

# リン酸型燃料電池システムの諸検討

## Some Studies of Phosphoric Acid Fuel Cell System

金子秀男 \* Hideo Kaneko · 伊達康雄 \* Yasuo Date

### I. リン酸型燃料電池システムの開発の現状

リン酸型燃料電池システムの開発は、米国において1960年代から多額の費用を投入して国家的規模で推進されてきた。その主なものはまず TARGET 計画で、これは1967年から1976年にかけて United Technologies Corp. (UTC 社)が開発した PC 11 型燃料電池(12.5kW)64基をガス会社が協力してフィールドテストを行い、実用化のめどをつけた段階で終了した。この計画は1977年に GRI (Gas Research Institute) に引き継がれて GRI 計画となり、40kW 容量の燃料電池48基が本年から3年間にわたってフィールドテストに入ると予定されている。この計画には日本でも、東京ガス(株)と大阪ガス(株)が参加している。

もう一つの主なプロジェクトは、National Fuel Cell Program と呼ばれ、1980年代末までに数 MW 級のリン酸型燃料電池システムの商品化を目指したものである。このプログラムには定格出力11MW のシステムを開発している UTC 社と7.5MW のシステムを開発している Westinghouse 社及び Energy Research 社の二つのプログラムがあり、いずれも1980年代末の実用化を目標に米国エネルギー省 (DOE) の統括で開発が推進されつつある。

UTC 社は1973年に電力9社の協力を得て電力事業用の燃料電池の開発に着手した。その後政府の援助も得て目下4.8MW (DC 出力) のデモンストレーションプラントの建設をニューヨーク市の Consolidated Edison 社の敷地に建設中で、現在調整中と報告されている。

一方我が国では、目下のところ前章で説明済みの関西電力(株)と富士電機との開発になる30kW プラントが関西電力(株)堺港発電所で調整運転中であるほか、東京電力(株)五井発電所では UTC 社の前記の4.8MW 改良型モデルプラントの運転が急がれている。

また、昭和56年から工業技術院及び新エネルギー総合開発機構がムーンライト計画として、リン酸型燃料電池の開発を国家プロジェクトとしてとりあげ、昭和61年までに1,000kW プラントの開発と実証試験を民間に委託し、推進することになった。富士電機では要素技術として電池の積層技術と改質装置の開発及び最適システム研究の委託を受け、目下鋭意推進中である。第1表にムーンライト計画における1,000kW リン酸型燃料電池プラン

第1表 ムーンライト計画における1,000kW リン酸型燃料電池プラントの達成目標

Table 1. Target of the Moonlight's 1,000kW phosphoric acid fuel cell plant

出 力	1,000kW 級 (AC)
発 電 効 率	40%以上
白 金 使 用 量	6.5mg/W 以下
寿 命	40,000時間
環 境	法令基準値以下

トの達成目標を示す。

### II. 燃料電池システムの要素機器と構成

燃料電池システムは主に燃料改質装置、燃料電池、直流・交流変換装置から構成される。以下にそれらの機器とシステムの間連について説明する。

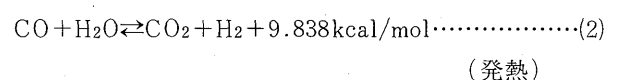
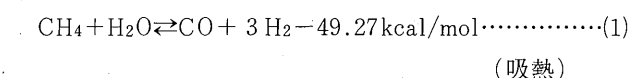
#### 1. 改質装置

リン酸型燃料電池は水素リッチガスを燃料とする水素極、電解質のリン酸を含浸保持しているマトリックス、酸化反応の酸化剤である酸素を供給する空気極とからできている。石炭、石油、天然ガスなどの化石燃料から水素リッチガスを得るには、それらの燃料の水素への改質が必要である。リン酸型電池は他のアルカリ、熔融炭酸塩、固体電解質型電池と比べて電極の触媒に白金を多く使っているため、改質ガス中の一酸化炭素濃度を1%以下に抑えて、白金の被毒を防止する必要がある。原料中に硫黄を含む時は脱硫装置が必要となる。このようにすればリン酸型燃料電池システムは天然ガス、石炭ガス、SNG、軽質油、メタノールといった多様な燃料に対応できる。

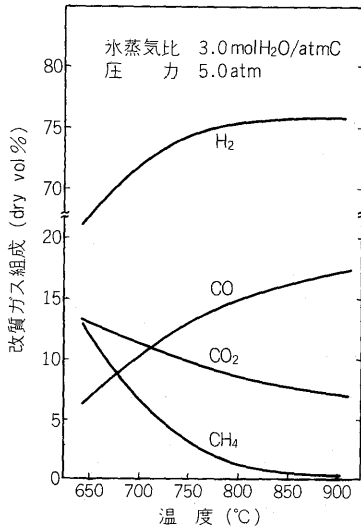
ここではムーンライト計画で推進されている天然ガスを原料とする改質システムと、メタノールを原料とする改質システムについての一般的特徴を紹介する。

#### 1) 天然ガス改質システム

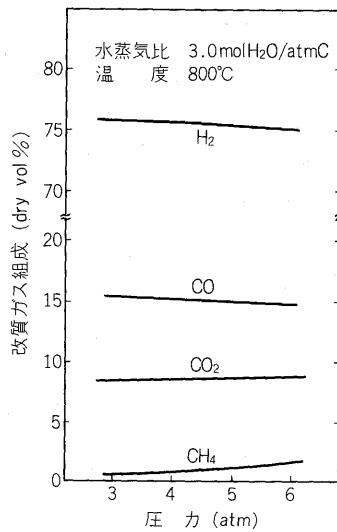
天然ガスのような炭化水素から水素を得るには水蒸気改質が行われている。反応式を次に示す。



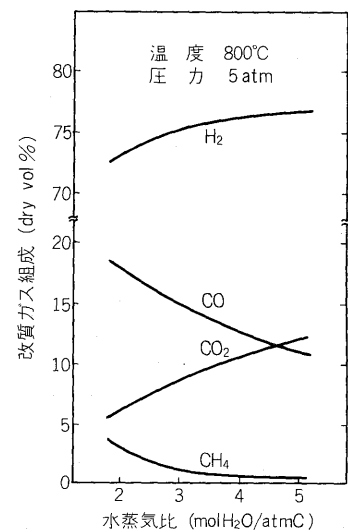
\* 技術企画本部 燃料電池部



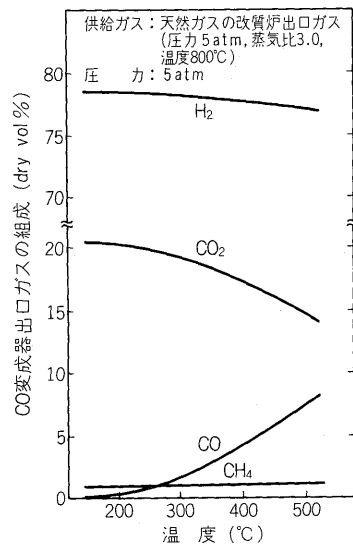
第1図 反応温度による改質ガス組成  
Fig. 1. Reformed gas component at various temperature



第2図 反応圧力による改質ガス組成  
Fig. 2. Reformed gas component at various pressure



第3図 水蒸気比による改質ガス組成  
Fig. 3. Reformed gas component at various steam-carbon ratio



第4図 CO変成器における温度と生成ガス組成の関係  
Fig. 4. Relation between gas component and temperature at CO shift converter

式(1)によるメタン分解反応における平衡状態のガス組成の温度、圧力に対する依存性を第1図と第2図に示す。ガス組成の圧力に対する依存性は少なく、反応温度の影響が大きい。H<sub>2</sub>の含有量は800°C付近にて飽和してくるので、この温度近傍が改質装置の反応温度に適している。また、改質ガス組成に及ぼす添加水蒸気量の影響を第3図に示す。水蒸気比が大きいほどH<sub>2</sub>の含有率が増加し、CO含有率は減少するので水蒸気比は理論値の2に対し、3～5に選ばれる。第1図にて高温になるほどCOの含有率が増え、800°C付近では約15%となるが、これを先の理由により1%以下に抑えるために式(2)に示す反応にて(変成反応)COをCO<sub>2</sub>に変える。

第4図にCO変成器出口におけるガス組成を示す。この反応は発熱反応であり、低温ほど平衡は右に進む。変成器は固定床断熱器であり、反応進行に伴い温度が高くな

るので高温、低温の二つの変成器から構成される。また、等モル反応であるので圧力の影響は受けない。生成ガス中のCO濃度を1 vol %以下とするには低温変成器出口温度を230°C以下にする必要がある。第5図に、以上に述べた天然ガス改質装置を有するリン酸型燃料電池システムの構成を示す。電池の効率は作動圧力が高くなるにつれて高くなるので(現在最高で約10気圧とされている)、第5図では電池及びそのオフガスが燃焼される改質炉を加圧式にしている。

電池を加圧するには、燃料側は通常の場合元圧が高くその必要はないが、空気側は加圧する必要がある。

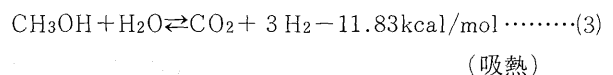
空気を加圧するには多大の動力を消費するが、これは改質炉の高温高压の排ガスで作動するターボコンプレッサを使用することによって省エネルギーが行われている。

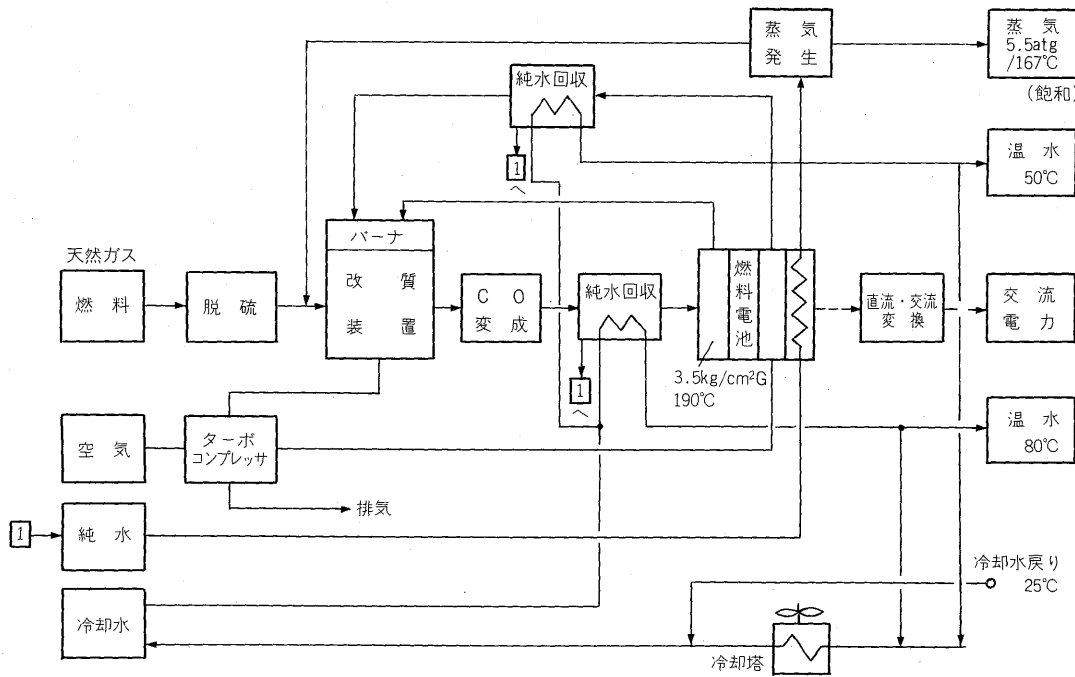
電池の冷却には次の2節で述べるように純水又は空気が用いられているが、第5図は純水冷却の例を示す。電池の排熱によって発生した蒸気の一部は改質用として使用する。余剰分はシステム外で熱利用又は発電に利用することができる。改質に必要な蒸気は反応生成水蒸気を冷却回収することによってまかなうことができ、系外からの補給を必要としない。

## 2) メタノール改質システム

天然ガスの水蒸気改質が800°C付近の高温を要するのに対し、メタノールを水蒸気改質する場合は、250～350°Cと低温でかつ工程が省略できるので、コンパクト化、装置の低価格化が期待できる。

メタノールは水蒸気存在下で銅系の触媒と接触的に反応し、次式に従い水素を得ることができる。



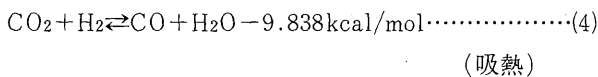


第 5 図 天然ガス改質リン酸型燃料電池システムの基本構成

Fig. 5. Basic scheme of reformed natural gas phosphoric acid fuel cell system

この改質反応はメタノール 1 モルと水蒸気 1 モル，計 2 モルが反応して 1 モルの炭酸ガスと 3 モルの水素計 4 モルになるという，モル数の増加及び吸熱の反応であるため，化学平衡の点からは低圧，高温ほど反応率は高くなる。

しかし 250~350°C では，その平衡反応率は 99.9~99.99 % と高く，ほぼ平衡反応率は 100 % とみてよい。副反応として，生成した炭酸ガスと水素は，次の CO 変成逆反応により一酸化炭素と水を作る。



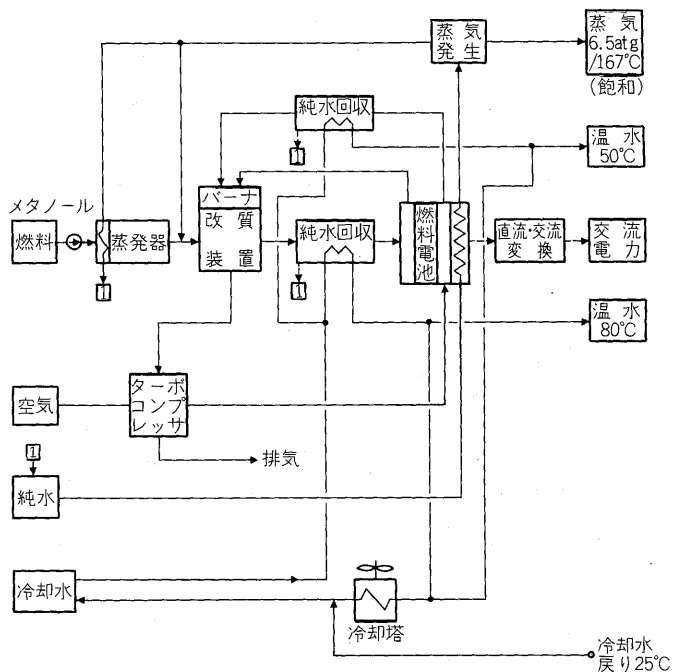
式(3)は高温ほど平衡，反応速度面で有利であるが，式(4)で生成する CO 濃度を考慮して反応温度を決めねばならない。式(3)，(4)はいずれも吸熱反応であるので，反応の進行に必要な熱量は燃料電池からのオフガスを燃焼して得る。

このシステムは 250~350°C と低温であること，CO 変成器，脱硫装置が無いなど工程が省略できる上，天然ガスシステムに比べ効率も若干よいなどの特徴がある。

しかし現状で燃料メタノールは，原料供給，価格の面で問題があり，その本格的普及には燃料メタノールが多量に供給され，そのルールができあがるまで待たねばならないであろう。第 6 図にメタノール改質システムの基本構成を示す。

3) 改質装置の効率

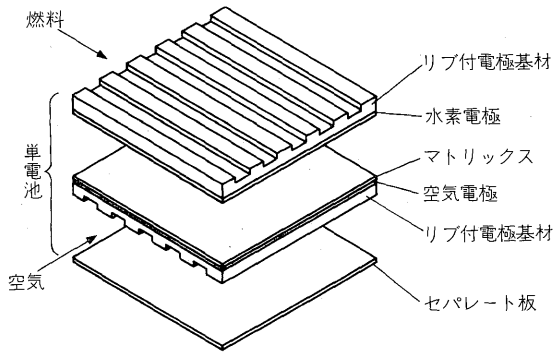
燃料改質系の効率は，改質系への原料入力エネルギーに対する改質系から改質されてできた水素エネルギーの比で表される。電池に供給された水素は電池の効率



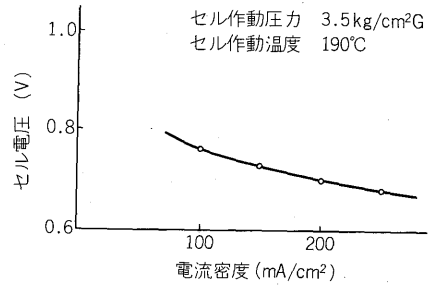
第 6 図 メタノール改質リン酸型燃料電池システムの基本構成

Fig. 6. Basic scheme of reformed methanol phosphoric acid fuel cell system

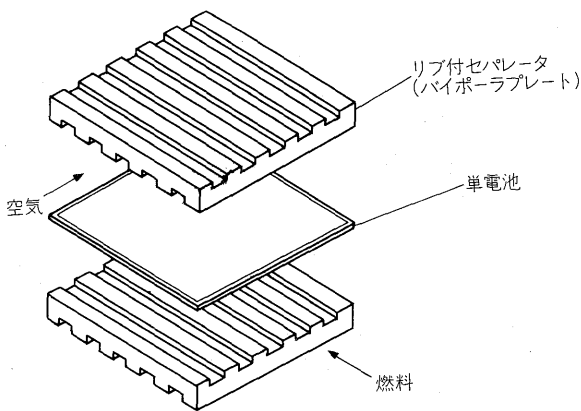
上 100% 消費されず，70~80% が消費され，残りは改質炉へ戻されて燃焼され反応に必要な熱を供給しているので，電池への供給エネルギーは実際には電池で消費される水素とエネルギーを用いる。いま  $G_1$  を入口原料流量， $H_1$  を原料発熱量， $G_2$  を電池入口の水素流量， $H_2$  を水素の発熱量， $\eta_H$  を電池の水素消費率（入口の水素量に対する割合）とすると，改質システムの効率



第7図 リブ付電極方式  
Fig. 7. Ribbed electrode type



第9図 単電池の電圧—電流特性  
Fig. 9. V-I characteristic curve of unit cell



第8図 リブ付セパレータ方式 (バイポーラプレート方式)  
Fig. 8. Ribbed separator type (bipolar plate type)

$\eta_{RF}$  は、

$$\eta_{RF} = G_2 \times H_2 \times \eta_H / G_1 \times H_1$$

となる。

こうして表した場合の天然ガス改質システムの効率率は約90%くらいである。

## 2. 燃料電池

### 1) 電池の構成

リン酸型燃料電池の単電池は、次の2種類の構成のものが開発されている。第7図は水素電極及び空気電極が、それぞれ別個のリブ状の通路をもつ通気性基材に成層されているリブ付電極構造の単電池を示している。電極間にはリン酸を含浸させたマトリックスが保持されており、また空気と水素のリブ状の通路はセパレート板にて両者の混合が防止される。第8図はリブ付セパレータ方式 (バイポーラプレート方式) の構造を示している。この構造ではセパレータは気密性で、その両面に空気と水素のリブ状の通路をもっており、電極とマトリックスは2枚のセパレータにてサンドイッチ状に挟まれている。これらの2種類の構造は、製作、保守、性能上それぞれ一長一短があり、その優劣は今後の開発過程で明らかになるであろう。

水素と酸素を反応させた時の標準理論電圧は1.23V、

効率にして83%と極めて高い。実際には電池に電流が流れると分極現象、内部抵抗、活性化過電圧により電圧が低下し、電圧—電流は垂下特性となる (第9図参照)。

### 2) 燃料電池の効率

電池の効率は、電池内で消費された水素エネルギーに対する発生電力量の割合で示される。いま電池内で消費された水素エネルギーは前の説明での  $G_2 \times H_2 \times \eta_H$  とし、これによって直流  $V$  ボルト、 $I$  アンペアが発生すると効率  $\eta_{FC}$  は、

$$\eta_{FC} = 0.860 \times V \times I / G_2 \times H_2 \times \eta_H$$

となる。

消費される水素量はファラデーの定数によって電流に変わる。すなわち  $H_2 + \frac{1}{2} O_2 = H_2O$  の反応では、水素1モル (2g 原子) が消費されて  $2 \times 96,522 A \cdot s$  の電気を放出する。すなわち水素1モル当たり、

$$2 \times 96,522 A \cdot s = 2 \times 26.81 A$$

の電気を発生するので、上式で水素  $G_2 \times \eta_H$  モルを消費した場合の電流  $I$  は、

$$I = G_2 \times \eta_H \times 2 \times 26.81 A \cdot h$$

となり、これを  $\eta_{FC}$  に入れると、

$$\eta_{FC} = 46.11 \times V / H_2$$

となる。

ここで  $H_2$  は水素の発熱量で、25°C HHV ベースで 68.32 kcal/mol 故、この値を上式に入れると、

$$\eta_{FC} = 0.675 \times V$$

となる。この式で電池の効率は発生電圧によって決まってしまうことが分かる。

システムの効率を上げるには電池の電圧を高くとること、すなわち電流密度を低くして垂下特性上での電圧を高くとるのが最も有効な方法である。しかし電池の価格は電流密度に逆比例的に上昇するので、リン酸型の場合 150~230 mA/cm<sup>2</sup> にとるのが普通である。この場合常圧での単電池電圧はおおよそ 0.67~0.6V となり、上の式での効率は 45~40.5% となる。電池の電圧は圧力を上げ

ると、

$$140 \sim 180 \times \log P_2 / P_1$$

の関係で上昇することが知られている。したがって、目下電池の開発は高圧化の方向に進められている。また、電池は部分負荷になると電流が減るとともに電圧が上昇し、効率がよくなる特徴がある。これは他の原動機にはないことで、燃料電池システムが部分負荷でも効率がそれほど低下しないという優れた特徴をもたらしている。

### 3) 燃料電池の冷却

電池の冷却方式は水冷と空冷の 2 種類の方法が用いられている。

富士電機が関西電力(株)と共同で開発した 30kW には空冷式を採用している。空冷式は取扱い、構造が簡単になる反面、冷却に多量の空気を要し、配管及び装置の大形化、補機動力の増大を招く。水冷式は伝熱上では優れているが、電池に対する冷却管の取付、シール等構造の複雑化を招く。米国では UTC 社が水冷式、Westinghouse 社が空冷式を用いている。Westinghouse 社の空冷式では、空気ブローを余剰スチームによりタービンで駆動することによってブロー駆動動力を節約している。

その他の主要な補機としてインバータがある。その効率は 95~96% である。詳細は別稿 (27~30 ページ) を参照されたい。

### 3. システム効率に影響するパラメータ

以上に述べた改質系、燃料電池、インバータ効率を用いてシステム効率  $\eta_s$  を表すと、

$$\eta_s = \eta_{Rf} \times \eta_{FC} \times \eta_{INV} \times \eta_A \text{ (送電端)}$$

となる。ここで  $\eta_{INV}$  はインバータ効率、 $\eta_A$  は (1-所内率) である。この値は当然、送電端出力  $\times 860$  / 原料エネルギーに等しい。 $\eta_{Rf}$  は水素消費率、空気消費率、排熱の利用度合に影響される。 $\eta_{FC}$  は電圧によって一義的に決まるが、これは電流密度、動作圧力、動作温度、水素消費率、空気消費率によって違ってくる。その他システムの効率は水蒸気比、排ガスターボコンプレッサ効率、 $\times$

タンスリップ量などにより影響を受ける。

このようにシステムの効率は各種のパラメータ、システム構成によって影響されると同時に経済的評価も必要であるので、現在のところ最適システムを決定する手法は確立されておらず、カットアンドトライで種々の検討が行われている。富士電機で試算した天然ガス燃料電池システムの効率と主要なパラメータの影響の傾向を参考として第 10, 11, 12 図に示す。

第 10 図は発電効率に及ぼす圧力の影響を示す。圧力の上昇とともに電池効率がよくなり発電効率は上昇するが反面、空気を加圧するコンプレッサ効率は低下するので圧力を高くしてゆくとこの影響がきき、発電効率が低下し始める。この傾向は中間冷却付 2 段式ターボコンプレッサの使用により改善されることを同図は示す。

第 11 図は空気利用率の影響を示す。電池の効率は利用率が少ないと良くなるが反面、空気量が増えることにより圧縮動力が増加し、発電効率が低下することを同図は示している。

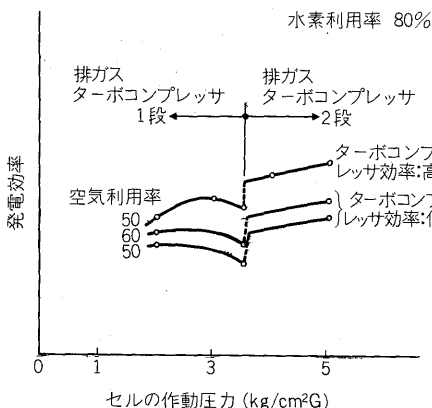
第 12 図では水素利用率の影響を示している。水素利用率も空気と同様、少ないほど電池の効率は良くなるが反面、改質装置の効率は II の 1 の 3) 項で述べたように水素利用率に比例して減少するので、全体の発電効率は利用率が少ないと低下する。

このようにしてこれらのカーブは電池の動作圧力、水素消費率、空気消費率に最適点があることを示す。しかしこれらのポイントは電池の特性、ターボコンプレッサの効率によっても多少のずれが生じるであろう。

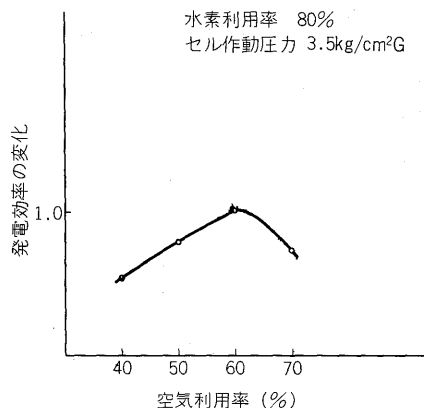
### III. 排熱利用面からみた燃料電池システムの特徴

以上で発電効率の面から燃料電池システムをみてきたが、この章ではシステムの排熱利用の面からみた特徴を述べる。システムの排熱には次のものがある。

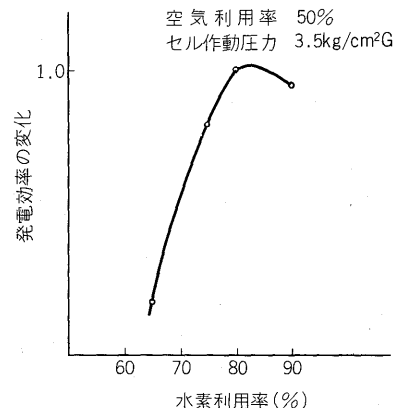
#### 1) 電池の冷却によってでる排熱



第 10 図 セルの作動圧力と発電効率  
Fig. 10. Working pressure of fuel cell and plant efficiency



第 11 図 空気利用率の影響  
Fig. 11. Effect of air utilization



第 12 図 水素利用率の影響  
Fig. 12. Effect of H2 utilization

電池で電力に変換されないエネルギーの大部分は、水冷却により水蒸気の形ででてくる。この温度は150~190℃で水蒸気の一部は燃料の改質に利用されるが、残りの水蒸気はシステム内で利用するには温度レベルが低く排熱となる。

2) 改質用水蒸気回収用の冷却水に伝わる熱

改質用水蒸気の水を確保するため、第5図に示すように電池の燃料入口及び空気の電池出口でいったん冷却して水を回収する。この時に冷却水は大体、50~80℃の温水となってでてくる。

3) 改質炉からの排ガスの持ち去る熱量

これらの排熱の温度と量はおよそ第2表に示したとおりである。蒸気と温水の排熱量の合計は40~45%に達し、温度も手ごろであるので、住宅、ビルなどの冷暖房、給湯用熱源として適しており、現在種々の適用分野の検討がされている。富士電機では昭和54年から2年間電力中央研究所と燃料電池の実用化を目的とした共同研究を行い、排熱利用面ではビルと火力発電所に対する適用性を検討したのでその概要をここに紹介する。

第2表 排熱の温度と量

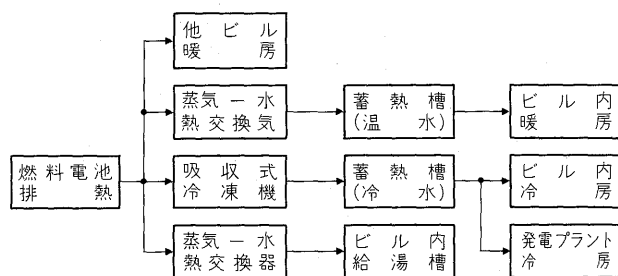
Table 2. Waste heat temperature and content

	温度(℃)	量(%) [原料エネルギーに対する割合]
蒸気	150~190(飽和圧力)	15~30
温水	40~90	15~30
排ガス	80~150	10~15

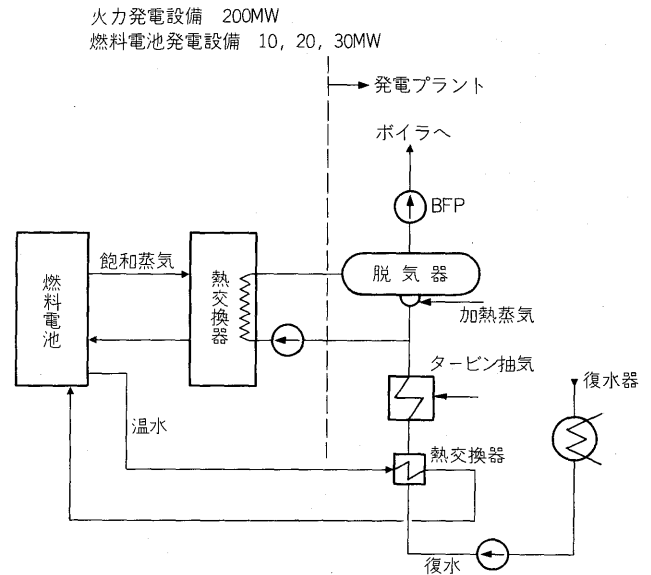
(HHV ベース)

1. ビルに対する適用例

モデルとしたビルは延べ床面積48,000m<sup>2</sup>で、ピーク電力負荷は8.5MWである。電池容量は10MWとし、予備をみて3MW×4台の電池を設置することにした。電池の排熱をビルの冷暖房負荷にあてるものとした場合、夏期にはビルの吸収冷凍機の必要熱量にほぼ等しくなるが、それ以外の期間は冷暖房負荷を100%自給でき、なお余ることが分かった。すなわち夏期以外は、電池の排熱は余っており、年間排熱利用率は約70%であった。



第13図 燃料電池排熱利用フロー図(ビル用)  
Fig. 13. Waste heat utilization flow diagram (for building system)



第14図 燃料電池排熱利用フロー図(火力発電所用)  
Fig. 14. Waste heat utilization flow diagram (for power plant)

第13図にビル用の燃料電池排熱利用フロー図を示す。

2. 火力発電所に対する適用例

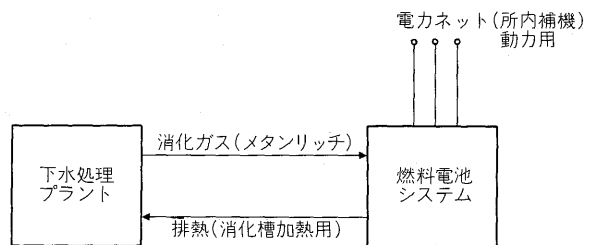
燃料電池システムを火力発電所に併設して排熱を発電所の給水予熱に使用した場合は、次のようになる。

第14図にその構成を示す。

火力発電所は200MWとし、10~30MWの燃料電池の併設を検討した。17MWの燃料電池システムを併設した場合、回収電力は3.4MWとなり、発電効率で約0.7% (絶対値) 向上することが分かった。また、電池容量が17MW以上になると排熱のうちの飽和蒸気分は残らず回収可能であるが、温水は熱交換器入口復水温度が比較的高く全量回収できないことが分かった。すなわち、容量割合で8.5%容量の電池を併設した場合が経済性の点で最適であった。もう一つの例として米国の適用例を紹介する。

3. 下水処理プラントへの適用例

下水処理プラントから出る生污泥の嫌気性消化によって発生するメタンリッチガスを燃料とする4.8MWデモンストレーションプラントの適用例を第15図に示す。結



第15図 燃料電池排熱利用フロー図(下水処理プラント用)  
Fig. 15. Waste heat utilization flow diagram (for sewage treatment plant)

第3表 20MW燃料電池発電所発電原価試算

Table 3. Power generating cost of 20MW phosphoric acid fuel cell system

区分	項目	単位	燃料電池の寿命		注	
			5年	3年		
発電所諸元	発電所容量	MW	20	20		
	年間発電電力量	10 <sup>6</sup> kWh	122.64	122.64	設備利用率70%	
	年間熱消費量	10 <sup>6</sup> kcal	277,554	277,554	送電端効率38%	
	燃料消費率	kg/kWh	0.171	0.171	燃料発熱量13,265kcal/kg	
	年間蒸気発生量	t	110.376	110.376	18t/h	
	建設費	百万円	4,100	4,100	205千円/kW	
発電	資本費					
	金利	円/kWh	2.67	2.67	8%	
	減価償却	円/kWh	4.31	6.49	燃料電池5年のとき12.9% 燃料電池3年のとき19.4%	
原価	固定資産、法人税	円/kWh	0.87	0.87	固定資産税1.4% 法人税ほか1.2%	
	直接費	人件費、修繕、諸費	円/kWh	1.37	1.37	4.1%
原価	関連費	事業税ほか	円/kWh	0.22	0.24	0.66~0.67%
	燃料費	円/kWh	15.82	15.82	LNG輸入価格 昭和60年 92.5円/kg(仮定)	
	合計	円/kWh	25.26	27.46		

果として、燃料電池システムからは年間 $30 \times 10^6$  kWhの電力が供給され、これは下水処理場の年間必要電力の約半分に相当する。更に年間 $17.6 \times 10^9$  kcalの熱を供給できるので、この熱は消化槽のバクテリアの活性化のための(適温は約35°C)保温用の熱源として利用される。

この量は年間必要とする熱量の約90%に達する。

こうして消化ガスの有するエネルギーの約65%が電力及び熱として有効に利用できる。

以上述べたようにトータルエネルギーシステムとしての燃料電池システムは、他の方式(ガスタービン、スチームタービン、ディーゼルエンジンのトータルシステム)に比べて次の特徴を有している。

- (1) 発電効率が37~40%と高く、部分負荷においても効率の低下が少ない。
- (2) 総合効率が80~85%と高く、電力と熱量の割合がほぼ1:1である。
- (3) 排ガス中のNO<sub>x</sub>及び騒音が最も少ない。
- (4) 負荷追従性がよい。

#### IV. 経済性の評価

開発段階にある現時点でシステムの経済評価を行うの

は困難であるが、参考として通商産業省工業技術院が種類の仮定を用いて行った試算例を紹介する。ここでは電池容量を20MWとし、システムの建設費は量産による低減効果を期待して1kW当たり20.5万円とし、また現状の技術レベルでの電池交換までの寿命を3年及び5年とした場合の発電原価を示す。

ここでは余剰蒸気の利用は考慮していない。

#### V. 今後の展望

天然ガス改質リン酸型燃料電池システムは、以上の諸検討にて明らかなように数々の優れた特徴をもっており、最も近い将来実用化が実現されるであろう。このために、今後量産化メリットによる建設費の低減、長寿命化が一層推進されねばならない。

本文が関係各位の何かの参考となれば幸いである。

#### 参考文献

- (1) 燃料電池発電プラントの排熱利用, 電力中央研究所研究調査資料, No. 180010 (1981)
- (2) National Fuel Cell Seminar Abstracts (USA) pp. 72~75 (1980)



\*本誌に記載されている会社名および製品名は、それぞれの会社が所有する  
商標または登録商標である場合があります。