

## ВЛИЯНИЕ КОНВЕКТИВНОГО ДВИЖЕНИЯ В ВОЛНАХ ГОРЕНИЯ ГЕТЕРОГЕННЫХ СИСТЕМ НА СТРУКТУРУ ПЛАМЕНИ В УСЛОВИЯХ ЕСТЕСТВЕННОЙ И ИСКУССТВЕННОЙ ГРАВИТАЦИИ

В. И. Юхвид

Институт структурной макрокинетики и проблем материаловедения РАН, 142432 Черноголовка  
yukh@ism.ac.ru

Конвективное движение в волнах горения возникает под влиянием естественной и искусственной гравитации (центробежного воздействия) для широкого круга гетерогенных систем, таких как перхлорат аммония с твердыми добавками, порошки металлов и неметаллов с активным газом, высококалорийные системы термитного типа, гибридные слоевые системы. В работе изложены результаты исследования горения гетерогенных систем в условиях интенсивного конвективного движения в волнах горения, полученных автором с коллегами с начала 1970-х годов по настоящее время. Показано, что конвективные процессы в волнах горения гетерогенных систем могут определять структуру и закономерности распространения волн горения, тепло- и массоперенос в них.

Ключевые слова: горение, структура волны, конвекция, фильтрация, псевдоожигение.

### ВВЕДЕНИЕ

В 1960-е годы в работах российских (Э. И. Максимов, А. Г. Мержанов, Ю. М. Максимов, А. Д. Марголин и др.) и американских (E. J. Sturm, R. E. Reichenbach, J. V. Andersen и др.) исследователей в экспериментах на центробежных установках было показано, что под влиянием перегрузки скорость горения перхлората аммония (ПХА) с активной добавкой алюминия заметно возрастает. Данный эффект объясняли возрастанием скорости горения, вызванным образованием крупных агломератов алюминия на поверхности таблетки и увеличением скорости газификации ПХА под ними.

В начале 1970-х годов в работах [1, 2] было показано, что скорость горения ПХА с инертными частицами  $Al_2O_3$  под влиянием перегрузки также заметно увеличивается, а в ряде случаев эта зависимость имеет более сложный характер.

Для объяснения этого результата была предложена модель, в которой по мере роста перегрузки газодисперсная зона проходит три состояния: двухфазный поток, псевдоожигенный слой, плотный слой частиц на поверхности таблетки ПХА. Пределы псевдоожигения

определяются перегрузкой и характеристиками двухфазной среды.

В области существования псевдоожигенного слоя над таблеткой ПХА протекает интенсивное конвективное перемешивание, которое сопровождается интенсивным переносом тепла из зоны горения продуктов газификации ПХА к поверхности таблетки ПХА. В этой модели увеличение скорости горения с ростом перегрузки обусловлено интенсификацией конвективного теплопереноса из фронта горения в газе к поверхности таблетки.

Эти представления оказались полезными для проведения последующих исследований, результаты которых рассмотрены в настоящей работе.

Интенсивное конвективное движение может возникать также при горении высокоэкзотермических систем термитного типа, исходные компоненты и продукты горения которых находятся в жидкофазном состоянии в волнах горения. Впервые конвективное движение жидкой фазы в волне горения железо-алюминиевого термита под действием центробежной силы было отмечено в 1968 г. [3]. В последующих работах автора с коллегами влияние конвективного движения на горение гетерогенных систем термитного типа было исследовано для широкого круга систем.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 06-03-32188) и Российской академии наук (программа 8-ОХ).

## ВЛИЯНИЕ КОНВЕКТИВНОГО ДВИЖЕНИЯ ГАЗА НА СТРУКТУРУ ВОЛН ГОРЕНИЯ

### Горение слоевой системы ПХА — активированный уголь

С целью визуализации горения с псевдоожигением газодисперсной зоны автором была разработана экспериментальная методика (рис. 1) исследования горения слоевой двухфазной системы ПХА — активированный уголь в атмосферных условиях [4]. Визуальные наблюдения показали, что после воспламенения и короткого периода стабилизации под совместным воздействием потока продуктов газификации ПХА и гравитации над поверхностью таблетки ПХА формируется псевдоожигенный слой активированного угля. Все частицы угля в объеме этого слоя активно горят, и слой интенсивно перемещается. По мере горения поверхность таблетки ПХА перемещается с очень малой скоростью (доли миллиметра в секунду), а высота таблетки уменьшается. Псевдоожигенный слой согласованно перемещается за поверхностью таблетки. Его верхняя граница слабо пульсирует. Следует отметить, что сама таблетка ПХА в отсутствие слоя угля теряет способность к горению. В экспериментах использовали таблетки ПХА высотой 2 см. В ряде случаев использовали составные таблетки высотой до 6 см. Линейную скорость горения (скорость перемещения поверхности ПХА)

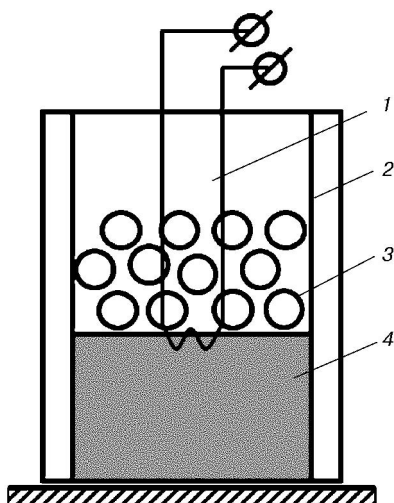


Рис. 1. Экспериментальная установка:

1 — поджигающая спираль, 2 — кварцевая трубка, 3 — слой активированного гранулированного угля, 4 — таблетка ПХА

определяли на базах  $4 \div 5$  мм. Ввиду малой скорости горения время на базовых отрезках с высокой точностью измеряли секундомером.

Динамика процесса горения определяется соотношением масс (высот) таблеток ПХА и угля ( $m$ ) (рис. 2, а):

— при избытке угля скорость горения  $u$  постоянна во времени от начала до завершения горения (кривая 1). Горение завершается в момент полного сгорания таблетки ПХА;

— при недостатке угля (кривая 2) сгорает только часть таблетки, причем вначале скорость горения постоянна во времени, а затем уменьшается до момента завершения горения. Завершение горения связано с полным выгоранием углерода в частицах активированного угля. По завершении горения на поверхности таблетки ПХА остаются частицы золы примерно того же размера, что и исходные частицы.

На стационарном (квазистационарном) участке горения при фиксированном размере

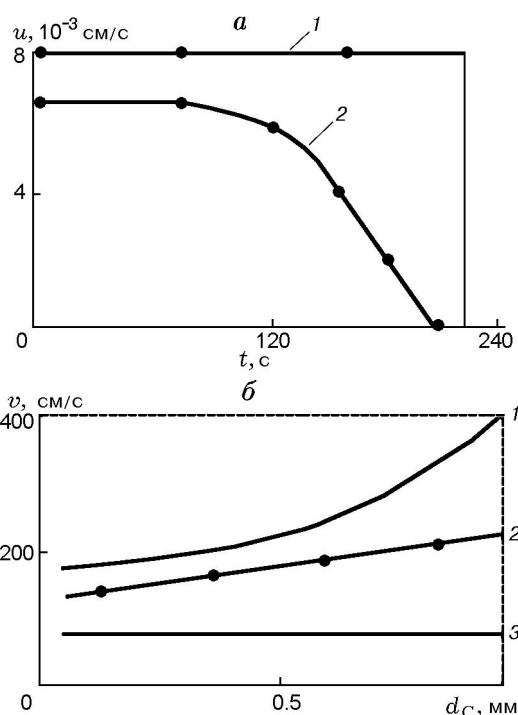


Рис. 2. Закономерности горения слоевой системы «ПХА — гранулированный активированный уголь»:

диаметр таблетки 1 см, высота таблетки 2 см; а — динамика горения,  $d_c = 0.7$  мм,  $m = 1.2$  (1),  $m = 0.6$  г (2); б — влияние дисперсности гранул активированного угля на скорость газа в слое (2) и первый (линия 1) и второй (3) пределы псевдоожигения,  $m = 0.6$  г

частиц угля высота псевдооживленного слоя определяется исходной высотой слоя угля и дисперсностью частиц. С уменьшением размера частиц угля высота псевдооживленного слоя и скорость горения уменьшаются. При размере частиц менее 30 мкм слоевая система теряет способность к горению.

Сопоставление экспериментальной зависимости скорости горения от размера частиц с пределами горения свидетельствует о том, что горение осуществляется в области, близкой к верхнему пределу псевдооживления (рис. 2, б). Пределы псевдооживления рассчитывали по формулам [5]:

$$v_1 = f \times 9.35 \cdot 10^{-3} (d_C^{1.8} \rho_C^{0.9} \rho_g^{0.1} / \nu^{0.9}),$$

$$f = 1 \text{ при } Re < 0.5,$$

$$f = 1.8 Re^{0.3} \text{ при } Re = 10 \div 300;$$

$$v_2 = 0.15 d_C^{1.1} (\rho_C g)^{0.7} \rho_g^{0.3} / \nu^{0.4},$$

где  $v_1, v_2$  — линейная скорость течения газа соответственно на 1-м и 2-м пределах псевдооживления,  $d_C$  — средний размер частиц угля в эксперименте,  $\rho_C$  — плотность частиц активированного угля,  $\rho_g$  — плотность газа в потоке,  $\nu$  — кинематический коэффициент вязкости,  $Re$  — число Рейнольдса,  $g$  — ускорение свободного падения.

Для описания горения слоевой системы автором была предложена качественная модель горения, в которой скорость горения (скорость перемещения поверхности таблетки ПХА) определяется процессами, протекающими в объеме псевдооживленного слоя [4].

За счет интенсивного конвективного перемешивания температура и концентрация газообразного окислителя по высоте псевдооживленного слоя постоянны, за исключением пограничного слоя вблизи поверхности таблетки ПХА (рис. 3).

Из баланса тепла можно получить оценку для скорости горения:

$$u = \frac{\alpha T_f - T_s}{c T_s - T'_{in}},$$

где  $\alpha$  — коэффициент теплоотдачи,  $T_f$  — конечная температура горения (температура в псевдооживленном слое),  $T_s$  — температура поверхности таблетки,  $T'_{in} = T_{in} - L/c$ ,  $L$  — удельная теплота сублимации,  $c$  — удельная теплоемкость.

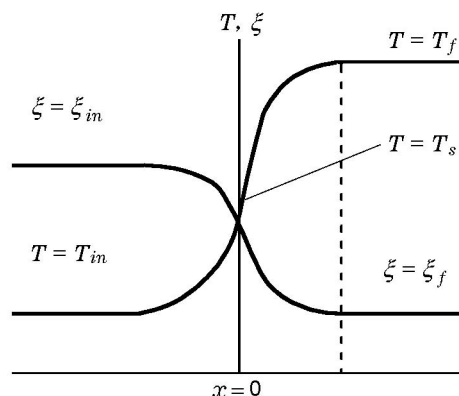


Рис. 3. Структура волны горения с псевдооживлением газодисперсной зоны:

$T$  и  $\xi$  — температура и концентрация окислителя в волне горения (с индексом  $in$  — начальные значения,  $f$  — конечные)

С ростом скорости фильтрации (скорости горения) коэффициент теплоотдачи  $\alpha$  проходит через максимум [5], при этом горение устойчиво только для правой ветви зависимости  $\alpha(u)$ .

### Горение порошков металлов в потоке активного газа

Способность к псевдооживлению газодисперсной системы была использована для разработки новой методики исследования горения порошков металлов и неметаллов в проточном реакторе [6] в условиях принудительной фильтрации активного или инертного газа. В рамках данной методики при частичном заполнении реактора порошком горение можно осуществить в неподвижном плотном слое и псевдооживленном слое в условиях интенсивного перемешивания.

Рассмотрим закономерности на примере горения слоя порошка титана (высотой  $H$ ) в потоке азота. На рис. 4 приведены области (1 и 2) существования плотного и псевдооживленного слоев в проточном реакторе со свободной поверхностью (неполное заполнение реактора) для узкой фракции частиц титана. При скорости потока выше скорости верхнего предела существования псевдооживленного слоя порошок выносятся из реактора.

Феноменология и динамика горения определяются исходным состоянием системы. В плотном слое,  $0 < v < 5$  см, после воспламенения сверху вниз с постоянной скоростью  $u_1$  распространяется плоский фронт горения. При

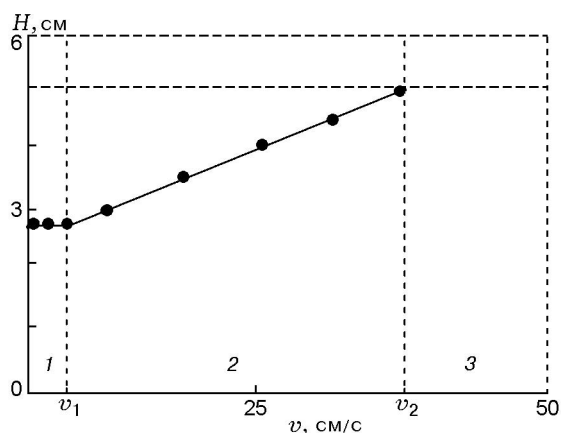


Рис. 4. Влияние скорости потока газа на состояние системы Ti—N<sub>2</sub> в проточном реакторе:

1 — плотный слой, 2 — псевдооживленный слой, 3 — двухфазный поток;  $d_{Ti} = 65$  мкм

достижении нижнего торца в течение короткого времени формируется «обратный» фронт горения, который перемещается снизу вверх со скоростью  $u_2$ , в два-три раза меньшей, чем скорость «прямого» фронта (рис. 5). Закалка процесса горения позволила установить, что в прямом фронте горение происходит лишь в поверхностном (пристеночном) слое реактора. В обратном фронте и в процессе догорания реагирует весь объем смеси.

В области существования псевдооживленного слоя вблизи нижней границы,  $5 < v < 10$  см, в условиях слабого перемешивания слоя по смеси распространяется только прямой фронт горения, форма и скорость перемещения которого слабо изменяются. Обратный фронт

горения не формируется.

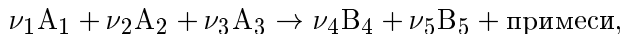
С увеличением скорости фильтрации фронтальное горение сменяется объемным горением в псевдооживленном слое в условиях интенсивного перемешивания.

Реализуя различные режимы горения, можно получать широкий спектр твердых нитридов, оксидов, карбидов, карбонитридов (и т. д.) металлов и неметаллов.

### ВЛИЯНИЕ ЖИДКОФАЗНОЙ ФИЛЬТРАЦИИ НА ПРОЦЕССЫ В ВОЛНАХ ГОРЕНИЯ БЕЗГАЗОВЫХ СМЕСЕЙ

#### Горение высокоэкзотермических систем термитного типа

Для широкого круга смесей термитного типа химическое превращение можно осуществить в режиме горения. Продуктами горения являются тугоплавкие неорганические материалы: карбиды, бориды, силициды, оксиды и т. д. [7]:



где  $A_1$  — оксид металла ( $MoO_3$ ,  $WO_3$ ,  $CrO_3$ ,  $V_2O_5$ ,  $TiO_2$ ),  $A_2$  — неметалл (C, B, Si, N<sub>2</sub>, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub>),  $A_3$  — восстановитель (Al, Mg),  $B_4$  — соединения ( $MoC$ ,  $WB_2$ ,  $CrSi_2$ , VN и др.),  $B_5$  — оксид металла восстановителя ( $Al_2O_3$ , MgO). Например:

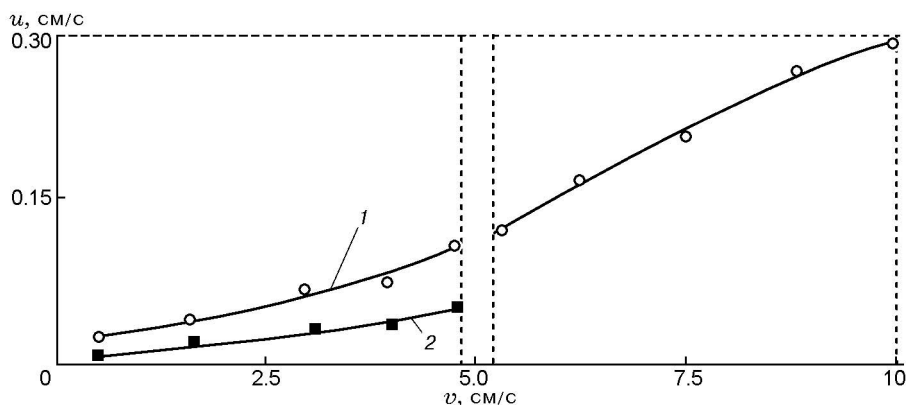
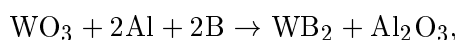
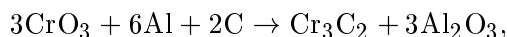


Рис. 5. Влияние скорости потока азота в реакторе на скорость горения системы Ti—N<sub>2</sub>:  $d_{Ti} = 65$  мкм; 1 — скорость прямого фронта, 2 — скорость обратного фронта



По температуре горения термитные системы можно разделить на две группы. Для первой группы температура горения превышает температуру плавления конечных продуктов, для второй — ниже температуры плавления конечных продуктов.

При горении смесей первой группы над фронтом формируется слой высокотемпературного расплава, который может фильтроваться в пористую исходную смесь. Скорость фильтрации можно увеличить центробежным воздействием. С этой целью были проведены эксперименты на центробежной установке [8] в интервале перегрузок (1 ÷ 1800)g. В экспериментах было показано, что, как правило, под влиянием перегрузки скорость горения многократно возрастает [8–13]. В ряде случаев влияние ускорения имеет более сложный характер (рис. 6).

Для объяснения этих результатов автором была предложена модель горения, в которой рост скорости горения с ростом перегрузки обусловлен сменой кондуктивного механизма теплопередачи на конвективный [7, 13]:

$$u_2 = A\chi \exp(-E/RT_f),$$

$$\chi \sim vL_2,$$

$$v = k \frac{dP}{dx} = k \frac{\rho l_1 a}{l_2},$$

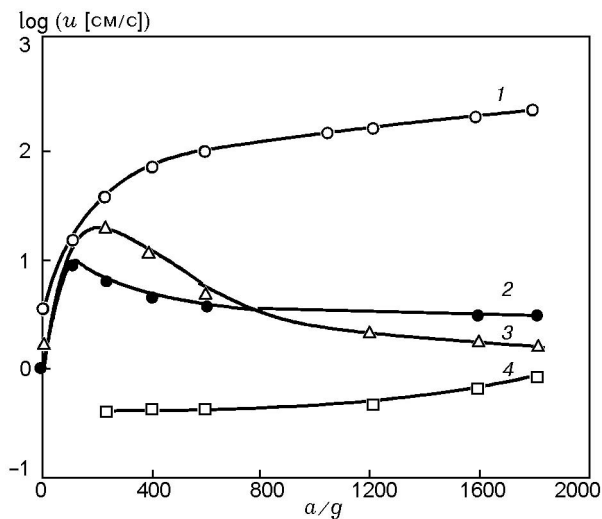


Рис. 6. Влияние перегрузки на скорость горения систем термитного типа:

1 —  $\text{V}_2\text{O}_5\text{—Zr}$ , 2 —  $\text{FeO—Al}$ , 3 —  $\text{FeO—TiO}_2\text{—Cr}_2\text{O}_3\text{—Al—C}$ , 4 —  $\text{FeO—Cr}_2\text{O}_3\text{—V}_2\text{O}_5\text{—Al—C}$

$$a = \omega^2 r,$$

где  $A$  — размерный множитель,  $\chi$  — температуропроводность расплава,  $R$  — газовая постоянная,  $E$  — энергия активации,  $T_f$  — температура горения,  $v$  — скорость фильтрации расплава,  $l_2$  — длина фильтрации,  $k$  — коэффициент проницаемости,  $P$  — гидростатическое давление,  $l_1$  — высота слоя расплава,  $\rho$  — плотность расплава,  $a$  — центробежное ускорение,  $\omega$  — угловая скорость. В этом случае эффективный коэффициент температуропроводности определяется произведением скорости фильтрации на длину фильтрации, а скорость фильтрации, в свою очередь, величиной перегрузки.

#### Жидкофазная фильтрация в элементарных системах

Заметное влияние перегрузки на скорость горения было обнаружено также для элементарных систем [14], особенно для системы  $\text{Ni—Al}$ , где содержание жидкой фазы в продуктах горения достигает 70 % и, следовательно, возможность жидкофазной фильтрации более вероятна (рис. 7). Влияние перегрузки на горение неплавящихся элементарных систем, таких как  $\text{Ti—C}$ ,  $\text{Ti—B}$ ,  $\text{Ti—Cr—B}$ , существенно слабее.

С целью реализации горения с жидкофазной фильтрацией в таких системах была создана экспериментальная методика, в которой источником высокотемпературного расплава яв-

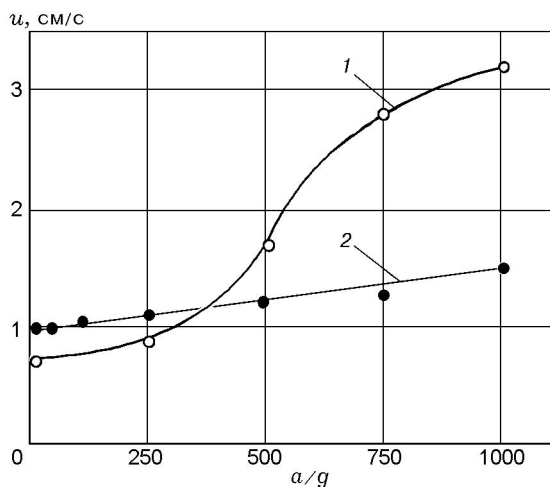


Рис. 7. Влияние перегрузки на скорость горения элементарных систем:

1 —  $\text{Ni—Al}$ , 2 —  $\text{Ti—C}$

ляются термитные смеси. Под влиянием центробежной силы высокотемпературный расплав фильтруется в поры горящего элементного состава. Скорость фильтрации регулируется величиной перегрузки [15, 16]. Ниже приведены некоторые результаты этого исследования.

Визуальные наблюдения, видеосъемка и анализ продуктов горения выявили следующую картину горения:

— при горении термитного слоя образуются двухфазный расплав, металл (Ni, Cu и т. д.) и оксид металла восстановителя ( $Al_2O_3$ );

— высокотемпературные продукты термитной смеси поджигают слой элементной смеси. Последующее горение элементной смеси сопровождается фильтрацией металлического расплава под действием перегрузки в поры элементной смеси. На примере рис. 8 показано, что выше переходной зоны расплав Cu под действием перегрузки заполняет поровое пространство Ti—Cr—B, что приводит к формированию композиционной структуры Ti—Cr—B/Cu. Под переходной зоной, куда Cu не проникает, формируется высокопористая структура из Ti—Cr—B. Оксидный расплав в элементную смесь не проникает, т. е. осуществляется селективная фильтрация;

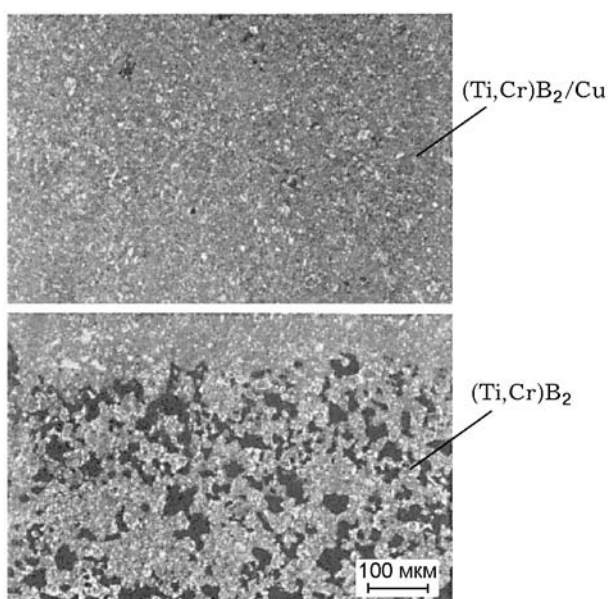


Рис. 8. Структура переходного слоя в продуктах горения слоевой смеси Ti—Cr—B/Cu<sub>2</sub>O—Al

— под влиянием фильтрации скорость горения (рис. 9) и глубина фильтрации возрастают. Максимальная глубина фильтрации определяется величиной перегрузки и соотношением масс термитного и элементного слоев. Среднюю скорость горения определяли как отношение максимальной глубины фильтрации к времени горения этого участка.

Для сопоставления на рис. 9 (кривая 3) приведена зависимость скорости горения от перегрузки для элементной смеси Ti—B в отсутствие фильтрации. Видно, что это влияние существенно меньше.

Анализ процесса горения элементной смеси с фильтрацией металлического расплава свидетельствует о том, что в условиях спутной фильтрации возможны два режима. Режим отрыва реализуется для медленной фильтрации (малая перегрузка), при этом фильтрация является постпроцессом, который приводит лишь к заполнению пористого пространства продуктов горения элементной смеси. Режим слияния реализуется для быстрой фильтрации (высокая перегрузка). В этом режиме фронты горения и фильтрации движутся согласованно с одинаковой скоростью.

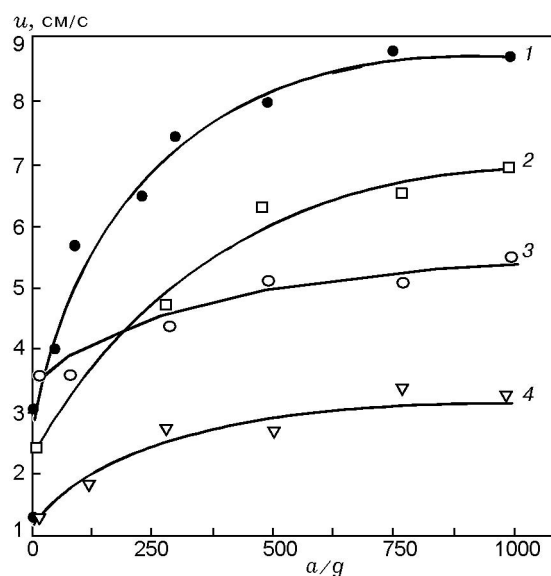


Рис. 9. Влияние перегрузки на скорость горения элементных смесей Ti—B (1) и Ti—Cr—B (2) в условиях спутной фильтрации расплава Cu, элементной смеси Ti—C (4) в условиях спутной фильтрации расплава Ni—Al (3 — горение смеси Ti—B без фильтрации расплава)

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты проведенных исследований показывают, что конвективные процессы возникают при горении различных гетерогенных систем: газифицирующихся смесевых топлив, гибридных систем металл — газ с конденсированными продуктами, смесей металлов и неметаллов, смесей термитного типа. При горении под воздействием гравитации и высокой перегрузки возможен переход горения из фронтального режима в объемный, возникновение фильтрационного течения высокотемпературного расплава продуктов горения в поры исходного вещества и др. Конвективные процессы могут определять структуру волн горения, тепло- и массоперенос в них и закономерности их распространения.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Юхвид В. И., Максимов Э. И., Мержанов А. Г., Хайкин Б. И., Козлов В. С. О механизме горения конденсированных систем с твердыми добавками в поле массовых сил // Физика горения и взрыва. — 1973. — Т. 9, № 2. — С. 235–240.
2. Юхвид В. И., Максимов Э. И., Мержанов А. Г., Козлов В. С. Образование псевдоожоженного слоя при горении конденсированных систем с твердыми неагломерирующими добавками в поле массовых сил // Физика горения и взрыва. — 1973. — Т. 9, № 4. — С. 496–501.
3. Серков В. В., Максимов Э. И., Мержанов А. Г. Горение конденсированных систем в поле массовых сил // Физика горения и взрыва. — 1968. — Т. 4, № 4. — С. 600–606.
4. Юхвид В. И. Горение конденсированных двухкомпонентных систем с пространственно разделенными компонентами // Физика горения и взрыва. — 1982. — Т. 18, № 5. — С. 26–32.
5. Гальперин Н. И., Айнштейн В. Г., Кваша Б. В. Основа техники псевдоожожения. — М.: Химия, 1967.
6. Мержанов А. Г., Юхвид В. И., Боровинская И. П. Способ получения нитридов переходных металлов. А. с. 684849, 1976.
7. Мержанов А. Г., Юхвид В. И., Боровинская И. П. Самораспространяющийся высокотемпературный синтез литых тугоплавких неорганических соединений // Докл. АН СССР. — 1980. — Т. 255, № 1. — С. 120–124.
8. Каратасков С. А., Юхвид В. И., Мержанов А. Г. Закономерности и механизм горения плавящихся гетерогенных систем в поле массовых сил // Физика горения и взрыва. — 1985. — Т. 21, № 6. — С. 41–43.
9. Yukhvid V. I. Modification of SHS processes // Pure and Appl. Chem. — 1992. — V. 64, N 7. — P. 977–988.
10. Санин В. Н., Силяков С. Л., Юхвид В. И. Горение термитных систем при ортогональной ориентации векторов перегрузки и скорости горения // Физика горения и взрыва. — 1998. — Т. 34, № 1. — С. 57–60.
11. Юхвид В. И., Санин В. Н. СВС процессы на земле и в космосе // Наука в России. — 1999. — Т. 114, № 6. — С. 12–16.
12. Ykhvid V. I., Sanin V. N., Nersesyan M. D., Luss D. Self-propagating high temperature synthesis of oxide and composite materials under centrifugal forces // Intern. J. SHS. — 2002. — V. 11, N 1. — P. 65–79.
13. Ykhvid V. I. Technology of SHS Casting // Self-Propagating High-Temperature Synthesis of Materials / A. A. Borisov, L. De Luca, A. Merzhanov (Eds). — New York: Taylor and Francis, 2002. — P. 238–253.
14. Юхвид В. И., Санин В. Н., Силяков С. Л., Игнатъева Т. И. Влияние массовой силы на закономерности горения системы Ni—Al // Физика горения и взрыва. — 1998. — Т. 34, № 1. — С. 34–38.
15. Санин В. Н., Юхвид В. И. Инфильтрация расплава под действием центробежной силы в высокотемпературных слоевых системах // Неорган. материалы. — 2005. — Т. 41, № 3. — С. 305–313.
16. Юхвид В. И. Высокотемпературные жидкофазные СВС-процессы: новые направления и задачи // Цветная металлургия. — 2006. — № 5. — С. 62–78.

*Поступила в редакцию 25/X 2008 г.*