

## 減衰衝撃波による水素—酸素当量混合気の直接起爆

川村義郎\*, 松為宏幸\*, 浅羽哲郎\*

2H<sub>2</sub>-O<sub>2</sub>混合気の平面衝撃波による直接起爆に要する限界衝撃波マッハ数を2段型衝撃波管により測定した。減衰入射衝撃波による試料気体の圧縮加熱過程を合計8箇所に設けられた圧力計及びシュリーレン流し写真法により追跡した。直接起爆を誘起するのに必要な最小入射衝撃波の値は、 $p_1=25, 50, 100$  torr に対して、それぞれ、 $M_s=3.93\pm 0.05, 3.82\pm 0.01, 3.96\pm 0.02$ であった。本実験の結果は、反射衝撃波によるVoevodsky and SoloukhinおよびMeyer and Oppenheimの結果と、やや異なるが、直接起爆機構についての後者の考え方を支持するものと思われる。

## 1. 序論

衝撃波による爆轟生成過程の研究は、古くから数多く行われて来ている。特に、一次元平面波による起爆過程と限界に関する研究として、Gordon等<sup>1)</sup>Kistia-kowsky<sup>2)</sup>等の爆轟波を高圧源とする衝撃波管による研究、Fay<sup>3)</sup>、Steinberg<sup>4)</sup>、Belles<sup>5)</sup>、Bazhenova<sup>6)</sup>、Laderman<sup>7)</sup>、Edwards<sup>8)</sup>等の単段または、二段型衝撃波管を用いた入射衝撃波による研究が挙げられる。

これらの研究の多くでは、爆轟を発生する温度、圧力、組成等に関する限界が、静止した系における熱的な爆発限界<sup>9)</sup>とどのように関係するかという点に興味の中心が置かれている。

入射衝撃波を用いた研究は、非反応性気体に大希釈されている場合は、均一に近い温度と圧力のパルスを与え、反応過程の研究に大変好都合であるが、試料気体が大きな反応熱の放出を伴う場合、反応帯から伝播する波動のため衝撃波背後の流れは非均一となり爆轟発生温度および圧力の限界値を評価することが困難となる。また、高圧部と低圧部境界の隔膜が破れる際に生ずる乱れの影響等が、測定結果の解釈を困難とする。この欠点を克服するため、次の3グループが、殆んど流れが静止している反射衝撃波による加熱気体の爆発過程の研究を行った。

Strehlow<sup>10)</sup> 11)等は、Arで希釈された2H<sub>2</sub>+O<sub>2</sub>系において、反射衝撃波背後の爆発が一次的に生じ、反応による衝撃波加速が次の3つのパターンに分けられることを見出した。(i) 反射衝撃波が、反応中心

より伝播する圧力波により、漸次加速される過程(不活性ガス大希釈、低圧)、(ii) 反応中心における急激な爆発とこれに伴う鋭い衝撃波の発生が、壁面近くで発生し、先行衝撃波が、この反応に伴って生じた衝撃波に追い抜かれて定常爆轟へ移行する過程(大希釈、高圧)、(iii) 多数の圧縮波が、非中心的に発生し、壁から少し離れたある地点でこれが集まり、急激な爆発を誘起し、強い衝撃波を発生させ爆轟に至る過程(希釈度が低く、反応熱が大きい時)。しかし、彼らの研究は、爆発のパターンを現象論的に分類するにとどまっている。一方、Voevodsky and Soloukhin<sup>12)</sup>は、2H<sub>2</sub>+O<sub>2</sub>系において、非常に短時間の間に反応が爆発的に生じ、爆轟が急速に発生する場合を、強い起爆過程、反応がゆっくりと進行して衝撃波が直接、爆轟に移行しない場合を、緩やかな起爆過程として、この両者が、反応速度論的な圧力—温度の第二限界によって分けられることを見出した。これに対してMeyer and Oppenheim<sup>13)</sup>は、Soloukhin等の実験を、更に正確に検証するために、高速コマ撮り写真法により爆発のパターンを分類し、その条件を整理した。彼らは、Soloukhin等と異なり、上記2種類の爆発パターンは、発熱反応誘導時間に支配されると考えた。彼らは、強い起爆過程において、反射衝撃波で加熱された壁の近くの試料気体が、発熱反応して、強い衝撃波を生成し、これが発達して爆轟波と同様の構造を持つ衝撃波となり、先行する反射衝撃波を追い抜いて、急速に爆轟へ移行するのに対して、緩やかな起爆過程においては、壁の極く一部(多くの場合反射端角)から非均一的に反応が伝播し、次第に成長して、複雑な三次元的構造を伴う衝撃波となり、やがて先行衝撃波を追い抜いて行くことを示した。

昭和58年5月10日受理

\*東京大学工学部反応化学科

〒113 東京都文京区本郷 7-3-1

TEL 03-812-2111 内 7296

強い起爆と緩かな起爆過程を分ける限界値のP. T依存性は、Voevodsky & Soloukhimの測定結果と Meyer & Oppenheimのそれとで逆の温度依存性を示し、両者の差は、特に低圧部で著しい。

衝撃波による爆轟の直接起爆過程<sup>14)</sup>は、これらの研究と大変深い関係を持っている。三次元爆発において、もし球面爆轟波が、爆轟の直接起爆条件を満たしているとするならば、少くとも、衝撃波の減衰に伴う反応誘導時間の指数関数的な増大が、試料気体の反応による自己加熱効果によって相殺される必要がある。上に述べたように、強い起爆が発生するために必要な温度、および圧力条件は、反応速度論的に決定される反応誘導時間（あるいは、その温度）と密接に関係する。直接起爆条件は、この強い起爆を生ずるに必要な温度、圧力および反応誘導時間等の条件と、衝撃波減衰に伴う試料気体の冷却条件との競合過程により定義されると考えてよい。安全工学上の見地からも、このような直接起爆条件に関する明確な実験的限界を求めることは、非常に重要であるが、これまでの研究においては、与えるエネルギーの測定値は大きく異っている<sup>15), 16)</sup> <sup>17)</sup>このような研究を行うためには、明確に状態を定義できる加熱方法による実験を行うことが望ましい。

一方、先に述べた Meyer and Oppenheim の高速写真を見ると、明らかに強い起爆過程において、反射衝撃波背後の流れは、入射衝撃波背後で発達した境界層と干渉していることがわかる。また、反射端における熱境界層のため反射板よりややずれた位置から、反応による一次的衝撃波が発生しているように思われる。以上の理由から、我々は、直接起爆限界に関する研究を、二段型衝撃波管による入射衝撃波を用いて行うことが必要であると考えた。一次元入射衝撃波による直接起爆の過程が、先の反射衝撃波による起爆過程の結果と、どのように対応するかは、これまで研究されていない。特に、Meyer and Oppenheim の測定は、 $p > 0.5 \text{ atm}$  の範囲で測定が行われているが、彼らが想定しているように2つの爆発過程が、 $(d\tau/dT)_p$ により支配されるとすれば、低圧領域で限界は高温側に大きくずれる筈である。彼らは、このことを実験的に確認していない。したがって、低圧領域ではSoloukhin等の結果との差が、より顕著になる筈である。本研究では、以上の点に着目して、反射衝撃波より境界層の影響が少ないと思われる入射衝撃波を用いた実験により、爆発限界の機構を検討することを目的とする。

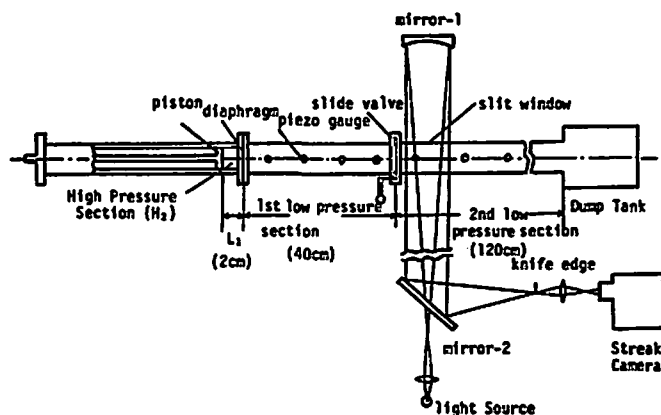


Fig. 1 A Schematic of the Experimental Apparatus

## 2. 実験

実験に使用した衝撃波管は、Fig. 1に示すような二段型で、高圧部、第一低圧部、第二低圧部に分けられた内径25mm、長さ約3mの管で、高圧部の長さ（約2cm~100cmの間で可変）を極端に短くすることにより、管端からの反射希薄波が、先行する衝撃波に追いつき、第二低圧部に到達する時点で急速な減衰を示すように設計した。高圧部駆動ガスには窒素・水素の混合気、第二低圧部に当量酸水素混合気を用い、各々マイラー隔膜及びスライドバルブで仕切られる。バ

ルブ開放操作時の入口付近でのガスの乱れや、拡散による混合の影響を少なくするため、スライド板の厚さは、1mmとし、第一低圧部の不活性ガス混合気の密度を、試料気体すなわち当量酸水素混合気と同じに、あらかじめ調整した。

実験においては、第一低圧部に不活性ガス、第二低圧部に酸水素混合気を同圧に満し、スライドバルブは駆動ガス（ $\text{H}_2$ ）の昇圧直前に開放する。隔膜の破壊によって不活性ガス中に発生する種々の強さの衝撃波

を酸水素混合気に入射させ、爆轟を生成させる。この過程を、10cm～20cm間隔で設けられたピエゾ素子、及びスライドバルブ下流1cm～13cmの位置でのシュリーレン流し写真によって観測した。Fig. 2にスライドバルブをはさんで前後5cmの位置での圧力波形を示す。(各々を piezo (A), (B)とする。) 試料気体入射直前の波形は、後方からの希釈波によって急激な減衰を示している。このような減衰衝撃波が、酸水素混合気中に入射した場合のシュリーレン流し写真の例を Fig. 3に示す。起爆の可否は、写真から得られる衝撃波面の速度 ( $V_s$ ) から判定できるが、また、波面の明かさからも明瞭に判断できる。下の写真の場合、測定される衝撃波面速度は、定常爆轟伝播速度を超え、オーバーシュートしていることが観測される。

### 3. 結果

初期圧を一定にした当量酸水素混合気、不活性ガス中に発生させた種々の強さの衝撃波を投射し、電子カウンタで記録した衝撃波伝播速度 ( $U_s$ ) の推移を Fig. 4に示す。横軸の0点はスライドバルブの位置で、左側が不活性ガス中、右側が酸水素中に伝播する衝撃波速度の推移である。図に示されるように、これらに

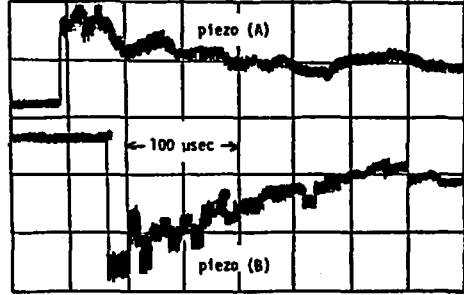


Fig. 2 Examples of the pressure History of The Incident Shock Wave

- (A): Output signal of the pressure gauge 5 cm upstream of the slide valve (buffer section).  
 (B): Output signal of the pressure gauge 5 cm downstream of the slide valve (test section)

Driver gas:  $H_2$ , Driven gas; 62%  $H_2$  + 38%  $N_2$  in the buffer section and 67%  $H_2$  + 33%  $O_2$  in the test section, respectively.  
 $p_1 = 50$  torr and  $M_{s1}$  (incident shock Mach number at the interface of the two low pressure sections) = 3.83.

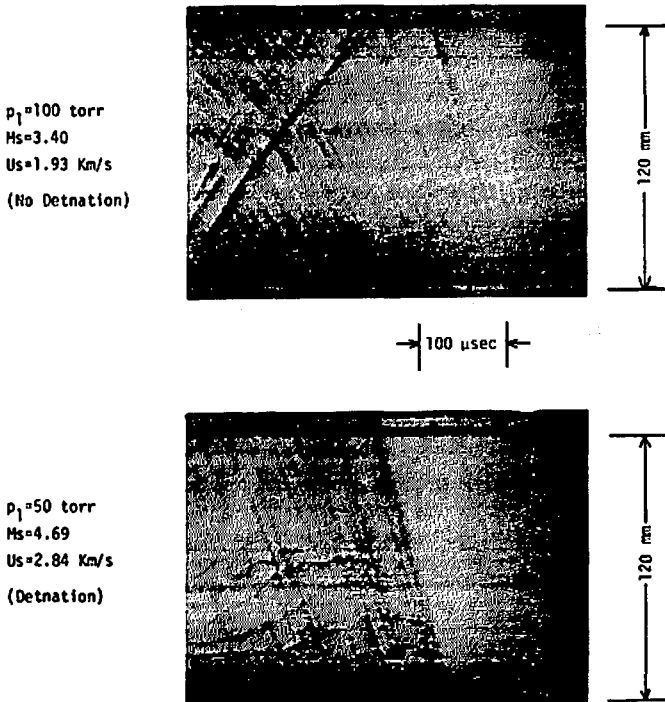


Fig. 3 An Example of The Streak Picture of Schlieren Photography,  
 upper picture: no explosion  
 lower picture: detonation initiated within 1 cm downstream from the slide valve.

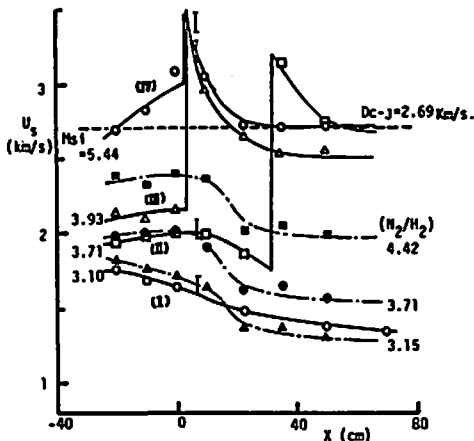


Fig. 4 Features of The Initiation of Detonation for Various Strengths of The Incident Shock Waves.

$x = -40 \sim 0$  cm: Buffer section (62%  $H_2 + 38\%$   $N_2$ ),  $x > 0$ : Test section (67%  $H_2 + 33\%$   $O_2$  or 62%  $H_2 + 38\%$   $N_2$ ).

Results obtained by pressure gauges: open symbols connected by — for 67%  $H_2 + 33\%$   $O_2$ , and shaded symbols connected by - · - for 62%  $H_2 + 38\%$   $N_2$  as a test gas, respectively. I: Result obtained by streak-Schlieren record. Indicated value with each line shows the incident shock Mach number,  $M_{s1}$ .

は、三つのパターンがある。入射衝撃波が弱い(I)の場合、高圧部管端からの反射希薄波によって急速に減衰するだけの挙動を示し、より(II)の場合、最初反応熱による自己加速の効果と反射希薄波による減衰が打消し合うが、後方で爆轟が観測される。入射衝撃波が更に強い(III)の場合、酸素素混合気中に衝撃波が入射すると、直ちに爆轟に転移する。爆轟が起こっている場合、爆轟波の伝播速度は、計算によって求められる定常爆轟伝播速度 ( $D_{c-J}$ ) に較べて、かなり大きな値を示すが、徐々に、定常爆轟伝播速度に漸近する。定常爆轟伝播速度以上の入射衝撃波を入射させた(IV)の場合も、(III)と同様である。又、シュリーレン流し写真で観測した速度をI印で示したが、良く一致している。このような作図を全ての実験について行い、スライドバルブの位置 (Fig. 4の0点) での入射衝撃波マッハ数 ( $M_{s1}$ ) を内挿によって求めた。Fig. 4で示されている数字は、その値である。同図に、低圧部全体に不活性ガスのみを満した場合の衝撃波伝播速度の推移の例を鎖線で示す。これと比較すると、(I) (II) のいずれの場合も、反応熱による自己加速の効果が明確に表れている。

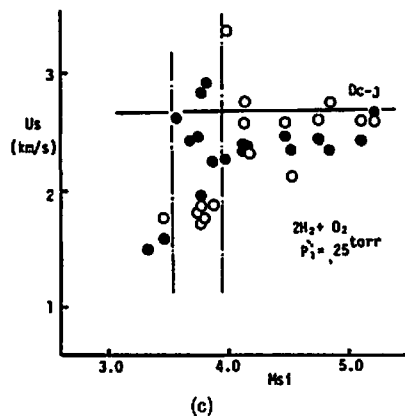
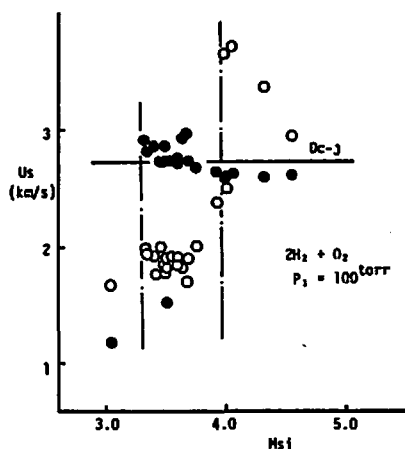
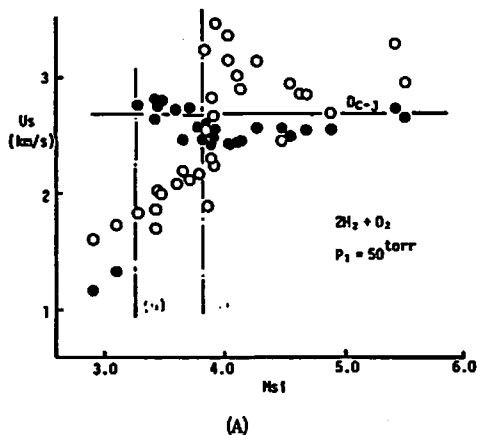


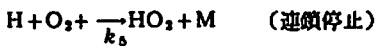
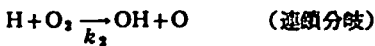
Fig. 5 Mean shock velocities at two sections  
 ○: Averaged value measured by streak-Schlieren record at  $1 < x < 13$  cm,  
 ●: Averaged value measured by pressure gauging at  $60 < x < 80$  cm.  
 - · - : critical Mach number of the incident shock wave for the initiation of detonation at each section. (A):  $p_1 = 50$  torr, (B):  $p_1 = 100$  torr, (C):  $p_1 = 25$  torr.

Fig. 5(A)に、 $p_1=50$  torr の場合についての結果を、まとめて示す。前に述べた方法で求めた入射衝撃波マッハ数 ( $M_{s1}$ ) を横軸に、衝撃波が酸水素混合気中に投射されて 1cm~13cm まで進む状態を、シュリーレン流し写真で観測した結果から得られる伝播速度 ( $U_s$ ) を縦軸にプロットした (○印)。この図から、入射衝撃波の強さが、あるマッハ数に達するまでは爆轟は起こらず、酸水素中に伝播する衝撃波速度は、ほぼ入射衝撃波速度に等しいが、ある値を境に、不連続的に伝播速度が変わり、爆轟が起こっていることがわかる。これから、多少のパラッキはあるが、非常に明確に、爆轟へ転移する限界マッハ数を定めることができる。この値を 1cm 以内で爆轟に転移する直接起爆の限界に関する値とした。同じ Fig. 5(A) に、衝撃波が 40cm~60cm の位置まで進んだ時点での伝播速度を、ピエゾ素子で測定した結果示してある (●印) これは、衝撃波加熱された酸水素が、直には爆轟しないが、反応が進み遅れて爆轟に転移する場合があることを示している。Fig. 5(B), Fig. 5(C) に、 $p_1=100$  torr 及び  $p_1=25$  torr の場合の結果を示す。 $p_1=50$  torr の場合と全く同様に、各々の初期圧に対する直接起爆の限界マッハ数を決定することができる。

#### 4. 考察

本実験で得られた酸水素系での直接起爆に要する限界マッハ数の測定値から、非反応性理想衝撃波の計算によって、温度・圧力を求める。Fig. 6 にその限界曲線(d)を示す。

曲線(a)は、次の二つの反応から、速度論的に決定される発火第二限界の延長である。



$$2k_2/k_5 (M) = 1$$

Voevodsky and Soloukhinらは、反射衝撃波を用いた実験で、この第二限界の延長を境に発火の様相が異なり、これより高温低圧側では鋭い爆発 (strong or sharp ignition) を示し、低温高圧側では緩やかな燃焼から爆発 (mild ignition) に至ることを示している。

Meyer and Oppenheimらは、これらについてより詳細な研究を行った。曲線(b)は、彼らが反応誘導時間の温度勾配に対する変化率 ( $d\tau/dT$ )<sub>p</sub> を計算によって求めたもので、野線(b')は、実験結果を示す。

曲線(c)は、衝撃波管による酸水素反応の研究で、OH の誘導時間から発火遅れの式を求めた Shott and Kinsey<sup>10)</sup>らの結果を用い、衝撃波加熱された酸水素混合気、1cm 進行する間に爆轟に転移するために必

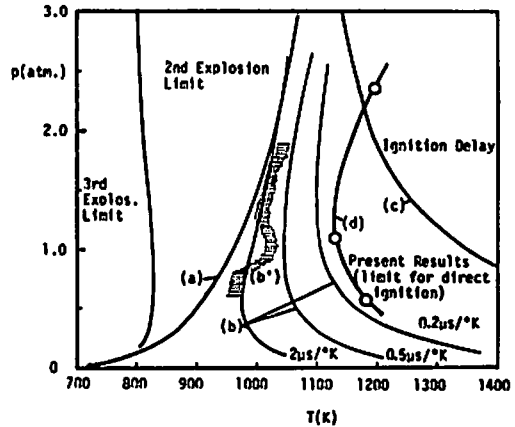


Fig. 6 Comparison of The Explosion Limits by Various Authors (a): 2nd explosion limit calculated by  $2k_2/k_5(M) = 1$  and the result of Voevodsky and Soloukhin<sup>12)</sup> for strong ignition limited behind reflected shock wave. (b): Evaluation by Myer and Oppenheim<sup>13)</sup> for various of  $(d\tau/dT)_p$ . (b'): Experimental result of Myer and Oppenheim<sup>13)</sup> for strong ignition limited behind reflected shock wave. (c): Calculated limit for ignition delay of 1 cm behind incident shock wave by using the kinetic data of Schott and Kinsey<sup>10)</sup>. (d): Present result for the direct initiation of detonation ( $p$  and  $T$  have been evaluated by nonreactive Rankine-Hugoniot relations).

要な温度・圧力を計算によって求めたものである。この場合、1cmの間での自己加熱の効果は、無視している。

以上から明らかのように、我々が今回の実験で得た結果は、前述の二つのグループの実験結果と異なっている。これは、反射衝撃波の実験では、管端の熱境界層及び衝撃波背後の流れが境界層と干渉しあう等の影響によって、入射衝撃波の場合と異なると考えられること。又、前述の二つのグループは、発火の様相を問題にしているのに対し、我々の実験では、衝撃波加熱時間を限定した場合 (直接起爆に近い条件) での起爆限界を求めていること等によると考えられる。しかし、Meyer and Oppenheimらが示した反応誘導時間の温度勾配に対する変化率の計算とは、類似した傾向を示している。又、本実験結果が熱発火理論に基づく反応誘導時間より低温側であることは、反応による自己加熱を考慮すれば、ほぼ妥当と思われる。これらについて更に詳細な検討をするため、反応性流体の計算を行い直接起爆の限界に関する比較を行う予定である。

文 献

- 1) W. E. Gordon, A. J. Mooradian and S. A. Harper, 7th Symp. on Comb. p. 752 (1959)
- 2) G. B. Kistiakowsky and P. H. Kydd, JCP 25, 824 (1956)
- 3) J. A. Fay, 4th Symp. Comp. p. 501 (1953)
- 4) M. Steinberg and W. E. Kaskan, 5th Symp. on Comb. p. 664 (1955)
- 5) F. E. Belles and J. G. Ehler, ARS J. 32, 215 (1962)
- 6) T. V. Bazhenova and R. I. Soloukhin, 7th Symp. Comb. p. 866 (1959)
- 7) A. J. Laderman, AIAA J. 4, 1784 (1966)
- 8) D. H. Edwards, G. O. Thomas and T. L. Williams, Comb. and Flame 43, 187 (1981)
- 9) B. Lewis, G. Von Elve., Combustion, Flames and Explosions of Gases, Academic Press, 1961
- 10) R. A. Strehlaw and A. Cohen, phys. Fluids 5, 97 (1962)
- 11) R. A. Strehlaw and H. B. Dwyer, AIAA J. 1, 591 (1963)
- 12) V. V. Voevodsky and R. I. Soloukhin, 10th Comb Symp. p. 279 (1965)
- 13) J. W. Meyer and A. K. Oppenheim, 13th Comb. Symp. p. 1153 (1971)
- 14) E. S. Oran, T. R. Young, J. P. Boris and A. Cohen, Comb. and Flame 48, 135-148 (1982)
- 15) E. S. Oran and J. P. Boris, Comb. and Flame 48, 149-161 (1982)
- 16) Ia. B. Zeldovich, S. M. Kogarko and N. N. Simonov, Sov. Phys. Tech. Phys. 1, 1689 (1956)
- 17) G. G. Bach, R. Knystautas and J. H. Lee, 13th Symp (Int.) on Combust. 1097 (1971)
- 18) G. L. Schott and J. L. Kinsey, J. Chem. Phys. 29, 1177 (1958)

---

Initiation of Detonation behind Attenuating Incident Shock Wave  
in a Stoichiometric Mixture of Hydrogen and Oxygen

by Yoshiro KAWAMURA\*, Hiroyuki MATSUI\*  
and Tetsuro ASABA\*

Incident shock waves are used to decide the limit of detonation propagation in a stoichiometric mixture of  $H_2/O_2$  in a shock tube. The velocity and the pressure profile of the decaying incident shock waves in the buffer section and that of the propagations in the test gases are monitored by a series of 8 pressure sensors and a streak camera.

Three types of the propagation of the shock waves are observed depending on  $M_{si}$ , the incident shock Mach number at the interface of the test gas, i. e., quick (direct) transition to detonation at the beginning of the shock heating, delayed transition to detonation caused by the self-acceleration of the shock, and the case of no transition to detonation.

The present result on the limit of direct transition to detonation is compared with those of reflected shock waves performed by Voevodsky and Soloukhin and Meyer and Oppenheim. The present result is between those of the above works and the simple calculations based on the kinetic ignition delay (where distance of the ignition delay is taken as 1 cm or less).

(\*Department of Reaction Chemistry, Faculty of Engineering,  
University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo)