水素反応部132の排出口132cから凝縮部50に送出される。そして、上述のように凝縮部50によりTLが液化されて気体と分離され、脱水素化体収容槽60に回収される。

40

【0055】

水素分離部134で分離された水素を主成分とするガス、すなわち、水素分離部134を透過したガスは、水素分離部134を挟んで脱水素反応部132と隣り合う水素室136に流入する(図2における矢印は、このガスの流れを示している)。水素室136には、水素供給部140を構成する管部144の上端が接続されている。したがって、水素室136は、水素分離部134と水素供給部140の管部144とをつなぐガス流路として機能する。

【0056】

脱水素反応部132は、燃料電池110の上方に配置され、水素分離部134は、脱水

50

素反応部 1 3 2 の上方に配置されている。すなわち、脱水素反応部 1 3 2 の一方の主表面が燃料電池 1 1 0 及び / 又は燃焼部 1 2 0 からの受熱面となり、当該受熱面とは反対側の脱水素反応部 1 3 2 の主表面上に水素分離部 1 3 4 が配置されている。そして、脱水素反応部 1 3 2 とは反対側の水素分離部 1 3 4 の主表面上に水素室 1 3 6 が配置されている。これにより、供給口 1 3 2 b から導入された M C H の脱水素反応が、核水素化体の流れの上流側から徐々に開始され、生成された水素が水素分離部 1 3 4 を透過して T L から分離され、水素回収用空間である水素室 1 3 6 に移動する。脱水素反応部 1 3 2 から水素室 1 3 6 への水素の移動により、脱水素反応部 1 3 2 内の平衡状態がずれるため、M C H の脱水素反応を略完全に進行させることができる。

【 0 0 5 7 】

水素分離部 1 3 4 で T L から分離され、水素室 1 3 6 に流入した水素ガスは、水素供給部 1 4 0 に送り出される。水素供給部 1 4 0 は、水素流路 1 4 2 (燃料電池ガスマニホルド) と、管部 1 4 4 (ダクト) とを有する。水素流路 1 4 2 は、上述のように台座 1 5 0 内に設けられており、一端側が複数に分岐して各燃料電池 1 1 0 の下端に接続されている。管部 1 4 4 は、上下方向に延在して、下端が水素流路 1 4 2 の他端に接続され、上端が水素室 1 3 6 に接続される。水素室 1 3 6 に流入した水素は、管部 1 4 4 及び水素流路 1 4 2 を経て、燃料電池 1 1 0 に供給される。

【 0 0 5 8 】

本実施の形態に係る燃料電池モジュール 2 0 では、燃料電池 1 1 0 と、燃焼部 1 2 0 と、脱水素反応部 1 3 2 及び水素分離部 1 3 4 を含む反応容器 1 3 0 と、水素供給部 1 4 0 とが、単一の筐体 1 0 0 に収容されている。このように、燃料電池 1 1 0 と、この燃料電池 1 1 0 に供給する燃料を生成するための反応容器 1 3 0 とを 1 つの断熱空間内に配置することで、核水素化体の脱水素反応により生じた水素のエンタルピーを損なうことなく、水素を燃料電池 1 1 0 へ供給することができる。よって、核水素化体から高いエネルギー変換効率で且つ実用的な出力密度で、電力を取り出すことができる。また、燃料電池 1 1 0 から放出される余剰熱を脱水素反応部 1 3 2 に効率的に与えることができる。そのため、脱水素反応部 1 3 2 による核水素化体の脱水素反応と、燃料電池 1 1 0 による発電とを効率的に進行させることができる。

【 0 0 5 9 】

ここで、図 4 を参照しながら、燃料電池モジュール 2 0 における台座 1 5 0 と反応容器 1 3 0 の寸法について説明する。図 4 は、台座と反応容器の寸法を説明するための概念図である。燃料電池モジュール 2 0 の設置面積の増大を抑制する観点から、台座 1 5 0 の投影面 1 5 0 P の定格出力当たりの面積は、好ましくは  $1000 \sim 10000 \text{ cm}^2 / \text{kW}$  であり、より好ましくは  $2000 \sim 8000 \text{ cm}^2 / \text{kW}$  であり、さらに好ましくは  $3000 \sim 7000 \text{ cm}^2 / \text{kW}$  である。例えば、1 kW 級 (DC 800 W) の発電仕様の S O F C で、台座 1 5 0 の投影面 1 5 0 P の幅が約 105 mm であり、長さが約 350 mm である場合、投影面 1 5 0 P の面積は、約  $3675 \text{ cm}^2$  であり、定格出力当たりの面積に換算すると約  $4600 \text{ cm}^2 / \text{kW}$  となる。

【 0 0 6 0 】

台座 1 5 0 の主表面と直交する方向 X への反応容器 1 3 0 の投影面 1 3 0 P の面積は、当該方向 X への台座 1 5 0 の投影面 1 5 0 P の、燃料電池モジュール 2 0 の定格出力当たりの面積に対して、0.5 ~ 1.35 倍であることが好ましく、0.6 ~ 1.2 倍であることがより好ましく、0.7 ~ 1.1 倍であることがさらに好ましい。

【 0 0 6 1 】

投影面 1 3 0 P の面積を投影面 1 5 0 P の定格出力当たりの面積に対して 0.5 倍以上とすることで、燃料電池 1 1 0 への燃料の供給不足が発生することをより確実に回避することができる。また、投影面 1 3 0 P の面積を投影面 1 5 0 P の定格出力当たりの面積に対して 1.35 倍以下とすることで、燃料電池モジュール 2 0 の大型化を抑制しながら、燃料電池 1 1 0 と反応容器 1 3 0 との一体化を図ることができる。すなわち、台座 1 5 0 の寸法、言い換えれば複数の燃料電池 1 1 0 の設置領域の寸法に基づいて筐体 1 0 0 の寸

10

20

30

40

50

法を定め、この筐体100内に反応容器130を収容して、燃料電池110と反応容器130との一体化を図ることができる。また、燃料電池モジュール20を方向Xから見て、反応容器130は台座150の輪郭の内側に含まれることが好ましい。

【0062】

続いて、燃料電池110における燃料利用率及び空気利用率について説明する。燃料電池110へ供給される水素のうち、発電により消費される水素の割合は、燃料利用率（以下では適宜、「Uf」と称する）と定義される。また、本実施の形態では、酸化剤である空気に含まれる酸素が発電に利用される割合は、空気利用率（以下では適宜、「Ua」と称する）と定義される。

【0063】

Ufは、好ましくは60～99%であり、より好ましくは70～98%であり、さらに好ましくは75～97%である。Ufを60%以上とすることで、供給された燃料ガスが燃料電池110で有効に利用され、燃料電池110の実用性が得られる程度までエネルギー変換効率（発電効率）を高めることができる。また、Ufを99%以下とすることで、燃焼部120に供給されるオフガスを確保でき、これにより脱水素反応に必要な熱を脱水素反応部132へより確実に供給することができる。また、燃料電池モジュール20が複数の燃料電池積層体を含む場合、燃料ガスが十分に供給されないセルが存在し得るが、Ufを99%以下とすることで、そのようなセルにも燃料ガスを十分に行き渡らせることができ、これにより燃料電池の性能低下の原因となるアノードの再酸化等を回避することができる。

10

20

【0064】

Uaは、100%を超えない限りは特に制限はないが、エネルギー変換効率とセルの劣化抑制の観点から、10～50%であることが好ましい。

【0065】

続いて、脱水素反応部132の圧力条件について説明する。MCHの脱水素反応は、水素を生成する反応である。そのため、脱水素反応部132内の圧力を高めると、化学平衡となるよう脱水素反応よりも逆反応が優先される。そのため、脱水素反応部132内の圧力は、常圧付近であることが本来好ましい。しかしながら、脱水素反応部132の後段に、圧力依存性の水素分離部134が設けられているため、被透過側の圧力、すなわち脱水素反応部132内の圧力を、透過側、すなわち燃料電池110側の圧力よりも高くすることが望ましい。燃料電池110の燃料流路（水素流通空間110a）内の圧力は略常圧と考えられるため、脱水素反応部132のゲージ圧（常圧に対する脱水素反応部132内の圧力）をそのまま、水素ガスを水素分離部134を透過させるために必要な圧力差とみなすことができる。脱水素反応部132のゲージ圧は、好ましくは10～600kPaであり、より好ましくは20～300kPaである。脱水素反応部132のゲージ圧は、例えばポンプ80によるMCHの流量調整等により制御することができる。脱水素反応部132のゲージ圧を高めた場合、ポンプ80から圧力調整部34までの間が高圧領域となる。

30

【0066】

必要とされる脱水素反応部132のゲージ圧は、水素分離部134の水素透過係数と、水素分離部134を構成する水素分離膜の、方向Xへの投影面積に対する有効透過面積の大きさ（膜表面のラフネス）とに依存する。水素分離部134は、水素透過係数が $1.0 \times 10^{-7} \text{ mol} / \text{m}^2 / \text{s} / \text{Pa}$ 以上であることが好ましく、 $2.0 \times 10^{-7} \text{ mol} / \text{m}^2 / \text{s} / \text{Pa}$ 以上であることがより好ましく、 $3.0 \times 10^{-7} \text{ mol} / \text{m}^2 / \text{s} / \text{Pa}$ 以上であることがさらに好ましい。また、水素分離部134は、脱水素反応部132側の主表面の有効透過面積が、上述の方向Xへの投影面積の1.2倍以上であることが好ましく、1.4倍以上であることがより好ましい。ここで、「有効透過面積」とは、水素分離部134における、水素とTLの混合ガスが接触して水素の分離が行われる領域の面積をいい、例えば、後述するジグザグ形状やブリーツ形状の水素分離膜では、主表面を展開したときの実面積に相当する。

40

【0067】

50

一例として、MCHの投入量を13.2 g/min (メチルヒドロキノンのH<sub>2</sub>換算で1676 W)、燃焼部120で発生する熱エネルギーを56 W、燃料電池110で発生する熱エネルギーを564 W、脱水素反応部132での消費熱エネルギーを-420 W (62.6 kJ/mol-H<sub>2</sub>)、燃料電池モジュール20での熱損失を-200 Wとする。また、燃料電池110の出力をDC1000 W、AC900 W、設置数を100、燃料電池1つ当たりの電圧を800 mV (64% LHV (低位発熱量))、電流を12.5 A、Ufを96.5%、水素分離部134で要求される水素流量を9.02 NLM (ノルマルリットル/分)とする。発電効率は、61.6% LHV (DC)、55.5% LHV (AC)である。また、水素分離部134を構成する水素分離膜を、水素透過係数の最大値が4.3 × 10<sup>-7</sup> mol/m<sup>2</sup>/s/PaであるシリカCVD膜とする。

10

## 【0068】

このモデルにおける、シリカCVD膜のラフネスと、必要水素量9.02 NLMを得るために必要な脱水素反応部132のゲージ圧との関係は、次の通りである。図5(A)~図5(C)は、水素分離部の膜形状を説明するための模式図である。図6は、脱水素反応部のゲージ圧と水素分離部における水素流量との関係を示す図である。図6において、縦軸は各形状の水素分離部134の水素流量(NLM)を示し、横軸は脱水素反応部132のゲージ圧(kPa)を示す。破線は、水素流量9.02 NLMの位置を示す。

## 【0069】

水素分離部134の形状としては、図5(A)に示す平面形状、図5(B)に示すジグザグ形状、図5(C)に示すプリーツ形状等を挙げることができる。図5(A)に示す平面形状の水素分離部134は、方向Xへの投影面積に対する有効透過面積の比Rが1である。図5(B)に示すジグザグ形状の水素分離部134は、投影面積に対する有効透過面積の比Rが1.4である。図5(C)に示すプリーツ形状の水素分離部134は、投影面積に対する有効透過面積の比Rが5である。

20

## 【0070】

各形状の水素分離部134について、脱水素反応部132のゲージ圧を変化させたときの水素流量の変化を見ると、図6に示すように、Rが1である平面形状の水素分離部134では、脱水素反応部132のゲージ圧が550 kPaの近傍で、要求水素流量9.02 NLMに到達する。Rが1.4であるジグザグ形状の水素分離部134では、ゲージ圧400 kPaの近傍で要求水素流量に到達する。Rが5であるプリーツ形状の水素分離部134では、ゲージ圧100 kPaの近傍で要求水素流量に到達する。

30

## 【0071】

すなわち、投影面積に対する有効透過面積の比Rを増大させることで、脱水素反応部132のゲージ圧をより低減させることができる。これにより、脱水素反応部132において脱水素反応の逆反応が進行することを抑制できるため、脱水素反応部132における効率的な水素生成が可能となり、脱水素反応部132、ひいては反応容器130を小型化することができる。その結果、燃料電池モジュール20の設置面積の増大を抑制しながら、燃料電池110と反応容器130との一体化が可能となる。

## 【0072】

以上説明したように、本実施の形態に係る燃料電池モジュール20は、燃料電池110と、脱水素反応部132と、水素分離部134と、水素供給部140とを単一の筐体100に収容して、これらを一体化するとともに、燃料電池110で発生する熱及びオフガスの燃焼で発生する熱の少なくとも一方により脱水素反応部132を加熱している。すなわち、本実施の形態に係る燃料電池モジュール20では、燃料電池110で発生した熱及び/又はオフガスの燃焼熱を、燃料電池110の燃料を生成する脱水素反応部132に供給しているため、脱水素反応部132での脱水素反応を安定的に進行させることができる。また、この脱水素反応で生成された水素と脱水素化体との分離を燃料電池モジュール20の内部で実施しているため、水素のエンタルピーを損なうことなく、水素を燃料電池110へ供給することができる。そして、この水素を燃料電池110に供給しているため、燃料電池110において安定的に発電させることができる。したがって、有機ハイドライド

40

50

の脱水素反応と燃料電池 1 1 0 の発電とを効率的に進行させることができる。

【 0 0 7 3 】

(実施の形態 2)

実施の形態 2 に係る燃料電池システム 1 は、第 2 排ガス処理部 3 2 を備えない点を除き、実施の形態 1 に係る燃料電池システム 1 と同様の構成を備える。以下、実施の形態 1 と異なる点を中心に、本実施の形態に係る燃料電池システム 1 について説明する。なお、実施の形態 1 と同一の構成については同一の符号を付し、その説明及び図示は適宜省略する。

【 0 0 7 4 】

図 7 は、実施の形態 2 に係る燃料電池システムの概略構造を示す模式図である。図 7 に示すように、本実施の形態に係る燃料電池システム 1 は、核水素化体貯蔵槽 1 0、燃料電池モジュール 2 0、第 1 排ガス処理部 3 0、第 1 熱交換部 4 0、第 2 熱交換部 4 2、凝縮部 5 0、脱水素化体収容槽 6 0、及び貯湯槽 7 0 を備える。

10

【 0 0 7 5 】

核水素化体貯蔵槽 1 0 は、燃料電池モジュール 2 0 に供給される核水素化体としての MCH を貯蔵する。MCH は、ポンプ 8 0 により核水素化体貯蔵槽 1 0 から燃料電池モジュール 2 0 に送出される。燃料電池モジュール 2 0 は、燃料電池 1 1 0、燃焼部 1 2 0、反応容器 1 3 0 等が筐体 1 0 0 内に収容されて一体化された構成を備える。核水素化体貯蔵槽 1 0 から供給された MCH は、反応容器 1 3 0 中で脱水素反応に供され、水素と TL とが生成される。生成された水素は TL と分離され、燃料電池 1 1 0 に供給される。また、燃料電池 1 1 0 には、外部からポンプ 8 2 により空気等の酸化剤が供給される。燃料電池 1 1 0 は、供給された水素と酸化剤とを用いて電気化学反応により発電するとともに、オフガスを筐体 1 0 0 の内部空間に排出する。燃焼部 1 2 0 は、当該内部空間においてオフガスを燃焼する。

20

【 0 0 7 6 】

燃焼部 1 2 0 によるオフガスの燃焼によって発生した燃焼排ガスは、第 1 排ガス処理部 3 0 に排出され、第 1 排ガス処理部 3 0 において完全に燃焼される。反応容器 1 3 0 内で水素と分離された気体状の TL は凝縮部 5 0 に送出され、凝縮部 5 0 において凝縮して液体となり、他の気体と分離される。分離された液体状の TL は、凝縮部 5 0 から脱水素化体収容槽 6 0 に送出される。脱水素化体収容槽 6 0 に収容された TL は、外部の脱水素化体回収ラインに送り出され、再び有機ヒドライドの脱水素化体として水素輸送に供される。凝縮部 5 0 において、液体状の TL と分離された気体は、圧力調整部 3 6 を経て、第 1 排ガス処理部 3 0 に送出され、第 1 排ガス処理部 3 0 において完全に燃焼される。

30

【 0 0 7 7 】

圧力調整部 3 6 は、例えばオリフィス、ニードルバルブ、キャピラリー等で構成される。反応容器 1 3 0 内で高圧の状態にある混合ガスは、圧力が維持されたまま凝縮部 5 0 に送出される。したがって、凝縮部 5 0 において TL と分離された気体は、高圧状態が維持されている。この気体は、圧力調整部 3 6 において圧力が開放され、圧力調整部 3 6 の下流側で略常圧となる。圧力調整部 3 6 の上流側は圧力が高いため、燃料電池モジュール 2 0 の燃焼排ガスが第 1 排ガス処理部 3 0 から凝縮部 5 0 側に逆流することを防ぐことができる。また、凝縮部 5 0 内が高圧の状態にあるため、液体状の TL の回収率を高めることができる。さらに、液体状の TL も高圧の状態にあるため、自身の圧力により凝縮部 5 0 から脱水素化体収容槽 6 0 に移動する。したがって、実施の形態 1 に係る燃料電池システム 1 が備えるポンプ 8 4 を省略することができる。

40

【 0 0 7 8 】

貯湯槽 7 0 には、熱回収水が貯蔵される。また、貯湯槽 7 0 には循環流路 7 2 が設けられている。貯湯槽 7 0 内の熱回収水は、ポンプ 8 4 により循環流路 7 2 に送り出され、循環流路 7 2 を通って再び貯湯槽 7 0 に戻される。循環流路 7 2 には、熱回収水の流れ方向の上流側から順に、第 1 熱交換部 4 0、第 2 熱交換部 4 2 が設けられている。第 1 熱交換部 4 0 では、反応容器 1 3 0 から排出された TL を含む混合ガスと、熱回収水との間で熱

50

交換が行われる。第1熱交換部40で加熱された熱回収水は、第2熱交換部42に送出される。第2熱交換部42では、第1排ガス処理部30から排出された燃焼排ガスと、熱回収水との間で熱交換が行われ、熱回収水がさらに加熱される。第2熱交換部42を通過した熱回収水は、貯湯槽70に戻される。これにより、貯湯槽70に湯水が貯留される。

【0079】

以上説明した実施の形態2に係る燃料電池システム1においても、実施の形態1と同様の効果が得られる。また、本実施の形態の燃料電池システム1は、第2排ガス処理部32を省略しているため、燃料電池システム1の構造を簡略化することができる。

【0080】

本発明は、上述の各実施の形態に限定されるものではなく、当業者の知識に基づいて各種の設計変更等の変形を加えることも可能であり、そのような変形が加えられた実施の形態も本発明の範囲に含まれるものである。

10

【0081】

例えば、上述の各実施の形態では、水素分離部134は反応容器130内で略面状に延在しているが、水素分離部134の形状は特にこれに限定されず、例えば筒状であってもよい。この場合、例えば水素分離部134の筒の内部を水素室136とすることができる。筒状の水素分離部134は、反応容器130内に複数設けられてもよい。この場合、水素分離部134の有効透過面積は、筒の外周面の合計面積である。また、例えば、水素分離部134と脱水素触媒132aとの間にメッシュ状の仕切り板などを設けて、脱水素触媒132aの充填空間と水素分離部134とを非接触としてもよい。

20

【符号の説明】

【0082】

1 燃料電池システム、 20 燃料電池モジュール、 40 第1熱交換部、 42 第2熱交換部、 50 凝縮部、 60 脱水素化体収容槽、 70 貯湯槽、 100 筐体、 102 下方空間、 110 燃料電池、 120 燃焼部、 130 反応容器、 130P 投影面、 132 脱水素反応部、 132a 脱水素触媒、 132b 供給口、 134 水素分離部、 136 水素室、 140 水素供給部、 142 水素流路、 144 管部、 150 台座、 150P 投影面。

【産業上の利用可能性】

【0083】

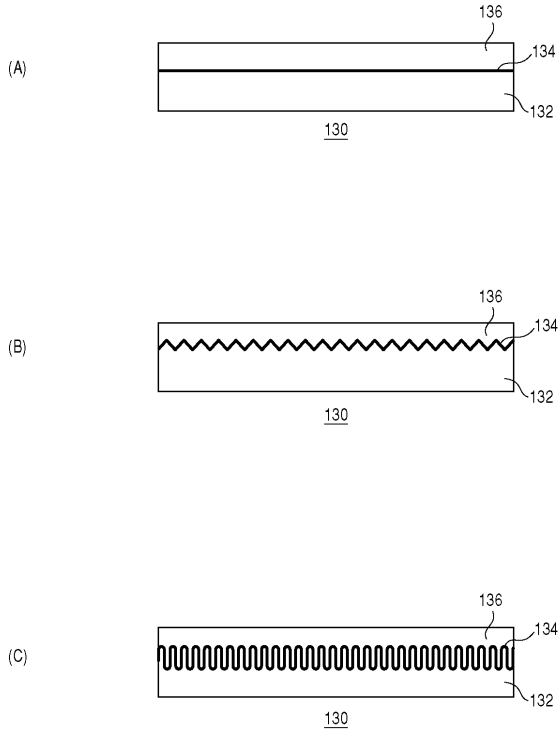
本発明は、燃料電池モジュール及び燃料電池システムに利用することができる。

30

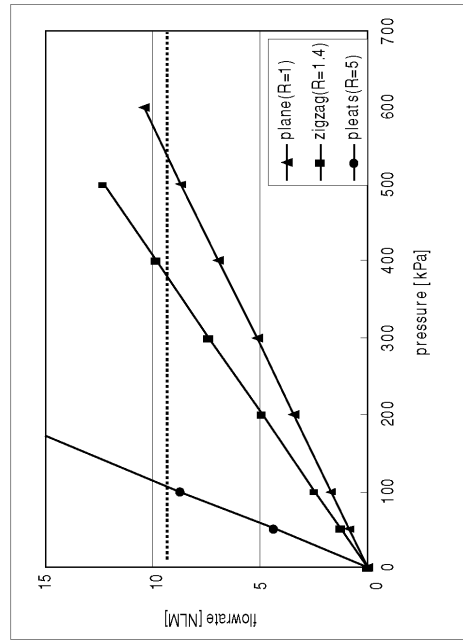




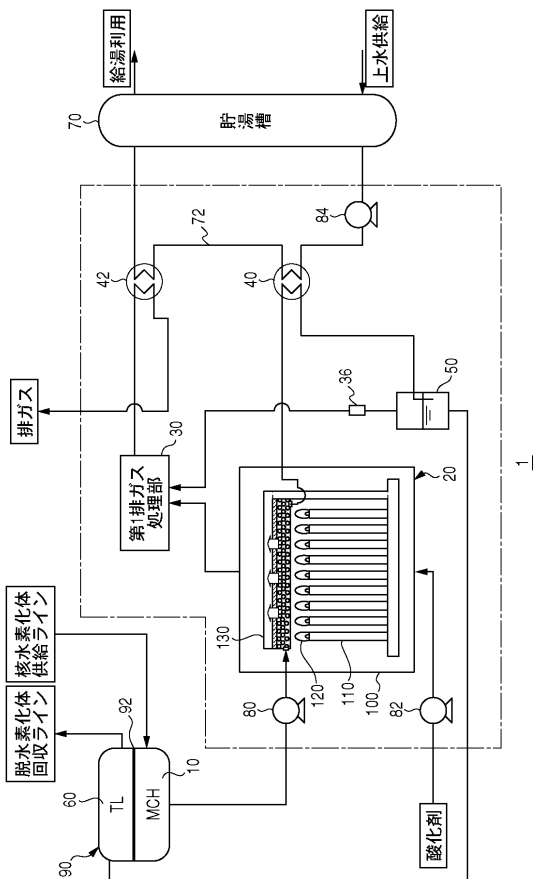
【 図 5 】



【 図 6 】



【 図 7 】



## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/001965

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> H01M8/06(2006.01)i, H01M8/04(2006.01)i, H01M8/12(2006.01)i		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) H01M8/06, H01M8/04, H01M8/12		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2013 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2013 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2013		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2009-76274 A (Nippon Telegraph and Telephone Corp.), 09 April 2009 (09.04.2009), paragraphs [0019] to [0040]; fig. 1 (Family: none)	1-17
Y	JP 2005-203266 A (The Kansai Electric Power Co., Inc.), 28 July 2005 (28.07.2005), paragraphs [0007] to [0038]; fig. 1 to 2 (Family: none)	1-17
Y	JP 2006-62887 A (The Kansai Electric Power Co., Inc.), 09 March 2006 (09.03.2006), paragraphs [0011] to [0029]; fig. 1 to 3 (Family: none)	1-17
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents:		
"A"	document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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 application or patent 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	
Date of the actual completion of the international search 17 April, 2013 (17.04.13)	Date of mailing of the international search report 07 May, 2013 (07.05.13)	
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer	
Facsimile No.	Telephone No.	

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/001965

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2007-76992 A (Nippon Oil Corp.), 29 March 2007 (29.03.2007), paragraphs [0012] to [0050]; fig. 1 (Family: none)	2-8
Y	JP 2004-131306 A (Honda Motor Co., Ltd.), 30 April 2004 (30.04.2004), paragraphs [0019] to [0043]; fig. 1 (Family: none)	2-8
Y	JP 2008-66127 A (Kyocera Corp.), 21 March 2008 (21.03.2008), paragraphs [0019] to [0091]; fig. 1 to 18 (Family: none)	6-8,12-14
Y	JP 2010-80260 A (Kyocera Corp.), 08 April 2010 (08.04.2010), paragraphs [0023] to [0082]; fig. 1 to 7 (Family: none)	6-8,12-14
Y	JP 2001-110437 A (Kansai Research Institute, Inc.), 20 April 2001 (20.04.2001), paragraphs [0010] to [0034]; fig. 1 (Family: none)	15-17
Y	JP 2007-76982 A (Nippon Oil Corp.), 29 March 2007 (29.03.2007), paragraphs [0016] to [0047]; fig. 1 to 4 (Family: none)	15-17
A	JP 2005-85598 A (Toho Gas Co., Ltd.), 31 March 2005 (31.03.2005), paragraphs [0017] to [0028] (Family: none)	16-17
A	JP 61-72995 A (President of The University of Tokyo), 15 April 1986 (15.04.1986), entire text (Family: none)	16-17

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 3 / 0 0 1 9 6 5									
A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H01M8/06(2006.01)i, H01M8/04(2006.01)i, H01M8/12(2006.01)i											
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H01M8/06, H01M8/04, H01M8/12											
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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2013年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2013年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2013年</td> </tr> </table>				日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2013年	日本国実用新案登録公報	1996-2013年	日本国登録実用新案公報	1994-2013年
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2013年										
日本国実用新案登録公報	1996-2013年										
日本国登録実用新案公報	1994-2013年										
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)											
C. 関連すると認められる文献											
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号									
Y	JP 2009-76274 A (日本電信電話株式会社) 2009.04.09, [0019]-[0040], 図1 (ファミリーなし)	1-17									
Y	JP 2005-203266 A (関西電力株式会社) 2005.07.28, [0007]-[0038], 図1-2 (ファミリーなし)	1-17									
Y	JP 2006-62887 A (関西電力株式会社) 2006.03.09, [0011]-[0029], 図1-3 (ファミリーなし)	1-17									
<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。											
* 引用文献のカテゴリー		の日の後に公表された文献									
「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		「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									
「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		「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									
「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)		「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									
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献		「&」同一パテントファミリー文献									
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願											
国際調査を完了した日 17.04.2013		国際調査報告の発送日 07.05.2013									
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 永石 哲也	3H 9826								
		電話番号 03-3581-1101	内線 3316								

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 3 / 0 0 1 9 6 5
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 請求項の番号
Y	JP 2007-76992 A (新日本石油株式会社) 2007. 03. 29, [0012]-[0050], 図 1 (ファミリーなし)	2-8
Y	JP 2004-131306 A (本田技研工業株式会社) 2004. 04. 30, [0019]-[0043], 図 1 (ファミリーなし)	2-8
Y	JP 2008-66127 A (京セラ株式会社) 2008. 03. 21, [0019]-[0091], 図 1-18 (ファミリーなし)	6-8, 12-14
Y	JP 2010-80260 A (京セラ株式会社) 2010. 04. 08, [0023]-[0082], 図 1-7 (ファミリーなし)	6-8, 12-14
Y	JP 2001-110437 A (株式会社関西新技術研究所) 2001. 04. 20, [0010]-[0034], 図 1 (ファミリーなし)	15-17
Y	JP 2007-76982 A (新日本石油株式会社) 2007. 03. 29, [0016]-[0047], 図 1-4 (ファミリーなし)	15-17
A	JP 2005-85598 A (東邦瓦斯株式会社) 2005. 03. 31, [0017]-[0028] (ファミリーなし)	16-17
A	JP 61-72995 A (東京大学長) 1986. 04. 15, 全文 (ファミリーなし)	16-17

## フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC

(72)発明者 小堀 良浩

東京都千代田区大手町二丁目6番3号 J X日鉱日石エネルギー株式会社内

Fターム(参考) 4G169 AA03 BA01B BC75B CB07 CB66 CC32 DA06

5H026 AA06 CV10

5H127 AA07 AB23 AB24 AC20 BA02 BA16 BA38 BA57 BA60 BB02

BB12 BB37 EE03 EE12 GG04 GG10

(注)この公表は、国際事務局(WIPO)により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願(日本語実用新案登録出願)の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。