

С. В. Лукачев, С. Г. Матвеев, А. Ф. Урывский

**О ВОЗМОЖНОСТИ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ МОДЕЛИ
ТУРБУЛЕНТНОГО СМЕШЕНИЯ ДЛЯ ОПИСАНИЯ
ПРОЦЕССА ВЫГОРАНИЯ
ПОЛИЦИКЛИЧЕСКИХ АРОМАТИЧЕСКИХ УГЛЕВОДОРОДОВ**

В работе рассматривается процесс выгорания полициклических ароматических углеводородов при турбулентном смешении продуктов сгорания богатой топливо-воздушной смеси с воздухом. Показана аналогия механизмов окисления ПАУ и алифатических углеводородов на изоскалярных поверхностях относительной восстановленной концентрации топлива, близких к стехиометрическим. Это позволяет описывать процессы выгорания ПАУ в рамках моделей турбулентного смешения, т. е. без учета влияния химической кинетики.

Сжигание углеводородных топлив приводит к выбросам в окружающую среду значительных количеств полициклических ароматических углеводородов (ПАУ), многие из которых обладают канцерогенной и мутагенной активностью [1, 2]. Концентрация ПАУ в выхлопных газах топливосжигающих устройств определяется интенсивностью их образования в переобогащенных зонах и процессами выгорания этих веществ при наличии свободного кислорода. Ранее проведенные исследования (на примере одного из характерных ПАУ — бенз(а)пирена БП) показали, что при турбулентном диффузионном горении алифатических углеводородов синтез ПАУ определяется как процессами смешения, так и химической кинетикой [3]. В рамках данной работы соответствующий теоретический анализ и экспериментальная проверка проведены для случая окисления ПАУ.

Для обоснования механизма выгорания ПАУ рассмотрим известные модели окисления алифатических углеводородов при турбулентном диффузионном горении. В [4] показано, что если интегральный масштаб турбулентности много больше толщины зоны химических реакций, то влияние химической кинетики на турбулентное диффузионное горение двух предварительно перемешанных реагентов, которые условно назовем окислителем и горючим, можно исследовать на базе решения краевой задачи

$$N \frac{d^2 Y}{dz^2} + F(Y) = 0, \quad 0 < z < 1, \quad (1)$$

$$Y(0) = Y^0, \quad Y(1) = Y^f,$$

где z — восстановленная концентрация горючего; $Y = \begin{bmatrix} y_1 \\ \vdots \\ y_N \end{bmatrix}$ — вектор концентраций (массовых долей) веществ, участвующих в химических реакциях; Y^0 и Y^f — векторы концентраций для окислителя и горючего; $F(Y) = \begin{bmatrix} f_1 \\ \vdots \\ f_N \end{bmatrix}$ — источникный член, обусловленный протеканием химических реакций; $N = D|\nabla z|^2$ — скалярная диссипация; D — коэффициент молекулярной диффузии. При этом предполагается, что источникный член для энтальпии равен нулю и распределение полной энтальпии по z носит линейный характер.

Как отмечается в [4], решение краевой задачи (1), описывающее процесс горения, существует лишь при $0 \leq N \leq N_*$, величина N_* называется критическим значением скалярной диссипации. Для диффузионного горения пропана (C_3H_8) в воздухе численно решалась задача (1) во всем диапазоне возможных значений N . Используемая в расчетах

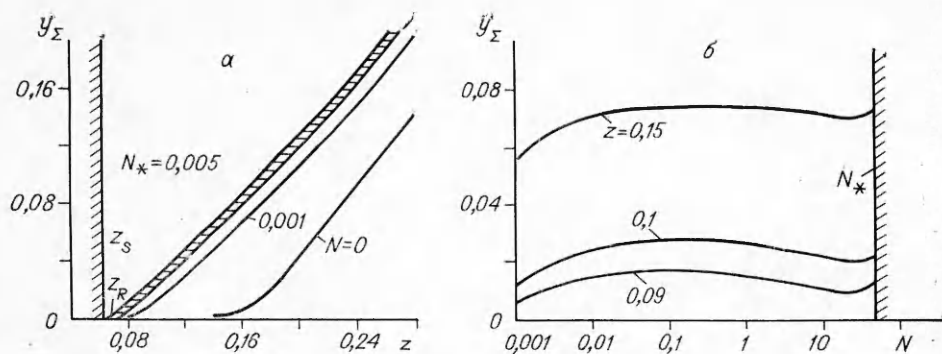


Рис. 1. Зависимости суммарной концентрации алифатических углеводородов от восстановленной концентрации горючего (а) и от скалярной диссипации (б).

кинетическая схема построена на основе данных [5] и включала 71 химическую реакцию для 25 веществ.

Расчеты показали, что, хотя отдельные углеводороды имеют достаточно сложные зависимости от z , суммарная массовая доля всех алифатических углеводородов y_{Σ} подчиняется достаточно простому закону. На рис. 1, а приведены результаты расчета $y_{\Sigma}(z)$ для различных значений N , причем (рис. 1, б) изменение N в широком диапазоне ($0,005 \div N_*$) не оказывает существенного влияния на распределение $y_{\Sigma}(z)$. В условиях принятой кинетической схемы $\bar{N}_* \approx 50 \text{ с}^{-1}$.

Приведенная на рис. 1 зависимость $y_{\Sigma}(z)$ говорит о том, что алифатические углеводороды окисляются в очень узкой области — практически на изоскалярной поверхности $z_R \approx z_s$, где z_s — стехиометрическая восстановленная концентрация горючего. А в зоне $z_R < z < 1$ протекают процессы пиролиза и диффузии. Эти результаты хорошо согласуются с экспериментальными данными [6] и еще раз подтверждают сделанные там выводы.

Для ПАУ провести подобный анализ в настоящее время не представляется возможным ввиду отсутствия достоверных данных о константах скоростей химических реакций. Однако, исходя из общих представлений об окислении углеводородных соединений, можно предположить, что окисление ПАУ при диффузионном горении будет происходить аналогично, т. е. на изоскалярных поверхностях z_R . При этом, если не рассматривать процессы, связанные с изменением концентрации ПАУ в отсутствие кислорода (синтез ПАУ, поглощение сажей), то распределение концентрации ПАУ ($y_{\text{ПАУ}}$) по z будет подобно распределению $y_{\Sigma}(z)$:

$$y_{\text{ПАУ}}(z) = \frac{y_{\text{ПАУ}}^f}{y_{\Sigma}^f} y_{\Sigma}(z), \quad (2)$$

где $y_{\text{ПАУ}}^f$ и y_{Σ}^f — массовые доли ПАУ и углеводородов в веществе горючего.

Таким образом, при любой функции плотности вероятности P_z для осредненных концентраций $\langle y_{\text{ПАУ}} \rangle$ и $\langle y_{\Sigma} \rangle$ справедливо соотношение

$$\langle y_{\text{ПАУ}} \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} y_{\text{ПАУ}}(z) P(z) dz = \frac{y_{\text{ПАУ}}^f}{y_{\Sigma}^f} \int_{-\infty}^{\infty} y_{\Sigma}(z) P(z) dz = \frac{y_{\text{ПАУ}}^f}{y_{\Sigma}^f} \langle y_{\Sigma} \rangle, \quad (3)$$

из которого следует

$$\frac{\langle y_{\text{ПАУ}} \rangle}{\langle y_{\Sigma} \rangle} = \frac{y_{\text{ПАУ}}^f}{y_{\Sigma}^f} = A, \quad (4)$$

где константа A определяется начальными уровнями ПАУ ($y_{\text{ПАУ}}^f$) и алифатических углеводородов (y_{Σ}^f) в веществе горючего.

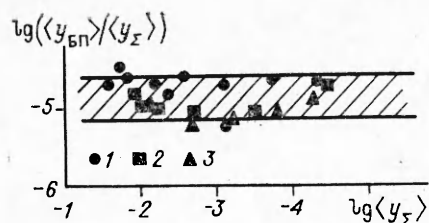


Рис. 2. Изменение соотношения $\langle y_{\text{БП}} \rangle / \langle y_z \rangle$ вдоль оси факела (1) и по радиусам при $l = 2,5d_0$ (2) и $5d_0$ (3).

Данное следствие дает возможность провести экспериментальную проверку выдвинутой гипотезы. Для этого необходимо иметь стабильный источник ПАУ и организовать их выгорание в составе богатой топливно-воздушной смеси (ТВС) при турбулентном смешении с воздухом. Отметим, что процессы синтеза ПАУ должны быть завершены. Такие условия могут быть реализованы при двухстадийной схеме сжигания алифатических углеводородов (в нашем случае C_3H_8). На первом этапе организуется диффузионное горение ТВС при коэффициенте избытка воздуха $\alpha_0 = 0,5$ и времени пребывания ~ 30 мс. Выбор $\alpha_0 = 0,5$ обусловлен двумя факторами: с одной стороны, это обеспечивает устойчивую стабилизацию пламени, а с другой — сравнительно высокие концентрации алифатических углеводородов и ПАУ. При этом максимальные для данного α_0 концентрации ПАУ достигаются при отдельной подаче топлива и воздуха в камеру сгорания, т. е. диффузионном горении. На втором этапе окисляются продукты неполного сгорания (в том числе алифатические углеводороды и ПАУ) в условиях турбулентного диффузионного факела.

Экспериментальная модель представляла собой цилиндрическую проточную камеру сгорания (диаметром 57 мм и длиной 5 калибров), на выходе из которой через конический переходный участок устанавливалось сопло диаметром $d_0 = 27$ мм. На входе в камеру сгорания помещалась стабилизирующая решетка с отверстиями для отдельного подвода воздуха и топлива. Конструкция модели и выбор режимных параметров обеспечивали полное завершение процессов горения и синтеза ПАУ в камере сгорания, а также равномерное поле концентраций на выходе из сопла.

Спектр ПАУ, образующихся при горении углеводородных топлив, достаточно разнообразный и насчитывает несколько десятков представителей этого класса веществ [1, 2]. Трудоемкость определения и последующего анализа результатов по каждому из ПАУ приводит к необходимым ограничениям. В этой связи бенз(а)пирен как характерный представитель пятичленных ПАУ и наиболее активный канцероген представляет особый интерес. Кроме того, работы [1, 2] позволяют утверждать, что БП является индикатором присутствия ПАУ в продуктах сгорания и окружающей среде. Поэтому экспериментальное подтверждение гипотезы об аналогии между механизмами окисления алифатических углеводородов и ПАУ проведено на основе измерения концентрации БП $\langle y_{\text{БП}} \rangle$.

Экспериментальное определение $\langle y_z \rangle$ и $\langle y_{\text{БП}} \rangle$ показало, что поля этих концентраций на срезе сопла равномерные. Для подтверждения завершенности процесса синтеза БП на выходе из сопла устанавливалась кварцевая труба диаметром 27 мм, что позволяло исследовать изменение концентрации БП во времени без подмешивания воздуха. Установлено, что в диапазоне времен пребывания до 10 мс (от среза сопла) $\langle y_{\text{БП}} \rangle$ не отличается от начального уровня более чем на 10–20 %, что соответствует погрешности определения концентрации БП в продуктах сгорания топлив [7].

При догорании БП в условиях диффузионного факела (т. е. при истечении продуктов неполного сгорания через сопло вертикально вверх в затопленное пространство воздуха) измерены величины $\langle y_z \rangle$ и $\langle y_{\text{БП}} \rangle$ вдоль оси факела и по его радиусу в сечениях $l = 2,5d_0$ и $5d_0$ (рис. 2).

Показано, что при начальных уровнях $(y_z) = 0,03$ и $\langle y_{\text{БП}} \rangle = (0,7 \div 0,8) \times 10^{-6}$ при $l = 10d_0$ от среза сопла вдоль оси факела концентрации суммарных углеводородов и БП уменьшаются на три порядка, при этом местное значение $\langle \alpha \rangle$ увеличивается от 0,5 до 1,5. Аналогично измеряется концентрация и по радиусу факела. Полученные экспериментальные данные в виде зависимости $\langle y_{\text{БП}} \rangle / \langle y_z \rangle = f(\langle y_z \rangle)$ представлены в логарифмических координатах на рис. 2, откуда видно, что в любой точке факела отношение $\langle y_{\text{БП}} \rangle / \langle y_z \rangle$ с учетом погрешности измерения остается постоянным.

Таким образом, проведенное исследование позволяет сделать вывод об аналогии механизмов окисления алифатических углеводородов и ПАУ на изоскалярных поверхностях z_R (близких к стехиометрическим z_s), что помогает описывать процессы выгорания ПАУ в рамках моделей турбулентного смешения, т. е. без учета влияния химической кинетики.

ЛИТЕРАТУРА

1. Шабад Л. М. О циркуляции канцерогенов в окружающей среде.— М.: Медицина, 1973.
2. Лукачев С. В., Розно В. Г., Смирнов Г. А. и др. О спектральном составе ПАУ в выхлопе ГТД // Изв. вузов. Авиационная техника.— 1990.— № 2.— С. 97.
3. Лукачев С. В., Матвеев С. Г. Некоторые вопросы образования бенз(а)пирена в турбулентном диффузионном факеле // ФГВ.— 1990.— 26, № 3.— С. 33.
4. Кузнецов В. Р., Сабельников В. А. Турбулентность и горение.— М.: Наука, 1986. 5. Химия горения/Под ред. У. Гардинера.— М.: Мир, 1988.
6. Бурико Ю. Я., Кузнецов В. Р. Влияние химических реакций и процесса смешения на концентрации окиси углерода и углеводородов в турбулентном диффузионном факеле // ФГВ.— 1986.— 22, № 4.— С. 19.
7. Кныш Ю. А., Горбатко А. А., Ивлиев А. В. и др. Отбор проб отработавших газов для определения их канцерогенности // Изв. вузов. Авиационная техника.— 1989.— № 4.— С. 44.

г. Куйбышев

Поступила в редакцию 27/IX 1990,
после доработки — 14/II 1991

УДК 662.612

В. М. Гремячкин, Ф. Б. Щиборин

О ДИФфуЗИОННОМ И КИНЕТИЧЕСКОМ РЕЖИМАХ ГОРЕНИЯ ЧАСТИЦ УГЛЕРОДА

Рассматривается теоретическая модель горения частиц углерода. Показано, что газофазная реакция взаимодействия СО и О₂ вокруг частицы протекает в диффузионном режиме. Гетерогенная реакция взаимодействия диоксида углерода с углеродом на поверхности частицы протекает в кинетическом режиме. Гетерогенные реакции взаимодействия углерода с кислородом на поверхности частицы углерода в рассмотренных условиях горения отсутствуют. Учет кинетики гетерогенной реакции при горении приводит к возрастанию температуры и понижению скорости горения при уменьшении размера частиц углерода.

При исследовании горения частиц углерода [1—3] обнаружено существование весьма сложных закономерностей этого процесса. Их теоретическое описание основано на диффузионно-кинетической модели горения, которая учитывает как диффузионные процессы, так и конкретную кинетику химических реакций, протекающих при горении углерода. Использование диффузионно-кинетической модели горения требует достоверных данных о кинетике различных химических реакций, а также мощных вычислительных средств для решения нелинейных уравнений переноса тепла и массы, что ограничивает возможность ее применения.

Одновременно с теорией горения частиц углерода развивалась и теория горения жидких капель углеводородных топлив, в которой горение