

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 2 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25289078

研究課題名(和文) 定置型燃料電池システム用水素化ホウ素ナトリウムを燃料とする水素生成装置の開発

研究課題名(英文) Development of Hydrogen Reactor Fueled by Sodium Borohydride for Stationary Fuel Cell Systems

研究代表者

星 伸一 (HOSHI, Nobukazu)

東京理科大学・理工学部・教授

研究者番号：70292480

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：3 kWの定置用燃料電池に、水素化ホウ素ナトリウムの加水分解反応により水素を供給する生成装置を開発し、水素生成装置のモデルを導出し、そのモデルを使用して水素圧制御器を設計し、有効性を実機により確認した。また、粉体水素化ホウ素ナトリウムの水溶液を作るための燃料フィードユニット、複数の低電圧大電流入力昇圧電力変換回路、を提案し、シミュレーションや実験により評価を行った。また、それらを組み合わせた検証実験も行った。

研究成果の概要(英文)：A hydrogen reactor fueled by sodium borohydride to generate hydrogen, which is the fuel of a 3 kW fuel cell stack, was proposed and developed. In addition, a model of the reactor was derived and the PI controller for the hydrogen pressure was designed using the model. Moreover, a fuel feeding unit, which generates aqueous solution of sodium borohydride and feeds the solution to the reactor, was developed. Several boost converters with low voltage and large current input were developed and verified through simulations and experiments. Verification of the system which consists of these components was also conducted.

研究分野：パワーエレクトロニクス

キーワード：燃料電池 水素 新エネルギー 再生可能エネルギー パワーエレクトロニクス 水素化ホウ素ナトリウム 無機ハイドライド 電力変換回路

1. 研究開始当初の背景

水素の貯蔵方法の一つに燃料電池自動車
で主流となっている高圧水素ポンプを用いた
方法などがある。しかし、現在主に使用さ
れている高圧水素ポンプは非常に高価であ
り、高圧ガスを扱うため安全に留意する必
要もある。また、定置用燃料電池では、都
市ガスを改質し、水素を取り出し、燃料電
池の燃料とする方法があるが、改質時に二
酸化炭素が発生してしまうなどの問題があ
る。

研究代表者らは、科学研究費補助金基盤研
究 (B: 21360137) の助成を受けて「水素
タンクレス軽型燃料電池自動車の開発」と
して、水素化ホウ素ナトリウム (NaBH_4)
を燃料とする水素生成装置を提案・開発し、
軽型燃料電池電気自動車を製作し、実車
を用いて実証試験を行った。その研究で
得られた成果を学会等で発表した際に、
提案システムが定置用途に適するのでは
ないかとの多くのコメントが寄せられた
ことから、定置用途に関する本研究の着
想に至った。

2. 研究の目的

本研究の目的は、図 1 に示すようなユニ
ットハウスにおいて電化製品に電力を供給
するための電源システムとして、 NaBH_4 の加
水分解により発生した水素を使用して燃料
電池により発電を行うシステムを開発する
ことである。

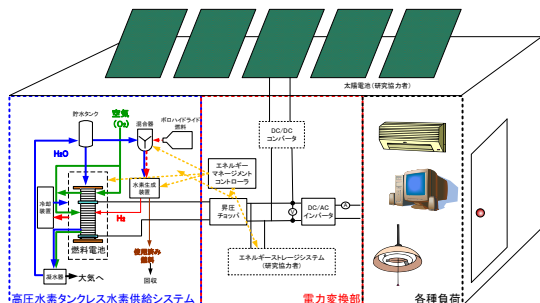


図 1 : 高圧水素タンクレス水素供給による燃料電池発電システムを備えたユニットハウス

具体的には、定置型(ユニットハウス用)水
素生成システムの開発、ユニットハウス用電
力変換システムの設計・製作、定置型シス
テムの実証試験による連続運転特性の把
握などを目的に研究を行った。

3. 研究の方法

本研究では、以下の項目について、研究
を実施した。

- (1) 定置型水素生成システムの開発
 - ① 燃料フィードユニットの開発
 - 粉体燃料を一定濃度の水溶液にする燃料フィードユニット部の試作と実験による有効性の評価

- ② 酸性促進剤の検討
 - 低温時に添加することにより、水素生成反応を促進する酸性促進剤の使用条件の検討
- ③ 水素リアクタのモデル構築と水素圧制御法の検討
 - より高度な水素圧制御制御法を構築するための水素リアクタ内部における現象のモデル化と、そのモデルを用いた水素圧制御法の検討
- ④ 新方式リアクタの検討
 - 触媒の固定方法などを変更したリアクタの試作とその評価

- (2) 定置型燃料電池システムの構築
 - ユニットハウス用電源の電力システム用途の要求仕様を満たす 3kW の燃料電池スタックを用いた発電システムの構築
- (3) ユニットハウス用電力変換システム

上記 (2) の燃料電池スタックの出力が、
低電圧・大電流であるため、家電製品に
電力を供給するには、およそ 10 倍の昇
圧比を持つ昇圧コンバータが必要であ
る。また、燃料電池は、出力が変動する
ことにより劣化が促進される。このため、
燃料電池スタックに接続される昇圧コ
ンバータは、入力電流リップル(脈動)が
低いことが求められる。本研究では、こ
の仕様を満足する様々なタイプの昇圧
コンバータを提案し、シミュレーション
及び実験により評価を行った。

- ① 絶縁型 SEPIC コンバータ方式
 - 図 2 に回路図を示す。入力をイン
ターリーブ化することにより、入力
電流リップルを抑制している。また、
出力を直列に接続することで、高昇
圧比を実現している。

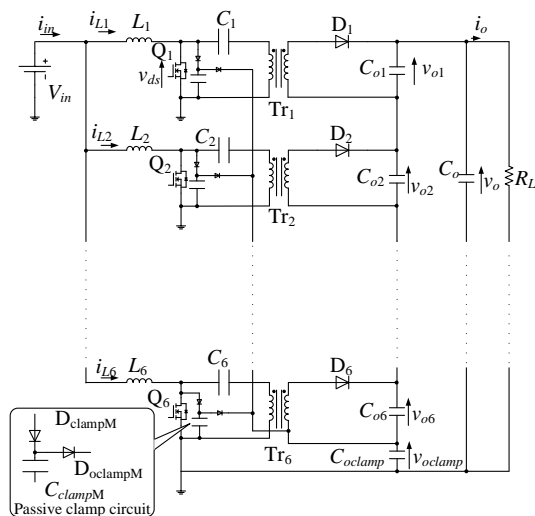


図 2 : 絶縁型 SEPIC コンバータ方式昇圧回路

② インターリーブ結合インダクタ方式

図3に回路図を示す。この回路では、結合インダクタを用いることで高昇圧比を実現し、入力をインターリーブ化することで、入力電流のリプル低減を図るものである。

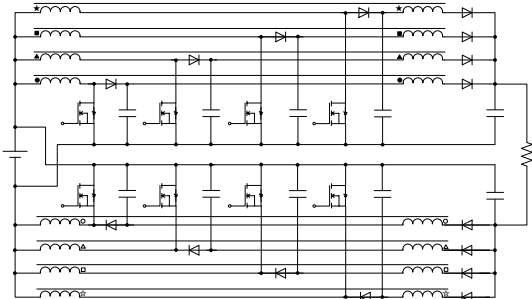


図3：インターリーブ結合インダクタ方式2重デュアルブーストコンバータ

③ 多段方式

一般的な昇圧チョッパをインターリーブ化し、それを縦続接続接続することで高昇圧比と低入力電流リプルを実現する。段数や入力の並列数を検討し、図4の入力8相（並列）3段構成の回路を提案しシミュレーションにより検討した。

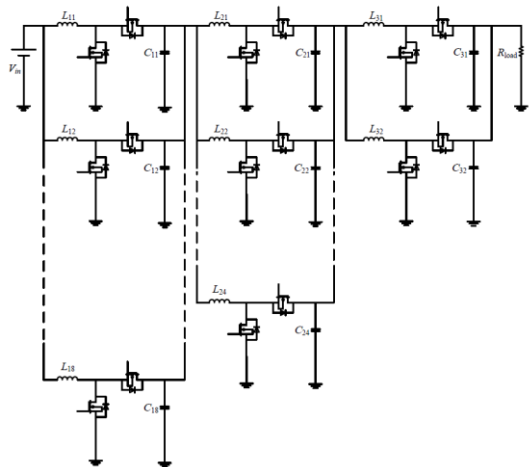


図4：多段方式昇圧回路

(4) 定置型システムの実証試験による基本性能の確認

(1) ~ (3) の装置を組み合わせで発電試験を行った。

4. 研究成果

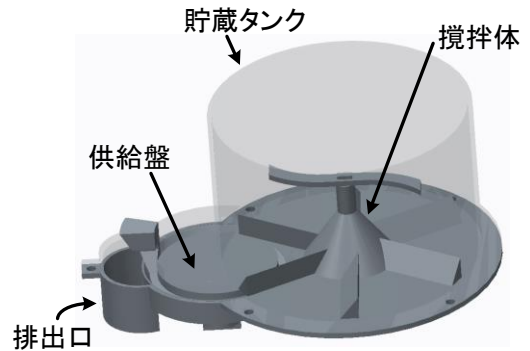
以下に各項目で得られた成果の概要を示す。

(1) 定置型水素生成システムの開発

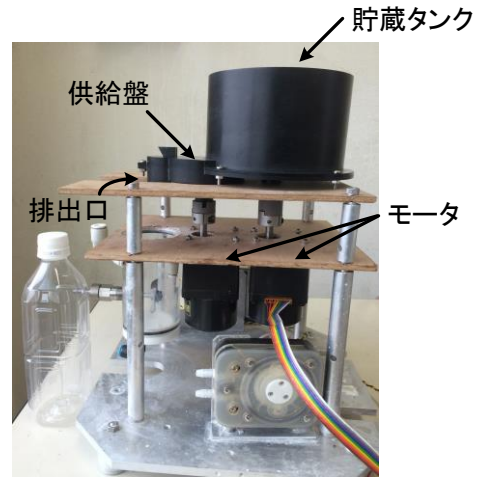
① 燃料フィードユニットの開発

本研究以前に開発した燃料フィードユニットは、バッチ式であったため、水溶液量が低下したらバッチ

処理動作を行っており、濃度均一になるまで時間を要する等の問題があった。本研究では、図5に示す2軸型テーブルフィード方式を採用したフィードユニットを新たに開発した。また、実験により供給盤の回転数を変化させることで、燃料排出量を調整できることを確認した。



(a) 構造



(b) 試作機の外観

図5：2軸型テーブルフィード方式燃料フィードユニット

② 酸性促進剤の検討

本研究で開発した水素リアクタ（0.5 mm 径ラネーニッケル触媒 250 g 使用）における酸性促進剤の適切な使用温度範囲は、実験の結果 70°C 未満であることが明らかになった。また、水素リアクタ内の温度が 70°C 未満の場合には、NaBH₄ 溶液の供給量に連動して酸性促進剤の供給量を決定し制御することで、燃料電池で安定して発電出来ることが確認できた。

③ 水素リアクタのモデル構築と水素圧制御法の検討

触媒の粒径等も考慮した水素リアクタモデルを構築し、水素リアクタの水素圧力を燃料電池スタック

の許容圧力範囲内に制御するためのPIコントローラを設計し、実機を用いて有効性を検証し、従来のオンオフ制御に比べて、水素圧力変動が抑制できることを示した(図6参照)

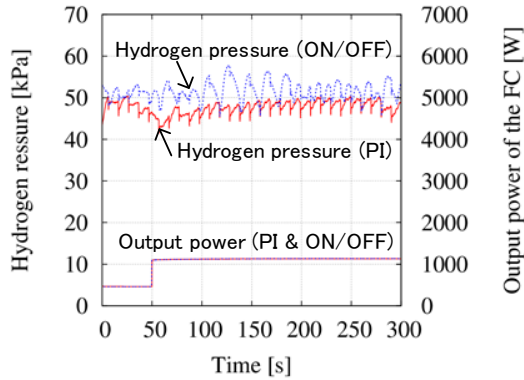


図6：提案水素圧制御の水素圧変動抑制効果

④ 新方式リアクタの検討

図7に本研究で検討した新リアクタの外観を示す。新リアクタでは、円盤部分に網を張り、その網と網の間に触媒を挟み込む構造になっている。NaBH₄水溶液は底面から注入し、網に挟まれた触媒を通過する際に水素生成反応が生じるものである。検証実験の結果、水素生成速度は、これまでのリアクタとは比べものにならないほど低く、反応率も低いものとなった(表1参照)。



図7：新方式リアクタ

表1：リアクタの性能比較

	新方式	従来方式
触媒投入方式	触媒層方式	浮遊方式
最高水素生成速度	11.4 L/min	100 L/min
反応率	63%	99%以上
質量	13.2 kg	30 kg
高さ	16 cm	50 m

(2) 定置型燃料電池システムの構築

3kWの燃料電池スタックを用いた発電システムを構築した。使用した燃料電池スタックの出力特性を図8に示す。

提案システムでは、燃料電池スタックの発電時に生成される水を、水素生成時に利用することで、エネルギー密度を向上させることを提案している。本研究で用いた燃料電池スタックで検証を行ったところ、1500Wの発電時に38%の水しか回収できなかった。50%以上の水回収が求められるため、復水器の能力を上げるなどの必要があることが明らかになった。

その後、後述の(4)で行った15分間の連続運転の実験では、76%の水が回収できた。

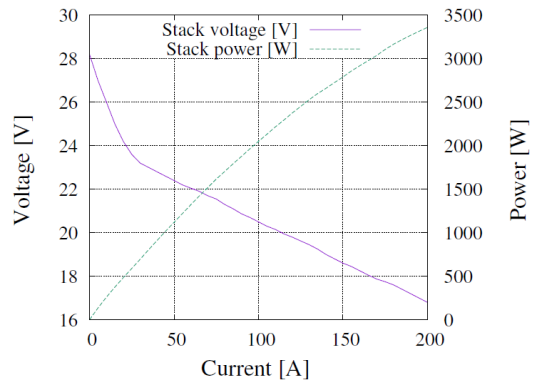


図8：燃料電池スタックの出力特性

(3) ユニットハウス用電力変換システム

① 絶縁型 SEPIC コンバータ方式

1500Wまでの実験で、入力電流リップル率が1.5%以下で、10倍の昇圧比が得られることが確認できた。ただし、1500Wの発電時の効率が75%程度となってしまう、これ以上大きな電力での実験が行えなかった。効率の改善が今後の課題である。

なお、この方式では、回路構成上、各相の入力電流の直流成分が等しくなるため制御が容易になるメリットを有する。

② インターリーブ結合インダクタ方式

この方式については、2相分の基本回路を用いて、実機検証を行った。また、ダイオード等に電圧サージが発生したため、その抑制策を含めた3方式を提案した。

実機検証結果、10倍以上の昇圧比が得られることが確認できた。ただし、入力電流のリップル率は、24%程度となってしまう、①の方式に比べて悪くなってしまった。また、効率については、1500W相当(2相分では375W)の出力で比較すると、ど

の方式も 85 %以上の効率が得られていることが分かる (図 9 参照)。

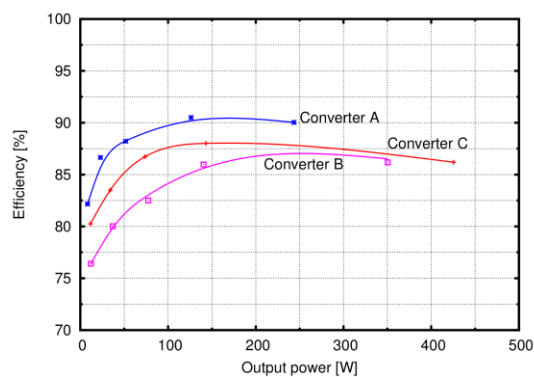


図 9 : インターリーブ結合インダクタ方式昇圧コンバータの効率特性

③ 多段方式

この方式については、より小型高効率な昇圧回路の開発のため、研究期間終了直前に検討を始めたものである。シミュレーションではあるが、入力電流リップルを極めて低くできる可能性があることが明らかになった。

(4) 定置型システムの実証試験による基本性能の確認

上記(1)～(3)を組み合わせた図 10 のシステムを用いて、平均出力電力が 300 W 程度であるが、15 分間の連続運転試験を行った。なお、昇圧部分の回路については、(3)–①の回路を用いた。

この実験では、燃料投入から出力までの効率は、40.9 % (燃料電池 51 %, 電力変換回路 81 %) であった。また、水の回収率は、76 % であり、発電時に生成される水を水素生成反応 (加水分解) に再利用できる見通しが得られた。

15 分間の実験になった原因であるが、連続運転時に燃料電池スタックのセル電圧にアンバランスが生じ、燃料電池システムが停止してしまったためである。燃料電池セルの膜の加湿条件を変えるなどの対策により、改善の可能性がある。

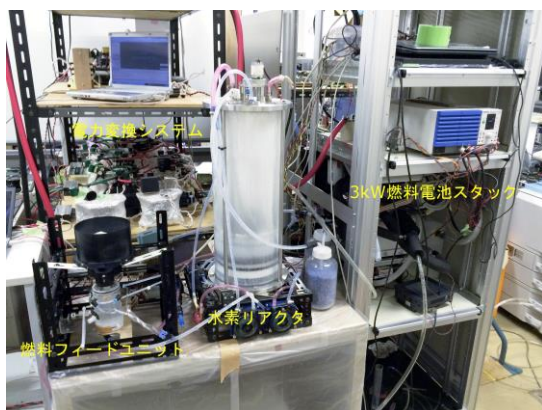


図 10 : 定置型燃料電池発電システムの外観

5. 主な発表論文等 〔雑誌論文〕(計 6 件)

- (1) Haruka Hatsuyado, Nobukazu Hoshi, ``A high boost ratio DC-DC converter for low voltage fuel cell'', *Proc. on 2014 International Conference on Renewable Energy Research and Application (ICRERA)*, 査読無, pp. 674-679, (2014-10).
DOI: 10.1109/ICRERA.2014.7016471
- (2) Haruka HATSUYADO, Nobukazu HOSHI, ``Characteristics Comparison of Interleaved Inductor-Coupled Double Boost Converters'', *Proceedings of the 17th European Conference on Power Electronics and Applications*, 査読無, pp. 1-9, USB, (2015-9).
DOI: 10.1109/EPE.2015.7311671
- (3) Keisuke TOMODA, Yuto AISAHA, Taishi FUKUZAWA, Nobukazu HOSHI, Noboru KATAYAMA, Atsuhiko YOSHIZAKI, Keiichi HIRATA, ``Verification of Control Method of Multiple Power Converter to Stabilize Hydrogen Supply from Reactor Fueled by Sodium Tetrahydroborate'', *Proc. on IEEE Energy Conversion Congress & Expo (ECCE) 2015*, 査読無, pp. 1327-1332, USB, (2015-9).
DOI: 10.1109/ECCE.2015.7309846
- (4) Keisuke Tomoda, Taishi Fukuzawa, Nobukazu Hoshi, Noboru Katayama, Atsuhiko Yoshizaki, Keiichi Hirata, ``A Hydrogen Pressure Control Scheme Based on Experimentally-Derived Simulation Model for Hydrogen Generation System'', *ECS Trans.*, 査読有, Vol. 71, No. 1, pp. 47-53, (2016-2).
DOI: 10.1149/07101.0047ecst
- (5) Ryo Funakawa, Taishi Fukuzawa, Keisuke Tomoda, Nobukazu Hoshi, Noboru Katayama, Atsuhiko Yoshizaki, Keiichi Hirata, ``Verification of Appropriate Temperature Range of Acid Accelerant in Hydrogen Generation System from NaBH_4 '', *ECS Trans.*, 査読有, Vol. 71, No. 1, pp. 99-105, (2016-2).
DOI: 10.1149/07101.0099ecst
- (6) Taishi Fukuzawa, Keisuke Tomoda, Ryo Funakawa, Nobukazu Hoshi, Noboru Katayama, Atsuhiko Yoshizaki, Keiichi Hirata, ``Consideration on Acid Accelerator Oriented to Reproduction of Sodium Borohydride from By-Product'', *ECS Trans.*, 査読有, Vol. 71, No. 1, pp. 123-129, (2016-2).
DOI: 10.1149/07101.0123ecst

[学会発表] (計 12 件)

- (1) 初宿春香, 谷英展, 星伸一, 春名順之介: ``高昇圧比を有する DC-DC コンバータの基礎研究'', 電気学会半導体電力変換/自動車/家電・民生合同研究会, 東京理科大学大子研修センター (茨城県・大子町) SPC-13-150/VT-13-033/HCA-13-055, (2013-12-19~20).
- (2) 舟川遼, 友田圭祐, 星伸一, 春名順之介, 吉崎敦浩, 平田敬: ``希塩酸の添加による水素化ホウ素ナトリウムの水素生成速度改善のフラスコを用いた実験的検証'', 平成 26 年電気学会全国大会, 愛媛大学城北キャンパス (愛媛県・松山市), pp. 4-358-359, (2014-3-18~20).
- (3) 初宿春香, 星伸一: ``結合インダクタを用いた高昇圧比を有する燃料電池向け DC-DC コンバータ'', 平成 26 年電気学会産業応用部門大会, 東京電機大学東京千住キャンパス (東京都・足立区), p. Y-22, (2014-8-24~26).
- (4) 谷英展, 星伸一, 片山昇: ``低電圧大電流出力の燃料電池向けの電力変換回路の基礎実験'', 平成 26 年電気学会産業応用部門大会, 東京電機大学東京千住キャンパス (東京都・足立区), p. Y-31, (2014-8-24~26).
- (5) 初宿春香, 星伸一: ``燃料電池向けの結合インダクタを用いた DC-DC コンバータのインターリーブ数の入力電流リップル低減効果に関する一考察'', 電力技術/電力系統/半導体電力変換合同研究会, 宮古市中央公民館 (沖縄県・宮古市), PE-15-47/PSE-15-69/SPC-15-100, (2015-2-19~20).
- (6) 谷英展, 早野聡一郎, 片山昇, 星伸一: ``低電圧大電流出力の燃料電池を電源とした多相絶縁型 SEPIC コンバータの実験検証'', 電力技術/電力系統/半導体電力変換合同研究会, 宮古市中央公民館 (沖縄県・宮古市), PE-15-48/PSE-15-70/SPC-15-101, (2015-2-19~20).
- (7) 福澤泰志, 友田圭祐, 舟川遼, 星伸一, 吉崎敦浩, 平田敬一: ``粉体水素化ホウ素ナトリウムを燃料とする水素生成装置用燃料フィードユニットの開発'', 平成 27 年電気学会全国大会, 東京都市大学世田谷キャンパス (東京都・世田谷区), Vol. 4, pp. 343-344, (2015-3-24~26).
- (8) 友田圭祐, 福澤泰志, 星伸一, 片山昇, 内田晃介, 吉崎敦浩, 平田敬一: ``水素化ホウ素ナトリウムを用いたオンサイト水素供給システムのモデル構築'', 平成 27 年電気学会産業応用部門大会, 大分大学旦野原キャンパス (大分県・大分市), Vol. 4, pp. 135-138,

(2015-9-2~4).

- (9) 早野聡一郎, 渡邊至, 星伸一, 片山昇: ``六相 SEPIC コンバータの出力電圧フィードバック制御'', 平成 27 年電気学会産業応用部門大会, 大分大学旦野原キャンパス (大分県・大分市), p. Y-39, (2015-9-2~4).
- (10) 渡邊至, 早野聡一郎, 星伸一, 片山昇: ``燃料電池システムにおける水回収率の検討'', 平成 27 年電気学会産業応用部門大会, 大分大学旦野原キャンパス (大分県・大分市), p. Y-62, (2015-9-2~4).
- (11) 福澤泰志, 友田圭祐, 星伸一: ``粉体水素化ホウ素ナトリウムを燃料とする水素生成器の始動時間短縮の検討'', 平成 27 年電気学会産業応用部門大会, 大分大学旦野原キャンパス (大分県・大分市), p. Y-131, (2015-9-2~4).
- (12) 友田圭祐, 福澤泰志, 星伸一, 片山昇, 内田晃介: ``NaBH₄ を水素源とする水素供給システムの反応場の温度変化を考慮した水素圧制御法'', 電気学会半導体電力変換/家電・民生/自動車合同研究会, アオーレ長岡 (新潟県・長岡市), SPC-15-199/HCA-15-068/VT-15-039, (2015-12-17~18).

[その他]

- (1) 受賞
 - ① 平成 26 年電気学会産業応用部門大会ヤングエンジニアポスターコンペティション優秀発表賞・IEEE IAS Japan chapter 2014 Young Engineer Competition Award

6. 研究組織

(1) 研究代表者

星伸一 (HOSHI, Nobukazu)
東京理科大学・理工学部・准教授
研究者番号: 70292480

(2) 連携研究者

春名 順之介 (HARUNA, Junnosuke)
東京理科大学・理工学部・助教
研究者番号: 40609369

(3) 連携研究者

片山昇 (KATAYAMA, Noboru)
東京理科大学・理工学部・助教
研究者番号: 00609373

(4) 連携研究者

内田晃介 (UCHIDA, Kosuke)
東京理科大学・理工学部・助教
研究者番号: 00759558