

ОСОБЕННОСТИ ФИЛЬТРАЦИОННОГО ГОРЕНИЯ ВОДОРОДО-, ПРОПАНО- И МЕТАНОВОЗДУШНЫХ СМЕСЕЙ В ИНЕРТНЫХ ПОРИСТЫХ СРЕДАХ

Н. А. Какуткина, А. А. Коржавин, М. Мбарав*^{*}

Институт химической кинетики и горения СО РАН, 630090 Новосибирск, kktk@kinetics.nsc.ru

*Технологический университет Тшвана, X860, Претория 0001, ЮАР

Проведены экспериментальные исследования характеристик фильтрационного горения водородо-, пропано- и метановоздушных смесей в инертных пористых средах. Показано, что зависимости скорости волны горения от коэффициента избытка топлива имеют V-образную форму. Минимум скорости смещен в богатую область для водородовоздушных смесей и в бедную — для пропано- и метановоздушных смесей. Выявлено занижение измеренных значений максимальной температуры в волне горения относительно теоретически рассчитанных для бедных водородовоздушных и богатых пропановоздушных смесей. Для метановоздушных смесей занижение температуры наблюдается во всем диапазоне составов смеси. Результаты интерпретируются в рамках гипотезы о селективной диффузии компонентов газовой смеси.

Ключевые слова: фильтрационное горение, пористые среды, водород, метан, пропан, число Льюиса.

В настоящее время общепризнано, что эффекты числа Льюиса, представляющего собой отношение коэффициента диффузии компонента газовой смеси к коэффициенту температуропроводности смеси, могут существенно менять характеристики горения газов. Под эффектами числа Льюиса в данной статье будем понимать как эффекты собственно числа Льюиса Le , так и эффекты кривизны фронта пламени, обычно связываемые с числом Маркштейна Ma , функционально связанным с числом Льюиса. При фильтрационном горении газа (ФГГ) в пористых средах естественным образом реализуются условия, способствующие проявлению эффектов числа Льюиса. Действительно, при фильтрационном горении газа в пористой среде искривление поверхности пламени неизбежно, ввиду самой структуры пористой среды. Поэтому если в ламинарных пламенах для наблюдения эффектов числа Льюиса, как правило, требуется создание определенных условий, то при фильтрационном горении газа в пористых средах эти эффекты должны быть внутренне присущи самой системе. В то же

время в существующих теоретических моделях ФГГ это обстоятельство игнорируют. Это обусловлено в первую очередь сложностью и многоплановостью процесса фильтрационного горения и, как следствие, попытками упростить физическую модель процесса до уровня, позволяющего аналитическое рассмотрение. Поэтому почти все существующие модели ФГГ являются макроскопическими в том смысле, что в них оперируют осредненными характеристиками, рассматривая газ и пористую среду как два взаимопроникающих континуума без детального рассмотрения процесса горения газа в отдельной поре [1]. Исключение составляют только несколько работ, в которых сделаны попытки численными методами исследовать горение газа в отдельной поре [2, 3]. Однако и в этих работах возможные проявления эффектов числа Льюиса не учитываются. Другая причина того, что вопрос об эффектах числа Льюиса при ФГГ не рассматривался, состоит в том, что до сих пор экспериментально не обнаружено явлений, которые можно было бы отнести к эффектам числа Льюиса.

Спектр явлений, обычно приписываемых эффектам числа Льюиса в ламинарных пламенах, достаточно широк. К ним относятся изменение нормальной скорости горения, расширение или сужение пределов горения при искривлении фронта пламени, эффекты растяже-

M. Mbarawa.

Tshwane University of Technology.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 03-03-32357) и программы фундаментальных исследований РАН № 26 «Водородная энергетика».

ния пламени, диффузионно-тепловая неустойчивость, ячеистые пламена. Наиболее ярко эффекты числа Льюиса проявляются в бедных водородовоздушных и богатых пропановоздушных смесях, т. е. когда число Льюиса недостающего компонента газовой смеси больше единицы. Считая, что эта закономерность сохраняется и для микропламен в порах пористой среды, в данной работе делается попытка выявить эффекты числа Льюиса при фильтрационном горении газа путем сравнительного экспериментального исследования закономерностей фильтрационного горения водородо-, пропано- и метановоздушных смесей.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Установка для исследования ФГГ состоит из горелки и системы регистрации характеристик волны горения. Горелка представляет собой вертикальную кварцевую трубу длиной 500 мм с толщиной стенки 2 мм и внешним диаметром 40 мм в экспериментах с водородом и 50 мм в экспериментах с пропаном и метаном. Труба заполнялась пористой средой — зернистым карборундом. В экспериментах с водородом использовалась засыпка с размерами зерен $1 \div 2$ мм, для пропана — $2 \div 3$ мм, в экспериментах с метаном использовалось два вида засыпок — с размерами $2 \div 3$ и $5 \div 6$ мм. Горючие смеси составлялись по расходам горючего газа и воздуха. Расходы измерялись образцовыми ротаметрами с учетом перепада давления в системе, измеряемого образцовыми манометрами. Газ с воздухом смешивался до входа в горелку и подавался в трубу снизу. Горючая смесь зажигалась в верхней части трубы открытым пламенем. Пламя прогревало верхний слой пористой среды, формируя волну горения. Визуально волна горения наблюдалась как ярко светящаяся зона, которая перемещалась по пористой среде. Меняя параметры газовой смеси, волну горения вводили в заданный участок горелки. Затем устанавливались исследуемые параметры газовой смеси и запускалась система регистрации.

Распространение волны горения регистрировали с помощью цифровой Web-камеры, соединенной с компьютером. Горелка с распространяющейся в ней волной горения автоматически фотографировалась через равные промежутки времени (от 20 до 100 с в зависимости от скорости волны) с запоминанием изображений в памяти компьютера. Полученные снимки в

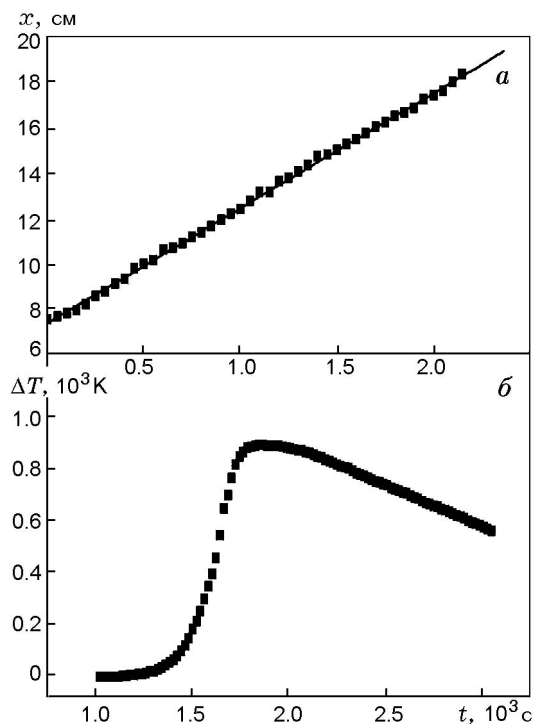


Рис. 1. Типичные зависимости координаты фронта волны горения (*a*) и прироста температуры пористой среды (*б*) от времени. Смесь 70 % H_2 + воздух

дальнейшем обрабатывались с использованием прикладной программы, позволяющей определять координаты объектов на изображениях. В результате обработки получались зависимости координаты фронта волны горения от времени.

Для измерения температуры в волне горения в пористую среду по оси трубы была введена закрытая снизу керамическая трубка с хромель-алюмелевой термопарой. Внешний диаметр трубки 5 мм, толщина стенки 1 мм. Показания термопары регистрировались с помощью цифрового вольтметра и через равные промежутки времени (от 20 до 100 с) автоматически записывались в память компьютера.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

На рис. 1 приведены типичные записи координаты фронта волны и температуры пористой среды в волне горения от времени. На записи координаты может быть более или менее длительный (5 ÷ 10 мин) нестационарный участок, соответствующий переходу с режима «посадки волны» на исследуемый режим, и линейный участок, соответствующий стационарно-

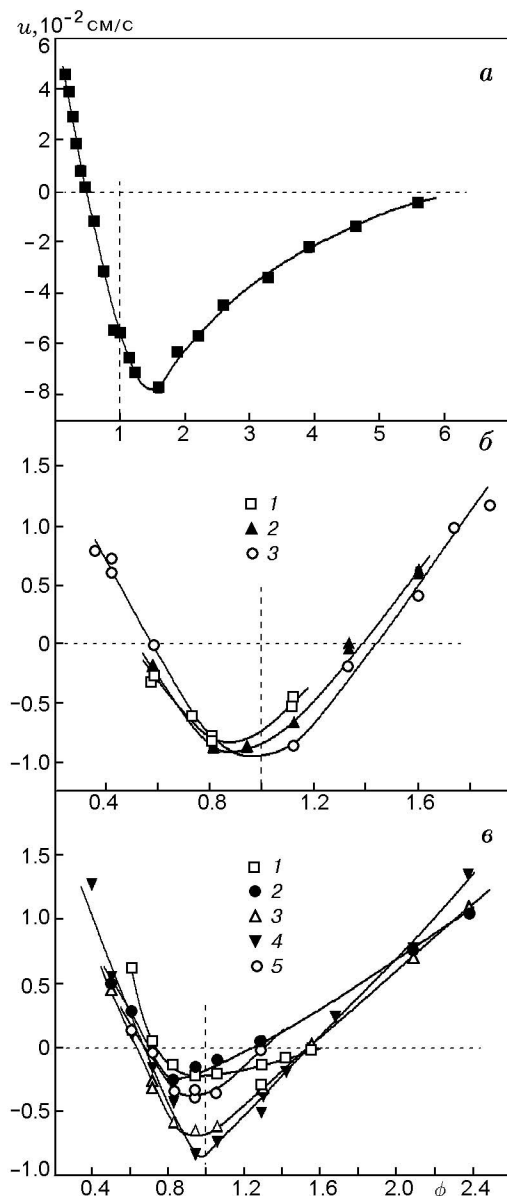


Рис. 2. Зависимости скорости волны горения от коэффициента избытка топлива:

a — H_2 +воздух, скорость фильтрации $v = 1.45$ м/с;
б — C_3H_8 +воздух, $v = 0.52$ (1), 0.66 (2), 0.79 м/с (3);
в — CH_4 +воздух, размер зерна пористой среды $2 \div 3$ (1–4) и $5 \div 6$ мм (5), $v = 0.24$ (1), 0.3 (2, 5), 0.45 (3), 0.6 м/с (4)

му режиму распространения волны (рис. 1, *a*). По линейному участку определяли стационарную скорость волны горения (u), по записи температуры — максимальную температуру пористой среды в волне горения ($T_{m,exp}$). Кроме того, используя запись температуры и измеренное значение скорости волны, получали распределение температуры в волне горения $T(x)$.

На рис. 2 представлены зависимости ско-

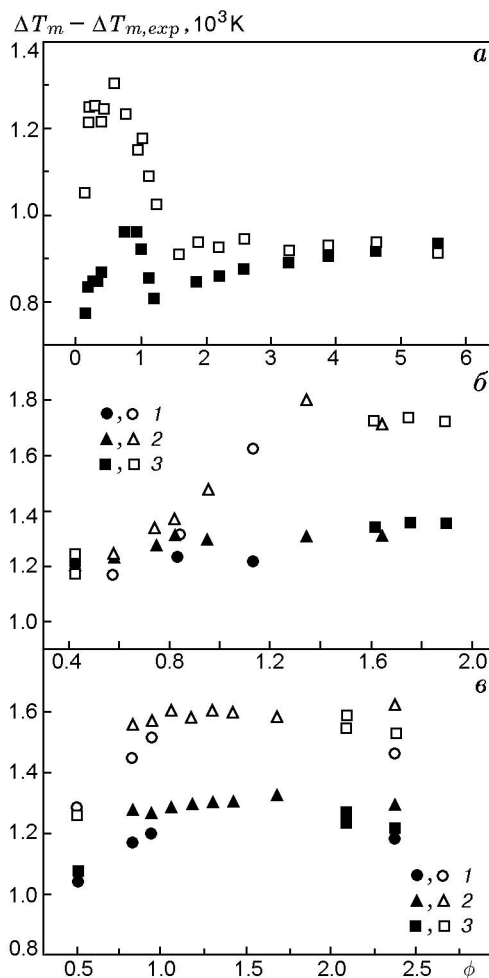


Рис. 3. Зависимости расчетных (светлые символы) и измеренных (темные символы) значений максимального прироста температуры пористой среды от коэффициента избытка топлива:

a — H_2 +воздух, $v = 1.45$ м/с; *б* — C_3H_8 +воздух, $v = 0.52$ (1), 0.66 (2), 0.79 м/с (3); *в* — CH_4 +воздух, $v = 0.3 \div 0.4$ (1), $0.4 \div 0.5$ (2), $0.6 \div 0.7$ м/с (3)

рости волны от состава смеси (который характеризуется коэффициентом избытка топлива ϕ) для воздушных смесей водорода, пропана и метана. Положительные значения скорости соответствуют распространению волны горения спутно с потоком газа, а отрицательные — против потока. Все зависимости имеют V-образную форму. Обращает на себя внимание, что минимум зависимости $u(\phi)$ для водородных смесей находится в богатой области (при $\phi \approx 1.5$), а для пропано- и метановоздушных — в бедной.

На рис. 3 показаны экспериментальные значения максимального разогрева пористой

среды в волне горения в зависимости от состава смеси. Величина разогрева определялась как $\Delta T_{m,exp} = T_{m,exp} - T_0$, где $T_{m,exp}$ — максимальное значение на измеренном профиле температуры в пористой среде, а T_0 — комнатная температура. Отметим, что для всех исследованных смесей разогрев пористой среды слабо зависит от состава смеси. Из данных для углеводородных смесей следует также слабая зависимость разогрева от скорости фильтрации газа.

АНАЛИЗ И ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Проанализируем полученные данные в рамках упрощенной однотемпературной модели ФГГ, соответствующей случаю быстрого теплообмена газа с пористой средой. В [4] получено выражение для скорости распространения адиабатической волны горения u в зависимости от состава смеси:

$$u \approx u_{th} \left[1 + \frac{R(T_b - T_0)}{E} \ln \frac{G u_{th} Ze}{\alpha_s k_0 \rho_{g,b}} - \frac{R^2(T_b - T_0)T_0}{E^2} \ln^2 \frac{G u_{th} Ze}{\alpha_s k_0 \rho_{g,b}} \right]. \quad (1)$$

Здесь $u_{th} = c_g \rho_g v m / c_s \rho_s (1 - m)$ — тепловая скорость, c — теплоемкость, ρ — плотность, m — пористость среды, v — скорость фильтрации газа, индексы g и s относятся к газу и пористой среде соответственно, $G = \rho_g v$ — массовый расход газа, $\alpha_s = \lambda_s / c_s \rho_s$ — температуропроводность пористой среды, λ — теплопроводность, $T_b - T_0 = Q / c_g$ — адиабатический разогрев газовой смеси, являющийся характеристикой состава смеси, Q — тепловой эффект сгорания смеси, T_b — температура горения, $Ze = E(T_b - T_0) / RT_b^2$ — число Зельдовича, E — энергия активации химической реакции, R — универсальная газовая постоянная, k_0 — предэкспонент, $\rho_{g,b}$ — плотность газовой смеси при температуре T_b . Второй член в (1) при типичных значениях экспериментальных параметров всегда отрицателен. Третий член в квадратных скобках в (1) также отрицателен. Из (1) видно, что при постоянной скорости фильтрации минимальное значение скорости волны горения должно достигаться при максимальном адиабатическом разогреве, т. е. для стехиометрической смеси. Однако согласно экспериментальным данным, приведенным

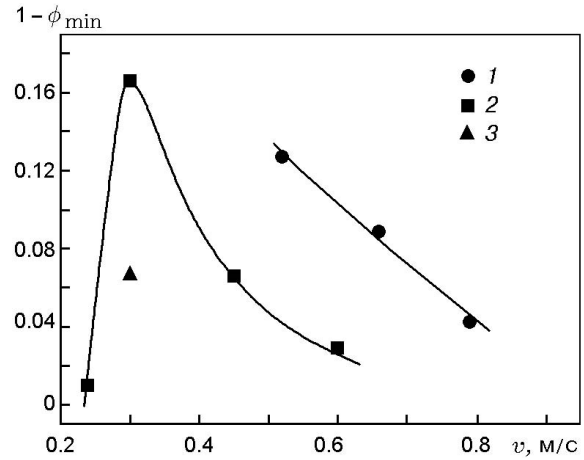


Рис. 4. Влияние скорости фильтрации и размера зерна засыпки на сдвиг минимума скорости волны:

1 — C_3H_8 , 2, 3 — CH_4 , размер зерна пористой среды 2 ÷ 3 (1, 2) и 5 ÷ 6 мм (3)

на рис. 2, минимум зависимости $u(\phi)$ смещен в богатую область для водородовоздушных смесей и в бедную — для метано- и пропановоздушных.

Смещение минимума скорости волны в зависимости от скорости фильтрации показано на рис. 4. Видно, что смещение возрастает по мере уменьшения скорости фильтрации как для пропано-, так и для метановоздушных смесей. Однако при очень низкой скорости фильтрации (24 см/с) для метановоздушной смеси обнаружено резкое уменьшение сдвига почти до нуля. Отметим, что значение $v = 24$ см/с является предельным для горения метановоздушных смесей в данной трубке и пористой среде. Кроме того, из рис. 2 видно, что зависимость $u(\phi)$ для этой скорости фильтрации становится очень пологой в области минимума, что значительно снижает точность определения ϕ_{min} . На рис. 4 показано также смещение минимума зависимости $u(\phi)$, полученной при горении метановоздушных смесей в более крупной засыпке из карборунда с размером зерна 5 ÷ 6 мм. В этом случае смещение минимума $u(\phi)$ значительно меньше, чем при той же скорости фильтрации в засыпке из того же материала с размерами зерна 2 ÷ 3 мм.

Максимальный разогрев пористой среды в волне горения ΔT_m согласно модели ФГГ однозначно связан со скоростью волны. В адиабатическом случае эта связь задается соотношением [1]

$$\Delta T_m = \frac{Q}{c_g(1 - u/u_{th})}. \quad (2)$$

Для реальной неадиабатической волны горения это соотношение включает член, обусловленный теплопотерями:

$$\Delta T_m = \frac{Q}{c_g \left(1 - \frac{u}{u_{th}} + \frac{\alpha_e}{K u_{th} (u_{th} - u)} \right)}. \quad (3)$$

Здесь α_e — коэффициент внешней теплоотдачи от трубы с пористой средой, $K = \frac{(1 - m)\lambda_s}{2x_s^2}$.

Вывод соотношения (3) приведен в приложении. На рис. 3 представлены значения ΔT_m , рассчитанные по соотношению (3) исходя из измеренных значений скорости волны u . В расчетах использовались следующие значения параметров: $\lambda_s = 4 \text{ Вт/(м}\cdot\text{К)}$, $\rho_s = 3200 \text{ кг/м}^3$, $c_s = 800 \text{ Дж/(кг}\cdot\text{К)}$, $m = 0.5$. Для каждой смеси ρ_g рассчитывалась по парциальным давлениям и плотностям компонентов газовой смеси. Тепловой эффект сгорания смесей рассчитывался при начальной температуре газа 300 К с использованием прикладной программы ChemKin [5], которая неоднократно проверена на экспериментальных данных по ламинарным пламенам. Средняя теплоемкость газовой смеси определялась как отношение изменения энтальпии смеси при нагреве ее от начальной температуры T_0 до максимальной $T_{m,exp}$ к величине изменения температуры $T_{m,exp} - T_0$. Соответствующие изменения энтальпии также рассчитывались с использованием программы ChemKin. Скорость u определялась в тех же экспериментах, в которых измерялись значения $\Delta T_{m,exp}$. Коэффициент α_e оценивался по полученным в этих же экспериментах профилям температуры в волне горения. Остановимся на методе и результатах определения α_e .

В однотемпературном приближении закон сохранения энергии в стационарной неадиабатической волне горения записывается в виде [1]

$$\alpha_s \frac{d^2 T}{dx^2} - (u_{th} - u) \frac{dT}{dx} - \frac{\alpha_e}{c_s \rho_s (1 - m)} (T - T_0) - Q \frac{u_{th}}{c_g} \frac{d\eta}{dx} = 0. \quad (4)$$

Здесь T — локальная температура пористой среды, η — относительная концентрация недостающего компонента, x — координата

вдоль направления распространения, координата точки максимума температуры соответствует значению $x = 0$. Интегрируя (4) от $-\infty$ до $+\infty$ с граничными условиями $T(\mp\infty) = T_0$, $\frac{dT}{dx}(\mp\infty) = 0$, $\eta(-\infty) = 1$, $\eta(+\infty) = 0$, получаем

$$\alpha_e = Q G m / \int_{-\infty}^{+\infty} (T - T_0) dx. \quad (5)$$

Таким образом, проводя численное интегрирование экспериментально измеренного профиля температуры, можно определить коэффициент внешней теплоотдачи по соотношению (5). Однако задний фронт волны (область охлаждения) может быть очень затянутым (см. рис. 1), и во многих случаях в пределах длины экспериментального участка не происходит полного охлаждения. В результате в экспериментах, как правило, не удается записать полный профиль температуры, и для того, чтобы воспользоваться соотношением (5), пришлось бы прибегнуть к экстраполяции.

Другое соотношение для определения α_e можно получить, проинтегрировав уравнение (4) от $-\infty$ до произвольной координаты x_1 на заднем фронте волны. Единственное требование к выбору значения x_1 состоит в том, чтобы $\eta = 0$ при $x > x_1$, т. е. смесь должна полностью выгореть до достижения $x = x_1$. В результате интегрирования (4) получаем

$$\alpha_e = c_s \rho_s (1 - m) \left[\alpha_s \frac{dT}{dx}(x_1) - (u_{th} - u)(T(x_1) - T_0) + \frac{Q u_{th}}{c_g} \right] / \int_{-\infty}^{x_1} (T - T_0) dx. \quad (6)$$

На рис. 5 приведены рассчитанные по соотношению (6) значения α_e для экспериментов с водородо- и пропановоздушными смесями. Видно, что значения α_e слабо меняются при изменении состава смеси. Если теплопотери от трубки обусловлены конвективным охлаждением (как предполагается в теоретической модели [1]), то α_e должно определяться только геометрией горелки и, возможно, материалом стенок горелки и не зависеть от состава смеси. Если же основным механизмом теплопотерь является излучение, то α_e должно расти с увеличением температуры пористой среды. Из

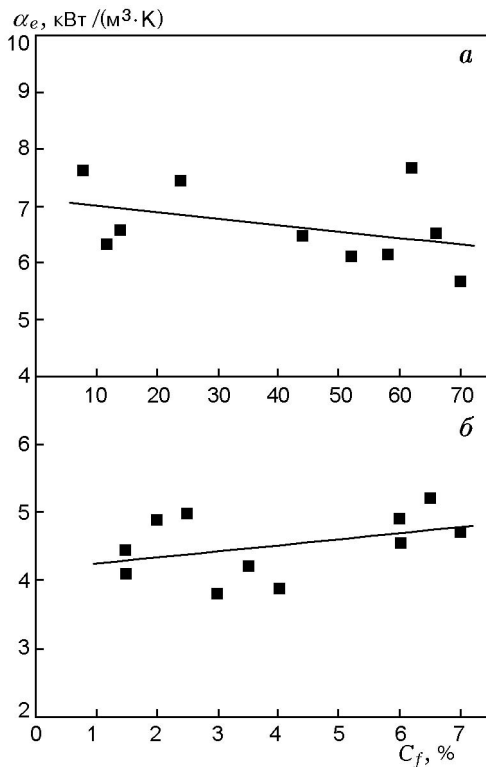


Рис. 5. Зависимости коэффициента внешней теплоотдачи от содержания топлива в смеси: а — $\text{H} + \text{воздух}$, б — $\text{C}_3\text{H}_8 + \text{воздух}$

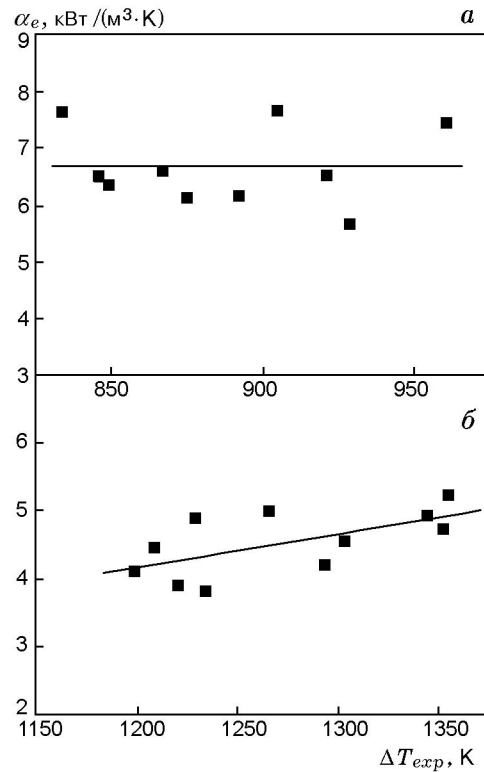


Рис. 6. Зависимости коэффициента внешней теплоотдачи от максимальной температуры пористой среды: а — $\text{H}_2 + \text{воздух}$, б — $\text{C}_3\text{H}_8 + \text{воздух}$

рис. 6, на котором значения α_e для водородных и пропановых смесей приведены в функции измеренной максимальной температуры пористой среды, видно, что для водородовоздушных смесей не наблюдается корреляции между температурой пористой среды и теплопотерями. Для пропановоздушных смесей наблюдается слабый рост уровня теплопотерь с увеличением разогрева пористой среды. Это свидетельствует о сложной конвективно-излучательной природе теплопотерь. Отсутствие зависимости α_e от температуры пористой среды для водородных смесей скорее всего обусловлено значительно более низким разогревом пористой среды, чем в случае экспериментов с пропановоздушными смесями, и, как следствие, малым вкладом излучения.

Из рис. 3 видно, что для водородовоздушных смесей измеренные температуры почти совпадают с рассчитанными при $\phi > 3$. В бедной области измеренные значения ΔT_m значительно ниже рассчитанных. Для пропановоздушных смесей, наоборот, хорошее совпадение наблюдается в бедной области при $\phi < 0.9$, а

в богатой области измеренные значения ΔT_m отклоняются от теоретически рассчитанных в сторону занижения. Для метановоздушных смесей измеренные температуры ниже расчетных как в бедной, так и в богатой области.

На рис. 7 показаны отклонения рассчитанных значений ΔT_m от экспериментально измеренных. Для водородовоздушных смесей заметное отклонение возникает при $\phi \approx 3$ и монотонно возрастает по мере уменьшения ϕ . При $\phi \approx 0.2$ «недобор» температуры составляет 420 К. Для пропановоздушных смесей отклонение, напротив, возрастает по мере увеличения ϕ , а максимальное зарегистрированное значение отклонения также составляет примерно 400 К. Для метановоздушных смесей минимальное отклонение (≈ 200 К) зарегистрировано в бедной области при $\phi \approx 0.5$. При увеличении ϕ отклонение слабо растет, достигая значения ≈ 300 К. Отметим, что изменение скорости фильтрации не приводит к заметному изменению отклонения измеренной температуры от расчетной — точки для разных скоростей

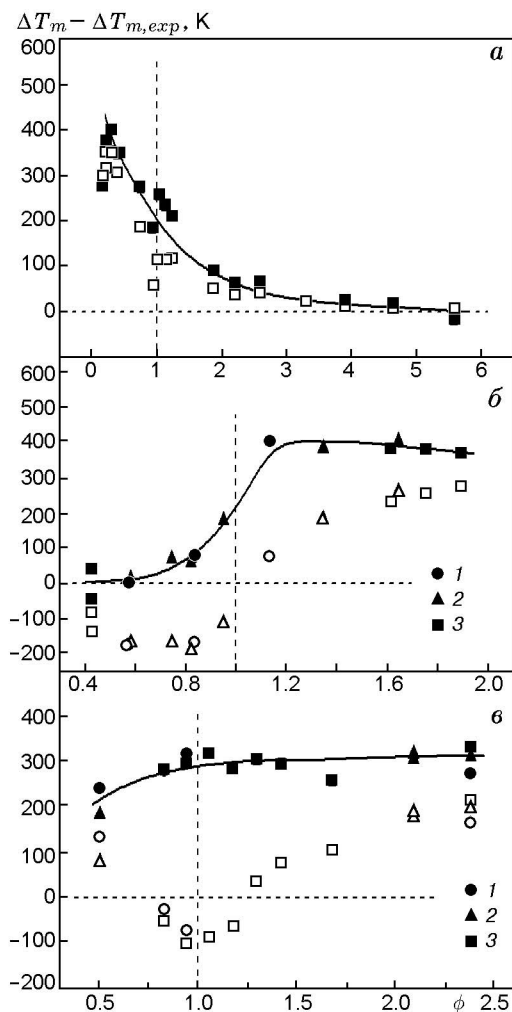


Рис. 7. Зависимость разности между расчетной и измеренной температурой пористой среды от коэффициента избытка топлива:

темные символы соответствуют традиционному расчету теплового эффекта реакции, светлые — с учетом обратных реакций; *a* — H_2 +воздух, $v = 1.45$ м/с; *b* — C_3H_8 +воздух, $v = 0.52$ (1), 0.66 (2), 0.79 м/с (3); *c* — CH_4 +воздух, $v = 0.3 \div 0.4$ (1), $0.4 \div 0.5$ (2), $0.6 \div 0.7$ м/с (3)

фильтрации группируются вокруг одной и той же кривой как для пропано-, так и для метано-воздушных смесей.

Таким образом, проведенные экспериментальные исследования выявили две аномальные закономерности фильтрационного горения газа — сдвиг минимума скорости волны относительно $\phi = 1$ и занижение температуры в волне горения относительно рассчитанной. Величины эффектов, по крайней мере по температуре в волне горения, очень значительны и наблюдаются в широких диапазонах по составу

смеси. Два типа аномалий, несомненно, связаны между собой. Это легко видеть из соотношения между скоростью волны и максимальной температурой в волне горения, полученного в [1] для однотемпературной адиабатической модели:

$$u = u_{th} \left(1 - \frac{(1-m)}{m} \frac{RT_m^2}{E(T_m - T_0)} \times \frac{\lambda_s \rho_g}{mc_g G^2} k_0 \exp\left(-\frac{E}{RT_m}\right) \right). \quad (7)$$

Из этого соотношения следует, что уменьшению T_m при прочих равных условиях соответствует увеличение скорости волны. Поэтому в тех областях значений ϕ , где наблюдается занижение температуры горения, значения u должны быть завышены. Увеличение значений u в области аномального понижения температуры приводит к перекошу кривой $u(v)$, которая теоретически должна иметь минимум при $\phi = 1$, и, как следствие, к смещению минимума этой зависимости в область значений ϕ , противоположную области занижения температуры. Поэтому для водородных смесей минимум зависимости $u(v)$ должен смещаться в богатую сторону, а для пропановых — в бедную, как это и наблюдается в эксперименте (см. рис. 2). Для метановоздушных смесей занижение температуры отмечается и в бедной, и в богатой области. Соответственно скорость волны горения должна увеличиваться во всем диапазоне значений ϕ . Однако более высокие значения отклонения температуры наблюдаются в богатой области, поэтому минимум зависимостей $u(v)$ сдвигается в противоположную — бедную область. Из приведенных рассуждений следует, что две обнаруженные аномалии скорее всего являются взаимообусловленными следствиями одной и той же причины.

Проанализируем соотношение (3), из которого рассчитывается максимальная температура в волне горения (ΔT_m), и попытаемся установить причину занижения измеренных температур относительно расчетных. Отметим, что третий член в скобках в (3), обусловленный теплопотерями, в условиях наших экспериментов, как правило, мал по сравнению с величиной $1 - u/u_{th}$ и не превышает $5 \div 7\%$, в том числе и в области аномалии. Пренебрежение этим членом приводит к увеличению расчетных величин ΔT_m на $20 \div 120$ К, при

Тепловой эффект сгорания
метановоздушных смесей разного состава

Концентрация метана, %	Q , Дж/кг		$\Delta H(T_{ig} \rightarrow T_{eq})$, Дж/кг	$Q(T_{ig}) + \Delta H(T_{ig} \rightarrow T_{eq})$, Дж/кг
	$T_0 = 300$ К	$T_0 = T_{ig}$		
5	$1.42 \cdot 10^6$	$1.30 \cdot 10^6$	$1.30 \cdot 10^5$	$1.43 \cdot 10^6$
10	$2.63 \cdot 10^6$	$1.96 \cdot 10^6$	$7.4 \cdot 10^5$	$2.7 \cdot 10^6$
20	$1.57 \cdot 10^6$	$1.45 \cdot 10^6$	$4.92 \cdot 10^4$	$1.50 \cdot 10^6$

этом вид зависимостей качественно не меняется. В связи с этим при анализе возможных причин занижения температуры можно считать процесс почти адиабатическим и ограничиться рассмотрением соотношения (2). Соотношение (2) выражает закон сохранения энергии в волне горения и поэтому не выполняться не может. То обстоятельство, что измеренная температура в ряде случаев существенно ниже рассчитанной по соотношению (2), указывает на то, что в расчетах использовалось неправильное (отличное от того, которое реализуется в эксперименте) значение какого-то из параметров, входящих в (2). Такими параметрами являются термодинамические характеристики пористой среды, газа и скорость фильтрации, которые входят в комплекс u_{th} , и тепловой эффект реакции Q . Как для водородо-, так и для пропановоздушных смесей существуют области значений ϕ , в которых соотношение (2) хорошо выполняется. Следовательно, неверное значение может иметь не общий для всех смесей параметр, а только параметр, зависящий от ϕ , и, кроме того, неправильные значения этому параметру присваиваются не во всем диапазоне значений ϕ , а только в тех областях, где наблюдается температурная аномалия. Параметрами, зависящими от ϕ , являются ρ_g , c_g и Q . Трудно предположить, что хорошо отработанные методы расчета плотности и теплоемкости газовых смесей дают корректные значения для одних смесей и некорректные для других. Поэтому остается единственный зависящий от ϕ параметр, которому, возможно, присваивается неправильное значение — Q . Величина Q обычно, и в данной работе также, определяется как тепловой эффект реакции при сгорании данной смеси. Однако в действительности в (2) под Q следует понимать тепловыделение в волне горения. Эти величины не всегда эквивалентны, так как при ФГГ могут реализоваться условия, при которых тепловой эффект не будет пол-

ностью реализован и тепловыделение окажется ниже теплового эффекта реакции. Покажем, что занижение в экспериментальных условиях величины Q должно приводить к занижению T_m . Действительно, исключая u из (7) и (2), получаем

$$Q = \frac{1 - m}{m} \frac{RT_m^2}{E} \frac{\lambda_s \rho_g}{mG^2} k_0 \exp\left(-\frac{E}{RT_m}\right).$$

Из этого соотношения видно, что меньшим значениям T_m соответствуют меньшие значения Q . Таким образом, выполненный анализ позволяет сделать вывод, что причиной аномального занижения температуры в волне горения и завышения скорости волны в тех же областях ϕ является занижение тепловыделения в волне горения относительно теплового эффекта сгорания соответствующих смесей в условиях ламинарного пламени.

На одну из возможных причин занижения тепловыделения в волне ФГГ указал автор работы [6]. В условиях фильтрационного горения в инертной пористой среде воспламенение газовой смеси происходит не при начальной температуре смеси T_0 , а при повышенной температуре T_{ig} , что обусловлено подогревом смеси до воспламенения за счет теплообмена с прогретой пористой средой. Расчеты в рамках программы ChemKin показывают, что с повышением начальной температуры горения тепловой эффект сгорания смеси уменьшается. В таблице приведены значения теплового эффекта сгорания некоторых метановоздушных смесей при $T_0 = 300$ К и $T_0 = T_{ig}$. Температуры воспламенения T_{ig} также рассчитывались с использованием пакета ChemKin. При этом T_{ig} определялась как температура, при которой воспламенение данной смеси происходит на расстоянии порядка размера зерна пористой среды. Для метановоздушных смесей $T_{ig} = 1400 \div 1450$ К в зависимости от содержания метана в смеси. Из таблицы видно,

что учет повышенной начальной температуры приводит к занижению теплового эффекта на 30 % при $\phi \approx 1$ и на 6 ÷ 8 % при предельных для ламинарного пламени концентрациях. Уменьшение теплового эффекта при увеличении начальной температуры смеси, по мнению автора [6], обусловлено тем, что с ростом адиабатической температуры пламени (которая в этом случае равна сумме начальной температуры T_{ig} и разогрева за счет химической реакции) увеличивается доля эндотермических обратных реакций в кинетическом механизме, в результате в продуктах сгорания присутствуют продукты неполного реагирования. Поэтому в [6] предложено при расчетах температуры в волне фильтрационного горения использовать заниженные значения Q , соответствующие температуре T_{ig} , а не начальной температуре газа T_0 . Для проверки применимости этой гипотезы к нашим данным были проведены расчеты ΔT_m по заниженным значениям Q , соответствующим $T_0 = T_{ig}$ (светлые символы на рис. 7). Видно, что для водородных смесей характер зависимостей при этом не изменился, а величины $\Delta T_m - \Delta T_{m,exp}$ незначительно уменьшились. Для пропано- и метановоздушных смесей эффект обратных реакций оказался весьма значительным: разность температур $\Delta T_m - \Delta T_{m,exp}$ уменьшилась на 300 ÷ 400 К. Однако использование заниженных значений Q привело к абсурдному результату: для пропано- и метановоздушных смесей появились широкие области значений ϕ , в которых измеренные значения $\Delta T_{m,exp}$ выше рассчитанных ΔT_m . В соответствии с приведенными рассуждениями это означает, что тепловыделение в волне горения превосходит тепловой эффект химической реакции. Так как к дополнительному тепловыделению взяться неоткуда, остается заключить, что тепловой эффект, соответствующий повышенной температуре зажигания, не соответствуют реальному эксперименту. Кроме того, использование заниженных значений Q все равно не приводит в соответствие рассчитанные и измеренные значения температуры волны.

По нашему мнению, использование для расчетов значений Q , соответствующих повышенной начальной температуре T_{ig} , не всегда оправдано. Действительно, уменьшение Q при $T_0 = T_{ig}$ в условиях адиабатического пламени обусловлено присутствием в более горячих, чем в случае $T_0 = 300$ К, продуктах сгорания зна-

чительной доли продуктов неполного реагирования. Равновесная температура газа в адиабатической волне фильтрационного горения T_{eq} , которая достигается в результате теплообмена с пористой средой, как правило, значительно ниже равновесной температуры адиабатического пламени, равной сумме T_{ig} и адиабатического разогрева Q/c_g . В процессе охлаждения газа от $T_m = T_{ig} + Q(T_{ig})/c_g$ до T_{eq} продукты неполного сгорания дореагируют, что сопровождается дополнительным выделением тепла. В таблице это дополнительное тепловыделение обозначено как $\Delta H(T_{ig} \rightarrow T_{eq})$. При расчетах величины $\Delta H(T_{ig} \rightarrow T_{eq})$ в качестве T_{eq} использовались значения $T_{m,exp}$. В соотношение (2) входит полное тепловыделение в волне горения. В данном случае полное тепловыделение будет складываться из величин $Q(T_{ig})$ и $\Delta H(T_{ig} \rightarrow T_{eq})$. Из таблицы видно, что полное тепловыделение при начальной температуре T_{ig} практически совпадает с тепловым эффектом, соответствующим комнатной начальной температуре. Это совпадение обусловлено тем, что при полученных в наших экспериментах не очень высоких максимальных температурах равновесные продукты реакции практически такие же, как при сгорании смеси при комнатной температуре. С этой точки зрения данный механизм ограничения температуры в волне горения может быть существен только при достаточно высоких равновесных температурах ≈ 2000 К, при которых в продуктах сгорания содержится заметное количество продуктов неполного реагирования. В иных случаях в качестве величины тепловыделения в волне ФГГ корректнее использовать величину теплового эффекта при комнатной начальной температуре. И то обстоятельство, что в наших экспериментах для богатых водородовоздушных и бедных пропановоздушных смесей величины $\Delta T_m(T_0) - \Delta T_{m,exp}$, рассчитанные по значениям Q при $T_0 = 300$ К, стремятся к нулю, как раз свидетельствует в пользу этого утверждения.

Занижение тепловыделения не обязательно означает уменьшение теплового эффекта сгорания смеси при полном выгорании. Тот же самый результат может быть получен за счет неполного выгорания смеси. Более того, даже при полном, но растянутом по пространству тепловыделению максимальная температура в неадиабатической волне горения может быть заниженной. Действительно, соотно-

шение (3) для максимальной температуры получено в предположении очень быстрой химической реакции и соответственно узкой зоны тепловыделения. Теплотерями из этой зоны можно пренебречь, так как скорость тепловыделения значительно превышает скорость теплотер. В этом случае в рамках одностепенной модели температура растет до тех пор, пока не закончится обусловленное химической реакцией тепловыделение. Если же зона тепловыделения широкая, то скорость тепловыделения в зоне химической реакции может стать соизмеримой с теплотерями. И если тепловыделение начиная с некоторого момента перестает превышать затраты тепла на прогрев пористой среды, газа и теплотери, то температура будет падать, хотя химическая реакция еще не закончилась. В результате максимальная температура в волне горения окажется ниже рассчитанной по соотношению (3), несмотря на то, что тепловой эффект сгорания смеси может быть реализован полностью.

Аномальные температурные и скоростные характеристики волн фильтрационного горения наблюдаются для бедных водородовоздушных и богатых пропановоздушных смесей, т. е. там же, где, как правило, проявляется аномальное поведение ламинарных пламен, обусловленное эффектами числа Льюиса. Это обстоятельство позволяет предположить, что обнаруженные аномалии имеют ту же природу, что и эффекты числа Льюиса в ламинарных пламенах. К таким эффектам относят, например, изменение скорости горения при возникновении искривления фронта пламени [7] и, как следствие, развитие неустойчивости пламени по отношению к искривлению фронта [8], формирование ячеистой структуры пламени [9].

В литературе представлены две основные модели, объясняющие эффекты числа Льюиса. В первой из них эффект определяется числом Льюиса недостающего компонента газовой смеси (Le_d) (ввиду неоднозначности определения числа Льюиса в литературе условимся определять его как отношение коэффициента диффузии компонента газовой смеси к коэффициенту температуропроводности смеси: $Le = D/\alpha$). Выводы данной модели дают четкую бифуркацию при $Le_d = 1$, а именно развитие ячеистой неустойчивости пламени возможно только при $Le_d > 1$. В частности, для водородных смесей возникновение ячеистой структуры возможно только с бедной стороны, а для пропан-

новых — с богатой. Существуют, однако, наблюдения ячеистых пламен для умеренно обогащенных водородокислородных и бедных пропановоздушных смесей [10], которые, вероятно, указывают на несовершенство данной модели.

В основе другой модели лежит явление селективной диффузии компонентов газовой смеси [10–12]. При наличии выпуклости фронта в сторону свежей смеси меняется баланс тепла на фронте. Во-первых, возникают дополнительные, обусловленные кривизной теплотери от фронта в зону подогрева, пропорциональные температуропроводности газа. Во-вторых, увеличивается поток компонентов газовой смеси к фронту, пропорциональный коэффициенту диффузии компонента, что приводит к изменению состава смеси, сгорающей во фронте, относительно исходного. Если увеличение тепловыделения за счет дополнительного потока массы превысит увеличение теплотери, то скорость горения на выпуклом участке возрастет и будет развиваться ячеистая неустойчивость. В этой модели условие неустойчивости является более сложным и включает значения Le как недостающего, так и избыточного компонента газовой смеси.

При горении газа в пористой среде реализуются условия, благоприятные для проявления селективной диффузии. В засыпных пористых средах ближайшие поры располагаются не в одной плоскости. Поэтому микропламена, горящие в соседних порах, оказываются на разных уровнях вдоль направления потока газа. Микропламена, выдающиеся в сторону свежей смеси, так же как выпуклости в ламинарном пламени, получают дополнительный поток компонентов газовой смеси, диффузионно извлекаемых из окружения. Соответственно в порах следующего уровня сгорает смесь, обедненная реагирующими компонентами. Такое диффузионное расслоение приводит к тому, что в первом ряду микропламен выделяется тепла больше, чем в случае обычного плоского пламени исходной смеси, а во втором — меньше. Более того, если диффузионное расслоение сильное, то смесь, поступающая ко второму ряду пор, может оказаться за пределом горючести. Тогда осредненное по двум рядам тепловыделение может быть меньше теплового эффекта исходной смеси. А это, как показано выше, должно приводить к занижению температуры в волне горения и увеличению скорости волны. Другая возможность состоит в том, что

обедненная смесь все-таки воспламенится, но не в соседнем ряду пор, а только после того, как наберет достаточное время пребывания в прогретой пористой среде, превышающее индукционный период воспламенения этой смеси, т. е. в отдалении от первого ряда микропламен. В этом случае реализуется вариант широкой зоны реакции, также рассмотренный выше и приводящий, как было показано, к тем же эффектам, что и недогорание.

Модель селективной диффузии позволяет объяснить, почему метановоздушные смеси при фильтрационном горении газа проявляют эффекты столь же сильные, как водородо- и пропановоздушные смеси, в то время как в ламинарных пламенах этого не наблюдается. В ламинарных пламенах эффект ячейки неустойчивости определяется изменением скорости искривленного фронта по отношению к плоскому, которое, в свою очередь, определяется отношением теплоприхода за счет дополнительного диффузионного потока массы компонентов и дополнительного теплоотвода, т. е. числами Льюиса компонентов. Если это отношение меньше единицы, а именно эта ситуация реализуется для богатых метановоздушных, бедных пропановоздушных и богатых водородовоздушных смесей, то увеличения скорости не происходит и условий для развития неустойчивости нет.

При фильтрационном горении газа ситуация иная. В этом случае в соответствии с выдвинутой в данной работе гипотезой эффект определяется занижением или растяжением тепловыделения, которое, в свою очередь, определяется диффузионным перераспределением компонентов газовой смеси между слоями микропламен в порах. Степень диффузионного расслоения зависит от коэффициентов диффузии компонентов смеси. Дополнительный теплоотвод, обусловленный кривизной, в этом случае не играет роли, так как температура и скорость волны ФГГ определяются тепловыделением в волне, а не скоростью локально искривленного фронта микропламен в порах. Поэтому величина эффекта при фильтрационном горении газа определяется не числами Льюиса компонентов, как в ламинарном пламени, а коэффициентами диффузии. Коэффициенты диффузии метана и кислорода в метановоздушных смесях близки к коэффициенту диффузии кислорода в пропановоздушных смесях. Остальные условия ФГГ для этих смесей (размер зер-

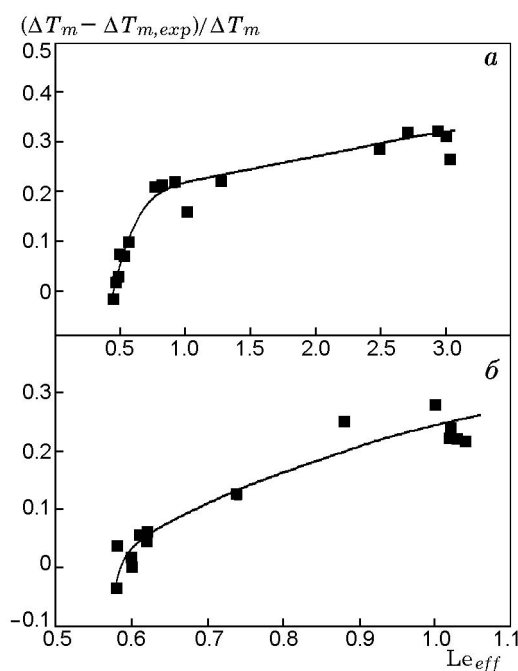


Рис. 8. Зависимость относительного отклонения расчетной температуры пористой среды от измеренной от эффективного числа Льюиса:

a — H_2 + воздух, *b* — C_3H_8 + воздух

на пористой среде, скорости фильтрации) также близки. Естественно ожидать, что порядок эффекта для метановоздушных смесей как в бедной, так и в богатой области должен быть таким же, как в богатых смесях пропана, что и подтверждено экспериментом. Таким образом, наличие эффекта для метановоздушных смесей не противоречит гипотезе о селективной диффузии, а, напротив, является дополнительным свидетельством в ее пользу.

Эффекты селективной диффузии в ламинарных пламенах, например, изменение нормальной скорости горения в искривленных пламенах, носят непрерывный характер при изменении состава смеси. В то же время число Льюиса недостающего компонента газовой смеси меняется скачком при переходе через значение $\phi = 1$. Это противоречие было разрешено в работе [13], в которой введено понятие эффективного числа Льюиса (Le_{eff}). Эффективное число Льюиса характеризует влияние селективной диффузии на нормальную скорость ламинарного пламени и меняется непрерывно при изменении ϕ . В [13] приведены вычисленные значения Le_{eff} в зависимости от ϕ для водородо- и пропановоздушных смесей. На рис. 8 представлены значения относительного

«занижения» температуры в волне фильтрационного горения водородо- и пропановоздушных смесей в зависимости от эффективного числа Льюиса. Видно, что величина эффекта как для водородо-, так и для пропановоздушных смесей монотонно растет с увеличением Le_{eff} . Этот факт также свидетельствует в пользу гипотезы о селективной диффузии.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенные экспериментальные исследования выявили отклонения характеристик волн ФГГ от теоретически обоснованных, проявляющиеся в тех же областях составов смеси, где наблюдаются эффекты числа Льюиса в условиях обычных пламен. Это обстоятельство позволило предположить схожесть явлений, лежащих в основе эффектов числа Льюиса в обычных пламенах, и обнаруженных отклонений в характеристиках волн ФГГ, что подтверждается выявленными корреляциями между относительным занижением температуры в волне ФГГ и эффективным числом Льюиса. Считая эти свидетельства основанием для того, чтобы связать обнаруженные аномалии ФГГ с эффектами числа Льюиса, можно констатировать, что последние проявляются при ФГГ в занижении температуры в волне горения и увеличении скорости волны. Отметим, что для проявления эффектов числа Льюиса при ФГГ не требуется макроскопического искривления фронта волны. Эффект реализуется на уровне микропламен, горящих в порах пористой среды, где искривление фронта пламени в той или иной мере присутствует всегда.

Следует заметить, что обнаруженные эффекты могут играть важную роль при практическом применении процесса ФГГ. Так, одним из наиболее привлекательных свойств ФГГ является эффект «сверхадиабатичности», позволяющий сжигать запредельные в обычных условиях смеси с низким теплосодержанием [1]. Обнаруженное снижение температуры в волне горения будет ограничивать эффект сверхадиабатичности и сужать пределы горючести смесей в пористой среде. Так как это должно негативно сказываться на работе практических устройств на основе ФГГ, то необходимы дальнейшие исследования, направленные на установление механизма проявления эффектов числа Льюиса при ФГГ и функциональных связей обнаруженных эффектов с характеристиками системы.

Приложение

Вывод соотношения для определения максимальной температуры в неадиабатической волне горения

Одномерная однотемпературная неадиабатическая волна фильтрационного горения газа (обозначения даны в тексте) описывается уравнением

$$\begin{aligned} \alpha_s \frac{d^2 T}{dx^2} - (u_{th} - u) \frac{dT}{dx} - \frac{\alpha_{0e}}{c_s \rho_s (1 - m)} (T - T_0) - \\ - (T_b - T_0) u_{th} \frac{d\eta}{dx} = 0 \quad (I) \end{aligned}$$

с граничными условиями

$$T(\mp\infty) = T_0, \quad \frac{dT}{dx}(\mp\infty) = 0,$$

$$\eta(-\infty) = 1, \quad \eta(+\infty) = 0, \quad \frac{d\eta}{dx}(\mp\infty) = 0.$$

Считается, что тепловыделение происходит только в узкой зоне химических реакций, расположенной при $x = 0$. Вне зоны реакции $\frac{d\eta}{dx} = 0$ и баланс тепла в областях свежей смеси и продуктов сгорания принимает вид

$$\alpha_s \frac{d^2 T}{dx^2} - (u_{th} - u) \frac{dT}{dx} - \frac{\alpha_{0e}}{c_s \rho_s (1 - m)} (T - T_0) = 0. \quad (II)$$

Решая (II), получаем распределение температуры:

$$\begin{aligned} T - T_0 &= (T_m - T_0) e^{\mu_1 x} \quad \text{при } x < 0 \\ &\quad \text{(зона подогрева),} \\ T - T_0 &= (T_m - T_0) e^{\mu_2 x} \quad \text{при } x > 0 \\ &\quad \text{(зона продуктов).} \end{aligned}$$

Здесь μ_1 и μ_2 — корни характеристического уравнения для (II), T_m — максимальная температура в волне (при $x = 0$),

$$\mu_{1,2} = \frac{(u_{th} - u)}{2\alpha_s} \pm \sqrt{\frac{(u_{th} - u)^2}{4\alpha_s^2} + \frac{\alpha_{0e}}{\alpha_s c_s \rho_s (1 - m)}}.$$

Проинтегрируем балансное соотношение (I) от $-\infty$ до $+\infty$:

$$\frac{\alpha_{0e}(T_m - T_0)}{c_s \rho_s (1 - m)} \left[\frac{\mu_2 - \mu_1}{\mu_1 \mu_2} \right] - (T_b - T_0) u_{th} = 0. \quad (III)$$

Учитывая, что

$$\begin{aligned} \mu_2 - \mu_1 &= 2 \frac{u_{th} - u}{2\alpha_s} \times \\ &\times \sqrt{1 + \frac{4\alpha_0 \epsilon \alpha_s}{c_s \rho_s (1-m)(u_{th} - u)^2}} \approx \\ &\approx \frac{u_{th} - u}{\alpha_s} \left(1 + \frac{2\alpha_0 \epsilon \alpha_s}{c_s \rho_s (1-m)(u_{th} - u)^2} \right), \end{aligned}$$

$$\mu_1 \mu_2 = - \frac{\alpha_0 \epsilon}{c_s \rho_s (1-m) \alpha_s}$$

и подставляя в (III), получаем

$$\frac{\Delta T_b}{\Delta T_m} = \left(1 - \frac{u}{u_{th}} \right) + \frac{2\alpha_0 \epsilon \alpha_s^2}{\lambda_s (1-m) u_{th} (u_{th} - u)},$$

что соответствует выражению (3).

ЛИТЕРАТУРА

1. **Лаевский Ю. М., Бабкин В. С.** Фильтрационное горение газа // Распространение тепловых волн в гетерогенных средах / Под ред. Ю. Ш. Матроса. Новосибирск: Наука, 1988.
2. **Rabinovich O. S., Fefelov A. V., Pavlyukevich N. V.** Modeling of premixed gas combustion in porous media, composed of coarse-sized particles: 1-D description with discrete solid phase // 26 Intern. Symp. on Combustion. Pittsburgh: The Combustion Inst., 1996. P. 3383–3389.
3. **Минаев С. С., Бабкин В. С.** Распространение пламени в канале с переменным сечением при фильтрации газа // Физика горения и взрыва. 2001. Т. 37, № 1. С. 16–24.
4. **Какуткина Н. А.** Некоторые аспекты устойчивости горения газа в пористых средах // Физика горения и взрыва. 2005. Т. 41, № 4. С. 39–49.
5. **Kee R. J., Rupley F. M., Miller J. A.** ChemKin-II: A FORTRAN chemical kinetics package for the analysis of gas phase chemical kinetics // Sandia National Laboratories. SAND 89-8009B. 1989.
6. **Футько С. И.** О механизме ограничения максимальных температур в волнах фильтрационного горения газов // Физика горения и взрыва. 2003. Т. 39, № 2. С. 15–25.
7. **Нестационарное** распространение пламени / Под ред. Дж. Г. Маркштейна. М.: Мир, 1968.
8. **Математическая** теория горения и взрыва / Я. Б. Зельдович, Г. И. Баренблатт, В. Б. Либрович, Г. М. Махвиладзе. М.: Наука, 1980.
9. **Льюис Б., Эльбе Г.** Горение, пламя и взрывы в газах. М.: Мир, 1968.
10. **Konnov A. A.** On the cellular instability of flames of ternary mixtures // Proc. of the European Combustion Meeting ECM-2003. V. 1. France, Orleans. The French Section of the Combustion Institute. CD ROM. 2003. P. 1–6.
11. **Коржавин А. А., Бунев В. А., Бабкин В. С., Клименко А. С.** Эффекты селективной диффузии при распространении и гашении пламени в пористой среде // Физика горения и взрыва. 2005. Т. 41, № 4. С. 50–59.
12. **Hertzberg M.** Selective diffusional demixing: occurrence and size of cellular flames // Progr. Energy Combust. Sci. 1989. V. 15. P. 203–239.
13. **Sun C. J., Sung C. J., He L., Law C. K.** Dynamics of weakly stretched flames: quantitative description and extraction of global flame parameters // Combust. Flame. 1999. V. 118. P. 108–128.

Поступила в редакцию 1/VI 2005 г.