

令和元年6月24日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05969

研究課題名（和文）水素貯蔵合金ケミカルアクチュエータの動的運動特性の評価

研究課題名（英文）Evaluation of dynamic motion of hydrogen storage alloy chemical actuator

研究代表者

中尾 航（NAKAO, Wataru）

横浜国立大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：60361870

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,800,000円

研究成果の概要（和文）：有限要素法を用いた水素拡散シミュレーションから、水素貯蔵合金中での水素の拡散挙動を明らかにした。

水素貯蔵合金粉末のアクチュエータ特性の動的挙動を直接的に測定可能な装置を開発し、作製した実験システムを用いることで、代表的な水素貯蔵合金であるPdおよびLaNi<sub>5</sub>粉末の水素吸脱着反応によるアクチュエータ特性の動的挙動を測定した。

水素貯蔵合金中での水素拡散解析と水素貯蔵合金粉末単体でのアクチュエータ特性評価の結果を統合することで、水素貯蔵合金アクチュエータの運動特性を評価した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、水素貯蔵合金アクチュエータの運動特性を調査し、その変形挙動を特徴づける水素貯蔵合金中の水素物質移動を解析した。その結果、物理化学的現象と機械的性質を結びつけるナノスケールのマルチフィジックス問題の解の一例を示すことができた。

さらに、水素貯蔵合金アクチュエータという新たなケミカルスマート材料の有用性を示すことに成功した。

研究成果の概要（英文）：From the hydrogen diffusion simulation using the finite element method, we clarified the diffusion behavior of hydrogen in hydrogen storage alloy.

By developing an apparatus capable of directly measuring the dynamic behavior of the actuator characteristics of hydrogen storage alloy powder and using the experimental system produced, hydrogen adsorption and desorption reaction of representative hydrogen storage alloys Pd and LaNi<sub>5</sub> powder The dynamic behavior of the actuator characteristics was measured.

The motion characteristics of the hydrogen storage alloy actuator were evaluated by integrating the hydrogen diffusion analysis in the hydrogen storage alloy and the results of the actuator characterization with the hydrogen storage alloy powder alone.

研究分野：材料工学

キーワード：インテリジェントデバイス 化学反応 水素エネルギー

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

次世代技術は、(動的な)機能の生体模倣であると研究代表者は考えており、生体の機能のほとんどが化学反応に起因することに着目し、ケミカルスマート材料の創出に取り組んでいる。特に、天然材料では適用が難しい高真空、高温環境下で利用できる無機材料系ケミカルスマート材料に着目し、ジェットエンジンタービン翼用自己治癒セラミックスの開発に成功している。本研究では、自己治癒材料開発で培った知見を基に、化学反応を力学機能として利用する無機材料系ケミカルアクチュエータ創出に関する基礎知見の集積を行う。

無機材料を用いたケミカルアクチュエータの有望な駆動源の一つに、水素貯蔵合金の水素吸放出反応が挙げられる。水素貯蔵合金は水素の吸収・放出に伴う相変態により約 9%の体積変化を生じ、大きな変位と発生力を生み出すことができる。過去に金属薄膜と水素貯蔵合金薄膜から成るユニモルフ型アクチュエータが開発され、曲げやねじり運動の挙動が報告している。さらに、研究代表者らは、水素ガス供給装置を内包したカプセル型マイクロアクチュエータ[3]を開発し、その運動挙動を調査している。

水素貯蔵合金を用いたケミカルアクチュエータの設計指針は、自己治癒材料の設計指針と同様にバックキャストを行うことが重要である。これは、双方ともに化学反応を機能発現機構として活用するため、その特性が温度や周辺雰囲気などの使用条件により大幅に変化するためである。したがって、応用部材に適切な構造(運動機構や水素貯蔵合金の配置方法)や水素貯蔵合金を選定することが要求され、これを実践するためには、アクチュエータ構造のバリエーションや水素貯蔵合金のアクチュエータ特性を幅広く整備することが重要である。

### 2. 研究の目的

水素貯蔵合金のアクチュエータ特性の整備の第一段階として、図 1 に示す簡易的な水素貯蔵合金ケミカルアクチュエータを作製し、水素貯蔵合金の水素吸放出反応による動的な運動特性を調査する。

対象である運動特性には、水素の吸放出反応の平衡により達成される静的特性(最大変位等)と上記反応の進行中に観察される動的特性(変位速度等)がある。ここで、水素貯蔵合金の静的な運動特性は、PCT 線図や合金、水素化物の格子定数からある程度推測することが可能である。これに対し、動的な運動特性は、水素の金属中への拡散と水素化物への相変態の化学的な速度論の複合問題であり、さらに、外力による束縛の中での相変態による体積変化や、応力による拡散定数の変化などのメカノケミカル問題を解く必要がある。水素貯蔵合金ケミカルアクチュエータの動的特性は、水素貯蔵合金の動的な運動特性により一義的に決定するため、この挙動の把握は極めて重要である。

得られた結果は、上記の結晶学的、化学反応論的な制約条件を組み込んだマルチフィジックス FEM 解析を実施することで、各物性値との関連性を議論する。

### 3. 研究の方法

本研究では、水素貯蔵合金ケミカルアクチュエータ実現に向けた第一段階として、水素貯蔵合金のアクチュエータ動的特性を評価する指針を確立し、具体的な実験手法の確立を行う。また、その手法の妥当性を検討するために、代表的な水素貯蔵合金である  $\text{LaNi}_5$  や Pd を用いて、室温におけるアクチュエータ動的特性を評価する。また、本特性を水素分圧、作用応力を変数としてデータ集積することで、これらのパラメータが動的特性に与える影響を調査する。さらに、マルチフィジックス現象を加味した FEM 解析を行い、実験値との比較を行う。物性から応用まで各段階における専門家を研究協力者に迎えることで、マルチステージなバックアップ体制を整える。

### 4. 研究成果

本研究では、水素貯蔵合金アクチュエータの運動特性を調査し、その変形挙動を特徴づける水素貯蔵合金中の水素物質移動を解析することで、物理化学的現象と機械的性質を結びつける水素貯蔵合金変形モデルの構築を行った。

水素貯蔵合金中の水素の物質移動に着目し、水素貯蔵合金単体としての運動特性評価を通して、水素貯蔵合金アクチュエータの運動特性を明らかにした。予め、有限要素法を用いた水素拡散シミュレーションから、水素貯蔵合金中での水素の拡散挙動を明らかにした。水素貯蔵合金粉末のアクチュエータ特性の動的挙動を直接的に測定可能な装置を開発し、作製した実験システムを用いることで、代表的な水素貯蔵合金である Pd および  $\text{LaNi}_5$  粉末の水素吸脱着反応によるアクチュエータ特性の動的挙動を測定した。水素貯蔵合金中での水素拡散解析と水素貯蔵合金粉末単体でのアクチュエータ特性評価の結果を統合することで、水素貯蔵合金アクチュエータの運動特性を評価した。

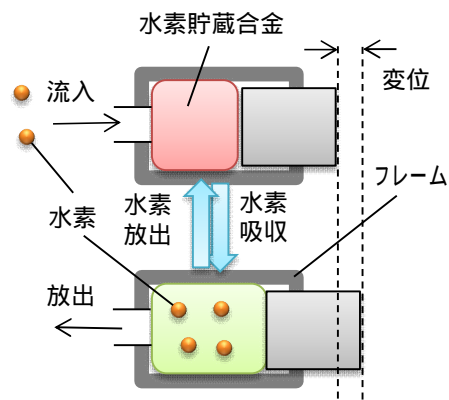


図1 ケミカルアクチュエータの機能発現機構

水素貯蔵合金中の水素拡散に関する詳細は以下である。水素貯蔵合金アクチュエータは、水素の物質移動によって変形が律速される。水素の物質移動を決定する素過程の一つに水素貯蔵合金中の水素拡散が挙げられる。水素貯蔵合金は水素吸収時の格子膨張によって大きな応力が生じるため、合金中の水素拡散挙動は応力による影響を受ける。さらに、水素吸収量が大きくなると拡散に及ぼす濃度依存性が無視できない。これらの効果を踏まえた拡散方程式の有限要素法による定式化を行い、パラジウム合金円筒中での水素拡散シミュレーションを行った。実験結果との比較から、応力効果と拡散係数の濃度依存性を考慮したモデルの方が、フィックの拡散モデルよりも実験結果をより反映しており、その傾向は濃度が上昇するほど顕著になることが明らかになった。

図2に示す水素貯蔵合金のアクチュエータ特性を評価する装置を開発した。本装置は、金属フレーム内を水素雰囲気急速に変化させることができるようになっており、また、図(b)に示す試料容器上部にはばねを設置することで、外圧下での水素貯蔵合金のアクチュエータ特性を評価できるようになっている。

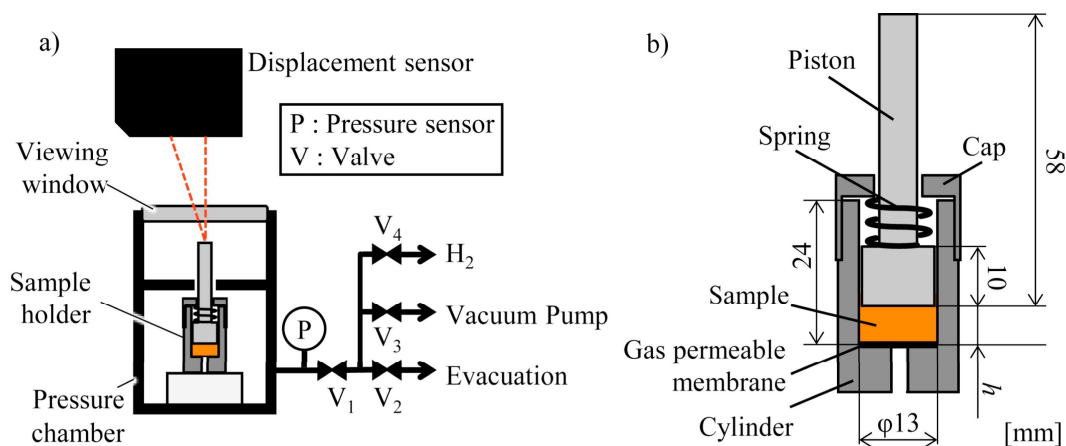


図2 本研究で開発した水素貯蔵合金粉末のアクチュエータ特性評価装置

本装置を用いて、代表的な水素貯蔵合金であるPd、LaNi5の水素吸脱着によるアクチュエータ特性の動的挙動を評価した。図3に実験データの一例として、Pd粉末の水素吸収(a)脱着(b)による動的挙動を示す。図からもわかるように、水素吸脱着反応は、水素分圧の変化とは独自の速度を持ち、かつ脱着反応は吸収速度に比べて極めて遅いことが分かった。得られた挙動は、水素の拡散現象のFEMモデルと比較検討し、実験結果のモデル化を実施した。

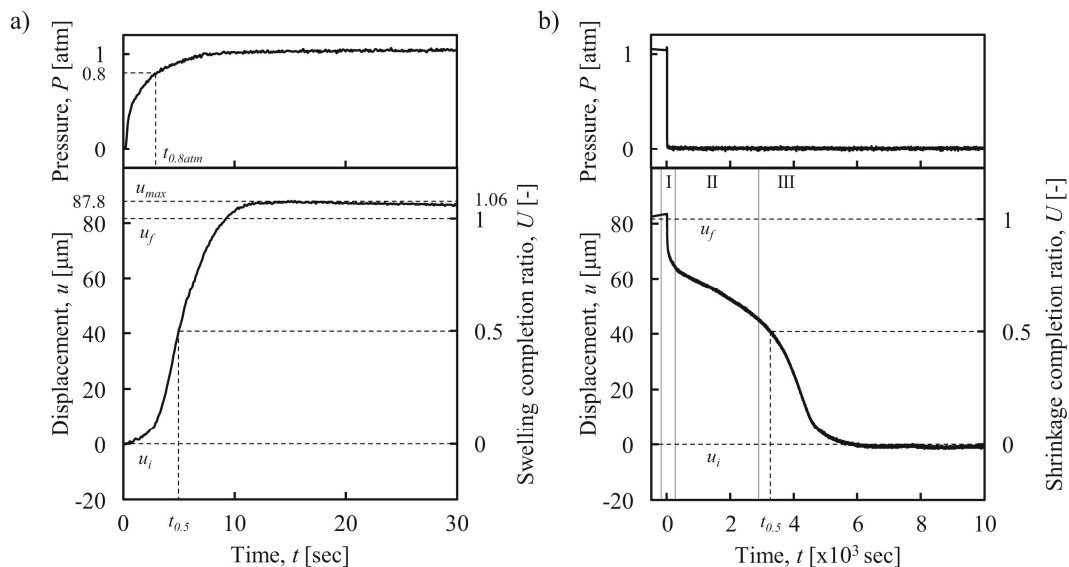


図3 Pd粉末の水素吸脱着反応によるアクチュエータ特性

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計3件)

1. K. Goto, S. Ozaki, W. Nakao, Effect of diffusion coefficient variation on interrelation between hydrogen diffusion and induced internal stress in hydrogen storage alloys, Journal of Alloys and Compounds 691, 705-712, (2017), 10.1016/j.jallcom.2016.08.288 (査読あり)
2. K. Goto, T. Hirata, I. Yamamoto, W. Nakao, Swelling response behavior of palladium

- during hydrogen absorption and discharge, International Journal of Hydrogen Energy 43 (24), 11092-11099, (2018), 10.1016/j.ijhydene.2018.04.199 (査読あり)
3. K. Goto, T. Hirata, T. Higuchi, O. Fuchiwaki, S. Ozaki, W. Nakao, Deformation mechanism of capsule-type hydrogen-storage-alloy actuator, International Journal of Hydrogen Energy, 44 (31), 16877-16886, (2019), 10.1016/j.ijhydene.2019.04.249 (査読あり)

〔学会発表〕(計4件)

1. K. Goto, Development of simulation technique of kinetic behavior for hydrogen storage alloy actuators, ASME2016 Conference on Smart Materials, Adaptive Structures and Intelligent Systems (SMASIS 2016), 2016/9/28-30, Stowe (USA)
2. 後藤 健太、平田 智之、中尾 航、水素貯蔵合金を用いた水素駆動アクチュエータ、日本機械学会 2016 年度年次大会, 2016/9/11-14, 九州大学
3. 後藤 健太、尾崎 伸吾、中尾 航、応力下での水素貯蔵合金アクチュエータの駆動速度変化、日本機械学会 2016 年度年次大会, 2016/9/11-14, 九州大学
4. 平田 智之、後藤 健太、中尾 航、LaNi<sub>5</sub> 粉末を用いた水素貯蔵合金アクチュエータの運動特性評価、第 26 回日本 MRS 年次大会、2016/12/18-22, 神奈川県民ホール

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

(1)研究分担者 なし

(2)研究協力者

研究協力者氏名：後藤 健太、平田 智之、尾崎 伸吾、山本 勲

ローマ字氏名：GOTO, Kenta, HIRATA, Tomoyuki, OZAKI, Shingo Ozaki, YAMAMOTO, Isao

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。