

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：水素吸蔵合金の充填方法

技術分野

[0001] この発明は、水素吸蔵合金粒子または粉末と、樹脂と、カーボンファイバーとを混合して樹脂複合材とした水素吸蔵合金を容器内に充填する方法に関するものである。

背景技術

[0002] 水素吸蔵合金は、水素吸蔵合金用容器に收容して水素ガスの吸収・放出を行っている。しかし、水素ガスの吸収・放出に伴って水素吸蔵合金自体が最大30%膨張、収縮するため、その際に生じる応力が水素吸蔵合金用容器にひずみを与え、容器変形が起こり極端なものは容器に亀裂が起こる場合もある。この合金膨張により起こる応力を緩和して容器ひずみを抑える方法として、水素吸蔵合金に樹脂とカーボンファイバーを混合して樹脂複合材とした水素吸蔵合金材料を水素吸蔵合金用容器に収納する方法がある。

一般的な水素吸蔵合金粉末はサラサラした状態となるが、上記樹脂の粘度が500～10,000 mPa・sで、ちょう度を有するゲル状の樹脂とカーボンファイバーを適量添加混合したものでは、樹脂複合材に含まれる水素吸蔵合金の性状は湿った砂状のような水素吸蔵合金となるため、圧力容器として容器の口（開口部）が小さいシリンダータイプの水素吸蔵合金容器には合金充填が困難となる。

[0003] 従来の水素吸蔵合金の容器内への合金充填方法は、作業者が手作業で行うことが一般的である。水素吸蔵合金の充填方法を効率的に、かつ生産性を良くする方法として、特許文献1、特許文献2に示す技術が開示されている。

特許文献1では、水素吸蔵合金粉体を流体中に分散させ反応容器内に注入し、後から流体成分を取り除く方法が開示されている。特許文献2では、エアーカーテンで仕切られた小部屋を不活性ガスで置換し、ベルトコンベアーで水素吸蔵合金用容器を移送しながら、充填室内の汚染を最小限にして合金

を連続的に充填する方法が開示されている。また、特許文献2には、水素吸蔵合金用容器に振動を加えることで内部構造に拘わらず隅々まで充填できる技術が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：日本国特開平4－149001号公報

特許文献2：日本国特開2002－156097号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] しかし、従来技術の水素吸蔵合金充填方法は、水素吸蔵合金粒子または粉末と樹脂とカーボンファイバーとを混合して樹脂複合材とした水素吸蔵合金を充填する際には適用できない。

特許文献1に記載の方法では、せっかく水素吸蔵合金が樹脂で一様に覆われているのに、流動するための流体を後工程で除去する時に当該樹脂が取れてしまい、応力を緩和する樹脂の効果がなくなってしまう。

[0006] また、特許文献2では、ベルトコンベアーで連続的に水素吸蔵合金容器に充填する方法が開示されており、使用する水素吸蔵合金は粘性のない粉末状の水素吸蔵合金である。このため、樹脂とカーボンファイバーを混合した樹脂複合材となる水素吸蔵合金材料の充填率の調整には適用できない。特許文献2の振動等は内部構造の隅々にまで材料を充填するために行われるものであり、振動、回転を容器に与える場合も、充填がなされた後に行われており、特に容器の口が小さいシリンダータイプの容器には、このような樹脂複合材となる水素吸蔵合金材料は、粘性があるため単純な振動のみを用いた充填方法では適用することはできない。

[0007] このような水素吸蔵合金粒子（または粉末）と樹脂とカーボンファイバーとを混合した樹脂複合材は、充填の自動化が難しく、前記したように一般的には手作業で充填が行われている。また、水素吸蔵合金は、容器内に充填し

たままで力を加えないと充填率が低すぎて性能がでない。逆に押し込みすぎると充填率が上がりすぎて、内部に圧損が付き吸収および放出性能に影響がでる。このため適切な充填率になるように樹脂複合材となる水素吸蔵合金にカーボンファイバーを添加混合して、適度な力加減で押し込むことで充填率を調整している。しかし、一般的にこの押し込む作業は手作業となるため、合金充填密度が粗密となり、ロットによって、水素の放出性能にバラツキが生じる。また、この作業は非常に時間と手間もかかり、効率上不十分であった。

[0008] この発明は上記事情を背景としてなされたものであり、合金充填密度の粗密や、水素放出性能のバラツキ、合金充填作業の困難性などの課題を解決するためになされたもので、水素吸蔵合金粒子（または粉末）と樹脂とカーボンファイバーを混合して樹脂複合材とした水素吸蔵合金を容器内に、容易に充填を可能とし、また充填率も均一に調整が可能な充填方法を提供することを目的としている。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者らが鋭意検討した結果、水素吸蔵合金粒子または粉末と、樹脂と、カーボンファイバーとを混合して樹脂複合材とした水素吸蔵合金を容器内に充填する際に、前記容器を所定周波数で振動させて容器内の水素吸蔵合金の充填率を調整することにより、上記課題を解決できることが分かり、本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明の要旨は以下のとおりである。

<1>水素吸蔵合金粒子または粉末と、樹脂と、カーボンファイバーとを混合して樹脂複合材とした水素吸蔵合金を容器内に充填する際に、前記容器を所定周波数で振動させて前記容器内の水素吸蔵合金の充填率を調整する水素吸蔵合金の充填方法。

<2>前記水素吸蔵合金を前記容器へ充填する途中に、前記容器に振動を付与する前記<1>に記載の水素吸蔵合金の充填方法。

<3>目標とする前記充填率を前記樹脂と前記カーボンファイバーの混合率

によって設定する前記＜１＞または＜２＞に記載の水素吸蔵合金の充填方法。

＜４＞前記水素吸蔵合金粒子または粉末の平均粒径が１～１０００μmである前記＜１＞～＜３＞のいずれか１に記載の水素吸蔵合金の充填方法。

＜５＞前記カーボンファイバーの混合率を、水素吸蔵合金量に対し、０．１～５．０重量％とする前記＜１＞～＜４＞のいずれか１に記載の水素吸蔵合金の充填方法。

＜６＞前記所定周波数が、３０～７０Hzである前記＜１＞～＜５＞のいずれか１に記載の水素吸蔵合金の充填方法。

＜７＞前記容器を、少なくとも上下方向に移動させて振動させる前記＜１＞～＜６＞のいずれか１に記載の水素吸蔵合金の充填方法。

＜８＞前記上下方向に移動させる振動量が、０．１～２．０mmである前記＜７＞に記載の水素吸蔵合金の充填方法。

＜９＞前記容器を０．５～３０分間振動させる前記＜７＞または＜８＞に記載の水素吸蔵合金の充填方法。

＜１０＞前記樹脂の２５℃における粘度が５００～１０，０００mPa・sである前記＜１＞～＜９＞のいずれか１に記載の水素吸蔵合金の充填方法。

＜１１＞前記樹脂が、２５℃における１／４ちょう度１０～２００のゲル状樹脂である前記＜１＞～＜１０＞のいずれか１に記載の水素吸蔵合金の充填方法。

＜１２＞前記樹脂の混合量が、水素吸蔵合金量に対して１～５０重量％で混合する前記＜１＞～＜１１＞のいずれか１に記載の水素吸蔵合金の充填方法。

＜１３＞前記水素吸蔵合金の目標充填率が４０～５５％である前記＜１＞～＜１２＞のいずれか１に記載の水素吸蔵合金の充填方法。

＜１４＞前記容器の開口部に漏斗を配置し、前記漏斗を通して前記容器内に前記樹脂複合材とした前記水素吸蔵合金を充填するとともに、前記漏斗の中央部から下方に伸びた掻き出し棒を配置する前記＜１＞～＜１３＞のいずれ

か 1 に記載の水素吸蔵合金の充填方法。

発明の効果

[0010] 本発明によれば、水素吸蔵合金粒子または粉末と樹脂とカーボンファイバーとを混合して樹脂複合材とした水素吸蔵合金を容器内に所望の充填率で充填することができる。また、充填率を均一に調整して充填することができることで、容器内の圧損を低く抑えられ水素放出性能のバラツキが小さくなり放出速度も向上できる。更に、合金充填作業時間を大幅に短縮できる効果がある。

図面の簡単な説明

[0011] [図1]図 1 は本発明の一実施形態における充填方法を説明する図である。

[図2]図 2 は水素吸蔵合金に対するカーボンファイバーの混合量と、振動による充填が行われた際の水素吸蔵合金の充填率の関係を示すグラフである。

[図3]図 3 は容器に対する振動周波数と、振動による充填が行われた際の水素吸蔵合金の充填率の関係を示すグラフである。

[図4]図 4 は水素吸蔵合金粒の平均粒径または粉末径（合金平均粒度）と、振動による充填が行われた際の水素吸蔵合金の充填率の関係を示すグラフである。

[図5]図 5 は本発明の他の実施形態が適用される容器の例を示す図である。

[図6]図 6 は本発明の一実施例による充填方法で得られた複数の充填済容器における水素積算値のばらつきを示すグラフである。

[図7]図 7 は従来の充填方法で得られた複数の充填済容器における水素積算値のばらつきを示すグラフである。

発明を実施するための形態

[0012] 以下に本発明の実施の形態を詳細に説明するが、以下に記載する構成要件の説明は、本発明の実施態様の一例（代表例）であり、本発明はその要旨を超えない限り、これらの内容に特定されない。ここで、“重量％”と“質量％”とは同義である。

本発明は水素吸蔵合金粒子または粉末と、樹脂と、カーボンファイバーと

を混合して樹脂複合材とした水素吸蔵合金を容器内に充填する際に、前記容器を所定周波数で振動させて前記容器内の水素吸蔵合金の充填率を調整する水素吸蔵合金の充填方法に関する。

上記によれば、充填の際に容器に所定周波数の振動を継続的に与えることで、水素吸蔵合金の充填を均一に充填し、充填率を調整することができる。ここで、水素吸蔵合金を容器内に充填する際に前記容器を振動させるとは、充填と振動を交互に行ってもよいし、充填後に振動させてもよく、また、充填しながら振動を付与して（充填と振動を同時に行って）もよい。

[0013] 本発明において、前記樹脂複合材として前記水素吸蔵合金を前記容器内へ充填する途中に、前記容器に振動を付与することが望ましい。

上記によれば、充填中に容器に振動を与えることで充填をより均等かつ容易に行うことができる。ここで、前記容器内へ充填する途中に前記容器に振動を付与するとは、充填と振動を交互に行う、または、充填しながら振動を付与する（充填と振動を同時に行う）ことを意味する。

[0014] 本発明において、目標とする前記充填率を前記樹脂と前記カーボンファイバーの混合率によって設定することが望ましい。

上記によれば、樹脂とカーボンファイバーの混合率に従って目標とする水素吸蔵合金の充填率を設定することができる。カーボンファイバーと水素吸蔵合金の充填量との間には、相関関係が認められる。充填率は、容器内空間に対する水素吸蔵合金の体積比によって算出される。

なお、充填率は、例えば以下の式によって算出することができる。

$$\text{充填率 (\%)} = \text{嵩比重} \div \text{水素吸蔵合金の真比重} \times 100$$

・ 嵩比重：水素吸蔵合金粒子または粉末の嵩比重（g／mL）

・ 水素吸蔵合金の真比重：例えば8.1（g／mL）

[0015] 本発明において、水素吸蔵合金粒子または粉末の平均粒径または粉末径（以下、単に平均粒径と称することがある。）が1～1000μmであることが望ましい。

上記によれば、より適正な水素吸放出特性が得られるとともに、充填率を

適正範囲により容易に調整することができる。なお、より望ましくは、平均粒径の下限を $50\mu\text{m}$ 、平均粒径の上限を $1000\mu\text{m}$ とすることが望ましい。また、水素吸蔵合金の粒径は、水素吸蔵合金の充填率にも影響を与える。これらの点でさらに平均粒径または粉末径の下限を $400\mu\text{m}$ 、上限を $800\mu\text{m}$ とすることが一層望ましい。

水素吸蔵合金粒子または粉末の平均粒径はレーザー回折式粒度分布測定によって測定することができる。

[0016] 本発明において、前記カーボンファイバーの混合率を、水素吸蔵合金量に対し、 $0.1\sim 5.0$ 質量%の範囲内とすることが望ましい。

上記によれば、適量のカーボンファイバーを混合することで、水素吸蔵合金の充填量を適切量に調整することができ、また、良好な水素吸放出特性が得られやすい。

[0017] 本発明において、前記所定周波数が、 $30\sim 70\text{Hz}$ であることが望ましい。

容器形状に合わせて振動周波数を調整して行うが、水素吸蔵合金材料に適当な振動を継続して与えることで、水素吸蔵合金材料をより均等に充填することが可能になる。

例えば、水素吸蔵合金の充填率を 40% 以上とするには周波数 30Hz 以上が必要となる。周波数が 30Hz 以上とすることで充填率が上がり性能が向上する。一方、 70Hz を超えると水素吸蔵合金の充填率は上がらず、 60Hz 以上で飽和する。また、装置コストの関係上、上限は 70Hz が望ましい。通常、水素吸蔵合金容器への充填率は $50\sim 53\%$ 程度としており、周波数は $40\sim 60\text{Hz}$ がより望ましく、 $50\sim 60\text{Hz}$ が一層望ましい。

[0018] 本発明において、前記容器を少なくとも上下方向に移動させて振動させることが望ましい。

上記によれば、上下方向への振動によって水素吸蔵合金材料の充填がより円滑になされる。

[0019] 本発明において、前記上下方向に移動させる振動量が、 $0.1\sim 2.0\text{m}$

mの範囲内であることが望ましい。

上記によれば、容器の振動量を適切に定めることで水素吸蔵合金の充填がより均等になされる。振動量を0.1mm以上とすることで振動による効果をより十分に得ることができ、2.0mm以下とすることで樹脂複合材の合金粉末が大きく跳ね上がり、ジョウロなどから合金がこぼれてしまうことを防ぐことができる。

[0020] 本発明において、前記上下方向の振動を0.5～30分間行うことが望ましい。

上記によれば、適当な時間の振動によって水素吸蔵合金材料の充填をより均等かつ確実に起こうことができる。一方、30分を超えて振動を与えても、充填率の向上効果は飽和する。

[0021] 本発明において、前記樹脂の25℃における粘度が500～10,000 mPa・sであることが望ましい。

上記によれば、樹脂の粘度を適正にすることで、水素吸蔵合金の充填が容易になり、より均一な合金充填が可能となる。

上記粘度は、B型回転粘度計によって、定められた方法で測定することができる。

[0022] 本発明において、前記樹脂が25℃における1/4ちょう度10～200のゲル状樹脂であることが望ましい。

ここで1/4ちょう度とはJIS K2220（2013年）に従って測定され、測定の対象となる物質はグリース等の極めて柔らかい物質である。

[0023] 本発明において、前記樹脂の混合量は水素吸蔵合金量に対して1～50質量%とすることが好ましい。

樹脂の混合量を適量にすることで、水素吸蔵合金充填率を適切量に調整でき、さらに水素吸蔵合金材料全体の柔らかさをより適切に調整することができる。

[0024] 本発明において、水素吸蔵合金の目標充填率が40～55%であることが望ましい。

上記によれば、水素吸蔵合金の充填率を適正にすることで水素の吸放出特性がより良好になり、容器に対する歪み量もより適正な範囲内になる。充填率を40%以上とすることで吸放出特性をより十分に得ることができる。一方、充填率を55%以下とすることで水素吸蔵合金の膨張による容器への歪みが小さく、より好ましい。

[0025] 本発明において、前記容器がシリンダー形状を有し、シリンダー径に対し、相対的に小さい開口部の口径を有するものを使用することが好ましい。

上記によれば、水素吸蔵合金をコンパクトに収容できるとともに、開口部の口径を小さくすることで接続ネジサイズを小さくでき、シール性も一層向上される。

[0026] 本発明において、前記容器の開口部に漏斗を配置し、前記漏斗を通して前記容器内に前記樹脂複合材とした前記水素吸蔵合金を充填するとともに、前記漏斗の中央部から下方に伸びた掻き出し棒を配置することが望ましい。

従来の方法では、特に容器の口が小さいシリンダータイプの容器に充填する場合、漏斗を使用するが、樹脂複合材となる水素吸蔵合金材料に粘性があるため手作業で振動を与えてもすぐ詰まってしまい合金を充填しにくい場合がある。上記構成によれば、掻き出し棒によって水素吸蔵合金の充填をより円滑に行うことができる。また、停止中または振動中の容器に対し掻き出し棒を上下移動または／および回転移動させることで水素吸蔵合金の充填をより円滑に行うことが可能になる。

[0027] 本発明の一実施形態を添付図面に基づいて説明する。

本発明の水素吸蔵合金としては、 AB_5 、 AB_2 、 AB 、 A_2B 構造や BCC 構造の組成のものを用いることができる。なお、本発明としては水素吸蔵合金の種別、組成、結晶構造などが特定のものに限定されるものではない。また、水素吸蔵合金粒は、好適には平均粒径または粉末径を $1\mu m \sim 1000\mu m$ とする。水素吸蔵合金の粒子化、粉末化の方法も特に限定されるものではなく、アトマイズ法などの適宜の方法を採用することができる。

図4に水素吸蔵合金の平均粒度と充填率の関係を示す。合金粒度が細かい

(小さい)と充填率は減少し、粒度が粗い(大きい)と充填率は高くなる傾向にある。このため充填率のバラツキを抑える観点から、平均粒径として400～800 μm とする範囲で合金粒度を揃えた方がさらに好ましい。

[0028] 水素吸蔵合金粒子または粉末には、好適には、25℃における粘度が500～10,000 $\text{mPa}\cdot\text{s}$ で、25℃における1/4ちょう度10～200のゲル状樹脂が混合される。このような樹脂として、ゲル状樹脂は、シリコーン、アクリルモノマーやポリマー、ウレタン、エポキシ樹脂をはじめとする架橋性のモノマーやポリマーをゲル化させて得ることができる。中でもシリコーンは取り扱い性が容易で水素ガス透過性であり、ゲル化のコントロールも容易であることから好ましく用いることができる。

シリコーンとは液状のオルガノポリシロキサンであり、一般には式($\text{R R}'\text{SiO})_n$ (R 、 R' は有機置換基、 n は自然数)で表されるものが使用される。 R 及び R' の具体例としては、それぞれ独立してメチル基、エチル基等のアルキル基、フェニル基、フルオロアルキル基のいずれかをを用いることができ、分子鎖末端には水酸基、アルコキシ基、ビニル基等の官能基を有してもよい。樹脂の混合量としては、水素吸蔵合金に対し、1～50質量%の量で混合量を定めることができる。樹脂としては軟質樹脂が望ましく、合金膨張吸収においても、より適正な樹脂粘度を保つことができる。

[0029] また、水素吸蔵合金粒子または粉末には、カーボンファイバーが混合される。カーボンファイバーは、伝熱性を高めるとともに水素吸蔵合金の充填率を調整することができる。カーボンファイバーは、直径または幅が1～1000 μm でアスペクト比が5以上の針状の伝熱性炭素繊維材料を使用することが好ましい。

[0030] このカーボンファイバーは、上記樹脂を添加混合するときに合わせて混合することができる。添加量は水素吸蔵合金量に対して0.1～5.0質量%添加することが好ましい。

図2に、平均粒径が100～600 μm の水素吸蔵合金に添加するカーボンファイバー量(直径が10 μm 、長さが6mmでアスペクト比が600の

針状のカーボンファイバー)を変化させたときに、振動周波数60Hz、振動量1.6mm、5分間の条件で振動を与えた樹脂複合材とした水素吸蔵合金の充填率が変化する関係を示す。なお、この際に使用したシリコン樹脂は、WACKER Si I Ge I 6 1 2のA液及びB液(旭化成ワッカーシリコン株式会社製)、液粘度は25℃で1,000mPa・s、ゲル状樹脂の25℃における1/4ちょう度は85で、混合量は3.5質量%としている。

上記のようにカーボンファイバーの混合量を変えることで水素吸蔵合金の目標とする充填率が顕著に変わり、調整もより容易となる。

[0031] また、水素吸蔵合金の充填率を調整するため、振動周波数を調整して行う。

また、容器に振動を与える時間は本願発明としては特定の範囲に限定されるものではないが、0.5～30分が望ましい。

また、振動に際しては、容器に対して少なくとも上下方向に振動を与え、その振動量を上下方向で0.1～2.0mmの範囲内とすることが好ましい。なお、振動においては、上下方向以外に横方向の振動や回転振動を組み合わせ、または時期を異にして加えるようにしてもよい。

[0032] 図3に振動周波数を変化させた時の樹脂複合材となる水素吸蔵合金の充填率の関係を示す。このように振動周波数を変えることで充填率が変わり、充填率の調整も容易となる。平均粒径が300～800μmの水素吸蔵合金に、振動周波数を変えて、振幅量1.6mm、5分間の条件で振動を与えた場合の、樹脂複合材とした水素吸蔵合金の充填率が変化する関係を図3に示す。なお、この際に、水素吸蔵合金に対し、直径が10μm、長さが6mmでアスペクト比が600の針状のカーボンファイバーを2質量%含有し、使用したシリコン樹脂はWACKER Si I Ge I 6 1 2のA液及びB液(旭化成ワッカーシリコン株式会社製)、液粘度は25℃で1,000mPa・s、ゲル状樹脂の25℃における1/4ちょう度は85で、混合量は3.5質量%としている。

[0033] 樹脂複合材を容器に充填する際には、振動後において、水素吸蔵合金の目標充填率が40～55%になるように調整することが好ましい。

[0034] 次に、容器に樹脂複合材を充填する際の装置を図1に基づいて説明する。

振動基台10は、振動可能に保持されたバイブレータ板11を有しており、該バイブレータ板11は並列設置された振動モータ12A、12B上に設置されている。なお、本発明としては振動の機構が特に限定されるものではなく、適宜構成を採用することができる。

[0035] バイブレータ板11上では、容器保持具13が設けられており、容器保持具13に水素吸蔵合金を収容する容器20が保持される。この実施形態では、容器20はシリンダー形状を有し、一端にシリンダー内径よりも小径の内径を有する開口部21が設けられている。なお、本発明としては容器形状が特に限定されるものではない。

容器20上には、容器20の開口部21内に管状部を挿入する漏斗15が配置され、漏斗15内に樹脂複合材が収容される。また、漏斗15の中心軸には、漏斗15の管状部内に至るように掻き出し棒18が配置される。

[0036] 上記装置を用いた充填方法を説明する。

前記した水素吸蔵合金粒子または粉末、樹脂、カーボンファイバーを予め合金充填準備として、添加混合して攪拌し、樹脂複合材30を用意する。

容器20は、上記したように容器保持具13で保持し、開口部21に漏斗15を設置し、漏斗15内の中心に掻き出し棒18を配置する。

[0037] 漏斗15の円錐部内に樹脂複合材30を供給し、掻き出し棒18を上下移動させつつ容器20内に樹脂複合材30を充填する。充填中には、2台の振動モータ12A、12Bを各々反対方向に回転させ、容器20に対して垂直方向に好ましくは最大1.6mm程度の直線振動を与える。その際には、インバーター板（バイブレータ板）11からは容器に対し、振動周波数30～70Hzで振動が与えられる。掻き出し棒18を上下方向19に運動させることで、漏斗15の円錐部に供給される樹脂複合材30が順次容器20内に収容される。なお、掻き出し棒18は、上下運動の他、回転運動させるもの

であってもよい。掻き出し棒 18 の操作は、手作業または機械装置の動作のどちらで行ってもよい。

上記動作によって、樹脂複合材 30 は、漏斗 15 に詰まることなく容器 20 内に均等に充填される。

[0038] なお、上記実施形態では、開口部の口径が小さい容器に対し、樹脂複合材を供給する例について説明したが、本発明としては、容器の形状が特に限定されるものではなく、開口部の口径が小さいものに限定されない。以下に、その例を説明する。

[0039] 図 5 は、本実施形態が適用される他の容器例を示すものである。

容器 40 は、アルミニウム製の角筒形状からなり、両側の縁壁部 43、44 と、その中間に位置する中間壁部 45 とを有している。縁壁部 43、44、中間壁部 45 には、それぞれ媒体流路（図示しない）が設けられており、媒体流路には、他側壁部に設けられた入液部 41 と出液部 42 とが接続されて媒体の流通が可能になっている。

縁壁部 43 と中間壁部 45 との間の空間と、縁壁部 44 と中間壁部 45 との間の空間には、縁壁部 43、44 と中間壁部 45 とに、それぞれろう付けされたコルゲートフィン 46 が壁部の縦方向に沿って配置されている。上記各空間には、本実施形態の充填方法によって樹脂複合材 50 が適度な充填率で収納されている。このように本実施形態では、容器形状に拘わらず樹脂複合材の加振充填が可能になる。

実施例

[0040] 以下に、本発明の実施例を比較例と対比しつつ説明する。

<実施例>

内容積 800 mL で開口部内径が 14 mm のアルミシリンダーを用意した。また、平均粒度が 700 μ m 程度の AB₅ 系合金と、粘度が 1,000 mPa $\cdot$ s で、25℃における 1/4 ちょう度を 85 としたゲル状のシリコーン樹脂を 3.5 質量%、直径が 10 μ m、長さが 6 mm でアスペクト比が 600 の針状のカーボンファイバーを 2 質量%用意し、これらを混合攪拌して樹

脂複合材を得た。

上記樹脂複合材を図 1 に示す装置を用いて、目標充填率を 52%にして、振動周波数 50 Hz、振幅 1.6 mm、振動時間 5 分の条件で振動を与えて、容器に樹脂複合材を充填した。

[0041] <比較例>

上記実施例と同じ樹脂複合材を上記と同じ容器に対し、従来の手作業（手押し）によって充填作業を行った。この際の作業は約 1 時間を要したことから、本実施例の作業効率は格段に優れていた。

[0042] 上記実施例および比較例による複数のロットを用意し、それぞれについて水素の吸放出特性試験を行った。試験では、20℃水槽中で、満充填で 0.99 MPa G の水素吸収を行い、20℃水槽中で大気圧放出によって水素放出の積算値を測定した。その結果をそれぞれ図 6 及び図 7 のグラフに示した。図 6 及び図 7 では、横軸に経過時間、縦軸に水素放出量の積算値を示した。

実施例では、各ロットにおける水素放出特性は、従来容器よりも優れており、かつそのばらつきが小さかった。一方、比較例では、平均的な放出特性は本実施例よりも低く、ばらつきも大きかった。

[0043] 以上、本発明について上記実施形態に基づいて説明を行ったが、本発明の精神と範囲を逸脱しない限りは適宜の変更や修正が可能であることは当業者にとって明らかである。本出願は 2014 年 3 月 7 日出願の日本特許出願（特願 2014-044528）に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

符号の説明

- [0044]
- 10 振動基台
 - 11 バイブレーション板
 - 12A 振動モータ
 - 12B 振動モータ
 - 13 容器保持具

- 1 5 漏斗
- 1 8 掻き出し棒
- 2 0 容器
- 2 1 容器の開口部
- 3 0 樹脂複合材
- 4 0 容器
- 4 1 入液部
- 4 2 出液部
- 4 3 容器の縁壁部
- 4 4 容器の縁壁部
- 4 5 中間壁部
- 4 6 コルゲートフィン
- 5 0 樹脂複合材

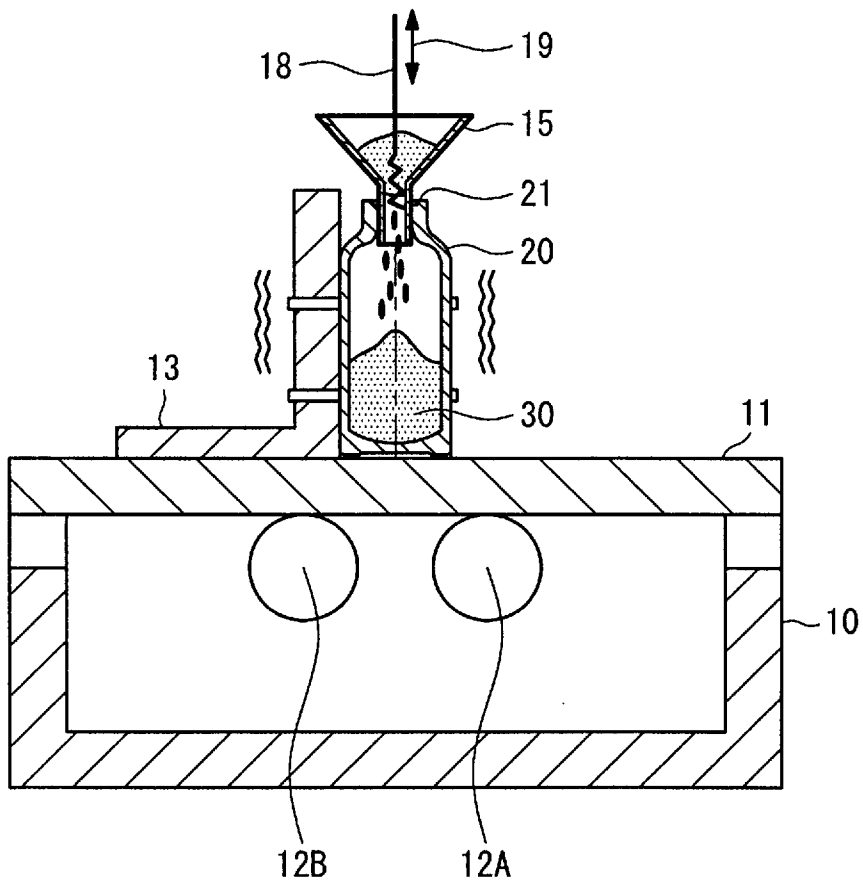
請求の範囲

- [請求項1] 水素吸蔵合金粒子または粉末と、樹脂と、カーボンファイバーとを混合して樹脂複合材とした水素吸蔵合金を容器内に充填する際に、前記容器を所定周波数で振動させて前記容器内の水素吸蔵合金の充填率を調整する水素吸蔵合金の充填方法。
- [請求項2] 前記水素吸蔵合金を前記容器へ充填する途中に、前記容器に振動を付与する請求項1に記載の水素吸蔵合金の充填方法。
- [請求項3] 目標とする前記充填率を前記樹脂と前記カーボンファイバーの混合率によって設定する請求項1または2に記載の水素吸蔵合金の充填方法。
- [請求項4] 前記水素吸蔵合金粒子または粉末の平均粒径が $1 \sim 1000 \mu\text{m}$ である請求項1～3のいずれか1項に記載の水素吸蔵合金の充填方法。
- [請求項5] 前記カーボンファイバーの混合率を、水素吸蔵合金量に対し、 $0.1 \sim 5.0$ 重量%とする請求項1～4のいずれか1項に記載の水素吸蔵合金の充填方法。
- [請求項6] 前記所定周波数が、 $30 \sim 70 \text{ Hz}$ である請求項1～5のいずれか1項に記載の水素吸蔵合金の充填方法。
- [請求項7] 前記容器を、少なくとも上下方向に移動させて振動させる請求項1～6のいずれか1項に記載の水素吸蔵合金の充填方法。
- [請求項8] 前記上下方向に移動させる振動量が、 $0.1 \sim 2.0 \text{ mm}$ である請求項7に記載の水素吸蔵合金の充填方法。
- [請求項9] 前記容器を $0.5 \sim 30$ 分間振動させる請求項7または8に記載の水素吸蔵合金の充填方法。
- [請求項10] 前記樹脂の 25°C における粘度が $500 \sim 10,000 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ である請求項1～9のいずれか1項に記載の水素吸蔵合金の充填方法。
- [請求項11] 前記樹脂が、 25°C における $1/4$ ちょう度 $10 \sim 200$ のゲル状樹脂である請求項1～10のいずれか1項に記載の水素吸蔵合金の充

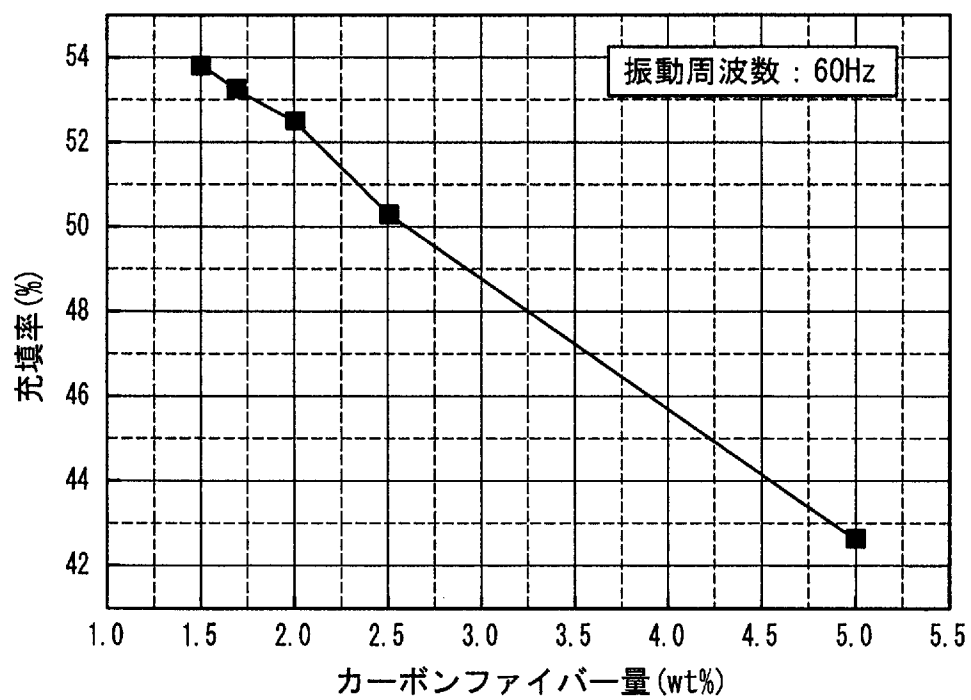
填方法。

- [請求項12] 前記樹脂の混合量が、水素吸蔵合金量に対して1～50重量%で混合する請求項1～11のいずれか1項に記載の水素吸蔵合金の充填方法。
- [請求項13] 前記水素吸蔵合金の目標充填率が40～55%である請求項1～12のいずれか1項に記載の水素吸蔵合金の充填方法。
- [請求項14] 前記容器の開口部に漏斗を配置し、前記漏斗を通して前記容器内に前記樹脂複合材とした前記水素吸蔵合金を充填するとともに、前記漏斗の中央部から下方に伸びた掻き出し棒を配置する請求項1～13のいずれか1項に記載の水素吸蔵合金の充填方法。

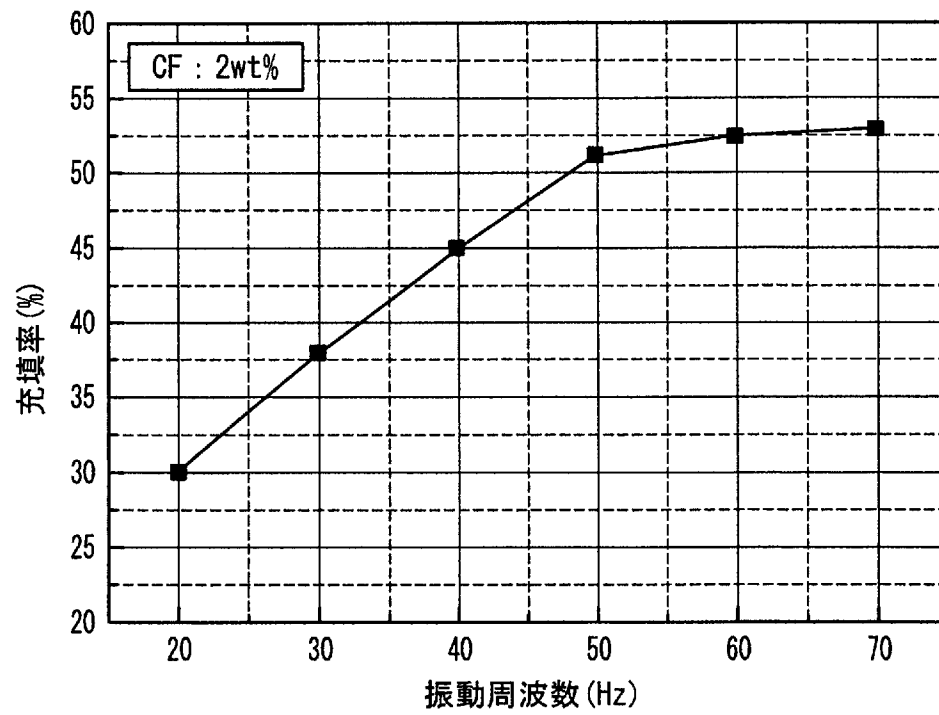
[図1]



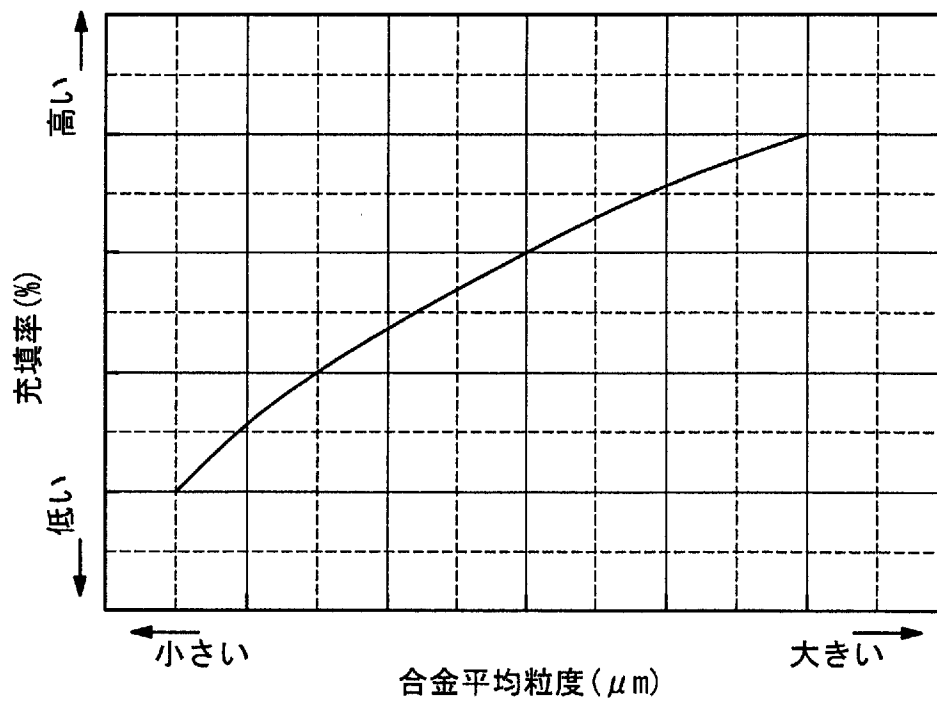
[図2]



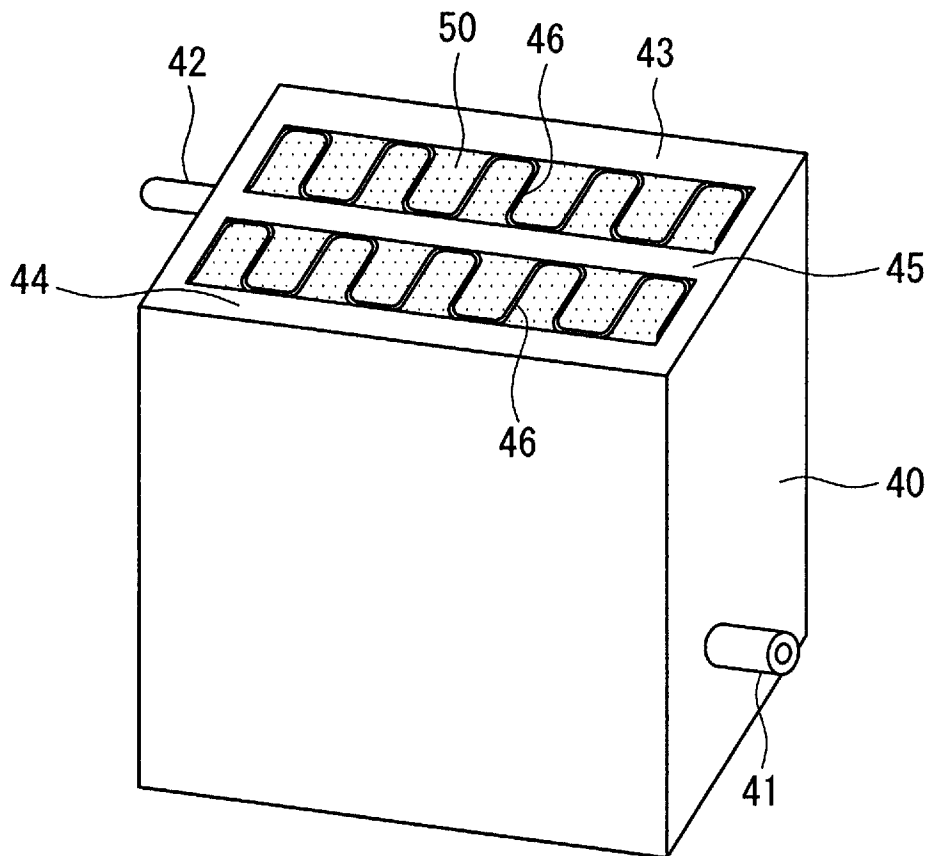
[図3]



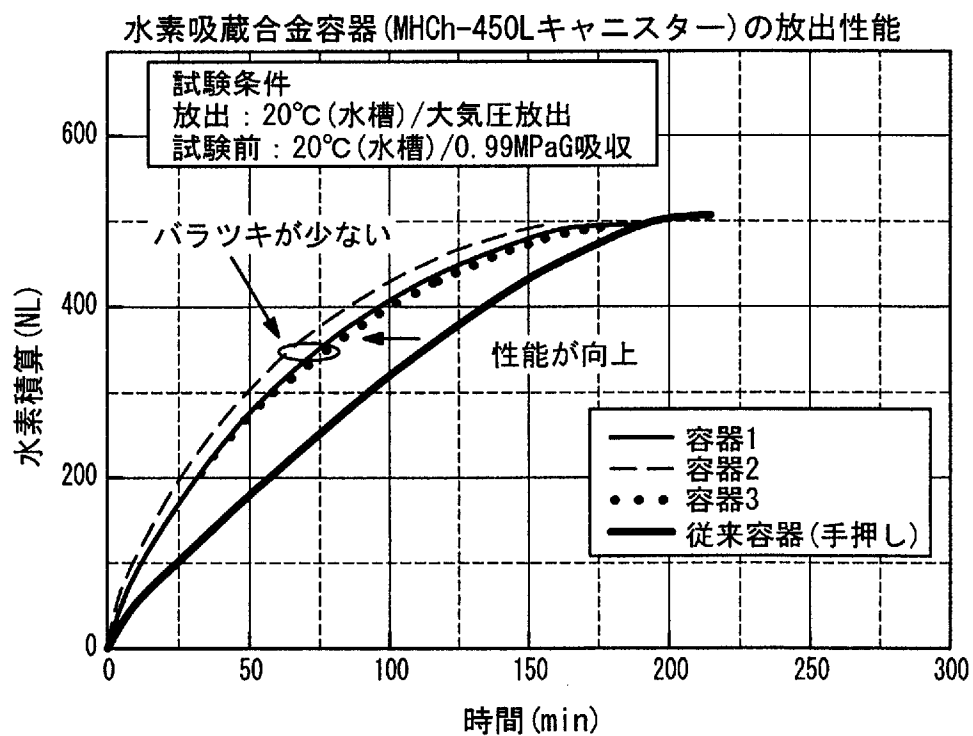
[図4]



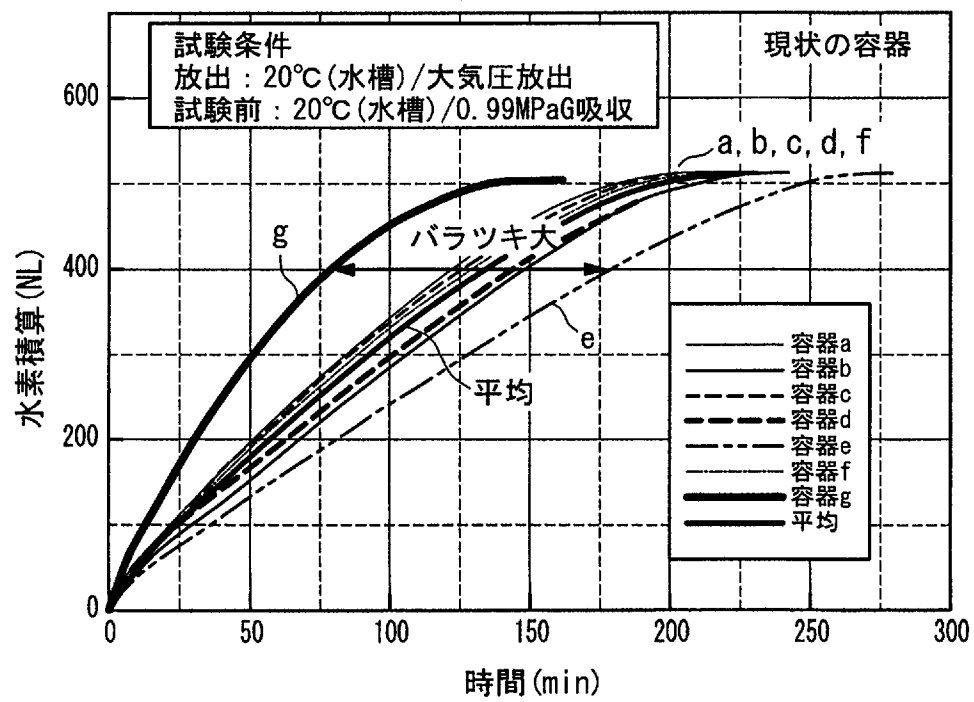
[図5]



[図6]



[図7]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/055712

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

F17C11/00(2006.01)i, C01B3/00(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

F17C11/00, C01B3/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2006-291993 A (Honda Motor Co., Ltd.), 26 October 2006 (26.10.2006), paragraphs [0002] to [0005] (Family: none)	1-14
Y	JP 5-99074 A (Mazda Motor Corp.), 20 April 1993 (20.04.1993), paragraphs [0008] to [0029]; fig. 1 to 15 (Family: none)	1-14
Y	WO 2009/113671 A1 (Nippon Shokubai Co., Ltd.), 17 September 2009 (17.09.2009), paragraphs [0086] to [0161]; fig. 1 & JP 5635397 B2 & JP 5560192 B2 & EP 2263939 A1 & EP 2253375 A1 & CN 101970299 A & CN 101970101 A & SG 194348 A	1-14

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
11 May 2015 (11.05.15)

Date of mailing of the international search report
26 May 2015 (26.05.15)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/055712

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2000-281302 A (The Japan Steel Works, Ltd.), 10 October 2000 (10.10.2000), paragraphs [0011], [0014] (Family: none)	1-14
Y	WO 2004/031645 A1 (The Japan Steel Works, Ltd.), 15 April 2004 (15.04.2004), description, page 8, lines 22 to 26; fig. 3 (Family: none)	1-14
Y	JP 2009-2370 A (Toyota Motor Corp.), 18 January 2009 (18.01.2009), paragraph [0016] & US 2009/000963 A1	4-14
Y	WO 2008/096758 A1 (Asahi Kasei Chemicals Corp.), 14 August 2008 (14.08.2008), paragraphs [0009] to [0063]; fig. 1 to 4 & JP 2008-214610 A & US 2010/108543 A1 & EP 2110411 A1 & CA 2675266 A1 & CN 101636451 A & KR 10-2009-0115937 A & TW 200844166 A	10-14
Y	JP 2013-241597 A (Dow Corning Corp.), 05 December 2013 (05.12.2013), paragraph [0081] & JP 2008-544038 A & JP 5542331 B & US 2009/0105362 A1 & WO 2007/092032 A2 & EP 1893671 A2 & KR 10-2008-0015007 A & CN 101208376 A & AT 452928 T	10-14
Y	JP 4-277915 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 02 October 1992 (02.10.1992), paragraph [0005] (Family: none)	10-14
Y	JP 2003-121659 A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 23 April 2003 (23.04.2003), paragraphs [0037] to [0038], [0107]; fig. 1 & JP 3885731 B2 & US 2003/0053777 A1 & WO 2002/059659 A1 & EP 1355173 A1 & CA 2402478 A1 & CN 1455879 A	10-14
Y	JP 57-145001 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 07 September 1982 (07.09.1982), page 9, lines 6 to 12 (Family: none)	12-14

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/055712

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 31983/1989 (Laid-open No. 125735/1990) (Hisaka Works, Ltd.), 17 October 1990 (17.10.1990), specification, page 4, line 11 to page 8, line 3; fig. 1 (Family: none)	14
Y	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 144301/1982 (Laid-open No. 49689/1984) (Kawatetsu Kagaku Kabushiki Kaisha), 02 April 1984 (02.04.1984), specification, page 4, line 14 to page 6, line 7; fig. 1 to 3 (Family: none)	14
A	JP 3-097803 A (Kobe Steel, Ltd.), 23 April 1991 (23.04.1991), page 2, lower right column, line 18 to page 16, lower right column, line 18; fig. 1 to 2 (Family: none)	1-14
A	JP 63-225799 A (Yasuo ODAI), 20 September 1988 (20.09.1988), page 3, lower left column, lines 9 to 16 (Family: none)	1-14
A	JP 2008-190627 A (Iwatani & Co., Ltd.), 21 August 2008 (21.08.2008), paragraph [0034] (Family: none)	1-14
A	JP 2001-200159 A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 24 July 2001 (24.07.2001), paragraphs [0005] to [0021] & WO 2001/034328 A1 & EP 1151816 A1 & CN 1336856 A	1-14

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. F17C11/00(2006.01)i, C01B3/00(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. F17C11/00, C01B3/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 5 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 5 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 5 年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2006-291993 A（本田技研工業株式会社）2006. 10. 26, 段落【0002】－【0005】（ファミリーなし）	1-14
Y	JP 5-99074 A（マツダ株式会社）1993. 04. 20, 段落【0008】－【0029】、【図1】－【図15】 （ファミリーなし）	1-14

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 1 . 0 5 . 2 0 1 5

国際調査報告の発送日

2 6 . 0 5 . 2 0 1 5

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

谿花 正由輝

3 N

5 2 7 3

電話番号 03-3581-1101 内線 3361

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	WO 2009/113671 A1 (株式会社日本触媒) 2009. 09. 17, 段落 [0086] - [0161], [図1] & JP 5635397 B2 & JP 5560192 B2 & EP 2263939 A1 & EP 2253375 A1 & CN 101970299 A & CN 101970101 A & SG 194348 A	1-14
Y	JP 2000-281302 A (株式会社日本製鋼所) 2000. 10. 10, 段落【0011】、【0014】 (ファミリーなし)	1-14
Y	WO 2004/031645 A1 (株式会社日本製鋼所) 2004. 04. 15, 明細書第8ページ第22行-第26行, 第3図 (ファミリーなし)	1-14
Y	JP 2009-2370 A (トヨタ自動車株式会社) 2009. 01. 18, 段落【0016】 & US 2009/000963 A1	4-14
Y	WO 2008/096758 A1 (旭化成ケミカルズ株式会社) 2008. 08. 14, 段落【0009】 - 【0063】、【図1】 - 【図4】 & JP 2008-214610 A & US 2010/108543 A1 & EP 2110411 A1 & CA 2675266 A1 & CN 101636451 A & KR 10-2009-0115937 A & TW 200844166 A	10-14
Y	JP 2013-241597 A (ダウ・コーニング・コーポレイション) 2013. 12. 05, 段落【0081】 & JP 2008-544038 A & JP 5542331 B & US 2009/0105362 A1 & WO 2007/092032 A2 & EP 1893671 A2 & KR 10-2008-0015007 A & CN 101208376 A & AT 452928 T	10-14
Y	JP 4-277915 A (松下電器産業株式会社) 1992. 10. 02, 段落【0005】 (ファミリーなし)	10-14
Y	JP 2003-121659 A (住友電気工業株式会社) 2003. 04. 23, 段落【0037】 - 【0038】、【0107】、【図1】 & JP 3885731 B2 & US 2003/0053777 A1 & WO 2002/059659 A1 & EP 1355173 A1 & CA 2402478 A1 & CN 1455879 A	10-14
Y	JP 57-145001 A (積水化学工業株式会社) 1982. 09. 07, 第9ページ第6行-第12行 (ファミリーなし)	12-14

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	日本国実用新案登録出願 1-31983 号(日本国実用新案登録出願公開 2-125735 号)の願書に添付した明細書及び図面の内容を撮影したマイクロフィルム (株式会社日阪製作所) 1990. 10. 17, 明細書第 4 ページ第 1 1 行ー第 8 ページ第 3 行, 第 1 図 (ファミリーなし)	14
Y	日本国実用新案登録出願 57-144301 号(日本国実用新案登録出願公開 59-49689 号)の願書に添付した明細書及び図面の内容を撮影したマイクロフィルム (川鉄化学株式会社) 1984. 04. 02, 明細書第 4 ページ第 1 4 行ー第 6 ページ第 7 行, 第 1 図ー第 3 図 (ファミリーなし)	14
A	JP 3-097803 A (株式会社神戸製鋼所) 1991. 04. 23, 第 2 ページ右下欄第 1 8 行ー第 1 6 ページ右下欄第 1 8 行, 第 1 図ー第 2 図 (ファミリーなし)	1-14
A	JP 63-225799 A (尾台 保生) 1988. 09. 20, 第 3 ページ左下欄第 9 行ー第 1 6 行 (ファミリーなし)	1-14
A	JP 2008-190627 A (岩谷産業株式会社) 2008. 08. 21, 段落【0 0 3 4】 (ファミリーなし)	1-14
A	JP 2001-200159 A (信越化学工業株式会社) 2001. 07. 24, 段落【0 0 0 5】ー【0 0 2 1】 & WO 2001/034328 A1 & EP 1151816 A1 & CN 1336856 A	1-14