

論文

火花放電による水素の最小着火エネルギー

— 湿度と放電パルス幅の影響 —

小野 亮^{*,1}, 荷 福 正 治^{*}, 藤 原 修 三^{*}, 堀 口 貞 茲^{*}, 小 田 哲 治^{**}

(2005 年 3 月 18 日受付, 2005 年 8 月 22 日受理)

Minimum Ignition Energy of Hydrogen by Spark Discharge
— Influence of Humidity and Spark Duration —Ryo ONO^{*,1}, Masaharu NIFUKU^{*}, Shuzo FUJIWARA^{*}, Sadashige HORIGUCHI^{*},
and Tetsuji ODA^{**}

(Received March 18, 2005; Accepted August 22, 2005)

The minimum ignition energy (MIE) of hydrogen-air mixture is measured using a capacitance spark discharge. The influence of humidity and spark duration on the MIE is studied. First, the relative humidity is increased from 0% to 90% at room temperature and the change of the MIE is measured. It is shown that the increase in humidity leads to a slight increase of the MIE. However, the influence of the humidity on the MIE is quite small. Next, the spark duration is increased by connecting a series resistance on the spark circuit. It is shown that the MIE is approximately constant when the spark duration is changed from 5 ns to 1 ms.

1. はじめに

燃料電池自動車は排出ガスがクリーンでエネルギー効率がよく、環境・エネルギーの面で優れた次世代自動車である。燃料電池自動車は水素を燃料とするため、実用化には水素ステーションの普及が必要である。このため水素の安全対策が必須となるが、まだ十分に検討されていないのが現状である。特に水素は一般の可燃性ガスよりも最小着火エネルギーが 1 桁小さく、空気中で 0.02mJ 以下である¹⁻³⁾。したがって水素は静電気放電に対して特に着火しやすく、静電気に対する水素の安全性の評価が急務となっている。

可燃性ガスの静電気危険性の評価では、最小着火エネルギーが重要な指標である。最小着火エネルギーは、一般に図 1(a) のような容量性火花放電を用いて測定する¹⁾。コンデンサ C を電圧 V で充電し、これを火花放電させてガスの着火・不着火を調べ、着火に要する最小の放電エネルギー $CV^2/2$ を求める手法である。

実際の静電気放電は図 1(a) の等価回路で表されることが多いが、図 1(b) のような RC 直列回路で表されることもある。例えば人体から発生する静電気放電は、人体帯電モデル (HBM: Human body model) によると図 1(b) の回路で $C = 100\text{pF}$, $R = 1.5\text{k}\Omega$ と表される⁴⁾。図 1(b) の RC 直列放電は、図 1(a) の容量性放電と比べてパルス幅が長くなるので、水素の着火特性も容量性放電と異なると考えられる。したがって静電気放電による水素の安全性を評価するには、容量性放電以外に、 RC 直列放電による着火特性も調べる必要がある。この他、実際の静電気放電では湿度の影響も重要であるが、最小着火エネルギーは一般に乾燥雰囲気中で測定される。このような背景から、本稿では空気中における水素の最小着火エネルギーを測定し、(i) 湿度の影響と、(ii) RC 直列放電による最小着火エネルギーを求める。

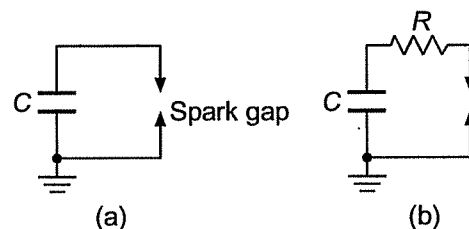


図 1 (a) 容量性放電と (b) RC 直列放電
Fig.1 (a) Capacitance discharge and (b) RC series discharge.

キーワード: 水素, 最小着火エネルギー, 火花放電, 湿度, 放電パルス幅

*独立行政法人 産業技術総合研究所爆発安全研究センター (305-8569 茨城県つくば市小野川 16-1)
Research Center for Explosion Safety, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Onogawa 16-1, Tsukuba, Ibaraki 305-8569, Japan

**東京大学工学部電気工学科 (113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1)
Department of Electrical Engineering, The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo, 113-8656, Japan

¹r.ono@aist.go.jp

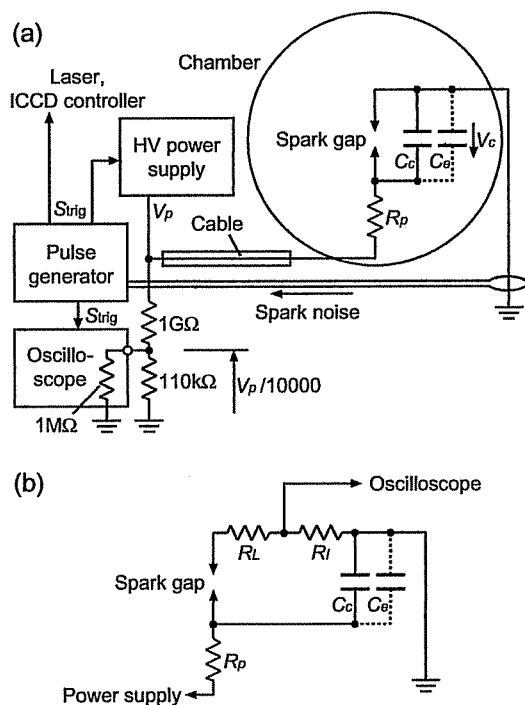


図2 (a) 容量性放電および (b) RC 直列放電発生回路
Fig.2 Electrical circuits for (a) capacitance discharge and (b) RC series discharge.

2. 実験

実験には容積 1L のステンレス製容器を用いる。容器の一部を直径 3cm のアルミ箔で封じてあり、爆発が起きるとアルミ箔が破けてエネルギーが放散するようになっている。容器を真空引きしたあと、水素と乾燥空気を所定の圧力まで導入する。水素と空気の合計圧は 1 気圧 (100kPa) とし、水素と空気の混合比はそれぞれの分圧比から求める。湿度を加える実験では、バブリング装置を用いて空気を導入する。

放電は爆発容器内の針-針電極間で発生させる。針電極はタングステン製で直径 1mm、先端角 40° である。ギャップ長はマイクロメータで調節できるようになっている。放電発生回路を図 2(a) に示す。放電ギャップに並列に取り付けたセラミックコンデンサ C_c を電圧 V_c で充電し、火花放電が発生させる。電極自身の静電容量を C_e とすると、全体の静電容量は $C_c + C_e$ で表される。 C_c および C_e は LCR メータ (Kokuyo, KC-536) で測定し、 C_c は 2.5~470pF、 $C_e = 1.8$ pF である。

高圧電源はケーブルと抵抗 R_p を介して放電ギャップに接続する。 R_p は 1GΩ とする。電源電圧 V_p は 0kV からゆっくりと上昇させる (例えば 0.1kV/s)。電源電圧が増加するとコンデンサの電圧 V_c も上昇し、 V_c が放電ギャップの絶縁破壊電圧を越えると放電が発生する。放電が発生するとパルス発生器が放電のノイズを検出し、電源と各測定機器に同期用のトリガ信号 S_{trig} を送る。これと同時に電源電圧は 0.3ms の時定数で 0V まで減少し、2 発目の放電が発

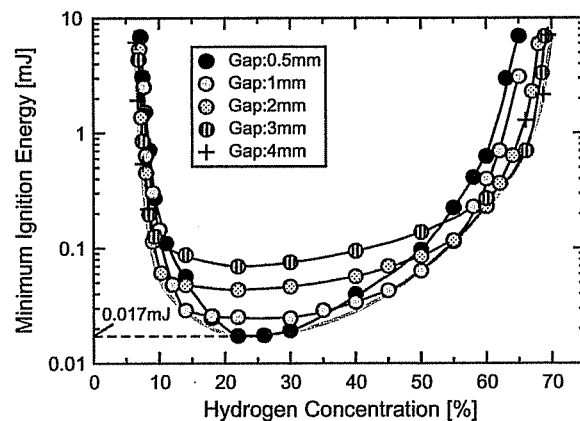


図3 乾燥空気中の水素の最小着火エネルギー E_{min}
Fig.3 Minimum ignition energy E_{min} of hydrogen-dry air mixture.

生するのを防ぐ。電源ケーブルには浮遊容量が存在するが、 R_p の値が 1GΩ と十分大きいので、放電が発生している時間内 (< 100ns) にはこの浮遊容量の充電電荷はほとんど放電ギャップに流れない。したがってケーブルの浮遊容量と放電ギャップは、放電が発生している時間内は絶縁していると見なせる。放電発生後、電源電圧は 0V になるので、ケーブルの浮遊容量の電荷は接地へ逃がされる。したがってケーブルの浮遊容量は放電には影響せず、無視することができる。

放電電圧 V_d は、放電が発生する直前のコンデンサの電圧 V_c から求められる。しかし高圧プローブで V_c を直接測定すると、プローブの入力インピーダンスが放電に影響するため、 V_c の直接測定は望ましくない。本実験では $V_c \cong V_p$ が成立するように、 V_p を十分ゆっくり上昇させる。したがって放電電圧は、放電が起きる直前の V_p から求めることができる。 V_p は 1/10000 に分圧してオシロスコープで測定する。放電エネルギーは $E_d = (C_c + C_e)V_d^2/2$ で定義し、 C_c と V_d を変化させて調節する。放電電圧は 2.0~5.5kV とする。

RC 直列放電では、放電ギャップ付近の回路構成のみ変更する。変更後の回路を図 2(b) に示す。コンデンサと接地電極の間に抵抗 R_L を直列に挿入し、 R_L は 1k, 50k, 1M, 20MΩ を用いる。接地と R_L の間には、電流波形測定用に抵抗 R_I を挿入する。 R_I は放電に影響しないように十分小さい抵抗 ($R_I < R_L/100$) を用いる。高圧電源と放電ギャップの絶縁抵抗 R_p は、 $R_L \leq 1$ MΩ では 1GΩ とする。 $R_L = 20$ MΩ の場合のみ $R_p = 1$ GΩ では絶縁が十分でなくなるので、 $R_p = 5$ GΩ を用いる。

3. 実験結果

3.1 容量性放電による水素の最小着火エネルギー

まず最初に基準となるデータを得るため、容量性放電を用いて乾燥空気中で最小着火エネルギーを測定した。図 3

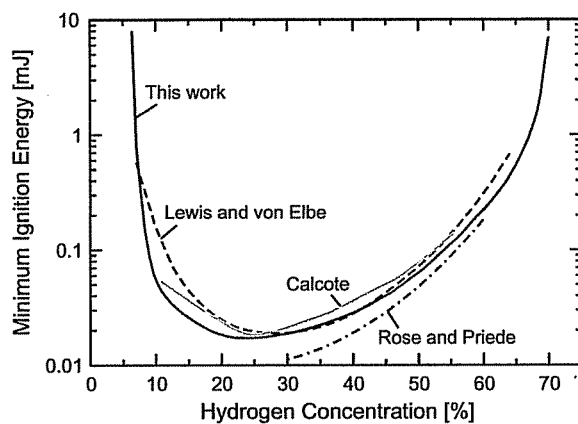


図4 本実験で得られた水素-乾燥空気 of 最小着火エネルギーと文献値¹⁻³⁾の比較

Fig.4 $E_{\min}$ of hydrogen-dry air mixture obtained in this work and previous literatures ¹⁻³⁾.

に結果を示す。この実験では水素濃度を固定して放電ギャップ長を変化させ、着火エネルギーが最小になったところで最小着火エネルギー $E_{\min}$ を求めた。図中の灰色の太線が $E_{\min}$ の測定結果で、 $E_{\min}$ の最小値は濃度 22~26% 付近で 0.017mJ と得られている。この他、図3にはギャップ長を固定した時の測定値も示してある。この結果を Lewis と von Elbe¹⁾、Calcote²⁾、Rose と Priede³⁾ の測定値と比較した結果を図4に示す。 $E_{\min}$ は文献値とおおよそ一致しているが、最大で2倍程度の差がある。この原因は、実験で用いた電極の材質や形状が、文献ごとに異なるためであると考えられる。最小着火エネルギーは、電極の材質や形状が変化すると2-3倍の範囲で変化することが知られている^{2,3,5)}。

図3でギャップ長を3mmに固定した時の結果を見ると、 $E_{\min}$ は水素濃度10%から50%の範囲では0.07~0.14mJとあまり変化していない。しかし水素濃度が10%より小さくなると、 $E_{\min}$ は急激に上昇していることが分かる。このような10%付近の急激な上昇は、ギャップ長1mmと2mmでも観測されている。水素濃度10%付近で、水素の着火を阻害するなんらかの要因が存在する可能性がある。

ギャップ長0.5mmの典型的な放電電流波形を図5に示す。図中には放電エネルギー E_d とコンデンサ容量 $C_c + C_e$ が示してある。これは電流プローブ (Pearson, Model-2877, 200 MHz) を用いて、接地電極に流れる電流を測定した結果である。実験装置の制約上、電流プローブを用いた計測は水素-空気放電ではできなかったため、図5は空气中放電で測定した結果である。図5より電流のピーク値はおよそ1~100A、パルス幅は10~100nsであることが分かる。またコンデンサ容量が大きくなると振動成分が現れているが、これはRoseとPriede⁶⁾が観測したのと同様の傾向である。これらの電流波形は、ギャップ長が0.5~4mmの範囲で変化

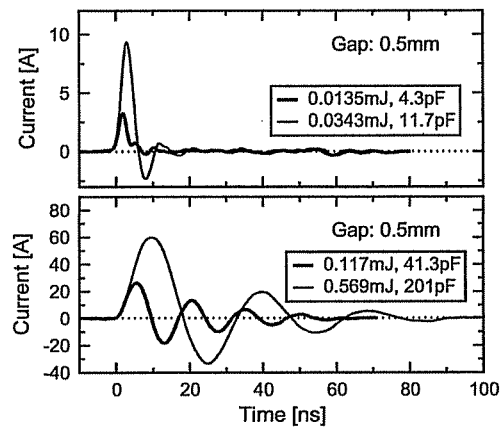


図5 ギャップ長0.5mmの空气中放電電流波形

Fig.5 Current waveforms of air discharge with 0.5 mm gap.

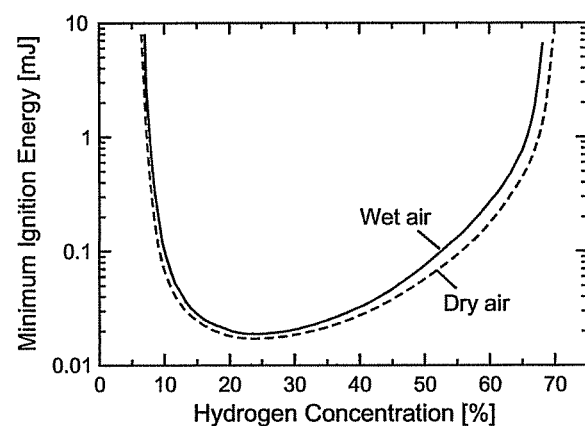


図6 乾燥および湿空気中の水素の最小着火エネルギー

Fig.6 $E_{\min}$ of hydrogen in dry and wet air.

してもあまり変化しない。また後述するように、水素濃度が変化しても電流波形はほとんど変わらない。したがって図3の実験で用いた各放電も、図5と同様に電流ピーク値1~100A、パルス幅10~100nsの放電であるといえる。

電流波形を積分すると、放電で流れた電荷の総量が得られる。これより放電後コンデンサ $C_c + C_e$ に残ったエネルギーを求め、図3の実験で用いた放電では、コンデンサの充電エネルギーの99%以上が放電していることを確認した。ただし電流波形は、空气中放電で測定したものを利用した。

3.2 湿度の影響

加湿した雰囲気中で $E_{\min}$ を測定した。その結果、室温 (22°C) で湿度を変化させても、 $E_{\min}$ はほとんど変化しないことが分かった。図6は乾燥空気および湿度90%の空気中の $E_{\min}$ を比較した結果である。この実験では乾燥空気をバブリングで90%まで加湿し、これを所定の圧力まで爆発容器に導入してから水素を加えている。したがって混合気の湿度は、例えば水素濃度50%では90%の半分の45%で

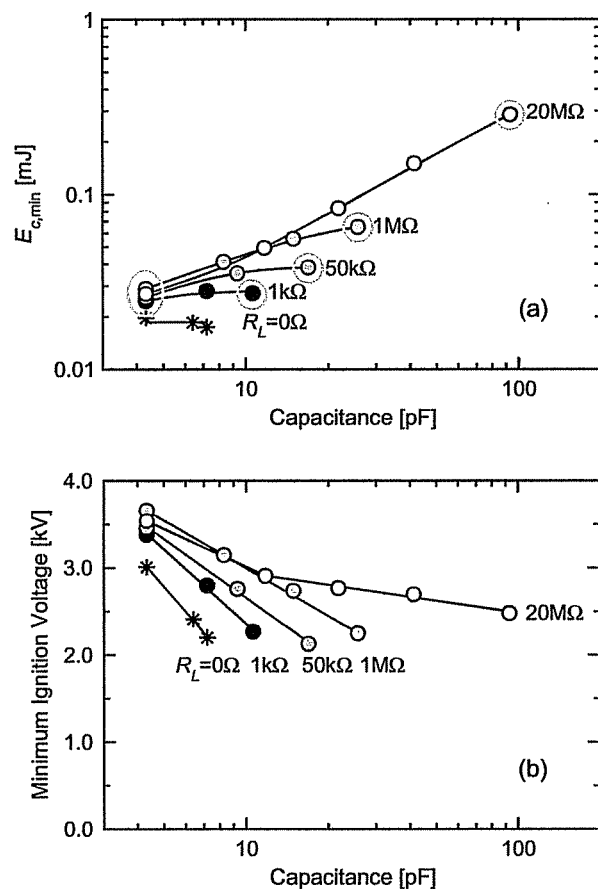


図7 RC 直列放電による水素 (22%)-乾燥空気の (a) 最小着火充電エネルギーと (b) 最小着火電圧
Fig.7 (a) $E_{c,min}$ and (b) minimum ignition voltage of $H_2(22\%)$ -dry air by RC series discharge.

ある。湿度を 90%にすると E_{min} がわずかに大きくなっているが、全体に湿度の影響は極めて小さいことが分かる。プロパン-空気混合気では、湿度が 0%から 70%に増加すると、 E_{min} が 4 倍程度増加することが報告されている⁷⁾。しかし水素では、そのような湿度による着火の抑制効果は観測されなかった。

3.3 RC 直列放電による水素の着火特性

RC 直列放電を用いて E_{min} を乾燥空气中で測定した。水素濃度とギャップ長は、容量性放電 (図 3) で E_{min} が最小になった 22%と 0.5mm に固定した。直列抵抗 R_L を 1k, 50k, 1M, 20M Ω としたときの結果を図 7(a) に示す。比較のため、 $R_L = 0\Omega$ の容量性放電の結果についても示してある。図の横軸はコンデンサの容量 $C_c + C_e$ である。縦軸は着火に要した最小エネルギーを、コンデンサの充電エネルギー E_c で表している。RC 直列放電では抵抗 R_L がエネルギーを消費するので、 E_c は放電の消費エネルギー E_d よりも大きくなる。最小着火エネルギーは E_d で表されるべきなので、図 7(a) の縦軸は「最小着火充電エネルギー ($E_{c,min}$)」と呼んで E_{min} と区別する。図 7(b) は最小着火電圧で、図 7(a) の

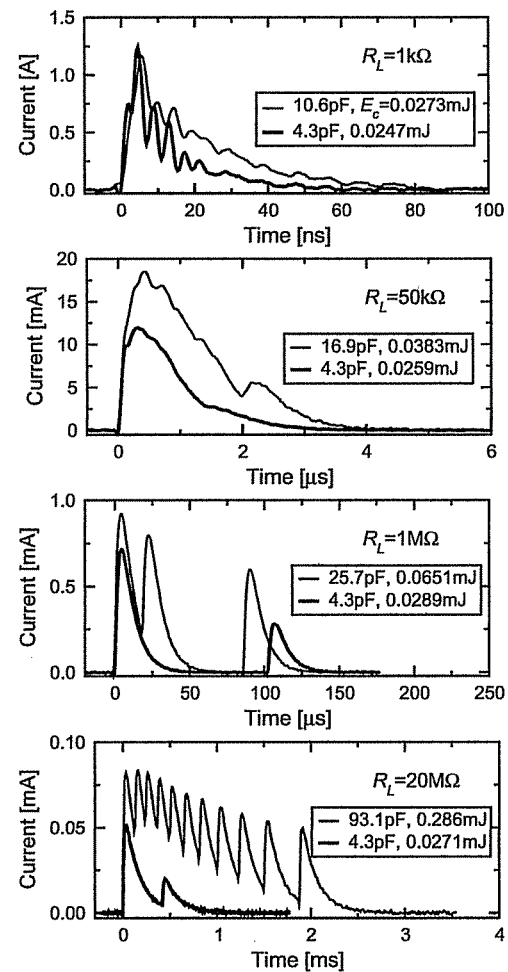


図8 図7の灰色の丸で示した8つの放電で水素が着火したときの電流波形
Fig.8 Current waveforms of discharges marked with grey circles in Fig. 7.

結果に対応している。本実験では 2kV 以下の放電を発生させることができなかったため、2kV 以上の電圧についてのみ結果を示している。図 7(a) より、 R_L とコンデンサ容量が大きいほど $E_{c,min}$ が大きくなっていることが分かる。

この実験では着火と同時に電流を測定している。例として、図 7(a) の灰色の丸で示した8つの放電の電流波形を図 8 に示す。図 8 はすべて充電エネルギーが $E_{c,min}$ の放電で、水素が着火したときの電流波形である。 R_L が大きくなるにつれて電流ピークが小さくなり、パルス幅が長くなっていることが分かる。また $R_L = 1M$ と 20M Ω では、複数の電流パルスが繰り返し現れる放電になっている。

図 8 のような充電エネルギー $E_{c,min}$ における放電では、同じ放電条件でも水素が着火する場合としない場合がある。 $R_L = 1k$ と 50k Ω では、水素が着火しない場合でも図 8 と同じ波形が観測された。ところが 1M と 20M Ω では水素が着火しない場合、図 8 と異なり、図 9 のように電流パルスが複数ではなく 1 つしか観測されなかった。この理由は次の

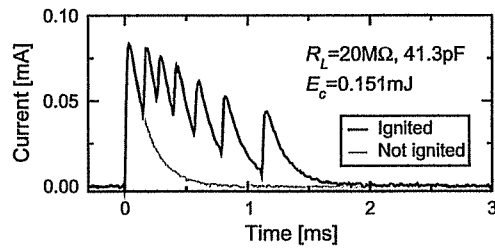


図9 水素の着火および不着火時の電流波形
Fig.9 Current waveforms when hydrogen is ignited and not ignited.

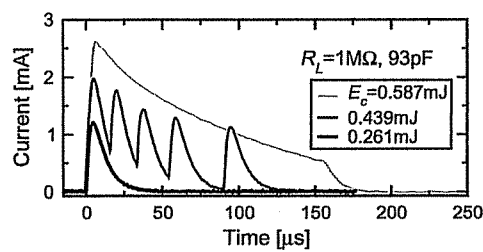


図10 E_c を変化した時の空气中放電電流波形
Fig.10 Current waveforms of air discharges for various E_c .

ように考えられる。 R_L が大きくなるとパルス幅が長くなる一方電流が小さくなるので、放電を維持できなくなり、コンデンサの全電荷が放電する前に放電が終了する。コンデンサの残留エネルギーを電流波形から求めると、図9の「不着火」では充電エネルギーの30%しか放電していないことが分かる。ところが着火が起こる場合は、放電路で様々な反応が進行し、例えば放電路の電離度が増すなどして、新たな放電を起こしやすい条件が形成されると推測される。その結果、繰り返し放電が観測されるのだと推測される。このような単発放電から繰り返し放電への移行は、空气中放電でも放電エネルギーを増やしていくと観測される。図10に1例を示す。これも放電エネルギーが大きいと放電路の電離度が高くなり、放電が繰り返し発生しているのだと推測される。

雰囲気ガスを $H_2(22\%)$ -空気混合気から空気に変えて電流を測定すると、 $R_L = 1k \sim 20M\Omega$ のすべての放電で水素が不着火のときとほぼ同じ電流波形が観測された。これより、空気に水素を加えても、水素が着火しなければ電流波形はほとんど変化しないことが分かる。またパルス幅が短ければ(本実験では $R_L \leq 50k\Omega$)、水素が着火しても電流波形が変化しないことは前述したとおりである。

4. 考察

4.1 人体からの静電気放電による着火危険性

人体から発生する静電気放電は、1節で述べたHBMでは100pF、1.5kΩのRC直列放電で表される。このような放電

表1 図7の灰色の丸で示した放電の E_d , E_r , E_R
Table 1 E_d , E_r , and E_R of discharges marked with grey circles in Fig. 7.

R_L (Ω)	C (pF)	Ignited			Not ignited		
		E_d (%)	E_r (%)	E_R (%)	E_d (%)	E_r (%)	E_R (%)
1k	4.3	70	0	30			
	10.6	54	0	46			
50k	4.3	80	1	19			
	16.9	54	5	41			
1M	4.3	80	2	18	70	14	16
	25.7	52	23	25	27	61	12
20M	4.3	73	2	25	67	12	21
	93.1	31	34	35	8	86	6

火することは明らかである。また実際の静電気放電は湿度を含む雰囲気が発生するが、図6より湿度による水素着火特性の抑止効果はほとんどない。したがって湿度のある大気中で人体から静電気放電が発生した場合でも、2kV以下という低い電圧で水素が着火する危険がある。また図7(b)の $R_L = 20M\Omega$ の結果を見ると、100pFでは2.5kV程度で着火している。したがって例えば、人体から20MΩ程度の抵抗を通して放電しても、2.5kVという低い電圧で水素が着火する危険があることが分かる。

4.2 RC直列放電による最小着火エネルギー

RC直列放電で、抵抗 R_L に消費されたエネルギー E_R とコンデンサの残留エネルギー E_r を電流波形から求めれば、放電で消費されたエネルギー E_d を求めることができる。例として図7(a)の灰色の丸で示した8つの放電について、 E_d , E_r , および E_R を求めた結果を表1に示す。表に示した値は、それぞれ充電エネルギー E_c に対する割合で表している。 $R_L = 1M$ と $20M\Omega$ では水素の着火・不着火で値が変化するので、同様の放電条件で水素が不着火のときの値も示している。このようにして求めた E_d と E_c の比率(E_d/E_c)を図7(a)の $E_{c,min}$ にかければ、 E_d で表した最小着火エネルギー E_{min} を求めることができる。結果を図11に示す。ただし $R_L = 1M$ と $20M\Omega$ については着火と不着火で E_d/E_c が変化するので、 E_{min} は一意に求められない。すなわち E_{min} は $E_c = E_{c,min}$ における E_d の値であるが、 E_c と E_d は図12のように $E_c = E_{c,min}$ において不連続な関係にあり、 E_{min} の値の範囲しか特定できない。図11ではその範囲をエラーバーで示している。

可燃性ガスの E_{min} は放電のパルス幅に依存する。例えばBallalとLefebvre⁵⁾やKonoら⁸⁾は、パルス状のアーカ放電やグロー放電を用いてプロパン-空気の E_{min} を測定し、 E_{min} を最小にする最適な放電パルス幅 τ_{opt} が存在することを示した。 τ_{opt} はプロパン濃度やギャップ長など様々な条件に依存するが、おおよそ50~200μsと得られた。本実験で

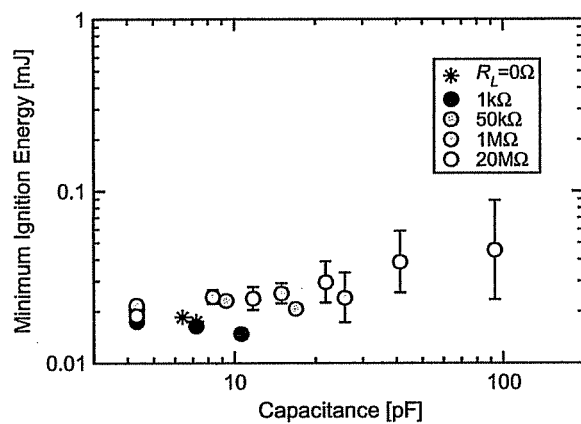


図 11 RC 直列放電による水素 (22%)-乾燥空気の最小着火エネルギー

Fig.11 $E_{\min}$ of $H_2(22\%)$ -dry air mixture by RC series discharge.

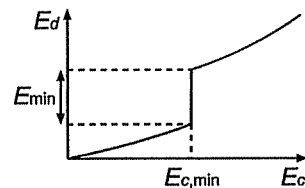


図 12 RC 放電 ($R_L \geq 1M\Omega$) の E_c と E_d の関係
Fig.12 E_c versus E_d of RC series discharge.

の関係を求めた。結果を図 13 に示す。ただしパルス幅は、放電エネルギーが最終値の 90%に達するまでの時間で定義した。着火と不着火でパルス幅が変化する場合には、その範囲をエラーバーで表した。また図 11 から分かるように、20pF 以上の結果は縦軸のエラーバーが大きすぎるので結果を省き、新たに $R_L = 10k, 300k, 50M\Omega$ の結果を加えた。図 13 より、 $E_{\min}$ はパルス幅が増えるとともに増加しているが、5ns から 1ms の範囲ではほぼ一定であることが分かる。前述したプロパンの実験^{5,8)} とはガスの種類も放電の形態も異なるので単純な比較はできないが、本実験では τ_{opt} が存在する明確な証拠は得られなかった。

水素-空気混合気の RC 直列放電による着火は、Rose と Priede^{3,6)} が水素濃度 50%で測定した例がある。Rose らは直列抵抗 100k Ω 以下、パルス幅 4 μ s 以下の範囲で実験を行い、直列抵抗が大きくなりパルス幅が増加すると、 $E_{\min}$ が 1.5~2 倍程度小さくなることを示した。しかし Rose らは図 14 に示すような回路を使用しており、 C_e による容量性放電と、 C_c と R による RC 直列放電が合成したような放電を用いている。したがって完全な RC 直列放電は実現しておらず、電流波形も本実験とは大きく異なっており⁶⁾、単純に結果を比較することはできない。

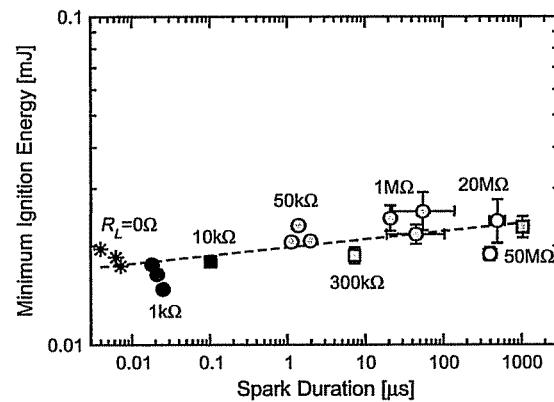


図 13 RC 直列放電による水素 (22%)-乾燥空気の $E_{\min}$ と放電パルス幅の関係

Fig.13 $E_{\min}$ in $H_2(22\%)$ -dry air RC series discharge as a function of spark duration.

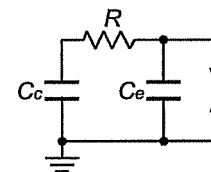


図 14 Rose ら⁶⁾ の用いた RC 放電回路

Fig.14 RC spark circuit used by Rose et. al.⁶⁾.

5. まとめ

水素の最小着火エネルギー $E_{\min}$ を空气中で測定し、湿度と放電パルス幅の影響を調べた。その結果、湿度を 0% から 90%に増やすと $E_{\min}$ はわずかに増加するが、湿度の影響は極めて小さいことを示した。パルス幅は直列抵抗を回路に挿入して変化させ、水素濃度 22%で $E_{\min}$ を測定した。その結果、パルス幅が 5ns から 1ms に増加すると $E_{\min}$ はわずかに増加するものの、ほぼ一定であることを示した。

本研究は、NEDO の受託研究「水素の安全利用技術に関する基盤研究」の一環として行われた。

参考文献

- 1) B. Lewis and G. von Elbe: *Combustion, Flames and Explosions of Gases*, Academic Press, New York (1951)
- 2) H. R. Calcote, C. A. Gregory Jr., C. M. Barnett, and R. B. Gilmer: *Ind. Eng. Chem.*, **44** (1952) 2656
- 3) H. E. Rose and T. Priede: *Seventh Symposium on Combustion*, p. 436, Butterworths, London (1959)
- 4) 静電気学会編: 新版静電気ハンドブック, p. 237, オーム社 (1998)
- 5) D. R. Ballal and A. H. Lefebvre: *Combust. Flame*, **24** (1975) 99
- 6) H. E. Rose and T. Priede: *Seventh Symposium on Combustion*, p. 454, Butterworths, London (1959)
- 7) 静電気学会編: 静電気ハンドブック, p. 757, オーム社 (1982)
- 8) M. Kono, S. Kumagai, and T. Sakai: *Sixteenth Symposium on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburgh, p. 757 (1976)