

三次元空間への水素拡散現象の数値予測*

杉山 均¹⁾ 高橋 佳多²⁾ 加藤 直人³⁾ 寺田 敦彦⁴⁾ 上地 優⁵⁾ 日野 竜太郎⁶⁾

Numerical Analysis of Air-Hydrogen Mixture Flow in Rectangular Indoor Space with Ventilators

Hitoshi Sugiyama Keita Takahashi Naoto Kato Atsuhiko Terada Yu Kamiji Ryutaro Hino

Numerical analysis has been performed for vertical buoyant flow of air-hydrogen mixture in rectangular indoor space with ventilators. The unsteady and laminar flow has been calculated by using the coupled conservation equations of hydrogen and momentum. Calculated results are compared with the experiment data of hydrogen concentration and velocity profile in order to confirm the validity of the presented numerical method and clarify the mechanism of hydrogen dispersion. Although agreement is certainly not perfect in all detail, the main features are reasonably reproduced. Adding to this, calculated results suggest that hydrogen concentration depends on Froude number.

KEY WORDS: Heat engine, Hydrogen, Theory, Modeling, Numerical calculation

Buoyant force, Froude number, Laminar flow (A1)

1. 緒 言

地球温暖化, 化石燃料の枯渇など環境, エネルギー問題が取り上げられる中, 地球温暖化ガスである二酸化炭素を排出しないクリーンなエネルギーとして水素が注目されている。将来の水素経済社会を見据えた場合, 大量の水素需要に応える大規模水素製造技術が要求されるが, ヨウ素(I)と硫黄(S)の化学反応を利用し, 900°C程度の熱で水を熱分解できる熱化学法 IS プロセスによる水素製造の開発が報告されている⁽¹⁾。あるいは燃料電池自動車や発電などの実用化に向けた研究開発も報告されている⁽²⁾。

以上のように水素は次世代エネルギーとして期待される反面, 空気中に水素が拡散した場合, 水素濃度 4%から 75%と広い濃度範囲で爆発が発生する危険性を伴う。また, 水素の発火点は空気中で 527°Cであるが, 着火エネルギーが極めて小さいため電気着火しやすく静電気除去対策などが要求される。

従って, 空気中に水素が拡散される場合, その濃度分布を正確に知ることは水素を安全に管理する上で工業上重要な課題であり, また水素の拡散メカニズムを解明することは学問的見地から重要である。

水素拡散に関する研究は, 実験, 解析ともに報告されている*2014年10月22日受理。2014年10月22日自動車技術会秋季学術講演会において発表。

1)・2)・3) 宇都宮大学大学院工学研究科
(321-8585 宇都宮市陽東7-1-2)
(E-mail:sugiyama@cc.utsunomiya-u.ac.jp)

4)・5)・6) 日本原子力研究開発機構 (311-1393 東茨城郡大洗町成田町 4002)

るが, 水素の危険性から水素濃度に関する実験は少ない。そのような状況の中, Swain ら⁽³⁾は, 室内空間に水素を放出してその濃度分布を報告している。室内空間は直方体であり水素は, 床面に設けられた矩形断面の開口部から放出され, 天井と側壁には床面に設けられた矩形断面開口部と同形の開口窓が設けられている。水素濃度の計測手法も興味あるところではあるが論文では言及されていない。Swain ら⁽³⁾の対象とした室内空間は Hallway model とも呼ばれている。最近, 井上⁽⁴⁾は, この Hallway model を対象に水素濃度の計測を行い, Swain らの結果とほぼ同程度の濃度分布が天井近傍領域で形成されることを報告している。

ヘリウムは水素に比較して安全性の高いガスであり, ヘリウム濃度に関する計測はいくつか報告されている。Pasumarthi ら⁽⁵⁾は, 空気中にヘリウムを放出し密度差による浮力噴流と濃度分布の周期的振動との関係を明らかにしている。ヘリウム濃度の計測には, シュリーレン法と高速度カメラを用いたレインボ・シュリーレン法と呼ばれる測定法により計測している。Yildirim ら⁽⁶⁾は, レインボ・シュリーレン法により浮力強度と噴流のパターン, ヘリウム濃度分布の周期的振動を報告している。Michaux ら⁽⁷⁾は, 直接, ヘリウム濃度を計測するのではなく, 酸素濃度を測定し間接的にヘリウム濃度を算定し浮力噴流の流れパターンとヘリウム濃度との関係を報告している。

以上の実験計測に対して, 数値解析も報告されている。Satti ら⁽⁸⁾は, Pasumarthi ら⁽⁵⁾の実験を対象に層流場としてヘリウム濃度の計算を行いシュリーレン画像との比較を示し, 特徴的な濃度パターンを再現することを報告している。同時に噴流

の周期的な渦放出の要因が、噴出口近傍で形成される微小な渦生成に起因することも報告している。水素濃度の解析に対しては松浦ら⁹⁾は、商用解析コードを用いてHallway modelを対象に、井上ら⁴⁾の計測結果と比較して良好に予測することを報告している。

以上の研究成果の中で、井上ら⁴⁾は、Hallway modelにおいて、床面の開口部から放出された100%濃度の水素は、1.01m上昇しただけで約5%と大きく低下する点を特徴的現象として指摘している。このときの水素の放出速度は、計測されていないが、流量から求めた速度は0.02m/sと低速である。同時に側壁の開口部からは水素の放出速度の17倍程度の流速の空気が流入することも報告している。低速で放出された100%の水素濃度から5%に拡散する現象のメカニズム、あるいは支配するパラメータについては解析からも報告されていない。

そこで、本研究では、Hallway modelを対象に、水素濃度については井上らの測定結果と比較し、解析手法の妥当性を検証するとともに、水素濃度の低下について検討することを目的とする。

2. 解析手法

2.1. 計算対象実験

解析対象としたSwainらのHallway modelの概略図、ならびに座標系を図1に示す。比較的大型の直方体空間で長さ2.9m、奥行き0.74m、高さ1.22mを有する。図に示すように床面には水素を供給する開口部が、天井、ならびに側壁には換気用の開口部が設けられており、それぞれHydrogen inlet, Roof vent, Door ventと呼ばれている。開口部の大きさは、すべて同一でアスペクト比2、短辺長は0.152mである。実験では毎分57リットルの水素をHydrogen inletから放出している。単純に断面積で割ると水素の放出速度は0.02m/sとなる。水素濃度計測に際しては警報器として販売されている水素センサを用いて計測している。水素センサは、その測定原理の違いにより、接触燃焼式と熱伝導率式とに分類できるが両者を用いて計測しており水素センサの特性に関しても詳細に報告している。水素センサの配置されて位置は4点であり、Sensor1からSensor4として図中に示す。同時にその配置位置は表1に示す。

座標系は、Hydrogen inletの中心位置を原点として、水素が放出される鉛直方向を X_1 、奥行き方向を X_2 、長辺方向を X_3 としている。

2.2. 支配方程式

空気と水素の密度をそれぞれ ρ_A 、 ρ_{H_2} とすると、混合気体の密度 ρ は、次式で示される。添え字 A 、 H_2 は、それぞれ空気、水素を表している。

$$\rho = \rho_A + \rho_{H_2} \quad (1)$$

さらに混合気体の密度で、空気、水素密度を除いた質量分率をそれぞれ、 C_A 、 C_{H_2} とすると次の関係式が成り立つ。

$$C_A + C_{H_2} = 1 \quad (2)$$

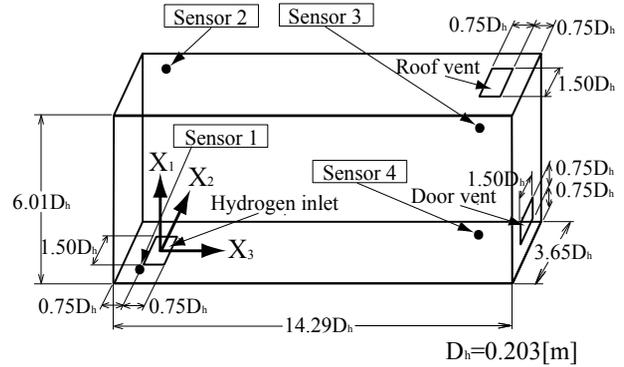


Fig.1 Schematic diagram of Hallway model and coordinate system

Table 1 Location of sensor position

	X_1/D_h	X_2/D_h	X_3/D_h
Sensor 1	0.74	-1.13	-0.38
Sensor 2	4.98	0.74	-0.38
Sensor 3	4.98	-1.13	12.08
Sensor 4	0.74	0.74	12.08

本解析の場合、放出速度は小さく層流場として解析を行うものとする。混合気体の運動方程式、ならびに水素の質量分率を支配する輸送方程式は、次式にて示される。

$$\frac{\partial U_i}{\partial t} + \frac{\partial(U_i U_k)}{\partial x_k} = -\frac{1}{\rho} \left(\frac{\partial p}{\partial x_i} \right) + \frac{\partial}{\partial x_k} \left(\nu \frac{\partial U_i}{\partial x_k} \right) + \left(\frac{\rho - \rho_\infty}{\rho} \right) g \quad (3)$$

$$\frac{\partial C_{H_2}}{\partial t} + \frac{\partial(U_k C_{H_2})}{\partial x_k} = \frac{\partial}{\partial x_k} \left(D \frac{\partial C_{H_2}}{\partial x_k} \right) \quad (4)$$

ここで、 ρ_∞ は周囲流体の密度を D は水素の拡散係数を示している。また、運動方程式中の動粘性係数は次式にて表す。

$$\nu = \nu_A C_A + \nu_{H_2} C_{H_2} = \nu_A (1 - C_{H_2}) + \nu_{H_2} C_{H_2} \quad (5)$$

数値解析では無次元数を導入して解析を行う。運動方程式、水素の輸送方程式を無次元数にて書き改めると次式となる。

$$\frac{\partial U_i}{\partial t} + \frac{\partial(U_i U_k)}{\partial X_k} = -\frac{1}{\rho} \left(\frac{\partial p}{\partial X_i} \right) + \frac{1}{Re} \frac{\partial}{\partial X_k} \left(\frac{\partial U_i}{\partial X_k} \right) + \frac{C_{H_2}}{Fr} \quad (6)$$

$$\frac{\partial C_{H_2}}{\partial t} + \frac{\partial(U_k C_{H_2})}{\partial X_k} = \frac{1}{Re_A Sc} \frac{\partial}{\partial X_k} \left(\frac{\partial C_{H_2}}{\partial X_k} \right) \quad (7)$$

無次元化した式からレイノルズ数 $Re = U_{in} D_h / \nu$ 、フルード数 $Fr = U_{in}^2 / g D_h$ 、シュミット数 $Sc = \nu_A / D$ が水素拡散

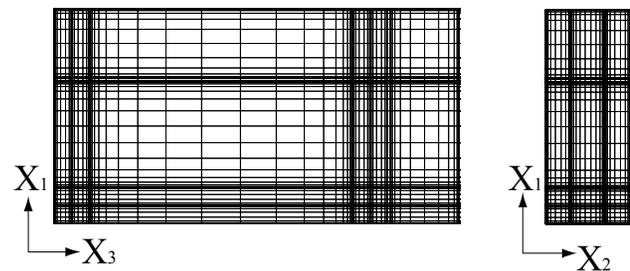


Fig.2 Grid layout for calculation

現象を支配する因子であることがわかる。 Re_a は空気 の動粘性係数から求めたレイノルズ数である。代表速度、代表寸法には、Hydrogen inletでの流速 U_{in} 、水素放出部の矩形断面から算出した水力直径 D_h を用いた。

2.3 数値解析

図2に計算格子を示す。 X_1 軸方向には53、 X_2 軸、 X_3 軸方向には38、75の総計151,050の格子点を設け、物理量が大きく変化する領域では格子間隔を密に設定した。Roof vent, Door ventの外側には外部空間を設けて、それぞれのventにて境界条件を課すことは避けた。外部空間は、 X_1 軸方向、 X_3 軸方向に $3.08 D_h$ の長さを有している。

Hydrogen inletでは、100%の水素が一様速度にて放出する条件を境界条件として与えた。Roof vent, Door ventの外側に設けた外部空間の流出面では自由流出条件を設けた。 X_2 軸に垂直な二面は壁面として速度零の境界条件を与えた。計算は層流場として実施した。

速度も含め濃度は時間経過とともに変化するため計算は、非定常項を加味して計算し、計算結果は瞬間時間の値である。

3. 結果と考察

Hydrogen inletでの水素放出速度と代表寸法 $D_h = 0.203$ mから求めたレイノルズ数は37となる。水素のシュミット数は0.26で、式(7)にて空気 の動粘性係数から求めたレイノルズ数が必要であるが、代表速度にHydrogen inletでの水素放出速度を用いて260となる。 Fr 数を算出すると 2.01×10^4 となるが、式(6)から明らかなように Fr 数の逆数が浮力として作用する。この Fr 数にて試行計算すると収束解が得られないため Fr 数は 1.0×10^{-3} 、 2.0×10^{-3} の2種類に対し計算を行い結果について考察した。 Fr 数を変化させると水素放出速度も変わることになる。 Fr 数 1.0×10^{-3} では放出速度は 0.045 m/s、 2.0×10^{-3} では 0.063 m/s となり実験の 0.02 m/s に対し2から3倍程度大きな値となるが、浮力の影響を考慮すると 0.02 m/s 以上の速度で放出されていると考えられる。計算において Fr 数を変えた場合には、放出速度も変えて計算を実施した。

3.1 水素濃度分布の比較： $Fr = 1.0 \times 10^{-3}$

図3は、 Fr 数が 1.0×10^{-3} における4点に設置された各センサー位置での実験結果と計算値との比較結果を示している。縦軸は水素濃度、横軸は無次元時間 tU_{in} / D_h にて表している。Sensor1は、水素放出口近傍に位置するが、計測された水素濃度は2%程度と低濃度である。しかし、計算の水素濃度は瞬間的に大きく変動し平均的には計測値より大きな値を予測している。計測値も変動しているが計算値ほどの変動は認められない。

放出された水素は、空気と混合し密度差による浮力により上昇し、同時に拡散しながら上部の天井に到達する。Sensor2は、上部天井部近傍に設置されているが、計測値は5%程度の濃度となるが、計算値は大きく変動し平均的に7%程度の値を

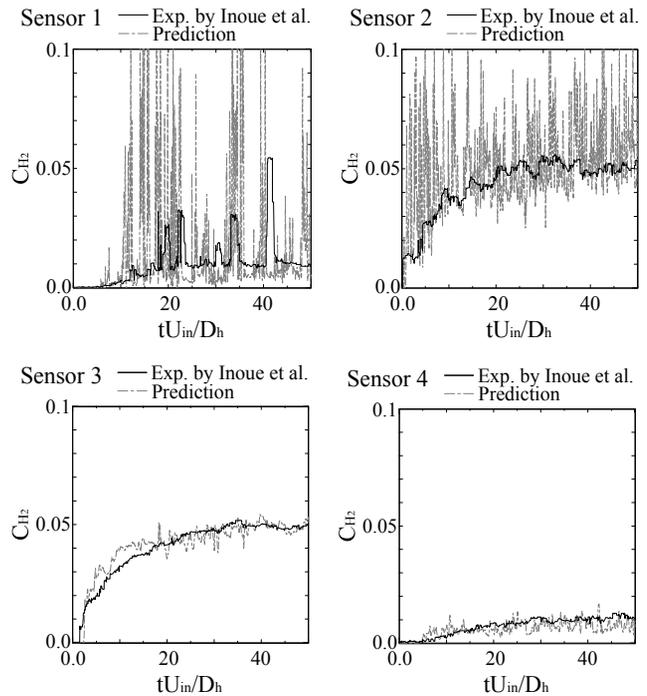


Fig.3 Comparison results of hydrogen concentration for Froude number 1.0×10^{-3}

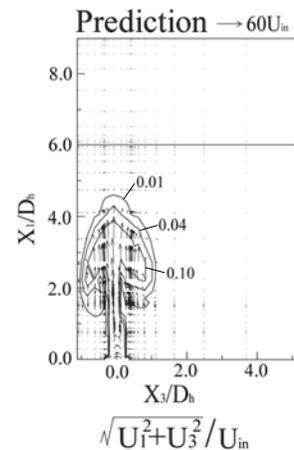


Fig.4 Velocity vectors and hydrogen concentration profile for Froude number 1.0×10^{-3}

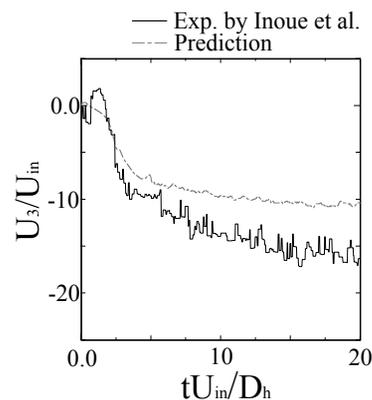


Fig.5 Comparison result of velocity profile of time history for Froude number 1.0×10^{-3}

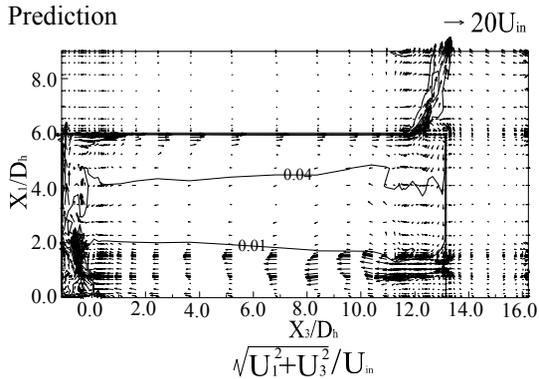


Fig.6 Velocity vectors and hydrogen concentration for Froude number 1.0×10^{-3}

予測する。計測値には計算値ほどの大きな変動は認められない。これはセンサーに起因すると推察される。実験にて使用されたセンサーは、警報器として市販されているセンサーを流用していることを井上らは論文中で言及している。センサーの外径は 30mm で、直径 24.8mm のフレームアレスター、ならびに直径 17mm 金網のなかにセンサーが設置されている。フレームアレスターは、センサーが着火源となった時に火炎伝達を防ぐ装置で微小な隙間により構成されている。フレームアレスター、金網ともに水素を拡散し均等化する作用を有するために計測値の変動は減衰したものと解釈される。

Sensor3 は、Roof vent の近傍に位置するセンサーである。両結果を比較すると、計算の濃度変動は多少大きいものの、計測値を比較的良好に予測している。また、計算結果から、Roof vent 近傍では、Sensor1, 2 の位置において認められた濃度変動は大きく減衰している点を特徴的現象として指摘できる。これは、Roof vent 近傍では低濃度の水素が大きな領域を占め、作用する浮力も小さいことに起因しているものと解釈される。

Sensor4 は、Door vent 近傍に設置されているが、この位置では、1%程度の低濃度水素が形成されることが計測値から理解できる。計算も濃度変動は多少大きいものの、良好に計測値を再現した。

以上の比較結果から、計算結果は、Sensor1, 2 では大きな濃度変動を示しながら定常値に漸近するが、定量的には計測値と差異が認められた。しかし、Sensor3, 4 では計測値を良好に再現する。また両結果の差異として、Hydrogen inlet 近傍、およびその上方領域での大きな水素濃度変動は、Roof vent に近づくにつれ減衰する点を計算結果から指摘できる。

井上らは、水素拡散挙動について、100%濃度で放出された水素が 1.01m 上昇しただけで 5%まで急激に拡散する現象を特徴的現象として報告している。計算も定量的に差はあるがその特徴的現象を再現している。次に、この現象について考察する。

図 4 は、水素放出直後、無次元時間 0.4 での $X_2 / D_h = 0$ における $X_1 - X_3$ 軸平面上での流れベクトル、ならびに水素濃度分布を示した計算結果である。ベクトル線図から水素放出

後、最大で 60 倍程度加速されることがわかる。これは、 Fr 数が小さいため式 (6) の密度差による浮力の項が他項に比べ大きくなるためである。浮力は、 Fr 数により支配されることがわかる。一方、最大速度を示す領域での水素濃度は 10%程度であり、高濃度の水素領域は形成されない。

密度差による浮力が大きいことは計測でも報告されている。井上らは、Door vent での開口部に垂直方向の速度 U_3 を三次元超音波風速計にて計測している。図 5 に、両結果の速度比較を示す。計測値は水素放出速度の 17 倍程度の速度が計測されている。一方、計算では 10 倍程度の速度を予測し計測値を正確には予測してはいないが、Door vent から室内空間に高速の混合気体が流入する現象は一致している。同時に速度の符号に注目すると時間経過とともに正から負に変化し、Door vent から流出後、流入が開始されることを示している。

図 6 は、無次元時間 20, $X_2 / D_h = 0$ における $X_1 - X_3$ 軸平面上での流れベクトル、ならびに水素濃度分布を示した計算結果であるが、計算は、Door vent から高速の混合気体が流入することを予測している。水素の放出速度が低速で、密度差による浮力が、放出速度より優っていることを考慮すると、高速の混合気体の流入は、Hydrogen inlet 近傍での強い浮力に起因しているものと推測できる。床面では Door vent から高速の混合気体が支配的であり、天井では Roof vent に向かう流れが形成され、全体的には時計方向回りの大きな循環流が形成されることがわかる。床面近傍での速度は天井部に沿う流れよりも早くなることを計算は予測している。

3.2 水素濃度分布の比較: $Fr = 2.0 \times 10^{-3}$

運動方程式からも明らかなように、密度差による浮力は、 Fr 数により影響される。そこで、 Fr 数による水素濃度への影響について検討する意味から、 Fr 数を 2.0×10^{-3} として計算を行った。 Fr 数を大きく設定することにより浮力は抑制されることになる。このときの Hydrogen inlet における水素の放出速度は 0.063m/s となり、実験での 0.02m/s と比較すると高速で水素が放出されている状態となる。

図 7 は、各センサー位置における水素濃度の時間変化を示している。図中には参考のため、井上らの計測結果も示している。Sensor1, 2 では濃度は時間的に大きく変動するのは Fr 数 1.0×10^{-3} と同様な傾向であるが、Sensor2 での濃度分布を比較すると Fr 数 2.0×10^{-3} の方が高い値を示している。この傾向は、Roof vent 近傍に位置する Sensor3 では顕著に認められる。Sensor4 での濃度を Fr 数 1.0×10^{-3} の場合と比較すると濃度変動が僅かではあるが大きいことがわかる。

図 8 は、図 4 と同じ、無次元時間 0.4 での $X_2 / D_h = 0$ における $X_1 - X_3$ 軸平面上での流れベクトル、ならびに水素濃度分布を示した計算結果である。図 4 に示した Fr 数 1.0×10^{-3} の結果と比較すると濃度分布の発達が遅く、速度ベクトルも小さい点を特徴的な現象として指摘できる。これは Fr 数を大きくしたことにより浮力が抑制された結果と解釈できる。ま

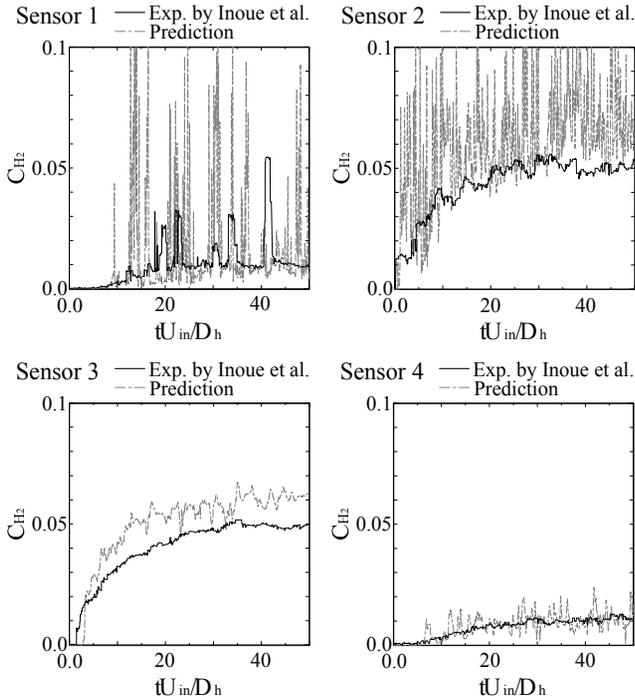


Fig.7 Comparison results of hydrogen concentration for Froude number 2.0×10^{-3}

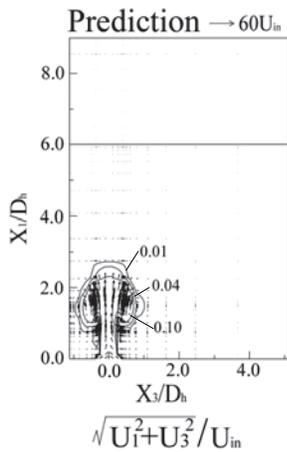


Fig.8 Velocity vectors and hydrogen concentration profile for Froude number 2.0×10^{-3}

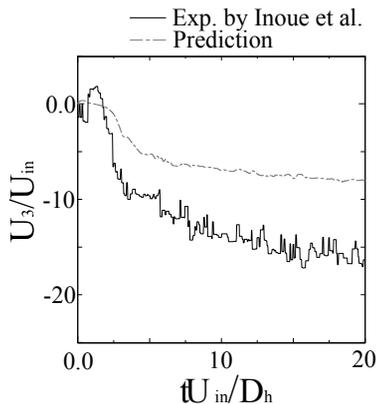


Fig.9 Comparison result of velocity profile of time history for Froude number 2.0×10^{-3}

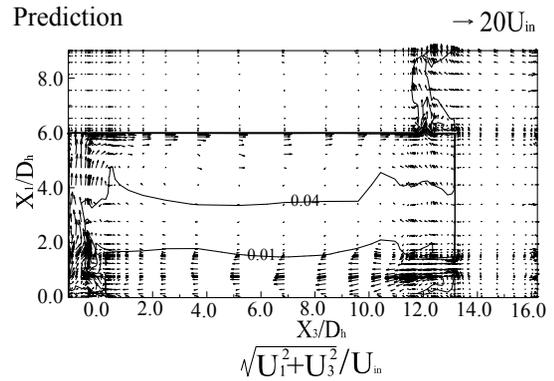


Fig.10 Velocity vectors and hydrogen concentration for Froude number 2.0×10^{-3}

た、水素濃度は最大速度を示す領域で10%程度であり、 Fr 数を大きくしたことによる影響は顕著には認められない。

図9は、Door vent での開口部に垂直方向の速度 U_3 の計算結果を示している。比較対象として計測結果も同時に示した。

Fr 数 1.0×10^{-3} の場合、水素放出速度の10倍の速度を予測したが、 Fr 数 2.0×10^{-3} の場合には、8倍の値を予測しており流入速度は減衰している。水素放出速度は増加しているにもかかわらず、Door vent での流入速度が減衰しているのは、 Fr 数による影響と考えられる。すなわち、運動方程式の式(6)から明らかなように Fr 数が大きくなったことにより浮力項が他の項に対して減少したためと解釈できる。

図10は、無次元時間20、 $X_2/D_h = 0$ における $X_1 - X_3$ 軸平面上での流れベクトル、ならびに水素濃度分布を示した計算結果である。 Fr 数 1.0×10^{-3} と同様に Door vent から高速の混合気体が流入することがわかる。Sensor4にて水素濃度が低いのは、この高速の混合気体の流入により床面への水素拡散が遮断されるためと解釈される。また、室内空間にて時計方向回りの循環流が形成されることも同一である。特徴的な現象として、Hydrogen inlet 近傍では、水素放出速度と Door vent からの混合気体の速度とが相互干渉し複雑に変化している点を両 Fr 数の結果より指摘できる。

3.3 Fr 数変化による水素濃度分布への影響

Fr 数を二種類変化させて計算を行った。水素濃度分布の比較結果から Fr 数を大きくすると水素濃度は増加することを計算結果は示している。 Fr 数を大きくすることは、浮力による効果を抑制する方向に作用するが、浮力が抑制されることは、Door vent からの流入速度の比較結果から確認できる。同時に、 Fr 数を大きくすることは、水素放出速度が速いことを意味するが、このとき、室内の水素濃度は増加する。逆に Fr 数を小さくすると、すなわち放出速度を小さくすると室内へ拡散する水素濃度は減少する。このことは、速い速度で室内空間へ水素を放出すると高濃度の水素が拡散され、遅い速度で水素を放出すると室内空間には低濃度の水素が拡散されることを示唆している。

現象的には、水素放出速度が低速の場合、浮力により高速

の流れ場が形成され水素拡散を促進する。逆に高速の場合には、浮力による流れが減少する結果、水素拡散も抑制され高速流れに乗った高濃度の水素領域が移流されるものと解釈される。

4. 結 論

室内空間に放出された水素の拡散問題を運動方程式、水素の輸送方程式を用いて計算した。計算結果は計測結果と比較して以下の結論を得た。

- (1) Fr 数 1.0×10^{-3} の条件において、計算は水素濃度の計測結果を定量的に再現した。ただし、Hydrogen inlet 近傍、ならびに、その上部に位置する天井部近傍において、計算結果は大きな濃度変動を伴う。
- (2) 計測結果は、Door vent から高速の混合気体の流入を報告しているが計算も定量的に差はあるものの、この特徴的現象を再現した。
- (3) Door vent からの混合気体の流入は、 Fr 数に関係し Fr 数を増加すると減衰する。 Fr 数の増加は、浮力の抑制を意味することから、Door vent からの混合気体の流入は浮力による効果と推察される。
- (4) 計測から報告された 100%濃度で放出された水素が 1.01m 上昇しただけで 5%の低濃度まで急激に拡散する現象は、浮力により加速された高速の流れに起因する。

謝 辞

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁からの受託事業として実施した平成 26 年度「発電用原子炉等安全対策高度化技術基盤整備事業（水素安全対策高度化）」の成果であり、ここに記して謝意を表す。

参 考 文 献

- (1) Kubo, S., et al. :A demonstration study on a closed-cycle hydrogen production by the thermochemical water-splitting iodine-sulfur process, Nuclear Engineering and Design, 232,pp. 1245-1254(2004)
- (2) 寺田敦彦, 野口弘喜, 竹上弘彰, 上地優, 稲垣嘉之 : 有機ハイドライド法による高温ガス炉 IS プロセス水素貯蔵・供給システムの概念検討, JAEA-Research 2011-041, pp. 1-62(2012)
- (3) Swain, M.R., Grilliot, E.S., Swain, M.N. :Risks incurred by hydrogen escaping from containers and conduits, Proc. of the 1998 U.S. DOE Hydrogen Program Review, NREL/CP-570-25315(1998)
- (4) 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, pp. 32-43(2008)

- (5) Pasumarthi, K. S., Agrawal A. K.: Schlieren measurements and analysis of concentration field in self-excited helium jets, Physics of Fluids, 15, 12, pp.3683-3692(2003)
- (6) Yildirim, A., Agrawal, A.K.:Full-field measurements of self-excited oscillations in momentum-dominated helium jets, Experiments in Fluids, 38, pp.161-173(2005)
- (7) Michaux, G., Vauquelin, O.: Density effect on the mixing and the flow pattern of an impinging air-helium jet, Experimental Thermal and Fluid Science, 33, pp.976-982(2009)
- (8) Satti, R. P., Agrawal, A. K. : Computational study of buoyancy effects in a laminar starting jet, Int. J. of Heat and Fluid Flow, 29, pp.527-539(2008)
- (9) 松浦一雄, 金山寛 : 部分開放空間における水素拡散挙動の関する研究, 日本機械学会 2006 年度年次大会講演論文集(1), pp. 45-46(2006)