

УДК 536.46

НЕКОТОРЫЕ ОСОБЕННОСТИ ВОСПЛАМЕНЕНИЯ ПРОПАНОВОЗДУШНОЙ СМЕСИ ИЗЛУЧЕНИЕМ СО₂-ЛАЗЕРА*

С.С. ВОРОНЦОВ, В.Н. ЗУДОВ, П.К. ТРЕТЬЯКОВ, А.В. ТУПИКИН

*Институт теоретической и прикладной механики
им. С.А. Христиановича СО РАН, Новосибирск*

Представлены результаты экспериментальных исследований динамики воспламенения пропановоздушных смесей импульсно-периодическим лазерным излучением. Рассмотрено воспламенение гомогенного потока, истекающего в свободную атмосферу. Проведен сравнительный анализ экспериментальных данных с рассчитанными задержками воспламенения для покоящейся среды.

ВВЕДЕНИЕ

Современный уровень развития лазерных технологий позволяет применять энергию лазерного излучения во многих сферах науки и техники. Одним из таких новых приложений является управление процессами горения.

В последнее время большое внимание исследователей уделяется управлению химическими реакциями путем внешнего энергетического воздействия. Для этих целей удобно использовать энергию лазерного излучения (ЛИ), т. к. ее легко транспортировать в нужное место реагирующего потока, не загромождая его вспомогательными устройствами. При взаимодействии лазерного излучения с рабочей смесью возможно развитие процесса по разным сценариям. На данный момент в печати можно встретить описание, как минимум, четырех механизмов инициации горения лазерным излучением. Первый — это “тепловой” механизм (laser-induced thermal ignition). Энергия, поглощенная смесью, идет на увеличение поступательной температуры смеси, при достижении определенного уровня смесь воспламеняется [1, 2]. Эффективность такого способа возрастает при повышении давления, кроме того в смесь часто добавляется вещество, имеющее линию поглощения на длине волны лазерного излучения. Второй способ — “фотодиссоциация” (laser-induced photochemical ignition): здесь поглощение излучения средой приводит к диссоциации какого-либо сорта молекул, и это инициирует процесс горения [3–5]. Такой эффект достигается обычно за счет многофотонного поглощения, т. е. эффективен при малых давлениях, но может быть осуществлен и при атмосферном давлении [4]. Третий — “лазерная искра” (laser-induced spark ignition). Для организации пробы среды (10^9 – 10^{10} Вт/см²) достаточно плотности мощности подводимой лазерной энергии, и плазма лазерного пробоя инициирует горение [6, 7]. Иногда для создания

* Работа выполнена при финансовой поддержке Президента РФ (НШ-8597.2006.1), РФФИ (грант 05-01-00560) и научной программы Президиума РАН “Фундаментальные проблемы магнитоплазменной аэродинамики”.

условий пробоя используют вспомогательное вещество, в работе [6] — это аргон. И последний вариант — “возбуждение колебательных степеней свободы” (laser-induced excitation of reactive molecules). В этом случае частью энергии лазерного излучения возбуждаются колебательные степени свободы, что способствует снижению порога реакций [8, 9]. На первый взгляд, это модификация “теплового” механизма, поскольку наличие возбужденных молекул только облегчает процесс воспламенения, но отличие между способами принципиально, в данном случае происходит изменение в кинетике протекания реакций.

При рассмотрении процессов воспламенения для различных начальных условий определяющим может стать любой из перечисленных механизмов, при атмосферном давлении наиболее вероятен “тепловой” механизм.

Воспламенение в движущейся среде имеет ряд особенностей. Например, если покоящуюся смесь можно воспламенить лазерным нагревом в непрерывном режиме работы лазера (потери энергии связаны в основном с диффузией и теплопереносом) при сравнительно небольших мощностях, то в движущейся смеси из зоны поглощения излучения отток энергии сильнее (добавляется вынос смеси из зоны нагрева) и требуется более высокая интенсивность лазерного излучения. В этой ситуации импульсно-периодический режим генерации лазерного излучения имеет определенные преимущества. Возможность регулировки частоты и скважности импульсов позволяет управлять энергией в импульсе и пиковой мощностью, а также создавать квазинепрерывный режим взаимодействия лазерного излучения со средой. Кроме того, при внутривибрационной модуляции на переднем фронте импульса пиковое значение мощности достигает значений, получаемых в ТЕА-лазере, что важно при исследовании всего комплекса явлений, возникающих при воспламенении движущихся смесей.

В настоящей работе рассмотрены эффекты, возникающие при воспламенении пропановоздушного потока излучением импульсно-периодического CO_2 -лазера. Экспериментальные данные динамики этого процесса сравнивались с расчетом воспламенения покоящейся смеси при одинаковых значениях коэффициента избытка воздуха и различных температурах инициации.

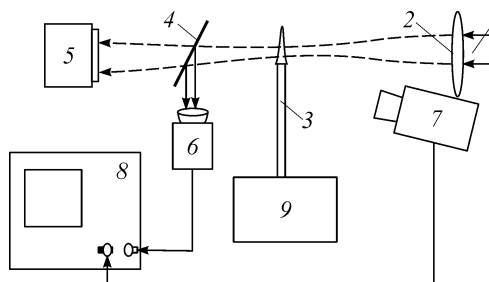
Решалась задача определения особенностей в механизме воспламенения движущейся топливовоздушной смеси излучением.

СХЕМА И МЕТОДОЛОГИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

В проведенных исследованиях в качестве топлива был выбран пропан, поскольку он, с одной стороны, имеет линию поглощения в интервале рабочих частот CO_2 -лазера ($\lambda = 10,2$ мкм), с другой — является одним из наиболее распространенных на данный момент газообразных топлив. При средней мощности лазерного излучения $\sim 1,5$ кВт энергии, поглощаемой смесью, достаточно для воспламенения [10]. Исследования по воздействию импульсно-периодического излучения CO_2 -лазера на процессы горения углеводородовоздушных смесей (пропана, спирта и бензина) показали, что в широком диапазоне параметров лазерного излучения, состава и начальной температуры [10, 11] обнаруженные интегральные эффекты воздействия лазерного излучения на процесс горения (на скорость распространения пламени и связанной с ней формой факела) могут быть объяснены тепловым механизмом. Необходимо отметить, что зона взаимодействия лазерного излучения и смеси была локализована в небольшом объеме, и поэтому удельный энерговклад зависел от времени пребывания газа в этой зоне и частотных характеристик лазерного излучения. Было сделано предположение, что параметры лазерного излучения особенно важны на начальной стадии процесса иницирования горения.

Рис. 1. Схема экспериментальной установки.

1 — луч CO₂-лазера, 2 — линза, 3 — кварцевая трубка, 4 — ответвитель, 5 — измеритель средней мощности, 6 — приемник для наблюдения формы импульса, 7 — радиометр излучения ОН, 8 — осциллограф, 9 — система подготовки смеси.



При инициировании этого процесса импульсно-периодическим излучением CO₂-лазера предпламенное излучение смеси на длине волны радикала ОН в УФ-области спектра регистрировалось синхронно с импульсами лазерного излучения. Для углеводородовоздушных пламен характерно излучение радикалов СН, С₂ (видимая область спектра) и ОН (УФ-область), которые являются промежуточными продуктами химических реакций [12]. Отвечающие за излучение электронные уровни этих радикалов имеют сравнительно малые времена жизни ($10^{-7} \div 10^{-9}$ с) [13]. При низких скоростях потока они могут служить индикатором наличия реакции, поскольку их возбуждение происходит, в основном, за счет механизма хемиллюминесценции [14], а время пребывания молекул во фронте пламени ($\approx 10^{-3} \div 10^{-4}$ с) значительно больше времени жизни излучающих переходов. Линия излучения ОН на длинах волн ≈ 300 нм выбрана нами для регистрации из-за ее сравнительно высокой интенсивности и низкого уровня оптических фоновых помех в этой области спектра.

На рис. 1 приведена схема экспериментальной установки. Предварительно перемешанная в системе 9 смесь подавалась в кварцевую трубку 3 диаметром 13,5 мм длиной 90 см, на выходе которой формировался ламинарный поток с параболическим профилем скорости. Излучение CO₂-лазера фокусировалось линзой 2 (фокусное расстояние $F = 50$ см) над срезом трубки, воспламеняя подаваемую смесь.

Выделенное оптическим фильтром интегральное по пространству излучение пламени попадало на фотокатод ФЭУ-7. Для регистрации сигналов использовался цифровой двухлучевой осциллограф 8, запуск развертки осуществлялся сигналом с ФЭУ в момент воспламенения смеси. На второй канал подавался сигнал с датчика 6, регистрирующего излучение лазера. Такая схема измерений позволила регистрировать динамику излучения формирующегося пламени и его связь с параметрами импульсов лазерного излучения.

В отдельном эксперименте калориметрическим методом проведены измерения поглощения лазерного излучения пропановоздушной смесью при генерации лазера на линии R22 (ветви 10,2 мкм), на которой поглощение максимально по сравнению с соседними. Длина зоны взаимодействия лазерного излучения и смеси равнялась 3 см, средняя мощность ЛИ (фокусное расстояние 50 см, частота 1,5 кГц) составляла ~ 1100 Вт, и ее было недостаточно для инициирования горения. Из этих данных определялась зависимость коэффициента поглощения μ от коэффициента избытка воздуха α (рис. 2),

которая использовалась далее для оценки энергии, поглощаемой смесью в эксперименте.

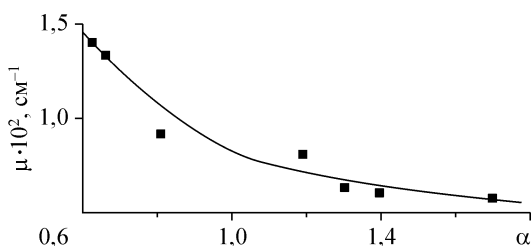


Рис. 2. Зависимость поглощения ЛИ от коэффициента избытка воздуха.

ПОЛУЧЕННЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ АНАЛИЗ

В процессе воспламенения и формирования факела можно выделить три характерных периода (рис. 3). Период от переднего фронта воспламеняющего импульса до начала свечения $\Delta\tau_{1-2}$ слабо зависит от параметров смеси и близок к 200 мкс. Эта задержка, вероятнее всего, связана с процессами перераспределения поглощенного излучения по колебательным уровням молекул пропана и дальнейшей передачей энергии в поступательные степени свободы. Первый период условно назван авторами статьи “временем разогрева колебательного уровня”. Второй период с момента начала свечения до линейной части осциллограммы $\Delta\tau_{2-3}$ характеризуется слабым повышением интенсивности излучения, что соответствует времени накопления активных радикалов, разогреву и формированию очага воспламенения, от которого далее развивается фронт пламени (линейная часть осциллограммы) в течение третьего периода времени $\Delta\tau_{3-4}$. Таким образом, за время индукции, в данном случае, можно принять $\tau_{\text{инд}} = \Delta\tau_{2-3}$.

В описанном в предыдущей главе отдельном эксперименте определено количество лазерной энергии, поглощаемой смесью, откуда была получена зависимость коэффициента поглощения от коэффициента избытка воздуха (см. рис. 2). Исходя из оценок поглощения, а также зная мощность падающего излучения $N \sim 1,5$ кВт, получается, что в условиях эксперимента смесью поглощалось 30–40 мДж (в зависимости от α).

На переднем фронте импульса ($\tau_{\text{пик}} \sim 10^{-7}$ с) реализуется очень высокая мощность, но энергия, заключенная на его пике, составляет 0,25 % энергии импульса. Характерное время распространения возмущений, обусловленных подводом энергии, $\Delta t = d/a = 1 \text{ мм}/300 \text{ м/с} \approx 3 \text{ мкс}$ (где $d = 1 \text{ мм}$ — диаметр зоны поглощения, a — скорость звука). На этом временном участке падающая энергия составляет 0,75 % энергии импульса. Тогда можно считать, что процесс поглощения и разогрева смеси происходит при постоянном давлении и $\Delta E_{\text{погл}} = \int_{T_0}^T \Delta m C_p dT$. Ниже при-

ведены результаты оценки средней температуры смеси для условий эксперимента. Здесь $l = 13,5 \text{ мм}$ — длина зоны поглощения, $u_{\text{ср}} \approx 1 \text{ м/с}$ — средняя по расходу

скорость смеси, C_p — теплоемкость смеси при постоянном давлении ($C_p = C_p(T, \alpha)$ из работы [15]).

Необходимо отметить, что эти оценки говорят о максимальной температуре (т. к. потери на теплопередачу не учитываются, а глубина прогрева за время импульса составляет ≈ 15 % диаметра зоны поглощения). При этом в потоке присутствует распределение по скоростям, и поэтому прогрев смеси неравномерен. На краях трубки скорость ниже средней по расходу, температура возрастает быстрее, чем на оси, что и ведет к воспламенению.



Рис. 3. Динамика воспламенения.

α	T , К (оцен.)	τ , мс (эксп)	τ , мс (расчет)
1,27	1040	1,8	
1,2	1080	1,2	15,0 (1,08)
1,14	1085	0,9	14,5 (1,07)
1,09	1120	0,6	
1,04	1150	0,4	
1,0	1200	0,35	14,0 (0,91)
0,95	1250	0,35	
0,91	1290	0,25	13,0 (0,78)
0,88	1330	0,2	
0,85	1380	0,2	

Для диапазона температур, приведенных в таблице, были выполнены расчеты задержки воспламенения (период индукции) гомогенных смесей пропана. Математическая модель нулевой размерности описывает эволюцию гомогенной смеси во времени. Предполагается, что физический процесс воспламенения происходит в адиабатических условиях и при постоянном давлении. По разработанной методике был создан и отлажен пакет программ для численного моделирования процессов с конечными скоростями химических реакций. При разностной реализации исходной системы уравнений использована неявная схема Хиндмарша. Параметры смеси вычислялись как функции времени, задержка воспламенения при этом определялась по профилю температуры смеси (рис. 4). Расчеты профилей температуры для пропана проведены в диапазоне начальных температур 1000–1400 К. В таблице приведены результаты расчетов для температуры 1100 К (в скобках — для 1400 К) и полученные в экспериментах времена задержек воспламенения.

Известно, что время индукции имеет сильную зависимость от начальной температуры смеси. Для получения в расчетах того же времени задержки воспламенения, что и в эксперименте, было бы необходимо принять начальную температуру $T \geq 1400$ К, что значительно выше температуры воспламенения пропана для нормальных условий (950–1050 К из работы [15]).

Таким образом, смесь в области фокусировки ЛИ разогревалась до температуры воспламенения (возможно и выше), но при этом время, полученное в эксперименте, оказалось меньше расчетного времени индукции. Возможно, что такое сокращение времени может происходить из-за изменений в кинетике реакций.

Ниже приведены оценки энергетических параметров протекающих процессов. После завершения релаксации ($\Delta\tau_{1-2}$) устанавливается режим поглощения, при

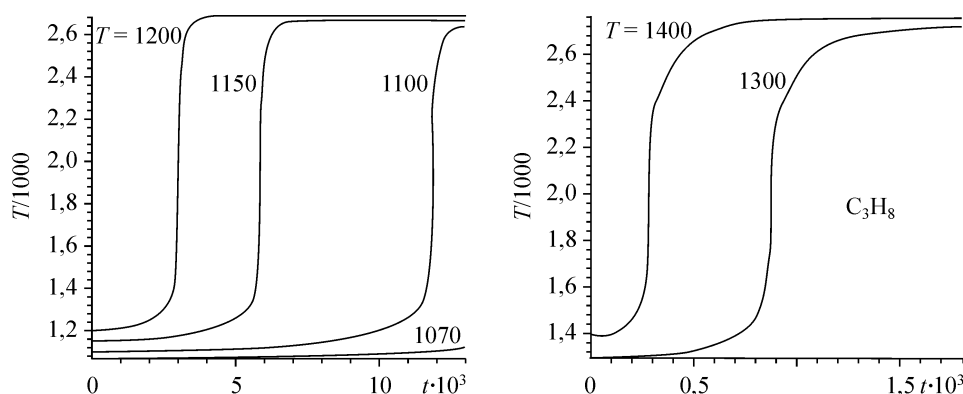


Рис. 4. Профиль температуры в зависимости от времени (расчет, $\alpha = 0,9$) (приложение к ссылкам на литературу).

котором температура колебательного перехода пропана становится, предположительно, выше поступательной температуры смеси. Это может происходить по ряду причин. Во-первых, за время лазерного импульса происходит $N_{\text{погл}} = \Delta E_{\text{погл}}/h\nu$ поглощений излучения, где $\Delta E_{\text{погл}} \approx 3,5 \cdot 10^{-2}$ Дж; $\nu = 3 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1}$ — частота лазерного излучения ($\lambda = 10,2$ мкм, h — постоянная Планка), и, следовательно, частота поглощений $\nu_{\text{погл}} = N_{\text{погл}}/N_{\text{пр}} \cdot 1/\tau_{\text{имп}} \sim 10^9 \text{ с}^{-1}$ (где $N_{\text{пр}}$ — количество молекул пропана в зоне поглощения за импульс, $\tau_{\text{имп}} = 2 \cdot 10^{-4}$ с). Во-вторых, после поглощения ЛИ передача энергии идет через V-V обмен и далее через V-T релаксацию, эффективность последней определяется частотой столкновений возбужденных молекул пропана с азотом. Для условий эксперимента эта частота совпадает с частотой столкновений $\nu_m \approx 10^9$ 1/с, т. е. отношение количества молекул пропана к общему числу $N_{\text{пр}}/N_{\text{см}} \sim 2-3\% \ll 1$. То есть, можно сказать, что вся поглощенная энергия идет на увеличение поступательной температуры смеси, но при этом установившиеся температуры колебательного перехода пропана выше поступательной температуры смеси.

Таким образом, с одной стороны, в области поглощения излучения смесь может достигать температуры, которая превышает температуру воспламенения, с другой — частота поглощений $\nu_{\text{погл}}$ имеет тот же порядок, что и частота столкновений ν_m , т. е. в смеси в любой момент импульса присутствуют молекулы в возбужденном состоянии. А если учесть тот факт, что в импульсе лазерного излучения есть период ($\tau_{\text{пик}} \sim 10^{-7}$ с), на котором интенсивность плотности мощности выше примерно в 20–30 раз, то на этом временном интервале существует вероятность и многофотонных процессов [3].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследование динамики воспламенения пропановоздушных смесей выявило следующие особенности:

- существует период $\Delta\tau_{1-2}$ от переднего фронта воспламеняющего импульса до начала свечения, слабо зависящий от параметров смеси и близкий по величине к 200 мкс. Он может быть связан с релаксационными процессами, происходящими при поглощении ЛИ;

- сравнение времени “формирования очага воспламенения” $\Delta\tau_{2-3}$ с рассчитанными временами задержек воспламенения показало существенное отличие самовоспламенения смеси при нагреве от лазерной инициации процесса. Это связано с разогревом смеси в области фокусировки до температур выше температуры воспламенения, а также с сокращением времени индукции за счет присутствия в зоне реакции возбужденных молекул;

- оценки энергетических параметров протекающих процессов свидетельствуют, что при воспламенении в смеси могут присутствовать возбужденные молекулы пропана, а на переднем фронте импульса ($\tau_{\text{пик}} \sim 10^{-7}$ с) плотности мощности излучения в области фокусировки может быть достаточно для возникновения многофотонных процессов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Tanoff M.A., Smooke M.D., Teets R.E., Sell J.A. Computational and experimental studies of laser-induced thermal ignition in premixed ethylene-oxidizer mixtures // Combustion and Flame. — 1995. — Vol. 103, No. 4. — P. 253–280.
2. Trott W. M. CO₂-laser-induced deflagration of fuel/oxygen mixture // J.Appl.Phys. — 1983. — Vol. 54, No. 1. — P. 118–130.

3. **Молин Ю.Н., Панов В.Т., Петров А.К.** Инфракрасная фотохимия. — Новосибирск: Наука, 1985. — 254 с.
4. **Lavid M., Stevens J.G.** Photochemical ignition of premixed hydrogen/oxidizer mixtures with excimer laser // *Combustion and Flame*. — 1985. — Vol. 60, No. 2. — P. 195–202.
5. **Chou M. and Zukowski T. J.** Ignition of $H_2/O_2/NH_3$, $H_2/Air/NH_3$ and $CH_4/O_2/NH_3$ mixtures by excimer-laser photolysis of NH_3 // *Combustion and Flame*. — 1991. — Vol. 87, No. 2. — P. 191–202.
6. **Яковлев В.И., Третьяков П.К., Воронцов С.С., Тупикин А.В.** Горение в потоке воздух-водород с оптическим пульсирующим разрядом: экспериментальное моделирование стабилизации пламени // Тр. 12 симп. по горению и взрыву, Ч. 1. — Черноголовка, 11-15 сентября, 2000. — С. 165–167.
7. **Phouc T.X., White F.P.** Laser-induced spark ignition of CH_4/Air mixtures // *Combustion and Flame*. — 1999. — Vol. 119, No. 3. — P. 203–216.
8. **Старик А.М., Титова Н.С.** О механизмах низкотемпературного инициирования горения смесей H_2+O_2 (воздух) при возбуждении колебательных степеней свободы исходных реагентов // *Химическая физика*. — 2000. — Т. 19, № 9. — С. 61–70.
9. **Старик А.М., Титова Н.С.** О возможности интенсификации цепных реакций в горючих смесях при возбуждении электронных состояний молекул O_2 лазерным излучением // *ДАН*. — 2003. — Т. 391, № 4. — С. 471–477.
10. **Третьяков П.К., Воронцов С.С., Тупикин А.В., Шацкая Д.В.** О режимах воспламенения и горения гомогенной пропановоздушной смеси под воздействием излучения CO_2 -лазера // *Материалы III Межд. школы-семинара “Модели и методы аэродинамики”*. — 6-13 июня 2003 г., Евпатория, Украина. — С. 99–100.
11. **Воронцов С.С., Гаранин А.Ф., Третьяков П.К., Тупикин А.В., Шацкая Д.В.** Горение пропановоздушных смесей под воздействием импульсно-периодического излучения CO_2 -лазера // Тр. V Совещ. по магн. и плазм. аэродин. в аэрокосм. Приложениях. — Москва, ИВТ РАН, 7-10 апреля 2003. — С. 58–59.
12. **Гейдон А.Г.** Спектроскопия пламен. — М.:Изд-во иностр. лит., 1959. — 382 с.
13. **В.А. Каменщиков, Ю.А. Пластинин, В.М. Николаев, Л.А. Новицкий.** Радиационные свойства газов при высоких температурах. — Москва: Машиностроение, 1971. — 440 с.
14. **Nicolas Docquier, Sami Belhafaour, Franc, Ois Lacas, Nasser Darabiha and Carlos Rolon.** Experimental and numerical study of chemiluminescence in methane/air high-pressure flames for active control applications. // *Proc. the Combustion Institute*. — 2000. — Vol. 28. — P. 1765–1774.
15. **Н.Ф. Дубовкин.** Справочник по углеводородным топливам и их продуктам сгорания. — М.–Л.: Госэнергоиздат, 1962. — 288 с.

Статья поступила в редакцию 13 ноября 2006 г.