

СТАЦИОНАРНЫЕ РЕЖИМЫ ФИЛЬТРАЦИОННОГО РЕАКТОРА

Н. Н. Столярова, Г. С. Сухов, Л. П. Ярин

(Ленинград)

В ряде задач химической технологии и металлургии (например, при регенерации зерен катализатора, агломерации руды и др.) процесс химического превращения гранулированного вещества в атмосфере газообразного окислителя может быть осуществлен непрерывно в аппаратах, работающих по принципу реактора вытеснения. В простейшем случае эти устройства могут быть выполнены в виде трубы, по которой под действием массовых сил (фильтрационной, силы тяжести и др.) равномерно перемещается пористое вещество навстречу волне горения со скоростью, равной скорости ее распространения. При умеренных давлениях, когда плотность твердого реагента значительно выше плотности газообразного окислителя, последний транспортируется в зону реакции путем фильтрации через слой холодного пористого реагента.

Когда гидравлическое сопротивление холодного слоя относительно невелико, фильтрация способна обеспечить зону горения окислителем в количестве, достаточном для полного превращения твердого реагента. Этот случай, отвечающий модели «короткого реактора», подробно описан в [1]. В настоящей работе рассмотрены особенности стационарных состояний «длинного реактора», т. е. такого, в котором из-за значительного фильтрационного сопротивления пористого вещества в холодной части реактора процесс химического взаимодействия может протекать в условиях недостатка окислителя, т. е. при неполном превращении твердого реагента.

Рассмотрим систему, образующую только тугоплавкие конденсированные продукты. Исключая явления спекания, а также температурную зависимость теплового эффекта реакции, теплоемкости и коэффициентов теплового и фильтрационного переноса, представим систему уравнений, описывающую рассматриваемый процесс, в следующем виде:

$$\begin{aligned} d\rho u/dx + \mu W &= 0, \\ dp/dx + u_\phi/k_\phi &= 0, \\ (c_v \rho u + c_m \rho_m u_r + c_p \rho_n u_r) \cdot dT/dx &= \lambda \cdot d^2 T/dx^2 + qW, \\ \rho_m u_r \cdot d\eta/dx &= W, \quad mp - \rho R_r T, \\ \rho_n &= (1 + \mu)\rho_m \eta, \quad \eta = (\rho_m - \rho_n)/\rho_m, \quad u_r = u_*, \end{aligned} \quad (1)$$

где W — скорость реакции; c — теплоемкость; λ — коэффициент теплопроводности системы; p — давление; T — температура; ρ — плотность; q — тепловой эффект реакции; u_r — линейная скорость горения; u_* — скорость подачи твердого реагента и скорость фильтрации; $u = u_\phi + u_r$; k_ϕ и m — соответственно коэффициенты фильтрации и пористости; R_r — газовая постоянная; индексы m и n относятся к твердому реагенту и продукту, а индексы n и k — к начальному и конечному состояниям,

Систему уравнений (1) дополним соотношением, определяющим зависимость скорости химического превращения от температуры, давления и полноты выгорания твердого реагента

$$W = z f(\eta) p^\nu \exp(-E/RT). \quad (2)$$

Здесь E — энергия активации; R — универсальная газовая постоянная; $f(\eta)$ — функция выгорания [$f(\eta) = (\eta_0 + \eta)^{-n}$ при $\eta \leq 1$ и $f(\eta) = 0$ при $\eta \geq 1$]; z , n , ν , η_0 — кинетические коэффициенты.

Рассмотрим реактор с герметическим бункером на выходе и фиксированной температурой реагентов на выходе. В этом случае граничные условия принимают вид

$$\begin{aligned} x = -x_{пл}, \quad \eta = 0, \quad T = T_n, \quad p = p_n, \\ x = L - x_{пл}, \quad dp/dx = dT/dx = 0, \quad p_n(1 - \eta_n) = 0, \end{aligned} \quad (3)$$

где L — длина реактора; $x_{пл}$ — расстояние от входного сечения до зоны горения.

Интегрирование системы (1), (2) с граничными условиями (3) при обычных допущениях теории горения и использовании развитого в работах [1, 2] подхода к анализу структуры течения приводит к следующей системе алгебраических соотношений для реакции нулевого порядка ($n = 0$):

$$\begin{aligned} \text{Re} \left(\frac{u_r}{u_*} \right)^2 &= \frac{2 \text{Da} (1 + \beta \Theta_K)^2 \exp \left(\Pi \pi_K^2 + \frac{\Theta_r}{1 + \beta \Theta_K} \right)}{\gamma \Pi^{v/2} (1 + \tau \eta_K)^2 (\Theta_r - \Theta'_n)^2} \Gamma(1 + v/2, \Pi \pi_K^2), \\ \pi_K^2 &= 1 - \frac{\eta_K}{N} \left(\frac{u_r}{u_*} \right) \xi_{отр}, \\ \Theta_r &= \eta_K / \gamma (1 + \tau \eta_K), \\ \Theta'_n &= - \ln \left\{ 1 - \frac{2 \text{Da} N (1 - \pi_K^{2+v})}{\gamma (2 + v) \eta_K (1 + \tau \eta_K) \left(\frac{u_r}{u_*} \right)^2} \right\}, \\ \xi_{пл} &= \xi_{пр} + \xi_{отр}, \end{aligned} \quad (4)$$

где $\Theta = E/RT_n^2 \cdot (T - T_n)$; $\pi_K = p_K/p_n$; $\xi = x/L$; $\gamma = c_m RT_n^2/qE$; $\beta = RT_n/E$; $\tau = \mu c_v/c_m$; $\Pi = \text{Re} \cdot N / \gamma (1 + \beta \Theta_K)^2$; $\Gamma(1 + v/2, \Pi \pi_K^2)$ — неполная гамма-функция второго рода; $\text{Re} = \rho_{мн} u_* c_m L / \lambda$ — число Пекле; $\text{Da} = z p_n^v L \exp(-E/RT_n) / \rho_{мн} u_*$ — число Дамкелера; $N = k_{\phi} \rho_n p_n / 2 \mu \rho_{мн} u_* L$ — параметр, характеризующий фильтрационное сопротивление реактора; $\xi_{отр}$, $\xi_{пр}$ — протяженность зон индукционного разогрева в канале и прогрева в волне горения; Θ'_n — температура в конце индукционной зоны.

В режиме отрыва, когда горению в канале реактора предшествует процесс индукционного разогрева, $\Theta_K \simeq \Theta_r$, а $\xi_{пр} \simeq \left[(1 + \tau \eta_K) \frac{u_r}{u_*} \text{Re} \right]^{-1}$. В режиме горения, когда волна располагается непосредственно у входа в реактор, $\xi_{отр} = \Theta'_n = 0$, $\xi_{пр} = \left[(1 + \tau \eta_K) \frac{u_r}{u_*} \text{Re} \right]^{-1} \ln \frac{\Theta_r}{\Theta_r - \Theta_K}$.

Воспользуемся полученными соотношениями для определения в параметрической плоскости чисел Re и Da областей существования различных режимов протекания реакции. Из (4) следует, что при $u_r = u_*$ неполное превращение твердого реагента возможно лишь при $N < 1$. В этом случае волна горения располагается на расстоянии от входного сечения, большем некоторого критического $\xi_{отр} = N$, отвечающего переходу от режима полного к режиму неполного выгорания ($\pi_K = 0$, $\eta_K = 1$).

Очевидно, что область существования режима отрыва с полным превращением твердого реагента ограничивается, с одной стороны, переходом к режиму горения при $\xi_{отр} = 0$, а с другой — переходом в режим неполного выгорания при $\xi_{отр} = N$. Подстановка этих соотношений в уравнения (4) определяет соответственно верхнюю (кривая 1 на рис. 1)

$$Pe = \frac{2 Da (1 + \beta \Theta_r)^2 \exp \left(\Pi + \frac{\Theta_r}{1 + \beta \Theta_r} \right)}{\gamma \Pi^{v/2} (1 + \tau)^2 \Theta_r^2} \Gamma(1 + v/2, \Pi)$$

и нижнюю (кривая 2)

$$Pe = \frac{2 Da (1 + \beta \Theta_r)^2 \exp \left(\frac{\Theta_r}{1 + \beta \Theta_r} \right)}{\gamma \Pi^{v/2} (1 + \tau)^2 (\Theta_r - \Theta_n')^2} \Gamma(1 + v/2)$$

границы режима отрыва при $\eta_k = 1$.

Другим предельным состоянием является режим, при котором волна горения находится на выходе из реактора, т. е. $\xi_{отр} = 1$, $\eta_k = N$. Отвечающая этому случаю граница режима отрыва в параметрической форме определяется следующей зависимостью (см. рис. 1, 3)

$$Pe = \frac{2 Da (1 + \beta \Theta_r)^2 \exp \left(\frac{\Theta_r}{1 + \beta \Theta_r} \right)}{\gamma \Pi^{v/2} (1 + \tau N)^2 (\Theta_r - \Theta_n')^2} \Gamma(1 + v/2).$$

В реакторе конечной длины высокотемпературные режимы горения и отрыва могут самопроизвольно установиться в том случае, когда за время пребывания в реакторе активная смесь успеет самовоспламениться. При этом критическое условие воспламенения определяется равенством адiabатической длины индукции и длины реактора, т. е. $\xi_{инд} = 1$. Принимая во внимание при интегрировании уравнения энергии, что в процессе индукционного разогрева реагирующая смесь находится большую часть времени при низкой температуре и что самовоспламенение на конце реактора завершается при $\eta_k = N$, получим

$$Da_1 = (2 + v)N[1 - \exp(-\Theta_r)]/2\Theta_r.$$

Аналогичным образом можно определить число Da , отвечающее самовоспламенению в переходном сечении $\xi_{пл} = N$, где $\pi_k = 0$, $\eta_k = 1$

$$Da_2 = (2 + v)[1 - \exp(-\Theta_r)]/2N\Theta_r.$$

Вертикали $Da_1 = 0,019$ и $Da_2 = 0,05$ (см. рис. 1, 4 и 5), являющиеся соответственно асимптотами кривых 3 и 2, делят параметрическую плоскость на три зоны, в которых самовоспламенение отсутствует ($Da < Da_1$), происходит при $\eta_k = 1$ ($Da > Da_2$) или при $\eta_k < 1$ ($Da_2 > Da > Da_1$). Линии 1–5 разбивают параметрическую плоскость $Pe-Da$ на ряд зон, отличающихся закономерностями протекания процесса.

В области I, расположенной ниже кривой 1, выполняется неравенство $u_* < u_{r0}$ и, следовательно, возможно существование режима горения. Область II, заключенная между линиями I

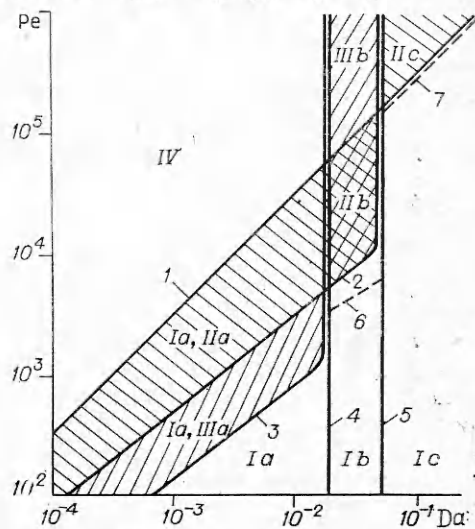


Рис. 1. Области существования стационарных режимов; $n=0$, $v=0,5$, $\gamma=0,01$, $\beta=0,04$, $\tau=1$, $N=0,5$.

¹ $u_{r0} = \lim u_r(\xi_{отр})$ при $\xi_{отр} \rightarrow 0$.

($\xi_{отр} = 0$) и 2 ($\xi_{отр} = N$), отвечает режиму отрыва при $\eta_k = 1$, а область III между линиями 2 и 3 ($\xi_{отр} = 1$) — режиму отрыва при $\eta_k < 1$. В зоне IV, где выполняется неравенство $u_* > u_{г0}$, волна горения не может находиться вблизи входа в реактор и выносится потоком вещества за его пределы. При этом в канале устанавливается низкотемпературный режим индукционного разогрева, не завершающийся самовоспламенением системы. Так как при $Da > Da_1$ в реакторе возможно самовоспламенение, то в областях Ib, Ic; IIb, IIc; IIIb стационарные высокотемпературные состояния могут возникнуть самопроизвольно без постороннего поджигания.

Из рис. 1 следует, что в некотором диапазоне чисел Re и Da области I—III частично перекрывают друг друга, что свидетельствует о многозначности возможных стационарных состояний. Так, в областях IIa и IIIa наряду с режимом горения возможно существование режимов отрыва соответственно при $\eta_k = 1$ и $\eta_k < 1$. В области IIb возможно существование всех трех высокотемпературных состояний.

Более подробную информацию об особенностях процессов в реакторе можно получить, воспользовавшись методом динамического баланса [1], состоящим в определении по уравнениям (4) функции $u_r/u_* \cdot (\xi_{пл})$ и точек ее пересечения с линией стационарных состояний ($u_r/u_* = 1$). Расчеты показывают, что при отсутствии самовоспламенения в канале реактора ($Da < Da_1$) профили скорости волны горения носят немонотонный характер. При возрастании $\xi_{пл}$ величина u_r/u_* сначала растет, а затем убывает (рис 2, а). Такое поведение кривой $u_r/u_* \cdot (\xi_{пл})$, объясняется тем, что при малых значениях $\xi_{пл}$ (режим горения) удаление волны от входа в реактор ведет к снижению теплопотерь в зоне реакции и способствует росту скорости горения. Наоборот, увеличение фильтрационного сопротивления холодной части реактора при последующем возрастании $\xi_{пл}$ (режим отрыва) снижает интенсивность химической реакции в волне горения и тем самым уменьшает скорость ее распространения.

Если в канале возможно воспламенение ($Da > Da_1$), при приближении к точке воспламенения скорость волны горения вследствие интенсификации саморазогрева перед ее фронтом возрастает, и кривая $u_r/u_* \cdot (\xi_{пл})$ приобретает характерную S-образную форму (см. рис. 2, б). Это определяет возможность существования при $Da > Da_1$ гистерезисных явлений, состоящих в резком изменении при варьировании числа Re не только конечной температуры и местоположения волны горения, как в коротком реакторе [2], но и полноты выгорания твердого реагента (рис. 3). Область существования гистерезиса при $Da_2 > Da > Da_1$ заключена между линиями 1 и 6 (см. рис. 1), а при $Da > Da_2$ — между линиями 1 и 7.

Так как в широком диапазоне изменения параметров Da и Re стационарные состояния в канале реактора неоднозначны, представляет интерес оценка устойчивости найденных режимов. Поскольку высокотемпературные превращения в канале реактора (за исключением режимов идеального вытеснения) осуществляются в волне горения, то устойчивость

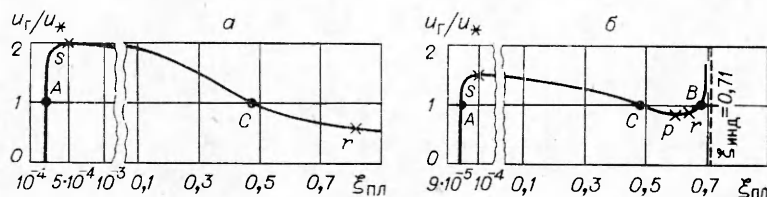


Рис. 2. К расчету стационарных состояний реактора (r — промежуточное состояние ($\eta_k = 1$, $\eta_k = 0$), s и p — точка максимума и минимума).

а) $Da = 0.005$, $Pe = 4 \cdot 10^3$; б) $Da = 0.03$, $Pe = 4 \cdot 10^4$.

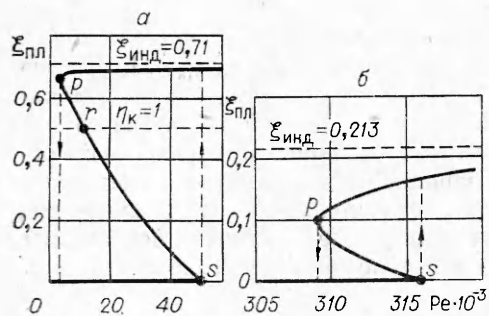


Рис. 3. Местоположение стационарной волны горения в канале в зависимости от числа Пекле при $Da=0,03$ (а) и $0,1$ (б).

а влияние малых возмущений исследовать методом, развитым для оценки локальной устойчивости фронта пламени в однородной безграничной среде².

Действительно, рассматривая ход кривой $u_r/u_* \cdot (\xi_{пл})$ в окрестности точек A , B и C , отвечающих стационарным состояниям (см. рис. 2), легко убедиться, что любые малые отклонения фронта от положения равновесия в точке C , где $\frac{d}{d\xi_{пл}} \left(\frac{u_r}{u_*} \right) < 0$, приводят к дальнейшему уходу волны горения от стационарного состояния. Точки A и B , где $\frac{d}{d\xi_{пл}} \left(\frac{u_r}{u_*} \right) > 0$, напротив, являются устойчивыми. Что касается роли нестационарных возмущений в окрестности фронта, то, как показано в [3], они при определенных значениях физико-химических характеристик среды также могут привести к развитию неустойчивости фронта горения.

При этом реализуются, очевидно, лишь те стационарные состояния, которые устойчивы в обоих упомянутых выше случаях.

Поступила в редакцию
6/XI 1980

ЛИТЕРАТУРА

1. Г. С. Сухов, Л. П. Ярин. ФГВ, 1979, 15, 1.
2. А. А. Бутаков, Э. И. Максимов, К. Г. Шкадинский. К теории химических реакторов вытеснения. Препринт, Черноголовка, 1976.
3. Г. С. Сухов, Л. П. Ярин. ФГВ, 1980, 16, 3.

НЕСТАЦИОНАРНОЕ РАСПРОСТРАНЕНИЕ ДВУХСТАДИЙНОЙ ПОСЛЕДОВАТЕЛЬНОЙ РЕАКЦИИ В К-ФАЗЕ

В. С. Берман, Ю. С. Рязанцев, В. М. Шевцова
(Москва)

Основные закономерности стационарного распространения плоского фронта горения в газе при протекании двухстадийной экзотермической последовательной реакции теоретически с использованием ЭВМ исследо-

² Вообще говоря, такой подход может быть применен к анализу устойчивости высокотемпературных режимов любого реактора вытеснения.