Г.С. Баронов, А.А. Калинников, С.В. Коробцев, В.Н. Фатеев

Российский научный центр «Курчатовский Институт», Москва, Россия Институт водородной энергетики и плазменных технологий, Москва, Россия

ВЛИЯНИЕ ПРОЦЕССОВ ЕСТЕСТВЕННОЙ КОНВЕКЦИИ НА ПАРАМЕТРЫ ПАССИВНОГО КАТАЛИТИЧЕСКОГО РЕКОМБИНАТОРА ВОДОРОДА

АННОТАЦИЯ

Проведены экспериментальные и теоретические исследования эффективности работы каталитического пассивного рекомбинатора водорода на основе активированных высокопористых ячеистых материалов. Предложена газодинамическая модель процессов транспорта и каталитического сжигания водорода вследствие тепловой конвекции водородо-воздушной смеси через корпус рекомбинатора, удовлетворительно описывающая экспериментальные данные. Достигнутая высокая скорость сжигания водорода в рекомбинаторах такого типа позволяет создать систему нейтрализации водорода для АЭС.

1. ВВЕДЕНИЕ

Рекомбинатор водорода на основе высокопористых ячеистых материалов (ВПЯМ) представляет собой конвективный корпус – вертикальную трубу, в нижней части которой размещены каталитически активированные пластины ВПЯМ. Высокая каталитическая активность применяемых ВПЯМ обеспечивает возможность самопроизвольного начала и развития эффективного процесса рекомбинации при достаточно низких концентрациях водорода (<1%) и температурах окружающей воздушной среды (≈18°С). В установившемся процессе воздух, проходя сквозь объем ВПЯМ, нагревается за счет сжигания водорода, и поднимается вверх по конвективной трубе. Таким образом, процесс сжигания представляет собой самосогласованную конвективную циркуляцию.

Движущими силами этого процесса являются Архимедовы подъемные силы, возникающие вследствие разности плотностей окружающей воздушной среды и воздуха, нагретого в результате окисления водорода. В установившемся процессе перепады давления скомпенсированы гидродинамическими сопротивлениями при движении воздушных потоков.

Исследования такого рода устройств уже проводились ранее [1,2]. Однако испытания проводились в замкнутых объемах $1 - 1.5 \text{ м}^3$, что существенно ограничивало производительность и, соответственно, размер исследуемых рекомбинаторов. В настоящей работе предлагается новая методика исследования пассивных рекомбинаторов водорода, которая принципиально не ограничивает их производительность.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

2.1. Активный элемент рекомбинатора водорода

Каталитически активным элементом рекомбинатора водорода является ВПЯМ, который представляет собой пористую металлическую губку. Такой материал состоит из полых ячеек с характерным размером несколько миллиметров и со стенками, покрытыми тонким пористым вторичным слоем из γ-Al₂O₃. Таким образом, ВПЯМ характеризуется двойной пористостью:

 макропористость - отношение свободного объема ячеек к общему объем ВПЯМ;

2) микропористость - пористость стенок ячеек ВПЯМ.

Для обеспечения каталитических свойств ВПЯМ покрыт платиной вакуумным методом напыления. Преимущество ВПЯМ - комбинация развитой поверхности катализатора с низким газовым динамическим сопротивлением. Такая структура ВПЯМ обеспечивает высокую активность катализаторов на их основе за счет интенсификации процессов теплои массопередачи при довольно низкой удельной поверхности (10⁴ m²/m³), который на 3-4 порядка ниже, чем для носителей с высоко-развитой поверхностью.

2.2. Рекомбинатор водорода

Для проведения крупномасштабных испытаний рассматриваемых моделей рекомбинаторов водорода необходимо использование замкнутых резервуаров большого объема ≥10м³. Использование таких резервуаров сложно и дорого. В виду этого обстоятельства был использован способ проведения исследования производительности пассивного рекомбинатора водорода в условиях большого открытого пространства. Для этих испытаний был использован газодинамический стенд, представленный на рис. 1.

Стенд использовался для исследования газодинамических характеристик активных элементов рекомбинатора водорода и для определения скорости сжигания водорода при различных условиях. При эксплуатации в режиме измерений производительности рекомбинаторов смесительная камера отделена от блока электронагревателей и образовавшийся зазор высотой H=15см использовался для захвата атмосферного воздуха. К верхней части смесительной камеры подсоединялась модель пассивного рекомбинатора водорода. В смесительную камеру до-



Рис. 1. Газодинамический стенд, для испытания рекомбинаторов водорода в режиме свободной конвекции

полнительно были введены пробоотборники на расстоянии 2-3см от нижней поверхности кассеты с активным элементом и на таком же расстоянии от верхней поверхности кассеты. В кассету с активными элементами и на расстоянии 2-3см от ее верхней поверхности введены термопары, позволяющие определять температуру активного элемента, входного и выходного потока газовой смеси.

Для измерения газодинамических характеристик ВПЯМ в соответствующих зонах стенда были установлены приемники дифференциальных манометров. В процессе измерений производительности по сжиганию водорода количество прошедшего через сечение конвективного корпуса рекомбинатора газовой смеси в единицу времени определялось по расходу водорода и его концентрации на входе в конвективный корпус.

Водород подавался в смесительную камеру с расходом, обеспечивающим необходимую начальную концентрацию. Более легкая воздушноводородная смесь поднималась вверх к активным элементам рекомбинатора, и в объеме пластин ВПЯМ начинался процесс окисления водорода с выделением тепла. Теплый воздух, поднимаясь вверх по конвективному корпусу, создавал необходимый перепад давлений (т.н. тяга) тем самым, засасывая воздух в нижнюю часть смесительной камеры. Пассивный рекомбинатор водорода испытывался в диапазоне концентраций C_{H2} = от 1.0 до 2.5% об.H₂.

3. ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

3.1. Газодинамическое сопротивление ВПЯМ

Величина газодинамического сопротивления активного элемента рекомбинатора водорода является одним из главных факторов, определяющих его производительность по сжиганию водорода в естественно-конвективном режиме. Экспериментальные исследования показали, что с хорошей точностью зависимость падения давления газового потока на образце ВПЯМ от скорости потока имеет степенной характер. При этом, показатель степени для различных образцов может заметно варьироваться от 1.4 до 1.75. Это объясняется некоторым различием геометрических параметров структуры ВПЯМ, и, соответственно, различным вкладом динамической и вязкой составляющих газодинамического сопротивления ВПЯМ. Пример такой зависимости приведен на рис.2.

Искомая зависимость была получена из соображений размерности. В общем случае газодинамическое сопротивление ВПЯМ обусловлено вкладом динамической и вязкой составляющих. Причем для вязкой составляющей $\Delta p \sim v\rho v$ (v - кинематическая вязкость), для чисто динамической составляющей $\Delta p \sim \rho v^2$ и зависимость от вязкости отсутствует. В промежуточном случае переходного течения типа пограничного слоя $\Delta p \sim \rho v^{3/2} v^{1/2}$.

Отсюда в общем случае можно предположить, что зависимость сопротивления ВПЯМ от скорости и физических параметров воздуха определяется функцией:

$$\Delta p = \alpha \rho v^{\beta} v^{2-\beta} a^{\gamma}. \tag{1}$$

где α - безразмерный параметр, ν - кинематическая вязкость, а – геометрический параметр с размерностью длины, характеризующий размер элемента структуры ВПЯМ.

Из соображений размерности:

$$\Delta p = \alpha \rho v^{\beta} \left(\frac{v}{a}\right)^{2-\beta}.$$
(2)

Таким образом, если $v = v_0 \left(\frac{T}{T_0}\right)^b$, то:

$$\Delta p = \Delta p_0 \left(\frac{T}{T_0}\right)^{2b-1-\beta(b-1)},\tag{3}$$

где значение Δp_0 соответствует падению давления при температуре T_0 .

Величины с индексом "0" могут быть отнесены к условиям, при которых были получены эксперимен-

тальные данные по сопротивлению ВПЯМ. Величи-

ны β , $\frac{\alpha \rho_0}{a^{2-\beta}} v_0^{2-\beta}$ определяются из аппроксимации

экспериментальных данных.

Полученная зависимость может быть проверена при сопоставлении с экспериментальными данными, полученными для пластин ВПЯМ.

Все имеющиеся для каждого образца ВПЯМ экспериментальные данные были аппроксимирова-

ны зависимостью
$$\Delta p = A v^B \left(\frac{T}{T_0}\right)^{\gamma}$$
, где T_0 условно

была выбрана равной 300К.

Для образца ВПЯМ, газодинамическая характеристика которого приведена на рис.2, в результате аппроксимации получены значения параметров:

Α=16.42 Πα, β=1.63, γ=1.27

На рис.3 приведена зависимость величины $\Delta p / (A \upsilon^B)$ от температуры. Можно видеть удовле-

творительное согласие с экспериментальными данными в пределах ошибки измерения. При этом для показателя степени температурной зависимости кинематической вязкости получается

 $b = \frac{\gamma + 1 - \beta}{2 - \beta} \approx 1.73$. Реальный показатель степени

 ≈ 1.8 , что довольно точно совпадает с показателем, рассчитанным из экспериментальных данных.

С использованием методики может быть проведен численный анализ газодинамических характеристик ВПЯМ при произвольных условиях.

3.2. Производительность рекомбинатора водорода

Рассмотрим стационарное движение воздуха в вертикальном конвективном корпусе рекомбинатора водорода сечением S и высотой H, в нижней части сечение корпуса перекрыто пластиной ВПЯМ. В результате конвективных процессов воздух с объемным содержанием водорода C_H со скоростью v_0 при температуре T_0 входит в слой ВПЯМ, нагревается до температуры T в результате окисления части водорода и ускоряется до скорости v.

Из уравнения неразрывности: $\rho_0 \upsilon_0 = \rho \upsilon$, где $\rho_0 u$ ρ - плотности холодного и нагретого воздуха. Таким образом, изменение плотности связано с изменением температуры следующим образом:

$$\rho = \frac{\rho_o T_o}{T} \,. \tag{4}$$

Возрастание температуры воздушного потока вследствие рекомбинации водорода (C₀-C):

 $\Delta T = T - T_0 = \alpha(C_0 - C),$

гдеα=82°К/1об.% - изменение температуры воздуха при сгорании 1%об. водорода без учета процессов диссипации тепла.

Если пренебречь охлаждением воздушного потока, а также трением на стенках конвективного корпуса, то можно получить:

$$\Delta p = \rho_0 g H(T - T_0)/T, T = T_0 + \alpha \Delta c, \qquad (5)$$

Вследствие наличия такого перепада давления воздух проходит сквозь слой ВПЯМ, преодолевая его сопротивление. Как было получено ранее,

$$\Delta p = A v^B \left(\frac{T}{T_0}\right)^{\gamma}$$
, и система из полученных уравне-

ний:

$$\begin{cases} \rho_o g H \left(1 - \frac{T_o}{T} \right) = A \upsilon^B \left(\frac{T}{T_0} \right)^C, \\ T = T_o + \Delta T = T_o + \alpha \Delta c \end{cases}$$
(6)

полностью определяет зависимость скорости воздуха в конвективном корпусе рекомбинатора от концентрации водорода.

Из решения системы уравнений можно получить скорость потока:

$$\upsilon = \left(\frac{\rho_o g H}{A} \frac{\alpha \Delta c}{T_o}\right)^{1/\beta} \frac{1}{\left(1 + \frac{\alpha \Delta c}{T_o}\right)^{1-\gamma/\beta}}.$$
 (7)

Очевидно производительность рекомбинатора, т.е. скорость сжигания водорода: $Q = S \upsilon \Delta c$, где S – площадь поперечного сечения конвективного корпуса рекомбинатора.

В реальных условиях процесса рекомбинации водорода в применяемых образцах ВПЯМ наблюдалось практически полное сжигание водорода. В этом случае $Q = S v c_H$

$$Q = S \left(\frac{\rho_o g H}{A} \frac{\alpha c_0}{T_o} \right)^{1/\beta} \frac{c_0}{\left(1 + \frac{\alpha c_0}{T_o} \right)^{1-\gamma/\beta}}.$$
 (8)

Полученная формула определяет, очевидно, производительность пассивного рекомбинатора водорода с конкретными образцами ВПЯМ. При ма-

лых концентрациях водорода $Q \approx (c_0)^{1+\beta/\beta}$, при больших концентрациях $Q \approx (c_0)^{\beta-\gamma/\beta}$. Для рекомбинатора водорода с активным элементом на основе ВПЯМ, характеристики которого представлены на рис.2 предельные соотношения выражаются следующим образом:

$$\begin{aligned} \alpha c_0 &<< T_0 \qquad \qquad Q \approx c_0^{1.61} \\ \alpha c_0 &>> T_0 \qquad \qquad Q \approx c_0^{0.22} \end{aligned}$$

4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

В экспериментах измерялись газодинамические характеристики для различных образцов ВПЯМ, отличающихся структурой и размером ячеек и содержанием гамма-оксида алюминия специальной пористой подложки на стенках ячеек ВПЯМ для платинового каталитического покрытия.

На рис. 2 представлен пример зависимости перепада давления на пластине ВПЯМ как функция скорости. Из рисунка видно, что эта зависимость нелинейна. Из оценки характерных чисел Рейнольдса и сложной структуры течения в объеме ВПЯМ очевидно, что течение газа определяется некой переходной областью от вязкого течения.



Рис. 2. Перепад давления на активном элементе на основе ВПЯМ (толщина 1 см в направлении потока) от скорости воздуха

Наибольший интерес, естественно, вызывает изменение гидродинамического сопротивления в реальных условиях режима работы катализатора - т.е. в условиях, когда в него поступает холодный воздух с содержанием водорода, и происходит процесс каталитического окисления и нагревания газа. На рис.3 представлены зависимости перепадов давления, выраженных в виде:

$$\frac{\Delta p}{A\upsilon^B} = F(T)$$

Как видно из данных рисунка, зависимость хорошо согласуется с полученной ранее теоретической зависимостью $(F(T) = \left(\frac{T}{T_0}\right)^{0.26}$, непрерывная линия).



Рис. 3. Перепад давления на активном элементе на основе ВПЯМ (толщина 1 см в направлении потока) от скорости воздуха при различных температурах

На рис. 4 представлены типичные результаты измерений температуры и концентрации водорода в конвективном корпусе рекомбинатора в процессе испытаний.



Рис. 4. Типичные результаты измерений температуры и концентрации водорода в конвективном корпусе рекомбинатора

На рис.5 представлены результаты расчета производительности рекомбинатора водорода при различных концентрациях. Как видно из данных рисунка, экспериментальные данные хорошо согласуются с полученной ранее теоретической зависимостью (формула (8), непрерывная линия).



Рис.5. Зависимость производительности рекомбинатора от концентрации водорода. Размер каталитического элемента 150×100 мм²

5. ВЫВОДЫ

Разработана методика измерения производительности опытного образца рекомбинатора водорода и определения газодинамического сопротивления блока катализатора.

Проведено измерение газодинамического сопротивления рекомбинатора водорода и производительности по сжиганию водорода. Полученная производительность для наилучшего катализатора составляет 300нсм³/сек при концентрации водорода 2 об.%.

Разработана физико-математическая модель рекомбинатора водорода. Наблюдается хорошее согласие между измеренными и рассчитанными данными.

ЛИТЕРАТУРА

- "Hydrogen mitigation technical means of nuclear power plants" / G.S. Baronov, Y.G. Davidov, D.E. Ershov et all Proceedings of workshop "Hydrogen behavior and mitigation in water-cooled nuclear power reactors", Brussels, 4-8 March 1991. EUR 14039 EN, 1992.
- "Investigation on burning rate of hydrogen in burner based on activated high porosity cell materials" / G.S. Baronov, A.A. Kalinnikov, V.D. Keller et all. Moscow, RRC "Kurchatov Institute", IAE-5573/3, 1992.