

氏名 かわかみよしあき
 川上理亮
 授与学位 博士(工学)
 学位授与年月日 平成23年3月25日
 学位授与の根拠法規 学位規則第4条第1項
 研究科, 専攻の名称 東北大学大学院工学研究科(博士課程)化学工学専攻
 学位論文題目 建築設備用の水素吸蔵合金タンクに関する研究
 指導教員 東北大学教授 三浦 隆利
 論文審査委員 主査 東北大学教授 三浦 隆利 東北大学教授 今野 幹男
 東北大学教授 塚田 隆夫 東北大学准教授 青木 秀之

論文内容要旨

第1章 緒論

民生用建築物において、エネルギーの有効利用と安定供給を確保する方法の一つとして、水素利用システム (Fig. 1) が提案されている。これは、水の電気分解による水素製造、水素吸蔵合金 (以下、合金) による水素貯蔵、燃料電池発電および各機器からの排熱を同時有効利用するエネルギーの変換/貯蔵/利用システムであり、建築物全体の賄う大規模な電力負荷平準化や非常時対応としての役割を想定している。本システムにおいて、水素を貯蔵する合金を充填した合金タンクは、水素貯蔵/供給/熱供給の全てのプロセスに関わるため、その性能はシステム効率全般に大きく影響し極めて重要な設備である。

合金は、粉末状に粉碎しタンク内に充填して利用するが、水素吸蔵によって合金粒子は 10-25%体積膨張するため、充填層内に応力が発現し、タンク構造物の変形・破損を招くことが問題視されている。これは合金の膨張だけでなく微粉化にともなう充填層状態の変化が影響することが推測されているものの、詳細な検討例は皆無である。また、合金充填層は有効熱伝導率が非常に小さいうえに、吸放出特性が温度に依存するため、反応熱を除去する熱交換と、充填層内部への水素拡散を行う水素流動の仕組みが不可欠である。しかしながら本対象のような大型合金タンクの充填層における挙動の研究例は僅少である。したがって、合金の特長を生かしたコンパクトで安全かつ効率的なシステムを実現するためには、複雑な挙動を示す合金充填層の応力発現機構と熱・水素移動現象の両者を把握したうえで、用途に即したタンク構造の最適化設計と高効率運用を行う必要がある。

本研究では、建築設備用の水素利用シ

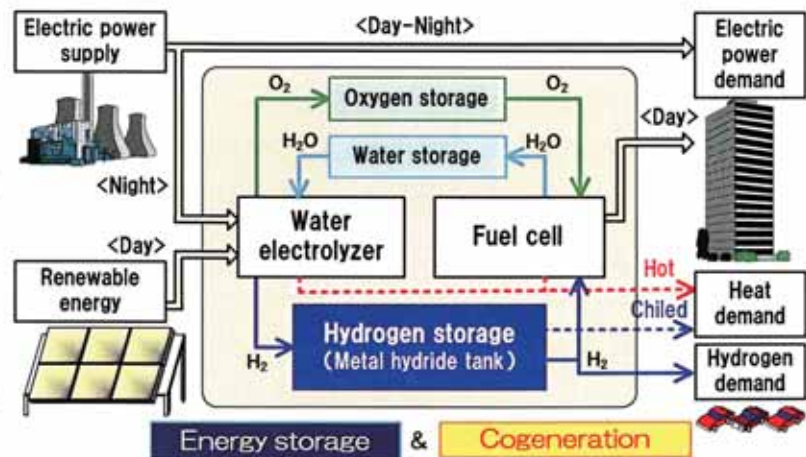


Fig. 1 Hydrogen energy utilization system

システムにおける中核設備である合金タンクの実用化に向けた設計技術の構築を目的として、合金タンク内部における合金充填層の応力発現機構の実験的検討（第2章）および合金充填層の熱・水素移動現象の解析（第3章）を行い、これらで得た知見を基に建築設備用途としての高効率運用が実現できる合金タンクの最適設計手法（第4章）、さらに建物のエネルギー需要に即したシステム運用のための高効率な合金タンク群の運転制御方法（第5章）に関する検討を行った。

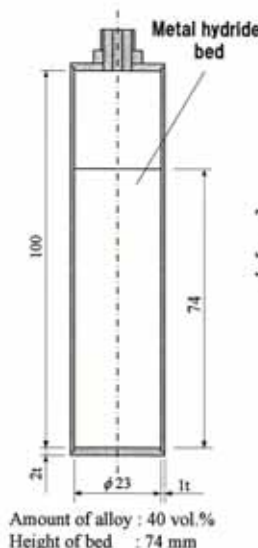


Fig. 2 Schematic diagram of reaction vessel

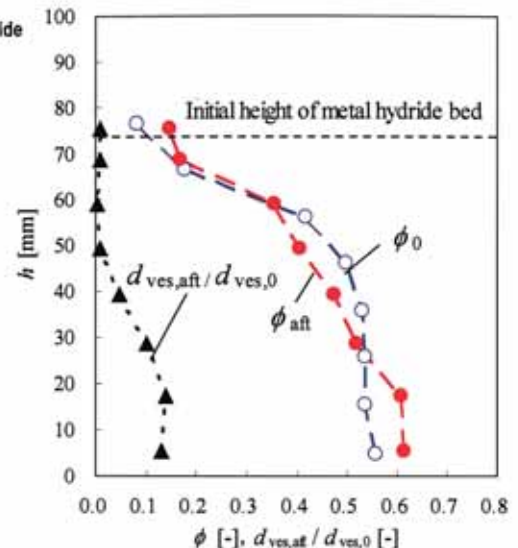


Fig. 3 Change of ϕ and $d_{ves,af}/d_{ves,0}$ by H₂ ab-/desorption cycle

第2章 水素吸蔵合金の膨張にともなう応力発現機構の実験的検討

Fig.2 のような小型合金充填容器内の局所的な合金充填状態を実測し、合金の水素吸放出にともなう充填層内の粒子挙動と応力発現プロセスを検討した。Fig. 3 に示す繰り返し水素吸放出前後の合金充填層内の局所充填率分布の測定結果から、水素吸放出で微粉化した微粒子がタンク下部に沈降し、局所充填率 $\phi=0.6$ でほぼ一定で最大値を示す高さ（最大充填部高さ）が形成されることがわかった。そして、この最大充填部高さでは、膨張にともなう応力が直接的に外部に伝達されることから、タンクに応力を発現させる主要因であることが明らかとなった。以上の結果から、合金充填層の応力発現機構を把握し、合金タンクの耐圧設計指針を示した。

第3章 水素吸蔵合金タンクの熱・水素移動解析

第2章で把握した合金充填層状態を考慮し、定置用大型合金タンク単体の内部の構造物配置を考慮した簡便な熱・水素移動モデルを構築した。5 kW 級の水素利用システム実証設備に実装された合金充填量 210 kg の合金タンク（Fig.4, Table 1）を用いた実証実験を行い、例えば Fig. 5 の合金タンクの水素放出運転結果から、本モデルの妥当性を確認した。また、例えば Fig. 6 のように、大型の合金タンクであるがゆえに水素吸蔵/放出運転時にタンク内部に圧力・温度分布に起因する大きな水素吸蔵率分布が発生することがわかった。以上の結果から、合金充填層の熱・水素移動現象を把握するとともに、本モデルが合金タンクおよび水素利用システムの設計技術となりうることを示した。

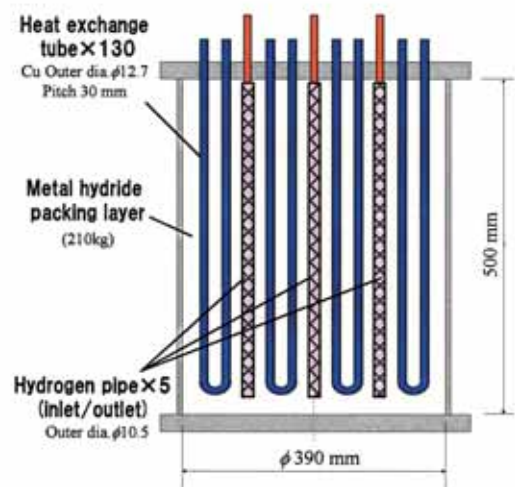


Fig. 4 Structure of the metal hydride tank

Table 1 Basic properties of metal hydride tank

Tank configuration (SUS304)	Inner dia. $\phi 390 \times 500$ H Shell & tube heat exchanger structure (no fins)
Metal hydride	MH1 210kg (Initial packing ratio 45%)
Heat exchange tube (Cu)	Outer dia. $\phi 12.7 \times 130$ pcs. Pitch 30mm Heat transfer area 2.48m ² (Outside surface)
Hydrogen pipe (Sintered metal filter)	Outer dia. $\phi 10.5 \times 5$ pcs.

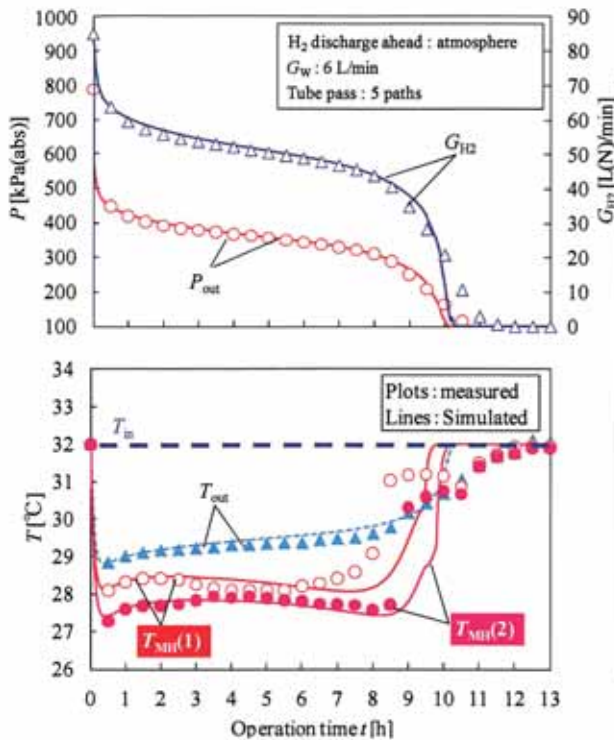


Fig. 5 Results of H_2 desorption operation

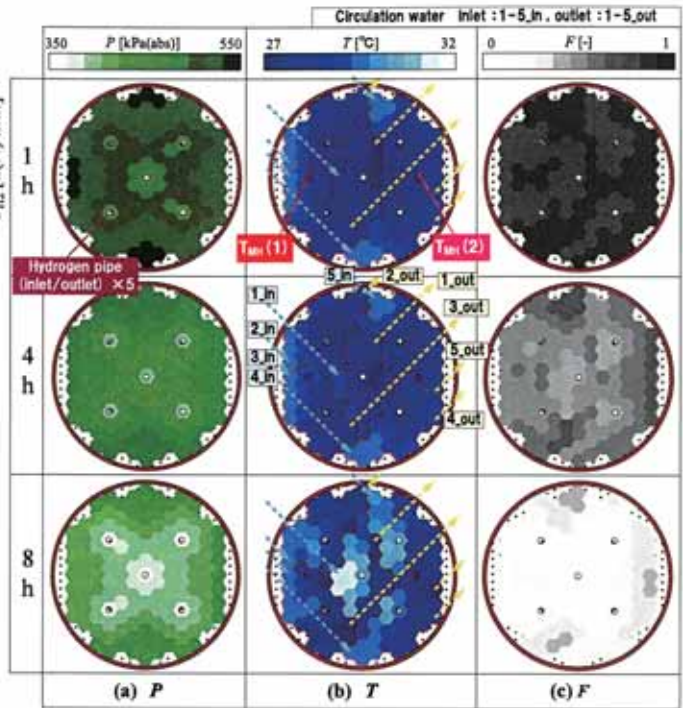


Fig. 6 P - T - F distribution in the tank (H_2 desorption operation)

第4章 水素吸蔵合金タンクの最適設計手法の検討

建築設備用水素利用システムのモデルケースとして夜間電力による電力負荷平準化で運用した場合を対象に、需給側から要求される水素の吸蔵/放出能力を満足し、かつ合金の吸蔵能力および冷熱利用効率が同時に高効率を達成できるシステムの制約条件と合金タンクの設計因子を抽出した。そして、第3章の合金タンク内部の熱・水素移動モデルを活用し、Fig.7のような合金タンク内部構造物の基本構造パターンを対象に、本システムの運転成立条件を満足できる各設計因子の影響を検討した。その結果から Fig.8のように抽出した設計因子の範囲を定量化し、合金タンクの水素貯蔵密度が最大になるように最適化させることで、水素、合金および熱を同時に有効利用できる合金タンクの構造条件と運転条件の最適化が可能であることを示した。さらに本手法に基づき設計・製作した合金タンクの実験検証の結果から、汎用的な合金を用いた場合でも水素の体積貯蔵密度の国際的な目標値を達成できることを示した。以上の結果から、本システムにおいて高効率運用が実現できる合金タンクの最適設計手法を示した。

第5章 水素吸蔵合金タンク群の高効率運用方法の検討

第3章の合金タンク単体の熱・水素移動モデルを拡張した合金タンク群の運転モデルを構築し、想定した発電負荷に対応する燃料電池運転を対象とした実証実験によってモデルの妥当性を確認した。そし

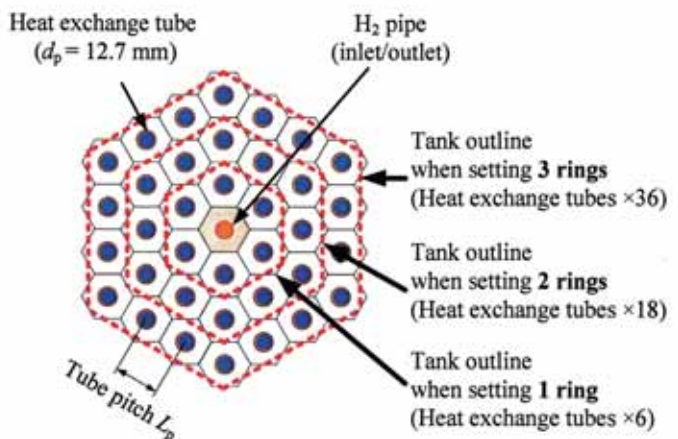


Fig. 7 Examination model for optimal placement of structure units in tank

て、合金タンク群の運転制御方法が運転成立性や冷熱供給特性、および運用利便性に与える影響を検討した。提案した運転制御方式による実験と解析により、循環水を合金タンクに対して直列に供給し、かつ合金タンクの台数運転を行う方法（C-S方式, Fig. 9）の場合、他の方式と比較して反応冷熱の回収効率を向上できることを明らかにした。さらに、低負荷の場合は Fig. 10 のように使用するタンク数を抑制でき、合金タンク群の運用の利便性を高められることを示した。以上の結果から、建物のエネルギー需要に即して最も効率よくシステムを運用できる合金タンク群の運転制御方法を示した。

第6章 結論

以上の結果から、建築設備用の水素利用システムにおける合金タンクの最適設計/運用手法の指針を得ることができた。

【記号】 d : diameter [mm], F : hydrogen absorbing fraction (H/M) [-], ΔF_{use} : repeatedly useable hydrogen absorbing fraction [-], G : flow rate [L(N)/min], h : height [mm], L_p : pitch of heat exchanger tube [mm], P : pressure [kPa(abs)], T : temperature [°C], t : time [h], X : load ratio of fuel cell [-], ϕ : packing ratio of metal hydride bed [-], Subscript : aft : 25 cycle after, C : control, H₂ : hydrogen gas, in : inlet, MH : metal hydride, out : outlet, p : heat exchanger tube, ves : vessel, w : circulation water, 0 : initial

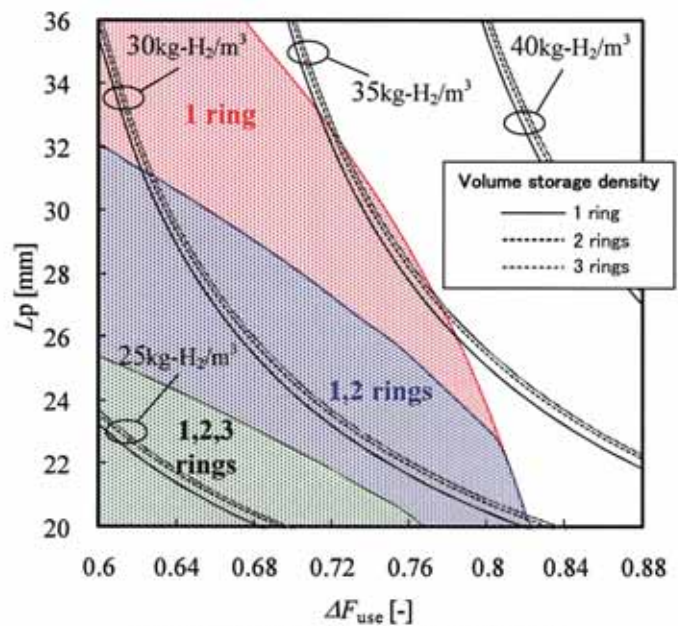


Fig. 8 Optimization of metal hydride tank for the system

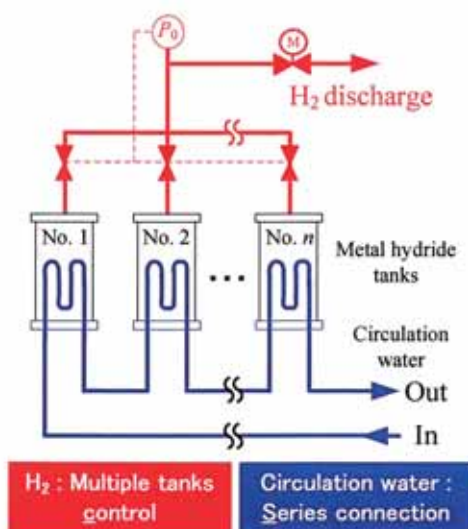


Fig. 9 Method C-S

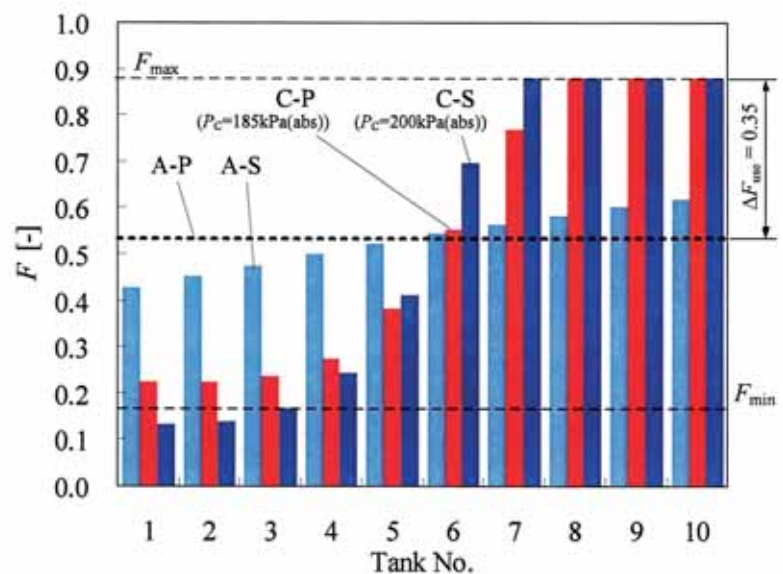


Fig. 10 H₂ remaining volume of each tank (Base load $X_{F12} = 0.5$, 10 tanks in system)

論文審査結果の要旨

建築物において、エネルギーの有効利用と安定供給を確保する方法の一つとして、水素利用システムが提案されている。そのシステムには、水素貯蔵設備が組み込まれ、高体積貯蔵密度と安全性に優れた水素吸蔵合金（以下、合金）が利用される。合金は水素吸蔵による自身の体積膨張に起因するタンク構造物の変形・破損が問題視されている。また、合金の充填層には水素吸蔵／放出にともなう反応熱を円滑に除去する熱交換と、充填層内部への水素拡散を行う水素流動との両方の機能が不可欠である。本論文は、水素利用システムの構築を目的として、合金タンクの実用化設計技術の確立を目的として、合金充填層の応力発現機構および熱・水素移動現象を把握し、これらの知見をもとに建築設備用途としての高効率運用が実現できる合金タンクの最適設計手法、さらに建物のエネルギー需要に即した合金タンク群の高効率運転制御方法を検討したものである。

論文は全6章で構成されている。

第1章は総論であり、本研究の背景および目的を述べている。

第2章では、合金タンク内の局所的な合金充填状態を凍結法で固定し、CT スキャンを用いて充填密度を実測し、合金の水素吸放出にともなう充填層内の粒子挙動と応力発現機構を把握することで、合金タンクの耐圧設計指針を示した。

第3章では、定置用大型合金タンク単体の熱・水素移動モデルを構築した。水素吸蔵／放出反応によってタンク内部に圧力・温度分布に起因する大きな水素吸蔵率分布が発生することを示し、合金充填層の熱・水素移動現象の機構を解明すると共に、本モデルが合金タンクの設計技術となり得ることを示した。

第4章では、建築設備用の水素利用システムの制約条件と合金タンクの設計因子を抽出し、第3章の合金タンク内部の熱・水素移動モデルを活用することで、高効率運用が実現できることを明白にし、合金タンクの最適設計手法を示した。

第5章では、第3章のモデルを拡張した合金タンク群の運転モデルのケーススタディを行い、実用的な合金充填層の熱・水素移動現象の機構を明白にした。その結果を、建物の水素需要に応じた操業時における熱交換および水素拡散の運転に適用し、最も効率の良いシステム運用制御方式を示した。

第6章は総括であり、各章の成果をまとめている。

以上要するに本論文は、実験および数値解析によって合金充填層の応力発現機構および熱・水素移動現象を明らかにし、建築設備用途としての合金タンクの最適設計手法および運転制御方法の高効率化に関する新たな知見を与えたものであり、化学工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。