

水素分離システム濃度制御検討に用いる ガス配管系計算モデルの開発

Development of a gas piping system calculation model
for use in hydrogen separation system concentration control studies

矢敷達朗¹⁾, 石田直行¹⁾, 金恩敬¹⁾, 渡部亜由美¹⁾, 稲垣良平¹⁾, 飯塚秀宏¹⁾

Tatsuro Yashiki, Naoyuki Ishida¹, Eunhyeong Kim, Ayumi Watanabe, Ryohei Inagaki and Hidehiro Iizuka

1) (株) 日立製作所 研究開発グループ (〒319-1292 茨城県日立市大みか町7-1-1)

We are developing a hydrogen separation system that separates the mixed gas into hydrogen gas and natural gas using a gas separation membrane to provide hydrogen concentration gas that meets the needs of consumers. In this study, we developed a computational model of a gas piping system for the study of concentration control of a hydrogen separation system, and constructed a computational model based on a pressure correction algorithm using a one-dimensional compressible flow as the basic formula for a transient flow of a gas piping system including a gas separation membrane. The development model was applied to the static and dynamic characteristic calculations, and the calculation results of the development model were confirmed.

Key Words : Gas Separation Membrane, Gas Piping System, One-dimensional Compressible Flow

1. 緒言

地球温暖化問題を背景として、温室効果ガスの削減が全世界的に求められており、水素活用の期待が高まっている。水素社会実現のためには、水素製造エリアと消費エリアが離れていることによる需給の地理的ミスマッチを解消するための水素輸送手段の確立が必要である。水素輸送手段として、トレーラーによる圧縮・液化水素の輸送や水素輸送専用ガスグリッドの設置等の方法があるが、輸送コストが高くなるという課題がある。欧州、豪州では、大量の水素を低コストで輸送する手段として、既存の天然ガスグリッドに水素を混合し、混合ガスとして需要家に輸送することが検討されている[1]。水素社会への移行期には、混合ガスを使用する需要家のほかに、高純度水素または天然ガスを使用する需要家が混在することになる。そのため、混合ガスを水素ガスと天然ガスに分離し、需要家が必要とする水素濃度に調整する必要がある。

著者らは、ガス分離膜[2]にて混合ガスを水素ガスと天然ガスに分離し、需要家ニーズに合わせた水素濃度ガスを提供する水素分離システムを開発している。ガスグリッド内には様々な需要家が存在し、上流の需要家のガス利用状況によってガスグリッド内の水素濃度が変動する可能性がある。天然ガスの主成分であるメタンは、水素と燃焼熱が大きく異なるため、ガスグリッドの水素濃度変動に対して、需要家に提供する製品ガス中の水素濃度を一定とする必要がある。開発中の水素分離システムでは、ガスグリッドから供給される混合ガスの流量と圧力を調節することで、製品ガスの水素濃度を制御し、需要家に一定水素濃度の製品ガスを供給可能とする。

開発システムでは、ラボスケールの実験とシミュレー

ションにて水素濃度制御方式を検討している。開発システムはガス分離膜、弁、ガス配管から構成されるガス配管系である。分離膜を対象とした流れ解析に関する研究として、流れをプラグフローでモデル化して計算した事例[3]、市販のCFDソルバーを用いて3次元流れを計算した事例[4]があるが、いずれも定常流れを対象としており、非定常流れを対象とした研究事例は見当たらない。本研究では、水素分離システム濃度制御検討に用いるガス配管系計算モデルを開発した。ガス分離膜を含むガス配管系の非定常流れを対象として、1次元圧縮性流れを基礎式とし、圧力補正アルゴリズム[5]に基づいて計算モデルを構築した。本報では、ガス分離膜に対する計算モデルの概要と、開発計算モデルの適用事例を紹介する。

2. 水素分離システム概要

図-1に開発中の水素分離システムの概略図を示す。ガスグリッドから天然ガスと水素ガスを含む混合ガスを抜き出し、ガス分離膜に供給する。ガス分離膜内では、分子サイズの小さい水素ガスが選択的に分離膜を透過することで水素ガスと天然ガスが分離し、透過側から水素リッチガス、未透過側から天然ガスリッチガスが流出する。需要家に供給する製品ガスの水素濃度は、天然ガスリッチガスの一部を水素リッチガスに混合することにより調整される。開発システムでは、ガスグリッド内の水素濃度が変動した場合、供給ガスの水素濃度変化を検知し、供給側、透過側、非透過側に設置した弁で圧力と流量を調節することで、製品ガスの水素濃度を規定値に制御する。

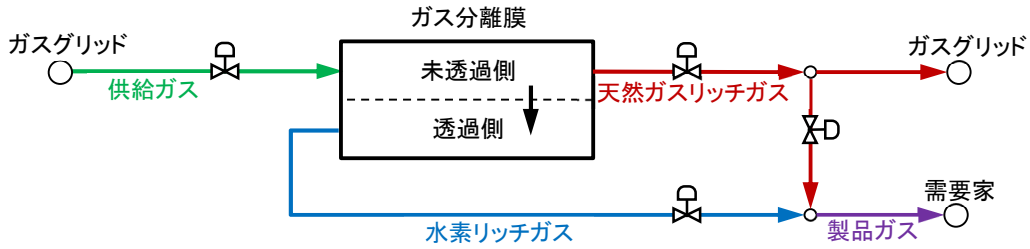


図-1 水素分離システム概要

3. ガス配管系計算モデル概要

(1) 基礎式

本研究ではガス配管系内の混合ガス流れを1次元圧縮性流れで近似し、式(1)～式(4)に示す式を基礎式とする。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial (\rho u)}{\partial x} = \dot{n}_{gen} \quad (1)$$

$$\frac{\partial (\rho u)}{\partial t} + \frac{\partial (\rho u^2)}{\partial x} + \frac{\partial p}{\partial x} + \frac{\rho \lambda u |u|}{2D} = 0 \quad (2)$$

$$\frac{\partial (\rho \omega_j)}{\partial t} + \frac{\partial (\rho u \omega_j)}{\partial x} = \dot{n}_{gen,j} \quad (3)$$

$$p = \rho R T \quad (4)$$

式(1)～式(4)の ρ は混合ガス密度(kg/m³)、 u は混合ガス流速(m/s)、 \dot{n}_{gen} は混合ガス生成速度(kg/m³/s)、 t は時間(s)、 x は配管軸方向座標(m)、 p は混合ガス静圧(PaA)、 λ はダルシー摩擦係数(-)、 D は配管内径(m)、 R は混合ガス気体定数(J/kg/K)、 T は混合ガス温度(K)、 ω_j はガス成分質量分率(wt.%/wt.%)、 $\dot{n}_{gen,j}$ はガス成分生成速度(kg/m³/s)である。本研究では混合ガス温度 T は一定とみなし外部入力条件とする。式(1)の \dot{n}_{gen} と式(3)の $\dot{n}_{gen,j}$ は、ガス分離膜内の流れを模擬するために新たに追加した項であり、ガス分離膜以外の機器ではゼロとなる。式(1)～式(3)に対して、空間の離散化には有限体積法を採用し、時間の離散化には計算の高速化のため陰解法を用いる。本計算モデルでは、離散化式が非線形であるため、圧力補正アルゴリズム[5]

に基づいて圧力補正式、流量補正式、密度補正式、ガス成分質量分率補正式を導出して収束計算を繰り返すことにより、各時間ステップでの未知変数を求める。

(2) ガス分離膜モデル

ガス分離膜モデルでは、分離膜内の未透過側流路および透過側流路内の流れを、流路に沿った1次元圧縮性流れで近似する。ガス分離膜では未透過側から透過側への膜間の物質移動が生じるため、本研究では、未透過側から透過側への膜間の物質移動を質量バランス式(1)、(3)の生成・消滅項としてモデル化した。図-2に示すように、未透過側流路、透過側流路をそれぞれ複数のセルに分割し、各セルを検査体積とする。セルの中心位置に混合ガス静圧 p 、密度 ρ 、温度 T 、ガス成分質量分率 ω_j を定義し、セルの境界面位置にて混合ガス流速 u 、体積流量 Q (m³/s)を定義する。また、未透過側から透過側への膜間のガス成分移動量 $G_{mb,j}$ (kg/s)をセルの生成・消滅項として定義する。以下では、ガス分離膜モデルにおいて、圧力補正アルゴリズムに用いるガス成分質量分率補正式について説明する。

最初に未透過側流路に対するガス成分質量分率補正式を導出する。式(3)をセル i ($i = 1 \sim N$)の領域内で積分して離散化すると式(5)が得られる。

$$\begin{aligned} & V_i \frac{(\rho_i \omega_{j,i} - \rho_i^0 \omega_{j,i}^0)}{\Delta t} \\ & + \alpha [(\rho_e Q_e \omega_{j,e} - \rho_w Q_w \omega_{j,w}) - G_{mb,j,i}] \\ & + (1 - \alpha) [(\rho_e Q_e \omega_{j,e} - \rho_w Q_w \omega_{j,w}) - G_{mb,j,i}]^0 = 0 \end{aligned} \quad (5)$$

式(5)の V はセル体積(m³)、 Δt は時間ステップ(s)である。

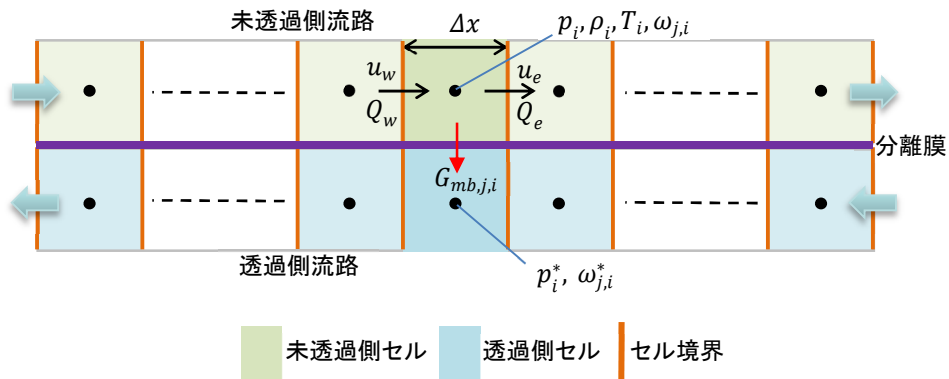


図-2 ガス分離膜モデルに対するセル定義

α は陰解法離散化項と陽解法離散化項を内挿するパラメータであり、 $0.5 \leq \alpha \leq 1.0$ とする。また、下付き添字“ j ”はガス成分インデックス，“ i ”はセルインデックス，“ w ”はセル上流境界面，“ e ”はセル下流境界面，上付き添字“ 0 ”は現在時間ステップの値(既知)を示す。式(5)の未透過側から透過側への膜間のガス成分移動量 $G_{mb,j,i}$ は，各ガス成分の未透過側と透過側間の分圧差 $\Delta p_{j,i}$ を用いて，式(6)～式(9)にて計算される。

$$G_{mb,j,i} = -M_j A_{mb,i} \varphi_j \Delta p_{j,i} \quad (6)$$

$$\Delta p_{j,i} = p_i \beta_{j,i} - p_i^* \beta_{j,i}^* \quad (7)$$

$$\beta_{j,i} = \frac{M_i}{M_j} \omega_{j,i} \quad (8)$$

$$M_i \equiv \frac{1}{\sum_j \omega_{j,i} / M_j} \quad (9)$$

式(6)～式(9)の M_j はガス成分 j のモル質量(kg/kmol)， A_{mb} はガス分離膜面積(m²)， φ_j はガス成分 j のガス分離膜透過速度(kmol/m²/s/Pa)， β_j はガス成分体積分率(vol.%/vol.%)， M は混合ガス平均モル質量(kg/kmol)である。また，式(7)の上付き添字“*”は透過側流路の値を示す。

式(5)において，セル境界面におけるガス成分質量分率値 $\omega_{j,e}$ と $\omega_{j,w}$ に一次風上差分を適用し，ガス成分質量分率の予測値 $\bar{\omega}_{j,i-1}$ ， $\bar{\omega}_{j,i}$ ， $\bar{\omega}_{j,i+1}$ ， $\bar{\omega}_{j,i}^*$ を代入すると式(10)を得る。

$$\begin{aligned} & V_i \frac{(\rho_i \bar{\omega}_{j,i} - \rho_i^0 \omega_{j,i}^0)}{\Delta t} \\ & + \alpha \left[\left(\rho_e \frac{Q_e + |Q_e|}{2} - \rho_w \frac{Q_w - |Q_w|}{2} \right) \bar{\omega}_{j,i} \right. \\ & + \rho_e \frac{Q_e - |Q_e|}{2} \bar{\omega}_{j,i+1} - \rho_w \frac{Q_w + |Q_w|}{2} \bar{\omega}_{j,i-1} \\ & \left. - g(\bar{\omega}_{j,i}, \bar{\omega}_{j,i}^*) \right] \end{aligned} \quad (10)$$

$$\begin{aligned} & + (1 - \alpha) [\rho_e Q_e \omega_{j,e} - \rho_w Q_w \omega_{j,w} - G_{mb,j,i}]^0 = \varepsilon \\ & g(\bar{\omega}_{j,i}, \bar{\omega}_{j,i}^*) \equiv G_{mb,j,i}(\bar{\omega}_{j,i}, \bar{\omega}_{j,i}^*) \end{aligned} \quad (11)$$

式(10)の ε は質量バランスの残差項(kg/s)である。残差項 ε が0となるように，式(12)よりガス成分質量分率を補正し，式(10)に代入すると式(13)を得る。

$$\omega_{j,i} = \bar{\omega}_{j,i} + \omega'_{j,i} \quad (12)$$

$$\begin{aligned} & V_i \frac{\rho_i (\bar{\omega}_{j,i} + \omega'_{j,i}) - \rho_i^0 \omega_{j,i}^0}{\Delta t} \\ & + \alpha \left[\left(\rho_e \frac{Q_e + |Q_e|}{2} - \rho_w \frac{Q_w - |Q_w|}{2} \right) (\bar{\omega}_{j,i} + \omega'_{j,i}) \right. \end{aligned} \quad (13)$$

$$\begin{aligned} & + \rho_e \frac{Q_e - |Q_e|}{2} (\bar{\omega}_{j,i+1} + \omega'_{j,i+1}) \\ & - \rho_w \frac{Q_w + |Q_w|}{2} (\bar{\omega}_{j,i-1} + \omega'_{j,i-1}) \\ & - g(\bar{\omega}_{j,i} + \omega'_{j,i}, \bar{\omega}_{j,i}^* + \omega_{j,i}^{*'}) \\ & + (1 - \alpha) [\rho_e Q_e \omega_{j,e} - \rho_w Q_w \omega_{j,w} - G_{mb,j,i}]^0 = 0 \end{aligned}$$

式(13)の $g(\bar{\omega}_{j,i} + \omega'_{j,i}, \bar{\omega}_{j,i}^* + \omega_{j,i}^{*'})$ をテーラ展開すると，式(14)～式(16)を得る。

$$\begin{aligned} & g(\bar{\omega}_{j,i} + \omega'_{j,i}, \bar{\omega}_{j,i}^* + \omega_{j,i}^{*'}) \\ & = g(\bar{\omega}_{j,i}, \bar{\omega}_{j,i}^*) + \omega'_{j,i} \frac{\partial g}{\partial \omega_{j,i}} + \omega_{j,i}^{*'} \frac{\partial g}{\partial \omega_{j,i}^*} \end{aligned} \quad (14)$$

$$\frac{\partial g}{\partial \omega_{j,i}} = -A_{mb,i} \varphi_j p_i M_i (1 - \beta_{j,i}) \quad (15)$$

$$\frac{\partial g}{\partial \omega_{j,i}^*} = A_{mb,i} \varphi_j p_i^* M_i^* (1 - \beta_{j,i}^*) \quad (16)$$

式(13)に式(10)，式(14)を代入し，ガス成分質量分率補正量 $\omega'_{j,i}$ について整理すると，ガス成分質量分率補正式として式(17)～式(21)が得られる。

$$K_{j,p} \omega'_{j,i} + K_{j,w} \omega'_{j,i-1} + K_{j,e} \omega'_{j,i+1} + K_{j,p}^* \omega_{j,i}^{*'} = -\varepsilon \quad (17)$$

$$\begin{aligned} K_{j,p} \equiv & \frac{V_i \rho_i}{\Delta t} + \alpha \rho_e \frac{Q_e + |Q_e|}{2} - \alpha \rho_w \frac{Q_w - |Q_w|}{2} \\ & - \alpha \frac{\partial g}{\partial \omega_{j,i}} \end{aligned} \quad (18)$$

$$K_{j,w} \equiv -\alpha \rho_w \frac{Q_w + |Q_w|}{2} \quad (19)$$

$$K_{j,e} \equiv \alpha \rho_e \frac{Q_e - |Q_e|}{2} \quad (20)$$

$$K_{j,p}^* \equiv -\alpha \frac{\partial g}{\partial \omega_{j,i}^*} \quad (21)$$

透過側流路に対しても同様のアプローチにてガス成分質量分率補正式を導出すると，式(17)～式(21)が得られる。

以上まとめると，ガス分離膜におけるガス成分質量分率の計算フローの概要は以下となる。

Step1 式(17)を解いて $\omega'_{j,i}$ を算出

Step2 式(12)に $\omega'_{j,i}$ を代入し， $\omega_{j,i}$ を算出

Step3 式(6)～式(9)に $\omega_{j,i}$ を代入し， $G_{mb,j,i}$ を算出

Step4 式(22)に $G_{mb,j,i}$ を代入し，未透過側から透過側への膜間の混合ガス移動量 $G_{mb,i}$ を算出し，圧力補正式[5]に反映

$$G_{mb,i} = \sum_{j=1}^{Nc} G_{mb,j,i} \tag{22}$$

式(22)の Nc は混合ガスのガス成分数である。

4. 適用事例

(1) 静特性計算

開発モデルの妥当性を確認するために、ガス分離膜内の流れをプラグフローで近似して導出した計算モデル[3]（以下、参照モデルとする）の計算値に対して、開発モデルを用いて計算した静定状態での未透過側流路および透過側流路のガス成分体積分率の分布を比較した。本検証計算に対するモデル構成を図-3に示し、計算条件を表-1に示す。本検証計算では、水素とメタンの混合ガスをガス分離膜に供給するものとした。混合ガス供給条件はSource1に対する境界条件として設定し、流量=30.0Nm³/h、水素濃度=20.0vol.%とした。また、未透過側流路圧力と透過側流路圧力はSink1、Sink2に対する境界条件として設定し、未透過側流路圧力=1.0MPaG、透過側流路圧力=0.0MPaGとした。

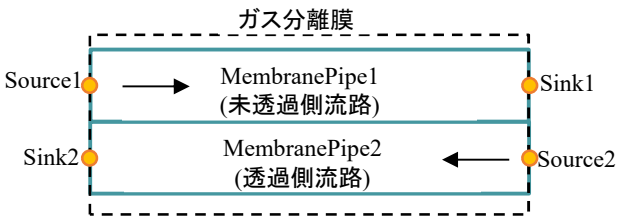


図-3 静特性計算モデル構成

表-1 静特性計算条件

項目		モデル名			
		Source1	Source2	Sink1	Sink2
圧力	MPaG	-	-	1.0	0.0
流量	Nm ³ /h	30.0	0.0	-	-
水素濃度	vol. %	20.0	0.0	-	-

未透過側流路および透過側流路の水素ガス体積分率分布を比較した結果を図-4に示す。グラフ横軸はガス分離膜内の流路位置(m)、縦軸は水素ガスの体積分率(vol.%)である。橙色実線は開発モデルの計算値、青色実線は参照モデルの計算値である。未透過側流路では未透過側と透過側の水素分圧差を駆動力として水素ガスが未透過側から透過側に流出するため、図-4(a)に示すように、流れに沿って水素濃度は低下していく。水素ガスの移動に伴い未透過側と透過側の水素分圧差は減少するため、水素濃度の低下幅は減少していく。逆に、透過側流路では水素ガスが流入するため、図-4(b)に示すように、流れに沿って水素濃度は上昇し、上昇幅は減少する。図-4より開発モデルの計算値は参照モデルの計算値と最大誤差±0.9%以下で一致しを確認した。

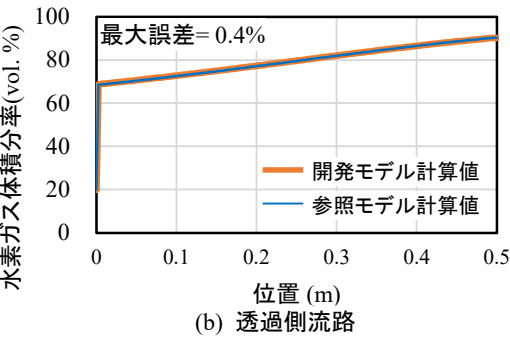
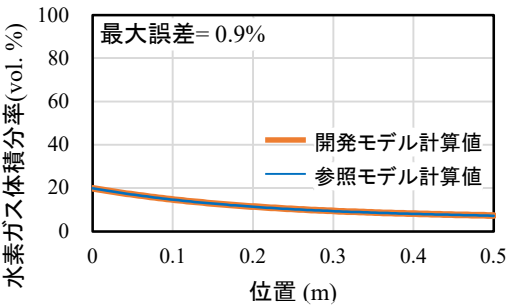


図-4 静特性計算結果

(2) 動特性計算

図-1に示す配管系を対象として、図-5に示す構成で計算モデルを構築し、供給ガスの水素濃度を変動させ、透過側流路出口での水素濃度の応答を計算した。計算条件を表-2に示す。静特性計算と同様に、本検証計算では、水素とメタンの混合ガスをガス分離膜に供給するものとした。混合ガス供給条件はSource1に対する境界条件として設定し、流量=40Nm³/hとした。また、水素濃度は図-6に示す条件にて、ステップ変化幅2.5vol.%で5.0vol.%から15.0 vol.%に段階的に変化させた。未透過側流路圧力と透過側流路圧力はSink1、Sink2に対する境界条件として設定し、未透過側流路圧力=0.8MPaG、透過側流路圧力=0.1MPaGとした。本計算では計算の時間ステップ幅は1秒とした。

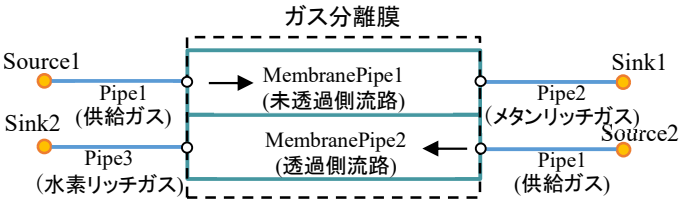


図-5 動特性計算モデル構成

表-2 動特性計算条件

項目		モデル名			
		Source1	Source2	Sink1	Sink2
圧力	MPaG	-	-	0.8	0.1
流量	Nm³/h	40.0	0.0	-	-
水素濃度	vol. %	図-6	0.0	-	-

項目		モデル名			
		Pipe1	Pipe2	Pipe3	Pipe4
配管内径	mm	12.7	12.7	12.7	12.7
配管長さ	m	4.579	2.368	0.829	4.255

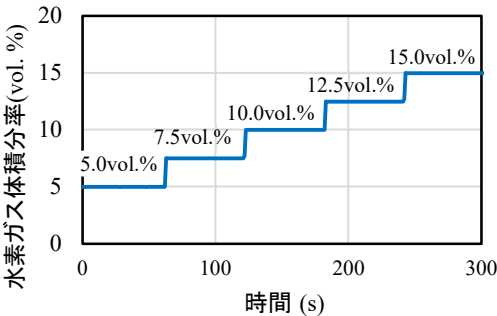


図-6 供給ガス水素濃度変動

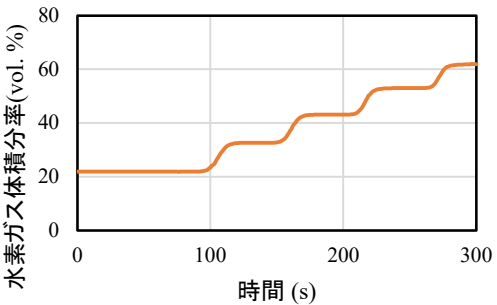


図-7 水素濃度応答(透過側流路出口)

表-3 水素濃度応答遅れ時間

供給ガス		透過側流路出口	
ステップ 変化条件	ステップ 変化 開始時間	水素濃度 変化 開始時間	遅れ時間
-	s	s	s
5.0vol. % →7.5vol. %	63	101	38
7.5vol. % →10.0vol. %	123	157	34
10.0vol. % →12.5vol. %	183	213	30
12.5vol. % →15.0vol. %	243	271	28

図-7に透過側流路出口での水素濃度応答の計算結果を

示す、また、表-3に供給ガスのステップ変化時間、透過側流路出口での水素濃度変化開始時間と遅れ時間を示す。図-7および表-3より、計算対象の流路容積の影響により、供給ガス水素濃度変化に対して透過側流路出口での水素濃度応答に遅れ時間が生じた。本計算において、混合ガスは水素とメタンの2成分系であり、供給ガス流量は一定であるので、水素濃度の上昇とともに混合ガスの密度は減少し流速は上昇する。流速の上昇に伴い、下流領域への水素濃度変化の伝播速度は上昇するため、遅れ時間は減少する。表-3より、水素濃度の上昇とともに遅れ時間が減少しており、本結果は定性的に妥当であることを確認した。

5. 結言

本研究では、水素分離システム濃度制御検討に用いるガス配管系計算モデルを開発した。ガス分離膜を含むガス配管系の非定常流れを対象として、1次元圧縮性流れを基礎式とし、圧力補正アルゴリズムに基づいて計算モデルを構築した。ガス分離膜モデルでは、透過側から透過側への膜間の物質移動を質量バランス式の生成・消滅項としてモデル化した。開発モデルを静特性計算および動特性計算に適用し、開発モデルの計算結果が妥当であることを確認した。今後は、実測値との比較により開発モデルの計算精度を確認するとともに、開発モデルを用いて水素分離システムの濃度制御方式を検討する計画である。

参考文献

[1] Department for Energy Security & Net Zero: Hydrogen Blending into GB Gas Distribution Networks, 2023.

[2] Tanihara N, Nakanishi S and Yoshinaga T.: Gas and Vapor Separation through Polyimide Membranes, Journal of the Japan Petroleum Institute, Vol.59, No.6, pp.276-282, 2016.

[3] 原谷賢治, 吉宗美紀: スイープ式向流型膜モジュールを用いた高効率ガス分離プロセスの設計, MEMBRANE, Vol.42, No.5, pp.213-220, 2017.

[4] Nasim, A., Douglas, W.B., Jinwu W., Ling L., and Mehdi T.: Numerical Simulation of the Water Vapor Separation of a Moisture-Selective Hollow-Fiber Membrane for the Application in Wood Drying Processes, Membranes, Vol.11, No.7, 2021.

[5] Greyvenstein, G.P., An implicit method for the analysis of transient flows in pipe networks, International Journal for Numerical Method in Engineering, Vol.53, No.5, pp.1127-1143, 2002.