



高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波传播特性研究

周尚勇 罗振敏 邓军 孙谔 齐昊 罗传旭 郭康帅 王涛 苏彬 刘利涛

Study on propagation characteristics of shock waves during the leakage of a high-pressure hydrogen/methane mixture

ZHOU Shangyong, LUO Zhenmin, DENG Jun, SUN Xu, QI Hao, LUO Chuanxu, GUO Kangshuai, WANG Tao, SU Bin, LIU Litao

引用本文:

周尚勇, 罗振敏, 邓军, 孙谔, 齐昊, 罗传旭, 郭康帅, 王涛, 苏彬, 刘利涛. 高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波传播特性研究[J].

北科大: 工程科学学报, 2025, 47(8): 1742–1752. doi: 10.13374/j.issn2095–9389.2024.09.12.002

ZHOU Shangyong, LUO Zhenmin, DENG Jun, SUN Xu, QI Hao, LUO Chuanxu, GUO Kangshuai, WANG Tao, SU Bin, LIU Litao.

Study on propagation characteristics of shock waves during the leakage of a high–pressure hydrogen/methane mixture[J]. *Chinese*

Journal of Engineering, 2025, 47(8): 1742–1752. doi: 10.13374/j.issn2095–9389.2024.09.12.002

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.13374/j.issn2095–9389.2024.09.12.002>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于主动压力补偿的高压大尺寸主驱动密封与零泄漏特性研究

Sealing and zero leakage characteristics of a high–pressure large–sized main drive based on active pressure compensation

工程科学学报. 2025, 47(7): 1451 <https://doi.org/10.13374/j.issn2095–9389.2024.08.22.001>

CO15%CO₂混合气体还原碳化MoO₂制备Mo₂C的动力学机理分析

Kinetics and mechanism of the reductioncarburization processes of MoO₂ to Mo₂C with CO15% CO₂ mixed gases

工程科学学报. 2023, 45(4): 551 <https://doi.org/10.13374/j.issn2095–9389.2021.12.27.006>

C₂H₆、C₂H₄、CO与H₂对甲烷爆炸压力及动力学特性影响

Effect of C₂H₆、C₂H₄、CO and H₂ on the explosion pressure and kinetic characteristics of methane

工程科学学报. 2022, 44(3): 339 <https://doi.org/10.13374/j.issn2095–9389.2020.10.22.002>

离子液体对不粘煤煤粉自燃特性的影响

Effect of ionic liquid on the spontaneous combustion characteristics of noncaking pulverized coal

工程科学学报. 2022, 44(12): 2008 <https://doi.org/10.13374/j.issn2095–9389.2021.05.18.003>

甲烷干重整与二氧化碳甲烷化的工艺耦合研究

Study on process coupling between dry reforming of methane and methanation of carbon dioxide

工程科学学报. 2024, 46(11): 2110 <https://doi.org/10.13374/j.issn2095–9389.2024.01.26.003>

煤基活性炭改性及其甲烷吸附能力

Characteristic modification of coal–based activated carbon and its methane adsorption capacity

工程科学学报. 2022, 44(4): 526 <https://doi.org/10.13374/j.issn2095–9389.2021.03.18.002>

高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波传播特性研究

周尚勇¹⁾, 罗振敏^{1)✉}, 邓 军¹⁾, 孙 谔²⁾, 齐 昊¹⁾, 罗传旭¹⁾, 郭康帅¹⁾,
王 涛¹⁾, 苏 彬¹⁾, 刘利涛¹⁾

1) 西安科技大学安全科学与工程学院, 西安 710054 2) 北京恒安天诚科技有限公司, 北京 101200

✉通信作者, E-mail: zmluo@xust.edu.cn

摘 要 在以传统化石能源为主体到纯氢气大规模应用的过渡阶段, 氢气/甲烷混合气体作为氢能的重要载体, 是氢能应用体系的重要组成部分, 而高压氢气/甲烷混合气体泄漏自燃威胁着氢能的大规模安全应用. 另一方面, 在氢气中加入少量甲烷可以在一定程度上降低其自燃倾向, 从而提高氢能高压储存和运输的安全性. 泄漏过程中激波造成的局部区域温度急剧升高是引发氢气/甲烷混合气体自燃的直接原因, 也是决定自燃特性的关键因素. 为此, 本文聚焦高压氢气/甲烷混合气体泄漏过程中激波演化过程和特性参数, 基于改进高压可燃气体泄漏自燃实验系统开展实验研究. 实验结果显示: 爆破片破裂后首先在泄漏管道内形成前沿激波, 并且随着激波的传播, 前沿激波与氢气/甲烷混合气体主射流距离越来越大. 与此同时, 在矩形管道角落处产生反射激波, 最终在泄漏管道内形成复杂的多维反射激波. 泄漏压力增大, 激波压力和激波传播速度明显增大; 掺甲烷比例增大, 激波压力和激波传播速度明显减小. 基于激波管流动理论, 结合美国国家标准与技术研究院物性数据库构建了高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波特性参数计算模型. 通过文献数据和本文实验数据对比分析, 证实了优化后的激波特性参数计算模型在高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波特性参数计算中的适用性. 研究结果可为高压氢气/甲烷混合气体泄漏自燃现象提供理论依据以及为相关实验设计提供参考.

关键词 氢气/甲烷混合气体; 高压泄漏; 激波; 自燃; 理论计算

分类号 X932

Study on propagation characteristics of shock waves during the leakage of a high-pressure hydrogen/methane mixture

ZHOU Shangyong¹⁾, LUO Zhenmin^{1)✉}, DENG Jun¹⁾, SUN Xu²⁾, QI Hao¹⁾, LUO Chuanxu¹⁾, GUO Kangshuai¹⁾, WANG Tao¹⁾, SU Bin¹⁾,
LIU Litao¹⁾

1) School of Safety Science and Engineering, Xi'an University of Science and Technology, Xi'an 710054, China

2) Beijing Heng'an Tiancheng Technology Co., Ltd., Beijing 101200, China

✉Corresponding author, E-mail: zmluo@xust.edu.cn

ABSTRACT The transition from traditional fossil fuels to the widespread use of hydrogen energy marks a critical phase in energy evolution. Hydrogen/methane mixtures, serving as crucial carriers of hydrogen energy, play a key role in this process. However, the high risk of spontaneous ignition during high-pressure hydrogen leakage poses a significant safety challenge. Incorporating small amounts of methane into hydrogen can reduce this tendency, thereby enhancing the safety of high-pressure storage and transportation. Spontaneous ignition is triggered by abrupt localized temperature rises caused by shock waves during leakage; these shock waves are fundamental in determining the ignition characteristics of hydrogen/methane mixtures. Methane blending significantly changes shockwave behavior,

收稿日期: 2024-09-12

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (52174200, 52004208); 陕西省自然基础科学研究资助计划 (2025JC-YBQN-473, 2024JC-YBQN-0399); 陕西省教育厅专项科研计划资助项目 (24JK0554)

affecting their propagation, and the resulting temperature and pressure changes influence spontaneous ignition; however, the underlying mechanisms of these effects remain unclear. This paper focuses on the evolution and characteristics of shock waves in high-pressure hydrogen/methane mixture leakage using an improved experimental system for spontaneous ignition research. Experimental results indicate that upon bursting disc rupture, a leading shock wave forms in the discharge tube, and as the shock wave propagates, the distance between the leading shock wave and the main jet of the hydrogen/methane mixture gradually increases. Simultaneously, the shape discontinuity between the circular rupture and the rectangular discharge tube creates reflected shock waves at the corners, developing into complex multidimensional shock waves reflected within the discharge tube. Leakage pressure and methane blending ratio significantly impact shock wave characteristics. Higher leakage pressures increase shock wave pressure and propagation velocity, whereas greater methane blending ratios reduce them. Using shock tube flow theory and the physical property database of National Institute of Standards and Technology, a calculation model was developed to predict shock wave parameters during hydrogen/methane leaks. A comparative analysis with literature and experimental data confirmed the applicability of the optimized calculation model for shock wave characteristic parameters in high-pressure hydrogen/methane mixture discharge scenarios. Spontaneous ignition reactions within the rectangular tube influence internal pressure dynamics. When burst pressure is below the critical threshold for ignition, during the leakage process of high-pressure H_2/CH_4 mixture, the pressure at sensor P2 exceeds that at P3 during leakage. Conversely, when the pressure is far above this threshold, spontaneous ignition occurs within the rectangular tube and develops into intense combustion near P3, subsequently elevating the pressure at P3, manifesting as $P3 > P2$. At pressures slightly above the critical threshold, the pressure relationship between P2 and P3 depends on the methane ratio. These findings provide a theoretical foundation for understanding spontaneous ignition phenomena during hydrogen/methane leakage and serve as a reference for future experimental designs.

KEY WORDS hydrogen/methane mixture; high-pressure leakage; shock waves; spontaneous ignition; theoretical calculation

氢能是未来最有潜力的能源之一。“十四五”以来,我国氢能产业快速发展,《中共中央、国务院关于完整准确全面贯彻新发展理念做好碳达峰碳中和工作的意见》^[1]明确统筹推进氢能“制、储、输、用”全链条发展。2024年,氢能作为前沿新兴产业列入国务院政府工作报告^[2],再次强调了氢能产业在我国能源发展体系中的重要战略地位。然而,由于氢气对金属材料具有劣化作用^[3-4],加之其燃烧极限宽、燃烧速率快和最小点火能低^[5],导致富氢气体在高压储运的各个环节更容易发生泄漏和火灾爆炸事故^[6],富氢气体高压储运的安全问题亟待解决。

现有研究表明,无论是氢气还是甲烷,在高压状态下泄漏到狭窄空间中,都可能发生自燃现象,进而演化为燃爆事故^[7]。为此,学者们开展了大量研究工作,主要关注于泄漏管道的长度^[8-9]、管径^[10]、形状^[11]等管道条件对高压氢气泄漏自燃倾向性的影响规律,管道条件对自燃倾向性的作用规律已基本明晰,并达成共识^[12]。在自燃机理方面,目前一种被普遍接受的泄漏自燃机理是扩散点火机理,即在高压可燃气体泄漏至狭长管道的扩散过程中,不稳定性引起的燃料/空气混合层被激波引起的高温点燃^[13-14]。还有部分研究结果显示,在氢气中添加少量的甲烷,即可大幅度降低其自燃倾向性^[15],被视作一种提升氢能高压储运安全性的

有效方式^[16-17]。

上述研究结果均表明激波对高压可燃气体泄漏自燃有决定性的作用,这使得激波传播特性研究在高压可燃气体泄漏自燃的研究中显得尤为重要^[18-19]。为此,学者们利用高速纹影、高频压力传感器、数值模拟等方式获取了高压氢气泄漏过程激波的发育、演化特征^[20-22]。为更加快速的计算出激波特性参数,协助判断某工况下氢气自燃倾向性,段强领^[23],Gong等^[24]基于激波管流动理论建立了高压氢气泄漏激波特性参数计算模型,与实验数据的对比结果证实了所建立的计算模型在高压氢气泄漏过程中激波特性参数预测的有效性,但该计算模型仅适用于纯氢气的泄漏。

现有高压气体泄漏激波传播特性研究大多针对纯氢气,高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波的研究还鲜有报道。所建立的激波特性参数计算模型仅针对单一氢气的泄漏,无法满足氢气与甲烷混合后高压泄漏激波特性参数的计算需求,而且未考虑泄漏介质在高压下的物性参数变化,导致在储气压力高于一定数值后,计算结果误差较大。为此,本文聚焦高压氢气/甲烷混合气体泄漏后的激波传播速度,激波压力等激波特性参数,开展实验研究。然后基于激波管流动理论,构建高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波特性参数理论计算模型,为相关实验设计和自燃倾向性判断提供参考。

1 实验部分

1.1 实验装置

高压可燃气体泄漏自燃实验系统结构如图 1 所示(各配件名称见表 1),在真空子系统抽出高压储气罐及管路中的杂质气体后,供气系统向高压储气罐供应高压氢气/甲烷混合气体.当高压储气罐内压力达到爆破片破裂压力时,爆破片破裂,高压储气罐内的高压氢气/甲烷混合气体以超音速射流的形式传播至可视化泄漏管道和可视化防护箱.

可视化泄漏管道出口采用法兰连接可视化防护箱.可视化泄漏管道与可视化防护箱下设同步滑轨,便于爆破片的更换.实验气体为氢气和甲烷,燃烧后产物为水、二氧化碳等对环境无害的物质,且实验体量较小,为保证实验安全,可视化防护箱末端直接与大气联通.

供气子系统主要由真空泵、气瓶、高压管路、气体增压泵、高压气动阀等装置组成;气瓶为普通气瓶,配备标准减压阀;高压管路为直径 6 mm 标准 304 不锈钢圆管;气体增压泵为 MAXIMATOR

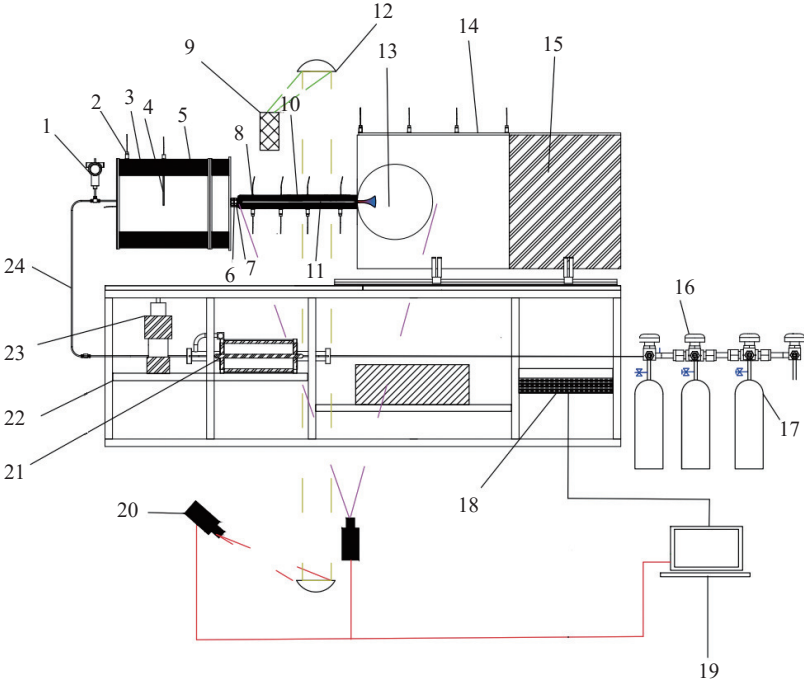


图 1 实验系统结构图

Fig.1 Schematic diagram of the experimental system

表 1 实验系统配置

Table 1 Experimental system configuration

No.	Components	No.	Components
1	Vacuum pump	2	Low frequency pressure sensor
3	Oil bath heating layer	4	Temperature sensor
5	High-pressure gas tank	6	Burst disc
7	Burst disc jacket	8	High frequency pressure sensor
9	Schlieren light	10	Release tube
11	Sapphire window	12	Schlieren reflector
13	Quartz glass window	14	Visual protective box
15	Muffler	16	Gas valve
17	Gas cylinder	18	Control chassis
19	Computer	20	High-speed camera
21	Gas booster pump	22	Experimental platform bracket
23	High-pressure pneumatic solenoid valve	24	High-pressure pipeline

公司 DLE 30-75-2 型增压泵; 高压储气罐为 1000 mL 容积, 承压能力大于 80 MPa 的圆柱形罐体; 爆破片直径为 10 mm, 设定破裂压力为 3 ~ 25 MPa; 可视化泄漏管道为矩形截面管道, 管道截面为 10 mm×10 mm 矩形, 长度为 300 mm. 前、后两面设置高透光蓝宝石视窗, 适用高速摄影、纹影测试. 可视化防护箱为 550 L 圆柱形容器, 材质为 304 不锈钢, 最大耐压 2 MPa, 前端连接泄漏管道, 后端直接联通大气; 控制子系统主要由控制软件、电路板、若干电磁阀组成, 可实现自动充气、自动切断、自动采集压力数据的功能; 瞬态压力采集系统主要包括高频压力采集卡(采集频率 1000 kHz)、高频压力传感器(PCB 传感器, 固有频率 500 kHz). 采用 Phantom 公司生产的 V411 型高速摄像机, 设置拍摄帧率为每秒 100000 帧, 分辨率为 1280×128 像素. 纹影光学测试系统为定制分体式纹影仪, 有效口径 300 mm.

1.2 实验方法

实验时环境温度为 20 ~ 25 ℃, 相对湿度为 40% ~ 60%, 实验前高压储气罐及高压管路真空度

为 1000 Pa, 可视化泄漏管道及可视化防护箱中为常温常压空气. 实验气体为市购氢气/甲烷混合气体, 掺甲烷比例设置为 0 ~ 20%, 其中掺甲烷比例定义为:

$$\alpha = \frac{V_{\text{CH}_4}}{V_{\text{H}_2} + V_{\text{CH}_4}} \quad (1)$$

其中: V_{H_2} 为氢气体积分数, V_{CH_4} 为甲烷体积分数. 具体实验步骤为: 首先根据表 2 中的实验工况选择合适的爆破片, 安装在爆破片夹持器上, 然后调试相关数据采集设备, 之后进行气密性验证. 将高压储气罐内压力抽至 30 kPa 以下, 等待 5 min, 如压升不超过 3 kPa, 则气密性良好; 在控制软件中设置目标压力、数据采集参数等实验条件, 启动实验, 并采集相关实验数据. 实验过程中采用纹影仪和瞬态压力传感器观测激波特征, 其中纹影仪可获取泄放过程激波形态演化特征, 瞬态压力传感器可测试激波压力, 进而量化表征激波强度. 实验完成后首先用 N_2 吹扫管路 3 min, 然后用空气吹扫管路 5 min 以置换管路中的 N_2 , 保存实验数据后开展下一组实验.

表 2 实验工况

Table 2 Experimental conditions

No.	CH ₄ concentration/%	Design rupture pressure/MPa	Actual rupture pressure/MPa	No.	CH ₄ concentration/%	Design rupture pressure/MPa	Actual rupture pressure/MPa
1	5	5	5.28	13	10	17	17.98
2	5	7	7.31	14	15	11	10.97
3	5	9	9.93	15	15	13	12.67
4	5	11	11.38	16	15	15	14.71
5	5	13	13.85	17	15	17	17.23
6	5	15	15.97	18	15	19	18.60
7	10	7	7.66	19	20	15	14.67
8	10	9	9.79	20	20	19	19.13
9	10	11	10.32	21	20	21	21.19
10	10	11	11.41	22	20	23	22.34
11	10	13	13.54	23	20	25	25.61
12	10	15	15.86				

2 实验结果讨论

2.1 高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波结构演化特征

由于所有实验均在同一泄漏管道中完成, 不同掺甲烷比例、泄漏压力下激波结构演化特征类似, 本节以泄漏压力为 11.41 MPa 的 90% 氢气/10% 甲烷混合气体泄漏到管道中的纹影图像为例

(图 2), 分析高压氢气/甲烷混合气体泄漏到矩形管道内的激波结构演化特征. 图 2 中亮区为常压空气, 暗区为高密度氢气/甲烷混合气体, 60 μs 之后, 暗区和亮区之间出现明显的黑色纹理为激波压缩空气形成的高密度空气.

在泄漏管道上方均匀布置四个高频压力传感器(P1 ~ P4), 相邻传感器之间的间隔为 100 mm,

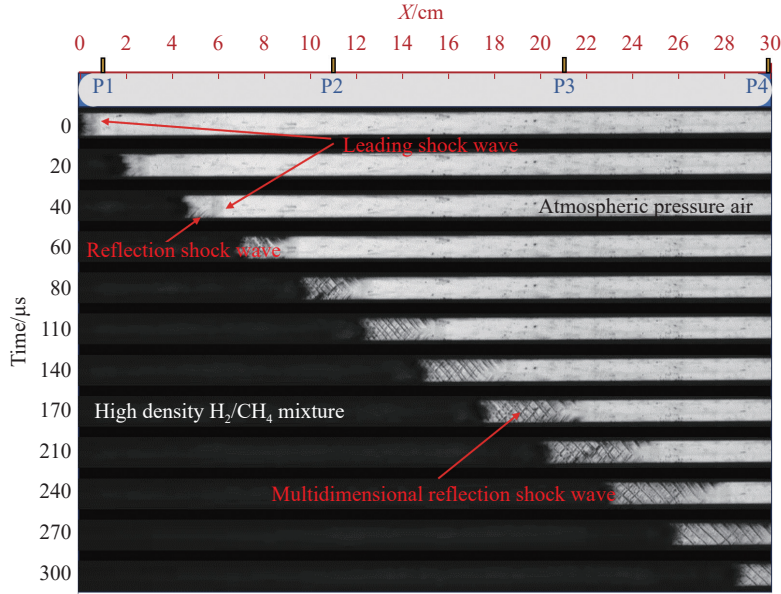


图 2 泄漏管道内纹影图像 (11.41 MPa, 90% H₂/10% CH₄)

Fig.2 Schlieren images inside the tube (11.41 MPa, 90% H₂/10% CH₄)

定义 P1 处压力传感器监测到压力发生明显变化的时刻为 0 μs. 爆破片破裂后, 由于压力波传播速度大于氢气/甲烷混合气体射流速度, 在 0 μs 时, 氢气/甲烷混合气体仅扩散极少部分至泄漏管道, 但压力对空气的压缩已致使一定范围内空气密度增大, 进而在泄漏管道入口处出现灰色的阴影. 随着压力波的叠加, 在射流前沿形成了明显的前沿激波 (灰色阴影区域与光亮区域出现的较为明显的分界线). 与此同时, 大量的氢气/甲烷混合气体扩散至泄漏管道内, 导致纹影图像中出现大面积的黑色区域. 由于爆破片为圆形破口, 破裂后首先形成半球形激波, 激波撞击管道壁面, 在管角处形成反射激波, 随着激波的发展, 最终在管道内形成复杂的多维反射激波. 由于激波传播速度大于氢气/甲烷射流的传播速度, 前沿激波与氢气/甲烷混合气体射流区的距离不断增大.

图 3 是泄漏压力为 11.41 MPa 的 90% 氢气/10% 甲烷混合气体泄漏时, 泄漏管道内不同位置的压力曲线. 如图 3 所示, 当激波抵达压力测点后, 该压力测点的压力曲线急剧上升至峰值, 之后短暂下降并维持在一个较为稳定的压力. 结合图 2 激波的演化形态分析, 压力曲线的第一个峰值为激波压力, 图 3 可以看出, 该工况下 P1、P2、P3、P4 所监测到的激波压力峰值分别为 1.77、2.10、2.09、2.15 MPa. 在泄漏管道末端, 由于矩形管道转圆形管道的结构变化引起的激波多次反射, 造成了 P4 测点处压力曲线的大幅波动. 根据相邻传感器监测到压力骤然上升时的时间差以及两传感器间

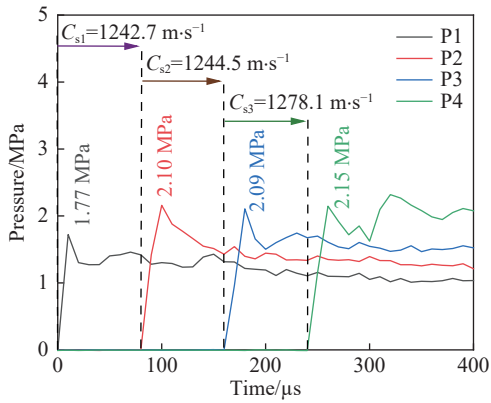


图 3 泄漏管道内压力演化曲线 (11.41 MPa, 90% H₂/10% CH₄)

Fig.3 Pressure curves inside the tube (11.41 MPa, 90% H₂/10% CH₄)

的距离, 可计算出激波传播速度. 计算后得到 P1—P2、P2—P3、P3—P4 间的激波传播速度 C_s 分别为 1242.7、1244.5、1278.1 m·s⁻¹, 而 P1—P4 间的激波平均传播速度为 1255.1 m·s⁻¹, 表明在 300 mm 的长度内, 泄漏管道内激波传播速度无明显的变化, 基本维持匀速传播. 因此, 后文中仅分析不同工况下激波在管道中的平均传播速度, 不再讨论管道内不同位置处的激波传播速度.

2.2 高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波特性参数

定义发生自燃的最低泄放压力为自燃临界压力, 在高压氢气中掺混甲烷后, 自燃临界压力将一定程度的提高, 并且随着 CH₄ 掺混比例的增大, 自燃临界压力明显升高. 因此, 为提高实验效率和节约实验成本, 在较高甲烷掺混比例的实验中所设置的初始泄放压力也随之增高. 图 4 展示了不同

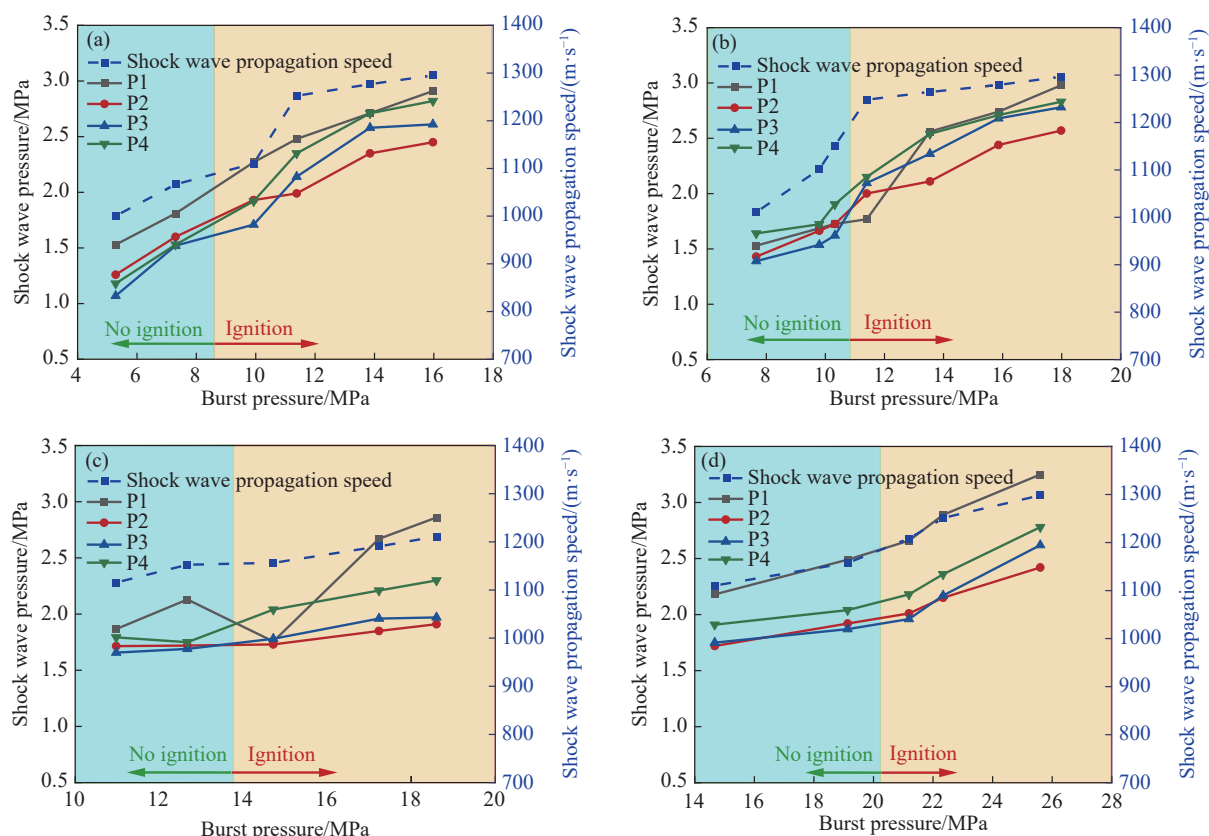


图4 高压 H₂/CH₄ 混合气体泄漏激波压力及激波传播速度. (a) 95% H₂/5% CH₄; (b) 90% H₂/10% CH₄; (c) 85% H₂/15% CH₄; (d) 80% H₂/20% CH₄

Fig.4 Shock wave pressure and propagation velocity during high-pressure H₂/CH₄ leakage: (a) 95% H₂/5% CH₄; (b) 90% H₂/10% CH₄; (c) 85% H₂/15% CH₄; (d) 80% H₂/20% CH₄

掺甲烷比例的氢气/甲烷混合气体在不同泄漏压力下矩形管道中 P1、P2、P3、P4 处的激波压力以及管道内激波平均传播速度, 其中蓝色的区域代表在该泄放压力范围内未发生自燃, 而黄色的区域代表在该泄放压力范围内发生自燃, 蓝色区域与黄色区域分界处的泄放压力即为自燃临界泄放压力. 如图 4 所示, 泄漏过程中激波压力、激波平均传播速度均与泄漏压力正相关. 在同等压力条件下, 随着掺甲烷比例的增大, 激波压力和激波平均传播速度均有所降低. 泄漏管道内不同压力测点所测压力峰值整体上呈现如下规律: 当管道内未发生自燃时, 管道内不同位置的激波压力关系为 P2>P3; 当管道内发生自燃时管道内不同位置的激波压力关系呈现为 P3>P2. 而 P1 和 P4 处的激波压力大小则无明显的规律.

一般情况下, 随着激波向下游传播, 激波将逐渐衰减, 导致激波压力逐渐减小, 但由于管道内发生自燃反应和复杂的激波反射, 导致实验中测试结果并不严格遵循 P1>P2>P3>P4 的大小关系. 具体而言, P1 处激波压力衰减最小, 但由于 P4 传感器布置在矩形管道的末端, 紧贴结构突变位置, 且

激波最大传播速度超过 1000 m·s⁻¹, P4 压力传感器在感受到前沿激波后, 隔膜开始发生变形, 在变形过程中, 来自于结构突变位置的反射激波同时作用于隔膜上, 导致隔膜继续变形. 由于前沿激波和反射激波对压力传感器隔膜的叠加作用, 导致 P4 处所测激波压力较大. 因此在不同工况下的泄放实验中, P1、P4 处的激波压力大小并未表现出明显的规律. 而 P2、P3 处的压力大小关系则取决于管道内的燃烧情况. 当泄漏压力低于自燃临界泄漏压力时, 管道内未发生自燃反应, 由于激波在传播过程中的衰减效应, 表现出 P2>P3 的趋势. 当泄漏压力远大于自燃临界泄漏压力时, 管道内发生自燃, 并在 P3 附近发展为剧烈燃烧, 进而提高了 P3 处的压力, 体现为 P3>P2. 当泄漏压力略微高于自燃临界压力时, 在不同掺甲烷比例的氢气/甲烷混合气体泄漏过程中, 管道内 P2、P3 的激波压力无明显的规律性. 即掺甲烷比例为 5% 和 20% 的氢气/甲烷混合气体泄漏时, P2>P3, 而掺甲烷比例为 10% 和 15% 的氢气/甲烷混合气体泄漏时, P3>P2. 这主要由两种情况所造成的, 其一是当泄漏压力略微高于自燃临界压力时, 尤其是在掺甲烷比例

过高的情况下, 管道内虽出现自燃, 但火焰很快被淬灭, 所导致压力上升并不明显, 表现为 $P_2 > P_3$. 其二是当氢气/甲烷混合气体以氢气为主时, 随着掺甲烷比例的增大, 剧烈燃烧时所导致的压力上升更为明显^[25], 表现为 $P_3 > P_2$.

3 高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波特性参数理论计算模型

3.1 高压二元气体泄漏激波特性参数计算方法

激波在对高压可燃气体泄漏自燃有决定性的作用, 为此段强领等^[23]基于激波管流动理论^[26]计算了高压氢气泄漏过程中的激波马赫数. 首先根据式(2)计算该工况下激波马赫数.

$$\frac{P_h}{P_l} = \frac{2\gamma_l M_S^2 - (\gamma_l - 1)}{\gamma_l + 1} \left[1 - \frac{\gamma_h - 1}{\gamma_l + 1} \frac{a_l}{a_h} \left(M_S - \frac{1}{M_S} \right) \right]^{-2\gamma_h/(\gamma_h - 1)} \quad (2)$$

式中: P_h 、 P_l 为高压区和低压区的初始压力, M_S 为激波马赫数, γ_h 、 γ_l 分别为高压区和低压区的气体绝热指数, a_h 、 a_l 分别为高压区和低压区的当地声速. 将激波马赫数代入式(3)~(5)后可得激波作用后的温度(T_u)、压力(P_u)和密度(ρ_u).

$$\frac{P_u}{P_l} = \frac{2\gamma_l}{1 + \gamma_l} M_S^2 - \frac{\gamma_l - 1}{\gamma_l + 1} \quad (3)$$

$$\frac{\rho_u}{\rho_l} = \frac{(\gamma_l + 1) M_S^2}{(\gamma_l - 1) M_S^2 + 2} \quad (4)$$

$$\frac{T_u}{T_l} = \frac{[2\gamma_l M_S^2 - (\gamma_l - 1)] [(\gamma_l - 1) M_S^2 + 2]}{(\gamma_l + 1)^2 M_S^2} \quad (5)$$

然而, 上述理论计算方法仅适用于单一组分气体, 且将泄漏气体视为完全量热气体, 但实际情况中高压氢气/甲烷混合气体的绝热指数、当地声速等物性参数将发生显著变化.

绝热指数主要依赖于气体分子的运动方式和分子间相互作用, 对于二元气体混合气体, 其混合气体绝热指数可表示为:

$$\gamma_m = 1 + \frac{1}{\sum \frac{x_i}{\gamma_i - 1}} \quad (6)$$

其中: x_i 为组分 i 的占比, γ_i 为组分 i 的绝热指数, γ_m 为混合气体绝热指数. 混合气体当地声速可表示为:

$$a_m = \sqrt{\sum x_i a_i^2} \quad (7)$$

$$W_m = \sum x_i W_i \quad (8)$$

其中: a_i 为组分 i 的当地声速, a_m 为混合气体当地

声速, W_m 为混合气体的相对分子质量, W_i 为 i 组分的相对分子质量.

将式(6)、(7)所计算得到混合气体的绝热指数和地声速代入式(2)即可计算高压二元混合气体泄漏激波马赫数, 进一步的, 将激波马赫数代入式(3)~(5)即可获得激波作用后的压力、密度和温度.

3.2 基于 NIST 物性数据库的物性参数修正

对于理想气体, 气体绝热指数只与气体分子运动方式和分子间作用有关, 为简化计算, 在低压环境中, 可将绝热指数按常数处理. 但在高压环境下, 气体的分子间运动方式发生显著改变, 则不得不考虑环境压力对绝热指数的影响. 另一方面, 较高的环境压力将造成气体密度的显著变化, 进而大幅度改变当地声速. 因此, 针对高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波特性计算, 不得不考虑储气压力对绝热指数及当地声速的影响. 本节以美国国家标准与技术研究院物性数据库^[27](National Institute of Standards and Technology, NIST)提供的不同压力下氢气、甲烷的绝热指数和当地声速实测值为基础, 获得压力对绝热指数和当地声速的影响规律, 进一步地修正激波特性参数计算模型.

(1) 高压区气体绝热指数的修正(300 K).

图 5(a) 是温度为 300 K 时, 1 ~ 70 MPa 压力范围内氢气、甲烷的绝热指数. 从图中可以看出, 随着压力的增大, 氢气的绝热指数增大, 但当压力超过 30 MPa 后, 绝热指数开始下降. 二次多项式拟合可较好地描述温度 300 K 时, 1 ~ 70 MPa 压力范围内, 氢气绝热指数与压力之间的关系(式(9)).

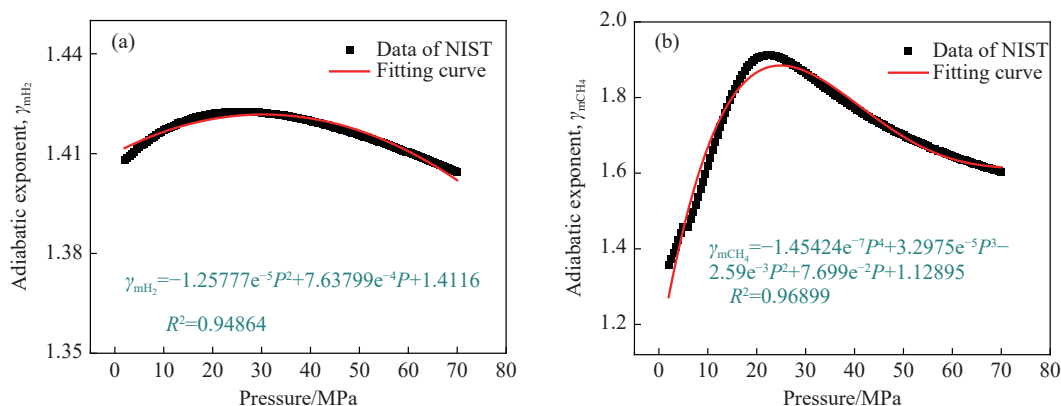
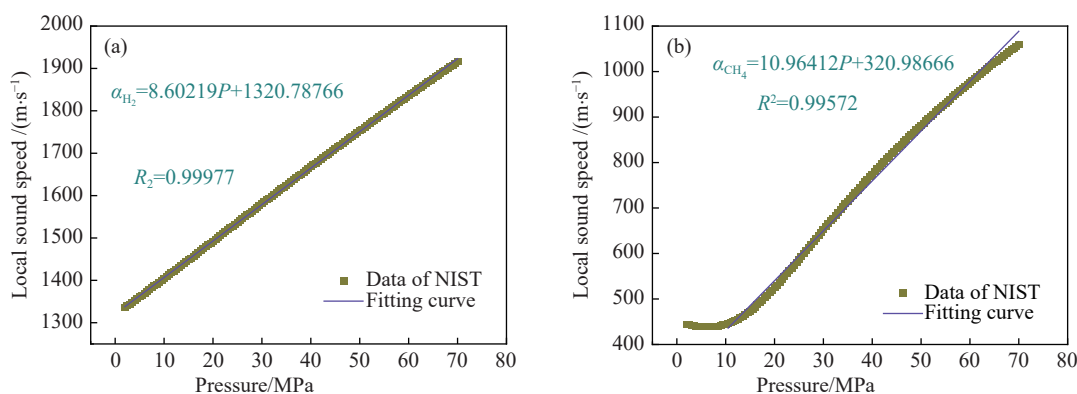
$$\gamma_{mH_2} = -1.25777e^{-5} P^2 + 7.63799e^{-4} P + 1.4116 \quad (9)$$

与氢气绝热指数随压力的变化趋势相似, 随着压力的升高, 甲烷绝热指数呈现先增大后降低的趋势(图 5(b)), 但相对氢气而言, 甲烷绝热指数受压力影响较大. 其绝热指数与压力之间的关系可由四阶多项式描述(式(10)).

$$\gamma_{mCH_4} = -1.45424e^{-7} P^4 + 3.2975e^{-5} P^3 - 2.59e^{-3} P^2 + 7.699e^{-2} P + 1.12895 \quad (10)$$

(2) 高压区气体当地声速的修正(300 K).

图 6 是温度为 300 K 时, 1 ~ 70 MPa 压力范围内氢气、甲烷的当地声速. 从图中可以看出, 压力对氢气的当地声速有显著影响, 随着压力的增大, 氢气的当地声速呈线性增长, 一次函数即可较好地描述温度为 300 K 时, 1 ~ 70 MPa 压力范围内, 氢气当地声速与压力之间的关系(式(11)).

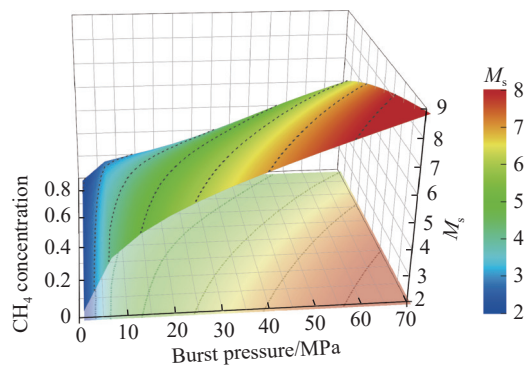
图5 H₂ 以及 CH₄ 绝热指数与压力的关系 (300 K). (a) H₂; (b) CH₄Fig.5 Relationship between adiabatic index of H₂ and CH₄ with ambient pressure (300 K): (a) H₂; (b) CH₄图6 H₂ 以及 CH₄ 当地声速与压力间的关系(300 K). (a) H₂; (b) CH₄Fig.6 Relationship between the local sound speed of H₂ and CH₄ with ambient pressure (300 K): (a) H₂; (b) CH₄

$$a_{mH_2} = 8.60219P + 1320.78766 \quad (11)$$

如图6(b)所示, 在1~10 MPa的压力范围内, 甲烷当地声速无明显变化; 在10~70 MPa的压力范围内随着压力的升高, 甲烷当地声速呈线性增长. 其当地声速与压力之间的关系可由分段函数描述式(12).

$$a_{mCH_4} = \begin{cases} 10.96412P + 320.98666 & P > 10 \\ 439.2 & 1 < P \leq 10 \end{cases} \quad (12)$$

将图5、图6中不同工况下氢气、甲烷的绝热指数和当地声速代入式(6)、(7)计算混合气体的绝热指数和当地声速. 然后再代入式(2)计算出压力为1~70 MPa、掺甲烷比例为0~90%范围内的高压氢气/甲烷混合气体泄漏的激波马赫数(图7). 如图7所示, 压力的升高将导致激波马赫数的明显升高, 而随着掺甲烷比例的增大, 激波马赫数明显降低. 在氢气中掺入甲烷, 将大幅降低泄漏时产生的激波强度, 进一步降低其泄漏自燃概率. 将图7中的激波马赫数代入式(3)、(4)中计算得到不同掺甲烷比例和不同泄漏压力下激波压力及其作用

图7 不同工况下 H₂/CH₄ 混合气体泄漏激波马赫数Fig.7 Shock wave Mach number during H₂/CH₄ mixture leakage under different conditions

后温度(图8).

3.3 高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波特性参数计算模型验证

为了更加全面客观的验证所建立的高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波特性参数计算模型的适用性, 分别利用已发表文献数据^[21]和本文实验数据对比传统理论模型计算结果和本文修正后理论模型的计算结果(图9).

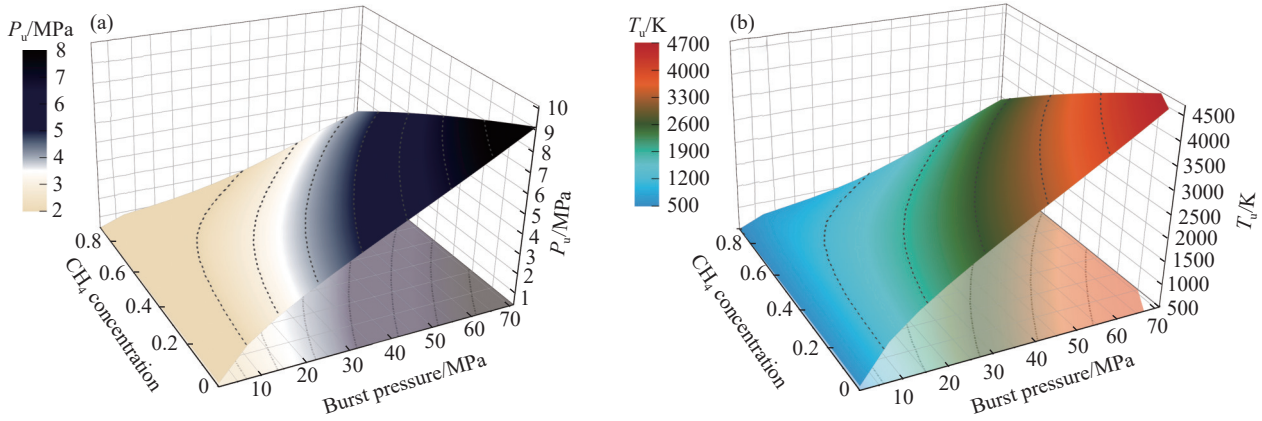


图 8 激波升温增压效能理论值. (a) 激波作用压力; (b) 激波作用温度

Fig.8 Theoretical value of shock wave warming and pressurizing efficiency: (a) pressure after shock wave; (b) temperature after shock wave

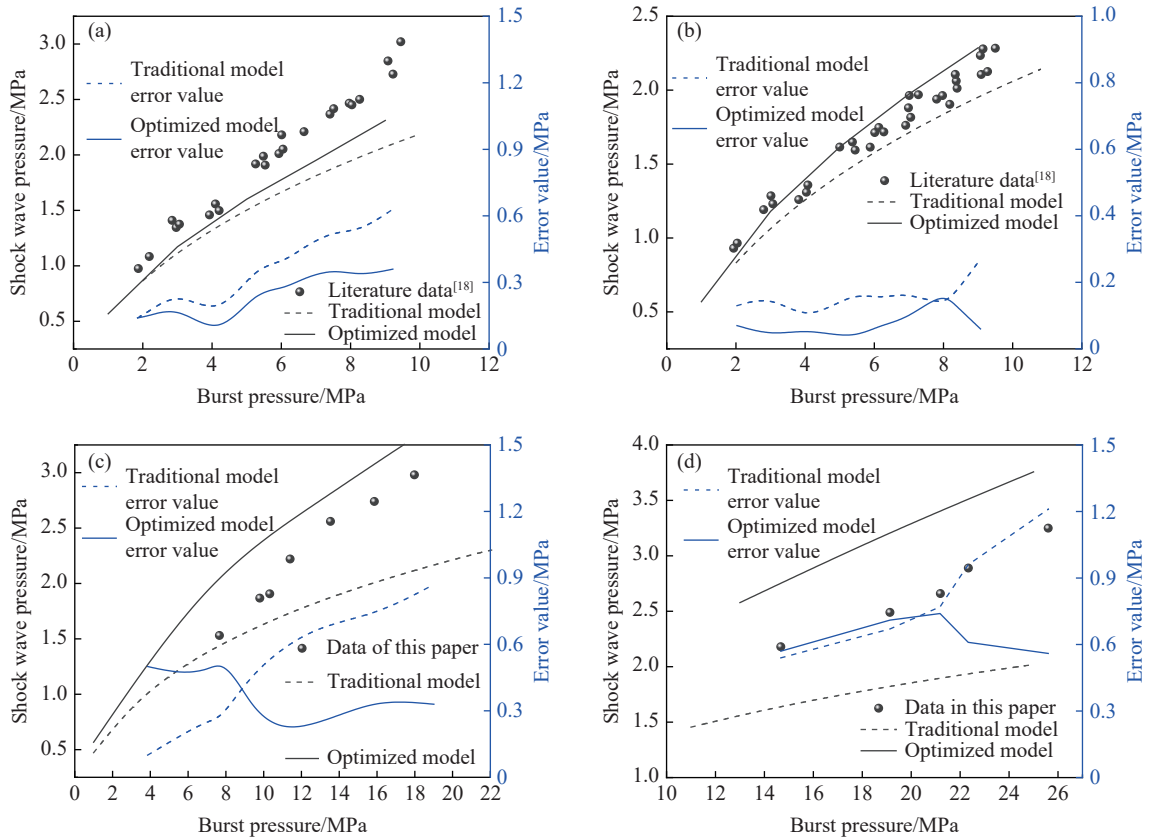


图 9 理论计算模型的验证. (a) 97.5% H₂/2.5% CH₄; (b) 95% H₂/5% CH₄; (c) 90% H₂/10% CH₄; (d) 80% H₂/20% CH₄

Fig.9 Validation of theoretical calculation models: (a) 97.5% H₂/2.5% CH₄; (b) 95% H₂/5% CH₄; (c) 90% H₂/10% CH₄; (d) 80% H₂/20% CH₄

如图 9 所示, 当掺甲烷比例低于 10% 时(图 9(a)、(b)), 在泄漏压力较低时, 传统激波管流动理论模型计算结果与修正后的理论模型计算结果较为接近, 并且与实验数据有较好的重复性. 然而, 当泄漏压力较高时, 传统激波管流动理论计算结果逐渐偏离实验数据, 并且随着泄漏压力的增大, 误差越大(图中误差值为实验值与模型计算值差值的绝对值). 相对而言, 修正后的理论模型计算结果则优于传统激波管流动理论模型. 当掺甲烷比例

高于 10% 时, 由于甲烷带来的影响较大, 以及压力增高带来的反射激波对实验测试压力的影响, 导致传统激波管流动理论模型和本文优化后的理论模型均出现一定的误差, 并且计算误差随着掺甲烷的比例的增大而增大. 但当泄放压力较大时, 本文优化后的计算模型的计算结果优于传统激波管流动理论模型, 这种优势随着泄放压力的提高, 表现得更加明显. 因此, 本文优化后的计算模型适用于掺甲烷比例低于 20% 的所有工况, 或掺甲烷比

例为 20%, 泄放压力大于 22 MPa 的工况。

4 结论

本文基于自主改进的高压可燃气体泄漏自燃实验平台, 获取了高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波演化特性, 掌握了掺甲烷比例和泄漏压力对激波强度的影响规律, 建立了高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波特性参数计算模型。主要结论如下:

(1) 爆破片破裂后首先在泄漏管道内形成前沿激波, 并且随着激波的传播, 前沿激波与氢气/甲烷主射流距离越来越大。与此同时, 由于圆形破口和矩形泄漏管道之间的形状突变, 在管角处产生反射激波, 最终在泄漏管道内形成复杂的多维反射激波。

(2) 管道内自燃反应对激波压力有一定的影响。当泄漏压力低于自燃临界泄漏压力时, 在、高压氢气/甲烷混合气体泄漏过程中展现出 $P_2 > P_3$ 的趋势。当泄漏压力远大于自燃临界泄漏压力时, 管道内发生自燃, 并在 P_3 附近发展为剧烈燃烧, 进而提高了 P_3 处的压力, 体现为 $P_3 > P_2$ 。当泄漏压力略微高于自燃临界压力时, P_2 、 P_3 处的压力大小关系取决于掺甲烷比例。

(3) 基于激波管流动理论, 结合 NIST 物性数据库构建了高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波特性参数计算模型。通过文献数据和本文实验数据对比分析, 证实了优化后的激波特性参数计算模型在高压氢气/甲烷混合气体泄漏激波特性参数计算中的适用性。

参 考 文 献

- [1] The State Council of the People's Republic of China. Opinions of the CPC Central Committee and the State Council on completely, accurately and comprehensively implementing the new development concept and doing a good job in carbon peaking and carbon neutrality[EB/OL]. *English. gov. cn* (2021-09-22)[2024-09-12]. https://www.gov.cn/gongbao/content/2021/content_5649728.htm
(中华人民共和国国务院. 中共中央国务院关于完整准确全面贯彻新发展理念做好碳达峰碳中和工作的意见[EB/OL]. 中国政府网 (2021-09-22)[2024-09-12]. https://www.gov.cn/gongbao/content/2021/content_5649728.htm)
- [2] Li Q. Report on the work of the government delivered at the second session of the 14th national people's congress on march 5, 2024[R/OL]. *English. gov. cn* (2024-03-05)[2024-09-12]. https://www.gov.cn/gongbao/2024/issue_11246/202403/content_6941846.htm
(李强. 2024 政府工作报告-2024 年 3 月 5 日在第十四届全国人
- 民代表大会第二次会议上[R/OL]. 中国政府网 (2024-03-05)[2024-09-12]. https://www.gov.cn/gongbao/2024/issue_11246/202403/content_6941846.html)
- [3] Okonkwo P C, Barhoumi E, Ben Belgacem I, et al. A focused review of the hydrogen storage tank embrittlement mechanism process. *Int J Hydrogen Energy*, 2023, 48(35): 12935
- [4] Zhao X L, Zhang Y J, Wang C Y, et al. Effect of heating temperature on the hydrogen embrittlement susceptibility in hot stamped medium-Mn steel. *Chin J Eng*, 2024, 46(5): 853.
(赵晓丽, 张永健, 王存宇, 等. 加热温度对热成形中锰钢氢脆敏感性的影响. *工程科学学报*, 2024, 46(5): 853)
- [5] Zhou S Y, Gao J C, Luo Z M, et al. Effects of mesh aluminium alloy and aluminium velvet on the explosion of H_2 /air, CH_4 /air and C_2H_2 /air mixtures. *Int J Hydrogen Energy*, 2021, 46(27): 14871
- [6] Luo Z M, Liu L T, Wang T, et al. Effect of C_2H_6 , C_2H_4 , CO and H_2 on the explosion pressure and kinetic characteristics of methane. *Chin J Eng*, 2022, 44(3): 339
(罗振敏, 刘利涛, 王涛, 等. C_2H_6 、 C_2H_4 、CO 与 H_2 对甲烷爆炸压力及动力学特性影响. *工程科学学报*, 2022, 44(3): 339)
- [7] Zhou S Y, Luo Z M, Wang T, et al. Research progress on the self-ignition of high-pressure hydrogen discharge: A review. *Int J Hydrogen Energy*, 2022, 47(15): 9460
- [8] Asahara M, Saburi T, Ando T, et al. Jet flame sustenance via spontaneous release of high-pressure hydrogen through a seamless tube: Relationship between burst pressure and tube length. *Fuel*, 2022, 315: 123228
- [9] Yan W, Pan X, Wang Z, et al. Experimental investigation on spontaneous combustion of high-pressure hydrogen leakage to form jet fire. *Explos Shock Waves*, 2019, 39(11): 134
(闫伟阳, 潘旭海, 汪志雷, 等. 高压氢气泄漏自燃形成喷射火的实验研究. *爆炸与冲击*, 2019, 39(11): 134)
- [10] Xu X D, Jiang J, Jiang Y M, et al. Spontaneous ignition of high-pressure hydrogen and boundary layer characteristics in tubes. *Int J Hydrogen Energy*, 2020, 45(39): 20515
- [11] Li Y Y, Jiang Y M, Pan X H, et al. Effects of the arc-shaped corner on the shock wave and self-ignition induced by sudden release of pressurized hydrogen. *Fuel*, 2021, 303: 121294
- [12] Cui G, Li Y X, Wu D, et al. The progress of autoignition of high-pressure hydrogen gas leakage: a comprehensive review. *Fire*, 2024, 7(8): 268
- [13] Yamada E, Watanabe S, Hayashi A K, et al. Numerical analysis on auto-ignition of a high pressure hydrogen jet spouting from a tube. *Proc Combust Inst*, 2009, 32(2): 2363
- [14] Zhou S Y, Xiao J J, Luo Z M, et al. Analysis of spontaneous ignition of hydrogen-enriched methane in a rectangular tube. *Proc Combust Inst*, 2024, 40(1): 105681
- [15] Zeng Q, Duan Q L, Li P, et al. An experimental study of the effect of 2.5% methane addition on self-ignition and flame propagation during high-pressure hydrogen release through a tube. *Int J Hydrogen Energy*, 2020, 45(4): 3381
- [16] Zhong C, Gou X L. Inhibition mechanism of CH_4 addition on the

- pressurized hydrogen spontaneous ignition. *Energy Fuels*, 2021, 35(2): 1715
- [17] Zhong C, Gou X. Numerical study on the inhibition mechanism of methane addition on the high-pressure hydrogen spontaneous ignition. *J Eng Thermophys*, 2022, 43(2): 524
(钟晨, 苟小龙. CH₄ 掺混对高压 H₂ 泄漏自燃的抑制机制研究. 工程热物理学报, 2022, 43(2): 524)
- [18] Wang Q Y, Pan X H, Jiang Y M, et al. Experimental investigation on spontaneous ignition caused by pressurized hydrogen suddenly release into an S-shaped tube. *J Loss Prev Process Ind*, 2020, 68: 104313
- [19] Gong L, Zheng X W, Yang S N, et al. Numerical study on the shock evolution and the spontaneous ignition of high-pressure hydrogen during its sudden release into the tubes with different angles. *Fuel*, 2023, 331: 125940
- [20] Li P, Duan Q L, Gong L, et al. Effects of obstacles inside the tube on the shock wave propagation and spontaneous ignition of high-pressure hydrogen. *Fuel*, 2019, 236: 1586
- [21] Zeng Q, Duan Q L, Sun D X, et al. Experimental study of methane addition effect on shock wave propagation, self-ignition and flame development during high-pressure hydrogen sudden discharge from a tube. *Fuel*, 2020, 277: 118217
- [22] Gong L, Li Z S, Jin K Y, et al. Numerical study on the mechanism of spontaneous ignition of high-pressure hydrogen during its sudden release into a tube. *Saf Sci*, 2020, 129: 104807
- [23] Duan Q L, Xiao H H, Shen X B, et al. Study on self-ignition caused by high-pressure hydrogen leak based on diffusion ignition theory. *J Therm Sci Technol*, 2015, 1: 57
(段强领, 肖华华, 沈晓波, 等. 基于扩散点火理论的高压氢气泄漏自燃研究. 热科学与技术, 2015, 1: 57)
- [24] Gong L, Duan Q L, Sun J H, et al. Similitude analysis and critical conditions for spontaneous ignition of hydrogen release into the atmosphere through a tube. *Fuel*, 2019, 245: 413
- [25] Wang T, Liang H, Lin J J, et al. The explosion thermal behavior of H₂/CH₄/air mixtures in a closed 20 L vessel. *Int J Hydrogen Energy*, 2022, 47(2): 1390
- [26] Gaydon A G, Hurle I R. *The Shock Tube in High-Temperature Chemical Physics*. London: Chapman & Hall, 1963
- [27] NIST Chemistry WebBook. Isobaric properties for hydrogen [DS/OL]. [2024-09-12]. https://webbook.nist.gov/cgi/fluid.cgi?P=1&TLow=100&THigh=1000&TInc=10&Digits=5&ID=C1333740&Action=Load&Type=IsoBar&TUnit=K&PUnit=MPa&DUnit=mol%2Fmol&HUnit=kJ%2Fmol&WUnit=m%2Fs&VisUnit=uPa*s&STUnit=N%2Fm&RefState=DEF