携帯用パワー源のためのマイクロリアクタ Microreactors for Portable Power Sources

○正 田中 秀治(東北大) 張 貴松(東北大院) 佐藤 大祐(東北大院)

吉田 和司(松下電工) 正 江刺 正喜(東北大)

Shuji TANAKA¹, Kuei-Sung CHANG¹, Daisuke SATO¹, Kazushi YOSHIDA² and Masayoshi ESASHI¹

¹Tohoku University, 01 Aza Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai

²Matsushita Electric Works, Ltd., 1048 Kadoma, Osaka

The components of a novel miniature fuel cell/fuel reformer system fueled by liquid gases such as butane and propane were prototyped using MEMS technology and tested. In this system, fuel, air and water are supplied to the fuel reformer by utilizing the vapor pressure of the liquid gas for the reduction of power consumption by peripherals and the simplification of the system. The system is composed of a reforming reactor, a catalytic combustor, a polymer electrolyte fuel cell (PEFC), an ejector to supply air to the combustor and other peripherals. The reforming reactor demonstrated the steam reforming of methanol at an equivalent power of 200 mW and a total efficiency of 6 %. The combustor had a stable combustion area above 5 W, and the complete combustion of butane was confirmed by gas chromatography. The ejector showed a potential to supply air required for the complete combustion of butane (31 times larger volume than butane).

Key Words: Fuel Reformer, Fuel Cell, Portable Power Source, Ejector, Combustor

1. はじめに

液体炭化水素燃料は、現存する最良の電池と比べても、単位体積・重量当たり大量のエネルギーを有している。たとえば、リチウムイオン電池のエネルギー密度は 200 Wh/l, 100 Wh/kg 程度であるが、ガソリンのエネルギー密度は 13 kWh/l, 15 kWh/kg に達する。したがって、仮に数%の変換効率で液体炭化水素燃料から発電できれば、現存のリチウムイオン電池のエネルギー密度を凌駕することができる。また、このような燃料を用いる小形パワー源は、充電せずに燃料補充するだけで即使用できるという利点を有する。これは、携帯情報機器をいかなるときにも手放せない人、あるいは工事現場、災害現場などの充電が難しい場所で行われる自立ロボットにとって、重要な利点である。さらに、リサイクルが困難で、廃棄されると環境汚染の原因にもなりうる電池を、リサイクルの容易な燃料カートリッジに置き換えられるという利点もある。

このような理由から、液体炭化水素燃料から電力を生み出し、携帯電子機器や移動機械に利用しようとする研究が、近年、様々に行われている。研究されている小形パワー源には、ガスタービン発電機、燃料電池、燃料改質器、熱電発電器、熱光発電機などがある。その中で、マイクロ燃料改質器は PEFC と組み合わせ、ノートパソコンやビデオカムコーダの電源として用いられると期待されている。マイクロ燃料改質器付き PEFC は、水素を燃料にする PEFC の出力密度が DMFC のそれより 1 桁程度高いことから、システムとしても DMFC より高い出力密度を実現できると期待されている上、メタノール、エタノール、ブタンなどの種々の燃料を利用できる可能性もある。

2. システム構成

図1にマイクロ燃料電池/燃料改質器システムの構成を示す。このシステムは、ブタン、プロパンなどの液化ガスの水蒸気改質を行い、PEFC で発電するものであり、PEFC、燃料改質反応器、触媒燃焼器、燃焼器に空気を導入するエゼクタなどで構成される。燃料改質反応器には、必要に応じて、CO を除去するためのシフト反応器やパラジウム水素分離器が組み合わされる。

液化ガスを燃料に用いることの利点は、液化ガスの蒸気圧を有効利用することによって、燃料や水の供給がポンプ無しで行えることである。一般的に、マイクロポンプは比較的消費電力が大きく、しかも、稼動部を有するため信頼性に不安を残す。また、燃料や水の供給にマイクロポンプを用いると、要素の数が増え、システムが複雑になる。我々が提案する新しいシステムの最大の特徴は、液化ガスを燃料に用いることによって、マイクロポンプが不要になることである。

我々のシステムは、メタノールを燃料に用いる従来のマイクロ燃料改質システムには無い特有の要素開発を必要とする。具体的には、次のような課題がある。1) 液化ガスの水蒸気改質温度は、数百℃以上とメタノールのそれ(300℃程度)より高い。効率を上げるためには、反応部の良好な断熱が必須である。2) 液化ガスの水蒸気改質用の高性能触媒を、それをマイクロリアクタへ固定する方法と共に開発しなければならない。3) 液化ガスを完全燃焼させるには、大量の空気が必要である。たとえば、ブタンを完全燃焼させるためには、ブタンの 31 倍の体積の空気が必要である。エゼクタは、このような大量の空気を燃焼器に導入しなくてはならない。4) 微小領域における液化ガスの燃焼は、メタノールのそれより難しい。また、マイクロ触媒燃焼器は、液化ガスを完全燃焼できると共に、エゼクタと組み合わせるために、低圧力損失でなくてはならない。本研究では、これらの課題を解決するための要素を、MEMS 技術を用いて試作した。

3. マイクロ燃料改質器⁽¹⁾

装置の小形化にともなって、体積当たりの表面積が大きくなることは良く知られている。このスケール効果によって、マイクロリアクタでは、加熱・冷却が素早く行えること、触媒の比表面積が増えることなどの利点が生じるが、逆に、加熱を必要とする場合、熱逸散が大きくなり、熱効率が下がるという欠点も生じる。マイクロ燃料改質器では、熱効率は最も重要な性能の 1 つであるので、断熱が必須である。我々は、断熱を実現するために、自己支持膜構造を有するマイクロ燃料改質器を提案している。

図2にマイクロ燃料改質器の構造を示す。自己支持薄膜の裏表に改質反応器と触媒燃焼器とが形成されている。自己支持膜上で改質反応・触媒燃焼を行うことによって、反応部を周囲から断熱し、その熱容量を減らし、さらに両反応器間の熱抵抗を下げる事ができる。自己支持膜の周囲は酸化シリコン膜で周囲と継っており、中央部は熱伝導率の高いシリコンの均熱板を有している。この均熱板は、自己支持膜上に形成された点火用マイクロヒータ兼温度センサの断線を防ぐ役割を果たしている。

幅 300 μm 、長さ約 7 mm の流路を 300 $^{\circ}\text{C}$ に加熱するのに必要な電力は 0.64 W と少なく、流路の 1 本をマイクロヒータによって 300 $^{\circ}\text{C}$ 加熱したとき、流路周囲の基板の温度はおおよそ室温であり、自己支持膜構造による断熱効果が確認された。このマイクロ燃料改質器を用いて、メタノールの水蒸気改質と水素の自立触媒燃焼とを確認した。メタノール水溶液（メタノール／水モル比 1）を、5 $\mu\text{l}/\text{min}$ で供給したとき、現状では、改質ガス中の水素の濃度は 24 % と低く、これはメタノールの転化率にして 19 % に相当する。変換効率は約 6 %、水素発生速度は 200 mW 相当である。

4. マイクロエゼクタ⁽²⁾とマイクロ燃焼器⁽³⁾

マイクロエゼクタは図1に示したシステムにおいて、マイクロポンプを廃するのにも必須の要素である。エゼクタは、一次流体噴流の慣性による負圧と粘性による引きずり効果とによって、二次流体を吸引する装置であり、バーナのノズルやチャンバの排気を利用して利用されている。我々のシステムでは、一次流体はガス化した液化ガス、二次流体は空気である。液化ガスは自らの蒸気圧によって、ノズルから噴出する。燃料として最も有望なイソブタンは、室温で 2.5 kg/cm^2 （ゲージ圧）の蒸気圧を有し、完全燃焼には自らの 31 倍の空気を必要とする。

図3にマイクロエゼクタの構造を示す。ノズルは超音速流を作り出すラバルノズル（幅約 30 μm ×深さ約 15 μm ）である。このマイクロエゼクタを用いて、イソブタンの 31.2 倍の空気を吸入することに成功したが、空気吸入量は出口圧力が増えると急激に減少するので、燃焼器は低圧損でなくてはならない。

マイクロ燃焼器は、シリコン基板に 14 mm×8 mm×深さ 0.15 mm の燃焼室を結晶異方性ウエットエッチングし、それにガスポートを形成したパイレックスガラスを陽極接合しただけの単純な構造である。触媒は白金担持チタニアまたはアルミナであり、ゾルをガスポートから燃焼室に注入後、酸化・還元を行って固定した。

このマイクロ燃焼器を用いて、ブタンの自立燃焼を確認した。ブタンの流量を絞ると、発熱量を熱逸散量が上回り、失火するが、失火時の出力は、ブタンが完全燃焼したとして、5 W に相当する。また、ブタン 4 sccm、当量比 1 の場合、ガスクロマトグラフィによって排気ガスから CO などの不完全燃焼生成物は確認されなかった。しかし、赤外線イメージャによる観察から、高温部がガス入口にできており、温度分布を制御することが 1 つの課題である。また、マイクロエゼクタの制約から圧損を数十 Pa 以下にしなくてはならないが、現状では、10 W の燃焼時にその 1 桁大きい圧損があり、さらなる低圧損化が必要である。

5. おわりに

ブタン、プロパンなどの液化ガスを燃料に用いる新しいマイクロ燃料電池／燃料改質器システムを提案した。液化ガスの蒸気圧を有効利用することによって、空気や水をマ

イクロポンプなしにマイクロ燃料改質器に供給することが可能になると期待できる。これは、補機の小電力化、システムの単純化に重要である。本研究では、液化ガスの噴流を用いて空気を吸入するマイクロエゼクタ、断熱のための自己支持膜構造を有する燃焼器付きマイクロ燃料改質器、マイクロ燃焼器を試作し、基本動作を確認した。

本研究の一部は NEDO の支援を受けて実施した。

参考文献

- (1) Kuei-Sung Chang *et al.*, 電学論, 123-E, 9 (2003), 346-350.
- (2) D. Sato *et al.*, Proc. 20th Sensor Symposium, (2003), 359-364.
- (3) K. Yoshida *et al.*, Proc. 20th Sensor Symposium, (2003), 365-370.

Fig. 1 Configuration of the miniature fuel cell/fuel reformer system

Fig. 2 Structure of the micro-fuel reformer

Fig. 3 Structure of the prototyped micro-ejector