

ラマンイメージングによる水素ガス拡散挙動の測定

Measurement of diffusion behavior of hydrogen gas by Raman imaging

朝日 一平, 二宮 英樹, 杉本 幸代
I. Asahi, H. Ninomiya, S. Sugimoto

(株)四国総合研究所
Shikoku Research Institute Inc.

Abstract: The diffusion behavior of hydrogen discharged into closed space was observed by irradiation by a laser beam of wavelength 354.7 nm and imaging of Raman scattering from hydrogen gas at wavelength 416.1 nm using a gated ICCD camera. The concentration of hydrogen gas was obtained from the radiant intensity of each pixel of Raman scattering image. In this study, the diffusion behavior of hydrogen gas from aperture shapes were analyzed.

1. 序 論

近年、再生可能エネルギーを用いた水素製造技術開発、水素インフラの整備に向けた各種調査事業の推進、大手自動車メーカー各社による燃料電池自動車の普及時期の前倒しなど、世界的に水素エネルギー利用に向けた取り組みが加速されている。これに伴って現在、様々な条件の下で水素分子の拡散挙動を解明するための研究開発が進められており、気体の拡散現象における空間濃度分布計測に対するニーズが高まっている。

我々はこれまでに、水素ガスの自由噴流についてラマンイメージングを用いた可視化、及び空間濃度分布計測技術を適用し、極めて自由度の高い空間濃度分布計測が可能であること、対象の気体分子のみを選択し、流れや拡散の状態に全く影響を与えずに計測ができるなど、他の濃度計測手法に対する優位性を示した^{[1],[2]}。

本報告では、閉鎖空間内における水素ガスの拡散について、ラマンイメージングを用いた濃度分布変化の実時間計測を行ったのでその手法及び結果について報告する。

2. 計測手法と装置構成

本手法では、パルスレーザー光を観測領域に照射し、気体分子によって生じるラマン散乱光を ICCD カメラにより画像として捉える。この時、水素分子によるラマン散乱光波長のみを選択透過させる干渉フィルタを用いることで水素分子を特定し撮像する。装置構成を Fig.1 に示す。

光源として、DPSS Nd:YAG レーザ(Quantel 社製 Centurion, 波長 354.7nm, パルスエネルギー 4mJ, パルス幅 8ns, 繰返し周波数 100Hz, ビーム外径 ϕ 2.2mm, 直線偏光: 垂直)を、受光装置として、ICCD カメラ(Princeton Instruments 社製 PI-MAX, CCD フォーマット 512 \times 512pixel, 電圧分解能 16bit)を用いた。波長 354.7nm のレーザーを用いた場合の水素分子によるラマン散乱波長は 416.1nm である。ラマン散乱光は極めて微弱であるため、本手法においては外乱光の除去が重要な課題となる。ここでは、エッジフィルタ(レーザー波長透過率 $<10^{-6}$, ラマン散乱光波長透過率 $>95\%$)と干渉フィルタ(中心波長 461.1nm, 半値全幅 2.0nm)を用いてレーザー散乱光などの迷光を除去し、また ICCD カメラのシャッター開放のタイミングをレーザー光の Q スイッチ信号と精密に同期させ、露光時間をレーザーパルス幅相当の 10ns として調整することにより外乱光を抑制した。

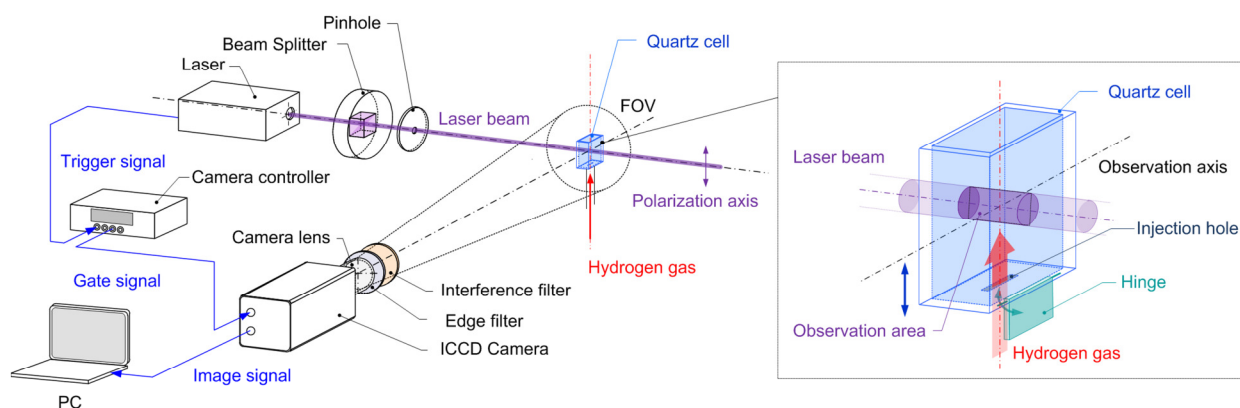


Fig.1 Experimental setup for measurement of hydrogen concentration distribution using Raman imaging.

本実験では、水素導管に生じたクラックなどの漏洩口から大気成分で満たされた密封容器内への水素ガス漏洩を模擬し、密封容器内に相当する閉鎖空間内の水素ガス濃度分布を計測した。水素導管は水素ガスボンベに接続されたアルミ合金製のタンクにより模擬した。漏洩を模擬する放出口の形状は、直径 0.6mm、1.2mm のピンホール及び幅 0.6mm、長さ 12.5mm、25mm のスリットとし、条件に合わせ各形状の放出口が加工されたプレートタンク上部に配置することにより、漏洩口の形状変更を行った。放出口上には、密封容器を模擬した石英製の矩形セルを設置し、内部に大気を充填し封じる構造とした。石英セルはレーザ光及び水素分子のラマン散乱光を低損失で透過するため、内部の水素分子の拡散状態を観測することができる。石英セル内への水素放出は、タンクの放出口下部に取り付けられたヒンジを開くことにより行った。ヒンジの駆動は、タンク外部に設置されたシリンダアクチュエータの上下摺動により制御した。

本試験では濃度分布の時間的変化をより高速で捉える必要がある。したがって、照射するレーザ光にレーザヘッドからの出力光を直接用いることで励起光のエネルギー密度を確保した。本装置における観測領域はレーザビーム外径に相当する高さ 2.2mm の領域となる。水素ガス濃度は、石英セル内に充填した既知濃度の水素ガスによるラマンイメージを撮像し、得られた画像の輝度から取得した検量線により定量化した。また、ガスセル全体を上下移動させることにより、異なる高さにおける水平方向の水素ガス濃度分布を計測した。

3. 実験結果

アルミ容器内に水素ガスを 10kPa(ゲージ圧)で充填し、直径 1.2mm のピンホールを介し、大気が封入(0kPa:ゲージ圧)された石英セル内に放出した場合の水素分子のラマンイメージを Fig.2 に示す。同画像はレーザパルス 20 ショットの積算画像であり、画像更新周期は 4FPS である。観測箇所は放出口直上高さ 1mm の位置である。横軸 X は、放出口を中心(0)としたレーザ光軸方向の位置を示す。ラマンイメージにより、放出口開放の直後に水素ガスが放出され、中央部に高濃度の水素ガスが分布する領域が確認できる。また、時間の経過とともに石英セル内の大気と混合され、やがて均一に分布していく様子が視覚的に捉えられる。

放出口開放から 10 秒間の放出口直上における水素ガス濃度の変化について、放出口の形状を変更して測定した結果を Fig.3 に示す。濃度の値については、ラマンイメージにおける中央 10×10Pixel の平均値である。

Fig.3 に示すように、放出口開放直後における水素ガス濃度は放出口の面積に応じて大きく異なっているが、3 秒後にはいずれも同等の濃度へと変化している。そして、10 秒後にはアルミ容器と石英セル内の差圧分に相当する濃度 10%程度となっている。

4. 結論

ラマンイメージングによる水素ガス濃度計測技術により、閉鎖系内における水素ガス濃度分布の時間変化の計測が可能であることを実験的に示した。

本技術により、気体分子の拡散について、構造体内部を含む極めて自由度の高い実時間計測が可能であると言える。

参考文献

- [1] 朝日一平, 二宮英樹:「ラマン散乱光強度測定による水素ガス流の濃度分布計測」, 電気学会論文誌 C, Vol.131, No.7, (2011), pp.1309-1313.
- [2] 朝日一平, 二宮英樹, 杉本幸代, 八重嶋早枝子:「ラマン効果を用いた水素ガス拡散挙動の測定」, 第 29 回レーザセンシングシンポジウム講演予稿集, B-8, (2011), pp.156-157.

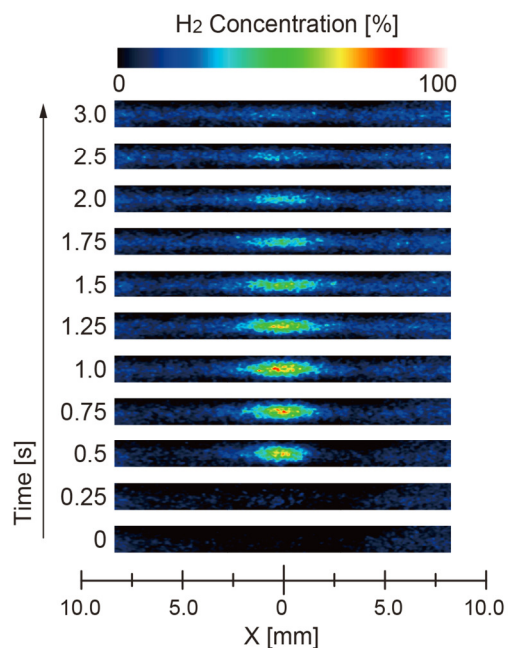


Fig.2 Raman images showing the diffusion behavior of H₂ gas.

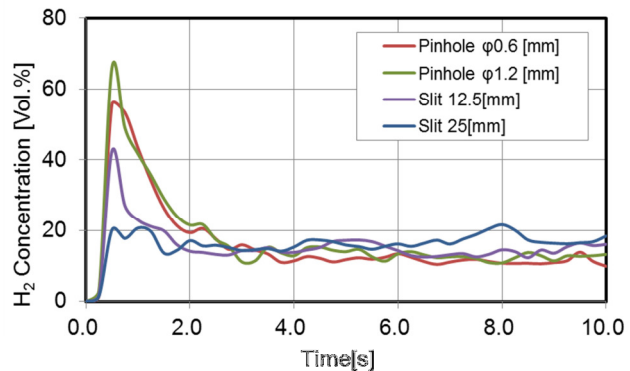


Fig.3 Time variation of H₂ gas concentration in quartz cell for different aperture shapes.