

需要家用水素ガス計量システムの研究開発

国立大学法人九州大学 古川雅人

1. 事業の概要（研究開発期間：平成17年度～19年度）

我が国は、定置型燃料電池を将来のエネルギー・環境政策の要の一つと位置づけ、その開発・普及を推進している。この定置型燃料電池の普及実現のためには、集合住宅やオフィスビルなどへの燃料電池導入が不可欠であるが、それを効率的に運用するためには、図1に示すとおり、水素の製造／貯蔵を集積化して水素配管により各需要家に水素ガスを供給することが有効であり、このような定置型燃料電池の利用形態では需要家毎に水素ガスを計量する必要がある。

しかしながら、需要家用（すなわち低圧・小流量用）として精度・耐久性・経済性を兼ね備えた水素ガス計量システムは存在していない。また、水素ガスは都市ガスや空気等と著しく異なった気体特性を有すること、透過性が高くて漏れやすく、あらゆる材料に侵入して損傷・破壊を引き起こすことから、従来のガスメーターの設計技術の水素ガス計量システムに適用することができない。さらに、需要家用の水素ガス計量システムは人間の居住空間に隣接して使用されることから、高い安全性が求められる。

以上の観点から、本研究は、精度・耐久性・経済性・安全性を備えた需要家用水素ガス計量システムを超音波式水素流量計により実現することを目標として、平成17年度から平成19年度までの研究開発期間で実施された。目標の実現にあたって、圧力損失の低減と計測精度の向上を両立させるための流体力学的・音響学的研究、耐久性と経済性に優れた材料およびシール方法に関する研究、ならびに具体的もの作りを踏まえた水素ガス計量システムの耐久性・信頼性・運用方法の検証に関する研究を行うと同時に、得られた計量システムについて、その運用における安全性評価に関する研究もあわせて実施した。

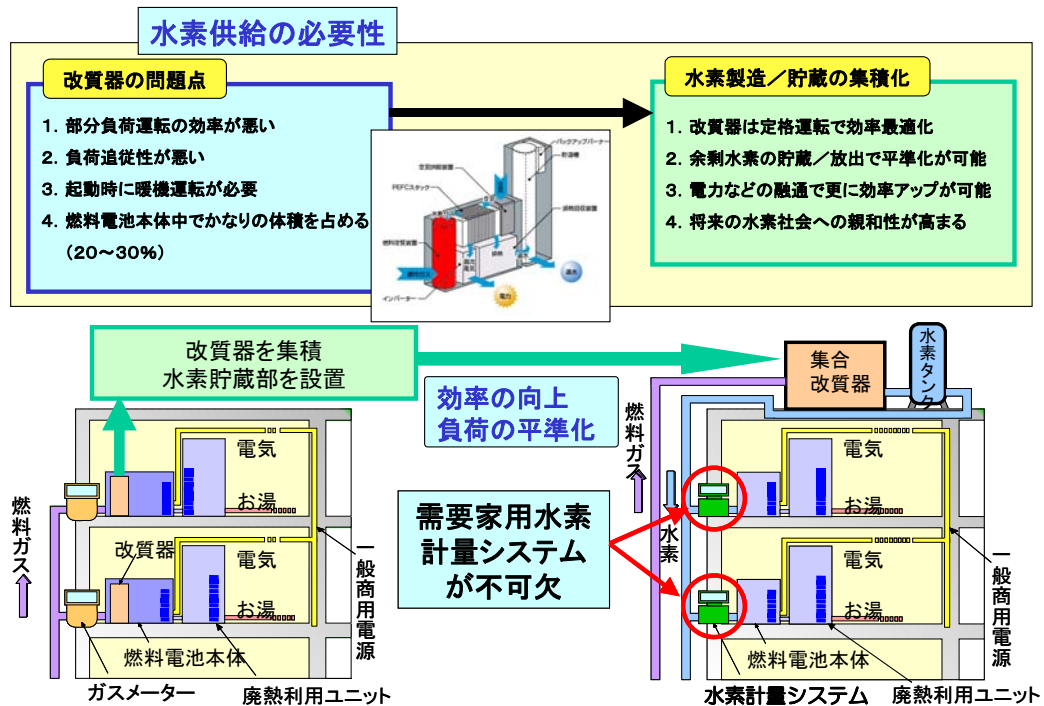


図1 需要家用水素ガス計量システム

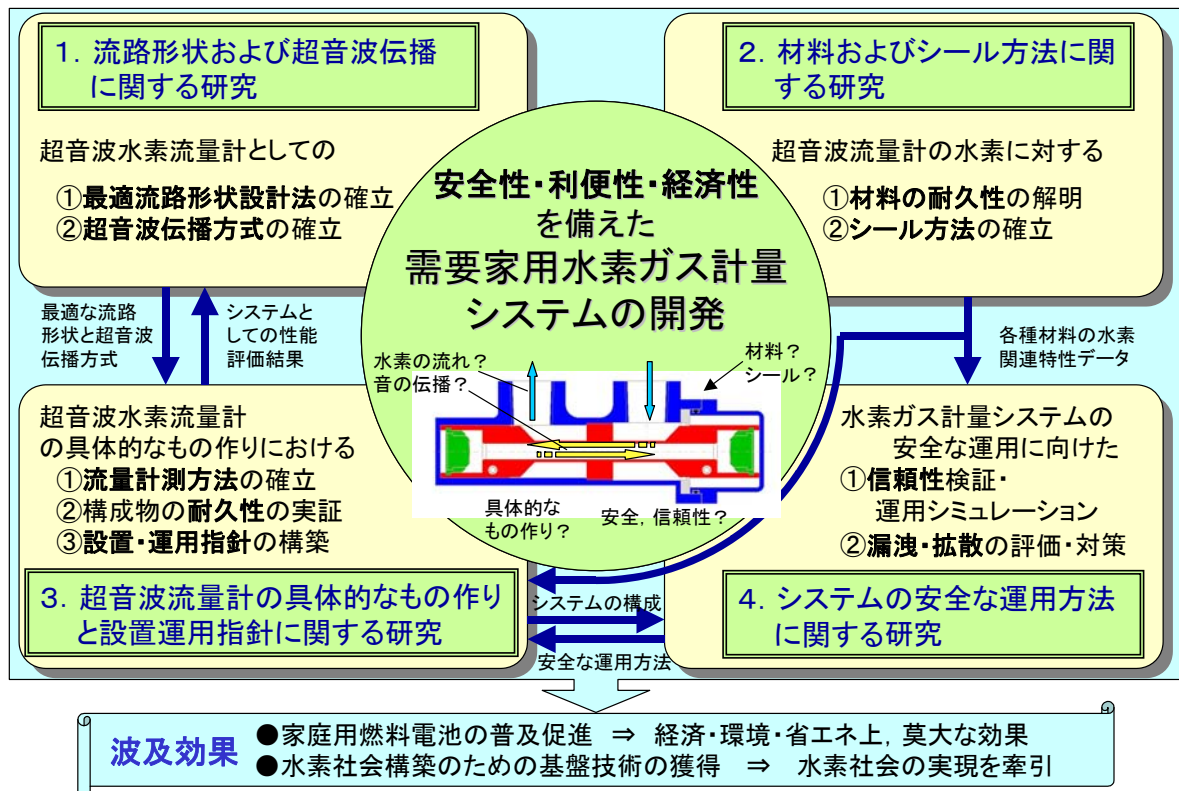


図2 課題の実施内容

2. 開発目標

上述のような背景のもとに本研究開発を実施するにあたって、図2に示すとおり、4つのサブテーマを設定し、サブテーマ1、2および4は九州大学において、サブテーマ3は愛知時計電機株式会社において担当した。各サブテーマの目標は以下のとおりである。

2-1 流路形状および超音波伝播に関する研究

需要家用水素ガス計量システムを超音波式水素ガス流量計により実現するための流体力学の問題および音響学の問題を解決することを目標とした。すなわち、計量システム内における水素ガス流動場の速度分布および超音波の伝播形態を実験と数値シミュレーションにより解析することによって、水素ガスの流動に伴う圧力損失を最小限に抑え、かつ流量計測の高精度化を実現するための水素ガス流路形状および超音波伝播方式の最適化を行った。

2-2 材料およびシール方法に関する研究

超音波式水素ガス計量システムにおいて、ケースおよび蓋の水素脆化特性、水素ガス雰囲気でのオーリングのシール特性、超音波センサー自体の水素による疲労寿命低下、超音波センサーを構成する整合層や充填材の水素侵入特性などに関するデータを得ることにより、使用される材料とシールに対する水素侵入メカニズムおよび水素脆化等の損傷・破壊メカニズムを解明するとともに、データの集積を図って水素ガス計量システムの信頼性確保に資することを目標とした。

2-3 超音波流量計の具体的なもの作りと設置運用指針に関する研究

需要家用水素ガス計量システムを、その計量精度・品質・コストのバランスの上に、実現するとともに、その計量システム単体での安全な設置および運用指針を明らかにすることを目標とした。そのために、上記のサブテーマ1および2の成果を踏まえて水素ガス計量システムの試作

試験を実施し、その耐久性・信頼性を検証した。あわせて、サブテーマ4の成果も考慮の上、安全性と計量精度を確保するための設置・メンテナンス基準を検討した。

2-4 システムの安全な運用方法に関する研究

開発する水素計量システムについて、水素漏洩時を含めたシステムの安全評価を行い、その対応策を検討して需要家用水素計量システムの安全な運用方法を確立することを目標とし、システム信頼性工学を適用して水素ガス計量システムの信頼性検証方法と運用シミュレーション手法を構築するとともに、想定される水素計量システムにおける水素の漏れや拡散挙動の解明とその対策の検討を行った。

3. 事業成果

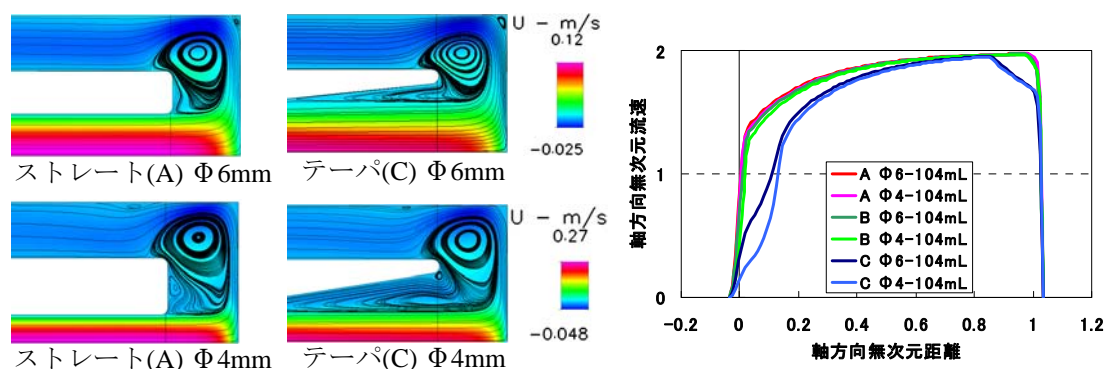
各サブテーマにおいて得られた成果の概要は以下のとおりである。

3-1 流路形状および超音波伝播に関する研究

水素ガス計量システムを想定した計測流路に対して水素、空気およびヘリウムの内部流動を数値シミュレーションにより解析した結果、需要家用水素ガス計量システムの流量範囲においては、水素ガスの流動様相が空気と著しく異なり、粘性効果が極めて高いこと、水素ガスとヘリウムの流動様相に有意な差は認められず、内部流動に関する実験においてヘリウムを水素ガスの代替気体として使用可能であることが明らかになった。

数値シミュレーション結果の妥当性を検証するために、需要家用水素ガス計量システムを模擬した流路モデルにおいて、内部流れの速度ベクトル場を PIV（粒子画像流速計）計測により詳細に測定し、数値シミュレーションの結果と比較した結果、速度分布およびはく離渦構造が両者の結果で良い一致を示すことを確認した。

流路形状と流れ場の関係を明らかにするために、流路の入口および出口形状がストレート型、EXP（指数関数）型およびテーパ型について、内部流動を数値シミュレーションにより解析した（図3）。その結果、全ての形状において、流量の変化に伴い、流速分布が大きく異なり、各流量ではく離渦の有無も形状によって異なることがわかった。また、流量が等しければ、ストレート型（図3中のA）とEXP型（図3中のB）において、流路出口のはく離渦が形状の違いを相殺し、流路内の流速分布が両型でほぼ同一となることが明らかになった。一方、テーパ型（図3中のC）は他の型と流速分布が大きく異なるとともに、大流量時に流路出口側に大規模なはく離渦が形成



(a) 出口付近の流れ場

(b) 軸方向速度分布

図3 計測流路内部の流れ分布（大流量条件）

され、流体力学的に好ましくない形状であることがわかった。さらに、流路内径と流れ場の関係について解析した結果、テーパ型では内径によって流速分布に違いが生じるものの、ストレート型および EXP 型では内径が異なっても流量が同じであれば、軸方向の流れの発達様相に差異はないことが明らかになった。以上の結果から、流量計測の精度に影響を及ぼす流速分布の非一様性の効果を定量的に把握し、計測の高精度化を実現するための流路形状としてストレート型と EXP 型を選定した。

実機を模擬した流路モデルに対して、PIV（粒子画像流速計）測定により流速ベクトル場の空間分布および時系列変化を解析するとともに、三次元流れ場の大規模な数値シミュレーションを実施した結果、計測流路部では流れ場の非軸対称性が極めて小さいこと、流路出口ではく離渦がある条件においても流れ場の非定常性が認められないことがわかった。

模擬流路モデルにおいて、音源およびマイクロホンを利用した音響実験、および FDTD (Finite Difference Time Domain) 解析方法を用いて音響場と流れ場の連成した音響伝播の数値シミュレーションを実施して、流速分布を伴う媒質中での音響伝播特性を詳細に解析した結果、本水素ガス計量システム内での音響伝播はほぼ 1 次元的であり、計測流路部において超音波は平面波的な伝播形態をとることが明らかになった。すなわち、都市ガスを対象とした超音波式流量計における従来の信号処理と同様な方式が水素ガス計量システムに対しても適用できることが確認できた。

3-2 材料およびシール方法に関する研究

まず、需要家用水素ガス計量システムに使用される材料およびシール材の調査を行うとともに、超音波センサーの疲労強度、シール材の水素ガス密封試験、各種材料の水素脆化試験の実施方法を策定した。特に、超音波センサー疲労試験に必要となる 1 MPa 用水素雰囲気実験チャンバー、Oリングの漏洩試験およびOリングゴム材料透過試験用の水素雰囲気実験チャンバーを設計・製作した。

水素ガス計量システムの使用環境は室温（ ~ 293 K）、0.11 MPa（絶対圧）であるが、実使用の 10 年間に相当する材料およびシールの耐久性を調べるために、水素雰囲気実験チャンバーを用いて加速水素環境下で材料の疲労試験およびシールの漏洩試験を実施し、以下の知見が得られた。

大気中と水素雰囲気中（0.6 MPa、室温）で超音波センサー（圧電素子 PZT セラミックス）の疲労試験を実施し、両雰囲気での結果を比較した結果、超音波センサーの性能劣化は認められなかった。すなわち、水素ガス計量システムの心臓部となる超音波センサーは、室温、0.6 MPa の水素ガスの下で最高負荷電圧 18 V で動作させても、実使用で 10 年に相当する繰り返し数（ 10^{10} 回）に対して機能劣化を示さないことがわかった。また、超音波センサーの構成部品である圧電セラミックス（PZT）の破壊靱性値をビッカース圧子圧入法により評価する方法を策定し、1 MPa、30 °C の水素雰囲気中で 70 時間暴露した圧電セラミックスの破壊靱性を調べた結果、本水素雰囲気において圧電セラミックス自体の材料強度に劣化が生じないことが明らかになった。

10 MPa、70 °C の水素雰囲気中で 120 時間暴露した金属材料（オーステナイト系ステンレス、アルミ合金、コバルト、パーマロイ）と樹脂材料（ソアライト、フォートロン、ジュラコン）の引張試験を実施した結果、これら材料の水素雰囲気下での強度は未曝露材と同等であり、本水素曝露条件下ではこれら材料の水素脆化は認められないことがわかった。また、昇温脱離法により、10 MPa、70 °C の水素雰囲気中で曝露したアルミニウム合金の水素量を測定した結果、アルミニウム合金では十分な拡散性水素が含まれていないことから、水素脆化が生じないことが明らかになった。

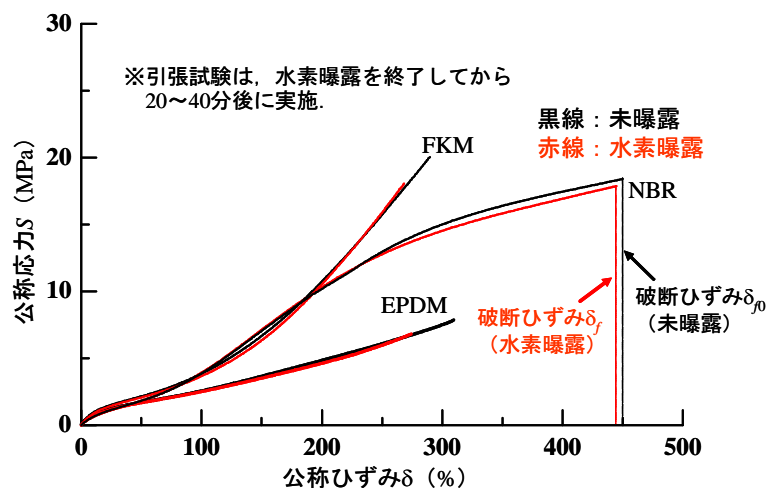


図4 ゴム材料の公称応力-公称ひずみ曲線 (引張速度 500mm/min)

10MPa、30℃の水素雰囲気で暴露したゴム材料（フッ素ゴム、エチレンプロピレンゴム、ニトリルゴム）について強度試験を行った結果、それらの公称応力-公称ひずみ曲線は未曝露材と若干異なっており、同じ公称ひずみで比較した場合、水素曝露したゴム材料の公称応力は未曝露材よりも若干低いことがわかった（図4）。なお、昇温脱離法により、水素暴露したゴム材料に含まれる水素量を測定した結果、ゴム中の水素は水素暴露後すぐに全て抜けてしまうのではなく、数十時間経過後にも残存していることが判明した。すなわち、本引張試験は水素暴露終了から30分～1時間後に実施しているため、水素曝露材と未曝露材の公称応力-公称ひずみ曲線の相違は、ゴム材料中に含まれる水素の影響であると言える。

水素ガスに曝露した接着材の引張試験、ガラス封入端子の気密試験、ガラス材の硬さ試験、ゴムのブリスター試験を実施した結果、いずれも水素ガス計量システムの作動条件下での使用に問題ないことを確認した。

水素雰囲気実験チャンバーおよび微量ガス分析装置（ガスクロマトグラフ）を用いて、Oリングの水素漏洩量およびOリング材料の水素透過量に関する試験法を構築した上で、Oリングメーカーから水素雰囲気下での使用が推奨されている3種のOリング用ゴム材料（ニトリルゴム、フッ素ゴム、エチレンプロピレンゴム）について、シート材の水素透過試験を差圧0.2MPaの条件下で行った結果、推奨Oリング材料であっても、透過量が材料ごとに大きく異なることがわかった。また、3種（ニトリルゴム、フッ素ゴム、およびエチレンプロピレンゴム製）のOリングの水素漏洩試験を差圧0.2MPaのもとで行った結果、材質による漏洩量の違いが検出されたが、この材質による漏洩量の違いは、ゴムシート材料そのものの透過量の違いと一致することを確認した。以上の試験で得られたOリングの水素漏洩量は、需要家用水素ガス計量システムでの使用条件（最大差圧20kPa）に換算して0.05cc/24h以下に相当し、実用上問題ない漏洩量であることがわかった。

以上のとおり、需要家用水素ガス計量システムの構成材料（金属、ゴム・樹脂など）は、極めて厳しい水素曝露条件（10MPa、70℃、120hまたは10MPa、300℃、192h）下においても水素脆化の傾向を示さないこと、Oリングについてはメーカーにより推奨された材料、シール部寸法および表面粗さを選定すれば、透過漏れが主体であり、水素の漏洩量は実用上問題とならないことが明らかになった。

3-3 超音波流量計の具体的なもの作りと設置運用指針に関する研究

流量計計測部については、燃料電池実証試験設備の調査などから目標とする仕様を決め、その実現を目指して設計、試作を行った。

水素を計測するためには、計測実績のある空気や都市ガスと比較して、音速が速いために順方向と逆方向の時間差の切り分けが難しい、音響インピーダンスが小さいために受信波が小さくなる、動粘性係数が大きく違うため流速分布の違いが器差性能へどのように影響するかが不明であるなどの問題点が想定された。これらの問題点の難易度を知るため、現状の空気、都市ガス用超音波流量計をベースとして目標仕様（流量範囲）に合う、機能確認のための超音波流量計を複数試作し、ヘリウムと空気では波形と器差性能の比較を行った。測定された超音波波形を空気と比較したところ、ヘリウムでは波形の高さが空気の約半分となることが観測されたが、順逆時間差の切り分けと含めて、流量計測は可能であるとの結論が得られた。また測定された器差特性を空気の場合と比較したところ、流路径が小さい場合、低流量域以外では性能の違いは見られなかったが、流路径が大きい場合、特に空気では臨界 Re 数付近で器差特性が大きく低下することが観測された。

次に、性能測定の基準となるピストンルーバー方式の通気試験装置を製作した。ピストンルーバー方式とは、パイプに差し込んだピストンを移動させ、流体を排出する方式であり、ピストンの面積と移動量の積が流量となる。ピストン内径とピストンの移動量および移動時間を正確に計測することで、試験装置の性能を担保した。較正は、ルーバー内に水を満たし、ルーバーの排出量の計算値と排出された水の重量を比較することにより行った。装置の完成後、九州大学水素利用技術センターに設置して水素による動作確認を行い、気体が水素でも流量試験装置として機能することを確認した。また装置の気密はヘリウムリークディテクターにより問題のないことを確認した。

水素流量計のプロトタイプ試作にあたり、機能確認のための試作品の試験結果を基に流路径および超音波センサー間の距離を決定し、また流路の形状については、サブテーマ1の研究成果に基づいて事前に評価を行って決定した。

試作したプロトタイプに対して通気試験装置により計量性能評価を空気、ヘリウムで実施し、仕様を満たす性能を有していることを確認した後に、水素ガスを用いて計量性能を評価した。その性能評価で、ゼロ点ズレおよび消費電力が大きいという問題点が明らかとなった。ゼロ点ズレの原因は発信ノイズおよび筐体ノイズが受信信号に重畳するためと想定されたため、発信ノイズについては送受信部を離して設置する電子回路基板構造の見直しを、筐体ノイズについては送受信超音波センサーの伝搬経路を屈曲することで減衰させることを狙った流路構造の見直しにより、それぞれ低減した。消費電力については、超音波発信時の駆動電圧の昇圧方式をより低い駆動電圧で可能とする回路構成とし、また増幅回路スイッチ動作を、常時ONであった方式を改め、サンプリングの都度ON-OFFを切り替える方式に変更する等の見直しにより低減をはかった。以上の問題点の改善策および流路部隙間の存在による信号減衰の抑制などに関する改良を加えるとともに、材料およびシールに関するサブテーマ2の研究成果を考慮し、かつ量産化を想定した構造の第2次プロトタイプ（図5）の試作を行った。この第2次プロトタイプに対して器差性能試験および耐環境性能試験を行った結果、目標の器差性能（ $0.05\sim 1\text{m}^3/\text{h}$ で $\pm 1.5\%$ ）を達成していること、 -10°C 、常温、 $+70^\circ\text{C}$ の各温度条件および最大流量（ $1\text{m}^3/\text{h}$ ） $\times 2000$ 時間相当の駆動条件において器差性能を満足していることが明らかになった。

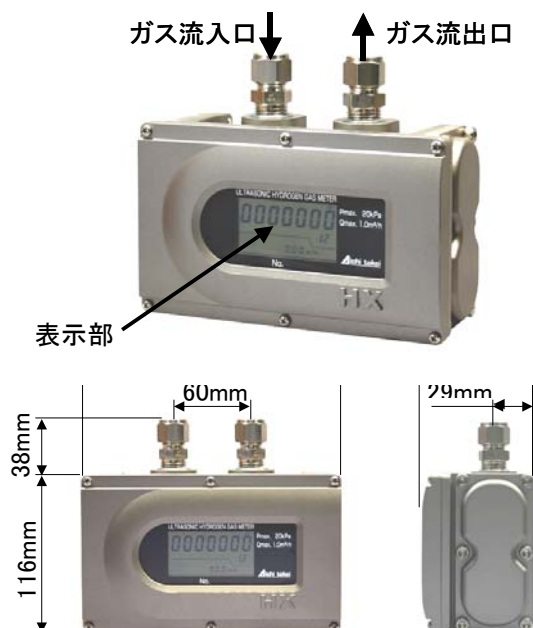


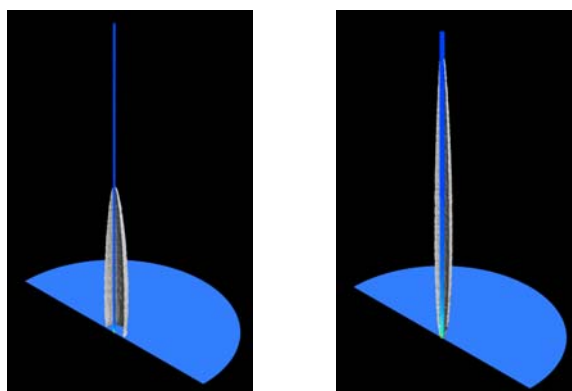
図5 第2次プロトタイプ試作品

製品化への見通しに関する検討から、仕様および性能試験結果について特に問題は無いこと、量産価格が年10万台の想定で1台あたり20,000円を目標としていたが、28,500円となることがわかった。なお量産価格については外部電源化、口金構造見直しなどのコストダウンの策をとることにより目標金額を達成できることが見込まれた。また、実証試験設備事業者へのヒアリングを基にして、水素ガス計量システムの設置基準・メンテナンス基準（案）を策定した。さらに、設置作業工数の算出も行い、現行ガスメーターと同等となることを確認した。

3-4 システムの安全な運用方法に関する研究

提案する水素ガス計量システムについて、構成部品（材質、形状、加工法、表面処理など）、使用環境（温度、圧力、雰囲気、振動など）、使用条件（運転条件、運用期間、装置設置状況）の調査を行うとともに、FMEA（Failure Mode and Effect Analysis：故障モード影響解析）のための故障モードの抽出およびその故障モードに至るパスの解析を行った。これを踏まえて、水素ガス計量システムの最終設計案に対し、FMEAを適用した結果、ハーメチックシール部およびハーメチックシール取り付け板のシール部からの水素漏洩（内部漏洩）不具合の検出ができない点、ならびに配線ショートなどに起因するバッテリー発火を検出できない点が、安全上の問題として明らかになり、その対策を施した。

水素の漏洩・拡散に関して、水素ガス計量システムが有すべき機能を調査するとともに、水素ガスの漏洩および拡散に関する数値シミュレーションを実施して、その危険性を他の気体との比較により検討した。その結果、漏洩部近傍をモデル化した水素ガスの漏洩解析（5L/h）から、浮力の効果が卓越した流れ場となること、1~2秒程度で定常状態となること、漏洩部の極近傍でのみ可燃限界（4%水素濃度）を超えることが明らかになった（図6）。また、大空間への水素ガスの漏洩・拡散解析（5L/h）から、水素ガスが遠方まで十分に移流拡散するには長時間を要することがわかった。さらに、水素ガス計量システムで起こりうる水素の最大漏洩量について、その漏洩の主要な経路であるOリング部に着目して、数値解析を行い、Oリング部からの水素ガスの最大可能漏洩量が微量であることを明らかにした。なお、水素ガスとほぼ同じ気体特性をもつヘリ



(a) 水素ガス (b) メタンガス

図6 燃焼限界下限以上の領域

ウムガスを用いて漏洩・拡散に関する実験を行うことにより、本数値シミュレーションが妥当であることを検証した。

大規模な水素の漏洩が起こった場合を想定して、水素センサーによる水素漏洩の検知および漏洩水素ガスの換気扇による強制換気に関する数値シミュレーションを行い、水素ガス計量システムの設置における安全性確保策について知見を得た。

4. 事業成果の評価

図7に示すとおり、当所の研究目標に基づく本研究開発のミッションステートメント、すなわち「現在の家庭用ガス計量システムと同等の安全性・利便性・経済性を備えた水素ガス計量システムの実現」において、最終成果として一応の成果が得られたと考えられる。

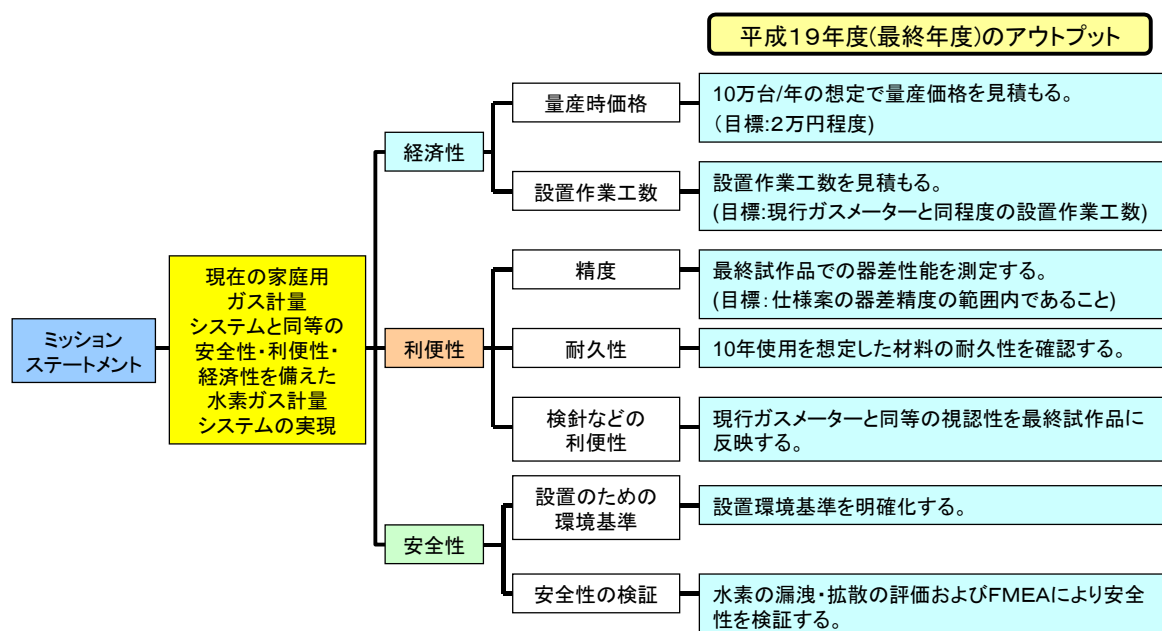


図7 研究開発の最終アウトプット