

## РЕЖИМЫ ГОРЕНИЯ МАГНИЯ

*М. Е. Деревяга, Л. Н. Стесик, Э. А. Федорин*

*(Черноголовка)*

В настоящее время известно значительное количество работ, посвященных изучению общей картины и механизма горения металлов, и в частности магния. Экспериментальное изучение его горения — основа наиболее распространенной теории диффузионного горения металлов [1]. Однако в большинстве работ горение металлов исследовалось на мелкодисперсных порошках. Выводы, полученные в ходе этих исследований на основе качественных наблюдений и количественных измерений немногих характеристик, не позволяют построить достаточно полную физическую картину горения металлов.

В настоящей работе исследование горения магния (чистота 99,9%) проводилось на сферических образцах диаметром 3, 4 и 6 мм, что в значительной степени расширило возможности качественных наблюдений и позволило провести ряд количественных измерений. В частности, в ходе всего процесса горения с помощью термопар проводилось измерение температуры капли металла. В работе использовались два метода организации процесса: горение образцов в горячем окислительном газовом потоке в печи с электронагревом [2] и в холодном (комнатной температуры) потоке, когда применялся индукционный разогрев [3] до момента срыва теплового равновесия. Саморазогрев и горение образцов протекали без индукционного нагрева. В обоих случаях при одинаковых температурах горящих образцов (капель) характер процесса горения был аналогичен. Температура регистрировалась вольфрам-рениевыми термопарами (толщиной 0,05 и 0,35 мм), сигнал с которых фиксировался на шлейфовом осциллографе с ошибкой измерения  $\pm 7^\circ$ . Время горения регистрировалось фотоэлементом. Внешние проявления процесса горения фиксировались на пленке кинокамерой «Конавас» и наблюдались визуально.

Прежде всего с помощью киносъемки исследована качественная картина взаимодействия магния с холодным окислительным потоком при саморазогреве образцов от точки срыва теплового равновесия ( $650^\circ\text{C}$ ) до температуры горения капли. Температура капли в начале горения увеличивалась с концентрацией кислорода в потоке вплоть до температуры кипения металла ( $1140^\circ\text{C}$ ). При саморазогреве образцов наблюдался ряд различных состояний поверхности (рис. 1).

На рис. 1, а представлена фотография исходного образца  $d=6$  мм, подвешенного на термопаре. Рис. 1, б относится к моменту достижения температуры срыва теплового равновесия: образец расплавлен и покрыт пленкой темно-серого цвета. Шероховатость поверхности образца в некоторых местах можно объяснить появлением к данному моменту

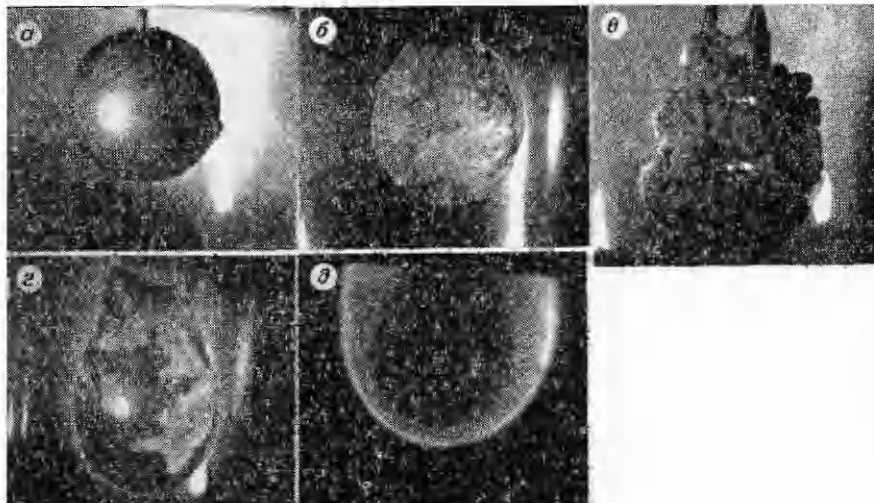


Рис. 1. Последовательность смены состояний поверхности капли магния при саморазогреве капли магния диаметром 6 мм.

пор и трещин в окисной пленке. С повышением температуры наблюдается непрерывное вспучивание поверхности за счет образования на локальных ее участках пенообразных, быстрорастущих выступов или пузырей. Видимый размер капли сильно увеличивается, при этом вся ее поверхность находится в движении (рис. 1, в). При дальнейшем повышении температуры поверхность капли освобождается от такого рода образований и окисной пленки. Этому моменту отвечает рис. 1, г, где капля уже частично очистилась от окисной пленки (более темные места). Как только капля начинает очищаться от окисной пленки, вокруг нее возникает зона парогазовой реакции, яркость свечения которой растет с повышением температуры капли. В некоторый момент этот рост имеет скачкообразный характер. Момент достижения высокой яркости свечения при полном освобождении поверхности от окисной пленки представлен на рис. 1, д. Здесь на некотором расстоянии от капли видна зона реакции в виде узкой светлой полосы. Если концентрация кислорода в потоке настолько высока, что температура капли достигает температуры кипения магния, то наблюдается разбрызгивание и полное нарушение горячей капли. В этом состоянии происходит быстрое ее сгорание с образованием яркосветящегося облака.

Процесс горения исследовался и в области более низких температур горячей капли, что достигалось за счет снижения концентрации кислорода в потоке. При этом кроме горения с разбрызгиванием наблюдались два более низкотемпературных устойчивых режима горения, отвечающих поверхности образца, свободной от окисла (см. рис. 1, д), и наличию на ней пенообразования (см. рис. 1, в). Кроме состояния поверхности данные режимы отличались характером изменения температуры во время горения и видом конечных продуктов сгорания. Характерные для этих режимов кривые изменения температуры капель (исходного диаметра 3 мм) со временем, наблюдаемые при различных концентрациях кислорода в потоке, представлены на рис. 2. Здесь режиму с пенообразованием отвечает кривая 4, режиму горения капли, свободной от окисла, — кривая 3 и режиму с разбрызгиванием — кривая 1. Для кривой 2 характерна последовательная смена режимов в ходе горения (режим горения капли, свободной от окисла, при достижении температуры кипения переходит в режим с разбрызгиванием). На кривых выделены участки роста температуры капли от момента срыва теплового равновесия до выхода на режим горения (аb), уча-

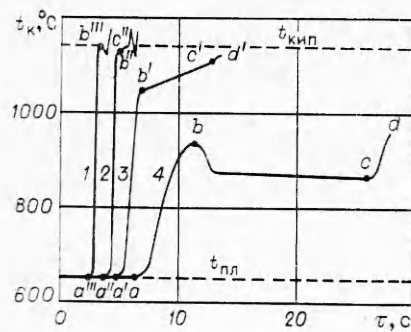


Рис. 2. Зависимость температуры капли магния  $t_k$  от времени при различных объемных концентрациях кислорода в потоке,  $d=3$  мм.  
 $O_2$ , %: 1—100, 2—78, 3—28, 4—5.

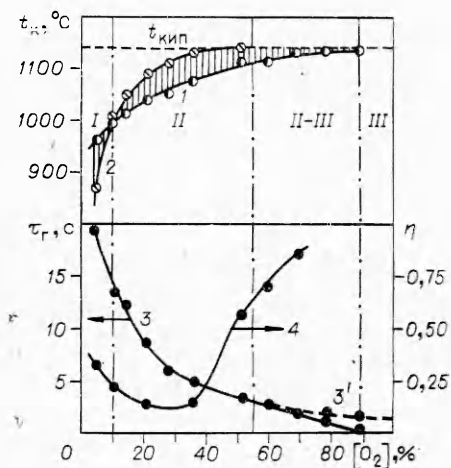


Рис. 3. Зависимость  $t_k$  в начале (1) и в конце (2) горения, времени горения (3) и относительного количества окисного остатка на образце  $\eta$  (4) от объемной концентрации кислорода в смеси; скорость обдува 20 см/с.

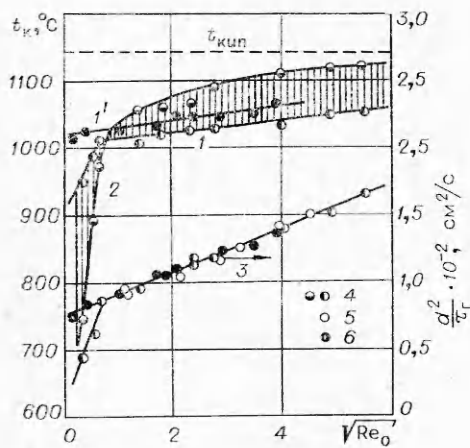


Рис. 4. Зависимость  $t_k$  в начале (1,1') и в конце (2) горения и отношения  $d_0^2/\tau_r$  (3) от  $\sqrt{Re_0}$  (4— $d=6$  мм, 5—4 мм, 6—3 мм).

сток устойчивого протекания режима горения ( $bc$ ) и окончание процесса горения ( $cd$ ). Из рис. 2 видно, что на участке горения для режима с пенообразованием температура капли снижается со временем, а для режима в отсутствие окисла повышается. Повышение температуры капли в процессе ее выгорания не связано с тепловой инерционностью капли. Оценка показывает, что скорость выравнивания температуры капли магния достаточно высока и для диаметра 6 мм составляет  $\sim 1000$  град/с. Скорость изменения температуры капли в процессе горения значительно меньше. Следовательно, процесс можно считать квазистационарным.

Исследование горения образцов магния диаметром 6 мм проводилось в диапазоне изменения концентраций кислорода 5—60%, а для диаметра 3 мм — в диапазоне 5—100%. Результаты опытов с диаметром образца 3 мм представлены на рис. 3. Кривая 1 соответствует точкам  $b$ , а кривая 2 — точкам  $c$  на рис. 2. Таким образом, кривые 1 и 2 ограничивают интервал изменения температуры капли в процессе горения при заданной концентрации кислорода и скорости обдува. В соответствии с поведением этих кривых весь диапазон изменения концентраций разбивается на четыре области, различающиеся характером процесса горения.

В области I осуществляется режим с пенообразованием, в ходе которого температура капли понижается. В области II окисление происходит в газовой фазе над поверхностью капли, свободной от окисла. При этом температура капли возрастает. Границей областей I и II является концентрация, соответствующая точке пересечения кривых 1 и 2. В области III горение протекает с разбрызгиванием, температура капли достигает температуры кипения магния в самом начале процесса горения. Промежуточная область II—III охватывает случаи, когда переход к режиму с разбрызгиванием наблюдается по достижении температуры кипения в процессе горения. Далее наименование наблюдаемых режимов горения магния проводится по номеру областей их существования, представленных на рис. 3.

Кривая 3 на рис. 3 отвечает измеренным в опытах временам горения капли. С повышением концентрации кислорода оно убывает. Полное время горения описывается вначале кривой 3, которая затем переходит в кривую 3'. На участке, где происходит раздвоение кривой, сплошная линия соответствует времени горения до разбрызгивания. Из данного рисунка следует, что для капли диаметром 3 мм граница между первым и вторым режимами соответствует содержанию кислорода 10% в потоке, а вторым и третьим — 89% (при указанной скорости обдува). Для капли диаметром 6 мм была определена граница между первым и вторым режимами, которая соответствовала 14%-ному содержанию кислорода в потоке при той же скорости обдува. Обработка данных по временам горения капелек диаметром 6 и 3 мм (рис. 3, 3, область II) в зависимости от концентрации кислорода во втором режиме горения дает линейную связь отношения  $d_0^2/\tau_r$  с концентрацией кислорода в потоке ( $c$ ), которая при одинаковых числах Рейнольдса ( $Re_0=3,42$ ) имеет вид

$$d_0^2/\tau_r = kc. \quad (1)$$

Если  $c$  обозначает объемную долю кислорода в потоке, то  $k=4,56 \cdot 10^{-2}$  см<sup>2</sup>/с. Вычисление  $Re_0$  проводилось по начальному диаметру капли  $d_0$  и значению коэффициента кинематической вязкости  $\nu=1,78$  см<sup>2</sup>/с (1000°C) [4].

Рис. 3, 4 характеризует отношение веса окисных остатков на термомпарах к общему количеству продуктов сгорания капли. В конце горения с преобразованием на термомпарах остается пористый окисный остаток, значительно превышающий исходный размер капли. Внутри

этого остатка в порах и пустотах обнаруживается большое количество мелкодисперсных продуктов горения. Оказалось, что размер остатка и содержание мелкодисперсных продуктов реакции в нем тем значительнее, чем ниже содержание кислорода в газовом потоке. При горении капли по второму режиму также имеются конденсированные остатки в виде полых полусфер из белой окиси. С помощью киносъемки удалось установить, что рост полусферы происходит навстречу набегающему потоку по границе зоны парогазовой реакции, т. е. на некотором расстоянии от поверхности капли. При этом растущая полусфера как бы вытесняет зону реакции, поэтому диаметр окисной полусферы оказывается равным диаметру зоны горения. Кроме того, значительная часть мелкодисперсных продуктов парогазовой реакции уносится газовым потоком. Их анализ под электронным микроскопом показал, что это частицы кубической формы со среднеобъемным размером 0,3 мкм.

Уменьшение  $\eta$  при переходе от первого режима горения ко второму связано с тем, что последний характеризуется преимущественно парогазовым реагированием вдали от поверхности капли. Неожиданно здесь увеличивается окисного остатка, образующегося в зоне реакции по мере дальнейшего роста концентрации кислорода. Если построить аналогичную кривую для образца диаметром 6 мм, то правые ветви этих кривых практически совпадают. При  $[O_2] < 35\%$  кривая для  $d = 6$  мм отклоняется вверх более круто.

На наш взгляд, возможны два механизма образования окисной полусферы в зоне реакции: либо пары металла адсорбируются на окисле (обычно присутствующем в тыльной части образца) и там реагируют, надстраивая полусферу, либо она строится за счет спекания мелкодисперсных продуктов парогазовой реакции в зоне, благодаря высокой температуре. Второй механизм предпочтительнее, так как с повышением концентрации кислорода в потоке увеличивается интенсивность горения, а следовательно, увеличиваются температура и концентрация мелкодисперсных окисных продуктов в зоне реакции, что должно способствовать их лучшему спеканию. Накопление конденсированных окисных продуктов в зоне при горении металлов предсказано теоретически в [1]. Горение с разбрызгиванием не оставляет никаких остатков на термопарах. Продукты горения в этом случае уловить не удалось; по-видимому, они очень мелкие и практически все уносятся газовым потоком.

Исследование горения капель проводилось при различных скоростях обдува. В опытах в качестве окисляющего газа использовался воздух. Скорость потока изменялась от 0 до 90 см/с. Результаты экспериментов представлены на рис. 4. Для капли  $d = 6$  мм происходит пересечение температурных кривых, что соответствует переходу от первого режима ко второму при  $\sqrt{Re_0} = 0,7$ . Для капли с диаметром 3 мм в этих условиях первый режим не наблюдался. В исследованном интервале чисел Рейнольдса переход от второго режима к третьему не наблюдался. Однако, судя по поведению температурных кривых, его можно ожидать при более высоких значениях  $Re_0$  и тем больших, чем больше размер капли, если при этом не произойдет качественных изменений процесса горения. Из рис. 4, 3 видно, что в области протекания второго режима для всех размеров капель значения  $d_0^2/\tau_r$  удовлетворительно ложатся на одну прямую. Для капель диаметром 6 мм при переходе к первому режиму имеет место отклонение от общей зависимости. Таким образом, в области второго режима наблюдается общая прямолинейная зависимость  $d_0^2/\tau_r$  от  $\sqrt{Re_0}$ , которую можно описать уравнением

$$d_0^2/\tau_r = k_0(1 + \alpha\sqrt{Re_0}) \quad (2)$$

при  $k_0 = 0,75 \cdot 10^{-2}$  см<sup>2</sup>/с и  $\alpha = 0,217$ .

Выражения (1) и (2) должны давать одинаковый результат при подстановке в (1) концентрации кислорода, соответствующей воздуху ( $c=0,23$ ), а в (2)  $\sqrt{Re_0}=1,85$ . Комбинируя эти выражения, получаем общую зависимость  $d_0^2/\tau_r$  от числа Рейнольдса и концентрации кислорода в потоке

$$d_0^2/\tau_r = k^*c(1 + \alpha\sqrt{Re_0}), \quad (3)$$

где  $k^*$  получается при делении  $k_0$  на концентрацию кислорода в воздухе или путем исключения зависимости  $k$  от  $Re$ . Оба результата хорошо согласуются и среднее значение  $k^*=3,24 \cdot 10^{-2}$  см<sup>2</sup>/с. Из (3) определяется полное время горения капель магния через исходные величины для второго режима горения.

При горении магния в печи с электронагревом выяснялось влияние повышенной температуры среды на пределы существования режимов горения и на время горения капель. Исследования проводились в атмосфере воздуха на образцах с  $d=6$  мм. Переходы между режимами наблюдались при тех же температурах горящих капель, как и в случае холодной среды. Первый режим горения реализовался в неподвижной атмосфере при температуре газа  $\sim 650^\circ\text{C}$ . При обдуве образцов даже с малыми скоростями потока наблюдался второй режим горения. В потоке воздуха (скорость 15—20 см/с) с температурой  $1250^\circ\text{C}$  отмечалось горение с разбрызгиванием. Таким образом, в горячей окислительной атмосфере те же режимы наблюдались при более низкой скорости обдува и концентрации кислорода в потоке. В то же время во втором режиме полное время горения капли уменьшалось незначительно с повышением температуры потока до  $\sim 1000^\circ\text{C}$ .

К такому же выводу ранее пришли авторы работ [5, 6]. Это позволяет сравнить полученную в настоящей работе в холодном воздухе константу скорости горения  $k_0$  ( $Re_0=0$ ) с аналогичной величиной в указанных работах при горении более мелких капель магния в атмосфере горячего воздуха. Так, в [5] для  $d=0,5 \div 1,5$  мм при температуре воздуха  $800^\circ\text{C}$  она равна  $0,7 \cdot 10^{-2}$  см<sup>2</sup>/с, а в [6] при температуре  $920^\circ\text{C}$  для капель диаметром 0,120, 0,084 и 0,060 мм она равна  $0,87 \cdot 10^{-2}$ ,  $0,72 \cdot 10^{-2}$  и  $1,30 \cdot 10^{-2}$  см<sup>2</sup>/с соответственно. Такое согласие результатов можно считать удовлетворительным, поэтому полученные в настоящей работе количественные данные по влиянию концентрации кислорода и скорости обдува на процесс горения можно распространить и на мелкие капли в широком интервале температур окислительной газовой среды при атмосферном давлении.

Из опытов в холодном потоке следует, что границы между режимами изменяются в зависимости от концентрации кислорода, скорости обдува и диаметра капли. В связи с этим необходимо было найти общую определяющую характеристику, включающую все эти параметры. В качестве такой характеристики рассматривалась удельная массовая скорость горения капли ( $m$ )

$$m = \frac{\rho_R}{4d_R} \cdot \frac{d(d_R^2)}{d\tau}. \quad (4)$$

Здесь  $\rho_R$  — плотность топлива;  $\tau$  — текущее время;  $d_R$  — текущий диаметр. Концентрация кислорода и скорость обдува, как следует из (3), неявно входят в (4) через сомножитель  $d(d_R^2)/d\tau$ . Уравнение (3) дает среднюю скорость изменения  $d_R^2$  от начала до конца горения. Переход к текущим значениям скорости требует учета изменения диаметра капли и числа Рейнольдса в ходе горения.

Для получения текущей скорости использовалась кривая 3 рис. 4, характеризующая зависимость  $d_0^2/\tau_r$  от  $\sqrt{Re_0}$  для различных диаметров капель. При этом считалось, что скорость обдува постоянна, а число Рейнольдса изменяется за счет диаметра. Задавшись интервалом уменьшения диаметра от некоторого его начального значения, а также скоростью обдува вычисляли величину  $\sqrt{Re_0}$  для каждого диаметра. Затем по рис. 4, 3 находились соответствующие значения  $d_0^2/\tau_r$ , откуда определялось полное время горения для каждого диаметра. Вычитая из времени горения исходной капли времена горения каждой из капель заданного диаметра, определялось время, в течение которого диаметр капли изменяется от начального значения до заданного. Затем строили график зависимости  $d_k^2 = f(\tau)$ . Графическим дифференцированием на полученной кривой находились значения  $d(d_k^2)/d\tau$  в заданных точках. Поскольку этим точкам соответствуют определенные значения числа Рейнольдса, в итоге приходим к зависимости

$$\frac{d(d_k^2)}{d\tau} = k^*c(1 + \beta\sqrt{Re_0}) \quad (5)$$

при  $\beta = 0,293$ .

В данном выражении число Рейнольдса изменяется в ходе горения. В неподвижной среде ( $Re=0$ ) выражение (5) является константой Срезневского. Подставляя формулу (5) в (4), получаем зависимость массовой скорости от концентрации и текущего значения числа Рейнольдса в явном виде

$$m^* = \frac{\rho_k}{4d_k} = k^*c(1 + \beta\sqrt{Re_0}). \quad (6)$$

Значения  $m^*$  на границах между режимами определялись с использованием (6) и на основе экспериментальных данных. Так, в случае изменения концентрации кислорода было получено, что при переходе от первого режима ко второму для диаметра 6 мм ( $c=0,14$ ,  $\sqrt{Re}=2,6$ )  $m^*=5,8 \cdot 10^{-3}$  г/(см<sup>2</sup>·с), а для диаметра 3 мм ( $c=0,1$ ,  $\sqrt{Re}=1,85$ )  $m^*=7,26 \cdot 10^{-3}$  г/(см<sup>2</sup>·с). Переход от второго режима к третьему для диаметра 3 мм наблюдался при  $m^*=64,7 \cdot 10^{-3}$  г/(см<sup>2</sup>·с) ( $c=0,89$ ,  $\sqrt{Re}=1,85$ ). В случае изменения скорости обдува (см. рис. 4), когда при  $\sqrt{Re}=0,7$  отмечается переход лишь от первого режима ко второму для диаметра капли 6 мм, получена величина  $m^*=6,57 \cdot 10^{-3}$  г/(см<sup>2</sup>·с). Она удовлетворительно согласуется с соответствующими значениями, полученными выше.

В рассматриваемых случаях определенный режим устанавливается с самого начала процесса горения, поэтому в выражении (6) подставлялись значения  $d_0$  и  $Re_0$ . Полученные граничные значения  $m^*$  относятся к комнатной температуре окружающей среды. Из опытов, проведенных в горячем газовом потоке, следует, что они уменьшаются с повышением температуры среды. Однако при этом пределы существования режимов по температуре капли не изменялись, что позволяет считать данную температуру одним из основных параметров процесса горения. Уменьшение  $m^*$  в случае горячей газовой среды объясняется тем, что для достижения соответствующей предельной температуры капли требуется меньшее тепловыделение за счет химической реакции из-за меньшей теплоотдачи в горячий газовый поток.

Следует заметить, что второй режим горения в литературе известен как диффузионный режим горения капли. Он наиболее часто встречается в практике и наблюдался многими исследователями при горении мелких частиц различных металлов [7].

Третий режим, характеризующийся разбрызгиванием горячей капли в случае горения мелких частиц алюминия, описан ранее в ряде работ, в частности в [8], а в случае частиц магния — в [5, 6]. Кроме того, в [8] на частицах алюминия получено, что концентрация окислителя, соответствующая началу горения с разбрызгиванием, уменьшается при повышении температуры среды. Это качественно согласуется с результатами настоящей работы.

Первый режим горения сравнить с литературными данными существенно труднее, так как он недостаточно известен в практике. К нему можно отнести более низкотемпературный из выделенных в [2] двух режимов горения алюминия и цинка. В [9] описано явление «раздувания» мелких частиц магния при воспламенении их на стенке. Такое явление можно определить как первый режим горения, поскольку в этих опытах при неблагоприятных условиях массоподвода окислителя имеет место дополнительный теплоотвод от горячей частицы в стенку. Проведенные разогревы образцов в инертной атмосфере (аргон) до температур, соответствующих области существования первого режима, показали, что в этом случае окисная пленка на образцах сохранялась и вспенивания поверхности не наблюдалось. Можно предположить, что явление вспенивания присуще взаимодействию образца с окислительной атмосферой. Для него в опытах наблюдалось как поверхностное (образование окисной пленки на жидком металле), так и парогазовое реагирование с образованием мелкодисперсных окисных продуктов внутри вздутий. Причиной вспенивания может быть локальное различие величины поверхностного натяжения жидкого металла в местах отсутствия и присутствия окисла и, как следствие этого, неустойчивость поверхности (межфазная турбулентность) [10]. Однако для окончательного выяснения физической природы этого явления необходимы более детальные исследования.

Таким образом, на основании представленных результатов и анализа литературных данных можно полагать, что выделенные режимы горения достаточно общие.

*Поступила в редакцию  
29/VII 1977*

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Т. Бржустовский, И. Глассмен.— В сб.: Гетерогенное горение. М., «Мир», 1967.
2. М. Е. Деревяга, Л. Н. Стесик, Э. А. Федорин. ФГВ, 1977, 13, 6.
3. М. Е. Деревяга, Л. Н. Стесик, Э. А. Федорин. ФГВ, 1976, 12, 4, 544.
4. С. С. Кутателадзе, В. М. Боришанский. Справочник по теплопередаче. Л.—М., ГЭИ, 1959.
5. Г. К. Ежовский, А. С. Мочалова и др.— В сб.: Горение и взрыв. М., «Наука», 1972.
6. С. К. Law, F. A. Williams. Combust. Flame, 1974, 22, 383—405.
7. П. Ф. Похил, А. Ф. Беляев и др. Горение порошкообразных металлов в активных средах. М., «Наука», 1972.
8. R. Friedman, A. Mašek. Combust. Flame, 1962, 6, 9.
9. В. И. Шевцов, В. П. Фурсов. Физика аэродисперсных систем. Вып. 14, 1976.
10. В. В. Кафаров. Основы массопередачи. М., «Высшая школа», 1962.