

文章编号: 1003-1480 (2023) 05-0063-06

# 弱约束条件下当量比对氢气爆燃特性的影响

袁玉红<sup>1,2</sup>, 黄寅生<sup>1</sup>, 谭玉明<sup>2,4</sup>, 储召栋<sup>2</sup>, 张 扬<sup>2,4</sup>, 李军福<sup>3</sup>, 夏 煜<sup>4</sup>, 程扬帆<sup>4</sup>

(1.南京理工大学 化学与化工学院, 江苏 南京, 210094; 2. 安徽红星机电科技股份有限公司, 安徽 合肥, 231135; 3. 驻蚌埠地区军代室, 安徽 蚌埠, 233421; 4. 安徽理工大学 化学工程学院, 安徽 淮南, 232001)

**摘要:** 为研究弱约束条件下氢气/空气预混气体的燃爆特性, 以乳胶气球为反应容器开展了氢气爆炸实验, 结合 Chemkin 模拟和改进的比色测温技术, 研究了当量比对氢气/空气预混气体火焰传播形态、温度场分布、火焰速度及爆炸压力等特征参数的影响。实验结果表明: 任一当量比下的 OH 自由基摩尔分数在达到最大值后会显著降低, 这导致火焰传播时亮度先增强后减弱; 随着火焰的传播, 火球形成了中心温度低、边缘温度高的温度场分布结构; 氢气/空气预混气体的爆炸火焰传播速度呈振荡分布; 峰值超压和冲击波强度随当量比的增加呈先增大后减小的趋势, 当量比为 1.00 时爆炸超压和冲击波强度达到最大值。

**关键词:** 气体爆炸; 弱约束; 氢气; 当量比; 爆炸温度

中图分类号: TJ450; TQ560.7 文献标识码: A DOI: 10.3969/j.issn.1003-1480.2023.05.012

## Effect of Equivalent Ratio on the Deflagration Characteristics of Hydrogen in the Weak Constraint Condition

YUAN Yu-hong<sup>1,2</sup>, HUANG Yin-sheng<sup>1</sup>, TAN Yu-ming<sup>2,4</sup>, CHU Zhao-dong<sup>2</sup>, ZHANG Yang<sup>2,4</sup>, LI Jun-fu<sup>3</sup>, XIA Yu<sup>4</sup>, CHENG Yang-fan<sup>4</sup>

(1. School of Chemistry and Chemical Engineering, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing, 210094; 2. Anhui Hongxing Mechanical and Electrical Technology Co. Ltd., Hefei, 231135; 3. Military Representative Office in Bengbu, Bengbu, 233421; 4. School of Chemical Engineering, Anhui University of Science and Technology, Huainan, 232001)

**Abstract:** To study the combustion and explosion characteristics of hydrogen/air premixed gas under weak constraint condition, hydrogen explosion experiments were carried out with latex balloons as the reaction vessels. The flame propagation pattern, temperature field distribution, flame velocity and explosion pressure with different equivalent ratios were studied by combining the Chemkin simulation and an improved two-colour pyrometer. The experimental results show that the OH radical mole fraction at any equivalent ratio decreases significantly after reaching the maximum value, which lead to the first enhancement and then attenuation of flame brightness during the flame propagation. With the propagation of flame, the fireball formes a temperature distribution structure with low temperature at the center and high temperature at the edge. The flame propagation velocity of hydrogen/air premixed gas is oscillating distributed. The peakpressure and shock wave strength first increase and then decrease with the increasing of equivalent ratio, and reach their maximum values as the equivalent ratio of 1.00.

**Key words:** Gas explosion; Weak constraint; Hydrogen; Equivalent ratio; Explosive temperature

氢气作为一种能源载体, 具有来源广泛、可再生、高热值以及低污染等诸多优点, 被认为是最有前景的替代燃料之一<sup>[1]</sup>。然而, 氢气点火能量低 (0.019 mJ)、

扩散性强、爆炸极限范围大 (4%~75%), 极易发生意外火灾和爆炸<sup>[2]</sup>。因此, 必须加强对氢气爆炸的基础研究, 最大限度减少事故造成的损失。Kim 等<sup>[3]</sup>研

收稿日期: 2023-04-25

作者简介: 袁玉红 (1985-), 男, 高级工程师, 从事爆炸火工品研制。

通讯作者: 程扬帆 (1987-), 男, 教授, 博士生导师, 从事爆炸力学和含能材料研究。

基金项目: 国家自然科学基金面上项目 (No.11972046; No.12272001); 安徽省自然科学基金优秀项目 (No.2108085Y02)。

究了开放空间下氢气/空气预混气体的冲击波强度,结果表明,富氢混合物的超压在早期随时间线性增长,在后期急剧加速,所产生的峰值超压比化学计量混合物中的峰值超压大得多。Sato 等<sup>[4]</sup>开展了开放空间下氢气的爆燃实验,研究表明,氢气浓度对火焰传播速度和产生的压力有显著影响;环境中湍流的存在增加了火焰传播的速度和超压。Jiang 等<sup>[5]</sup>研究了外湍流作用下无约束氢气云爆燃特性,结果表明,外部湍流和火焰失稳相结合,可显著提高火焰加速度和爆炸超压强度。现有关于氢气爆炸实验主要是在开放空间内进行的,针对氢气在弱约束条件下的研究较少,而弱约束气体云通常是通过使用肥皂泡和薄透明膜而形成<sup>[6]</sup>。李艳超等<sup>[7]</sup>使用聚乙烯薄膜研究了氢气云的爆炸行为,结果表明,随着压力监测点和点火位置间距的增加,爆炸超压峰值的正值和负值绝对值均单调减小,且不同监测点位置的爆炸超压峰值的负值绝对值均高于正值。Kim 等<sup>[8]</sup>搭建了 1 m<sup>3</sup> 的聚乙烯立方体帐篷,研究了火焰的自加速行为。Thomas 等<sup>[9]</sup>首次使用了肥皂泡进行弱约束条件下的气体爆燃研究。Katsumi 等<sup>[10]</sup>使用肥皂泡法研究了氢气爆燃火焰的传播特性,研究表明,在火焰半径较小的情况下,火焰拉伸效应增强,但在火焰半径大于临界半径的情况下,火焰拉伸效应减弱,热扩散不稳定效应主导了火焰行为。但此实验方法多适用于小体积可燃气体燃爆实验。近年来,将乳胶气球作为反应容器开展弱约束燃爆实验的方法被提出,相较上述两种方法,乳胶气球法能自由控制气云大小,且可以在实验室内进行,消除了天气和环境因素的影响,在许多研究中得到了充分的验证<sup>[11-12]</sup>。

为探究氢气/空气预混气体在弱约束条件下的燃爆特性,采用自制的可视化气体爆炸实验设备,以乳胶气球为反应容器模拟弱约束空间,研究了弱约束条件下氢气/空气预混气体的火焰形态、温度场、火焰传播速度以及爆炸压力等特征参数;结合实验测试和 Chemkin 软件模拟结果,详细分析当量比对氢气爆燃行为的影响,为弱约束空间内氢气/空气预混气体的意外爆炸防控提供基础数据,也可为其他可燃气体爆燃特性的研究提供实验方法。

## 1 实验装置和方法

实验所用氢气纯度为 99.99%,空气(20.98% O<sub>2</sub>+79.02%N<sub>2</sub>)纯度为 99.99%,使用透明乳胶气球(45.72cm, 18in)作为爆炸反应容器,点火后乳胶气球随可燃气体火焰的传播而膨胀。可视化等压气体爆炸实验设备如图 1 所示,包括配气系统、乳胶气球、点火系统以及数据采集系统。实验前,按照道尔顿分压法先后将氢气和空气通入混气罐中,配制当量比( $\varphi$ )为 0.89、1.00、1.19 和 1.43 的混合气体,均在混气罐中静置 10min<sup>[12]</sup>。氢气与空气的配比如表 1 所示,当量比定义见式(1)。

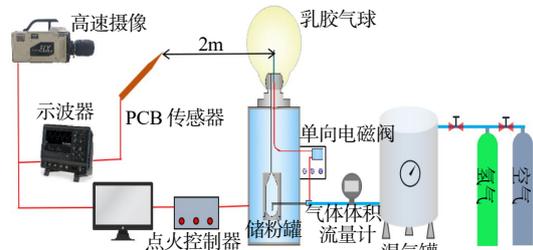


图 1 可视化等压气体爆炸实验设备示意图  
Fig.1 Schematic diagram of visual isobaric gas explosion experimental equipment

表 1 实验中氢气/空气的当量比

Tab.1 The equivalent ratio of hydrogen/air

$V_{H_2}/\%$	$V_{air}/\%$	当量比 $\varphi$
20	80	0.89
30	70	1.00
40	60	1.19
50	50	1.43

$$\varphi = \frac{n}{n_{st}} \quad (1)$$

式(1)中: $n$ 为氢气体积分数与空气体积分数的实际比值; $n_{st}$ 为化学计量条件下的比值。

实验流程为:将数据采集系统、点火系统和注气系统相连接并检查系统的气密性;将高速摄像机和声压传感器布(型号 PCB 106B52,灵敏度 724.81 mV/kPa)设在相应位置,调整相机光圈和焦距;设置 PLC(可编程逻辑控制程序)程序,分别设定喷粉持续时间 1 s、点火延迟时间 80 ms 和点火持续时间 1 s;称量 0.2 g 超细钨粉预先放置在储粉罐中,将乳胶气球固定在喷嘴上,使用体积流量计将混气罐中配制的气体混合物注入乳胶气球内。启动数据采集系统进行实验,高速摄像机和声压传感器同步收集信号,保存实验数据。相同工况下进行 3~4 次重复性实验,实验均

在常温常压下进行。

## 2 气体当量比的影响

### 2.1 当量比对火焰形态的影响

氢气火焰是无色、不可见的，使用添加钨粉的方法实现了氢气火焰的可视化<sup>[13]</sup>，不同当量比下氢气/空气预混气体燃爆火焰在乳胶气球内传播的图像如图2所示。

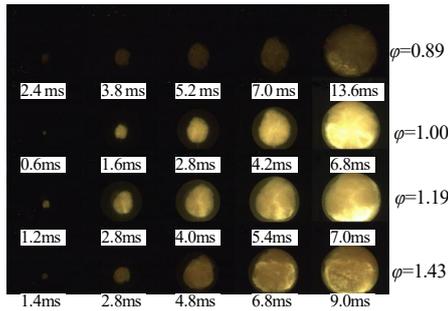


图2 氢气/空气火焰传播图像

Fig.2 Hydrogen/air flame propagation image

由图2可见，火焰近似以球形传播，且火焰的颜色不受氢气浓度的影响，在前期火焰成长过程中氢气燃烧不充分，颜色表现为暗黄色，膨胀到后期时火焰为橙黄色（ $\phi=0.89$ 时除外）。分析认为，贫燃状态下火焰传播速度较慢，火焰锋面与未燃混合物反应速度缓慢，只能维持火焰的持续传播，但并不能加剧燃烧

反应强度。在火焰冲破乳胶气球前，同一当量比的氢气火焰传播时呈现出显著的亮度差异，而火焰亮度在一定程度上反映出燃烧的剧烈程度，以 $\phi=1.00$ 氢气燃烧火焰为例，可将燃烧反应分为火焰稳定成长（0~4.2 ms）和剧烈燃烧2个阶段（4.2~6.8 ms）<sup>[14]</sup>。OH自由基是决定爆炸反应剧烈程度的关键反应中间体<sup>[15]</sup>，因此，为验证上述现象与OH自由基的关系，绘制了氢气/空气火焰中OH自由基浓度变化图，如图3所示。

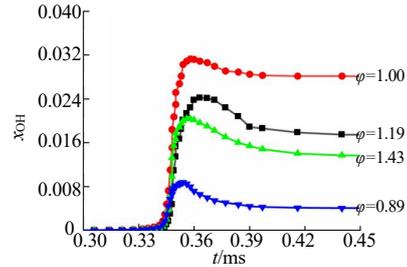


图3 不同当量比下OH自由基摩尔分数变化  
Fig.3 Changes in molar fraction of OH radicals at different equivalent ratios

图3表明，任一当量比下的OH自由基分数在某时刻达到最大值后会出现显著降低，这很好的解释了火焰亮度变化的现象。

### 2.2 当量比对火焰温度的影响

为了获取氢气/空气预混气体燃爆火焰的温度变化情况，使用2.1节中所拍摄的火焰传播图像，借助改进的比色测温技术，实现了氢气/空气预混火焰温度场的动态重构<sup>[13,16]</sup>，如图4所示。

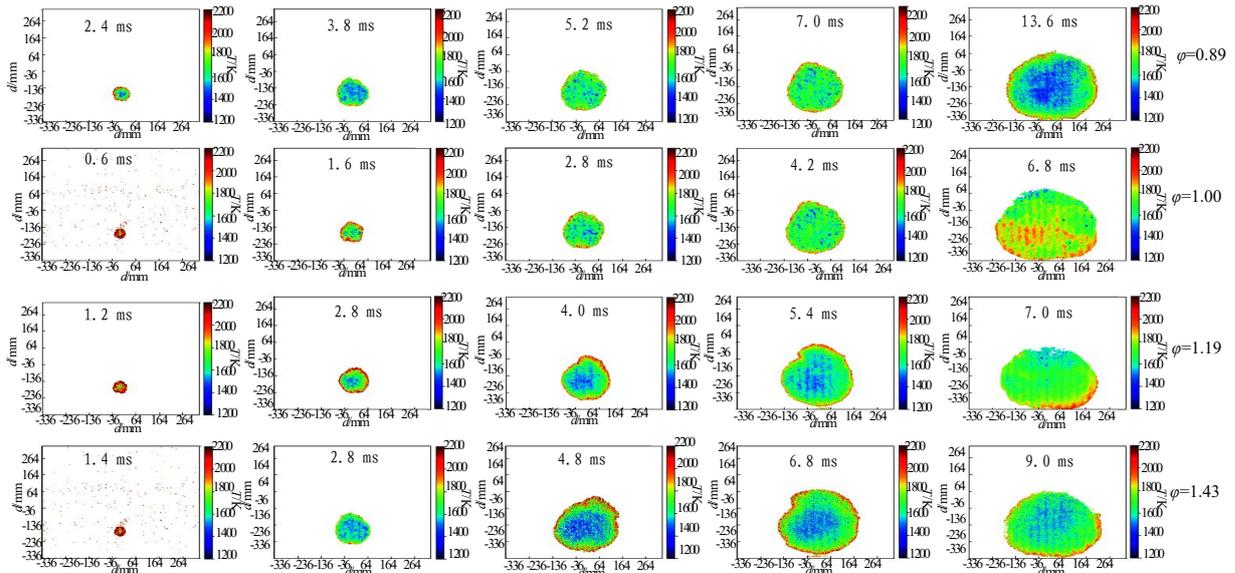


图4 不同当量比下氢气/空气预混气体燃爆火焰动态温度图

Fig.4 Dynamic temperature diagram of hydrogen/air premixed gas flame at different equivalent ratios

由图4可见，在点火初期，受电极点火影响，火焰温度较高；随着火焰向外扩散，预混气体球形火焰

温度大体上呈阶梯型分布,即从中心到四周温度逐渐升高。这是由于火焰内部存在着大量的氢气燃烧产物-液态水,其迅速吸收热量转换成水蒸气,导致火焰内部温度降低。在已燃区和未燃区交界处,未燃气体不断参与反应,使火焰锋面处不断获得能量补充,温度一直处于较高水平,因此形成了中心温度低、边缘温度高的温度场分布结构。为定量描述当量比对氢气火焰温度的影响,计算了火焰从稳定传播到破膜前的平均温度,如表2所示。

表2 不同当量比下氢气火焰的平均温度值  
Tab.2 Average temperature of hydrogen flame at different equivalent ratios

$\varphi$	平均温度/K
0.89	1 568
1.00	1 839
1.19	1 706
1.43	1 625

由表2可以看出,氢气火焰的平均温度值随 $\varphi$ 的提高呈先增大后减小的规律,在 $\varphi=1.00$ 时达到最大值。

### 2.3 当量比对火焰传播速度的影响

火焰传播速度( $S_b$ )是表征火焰传播过程的基本参数,通常用火焰半径与时间曲线的数值微分表示,如式(2)所示:

$$S_b = \frac{dr}{dt} \quad (1)$$

式(1)中: $S_b$ 为火焰传播速度,  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ;  $r$ 为火焰半径,  $\text{m}$ ;  $t$ 为火焰半径对应的时间,  $\text{s}$ 。

不同当量比下 $S_b$ 随时间变化的关系如图5所示。鉴于浮力作用的不确定性,仅以火焰的横向火焰传播速度为研究对象。

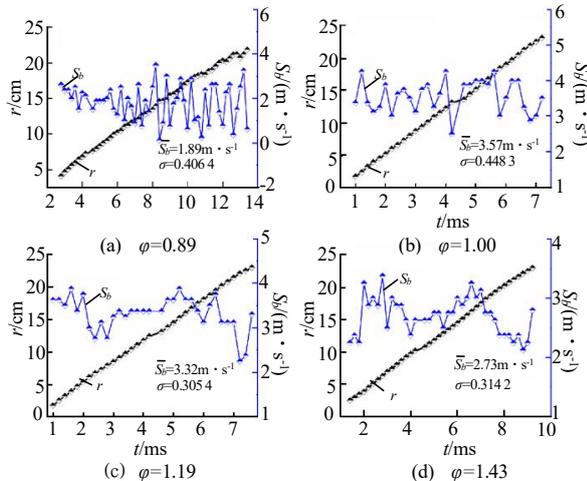


图5 氢气/空气火焰传播速度

Fig.5 Hydrogen/air flame propagation speed

从图5可以看出,火焰半径呈线性变化直到气球破裂,但不同当量比氢气的火焰速度都出现了振荡现

象。在爆燃反应进行时,系统损失能量的速度比产生的要快,净能量流是负的,具体表现为反应产物水蒸发需要吸收大量热量、已燃区需要持续加热未燃气体到燃点,系统温度降低,导致无法提供足够的能量保持火焰的加速传播,使 $S_b$ 降低;但随着火焰半径的扩大,火球表面积增大,更多未燃气体的加入增强了爆燃反应,提高了反应效率,此时系统的质量扩散比热扩散损失的能量更大<sup>[7]</sup>,净能量为正,系统温度升高, $S_b$ 增大,以此循环,从而导致火焰的振荡传播。

除上述原因外,氢气的分子结构最简单,反应也更为剧烈,容易形成胞格结构<sup>[18]</sup>。分析认为,这些振荡是周期性胞格结构分裂和生长的结果,火焰发生膨胀时,火焰胞格的局部曲率增大并持续分裂,形成更多小胞格结构,火焰表面积增大,火焰拉伸率减小,速度很快达到局部最大值,导致球形火焰整体传播速度加快;当火焰半径继续增大时,火焰胞格出现裂隙并破裂,系统失去胞格的诱导加速,火焰速度降低<sup>[19]</sup>。不稳定的火焰不能用于评估火焰传播速度,因此计算出4种当量比下氢气火焰传播的平均火焰传播速度 $\bar{S}_b$ 。结果表明:不同当量比下 $\bar{S}_b$ 分别为1.89 ( $\varphi=0.89$ ), 3.57 ( $\varphi=1.00$ ), 3.32 ( $\varphi=1.19$ ), 2.73  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  ( $\varphi=1.43$ ),  $\varphi=1.00$ 时 $\bar{S}_b$ 达到最大值,表明氢气在该浓度下爆燃反应速率最大,并且贫燃条件下,随当量比的增加而提高,反之, $\bar{S}_b$ 随当量比的增加而减小。

### 2.4 当量比对爆炸参数的影响

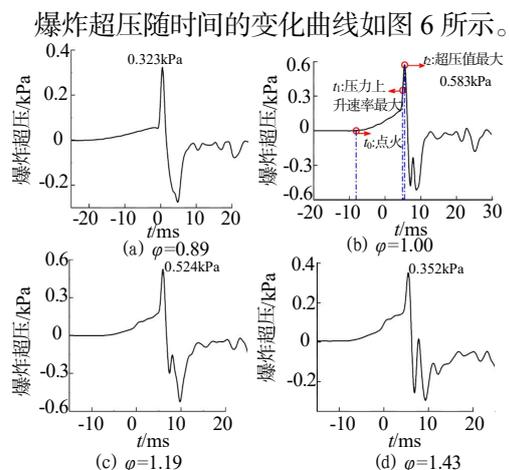


图6 爆炸超压变化时程曲线

Fig.6 Explosion overpressure change time history curve

由图6可以看出,实验中所有的超压——时间曲线都表现出相似的变化特征:当点火在 $t_0$ 处启动后,

预混气体在气球内爆炸,冲击波没有传播到测量点时,有一个恒压阶段;由于体积膨胀率较低,因此在爆炸开始时超压缓慢上升,到 $t_1$ 时刻,在流体动力学不稳定的作用下,爆炸压力上升速率达到最大值,超压值继续增加,但压力上升速率减小,直到 $t_2$ 时刻压力上升速率降为0,爆炸超压值达到最大,此后爆炸超压迅速衰减降至负压,短时间后恢复为大气压<sup>[5]</sup>。

根据爆炸超压演变曲线提取出峰值超压和冲击波强度,如图7所示,与 $\varphi=1.00$ 的预混气体相比,贫燃和富燃预混气体的峰值超压和冲击波强度都较小;随着当量比提高,峰值超压和冲击波强度先增大后减小,最大值分别为0.578 kPa和 $586 \text{ kPa}\cdot\text{s}^{-1}$ 。

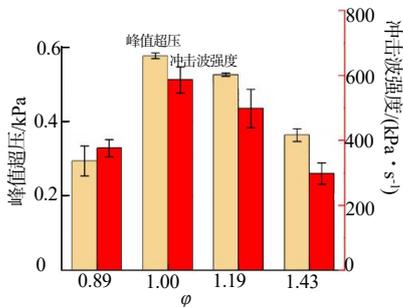


图7 爆炸压力参数

Fig.7 Explosion pressure parameters

$\varphi < 1.00$  时,氢气虽完全燃烧,但过剩的空气吸收反应释放的能量,降低了爆燃反应强度;在高当量比下,气球内氧气的分子量和密度较低,参与反应的氢分子较少,过剩的氢气阻碍了传热传质的进行。根据压力参数计算出了正相冲量,如图8所示。

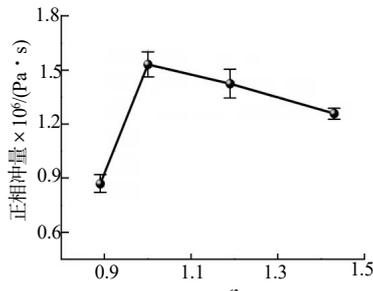


图8 不同当量比氢气的正相冲量

Fig.8 Positive phase impulse of hydrogen at different equivalent ratios

图8表明,正相冲量在 $\varphi=1.00$ 时取得最大值,此时对人员和物体的破坏性最强,并且随着氢气浓度的不断增加,正相冲量呈现先增后减的趋势,这与峰值超压的变化规律一致。为进一步加深对氢气爆炸压力传播影响最大的反应的认识,对爆炸压力做敏感性分

析,进而找出影响氢气/空气爆炸压力的基元反应。敏感性系数为正或负,说明该基元反应对压力增加起促进或抑制作用,不同当量比的预混气体敏感性系数如图9所示。

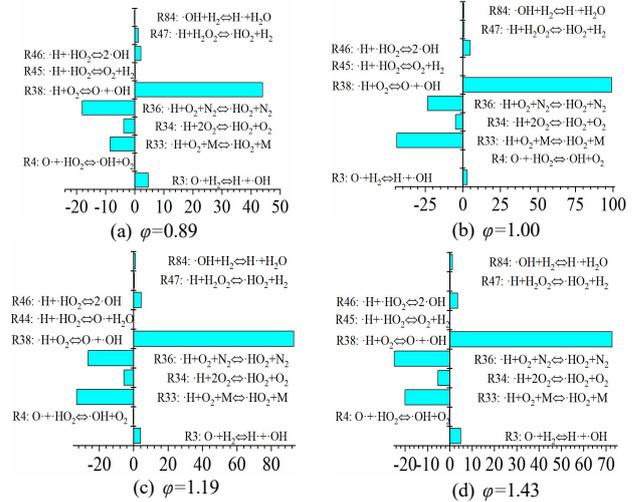


图9 不同当量比下爆炸压力的敏感性系数

Fig.9 Sensitivity coefficient of explosion pressure at different equivalent ratios

在整个当量比范围内,R3、R38、R46、R47和R84都表现出正的敏感性系数,对爆炸压力的升高均有一定的促进作用,然而,各当量比下R3、R46的敏感性系数相近,R47和R84的敏感性系数极小,对爆炸压力都不能产生关键性影响;在4个当量比下,链分支反应R38的敏感性系数始终是最大值,在氢气燃烧中占主导地位,其通过生成OH和O自由基提高了活性基团的密度,增强了爆燃强度。R33、R34和R36的敏感性系数为负,通过降低自由基浓度的方式阻碍了氢气的转化,具体表现为3个反应与R38争夺H自由基,并且H自由基作为反应物被大量消耗,同时伴随有 $\text{N}_2$ 生成,因此化学反应性明显降低,抑制了爆炸压力的升高<sup>[20]</sup>。在 $\varphi=0.89\sim 1.43$ 范围内,R38的敏感性系数与氢气当量比是非线性关系,在 $\varphi=1.00$ 时敏感性系数最大,对爆炸压力的促进作用更强,使得该浓度下的氢气/空气爆炸超压和正相冲量值最大。

### 3 结论

(1) 任一当量比下的OH自由基分数在达到最大值后会显著降低,导致氢气火焰亮度表现出先增强

后减弱的现象;氢气火焰温度呈现中心低、边缘高的分布特征,随当量比的提高,氢气火焰的平均温度值先增大后减小。

(2) 氢气/空气预混气体在乳胶气球内传播时火焰传播速度呈振荡分布,不同当量比的氢气/空气  $\bar{S}_b$  分别为 1.89 ( $\varphi=0.89$ ), 3.57 ( $\varphi=1.00$ ), 3.32 ( $\varphi=1.19$ ) 和  $2.73 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  ( $\varphi=1.43$ ), 且越接近化学计量浓度时越大。

(3) 随着当量比的增加,弱约束条件下氢气/空气爆炸峰值超压呈先增大后减小的趋势。 $\varphi=1.00$  时, R38 通过生成 OH 和 O 自由基提高了活性基团的密度,增强了爆燃强度,峰值超压和正相冲量达到最大值。

#### 参考文献:

- [1] 李璐伶, 樊栓狮, 陈秋雄, 等. 储氢技术研究现状及展望[J]. 储能科学与技术, 2018, 7(4): 586-594.
- [2] Ng H D, Lee J H S. Comments on explosion problems for hydrogen safety[J]. Journal of Loss Prevention in the Process Industries, 2008, 21(2): 136-146.
- [3] Kim W K, Mogi T, Dobashi R. Fundamental study on accidental explosion behavior of hydrogen-air mixtures in an open space[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2013, 38(19): 8 024-8 029.
- [4] Sato Y, Iwabuchi H, Groethe M, et al. Experiments on hydrogen deflagration[J]. Journal of Power Sources, 2006, 159(1): 144-148.
- [5] Jiang Y, Li Y, Zhou Y, et al. Investigation on unconfined hydrogen cloud explosion with external turbulence[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2022, 47(13): 8 658-8 670.
- [6] Zhou Y, Li Y, Gao W. Experimental investigation on unconfined hydrogen explosion with different ignition height[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2023, 48(52): 20 112-20 123.
- [7] 李艳超, 毕明树, 高伟. 耦合火焰自加速传播的氢气云爆炸超压预测[J]. 爆炸与冲击, 2021, 41(07): 33-38.
- [8] Kim W K, Mogi T, Dobashi R. Flame acceleration in unconfined hydrogen/air deflagrations using infrared photography[J]. Journal of Loss Prevention in the Process Industries, 2013, 26(6): 1 501-1 505.
- [9] Thomas A, Williams G T. Flame noise: sound emission from spark-ignited bubbles of combustible gas[J]. Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences, 1966, 294(1 439): 449-466.
- [10] Katsumi T, Aida T, Aiba K, et al. Outward propagation velocity and acceleration characteristics in hydrogen-air deflagration[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2017, 42(11): 7 360-7 365.
- [11] 王文涛, 程扬帆, 姚雨乐, 等. 当量比对乙炔/空气爆炸特性和火焰速度的影响[J]. 中南大学学报(自然科学版), 2022, 53(2): 433-442.
- [12] Li M, Liu Z, Chen L, et al. Flame propagation characteristics and overpressure prediction of unconfined gas deflagration[J]. Fuel, 2021(284): 119 022.
- [13] Cheng Y F, Yao Y L, Wang Z H, et al. An improved two-colour pyrometer based method for measuring dynamic temperature mapping of hydrogen-air combustion[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2021, 46(69): 34 4 63-34 468.
- [14] 王振兴, 王洋, 韩东洋, 等. 氢气对瓦斯爆炸化学动力学行为影响研究[J]. 煤炭与化工, 2022, 45(9): 140-145.
- [15] 程扬帆, 王中华, 胡芳芳, 等.  $\text{TiH}_2$  粉尘火焰传播速度及温度分布的高速二维测量[J]. 兵工学报, 2023, 44(4): 1 181-1 192.
- [16] 张启威, 程扬帆, 夏煜, 等. 比色测温技术在瞬态爆炸温度场测量中的应用研究[J]. 爆炸与冲击, 2022, 42(11): 105-117.
- [17] Liu Q, Chen X, Shen Y, et al. Parameter extraction from spherically expanding flames propagated in hydrogen/air mixtures[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2019, 44(2): 1 227-1 238.
- [18] 陈雪阳. 富氢燃烧球形膨胀火焰不稳定性与胞状化特性研究[D]. 武汉: 华中科技大学, 2019.
- [19] 庞子政, 朱顺兵. 除尘过程中铝粉粉尘爆炸分析及预防[C]// 2019 中国消防协会科学技术年会论文集, 2019.
- [20] Li Y, Bi M, Li B, et al. Effects of hydrogen and initial pressure on flame characteristics and explosion pressure of methane/hydrogen fuels[J]. Fuel, 2018(233): 269-282.