金属水素化物用フィン付き熱交換器*

青木博史^{*1}, 三井宏之^{*1}Tubular Heat Exchangers with Internal Longitudinal Fins
for Metal Hydride Reaction Beds

Hiroshi AOKI and Hiroyuki MITSUI

The purpose of this study is to clarify the effects of internal longitudinal fins for annular metal hydride reaction beds. Twenty-one kinds of cylindrical tubes with stainless steel internal fins were filled with metal hydride powders (LaNi₅). Experimental investigation and numerical analysis were carried out for annular reaction beds (length : 150mm, inner diameter : 40mm) and the relationships between the internal fin geometries and the reaction rates were clarified. In addition to fin geometries, the thermal conductivity and the thermal capacity of the fins were determined to be important factors determining the heat exchanger performance.

Key Words : Metal Hydride, Heat Conduction, Internal Longitudinal Fins, Tubular Heat Exchanger, Experimental Analysis, Numerical Analysis

1. 緒 言

金属水素化物は、高密度な水素ガスの貯蔵材・輸送材として、あるいは反応に伴う発熱・吸熱を利用した蓄熱材として、さらにはケミカルヒートポンプ、二次電池などへの応用が期待されている。しかし、通常の金属水素化物は粉末のため熱伝導率はガラスなみしかなく熱が伝わりにくいので、水素化物粉末の充てん容器の設計が悪いと伝熱律速条件となり反応の進行が阻害され、水素化物本来の性能が得られない。そのため、多くの研究者が水素化物粉末層への熱伝達の改良研究を進めている。この方法として、水素化物粉末に圧縮成形などの加工を加え有効熱伝導率を向上させる研究^{(1)~(3)}と、熱交換器の構造改良により熱伝達性能を向上させる研究⁽⁴⁾⁽⁵⁾とに大別される。熱交換器の構造改良としては、伝熱フィンの付加により伝熱面積を増し、水素化物粉末と伝熱面との距離を短くするのが一般的であるが、フィン効果に関する系統的な研究はなされていない。本報は、水素化物用インナフィン付き熱交換器の性能を実験と計算により評価し、フィン諸元

(枚数、高さ、厚さ、形状など)が水素吸蔵・放出速度に及ぼす影響を明らかにしたものである。

主 な 記 号

b : フィン根元厚さ(図2)
 C : 吸蔵水素量
 C_i : 初期吸蔵水素量
 $C_{\max}$: 最大吸蔵水素量
 $C_{\min}$: 最小吸蔵水素量
 C_p : 比熱
 d : フィルタ直径(図2)
 ΔH : 反応生成熱[式(1)]
 h_f : フィン高さ(図2)
 M : 水素吸蔵合金(図1)
 MH_x : 金属水素化物(図1)
 n_f : フィン枚数
 P_a : 水素圧力[式(2), (3)]
 P_e : 平衡圧力[式(2), (3)]
 ΔP_i : 初期圧力差 $= P_a - P_e$
 Q : 反応熱量(図1)
 T : 絶対温度
 t_i : 初期温度

* 昭和63年6月1日 第25回日本伝熱シンポジウムにおいて講演。原稿受付 平成2年5月23日。

^{*1} 正員、(株)豊田中央研究所(〒480-11 愛知県愛知郡長久手町)。

t_{out} : 熱交換器出口空気温度
 t_w : 熱媒温度
 V_a : 風量
 V_{H_2} : 反応水素量 (図 3)
 $\dot{V}$: 水素吸蔵・放出速度 [式 (1)]
 γ_{H_2} : 水素ガス比重量 [式 (1)]
 δ_{hyd} : 水素化物層厚さ (図 2)
 λ : 熱伝導率
 λ_{hyd} : 水素化物熱伝導率
 ρ : 水素化物密度 [式 (1)]
 τ : 時間

2. 実験装置および計算方法

図 1 が本実験に使用した装置の概略である。実験は、熱交換器周囲に一定温度の熱媒を流し水素化物層と熱交換させる。水素化物層温度が一定な定常状態になった後、空気圧作動弁を開け水素ガスの吸蔵(放出)反応を開始し、タンク 1 およびタンク 2 の圧力変化から水素ガス吸蔵(放出)量を測定した。図 2 がフィン付き熱交換器の構造で、容器と同心軸上に挿入されたパイプ状のフィルタと容器内壁との間に水素化物(LaNi₅)を充てんした。水素化物は、あらかじめ別の容器で水素の吸蔵・放出を繰返し実施し、十分に水素化が進んだものを充てんした。水素化物粉末は、球状ではなく複雑な形状の多面体で、多数のクラックがはいって

る。光透過式粒径分布測定器で計った分布は正規分布に近く、平均粒径は 17 μm であった。実験のパラメータには、フィン枚数・厚み・高さ・形状を選び、表 1 に示した 21 種類のフィン付き管について評価した。

計算は二次元円筒モデルを用い、熱伝導方程式に水素化物の反応熱を付加した式 (1) を次の仮定のもとで差分計算した。

- (1) 軸方向への熱流れはない
- (2) 水素ガスの顕熱量は無視
- (3) 熱物性値の温度依存性はない

$$C_p \cdot \rho \cdot \frac{\partial T}{\partial \tau} = \lambda \left(\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 T}{\partial \theta^2} \right) + \dot{V} \cdot \gamma_{H_2} \cdot \Delta H \quad \dots\dots\dots (1)$$

式 (1) の $\dot{V}$ は反応速度式で、水素吸蔵・放出反応に対してそれぞれ実験式 (2), (3) を用いた。

$$\dot{V} = 7.4 \cdot 10^{-4} \frac{(P_a - P_e)^2}{P_e} \cdot \exp\left(\frac{-4879}{T}\right) \times \left\{ \left(\frac{C_{\max} - C}{C_{\max}} \right)^{1/3} - 1 \right\}^{-1} \quad \dots\dots\dots (2)$$

$$\dot{V} = 7.4 \cdot 10^{-4} \frac{(P_a - P_e)^2}{P_e} \cdot \exp\left(\frac{-4879}{T}\right) \times \left\{ \left(\frac{C - C_{\min}}{C_{\max}} \right)^{1/3} - 1 \right\}^{-1} \quad \dots\dots\dots (3)$$

実験式 (2), (3) は、水素の吸蔵・放出を十分に繰返し (20 回以上)、反応速度が安定した状態の水素化物粉末について測定した結果で、適用範囲は、温度が 0~80°C、水素圧力が 0~1.1 MPa である。

3. フィン諸元と反応速度

各フィン諸元の影響を、実験結果および計算結果の代表例で説明する。図 3 が計算結果と実験結果との対応で、図 3 (a) が吸蔵反応時、図 3 (b) が放出反応時である。計算結果と実験結果の違いは 10 % 以下で、評価には実用上問題ない精度であることを確認した。

3.1 フィン枚数の影響 図 4 が、フィン形状の異なる 2 種類のフィン付き熱交換器について、フィン

表 1 インナフィン付き管寸法諸元

n_f	$\frac{h_f}{d}$	15.1 mm		12.15 mm		9 mm	
		b	d	b	d	b	d
4	$\phi 9.8$						
	$\phi 15.7$			2 mm	4 mm		
8	$\phi 9.8$	1 mm	2 mm	1	2	1 mm	2 mm
	$\phi 15.7$			$\uparrow$	$\uparrow$	$b=2\text{mm}$ $b=1\text{mm}$	$\uparrow$
	$\phi 22$						$\uparrow$
12	$\phi 9.8$	0.67					0.67
	$\phi 15.7$			0.67	1.33		
16	$\phi 9.8$	0.5					0.5
	$\phi 15.7$			0.5

図 1 実験装置

図 2 フィン付き熱交換器構造

枚数を増減させた場合の水素吸蔵・放出速度の測定結果である(○:く形フィン, △:三角形フィン)。フィン枚数の増加に反比例してフィン厚みを薄くし、熱容量を一定にした。その結果、フィン枚数の増加は反応速度をある程度まで向上させるが、フィン厚みの減少によりフィン効率が低下するので反応速度には最適値が存在し、必要以上のフィン枚数の増加は性能をむしろ低下させる傾向がある。図4の実験では12枚に最適値が存在した。図5は、フィン枚数の増加の効果を計算で求めた結果である。実験で得られたフィン枚数の増加に伴う反応速度の減少はみられないが、反応速度の増加割合は次第に減少している。

3.2 フィン厚み・形状の影響

図6は、フィン厚

図3 計算結果と実験結果の比較

図4 フィン枚数の影響(実験結果)

図5 フィン枚数の影響(計算結果)

み1mmと2mmのく形フィンの実験結果である。フィン厚みを増すとフィン効率が改善され、初期1minの水素吸蔵量が10~15%増加する。図7は、フィン形状の影響を調べた計算結果である。フィン厚みの増加に比例して単位水素化物重量あたりの反応速度は速くなるが、フィン厚みの増加により水素化物充てん量が減少し、蓄熱量および総反応水素量の減少につながり、反応速度の増加との兼ね合いで目的に応じた選定が必要となる。フィン根元厚さが等しい場合の反応速度は、フィン効率の低下により、く形フィン>台形フィン>三角形フィンの順に小さくなる。一方、水素化物充てん量が等しくなるフィンの厚み(例えばく形フィンの1mmと三角形フィンの2mm)では、フィン形状による違いは計算範囲内ではほとんどみられなかった。このことは実験でも確認した。

3.3 フィン高さの影響

図8は、水素化物層厚

図6 フィン厚みの影響(実験結果)

図7 フィン厚み・形状の影響

みに対するフィン効果をフィンがない丸チューブに対してフィン付き管について、計算した結果である。水素化物層厚みが小さい場合(2 mm 程度)は、フィンの有無による差はほとんどみられないが、水素化物層厚みが厚くなるとフィン取付けによる効果は大きく、例えば水素化物層厚み 10 mm では 30 % 程度反応速度が増加する。これは、水素化物粉末の熱伝導率が悪いことに起因している⁽⁶⁾。

図 9 が水素化物層厚みを一定にして、フィン高さを変化させたときの反応水素量の実験結果である。フィン高さの増加に対し反応水素量も増加するが、増加割合は小さい。これは、円筒容器を使用しているため、フィン高さ増加による効果が、円筒容器中心付近の水素化物量の少ない領域にのみ影響すること、フィン効果そのものが低下することによる。

3・4 水素化物および熱交換器熱抵抗の影響 図 10 は、水素化物層および熱交換器の熱抵抗(熱伝導率)が反応速度に及ぼす影響の計算結果である。水素化物粉末そのものの熱伝導率は $2 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 以下であり、図 10 から熱伝導率が反応速度に大きく影響する領域であることがわかる。LaNi₅ の熱伝導率は $0.7\sim 1 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ ぐらいであるが、伝熱改良技術(水素化物粉末への銅めっき、銅粉、アルミニウム粉などの良熱伝導材との混合圧縮成形など)により水素化物層の有効熱伝導度を $2 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ にできれば、ステンレス製容器の場合で反応速度が約 40 % 増加し、大幅な性能改善につながる。また、容器材質をステンレスから銅に変更すると(同じ肉厚の場合)50 % 程度の反応速度の増加につながる。しかし、機械強度面を考慮すると銅材

を用いた場合厚肉にする必要があり、熱容量、重量の点でマイナスとなるため適切な材料選定が必要となる。

5. 熱交換器性能予測

フィン諸元の反応速度への影響を明らかにしたが、熱交換器性能としては熱交換器熱容量を考慮する必要がある。その性能評価を図 11 の計算モデルで行った。フィン付き管 20 本からなる熱交換器に、水素化物を 8 kg 充てんし、印加水素圧力一定条件下で水素化反応を行わせたとき、0°C の低温空気がこの熱交換器でどれだけ昇温できるかを計算した。図 12 は、熱交換器熱容量一定でフィン枚数を増加したときの結果で、フィン枚数の増加に伴い熱交換器出口空気温度の昇温が速くなり熱交換器性能が改善される。図 13 は、フィン厚みの増加による熱交換器性能への影響を調べた結果で、フィン厚みの増加に伴う熱容量の増加が大きく、熱交換器性能は低下する。フィン高さの増加による熱交換器性能の違いは、計算の範囲内ではほとんどなかった。図 14 は、容器材質がステンレスとアルミニウムの場合に水素化物層熱伝導率が現状とその 8 倍に改善

図 8 フィン効果(計算結果)

図 9 フィン高さの影響(実験結果)

図 10 熱抵抗の影響(計算結果)

図 11 計算モデル

図 13 熱交換器性能(フィン厚さ)

図 12 熱交換器性能(フィン枚数)

図 14 熱交換器性能(熱抵抗)

した場合について、熱交換器性能を比較したものである。水素化物層の熱伝導率が大きくなると、熱交換器出口空気温度の昇温が速くなり、とくにステンレス製容器の場合には、温度伝導率がアルミニウムに比べ1けた以上小さいためその影響が大きくでている。ステンレスをアルミニウムにかえる効果は、水素化物粉末層の有効熱伝導率を8倍に改良するのと同程度の効果がある。

6. 結 論

(1) フィン枚数の増加は、熱交換器熱容量が同一ならば反応速度および熱交換器性能の向上につながるが、フィン枚数の増加に対してフィン厚みを薄くする必要があり、フィン効率の低下から最適値が存在する。本実験では、フィン効率の低下から最適値が存在する。本実験では、12枚に最適値が存在した。

(2) フィン厚みの極端な増加は、反応速度を速くするが熱容量の増加が大きく、熱交換器性能は低下する。ステンレス材を用いた今回の評価では0.5～1.0 mmがよい性能を示した。

(3) フィン形状・高さの違いは、実験の範囲内 ($h_f/\delta_{hyd} \geq 0.6$) ではほとんど性能に影響しない。

(4) 水素化物層および熱交換器の熱抵抗の減少は、性能の大幅な向上につながりフィン効果を十分に生かすことができる。水素化物層の熱伝導率を現状 [$1 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$] の2倍にすれば、およそ40%の性能向上になる。

(5) フィン付き熱交換器を設計する場合、フィン諸元の決定は熱交換器熱容量の増加に注意し、フィン厚み、フィン枚数の増加は慎重に行わなければならない。

文 献

- (1) Suda, S., ほか3名, *J. Less-Common Met.*, **89**(1983), 325.
- (2) Ron, M., ほか1名, *Hydrides for Energy Storage*, (1977), 417, Pergamon Press.
- (3) Groll, M., ほか1名, *Proc. 17th IECEC*, 829201(1982), 1185.
- (4) Rohy, D. A., ほか2名, *Proc. 17th IECEC*, 829197(1982), 1160.
- (5) Arevi, G., ほか2名, *J. Less-Common Met.*, **104**(1984), 341.
- (6) 青木・三井, 化学工学協会第19回秋季大会講演要旨集, (1985), 629.