

液体水素温度における磁気冷凍技術の開発

Development of Magnetic Refrigeration at Temperature of Hydrogen Liquefaction

技術本部 大平 勝 秀*¹ 中道 憲 治*²

名古屋誘導推進システム製作所 吉田 裕 宣*³

近年液体水素は、ロケット燃料のみならず、クリーンエネルギーとしてその需要が高まりつつあることから、液化コストの低減が大きな課題となっている。磁気冷凍はガス冷凍と比較して効率が良く、水素液化への適用が期待されている。本研究では磁気冷凍サイクルでの吸熱スイッチとして、水素液化用ヒートパイプの検討を行い、カルノー型の磁気冷凍サイクルによる水素液化試験を行った。その結果、水素液化温度である 20.3 K で、液化量 3.55 g/h (50 cc/h)、冷凍出力 0.4 W が得られ、水素液化用磁気冷凍機実用化の可能性が示された。

Liquid hydrogen is being used not only as rocket fuel but as clean energy. When hydrogen demands increase, a major issue will be the reduction of liquefaction cost. Magnetic refrigeration is expected to be more efficient than gas cycle refrigeration for liquefaction. We studied a thermal siphon type heat pipe for hydrogen liquefaction as an absorption heat switch in the magnetic refrigeration cycle and conducted an experimental study of magnetic refrigeration operating in a Carnot cycle. Liquefaction rate of 3.55g/h (50cc/h) or refrigeration power of 0.4 W at 20.3 K was achieved. We could indicate the possibility of practical hydrogen liquefaction by magnetic refrigeration.

1. ま え が き

液体水素はロケット燃料用としての利用が主であったが、近年地球環境問題を背景に WE-NET 等の産業分野で需要の拡大、大量消費が予想されており、その液化コストの低減が課題となっている。

図 1 (a)に示すように、ガス冷凍ではガスの圧縮・膨張の繰返しにより寒冷を発生させるのに対して、磁気冷凍では超伝導マグネットの発生する強磁場を磁性体に印加・除去するサイクルを繰返して寒冷を発生する。このとき排熱と吸熱を等温条件に近い形で実現できるので、効率的な冷凍サイクルが実現できる可能性があり、水素液化コストの低減をねらいとして、磁気冷凍法の適用が検討されている。

2. 磁気冷凍サイクル

磁気冷凍機は、図 1 (a)に示すように磁性体、磁性体に強磁場を加える超伝導マグネット、磁性体から吸熱、排熱を行う二つの熱スイッチで構成される。

図 1 (b)により磁気冷凍サイクルの動作を簡単に説明する。

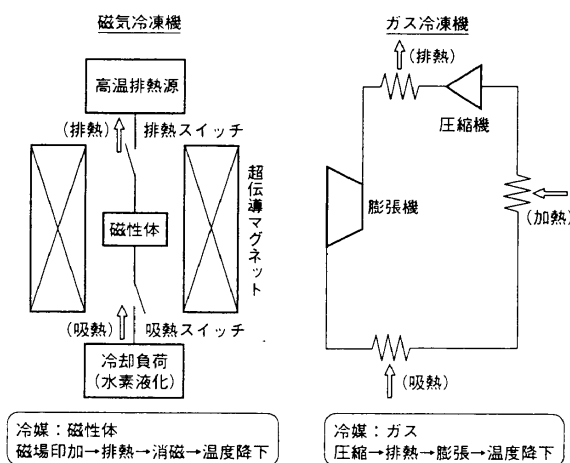
断熱された磁性体に磁場を加えると温度が上昇する（断熱励磁過程：A → B）、引続き磁場を励磁し、ある温度において排熱スイッチを閉じて高温熱源に等温的に排熱する（等温励磁過程：B → C）。次に排熱スイッチを開いて、磁場を消磁していく（断熱消磁過程：C → D）、ある温度において吸熱スイッチを閉じると、冷却負荷より熱を吸熱できる（等温消磁過程：D → A）。以上 4 つの過程を繰返して、周期的に寒冷を発生することができる。

3. 磁気冷凍装置の熱設計

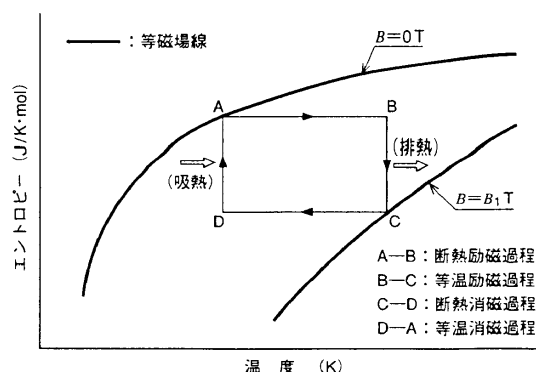
3.1 試験装置構成

磁気冷凍を用いて水素を液化することを目的として、図 2 に示す磁気冷凍装置を試作した。本研究では磁性体を磁場中に静置して磁場を変動させる静止型を採用した。

磁性体には円柱形状（直径 0.035 × 高さ 0.1 m, 0.7 mol）の



(a) 磁気冷凍とガス冷凍の比較



(b) 磁気冷凍サイクル

図 1 磁気冷凍の原理と磁気冷凍サイクル 磁気冷凍機の構成と磁気冷凍サイクルの 4 つの過程を示す。Schematic diagram of magnetic refrigeration principles and magnetic Carnot cycle

GGG ($Gd_3Ga_5O_{12}$) 単結晶を用いた。この GGG は、液体水素温度 (20.3 K) で、現状有力な磁性体である。

超伝導マグネットには、励磁時間を短縮し、冷凍出力の向上を

*¹ 長崎研究所ターボ機械研究室長

*² 長崎研究所ターボ機械研究室

*³ エンジン・機器部次長

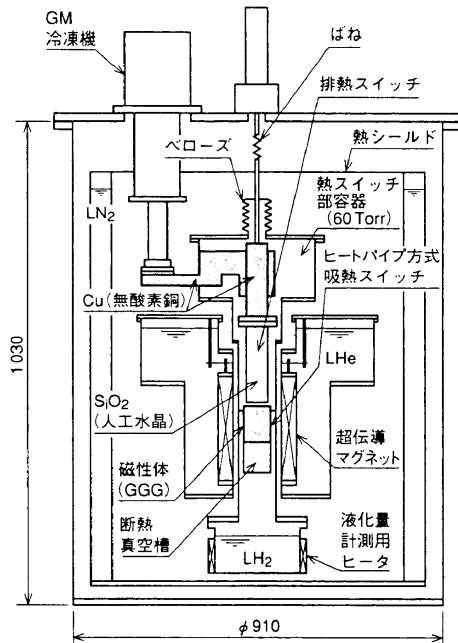


図2 磁気冷凍装置断面 磁気冷凍装置の構成要素を示す。
Cross sectional view of magnetic refrigeration test apparatus

図るため、磁場励磁速度の大きいパルス作動型の超伝導マグネット（外径0.116×ボア径0.085×高さ0.2 m）を用いた。このマグネットは、励磁電流150 Aにおいて最大磁場5 T（テスラ）を発生し、磁場励磁速度は最大で0.36 T/sである。

3.2 排熱及び吸熱スイッチの熱設計

図3に磁性体と熱スイッチの詳細構造を示す。磁気冷凍では冷媒が固体であるため、固体表面からの直接の吸排熱方式について検討する必要がある。また単位体積当りの寒冷発生量が、ガス冷凍方式に比べ大きく、冷凍機をコンパクトにできる反面、限られた伝熱面積から一度に多くの熱量を磁性体より吸、排熱する必要があり、熱スイッチの性能向上が課題である。

3.2.1 排熱スイッチ

磁性体の上方には人工水晶（ SiO_2 ）と無酸素銅で構成された排熱スイッチが設置されており、さらに排熱用のGM冷凍機（蓄冷式の小型冷凍機）に結合されている。排熱スイッチ先端では、過電流に起因するジュール発熱損失を低減するため、絶縁体でかつ、熱伝導率が高い SiO_2 を使った。

排熱スイッチはGM冷凍機の寒冷ヘッドに固定された銅ブロックに接触したまま上下動し、磁性体に接触して、磁性体の熱をGM冷凍機に排熱する。また排熱スイッチを取めた容器内には、ヘリウムガス（60 Torr）を封入しており、狭い接触伝熱面間でのガスの熱伝導効果を利用して、伝熱性能の向上を図った。この熱伝導効果は、接触面間の距離が狭いほど大きくなるため、磁性体と排熱スイッチの接触面は $0.5 \mu\text{m}$ の鏡面仕上げを施した。

3.2.2 吸熱スイッチ

水素液化の場合、図1(a)に示した冷却負荷は水素ガス液化の際に発生する蒸発潜熱であり、吸熱スイッチはその熱を磁性体へと伝える機構である。

図3に示すように、吸熱スイッチは、 LH_2 容器を蒸発部、磁性体側面を凝縮部とする熱サイホン型のヒートパイプとした。

ヒートパイプ設計では、磁性体側面と磁性体を取める容器の間

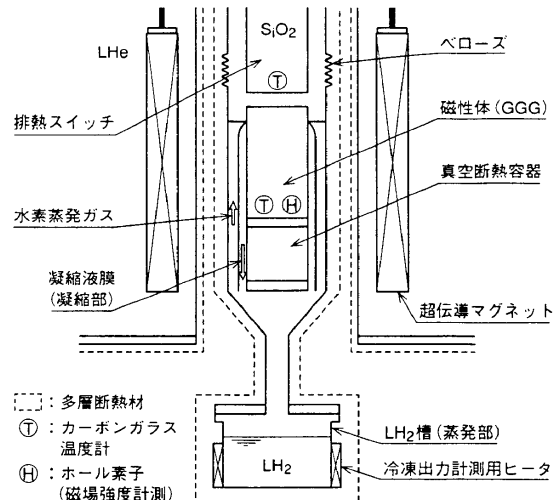


図3 磁性体及び熱スイッチ部の詳細 熱スイッチ部の詳細構造図及び磁場、温度の計測ポイントを示す。
Schematic details of magnetic material and heat switches

表1 水素液化用ヒートパイプの設計条件
Parameters used for design of heat pipe

項目	設計条件
GGG寸法	直径0.035×長さ0.1 m
伝熱面積	0.01143 m ²
熱伝達率	1757 W/m ² K ⁽¹⁾
温度差	1.3 K
(GGGの温度 19 K)	
(水素ガスの温度 20.3 K)	
サイクル運転温度	20.3~25 K

のすきまの大きさが重要である。

磁性体側面に水素ガスが凝縮すると、凝縮量に相当するガスが LH_2 容器から供給される。このとき磁性体容器壁と磁性体の側面に発達した液膜の間に高速の水素ガスが流れると、液膜にさざ波が発生し、すきまが閉そくして、水素ガスが供給されにくくなり、液化量が低下する。また磁性体の周りには、磁性体容器や、吸熱過程以外の三つの過程で水素ガスが存在する。断熱励磁中は、周囲に先行して温度が上がる磁性体から、周囲へ熱が流れ、逆に断熱消磁中は磁性体へ熱が流れる。その結果、カルノーサイクルが変形し、冷凍出力が低下する。

以上の議論より、凝縮部すきまの大きさは、 LH_2 容器から凝縮部すきまへ供給される水素ガスと凝縮部下液膜の干渉及び断熱過程で、磁性体周囲の水素ガスと磁性体容器から磁性体へ流入する熱量を考慮して決定する必要がある。表1に水素液化用ヒートパイプの設計条件を示す。

3.2.3 凝縮部におけるフラiddングの発生限界

管壁に沿って液が膜状に流下し、気相を上向きに流す対向二相流では、気相流速が増大すると、液膜が乱れ、液の一部が上昇を開始する。このときの気相速度をフラiddング速度と呼ぶ⁽²⁾。凝縮部すきまが小さくなると、そこを通る水素ガス流速は増大し、フラiddングが発生しやすくなる。そこで、フラiddングが発生しない凝縮部すきまの大きさをWallisの評価式(1)、(2)を用いて検討した⁽²⁾。

$$U_1^* = U_1 \rho_1^{1/2} / [g(\rho_L - \rho_G) D]^{1/2} \quad (1)$$

$$\sqrt{U_G^*} + \sqrt{U_L^*} = C \quad (2)$$

ここで、

U_i : 見掛けの流速

ρ_l : 密度

g : 重力加速度

D : 凝縮部直径

添字 i: G=気相, L=液相

C 値: フランジ形状 0.725

フラッディングは、凝縮面最下部で発生しやすいと考え、また気液界面の相互作用が問題となるため、液体流速 u_L には液膜表面流速 u_δ を用いた。液膜厚さ δ 、液膜表面流速 u_δ はヌセルトの層流液膜の式(3)、(4)を用いて、蒸気流速 u_G は式(5)を用いて計算した。

$$\delta = \left[\frac{4K_L u_L L \Delta T}{g \rho_L (\rho_L - \rho_G) h_{fg}} \right]^{1/4} \quad (3)$$

$$u_\delta = \frac{g(\rho_L - \rho_G) \delta^2}{2\mu_L} \quad (4)$$

$$u_G = \frac{h_m A \Delta T}{\rho_G A_{gap} h_{fg}} \quad (5)$$

ここで、

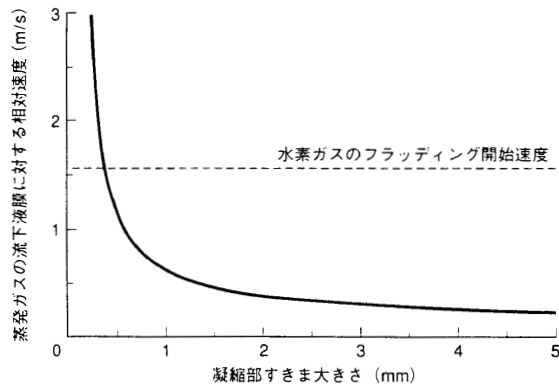
K_L : 液の熱伝導率

L : 伝熱面長さ

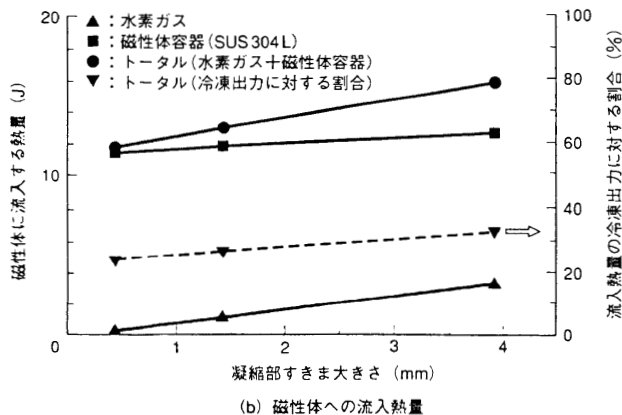
ΔT : 磁性体と壁の温度差

g : 重力加速度

h_{fg} : 蒸発潜熱



(a) フラッディングの発生



(b) 磁性体への流入熱量

図4 フラッディング発生及び磁性体への流入熱量に対する凝縮部すきま大きさの影響 凝縮部すきま大きさに対する水素ガス速度及び磁性体への投入熱量変化の計算結果を示す。
Calculated results of gas velocity relative to liquid film velocity and heat capacity losses of the magnetic material according to gap width change

μ_L : 液の粘性係数

h_m : 平均熱伝達率

A : 伝熱面積

A_{gap} : 凝縮部すきま面積

表1の条件では、 $\delta=0.075$ mm, $u_\delta=0.15$ m/s, $u_G=0.33$ m/sとなる。

図4(a)に凝縮部すきま大きさと水素ガスの水素液膜に対する相対速度の関係を示す。すきまの大きさが0.4 mm以上では、フラッディングは発生しない。

3.2.4 磁性体周囲熱負荷の検討

図4(b)に凝縮部すきま大きさと断熱過程における磁性体への流入熱量の関係を示す。流入熱量はサイクルの運転温度が20~25 Kの場合、磁性体周囲の熱負荷(凝縮部すきまの水素ガス及びSUS 304 L製ステンレス容器)も同様に20~25 Kで温度変化すると考え、熱負荷の熱量変化から求めた。

以上の検討結果より凝縮部すきま大きさを常温で1.5 mmにした(20 Kでは1.4 mmに熱収縮する)。このとき流入熱の磁気冷凍サイクル吸熱量に対する割合は、25 %程度に抑えられる。

4. 水素液化試験結果

排熱スイッチ及び超伝導マグネットの予冷後、磁気冷凍サイクルを開始した。図5に20.3 K (T_l) から25 K (T_h) の間で動作する磁気冷凍サイクルでのGGG温度、磁場(最大5 T)、LH₂槽圧力の経時変化を示す。励磁過程では、磁性体が発熱すると排熱スイッチを接触させ排熱し、消磁過程では、磁性体の温度が水素液化温度(20.3 K)以下になると、磁性体表面で水素ガスが凝縮し液化する。このサイクルを繰り返して、LH₂槽の圧力、温度が安定するように、冷凍出力計測用ヒータの調整を行い水素液化量を測定する。

4.1 磁気冷凍サイクルにおけるスイッチの特性

図5に磁気冷凍サイクルにおける排熱スイッチ温度を示す。筆者らが以前試作した排熱スイッチでは、磁性体と熱スイッチの接触が不十分なため、熱スイッチの伝熱性能(単位温度差当り排熱される熱量)は0.07 W/Kであった⁽³⁾。図3に示す排熱スイッチでは、ベローズとばねを用いて接触機構を改良し、伝熱性能が0.34 W/Kまで改善された。

ヒートパイプの性能は実験結果より、6 W/Kと推定される。液化効率(実験における吸熱量の理想サイクル吸熱量に対する割合)

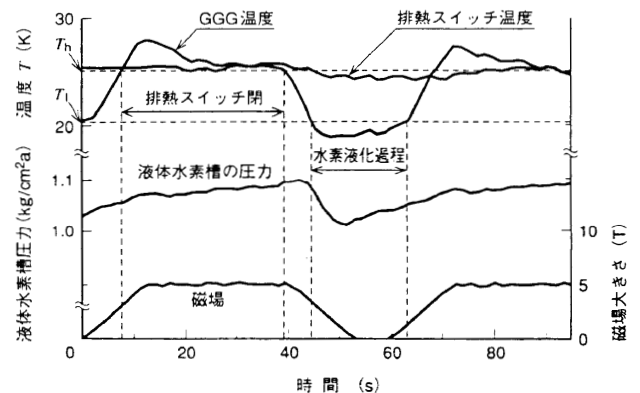
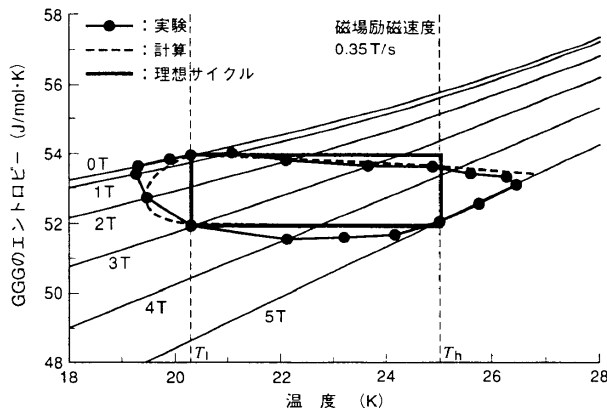
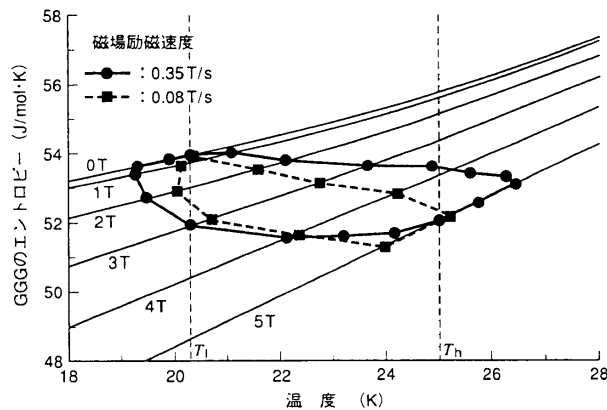


図5 磁気冷凍サイクルにおける各部温度及び磁場変化 磁気冷凍サイクル中の磁性体及び熱スイッチ温度、磁場強さ、LH₂槽圧力の時間変化を示す。
Magnetic refrigeration process



(a) 実験結果と計算結果の比較



(b) 磁場励磁速度の影響

図6 実験によって得られた磁気冷凍サイクル GGGの温度エントロピー線図上に、実験で得られたカルノーサイクルを示す。
Experimental results of magnetic Carnot cycle on T-S diagram of GGG

は磁場励磁速度が0.36 T/sのとき78%であり、熱負荷による冷凍出力損失及びフラッキングの影響は低く抑えられていると考えられ、ヒートパイプの設計手法が妥当であったことを示している。

4.2 磁気冷凍サイクル試験

最大磁場5 T、磁場励磁速度0.08 T/sから0.36 T/s、排熱温度25 Kとして液化試験を実施した。また、実験条件をパラメータとしてサイクル計算を実施した⁽⁴⁾。図6(a)は実験及び計算によって得られたサイクルをGGGの温度-エントロピー線図上に示したものである。実験と計算でサイクルがおおよそ一致すること及び磁性体への流入熱の影響によるサイクルのひずみは小さいことが確認された。図6(b)に磁場励磁速度が冷凍サイクルに及ぼす影響について示す。励磁速度が遅い場合、サイクルのひずみが大きく、排熱温度が低下するとともに、液化過程におけるエントロピー変化も減少し、冷凍出力が低下する。図7は最大磁場を5 T、排熱温度を25 Kに固定し、励磁速度を変化させたときの冷凍出力(液化

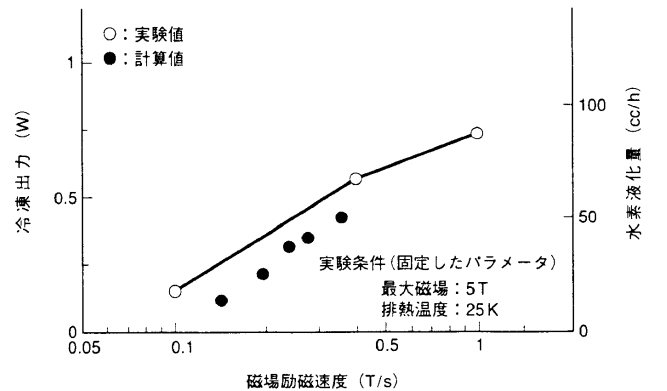


図7 冷凍出力の実験値と計算値の比較 磁気冷凍サイクルで得られた冷凍出力(水素液化量)と磁場励磁速度の関係を実験と計算で比較した結果を示す。
Experimental and calculated results of magnetic refrigeration power at various ramp rates

量)に対する影響を示している。実験結果はほぼ計算値と一致しており、実験結果が妥当であることを示している。冷凍出力は、励磁速度0.36 T/sのとき、最大0.4 Wが得られた。これは液化量に換算すると3.55 g/h (50 cc/h)に相当し、カルノー効率37%であった。

5. まとめと今後の展開

液体水素製造技術として、磁気冷凍技術を用いた水素液化について、その特徴と基礎技術の開発状況について述べた。将来のスペースプレーンによる大量宇宙輸送時代や、宇宙開発技術の民生技術への適用拡大において、液体水素の需要が増加し、水素製造コスト低減を図る上で、本技術はますます重要になると思われる。

また、スペースプレーン燃料として検討されているスラッシュ水素の製造法として、1 t/dの磁気冷凍装置が計画されている⁽⁵⁾が、磁気冷凍実用化には、磁性体、超伝導マグネット等の要素技術の進展が必要であり、今後とも研究開発に努めていく考えである。

参考文献

- (1) Ohira, K. et al., An Experimental Investigation of Film-Condensation Heat Transfer of Hydrogen in a Vertical Tube, Adv. Cryog. Eng., Vol.35 (1990) p.421
- (2) 門出正則ほか、二相熱サイフンの限界熱流束の解析的研究(最大液化流量と限界熱流束の関連について)、日本機械学会論文集 Vol.61 No.591 (1995) p.303
- (3) Ohira, K. et al., The Characteristics of Magnetic Refrigeration Operating at the Temperature of 20K, 16th IEC Proceedings (1996) p.403
- (4) Numazawa, T. et al., Carnot Magnetic Refrigerator Operating Between 1.4 and 10K, 6th International Cryocooler Conference Vol.II (1990) p.199
- (5) Waynert, L. A. et al., Production of Slush Hydrogen using Magnetic Refrigeration, Cryog. Process Equip (1989) p.9