

ОСНОВНЫЕ РЕЖИМЫ САМОВОСПЛАМЕНЕНИЯ И УСЛОВИЯ ИХ РЕАЛИЗАЦИИ В ГОРЮЧИХ ГАЗОВЫХ СМЕСЯХ

УДК 534.22

Б. Е. Гельфанд, С. П. Медведев, А. Н. Поленов,
С. В. Хомик, А. М. Бартенев

Институт химической физики им. Н. Н. Семенова РАН, 117977 Москва

Экспериментально исследован процесс самовоспламенения водородовоздушных смесей. Самовоспламенение смеси осуществлялось за отраженной ударной волной при начальном давлении до 0,5 МПа и объемном содержании водорода $9,5 \div 20$ и $40 \div 60$ %. Одновременная регистрация профилей давления и температуры у торца ударной трубы позволила определить особенности различных режимов самовоспламенения и области их существования. Проведено обсуждение особенностей реализации и развития процессов мягкого и жесткого режимов самовоспламенения и сравнение со случаем самовоспламенения углеводородовоздушных смесей.

Предварительные замечания. Сохраняющийся постоянный интерес к реализации дизельного цикла в двигателе внутреннего сгорания, создание высокоэффективных устойчиво работающих прямоточных воздушно-реактивных двигателей является причиной продолжающихся экспериментальных исследований процессов самовоспламенения газовых и гетерогенных горючих смесей. Пионерские исследования в [1] опытным путем выявили существование по крайней мере двух основных разновидностей режимов развития взрывных процессов при самовоспламенении, названных впоследствии мягкий (mild) режим самовоспламенения и жесткий (strong, sharp и т. д.) режим самовоспламенения.

Мягкий режим характеризуется плавным повышением давления в процессе развития очагов горения, спонтанно возникших в объеме свежей смеси. Число и местоположение очагов горения являются случайными величинами, не повторяются при внешне подобных режимах сжатия и крайне чувствительны к малым возмущениям. Жесткий режим характеризуется появлением ударных и взрывных волн. Субъективно при нем не отмечено несколько исходных очагов горения. Взрывной процесс при жестком режиме внешне выглядит как фронт горения, мгновенно охватывающий всё поперечное сечение. Этот фронт на коротком расстоянии преобразуется в детонационную волну. В работах [1–10] мягкий и жесткий режимы зафиксированы в кислородных смесях водорода [1–3, 7–10], гептана [2], октана [3–6].

В [4, 5] появилась информация о мягком и жестком режимах самовоспламенения в воздушных смесях газообразного октана и бензола. В воздушных смесях газообразного гептана в отличие от [3] обнаружен только жесткий режим.

В [2, 10] отмечается связь мягкого и жесткого режимов с явлениями стука в двигателе внутреннего сгорания и с устойчивостью сжигания газообразного горючего в высокоскоростных потоках воздуха, как это делается в прямоточном воздушно-реактивном двигателе. Все исследования в [1–3, 6–10] проведены при уровне давления $p < 0,4$ МПа, что

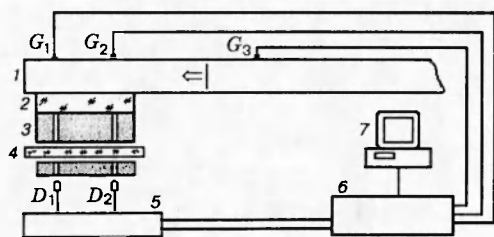


Рис. 1. Схема камеры низкого давления и расположение датчиков:

1 — торец ударной трубы, 2 — защитное стекло, 3 — диафрагма, 4 — светофильтры, 5 — предусилитель, 6 — цифровые осциллографы, 7 — компьютер

намного ниже уровня в реальных энергетических установках $p > 1$ МПа. Это обстоятельство также ограничивает общность имеющихся сведений об основных режимах самовоспламенения. Только в [4, 5] уровень давления повышен до $p < 4$ МПа. Для дальнейшего совершенствования рабочих процессов в энергонапряженных объектах требуются дополнительные доказательства существования мягкого и жесткого режимов в возможно более широком диапазоне изменения давления для смесей, где окислителем является воздух.

Требуются также дополнительные подтверждения независимости условий реализации мягкого и жесткого режимов самовоспламенения от геометрической формы объемов, в которых происходит самовоспламенение. В этой связи обращает на себя внимание принципиальное различие результатов исследований в [3] и [4, 5]. В [3] в смесях гептан + кислород + аргон обнаружены мягкие режимы, а в [4, 5] для смесей гептан + воздух декларировано только наличие жесткого режима. В [3] положение границы между мягким и жестким режимами не зависело от давления при $0,1 < p < 0,4$ МПа. Как видно, условия реализации обоих режимов исследованы недостаточно, что частично объясняется и объективными причинами — высокой чувствительностью переходных процессов к малым случайным возмущениям температуры и давления.

Методика исследований и экспериментальная установка. Имеющийся опыт исследований самовоспламенения газовых смесей различными методами (ударное сжатие, адиабатическое сжатие, впрыск в нагретую атмосферу) показал, что для демонстрации мягкого и жесткого режимов лучше всего подходит сжатие в ударной трубе. В ударной трубе достигаются наилучшие воспроизводимость и управляемость начальных условий по давлению, температуре, составу смеси. Методика ударной трубы позволяет простейшим образом сжимать газовые смеси до практически интересных уровней давления и температуры. В частности, нет серьезных препятствий для наблюдений взрывных явлений при давлении до 10 МПа. Достижение столь высокого уровня давления газовых смесей предполагает применение нестандартной схемы ударной трубы, когда начальное давление в камере низкого давления составляет $0,2 \div 0,5$ МПа.

В описанных ниже исследованиях диагностировались режимы самовоспламенения водородовоздушных смесей с объемной концентрацией водорода в воздухе $9,5 \div 20$ и $40 \div 60$ %. Серия наблюдений реализована на ударной трубе, специально приспособленной для опытов при высоком давлении. Камера высокого давления имела длину 50 см и диаметр 5 см, а камера низкого давления — длину 120 см и сечение 34×50 мм². Схема наблюдательной секции камеры низкого давления показана на рис. 1. Динамика взрывных процессов за ударной волной, отраженной от торца камеры низкого давления, контролировалась группой из трех пьезоэлектрических датчиков давления G_1, G_2, G_3 . Размер чувствительного элемента датчика составлял 4 мм, а собственная частота около 200 кГц. Датчики G_1-G_3 располагались заподлицо с внутренней боковой стенкой на расстояниях от торца до центра чувствительного элемента 4, 24 и 242 мм соответственно. Напротив датчиков да-

вления G_1 и G_2 размещены фотодиоды D_1 и D_2 , снабженные светофильтрами, диафрагмой и защитным стеклом. Угловая апертура оптической системы равнялась 10° , а временное разрешение фотодиода не более 1 мкс. В калибровочных экспериментах с отраженными ударными волнами в смеси водород — азот установлена однозначная связь выходного сигнала фотодиода с температурой за отраженной ударной волной. Использование германиевых фотодиодов и светофильтров позволяло регистрировать излучение нагретого газа в ИК-диапазоне длин волн. Таким образом, соответственно откалиброванные фотодиоды позволяли измерять изменение температуры за отраженной ударной волной при самовоспламенении смеси [11]. Точность определения температуры таким методом составляет $\sim 10\%$. Выходные сигналы датчиков давления и фотодиодов регистрировались измерительным комплексом, состоящим из преусилителя, цифровых осциллографов и компьютера.

Основные результаты экспериментов. Рассмотрим осциллограммы давление — время, температура — время, полученные при различных режимах самовоспламенения водородовоздушных смесей. На рис. 2 представлены осциллограммы давление — время для смеси 9,5% водорода + 90,5% воздуха (линии 1–4) и для смеси 9,5% водорода + 90,5% азота ($1'$ – $4'$) на одинаковом расстоянии (4 мм) от торца трубы при различных температурах за отраженной ударной волной. Сопоставление пар записей на рис. 2 дает наглядное представление о динамике развития взрывного процесса. Указанные смеси имеют почти одинаковую молекулярную массу, соотношение удельных теплоемкостей, скорость звука и полностью подобны друг другу в газодинамическом смысле. Как следует из рис. 2, по мере роста температуры за отраженной волной от 920 К (осциллограммы 4 и $4'$) до 1420 К (осциллограммы 1 и $1'$) происходит переход от мягкого режима, практически не отличающегося по профилю давления от инертной смеси, до детонационноподобного жесткого режима. Следует отметить, что жесткому режиму предшествует режим с большим, чем при жестком режиме, максимальным давлением и профилем, отличающимся от профиля при жестком режиме (осциллограммы 2 и $2'$). Подобный профиль можно характеризовать как пакет волн давления, а сам режим назвать переходным режимом самовоспламенения. Столь подробное описание данного режима обусловлено тем, что именно эти его особенности могут оказывать большее негативное влияние на работу различных устройств (в частности, на двигатель внутреннего сгорания), чем типичный жесткий режим.

На рис. 3 представлены осциллограммы давление — время для горючей смеси 9,5% водорода + 90,5% воздуха, аналогичные осциллограммам на рис. 2, совместно с зависимостями температуры от времени, полученными при обработке сигналов фотодиода, расположенного в том же сечении, что и датчик давления. Каждая температурная кривая имеет соответствующий начальный уровень, обозначенный на рис. 3 штрих-пунктирной линией. Совместное рассмотрение значений температуры на этом уровне и экспериментальной кривой позволяет получить зависимость абсолютной температуры от времени (рис. 3). Из рис. 3 видно, что при температуре за отраженной ударной волной 920 К (кривые 4 и $4'$) процесс самовоспламенения в мягком режиме фиксируется только по наличию роста температуры примерно через 150 мкс за фронтом волны. Как следует из рис. 3 (кривые 4, $4'$ и 3, $3'$), мягкий режим сопровождается плавным увеличением температуры вследствие выгорания водорода в воздухе. Повышение давления газа за фронтом отраженной ударной волны из-за горения также происходит плавно и не сопровождается значительными пиками давления, что свидетельствует о спокойном распространении фронта горения по объему. При более высокой температуре горючей смеси за отраженной ударной волной картина развития взрывного процесса совершенно иная. Рис. 3 (кривые 1 и $1'$) иллюстрирует развитие событий при жестком режиме самовоспламенения. Начальное давление

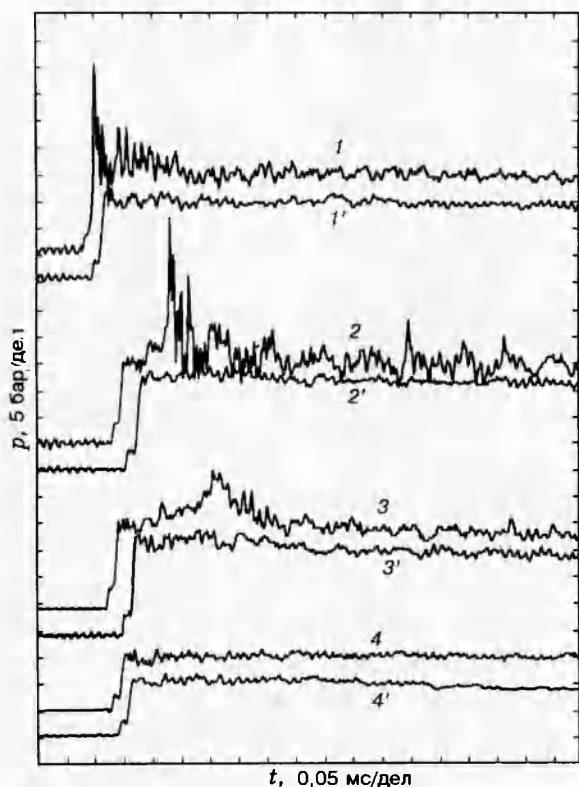


Рис. 2

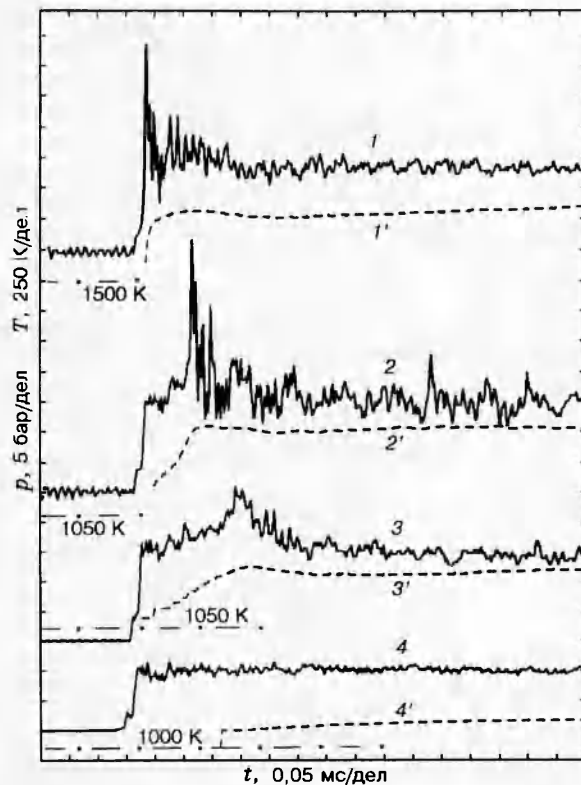


Рис. 3

Рис. 2. Профили давления при самовоспламенении смеси 9,5 % H_2 + 90,5 % воздуха (1-4) и инертной смеси 9,5 % H_2 + 90,5 % N_2 (1'-4'), регистрируемые датчиком давления, расположенным в 4 мм от торца трубы (парам профилей 1, 1', 2, 2', 3, 3' и 4, 4' соответствуют температуры за отраженной ударной волной 1420, 1260, 1230, 920 К)

Рис. 3. Профили давления (сплошные кривые) и температуры (штриховые) при самовоспламенении смеси 9,5 % H_2 + 90,5 % воздуха, регистрируемые датчиком давления, расположенным в 4 мм от торца трубы (температура за отраженной ударной волной для пар профилей такая же, как на рис. 2)

$p = 0,04$ МПа, а температура газа за отраженной ударной волной $T = 1420$ К. Как видно, жесткий режим сопровождается взрывным детонационноподобным пиком давления. Характер повышения температуры за волной вследствие теплоподвода соответствует темпу изменения давления. Описанные процессы имеют те же характерные признаки на диаграммах давление — время, которые отмечены ранее при горении водорода в кислороде в [1]. Характерные признаки переходного режима самовоспламенения ясны из осциллограмм 2 и 2' на рис. 3. Для него типичен двустадийный подъем давления и температуры. По истечении времени запаздывания давление и температура в результате горения водорода сначала увеличиваются плавно, затем рост обоих параметров становится взрывоподобным и сопровождается генерацией пакета волн давления, движущихся как за отраженной ударной волной, так и в противоположном направлении — к торцу трубы.

Обсуждение результатов экспериментов. В [1] предложена диаграмма давление — температура для указания областей существования мягкого и жесткого режимов

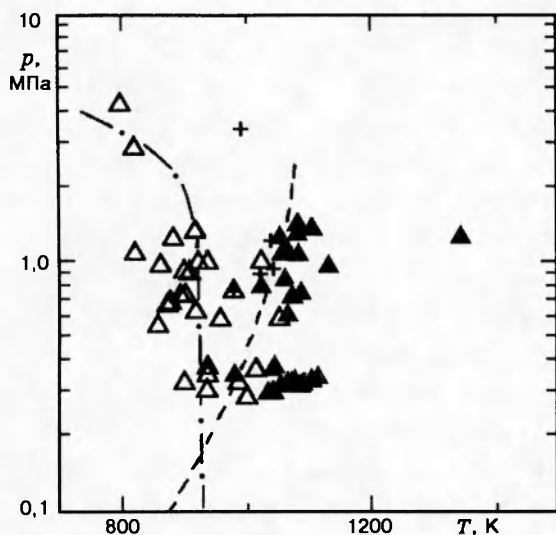


Рис. 4

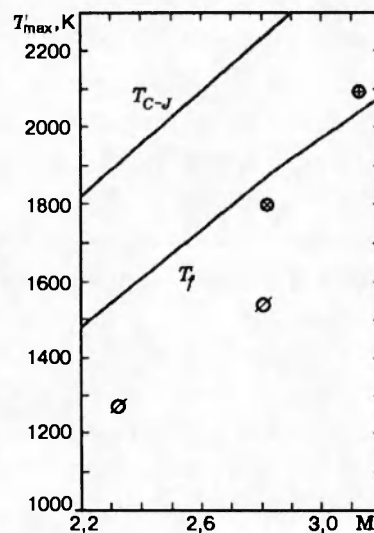


Рис. 5

Рис. 4. Диаграмма давление — температура для указания областей существования мягкого и жесткого режимов самовоспламенения водородовоздушных смесей:

штриховая линия — граница между областями, Δ — мягкий, \blacktriangle — жесткий, $+$ — переходный режимы самовоспламенения; штрих-пунктирная линия — граница между областями для октано-воздушных смесей по данным [4, 5]

Рис. 5. Экспериментальная зависимость максимальной регистрируемой температуры при различных режимах самовоспламенения водородовоздушной смеси от числа Маха проходящей ударной волны:

\emptyset — мягкий, \oplus — жесткий, \otimes — переходный режимы

самовоспламенения в эквимольной смеси водорода с кислородом при $p < 0,3$ МПа. Дополним диаграмму из [1] новыми данными для воздушных смесей водорода (при концентрации водорода в смеси от 15 до 40%) (рис. 4). Как видно, при $p < 6$ МПа граница между обоими режимами размыта в полосе значений температуры $950 < T < 1050$ К. При $T < 950$ К существует только мягкий режим, а при $T > 1050$ К — только жесткий. В диапазоне $950 < T < 1050$ К отмечен переходный режим. Учет известных сведений из [1], дополненных некоторыми результатами из [9, 10] для систем водород + кислород + аргон, свидетельствует о фундаментальных причинах существования мягкого и жесткого режимов в горючих газовых смесях. Факт их существования отражает две принципиальные разновидности взаимодействия очагов энерговыделения с течением газа. При мягком режиме такое взаимодействие не сопровождается рождением ударных волн, а при жестком вблизи очагов горения появляются скачки давления. По этой причине необходимо учитывать возможность появления того или другого режима при организации рабочего процесса в различных энергетических установках, где самовоспламенение играет ключевую роль. Реализация мягкого и жесткого режимов даже в смесях с малой теплотой сгорания [9, 10] лишь подтверждает это заключение и свидетельствует об определяющей роли не только абсолютной величины, но и скорости энерговыделения.

Измерения температуры очагов самовоспламенения выявили дополнительные различия мягкого и жесткого режимов. Горение за отраженной ударной волной начинается при температуре, зависящей от числа Маха проходящей ударной волны. На рис. 5 приведены

результаты расчетов адиабатической температуры пламени T_f и температуры продуктов взрыва в точке Чепмена — Жуге T_{C-J} при детонации смеси 9,5 % H_2 + 90,5 % воздуха. На этом же графике представлена экспериментально определенная максимальная температура при самовоспламенении этой смеси. Как следует из рис. 5, скорость увеличения регистрируемой температуры с увеличением числа Маха проходящей ударной волны увеличивается в области существования переходного режима самовоспламенения, что является еще одним отличительным признаком этого процесса. Таким образом, измерения температуры коррелируют с внешними проявлениями взрывного процесса, отмеченными на записях давления. Скорость распространения взрывной волны при жестком режиме быстро сравнивается со скоростью детонации Чепмена — Жуге $D > a$, где a — скорость звука в несгоревшей смеси за отраженной ударной волной. Скорость распространения вторичной волны сжатия при горении в мягком режиме близка к величине a .

Переход горения в детонацию при мягком режиме происходит вне наблюдательной секции, и поэтому фиксируемое фотодиодами состояние продуктов взрыва отвечает адиабатической температуре пламени, рассчитанной для начальных условий, соответствующих состоянию смеси за отраженной ударной волной.

Данные [4, 5] позволяют сравнить примерные контуры областей мягкого и жесткого режимов для воздушных смесей водорода и углеводородов. В [4, 5] определены контуры области мягкого режима для стехиометрической смеси октан + воздух. Эти контуры воспроизведены на рис. 4. Область мягкого режима для октана в воздухе ограничена сверху, и при $p > 4$ МПа октановоздушная смесь самовоспламеняется только в жестком режиме.

В проведенных опытах границы мягкого режима для водорода в воздухе не найдены до $p = 6$ МПа независимо от состава смеси при объемной концентрации водорода $9,5 \div 20$ и $40 \div 60$ %. Важно отметить, что в силу ряда объективных и субъективных причин поиск определенной четкой границы мягкого и жесткого режимов нецелесообразен. Субъективные причины связаны с принятой методикой наблюдений, требующей для нахождения точной границы неопределенно большого количества опытов. Объективные причины обусловлены существованием промежуточной области значений давления и температуры, где реализуется переходный режим.

Визуализация мягкого и жесткого режимов в [7, 12] позволяет качественно объяснить причины возбуждения волн сжатия или взрывных волн в смеси, подготовленной к самовоспламенению двойным ударным сжатием за проходящей и отраженной ударными волнами. Плавное повышение давления при мягком режиме вызвано горением разрозненных по объему очагов воспламенения. Такой характер нарастания давления затрудняет определение направленности взрывного процесса в пространстве только по показаниям датчиков давления. В силу квазиакустичности процесса давление изотропно по пространству и его рост в наблюдательной секции происходит практически одновременно. На основе данных по оптической регистрации этого процесса, представленных в [4, 5], можно предположить, что при увеличении температуры ударносжатого газа скорость пламени в отдельных очагах увеличивается, что способствует повышению интенсивности волн сжатия, генерируемых отдельными очагами пламени. Опережающее пламена распространение и взаимодействие этих волн могут приводить к возникновению в пространстве между очагами горения зоны с градиентами температуры. Наиболее вероятно образование подобных зон при суперпозиции волн давления от соседних очагов. Согласно [13] при формировании определенного размера неоднородностей ($\delta = 1$ мм) и достижении известного уровня возмущений температуры $\Delta T = 20$ К в каждой из «горячих» точек возможен спонтанный режим горения.

Таким образом, переход мягкий режим самовоспламенения → переходный → жесткий отражает единство и взаимосвязь всех мод горения, классифицированных в [14]. Отмечаемое в опытах при переходном и жестком режимах самовоспламенения небольшое первичное плавное повышение давления перед проскоком вторичной взрывной волны отвечает интервалу времени, когда в объеме имеются один или несколько очагов горения. Тонкости внешних проявлений мягкого и жесткого режимов на осциллограммах давление — время позволяют понять противоречивые данные измерений времени запаздывания при мягком режиме, т. е. при $T < 1000$ К, на что указано в [15]. Разбавление смеси негорючим газом (аргоном, азотом и т. п.) снижает теплоту сгорания, темп и амплитуду повышения давления. Оба фактора затрудняют определение величины задержки воспламенения и создают предпосылки для ошибочного преувеличения измеряемого параметра, особенно при низком уровне начального давления.

Изложенные результаты позволяют предположить, что переходный и жесткий режимы отличаются только пространственным и временным масштабами перерождения спонтанного режима горения в детонацию, при этом физико-химическая и газодинамическая природа этих режимов одинакова и предопределена особенностями интерференции волн сжатия в пространстве, занятом свежей смесью между очагами пламени, сопутствующими процессу самовоспламенения.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований.

ЛИТЕРАТУРА

1. Voevodsky V. V., Soloukhin R. I. On the mechanism and explosion limits of $H_2 + O_2$ chain selfignition in shock waves // Proc. 10th Symp. (Int.) on Combustion. Pittsburgh: Combust. Inst., 1965. P. 279–283.
2. Oppenheim A. K. Dynamic features of combustion // Phil. Trans. Roy. Soc. London. 1985. V. A3115. P. 471–508.
3. Vermeer D. J., Meyer J. W., Oppenheim A. K. Autoignition of hydrocarbons behind reflected waves // Combust. Flame. 1972. V. 18, N 2. P. 327–336.
4. Fieweger K., Ciezki H., Adomeit G. Comparison of shock tube ignition characteristics of various fuel-air mixtures at high pressure / Book of Abstracts 19 ISSW. Univ. de Provence, 1993. V. 1. P. 253–254.
5. Fieweger K., Blumental R., Adomeit G. Shock tube investigation of the self-ignition of hydrocarbon + air mixtures at high pressure // Proc. 25th Symp. (Int.) on Combustion. UCI, 1994. Pap. N 25–280.
6. Meyer J. W., Oppenheim A. K. On the shock induced ignition of explosive gases // Proc. 13th Symp. (Int.) on Combustion. Pittsburgh: Combust. Inst., 1971. P. 1153–1164.
7. Zaytzev S. G., Soloukhin R. I. Combustion of an adiabatically heated gas mixture // Proc. 8th Symp. (Int.) on Combustion. Baltimore: Williams and Wilkins Co., 1962. P. 344–347.
8. Хасегава К., Асаба Т. Изучение реакции воспламенения кислорода с водородом при относительно высоких давлениях и низких температурах в ударной трубе // Физика горения и взрыва. 1972. Т. 8, № 3. С. 394–403.
9. Cheng R. K., Oppenheim A. K. Autoignition in $CH_4 + H_2$ mixtures // Combust. Flame. 1984. V. 58, N 2. P. 125–129.

10. Akamatsu T., Takano Y. Chemical effects on reflected shock region in combustible gas // Dynamics of Reactive Systems. Pt 2. Modeling and Heterogeneous Combustion. New York: AIAA Inc., 1985. P. 347-364. (Prog. Astronaut. and Aeronaut; V. 105).
11. Medvedev S. P., Khomik S. V., Polenov A. N., Gelfand B. E. Experimental evidence on peak temperature at the shock focusing // Abstr. 20th Symp. (Int.) on Shock Waves, 1995, Calif. Inst. of Technology. Pasadena, 1995. P. 131-132.
12. Slagg N., Fishburn B., Lu P., Vyn W. Formation of exothermic centers and their effects // Acta Astronaut. 1977. V. 4, N 3. P. 375-390.
13. Bartenev A. M., Gelfand B. E. Weak and strong ignition in scope of spontaneous flame concept // Proc. 25th Symp. (Int.) on Combustion. UCI, 1994. Pap. N 25-491.
14. Zeldovich Ya. B. Regime classification of an exothermic reaction with nonuniform initial conditions // Combust. Flame. 1980. V. 39, N 2. P. 211-214.
15. Гельфанд Б. Е., Попов О. Е. Медведев С. П. и др. Отличительные признаки самовоспламенения водородо-воздушных смесей при высоком давлении // Докл. РАН. 1993. Т. 33, № 4. С. 457-459.

*Поступила в редакцию 30/I 1996 г.,
в окончательном варианте — 8/VIII 1996 г.*
