

Deflagaratie tot detonatie transitie (DDT)

WP4 Veiligheidsaspecten en risico's

Auteur: TNO

Dit project is medegefinancierd door TKI Nieuw Gas | Topsector Energie uit de PPS-toeslag onder referentienummer TKI2019 WVIP



Aanleiding

WVIP WP 4 werkt aan kennisvragen voor het borgen van waterstofveiligheid en heeft als doelstelling:

1. Het inventariseren van alle mogelijke veiligheidsrisico's die gepaard gaan met de productie, opslag, transport en gebruik van waterstof.
2. Welke maatregelen zijn noodzakelijk om waterstof als veilige en betrouwbare energiedrager grootschalig te kunnen introduceren en daarmee de publieke acceptatie te vergroten.

Dit document is bedoeld voor alle partijen die bezig waren, momenteel bezig zijn, dan wel in de nabije toekomst betrokken zullen zijn bij de ontwikkeling van de waterstofinfrastructuur en specifiek voor partijen die zich bezig houden met de toepassing van waterstof als brandstof voor mobiliteit over de weg. Dit document geeft handvatten om de vragen en antwoorden die er over dit onderwerp zijn centraal te ontsluiten met het doel de waterstofveiligheid te borgen.

Dit document beantwoordt één van de kennisvragen zoals die zijn geïnventariseerd door de deelnemers van WP4 in 2020. Voor meer informatie over en de totstandkoming van de kennisvragen zie <https://nlhydrogen.nl/wp4-inventarisatie-van-kennisvragen>.

Het doel van het behandelen van de kennisvraag is om een beknopt overzicht te geven van zowel het fenomeen (gas)explosies als deflagratie-tot-detonatie transitie (DDT) en de factoren die daar invloed op hebben.

Introductie

Het fenomeen 'deflagratie tot detonatie transitie (DDT)' en de hevigheid van een explosie is bekend bij een beperkte groep specialisten. Om meer gevoel te krijgen voor dit fenomeen is een eenvoudige uitleg ervan wenselijk, zodat het voor een bredere groep gebruikers uitlegbaar wordt.

Kennisvraag

In licht van bovenstaande, is de volgende kennisvraag geformuleerd:

Is er een uitleg van het fenomeen deflagratie tot detonatie transitie (DDT) als functie van lengte buis, stoichiometrie, obstakels, geometrie, temperatuur, initiële druk en eventuele andere parameters beschikbaar?

Uitwerking van de kennisvraag

Onderstaande informatie is een beknopte weergave van een groter document waarin meerdere effecten van gasexplosies worden behandeld [1].

Definitie van een explosie

Een explosie is een snelle en abrupte energieafgifte die een drukgolf veroorzaakt. Een drukgolf verplaatst zich met de geluidssnelheid (sonische snelheid) van het gegeven medium bij de gegeven temperatuur- en drukomstandigheden. Door de drukgolf is een explosie altijd hoorbaar.

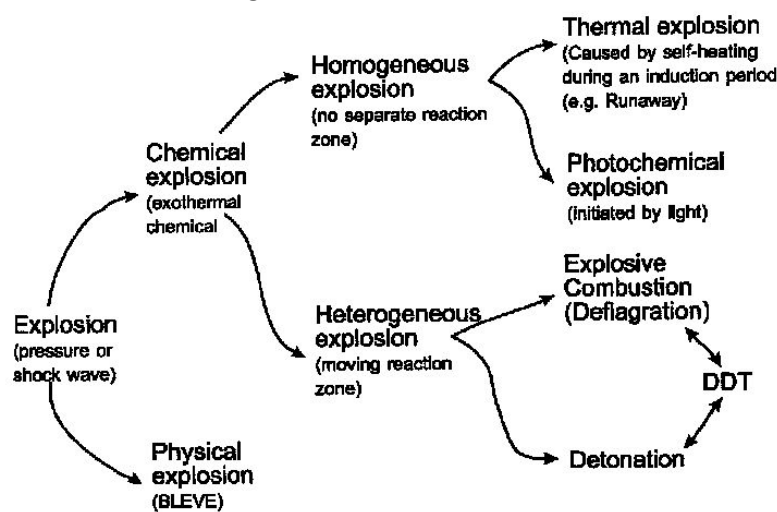
Explosies veroorzaken meestal schade door de drukgolf die constructies kan beschadigen en die direct of indirect mensen kan doden (bijvoorbeeld instortend gebouw). Naast verplaatsing door de

lucht, kunnen explosies ook een schokgolf produceren die zich door de grond verplaatst. Op deze manier kunnen constructies worden beschadigd door trillingen, analoog aan de trillingen veroorzaakt door een aardbeving. Explosies kunnen ook dodelijke fragmenten produceren, gevormd uit delen van een constructie waarin de explosie plaatsvindt. Bovendien produceert een chemische explosie een enorme vlam of fakkel (jet fire/flame). Net als branden kunnen explosies in gesloten ruimten ook dodelijk zijn door verstikking en de vorming van giftige verbrandingsproducten.

Basisfactoren die het destructieve effect van explosies bepalen, zijn:

1. De hoeveelheid energie die vrijkomt bij de explosie.
2. De snelheid waarmee de energie van de reactie vrijkomt, de energieafgiftesnelheid.

Explosies kunnen worden geclassificeerd zoals weergegeven in Figuur 1. Opgemerkt moet worden dat kernexplosies hier niet worden meegenomen.



Figuur 1. Classificatie van explosies [2].

Bij een chemische explosie vindt een chemische reactie plaats in de zogenaamde reactiezone die een snelle toename van het volume van de gasvormige verbrandingsproducten en de temperatuur veroorzaakt. Dit in tegenstelling tot een fysieke explosie die niet gepaard gaat met een chemische reactie. Voorbeelden van fysieke explosies zijn bijvoorbeeld het scheuren van drukvaten zoals stoomketels, banden van voertuigen die spontaan bezwijken of een ballon die barst. Bij fysieke explosies worden geen extra gasvormige (verbrandings)producten geproduceerd, behalve in de situaties waarin een (doorgaans) oververhitte vloeibare fase wordt omgezet in de gasvormige toestand. Dit laatste fenomeen wordt ook wel een Boiling Liquid Expanding Vapor Explosion (BLEVE) genoemd. De moleculen in de vloeibare en gasvormige toestand zijn echter hetzelfde, terwijl bij een chemische reactie de oorspronkelijke moleculen worden herschikt in andere moleculen.

Een chemische explosie kan worden onderverdeeld in een zogenaamde homogene en heterogene chemische explosie. Het verschil tussen beide is de duidelijke aanwezigheid van een reactiezone c.q. vlamfront tussen het onverbrande en verbrande deel van het brandbare volume. Bij een homogene chemische explosie is geen reactiefront te onderscheiden en reageert het hele volume instantaan. Bij een heterogene chemische explosie zal men het vlamfront door het brandbare volume kunnen zien bewegen, in de richting van het onverbrande deel, het verbrande deel in zijn kielzog achterlatend.

De bekendste homogene chemische explosies zijn zogenaamde thermische explosies, waarbij een instabiele stof warmte produceert als gevolg van een chemische reactie (ontleding). De geproduceerde warmte wordt onvoldoende afgevoerd waardoor de omgeving warmer wordt en de reactie sneller verloopt tot het punt dat er een runaway optreedt. Peroxiden zijn bekende voorbeelden van dergelijke onstabiele stoffen.

Een ander voorbeeld van homogene chemische explosies zijn de zogenaamde fotochemische explosies, waarbij de gemengde reactanten worden geïnitieerd door blootstelling aan licht. Een bekend voorbeeld van dit soort explosies is de fotochemische reactie tussen waterstof en chloor.

Afhankelijk van de snelheid waarmee het vlamfront door het brandbare volume beweegt ten opzichte van de geluidssnelheid in lucht, kunnen twee verschillende soorten heterogene chemische explosies worden gedefinieerd. Als de vlamsnelheid lager is dan de geluidssnelheid, wordt de explosie geclassificeerd als een deflagratie. Als de vlamsnelheid sneller is dan de geluidssnelheid, is er sprake van een detonatie

Een vlamfront kan door omstandigheden versnellen waardoor een deflagratie overgaat in een detonatie. Dit wordt DDT genoemd: deflagration to detonation transition. In hoofdstuk 2 wordt hier dieper op ingegaan. Opgemerkt moet worden dat het tegenovergestelde ook mogelijk is: het vlamfront kan vertragen, bijvoorbeeld als gevolg van een concentratieverandering of een groter warmteverlies (van een buis met een grotere diameter naar een buis met een kleinere diameter).

1.1 Eigenschappen van waterstof – oxidanten mengsels

Als we grootschalige elektrolyzersystemen beschouwen, zijn de meest relevante omgevingen voor waterstofexplosies interne explosies in de apparatuur zelf, in gebouwen waar deze apparatuur eventueel staat en externe explosies buiten de apparatuur in de openlucht. De eerste vertegenwoordigt doorgaans een mengsel van waterstof en zuurstof, terwijl de laatste twee doorgaans mengsels van waterstof met lucht vertegenwoordigen. In onderstaande tabel zijn de relevante veiligheidskenmerken samengevat.

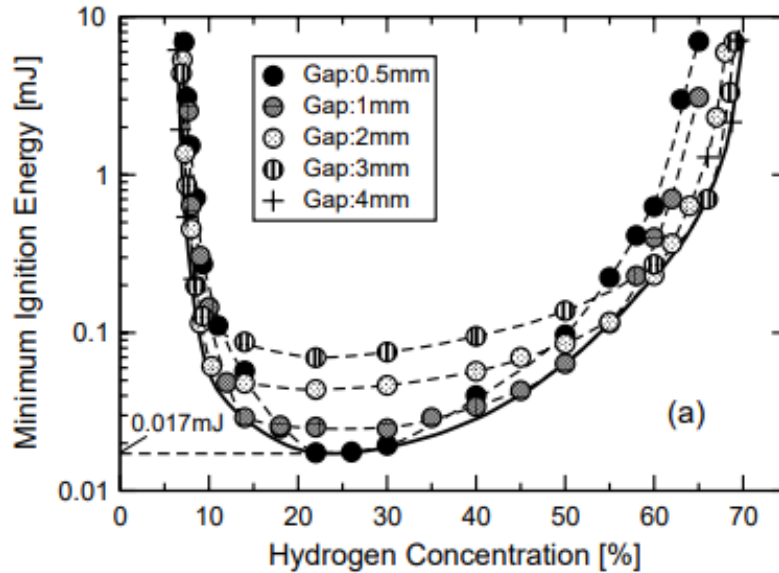
Tabel 1. Relevante parameters voor waterstofveiligheid.

Parameter	Waterstof – lucht	Waterstof – zuurstof
Ontvlambaarheidsgrenzen (omhoog gaande vlam)	4 – 75%	4 – 94%
Ontvlambaarheidsgrenzen (omlaag gaande vlam)	9 – 75%	
Detonatiegrenzen	18 – 59%	15-90%
Stoichiometrische concentratie	29.6%	66.7%
Minimale ontstekingsenergie	17 μ J	1.2 μ J
Zelfontbrandingstemperatuur	585 °C	570 °C
Adiabatische vlamtemperatuur	2403 K	3474 K
Detonatiecelgrootte (stoich.)	11 mm	\approx 1 mm
Laminaire brandsnelheid (stoich.)	2.1 m/s	\approx 10 m/s

1.2 Effect van stoichiometrie

- Stoichiometrie is een parameter die aangeeft wat de verhouding is de brandstof (hier waterstof) en de oxidant (hier zuurstof uit lucht). Indien de stoichiometrie 1 is, is er precies genoeg zuurstof om alle brandstof te verbranden. Bij een stoichiometrie lager dan 1, is er meer brandstof dan zuurstof,

bij een stoichiometrie groter dan 1 het omgekeerde. De stoichiometrie van de waterstof/lucht- en waterstof/zuurstofmengsels heeft een duidelijke invloed op de uitkomst van de initiatie- en explosieverschijnselen van deze mengsels.



Figuur 2. Ontstekingsenergie van waterstof – luchtmengsels als functie van electrode-afstand bij kamertemperatuur en atmosferische druk [3].

Omdat waterstof-zuurstofmengsels extreem lage ontstekingsenergieën hebben, is de apparatuur die nodig is voor een betrouwbare beoordeling daarvan complex en daarom ontbreken vergelijkbare gegevens zoals weergegeven in Figuur 2 in de literatuur voor deze mengsels.

- De zelfontbrandingstemperatuur van mengsels van waterstof en oxidanten is slechts een zwakke functie van de oxidantconcentratie, zoals te zien is in Figuren 3 en 4.

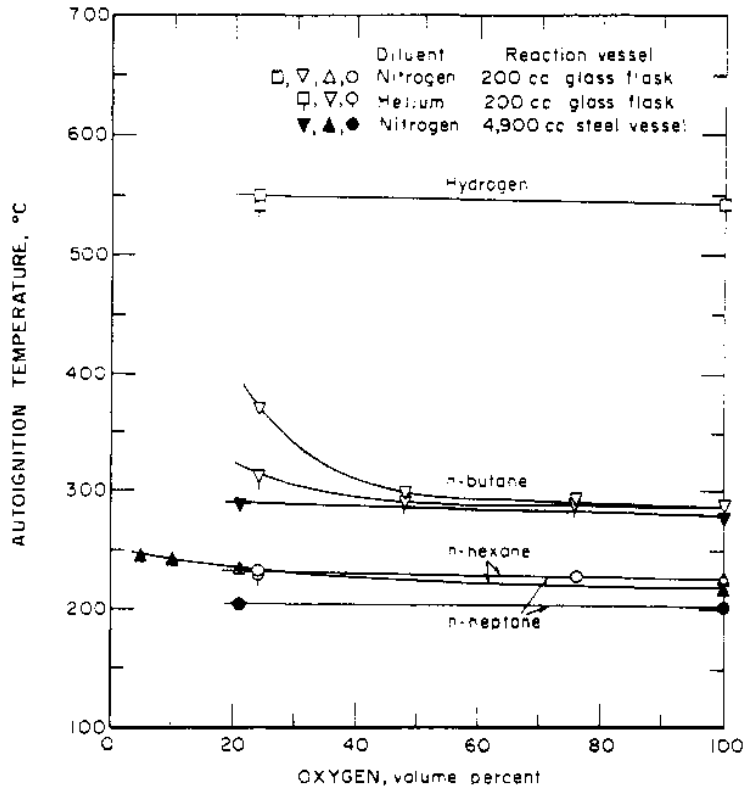
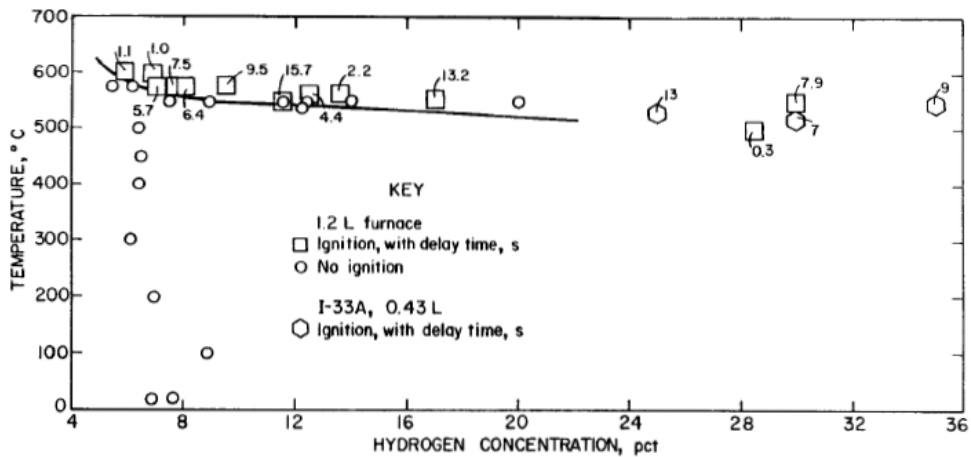
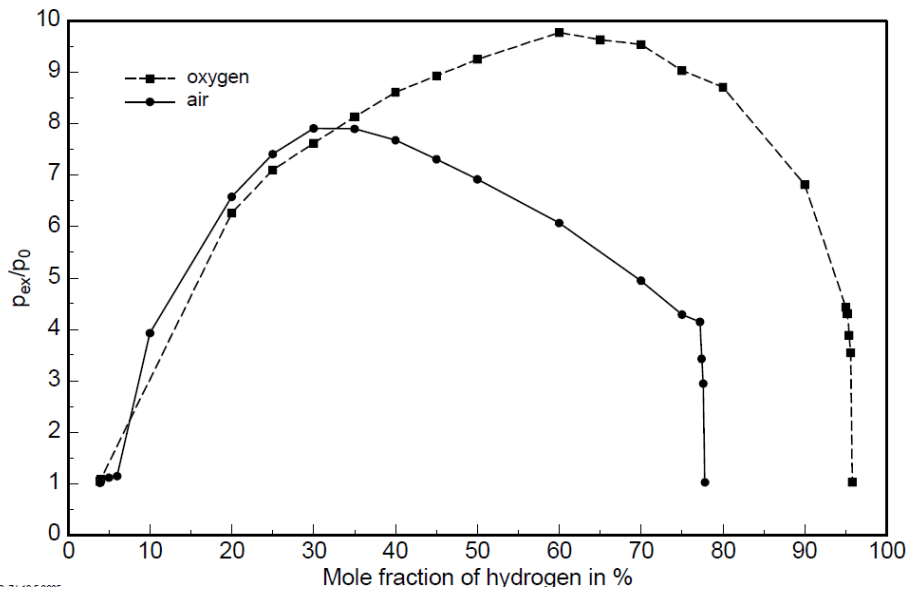


Figure 3. Zelfontbrandingstemperatuur van waterstof/zuurstofmengels als functie van oxidantconcentratie (v/v%) bij atmosferische druk [4].



Figuur 4. Zelfontbrandingstemperatuur van waterstof/luchtmengels als functie van waterstofconcentratie (v/v%) bij atmosferische druk [5].

- In Figuur 5 wordt de maximale explosiedruk gegeven voor zowel het waterstof/lucht- als het waterstof/zuurstofstelsel als functie van de waterstofconcentratie [6].



Figuur 5. Explosiedruk van waterstof/lucht- en waterstof/zuurstofmengsels als functie van waterstofconcentratie (v/v%) bij atmosferische druk [6].

- Eén van de fundamentele parameters in de verbrandingsleer is de zogenaamde laminaire verbrandingssnelheid, zie Figuur 6. De laminaire verbrandingssnelheid geeft een indicatie van de reactiviteit van de brandstof. Ter illustratie, de meeste koolwaterstoffen hebben een laminaire brandsnelheid kleiner dan 1 m/s.

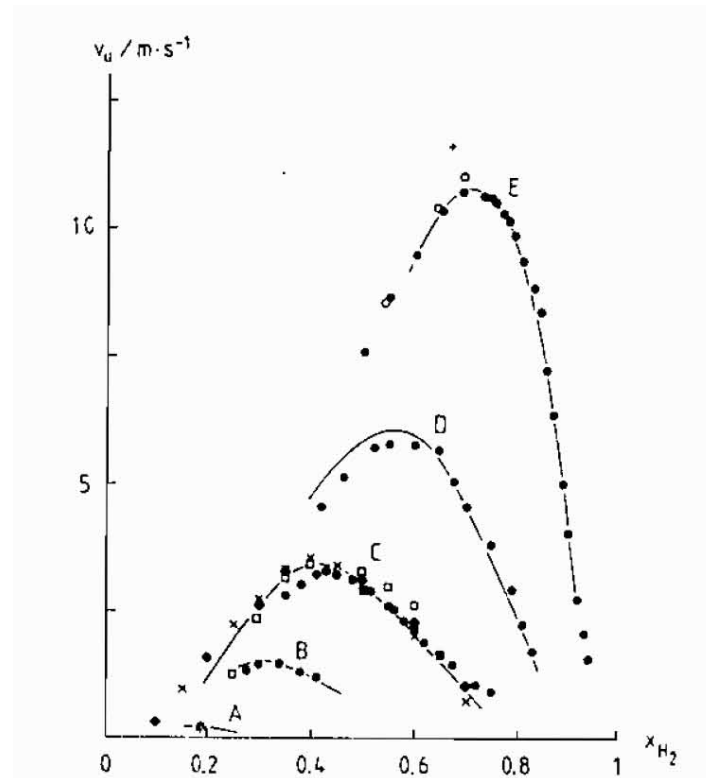
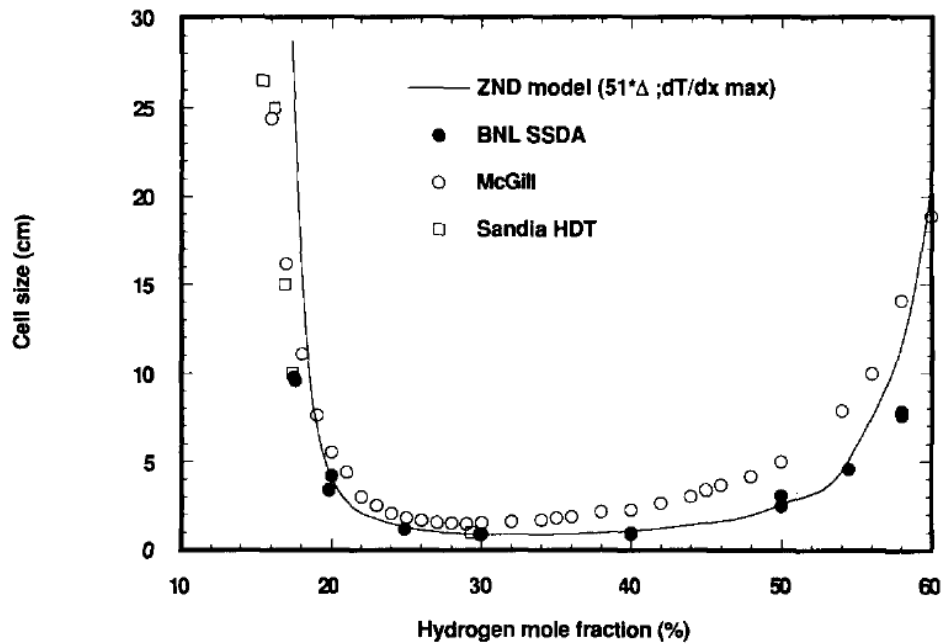


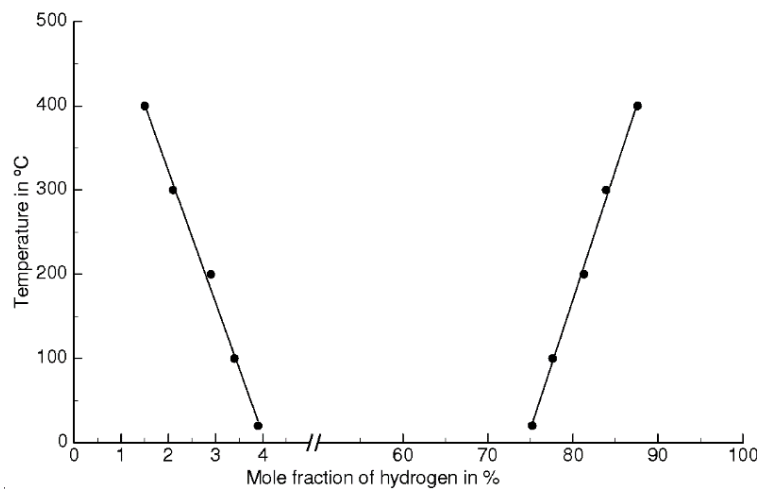
Figure 6. Laminair brandsnelheid van waterstof/lucht- (curve C) en waterstof/zuurstofmengsels (curve E) als functie van waterstofconcentratie (v/v%) bij kamertemperatuur en atmosferische druk [7].



Figuur 7. Effect van waterstofconcentratie op de zogenaamde detoniecelgrootte in waterstof/luchtmengsels bij kamertemperatuur en atmosferische druk [8].

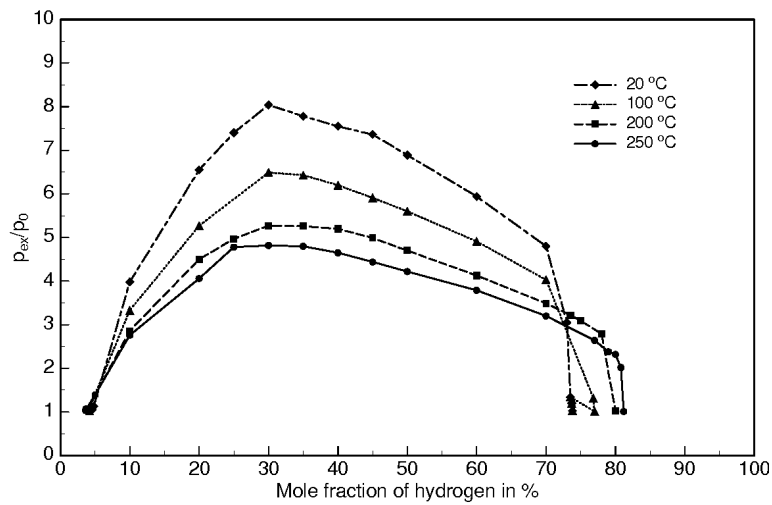
1.3 Effect van temperatuur

- Bij een stijging van de temperatuur wordt het ontvlambaarheidsgebied groter, zoals te zien is in Figuur 8.

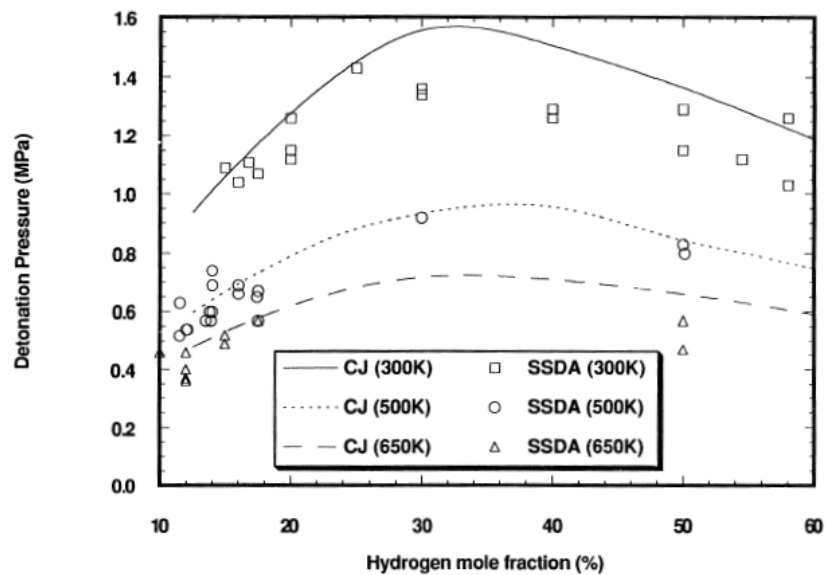


Figuur 8. Effect van temperatuur op de (deflagratie) vlamgrenzen van waterstof/luchtmengsels bij atmosferische druk [6].

- Naarmate de begintemperatuur stijgt, zal de explosiedruk afnemen, zie Figuren 9 en 10.

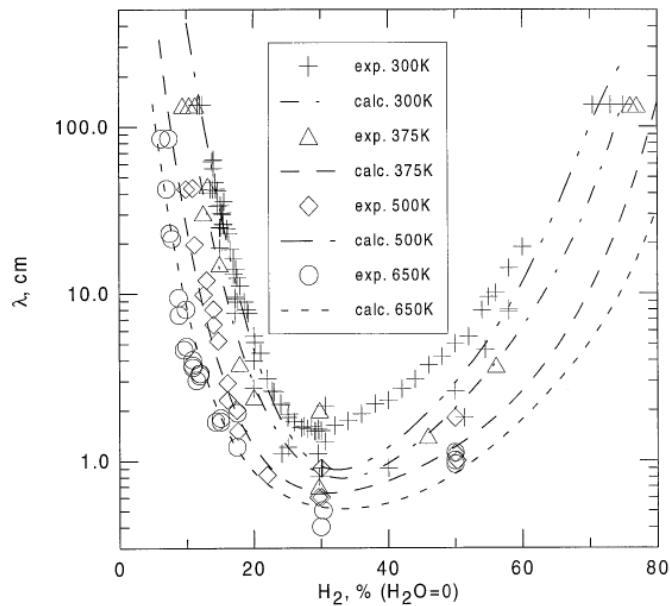


Figuur 9. De genormaliseerde deflagratiedruk van waterstof/luchtmengsels als functie van temperatuur (mol%) [6].



Figuur 10. Detonatie-druk van waterstof/luchtmengsels (mol%) als functie van temperatuur bij atmosferische druk [6].

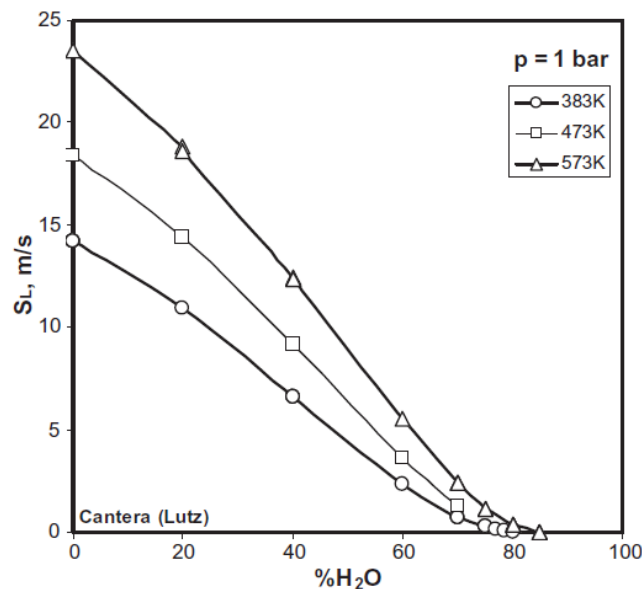
- De grootte van de detonatiecel zal afnemen naarmate de temperatuur stijgt, zoals te zien is in Figuur 12.



Figuur 11. Detonatiecelgrootte van waterstof/luchtmengsels (mol%) als functie van temperatuur bij atmosferische druk [9].

Naarmate de temperatuur stijgt, zal de ontstekingsenergie afnemen. Het wordt dan dus makkelijker om een waterstof-luchtmengsel te ontsteken. Dit komt omdat een deel van de benodigde ontstekingsenergie niet meer geleverd hoeft te worden door de ontstekingsbron aangezien de warmere omgeving die energie al geeft. Een hogere omgevingstemperatuur beïnvloedt de zelfontbrandings-temperatuur overigens nauwelijks.

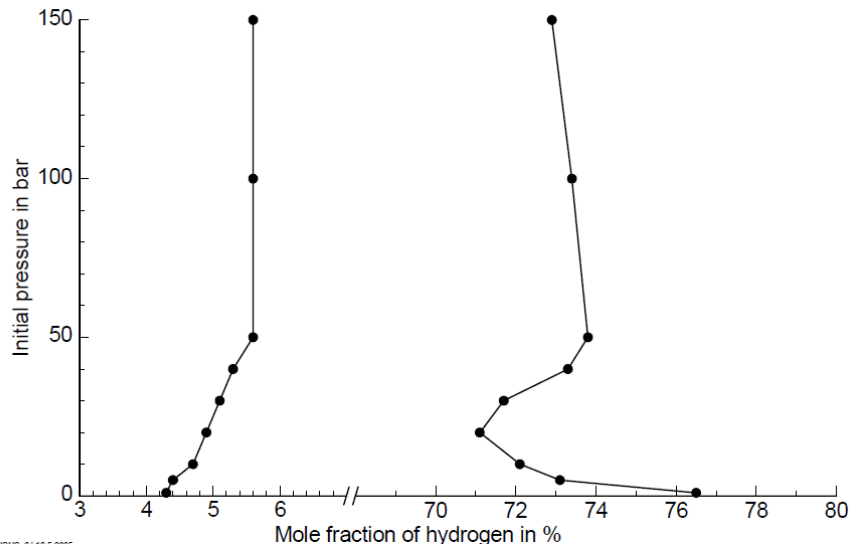
- De laminaire brandsnelheid neemt toe naarmate de begintemperatuur stijgt, zie Figuur 12.



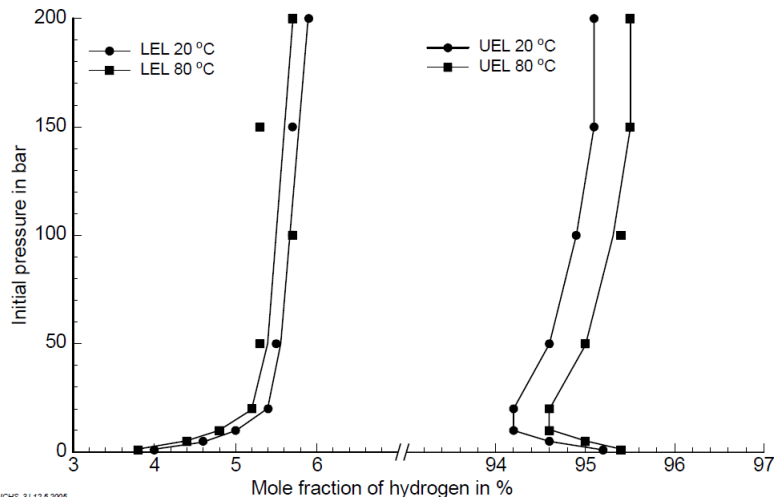
Figuur 12. Laminaire brandsnelheid van waterstof/zuurstofmengsels als functie van temperatuur bij atmosferische druk [10].

1.4 Effect van druk

- Druk heeft een beperkt effect op de explosiegrenzen, zie Figuur 13 en 14.

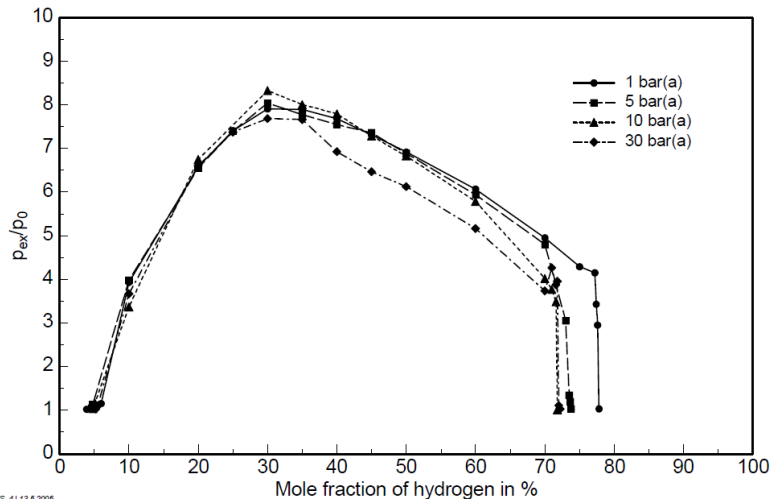


Figuur 13. Ontvlambaarheidsgrenzen van waterstof/luchtmengsels als functie van druk bij kamertemperatuur [6].



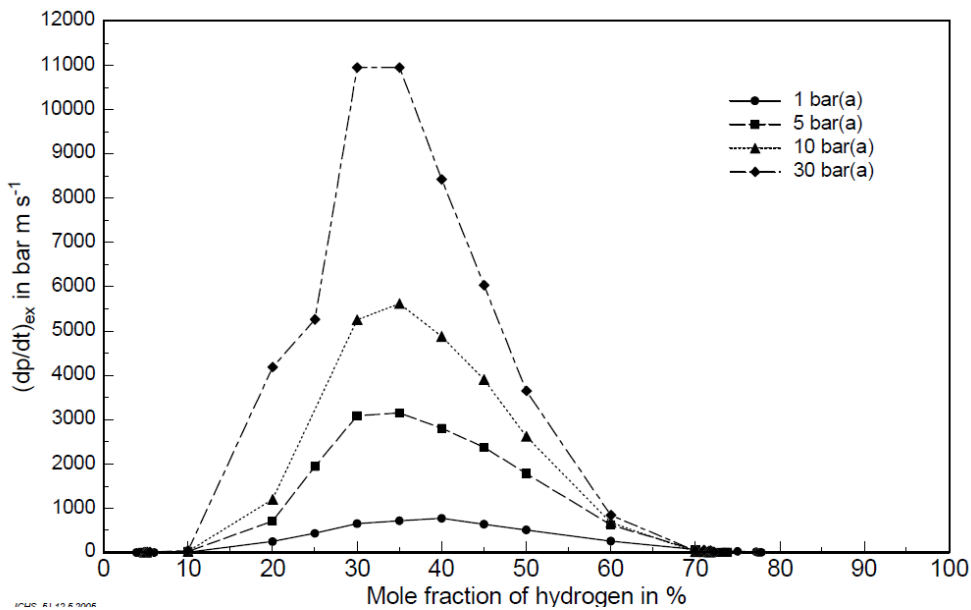
Figuur 14. Ontvlambaarheidsgrenzen van waterstof/zuurstofmengsels als functie van druk en temperatuur [6].

- Het effect van begindruk (druk van het mengsel net voor ontsteking) op de explosiedruk wordt gegeven in Figuur 15. Let op dat de einddruk in Figuur 15 genormaliseerd is ten opzichte van de initiële druk. Derhalve zal de absolute explosiedruk lineair toenemen met de toename van de begindruk.



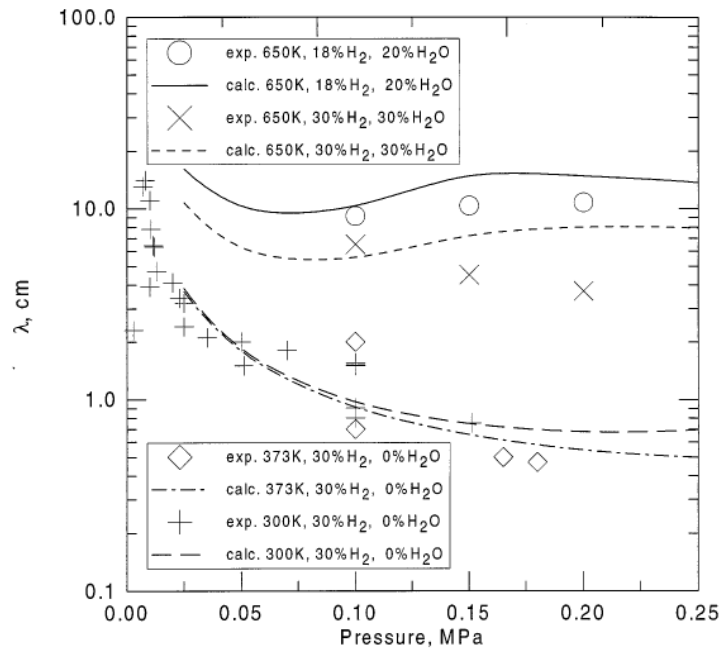
Figuur 15. Maximale explosiedruk als functie van begindruk en waterstofconcentratie voor waterstof/luchtmengsels bij kamertemperatuur [6].

- Het effect van de begindruk wordt het best begrepen als we kijken naar het effect ervan op de maximale drukstijgsnelheid, zie Figuur 16.



Figuur 16. Maximale explosiedrukstijgsnelheid van waterstof/luchtmengsels als functie van begindruk en waterstofconcentratie bij kamertemperatuur [7].

- Het effect van druk op de grootte van de detonatiecel wordt gegeven in Figuur 17.



Figuur 17. Detonatiecelgrootte als functie van begindruk bij verschillende temperaturen [10].

2 Deflagration to detonation transition (DDT)

2.1 Mechanisme

Het concept van de overgang van een deflagratie naar een detonatie, afgekort als DDT, staat bekend als één van de moeilijkste verbrandingsverschijnselen die op dit gebied bekend zijn. Het is afhankelijk van een breed scala aan parameters, waaronder de reactiviteit van de brandstof, de concentratie van de brandstof in de oxidator (meestal lucht of zuurstof), obstakels, druk, temperatuur, ontstekingslocatie, beginturbulentie, ruwheid van de wand in geval van interne explosies en verschillende andere parameters. Vanwege deze afhankelijkheden is de beschrijving en daarmee de simulatie van dit fenomeen een uitdaging.

Om het principe van een DDT te begrijpen, kunnen in het algemeen de volgende stappen worden onderscheiden. Bij het ontsteken van een brandbaar (detoneerbaar) mengsel zal zich, afhankelijk van de locatie van de ontstekingsbron, een kleine vlamkern in (half)bolvorm ontwikkelen. Het vlamfront zal in eerste instantie glad zijn, maar door het uitrekken van de vlam begint het te rimpelen. Bij aanwezigheid van een wand is de vlamvergroting (flame stretch) met name in de grenslaag met de wand dominant. Door het vergrootte vlamoppervlak begint de vlam te versnellen en worden drukgolven gegenereerd die zich met hogere snelheden (geluidssnelheid in het gegeven medium en onder de gegeven omstandigheden) stroomopwaarts van het vlamfront voortbewegen, waardoor schokgolven ontstaan die ver vóór het vlamfront liggen. Omdat er op een bepaald punt slechts een eindige grenslaagdikte is [11], kan de vlamversnelling worden beschreven door een machtswet die ervoor zorgt dat de vlam steeds dichterbij de zich voortplantende schokgolven komt. Op een gegeven moment zullen deze schokgolven net vóór het vlamfront worden gevormd en begint het vlamfront een brandbaar mengsel tegen te komen bij aanzienlijk hogere begintemperaturen dan ver vóór het vlamfront. Zoals bekend is van het Arrhenius-concept [12], hoe hoger de temperatuur, hoe sneller de reactie. Daarom neemt de verbrandingssnelheid toe en neemt de lokale druk toe. Bovendien wordt de dichtheid van het ontvlambare mengsel verhoogd als gevolg van de schok en daardoor neemt de

hoeveelheid beschikbare/vrijgegeven energie per volume-eenheid toe. Zowel het effect van de verhoogde temperatuur als de dichtheid zorgen ervoor dat de vlam onder de gegeven omstandigheden versnelt tot de geluidssnelheid, wat leidt tot de overgang naar de detonatie.

Een algemene misvatting bij het begrijpen van een DDT is dat, om de detonatiefase te bereiken, de aanwezigheid van een zeer turbulente vlam de enige, meest cruciale factor voor de overgang is. Dit veranderde met het werk van Zel'dovich [13] die aantoonde dat turbulentie niet de bepalende factor is voor de versnelling van een vlam in een pijp met gladde wanden die leidt tot de overgang naar een detonatie. Belangrijker is dat de interactie van de zich voortplantende vlam met het stroom-opwaartse stromingsveld het grootste deel van de vlamversnelling zal opleveren. Als gevolg van het rimpelen en uitrekken van de vlam in interactie met het stroomopwaartse niet-uniforme snelheidsveld, wordt de overgang van de deflagratie naar een detonatie bereikt. Het vlamfront zal in het onverbrande mengsel vlak vóór het front zogenaamde hotspots genereren en deze hotspots zullen de vorming van een detonatie initiëren. Dit wordt het Zel'dovich-gradiëntmechanisme [14] genoemd en betekent dat de overgang naar detonatie plaatsvindt tussen de voorliggende schokgolf en het vlamfront.

Lee en Moen [15] presenteerden een soortgelijk concept als het Zel'dovich-gradiëntmechanisme, aangeduid als SWACER – Shock Wave Amplification by Coherent Energy Release. Dit concept laat ook zien dat de overgang naar detonatie plaatsvindt in het gebied tussen de precursor-schokgolf en het vlamfront op basis van de aanwezigheid van een voldoende 'sterke' temperatuurgradiënt (hotspots).

Dit betekent ook dat zodra een detonatie is ingezet, deze zich als zodanig zal blijven voortplanten zonder dat er sprake hoeft te zijn van 'extra turbulentie-opwekking' door interactie van het front met de buis of enige vorm van obstakels, op voorwaarde dat het brandbare mengsel vóór het vlamfront binnen de detonatiegrenzen ligt en het volume van het brandbare mengsel voldoende groot is om de detonatie in stand te houden [16].

Om een detonatie te laten plaatsvinden, moet de grootte van de detonatiecel [17] van het ontvlambare mengsel kleiner zijn dan de karakteristieke lengteschaal van de wolk. Bij een detonatie in een buis betekent dit dat wanneer de binnendiameter van de buis kleiner is dan de detonatiecelgrootte van het betreffende mengsel, er geen zichzelf in stand houdende detonatie zal ontstaan. Het betekent echter wel dat een vlam met subsonische snelheid kan versnellen tot het detonatiepunt, dat de detonatiegolf voor een kort moment wordt bereikt en zelfs kan worden overbelast (hogere drukpiek dan de stabiele detonatiedruk), maar door de verschil in voortplantingsmechanisme (voorverwarmen voor deflagratie versus schokcompressie voor een detonatie), kan de detonatiegolf zichzelf niet in stand houden en wordt de vlam weer subsonisch. Indien stroomopwaarts een brandbaar mengsel aanwezig is, zal de vlam weer versnellen, enzovoort.

De grootte van de detonatiecel wordt bepaald door de reactiekinetiek van het gasmengsel en is dus een functie van de heersende druk en temperatuur. Omdat de kinetiek een dominant effect heeft op de grootte van de detonatiecel en zoals getoond in het vorige hoofdstuk (hoofdstuk 1) geldt, hoe hoger de temperatuur, hoe kleiner de afmetingen van de detonatiecel en hoe breder de ontvlambare grenzen van de detonatie. De grootte van de detonatiecel kan experimenteel worden bepaald [17], maar vergt vergaande experimentele kennis omdat het patroon van de cellen soms onregelmatig is, waardoor een eenduidige beoordeling niet mogelijk is. De grootte van de detonatiecel kan niet direct in verband worden gebracht met andere detonatieparameters en moet meer worden beschouwd als een 'technisch' instrument, uitsluitend voor evaluatiedoeleinden.

Zoals eerder genoemd kan bij de overgang van een deflagratie naar een detonatie een zogenaamde 'overdriven' detonatie ontstaan. Dit is een onstabiele vorm van de detonatiefase met snelheden (en drukken) hoger dan de overeenkomstige (stabiele) Chapman-Jouguet-detonatiesnelheid. De 'overdriven' detonatie zal vervolgens snel vervallen naar de stabiele situatie. Naarmate de deflagratie versnelt, worden de drukgolven die voor de vlam uitgaan gereflecteerd en produceren deze drukfluctuaties in de boegschokgolf. Wanneer het front bijvoorbeeld tegen een obstakel botst, hebben de reflecties een grotere neiging om onregelmatig te worden, waardoor de 'overdriven' detonatie ontstaat.

2.2 Run up distance (L/D)

Zoals vermeld in de vorige paragraaf is het DDT-fenomeen complex en daarom zijn betrouwbare voorspellingsinstrumenten schaars. Uiteindelijk zal het gebruik van Computational Fluid Dynamics (CFD) tools een beter begrip van het fenomeen mogelijk maken samen met experimentele validatie, hoewel dat voor praktische situaties nog steeds een lastige opgave zal zijn. De belangrijkste reden hiervoor is dat je in praktische situaties te maken kunt krijgen met concentratiegradiënten (zowel in apparatuur als in een wolk), verschillende geometrieën of verschillende niveaus van obstakels (ook wel de 'blockage ratio' genoemd), mogelijk temperatuur- en drukgradiënten, de aanwezigheid van andere stoffen (brandbaar of inert) en verschillende andere variabelen. Experimenteel levert dit een onmogelijke matrix op om te testen, ook wetende dat er sprake zal zijn van spreiding in de verkregen gegevens, aangezien het repliceren van bijvoorbeeld gradiënten zeer moeilijk is. Numeriek kan de bovengenoemde matrix worden beoordeeld, maar uiteindelijk zal een experimentele validatie nodig zijn, wat mogelijk de betrouwbaarheid van de uitkomst van de berekeningen zal beïnvloeden.

Hoewel verre van ideaal, kan een engineering benadering een eerste startpunt bieden bij de beoordeling van de waarschijnlijkheid van een overgang van deflagratie naar detonatie. Voor dit doel is de zogenaamde 'aanloopafstand' (run up distance) voor een DDT door talrijke onderzoekers onderzocht, vooral in buizen met goed gedefinieerde homogene concentraties van de brandbare gassen. De aanloopafstand kan als volgt worden begrepen. Wanneer het waterstof/luchtmengsel wordt ontstoken, begint het zich subsonisch voort te planten. Door de wrijving ontstaat er turbulentie die het verbrandingsproces zal bevorderen, waardoor de vlamsnelheid toeneemt en daardoor het vlamfront zal versnellen. Om de detonatiesnelheid te bereiken is een bepaalde minimale afstand nodig: de aanloopafstand.

Als voorbeeld heeft Silvestrini et al. [18] een relatie gegeven voor de zogenaamde aanloopafstand voor een deflagratie-naar-detonatie-overgang (DDT) in gladde buizen voor onder meer waterstof/luchtmengsels, zie vergelijking (1).

$$\frac{L}{D} = \frac{1}{0.0061 * (\sigma - 1)} \left(\frac{0.15}{D} \right)^{0.4} \ln \left(0.077 \frac{V_{CJ}}{\sigma * S_l} \right) \quad (1)$$

Hier is L de aanloopafstand voor DDT in gladde buizen (m), D is de diameter van de buis (m), σ de uitzettingsverhouding tussen dichtheden van onverbrande en verbrande gassen, V_{CJ} de Chapman-Jouguet-detonatiesnelheid (m/s) en S_l is de laminaire brandsnelheid.

Als er obstakels zijn in diezelfde gladde buizen, in dit specifieke geval verschillende openingen, is er ook door Silvestrini et al. [18] een relatie opgesteld voor de aanloopafstand, zie vergelijking (2).

$$\left(\frac{L}{D} \right)_{DDT, obst} = \frac{1}{1 + 15 * BR} \left(\frac{L}{D} \right)_{DDT, s} \quad (2)$$

Waarbij BR de zogenaamde Blockage Ratio vertegenwoordigt, die wordt gedefinieerd als:

$$BR = \left(\frac{D^2 - d^2}{D^2} \right) \quad (3)$$

en d is de diameter van de opening. Zoals aangegeven door Silvestrini et al. [18] kan vergelijking (2) worden gebruikt met BR's tot 0,5 – 0,6. Beide bovenstaande vergelijkingen (vergelijkingen (1) en (2)) voor de bepaling van de aanloopafstand werden opgesteld door middel van curve-fitting op basis van beschikbare literatuur. De literatuurgegevens waren gebaseerd op omgevingsdruk en -temperatuur. Dit toont ook de beperkte generieke geldigheid van deze vergelijkingen aan.

Dorofeev [19] heeft een uitgebreider model opgesteld voor het voorspellen van de aanloopafstand in gladde buizen met een wandruwheid d , zie vergelijkingen (4) – (6).

$$\frac{L}{D} = 5\gamma \left[\frac{1}{0.4} \ln \left(\gamma \frac{D}{d} \right) + 5.5 \right] \quad (4)$$

met

$$\frac{D}{d} = \left[\left(\frac{2}{1 - (1 - BR)^{0.5}} \right) \right] \quad (5)$$

en

$$\gamma = \left[\frac{C}{\beta(\sigma - 1)^2 S_l} \left(\frac{\delta}{D} \right)^{\frac{1}{3}} \right]^{1/(2m + \frac{7}{3})} \quad (6)$$

Met σ de verhouding tussen de onverbrande en verbrande gassen, S_l de laminaire brandsnelheid en δ de vlamdikte. Voor gladde buizen ($BR < 0,1$) en via curve-fitting werden de waarden voor de constanten in vergelijking (6) bepaald: $\beta = 2,15$ en $m = -0,17$.

Er zijn nog meer modellen beschikbaar in de literatuur, elk met hun voor- en nadelen. Beide bovengenoemde modellen vereisen gedetailleerde en specialistische input. Desondanks is vooral het model van Silvestrini et al. [18] een goed startpunt voor het geven van initiële schattingen van de potentiële aanloopafstanden die verwacht mogen worden.

2.3 Potentieel van een DDT in de open lucht

In de voorgaande paragrafen werd de vlamversnelling bereikt als gevolg van de interactie van de schokgolven, het stroomopwaartse stromingsveld en het vlamfront in een gesloten omgeving, zijnde buizen. In het geval van een lek kan er in de open lucht een mogelijkheid bestaan van een overgang van deflagratie naar detonatie (DDT), afhankelijk van de locatie, de grootte van het lek, de grootte van de wolk, de windomstandigheden, de mate van obstakels en verschillende andere parameters.

Vergeleken met de gesloten situatie (buis) komt de overgang naar een detonatie in de open lucht zelden voor en dit komt vooral doordat het koppelingseffect tussen het vlamfront en het stroomopwaartse stromingsveld in combinatie met de reflectie van schokgolven moeilijker te realiseren is. In een waterstof/lucht-gaswolk (tenzij het een zeer substantiële wolk is) is het onwaarschijnlijk dat de vlamversnelling het detonatiepunt bereikt. Als er obstakels aanwezig zijn, wordt de mogelijkheid van

een overgang van een deflagratie naar een detonatie waarschijnlijker. In het overzichtsartikel van Chamberlain et al. [20] wordt een overzicht gegeven van daadwerkelijke DDT's in gaswolkexplosies in de chemische procesindustrie. In het geval van een DDT was een ontvlambare gaswolk met brandstof zwaarder dan lucht het meest voorkomende scenario, in combinatie met een vertraagde ontsteking, bij weinig wind en met de aanwezigheid van obstakels. Meestal bestonden de obstakels uit apparatuur, maar bijvoorbeeld bij het ongeluk in Buncefield [20] wordt aangenomen dat de vegetatie grotendeels verantwoordelijk was voor de vlamversnelling. Bij een DDT van een groot lek was de vertraagde ontsteking minder bepalend, maar meer de grootte en vorm van de gevormde wolk onder dezelfde metrologische omstandigheden en de aanwezigheid van obstakels.

Zoals gezegd vonden de meeste van deze DDT's in de chemische procesindustrie plaats met koolwaterstoffen die zwaarder zijn dan lucht. Vanwege het feit dat waterstof lichter is dan lucht, is de vorming van een aanzienlijke dampwolk op het directe en/of aangrenzende terrein van een chemische fabriek minder eenvoudig te bereiken en daarmee de vlamversnelling. Daar staat tegenover dat de laminaire brandsnelheid van waterstof ten opzichte van de meeste koolwaterstoffen ongeveer een factor 10 groter is, alsmede dat het ontvlambare bereik van waterstof aanzienlijk groter dan dat van de meeste koolwaterstoffen. Volgens Chamberlain et al. [20] werd er slechts één DDT geregistreerd met waterstof en dit was de waterstofexplosie in de kerncentrale van Fukushima, Japan in 2011.

2.4 Directe initiatie

Een brandbaar waterstof-oxidantmengsel kan, wanneer het zich qua concentratie binnen het detonatiebereik bevindt, ook direct detoneren wanneer de ontstekingsbron hiertoe voldoende sterk is. Dit betekent dat er een aanzienlijke hoeveelheid energie in een zeer klein volume in het brandbare mengsel wordt gebracht, zoals bijvoorbeeld een chemische ontsteker. Bij ontsteking wordt het systeem direct in de 'overdriven' detonatiesituatie gebracht en vervalt vervolgens naar een stabiele detonatie onder de voorwaarde dat zich stroomopwaarts van het front brandbaar (detoneerbaar) materiaal bevindt.

In de praktijk zullen er in een chemische fabriek geen chemische ontstekers zijn. Directe detonatie is echter nog steeds mogelijk door middel van een open vlam, of, in geval van een ongeval, een zogenaamde jet ignition. Knystautas et al. [21] toonde aan dat een zeer turbulente straal van hete verbrandingsproducten in staat is een brandbare wolk te ontsteken en zo detonatie te bewerkstelligen. In de chemische procesindustrie [20] zijn verschillende explosies geregistreerd als gevolg van de aanwezigheid van een jefire, bijvoorbeeld afkomstig uit een ventilatieopening. Onder deze omstandigheden is een bepaald minimaal kritisch volume van de hete verbrandingsproducten nodig om de directe detonatie te initiëren. Dit kan worden gekoppeld aan de grootte van de detonatiecel (λ) [22] en is een minimale jefire-diameter (d) gelijk aan $d/\lambda = 13$ nodig om een directe detonatie te initiëren. Gezien de kleine omvang van de detonatiecellen van vooral waterstof/zuurstofmengsels is de kans op het initiëren van een directe detonatie met een jefire zeer waarschijnlijk. Voor waterstof/luchtmengsels is – vanwege een verschil in detonatiecelgrootte van grofweg een factor 10 vergeleken met zuurstof als oxidator – de kans op een directe detonatie-initiatie kleiner, maar niet verwaarloosbaar.

Referenties

1. ISPT, Safety aspects of green hydrogen production on industrial scale, August 2023.
2. Pasman, H. J., and S. M. Lemkowitz. *Chemical Risk Management: Safety, Health, Environmental and Sustainability Aspects of Chemical Products and Processes: risicobeheersing*. TU Delft, Faculteit der Technische Natuurwetenschappen, 2002.
3. Ono, R., & Oda, T. (2008, December). Spark ignition of hydrogen-air mixture. In *Journal of Physics: Conference Series* (Vol. 142, No. 1, p. 012003). IOP Publishing.
4. Furno, A. L., Imhof, A. C., & Kuchta, J. M. (1968). Effect of pressure and oxidant concentration on auto-ignition temperatures of selected combustibles in various oxygen and dinitrogen tetroxide atmospheres. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 13(2), 243-249.
5. Conti, R. S., & Hertzberg, M. (1988). Thermal autoignition temperatures for hydrogen-air and methane-air mixtures. *Journal of fire sciences*, 6(5), 348-355.
6. Schröder, V., & Holtappels, K. (2005). Explosion characteristics of hydrogen-air and hydrogen-oxygen mixtures at elevated pressures.
7. Warnatz, J. (1981). Concentration-, pressure-, and temperature-dependence of the flame velocity in hydrogen-oxygen-nitrogen mixtures. *Combustion Science and Technology*, 26(5-6), 203-213.
8. Ciccarelli, G., Ginsberg, T., Boccio, J., Economos, C., Sato, K., & Kinoshita, M. (1994). Detonation cell size measurements and predictions in hydrogen-air-steam mixtures at elevated temperatures. *Combustion and Flame*, 99(2), 212-220.
9. Gavrikov, A. I., Efimenko, A. A., & Dorofeev, S. B. (2000). A model for detonation cell size prediction from chemical kinetics. *Combustion and flame*, 120(1-2), 19-33.
10. Kuznetsov, M., Redlinger, R., Breitung, W., Grune, J., Friedrich, A., & Ichikawa, N. (2011). Laminar burning velocities of hydrogen-oxygen-steam mixtures at elevated temperatures and pressures. *Proceedings of the Combustion Institute*, 33(1), 895-903.
11. Liberman, M. A., Ivanov, M. F., Kiverin, A. D., Kuznetsov, M. S., Chukalovsky, A. A., & Rakhimova, T. V. (2010). Deflagration-to-detonation transition in highly reactive combustible mixtures. *Acta Astronautica*, 67(7-8), 688-701.
12. Pauling, L. (1988). *General chemistry*. Courier Corporation.
13. Zel'dovich, Y. B. (1947). On the theory on transition to detonation in gases. *Zhurnal Tekhniceskoj Fiziki*, 17, 3-26.
14. Zeldovich, Y. B. (1980). Regime classification of an exothermic reaction with nonuniform initial conditions. *Combustion and Flame*, 39(2), 211-214.
15. Lee, J. H. S., & Moen, I. O. (1980). The mechanism of transition from deflagration to detonation in vapor cloud explosions. *Progress in Energy and Combustion Science*, 6(4), 359-389.
16. Pekalski, A., Puttock, J., & Chynoweth, S. (2015). Deflagration to detonation transition in a vapour cloud explosion in open but congested space: Large scale test. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 36, 365-370.
17. Vasiliev, A. A., & Nikolaev, Y. (1980). Closed theoretical model of a detonation cell. In *Gasdynamics of Explosions and Reactive Systems* (pp. 983-996). Pergamon.
18. Silvestrini, M., Genova, B., Parisi, G., & Trujillo, F. L. (2008). Flame acceleration and DDT run-up distance for smooth and obstacles filled tubes. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 21(5), 555-562.
19. Dorofeev, S. B. (2007). Run-up distances to supersonic flames in smooth tubes. *Proceedings of the 21st international colloquium on the dynamics of explosions and reactive systems, Poitiers, France*.
20. Chamberlain, G., Oran, E., & Pekalski, A. (2019). Detonations in industrial vapour cloud explosions. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 62, 103918.

21. Knystautas, R., Lee, J. H. S., Moen, I. O., & Wagner, H. G. (1979). Seventeenth symposium (international) on combustion. *The Combustion Institute, Pittsburgh*, 1235.
22. Carpio, J., Iglesias, I., Vera, M., Sánchez, A. L., & Liñán, A. (2013). Critical radius for hot-jet ignition of hydrogen–air mixtures. *International Journal of Hydrogen Energy*, 38(7), 3105-3109.