

# ラマン効果を用いた水素ガス拡散挙動の測定

## Measurement of diffusion behavior of hydrogen gas using Raman effect

朝日一平, 二宮英樹, 杉本幸代, 八重嶋早枝子 (四国総合研究所)

Ippei Asahi, Hideki Ninomiya, Sachiyo Sugimoto, Saeko Yaeshima (Shikoku Research Institute Inc.)

### Abstract

The gas flow of hydrogen ( $H_2$ ) gas discharged from a nozzle was observed by irradiation by a laser beam of wavelength 354.7 nm and imaging of Raman scattering from  $H_2$  gas at wavelength 416.1 nm using a gated ICCD camera. The images of the  $H_2$  gas flow also were observed by shadowgraph obtained at the same condition. The  $H_2$  gas concentration was calculated based on the brightness of the  $H_2$  Raman scattering image and the brightness of the  $N_2$  Raman scattering image acquired without  $H_2$  gas flow. As a result, the  $H_2$  gas distribution region was successfully identified and the gas concentration distribution was measured in regions of small concentration gradients, in which the measurement by shadowgraph was difficult. In addition, the diffusion behavior of hydrogen gas could be analyzed quantitatively by measuring concentration distribution in state of different flow.

### 1. 序論

水素は、その資源量、クリーン性、リサイクル性から新たな二次エネルギーとして有力視され、現在、水素エネルギー利用社会の実現に向けた様々な研究や実証試験が進められている。その中で、水素分子の拡散現象の解明は保安上の観点から重要な課題となっている<sup>[1]</sup>。一般に気相状態における分子の拡散現象は、数値流体力学によるシミュレーション<sup>[2]</sup>や、粒子画像流速測定法<sup>[3]</sup>等の非接触計測手法により可視化、或いは検証がなされている。しかしながら、拡散領域のガス濃度計測には主に接触式ガスセンサが用いられるため、現状では拡散現象を濃度の変化として正確に計測することは困難である。

これらの背景から、本発表ではラマン効果を用いて漏洩を模擬した水素噴流を可視化し、拡散過程における水素分子の空間的な濃度分布の変化を非接触計測する手法について述べる。また、同時にシャドウグラフ法による可視化を行い、ラマン散乱光画像と比較することにより、拡散過程における水素分子の巨視的な振舞いに対する濃度分布の変化を明らかにする。

### 2. 実験装置構成と濃度計測手法

ラマン散乱光画像の取得方法をFig.1に、シャドウグラフの取得方法をFig.2に示す。レーザ光 (Nd:YAGレーザ、波長 354.7nm, パルス幅 4ns, パルスエネルギー 25mJ, 繰返し周波数 20Hz) をビームスプリッタと波長板を用いて照射強度と偏波面を調整し、ビームエキスパンダとスペシャルフィルタを用いてビームを矩形 (水平方向 5mm, 垂直方向 60mm) に整形し観測領域に放射した。水素ガスからのラマン散乱光 (波長 416.1nm) はレーザ照射光軸に対して直角方向から干渉フィルタ (中心波長 416.5nm, 半値全幅 1.0nm) と集光レンズを通してICCDカメラで撮影した。一般に、ラマン散乱光は極めて微弱であるため、計測の際に外乱光の影響が問題となる。ここでは、レーザ光による迷光を遮断するためにエッジフィルタ (レーザ波長における透過率 $<10^{-6}$ , ラマン散乱波長における透過率 $>95\%$ ) を配置し、遅延信号発生装置でICCDカメラのシャッタタイミングと露光時間を制御して照明光などの外乱光の影響を低減した。水素ガスは観測領域に出口直径 4.5mmの円形ノズルを配置し、静止空気中に鉛直方向に放出した。また、同じ水素ガス放出条件でシャドウグラフを取得した。

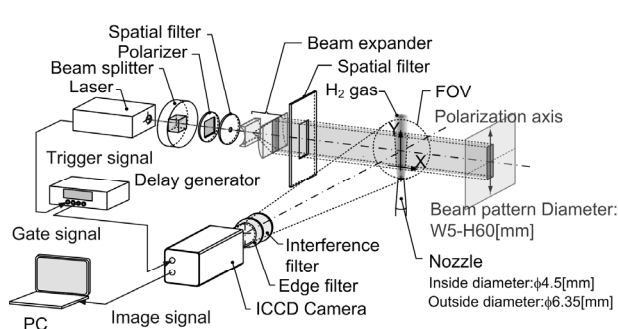


Fig.1 Experimental setup for measurement of  $H_2$  concentration distribution using Raman effect

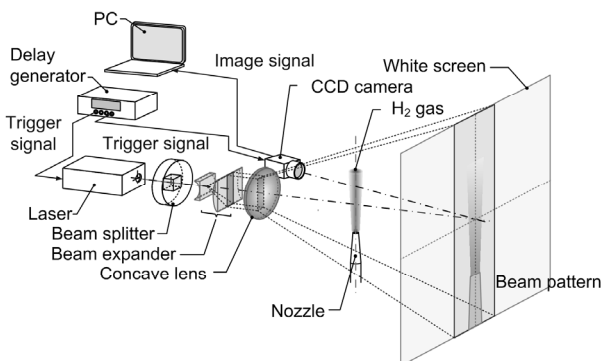


Fig.2 Experimental setup for visualization of  $H_2$  gas flow by shadowgraph

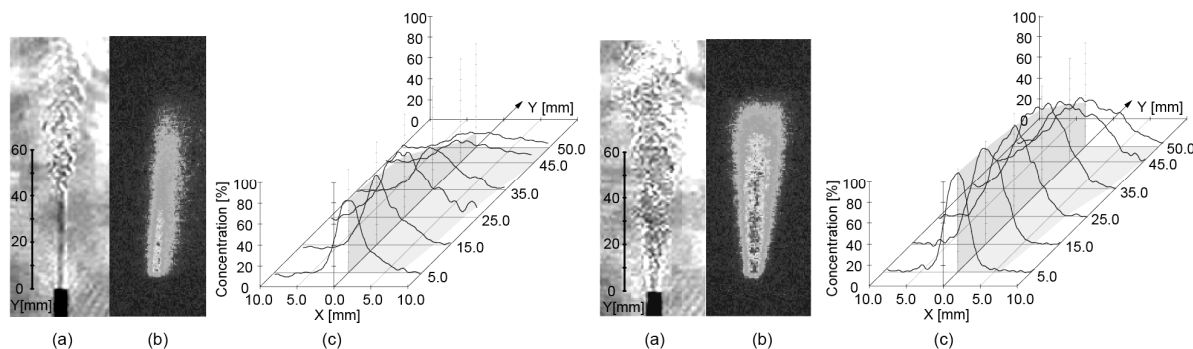
取得した水素ガス流のラマン散乱光画像における輝度値は、各素子の観測点に対応する座標における水素分子の密度情報を含んでいる。しかし、この輝度値には画像を取得する際のレーザ光の空間強度分布や集光系の効率等の要素が反映されているため、分子密度を定量的に求めるためにはこれらを補正する必要がある。ここでは、事前に大気中における窒素ガスからのラマン散乱光画像を取得し、得られた画像の各素子の輝度値を基に濃度変換係数を求め、これを水素ガスのラマン散乱光画像における各素子の輝度値に乗ずることで、水素ガスの空間濃度分布を算出した。

### 3. 水素ガスの拡散挙動の測定

水素ガス放出量 10L/min の場合に得られた水素ガス流のシャドウグラフを Fig.3(a), ラマン散乱光画像を Fig.3(b), および本手法により得られた水素ガス流の空間濃度分布を Fig.3(c)に示す。図中における座標設定は、ガス放出口の中心を原点、X 軸を水平方向、Y 軸をガスの流れ方向とした。シャドウグラフから、放出されたガスは上方に向かって層流から乱流へと変化していることが観測できる。ラマン散乱光画像からはガス流の中心が高濃度であり、放出量が多い場合は横方向に水素ガスの拡散領域が広がっていることが観測される。水素濃度分布についてみると、ガスの流れ方向 (Y 軸) では、Fig.3(c)に示す層流が支配的な流れの場合、放出口から 35mm の位置まで 50%以上の比較的高濃度を維持し、その先は急激に濃度が下がり、50mm の位置では濃度は 10%程度まで低下している。水平方向 (X 軸) では、ノズル上方 5mm における濃度 10%以上の領域の幅は 8mm で、放出直後から X 方向へ広く拡散している。

同様に、放出量 50L/min の場合に得られた画像と空間濃度分布を Fig.4 に示す。この流量においては、放出口直上付近から乱流が発生し、支配的となっている。水素濃度は放出口から 35mm の位置で 80%、50mm の位置においても 50%程度となり、観測領域内全体に亘り高濃度を維持していることがわかる。ノズル上方 5mm の位置における濃度 10%以上の領域の幅は 6mm であり、流れ方向への分子の移動が支配的となり、X 方向への拡散が抑えられ放出口から離れた高い位置まで中心部の高濃度領域が維持されている。また、乱流の中にいくつかのピークを持つ広い高濃度領域が形成され、その後大気中へ広く拡散している。

シャドウグラフはガス流の空間的な屈折率変化を観測しているため、濃度勾配が小さい領域のガス流は視認が困難である。例えば、Fig.3 の放出口上方 5mm の位置についてみると、シャドウグラフではノズル口径に相当する幅 5~6mm の領域にのみ水素ガス流が確認できるが、ラマン散乱光画像では濃度 10%以上の水素ガスの分布幅は 8mm まで広がっていることが観測できる。このように本手法を用いることでより詳細な濃度情報が得られることがわかる。



**Fig.3** (a) Shadowgraph, (b) Raman image, (c) Concentration distribution for H<sub>2</sub> gas release rate of 10 L/min

**Fig.4** (a) Shadowgraph, (b) Raman image, (c) Concentration distribution for H<sub>2</sub> gas release rate of 50 L/min

### 4. 結論

レーザ光を水素ガス流に照射し、水素ガスからのラマン散乱光画像をもとに水素ガスの空間濃度分布を取得し、ガス放出量及び層流領域と乱流領域の流れの状態の違いによってガス濃度分布が異なることを確認した。ラマン効果を用いたガス流の空間濃度分布計測手法はトレーサが不要であり且つ非接触計測であることから、観測対象となる気体の拡散現象に全く影響を与えずにガス濃度を可視化することができ、数値流体力学による拡散シミュレーションの検証のためにも極めて有効な手法と言える。また、空間濃度が定量化できることはシャドウグラフやシュリーレン法等他の光学的可視化手法と比較して優位性がある。

### 参考文献

- [1] 松浦一雄, 中野政身, 石本淳:「水素噴流漏洩を伴う部分開放空間におけるセンシングに基づくリスク緩和制御」, 日本機械学会流体工学部門論文集, 0138 (2010)
- [2] 井上雅弘, 月川久義, 金山寛, 松浦一雄:「室内における漏洩水素の拡散に関する実験的研究」, 水素エネルギーシステム, Vol.33, No.4, pp32-43 (2008)
- [3] A. Veser et al., "The structure and flame propagation regimes in turbulent hydrogen jets", International Journal of Hydrogen Energy, doi: 10.1016/j.ijhydene. 2010.03.123 (2001)