固体高分子形燃料電池の開発

瀬谷　彰利（せや　あきとし）　　**大賀　俊輔**（おおが　しゅんすけ）

1　まえがき

固体高分子形燃料電池（PEFC）は，電解質にイオン交換膜を使用する燃料電池である。

富士電機では，1989 年から PEFC セル，電池スタックの研究開発に着手し，基礎的な研究を進め，信頼性の向上や電池スタックの開発に取り組み，良好な結果を得てきた。[1] また，2000 年から 2001 年にかけて，PEFC 発電システムの実用化に向け，定置型のシステム実証と課題抽出，出力規模スケールアップ時の基礎データ蓄積のために，発電ユニット，貯湯ユニット，インバータユニットから成る 1 kW 級の PEFC 発電システムを試作して評価した。[2]

本稿では，試作したシステムの概要と評価結果，および改質ガス用電池スタックの開発状況について述べる。

2　1 kW 級 PEFC 発電システムの開発

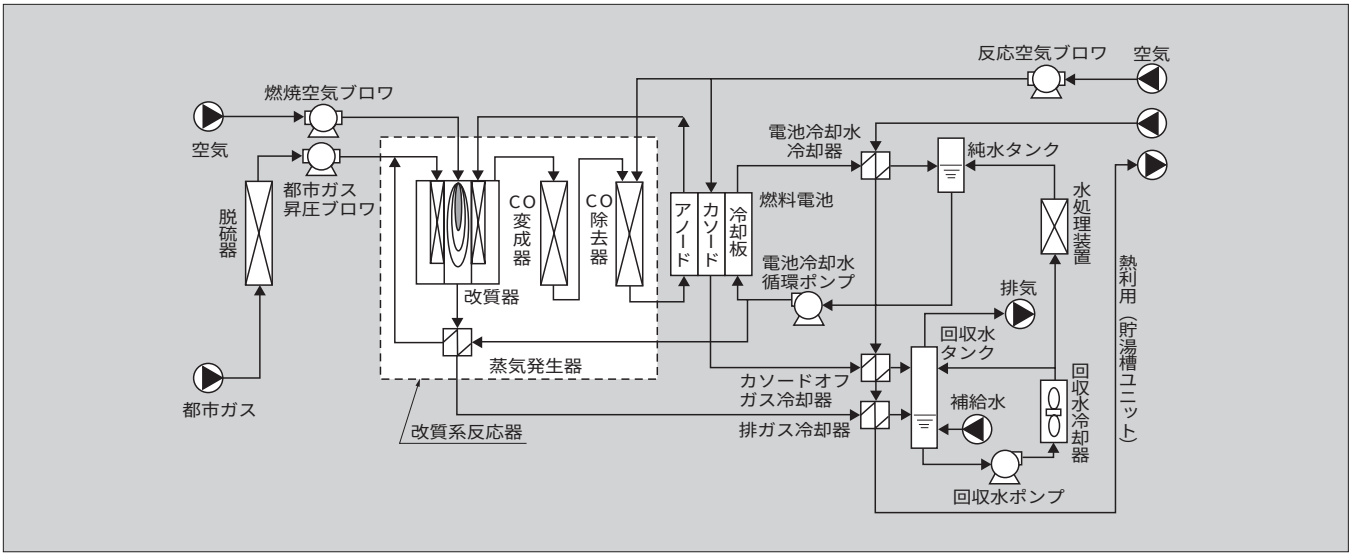
2.1　システムの概要

発電ユニットは改質系機器，電池スタック，熱交換器・回転機などの補機類から成り，一つのパッケージに収納されている。**図 1** にシステムフローを示す。（外観は本特集号の別稿「燃料電池開発の動向と展望」の**図 3** を参照いただきたい。）

供給された都市ガスは，脱硫器，改質器，CO 変成器，CO 除去器で構成される改質系機器により，CO 濃度 10 ppm 未満の水素リッチガスに改質され電池スタックに導入される。電池スタックでは，発電に伴い改質ガス中の水素が 60 ～ 70 %程度消費され，余剰の水素は，改質器のバーナで燃焼し改質器の熱源となり，熱バランスを保つ。電気出力は外部設置のインバータユニットにより，200 V の交流電力に変換され，電力系統と連系される。排熱回収は改質器の燃焼排ガスと，電池スタック冷却水ならびにカソードオフガスから熱交換器を介して回収し，60 ℃の温水が貯湯ユニットに蓄熱される。**表 1** にシステムの仕様を示す。

システムの運転は，スタートボタンを押すのみで発電可能状態まで移行する全自動方式である。また，電気出力はタッチパネルから 30 ～ 100 %の値を入力することで任意

図 1　1 kW 級 PEFC のシステムフロー



瀬谷　彰利

りん酸形燃料電池，固体高分子形燃料電池のセル技術開発に従事。現在，技術企画室技術企画部副参与。化学工学会会員。

大賀　俊輔

燃料電池発電装置の開発に従事。現在，事業開発室燃料電池部課長。

に変更可能である。

これらのシステムの制御は，りん酸形燃料電池発電システムの制御で培った技術と実績を十分に反映することで，安定した運転を実現することが可能となっている。

2.2　改質系機器

改質系の機器は，都市ガス中の硫黄分を取り除く脱硫器，水蒸気改質反応を行う改質器，改質ガス中の CO 濃度を１％未満に低減させる CO 変成器，さらにその CO 濃度を 10 ppm 未満に低減させる CO 除去器の四つの反応器から構成されている。改質系機器の仕様を**表２**に示す。

脱硫方式には，システムの簡素化を図るために常温脱硫方式を採用し，約１年間の定格運転が可能な量の脱硫剤をカートリッジに充てんした。

改質方式には，オンサイト用で実績のある水蒸気改質を採用し，改質器と CO 変成器は一体化させて小型化し，水蒸気改質に必要な水蒸気はこの中でスーパーヒートさせてから改質器へと供給している。改質器・ CO 変成器の外観を**図２**に示す。

表１　1 kW 級 PEFC 発電システムの基本仕様

電気出力	1.0 kW（AC送電端）
出力方式	200 V 単相 3 線式
排熱温度	65 ℃
燃　料	都市ガス（13A）
運転方式	全自動
主要寸法	1,100（W）×1,100（H）×400（L）mm

表２　改質系機器の仕様

脱硫器	原燃料ガス	都市ガス 13A
	触媒	常温脱硫触媒
	運転温度	常温
	脱硫性能	出口硫黄濃度 0.001 mg/m³（Normal）以下
	交換周期	8,000時間
改質器	原燃料ガス	都市ガス 13A
	S/C	2.5～3.0
	触媒	貴金属系触媒
	運転温度	650～680 ℃（触媒層出口）
	出口ガスメタン濃度	2.0 dry % 以下
CO 変成器	触媒	銅-亜鉛系触媒
	運転温度	320 ℃/180 ℃ （触媒層入口/出口）
	出口ガス CO 濃度	1.0 dry % 以下
CO 除去器	処理ガス	改質ガス（CO濃度 1.0 dry %）
	O_2/CO 量論比 （モル比）	2.0～3.0（1.0～1.5）
	触媒	貴金属系触媒
	運転温度	220 ℃/80 ℃ （触媒層ピーク/出口）
	出口ガス CO 濃度	10 ppm 以下

CO 除去方式には，改質ガス中の CO 濃度に見合った空気を前段で混入させて CO を酸化させる選択酸化方式を採用し，従来２層であった反応層を１層としてコンパクト化を図っている。

また，PEFC 発電システムでは，電池スタックの運転温度が低いため，その発熱量を用いて水蒸気改質用の蒸気を作り出すことができないために，改質器の燃焼排ガスが持つ熱量を用いて蒸気を作り出す蒸気発生器も改質系機器の重要な要素となる。蒸気発生器によって，蒸気を脈動なく発生させるとともに，改質器の燃焼排ガスの温度を蒸気発生器出口で 110 ℃まで下げて熱の有効利用を図った。

なお，脱硫器を除く改質系機器（**図１**の破線内）は一体化して，φ300×650（mm，保温材を含む）の寸法に収めた。

2.3　試験結果

2.3.1　起動停止，負荷変化，定格負荷性能試験

運転試験の結果，冷起動では約 110 分，暖起動では約 60 分で定格出力に達した。

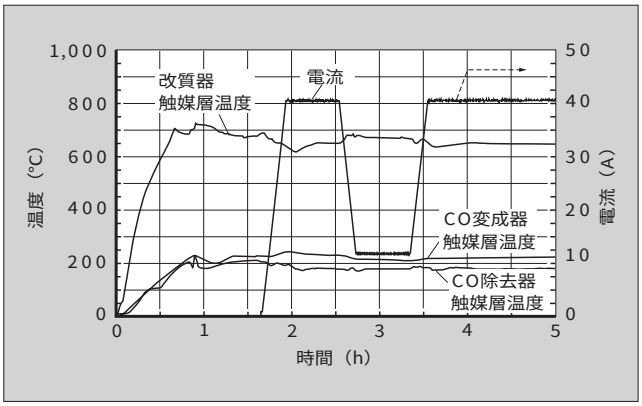
図３に冷起動から定格出力到達および負荷変動時における改質系機器触媒層の温度変化を示す。なお，負荷は定格（100 %）→ 30 %出力→定格で変化させた。

各温度は十分制御されており，安定した負荷変更が可能である。

なお，定格負荷においては直流発電端にて 38 %（LHV：

図２　改質器・ CO 変成器の外観

図３　起動，負荷変化試験結果



Lower Heating Value）の発電効率を得た。

2.3.2　連続運転試験

次に，長時間運転した場合の各部の温度，ガス組成，水質などを確認するために，2001年の6月から7月にかけて，定格出力による連続運転試験を実施した。**図4**に連続運転時の改質系機器の温度変化，圧力などを示す。

各温度，圧力は十分に制御されており，安定した連続運転が可能であることを確認した。また，水回収部に直接接触式の小型熱交換器を採用したことにより，夏場は難しいとされる水自立運転（燃料電池の生成水や燃焼排ガスに含まれている水を回収して水蒸気改質用の水を賄い，外部から水を補給しない運転）を実現した。水自立運転は，補給水が入らない分，回収水の水質が向上することにより水処理装置の寿命が伸びて経済的である。

2.3.3　繰返し起動停止試験

起動停止を繰り返した場合の影響を確認するために，1日1，2回の起動停止を50回実施して，燃料電池電圧，改質ガス組成に異常がないことを確認した。また，50回起動停止後も燃料系の気密が確保されていること，および改質系機器の触媒層各部の温度分布が初期に対して変化がないことから，50回程度の起動停止の繰返しによるヒートサイクルでは，改質系機器が損傷および変形しないことを確認した。

3　改質ガス用電池スタックの開発

3.1　PEFC電池スタック

PEFC電池スタックは，発電単位であるセルを複数枚直列に接続し，締め付けた構造となっている。セルは主に燃料極，空気極の電極，電解質膜から構成されており，各極にはそれぞれ反応ガスが供給されている（312ページの「解説」参照）。各極は触媒層とガス拡散層から構成されている。触媒層は白金を主成分とする触媒活性物質をカーボンブラックに担持した触媒とイオン交換膜を溶解した電解質溶液により構成される。セル内では，電解質膜であるイオン交換膜を湿潤状態に保ちつつ，生成した水が反応ガスの流通を阻害しないように水を管理する必要がある。

燃料に改質ガスを使用する場合，その中には微量のCOが含まれており，COにより燃料極触媒が被毒される。その被毒は温度が高いと緩和され，また，触媒を合金化することでも緩和される。

富士電機では，水管理技術について詳細な検討を実施しており[(3)(4)]，無加湿運転という特徴ある技術を有しており，その技術を使用した1kW級の純水素を燃料としたスタックは1万時間を超えて順調に運転中である[(5)]。これらの実績をもとに，改質ガス用電池スタックとして運転温度を見直し，それに伴い水管理条件を見直した。また，燃料極触媒の耐CO被毒性を評価し，最適な触媒を選定した。

3.2　改質ガス用単セル耐久性評価

以上の成果を織り込んだ単セルの耐久性評価を実施中である。定格運転条件（セル温度80 ℃，電流密度0.4 A/cm^2）での電圧経時変化を**図5**に示す。

図5から，停止・起動によりセル電圧が上昇し，その後電圧が低下し，停止前の水準に戻ることが分かる。この現象は，停止・起動によりセル内の湿潤状態が変化するためであると推定される。また，ある程度連続運転した後の電圧に着目すると5,000時間を超えると電圧が非常に安定することが分かる。

現在，さらなる初期特性と耐久性向上を狙った電極の改良検討を実施中であり，その効果を評価中である。

3.3　改質ガス用1 kW級電池スタック

上記のように改質ガス用セルとして耐久性を確認したセル仕様で1kW級発電装置用の電池スタックを製作した。**表3**に主要仕様をまとめ，**図6**に電池スタックの外観を示

図4　連続運転試験結果

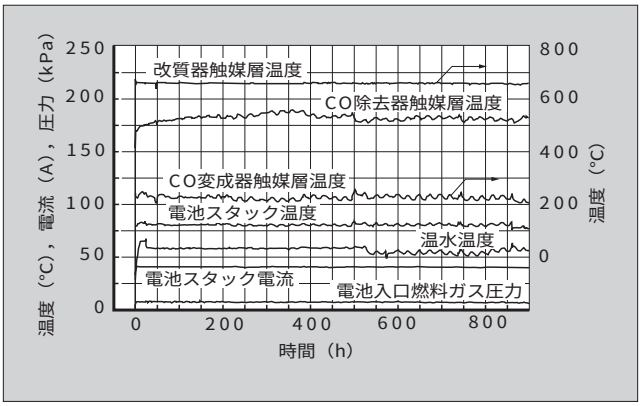


図5　単セル耐久性試験結果

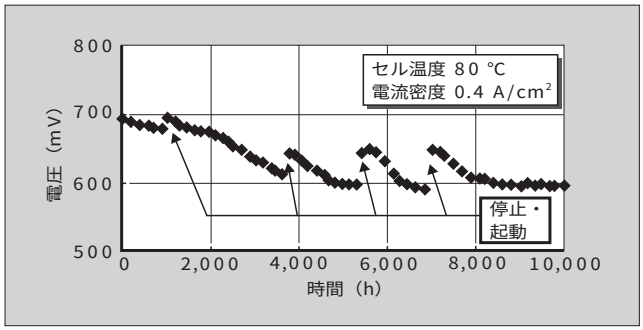


表3　改質ガス用1 kW級電池スタックの主要仕様

燃料ガス	改質ガス
酸化剤ガス	空　気
加湿方式	酸化剤ガス加湿部内蔵
運転温度	80 ℃
運転圧力	常　圧
電極面積	100 cm^2
セル数	60
定格電流	40 A
定格出力	1.6 kW DC

図６　１kW 級改質ガス用電池スタックの外観

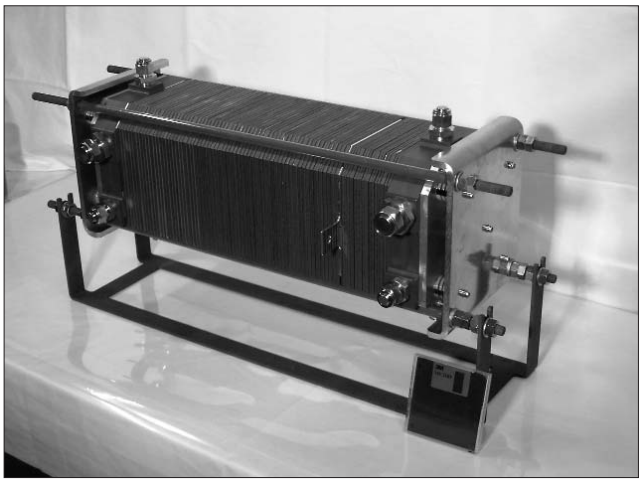
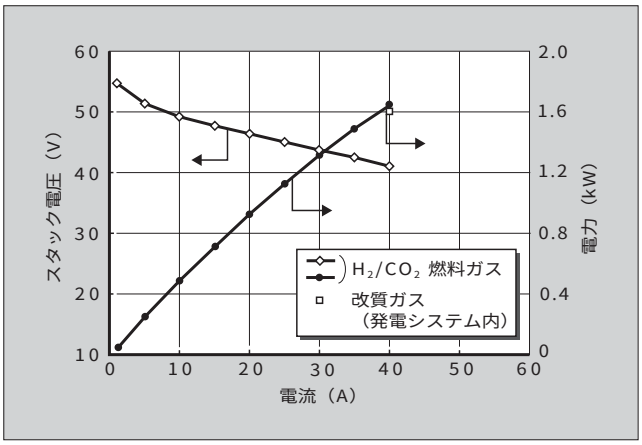


図７　１kW 級改質ガス用電池スタックの特性



す。反応空気の加湿は電池スタック内部で加湿する方式を採用しており，燃料ガスは改質ガスを加湿せずに供給する。本電池スタックは種々の試験や改良などを容易にするため，電池スタックとしてコンパクト性を追求した設計とはなっていない。

本電池スタックは単体での発電試験を実施後，発電装置へ組み込んだ。単体試験での電流・電圧特性および発電装置での定格特性を**図７**に示す。電流・電圧特性は良好であり，発電装置での定格点特性は設計仕様を満足した。

現在は，10 kW 級電池スタックの開発評価に向け，その数セル規模のショートスタックを設計，製作中であり，今後評価を開始する予定である。

4　あとがき

1 kW 級 PEFC 発電システムおよび改質ガス用電池スタックの評価を行って，比較的長期間の安定した運転が可能であることを確認した。

今後は，PEFC 発電装置の実用化に向けて以下の開発に注力していく。

(1)　改質ガス用電池の長寿命化，コストダウン
(2)　システムの簡素化によるコストダウン
(3)　補機動力・熱損失低減による効率向上
(4)　発電容量の最適化および改質ガス用電池の大面積化

参考文献

(1)　青木信，瀬谷彰利．固体高分子形燃料電池の開発。富士時報．vol.73，no.4，2000，p.231–233.
(2)　千田仁人ほか．1 kW 級 PEFC コージェネレーションシステムの開発．第 8 回燃料電池シンポジウム講演予稿集．2001，p.88–91.
(3)　Takano, H. et al. The Relationship between the Humidity of Gasses and the Cell Performance of Polymer Electrolyte Fuel Cell, ECS Meeting Abstracts, vol.MA 99–2，1999，p.418.
(4)　榎並義晶．固体高分子形燃料電池のアノード・カソード間の水移動について．第42回電池討論会予稿集．2001，p.544–545.
(5)　Wada, T. et al. Development of PEFC Stacks in Fuji Electric. 7th Grove Fuel Cell Symposium Delegate Manual．2001，p.2a.11.

e-Front runners

＊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。