INCREASING RATE OF HYDROGEN PERMEATION THROUGH PIPES AND VESSEL WALLS

Supawadee Ratanaphand

A Thesis Submitted in Partial Fulfilment of the Requirements
for the Degree of Master of Science
The Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University
in Academic Partnership with
The University of Michigan, The University of Oklahoma,
and Case Western Reserve University
2010

Thesis Title:	Increasing Rate of Hydrogen Permeation through Pipes and Vessel Walls
By:	Supawadee Ratanaphand
Program:	Petrochemical Technology
Thesis Advisors:	Prof. Frank R. Steward
	Andrew Justason
	Kelly Mckeen
	Assoc. Prof. Thirasak Rirksomboon

Accepted by the Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University, in partial fulfilment of the requirements for the Degree of Master of Science.

..... Dean
(Asst. Prof. Pomthong Malakul)

Thesis Committee:

..... (Prof. Frank R. Steward)

..... (Assoc. Prof. Thirasak Rirksomboon)

..... (Andrew Justason)

..... (Kelly Mckeen)

..... (Assoc. Prof. Anuvat Sirivat)

..... (Dr. Orawee Silpsrikul)

บทคัดย่อ

สุภาวดี รัตนพันธ์: ชื่อหัวข้อวิทยานิพนธ์ การเร่งอัตราการแพร่ของไฮโดรเจนผ่านท่อและผนังภาชนะโลหะ (Increasing Rate of Hydrogen Permeation Through Pipes and Vessel Walls) อ. ที่ปรึกษา : รศ.ดร. ธีรศักดิ์ ฤกษ์สมบูรณ์, ศ.ดร. แฟร้งค์ อาร์ สจ๊วต, แอนดรู จัสต์อะซัน และ เคลลี่ แมคคีน, 96 หน้า

ไฮโดรเจนสามารถแพร่เข้าสู่เนื้อโลหะในรูปของไฮโดรเจนอะตอมซึ่งไฮโดรเจนมาจากกระบวนการกัดกร่อนหรือไฮโดรเจนจากกระบวนการผลิตในอุตสาหกรรม อะตอมไฮโดรเจนแพร่เข้าสู่โลหะได้เนื่องจากมีขนาดเล็ก เมื่อแพร่แล้วรวมตัวกันเป็นก๊าซไฮโดรเจนจึงมีแรงดันสูงจึงลดความแข็งแรงของโลหะลงสามารถทำให้เกิดการแตกร้าวจากโฮโดรเจน(Hydrogen Embrittlement) ดังนั้นจำเป็นต้องเพิ่มอัตราการแพร่ของไฮโดรเจนในเนื้อโลหะเพื่อป้องการเสื่อมสภาพของโลหะ งานวิจัยนี้ศึกษาการแพร่ของไฮโดรเจนผ่านเหล็กกล้าและแฮสเทลลอยด์ซึ่งเป็นโลหะที่ใช้อย่างแพร่หลายในอุตสาหกรรม งานวิจัยทำการศึกษาปัจจัยของอุณหภูมิและอุณหภูมิต่ำที่สุดที่ไฮโดนเจนสามารถแพร่ผ่านได้ โดยศึกษาผลกระทบของฟิล์มออกไซด์ซึ่งเกิดที่ผิวด้านนอกของโลหะและประพฤติตัวเป็นฟิล์มต้านทานการแพร่ ฟิล์มนี้มีผลมากต่อเหล็กกล้า แต่เกือบไม่มีผลต่อแฮสเทลลอยด์ นอกจากนั้นได้ศึกษาผลกระทบของการเคลือบตัวเร่งปฏิกิริยาพัลเลเดียม (Pd) ที่ผิวนอกของท่อโลหะเช่นกัน โดยเปรียบเทียบอัตราการแพร่ของท่อที่เคลือบตัวเร่งปฏิกิริยาและท่อที่ไม่ได้เคลือบตัวเร่งปฏิกิริยา ผลการวิจัยพบว่าตัวเร่งปฏิกิริยาสามารถเร่งอัตราการแพร่ของไฮโดรเจนอย่างชัดเจนกับเหล็กกล้า แต่ไม่สามารถเร่งอัตราการแพร่ของไฮโดรเจนผ่านแฮสเทลลอยด์

ABSTRACT

5171025063: Petrochemical Technology Program
Supawadee Ratanaphand: Increasing Rate of Hydrogen Permeation through Pipes and Vessel Walls
Thesis Advisors: Prof. Frank R. Steward, Andrew Justason, Kelly McKeen, and Assoc. Prof. Thirasak Rirksomboon, 96 pp.

Keywords: Hydrogen permeation/ Oxide films/ Palladium/ Hydrogen embrittlement / Carbon Steel/Hastelloy

Hydrogen can enter in a metal during corrosion processes or other industrial processes. Atomic hydrogen can diffuse through the metallic lattice because of its small size. Its interaction can result in various types of embrittlement. Therefore, efficient hydrogen removal is desirable. In this work, hydrogen permeation was studied in carbon steel A-179 and Hastelloy C-276, which are commonly used as structural material for equipment in industry. Diffusion of hydrogen was measured using gas phase permeation techniques. The effect of temperature on hydrogen transport has been investigated. The minimum temperature ranges that hydrogen can diffuse through these two metals were determined. It was found that the lowest temperature of hydrogen permeation through carbon steel is in the range of $90 \leq T \leq 150$°C and $200 \leq T \leq 250$°C for hastelloy. Passive oxide films were allowed to form on the outside surface of tube used in the tests. In the permeation mechanism, the iron oxide films behave as a barrier to hydrogen transport. The effect of a catalyst covering the outside surface was studied. The metal was coated with palladium to compare the diffusion rate with and without the presence of palladium on the outside tube surface. A palladium coating on the external surface of carbon steel gives a higher hydrogen permeation rate whereas there is no noticeable effect on hydrogen permeation rate through hastelloy.

ACKNOWLEDGEMENTS

My master thesis could not be accomplished without the support of several distinguished people. First, I would like to thank my extraordinary advisor, Dr. Frank R. Steward for giving me an opportunity to work under his direct supervision, finding time for the endless hours of discussion, answering all my questions and encouraging me throughout my stay in Canada.

I would like to thank Center for Nuclear Energy Research (CNER) especially the chemical team: Andy Justason, Kelly McKeen, BK Gray, Chester Morris, Steven Nancekivell and Chutima Kongvarhodom for helping me with my experiment, solving all technical problems, discussing a bunch of my results and coaching me in every way. Without them, my thesis would not have been possible. In addition, many thanks go to Dr. Derek H. Lister, who always gave valueable suggestions. I would also like to acknowledge and thank Dr. Suporn Boonsue who analyzed my samples, gave me a helpful advice and thoughtful discussion.

My appriciation goes to my friends in Fredericton, especially the Hickey family, Kittima Khumsa-ang, Piti Srisukvatananan and his wife and all thai students, who always give me the love, support and endless care.

In Thailand, I would like to express my gratitude to Dr. Thirasak Rirksomboon who served as my Thai advisor. I want to thank all the lecturers and my fellow classmates in the Petroleum and Petrochemical College (PPC), especailly Angkana Luttikul, who came with me at Fredericton and became my roommate, for sharing enjoyments of overseas life. Moreover, I want to thank the Petroleum and Petrochemical College and the National Center of Excellence for Petroleum, Petrochemicals, and Advanced Materials, Thailand.

Finally, I want to give my personal thank you to my family for their unconditional support and understanding and to all the others who provided advice and encouragement over the two year of my master at PPC.

TABLE OF CONTENTS

CHAPTER PAGE

CHAPTER PAGE

CHAPTER PAGE

LIST OF TABLES

LIST OF FIGURES

FIGURE **PAGE**

FIGURE **PAGE**

FIGURE **PAGE**