

О ТЕПЛООБМЕНЕ СУБМИКРОННЫХ ЧАСТИЦ MgO В ЗОНЕ ГОРЕНИЯ ОДИНОЧНЫХ ЧАСТИЦ МАГНИЯ

И. А. Флорко, Н. И. Полетаев, А. В. Флорко, А. Н. Золотко

Институт горения и нетрадиционных технологий Одесского государственного университета,
65026 Одесса, Украина

В диапазоне давлений $10^4 \div 10^5$ Па на основе оптико-спектральных измерений и численного моделирования исследован механизм теплообмена субмикронных частиц MgO в зоне горения в процессе их роста. Показано, что на ранней стадии роста частиц теплообмен обусловлен исключительно столкновениями с молекулами газа с коэффициентом аккомодации энергии $\approx 0,01 \div 0,02$. В процессе роста частиц и с понижением давления роль излучения возрастает, и в конечном итоге излучение становится ведущим механизмом теплообмена.

ВВЕДЕНИЕ

Настоящая работа посвящена анализу теплообмена субмикронных частиц оксидов металлов в зоне горения. Конденсация газообразных продуктов сопровождается выделением значительного количества тепла. Передача этой энергии в окружающую среду может происходить за счет излучения и при столкновениях с молекулами газа. Интенсивность излучения частиц определяется фактором эффективности поглощения, значения которого для субмикронных частиц пропорциональны их радиусам [1]. Поэтому на ранней стадии роста конденсированных частиц роль излучения в теплообмене несущественна. Интенсивность свободномолекулярного теплообмена частиц оксида определяется концентрацией молекул газа и коэффициентом аккомодации энергии α_E . Согласно данным, представленным в работе [2], величина α_E зависит от рода конденсированной и газовой фаз и, как правило, существенно меньше единицы. Из сказанного следует, что для очень мелких частиц (наночастиц) и малых значений α_E суммарная скорость лучистого и молекулярного теплообмена может оказаться много меньше скорости тепловыделения от конденсации. Это может привести к разогреву частиц конденсированной фазы по отношению к газу и к резкому снижению скорости конденсации.

Роль излучения и кондукции несложно установить, если известны испускательная способность частиц и коэффициент аккомодации

энергии. В соответствии с законом Кирхгофа испускательная способность равна фактору эффективности поглощения и может быть рассчитана на основе теории Ми либо измерена. Сложнее обстоит дело с теплообменом частиц с газовым компонентом. Это связано с отсутствием прямых надежных измерений коэффициентов аккомодации энергии для оксидов металлов при температурах горения ($T \approx 3000$ К). В работе [3] теоретически получена верхняя оценка коэффициента аккомодации энергии ($\alpha_E < 1/600$ для двухатомных молекул), что позволило автору сделать вывод о том, что температура дисперсной фазы может превышать температуру газа более чем на 500 К. Достоверность этого результата (как и других теоретических оценок) нуждается в экспериментальной проверке, так как коэффициент α_E сильно зависит от чистоты поверхности конденсированной фазы, ее состояния и температуры [2] и может значительно отличаться от расчетного значения. На основе результатов спектральных исследований горения частиц магния в работе [4] получена оценка $\alpha_E = 0,5/\Delta T$ (ΔT — разность между температурами газа и конденсированной фазы). Так как величина ΔT является функцией размера конденсированных частиц, то речь идет о некоторой эффективной разности, определяемой в результате измерений. Затронутые вопросы важны для физики горения, физики низкотемпературной плазмы с дисперсной фазой, а также для совершенствования методов оптической диагностики. В связи с этим целью настоящей работы является выяснение роли излучения и теплопроводности как в теплообмене субмикронных

Работа выполнена при поддержке фонда INTAS (грант № 96-2334).

частиц при различных давлениях окружающей среды, так и в определении значений коэффициента аккомодации энергии при температуре горения. Решение поставленных задач проводилось на примере горящих частиц магния.

МЕТОДИКА ПОЛУЧЕНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ

В соответствии с методикой, описанной в [5], были проведены измерения интегральной светимости (R) конденсированной фазы в зоне горения одиночных частиц магния с начальным радиусом $r_0 = 2 \div 2,5$ мм. Исследования проводились в широком диапазоне давлений ($10^4 \div 10^5$ Па), что позволило выявить эффективность указанных каналов теплообмена. Для количественной оценки эффективности радиационной составляющей использовалось отношение энергии излучения (η) к энергии, выделяющейся при конденсации. Процессы теплообмена определяют также время роста частиц (τ). Действительно, низкая эффективность теплообмена приводит к сильному перегреву частиц, к снижению скорости конденсации и соответственно к увеличению времени их роста. В связи с этим конечная цель экспериментов заключалась в определении величин τ_3 и η_3 при различных давлениях. Помимо их самостоятельной значимости они использовались для оценок коэффициента аккомодации энергии. Указанные величины сравнивались с таковыми, полученными расчетным путем (τ_p, η_p), где параметром задачи являлся коэффициент аккомодации энергии. Подбранное значение α_E должно обеспечивать согласие результатов расчета и эксперимента во всем исследованном диапазоне давлений и, в известной степени, гарантировать их надежность.

Обратимся к методике определения величин τ_3 и η_3 . Время роста частиц будем отождествлять с временем их пребывания в зоне конденсации. Для одномерного стационарного случая можно записать уравнение баланса числа конденсированных частиц, которое позволяет оценить время τ_3 :

$$\frac{dN_k}{dt} s \xi = 2svN_k, \quad (1)$$

где N_k и dN_k/dt — соответственно концентрация и скорость генерации конденсированных частиц в единице объема; ξ — ширина зоны конденсации; v — скорость дрейфа частиц; s — площадь. Из (1) следует

$$\tau_3 = \frac{\xi}{v} = 2N_k / \frac{dN_k}{dt}. \quad (2)$$

Концентрацию конденсированных частиц легко связать со светимостью R . Для оптически прозрачных пламен энергия, излучаемая единицей объема в единицу времени, связана с R известным соотношением

$$I = 4R/\xi. \quad (3)$$

С другой стороны, для газозвеси кубических частиц (субмикронные частицы MgO) энергия определяется выражением

$$I = 6N_k \int_0^\infty l^2 f(l) R_b Q_a(l, T) dl, \quad (4)$$

где $f(l)$ — функция распределения частиц по размерам, $R_b = \sigma T^4$ — светимость абсолютно черного тела, σ — постоянная Стефана — Больцмана, Q_a — фактор эффективности поглощения. Результаты дисперсного анализа хорошо описываются логарифмически-нормальным распределением с коэффициентом корреляции, равным 0,99:

$$f(l) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma l} \exp\left(-\frac{(\ln(l/l_0))^2}{2\sigma^2}\right),$$

$$l_0 = 0,075 \text{ мкм}, \quad \sigma = 0,35.$$

Факторы эффективности поглощения Q_a в соответствии с законом Кирхгофа принимались равными излучательным способностям частиц. Авторами настоящей работы были проведены измерения Q_a при различных значениях T . Результаты этих экспериментов в диапазоне длин волн $\lambda \cong 0,6 \div 0,7$ мкм можно представить в виде

$$Q_a = bl \exp(-E_1/T), \quad (5)$$

где $b = 1,5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-1}$, $E_1 = 37700 \text{ К}$. Учитывая (3)–(5), имеем

$$N_k = \frac{2R \exp(E_1/T)}{3\langle l^3 \rangle \sigma T^4 b \xi}. \quad (6)$$

Скорость генерации частиц определялась по токам насыщения, создаваемым заряженными конденсированными продуктами сгорания горячей частицы магния, в однородном электрическом поле плоского конденсатора в соответствии с методикой, описанной в [6]. При

Параметры горячей частицы магния при различных давлениях

Параметры	p , Па				Погрешность эксперимента, %
	10^4	$2 \cdot 10^4$	$5 \cdot 10^4$	10^5	
$dn_{\text{к}}/dt$, с^{-1}	10^{11}	$2 \cdot 10^{11}$	$4 \cdot 10^{11}$	10^{12}	30
$\tau_{\text{э}}$, с	0,7	0,5	0,25	0,1	50–70
$\tau_{\text{р}}$, с	0,8	0,5	0,25	0,13	—
$\eta_{\text{э}}$	0,5	0,8	0,7	0,5	40
$\eta_{\text{р}}$	0,7	0,7	0,65	0,6	—
R , $\text{Вт}/\text{см}^2$	0,14	0,7	3	9	10

этом измерялась скорость генерации частиц $dn_{\text{к}}/dt$ в зоне горения в целом (см. таблицу, $n_{\text{к}}$ — общее количество частиц).

Для сферически симметричных пламен

$$\frac{dN_{\text{к}}}{dt} = \frac{1}{4\pi r_{\text{к}}^2 \xi} \frac{dn_{\text{к}}}{dt}, \quad (7)$$

где $r_{\text{к}}$ — радиус зоны горения, зависящий от внешнего давления p .

Измерения $r_{\text{к}}$, проведенные фотографическим путем, позволили установить, что

$$r_{\text{к}} = 2r_0/(p/10^5)^{1/3}, \quad (8)$$

где r_0 — исходный радиус частицы магния.

Принимая во внимание выражения (2), (6)–(8), окончательно получаем

$$\tau_{\text{э}} = \frac{16\pi(2r_0)^2 \exp(-E_1/T)R}{3(p/10^5)^{2/3} \langle l^3 \rangle \sigma T^4 b (dn_{\text{к}}/dt)}. \quad (9)$$

В расчетах использовались данные измерений температуры, заимствованные из [7]:

$$T = 2650 + 87 \ln(p/10^5). \quad (10)$$

Оценим теперь отношение излучаемой энергии и выделяющейся при конденсации за время роста частиц до среднекубического размера. Энергия, излучаемая единицей объема в единицу времени, определяется соотношением (3). За то же время в единице объема образуется $dN_{\text{к}}/dt$ частиц, т. е. каждая из них излучает энергию $E = I/(dN_{\text{к}}/dt)$. Тогда доля излучения по отношению к энергии, выделившейся при конденсации, будет равна

$$\eta_{\text{э}} = 4R \left/ \frac{dN_{\text{к}}}{dt} \langle l^3 \rangle \rho q_{\text{к}} \xi. \quad (11)$$

Или с учетом (7)

$$\eta_{\text{э}} = 16\pi R r_{\text{к}}^2 \left/ \frac{dn_{\text{к}}}{dt} \langle l^3 \rangle \rho q_{\text{к}}, \quad (12)$$

где ρ — плотность MgO , $q_{\text{к}}$ — удельная теплота конденсации.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ АНАЛИЗ

Результаты экспериментальных измерений спектральной светимости R , скорости генерации частиц $dn_{\text{к}}/dt$, а также результаты косвенных измерений $\tau_{\text{э}}$ и $\eta_{\text{э}}$ в зависимости от давления окружающей среды p представлены в таблице. Видно, что величина R зависит от давления. Простые вычисления показали [5], что для пламени в целом роль излучения уменьшается с понижением давления приблизительно по линейному закону. Действительно, мощность излучения горячей частицы магния пропорциональна произведению светимости и площади зоны конденсации. Легко убедиться (см. таблицу и выражение (8)), что светимость пропорциональна $p^{1,7}$, площадь пропорциональна $p^{-0,66}$, а их произведение пропорционально p . Таким образом, при $p = 10^5$ Па доля излучения по отношению к общему тепловыделению составляет $\approx (30 \div 40)\%$, но при $p = 10^4$ Па указанное значение уже не превышает 4%. При $p = 3 \cdot 10^3$ Па, как показали визуальные наблюдения, пламя частицы Mg становится практически прозрачным и не имеет четко выраженной зоны горения. Снижение радиационных потоков с уменьшением давления объясняется высоким содержанием не сконденсировавшихся паров MgO [5]. Это означает, что теплота конденсации не высвобождается полностью при пониженных давлениях. Тем не менее время горения частиц магния слабо зависит от давления [5], и, следовательно, теплота конденсации в объеме вокруг частицы не

играет существенной роли в тепловом балансе горячей частицы. Как будет показано ниже, не менее 50 % теплоты конденсации частиц излучается, т. е. излучение имеет важное значение для растущих в зоне горения частиц конденсированной фазы. Однако прежде чем перейти к анализу теплового баланса растущих субмикронных частиц MgO, отметим еще раз, что выше речь шла об излучении и его роли при горении частиц магния.

Обратимся к результатам, представленным в таблице. Расчеты по формуле (9) с учетом (10) показывают, что с понижением давления время роста конденсированных частиц увеличивается как $1/p$. Это можно объяснить, как уменьшением давления паров MgO, так и снижением эффективности молекулярной (пропорциональной давлению) и радиационной (см. выражения (5), (10)) составляющих теплового потока, что затрудняет «сброс» частицами энергии конденсации и затягивает раннюю стадию роста частиц. В таблице также представлены значения η_3 , полученные согласно выражению (12). Как видно, с уменьшением давления относительная роль излучения возрастает. Из этой тенденции выпадает результат, полученный при $p = 10^4$ Па. Связано это с тем, что при низких давлениях ширина зоны реакции сравнивается с ее радиусом, а приближение, использованное в (7), становится слишком грубым. При $p = 10^4$ Па имеем $\xi \cong 0,7$ см [8], в то время как $r_k \cong 0,9$ см. Кроме того, из-за снижения температуры падает и эффективность излучения. Результаты для η_3 представляются естественными, так как излучение определяется только фактором эффективности поглощения и температурой, в то время как интенсивность молекулярного теплообмена сильно зависит от давления. Значения $\eta_3 \geq 0,5$ свидетельствуют о том, что роль излучения в тепловом балансе частиц ведущая. В то же время при $l \rightarrow 0$ $Q(l) \rightarrow 0$ (см. (5)). Таким образом, на ранней стадии роста частиц все решает кондуктивный теплообмен с газовым компонентом и при достаточно низком давлении частицы перегреваются, процесс конденсации замедляется и пламя становится прозрачным.

Обратимся к результатам численного моделирования теплового баланса растущих частиц, где параметром задачи являлся коэффициент аккомодации энергии. Решалась система двух дифференциальных уравнений:

$$\frac{dT}{dt} = \frac{A}{cl} q_k^1 \left(1 - F \exp \left(-\frac{E}{T} \right) \right) - \frac{D(T - T_r)}{l} - B \exp \left(-\frac{E_1}{T} \right) T^4, \quad (13)$$

$$\frac{dl}{dt} = A \left(1 - F \exp \left(-\frac{E}{T} \right) \right). \quad (14)$$

Здесь $A = (3\alpha_k/2\rho)\langle v \rangle m_0 N(0)$; $D = (3/2\rho c)\alpha_E \langle v \rangle N_0 (i/2)k$; $B = 3b\sigma/\rho c$; $\alpha_k = 0,05$ — коэффициент конденсации [8]; c — удельная теплоемкость MgO; q_k^1 — теплота конденсации в расчете на одну молекулу; $\langle v \rangle$ — средняя скорость теплового движения молекул; $N(0)$ — концентрация молекул MgO [8]; $F = N_\infty/N_0$, где N_∞ — предэкспоненциальный множитель, определяющий зависимость равновесной концентрации молекул MgO от температуры [8], N_0 — концентрация молекул газового компонента; i — число степеней свободы молекул, участвующих в теплообмене; k — постоянная Планка; E — теплота испарения; T_r — температура газа, m_0 — масса молекулы.

Уравнение (13) представляет собой уравнение теплового баланса для частицы с текущим размером l , уравнение (14) описывает динамику роста частицы. Первое слагаемое в (13) определяется теплоприходом за счет конденсации, второе и третье — уходом энергии за счет столкновений и излучения соответственно. В расчетах предполагалось, что концентрация молекул газа MgO, равно как и температура T_r , в процессе роста частиц остаются неизменными. Действительно, время горения исследуемых частиц $10 \div 20$ с, тогда как время роста частиц $\tau_3 = 0,1 \div 1$ с (см. таблицу). Рассматриваемая модель весьма приближенная, но, как будет показано ниже, дает результаты, неплохо согласующиеся с данными эксперимента.

Система уравнений (13), (14) решалась численно. Начальный размер частицы принимался равным $6 \cdot 10^{-4}$ мкм, а ее начальная температура — равной газовой (10). Увеличение начального размера на порядок величины приводит к сокращению времени роста частицы на 10 %, так что величина начального размера не является принципиальной. Необходимые для расчетов значения концентрации молекул MgO заимствованы из работы [8]. Вычисления проводили для различных давлений и коэффициентов аккомодации энергии. Последние менялись в диапазоне $\alpha_E = 5 \cdot 10^{-3} \div 0,5$. Оказалось, что результаты вычислений величин

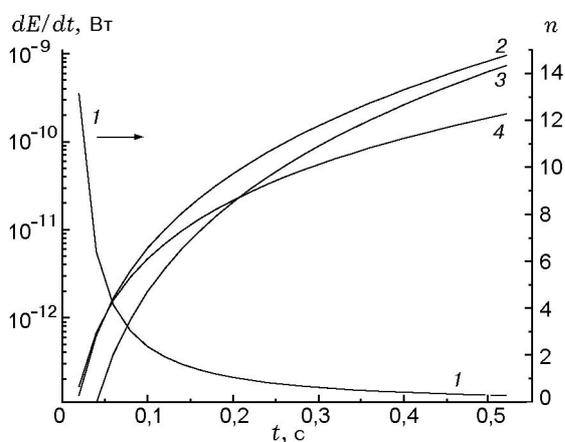


Иллюстрация теплового баланса конденсированных частиц в процессе их роста:

1 — отношение энергий, теряемых частицей в единицу времени при столкновениях с молекулами газа и за счет излучения; 2 — энергия, выделяющаяся в единицу времени при конденсации частицы; 3, 4 — энергия, теряемая частицей за счет столкновений и излучения соответственно

τ_p и η_p лучше согласуются с данными экспериментов при $\alpha_E \approx 0,01 \div 0,02$. Точнее указать значение α_E было бы некорректно из-за погрешностей измерений, с результатами которых сопоставляются результаты расчетов на основе приближенной модели. Расчет прекращался, как только размер частицы достигал среднекубического размера, известного из результатов дисперсного анализа. Как показали измерения, среднекубический размер, определяющий энергию конденсации, слабчувствителен к изменению внешнего давления в диапазоне $p = 10^4 \div 10^5$ Па. На рисунке представлены зависимости, иллюстрирующие тепловой баланс частицы во времени при $p = 2 \cdot 10^4$ Па. Аналогично выглядят зависимости и при других давлениях. Как видно (кривая 1), на ранней стадии роста роль излучения в теплообмене незначительна, однако со временем излучение становится определяющим. Кривые 2–4 описывают временные зависимости мощностей тепловыделения за счет различных процессов и иллюстрируют сказанное, но в количественной мере.

Обратим внимание на следующее обстоятельство. В зоне горения одновременно присутствует весь спектр частиц, температуры которых могут отличаться на десятки градусов. Естественно, возникает вопрос, как это скажется на результатах измерения температуры

методами оптической пирометрии. В связи с этим были проведены расчеты спектральной светимости газовзвеси неизотермической полидисперсной системы субмикронных частиц в диапазоне длин волн $\lambda = 0,4 \div 1$ мкм. Предполагалось, что функция распределения частиц по размерам логарифмически-нормальная, а температура отдельной частицы является функцией ее размера r и описывается соотношением

$$T(r) = T_0 + \Delta T \varphi(r).$$

При вычислениях значение ΔT изменялось от 100 до 700 К, а $\varphi(r)$ моделировалась как линейной функцией, так и сложной — полиномиальной. Оказалось, что если рассматривать систему серых неизотермических частиц, то система в целом (при условии малых оптических плотностей) будет серой. Таким образом, температура конденсированной фазы, измеренная, например, полицветовым методом [9], как показали расчеты, может оказаться выше газовой на $30 \div 50$ К.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Оптико-спектральные исследования и модельные расчеты позволили установить следующее.

В тепловом балансе растущих частиц исключительно важную роль играет излучение, которое зависит от стадии их роста и давления окружающей среды. С понижением давления от 10^5 до $2 \cdot 10^4$ Па доля излучения возрастает от 50 до 80%. В процессе роста частиц роль кондукции и излучения меняется. На ранней стадии их роста энергия, выделяющаяся при конденсации, передается в окружающую среду исключительно за счет столкновений с молекулами газа. Определенный в работе коэффициент аккомодации энергии равен $\alpha_E = 0,01 \div 0,02$. К моменту времени, составляющему приблизительно 15–20% полного времени роста, вклад в теплообмен обоих процессов сравнивается. С течением времени роль излучения становится ведущей, и в конце роста доля теплообмена за счет столкновений не превышает 5–10%. Основная причина описанных закономерностей связана с пропорциональной зависимостью испускательной способности субмикронных частиц от их размера.

В процессе роста конденсированной фазы температуры частиц разного размера могут

отличаться от газовой. Исходя из полученного нами значения коэффициента аккомодации это отличие может достигать 50 К. Таким образом, зона конденсации горячей частицы магния представляет собой полидисперсную систему неизотермических частиц. Проведенные численные эксперименты показали, что система серых неизотермических источников в случае малых оптических плотностей будет представлять собой серую систему, что позволило обосновать применение полицветового метода определения температуры для неизотермических частиц, как и в случае системы изотермических частиц.

ЛИТЕРАТУРА

1. **Борен К., Хафмен Д.** Поглощение и рассеяние света малыми частицами. М.: Мир, 1986.
2. **Борисов С. В., Балахонов Н. Ф., Губанов В. А.** Взаимодействие газов с поверхностью твердых тел. М.: Мир, 1988.
3. **Altman I. S.** High-temperature estimation of energy accommodation coefficient of gas molecules on surface // Intern. Conf. dedicated to the memory of prof. I. Z. Fisher "Special Problems in Physics of Liquids", Odessa, Ukraine, May 31–June 4, 1999: Book Abstr. Odessa, Ukraine: Odessa State Univ., 1999. P. 49–50.
4. **Sergienko I. A., Poletaev N. I., Florko A. V.** The radiative properties of the submicron condensed particles at high temperatures // Ibid. 1999. P. 125–126.
5. **Флорко А. В., Козицкий С. В., Мацко А. М.** Исследование горения одиночных частиц магния при пониженных давлениях // Физика горения и взрыва. 1986. Т. 22, № 2. С. 35–40.
6. **Золотко А. Н., Козицкий С. В., Флорко А. В.** Импульсный метод исследования электрических характеристик плазмы с конденсированной дисперсной фазой // Физика аэродисперсных систем. Киев; Одесса: Вища шк., 1984. Вып. 26. С. 79–83.
7. **Флорко А. В., Головкин В. В., Охрименко Н. А., Шевчук В. Г.** Структура зоны горения частиц магния. Оптико-спектральные исследования // Физика горения и взрыва. 1991. Т. 27, № 1. С. 37–42.
8. **Флорко А. В., Головкин В. В.** Особенности зарождения и роста κ -фазы при горении одиночных частиц магния. Реофизика и теплофизика неравновесных систем // Материалы Международной школы-семинара. Ч. 2. Минск: Ин-т тепло- и массообмена АН БССР, 1991. С. 103–107.
9. **Белинский Н. И., Козицкий С. В., Флорко А. В.** Скоростной спектральный прибор для исследования излучательных характеристик дисперсных продуктов сгорания // Физика аэродисперсных систем. 1985. Т. 28. С. 38–42.

Поступила в редакцию 10/VIII 2000 г.