

4. 水素ガス漏洩爆発の実験的研究

名古屋大学大学院工学研究科 齋藤 寛泰, 吉川 典彦

1. 緒言

昨今、石油をはじめとする化石燃料の枯渇や地球規模での環境破壊問題が深刻化し、さまざまな方面からのアプローチによる解決策が模索されている。とりわけ、燃焼による二酸化炭素などの地球温暖化ガスの排出、窒素酸化物や硫黄酸化物などの大気環境汚染ガスの排出を極力抑えるとともに、エネルギー問題に対する打開策を講じることは急務となっている。

このような切迫した状況の中、次世代クリーンエネルギーとして近年注目を集めているのは水素の利用である。水素は再生可能なエネルギー媒体であり、燃料電池、水素エンジン、水素燃焼タービン等の研究開発プロジェクトが進行している。最近では、依然コスト的に問題があるとはいえ、燃料電池自動車を市販する企業も出現し始め、国内にも大阪や高知、東京などに水素の供給ステーションが試験的にではあるが建設されている。したがって、水素をエネルギーの中心に据える社会の到来に備え、国内における水素の製造、運搬、貯蔵に係るインフラの早急な整備が必要であることは明白である。例えば、水素ステーションを全国各地へ普及させることは、燃料電池自動車の利用促進につながる。

しかし、高圧もしくは液体状態にある大量の水素の取り扱いはそれほど容易ではなく、貯蔵や輸送に対する技術的な早期成熟が望まれる。加えて、水素は拡散速度が大きく、少量の酸化剤との混合により容易に可燃範囲の予混合気を形成してしまうといった特異性を有するため、配管部等からの漏洩ガスの挙動を把握し、爆発事故等が生じた場合の設備の損壊、周囲環境への影響など、想定される事故に対する検証を十分に行うことが必要である。また、コンピュータシミュレーションによる漏洩、爆発事故等の解析が可能となることは有効な手段となる。

そこで本研究では、水素ガスの漏洩・爆発過程の定量的評価手法の確立を最終的な目標に据え、解析法の妥当性評価に必要な

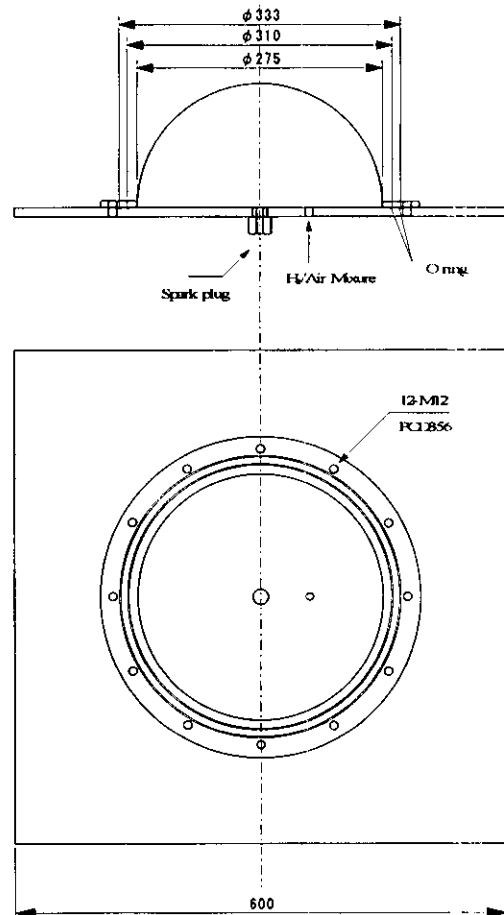


図 2-1 テストセクションの詳細

な実験データの収集、および、開空間における水素の拡散、爆発現象に対する知見を得ることを目的とする。その第一段階として、まずは水素-空気の予混合気塊の爆発実験を行ったので、ここにその報告を記す。

2. 実験装置および方法

図 2-1 に本実験で用いたテストセクションの詳細を、図 2-2 にガスの充填経路を示す。テストセクション部は、平板と環状の固定版でラテックス膜（初期膜厚 $d_i = 0.1 \text{ mm}$ 、不二ラテックス社製）を挟み、ボルトで固定したものである。中心には点火プラグ（NGK 社製、D8EA）の取り付け口、および、水素-空気の予混合気の注入口が設けられている。膜の内部には、この注入口から、予混合チャンバに貯められた水素-空気の予混合気が供給され、直径 275 mm の半球状のドームが形成される。予混合チャンバ内への気体の充填は、まずチャンバ内を真空ポンプ（佐藤真空社製、SW-500）により真空にし、その後、各々のボンベから所定の圧力になるまで供給することで行った。チャンバ内の圧力は、圧力計（MKS 社製、PDR-C-1C）を用いてモニタしている。

実験装置および測定光学系の概略を図 2-3 に示す。膜内に充填された予混合気の点火には、

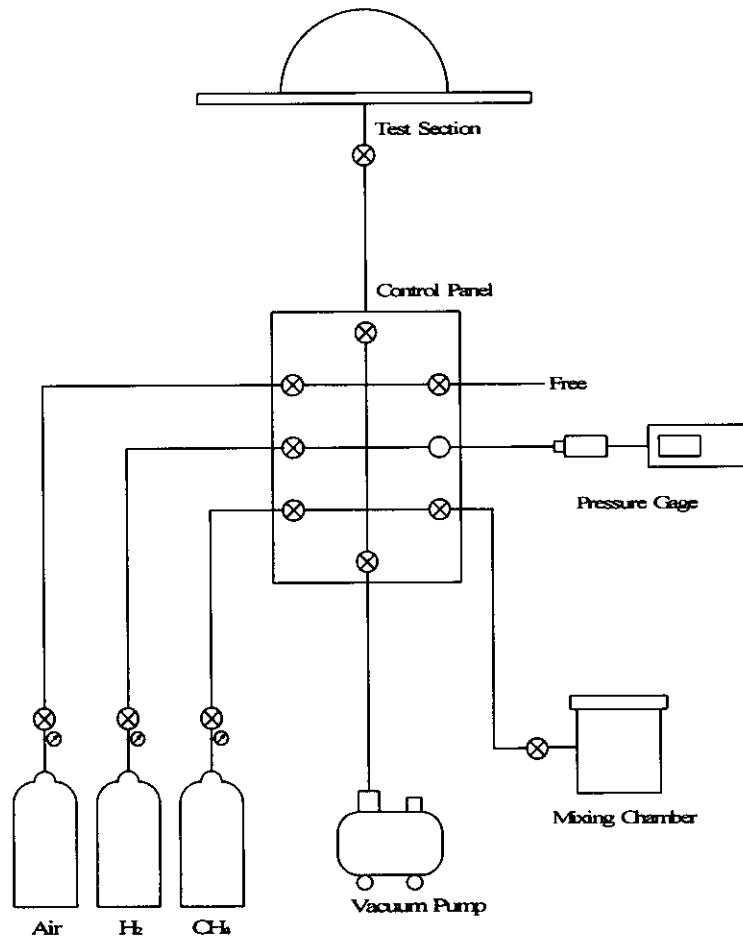


図 2-2 ガスの充填経路

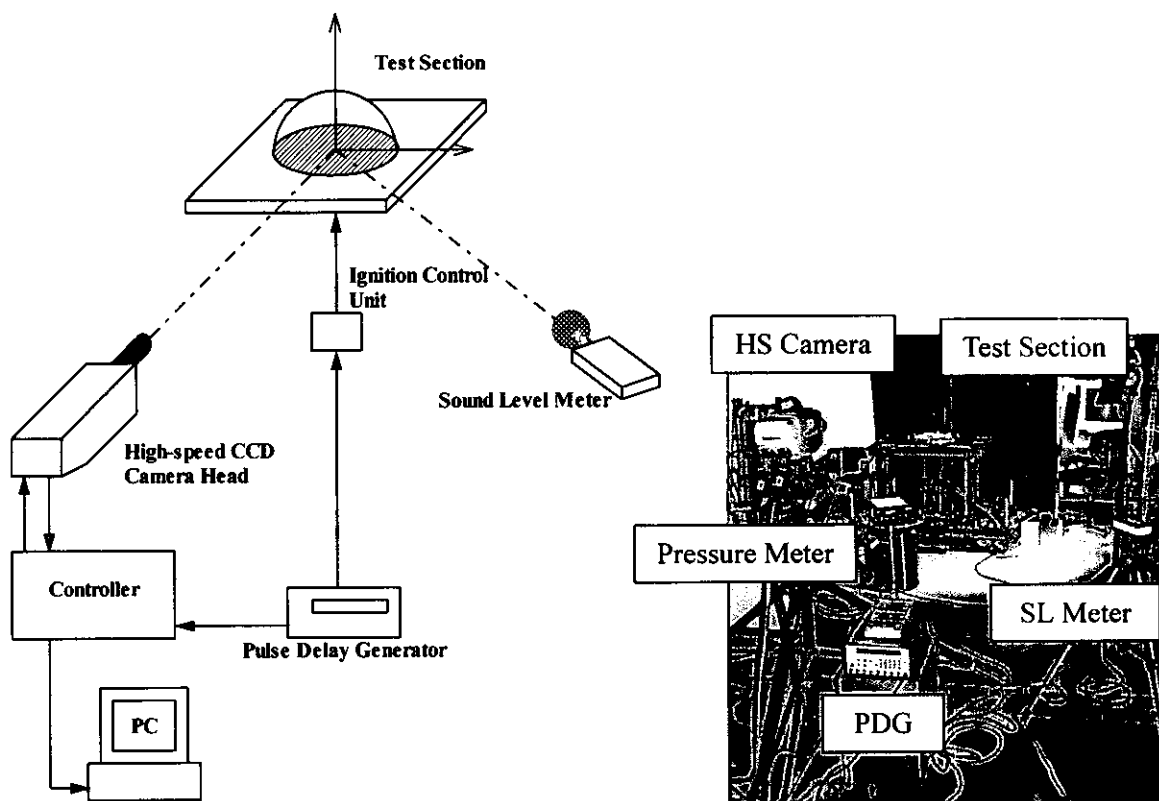


図 2-3 実験装置および測定光学系の概略

自動車用のイグナイタシステム（ダイハツ社製，K3-VE 型エンジン用）を用いた。また，イグナイタへの供給電源としては，自動車用のバッテリー（YUASA 社製，DYNAGRID 38B19L）を使用した。このイグナイタは，5 V の TTL（正ロジック）信号により駆動するため，点火タイミングの制御が行いやすい。また，入力信号の長さを変化させることで，イグニッションコイルへの通電時間が変わり，点火エネルギーを調節することができる。本実験では，すべての水素濃度条件において，この通電時間を 8 ms で一定とした。ラテックス膜内に充填された水素-空気予混合気点火後，ラテックス膜は熱膨張により拡がるが，ドームの天頂付近直上に固定したナイフエッジに到達後，膜が破れるようにしてある。点火以降，膜が破れて，燃焼ガスが開空間へと噴出する一連の過程を，高速度 CCD カメラ（Eastman Kodak 社製，Ektapro HS Model 4540）により高速度時系列撮影した。撮影の際のフレームレートは 4,500 fps，撮影枚数は 1,024 枚（実時間で 0.23 秒）とした。撮影された画像のサイズは，256 × 256 pixel で，8 bit の濃淡画像として記録される。撮影領域は，1008 mm × 1008 mm であり，画像解像度は 3.94 mm/pixel になる。画像の取り込み開始と，点火のタイミングを，パルスディレイジェネレータ（Stanford Research Systems 社製，WC Model DG535）からの TTL 信号で行った。

さらに，爆発規模の指標として，点火時に発生する爆発音の音圧レベルを，テストセクション中心から 4.54 m の距離に設置した騒音計（小野測器社製，LA-1250）により測定した。

これにより、測定時間内に発生する爆発音のピーク音圧レベルを把握した。

実験の際、ラテックス膜内に充填する水素-空気予混合気の当量比を 0.6 から 1.3 まで 0.1 おきに変化させながら、それぞれの条件において 3 回の点火実験を行った。また、水素よりも分子量の大きなメタンを用いた場合の燃焼挙動を観察し、水素の場合との比較を行った。

3. 実験結果および考察

3.1 ラテックス膜の破裂

膜崩壊が燃焼挙動に及ぼす影響を把握しておくため、予備実験として、まずはドーム状に張ったラテックス膜の破れる過程を観察した。膜内に空気を充填して破裂させ、その様子を高速撮影した。図 3-1 に、非燃焼時における破膜過程の時系列画像を示す。膜は、ドームの天頂付近に設置したナイフエッジに触れて崩壊する。破膜過程には再現性があり、数回の実験に対して、ほぼ同様の割れ方をした。したがって、予混合気を充填した燃焼実験の場合も当量比条件による膜崩壊過程に差はないと考えられる。また、破膜は開始からわずか 8.89 ms 後に完了する。

さらに、騒音計による膜の破裂音に対するピーク音圧レベルの平均値は 87.4 dB であったため、以降の水素-空気予混合気塊の燃焼実験においては、爆発音の音圧レベルからこの値を差し引くものとした。

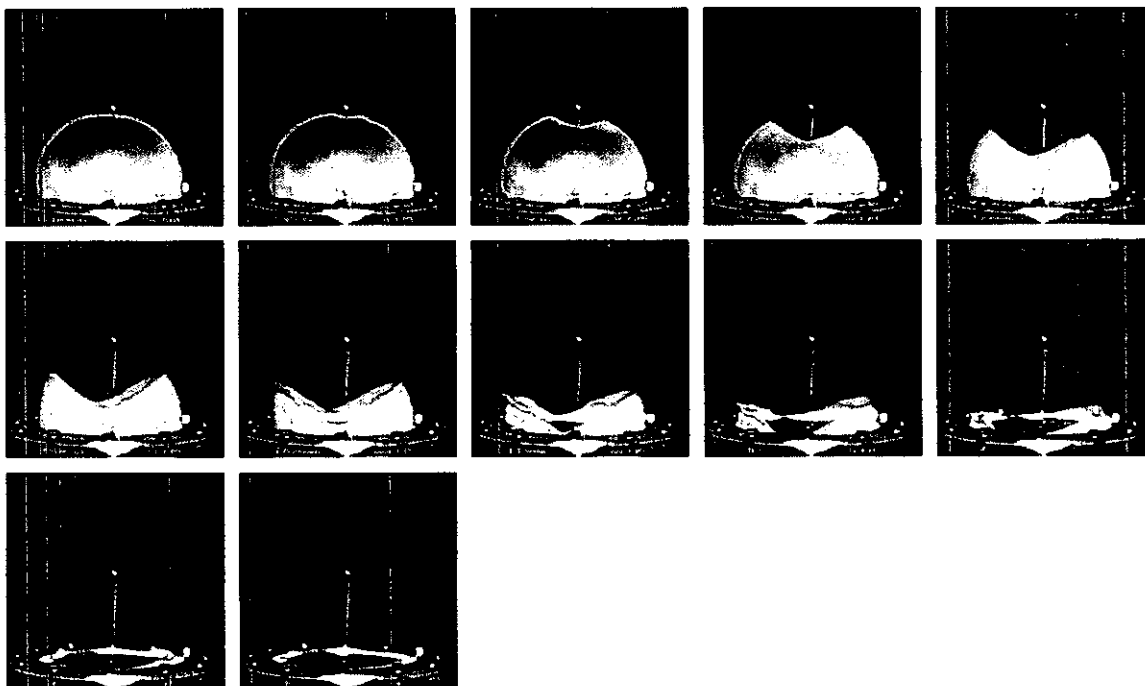
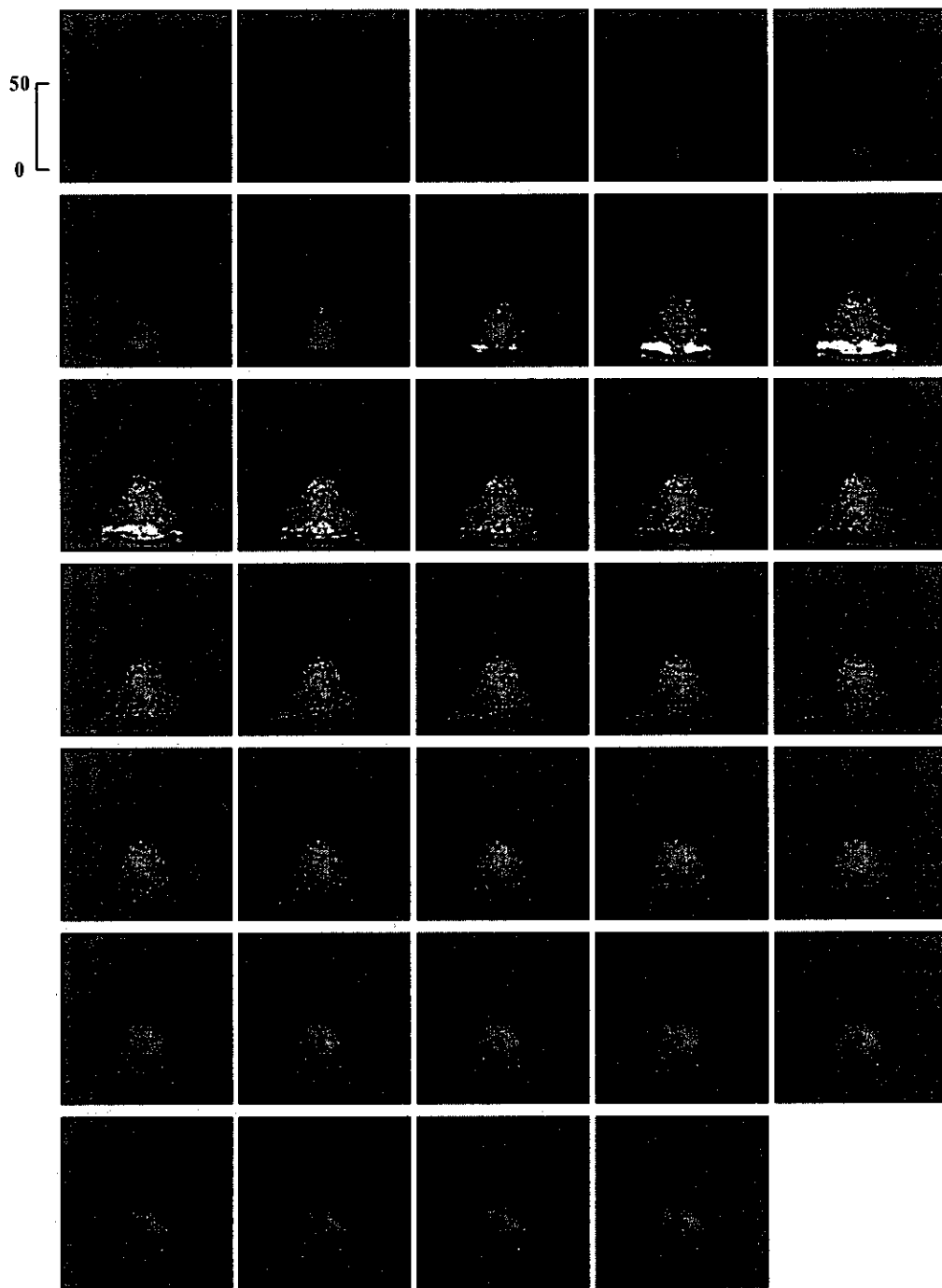


図 3-1 ラテックス膜の崩壊過程 (初期膜厚 $d_i = 0.1$ mm, 画像間隔 0.889 ms)

3.2 水素-空気予混合気塊の燃焼実験

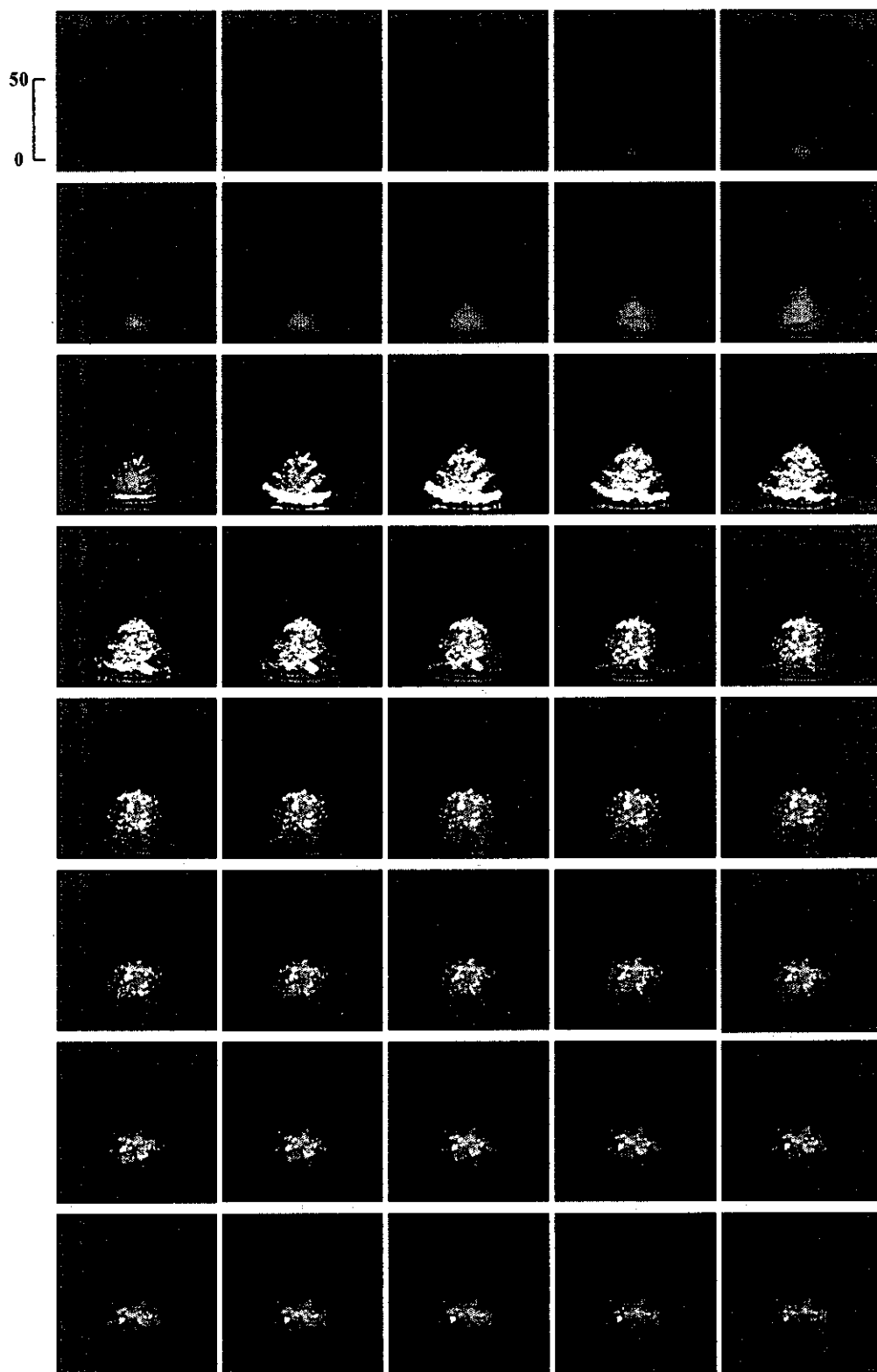
3.2.1 時系列画像

図 3-2 (a) ~ (h) に、高速度 CCD カメラにより高速度撮影された、当量比が 0.6 ~ 1.3 の各条件における時系列画像を示す。水素火炎では、炭化水素系燃料の火炎において生成される CH^* ラジカル(主として 390 nm, 430 nm 付近のバンドスペクトル)や C_2^* ラジカル(470 nm, 510 nm, 560 nm 付近のバンドスペクトル: スワンバンド) からの火炎発光がなく、可視域における強い火炎自発光スペクトルは通常ほとんど観察されないのではほぼ無色である。カメラの画素上に発光が可視化される理由として、カメラの画素感度の波長依存性(本実験で用いた CCD カメラは近紫外および近赤外付近にまで若干の感度がある)、大気中の塵や微量元素成分との反応等が考えられるが、発光の分光分析を行っていないのでここでは推測の域を出ない。しかし、発光が観察されている高温領域という意味でここでは便宜上、可視“火炎”と呼ぶことにする。画像から、充填した予混合気の当量比が増大するにつれて、カメラが捉えた可視火炎の形状が変化し、発光輝度も次第に増加していく様子がわかる。特に、当量比が 1.0 より大きな予混合気濃度条件の場合、破膜までに膜内部で燃焼を完了できず、残存した予混合気が噴出して着火する形態となる。この場合、テストセクション上方には、明確な火炎球 (Fire ball) が形成されることがわかる。



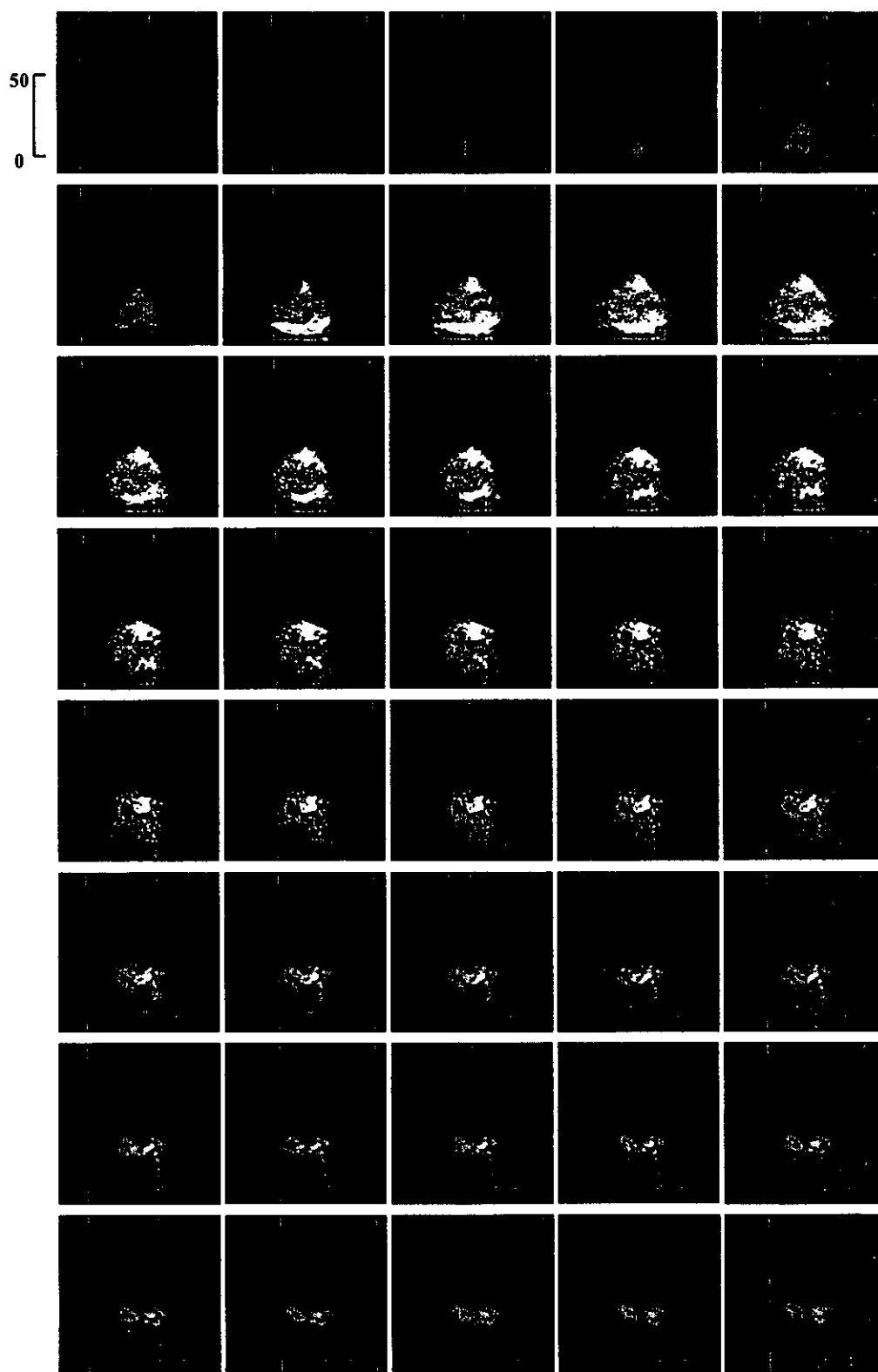
(a) $\phi = 0.6$

図 3-2 水素-空気予混合気塊の燃焼 (初期膜厚 $d_i = 0.1$ mm, 画像間隔 1.11 ms)



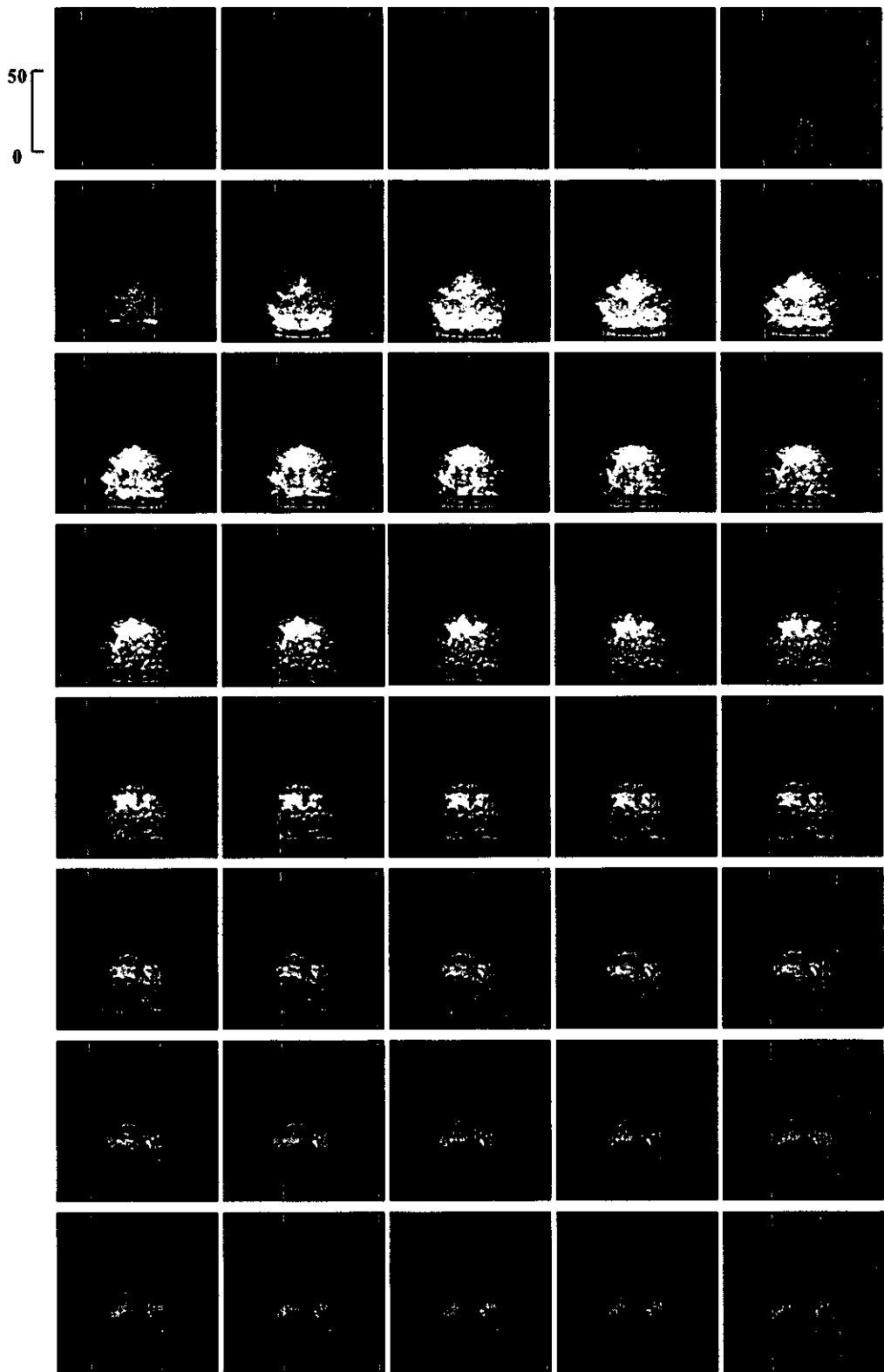
(b) $\phi = 0.7$

図 3-2 水素-空気予混合気塊の燃焼 (初期膜厚 $d_i = 0.1$ mm, 画像間隔 1.11 ms)



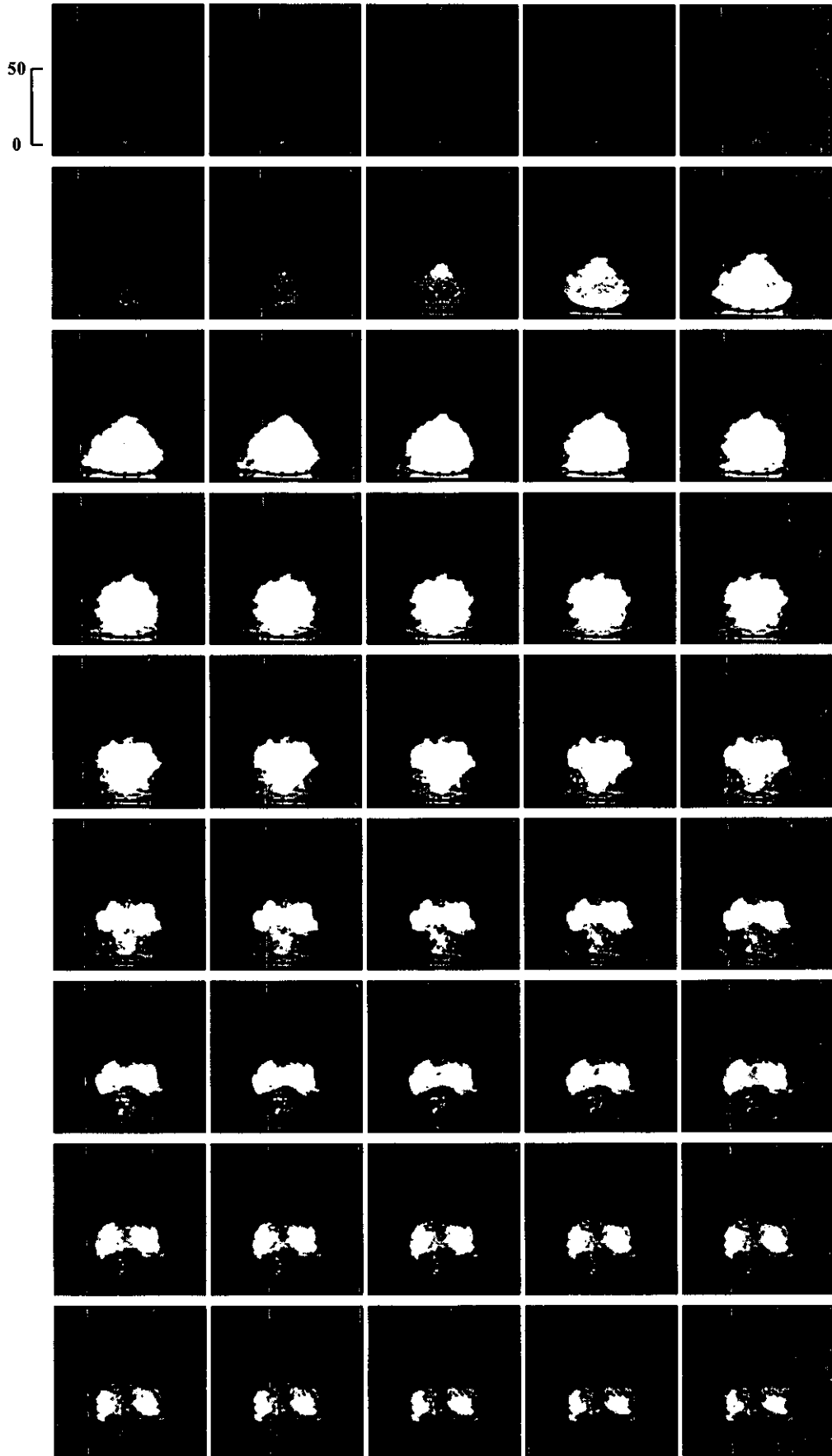
(c) $\phi = 0.8$

図 3-2 水素-空気予混合気塊の燃焼 (初期膜厚 $d_i = 0.1$ mm, 画像間隔 1.11 ms)



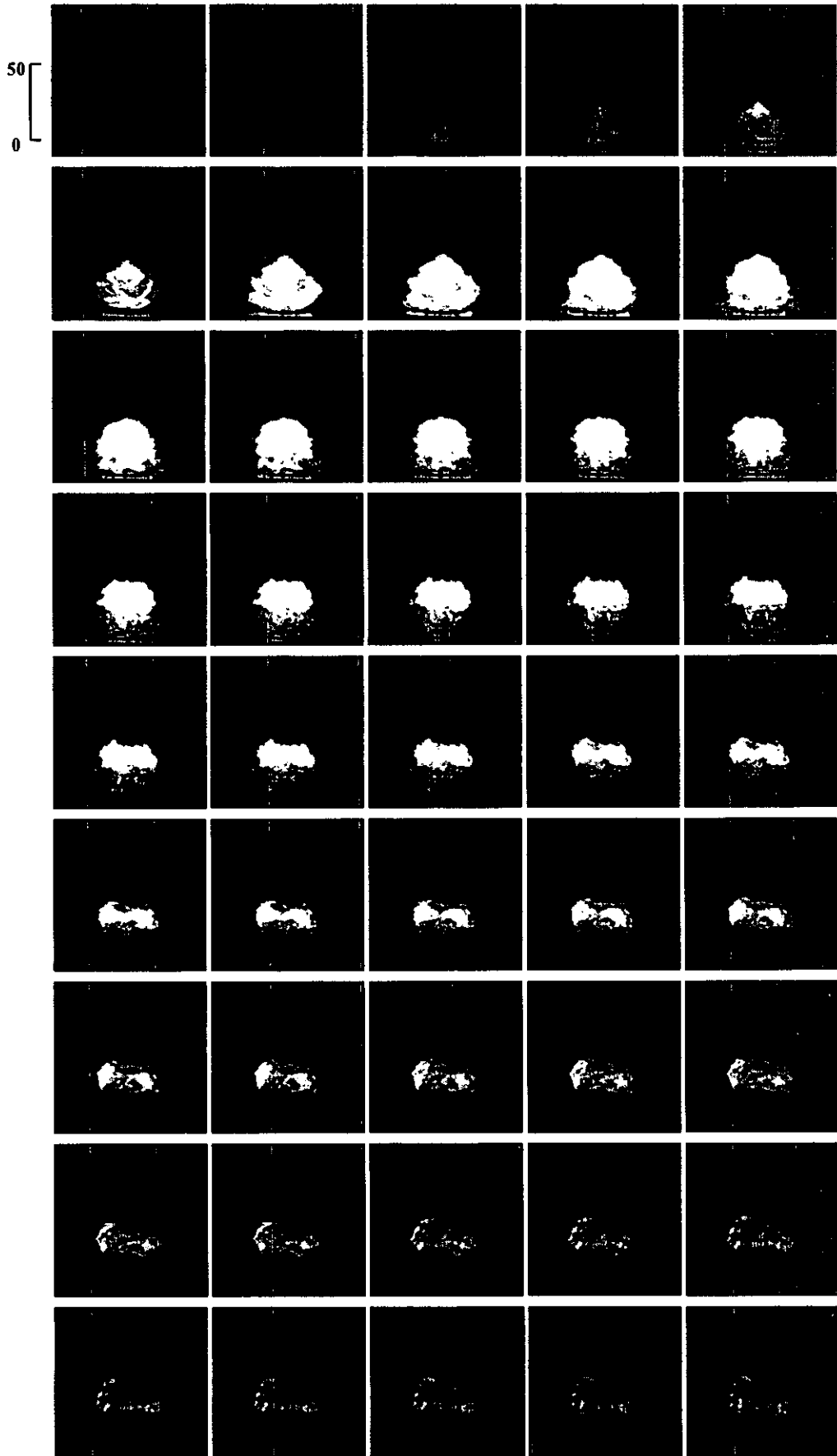
(d) $\phi = 0.9$

図 3-2 水素-空気予混合気塊の燃焼 (初期膜厚 $d_i = 0.1$ mm, 画像間隔 1.11 ms)



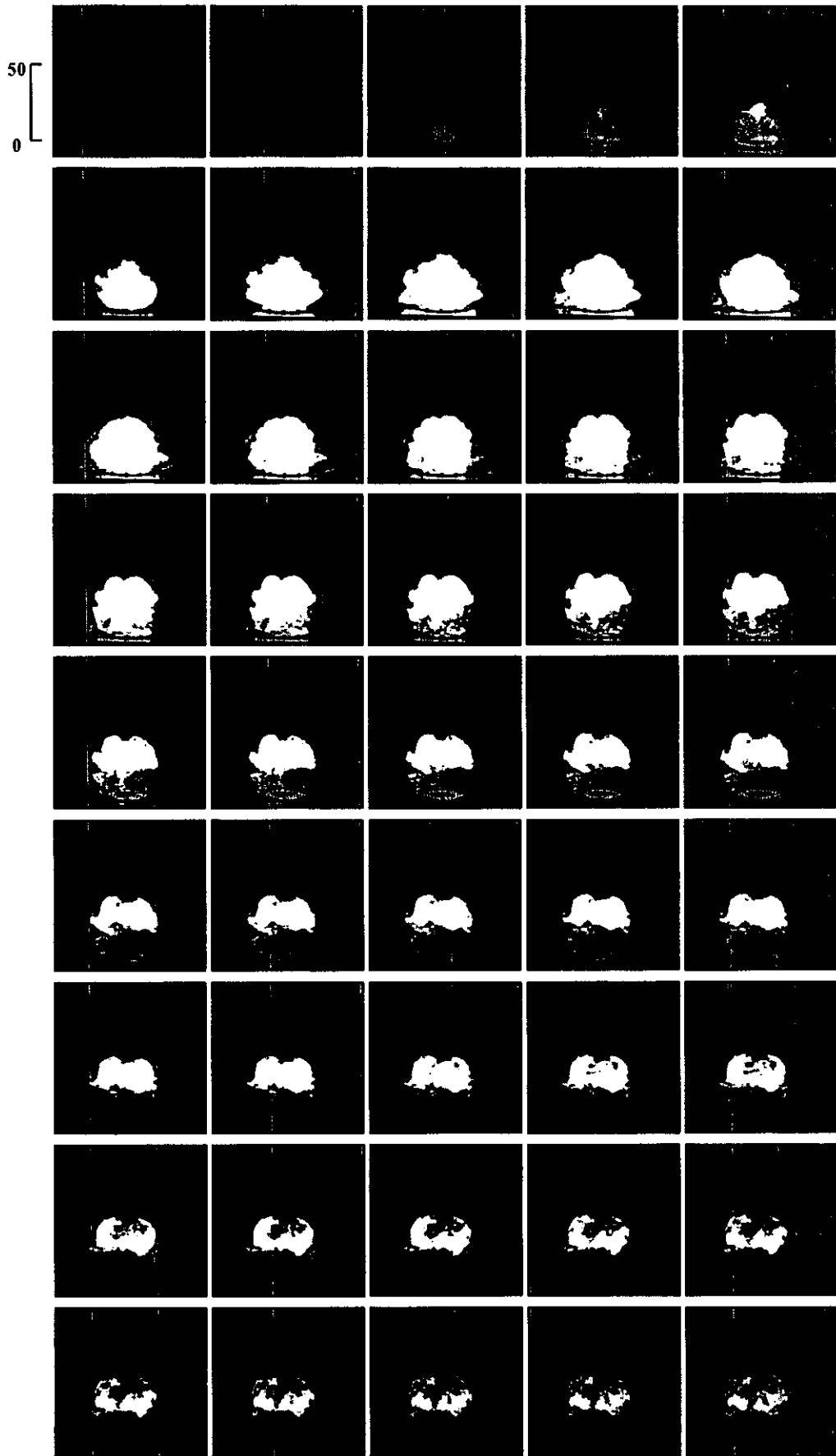
(e) $\phi = 1.0$

図 3-2 水素-空気予混合気塊の燃焼 (初期膜厚 $d_i = 0.1$ mm, 画像間隔 1.11 ms)



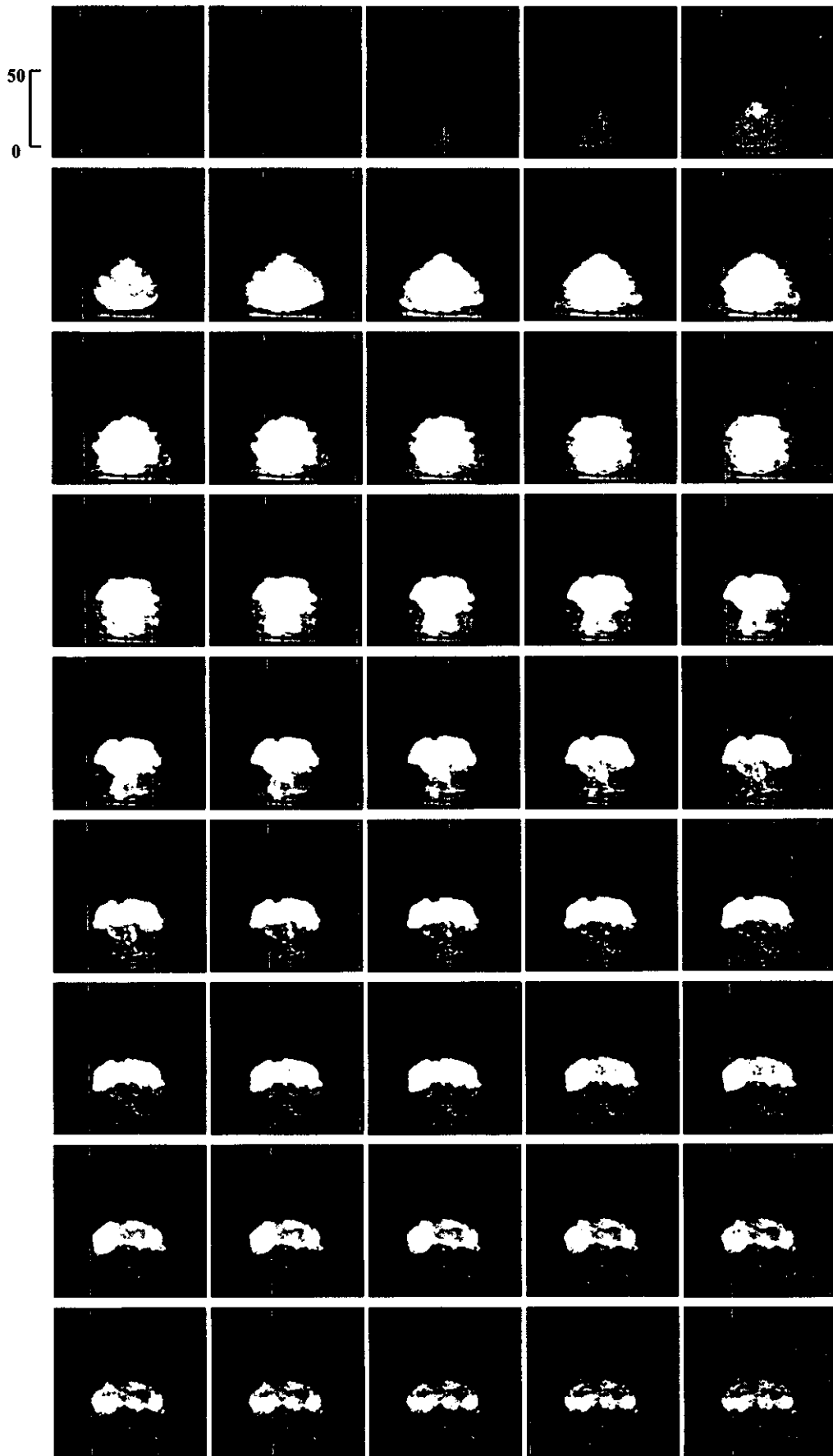
(f) $\phi = 1.1$

図 3-2 水素-空気予混合気塊の燃焼 (初期膜厚 $d_i = 0.1$ mm, 画像間隔 1.11 ms)



(g) $\phi = 1.2$

図 3-2 水素-空気予混合気塊の燃焼 (初期膜厚 $d_i = 0.1$ mm, 画像間隔 1.11 ms)



(h) $\phi = 1.3$

図 3-2 水素-空気で混合気塊の燃焼 (初期膜厚 $d_i = 0.1$ mm, 画像間隔 1.11 ms)

3.2.2 爆発音の音圧レベルの当量比依存性

ドーム内部の水素-空気予混合気への点火の際には、大きな爆発音が発生する。ここでは、爆発音の強度を音圧レベルという尺度で評価することにする。

音圧レベルとは音の物理的尺度であり、人間の最小可聴音の音圧である $20 \mu\text{Pa}$ を 0 dB とするものである。音圧レベル L_p [dB] は次式で定義される。

$$L_p = 10 \log_{10} (p^2 / p_0^2) \quad (3-1)$$

ここで、 p は測定された音圧、 p_0 は基準となる音圧 ($p_0 = 20 \mu\text{Pa}$) である。例えば、ジェットエンジンの音圧レベルは 120 dB 以上、深夜の郊外でおよそ 10 dB というように計測される。

図 3-3 は、点火時刻から燃焼完了までの間に発生した音のピーク音圧レベル $L_p(\text{max})$ の当量比依存性を示したものである。各実験点は、音圧の瞬時最大ピーク値を 3 回計測して求めた平均値である。ピーク音圧レベル、すなわち、爆発の規模は当量比の増加とともに増大することがわかる。ただし、当量比が 0.9 から 1.1 にかけて音圧レベルが横這いになり、その後再び増加する傾向を示した。

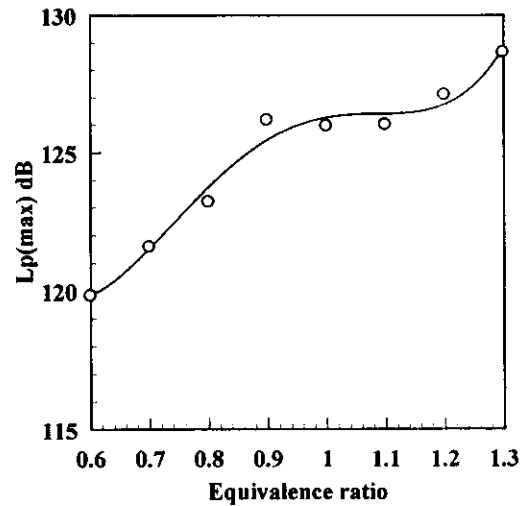


図 3-3 最大音圧レベル $L_p(\text{max})$ の当量比依存性

3.2.3 火炎の通過領域と燃焼時間

水素貯蔵施設から漏洩した水素が、周囲空気と予混合気を形成して何らかの点火源により着火した場合（あるいは、爆発した場合）、高温の燃焼ガスや火炎が施設周辺の広域に及ぶ可能性がある。爆発規模に応じて、これらの領域が空間中をどの程度広がるかについて予測ができることは、水素貯蔵施設等の安全基準策定のために必要であると考えられる。

そこで、本実験において、閉空間から開空間へと噴出した高温の燃焼ガスや火炎が、テストセクション上方のどれくらいの領域に広がるかを調べた。

まず、画像輝度のヒストグラムを考慮して得られた時系列画像に二値化処理を施し、可視火炎の輪郭形状を抽出する。次に、これら

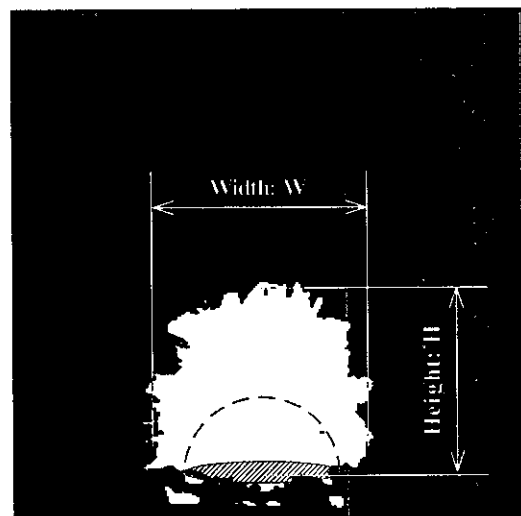


図 3-4 可視火炎の最大到達高さ H と最大広がり幅 W の定義

時系列二値画像を重ね合わせ、可視火炎の通過領域を決定する。図 3-4 は、水平および鉛直方向への最大到達距離、H および W の定義である。

このようにして求めた可視火炎の最大到達高さ H、および、最大広がり幅 W の当量比依存性を図 3-5 に示す。各々、テストセクション直径 (= 275 mm) で正規化している。図に示されるように、水平方向の最大広がり幅は、当量比が 1.0 までは当量比の変化に対する増加率が高いが、それを越えると変化の勾配が緩やかになる。一方、鉛直方向の最大到達高さは、当量比が 1.0 まではあまり変化がなく、これを越えると増加率が大きくなる傾向にあることがわかる。

さらに、可視火炎が存在する時間、すなわち、燃焼を完了するのに要した時間を、時系列画像を利用して求めた。画像中に可視化された火炎の発光輝度が、高速度 CCD カメラの検出限界付近（最低輝度値）になった時点が火炎が存在しなくなった時刻とし、各当量比条件について 3 回の計測の平均を求めた。充填当量比と火炎の存在時間の相関を図 3-6 に示す。火炎の存在時間も、図 3-3 に示したピーク音圧レベルの傾向と類似し、希薄から当量比 1.0 付近までの増加率が大きい、それ以降では緩やかに増加する傾向がみられた。

3.2.4 メタン-空気予混合気塊の燃焼挙動との比較

水素-空気予混合気塊の燃焼形態と、水素より重いメタンを用いた場合の燃焼形態を比較するために、当量比 1.0 で膜内に充填したメタン-空気予混合気塊の爆発実験を行った。

当量比 1.0 のメタン-空気予混合気塊の燃焼を高速度 CCD カメラで撮影した時系列画像を図 3-7 に示す。騒音計による点火の際に生じた爆発音の計測値は 110.8 dB であった。また、高速度 CCD カメラの画像から、水素-空気予混合気の場合と同様に火炎の存在時間を求めると、94.7 msec となった。時系列画像を見ると、各当量比条件における水素-空気予混合気の燃焼とも全く異なったものとなっている。同じ当量比 1.0 の水素-空気予混合気の燃焼と

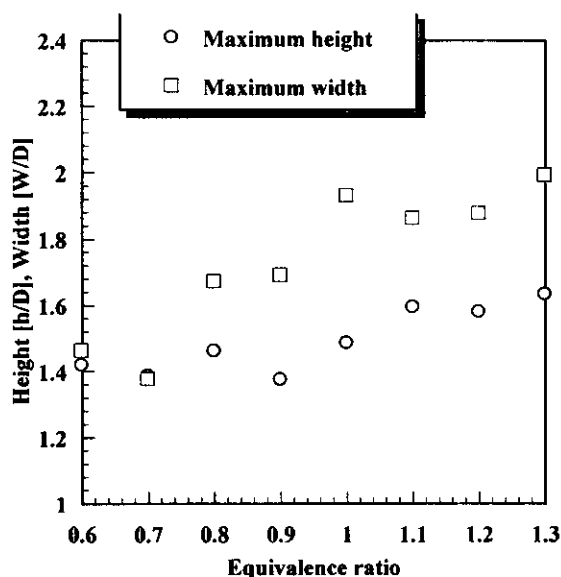


図 3-5 可視火炎の最大到達距離

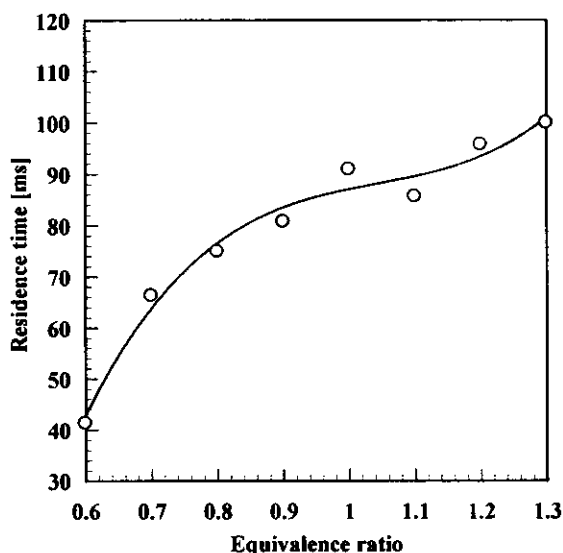


図 3-6 充填当量比と可視火炎の存在時間の相関

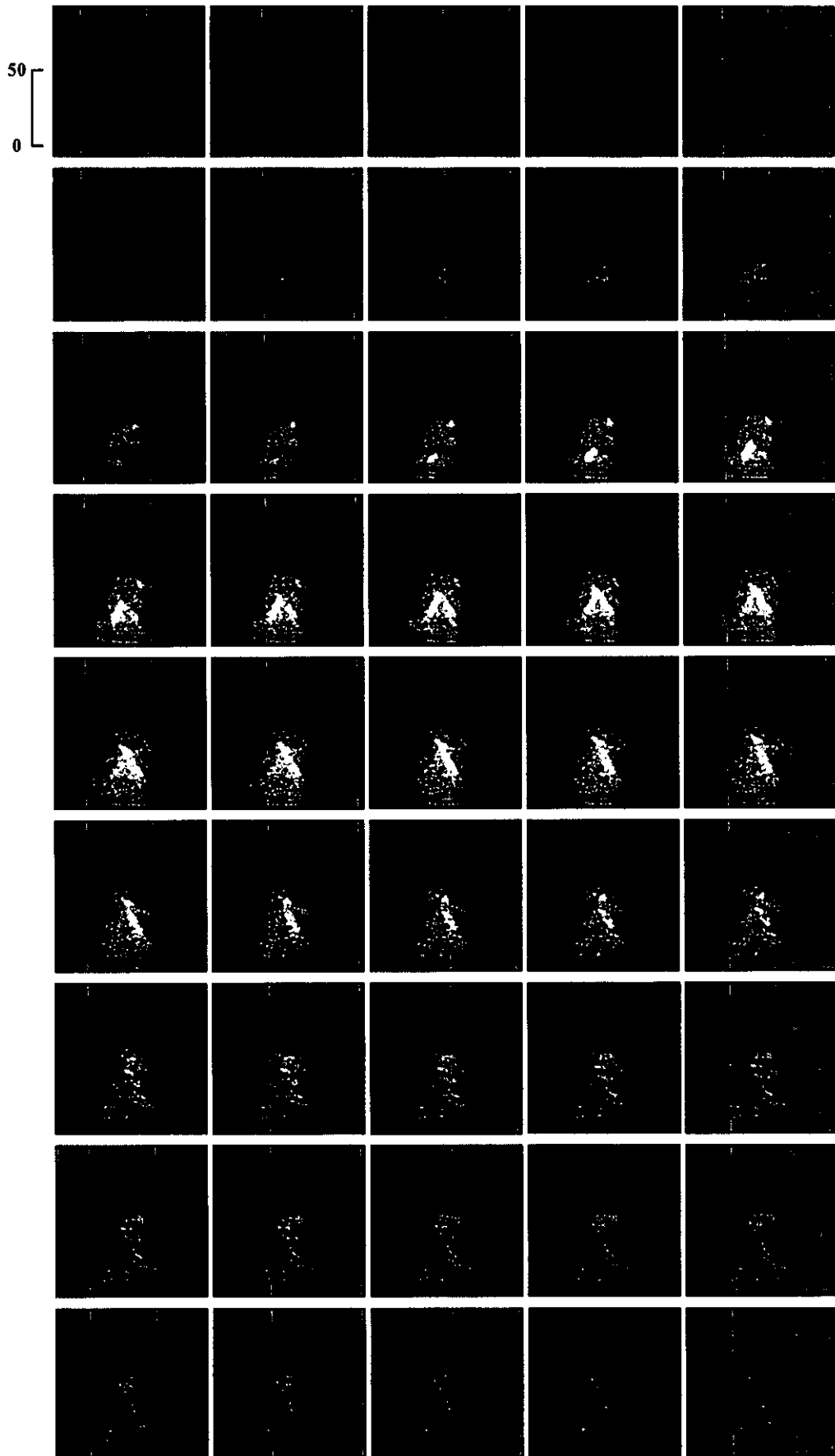


図 3-7 メタン-空気予混合気塊の燃焼 (当量比 1.0, 画像間隔 1.11 ms)

比較すると輝度が明らかに低く、火炎が横方向にはあまり広がっていないが、縦方向にはより高い位置まで達していることがわかる。

また、爆発音の最大ピーク音圧レベルも、当量比 1.0 の水素-空気予混合気の場合の 125.9 dB と比べてみるとかなり小さくなっている。火炎の存在時間については、当量比 1.0 の水素-空気予混合気の場合の 90.9 msec に比べると、多少長くなっている。前述したとおり、膜の破裂形態はほぼ同じであるから、これらの爆発挙動の違いは燃料の燃焼特性によるものであると考えることができる。両者の比較のために、表 3-1 に水素およびメタンの物性値を示す。

水素とメタンの爆発挙動が異なる要因として考えられるのは、両者の燃焼速度の違いである。水素-空気予混合気、メタン-空気予混合気の当量比 1.0 における層流燃焼速度は、標準状態においては、それぞれ 1.8 m/s, 0.3 m/s となっており、6 倍ほども異なっている。この燃焼速度の違いのため、ラテックス膜が崩壊する瞬間の内圧、未燃の燃料量などに大きく差が生じており、上述のように火炎輝度、最大ピーク音圧レベル、および、火炎の存在時間に差が生じたと推察される。水素-空気予混合気の燃焼では、メタン-空気予混合気の燃焼に比べて燃焼速度が大きいため、瞬間的に燃焼反応が進む。これにより、火炎輝度は瞬時に高くなり、またラテックス膜崩壊直前の内圧上昇により、最大ピーク音圧レベルも大きくなる。さらに、ラテックス膜が崩壊する瞬間の内圧は、横方向への拡がりも助長する。逆に、メタン-空気予混合気の燃焼では、未燃の予混合気が多量に残存するため、ラテックス膜の崩壊後も比較的長い時間燃焼反応が持続しており、縦方向に高い位置まで火炎が達したと考えられる。

表 3-1 水素およびメタンの物性値

	Hydrogen (gas)	Methane (gas)
Density [kg/m ³]	0.0899 (273 K, 1 atm)	0.657 (298 K, 1 atm)
Diffusion coefficient [cm ² /s]	0.787 (300 K, 1 atm)	0.216 (298 K, 1 atm)
Lower heating value [MJ/m ³]	10.79 (273 K, 1 atm)	35.79 (273 K, 1 atm)
Adiabatic flame temp. [K]	2388 (stoich.)	2232 (stoich)
Maximum burning velocity [m/s]	3.2 (42 vol%)	0.364 (9.7 vol%)
Rich flammability limit [%] (v/v)	75	15
Lean flammability limit [%] (v/v)	4	5
Rayleigh scattering cross section [10 ⁻²⁸ cm ²]	1.909	19.23

3.3 まとめ

本研究では、水素の製造、輸送、貯蔵、供給などに関わる施設における水素漏洩に伴う爆発事故を想定し、爆発事故シミュレーションのための計算コードの開発に必要な基礎実験データの収集および評価法の検討を目的として行われたものである。今回の実験で取得したデ

一タは実験室レベルの小規模実験に関するものであるが、水素-空気予混合気塊の爆発挙動に対するある程度の定性的な知見が得られたと考えられる。以下に本研究で得られた結論をまとめる。

- (1) 閉空間に閉じこめた水素-空気予混合気塊が着火し開空間へと開放される爆発過程を、高速度 CCD カメラによる高速度時系列撮影、および、騒音計による音圧レベル計測により定量的に評価することを試みた。
- (2) 閉空間に閉じこめる水素-空気予混合気の当量比を変化させ、火花点火により着火させて、その爆発過程を観察した。その結果、爆発規模の指標となる最大ピーク音圧レベル、可視火炎の輝度、最大到達距離、および存在時間は、当量比が 0.6~1.3 の間では当量比の増加とともに、全て大きくなる傾向を示した。また、当量比が 1.0 より大きな条件では、テストセクション上方で明確な火炎球 (Fire ball) が形成された。
- (3) 水素よりも重いメタンを用いて、同様の爆発実験を行い、同一当量比における両結果の比較を行った。その結果、メタン-空気予混合気の場合、発生する爆発音の最大ピーク音圧レベルは小さくなるが、可視火炎の存在時間から推察される燃焼の持続時間は若干長くなった。また、メタンでは火炎球の形成が観察されなかった。

3.4 今後の予定

今回行った実験は基礎実験であり、屋外で発生する実際の現象との比較も行われなければならない。そのため、今後の研究課題として以下のようなものを計画している。

(1) 水素の爆発限界は標準状態の水素-空気混合気においては、4~75 パーセント (当量比では 0.1 以下~7 以上) と非常に広く、また層流燃焼速度は当量比 2 付近で最大値をとる。しかし、今回の実験は、実験環境の制約により、燃焼実験を行ったのは当量比が 0.6~1.3 の間のみであり、未燃の水素が多量に発生すると思われる当量比の高い条件での燃焼実験は行わなかった。だが、実際の事故を想定するのであれば、危険性が高いと思われる当量比の高い条件での燃焼実験も行う必要がある。

(2) 実際に事故が起こった場合に考えられる被害は、爆発により発生する圧力波や熱発生を原因とした施設の損壊や火災、それによる人体への被害である。その危険性の評価のために必要となるのは、爆発現場付近の圧力および温度のデータであり、熱電対、圧力変換機、イオンプローブを用いた実験を近々開始する予定である。

(3) 実際の事故では、水素濃度だけでなく、温度、湿度、気流など、さまざまな周囲環境での事故が考えられる。そういった条件が燃焼に与える影響を把握する必要もあり、さまざまな条件下での爆発実験を行う必要がある。

(4) 上述のような実験による基礎実験データの収集、解析後、野外においてさらに大規模な装置での爆発実験を行うことも検討している。

5. レーザレーリ散乱法によるガス流の可視化および混合分率測定

名古屋大学大学院工学研究科 斎藤 寛泰, 吉川 典彦

1. 緒 言

本報告では、まず、漏洩事故時における水素の拡散過程を十分に把握できることが必要であるとの観点から、開空間中に拡散する水素の濃度分布測定法の確立を目指すことを目的に、レーザレーリ散乱法によるガス流の可視化、および、混合分率測定の子備検討を行って、その有用性を調べた。ただし、本予備検討では、水素の代わりにヘリウムを用いている。

2. レーリ散乱

入射光の波長よりも十分に小さなガス分子に偏光光が照射されたとき、光波によって生成される電場が分子の分極を引き起こす。この双極子は、負荷された電場が振動すると振動し、散乱光が全方位に放射される。この放射をレーリ散乱 (Rayleigh Scattering) とよぶ⁽¹⁾。レーリ散乱法は燃焼計測にも応用され、燃焼場における温度計測などが試みられている⁽¹⁻⁵⁾。

レーリ散乱光強度は、入射レーザ光、分子種、および、密度に依存する。入射レーザ光に直角な方向のレーリ散乱光強度 I_R は、

$$I_R = KI_0 N \sum x_i \sigma_{Ri} \quad (2-1)$$

となる。ここで、 K は光学系の装置定数、 I_0 は入射光強度、 N は分子数密度、 x_i は分子種 i のモル分率、 σ_{Ri} は分子種 i のレーリ散乱断面積である。いま、理想気体を仮定すると、

$$N = \frac{PA_0}{RT} \quad (2-2)$$

P は全圧、 A_0 はアボガドロ定数 ($6.02 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$)、 R は理想気体定数、 T は絶対温度である。式(2-2)を式(2-1)へ代入すると、

$$I_R = K' \frac{I_0}{T} \sum x_i \sigma_{Ri} \quad (2-3)$$

化学反応がなく、圧力変化が小さい亜音速流の場合を考え (近似的に圧力一定とする)、混合のみの2成分系の気体を仮定すると、

$$I_R = K' \frac{I_0}{T} \{x_1 \sigma_{R1} + (1-x_1) \sigma_{R2}\} \quad (2-4)$$

x_1 について解くと、

$$x_1 = \frac{(I_R T / K' I_0 \sigma_{R2}) - 1}{\sigma_{R1} / \sigma_{R2} - 1} \quad (2-5)$$

成分1をヘリウム、成分2を空気とすると、式(2-4)から、空気のみの場合に対して ($x_1 = 0$)、

$$I_{R2} = K' \frac{I_0}{T} \sigma_{R2} \quad (2-6)$$

式(2-5)と式(2-6)から、

$$x_1 = \frac{I_R/I_{R2} - 1}{\sigma_{R1}/\sigma_{R2} - 1} \quad (2-7)$$

空気に対するヘリウムのレーリ散乱断面積比 σ_{R1}/σ_{R2} は 0.0165 と既知であるので^(3, 4), 同一の光学系に対する空気のみでのレーリ散乱光強度 I_{R2} を把握した上で, 濃度未知のヘリウム-空気混合ガスに対して I_R を計測すれば, ヘリウムのモル分率 x_1 を知ることができることになる.

3. 実験装置および方法

図 3-1 に, 本実験で用いた実験装置の概略を示す. シート状にしたレーザ光をレーリ散乱光の光源とすることで, 二次元断面におけるレーリ散乱計測が可能となる. レーザシート光の光源として, Nd:YAG レーザの第二高調波 (波長 532 nm) を用いた. レーザ光は凸レンズで集光された後, 円筒レンズによりシート状にされ, テストセクションの中心断面を照射する. レーザシート光の厚みは, およそ 1 mm である. レーザシート光に照射された気体分子からのレーリ散乱光は, シートに垂直方向に配置した ICCD カメラにより, カメラレンズ (Nikon 社製, UV Nikkor, $f = 4.5$) を介して撮影される. その際, 微弱な散乱光強度をイメージインテンシファイアにより増幅している. また, YAG レーザから繰り返し周波数 10 Hz で照射されるレーザ光と検出系の同期, および, イメージインテンシファイアのゲート時間の調節をパルスディレイジェネレータ (Stanford Research Systems 社製, WC Model DG535) を用いて行った.

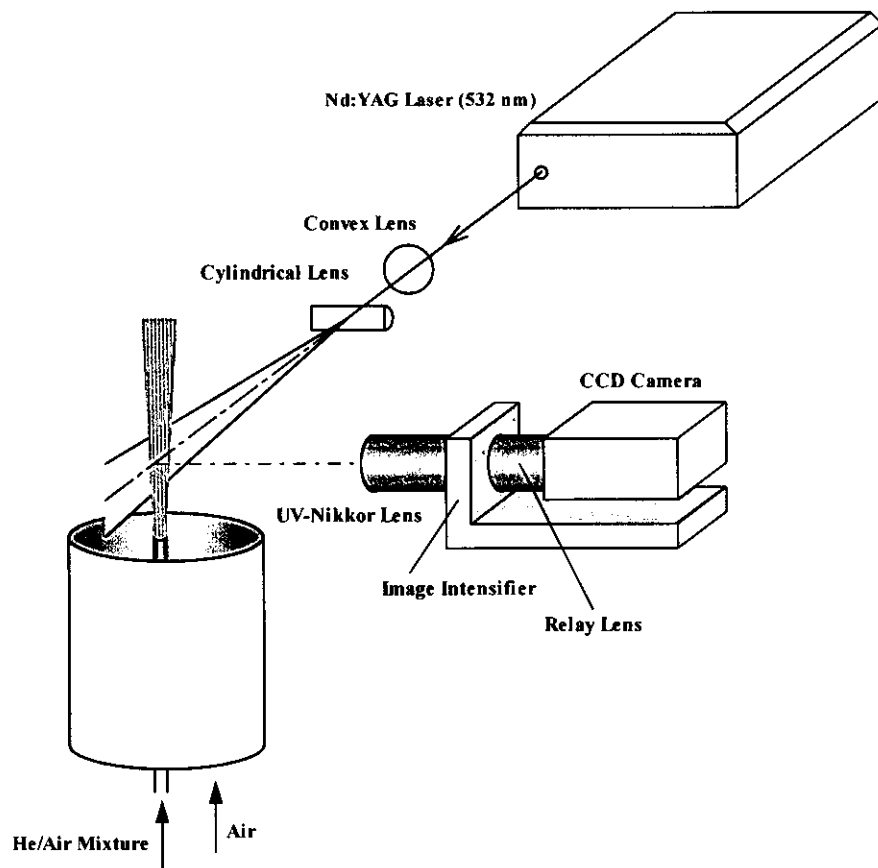


図 3-1 実験装置の概略