

車載用液体水素タンクのボイルオフ低減技術の開発（第3報）^{*1}

—ボイルオフガス低減技術の実証実験—

Development of Boil-Off Gas Reduction Technology for Liquid Hydrogen Tanks (Third Report)

—Demonstration of Boil-Off Gas Reduction System—

橋正 好行 ^{*2}

Yoshiyuki HASHIMASA

渡辺 正五 ^{*2}

Shogo WATANABE

梶原 昌高 ^{*3}

Masataka KAJIWARA

橋本 辰彦 ^{*3}

Tatsuhiko HASHIMOTO

布浦 達也 ^{*4}

Tatsuya FUURA

角掛 繁 ^{*4}

Shigeru TSUNOKAKE

Abstract

This study concerns the research and development of an automotive liquid hydrogen fuel cell system capable of storing boil-off hydrogen gas into a metal hydride ("MH") tank and releasing the stored hydrogen gas for power generation by using the waste heat from the fuel cell cooling system during the driving of the fuel cell vehicle. To assess the validity of this automotive liquid hydrogen fuel cell system on a prototype level, an experimental MH tank was manufactured together with a hydrogen tank and a pressure regulation system. This MH tank was combined with the stack simulator into an optimized fuel cell system, and a test was conducted on boil-off gas collection and release by the MH tank. It was verified that the newly developed system of collecting boil-off gas from the liquid hydrogen tank was able to supply the collected boil-off hydrogen gas for power generation. This developed system is able to use the hydrogen stored in liquid hydrogen tank for as long as one week without releasing it into the atmosphere.

1. はじめに

水素燃料の車載方法として、圧縮水素、水素吸蔵合金、液体水素その他の方法があるが、中でも液体水素タンクによる水素の車載貯蔵は、現状技術レベルで最も高密度（容積、重量）な水素貯蔵が可能であり、普及時のタンクコストや水素運搬のインフラ整備などを考慮してもメリットは大きい。しかしながら、液体水素車載時のボイルオフによる水素損失が課題となっている。

本研究開発では、燃料電池自動車用液体水素タンクのボイルオフガスを水素吸蔵合金タンク（以下、「MHタンク」という）に回収し、燃料電池自動車運転時に燃料電池システムの冷却系から供給される排熱によってMHタンクを加熱することで

回収した水素を放出させ、燃料電池の発電用燃料として利用する、ボイルオフガス低減自動車用液体水素燃料電池システム（Fig. 1）を研究開発する。

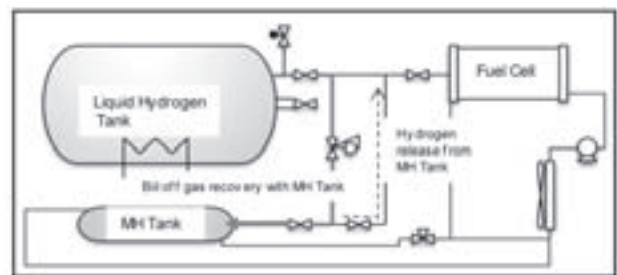


Fig. 1 System conception diagram of boil-off gas reduction system

本研究開発は、「液体水素タンクのボイルオフガス調圧システムの開発」（岩谷産業(株)）、「ボイルオフ回収用水素吸蔵合金および水素吸蔵合金タンクの研究開発」（日本重化学工業(株)）、「ボイルオフガス低減自動車用液体水素燃料電池システムの

*1 原稿受理 2006年6月6日

*2 (財)日本自動車研究所 FC・EVセンター

*3 岩谷産業(株) 水素エネルギー部

*4 日本重化学工業(株) 金属事業部

研究開発」((財)日本自動車研究所)の三つの要素技術について3社共同で実施した。

ボイルオフガス(以下、「BOG」という)回収型の自動車用液体水素燃料電池システムを設計するためには、燃料電池システムの冷却システム、MHタンクの水素吸蔵・放出に必要な放熱・吸熱特性から、熱収支を考慮したシステム最適化の検討が必要である。

2005年度には、1kW級の小規模スタックからの排熱を小型MHタンクに供給する水素放出試験を行い、スタックの排熱でMHタンクから放出可能な水素量を測定した。これにより、スタックの排熱は発電に必要な流量の水素をMHタンクのみから放出させるのに必要な熱量の約2倍であり、十分であることを確認した¹⁾。

2006年度には、本システムの妥当性を実規模レベルで実証するために、実規模レベルのスタックの発電に伴う水素の消費と発熱を模擬できるスタックシミュレータを設計開発した。

最終年度となる2007年度には、車載液体水素タンク、調圧システム、液体水素タンク(内容積100L、ボイルオフ率1~3%/day)からのBOGを1週間貯蔵できることを想定して試作したMHタンク、およびスタックシミュレータを組み合わせた全体システムを最適化したうえで、BOGの回収・放出に関する実証試験を行った。

2. スタックシミュレータによる実規模MHタンクからの水素放出試験

開発するBOG低減用の燃料電池システムでは、液体水素タンクとMHタンクをスタックへの水素供給源として利用する。従って、MHタンクの圧力と温度の変化に対応して、適切に水素供給源を切替制御する必要がある。さらに、MHタンクからの水素放出後、次回のBOG回収のために、MHタンクからの水素を優先的に利用するための制御条件の最適化が必要である。そこで、開発したスタックシミュレータと実規模MHタンクを接続し、実規模MHタンクからの放出試験を行い、より実用に近い状態でシステムの最適化を行った。ここでは、液体水素タンクからの水素は圧力調整した水素ガスで模擬した。使用したMHタンクの仕様をTable 1に示す。

スタックシミュレータの制御項目と設定値をTable 2に示す。

Table 1 MH tank specification

Hydrogen storage alloy	Ti25V35Cr40
Heat of formation : ΔH	-35.5 [kJ/mol H ₂]
Hydrogen storage capacity	0.574 [kg]
Weight of hydrogen storage alloy	32 [kg]

Table 2 Setting items and set point for hydrogen release test

Setting Item	Set Point
Calorific value / released hydrogen flow rate (considerable generation output)	5 [kW/100L/min] (10 kW)
Regulator setting pressure (liquid hydrogen line)	100 [kPaG]
MH tank release starting pressure : P1	200 [kPaG]
MH tank release stopping pressure : P2	130 [kPaG]
Coolant water outlet temperature of heat generation device starting hydrogen release from MH tank line : T1	≥55[°C]
Coolant water outlet temperature of heat generation device starting hydrogen release from LH tank line : T2	<50[°C]
MH tank temperature stopping hydrogen release from MH tank line : T3	≥65[°C]
Coolant water outlet temperature of radiator : T4	65[°C]

水素放出試験の結果をFig. 2に示す。MHタンクからの水素単独供給が開始するまでの約25分間は液体水素タンクから水素が単独で供給された。この間に冷却水が加熱され、設定温度(トリガ温度T2の設定値)50°Cを越えるとMHタンクを通過するラインに冷却水流路が切り換り、MHタンクからの水素単独供給が約10分間続いた。MHタンク圧力が設定圧力130kPaG(トリガ圧力P2の設定値)を下回ると、MHタンクからの水素単独供給が終了し、液水タンクとMHタンクからの同時供給が続いた。MHタンクの圧力低下に伴い、最終的にはMHタンクからの供給が停止して液体水素タンクから水素が単独で供給された。

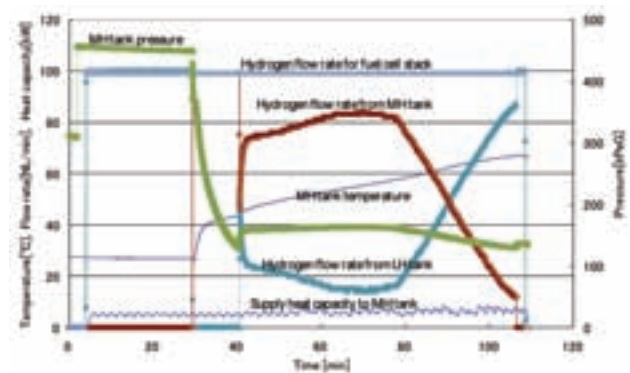


Fig. 2 Hydrogen release behavior from MH tank

3. 実規模システムでの実証試験

次に、実際に液体水素タンク、MHタンクとスタックシミュレータを組み合わせて吸蔵放出試験を実施し、開発したシステムの有効性を実証した。試験装置の概略図をFig. 3に示す。冷却水温度が上昇してからMHタンクに熱供給できるように、冷却水流路の切り換えが可能な構造となっている。使用したMHタンクは、Table 1で示したのと同じである。

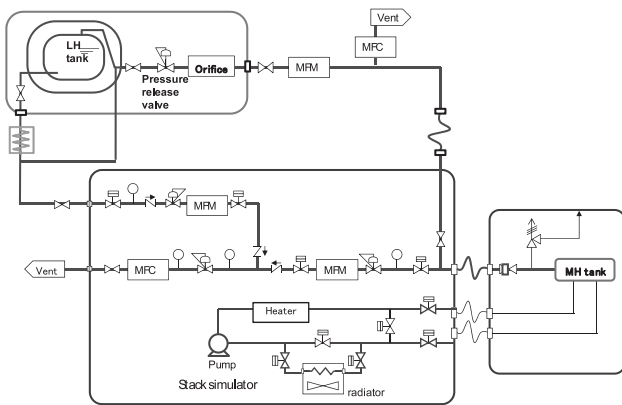


Fig. 3 Schematic image of boil-off gas reduction system

実規模MHタンクは蒸発率（タンク内の液体水素のモル数に対して1日あたりに気化するモル数の百分率）2%/dayを想定したBOGを1週間分回収可能な設計となっているが、今回使用した液体水素タンクの蒸発率は5.85%/dayであった。そのため、吸蔵試験時には蒸発率2%/dayの液体水素タンクを模擬するため、発生したBOGの一部をマスフローコントローラで流量制御して大気放出し、MHタンクへは蒸発率2%/day分のBOGを吸蔵させた。吸蔵試験の条件をTable 3に示す。

MHタンクへの水素吸蔵は液体水素タンク圧力が0.6MPaGに到達した時に開始した。

Table 3 Conditions of hydrogen recovery test

Hydrogen tank initial pressure	0 [MPaG]
Hydrogen recovery starting pressure	0.6 [MPaG]
Boil off rate	2 [%/day]
Test temperature	20~25 [°C]

放出試験時の液体水素タンクからの水素供給は、液体水素タンクのガス相および液相から行い、液

相からの供給ラインには気化器を設置し、スタックシミュレータへの常温ガス供給を可能とした。

放出試験は出力一定（スタック出力10kW想定）条件で実施した。制御動作のトリガ設定値については、Fig. 2の放出試験結果をもとに、Table 2におけるトリガ条件の一部を変更した。液体水素タンク・MHタンクからの同時供給を開始するMHタンクのトリガ圧力P2を130kPaGから100kPaGに変更して、MHタンクからの水素の単独供給がよりMHタンク圧力が低い圧力まで維持されるようにした。また、MHタンクからの水素放出を開始するトリガ温度T1を55°Cから60°Cに変更し、MHタンクからの水素供給を開始する時の冷却水温度を上げた。これによりMHタンクからの水素供給を開始すると同時にMHタンクを通過する経路に冷却水ラインが切り替わっても、冷却水温度の低下が抑えられた結果、急激なMHタンク圧力の低下が抑制された。

スタックの発電に必要な水素流量や排熱は出力に対応して決まる。実証試験ではスタックの想定出力を10kWとしたので、排熱は本来5kWとなるが、排熱に関しては試験時の熱発生装置のヒータ出力を2段階に設定した。スタックシミュレータの冷却水量は約60Lであり、内燃機関自動車の実車両に使用されている冷却水量（多くて約15L程度）に比べても多いため、運転開始初期の冷却水温度の上昇に実際よりも長時間を要す。そのため、この間に液体水素タンクから放出される水素量も実際のシステムよりも過剰に大きくなる。そこで、放出試験開始初期の液体水素タンクから単独供給している時間のみ、水素流量100NL/min（スタック出力10kW想定）に対して、ヒータ出力を10kWとした。温度上昇後、MHタンクからの水素供給が開始された後は実際と熱収支をそろえる必要があるため、従来通りのスタック排熱を想定してヒータ出力を5kWとした。

以上述べた条件設定にて、液体水素タンクからのBOGのMHタンクへの回収、自動車の走行を模擬したMHタンクからの水素放出についての一連の実証試験を実施した。

一連の実証試験を行った際のMHタンクからの放出試験におけるシミュレータ装置の動作結果をFig. 4に示す。

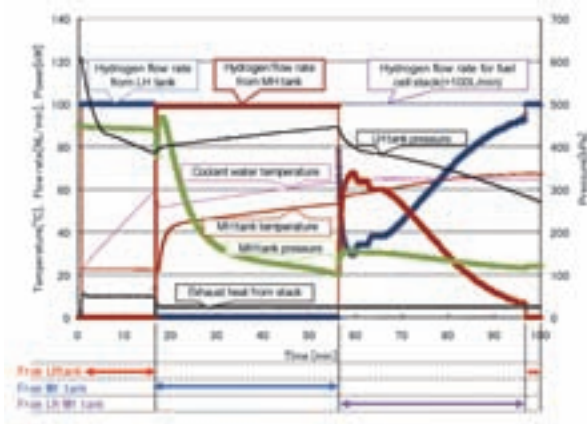


Fig. 4 Hydrogen release behavior from MH tank

Fig. 4においてMHタンクから単独で水素が供給された時間は、Fig. 2における時間よりも長くなった。トリガ温度T1やトリガ圧力P2の設定を変更したためである。以上の結果から、実際に液体水素タンクとMHタンクおよびスタックシミュレータを接続した場合にも、これまでの検討結果を反映させたトリガ条件を選定することで、MHタンクから優先的に水素を放出させることができることを確認した。なお、先に述べたようにスタックシミュレータの冷却水量は実際の自動車よりも多いので、MHタンクからの単独供給が開始するまでの時間はより短縮される。

実証試験（吸蔵・放出試験）時の全期間における液体水素タンクとMHタンクの圧力およびMHタンクの水素吸蔵量をFig. 5に示す。

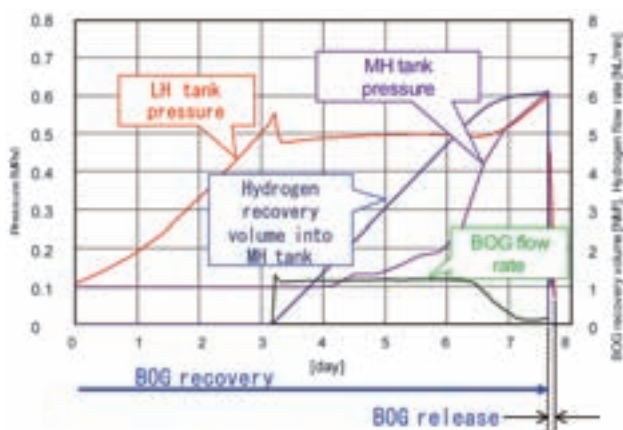


Fig. 5 BOG recovery and release test

ここで、今回使用した液体水素タンクの蒸発率は5.85%/dayであったため、液体水素タンクから水素放出を開始するまでの時間（液体水素タンク昇

圧に要する時間）は、実験データに5.85/2を乗ずることで蒸発率2%/dayに相当する時間としている。液体水素タンクからMHタンクへのBOGの回収とMHタンクに回収した水素の利用期間を合わせると1週間以上の期間になった。

4. まとめ

開発したシステムによれば、車載液体水素タンク（内容積100L、蒸発率2%/day）から発生するBOGを1週間以上大気放出させることなくMHタンクに回収し、運転時に利用できることを実規模のシステムで実証した。

今回の実証試験では、液体水素タンクの内圧が0.6MPaGに到達してからMHタンクへのBOGの回収を開始した。このMHタンクへのBOGの回収方法については、液体水素タンクの内圧が大気圧状態にある初期状態からMHタンクへのBOGの回収を開始することで、1週間トータルでのBOG発生量を低減できることも一連の検討の中でわかった。この回収方法によれば、開発したシステムの優位性がさらに増すことになる。

また、今回の実証試験においては、液体水素タンクからの水素供給は終始ガス相からの供給であり、MHタンクからの放出完了時の液体水素タンクの圧力はFig. 4から280kPaG程度であった。液体水素タンクの圧力が280kPaGの時点からMHタンクへの水素吸蔵が終了するまでの期間はFig. 5の結果から約6日間である。放出試験終了時から連続して再度吸蔵試験を実施する場合でも約6日間はBOGを大気に放出することなくMHタンクへ回収することができることになる。従って、実証試験の条件で連続的に回収放出をした場合にも、開発したシステムがBOGの低減に有効であるといえる。

本研究は、(独)新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の委託により行った水素安全利用等基盤技術開発—車両関連機器に関する研究開発—車載液体水素タンクのボイルオフ低減技術の開発の一部である。

参考文献

- 1) 橋正好行ほか：車載液体水素タンクのボイルオフ低減技術の開発，自動車研究，Vol.28, No.7, p.289-292（2006）