

水素－空気爆燃の野外実験

齋藤寛泰^{*†}, 水谷高彰^{**}, 大塚輝人^{**},
上坂直人^{*}, 森崎雄貴^{*}, 松井英憲^{**}, 吉川典彦^{*}

*名古屋大学大学院工学研究科 〒464-8603 名古屋市千種区不老町

†corresponding author: hsaito@nuae.nagoya-u.ac.jp

**独立行政法人 産業安全研究所 〒204-0024 東京都清瀬市梅園1丁目4番地6号

2004年5月10日 受付 2004年7月6日 受理

開放空間中の約 1.5m^3 の水素－空気混合気塊を中心付近で火花点火させた際の爆燃挙動の野外実験観測を行った。混合気当量比を $0.5\sim 4.0$ の範囲で変化させ、火炎領域の拡がり方、火炎伝ば速度、騒音レベルへの影響を調べた。希薄混合気の場合は、球状火炎が伝ばするのみであるが、過濃の場合には、球状火炎の伝ばに加えて、地表近傍に押し広げられてよどんだ混合気領域に火炎が伝ばする現象と上方に火炎球（ファイアボール）が形成される現象が観測された。時系列画像の解析およびイオンプローブによる火炎伝ば速度の評価から、水素濃度が高いほど、火炎が到達する距離および火炎体積は大きく、加速されながら拡がるのが分かった。球状火炎の平均伝ば速度は、層流燃焼速度に比べて一桁大きく、最大で約 40ms^{-1} となり、伝ば速度の当量比依存性は層流燃焼速度のそれと一致し、当量比 2.0 近傍で最大となった。火炎球の領域での火炎速度はさらに増加して、最大で 180ms^{-1} にもなった。また、爆発騒音のピーク音圧レベルは当量比とともに増加することが分かった。

1. 緒言

水素は次世代クリーンエネルギー燃料として期待され、近年の水素燃料電池自動車の開発に伴い、水素供給ステーションの試験運用も始まり、注目されている。一般社会における水素燃料利用の普及には、安全性の確保が重要であり、特に爆発の危険性評価と安全対策を確立することが不可欠である。水素は最も軽い気体であり、開放空間において急速に上方に拡散する。したがって、空気と可燃性混合気を形成する時間は短く、その時間内に着火が無ければ、爆発事故は起きない。しかし、その反面、一旦着火が起きると、他の燃料と比べて、爆発の威力は大きい。水素利用の普及に際して、上記の相反する二つの特性を考慮して、その事故災害の危険性を総合的にどの様に評価するかは重要な課題であるが、実験研究の蓄積は不十分であり、結論を導ける段階にはない。

気体爆発には、爆燃（デフラグレーション）と爆ごう（デトネーション）の二つの形態がある。前者は、火炎が空間を伝ばしてその前方に圧縮波又は衝撃波を形成する過程であり、後者は、衝撃波と火炎反応帯が合体して一つの安定した超音速燃焼波を形成し、マッハ数 $4\sim 6$ で伝ばする過程である。爆ごうの方が、衝撃波の圧力上昇が高く、 $15\sim 20$ 気圧になり、ほとんどの建物が全壊する。爆燃では、火炎伝ば速度の増加に伴い、衝撃波又は圧縮波の圧力が増加す

る。おおよその見積りとして、球状火炎伝ば速度が 100ms^{-1} を超えると、 0.1 気圧以上の圧力上昇を伴い、大きな爆風被害を伴う^{1),2)}と考えられる。

爆燃と爆ごうのどちらが起きるかは、混合気のおかれた状況に依存する。爆ごうが起きる過程には、火炎が乱流の影響で加速して爆ごう波に遷移する場合、密閉容器の破裂などによって放出した既燃ガス噴流が周囲の未燃混合気と混合して爆ごう波が形成される場合³⁾が考えられる。乱流火炎の加速による爆ごうへの遷移は、管内や密閉空間で起き易く、障害物がある場合にも促進されることが分かっている。障害物のない完全な開放空間では、遷移が起きるまで火炎が加速される事は観測されていない。したがって、水素利用の施設では、配管等の乱流火炎を促進するような障害物や密閉空間を避けることが必要である。しかし、障害物や密閉空間を完全に排除する事は困難であり、実際の施設の適正な危険性評価が必要となる。爆燃については、火炎伝ば速度がどこまで増加するかを評価する必要がある。

ここで、既存データを基にして、水素の爆発特性を他の燃料と比較しておく。

水素は火炎伝ば濃度範囲が広く、水素－空気混合気ではモル分率 $4\sim 75\%$ で火炎が伝ばする。他の燃料、例えば、メタン $5.3\sim 15.0\%$ 、エチレン $3.1\sim 32.0\%$ 、プロパン $2.2\sim 9.5\%$ と比べると、広い濃度範囲を持つことが分かる。水

素に匹敵する燃料は少なく、アセチレン2.5~100.0%，エチレンオキサイド3.0~100.0%といった分解爆発特性を有するなど、特殊な反応機構をもつガスのみである。大気圧混合気の最小着火エネルギーについても、多くの燃料が0.1~0.3 mJであるのに対して、水素は一桁小さい0.01 mJであり、静電気によるスパークで充分着火する⁴⁾。水素-空気予混合気の層流火炎の最大燃焼速度についても、多くの炭化水素燃料が $0.3\sim 0.4\text{ ms}^{-1}$ 、例外的に大きなエチレンでも 0.68 ms^{-1} である⁵⁾のに対して、水素は当量比18近傍で 2.86 ms^{-1} という大きな値をもつ⁶⁾。したがって、他の燃料と比べて、火炎伝ば速度も大きくなるのが分かる。

混合気の爆ごうの起こり易さを表すのに、起爆させる際に用いる放電スパークや爆薬による爆発のエネルギー量を用いることがある。起爆開始限界エネルギー量が小さいほど爆ごうになり易く、空気混合気の中では、水素は、アセチレン0.13 kJに次いで爆ごうし易く、13 kJであり、エチレンオキサイド4.1 kJ、エチレン11 kJ、プロパン66 kJと続く⁵⁾。

以上の様に、爆ごうと爆燃のいずれをとっても、他の燃料と比べて、水素は爆発危険性の高い燃料であることが分かる。しかし、実際の高圧貯蔵システムから水素が漏れて混合気を形成した場合に、どのような被害が起きるかを定量的に推定する事は容易ではない。火炎伝ば速度が 100 ms^{-1} のレベルを超えて大きな爆風被害を引き起こすのか、更には爆ごうに遷移するのか、あるいは、火炎の加速が小さくて僅かの圧力上昇しかなく、軽微な被害ですむのか、といった判定は多くの場合に困難である。

実際の水素貯蔵施設を対象とした爆発被害予測手法を確立するためには、実規模を推定できる程度の規模の野外実験が不可欠である。火炎の伝ば速度や加速についての信頼性の高いデータを得るには、小規模実験では不十分であり、火炎が十分に加速されるまで観測できていない場合が多い。既に幾つかの野外実験⁹⁾が行われているが、国内での野外実験例は非常に少ない。本研究では、水素爆発危険性評価方法を確立するための研究プロジェクトの一環として、大型風船を用いた水素-空気混合気爆燃の野外実験を実施し、開放空間における火炎伝ば挙動を観測した。

2. 実験装置および方法

2.1 爆発試験装置

Fig. 1に、本実験で用いた爆発試験装置の概略と気体の充てん経路を示す。試験装置はステンレス製で、直径114.3 mmの円筒形であり、縦方向、横方向の直径がそれぞれ最大1500 mm、1350 mm(体積にしておよそ 1.5 m^3)になるまで気体を充てん可能なゴム風船の口が、ホースバンドで固定できるようになっている。

ボンベから供給される水素および空気は、高圧大流量用のレギュレータバルブ(千代田精機, GS-140型)により減圧され、マスフローコントローラ(Brooks Instruments, Model 5853S)で流量を調節された後、混合用チャンバに導かれる。混合用チャンバ内で乱流混合された水素-空気混合気は、三方バルブおよび電磁バルブを経て、爆発試験装置上面に設けた流入孔より風船内部へと充てんされる。配管長が30 m以上に及ぶため、配管内に残留する気体が相当

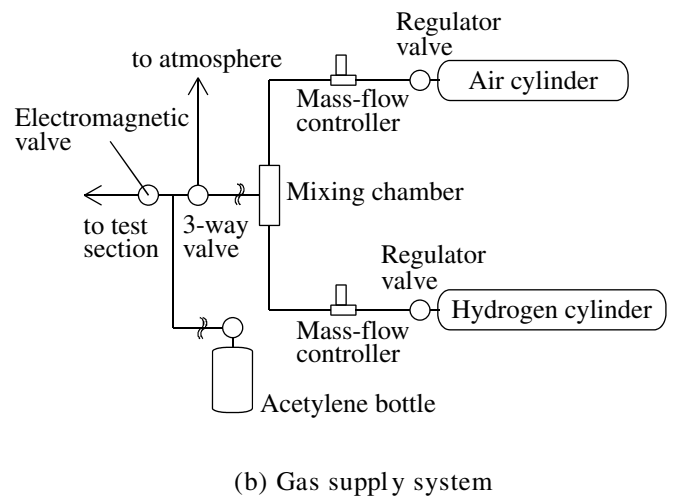
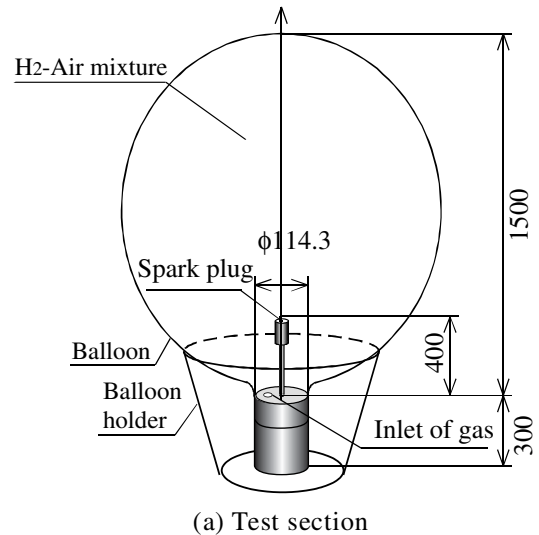


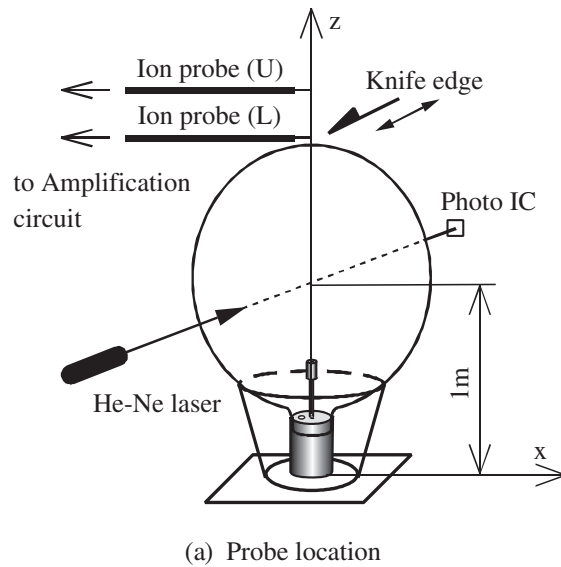
Fig. 1 Schematic of experimental apparatus.

の量になること、また、マスフローコントローラの動作安定に多少時間がかかることより、充てんの前に三方バルブを大気開放側へ一時的に切り替え、当量比および流量を調整した水素-空気混合気による配管内のパージを行った。

本実験で爆発実験を試みた実験条件をTable 1に示す。風船の鉛直方向平均直径 D_z および水平方向平均直径 D_x はそれぞれ1500 mm、1346 mmである。風船内に充てんされた混合気は、自動車用のイグナイタ(ダイヤモンド電機, D-COPイグナイタ, 放電エネルギー約30 mJ)および風船の取り付け面から400 mmの位置に設置されたスパークプラグ(DENSO, IW16)により火花点火される。ただし、当量比が0.5, 3.0, 4.0の場合には、イグナイタを着火エネルギーのより大きなもの(放電エネルギー約500 mJ)に替えて点火した。両イグナイタがともに点火できる当量比条件で放電エネルギーの影響をみたが、本実験では爆発現象に大きな差は認められなかった。なお、水素火炎は可視域における発光がほとんど観測されないため、0.1%程度のアセチレンを混合気中に含ませ、可視域の火炎自発光が撮影できるようにした。

Table 1 Experimental conditions.

Test No.	Equiv. ratio ϕ	Mole fraction C_f [%]	Total volume V_{init} [m ³]
1	0.5	17.4	1.44
2	0.6	20.4	1.33
3	0.7	22.7	1.40
4	1.0	29.6	1.38
5	1.5	38.7	1.45
6	2.0	45.7	1.40
7	2.5	51.0	1.47
8	3.0	55.8	1.44
9	4.0	62.8	1.45



(a) Probe location

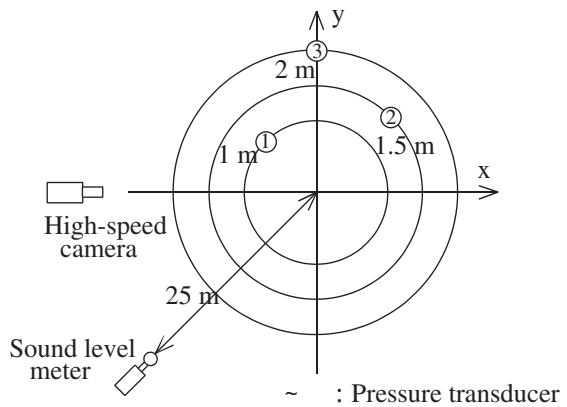
2.2 火炎伝ば速度, 圧力, および高速度画像の

同時時系列測定システム

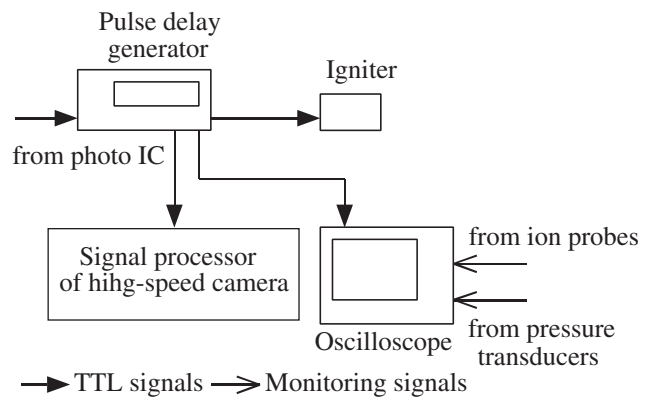
本実験では, 空間中に開放された水素-空気混合気塊が, 何らかの理由により着火した場合の爆発挙動を観測することを目的としている。したがって, 混合気を蓄えている風船のゴム膜が除かれ, 空間中に混合気が開放された後に点火できる機構が必要となる。Fig. 2に, 鉛直上方への火炎伝ば速度, および爆発現象の高速度撮影を行う同時時系列測定システムの概略を示す。遠隔操作により, 風船の直上に取り付けた可動ナイフエッジで風船のゴム膜が割られると, 地上からの高さが1 mの位置に設置された小型のHe-Neレーザ(MELLES GRIOT)より照射されるレーザー光が, その対面に置かれたフォトIC(東芝, TPS823)に入射するようになる。光を検知したフォトICから発せられるTTL信号により, パルスディレイジェネレータ(Stanford Research Systems, Model DG535)にトリガがかけられ, 高速度カメラ(Kodak, Ektapro HS Model 4540), 圧力変換器(Entran, EPXシリーズ)および, 風船の直上に0.21 mの間隔で設置されたイオンプローブからの信号を記録するデジタルオシロスコープ(横河電機, DL708)が駆動し, 画像撮影と各信号の記録が開始される。同期信号は, スパークプラグ回路に送られ10 msの遅れ時間で混合気が点火される。

ゴム膜の破裂後, フォトICがトリガ信号を発してから火花点火するまでの時間は可変であるが, 本実験では全条件で一定とした。高速度カメラのフレームレートは1,125 fps, オシロスコープのサンプリングレートは10 kHzである。さらに, 爆発時に発生する音圧のピーク値を, 試験装置中心から25 m離れた位置で騒音計(小野測器, 積分型精密騒音計LA-1250)により計測した。これらの機器の制御とデータの記録は, 爆発試験装置から30 m離れた地点より行った。

なお, 本研究では圧力測定も同時に行ったが, 圧力変換器が, 火炎の熱の影響を受けて, 感度に変化したと考えられる測定データを示したため, 爆風の強さを評価することはできなかった。



(b) High-speed camera, sound level meter and pressure transducers



(c) Signal flow

Fig. 2 Measuring system.

3. 実験結果および考察

3.1 高速度時系列画像による爆発挙動解析

水素貯蔵施設等より水素が漏洩する場合、高濃度の混合気はその周囲に形成される可能性が高い。したがって、水素を高濃度に含む混合気塊の爆発現象を調べておくことは重要である。Fig. 3に、充てん当量比 ϕ が(a) 1.0, (b) 1.5, (c) 3.0, (d) 4.0の場合の爆発過程を捉えた時系列画像を示す。いずれもイグナイタに放電開始のTTL信号が送られた時刻を $t = 0$ msとして示している。時系列画像からわかるように、初期当量比によって火炎領域の広がり方が全く違うものになっている。 $\phi = 1.0$ の場合、画像中に点線で示したように、目視により判別できる火炎領域が着火点からほぼ球

形状に広がっていくのみであった。このような爆発過程は、当量比が1.0より希薄側の他の条件でも同様であった。

一方、燃料過濃の条件になると、火炎の広がり形態は大きく変化した。例えば(d) $\phi = 4.0$ の場合、 $t = 58.7$ ms 付近までは希薄条件と同様に火炎が球状に広がるが、その後、画像中に矢印で示したように、地表付近を水平方向へ伝ばする火炎の領域(矢印A)と上昇する火炎球(矢印B)の二つの領域が現れることが分かる。充てん当量比が大きい場合、膨張により多量の混合気が火炎の広がりとともに周囲へ押し出されていくことが考えられるが、下方へ押し広げられた過濃混合気は周囲空気と混合しても依然可燃範囲の混合気であるため、火炎領域が地表付近の残存混合気中を伝ば

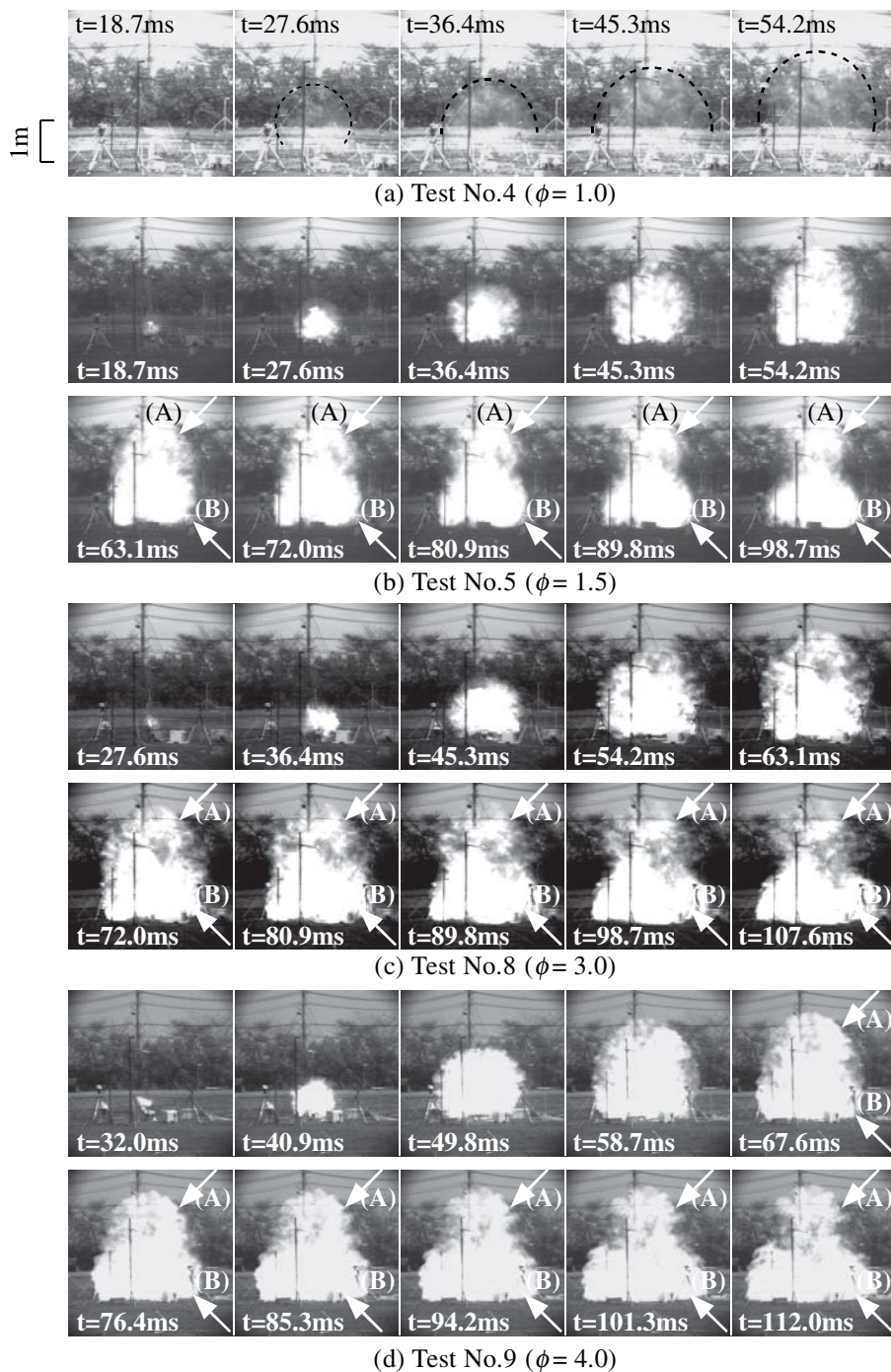


Fig. 3 High-speed images of the hydrogen-air deflagration.

して広がったとみることが出来る。また、火炎が球状に伝ばした後も、既燃ガス領域の内部には水素が依然残存していると考えられ、この領域が上昇して火炎球(ファイアボール)を形成すると考えられる。

つぎに、これらの画像から、可視火炎が占有する領域の水平方向最大長さ W と鉛直方向最大長さ H の変化を計算した。その当量比依存性をFig. 4に示す。 W と H は各々 D_x と D_z で無次元化してある。水素濃度が高くなると、火炎領域が鉛直方向には初期直径の2倍程度にしか広がらないが、水平方向には3.5倍程度まで大きく広がる事が分かる。このことは、高濃度の混合気が爆発する際に、膨張によって着火点付近から周囲へと押し広げられた混合気が、外壁などの遮蔽物の存在(本実験の場合は地表)により、拡散できず澱んだ領域に火炎が広がる可能性があることを示す。

さらに、充てん混合気体積 V_{init} に対して、火炎体積が最大で何倍となったかをFig. 5に示す。火炎が占める体積は、火炎面積が最大となる時刻の火炎形状を中心軸まわりに回転させた際の回転体の体積であると仮定して求めたものである。火炎体積は、爆燃事故における延焼領域や放射熱の影響領域を推定する際に重要であるが、このような具体的なデータはこれまでほとんど呈示されていないものであ

る。図から、当量比の増加にともない火炎体積は増加し、当量比4.0では初期体積の16倍程度になることがわかる。当量比4.0の場合を1.5の場合と比べると、水素の質量は約1.6倍であるが、火炎体積は約3.7倍になっている。球状火炎の伝ばに伴い、伝ば火炎の前方にある未燃混合気は膨張するが、その際、混合気と周囲空気との境界では燃料の拡散が起こり、燃料濃度が火炎伝ば限界値以下に低下する部分が形成される。当量比1.5の場合には、この境界付近で火炎伝ば限界濃度以下になった体積が大きかったと推察される。高濃度水素混合気の危険性領域は大きく、火炎伝ば濃度範囲が広い燃料に特有のものと考えられる。

3.2 火炎領域の広がり速度と混合気中の火炎伝ば速度

火炎が球状に広がる段階における火炎既燃領域の投影面積速度 V_a m^2/s を算出した結果をFig. 6に示す。得られた時系列画像のピクセル輝度分布を考慮してしきい値を決定し、二値化処理を施した後、ラベリング処理により火炎領域のみを抽出して求めた火炎既燃領域面積の時間変化から面積速度を以下の式で求めた。

$$V_a = \frac{S_{i+1} - S_i}{\Delta t} \quad (1)$$

ここで、 S_i は i フレーム目の面積、 Δt はフレームインターバルである。当量比が1.5の結果より、面積速度は緩やかに増加し、やがて減少に転じていることがわかる。減少傾向になるのは、周囲空気との混合により外周部で混合気濃度が低下し、火炎伝ば速度が減少するためである。混合気外周部ではゴム膜の破裂が誘起する乱れによって多少の混合が発生しているが、Fig. 4に示した火炎の到達距離を考えると、火炎領域の膨張により周囲へ押し広げられた混合気が周囲空気によって希釈される効果が大きいと考えられる。当量比が大きくなってもこの傾向は変わらないが、面積速度とその時間変化率は顕著に増大する。すなわち、火炎伝ばが可能な濃度範囲にある混合気中を火炎が球状に伝ばする場合、水素濃度が高いほど火炎領域が大きく加速されながら広がることになる。今回の実験では、画像解像度が不十分であったため、画像記録から火炎伝ば速度の時間変化を正確に決定することはできなかった。

Fig. 7に、イオンプローブのデータから求めた鉛直上方への火炎伝ば速度を示す。Fig. 7(a)は着火点から下側のイオンプローブまでの平均火炎伝ば速度、Fig. 7(b)はイオンプローブ間の平均火炎伝ば速度である。平均火炎伝ば速度は、着火時刻とそれぞれのイオンプローブに火炎が到達した時刻から求めた。全ての実験条件で、下側のイオンプローブの位置まではほぼ球状の火炎が伝ばすることが確認できているので、Fig. 7(a)は球状火炎の伝ば速度を示していることになる。一方、Fig. 7(b)は、当量比が1以下の場合には、それ以降の球状火炎の伝ば速度を、当量比が1より大きい場合には、後に火炎球領域となる部分の速度を示していると考えてよい。比較のために、Fig. 7(a)中に水素-空気混合気の層流燃焼度 Sl ⁶⁾も示した。当量比が1.8付近で最大値をとる傾向は同じであるが、球状火炎伝ば速度の値そのものは一桁大きい。また、イオンプローブ間の伝ば速

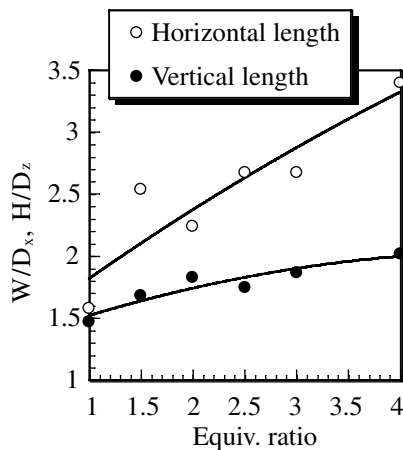


Fig. 4 Horizontal and vertical reach of the flames.

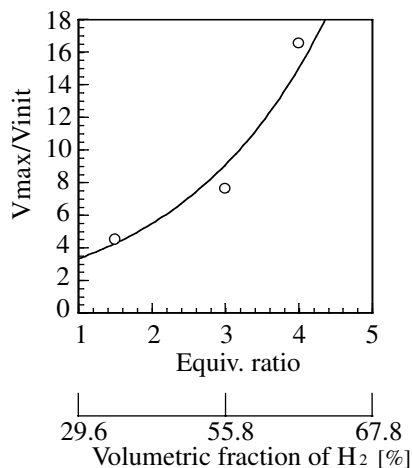


Fig. 5 Maximum volume of the flames.

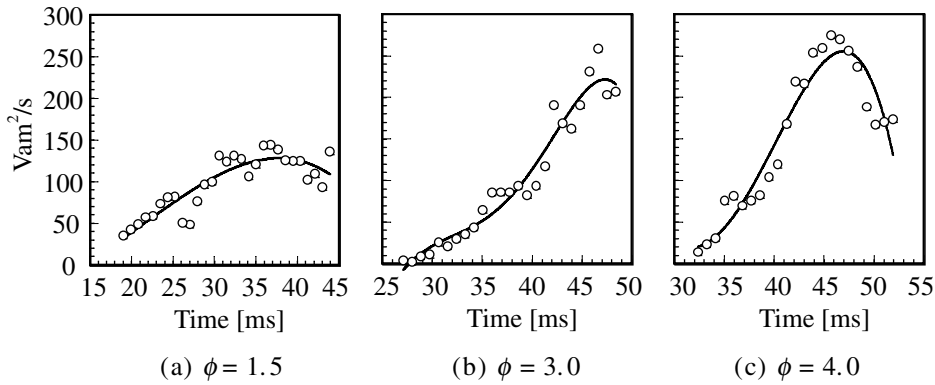


Fig. 6 Expansion speed of flame area.

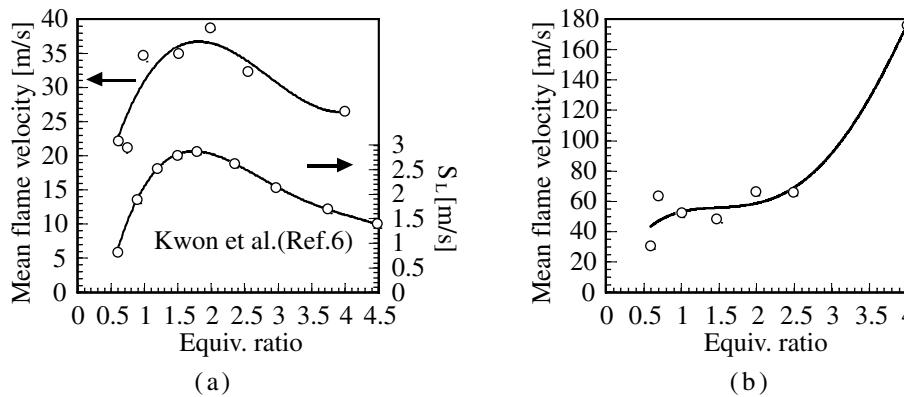


Fig. 7 Mean flame velocity between (a) the ignition point and the lower ion probe, (b) the ion probes.

度 (Fig. 7(b)参照)は、球状火炎の速度 (Fig. 7(a)参照) よりも大きく、火炎が加速していることを示しており、当量比と共に増大している。特に、火炎球の形成が顕著となる当量比2.0以上の領域でその増加が大きく、当量比4.0では約 180 ms^{-1} という急激な加速を示した。鉛直方向にこのような大きな速度をとる要因として、1) 熱膨張により発生する速度成分の寄与、2) 火炎の前方で発生する乱れによる乱流燃焼への遷移、3) 浮力、4) 当量比が2.0以上の濃い混合気の場合、火炎前方で空気との混合が進み、当量比が燃

焼速度の増大する方向にシフトする、ことなどが挙げられる。本実験で得られた速度値は層流燃焼速度に比べれば大きいですが、爆ごうへの遷移速度に比べるとかなり小さいので、爆ごう波への遷移は認められない。しかし、上述の要因に加えて、障害物などの影響により火炎前方で発生する混合気中の乱れが一層強くなると、火炎が大きく加速し、爆ごう波へと遷移する可能性も出てくると思われる。

3.3 騒音レベル

爆発規模を示す一つの指標として、最大音圧レベル L_p を測定した。爆発時に発生する音圧レベルのピーク値を Fig. 8 に示す。音圧レベルは以下の式で定義される。

$$L_p = 10 \log_{10} \frac{P^2}{P_0^2} \quad (2)$$

ここで、 P は測定された音圧の実効値、 P_0 は規準となる音圧の実効値で、人間の最小可聴音圧 ($=20 \mu\text{Pa}$) である。図からわかるように、当量比の増加と共に発生する音圧レベルは大きくなっている。特に、当量比が2.0までの領域では音圧レベルの増加は著しい。しかし、2.0以上の領域になると、発生する爆発音の増加は目立たなくなる。ジェットエンジンから発生する騒音がおおよそ 120 dB 以上であり、瞬間的にはそれと同等以上の騒音が発せられたことになる。

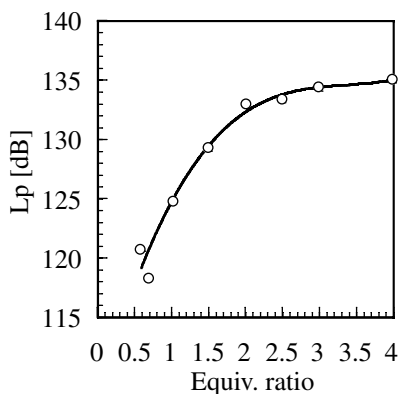


Fig. 8 Sound pressure level.

4. 結言

今回の野外実験では、アセチレンを混入して水素-空気火炎を可視化し、高速度撮影によって火炎伝ばの詳細を明らかにした。また、ゴム膜の破膜装置を導入することにより、比較的乱れの少ない球状混合気中での火炎伝ばを実現できた。本実験で得られた結果を以下に示す。

(1) 爆燃被害の推定に重要なパラメータである火炎体積を得ることができた。

(2) 水素は燃料過濃側の高い爆発危険性をもつことが示された。

実際の水素利用施設は、今回の野外実験よりもはるかに多量の水素を貯蔵する。しかし、実規模の実験は困難であり、爆発被害の評価方法の確立には、数十センチから数メートル程度の範囲のデータを集積し、スケーリング則を決定することが不可欠である。今後は、さらに実験を重ねていく予定である。

謝辞

本研究の遂行に当たり、労働安全衛生総合研究事業「水素ガス漏洩爆発作業安全基準策定のための被害評価方法の確立 — 次世代燃料利用技術開発に伴う災害防止への対応 (H14 - 労働 - 27)」(平成14 - 16年度, 主任研究者 吉川典彦) 厚生労働科学研究費の支援を受けた。ここに謝意を表す。

文献

- 1) C. M. Guirao, G. G. Bach, and J. H. Lee, "Pressure Waves Generated by Spherical Flames", *Combustion and Flame*, vol. 27, pp.341-351 (1976).
- 2) M. J. Tang, and Q. A. Baker, "A New Set of Blast Curves from Vapor Cloud Explosion", *Process Safety Progress*, vol.18, No.3, pp.235-240 (1999).
- 3) R. Knystautas, J. H. Lee, I. Moen, and H. Gg. Wagner, "Direct Initiation of Spherical Detonation by a Hot Turbulent Gas Jet", *Proc. of the Combustion Institute*, Vol. 17, pp.1235-1245 (1979).
- 4) B. Lewis and G. von Elbe, "Combustion, Flames and Explosions of Gases", 3rd edition, Academic Press, pp.333-361 (1987).
- 5) 燃焼工学ハンドブック, 日本機械学会, 丸善, pp.28-29, pp.124-125 (1995).
- 6) O.C. Kwon and G.M. Faeth, "Flame/Stretch Interactions of Premixed Hydrogen-Fueled Flames: Measurements and Predictions", *Combustion and Flame*, vol. 124, pp.590-610 (2001).
- 7) 水素利用国際クリーンエネルギーシステム技術 (WE-NET) 第II期研究開発, タスク2, 安全対策に関する調査・研究, NEDO-WE-NET 0202, 財団法人エネルギー総合工学研究所 (2003) .

A field experiment of hydrogen-air deflagration

Hiroyasu Saitoh^{*†}, Takaaki Mizutani^{**}, Teruhito Ohtsuka^{**}, Naoto Uesaka^{*},
Yuki Morisaki^{*}, Hidenori Matsui^{**}, and Norihiko Yoshikawa^{*}

The behaviors of deflagrations initiated near the center of 1.5 m³ hydrogen-air clouds were observed in a field experiment. The equivalence ratio of gas mixtures was varied in the range from 0.5 to 4.0. The corresponding changes of flame spread size, flame propagation velocity, and sound noise level were measured. In fuel lean cases, spherical flames were observed, while in fuel rich cases, the spherical flame propagation was followed by a rapid flame spread near the ground surface and a fireball at the top part of the cloud. The high-speed photographs and the records of ion probes show that the flame spread size and the flame acceleration increase with increasing the hydrogen concentration. The propagation velocity of spherical flames are one order of magnitude faster than the laminar burning velocity, and both quantities have a common dependency on the mixture equivalence ratio. The flame velocity reaches the maximum value of about 40 ms⁻¹ near the equivalence ratio of 2.0. The flame velocity in the fireballs reaches 180 ms⁻¹ at the maximum. The sound noise level increases with increasing equivalence ratio.

^{*}Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8603 JAPAN

[†]corresponding author: hsaito@nuae.nagoya-u.ac.jp

^{**}National Institute of Industrial Safety (NIIS) 1-4-6, Umezono, Kiyose, Tokyo 204-0024 JAPAN