

# 燃料電池用燃料処理器の開発期間短縮を実現する設計手法の構築

Design Rules for Reducing Development Time of Fuel Processors

信岡 政樹  
Masaki Nobuoka

向井 裕二  
Yuji Mukai

前西 晃  
Akira Maenishi

藤原 誠二  
Seiji Fujihara

寺西 正俊  
Masatoshi Teranishi

松本 敏宏  
Toshihiro Matsumoto

## 要 旨

家庭用燃料電池コージェネレーションシステムの水素生成デバイスである燃料処理器に特化した反応シミュレーション技術、およびシミュレーションを基軸としたモジュール型開発プロセスを構築し、開発効率を向上させた。燃料電池の発電効率向上を図るためには、熱利用効率を高めて反応を効果的に生じさせる高効率な燃料処理器の開発が必須である。しかしながら、燃料処理器内部では、水素生成とその過程で発生する一酸化炭素の除去を行うために600℃を超える高温で複雑な反応現象が起こっており、実験主体の開発では設計に必要な詳細現象をとらえることができず最適設計が困難であった。筆者らは、反応現象を予測するシミュレーション技術を開発し、水素生成メカニズムの予測を可能とした。また、複数の反応器の設計を並行に実施可能とするモジュール型設計手法を構築し、従来の実験主体の開発に比べて約1/4に開発期間を短縮するとともに目標性能を実現した。

## Abstract

We developed a method for reaction simulation of fuel processors of home-use fuel cell co-generation systems and design rules based on this simulation. By using this simulation and the design rules, we contributed to reducing the development time of fuel processors.

To improve the generation efficiency of home-use fuel cell co-generation systems, it is essential to increase the thermal efficiency for efficient reactions in the fuel processor. However, since a complicated reaction process occurs inside the fuel processor at high temperatures of more than 600℃ to generate hydrogen and to remove the carbon monoxide, it was too difficult to measure the detailed phenomenon by experimental approach and therefore we couldn't optimize design systematically. Now, we have developed a simulation to predict reactions in the fuel processor and we have built design rules for the reaction device which enabled parallel development of reactors. So we achieved 1/4 development time compared to the conventional experimental approach and achieved the performance goals.

## 1. はじめに

近年、地球規模での温暖化が進行しており、世界中で環境問題への取り組みが加速されつつある。その中で、燃料電池コージェネレーションシステムは、環境立社である当社グループの重点事業として位置づけ、開発を進めている。第1図に示す家庭用燃料電池コージェネレーションシステムは、発電の際に生じる熱エネルギーをお湯に変換することで、世界最高の総合効率90%以上の性能を有し、高い省エネ性と約30%のCO<sub>2</sub>排出量削減効果が得られる。

この高い省エネ性を実現するためには、第2図に示すスタック部で水素を効率よく電気変換することや、その過程で発生する排熱を無駄なくお湯にするだけでなく、燃料処理器で発電に用いる水素を、熱ロスを抑え、効率よく生成することが重要となる。

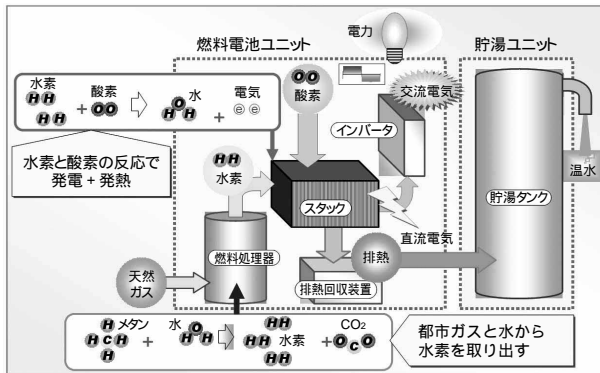
燃料処理器内部は、水蒸気改質法により水素生成を行う触媒と、その過程で発生する一酸化炭素の除去を行う触媒およびその触媒を加熱する燃焼部が配されている。この反応過程では600℃を超える高温で複雑な反応となる

が、効率向上を実現するためには、この詳細現象を加味した設計が必要となる。本稿では、水素生成メカニズムの予測を可能とした反応シミュレーション技術と、反応器を並行に設計可能とするモジュール型設計手法の構築



第1図 燃料電池コージェネレーションシステム

Fig. 1 Home-use fuel cell co-generation system



第2図 燃料電池コージェネレーションシステムの構成  
Fig. 2 Components of fuel cell

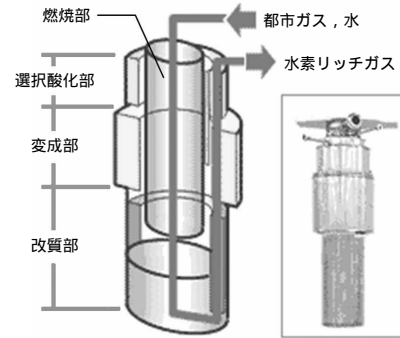
について報告する。本稿の構成は、次の通りである。第2章で背景となる燃料処理器の反応器構成および開発課題について述べる。第3章で反応シミュレーション技術の構築手段を説明する。第4章で反応器の最適化を並行で行えるモジュール型設計手法を説明する。第5章で開発プロセスの効果を説明する。第6章で本稿をまとめる。

## 2. 燃料処理器の構成

第3図に示す通り、燃料処理器は都市ガスから水素を生成するデバイスであり、約650 の高温雰囲気中で都市ガスと水蒸気から水素を生成する改質部、水素を生成する過程で発生する一酸化炭素を約100 から300 の雰囲気中で取り除く変成部と選択酸化部、筐体（きょうたい）の中心に配された触媒を加熱する燃焼部から成る。燃焼部から出る1000 を超える高温ガスにより改質部は600 を超える高温に加熱される。この高温下で70種類を超える複雑な反応現象が生じる。

燃料処理器は、小容量化により生じる放熱ロスを低減し、熱利用効率を向上させるために、反応器同士が第3図（右）に示す通り、同心多重円筒の金属構造体内に一体で配されている。そのため、それぞれ制御温度が異なる反応器同士が多重に熱交換を行う複雑な系となる。

放熱ロスを抑え反応を効率よく行い、高効率化を実現するためには、反応特性や熱交換特性を詳細にとらえ、設計に反映する必要があるが、実験による評価方法では筐体内部の詳細な反応現象を定量的にとらえることが困難である。また、一体化により反応器同士の熱バランスの相互作用が複雑化し、一部の反応器を最適化すると、ほかの反応器の熱や反応バランスが崩れるといったトレードオフの関係が多く存在し、全体最適の設計が困難である。

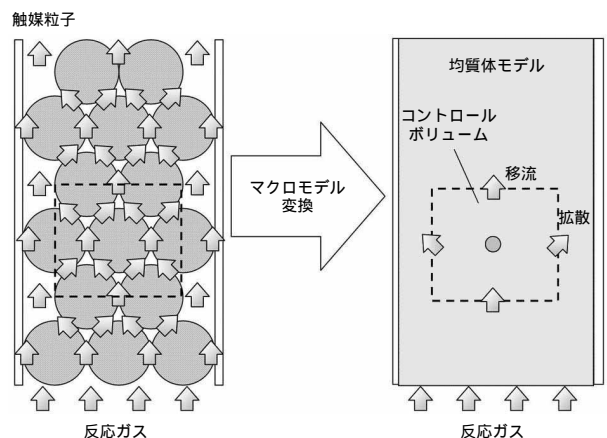


第3図 燃料処理器の構成（右：商品機外観）  
Fig. 3 Component of fuel processor

## 3. 反応シミュレーション技術

今回、設計に必要な精度を確保でき、さらに反応器内部で生じる高温下での反応現象を詳細に予測可能な、反応シミュレーション技術を開発した。

燃料処理器を構成する改質部、変成部と選択酸化部の各反応器には、第4図に示すような直径数ミリの触媒粒子が充填されている。反応はこの触媒表面の細孔で生じるため現象スケールが非常に小さく、反応を直接的にシミュレーションする場合は、1粒1粒の触媒をシミュレーションモデルとして考慮し、形状表面で反応が生じるという表面反応モデルとして取り扱う方法<sup>1)</sup>があるが、この方法では計算コストが膨大にかかる。実開発への適用を考えた場合、定量設計が実現できる計算精度であり、かつ計算負荷の小さい反応シミュレーション技術の開発が必要となる。具体的に実設計で活用できるシミュレーション精度は、実機評価との誤差5%以内、また第4章で説明するモジュール型設計手法を実現するためには1回の



第4図 触媒層のシミュレーションモデル概要  
Fig. 4 Simulation model of catalysis layer

解析時間は多くとも1日以内が必要条件となる。

### 3.1 シミュレーションモデリング概要

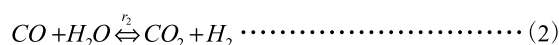
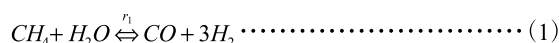
計算精度を維持し、計算負荷を軽減する反応シミュレーション手法の構築に向けて、第4図に示す通り、触媒表面で生じるミクロスケールの反応現象をマクロスケールでとらえる手法を導入する。本手法の特徴は、反応現象を、コントロールボリューム（検査領域）当り、単位時間当りの反応進行度として近似する反応速度で表現することで、解くべき方程式数を減らし計算負荷を低減することである。ミクロスケールからマクロスケールへのスケール変換については、触媒層の触媒充填密度が均一であり、触媒表面の細孔で生じている反応や流れ現象がコントロールボリューム内で均一に分布すると仮定することで、現象をコントロールボリューム当りの反応進行度として表現する体積反応速度モデル<sup>2)</sup>により行う。このとき、触媒層内の反応モデリング、流動モデリング、熱伝導モデリングの3つの現象モデリングが重要となる。

#### 〔1〕反応モデリング

反応速度の定義については、触媒層内部の流れが乱流か層流かによって反応現象が大きく異なったり、温度場や圧力場により反応特性が変化するため、流れの特徴と温度場や圧力場を慎重に考慮する必要がある。燃料処理器内部の流れは、レイノルズ数が数百程度の層流領域であるため、反応による流体の生成と消失については、幾つか提案されている反応速度式<sup>3)</sup>を参考に、温度と分圧を考慮した非線形アレニウス型の層流体積反応モデルを適用する。

次に、改質部の反応速度に関する定式化を例にとり、式化の説明を行う。変成部や選択酸化部についても、反応式の数や反応式の定数は異なるが、基本的には同様の考え方で導くことができる。

改質部で反応の主となる都市ガスは、主成分であるメタンのほかに数種類の低級炭化水素を含んでいる。これらすべてのガスをシミュレーションで考慮すると、触媒層内の反応は、数十種類もの多段階反応となり計算量が膨大となる。また、最も結果に影響を及ぼす頻度因子や活性化エネルギーの値が未知であるため、多段階反応をすべて解くことは困難である。そのため、反応に大きく寄与する反応式を特定し反応式を減らす手続きが必要となる。主反応の選定の考え方として、都市ガスの主原料はメタンが9割以上を占めるため、そのほかのガス成分を量論的な混合ガスに近似モデル化することにより、反応として、(1)式で表される水蒸気改質反応と、(2)式で表されるメタンシフト反応の2反応で表現することを試みた。



(1),(2)式のそれぞれの反応速度は、(3)(4)式で表した。

$$r_1 = A_1 \exp(-E_1/RT) \cdot (P_{\text{CH}_4}^a \cdot P_{\text{H}_2\text{O}}^b - P_{\text{CO}}^c \cdot P_{\text{H}_2}^d / K_1) \cdots \cdots (3)$$

$$r_2 = A_2 \exp(-E_2/RT) \cdot (P_{\text{CO}}^e \cdot P_{\text{H}_2\text{O}}^f - P_{\text{CO}_2}^g \cdot P_{\text{H}_2}^h / K_2) \cdots \cdots (4)$$

ここで、下付き字1は水蒸気改質反応を、下付き字2はメタンシフト反応を表し、 $r$ は反応速度 [ $\text{Kg}\cdot\text{mol}/\text{m}^3\cdot\text{s}$ ]、 $A$ は頻度因子、 $E$ は活性化エネルギー [ $\text{J}/\text{Kg}\cdot\text{mol}$ ]、 $R$ はガス定数 [ $\text{J}/\text{Kg}\cdot\text{mol}\cdot\text{K}$ ]、 $T$ はガス温度 [ $\text{K}$ ]、 $P$ は分圧、 $K$ は化学平衡定数を表す。分圧 $P$ の上付き字 a, b, c, d, e, f, g, h は反応速度を表すパラメータであり、触媒固有の値であるため、提案されている実験方法<sup>4)</sup>を参考に導出した。

#### 〔2〕流動モデリング

触媒充填層内の流れをマクロスケールに近似する場合、流れは粘性力と慣性力の関数で与えられる圧力損失の効果を、解くべきナビア・ストークス方程式に付加することで表現できる。今回、触媒の圧力損失の導出として、(5)式に示すErgun式<sup>5)</sup>を用いた。Ergun式は触媒充填層などの多孔質体内部の流動現象を表現する半経験的な相関関係式であり、広範囲のレイノルズ数にわたって適用が可能である。

$$\frac{|\Delta p|}{L} = \frac{150\mu(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3} v_\infty + \frac{1.75\rho(1-\varepsilon)}{D_p} \frac{v_\infty^2}{\varepsilon^3} \cdots \cdots (5)$$

ここで、 $\mu$ は粘度 [ $\text{Pa}\cdot\text{s}$ ] を、 $D_p$ は平均粒子直径 [ $\text{m}$ ] を、 $L$ は層厚み [ $\text{m}$ ] を、 $\varepsilon$ は触媒充填層の空隙率を表している。また $v_\infty$ は流速 [ $\text{m}/\text{s}$ ] を表している。

#### 〔3〕熱伝導モデリング

触媒層内のガス混合比率や輻射率は、反応状態や温度により各所において異なる値をとる。触媒担体と混合ガスとの見かけ上の熱伝導率を算出する場合、配合されたさまざまな触媒材料の重量割合から平均的に熱伝導率を求めるといった一般的な推算方法が成り立たないため、本反応シミュレーション技術では國井ら<sup>6)</sup>が提案した触媒充填層内の熱伝導率を表現した実験式を用いる（式数が膨大なため本稿では省略する）。反応、圧力損失、熱伝導に関するそれぞれのモデリング式については、熱流体解析汎用ソフトウェアであるANSYS FLUENT6.3<sup>(注)</sup>を用

(注) ANSYSは米国ANSYS社の登録商標

FLUENTはアンシス・インコーポレイテッドの登録商標

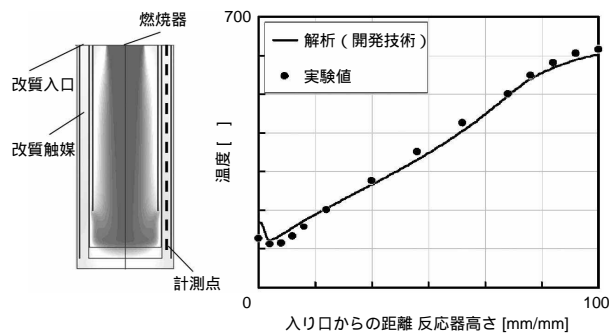
いて、ユーザーサブルーチン<sup>7)</sup>を開発し組み込んだ。

### 3.2 解析精度検証

第5図は、開発した反応シミュレーション技術を用いて解析した結果であり、一例として改質部の温度分布を示す。シミュレーションでは、燃焼器から出る燃焼ガスで改質触媒を加熱し、改質入口から流入するメタンと水蒸気が多段階反応を起こし、水素、一酸化炭素および二酸化炭素が生成される系を解く。シミュレーション結果の確かさは、温度分布と触媒出口の生成ガス組成を実験データと比較することにより検証することができる。

第5図(右)は、計測点上の温度に関する実験とシミュレーションとの結果比較である。シミュレーションの温度プロファイルは実験と良好に一致した。各実験測定点の温度と、改質部出口の反応量については、第1表に示す通り、誤差はそれぞれ実験比 2.1 % と 2.5 % となり目標値を上回る結果を得た。また、1回の解析時間は、時間を要する解析でも約0.5日以内に抑えられた。

このように、目標値を上回る解析精度と解析時間を実現することで実活用の目処(めど)を得た。



第5図 実験結果比較(左:改質部構成 右:温度比較結果)

Fig. 5 Comparison between experimental and analysis

第1表 解析精度および解析時間に関する目標と結果まとめ

Table 1 Comparison between aim and result

		目標(誤差)	結果(誤差)
		解析精度	温度 [ ]
	転化率 [%]	5.0 %	2.5 %
解析時間		1日以内	約0.5日

## 4. モジュール型設計手法

設計において特に重要となるのは、使用温度帯が異なる反応器同士の熱・反応バランスを最適にし、触媒利用効率を高める形状・寸法の決定であるが、燃料処理器は多重円筒管構成の複雑な熱交換系であるため、反応器の一部を変更すると、連鎖的にほかの反応器の熱・反応バ

ランスが変わり、ねらった改善が困難であった。そのため、反応器間の熱・反応バランスのつながりをひも解き、反応器(モジュール)を個別に最適化し並行で設計を実施できるモジュール型設計手法の構築<sup>8)</sup>を試みた。本設計手法の取り組みステップについて、以下に述べる。

### 4.1 設計ルールの構築

設計因子と設計因子が寄与する効果との関係を明確化するために、第6図に示すデザイン構造マトリックスを、縦軸に設計因子、横軸に効果として記述する。

次に、1つの反応器にのみ効果を与える独立した設計因子を得るために、ほかの反応器への相互作用がない設計因子のパラメータ範囲を、開発した反応シミュレーション技術により感度分析し決定する。これにより、第7図に示す独立した設計因子(印)と、相互作用の大きい設計因子(印)とに切り分けられ、各反応器を個別に最適化できる独立した設計因子のパラメータ範囲を決定する。

パラメータ範囲の決定方法として、第8図に記載の変成部の反応器高さを例にとり説明する。反応器高さは、変

		効果								
		変成		選択酸化			改質			
		触媒温度	出口温度	触媒温度	出口温度	周方向温度	放熱量	周方向温度	改質効率	
設計因子	変成	反応器幅								
		反応器高さ								
	選択酸化	混合流路幅								
		反応器幅								
	反応器高さ									
	改質	ガス流路幅								
触媒幅										

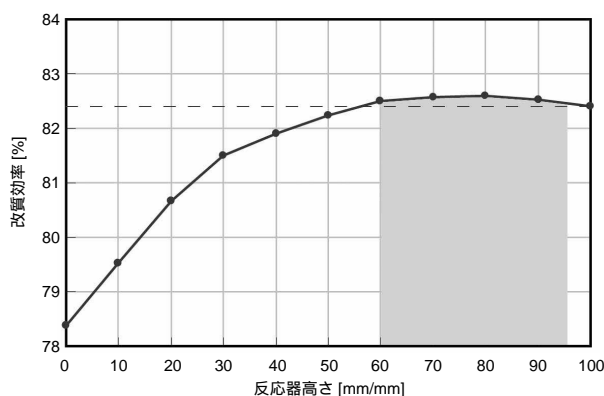
第6図 デザイン構造マトリックス(ルール設定前)

Fig. 6 Design structure matrix for fuel processor (Before defining rules)

		効果								
		変成		選択酸化			改質			
		触媒温度	出口温度	触媒温度	出口温度	周方向温度	放熱量	周方向温度	改質効率	
設計因子	変成	反応器幅								
		反応器高さ								
	選択酸化	混合流路幅								
		反応器幅								
	反応器高さ									
	改質	ガス流路幅								
触媒幅										

第7図 デザイン構造マトリックス(ルール設定後)

Fig. 7 Design structure matrix for fuel processor (After defining rules)



第8図 設計因子の寸法範囲決定

Fig. 8 Decision of range of design factor

成部の効果である触媒温度、出口温度のほかに、一酸化炭素除去時に生成する水素や熱バランスの影響から、相互作用として改質部の改質効率に影響を与える。そのため、反応器高さを用いて、変成部の形状最適化を図るためには、相互作用が生じない反応器高さの寸法範囲を限定する必要がある。この寸法範囲を反応シミュレーション技術により評価し決定する。

評価の結果を、第8図に示す。横軸は反応器高さ、縦軸は改質効率である。燃料電池システムの性能に影響を及ぼさない反応器高さは、改質効率が82.4%から82.6%を満足する範囲であり、第8図に示す網掛けの範囲である。この範囲では、反応器高さは相互作用の大きさが許容誤差となり無視でき、独立した因子として取り扱うことができる。このような方法で、相互作用の大きい設計因子の寸法範囲をそれぞれ特定することで、反応器ごとに個別に設計実施が可能となるモジュール型設計手法を構築した。

感度評価の方法は一意的ではなく、それぞれの相互作用の特性により検討する必要がある。

#### 4.2 モジュールごとのI/Oの定義

燃料処理器に必要とされる性能仕様から、触媒使用温度域や、伝熱特性、ポンプ類などの補機特性、運転状態、外乱などを俯瞰（ふかん）し、原理的に成り立つようにモジュールごとの設計要求仕様を入力値、出力値を決定した。

#### 4.3 モジュールごとの最適化

設計ルール構築により明らかにした、設計因子と効果との関係を用いて、反応器ごとの要求仕様を満足する最適形状を、反応シミュレーション技術により試作レスで導出する。実機評価までの流れとして、まず相互作用の

大きい設計因子を設計制約ののちで寸法を固定し、反応器間の相互作用の影響を抑える。その上で、独立する設計因子を用いて複数回のパーチャル評価により、仮説・検証サイクルを経て最適化する。

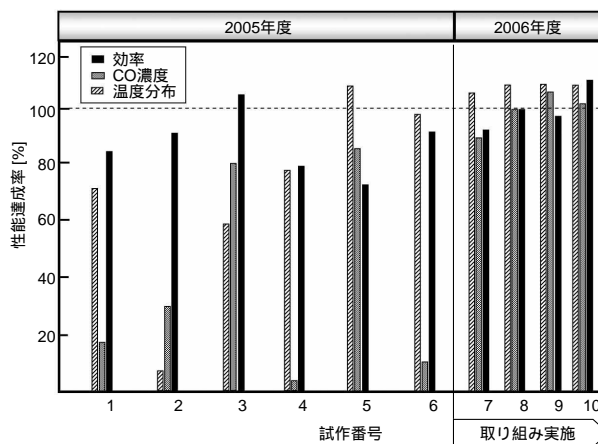
#### 4.4 実機を用いた検証

最後に、各反応器の最適化が妥当であるかの検証を実機評価により行う。効果については、次章で説明する。

### 5. モジュール型設計手法の実開発への適用

第9図は、燃料処理器の試作評価結果であり、縦軸は性能評価基準である改質効率、一酸化炭素濃度、触媒温度分布について性能達成率を、横軸は期間を表す。性能達成判断は、主としてこの3基準が共に性能達成率100%以上とならなければならない。2005年度末までに行われた実験主体の開発では、複数のトレードオフ基準を同時に満足する設計となっていなかった。また、評価結果を基に改善項目を次の試作に反映するというシリーズ型開発でしか評価が行えなかったため、試作評価のサイクルは約2箇月要した。

一方、2006年度の試作No.7からモジュール型設計手法を実開発に適用（試作レス評価約120回（20年相当分））することにより、評価の大半を反応シミュレーションで見通すことができ、また評価項目を切り分けられるために試作評価を並行で実施可能となった。その結果、試作評価のサイクルを従来の約1/4に抑え、かつ各反応器を同時に最適化することで3基準すべてを満足する最適形状を得ることができた。



第9図 2006年度の性能達成進捗

Fig. 9 Progress of achievement of performance in fiscal 2006

## 6. まとめ

今回、燃料電池コージェネレーションシステムの発電部に水素を供給する燃料処理器の開発効率を向上させる反応を考慮した反応シミュレーション技術の構築と、反応シミュレーション技術を基軸としたモジュール型設計手法構築について述べた。

反応技術については、触媒表面のミクロスケールな反応現象を、マクロスケールに近似的にモデリングすることで、目標としていた実験誤差5%以内となる誤差2.5%、目標としていた解析時間1日以内に対して約0.5日を実現し、シミュレーション精度を維持しながら実開発に適用可能となる計算時間とすることができた。

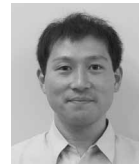
また、モジュール型設計手法を構築し実開発に適用することで、各反応器を同時に最適化することができ、目標性能を実現するために従来要していた基本構成に掛かる開発期間2年を、約6箇月に短縮することができた。

今後、本手法を開発に本格的に活用することで、より高効率な燃料電池コージェネレーションシステムを商品化し、低炭素化社会の実現に貢献する。

### 参考文献

- 1) K. Yamamoto, et al. : Numerical simulation on flow in porous media with combustion. 2003JSFM.B2-3.
- 2) H. Ohashi, et al. : Analytical study on carbon dioxide reforming of natural gas. JAERI-Research 2000-058.
- 3) R. Mezaki, et al. : Rate of equation of solid-catalyzed reactions. Univ. Tokyo Press 321 (1991).
- 4) H. Ohashi, et al. : Catalytic activity of catalysis for steam reforming reaction. JAERI-Tech 2003-046.
- 5) S. Ergun : Fluid flow through packed columns. Chem. Eng. Prog. 48 (2):89-94,1952.
- 6) 日本機械学会 編：伝熱工学資料（改訂第4版）p.91.
- 7) FLUENT Inc. : FLUENT6.3User Define Function Manual.
- 8) 安藤晴彦 他：モジュール化 pp.67-98 (東洋経済新報社).

### 著者紹介



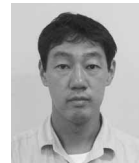
信岡政樹 Masaki Nobuoka  
生産革新本部 直轄 燃料電池プロジェクト  
Organization Staff, Corporate Manufacturing  
Innovation Div.



向井裕二 Yuji Mukai  
ホームアプライアンス社 技術本部  
Corporate Engineering Div., Home Appliances  
Company



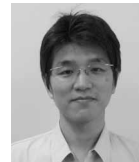
前西 晃 Akira Maenishi  
ホームアプライアンス社 技術本部  
Corporate Engineering Div., Home Appliances  
Company



藤原誠二 Seiji Fujihara  
くらし環境開発センター  
Living Environment Development Center



寺西正俊 Masatoshi Teranishi  
生産革新本部 直轄 燃料電池プロジェクト  
Organization Staff, Corporate Manufacturing  
Innovation Div.



松本敏宏 Toshihiro Matsumoto  
生産革新本部 直轄 燃料電池プロジェクト  
Organization Staff, Corporate Manufacturing  
Innovation Div.