

高圧水素のノズル内臨界流に関する数値解析と流量計測の合理化・高度化に関する研究 国立研究開発法人産業技術総合研究所 気体流量標準研究グループ 竹川尚希

1. はじめに

日本では燃料電池車と水素ステーションの普及へ向けた取り組みが進められている。計量取引としての観点では、燃料電池車への 70 MPa にもおよぶ高圧水素の充填量に関する計量精度を確保する必要がある。水素ステーションで使用される水素燃料の計量システムとして、国家標準とトレーサブルな流量計を用いたマスターメーター法が採用されている。マスターメーターの校正は、国家標準設備によって校正された臨界ノズルによって実施される。そのため、トレーサビリティの上流に位置する臨界ノズルを用いた水素流量の計測精度が重要であることは明らかである。

臨界ノズルは安定かつ高精度な気体流量標準として広く利用されている。ノズル背圧比(下流圧/上流圧)が臨界背圧比以下になると、スロートでの流速が音速となり、一定の流量値を示すため高精度な流量計測が可能となる。臨界ノズルの実質量流量 $Q_{\text{mass_actual}}$ は、流出係数 C_d と非粘性 1 次元流れを仮定した理論質量流量 $Q_{\text{mass_theory}}$ の積 ($Q_{\text{mass_actual}} = C_d Q_{\text{mass_theory}}$) から求められる。理想気体を仮定した理論質量流量 $Q_{\text{mass_theory}} (A \cdot \rho_{\text{th}} \cdot c_{\text{th}})$ は、式(1)右辺で与えられる。

$$A \rho_{\text{th}} c_{\text{th}} = A \sqrt{\gamma \left(\frac{2}{\gamma + 1} \right)^{\frac{\gamma + 1}{\gamma - 1}}} P_0 \sqrt{\frac{M}{RT_0}} \quad (1)$$

A はスロート断面積、 ρ_{th} はスロートでの密度、 c_{th} はスロートでの音速、 γ は比熱比、 P_0 はよどみ点圧力、 M は分子量、 R は普遍気体定数、 T_0 はよどみ点温度である。通常、粘性の影響から実質量流量は理論質量流量よりも小さくなり、流出係数 ($Q_{\text{mass_actual}} / Q_{\text{mass_theory}}$) は 1.0 以下の値を示す。臨界ノズルの流出係数は、国家標準を用いた校正から実験的に決定する係数である。ISO 9300 において、この流出係数は、境界層遷移が生じる範囲を除いて、レイノルズ数の増加関数として定義されている。この ISO カーブは、1 MPa 程度までの圧力において、実験的に求めた流出係数を良く表現することが知られている。しかしながら、実験結果に基づき算出した 10 MPa を超える高圧水素の流出係数は、ISO カーブと一致しないことが報告されている。高圧時における流出係数の ISO カーブからの乖離を解決する方法として、提案式の高次化(係数の増加)や圧力項の追加が考えられる。しかしながら、ISO カーブの複雑化は、校正試験(校正方法や校正点数)における労力の増大に直結する。計量トレーサビリティを担保した水素燃料計量システムの普及には、校正試験の簡素化、合理化が必要不可欠である。そこで、本研究では、三次元数値シミュレーションを実施し、高圧水素用臨界ノズルの流出係数に関する知見を蓄積する。また、高圧時に流出係数が ISO カーブから乖離する原因を、数値シミュレーション結果と実験結果の両面から検証し、簡便な流出係数の整理方法を確立することで、合理的な臨界ノズルの運用指針への貢献を目指す。

2. 数値解析条件

本研究では OpenFOAM を用いて、**図 1** に示す三次元非定常流れの数値シミュレーションを実施する。直径 D が 0.6 mm の臨界ノズルは、実験で使用したノズルの形状を再現しており、流入部の

半径が $2D$ 、ディフューザー長さが約 $31D$ 、ディフューザー角度が 3° である。直径 6 mm の臨界ノズルは、 0.6 mm のノズルを 10 倍に拡大したものである。総メッシュ数は 1451144 である。数値シミュレーションにおける実室流量を正確に算出には、壁面近傍の急激な流速変化を捉える必要があるため、ノズル壁面に境界層メッシュを挿入している(図 1(b))。水素の物性値として、モル質量 2.0159 kg/kmol 、臨界温度 33.145 K 、臨界体積 $0.0645\text{ m}^3/\text{kmol}$ 、臨界圧力 1.2964 MPa 、偏心因子 -0.219 を採用する。ノズル上流温度は 7°C 、ノズル上流圧は $0.1, 1, 10, 40, 70\text{ MPa}$ の計 5 点、背圧比は 0.6 とする。連続式、運動方程式、エネルギー式は次式で与えられる。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 \quad (2)$$

$$\frac{\partial \rho \mathbf{u}}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{u} \mathbf{u}) = -\nabla p + \nabla \cdot (\mu \nabla \mathbf{u}) + \nabla \cdot \left[\mu \left\{ (\nabla \mathbf{u})^T - \frac{2}{3} \nabla \cdot \mathbf{u} \mathbf{I} \right\} \right] \quad (3)$$

$$\frac{\partial \rho e}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho e \mathbf{u}) + \frac{\partial \rho K}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho K \mathbf{u}) = -\nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) + \nabla \cdot (k \nabla T) \quad (4)$$

ここで、 ρ : 密度、 t : 時間、 \mathbf{u} : 流速ベクトル、 p : 圧力、 μ : 粘性係数、 e : 単位質量あたりの内部エネルギー、 K : 単位質量あたりの運動エネルギー、 k : 熱伝導率、 T : 温度である。粘性係数 μ はサザーランドの式、熱伝導率 k は粘性係数と定積比熱より計算している。圧力と速度の連成には、PISO 法と SIMPLE 法を組み合わせた rhoPimpleFoam ソルバーを使用した。流速ベクトル \mathbf{u} 、運動エネルギー K 、内部エネルギー e 、乱流エネルギー k 、エネルギー散逸率 ω の移流項として、2 次精度の線形風上差分である linearUpwind limited を使用した。状態方程式には Peng-Robinson 式、粘性係数にはサザーランド式、乱流モデルには k-omegaSST を使用した。定圧比熱は圧力を固定し、温度の多項式とした。並列数を 118 と、計算時の最大クーラン数は 0.7 とした。

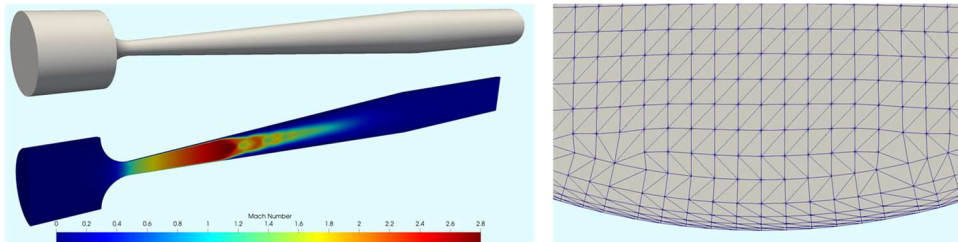


図 1 数値解析の概要。a: 臨界ノズルの形状ファイル b: ノズルスロットにおける壁面近傍のメッシュ

3 数値シミュレーション結果と高圧水素用臨界ノズルの流出係数

3.1 数値シミュレーションにおけるスロットでの質量流量変化

各上流圧におけるスロットでの実質量流量の変化を図 2 に示す。図 2(a)から(c)はスロット径: 0.6 mm 、図 2(d)から(f)はスロット径: 6 mm の結果である。数値シミュレーション開始直後は、ノズル内の水素が静止状態から流れ始めるため、実質量流量の変動が大きい。本研究では、実質量流量の変動幅が $\pm 0.2\%$ 以内である時、安定状態とする。数値シミュレーションにおける安定状態の実質量流量 $Q_{\text{mass_actual}}$ として、スロット径 0.6 mm では 0.0003 秒から 0.0004 秒間の平均値、スロット径

6 mm では 0.003 秒から 0.004 秒間の平均値を使用する。数値シミュレーションにおける流出係数 $C_d(Q_{\text{mass_actual}} / Q_{\text{mass_theory}})$ は、数値シミュレーションにおける実質量流量を理想気体に基づく理論質量流量(式(1)右辺)で割ることによって求めることができる。

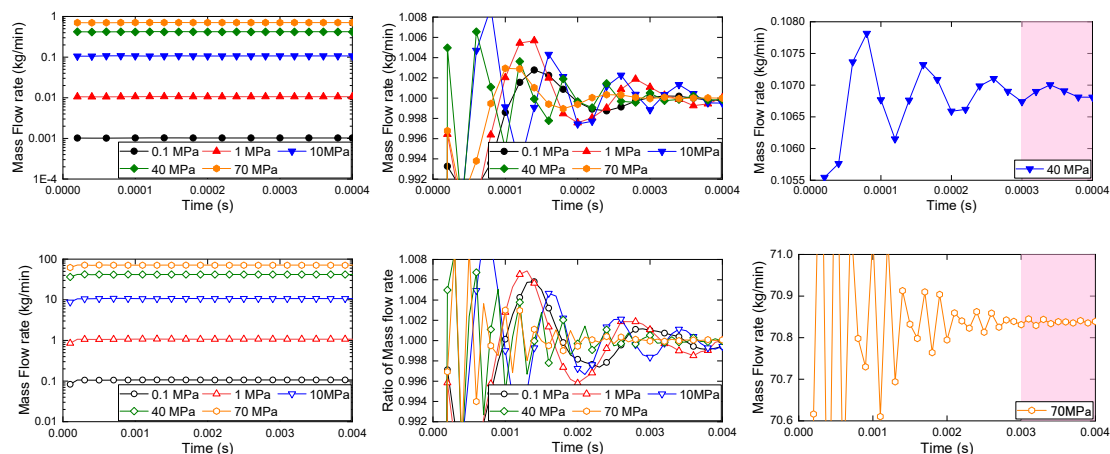


図 2 数値シミュレーションにおけるスロートでの実質量流量の変化。a: 各上流圧での実質量流量の変化 b: 各上流圧での実質量流量比の変化 c: 40MPa での実質量流量の変化 d: 各上流圧での実質量流量の変化 e: 各上流圧での実質量流量比の変化 f: 70MPa での実質量流量の変化

3.2 数値シミュレーションにおける臨界ノズルの流出係数

実験と数値シミュレーションより得られた実質量流量 $Q_{\text{mass_actual}}$ に基づき、レイノルズ数と流出係数 $C_d(Q_{\text{mass_actual}} / Q_{\text{mass_theory}})$ の関係を図 3 に示す。理論質量流量 $Q_{\text{mass_theory}}$ は理想気体を仮定した式(1)右辺を用いて導出した。黒丸プロットは実験結果に基づく流出係数であり、上流圧の最小値が 4.8 MPa、最大値が 68.4 MPa である。1 章で述べたように上流圧の増加に伴い、実験に基づく流出係数は減少していることがわかる。上流圧 68.4 MPa の時、ISO カーブと実験に基づく流出係数の差は約 9 %にも及ぶ。数値シミュレーションについて注目すると、スロート径 0.6 mm の流出係数(赤プロット)は、上流圧が 0.1 MPa と 1 MPa の時に ISO カーブ上に位置しており、本数値シミュレーションにおいて、臨界ノズルの基本的な特性を再現できていることがわかる。上流圧が 10 MPa 以上では、実験と同様に流出係数が減少し、ISO カーブから乖離している。重要な点として、上流圧 40 MPa と 70 MP では実験と数値シミュレーションの間で差は存在するものの、両者ともにレイノルズ数の増加に伴う流出係数の減少という現象が確認されたことである。スロート径 6 mm においても流出係数(青プロット)は、10 MPa 以上で ISO カーブから乖離している。しかしながら、同じ 10 MPa の条件下でもスロート径は 0.6 mm よりも 10 倍のレイノルズ数であるため、スロート径 6 mm において ISO カーブからの乖離はより大きなレイノルズ数から始まる。これは、ある一つのレイノルズ数においても、異なる圧力やノズル径に応じて、様々な流出係数が存在しうることを意味している。したがって、実質量流量と式(1)右辺を用いた現在の方法では、高圧水素の流出係数をレイノルズ数の多項式のみで整理することが難しいと考えられる。そのため、4 章で理論質量流量の導出方法を再検討し、実在気体を考慮した理論質量流量の計算式を構築する。

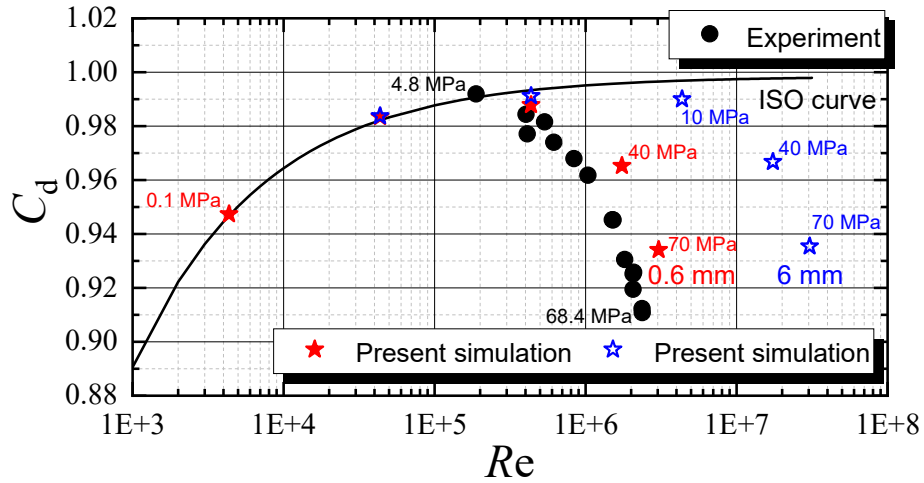


図 3 実験と数値シミュレーションより得られたレイノルズ数と流出係数の関係。実質量流量には実験値または数値シミュレーション結果、理論質量流量には理想気体を仮定した式(1)右辺を使用している。

4 実在気体を考慮した理論質量流量と臨界ノズルの流出係数

理論質量流量 $Q_{\text{mass_theory}}$ は、スロート断面積、密度、音速の積 ($A \cdot \rho_{\text{th}} \cdot c_{\text{th}}$) である。本研究では、式(5)および式(7)を同時に満たすスロートでの密度 ρ_{th} と温度 T_{th} を計算する。

$$S_0(\rho_0, T_0) = S_{\text{th}}(\rho_{\text{th}}, T_{\text{th}}) \quad (5)$$

$$h + \frac{1}{2}u^2 = \text{const} \quad (6)$$

$$c_{\text{th}}(\rho_{\text{th}}, T_{\text{th}}) = \sqrt{2[h_0 - h_{\text{th}}(\rho_{\text{th}}, T_{\text{th}})]} \quad (7)$$

S はエントロピー、 h はエンタルピー、 u は流速である。添え字の 0 はよどみ点、th はスロートを示している。式(5)は等エントロピー流れを仮定しており、式(7)は式(6)のエネルギー保存則をよどみ点とスロートに適用したものである。本研究において、エントロピーとエンタルピーを計算する際は、熱物性計算ソフトウェアの REFPROP を使用した。式(5)と式(7)における未知数は、スロートにおける密度 ρ_{th} 、温度 T_{th} 、音速 C_{th} である。音速については、Peng-Robinson(PR 式)と Redlich-Kwong-Soave(RKS 式)の状態方程式を偏微分することで、密度と温度の関数として表すことができる。PR 式と RKS 式は、それぞれ式(8)、式(9)で表される。

$$P(\rho, T)_{\text{PR}} = \frac{\rho RT}{M - b\rho} - \frac{a\rho^2\alpha(T)}{M(M - b\rho) + b\rho(M - b\rho)} \quad (8)$$

$$P(\rho, T)_{\text{RKS}} = \frac{\rho RT}{M - b\rho} - \frac{a\rho^2\alpha(T)}{M(M - b\rho)} \quad (9)$$

a と b は係数であり、PR 式と RKS 式でそれぞれ異なる。 $\alpha(T)$ は式(10)で示す温度の関数である。

$$\alpha(\rho, T) = \left(1 + m \left(1 - \frac{T}{T_c} \right)^{0.5} \right)^2 \quad (10)$$

m は係数であり、PR 式と RKS 式でそれぞれ異なる。 T_c は臨界温度である。そして、エントロピーを一定と考え、圧力を密度で偏微分することで音速を求めることができる(式(11))。

$$c(\rho, T) = \sqrt{\left(\frac{\partial P(\rho, T)}{\partial \rho}\right)_s} = \sqrt{\left(\frac{\partial P(\rho, T)}{\partial \rho}\right)_T + \frac{T}{\rho^2 C_v} \left[\left(\frac{\partial P(\rho, T)}{\partial T}\right)_\rho\right]^2} \quad (11)$$

式(11)右辺に式(8)または式(9)を代入することで、式(12)または式(13)が導出される。

$$c(\rho, T)_{PR} = \sqrt{\frac{MRT}{M-b\rho} - \frac{2aM\alpha\rho(M+b\rho)}{[M(M+b\rho)+b\rho(M-b\rho)]^2} + \frac{1}{C_v T} \left[\frac{\rho RT}{M+b\rho} + \frac{aM\rho^2}{M(M+b\rho)+b\rho(M-b\rho)} \sqrt{\alpha \frac{T}{T_c}} \right]^2} \quad (12)$$

$$c(\rho, T)_{RKS} = \sqrt{\frac{MRT}{M-b\rho} - \frac{aM\alpha\rho}{[M(M+b\rho)+b\rho(M-b\rho)]^2} + \frac{1}{C_v T} \left[\frac{\rho RT}{M-b\rho} + \frac{aM\rho^2}{M(M+b\rho)} \sqrt{\alpha \frac{T}{T_c}} \right]^2} \quad (13)$$

式(12)および式(13)で表される音速は、密度と温度の関数である。したがって、式(5)および式(7)の未知数は、スロートにおける密度 ρ_{th} 、温度 T_{th} の 2 つであり、それぞれについてプログラムを用いて計算することができる。そして、スロート断面積 A 、密度 ρ_{th} 、音速 c_{th} (式(12)または式(13)) の積から実在気体を考慮した理論質量流量 Q_{mass_theory} が求められる。

実験から得られた実質量流量 Q_{mass_actual} と実在気体を考慮した理論質量流量 Q_{mass_theory} に基づき、流出係数 ($Q_{mass_actual} / Q_{mass_theory}$) を求めた結果を図 4(a) に示す。まず、黒、赤、青のプロットにおいて、実験値である実質量流量は同じ値を使用している。理論質量流量を求める際、黒プロットでは式(1)右辺、赤プロットは式(5)、(7)、(12) (PR 式)、青プロットは式(5)、(7)、(13) (RKS 式) を使用している。実在気体を考慮した理論質量流量に基づいた流出係数 (赤プロットおよび青プロット) は、理想気体に基づく流出係数から大幅に改善されている。ISO カーブとの最も乖離している点で約 1.1% である。また、本手法を用いることで、理論質量流量のみならず、スロートにおける密度、温度、圧力、音速についても計算可能となる。図 4(b) によどみ点とスロート間の各物理量の比を示す。70 MPa において、理想気体と実在気体間の温度比の差は約 2% である。一方、密度比の差は約 9%、圧力比の差は 15% にもおよび、スロートにおける状態が理想気体と実在気体で大きく異なる。このことから、高圧ガスの理論質量流量計算には、実在気体を考慮することが望ましいと考えられる。

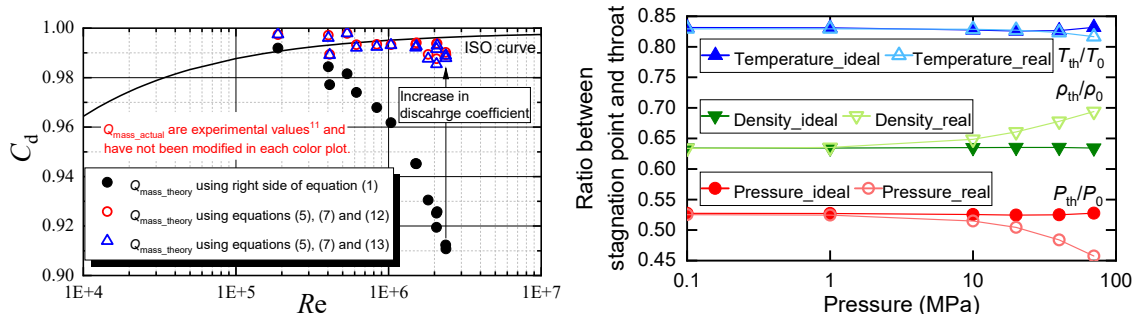


図 4 実在気体に基づく理論質量流量と臨界ノズルの流出係数。a: 実験から得られた実質量流量と実在気体を考慮した理論質量流量から求めた流出係数 b: よどみ点とスロート間の温度、密度、圧力の比