

## ЛИТЕРАТУРА

1. Лаутон Дж., Вайнберг Ф. Электрические аспекты горения.— М.: Энергия, 1976.— 206 с.
2. Mayo P. J., Weinberg F. J. On the size, charge and number-rate of formation of carbon particles in flames subjected to electric fields // Proc. Roy. Soc. (L).— 1970.— A319, N 1538.— P. 351—371.
3. Таран Э. Н., Присяков В. Ф. Влияние электрического поля на спектр излучения и образование сажи при горении углеводородов // Структура газозаженных пламен: Материалы 2-го Междунар. семинара «Структура газозаженных пламен».— Новосибирск: ИТПМ, 1988.— Ч. III.— С. 96—106.
4. Таран Э. Н., Присяков В. Ф. О природе сажи // Там же.— Ч. I.— С. 104—113.
5. Taran E. N., Prisyakov V. Ph. Spectroscopic studies of electric discharges in fuel-rich hydrocarbon flame // Abstr. Europhys. Conf. X — ESCAMPIG — 90 — European Phys. Soc.— 1990.— P. 343—344.
6. Касаточкин В. Н., Коршак В. В., Кудрявцев Ю. П. и др. О полиморфизме карбина // Докл. АН СССР.— 1974.— 214, № 3.— С. 587—589.
7. Коршак В. В., Кудрявцев Ю. П., Евсюков С. Е. и др. Инфракрасные спектры карбина // Там же.— 1988.— 298, № 6.— С. 1431—1434.
8. Елецкий А. В., Смирнов Б. М. Кластер  $C_{60}$  — новая форма углерода // УФН.— 1991.— 161, № 7.— С. 173—192.
9. Gerhardt Ph., Löffler S., Homann K. H. Polyhedral carbon ions in hydrocarbon flames // Chem. Phys. Lett.— 1987.— 137, N 4.— P. 306—310.
10. Van L. L. Direct study of structural imperfections by highresolution electron microscopy. Surface and defect properties of solids // The Chem. Soc. (L.).— 1972.— 1.— P. 54—94.

г. Днепропетровск

УДК 614.841.12

В. Н. Дашевский, Б. С. Филков

### АВТОКОЛЕБАТЕЛЬНЫЙ РЕЖИМ ДИФфуЗИОННОГО ГОРЕНИЯ ГАЗА В ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ ПОЛЕ, СОСРЕДОТОЧЕННОМ В ПРЕДПЛАМЕННОЙ ЗОНЕ

Описаны результаты экспериментов по влиянию постоянного электрического поля на диффузионное горение пропан-бутана. Исследованы особенности экспериментально обнаруженного автоколебательного режима горения, заключающегося в строго периодическом изменении поверхности фронта пламени при фиксированном расходе топлива и постоянной разности потенциалов на электродах. Предложена гипотеза, качественно объясняющая полученные эффекты.

Эксперименты по изучению воздействия поля на диффузионные пламена проводились на установке, показанной на рис. 1. Измерялись изменения напряжения и тока в разрядном промежутке, площади поверхности пламени (по величине интегрального излучения конуса пламени, изображение которого фокусировалось на фотодиоде), а также интенсивности излучения радикалов  $CH^*$  и  $C_2^*$  из пригорелочной области пламени. Расход топлива варьировался от 2 до 6  $см^3/с$ .

Установлено, что при положительной полярности центрального электрода, начиная с напряжения  $V = 2$  кВ, интенсифицировались процессы сажеобразования, поверхность пламени несколько увеличивалась, а интенсивность излучения радикалов  $CH^*$  и  $C_2^*$  уменьшалась. При увеличении напряжения эта тенденция сохранялась вплоть до пробоя, который наступал при  $V = 8,2$  кВ. Ток в межэлектродном промежутке с ростом напряжения вплоть до пробоя рос линейно.

Нетривиальные результаты получены для случая, когда направление поля изменялось на противоположное. Здесь изучены два варианта наложения поля: когда внешний электрод выполняется в виде кольца либо спирали, охватывающей определенную часть высоты пламени.

1. Внешний электрод — кольцо диаметром 80 и толщиной 5 мм — расположен на 3 мм ниже среза горелки.

С ростом напряжения от нуля и вплоть до  $-6,5$  кВ при фиксированном расходе топлива  $Q = 3,3$  см<sup>3</sup>/с ток между электродами растет линейно и стабилен во времени (при фиксированном направлении отклонения тока от среднего значения не превышают 20 %). После достижения  $V = 6,5$  кВ возникает следующий эффект: за время  $\sim 0,2$  с площадь пламени резко увеличивается, затем медленно (1,3 с) уменьшается, причем в минимуме высота пламени в несколько раз меньше первоначальной и составляет несколько миллиметров. В этой фазе пламя по цвету напоминает кинетическое, интенсивность излучения радикалов  $\text{CN}^*$  и  $\text{C}_2^*$  возрастает почти на порядок. Через некоторое время (в данном случае 2,1 с) происходит вспышка, после чего описанный процесс начинает устойчиво повторяться, т. е. возникают колебания.

При фиксированных напряжениях и расходе топлива подобные колебания, как показали эксперименты, могут существовать неограниченно долго, причем их период выдерживается с высокой точностью (в частности, для указанных условий он равен  $3,6 \pm 0,05$  с). Запись тока с фотодиода, отражающего изменения поверхности пламени во времени, приведена на рис. 2, а. Аналогично изменению поверхности фронта пламени возникают колебания тока в межэлектродном пространстве (рис. 2, б). При дальнейшем небольшом повышении напряжения период колебаний возрастает за счет увеличения времени стабилизации пламени в фазе с минимальной поверхностью. В частности, при  $V = 7,5$  кВ,  $T = 4,2 \pm 0,1$  с, а длительность фазы с минимальной площадью пламени — 2,7 с. Возрастает также амплитуды колебаний излучения и тока (см. рис. 2).

При  $V > 7,5$  кВ периодичность исчезает, колебания становятся хаотическими, их амплитуда резко уменьшается. В данных условиях строго периодические колебания наблюдаются, когда расход топлива  $Q = 2,7 \div 3,3$  см<sup>3</sup>/с. Если  $Q < 2,7$  см<sup>3</sup>/с, наступает гашение в фазе, когда высота пламени минимальна (по-видимому, из-за недостатка окислителя), при  $Q > 3,3$  см<sup>3</sup>/с колебания срываются, пламя начинает гореть практически ровно. Таким образом, обнаруженный эффект автоколебаний пламени существует в достаточно четко ограниченных интервалах по напряжению и по расходу топлива.

Повышение степени ионизации пламени посредством введения в него легкоионизируемой присадки (соли NaCl) не изменяет амплитуду колебаний высоты пламени, но увеличивает период последних примерно в 1,5 раза (от 3,6 до 5,2 с при  $V = -6,5$  кВ) за счет увеличения длительности фазы, соответствующей максимуму тока. При этом амплитуда колебаний тока в пиках возрастает в  $\sim 2$  раза.

2. Внешний электрод имеет форму спирали диаметром 80 мм, высотой 60 мм с расстоянием между витками 15 мм.

Эксперименты показали, что в этом случае удается достичь колебательного режима при  $Q = 4,2 \div 6$  см<sup>3</sup>/с, причем при расходах, меньших указанных, пламя мгновенно гасится уже при  $V = 4,8$  кВ, а если  $Q = 4,2 \div 6$  см<sup>3</sup>/с, гашение достигается при  $V \geq 6$  кВ. Период колебаний в этом случае возрастает до 5,2 и 5,6 с при  $Q = 6$  и 4,2 см<sup>3</sup>/с в основном за счет увеличения времени, в течение которого высота пламени изменяется от максимальной до минимальной (рис. 3). В отличие от первого варианта, с ростом напряжения резко увеличивается амплитуда колебаний пламени, а период колебаний несколько уменьшается (см. рис. 2 и 3).

Следует отметить, что при максимально достигнутом расходе топлива 6,1 см<sup>3</sup>/с центральный электрод быстро (после 4—5 актов колебаний) покрывается сажей, после чего колебания прекращаются. Обобщенные результаты измерений амплитуды  $A$  колебаний излучения (площади поверхности) пламени и разрядного тока от напряжения при различных расходах топлива для обоих из изученных вариантов наложения поля представлены на рис. 4.

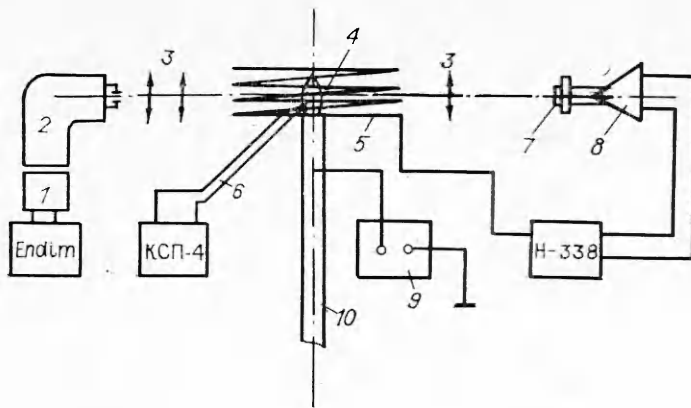


Рис. 1. Схема экспериментальной установки.

1 — фотопреобразователь; 2 — спектрограф; 3 — линзы; 4 — пламя; 5 — электроды; 6 — термомпара; 7 — фотодиод; 8 — усилитель; 9 — источник высокого напряжения; 10 — горелка.

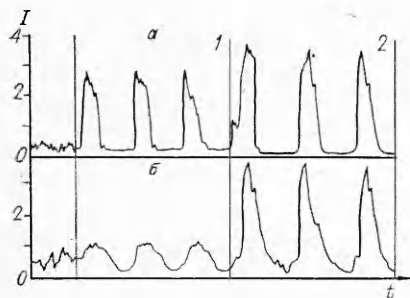


Рис. 2. Характер колебаний излучения пламени (а) и межэлектродного тока (б) в зависимости от напряжения; расход топлива  $Q = 3,3 \text{ см}^3/\text{с}$ , внешний электрод — кольцо.

1 — 6,5 кВ, период колебаний  $T = 3,6 \text{ с}$ ; 2 — 7,5 кВ,  $T = 4,2 \text{ с}$ .

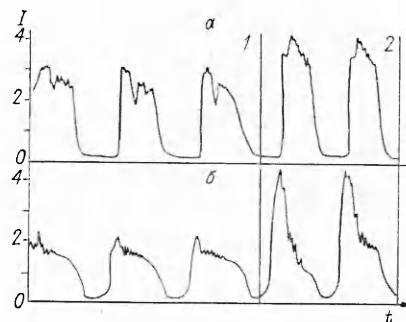


Рис. 3. Характер колебаний излучения пламени (а) и межэлектродного тока (б) и влияние на него состояния поверхности центрального электрода при  $Q = 6 \text{ см}^3/\text{с}$ . 1 —  $V = 5 \text{ кВ}$ ,  $T = 5,6 \text{ с}$ ; 2 —  $V = 6 \text{ кВ}$ ,  $T = 5,2 \text{ с}$ .

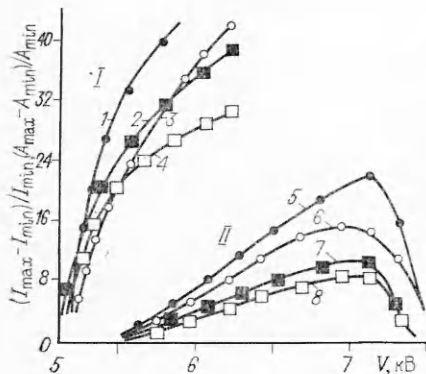


Рис. 4. Зависимость амплитуды колебаний интегрального излучения пламени и межэлектродного тока (относительные единицы) от напряжения на электродах.

I — внешний электрод — спираль; II — кольцо. 1, 3, 5, 6 — межэлектродный ток при расходах топлива 6,0; 4,2; 3,3; 2,7  $\text{см}^3/\text{с}$  соответственно; 2, 4, 7, 8 — излучение пламени при тех же расходах.

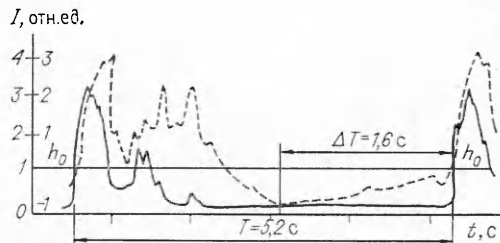


Рис. 5. Изменение межэлектродного тока (штриховые линии) и высоты пламени (сплошные) в течение периода колебаний ( $V = 7,5 \text{ кВ}$ ,  $Q = 3,3 \text{ см}^3/\text{с}$ , внешний электрод — кольцо).

Возникновение колебательного режима горения в постоянном электрическом поле при фиксированном расходе топлива не связано с колебаниями давления газа в горелке, которыми объясняются колебания «поющих» пламен. В данном случае, как показали измерения, проведенные с помощью микроманометра, динамическое давление в горелке в течение периода колебаний сколько-нибудь заметно не изменяется. От осцилляций факела, характерных для «поющих» пламен, обнаруженный эффект отличает также значительно больший период колебаний.

Поскольку в электрическом поле объемный расход топлива остается постоянным, а поверхность пламени изменяется, можно утверждать, что электрическое поле изменяет скорость горения диффузионного пламени. В данном случае под скоростью горения имеется в виду не нормальная скорость, понятие которой для диффузионных пламен не имеет смысла, а количество молекул топлива, вступающих в реакцию с окислителем в единицу времени на единицу поверхности фронта пламени.

Возникновение осцилляций пламени в поле свидетельствует о наличии по меньшей мере двух конкурирующих процессов, вносящих противоположный вклад в изменение скорости горения. В течение одного периода скорость горения сначала резко уменьшается, затем начинает расти и, наконец, становится больше начальной. После достижения этого максимума некоторое время скорость горения остается постоянной, а затем снова резко уменьшается. Длительность этих трех фаз относительно длительности периода колебаний и абсолютная величина периода колебаний зависят от внешних условий — расхода топлива, напряжения на электродах, конфигурации поля, но общий характер изменения скорости горения в течение периода колебаний сохраняется во всех случаях.

Об изменении механизма действия поля на горение при переходе пламени через положение равновесия (момент, когда высота пламени в поле равна его высоте без поля) свидетельствует смена характера изменения электрического тока  $I$  из пламени относительно изменений его высоты  $h$  (см. рис. 5). Сравнивая зависимости  $I(t)$  и  $h(t)$  на рис. 5, можно видеть, что после вспышки и в ходе последующего уменьшения высоты пламени до начальной ток из пламени изменяется синфазно с высотой, а после прохождения пламенем положения равновесия в противофазе с ней — уменьшению высоты пламени соответствует увеличение межэлектродного тока.

Непротиворечивое объяснение обнаруженного эффекта автоколебаний пламени дать трудно, однако очевидно, что оно не может быть сделано в рамках газодинамического или теплового механизмов влияния поля на пламя, так как при неизменном направлении поля в разные моменты периода колебаний действие поля на горение проявляется противоположным образом.

По-видимому, вспышку и последующее уменьшение высоты пламени до первоначальной можно объяснить изменением коэффициента взаимной диффузии топлива и окислителя  $D$ . Механизм этого процесса может быть представлен следующим образом. В электрическом поле электроны начинают дрейфовать из фронта пламени по направлению к внешнему электроду, т. е. в направлении окислителя. Сталкиваясь с молекулами кислорода, электроны прилипают к ним, образуя отрицательные ионы  $O_2^-$ , которые удаляются от пламени, увлекая с собой нейтральные молекулы  $O_2$ , т. е. создают «ионный ветер». В результате  $D_{O_2}$  уменьшается, а  $h$  увеличивается.

С другой стороны, положительные ионы фронта, попавшие в зону действия поля, движутся в направлении центрального электрода, т. е. препятствуют диффузии молекул топлива в зону реакции. Максимальной высоте пламени, очевидно, соответствует минимальный коэффициент взаимной диффузии. Связь между высотой пламени в отсутствие внешнего поля  $h_0$  и коэффициентом взаимной диффузии на границе диффу-

зионного пламени определяется формулой [1]:

$$D_0 = D_n + kh_0,$$

где  $D_n$  — коэффициент взаимной диффузии окислителя и топлива при нормальных условиях;  $k = 0,182$  см/с — эмпирическая константа.

Согласно [1],

$$D_n = \frac{0,0354 [1 - 0,5(1 + L_0)^{-1}]}{2\pi(1 + L_0)^{-1}}, \text{ [см}^2\text{/с)},$$

$L_0 \approx 25$  — коэффициент стехиометрии для смеси пропан-бутан — воздух. Следовательно, в данном случае  $D_n \approx 0,144$  см<sup>2</sup>/с. Так как в отсутствие поля при  $Q = 2,7$  см<sup>3</sup>/с высота пламени равна 1,3 см, то на границе пламени  $D_0 = 0,384$  см<sup>2</sup>/с при  $V = 0$  кВ.

Высота пламени при неизменном расходе топлива обратно пропорциональна коэффициенту диффузии [2]

$$h = Q/2\pi D,$$

следовательно, при наличии электрического поля в фазе максимальной высоты пламени  $h_{\max}$

$$D = D_0 h_0 / h_{\max}. \quad (1)$$

При  $Q = 2,7$  см<sup>3</sup>/с и  $V = 6,5$  кВ  $h_{\max} = 2,9$  см, тогда в соответствии с (1)  $D = 0,172$  см<sup>2</sup>/с, т. е. коэффициент взаимной диффузии уменьшается более чем в 2 раза.

Следующее за вспышкой уменьшение высоты пламени до начальной, вероятно, связано с тем, что после вспышки пламя выходит из области локализации поля и, следовательно, действие описанного выше механизма ограничивается. Это подтверждается тем, что при «растягивании» поля в вертикальной плоскости (замене внешнего электрода-кольца — спиралью) максимальная высота пламени возрастает, в то время как минимальная практически не изменяется. Увеличение поверхности пламени после вспышки при том, что коэффициент диффузии в верхних горизонтах пламени близок к нормальному, приводит к росту массовой скорости горения и соответственно к уменьшению высоты пламени.

Причины, по которым высота пламени по достижении начальной  $h_0$  продолжает уменьшаться, очевидно, не могут быть связаны с газодинамическим механизмом действия поля на пламя. Обычно предполагается, что в диффузионных пламенах скорость химической реакции не является определяющим фактором для скорости горения. Однако это справедливо только для высокотемпературной зоны реакции [2, с. 125]. С другой стороны, установлено, что в зонах подогрева по обе стороны фронта также идут химические реакции, причем вблизи устья горелки, где в описываемом случае локализовано поле, они протекают с участием кислорода, проникающего в топливо через основную зону реакции [2].

По нашему мнению, эти факты дают основание предположить, что уменьшение высоты пламени после перехода через критическую точку  $h_m$  до минимальной и последующее устойчивое горение связаны с действием поля на кинетику реакций в зоне подогрева.

Из рис. 5 видно, что нарушению устойчивого горения с максимальной скоростью (в фазе минимальной высоты пламени) предшествует увеличение межэлектродного тока до некоторой пороговой величины. С целью установления природы этого эффекта проведены эксперименты, в которых использовались электроды из разных металлов и сплавов: меди, никрома и платины. Оказалось, что минимальное напряжение, при котором возникают автоколебания пламени, зависит от материала центрального электрода и не зависит от материала внешнего, причем в случае платинового электрода устойчивых автоколебаний пламени не возникает совсем. Это согласуется с данными о работе выхода с поверхности этих материалов [3] и свидетельствует об эмиссионной природе увеличения тока.

Материал электрода	$V_{\min}$ , кВ	$A_{\text{вых}}$ , эВ	$J_{\text{тэ}}$ , А/см <sup>2</sup>
Медь	6,0	4,40	$1,68 \cdot 10^{-9}$
Нихром	6,2	4,51	$0,63 \cdot 10^{-9}$
Платина	Нет	5,32	$2,75 \cdot 10^{-13}$

В то же время ясно, что появление тока не связано с автоэлектронной эмиссией, так как она становится сколько-нибудь заметной при  $V = 1 \div 2 \cdot 10^7$  В/см и  $p = 1$  атм ей бы предшествовали коронный разряд и искровой пробой газового промежутка. С другой стороны, тер-

мопарными измерениями установлено, что при горении пламени в фазе с минимальной высотой центральный электрод разогревается до 1300 К. В этих условиях возможна термоэлектронная эмиссия с острия электрода, которая облегчается наличием вблизи него сильного внешнего поля.

Результаты расчета токов термоэлектронной эмиссии при наличии сильного электрического поля по уравнению Ричардсона — Дешмана при  $T = 1300$  К, приведенные в таблице, показывают, что эти токи (за исключением тока с платинового электрода) сравнимы по порядку величины с токами, обусловленными движением зарядов пламени при наложении на него электрического поля.

Отсюда следует, что нарушение устойчивого горения в фазе с минимальной высотой пламени связано с нагревом центрального электрода близко находящимся фронтом пламени, в результате чего возникают термоэлектроны, нейтрализующие действие поля в зоне подготовки топлива по механизму, аналогично предложенному выше для кинетических пламен. Отметим, что в кинетическом пламени этот эффект связан с возникновением коронного разряда в газе и не зависит от материала центрального электрода, так как из-за малой интенсивности излучения фронтом кинетического пламени электрод до нужных температур не нагревается.

Таким образом, эффект автоколебаний диффузионного пламени в электрическом поле, по нашему мнению, обусловлен конкурирующим действием нескольких механизмов, причем эффективность каждого из них зависит от начальной и текущей высоты пламени, распределения напряженности поля по высоте, относительной протяженности зон с различными условиями смешения при изменении общей высоты пламени.

Столь сложный механизм поддержания колебаний пламени должен быть очень чувствителен к изменению начальных параметров ( $V$  и  $h$ ), чем и объясняется факт существования автоколебательного режима в очень узких интервалах напряжений и расходов топлива, установленный экспериментально. В частности, прекращение колебаний при превышении какого-то критического напряжения может быть связано с ростом числа термоэлектронов, нейтрализующих действие поля, или же снижением эффективности захвата электронов молекулами кислорода во внешней зоне, обусловленным ростом кинетической энергии электронов.

Гашение пламени в поле, наблюдавшееся в экспериментах при очень малых расходах топлива, видимо, обусловлено тем, что вершина пламени изначально находится ниже критической точки  $h_m$  и скорость пламени в итоге возрастает до величин, превышающих скорость потока, пламя стремится проскочить горелку и там из-за недостатка кислорода гаснет.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Кумаган С. Горение.— М.: Химия, 1979.— 256 с.
2. Гейдон А. Г., Вольфгард Х. Г. Пламя, его структура, излучение и температура.— М.: Металлургиздат, 1959.— 333 с.
3. Таблицы физических величин: Справочник/Под ред. И. К. Кикоина.— М.: Атомиздат, 1976.— 1005 с.

г. Караганда