

## 漏洩した Dense Gas の蒸発の影響を考慮した 二層ボックスモデル

西田 薫\*・伊藤 英一郎\*・高木 興一\*・山本 浩平\*\*

### Two-Layer Box Model for Dense Gas Spill Considering Evaporation Effect

Kaoru NISHIDA\*, Eiichirou ITO\*,  
Koichi TAKAGI\* and Kouhei YAMAMOTO\*\*

本研究の目的は、アンモニアやLNGのように大容量のタンクに低温加圧貯蔵されている危険物質が漏洩したときの濃度を正確に予測することである。加圧放出の特徴は、気液混合のガス雲が形成されることである。従来の研究では、ミストが生成されないと仮定して濃度予測モデルが構築されていたが、本研究では、ガス雲中の液体の蒸発の効果を考慮するため二層ボックスモデルを提案した。本モデルは、dense gasの瞬間加圧放出時の濃度を予測計算するものであり、瞬間放出の事故例で報告されている可視現象と定性的に一致する結果が得られた。更に、加圧貯蔵庫からの連続放出に対しては、二層ボックスをパフと同様に扱って計算した。また、従来のモデルでは的確に表現できなかった鉛直方向の濃度分布を予測できるように改良した。本モデルの計算結果と Desert Tortoise 実験データとの比較を行ったところ、鉛直方向の濃度分布についても高い再現性が得られた。

#### 1. はじめに

近年、科学技術の進歩とともに、いわゆる危険物質 (hazardous material) と呼ばれる化学物質を多量に貯蔵または輸送する機会が増えている。これに伴い、世界各国で、1970年代以降、液化ガス燃料や有害化学物質の漏洩事故が発生している。特に、1984年のBhopal (India) での methylosocyanate (MIC) 漏洩事故は死者2000人以上を出し、今世紀最大のプラント事故となった<sup>1)</sup>。これらの事故を契機に、アメリカやヨーロッパ諸国などにおいて、このようなガスの拡散予測についての研究が盛んに行われ、Thorney Island 計画<sup>2)</sup>、Eagle 計画<sup>3)</sup>、Desert Tortoise 計画<sup>4)</sup> 等の大規模なフィールド実験も行われている。わが国でも大量の危険物質を取り扱っており、今後、同様な

事故が起こらないとは限らない。そこで、事故時のリスクアセスメントが必要となる。リスクアセスメントを実施するには、大気中に放出された危険物質が形成する高濃度、高密度のガス (dense gas) の拡散現象を把握することが必要である。こうした経緯から事故発生時に想定される瞬間放出 (instantaneous spill)、連続放出 (continuous spill) などの dense gas 放出状態に応じた濃度予測モデルが作成されている<sup>5-9)</sup>。

本研究は、dense gas のリスクアセスメント手法の開発に関して、特に dense gas の加圧放出に対して二層ボックスモデルを提案し、dense gas 漏洩時の拡散に及ぼす蒸発の影響を検討したものである。

#### 1.1 Dense gas の定義<sup>10)</sup>

環境大気中に高密度気体塊が存在するとき、これを

\* 京都大学工学部衛生工学教室 〒606 京都市左京区吉田本町

\*\* 京都大学原子エネルギー研究所 〒611 宇治市五ヶ庄

dense gas といい、特に空気に対する比重が1を越えるとき heavy gas と呼ばれる。分子量が空気よりも大きいガスは環境大気との温度差に関わらず heavy gas であるが、放出条件や放出時の温度状態により、周囲の大気との温度差によって正または負の熱的な浮力を生じて比重が変化することがある。事故でこれらの物質が漏洩した場合、その貯蔵方法が特殊であるため、放出ガスは空気より重いガス塊と同様の挙動を示す。Heavy gas の挙動を示す原因は次に示すとおりである<sup>11)</sup>。

- ・モル重量が空気より大きい。(例: Cl<sub>2</sub>)
- ・低温貯蔵のため、放出時、比重が1を越える。(例: LNG)
- ・貯蔵条件により、放出時、比重が1を越える。(例: 加圧放出時のアンモニア)
- ・空気中の水蒸気と放出ガスとの反応により、比重が1を越える。

例えば、アンモニアなどの低沸点の化合物の場合は非常に高い圧力をかけて低温の液体状態で貯蔵される。そのため、事故などで大気中に放出された直後には低温の気体とエアロゾルの混合体を形成する。この混合体は低温であるのに加えて、液滴を含んでいるので密度が高く heavy gas の挙動を示すが、放出後の時間経過とともに拡散が進むにつれて比重が小さくなる。本研究においては、このように空気よりも小さな分子量をもつ気体であっても放出条件等により、一時的にでも heavy gas としての挙動を示す高密度気体塊を dense gas と表記することにする。

## 1.2 Dense gas の拡散の特徴

プラントや自動車などから日常的に排出される大気汚染物質が比較的低濃度であるのに比べ、事故時の dense gas の拡散はかなりの高濃度となる。濃度のオーダーが前者は ppb から ppm 程度であるのに対し、後者は ppm から%に達する。また、危険物質の大気中への放出は煙突などと異なり、地表付近からが主であり、しかも、危険物質は放出前に環境大気と大きく異なる圧力や温度を保っている場合が多い。したがって、放出直後は、放出時の条件や放出物質の化学的・物理的性質に大きく依存することになる。更に、その拡散の挙動は気象条件や地表面の影響を強く受ける。そのため dense gas の拡散は、拡散を支配する物理的因子によって、放出からの経過時間とともに以下に示す4段階の相 (phase) に分類される<sup>12)</sup>。

(1) 初期相 (initial phase)——放出時の慣性力と外部平均流が優勢な相

(2) 重力拡散相 (gravity-spreading phase)——放出ガスの浮力と外部平均流が支配的な相

(3) 準受動相 (nearly-passive phase)——(2)に加え、外部乱れの影響が強まる相

(4) 受動相 (passive phase)——外部の平均流と乱れのみ支配される相

以上のことから dense gas の拡散現象 (ガス雲の流れ) は、それを支配する因子により、

(1) 浮力や圧力勾配によるガス雲の流れ

(2) 環境中の風速場によるガス雲の流れ

の両者に分類される。ただし、ここで“ガス雲の流れ”とは、dense gas と周辺大気 (ambient fluid) の間において拡散、混合、エントレインメント (entrainment) といった現象によってガス体が形成され、雲のように流れ出すことを意味する。エントレインメントとは、一般に、運動している流体中に周囲の空気が摩擦や乱れによって吸い込まれてともに運動する現象であるが、ここでは大気中に dense gas が放出され、乱流拡散や風速シアによって dense gas に空気が取り込まれ、ガス雲となって運動することを示す。

一方、放出状態を左右する重要な因子として放出時間がある。これを大別すると、瞬間放出 (instantaneous spill) と連続放出 (continuous spill) に分類される。一般に、放出時間が長くなると定常とみなすことが可能になり、また同一量の放出においては短時間に放出したほうが濃度が高くなるが、これらは dense gas についても同様である。更に、放出される dense gas が最初から気体 (gaseous) であるかあるいは液化した状態 (liquefied) であるかも重要である。後者の場合、液相から気相への転移 (phase transition) が生ずるため、特に初期相に影響を及ぼす。

地表面からの dense gas 拡散において、ガス雲は、地表面からあまり上昇せず、植生の高さ程度と言われている。しかしながら、比重が1より小さい物質の場合、浮力によってリフトオフ (lift-off) と呼ばれるブルーム軸の上昇が生ずる<sup>13)</sup>。リフトオフは heavy gas の場合にも生ずるが、これは浮力ではなく、大気境界層のシア応力によるものである<sup>14)</sup>。また、dense gas のブルーム軸は地形の影響も非常に強く受ける。地形スケールが放出体積のスケールよりも大きい場合、地形変化は局所的に斜面とみなすことが可能である。一方、地形スケールが放出体積のスケールに比べて小さいときには、ブルームは山越えもしくは迂回をするが、ともに後流中での希釈の割合が大きくなる。

## 2. 従来のボックスモデル<sup>7,15)</sup>

本章では、3章で使用するボックスモデルの従来の研究を簡単に説明する。

ボックスモデルは、ボックス内の濃度を均一としてボックス内へのガスの流出入とボックス内部での発生の収支により濃度を計算する。これを dense gas の瞬間放出の場合に適用する場合、半径  $R$  (m)、高さ  $H$  (m) の円柱形のボックスが一般的に用いられる。

・ガス雲の拡散速度

ガス雲の拡散速度  $U_f$  (m/s) はガス雲の重力によって支配され、次のように与えられる。

$$U_f = \frac{dR}{dt} = \alpha \sqrt{g'H} + \alpha_1 u_* \quad (1)$$

$g'$  は修正重力 (m/s<sup>2</sup>) であり次式で定義される。

$$g' = \frac{(\rho - \rho_a)}{\rho} \cdot g \quad (2)$$

ここで、 $t$ : 時間 (s)、 $g$ : 重力加速度 (m/s<sup>2</sup>)、 $\rho$ : ガスの平均密度 (kg/m<sup>3</sup>)、 $\rho_a$ : 大気密度 (kg/m<sup>3</sup>)、 $u_*$ : 摩擦速度 (m/s)、 $\alpha$ : 雲の拡散速度 ( $U_f$ ) に dense gas の重力の影響を補正する係数 (-)、 $\alpha_1$ : 雲の拡散速度 ( $U_f$ ) に地表面の影響を補正する係数 (-) である。

・ボックス内の質量変化

ボックス内のエントレインメントについては上面 (top)、側面 (side) からのエントレインメントがそれぞれ式 (1) で与えられた  $U_f$  に比例すると仮定し、上面からのエントレインメント速度を  $\beta U_f$ 、側面からのエントレインメント速度を  $\gamma U_f$  とおけば、ボックス内の質量変化は次のように与えられる。

$$\frac{dM_a}{dt} = \pi \beta \rho_a R^2 U_f + 2 \pi \gamma \rho_a R H U_f \quad (3)$$

ここで、 $M_a$ : 流入空気質量 (kg)、 $\beta$ : ボックス上面からのエントレインメント速度 ( $U_f$ ) を支配する係数 (-)、 $\gamma$ : ボックス側面からのエントレインメント速度 ( $U_f$ ) を支配する係数 (-) である。

・ボックス内の運動量変化

中立大気の場合、地表面近くの風速プロファイルは対数分布で表され、エントレインメント速度  $u_a$  (m/s) はボックスの中心高さの風速で代表されるとする。

$$u_a = \frac{u_*}{\kappa} \ln \left( \frac{0.5 H}{z_0} \right) \quad (4)$$

ボックス中心の移動速度  $u_t$  (m/s) は、エントレインメントによるボックス内への運動量の流入によってのみ加速されるとすれば、ボックスの水平方向の運動量変化は次式で与えられる。

$$\frac{dM u_t}{dt} = \xi \frac{dM_a}{dt} u_a \quad (5)$$

ただし、 $M$  はボックス全体の質量 (kg) である。

$$M = M_s + M_a \quad (6)$$

ここで、 $\kappa$ : カルマン定数 (=0.4)、 $z_0$ : 粗度長 (m)、 $\xi$ : 運動量のガス内への流入を補正する係数 (-)、 $M_s$ : 放出ガスの質量 (kg)、である。

・ボックス内の温度変化

ボックス内の温度変化については簡単な熱力学による熱収支モデルを用いる。空気のエントレインメントによる熱の流入速度を  $E_H$  (J/s)、地表面からの伝熱速度を  $G_H$  (J/s)、ボックスの熱容量を  $B_C$  (J/K) としてボックス内の温度変化は以下の式で与えられる。

$$\frac{dT}{dt} = \frac{E_H + G_H}{B_C} \quad (7)$$

ただし、 $E_H$ 、 $G_H$ 、および  $B_C$  は、次式で与えられる。

$$E_H = c_a \frac{dM_a}{dt} (T_a - T) \quad (8)$$

$$G_H = \pi R^2 k_q (T_g - T) \quad (9)$$

$$B_C = c_a M_a + c_s M_s \quad (10)$$

ここで、 $T$ : ボックス内部の平均温度 (K)、 $T_a$ : 大気温度 (K)、 $T_g$ : 地表面温度 (K)、 $c_a$ : 空気の比熱 (J/(kg·K))、 $c_s$ : ガスの比熱 (J/(kg·K))、 $k_q$ : 熱伝達率 (W/(m<sup>2</sup>·K)) である。

最後に、平均重量濃度  $C_m$  は

$$C_m = \frac{M_s}{M_s + M_a} \quad (11)$$

で算出し、平均体積濃度  $C_v$  は大気と放出ガスの平均モル重量  $mol_a$ 、 $mol_s$  を用いて、

$$C_v = \frac{mol_a \cdot C_m}{mol_s + (mol_a - mol_s) \cdot C_m} \quad (12)$$

から求められる。式 (1)、(3)、(5)、(7) を与えられた条件のもとで解くことによって、ガス雲の濃度、拡散速度、温度などが求められる。

## 3. 二層ボックスモデル

アンモニアや LNG のように低温で加圧貯蔵された物質が漏洩直後に常温の周辺大気にさらされた場合、液体は瞬間的にすべて気化しないで、一部は下層に液体のまま残っていると考えられる。ガス雲が気体と液体の混合体の場合でも、従来は2章で述べた一層のボックスモデルで計算していたが<sup>7-9)</sup>、本研究では、放出時の蒸発率とガスが気化するときの蒸発潜熱の影

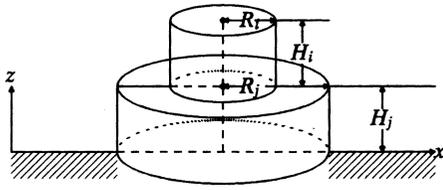


Fig. 1. Sketch of a two layer box model.

響が無視できないと考え、その影響を考慮して、2章で紹介した従来のボックスモデルを修正した二層ボックスモデルを構築することにした。

### 3.1 二層ボックスモデル

放出ガス量  $M_s$  (kg) を気体成分  $M_{si}$  (kg) と液体成分  $M_{sj}$  (kg) とに分類する。また、漏洩直後の dense gas を割合  $f_v$  ( $0 < f_v < 1$ ) だけが蒸発したと考える。従来のボックスモデルでは、 $M_s$  をボックスの全ガス量としたが、本研究では、従来のボックスを上層ボックスと下層ボックスの二層に分割した二層ボックスモデルを想定する。概念図を Fig. 1 に示す。上層ボックスの初期ガス量を  $M_{si}$ 、下層ボックスのそれを  $M_{sj}$  とおいてそれぞれを独立した別のボックスとして計算する。ここで、下層ボックスについては、液体成分は限りなく気体に近いミスト状を呈し、密度等の計算は気体同様にあつかった。以下では、添字  $i$  は上層ボックスの値を、添字  $j$  は下層ボックスの値を示す。

#### 3.1.1 質量変化

上層ボックスに対しては従来のボックスモデルの式と同様であるが、下層ボックスに対しては上面からの空気のエントレインメントがほぼなくなると考えられるので、側面からのエントレインメントのみを考慮する。

・上層ボックス

$$\frac{dM_{ai}}{dt} = \pi\beta\rho_a R_i^2 U_{fi} + 2\pi\gamma\rho_a R_i H_i U_{fi} \quad (13)$$

・下層ボックス

$$\frac{dM_{aj}}{dt} = 2\pi\gamma\rho_a R_j H_j U_{fj} \quad (14)$$

#### 3.1.2 運動量変化

上層ボックスおよび下層ボックスともに、運動量変化は、従来のボックスモデルの式と同様に表される。

・上層ボックス

$$\frac{dM_i u_{ti}}{dt} = \xi \frac{dM_{ai}}{dt} u_{ai} \quad (15)$$

・下層ボックス

$$\frac{dM_j u_{tj}}{dt} = \xi \frac{dM_{aj}}{dt} u_{aj} \quad (16)$$

#### 3.1.3 温度変化

上層ボックスと下層ボックスとの間で熱輸送を考えるには、顕熱と気化したガスの蒸発量を考慮しなければならない。顕微熱輸送  $Q$  および蒸発量  $E$  はそれぞれ次のように与えられる<sup>16)</sup>。

$$Q = -K_Q \frac{d\Theta}{dz} \quad (17)$$

$$E = \rho K_E \frac{dq}{dz} \quad (18)$$

ただし、鉛直方向下向きを正としている。ここで、 $\Theta$  は温度 (K)、 $q$  はガスの濃度 (ppm 又は%)、 $\rho$  はガスの密度 ( $\text{kg}/\text{m}^3$ )、 $K_Q$ 、 $K_E$  はそれぞれ顕熱、ガスの拡散係数 ( $\text{m}^2/\text{s}$ ) である。

地表面近くにミスト状の液体が存在しているという仮定のもとで、 $z_2$  に下層ボックスの高さを、 $\Theta_2$ 、 $q_2$  に上層ボックスの温度とガス濃度、 $\Theta_1$ 、 $q_1$  に下層ボックスの値を、そして、 $z_1$  に空気力学的粗度  $z_0$  の値とし、式

$$u_*^2 = K_U \frac{dU}{dz} \quad (19)$$

の関係を用いると、式 (17)、(18) は次のようになる。

$$Q = -u_*^2 K_n \frac{\Theta_2 - \Theta_1}{U_2 - U_1} \quad (20)$$

$$E = u_*^2 \rho K_e \frac{q_2 - q_1}{U_2 - U_1} \quad (21)$$

ここで、 $K_U$  は運動量の拡散係数 ( $\text{m}^2/\text{s}$ )、 $K_n = K_Q/K_U$ 、 $K_e = K_E/K_U$  である。

更に、地上付近の風速は近似的に対数分布になると仮定すると、

$$Q = -K_n \kappa u_* \frac{\Theta_2 - \Theta_1}{\ln\left(\frac{z_2}{z_1}\right)} \quad (22)$$

$$E = K_e \rho \kappa u_* \frac{q_2 - q_1}{\ln\left(\frac{z_2}{z_1}\right)} \quad (23)$$

と変形される。係数  $K_n$ 、 $K_e$  は大気が中立状態のときの値<sup>16)</sup> を参考にして 1 と仮定した。式 (23) のように、濃度差と高度差から蒸発速度を求めるモデルは Nappo<sup>17)</sup> にも紹介されている。

・上層ボックス

上層ボックスにおける空気のエントレインメントによる熱の流入速度を  $E_{hi}$ 、上下ボックス間の顕熱輸送を  $T_h$  として上層ボックスの温度変化は以下の式で与えられる。

$$\frac{dT_i}{dt} = \frac{E_{Hi} + T_H}{B_{Ci}} \quad (24)$$

ただし、 $T_H$ 、 $E_{Hi}$ 、および  $B_{Ci}$  は次式で与えられる。

$$T_H = Q \cdot S \quad (25)$$

$$E_{Hi} = c_a \frac{dM_{ai}}{dt} (T_a - T_i) \quad (26)$$

$$B_{Ci} = c_a M_{ai} + c_s M_{si} \quad (27)$$

ここで、 $B_{Ci}$  は上層ボックスの熱容量 (J/K)、 $S$  は上層ボックスと下層ボックスとの接触面積 ( $m^2$ ) である。

・下層ボックス

下層ボックスの温度変化は、上層ボックスの温度変化と同様であるが、これ以外に地表面からの伝熱速度  $G_{Hj}$  および放出されたガス中に含まれる液体成分が蒸発するときの気化熱  $E_L$  を含めて考察すれば、

$$\frac{dT_j}{dt} = \frac{E_{Hj} + G_H - T_H + E_L}{B_{Cj}} \quad (28)$$

と表される。

$E_{Hj}$ 、 $G_H$ 、および  $B_{Cj}$  は、従来のボックスモデルを参考にして次のように表される。

$$E_{Hj} = c_a \frac{dM_{aj}}{dt} (T_a - T_j) \quad (29)$$

$$G_H = \pi R_j^2 k_q (T_g - T_j) \quad (30)$$

$$B_{Cj} = c_a M_{aj} + c_s M_{sj} \quad (31)$$

次に、下層ボックスにおける気化熱  $E_L$  を検討する。

下層ボックスで蒸発したガスがすべて上層ボックスに移動すると仮定し、式 (23) を利用することにより

$$\frac{dM_{si}}{dt} = E \cdot S \quad (32)$$

あるいは、

$$\frac{dM_{sj}}{dt} = -E \cdot S \quad (33)$$

と示される。

ガスの気化熱を  $L_g$  (J/kg) とすると、蒸発による熱の移動速度  $E_L$  は、

$$E_L = \frac{dM_{sj}}{dt} \cdot L_g \quad (34)$$

と示すことができる。

以上の式を連立して適切な条件のもとに数値計算によって解くと風下距離  $x$  におけるボックスの平均質量、運動量、速度、温度などの物理量が求められる。

Table 1. Conditions for test calculation.

Spill material	CH <sub>4</sub>
Molecular Weight [kg/mol]	0.016
Heat capacity (vapor) [J/(kg · K)]	2200
Spill mass [kg]	2000
Spill temperature [K]	112
Ambient temperature [K]	293.16
Friction velocity: $u_*$ [m/s]	0.3
Roughness length: $z_0$ [m]	0.0001
Heat of vaporization: $L_g$ [J/kg]	520000
$k_q$ [W/(m <sup>2</sup> · K)]	20
$\alpha$	1.0
$\alpha_1$	1.0
$\beta$	0.09
$\gamma$	0.9
$\xi$	0.6
Vapor fraction: $f_v$	0.2
$K_h$	1
$K_e$	1

### 3.2 二層ボックスモデルの特性

Dense gas 漏洩時の蒸発の影響を考慮した二層ボックスモデルの特性について検討する。まず、モデルに含まれている各パラメータの感度解析を行う必要がある。Dense gas の拡散では、拡散係数が重要な役割を果たすことが報告されている<sup>6)</sup>。また、拡散係数  $K_h$  および  $K_e$  以外のパラメータについては、すでに報告されているので<sup>7,8,18)</sup>、本節では、拡散係数  $K_h$  および  $K_e$  についてのみ検討する。

放出ガスにメタン (CH<sub>4</sub>) を想定してシミュレーションを行った。メタンは、大気温度では比重は1以下である。Table 1 にメタン (CH<sub>4</sub>) を想定した計算の基本条件を記す<sup>19)</sup>。

本研究では、拡散係数  $K_h$  および  $K_e$  について検討した結果、パラメータの感度という面からみると  $K_h$  に対してかなり大きく変化をさせてもボックスの濃度、温度、高さ、半径等にほとんど影響が現れない。これは顕熱のフラックスの値がその他の温熱効果のフラックス、例えば、空気のエントレインメントによる寄与に比べて非常に小さいためである。それに対して  $K_e$  については、Fig. 2~Fig. 4 に示すように、濃度、半径、高さに影響が現れている。特に、下層ボックスの値に対してその効果が顕著な現れている。 $K_e$  が小さいほど気化する割合が減少し、ガス雲内に存在する液体成分の気化率が小さくなれば、当然下層は高濃度になることが予想され、モデルの計算は妥当な結果を示している。また、ボックスの高さの変化について特に

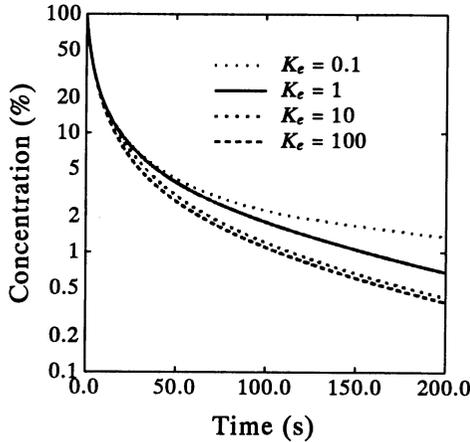


Fig. 2. The concentration change inside the lower box with time from the spill start (Effect of  $K_e$ ).

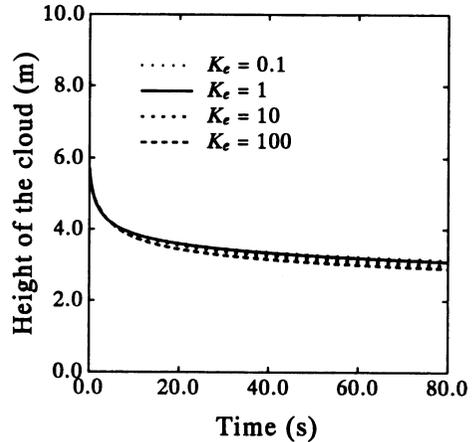


Fig. 4. The cylinder height change of the lower box with time from the spill start (Effect of  $K_e$ ).

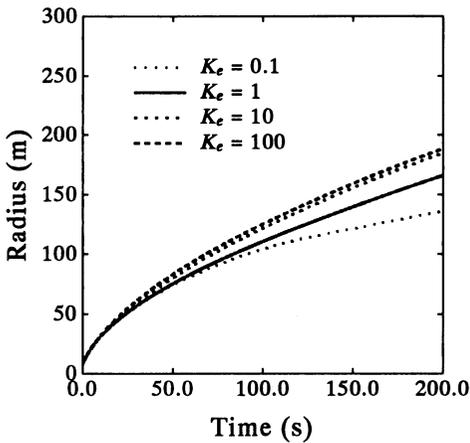


Fig. 3. The cylinder radius change of the lower box with time from the spill start (Effect of  $K_e$ ).

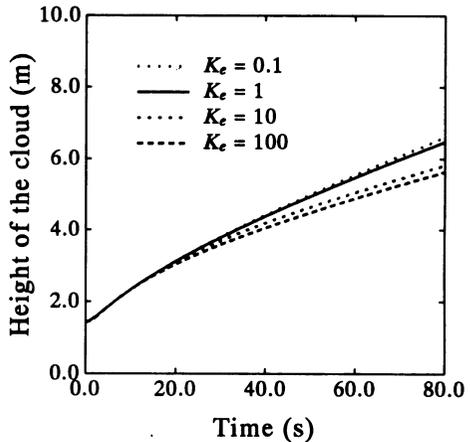


Fig. 5. The cylinder height change of the upper box with time from the spill start (Effect of  $K_e$ ).

注目すべきである。ガス雲の上層は空気のエントレインメントの効果が主となり、ボックスの高さは時間変化とともに高くなっていくことが Fig. 5 からわかる。また、ガス雲の下層については上層に比べて高密度、高濃度であるので、重力の影響による沈降現象が顕著であることが報告されている<sup>20)</sup>。計算結果の Fig. 4 を見ても放出初期に下層ボックスの高さは急激に低くなり、上述の報告と定性的に一致している。こうした点で、二層ボックスモデルはガス雲内の状況を十分代表していると考えられる。

ここでは図示しなかったが、アンモニア ( $\text{NH}_3$ ) を想定した場合の計算結果でも、全体的な傾向はメタン

を想定した場合と同様の結果となった。

#### 4. 非定常パフモデル

リスクアセスメントを行う上で dense gas 拡散の評価項目として平均濃度やピーク濃度の他に暴露時間が重要な位置を占める場合がある。特にアンモニアや塩素などの有毒ガス (toxic gas) を対象とする場合、暴露時間が直接人体に及ぼす影響を左右するため軽視することは出来ない。そこで、このような場合に対応すべく時間項を含んだ連続放出の非定常モデルを検討することにした<sup>9)</sup>。

4.1 非定常パフモデル

本モデルは、パフ（煙塊）の重ね合わせを基本とした。重ね合わせの理論は従来から研究されている理論<sup>8)</sup>とおなじである。本節では3章で述べた二層ボックスモデルを応用し、瞬間放出のボックスの重ね合わせにより、連続放出を再現することを試みた。ただし、本モデルの計算においては、一つのボックスが放出される時間間隔を十分小さくし、近似的に非定常モデルに利用できると考えた。

ある瞬間のガス放出量が  $m_s (= \rho \cdot q_s)$  (kg/s)、更に放出強度が一定であるとすれば、時間  $\Delta t$  に放出される dense gas の総量  $M_s$  は、

$$M_s = m_s \cdot \Delta t \tag{35}$$

である。式 (35) の  $M_s$  が瞬間放出された二層ボックスモデルの dense gas 総量に相当し1個の二層ボックスを形成すると仮定する。

ここで時間間隔  $\Delta t$  について次のように定義する。 $\Delta t$  の間に発生するガスにより半径および高さが  $R$  のボックスが形成されれば、次式が成立する。

$$q_s \Delta t = \pi R^3 \tag{36}$$

また、放出源付近のボックスの平均移動速度を  $u_m$  とし、 $\Delta t$  は次々に形成されるボックスが重ならないで放出源を通過する時間に等しいとすれば、 $\Delta t$  は次式のようになる。

$$\Delta t = \frac{2R}{u_m} \tag{37}$$

$u_m$  は、ボックスの初速度  $u_0$  と周辺大気の平均風速  $u_a$  との平均速度であるとする。

$$u_m = \frac{u_0 + u_a}{2} \tag{38}$$

式 (36), (37) より  $R$  を消去すれば、 $\Delta t$  は次式により求められる。

$$\Delta t = \sqrt{\frac{8q_s}{\pi u_m^3}} \tag{39}$$

放出時間  $t_s$  中に発生するボックスの個数  $N$  は

$$N = \frac{t_s}{\Delta t} \tag{40}$$

である。

3章で述べた二層ボックスモデルでは鉛直方向に關しては、簡単な濃度分布が存在している。そこで、三次元的な濃度分布の解を得るために従来通り水平方向、鉛直方向の濃度分布を与えることにした。まず、第  $k$  番目に放出されたボックスの濃度プロファイル  $\bar{C}_k(z)$  を次式のように与える。

$$\bar{C}_k(z) = \bar{C} \exp \left[ -\frac{\Gamma \left(1 + \frac{1}{1.5}\right)^{1.5} \cdot z^{1.5}}{H^{1.5}} \right] \tag{41}$$

ここで、 $\bar{C}$ 、 $\bar{H}$  は上層ボックスと下層ボックスを一つのパフとみたときのパフの仮想濃度と仮想高さである。本研究では、鉛直方向の濃度分布が上層ボックスの高さの1/10の点で上層ボックス濃度  $C_i$ 、下層ボックスの高さの1/10の点で下層ボックス濃度  $C_j$  であると仮定した場合の  $\bar{C}$ 、 $\bar{H}$  の値を用いることとする。これは、次節で述べる Desert Tortoise 計画<sup>9)</sup>のデータを用いて試行錯誤的に代表高さを決定したものである。更に、水平方向の濃度プロファイルを与えるために、第  $k$  番目に放出されたボックスの濃度分布  $C_k(x, y, z)$  を、

$$\begin{aligned} C_k(x, y, z) &= \bar{C} \exp \left[ -\frac{(x-x_t)^2}{R^2} \right] \exp \left[ -\frac{(y-y_t)^2}{R^2} \right] \\ &\times \exp \left[ -\frac{\Gamma \left(1 + \frac{1}{1.5}\right)^{1.5} \cdot z^{1.5}}{H^{1.5}} \right] \end{aligned} \tag{42}$$

とした。ここで、 $x_t$ 、 $y_t$  はボックス中心の位置、 $x$ 、 $y$ 、 $z$  は濃度の評価地点である。このモデルは、一般に Similarity-profile model などと呼ばれ、ボックスモデルと3次元数値モデルとの中間に位置するモデルである<sup>6,21)</sup>。式 (42) を評価時間中に発生するボックスの個数  $N$  だけ重ね合わせるにより、評価時刻  $t$ 、評価地点  $x$ 、 $y$ 、 $z$  における濃度  $C$  が求められる。

$$C(x, y, z, t) = \sum_{k=1}^N C_k(x, y, z) \tag{43}$$

4.2 モデルの検証と考察

本モデルの検証に用いた資料は、Desert Tortoise 計画<sup>9)</sup>のものである。本計画は1983年に U. S. Coast Guard と The Fertilizer Institute (TFI) との共同出資で Lawrence Livermore 国立研究所 (LNL) が Nevada Test Site (NTS) で実施したものである。実験の主目的は、加圧貯蔵されたアンモニアを放出させた場合に起こるフラッシュオフ現象を解明し、さらにガス雲の形状や組成、挙動を把握することであった。放出後に液滴のミストが生じることが確認され、大気中に放出された  $\text{NH}_3$  の約20%が気体であり、残りの約80%が液滴の状態で大気中に漂っていることが確認された<sup>4)</sup>。風下距離100mと800mでそれぞれ鉛直方向に3高度(1.0, 2.5, 6.0m)で測定を行う実験を気象データや放出量などを変えて4回行われた。

Table 2. Experimental conditions of Desert Tortoise Experiment.

Trial no.	Desert Tortoise			
	1	2	3	4
Spill material	NH <sub>3</sub>	NH <sub>3</sub>	NH <sub>3</sub>	NH <sub>3</sub>
Spill rate [kg/s]	81	117	133	108
Spill duration [s]	126	255	166	381
Spill temperature [K]	240	240	240	240
Ambient Temperature [K]	302	304	307	306
Friction velocity [m/s]	0.442	0.339	0.448	0.286
Pasquill stability category	D	D	D	E
Roughness length: 0.003 [m]				

Table 3. Values of estimated parameters.

Trial no.	Desert Tortoise			
	1	2	3	4
$\beta$	1.20	1.20	1.20	1.30
$\gamma$	1.20	1.20	1.20	1.30
$\xi$	0.40	0.75	0.50	0.90
$K_e$	1.00	1.00	1.00	1.00

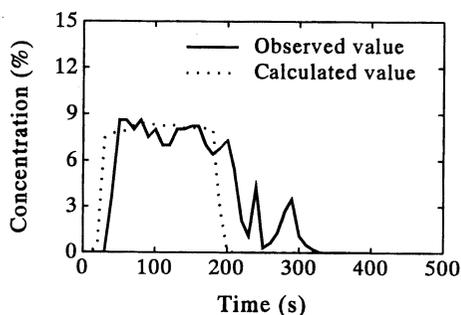


Fig. 6. Comparison between the observed value and the calculated value of the concentration change inside the cloud with time from the spill start.

Trial 3 100 m Row Height=1.0 m  $\beta, \gamma = 1.2$   $\xi=0.5$   $K_e=1$

まず、非定常モデルと実験データとの比較を行った。Desert Tortoiseの Trial 1, 2, 3, 4の 100 m, 800 mにおける濃度の経時変化について調べた。放出条件を Table 2に、その結果の一例として Trial 3の場合を Fig. 6~Fig. 8に示す。先に述べたように、Desert Tortoiseは NH<sub>3</sub>のフラッシュオフであり、放出初期のガスの性状は気体 20%、液体 80%の気液比で、さらに 10 倍の質量の空気を同伴するものと仮定した。

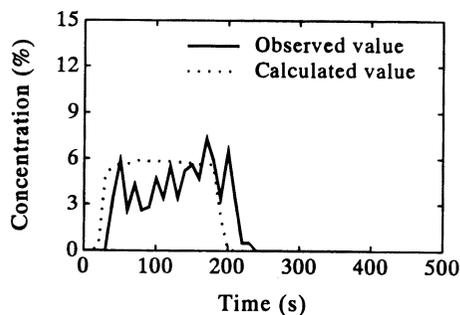


Fig. 7. Comparison between the observed value and the calculated value of the concentration change inside the cloud with time from the spill start.

Trial 3 100 m Row Height=2.5 m  $\beta, \gamma = 1.2$   $\xi=0.5$   $K_e=1$

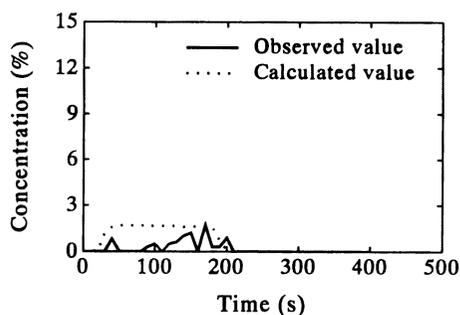


Fig. 8. Comparison between the observed value and the calculated value of the concentration change inside the cloud with time from the spill start.

Trial 3 100 m Row Height=6.0 m  $\beta, \gamma = 1.2$   $\xi=0.5$   $K_e=1$

また、本研究ではガス雲の初期速度は 0 m/sとした。パラメータ  $K_h$ に関しては、3.2で述べたように値の変化が小さいので、1とした。また、従来の研究<sup>9)</sup>から  $\alpha$ ,  $\alpha_1$ を 1,  $k_q$ を 15とし、更に、ボックスの上面と側面とからのエントレインメントの寄与は等しいと仮定して  $\beta=\gamma$ であるとし、各測定地点におけるピーク濃度が最適となるようにパラメータ ( $\beta, \gamma, \xi, K_e$ )を決定した。その結果を Table 3に示す。

Fig. 6~Fig. 8に示すように、風下距離 100 mでは地上高さ 1.0 m, 2.5 m, 6.0 mのピーク濃度および到着時刻の実測値との間に再現性の高い結果が得られた。これは、ボックスモデルを二層にした結果であると思われる。しかし、全体的に計算値のガス雲の離脱時刻が実測値に比べて早い時刻に現れている。この原

因の一つとして、実際の放出実験では、放出された液滴が沈降して地面に一度沈着した物質が蒸発し、再び流されたものが観測されたことなどが考えられる。しかし、本モデルでは、このような細かい点までモデル化されていないため、このような現象を予測することは困難であり、このレベルの精度が限界であると思われる。ただし、ガス雲の到着時刻と同様に、離脱時刻もリスクアセスメントを行う上で非常に重要な要素のひとつであるので、今後のモデル化で改良する必要があると考えている。

Trial 1, 2, 4についても Trial 3と同じ傾向にあり、ピーク濃度・到着時刻は再現性が高いものの、離脱時刻に関しては改良が必要な結果となった。

パラメータに関しては、 $\beta$ ,  $\gamma$ は Trial 1, 2, 3に対して1.2で、Trial 4は1.3とほぼ等しく、 $K_e$ はすべてのTrialで1であった。これは、今後、アセスメントを行う上で、これらのパラメータの値を参考にすることができ、dense gas漏洩時の予測モデルとして有効であると思われる。 $\xi$ は各Trialごとに差があり、Trial 1が0.4, Trial 2が0.75, Trial 3が0.5, Trial 4が0.9であり、風速等の気象条件などが関係すると思われる。パラメータ $\xi$ は今後、気象条件から予測するように改良すると、さらに本モデルの信頼性が高まるとと思われる。

次に、二層ボックスモデルの有効性について検討するため、従来のモデル<sup>9)</sup>と本モデルとの比較を行った。計算条件は Trial 2の条件を用い、従来モデルでは実験結果と試行錯誤的に適合させるようにパラメータを決定して $\beta=0.8$ ,  $\gamma=0.8$ ,  $\xi=0.4$ とし、本モデル

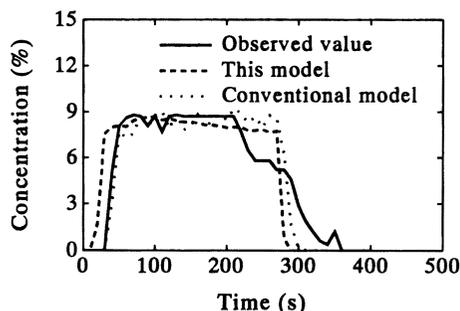


Fig. 9. Comparison between the observed value and the calculated value of the concentration change inside the cloud with time from the spill start.

Trial 2 100 m Row Height=1.0 m  
 This model:  $\beta$ ,  $\gamma=1.2$   $\xi=0.75$   $K_e=1$   
 Conventional model:  $\beta=0.8$   $\gamma=0.8$   $\xi=0.4$

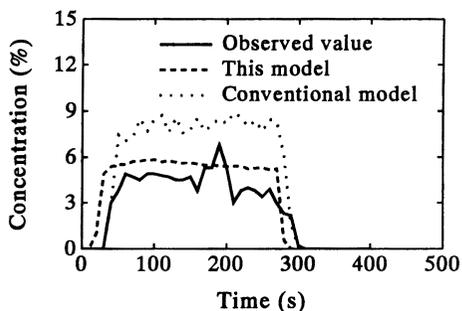


Fig. 10. Comparison between the observed value and the calculated value of the concentration change inside the cloud with time from the spill start.

Trial 2 100 m Row Height=2.5 m  
 This model:  $\beta$ ,  $\gamma=1.2$   $\xi=0.75$   $K_e=1$   
 Conventional model:  $\beta=0.8$   $\gamma=0.8$   $\xi=0.4$

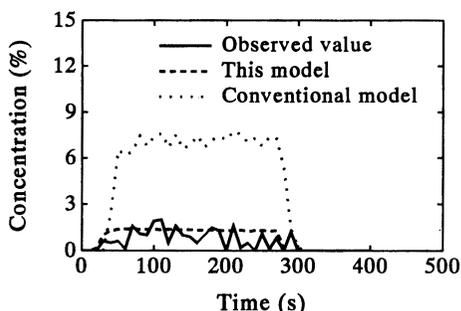


Fig. 11. Comparison between the observed value and the calculated value of the concentration change inside the cloud with time from the spill start.

Trial 2 100 m Row Height=6.0 m  
 This model:  $\beta$ ,  $\gamma=1.2$   $\xi=0.75$   $K_e=1$   
 Conventional model:  $\beta=0.8$   $\gamma=0.8$   $\xi=0.4$

では上述のとおり $\beta=\gamma=1.2$ ,  $\xi=0.75$ ,  $K_e=1$ とした。実測値と従来モデル、本モデル、それぞれの計算値を Fig. 9~Fig. 11に示す。Fig. 9と Fig. 10をみると、測定高さ1 m, 2.5 mのガス雲の立ち上がり時刻の実測値との整合性は、従来のモデルの方が少し良好である。これは、測定高さ1 mの実測値に対して、計算値が最適となるように試行錯誤的にパラメータを選定したためであると思われる。その他の点では図に示したとおり、本モデルでは、測定点の高さが高い場合にも再現性の高い結果が得られるようになった。これは、ボックスを二層に分割し、鉛直方向の濃度分布関数を修正した結果であろう。

## 5. おわりに

本研究では, dense gas の加圧放出時における濃度の時間変化に対して蒸発の影響を考慮した二層ボックスモデルを提唱した。加圧貯蔵物の瞬間放出に対して二層ボックスモデルを利用することによってガス雲の下層における重力の影響による沈降現象を従来のボックスモデルよりも現実的に示すことが可能になった。

また, dense gas の連続放出に対して, 瞬間放出のガス雲の重ね合わせに基づいて非定常モデルを作成した。濃度の経時変化に関する実験データ値と比較した結果, 濃度の到着時刻とピーク濃度について, 信頼性のあることが確認された。ただし, ガス雲の離脱時刻に関しては, 改良が必要であることが判明した。しかし, 従来のモデルとの比較・検討では, 測定点が高い場合にも再現性の高い結果が得られた。

(受稿 1995.9.26)

## 文 献

- 1) Smith M. P.; Ghoh S.: Bhopal gas tregedy: Model simulation of the dispersion scenario, *Journal of Hazardous Materials*, **17**, 23~46 (1987).
- 2) McQuaid J.; Roebuck B.: Large Scale Field Trials on Dense Vapour Dispersion, Commission of the European Communities, Luxembourg, Final rept., EUR-10029-EN (1985).
- 3) McRae T. G.; Cederwall R. T.; Ermal D. L.; Goldwire Jr., H. C.; Hipple D. L.; Johnson G. W.; Koopman R. P.; McClure J. W.; Morris L. K.: Eagle Series Data Report: 1983 Nitrogen Tetroxide Spills, Lawrence Livermore National Laboratory (1987).
- 4) Goldwire Jr., H. C.; McRae T. G.; Johnson G. W.; Hipple D. L.; Koopman R. P.; McClure J. W.; Morris L. K.; Cederwall R. T.: Desert Tortoise Series Data Report 1983 Pressurized Ammonia Spills, Lawrence Livermore National Laboratory (1985).
- 5) 岡本真一, 塩沢清茂: 高密度ガスの拡散予測について, *大気汚染学会誌*, **27**, 12~22 (1992).
- 6) Koopman R. P.; Ermak D. L.; Chan S. T.: A review of recent field tests and mathematical modeling of atmospheric dispersion of large spills of denser-than-air gases, *Atmos. Environ.*, **23**, 731~745 (1989).
- 7) 西田 薫, 高木興一, 平岩鉄也: Dense gas のリスクアセスメント手法に関する研究—Dense gas の瞬間放出による予測モデル—, *環境衛生工学研究*, **5**, 32~42 (1991).
- 8) 西田 薫, 高木興一, 平岩鉄也: Dense gas のリスクアセスメント手法に関する研究—Dense gas の連続放出による予測モデル—, 同上, **6**, 19~29 (1992).
- 9) 西田 薫, 高木興一, 山本浩平, 平岩鉄也: Dense gas のリスクアセスメント手法に関する研究—斜面上における dense gas 漏洩に対する濃度予測—, 同上, **7**, 6~13 (1993).
- 10) Puttock J. S.; Blackmore D. R.; Colenbrader G. W.: Field experiments on dense gas dispersion, *Journal of Hazardous Materials*, **6**, 13~41 (1982).
- 11) Bellasio R.; Tamponi M.: MDGP; A New Eulerian 3D Unsteady State Model For Heavy Gas Dispersion, *Atmospheric Environment*, **28**, 1633~1643 (1993).
- 12) Hunt J. C. R.; Rottman J. W.: Some physical processes involved in the dispersion of dense gases, *Atmospheric Dispersion of Heavy Gases and Small Particles*, 361~395 (1983).
- 13) Meroney R. N.: Lift off of buoyant gas instantly on the ground, *Journal of Industrial Aerodynamics*, **5**, 1~11 (1979).
- 14) Koopman R. P.; Cederwall R. T.: Analysis of Burro series 40 m<sup>3</sup> LNG spill experiments, *Journal of Hazardous Materials*, **6**, 43~83 (1982).
- 15) Chatwin P. C.: Towards a box model of all stages of heavy gas cloud dispersion, *Turbulence and diffusion in stable environments*, Ed. by J. C. R. Hunt, 259~291 (1985).
- 16) 竹内清秀, 近藤純正: 大気科学講座 1 地表に近い大気, 東京大学出版会, 89~93 (1981).
- 17) Nippo Jr C. J.: Parameterization of Surface Moisture and Evaporation Rate in a Planetary Boundary Layer Model, *Journal of Applied Meteorology*, **14**, 289~296 (1975).
- 18) Mohan M.; Panwar T. S.; Singh M. P.: Development of Dense Gas Dispersion Model for Emergency Preparedness, *Atmospheric Environment*, **29**, 2075~2087 (1995).
- 19) 日本化学会編: 化学便覧 応用編, 丸善株式会社, 592 (1973).

- 20) Kaiser G. D.; Walker B. C.: Releases of Anhydrous Ammonia from Pressurized Containers—The Importance of Denser-Than-Air Mixtures, *Atmospheric Environment*, **12**, 2289~2300 (1978).
- 21) Puttock J. S.: Dispersion of Dense Gas Vapour clouds in Contact with the Ground—Theory and Experiment, *Mathematics in Major Accident Risk Assessment*, Ed. by R. A. Cox, *Clarendon Press*, 145~170 (1989).

## Two-Layer Box Model for Dense Gas Spill Considering Evaporation Effect

Kaoru NISHIDA\*, Eiichirou ITO\*, Koichi TAKAGI\*, and Kouhei YAMAMOTO\*\*

\* Department of Environmental and Sanitary Engineering, Faculty of Engineering, Kyoto University,  
Yoshida-Honmachi, Sakyo-ku, Kyoto, 606, JAPAN

\*\* Institute of Atomic Energy, Gokasho, Uji, Kyoto, 611, JAPAN

The main purpose of this paper is to examine the phenomena when hazardous dense gases, such as ammonia gas and LNG, are spilled into the atmosphere from a pressurized storage tank. This study is useful to develop an accidental risk assessment method. The characteristic of gases released from the pressurized tank is a mixture cloud of gaseousness and droplets. In papers published in the past, the effect of evaporation of liquid droplets has never been examined. In this paper, we propose a two layer box model in order to predict a concentration considering this effect. This model is useful to estimate concentration of dense gas released instantaneously from a pressurized tank. Furthermore, for continuous dense gas spill, we calculated the average concentration at the downwind distance, treating the two layer box model like puff models. Also, we improved it to be able to predict the vertical concentration distribution, which was not estimated in the conventional model. The calculated result in this model generally corresponds well with the data of the Desert Tortoise Experiment.

**Key words:** risk assessment, dense gas spill, box model, atmospheric diffusion