

第 113 回定例研究会資料

定置用 PEFC システムの開発状況

野島 繁

三菱重工業（株）広島研究所 PEFC 開発センター

〒738-8553 広島市西区観音新町 4-6-22

Development of Stationary PEFC System

Shigeru NOJIMA

PEFC Technology Center, Hiroshima Research & Development Center,

Mitsubishi Heavy Industries, LTD.

4-6-22 Kan-on-shin-machi Nishi-ku, Hiroshima 733-8553

Fuel cells are expected to become key technology in the fields of energy and environmental issues in 21 century. With commercialization and popularization, they have great potential for bringing about an energy revolution. Therefore fuel cells, especially Polymer Electrolyte Fuel Cells (PEFC), are expected to become ubiquitous as small household co-generation systems utilizing waste heat. Mitsubishi Heavy Industries, Ltd. (MHI) created city-gas-fueled stationary PEFC systems with the world smallest 1 kW system of 180L, and developed reforming catalysts and technologies for 6 kinds of fuel, namely, natural gas, liquefied petroleum gas (LPG), kerosene, naphtha, methanol, and di-methyl-ether (DME), to serve as hydrogen supply resources.

Keywords: Polymer Electrolyte Fuel Cell, Catalyst, CO₂ Emission, Stationary Power

1. 緒言

固体高分子形燃料電池（PEFC = Polymer Electrolyte Fuel Cell）は「二酸化炭素排出抑制に寄与する、燃料供給源多様化によりエネルギー安定供給に資する、わが国の産業競争力強化が図れる」（燃料電池プロジェクトチーム報告書より抜粋）との観点から、いわゆる 3E（Environmental Protection、Energy Security、Economic Efficiency）の同時達成を実現する技術として早期実用化・普及が望まれている。当社では以前より PEFC 開発に向けて高分子膜や触媒などの素材から改質器や電池など各主要コンポーネントおよびシステムに至る各種要素技術開発を続けており、これまで、車載用、定置用、特殊動力用等への適用を対象とした各システム開発を手掛けている^{1)~3)}。

これらの取組み中で、都市ガス等を燃料とする定置用 PEFC システムでは現在様々な場所においてフィールド検証試験、耐久性試験を実施しており、実用化が最も近いものとして見なしている。とりわけ、定置用 PEFC システムに求められる特性として、「系統電源の

利用に対して経済メリットがあること」、「メンテナンスが容易であること」等を掲げ、早期実用化を目指して研究開発を推進している。これらの要件を実現するために、起動停止運用、広域負荷運用、小型システム化等の技術開発を行い、高利便性を有する経済メリットの大きい定置用 PEFC の実用化を目指している³⁾。

本講演では、定置用 PEFC システムの基本構成、PEFC システムを支える要素技術開発事例、さらに、定置用 PEFC システムの開発状況を述べると共に、本格普及に向けてのシナリオと課題等について紹介する。

2. 定置用 PEFC システムの基本構成

2.1 PEFC システム

定置用 PEFC システムの基本構成を図 2.1 に示す。本システムは一般に、燃料改質装置、空気供給装置、燃料電池本体、電力変換装置、排熱回収装置および制御装置から構成されている。PEFC システムに供給された原燃料は燃料改質装置で水素リッチガスに改質され、燃料電池本体に供給されて、水素と酸素の化学エ

エネルギーを電気化学的反応により直接電力に変換する。さらに、電力変換装置では、燃料電池本体で発生した直流電流を交流電流に変換して、系統に連結して利用する。また、排熱回収装置では、燃料電池本体および燃料改質装置で発生した熱を回収し、給湯などに利用する。

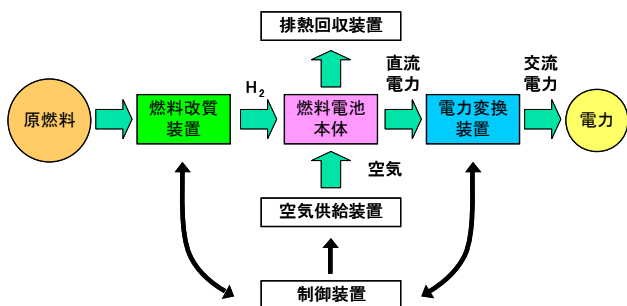
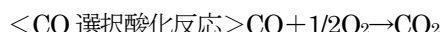


図 2.1 定置用 PEMFC システムの基本構成

2.2 燃料改質装置

図 2.2 に都市ガスを燃料とした燃料改質装置の概観図を示す。本装置は熱交換器を配置しない円筒状多管式構造を有しており、各負荷域において 3 種触媒の温度制御を原料供給量のみで行っている。適用する触媒は、水蒸気改質触媒、CO 変成触媒、CO 選択酸化触媒であり、各々下記反応式において、水素製造及び CO 除去を行っている。



PEFC に供給する水素含有の改質ガスは本装置に充填した触媒により製造されるが、改質ガス中に CO が

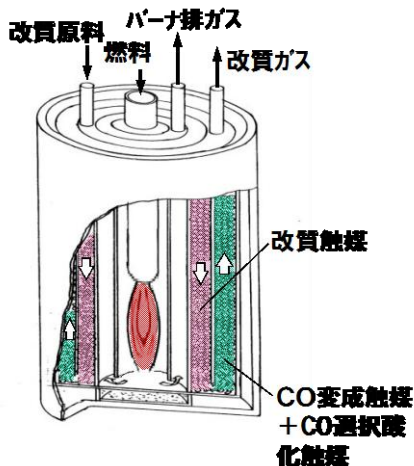


図 2.2 燃料改質装置の概略図

含有すると PEFC のアノード側電極触媒を被毒する問題がある。そのため、脱硫した燃料を用いて上記 3 種触媒により CO 濃度 10ppm 以下に低減して、H₂濃度約 75%の改質ガスを PEFC スタックに供給する。

2.3 燃料電池本体

図 2.3 に PEFC 本体の発電原理を示す。改質装置から供給された水素はアノード（水素極）でプロトンと電子に解離し、プロトンは水に伴って、電解質中をカソード（空気極）に向かって移動する。カソードでは供給される空気中の酸素、電解質を移動してきたプロトンおよび外部回路を通過してきた電子が反応し、水を生成することにより発電が進行する。燃料電池の単セルで発生される電圧は約 0.7V 程度であるので、多数のセルを直列に接続して使用し、通常スタックと呼ばれる積層構造により電池システムを形成する。なお、当社電池スタックは交換容易な電池組み立て方式を採用し、長寿命化を図るための電池製造方法および運用方法を適用している。

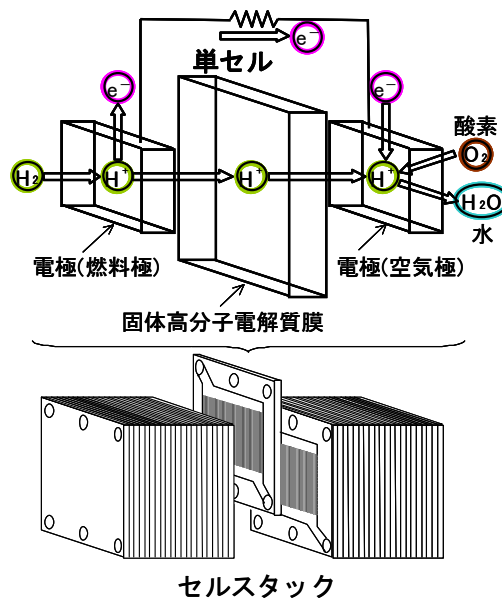


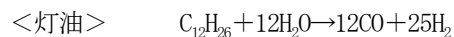
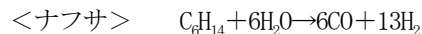
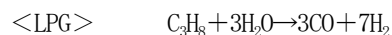
図 2.3 燃料電池本体の外観

3. 定置用 PEMFC システムを支える要素技術⁴⁾

3.1 燃料改質触媒技術

当社では燃料多様化対応の観点から、水素供給源として都市ガス、LPG、ナフサ、灯油、メタノール、ジメ

チルエーテル (DME) 等の様々な燃料を対象としており、各燃料に適した触媒および改質システムを開発している。代表的な水蒸気改質反応式を以下に記す。



化石燃料である都市ガス、LPG、ナフサ、灯油中には触媒被毒物質の硫黄分が存在するため、前処理として脱硫剤を設置して硫黄分を除去する必要がある。上記4種化石燃料はいずれも約 700°C 付近に加熱して水蒸気改質反応により水素を製造するが、難易度は燃料により異なり、改質しやすさは都市ガス>LPG>ナフサ>灯油の序列となる。改質難易度は燃料を構成する炭化水素の分子量分布、オレフィン、芳香族等の含有量や組成によるばかりでなく、触媒被毒物質となる硫黄化合物の含有形態や脱硫度合にも依存し、各々の燃料にあわせて触媒及び運転条件の開発を行っている。

一方、合成燃料であるメタノールや DME は上記化石燃料と特性が異なり、現状では硫黄化合物が含有しない純物質であり、化石燃料より低温にて改質することが可能である。とりわけ、次世代合成クリーン燃料として注目されている DME は DME 加水分解機能とメタノール水蒸気改質機能を融合させた新触媒の開発に成功した。図 3.1 に記す DME 改質触媒の耐久性試験結果より、400°C 以下の低温で安定に DME 改質が確認でき、このことから DME 改質装置は都市ガス等の改質装置よりコンパクト化が可能となる目処を得ている⁵⁾。

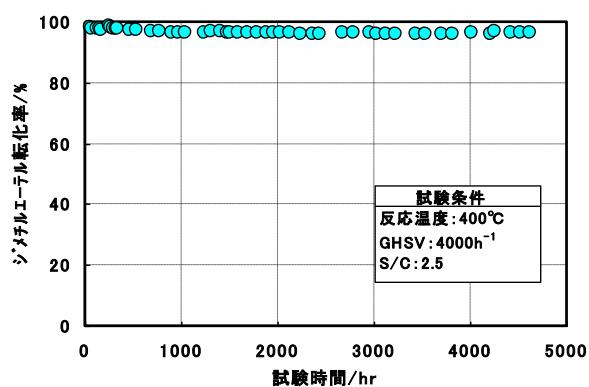


図 3.1 ジメチルエーテル (DME) 改質触媒の耐久試験結果

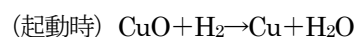
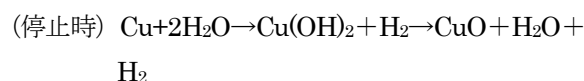
当社ではこれら 6 種燃料に対応できる触媒および改質システムの開発を進めており、いずれの燃料においても安定な触媒改質性能が得られることを確認している。現在これらの触媒を実機改質装置に組み込んで、種々の実機検証試験を実施中である。

3.2 窒素を用いない起動停止運用技術

系統電力に対する経済メリットを最大にするには家庭の電力消費パターンに対応した運転、すなわち電力消費のほとんどない深夜は停止して早朝に起動する DSS (Daily Start-up and Shut-down) 運用が望ましい。DSS 運転を行う場合、安全性の観点から運転停止時に改質器内の可燃性ガスを改質器外へパージ (排出) する必要があり、このパージ処理には一般的には不活性な窒素を用いる。窒素を使用する場合、窒素ポンベの設置により装置が大型化となること、さらにポンベへの頻繁な窒素充填が必要となるため、窒素を用いずに停止・起動を行う DSS 運転方法が求められている。

PEFC システム停止時に、残存改質ガスを改質装置外に追い出す窒素処理以外のパージ方法として、水蒸気処理または空気処理が挙げられるが、これらのパージ処理方法では改質装置内の CO 変性触媒が劣化する問題を抱えている。Cu 系複合酸化物である CO 変性触媒の劣化原因を検討するため、窒素処理および水蒸気処理による DSS 運転後触媒の X 線回折測定を行い、触媒の結晶構造変化を観察した。図 3.2 に示す X 線回折パターンより、窒素処理運転では初期に比べ大きな結晶構造変化が認められないが、水蒸気処理運転では活性金属の Cu の回折ピークは大きく成長し、結晶化が進行していることを確認した。このことは下記反応により Cu の水蒸気酸化反応が進行し、停止・起動による酸化還元反応が繰り返し進み、Cu 系触媒のシンタリングが促進することを示唆している。

<水蒸気パージ処理における Cu 触媒の相変化>



なお、上記水蒸気または空気処理において酸化されにくい貴金属系 CO 変性触媒を適用する試みがあるが、現状の貴金属系触媒は Cu 系触媒の 10 倍以上のコストを有し、さらに Cu 系触媒より活性が低いため多量の触媒を必要とする問題を有する。

上記状況を鑑み、Cu系CO変成触媒のDSS運用における劣化防止法として、システム停止時に窒素を使わずに改質装置内の残留ガスをパージする方法の検討を行った。図3.3に窒素処理を行わないDSS耐久試験において、Cu系CO変成触媒のDSS運用回数とCO転化活性との関係を示す。従来の水蒸気処理DSS運用(DSS③)法(■)では発停180回でCO転化率が30%台まで低下しており、触媒の寿命は実用上3週間程度である。触媒劣化を抑制するパージ方法を鋭意検討したところ、DSS②(△)では発停370回程度であり、更に今回開発したDSS①(●)では発停800回においてもCO転化率が殆ど変化しないことがわかり、連続運転(◆)と同様の触媒寿命を有することを確認した。

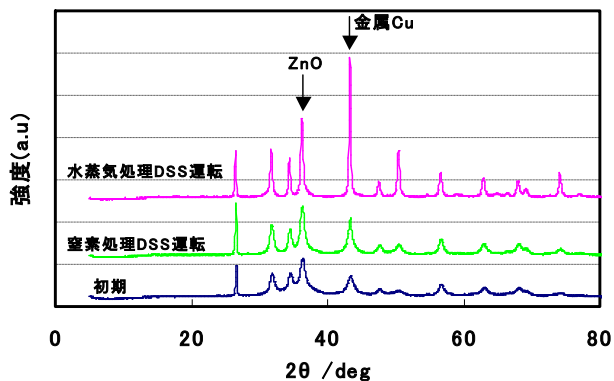


図 3.2 CO 変成触媒の DSS 耐久試験後の X 線回折パターン

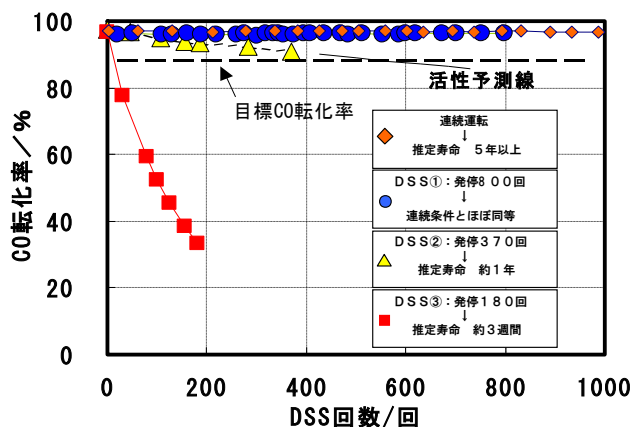


図 3.3 CO 変成触媒の DSS 耐久性試験結果

4. 定置用 PEFC システムの開発状況

4.1 コンパクトシステム

図 4.1 に都市ガス 1kW 級 PEFC コージェネレーショ

ンシステム初号機 (2002 年度) と 2 号機 (2003 年度) のパッケージ写真を示す。本 2 号機は本体側の台座や配管を埋め込んだ二次元集積配管技術を適用したものであり、1 号機 340L→2 号機 180L (高さ 1000mm、幅 600mm、奥行き 300mm) へと大幅なコンパクト化を実現した。



図 4.1 都市ガス 1kW 級 PEFC パッケージ (左:1号機 340L、右:2号機 180L)

4.2 広域負荷運用燃料改質器

図 4.2 に都市ガスを燃料とした新型燃料改質装置の概観写真を示す。高さ 740mm、直径 200mm の大きさであり、熱制御を通じて改質器内の水蒸気量と燃料量の比率を適正化し、低負荷 (高ターンダウン比) 運転時でも安定した改質プロセス効率を得ている。図 4.3 に示すように、新型改質器 (2 号機) では発生する熱の有効利用により、従来型 (1 号機) に比べ改質効率を更に向上させ、30%部分負荷で 79%、100%負荷で 83% と従来値を大きくしのぐ改質効率を達成した。

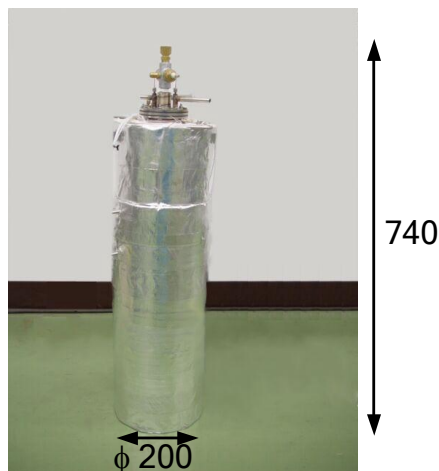


図 4.2 新型改質器の外観写真

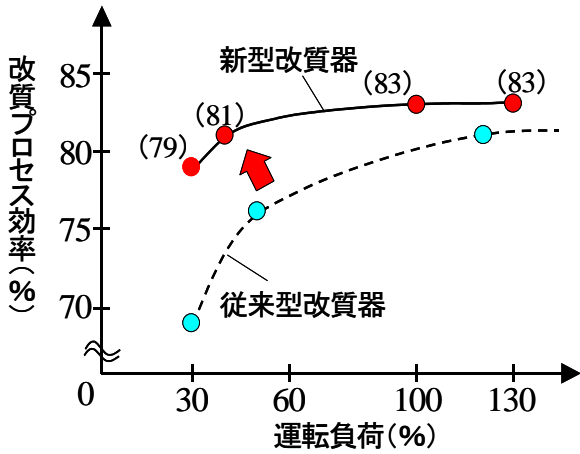


図 4.3 改質器の運転負荷改質効率

4.3 高発電効率システム

低電圧のPEFC出力を商用200/100Vに連携するには電力変換装置（パワーコンディショナ）にて電圧を昇圧し、直流を交流に変換する必要がある。当社では、高効率トランスやDC/DCコンバータの並列化等の対策を施すことにより高性能パワーコンディショナを開発し、電力変換92%以上の高効率化を達成した。

以上、新型2号機PEFCシステムでは、上記4.2に示す改質器の改質効率向上、各機器で発生する熱の有効利用、及び高効率パワーコンディショナの開発を行い、発電効率の向上を図った。図4.4の運転負荷と発電効率の関係に示すように、30~100%の広い負荷域にてシステムAC送電端発電効率（LHV）32%以上、最高36%達成の目処を得た。

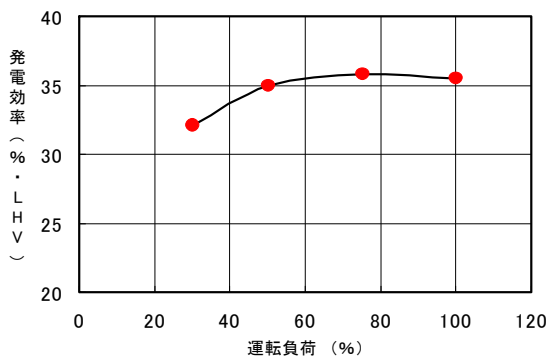
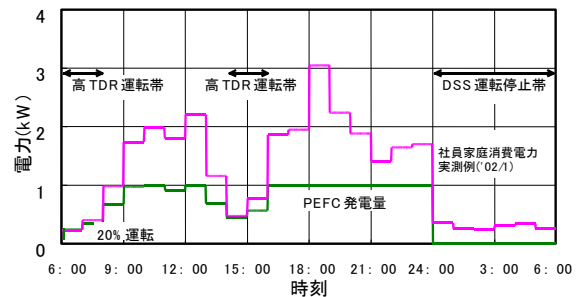


図 4.4 1kWPEFC システムの運転発電効率

4.4 家庭用PEFC システム運用パターン

上記の結果、高い効率で実際の家庭の消費電力に対応した運転パターンを実現することが可能となり、大きな

光熱費メリットが期待できると考えられる。図4.5に示すように、一般家庭（4人家族）の熱電負荷を一年間にわたり計測し、その熱電負荷に基づき本システム導入パターンを提案した。このパターンでPEFCシステムを運転した時の電力費用削減量と燃料（都市ガス）費用増加量から現状に対する光熱費メリットを試算したところ、系統電力代やガス代に応じて多少の変動はするものの、一年間に約5万円の光熱費が削減できるとの算出を行った。



TDR: Turn Down Ratio ターンダウン比

図 4.5 実家庭電力負荷と PEFC 運転パターン

5. 本格普及に向けてのシナリオと課題⁶⁾

5.1 燃料電池普及に向けたシナリオ

わが国としては、世界に先駆けて燃料電池の早期実用化・普及を図るため、2001年8月に「固体高分子形燃料電池／水素エネルギー利用プログラム」を策定し、技術開発を推進しており、政府導入目標は2020年までに、燃料電池自動車約500万台、定置式燃料電池約1000万kWを目指している。

PEFCの実用化・普及に至る段階を以下の三つの時期に分けて位置付けを行い、段階ごとの必要な取組みを行う事としている。これまで、経産省/NEDOが中心に、PEFCシステム・要素技術の開発を進めており、1992年からのニューサンシャイン計画以来、2000年度からのミレニアムプロジェクト等に至り、大型研究が実施されている。2005年以降の取組みに関しては、これまで研究成果をさらに実用化へと推進させるため、産官学の基本的役割分担を提示して、高効率化、耐久性向上、低コスト化の視点において、技術目標、性能目標のロードマップを掲げている。

(1) 燃料電池導入期（現在～2008年頃）

燃料電池の実用化・普及に向けて制度面及び技術開

面での基盤整備を行い、各種の主要単体機器及びシステム実証を行う上での重要な時期である。

(2) 2008年頃から2015年頃

燃料電池の実用機が導入され、導入加速が必要とされる時期であり、燃料電池の一層の性能向上、低コスト化が推進され、普及促進に向け、燃料インフラ整備や環境整備を行う時期である。

(3) 2015年頃以降

量産効果により燃料電池の価格が低下し、自立的市場が拡大・進展し、本格普及していく時期である。

5.2 重要技術開発課題

燃料電池の実用化・普及に向けた技術戦略としては、短期的課題、中期的課題、長期的課題、基盤的課題に分別して、各技術分野の課題解決を推進する必要がある。とりわけ、定置用PEFCシステムの普及時(2015年頃)における目標到達レベルとして、〔システム価格〕25万円/kW(生産数10万台レベル)、〔耐久性〕9万時間、〔発電効率〕40%(HHV)であり、いずれも高いハードルをクリアする必要がある。主要な技術課題を以下に記す。

(1) 電池要素材料技術

- ①電解質膜：高温、低加湿の運転対応可能な高分子膜(非フッ素膜含)又は無機膜
- ②電極触媒：貴金属量低減又は貴金属代替、触媒安定化、耐CO性向上
- ③セパレータ：安価カーボン又は金属

(2) 改質器要素材料技術

- ①触媒(改質、CO変性、CO除去)の貴金属低減
- ②DSS対応型の耐S性、耐カーボン、耐熱性触媒

(3) 周辺機器(補機類)材料技術

パワーコンディショナ、ポンプ、バルブ、センサー、加湿器、制御計等

(4) 共通的・基盤的事項

- ①標準・規格・基準・認証・共通評価法の取組み
- ②安全確保と規制緩和の取組み

6. まとめ

都市ガス等を燃料とする定置用PEFCシステムについて、経済メリットの大きな製品を実現する要素技術を開発し、各種のPEFCシステム実証試験に適用中である。今後は各種サンプル出荷によるフィールドテスト検証と

コストダウン検討を行い、早期の実用化を目指す。また、開発した要素技術を駆使して、各種分散電源用途に対応するため、1kW～数十kW級の改質器および電池スタックを開発し、ユーザ用途に応じたPEFCシステムのラインアップを更に拡充していく予定である。

さらに、実用化に向けて、耐久性向上と低コスト化が主要技術課題であるが、電池劣化メカニズムの解明及び低コスト部材の検討について、打ち手が明らかになりつつある。今後、PEFCの本格普及に向けて、各種技術課題を克服するためには、産官学の連携を密にし、各種フォーメーション形成を充実させる必要があると考える。

参考文献

- 1)金子祥三他,三菱重工技報, **31**, (4), 235 (1994)
- 2)高塚汎他,三菱重工技報, **35**, (6), 380 (1998)
- 3)吉田博久他, 三菱重工技報, **40**, (4), 254 (2003)
- 4)野島繁他,三菱重工技報, **40**, (6), 344 (2003)
- 5)野島繁他, 触媒, **45**, (2), 141 (2003)
- 6)NEDO 燃料電池・水素シボジウム提案集, PEFCセッション(平成16年7月21日開催)