

(様式2)

## 学位論文の概要及び要旨

氏 名 長野 進

題 目 燃料電池用燃料改質器の小型高効率化に関する研究

### 学位論文の概要及び要旨

燃料電池は、高効率でクリーンな動力源の一つの候補として研究開発が進んでいる。近年、天然ガスを燃料とする数kW出力以下の家庭用小型燃料電池システムは実用化されているが、自動車用など移動体用で数十kWクラスのものはまだ研究開発の途中である。燃料電池本体の研究開発とともに、その水素源については可搬性、制御性、安全性およびインフラ整備など多くの課題が残っている。その中で、液体燃料を搭載し燃料改質して水素源とする燃料電池システムは、移動体用として有力な候補の一つである。

本研究では燃料改質器の小型高効率化の目標値を以下のように定め、小型化と高効率化を狙い、始動性と応答性を確保するために改質反応の低温化および改質触媒体を改良して小型化を図ること、そして燃焼範囲が広く小型で高効率な加熱方法の提案を課題として研究を進めた。

- ・高効率化について、熱効率 $>80\%$ 。
- ・小型化について、単位体積当りの水素生成能力 $>5 \text{ kW-H}_2/\text{L}$ 。

実施内容は以下の4つである。

- (1) 各種液体燃料について水蒸気改質特性を把握し、メタノールの優位性を再確認
- (2) 改質率/CO濃度のトレードオフ関係を改善する改質触媒構造の提案
- (3) コンパクトさと高効率燃焼を満足しながら、最適加熱できる燃焼方式の技術開発
- (4) サブスケールでの改質部と燃焼部との一体化およびその性能の実証と 50kW の水素生成能力のある改質器の性能を計算予測

その結果、以下の結論を得た。

- (1) 各種液体燃料で水素を多く生成する活性温度を比較すると、メタノール、エタノール、ガソリンでは、それぞれ $250\sim 300^\circ\text{C}$ 、 $450\sim 500^\circ\text{C}$ 、 $600^\circ\text{C}$ 以上であった。メタノールを燃料とした場合であっても、改質率を高くするとCO濃度も上昇するという改質率/CO濃度のトレードオフ関係があるが、低い温度での活性化と水素生成による発熱量増加の大きさからメタノールが優位であることを再確認できた。

(2) ハニカム構造の触媒体は移動体に適しているが、ハニカム内ガス通路の水力直径は1mm程度、ガス流速は数〜数10cm/sで、Re数は小さく入口付近の助走区間以外は層流状態である。このため、この細かいハニカム内の触媒面へのガス拡散は大部分が分子拡散によると考えられる。この混合不足に対して前縁効果を利用し細い管の中にサブミリスケールの渦を発生させて混合不足を解決しようと試みた。メタルハニカム担体化した改質触媒に対して実験的に検討し、触媒体を分割することで前縁効果により改質ガスの混合および伝熱が促進され、改質率/CO濃度のトレードオフ関係を改善するとともにメタノール処理量が多くなっても改質率が高くなることを示した。この結果を基に触媒反応シミュレーションモデルを構築した。

(3) 燃料電池で利用しきれない水素（アノードオフガス）を燃焼させ液体燃料の蒸発と吸熱反応である水蒸気改質の加熱用熱源として利用するのに適した小型で高効率な触媒燃焼器を提案し、その性能を評価した。この触媒燃焼器はこの水素濃度が減少し二酸化炭素濃度が著しく濃くなった場合の特殊な燃料ガスの燃焼を対象とし、従来からある拡散燃焼器でなく主流中にサブミリスケールの突起を多数設定し渦を発生させることにより、伝熱効率を高く燃焼範囲を広く供給空気圧力を低くできるようにした平板型触媒燃焼器である。この平板型触媒燃焼器について実験検討し、拡散燃焼器よりも燃焼の空気比範囲が広く、排気はクリーンであることを示した。この触媒燃焼の効率を向上させるには、突起高さが重要なパラメータで、 $H=0.6\sim 0.75\text{mm}$  必要である。この方式は、厚さが薄い平板型触媒燃焼器を構成可能にする。

(4) 7kW水素生成能力のある改質/触媒燃焼一体型改質器を試作し、改質性能および燃焼排ガス特性を実験的に検討し、改質率99%以上、CO濃度1%以下の条件を満たしながら単位体積当りの水素生成能力 $4.4\text{ kW-H}_2/\text{L}$  および熱効率81%であり、排気ガスは、THC、COが10ppm以下、NOxは2ppm以下で極めてクリーンであることを示した。この改質器の実験結果と数値計算結果はよく一致しているという数値計算の妥当性を確認した後、その結果を基に自動車用水素生成能力50kWの改質器を設計し、性能予測計算を行ない、熱効率81%および $6\text{ kW-H}_2/\text{L}$  という非常に小型高効率な改質器が実現できるという予測値を得た。

このように、改質触媒体の改良と触媒燃焼方式の提案において、主流に対してミリスケールまたはサブミリスケールの小さな流れや乱れを誘起することによって課題解決に対処した。改質触媒体の改善については前縁効果を利用し、数値シミュレーションによって触媒表面上への物質拡散の重要性を示した。これらの効果をまとめて一体化した改質器は、50kWクラスの水素生成能力のものについて、熱効率81%の高効率でありながら自動車用で望まれる $5\text{ kW-H}_2/\text{L}$ と比較して十分大きな水素生成能力の推定値( $6\text{ kW-H}_2/\text{L}$ )となり、計算予測ではあるが設定した目標値を達成することができた。

以上述べてきたように本研究は、燃料電池用燃料改質器の高効率化・コンパクト化への貢献は極めて大きいことを明らかにした。

以上