

Badania eksperymentalne samozapłonu wodoru podczas jego uwolnienia do powietrza

Experimental investigation on hydrogen self-ignition process during its release into the air

Wojciech Rudy¹⁾, Andrzej Dąbkowski¹⁾, Rafał Porowski²⁾, Andrzej Teodorczyk¹⁾

1) Instytut Techniki Ciepłej, Politechnika Warszawska, ul. Nowowiejska 21/25, 00-665 Warszawa, PL

2) Centrum Naukowo-Badawcze Ochrony Przeciwpożarowej PIB, ul. Nadwiślańska 213, 05-420 Józefów, PL
Autor do korespondencji: tel.: (022) 769 32 31, e-mail: rporowski@cnbop.pl

Streszczenie: Ze względu na swoje unikalne właściwości, wodór jest postrzegany jako paliwo przyszłości. Szeroki zakres palności, ($4 \div 75$)% obj., wysoka wartość opałowa (120 MJ kg^{-1}) i niska energia zapłonu ($0,02 \text{ mJ}$) to właściwości, które wskazują na jego szerokie zastosowanie w energetyce i motoryzacji. Niestety właściwości wodoru nastrożają również problemy natury bezpieczeństwa. Zaobserwowano, że wodór jest w stanie zapalić się podczas jego nagłego uwolnienia bez wyraźnej obecności zewn. źródła zapłonu i w temperaturach poniżej temperatury samozapłonu. Po raz pierwszy zjawisko to zaobserwowano w latach 20-tych XX wieku, natomiast w latach 70-tych XX w. opisano proces „dyfuzyjnego zapłonu” wodoru podczas jego uwolnienia do utleniającej atmosfery. Niniejsza praca poświęcona jest badaniom eksperymentalnym nad samozapłonem wodoru podczas jego wysokociśnieniowego, $P = (2 \div 17) \text{ MPa}$, uwolnienia do powietrza. Podczas badań wykorzystano szybki układ akwizycji danych (częstotliwość próbkowania 200 kHz), czujniki ciśnienia, fotodiody oraz czujniki płomieni – sondy jonizacyjne. Wodór uwalniany był przez kanały o różnych średnicach $d = (6, 10 \text{ i } 14) \text{ mm}$ i długościach $L = (10, 25, 40, 50, 75, 100) \text{ mm}$. Wyniki badań wykazały, że zwiększając dwukrotnie długość kanału (z 50 mm do 100 mm) możliwe jest nawet 2-krotne zmniejszenie ciśnienia początkowego wodoru (odpowiednio z 8 MPa do $3,2 \text{ MPa}$) wymaganego do wystąpienia zapłonu. Ponadto wykazano, że w zakresie przebadanych ciśnień początkowych, poniżej pewnych długości kanału ($L \leq 25 \text{ mm}$) nie jest możliwe wystąpienie zapłonu.

Słowa kluczowe: samozapłon wodoru, struga wodoru

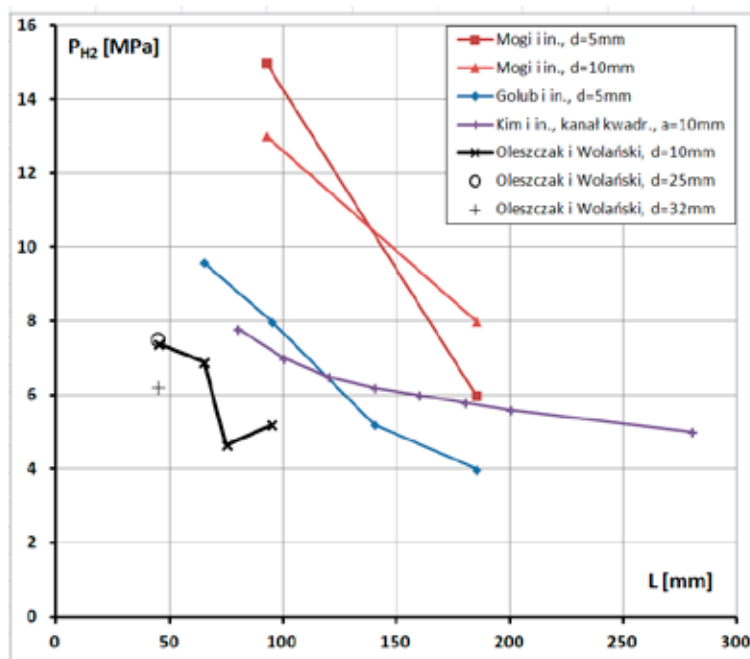
Keywords: hydrogen selfignition, hydrogen jet

1. Wstęp

Ze względu na swoje unikalne właściwości, wodór jest postrzegany jako paliwo przyszłości. Niestety właściwości wodoru nastrożają również problemy natury bezpieczeństwa. Zaobserwowano, że wodór jest w stanie zapalić się podczas jego nagłego uwolnienia bez obecności zewn. źródła zapłonu i w temperaturach początkowych poniżej temperatury samozapłonu. Po raz pierwszy proces ten zaobserwowano w latach 20-tych XX wieku [1-2], natomiast w latach 70-tych XX wieku [3] opisano proces „dyfuzyjnego zapłonu” wodoru podczas jego uwolnienia do utleniającej atmosfery. Wykazano, że zapłon strumienia wodoru jest możliwy na skutek dyfuzji do podgrzanego wstępnie przez generowaną falę uderzeniową utleniacza. W ostatnich latach obserwuje się wyraźne zainteresowanie zjawiskiem samozapłonu wodoru podczas jego uwolnienia do powietrza [3-17]. Prowadzone były badania zarówno eksperymentalne [3-13] jak i numeryczne [5,15-17] dla różnych: ciśnień początkowych wodoru, średnicy wypływu, kształtu przekroju poprzecznego i długości kanału przedłużającego. Zauważono, że prawdopodobieństwo wystąpienia zapłonu wodoru podczas jego wypływu wzrasta wraz z długością kanału przedłużającego [4-11]. Nie udało się jednak określić wpływu średnicy na prawdopodobieństwo zapłonu jakkolwiek zauważono, że dla takiego samego pola przekroju poprzecznego kanału, prawdopodobieństwo zapłonu jest większe dla przekroju kwadratowego niż dla kołowego [6]. W jednej z ostatnich prac [13] opisano badania z wizualizacją przepływu wodoru w kanale o długości 300 mm i przekroju

kwadratowym (bok 10 mm). Wykazano, że zapłon ma miejsce w warstwie mieszania się wodoru z powietrzem tuż przy ścianie kanału i strefa reakcji rozprzestrzenia się na całą powierzchnię mieszania się gazów. Ponadto zaobserwowano, że zapłon ma miejsce jeśli ciśnienie statyczne przy ścianie kanału jest równe co najmniej 2,3 MPa. Podobną wartość ciśnienia (2,5 MPa) określono przy pomocy symulacji numerycznych prowadzonych przez Goluba i in. [5].

Pomimo przytoczonych badań, wpływ parametrów geometrycznych i ciśnienia wodoru na występowanie zapłonu nie zostało jednoznacznie określone. Obrazem tych różnic jest rys. 1 przedstawiający wpływ geometrii (długość i kształt kanału przedłużającego) na ciśnienie początkowe wodoru wymagane do wystąpienia zapłonu. Prawdopodobną przyczyną tego stanu są różnice w budowie stanowisk badawczych i zastosowanych procedurach badawczych.



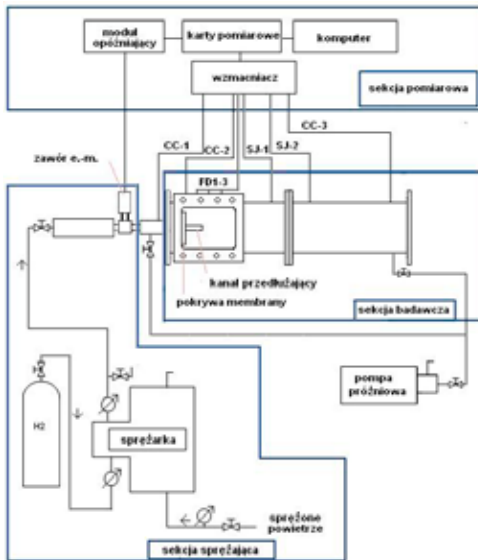
Rys. 1. Wpływ geometrii stanowiska na ciśnienie początkowe wodoru wymagane do wystąpienia zapłonu – dane literaturowe

Celem niżej opisanych badań było określenie wpływu geometrii wypływu (średnicy i długości kanału przedłużającego) na występowanie zapłonu wodoru wypływającego do powietrza. Badania przeprowadzono dla średnic: $d = (6, 10 \text{ i } 14) \text{ mm}$ oraz dla długości kanałów przedłużających: $L = (10, 25, 40, 50, 75 \text{ i } 100) \text{ mm}$.

2. Stanowisko badawcze

Badania zapłonu wodoru wypływającego do powietrza przeprowadzono w Instytucie Techniki Ciepłej Politechniki Warszawskiej na specjalnie w tym celu zbudowanym stanowisku badawczym (rys. 2). Stanowisko składało się z trzech głównych sekcji: badawczej, pomiarowej i sprężającej. Sekcja badawcza składała się z rury uderzeniowej o przekroju kwadratowym (0,1 m x 0,1 m x 1 m) wypełnionej powietrzem atmosferycznym. Sekcja pomiarowa składała się z komputera, zespołu kart pomiarowych (częstotliwość próbkowania 200 kHz), wzmacniacza sygnału, modułu opóźniającego, czujników ciśnienia, sond jonizacyjnych (czujników płomienia) oraz fotodiod. Sekcja sprężająca składała się ze sprężarki wodoru (napędzanej pneumatycznie), akumulatora ciśnienia i zaworu elektromagnetycznego. Sekcja sprężająca oddzielona była od sekcji badawczej membraną wykonaną z miedzi lub aluminium o różnych grubościach w zależności od ciśnienia początkowego wodoru.

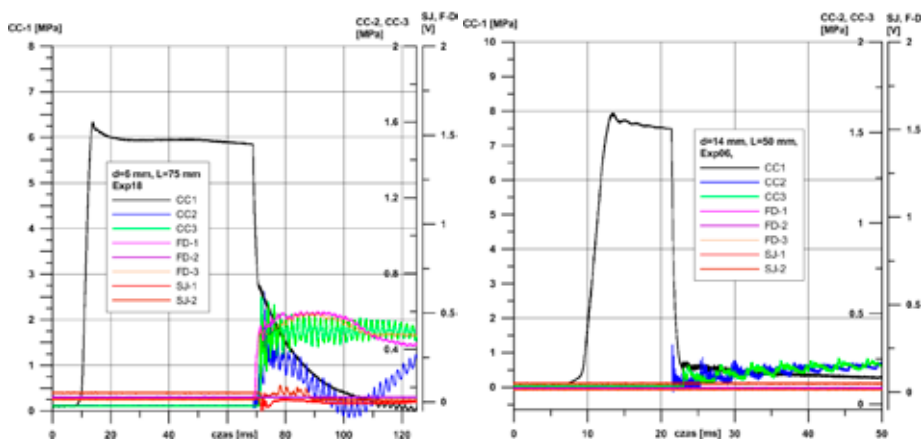
Pojedynczy eksperyment polegał na sprężeniu wodoru do zadanego ciśnienia w akumulatorze ciśnienia, następnie uruchomienie zaworu elektromagnetycznego otwierało przepływ do objętości przed membraną (o objętości ok. 30 cm³) jednocześnie wyzwalając układ kart pomiarowych. Maksymalne ciśnienie wskazywane przez czujnik ciśnienia umieszczony tuż przy membranie określało ciśnienie pęknięcia membrany. W zależności od ciśnienia pęknięcia membrany, średnicy wypływu i długości kanału następował zapłon lub nie.



Rys. 2. Schemat (lewy) i zdjęcie stanowiska badawczego (prawy)

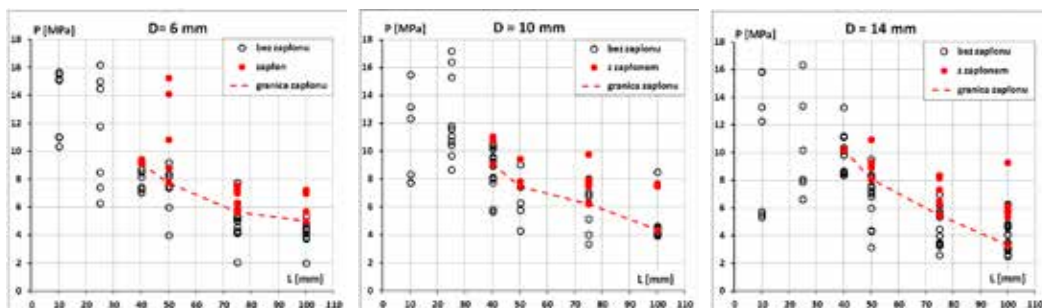
3. Wyniki badań

Łącznie przeprowadzono 255 eksperymentów dla średnic $d = (6, 10 \text{ i } 14)$ mm i kanałów przedłużających $L = (10, 25, 40, 50, 75 \text{ i } 100)$ mm. Przebadano zakres ciśnień $(2 \div 17)$ MPa. Przykładowe wskazania czujników dla przypadków z zapłonem i bez zapłonu przedstawiono na rys. 3. Dla przypadków z zapłonem wyraźnie zauważalny jest wzrost wartości wskazywanych przez czujniki ciśnienia umieszczonych w sekcji badawczej (CC-1 i CC-2). Oscylacje występujące na wskazaniach czujników są kolejno odbijającymi się od końca rury falami uderzeniowymi wygenerowanymi przez wypływ. Fotodiody umieszczone (FD-1, FD-2) przy wylocie z kanału przedłużającego również wskazują wyraźny sygnał natomiast sygnał z sond jonizacyjnych (SJ-1, SJ-2) umieszczonych w środkowej części rury uderzeniowej potwierdzają podtrzymanie spalania w dalszej części stanowiska badawczego.

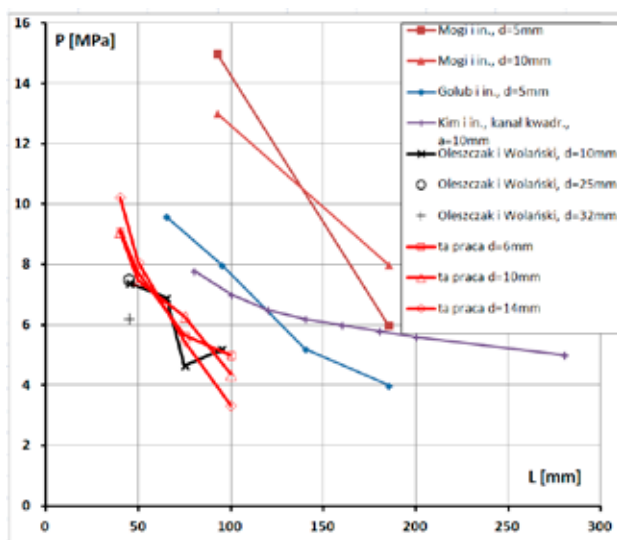


Rys. 3. Przykładowe wskazania czujników dla eksperymentu z (lewy) i bez zapłonu (prawy). CC – czujniki ciśnienia, FD – fotodiody, SJ – sondy jonizacyjne

Na bazie przeprowadzonych eksperymentów przeprowadzonych dla różnych ciśnień pęknięcia membrany, różnych średnic i długości kanału przedłużającego możliwe było przedstawienie granicy zapłonu jako funkcji tych parametrów. Wyniki przedstawiono na rys. 4. Wystąpienie zapłonu wykazuje pewnego rodzaju stochastyczny charakter gdyż od pewnej wartości ciśnienia zapłon może wystąpić ale nie musi, a wraz ze wzrostem ciśnienia prawdopodobieństwo zapłonu wzrasta. Podobny charakter zapłonu wykazano w poprzednich pracach [4-7,9-11]. Linia oznaczona na rys. 4. jako „granica zapłonu” łączy punkty o minimalnej wartości ciśnienia pęknięcia membrany dla którego wystąpił zapłon w danej konfiguracji geometrycznej. Najbardziej zauważalne jest, że wraz ze wzrostem długości kanału przedłużającego wzrasta prawdopodobieństwo wystąpienia zapłonu wpływającego wodoru. Przykładowo dla średnicy $d = 14$ mm i długości kanału $L = 40$ mm ciśnienie dla którego wystąpił zapłon wyniosło 10,2 MPa podczas gdy dla tej samej średnicy i długości $L = 100$ mm zapłon wystąpił już przy ciśnieniu równym 3,3 MPa. Jednocześnie wraz ze zmniejszaniem długości kanału ciśnienie wymagane do wystąpienia zapłonu wydaje się rosnać nieliniowo (brak zapłonu dla $L = 25$ mm i ciśnieniu do 16 MPa). Trend ten jest zgodny z wcześniej przytoczonymi pracami i jak wykazano w [13] zapłon ma miejsce w warstwie mieszania się wodoru z wstępnie podgrzanym przez wiodącą falę uderzeniową powietrzem tuż przy ścianie kanału. Im dłuższy kanał tym jest dłuższy czas mieszania się wodoru powietrzem, a tym samym tworzy się większa objętość mieszaniny w zakresie palności. Wpływ średnicy na występowanie zapłonu nie jest jednoznacznie określony jednak granica zapłonu wydaje się być coraz bardziej stroma wraz ze wzrostem średnicy wypływu. Otrzymane wyniki granic występowania zapłonu porównano z dostępnymi w literaturze. Porównanie to znajduje się na rys. 5. Wyniki badań dla poszczególnych prac wyraźnie grupują się w pewnych obszarach wykresu. Rozbieżności te wynikają z różnic w zastosowanych stanowiskach oraz procedurach badawczych jednak jakościowo są zgodne.



Rys. 4. Wyniki badań zapłonu strugi wodoru dla różnych długości kanałów przedłużających i różnych średnic wypływu



Rys. 5. Porównanie otrzymanych granic zapłonu z wynikami dostępnymi w literaturze

Pomimo przeprowadzonych eksperymentów konieczne są dalsze badania w celu określenia granicznych warunków wystąpienia zapłonu wodoru podczas jego nagłego uwolnienia do powietrza. Dalsze badania mogły by być prowadzone dla szerszego zakresu długości kanału przedłużającego, większych średnic wypływu oraz wyższych ciśnień początkowych (w przypadku krótszych kanałów).

Informacje o finansowaniu

Publikacja opracowana na podstawie wyników II etapu programu wieloletniego „Poprawa bezpieczeństwa i warunków pracy”, finansowanego w latach 2011-2013 w zakresie badań naukowych i prac rozwojowych ze środków Narodowego Centrum Badań i Rozwoju. Koordynator programu: Centralny Instytut Ochrony Pracy Państwowy Instytut Badawczy.

Literatura

- [1] Anon., *Spontaneous Ignition of Hydrogen*. Engineering, 113, April 21, 1922.
- [2] Fenning R.W., Cotton F.T., *Two Unexpected Hydrogen-Air Explosions*. Engineering 130, August 22nd 1930.
- [3] Wolanski P., Wojcicki S., Proc. Combust. Inst. 14 (1972) 1217-1223.
- [4] Golub V.V., Baklanov D.I., Bazhenova T.V., Bragin M.V., Golovastov S.V., Ivanov M.F., Volodin V.V., *Shock-induced ignition of hydrogen gas during accidental or technical opening of high-pressure tanks*. Journal of Loss Prevention in the Process Industries, **20**, 2007, pp. 439-446.
- [5] Golub V.V., Baklanov D.I., Golovastov S.V., Ivanov M.F., Laskin I.N., Savaliev A.S., Semin N.V., Volodin V.V., *Mechanisms of high-pressure hydrogen gas self-ignition in tubes*. Journal of Loss Prevention in the Process Industries, **21**, 2008, pp. 185-198.
- [6] Dryer F.L., Chaos M., Zhao Z., Stein J.N., Alpert J.Y., Homer C.J., *Spontaneous ignition of pressurized releases of hydrogen and natural gas into air*. Combustion Science and Technology, **179**, No. 4, 2007, pp. 663-694.
- [7] Mogi T., Kim D., Shiina H., Horiguchi S., *Self-ignition and explosion during discharge of high-pressure hydrogen*. Journal of Loss Prevention in the Process Industries, **21**, 2008, pp. 199-204.
- [8] Bazhenova T.V., Golub V.V., Laskin I.N., Semin N.V., *Prevention of hydrogen self-ignition at technical opening via replacement of one orifice by several smaller ones*. 22nd International Combustion Dynamics

- of Explosions and Reactive System, Minsk, Belarus, July 27-31, 2009.
- [9] Mogi T., Wada Y., Ogata Y., Hayashi A.K., *Self-ignition and flame propagation of high-pressure hydrogen jet during sudden discharge from a pipe*. International Journal of Hydrogen Energy, **34**, 2009, pp. 5810-5816.
- [10] Oleszczak P., Wolanski P., *Ignition during hydrogen release from high pressure into the atmosphere*. Shock Waves, **20**, 2010, pp. 539-550.
- [11] Lee H.J., Kim Y.R., Kim S.H., Jeung I.S., *Experimental investigation on the self-ignition of pressurized hydrogen released by the failure of a rupture disk through tubes*. Proceedings of the Combustion Institute, **33**, 2011, pp. 2351-2358.
- [12] Grune J., Kuznetsov M., Lelyakin A., Jordan T., *Spontaneous ignition process due to high-pressure hydrogen release in air*. Proceedings to the 4th International Conference of Hydrogen Safety, San Francisco, 2011, pp.132-7A3, USA.
- [13] Kim Y.R., Lee H.J., Kim S.H., Jeung I.S., *A flow visualization study on self-ignition of high pressure hydrogen gas released into a tube*. Proceedings of the Combustion Institute, **34**, 2013, pp. 2057-2064.
- [14] Rudy W., Dabkowski A., Teodorczyk A., *Investigation into the Ignition Process of Hydrogen Jet in Air*. Archivum Combustionis, **30**, No.1-2, 2010.
- [15] Wen J.X., Xu B.P., Tam V.H.Y., *Numerical study on spontaneous ignition of pressurized hydrogen release through a length of tube*. Combustion and Flame, **156**, No.11, 2009, pp. 2173-2189.
- [16] Bragin M.V., Molkov V.V., *Physics of spontaneous ignition of high-pressure hydrogen release and transition to jet fire*. International Journal of Hydrogen Energy, **36**, 2011, pp. 2589-2596.
- [17] Yamada E., Kitabayashi N., Koichi Hayashi A., Tsuboi N., *Mechanism of high-pressure hydrogen auto-ignition when spouting into air*. International Journal of Hydrogen Energy, **36**, 2011, pp. 2560-2566.