

ЛИТЕРАТУРА

1. Видюнов В. Н. Теория зажигания конденсированных веществ.— Новосибирск: Наука, 1984.
2. Франк-Каменецкий Д. А. Диффузия и теплопередача в химической кинетике.— М.: Наука, 1967.
3. Тихонов А. Н., Самарский А. А. Уравнения математической физики.— М.: Наука, 1966.
4. Истратов А. Г., Либрович В. Б. ПММ, 1963, 27, 2, 343.
5. Каганов С. А. ПМТФ, 1963, 1, 133.
6. Сивашинский Г. И. ПММ, 1967, 31, 1, 137.
7. Каганов С. А. ПММ, 1967, 31, 6, 1081.
8. Зельдович Я. Б., Баренблатт Г. И., Либрович В. Б. и др. Математическая теория горения и взрыва.— М.: Наука, 1980.
9. Йосс Ж., Джозеф Д. Элементарная теория устойчивости и бифуркаций.— М.: Мир, 1983.
10. Вайнберг М. М., Триогоин В. А. Теория ветвлений решений нелинейных уравнений.— М.: Наука, 1969.
11. Марсен Дж., Мак-Кракен М. Бифуркация рождения цикла и ее приложения.— М.: Мир, 1981.
12. Parks J. R. J. Chem. Phys., 1960, 34, 1, 46
13. Вольперт А. И., Худяев С. И. Анализ в классах разрывных функций и уравнения математической физики.— М.: Наука, 1975.

Поступила в редакцию 14/III 1988,
после доработки — 29/VIII 1988

УДК 614.838.66

РАСПРОСТРАНЕНИЕ МЕТАНОВОЗДУШНОГО ПЛАМЕНИ В ПСЕВДООЖИЖЕННОМ СЛОЕ КАТАЛИТИЧЕСКИ АКТИВНОГО ТВЕРДОГО МАТЕРИАЛА

М. А. Гликин, А. Д. Тюльпинов

(Северодонецк)

На технологические процессы окисления органических веществ налагаются ограничения, вызываемые необходимостью обеспечения взрывобезопасности. Чаще всего ограничения касаются концентрации органических веществ в смеси с окислителем, которая должна быть ниже нижнего или выше верхнего пределов воспламенения [1]. В большинстве случаев это приводит к снижению скорости и селективности химических реакций. В результате повышается расход сырья, энерго- и металлоемкость производства, сбросы в окружающую среду.

В последние годы появились работы, в которых рассматривается проблема эффективности — взрывобезопасность [2—6]. Показано, что в ряде случаев возможна оптимизация процессов путем выбора управляющего воздействия, обеспечивающего различные функциональные зависимости скорости целевого процесса и области распространения пламени. Особые надежды со снижением ограничений, вводимых в технологию по соображениям взрывобезопасности, связаны с применением псевдоожигенного слоя твердого материала.

Из экспериментального исследования этого явления [2] следует, что в псевдоожигенном слое инертного материала область распространения пламени сужается и при уменьшении порозности слоя ϵ приближается к стехиометрическому составу. При определенных условиях существует критическая порозность, ниже которой по смеси любого состава пламя не распространяется. В процессе исследования распространения пламени в псевдоожигенный слой установлено, что глубина проникновения пламени в слой, в отличие от стационарной насадки, на несколько порядков больше [7]. Теоретически предсказать характер взаимодействия

пламени и псевдооживленного слоя катализатора не представлялось возможным.

Процесс окисления в зависимости от условий и природы твердых частиц может иметь сложный характер (сочетание гетерогенных и гомогенных реакций). Несмотря на то что сфера протекания гетерогенной реакции ограничена поверхностью раздела фаз, в случае конкуренции с гомогенным процессом, идущим во всем объеме реактора, роль гетерогенного может преобладать. Твердое тело может тормозить газофазный процесс, играя роль флегматизатора, или ускорять его как катализатор наряду с неблагоприятным для распространения пламени фактором — увеличением поверхности теплообмена, а следовательно, интенсивности теплоотвода

$$q = a(T_b - T)(S/V).$$

Здесь S/V — отношение поверхности теплоотдачи к объему охлаждаемого газа; T_b — температура пламени; T — температура частиц слоя; a — коэффициент теплоотдачи от газа к частицам; q — интенсивность теплоотвода.

Способствовать распространению пламени (и самовоспламенению) в псевдооживленном слое катализатора может генерирование в объеме слоя активных радикалов H , OH , R , а также турбулизация пламени.

Для выяснения влияния каталитически активного псевдооживленного слоя на распространение в нем пламени проведены исследования на установках проточного типа [7], в которых псевдооживляемый слой располагался на газораспределительной решетке. Область распространения пламени определялась с помощью съемки процесса скоростной кинокамерой, использованием в качестве датчиков пламени термопары и электрического зонда. Фиксация проникновения пламени скоростной кинокамерой удобна, когда в качестве псевдооживляемого материала берутся прозрачные частицы, в настоящих опытах — силикагель. Использование термопары, помещаемой на различную глубину слоя в качестве датчика прохождения пламени, основывалось на резком увеличении температуры в момент прохождения пламени через зону установки термопары. На применении метода не сказываются оптические характеристики слоя, что позволяет сравнить гасящие свойства инертного материала (силикагеля) и катализатора. Метод удобен при невысоких температурах слоя (до 723 К). Использование электрического зонда с ионизационным зондом имеет ряд преимуществ: безынерционность и возможность фиксировать проникновение пламени на всем интервале исследуемых температур. Сравнение результатов измерений различными методами проведено в табл. 1.

Для псевдооживленного слоя катализатора зависимость глубины проникновения пламени в слой L в зависимости от его температуры T имеет более сложный вид, чем для инертного слоя (см. рисунок). При $T = 293 \div 573$ К зависимость $L(T)$ линейна, как для инертного материала. При дальнейшем повышении температуры слоя глубина проникновения пламени меньше, чем для инертного материала, и имеет нелинейный характер.

Видимое улучшение гасящих свойств насадки связано с протеканием на катализаторе реакции окисления (табл. 2). По мере увеличения степени конверсии горючего на катализаторе уменьшается L . Данные по составу отходящих газов показывают, что точке A (на рисунке) соответствует начало реакции окисления горючего на катализаторе. Точка B определяется степенью конверсии, при которой система выводится из области взрываемости. Влияние катализатора на характер проникновения пламени связано с изменением состава смеси в реакторе по мере протекания химической реакции.

Таким образом, при температуре слоя более высокой, чем температура зажигания катализатора, повышение гасящих свойств каталитически

Таблица 1

Средняя глубина проникновения пламени в псевдооживленный слой твердых частиц при различных параметрах слоя (метановоздушная смесь стехиометрического состава)

Материал слоя	$d \cdot 10^3$, м	T , К		$L \cdot 10^3$, м		
				Кинокамера	Термопара	Зонд
Катализатор	2,0	373	0,48	—	12	12
	2,0	373	0,55	—	30	30
	2,0	473	0,55	—	40	38
	2,0	573	0,55	—	47	45
	2,0	673	0,55	—	50	43
	2,0	773	0,55	—	—	34
	2,0	473	0,60	—	57	55
	1,5	473	0,60	—	40	37
Силикагель	2,0	373	0,55	30	30	31
	2,0	473	0,55	40	39	38
	2,0	573	0,55	45	47	45
	2,0	673	0,55	55	60	53
	2,0	773	0,55	60	—	60
	2,0	873	0,55	—	—	65

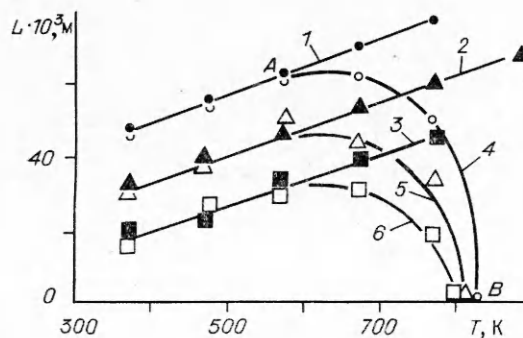
Примечание. d — диаметр частиц.

активной насадки происходит главным образом из-за изменения состава смеси. Исходная горючая смесь разбавляется продуктами реакции. Соответственно снижается концентрация горючего и окислителя в газовой фазе. Определенную роль играет восприятие насадкой тепла, выделяющегося при гетерогенном окислении. Последнее влечет за собой уменьшение потенциально возможной температуры горения газовой фазы, что способствует гашению пламени. Принимая, что окисление метана на катализаторе описывается уравнением первого порядка по метану и нулевого по кислороду, и обрабатывая экспериментальные данные по распространению пламени в слоях инертного и каталитически активного материалов с учетом кинетики окисления метана кислородом на катализаторе, получена зависимость для расчета глубины проникновения пламени в псевдооживленный слой частиц катализатора диаметром 0,002 м, в которую входят кинетические параметры окисления горючего на катализаторе:

$$L = -0,16 + 0,3\varepsilon + 6,6 \cdot 10^{-5}T - 0,12\{1 - \exp[-k_0\tau \exp(-E/RT)]\}.$$

Здесь $0,48 \leq \varepsilon \leq 0,6$; $293 \leq T \leq 783$ К (T — температура слоя); τ — время контакта газа со слоем катализатора, с; R — газовая постоянная, 8,3 Дж/(моль · град). Для катализатора ИК-12-70 $k_0 = 133$ с⁻¹, $E = 2800$ Дж/моль.

Пользуясь полученной зависимостью, нетрудно определить основные параметры псевдооживленного слоя, обеспечивающие взрывобезо-



Зависимость L для псевдооживленных слоев инертного (1-3) и каталитически активного (4-6) материалов от температуры слоя.
 ε : 1, 4 — 0,60, 2, 5 — 0,55, 3, 6 — 0,50.

Т а б л и ц а 2

Изменение концентрации природного газа в отходящих из псевдооживленного слоя катализатора газах от температуры слоя

T, К	Метан, %	Диоксид углерода, %	τ , с	T, К	Метан, %	Диоксид углерода, %	τ , с
373	8,7	0,2	0,14	723	7,3	1,4	0,27
473	8,7	0,2	0,18	753	6,2	2,5	0,29
573	8,7	0,2	0,22	773	5,8	2,9	0,29
673	8,1	0,6	0,26	793	4,0	4,7	0,30

пасность проведения окислительного процесса: порозность и высоту слоя катализатора. Для этого полученное уравнение решается относительно ϵ при определенной T .

При температуре слоя выше начала окисления горючего на катализаторе глубина проникновения пламени в псевдооживленный слой катализатора меньше, чем у идентичных инертных насадок и зависит от степени конверсии горючего.

Каталитически активный псевдооживленный слой — более эффективная система локализации пламени, чем псевдооживленная инертная насадка. В определенных условиях его гасящие свойства могут превзойти стационарную насадку и, более того, вывести газовую фазу из области взрываемости.

ЛИТЕРАТУРА

1. Розловский А. И. Основы техники взрывобезопасности при работе с горючими газами и парами.— М.: Химия, 1980.
2. Гликин М. А. и др. ФГВ, 1979, 15, 1, 115.
3. А. с. 833575 СССР // Открытия. Изобрет.— 1981.— № 20.
4. Гликин М. А. Хим. пром-сть, 1976, 7, 505.
5. Грановский Э. А., Махлин В. А., Водяник В. И. ТОХТ, 1984, 18, 5, 688.
6. Бабкин В. С., Лаевский Ю. М. ФГВ, 1987, 23, 5, 27.
7. Гликин М. А. и др. ФГВ, 1984, 20, 5, 43.

Поступила в редакцию 28/III 1988,
после доработки — 9/VI 1988

УДК 536.46

ЗАКОНОМЕРНОСТИ СПОНТАННОГО ОБРАЗОВАНИЯ ВИХРЕВОГО ДИФФУЗИОННОГО ПЛАМЕНИ

М. В. Алексеев, В. П. Самсонов, И. Г. Фатеев
(Тюмень, Чебоксары)

В прикладных задачах диффузионного горения свободная конвекция традиционно рассматривается как фактор, влияющий на длину пламени. Однако при определенных условиях в узком интервале скоростей ламинарного пламени, весьма далеко от начала турбулентности, подъемные силы изменяют не только длину пламени, но и коренным образом перестраивают его поле скоростей. В настоящее время сведения по этому вопросу в литературе отсутствуют. Между тем гидродинамика пламени во многом определяет процессы тепло- и массопереноса в различных горелочных устройствах.

Цель настоящей работы — изучение условий образования вихревого диффузионного пламени при вдуве газа на твердую плоскую поверхность. Схема экспериментальной установки показана на рис. 1. Ни нижнюю