

CARS を用いた水素ガスの漏洩検知

Leak detection of hydrogen gas using CARS

杉本幸代¹, 二宮英樹¹, 朝日一平¹, 星野礼香¹, 福地哲生²
Sachiyo Sugimoto¹, Hideki Ninomiya¹, Ippei Asahi¹, Ayako Hoshino¹, Tetsuo Fukuchi²

¹四国総合研究所, ²電力中央研究所

¹Shikoku Research Institute, ²Central Research Institute of Electric Power Industry

Abstract

In this study, leaked hydrogen gas was measured using CARS (Coherent Anti-Stokes Raman Scattering). The Stokes light was generated using a Raman cell by a Nd:YAG laser of wavelength 355nm, and the anti-Stokes light was measured by a CCD spectrometer. The H₂ gas mixture (4%) was released into air through a nozzle of aperture 1mm with a rate in the order of ml/min. The reflector which was made from stainless steel was placed behind the leak H₂ gas mixture and the anti-Stokes light reflected by the reflector was measured. The experimental results showed that this method could be used for searching the leak location of low concentration H₂ gas.

1. 序論

現在広く利用されている化石燃料に代わるクリーンエネルギーとして水素ガスが注目されている。水素ガスを安全に利用するためには、水素ガスの漏洩を早く正確に把握することが必要である。水素ガスを光学的に検知する手法として、ガスにレーザ光を照射したときに発生するラマン散乱のストークス光を計測する手法があり、遠隔からの漏洩水素の監視に極めて有効である⁽¹⁾。しかし、ストークス光の計測では漏洩箇所の背後直近に壁や配管が存在する場合、レーザ照射により発生するレーザ誘起蛍光が外乱となる。これに対し、CARS(コヒーレント反ストークスラマン散乱法)を用い水素ガスの反ストークス光を計測する手法はレーザ誘起蛍光の影響を受けにくい特徴がある。ここでは、低濃度の水素・窒素混合ガスを用い、CCD分光器により反ストークス光を測定し、水素ガスの漏洩を検知する試験を実施したので報告する。

2. 測定原理

CARSはポンプ光と同時に計測対象分子のストークス光を照射することにより、反ストークス光を効率的に得る手法である⁽²⁾。

Fig.1にCARSにおけるエネルギー準位を示す。 $\omega_p, \omega_s, \omega_{AS}$ はそれぞれ、ポンプ光、ストークス光、アンチストークス光の周波数を表し、 $\Delta\omega$ は測定対象分子のラマンシフトを表す。これらの間にはエネルギー保存則より

$$2\omega_p = \omega_s + \omega_{AS} \dots\dots\dots(1)$$

が成り立つ。本研究では波長 355nm のレーザ光をポンプ光とした。水素ガスの $\Delta\omega$ は 4160 cm^{-1} であるため、水素ガスのストークス光、アンチストークス光波長はそれぞれ 416nm, 309nmとなる。また、ポンプ光、ストークス光、反ストークス光の波数ベクトルを $\vec{k}_p, \vec{k}_s, \vec{k}_{AS}$ とすると、CARSの発生にはこれらが

$$\vec{k}_p + \vec{k}_p = \vec{k}_s + \vec{k}_{AS} \dots\dots\dots(2)$$

の位相整合条件を満たす必要がある。

CARSによって発生するアンチストークス光強度 I_{AS} はレーザ光強度を I_p 、ストークス光強度を I_s とすると

$$I_{AS} = k I_p^2 I_s |\chi^{(3)}|^2 \dots\dots\dots(3)$$

によって表される。 k は比例定数、 $\chi^{(3)}$ は分子の3次の非線形感受率である。ドップラ幅が支配的である場合、 $\chi^{(3)}$ は測定対象分子の密度 n に比例するため、 $I_{AS} \propto n^2$ となる⁽³⁾。

3. 実験と結果

〈3・1〉 実験方法 本研究における装置構成を Fig.2, Fig.3 に示す。フラッシュランプ励起 Nd:YAG レーザの第

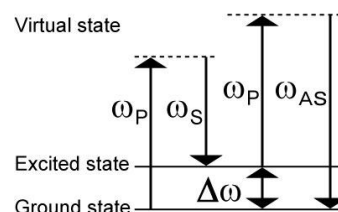


Fig.1. Energy level diagram of CARS.

3 高調波(波長 355nm, 繰返し 20Hz, パルスエネルギー 10mJ, パルス幅 5ns)をポンプ光とし, 7 気圧の水素ガスを充填したラマンセル(光路長 20cm)を通過させることによりストークス光を発生させ, 内径 1mm のノズルより放出した水素混合ガス(濃度 4%, 窒素ガスバランス, 背圧 2MPa)にポンプ光とストークス光を同時に照射した. ポンプ光とストークス光の照射位置はノズルの直上 1mm であり, 水素ガスの放出量は流量計により調整した. ラマンセル内において発生する反ストークス光は, ラマンセルの後方に配置したエッジフィルタ(カットオン波長 325nm)により遮断した.

バンドパスフィルタ(中心波長 309.0nm)と凸レンズで構成した集光系により, ノズルから放出した水素ガスより発生した反ストークス光を光ファイバ(コア径 600 μ m)に導入し, CCD 小型分光器(測定対象波長 240~430nm, 波長分解能 0.2nm)によりスペクトルを測定した. Fig.2 はノズルの光軸後方に集光系を配置した透過型配置であり, Fig.3 はノズルの光軸後方に反射体としてステンレス板を配置して反射光を集光する反射型配置である.

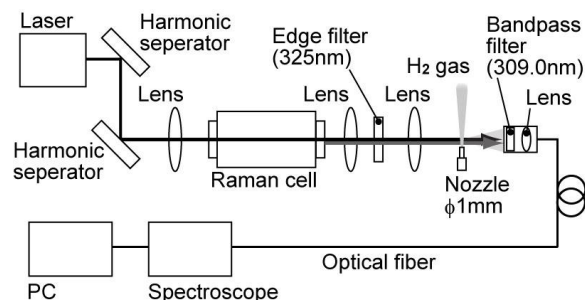


Fig.2. Experimental configuration for measurement of anti-Stokes light intensity (Transmission configuration).

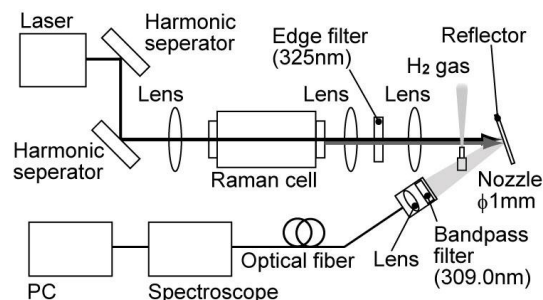


Fig.3. Experimental configuration for measurement of anti-Stokes light intensity (Reflection configuration).

〈3・2〉 実験結果 濃度 4%の水素混合ガスの放出量を変化させて測定した反ストークス光強度を Fig.4, Fig.5 に示す. Fig.4 は透過型, Fig.5 は反射型配置における光強度である. 分光器の露光時間は 1sec(20 ショット), 平均化処理回数は 10 回である. 得られたスペクトル強度の 308.5~310nm の積分値を反ストークス光強度とした. Fig.4, Fig.5 に示したとおり, 反ストークス光強度は水素ガス放出量が増加すると大きくなり, 透過型, 反射型の両配置において水素ガス放出量が 1ml/min の場合においても観測可能であった.

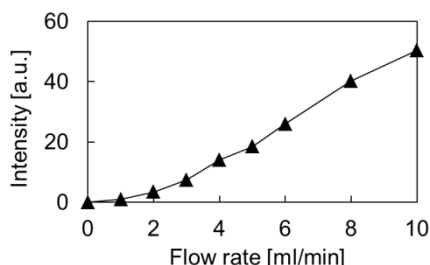


Fig.4. Dependence of anti-Stokes light intensity on the release rate of H₂ gas mixture (Transmission configuration).

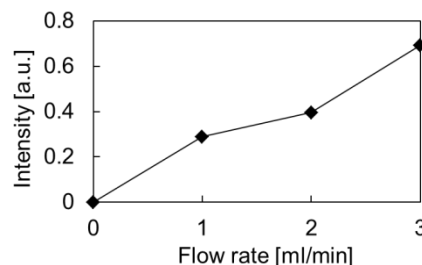


Fig.5. Dependence of anti-Stokes light intensity on the release rate of H₂ gas mixture (Reflection configuration).

4. 結論と考察

実験では濃度 4%の水素混合ガスが 1ml/min で漏洩した場合においても, CARS により検知可能であることがわかった. 漏洩箇所の背後に反射体(ステンレス板)が存在する場合でも検知が可能であったことから, 本技術は配管等が存在する場所における微量な水素ガスの漏洩探査に有効であると言える.

ここでは 4%の水素混合ガスを用いたが, 今後, 爆発下限濃度(4%)未満の水素混合ガスにより試験を実施し, 本技術の装置化を進める予定である.

参考文献

- (1) 二宮英樹・朝日一平・杉本幸代・島本有造:「ラマン散乱効果を利用した水素ガス濃度遠隔計測技術の開発」, 電気学会論文誌 C, Vol.129, No.7, pp.1181-1185(2009)
- (2) M. D. Levenson・狩野覚:「非線形レーザー光学」, 第 1 刷, 東京, オーム社, pp.159-212 (1988)
- (3) A. C. Eckberth: “Laser Diagnostics for Combustion Temperature and Species”, 2nd Ed., Taylor and Francis, pp.280-380 (1996)