

水素の充填過渡解析

秋村 友香* 三橋 利玄**

Filling Transient Analysis of Hydrogen

Yuka Akimura* and Toshiharu Mitsuhashi**

昨今、地球温暖化対策として二酸化炭素の排出を抑制するために「クリーンエネルギー（水素や天然ガスなど公害を出さないエネルギー）」や「エネルギーの高効率利用」が注目されている。例えば水素に着目すると、水素を作り、貯蔵し、輸送し、利用するさまざまな技術が開発されつつある。

本稿では、管路系流体解析の視点から水素の解析に必要な基礎概念を説明し、当社で汎用的な管路系流体過渡解析ソフトウェアとして整備している Advance/FrontNet/Γ を用いた水素の充填解析の事例を紹介する。本解析では、解析条件について不確定な要素を仮定しつつも、冷却の効果を取り入れることによりタンク内圧力の測定値をよく再現することができた。

Key word: 気体管路系、過渡解析、圧縮水素、超臨界流体、充填、高圧タンク、熱伝導解析、リスク評価、コスト削減

1. 水素技術に関する国内動向

国内の水素利用の動向について以下に簡単に記す。水素利用について、経済産業省の 2008 年度エネルギー白書[2]などで議論されているように、水素社会の確立が提言されている。そこでは、クリーンエネルギーとしての水素を高度に活用するために、燃料電池の普及や水素貯蔵・発生技術などがキーワードとして挙げられている。独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構（以下 NEDO）が「水素安全利用等基盤技術開発事業（平成 15～19 年度）」、「水素社会構築共通基盤整備事業（平成 17～21 年度）」、「水素先端科学基礎研究事業（平成 18～24 年度）」、「水素貯蔵材料先端基盤研究事業（平成 19～23 年度）」、「水素製造・輸送・貯蔵システム等技術開発事業（平成 20～24 年度）」等複数年に渡り、事業を展開している[3]。

原子力関連でいえば、例えば高温ガス炉が注目されており、そこでは炉心を冷却した高温ガスを利用して水素を製造できる[4]。ガス炉は、国際的には先進国における需要だけではなく、大幅なエネルギー重要の拡大が見込まれる途上国の将来市場も視野に入れた次世代原子力システムである「第 4 世代原子力システム」の 1 つとして注目されている[5]。

水素関連技術を分類すると、「製造」「貯蔵・輸送」と「水素の利用」に分けることができる。水素の製造技術としては、水の電気分解、熱分解や、バイオ燃料からの水素製造、炭化水素で構成される天然ガス、LPG、石炭などの化石燃料の熱分解過程等の利用が挙げられる。輸送技術は、特定の大型施設などにおいてはパイプラインが整備されている。貯蔵技術は、液体水素や、圧縮水素の形態での貯蔵が開発されており、液体水素はロケットエンジン(LE-7)の燃料剤として、圧縮水素は水素ステーションとして実用化されている。本稿では、水素の貯蔵に着目した解析を行う。

2. 水素の物性概要

本章では、NIST（米国国立標準技術研究所）

*アドバンスソフト株式会社 技術第 4 部

4th Technical Division, AdvanceSoft Corporation

**アドバンスソフト株式会社 第 2 事業部

Computational Science and Engineering Division II,
AdvanceSoft Corporation

National Institute of Standards and Technology, USA)によって開発された REFPROP9.0 に従って水素の物性概要をまとめる。REFPROP は例えば書籍[6]中でも紹介されているように、研究者等の間でよく使用されている熱物性値ソフトウェアである。[7]に web 版が公開されている。

表 1 水素の基本特性

化学式	H ₂
分子量	2.016
臨界温度、圧力	33.1K, 1.26MPa
三重点	13.8K, 7.04kPa

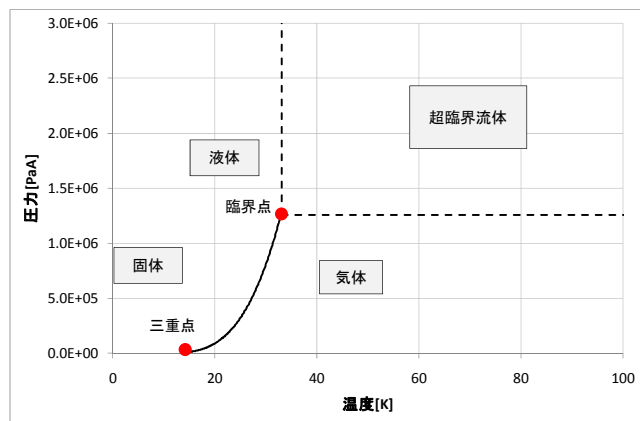


図 1 水素の相図

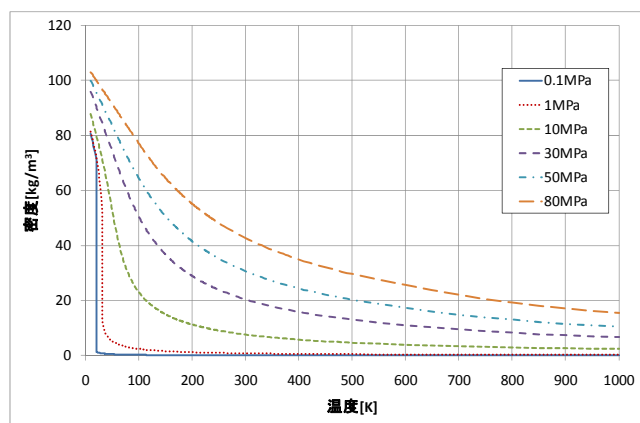


図 2 水素物性 (圧力・温度 - 密度)

表 1 に水素の基本物性をまとめた。臨界温度と圧力よりも、温度・圧力が大きい領域では水素は液でもガスでもない「超臨界」の状態をとる。三重点とは固相、液相、気相の三相が共存する点である。図 1 に水素の相図を示し、臨界点と三重点を明記

した。相図からわかるように、常温では水素は気体か超臨界の状態である。ここで固体の境界線については割愛した。

図 2、図 3、図 4 に水素の代表的な圧力に対する密度、エンタルピー、定圧比熱の温度依存性をまとめた。ここで、グラフはガス、液、超臨界のすべての状態を取りえる。密度は各圧力に対し、それぞれの温度依存性がみられる。エンタルピーは圧力依存性がほとんどみられない。定圧比熱は低温で圧力に対し異なる振る舞いを示すものの、300K 以上ではほとんど圧力依存性はみられない。

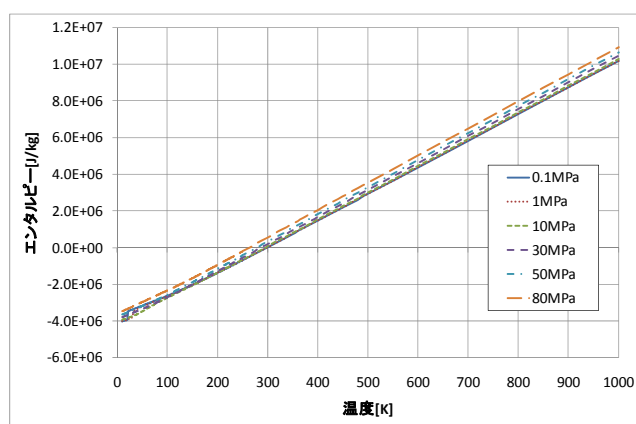


図 3 水素物性 (圧力・温度 - エンタルピー)

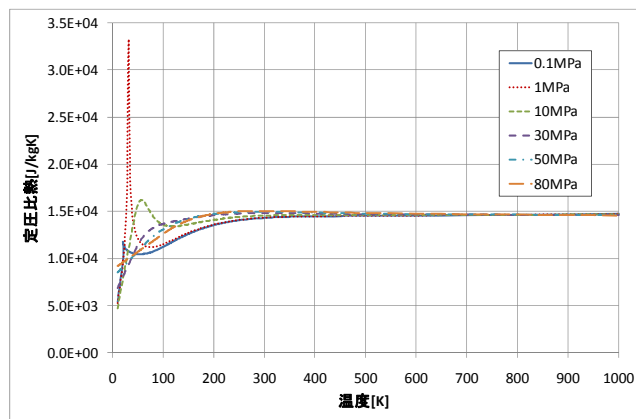


図 4 水素物性 (圧力・温度 - 定圧比熱)

次に図 5、図 6、図 7 に水素の飽和状態に対する物理量のグラフをまとめた。飽和の領域(13.8K～33.1K、1.26MPa 以下)に入ると、ガスと液の 2 相が共存する。

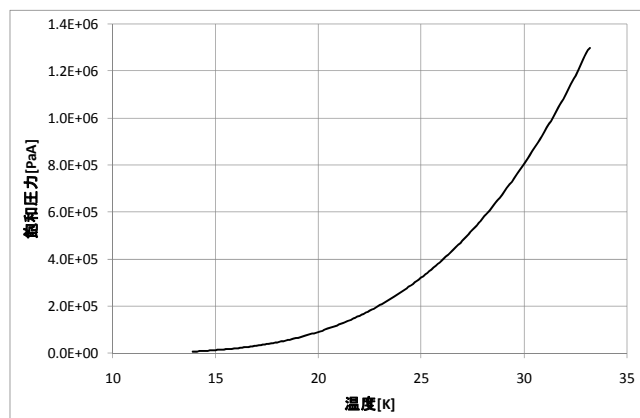


図 5 水素の飽和物性（温度 - 圧力）

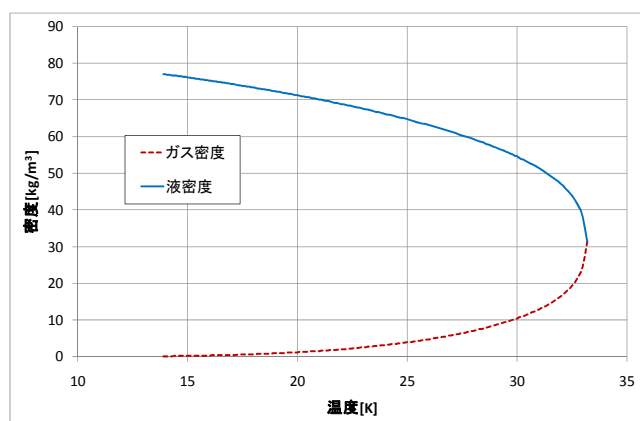


図 6 水素の飽和物性（密度 - 温度）

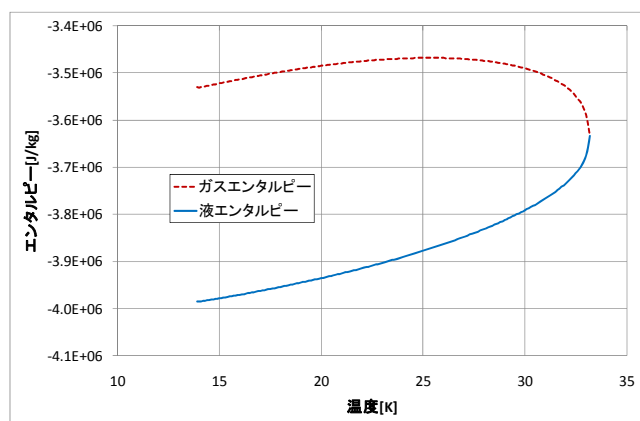


図 7 水素の飽和物性（エンタルピー - 温度）

を取り扱うことができる。本ソフトウェアは[8, 9, 10, 11]を参考に開発された。表 2 にソフトウェアの概要を表 3 に機能概要をまとめる。

表 2 Advance/FrontNet/Γ 概要

基礎方程式	質量保存式、運動量保存式、エネルギー保存式、状態方程式
圧縮性の取扱い	圧縮性を考慮
時間的取扱い	Euler 予測子修正子法
対流項	1 次精度風上差分
格子	スタガード
流体物性	理想気体または実流体物性
物理モデル	管摩擦損失係数モデル 構造材熱伝導モデル 臨界流モデル 熱伝達モデル (Dittus-Boelter)

表 3 Advance/FrontNet/Γ 機能概要

項目	入力詳細
理想気体ガスの場合	分子量、比熱比、粘性、熱伝導度
実流体物性の場合	水素、メタン、酸素など流体を指定
直管、テーパ管	(形状) 配管長、配管径 (材質) 粗度
境界条件(圧力指定または流量指定、温度指定)	Dirichlet 条件 (固定値または時系列情報を入力) または Neumann 条件
接続、分岐、合流	抵抗係数、径
ベンドやオリフィスなどの局所抵抗	抵抗係数
バルブ	開度と C_v 値の関係、開度、遮断速度
1 次元円筒熱伝導、スラブ熱伝導	構造体の厚み、材料物性、熱伝達率

3. Advance/FrontNet/Γ(V1.2)の概要

単相流体の汎用的な管路系流体過渡解析ソフトウェアとしてアドバンスソフト株式会で開発を行っている Advance/FrontNet/Γ の概要について説明する。ソルバーでは圧縮性が考慮され、格子スキームはスタガード格子が採用されている。また、NIST の実流体物性（テーブル形式）を取り扱うスキームが実装され、液体、ガス、超臨界の単相流体

3.1. 基礎方程式

基礎方程式は次のようになる。

①質量保存式

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u)}{\partial x} = 0 \quad (1)$$

②運動量保存式

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho u}{\partial t} + \frac{\partial \rho u u}{\partial x} + \frac{\partial p}{\partial x} \\ + \frac{1}{2} \frac{K_{wall}}{L} \rho u^2 - \rho g \sin \theta - F = 0 \end{aligned} \quad (2)$$

③エネルギー保存式

$$\frac{\partial E}{\partial t} + \frac{\partial(E + p)u}{\partial x} - \frac{\lambda A(T_w - T_f)}{V} = 0 \quad (3)$$

④状態方程式（理想気体）

$$p = \rho R T = (\gamma - 1) \left(E - \frac{\rho u^2}{2} \right) \quad (4)$$

⑤状態方程式（実流体物性）

$$p = f(e, \rho), T = g(e, \rho) \quad (5)$$

本稿では表記を次の表 4 のようにとった。

表 4 表記一覧

記号	意味	単位
t	時間	s
x	管路長さ方向の座標	m
ρ	密度	kg/m ³
u	流速	m/s
E	全エネルギー	J/kg
p	流体圧力	Pa
T	温度	K
K_{wall}	管摩擦損失係数	—
K_V	弁の抵抗係数	—
L	対象長さ	m
g	重力加速度	m/s ²
θ	配管の角度	rad
F	外力	N
Q	発熱量	W/m ³
R	一般ガス定数	J/(mol・K)
γ	比熱比	—
e	内部エネルギー	J/kg
c	音速	m/s
i	比エンタルピー	J/kg
h	熱伝達係数	W/(m ² ・K)
T_w	壁面温度	K

T_f	流体温度	K
A	面積	m ²
A_{100}	100%開度の場合の 流路面積	m ²
D	配管直径	m
D_{hyd}	水力等価直径	m
ε	配管の粗度	m
κ	熱伝導率	W/(m・K)
C	比熱	J/(K・kg)

3.2. 実流体物性の取り扱い

状態方程式として NIST 物性テーブルデータを用いるには、密度と内部エネルギーから圧力と温度を求める必要がある。

前ステップの密度、内部エネルギー、圧力、温度をそれぞれ ρ_0, e_0, P_0, T_0 とする。状態方程式を用いるときには、次ステップの密度と内部エネルギー ρ, e が既知であるとする。前時刻の物理量との差分の比率を下記のように f, g として定義する。

$$\begin{aligned} f(P, T) &\equiv \frac{\rho_0 - \rho(P, T)}{\rho_0} \\ g(P, T) &\equiv \frac{e_0 - e(P, T)}{e_0} \end{aligned} \quad (6)$$

このとき、 f, g に対する全微分は以下のようになる。

$$\begin{aligned} f(P, T) &= \frac{\partial f}{\partial P} \delta P + \frac{\partial f}{\partial T} \delta T \\ g(P, T) &= \frac{\partial g}{\partial P} \delta P + \frac{\partial g}{\partial T} \delta T \end{aligned} \quad (7)$$

マトリクスで表すと

$$\begin{pmatrix} f \\ g \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} f_x & f_y \\ g_x & g_y \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \delta P \\ \delta T \end{pmatrix} \quad (8)$$

これを $\delta P, \delta T$ について解くには、以下の方程式を解けばよい。

$$\begin{pmatrix} \delta P \\ \delta T \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} f_x & f_y \\ g_x & g_y \end{pmatrix}^{-1} \begin{pmatrix} f \\ g \end{pmatrix} \quad (9)$$

$$\begin{pmatrix} f_x & f_y \\ g_x & g_y \end{pmatrix}^{-1} = \frac{1}{f_x g_y - f_y g_x} \begin{pmatrix} g_y & -f_y \\ -g_x & f_x \end{pmatrix} \quad (10)$$

以上により、前ステップからの圧力と温度の差

$\delta P, \delta T$ が求まる。

$$P = P_0 - \delta P, T = T_0 - \delta T \quad (11)$$

3.3. 熱構造材の取り扱い

管路内の流体と、管路構造材外側の外気や土の間には、熱のやりとりがあり、管路構造材中にも温度分布が存在する。Advance/FrontNet/Γ では、このような熱のやりとりを計算する管路構造材熱伝達モデルが用意されている。

管路断面の半径方向の 1 次元非定常熱伝導方程式は次の通りである[12]。

$$\rho C \frac{\partial T_w}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(kr \frac{\partial T_w}{\partial r} \right) + Q \quad (12)$$

また、境界条件は次のように与えられる。

①流体側の境界条件

$$k \frac{\partial T_w}{\partial r} \bigg|_{r=R_1} = h_{\text{fluid}} (T_w - T_f) \quad (13)$$

②外界側の境界条件

$$-k \frac{\partial T_w}{\partial r} \bigg|_{r=R_2} = h_{\text{outer}} (T_w - T_{\text{outer}}) \quad (14)$$

ここで h_{fluid} はそれぞれ管路構造材と流体間、 h_{outer} は管路構造材と外側の熱伝達率である。管路構造材が複雑形状の場合には、伝熱面積を考慮して方程式が解かれる。

3.3.1. 熱伝達率モデル

Advance/FrontNet/Γ には、乱流域の単相流において幅広く実績のある、以下の Dittus-Boelter の熱伝達率モデル[13]を実装している。

$$h_{\text{dittus}} = 0.023 \text{Re}^{0.8} \text{Pr}^{0.4} \frac{\kappa}{D_{\text{hyd}}} \quad (15)$$

本式により、熱の伝わり方に流速や流体物性の影響が考慮される。

4. 水素の充填解析

Advance/FrontNet/Γ を使って水素の充填解析を行う。水素ステーションなどに設置されている 35MPa 級の圧縮水素に対する水素ディスペンサー

を用いたタンク充填の例を取り上げる[1]。ディスペンサーとは液体定量吐出装置を意味し、液体を精度良く定量供給する制御系及びその周辺機器の総称のことであるが、ここでは制御によって得られた流量を解析の入力条件とした、タンクの充填解析を行う。

4.1. 解析モデル

解析は、通常の配管モデルをタンクモデルとして行った。図 8 にその概要を示す。入口境界、配管（ここではタンク）、出口境界の簡単な 3 つのボリュームによるモデルを用いた。タンクは内部をメッシュ分割して計算を行う。

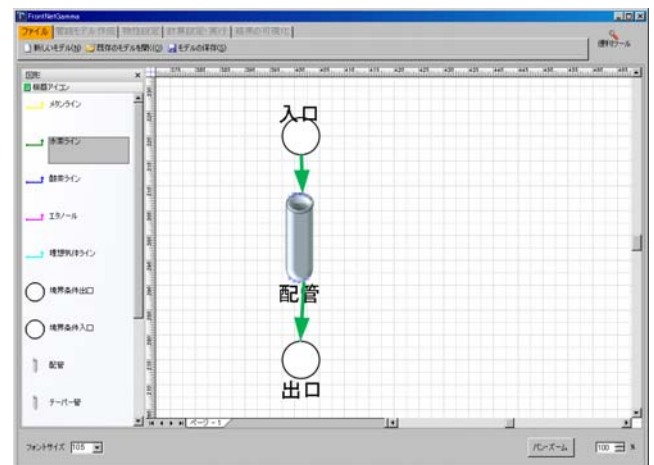


図 8 Advance/FrontNet/Γ GUI を使った
充填解析モデルの設定画面

4.2. 解析条件（断熱）

解析条件を表 5 のように仮定した。特に、初期圧力、流入温度や形状については、情報がなかったため仮定的である。

表 5 解析条件

流入圧力	Neumann 条件
流入温度	303K (仮定)
流入流量	図 10 の時間依存流量
下流圧力	Neumann 条件
下流温度	Neumann 条件
下流流量	0
初期圧力	5MPaG
タンク形状	円筒形 (図 9 参照)
タンク長さ・直径	1m, 44cm
分割数、クーラン数	4, 0.3
熱の条件	断熱

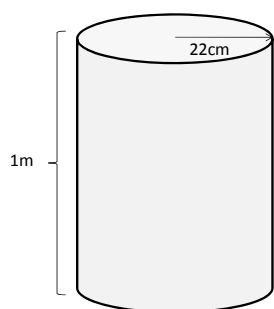


図 9 タンクの形状

図 10 に時間依存の流量の解析条件を示す。これは参考文献[1] p219 より読み取った値であり、流量指定境界として用いる。

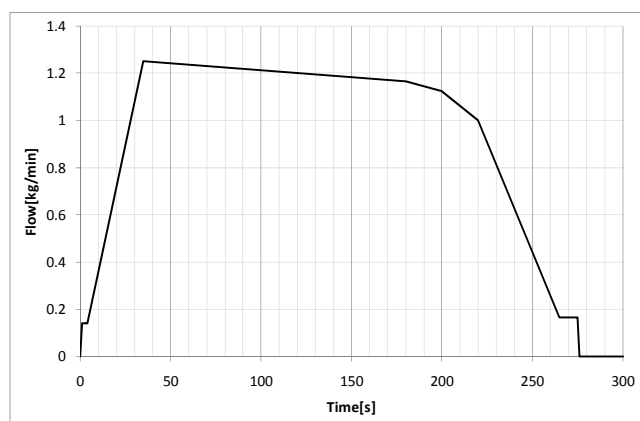


図 10 流量の解析条件 ([1]より)

図 11 にタンク圧力を示す。これも参考文献[1]p219 より読み取った値であり、本来であればディスペンサーの制御により測定値として得られるものである。この図 11 のタンク圧力が再現できれば、実際の現象を Advance/FrontNet/T で模擬できたことになる。

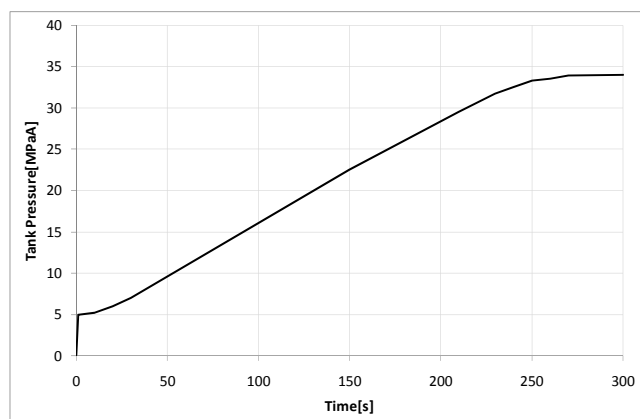


図 11 タンク圧力 (測定値) ([1]より)

4.3. 解析結果 (断熱) と考察

図 12 に時刻 200s までのタンク内の水素圧力、図 13 に時刻 200s までの水素の温度を示す。図 12 の圧力の結果では、測定値と計算値を比較すると明らか解析結果の圧力が高い。また、図 13 では、100K 以上の温度上昇が見られた。これは断熱圧縮による温度上昇効果である。

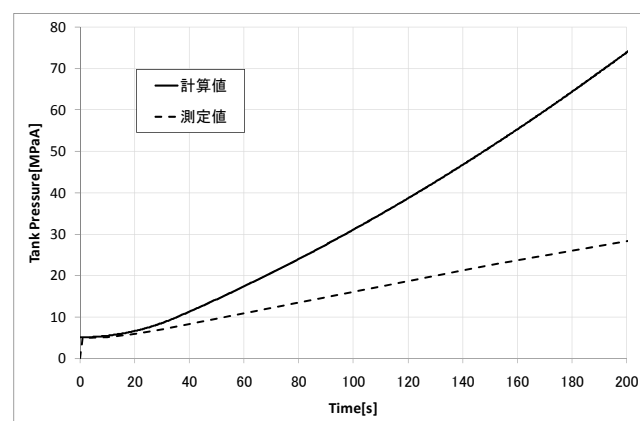


図 12 解析結果 (圧力、冷却なし)

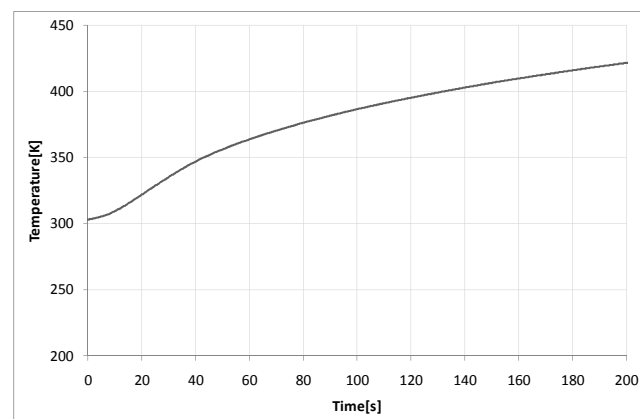


図 13 解析結果 (温度、冷却なし)

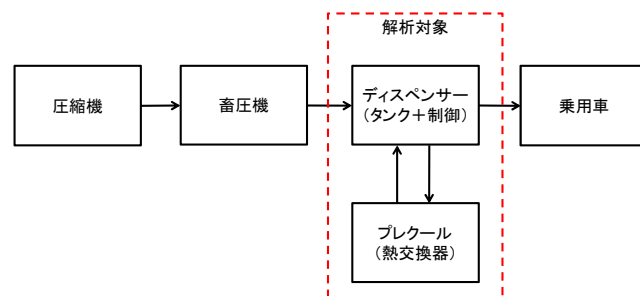


図 14 水素ステーション概要 [3]

これらの差異はかなり大きく、計算条件等が間違

えていないかどうか見直しをした結果、図 14 のように、通常の水素ステーションにはプレクールと呼ばれる熱交換器が取り付けられており、ディスペンサー内を冷却していることが分かった[3]。次にタンク内を仮想的に冷却した場合について解析を行う。

4.4. 解析条件（冷却あり）

3.3 節に示したように Advance/FrontNet/Γ は熱伝導および熱伝達の解析機能を有する。今回、プレクール（熱交換器）の情報がないため、図 15 のようにタンク側壁から水素が熱を奪われるものとして冷却効果を取り入れ、計算を行うものとする。熱伝達率モデルは Dittus-Boelter 式を用いる。表 6 に側壁の解析条件を示す。材質物性は、300K のものを代表として用い、温度依存性は考慮しない。

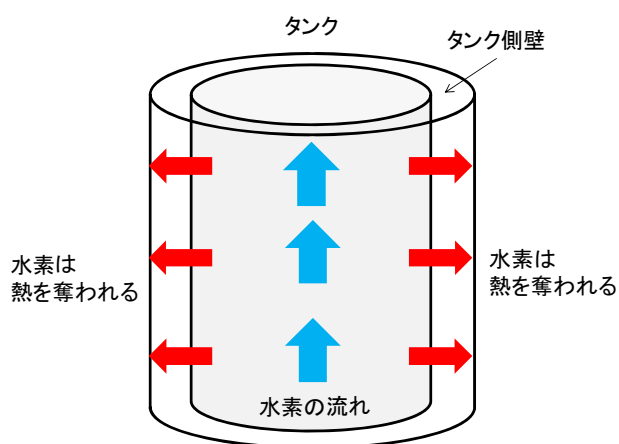


図 15 水素の冷却のモデリング

表 6 側壁の解析条件

側壁厚み（仮定）	5cm
側壁材質（仮定）	ステンレス鋼 SUS304
材質の物性（熱伝導率）[14]	16 W/(mK)
材質の物性（比熱）[14]	499 J/(kgK)
材質の物性（密度）[14]	7920 kg/m3
側壁外側	温度一定

ここでは式(16)のエネルギー方程式のように調整係数 K を導入した。これは、側壁に関する仮定に対する調整係数と考えることができる。

$$\frac{\partial E}{\partial t} + \frac{\partial(E + p)u}{\partial x} - K \frac{\lambda A(T_w - T_f)}{V} = 0 \quad (16)$$

4.5. 解析結果（冷却あり）

冷却効果を導入した場合の解析結果を図 16、図 17 に示す。調整係数 K の値は 1000 を用いた。また、側壁外側温度を 203K, 223K, 243K の 3 ケースについて解析を行っている。これは、流入水素温度が 303K であるのに対し、冷却性能がそれぞれ最大で 100K, 80K, 60K の熱交換器を仮定していることを示す。

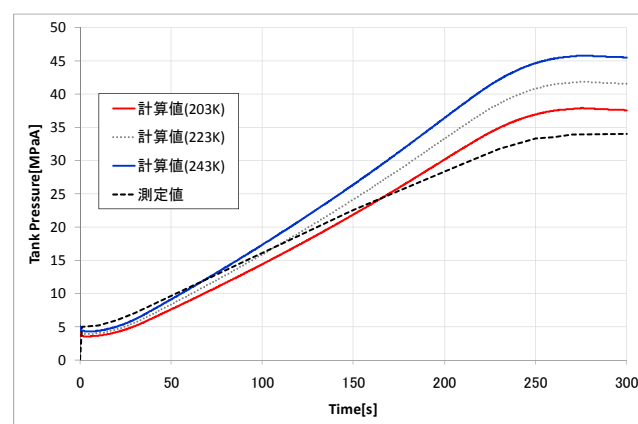


図 16 解析結果（圧力、冷却あり）

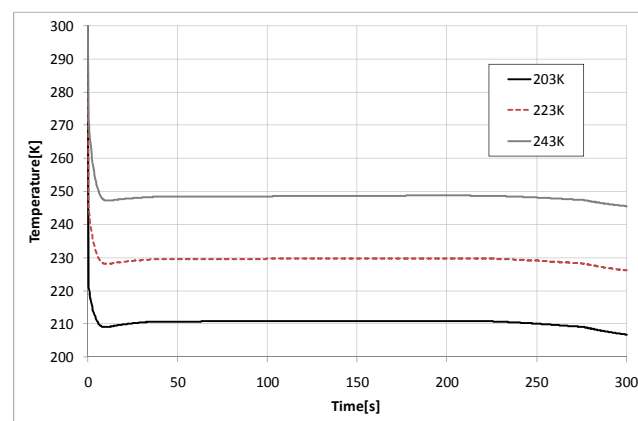


図 17 解析結果（温度、冷却あり）

図 16 は計算圧力と測定圧力の比較を表している。圧力上昇が抑えられ、計算値と測定値の傾向が合っている様子がわかる。特に、冷却性能を大きくすると計算圧力は測定圧力に近づく。図 17 は水素の計算温度を表している。温度は、冷却効果により図 13 のような上昇はなく、側壁温度に近くなっている。

側壁温度に至らないのは、側壁内に温度分布が存在するからである。ただし、温度の絶対値自体が推定値であるため、ここでは冷却による圧力上昇の抑制の確認に議論をとどめたい。

5. まとめ

水素の周辺技術に関するレビューと、管路系流体過渡解析ソフトウェアによる水素充填解析を行った。そこでは、ガスおよび超臨界の単相状態について NIST の実流体物性を用いた。解析条件が未知の部分も多く、さまざまな仮定を用いたが、次の 2 点についておおまかな傾向を得ることができ、水素の過渡解析を行うことができることを確認した。

- ・水素充填時の断熱圧縮による温度上昇の再現
- ・水素充填時の冷却による圧力抑制の再現

解析条件が整えば、Advance/FrontNet/Γ により精密な解析が可能であると考えられる。特に今回は与えられた条件として流量を指定したが、圧力を入力とし、タンク内圧力から調整バルブの開度を調節するなど制御系と連動した解析なども行うことができると考えられる。

参考文献

- [1] “よくわかる水素技術”、日本工業出版、(2008)
- [2] 特に P218 からの高橋太 (トキコテクノ (株))、
“水素ディスペンサー”を参照した。
- [3] 総合資源エネルギー調査会新エネルギー部会:
- [4] “新エネルギー政策の新たな方向性”、(2008)
<http://www.meti.go.jp/report/downloadfiles/g80925b01j.pdf>
- [5] 斎藤彰、辻井貢、吉村仁、鳥居秀則、名武秀一郎: “平成 21 年度 水素製造・輸送・貯蔵システム等技術開発活動報告”、(2010)
http://www.pecj.or.jp/japanese/report/2010report/24data/rep04_02.pdf
- [6] 清水克祐、藤森浩二、皆月功: “低炭素社会実現に合致した高温ガス炉 - その開発状況と水素製造システムの特徴 - ”、三菱重工技報、Vol.46 No.4 (2009)
- [7] 季報 エネルギー総合工学 Vol25 No.3 (2002.
- 10) ,<http://www.iae.or.jp/publish/kihou/25-3/08.html>
- [8] 飛原栄治監修、財団法人ヒートポンプ・蓄熱センター編: “ノンフロン技術—自然冷媒の新潮流”、オーム社、(2004)
- [9] Thermophysical Properties of Fluid Systems: <http://webbook.nist.gov/chemistry/fluid/>
- [10] 小池秀耀、三橋利玄、浜野明千宏: “富士総合研究所編 管路内の流れのシミュレーションプログラム”、丸善株式会社、(1995)
- [11] 大宮司久明他: “乱流の数値流体力学”、東京大学出版会、(1998)
- [12] 標宣男、鈴木正昭、寺坂晴夫、石黒美佐子: “数値流体力学—複雑流れのモデルと数値解法”、朝倉書店、(1994)
- [13] 棚橋隆彦: “はじめての CFD—移流拡散方程式—” コロナ社、(1996)
- [14] スハス V.パタンカー原著、水谷幸夫・香月正司共訳、「コンピュータによる熱移動と流れの数値解析」、森北出版株式会社 (熱伝導)
- [15] 甲藤好郎: “伝熱概論”、養賢堂、(1988)
- [16] 日本機械学会: 伝熱工学資料(改訂第 4 版)、(2005)