

УДК 536.46 + 534.22.2+621.762.212.001

## ВОЗНИКНОВЕНИЕ АКУСТИЧЕСКОЙ НЕУСТОЙЧИВОСТИ В ВОДОРОДО-ВОЗДУШНЫХ СМЕСЯХ В ЗАМКНУТОМ РЕАКТОРЕ ПРИ ЦЕНТРАЛЬНОМ ИНИЦИИРОВАНИИ ИСКРОВЫМ РАЗРЯДОМ

И.М.Набоко<sup>1</sup>, Н.М.Рубцов<sup>2</sup>, Б.С.Сеплярский<sup>2</sup>, В.И.Черныш<sup>2</sup>, Г.И.Цветков<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Москва, Объединенный Институт высоких температур РАН,

<sup>2</sup> Московская область, г. Черноголовка, Институт Структурной Макрокинематики и Проблем Материаловедения РАН

idnaboko@yandex.ru, nmrubtss@mail.ru

### Аннотация

На примере горения водородо-воздушных смесей (30% и 15% H<sub>2</sub>) показано, что обнаруженные неоднородности свечения могут быть связаны с наличием акустических волн. Установлено, что скорости распространения пламени в стехиометрической водородо-воздушной смеси при центральном инициировании искрой не зависят от материала внутренней поверхности реактора (нержавеющая сталь, TiO<sub>2</sub>, Ta, Pt), но зависят от формы внутренней поверхности реактора.

### OCCURRENCE OF ACOUSTIC INSTABILITY IN HYDROGEN-AIR MIXTURES IN THE CLOSED REACTOR AT THE CENTRAL SPARK INITIATION

By the example of combustion of hydrogen-air mixtures containing 30 % and 15 % of hydrogen it was shown that detected inhomogeneities in light emission arising after a contact of a flame front with the walls of cylindrical reactor can be correlated with acoustic waves. It is established that flame velocities in stoichiometric hydrogen-air mixtures at central spark initiation do not depend on the material of inner reactor surface but on its shape.

### Введение

Как известно, горение является источником звуковых колебаний. Звук, генерируемый горением, играет важную роль при обеспечении стабильного функционирования двигателей, турбин и т.д. [1], поскольку, в частности, интенсивные колебания давления приводит к нежелательным дополнительным нагрузкам на стенки устройства сгорания. С другой стороны, известно [2], что в колеблющихся потоках происходит существенное ускорение различных тепломассообменных процессов (смесеобразования, испарения, теплопередачи от газа к стенкам, теплообмена при взаимодействии потока с нагретыми телами и пр.), улучшается агломерация частиц и коагуляция аэрозолей, кроме того, при вибрационном горении понижается уровень NO<sub>x</sub> [3].

Акустические колебания при горении вызываются неустойчивостями, возникающими при распространении фронта пламени [4]. Эти неустойчивости проявляются в процессах горения в различных формах и могут быть классифицированы следующим образом. Термодиффузионная неустойчивость наблюдается в пламенах, в которых скорости передачи тепла и диффузии различаются, т.е.  $Le \neq 1$  (Число Льюиса  $Le = D/\chi$ , где  $D$  – коэффициент диффузии компонента, определяющего процесс горения,  $\chi$  – коэффициент температуропроводности) [5] Такая неустойчивость приводит, например, к колпачковому характеру распространения пламен в горючих смесях, бедных водородом [6]. Гидродинамическая неустойчивость определяется разницей в плотностях сгоревшего и несгоревшего газа, связанной с тепловым расширением продуктов реакции [4] и также в

определенных условиях может привести к возникновению ячеистых пламен [7]. Вызванная горением термоакустическая неустойчивость определяется резонансной связью между нестационарным режимом горения и акустическими модами реактора [4]. Нестационарное выделение тепла приводит к генерации акустических колебаний, которые, отражаясь от стенок реактора, взаимодействуют с процессом горения. Поскольку горение чувствительно к изменению условий течения газа, то, если фаза между акустическими колебаниями и нестационарным горением удовлетворяет определенным условиям, может возникнуть обратная связь и, соответственно, нестабильность горения. Критерий возникновения этой нестабильности предложен Релеем [8] и заключается в том, что акустические колебания поддерживаются, если максимум тепла сообщается колеблющемуся газу в момент его максимального сжатия. В [9] эта гипотеза формулируется так: если фазовый сдвиг между колебаниями давления и колебаниями скорости подвода тепла по абсолютному значению меньше  $\pi/2$ , колебания возбуждаются; если фазовый сдвиг лежит в пределах от  $\pi/2$  до  $\pi$ , колебания гасятся.

Колебания давления, сопровождающиеся звуком, при горении в замкнутых сосудах связывают обычно с термоакустическими неустойчивостями, возникающими при самовоспламенении, детонации и т.д. [10]. До сих пор природа этого явления до конца неясна [10]. В [11] регистрировали колебания звукового диапазона в богатых смесях пентана с воздухом, однако в таких же смесях бензола с воздухом колебания не наблюдались. В [12] регистрировали звуковые колебания при горении водородо-воздушной смеси с  $\phi = 0.42$ , однако при горении водородо-воздушной смеси ( $\phi = 0.60$ ) звуковых колебаний не было. На возможность самовоспламенения в процессе распространения пламени во взрывных бомбах указывали в [13]. Достаточно высокая скорость изменения тепловыделения при горении при таком самовоспламенении или при ускорении пламени [5] может индуцировать осцилляции давления и термоакустические осцилляции, которые могут в свою очередь привести к возрастанию скорости тепловыделения. Опыты, проведенные в [10], показали, что при воспламенении богатых смесей изооктана и бедных смесей водорода с воздухом возникают сильные колебания давления. Возникновение акустических колебаний в [10] связывали с развитием гидродинамической неустойчивости при распространении пламен. Однако при горении стехиометрической смеси водорода с воздухом осцилляции давления в [10] не наблюдали, хотя известно, что горение стехиометрической смеси водорода с воздухом в цилиндрических реакторах сопровождается характерным звуком [12]. В литературе для моделирования термоакустических явлений используют анализ неоднородного волнового уравнения для акустического давления с термоакустическим источником [3,14,15]:

$$\frac{1}{c_0^2} \frac{D^2 P(x, y, z, t)}{D t^2} - \nabla^2 P(x, y, z, t) = \frac{\partial}{\partial t} \left[ \frac{\gamma - 1}{c_0^2} Q_t \right] \quad (1)$$

где  $c_0$  - скорость звука,  $P$  - акустическое давление,  $\gamma$  - отношение теплоемкостей при постоянном давлении и постоянном объеме,  $Q_t$  - скорость тепловыделения [Вт/м<sup>3</sup>].

Если предположить механизм обратной связи в виде, представляющем  $Q_t$  как линейную функцию от  $P$  [14], то можно показать [15], что уравнение (1) представляет собой акустический осциллятор, который возбуждается или затухает в зависимости от того, выполняется критерий Рэлея или нет.

В настоящей работе приведены результаты экспериментов по наблюдению акустических нестабильностей, возникающих при воспламенении смесей водорода с воздухом в цилиндрической бомбе постоянного объема с центральным поджигом.

## Экспериментальная часть

Опыты проводили со стехиометрическими смесями водорода с воздухом при общем атмосферном давлении и начальной температуре  $T_0 = 298\text{K}$ .

Эксперименты проводили в горизонтальном расположенном цилиндрическом реакторе из нержавеющей стали длиной 15 см и диаметром 13 см. Реактор был снабжен окном из оптического кварца на одном из торцов. В центре реактора располагали электроды искрового зажигания, расстояние между которыми составляло 0.5 мм. С целью изменения материала и формы внутренней поверхности реактора в различных опытах в реактор вводили титановую фольгу толщиной 0.1 мм, покрывавшую всю внутреннюю боковую поверхность реактора, танталовую фольгу толщиной 0.1 мм, покрывавшую  $\frac{1}{4}$  внутренней боковой поверхности реактора, платиновую фольгу 12x6 см толщиной 0.3 мм. В ряде экспериментов в реактор вводили титановую фольгу толщиной 0.1 мм, покрывавшую  $\frac{1}{3}$  внутренней боковой поверхности реактора с тремя продольными гофрами длиной 12 см, выступавшими вглубь реактора на 1 см и расположенными на расстоянии 4 см друг от друга. Укажем, что введение Ti фольги можно рассматривать как обработку внутренней поверхности реактора двуокисью титана  $\text{TiO}_2$ , поскольку металлический титан всегда покрыт тонким слоем оксида. В ряде экспериментов кино съемку проводили через фильтры HC-1 для уменьшения интенсивности засветки матрицы камеры. С этой же целью в отдельных опытах оптическое стекло покрывали тонким слоем талька.

Эксперименты проводили в следующей последовательности. В реактор напускали при необходимости  $\text{CCl}_4$ , затем водород, затем добавляли воздух до атмосферного давления так что содержание  $\text{H}_2$  в смеси составляло 30% и 15%, выдерживали 15 мин в реакторе для полноты перемешивания и затем проводили инициирование искрой. Регистрацию воспламенения и распространения ФП осуществляли через оптическое окно цветной скоростной кинокамерой Casio Exilim F1 Pro (частота кадров – 60 - 1200  $\text{с}^{-1}$ ). Полученный видеофайл записывали в память компьютера и затем проводили его покадровую обработку. Для визуализации водородного пламени в смесь добавляли 2-3% четыреххлористого углерода ( $\text{CCl}_4$ ). Отметим, что добавка менее 3 %  $\text{CCl}_4$  для данной смеси является инертной и не проявляет заметного ингибирующего действия на горение водорода с воздухом [12].

Изменение давления в процессе горения регистрировали с помощью пьезоэлектрического датчика, сигнал с которого подавали через АЦП на компьютер. Перед каждым опытом реактор откачивали с использованием форвакуумного насоса 2НВР-5Д. Давление в реакторе также контролировали образцовым вакуумметром. Газы  $\text{H}_2$ , четыреххлористый углерод  $\text{CCl}_4$ , использовали марки ХЧ, чистота использованных фольг составляла: Ti – 99.9%, Ta – 99.99%, Pt – 99.99%.

## Результаты и обсуждение эксперимента

Проведенные эксперименты показали, что особенности свечения при догорании стехиометрической водородо-воздушной смеси в условиях центрального инициирования искрой не зависят от материала внутренней поверхности реактора (нержавеющая сталь,  $\text{TiO}_2$ , Ta, Pt) но зависят от ее формы. Нормальная скорость сферического пламени также не зависит от материала поверхности. Эксперименты показали также, что акустические колебания при горении водородо-воздушных смесей в цилиндрическом реакторе при атмосферном давлении возбуждаются иначе, чем в сферическом реакторе.

На Рис. 1 приведены результаты кино съемки процесса распространения сферического фронта стехиометрического водородо-воздушного пламени с частотой кадров 600  $\text{с}^{-1}$ . На Рис. 1а представлены кадры развития фронта пламени (ФП) в стехиометрической водородо-воздушной смеси, содержащей + 5%  $\text{CCl}_4$ . Видно, что фронт развивающегося пламени имеет сферическую форму без возмущений. На Рис. 1б представлены результаты кино съемки процесса распространения пламени в смеси 15%  $\text{H}_2$ +воздух + 3%  $\text{CCl}_4$ . Видно, что ФП

состоит из мелких ячеек, при этом в процессе его распространения возникают длинноволновые возмущения. На Рис.2 приведены осциллограммы изменения давления при воспламенении горючих смесей 30%Н<sub>2</sub>+воздух и 15%Н<sub>2</sub>+воздух+ 3% ССl<sub>4</sub>. Из Рис.2 видно, что акустические колебания возбуждаются после достижения максимума давления, причем в 15% смеси эти колебания возбуждаются позже, чем в стехиометрической смеси в отличие от [10]. В работе [10] акустические колебания в сферическом реакторе наблюдались лишь в бедных водородо-воздушных смесях и до достижения максимума давления, а в смесях, близких по составу к стехиометрическим, не наблюдались вовсе (Рис.3 [10]).

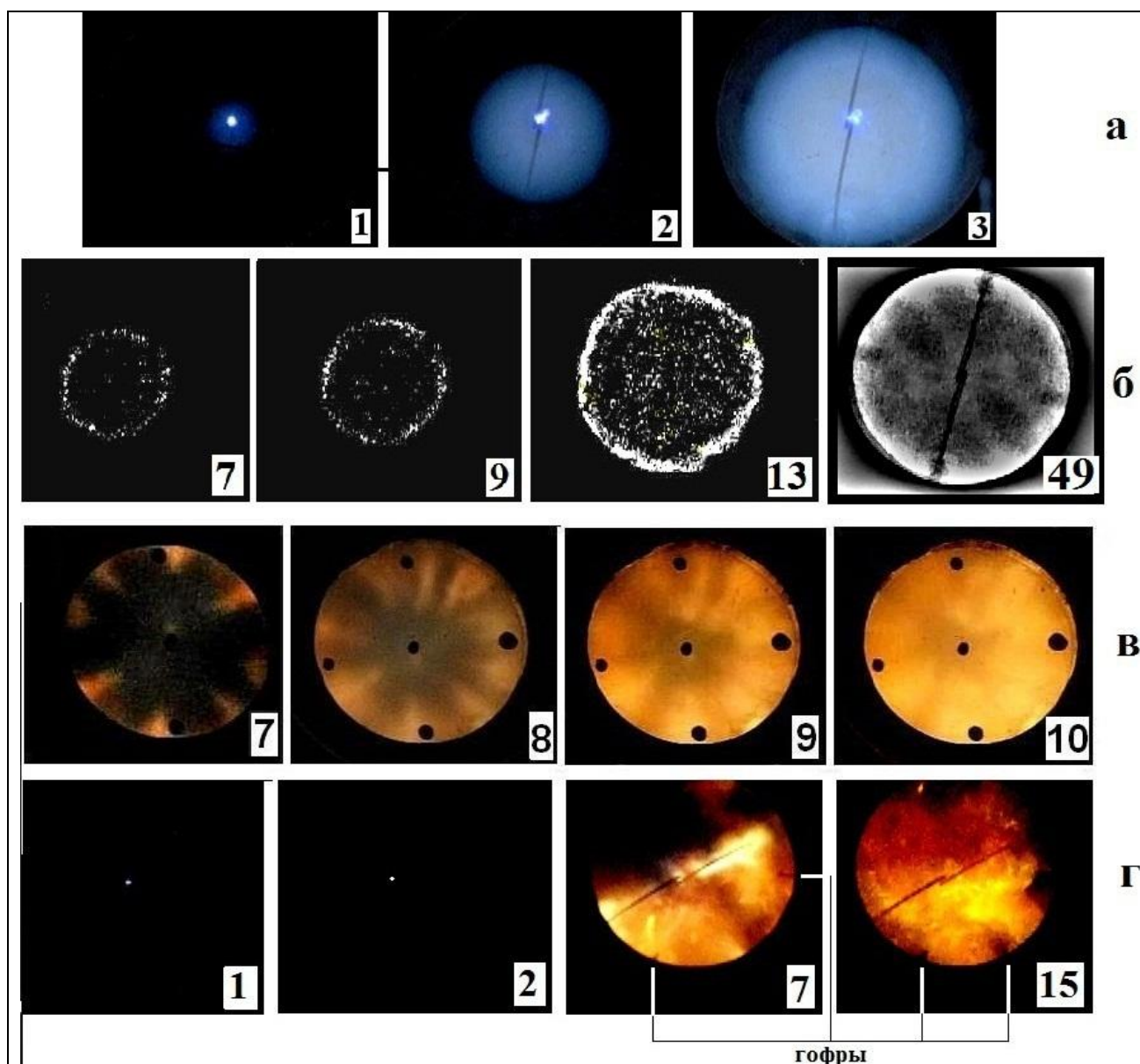


Рис.1. Киносъемка процесса распространения сферического фронта пламени. Цифра на кадре соответствует номеру кадра при съемке,  $T_0 = 298\text{K}$ ,  $E_0 = 1.5 \text{ Дж}$ .  
 а –  $(\text{H}_2+\text{воздух})_{\text{стех}} + 5\% \text{ ССl}_4$ , частота кадров  $600 \text{ с}^{-1}$   
 б –  $14.5\% \text{ H}_2 + \text{воздух} + 3\% \text{ ССl}_4$ , частота кадров  $300 \text{ с}^{-1}$   
 в –  $(\text{H}_2+\text{воздух})_{\text{стех}}$ , фильтр НС-1, оптическое окно обработано тальком, поверхность – нержавеющая сталь, частота кадров  $600 \text{ с}^{-1}$ ,  
 г -  $(\text{H}_2+\text{воздух})_{\text{стех}}$ , 2 фильтра НС-1, Ti фольга с гофрами (отмечены на кадрах 7 и 15) расположена в нижней части реактора, частота кадров  $600 \text{ с}^{-1}$ .

Из Рис. 1б видно, что вызванные термодиффузионной неустойчивостью [5,6] возмущения сферического ФП в бедной смеси, горящей в цилиндрическом реакторе, развиваются до касания фронтом пламени боковых стенок реактора. Однако, эти возмущения не приводят к возбуждению акустических колебаний во время распространения сферического ФП. Очевидно, возмущения не успели развиться и обеспечить возбуждение акустических колебаний в связи с меньшим диаметром реактора, использованного в данной работе (13 см) по сравнению с [10], в которой диаметр сферической бомбы составлял 38.4 см (см. Рис.3 [10], кривая  $\phi = 0.4$ ). В нашем реакторе термоакустические неустойчивости, как видно из Рис. 1 а,б и 2, возбуждаются заметно позже момента касания фронтом пламени боковых стенок реактора. Полученные данные являются аргументом в пользу существования масштабного эффекта при возникновении данного типа неустойчивости.

Отметим, что в [7] обнаружены ячеистые пламена, возникающие в разбавленных стехиометрических смесях углеводород-воздух после касания фронтом пламени стенок цилиндрического реактора и обусловленные возникновением газодинамической неустойчивости. Это означает, что природа наблюдаемых нами колебаний давления (Рис.2) также может быть обусловлена газодинамической неустойчивостью, возникающей после касания пламенем боковых стенок реактора [7], поскольку обе неустойчивости – газодинамическая и акустическая - экспериментально наблюдаются в одном и том же временном интервале. Проверка этого предположения требует дальнейшего исследования.

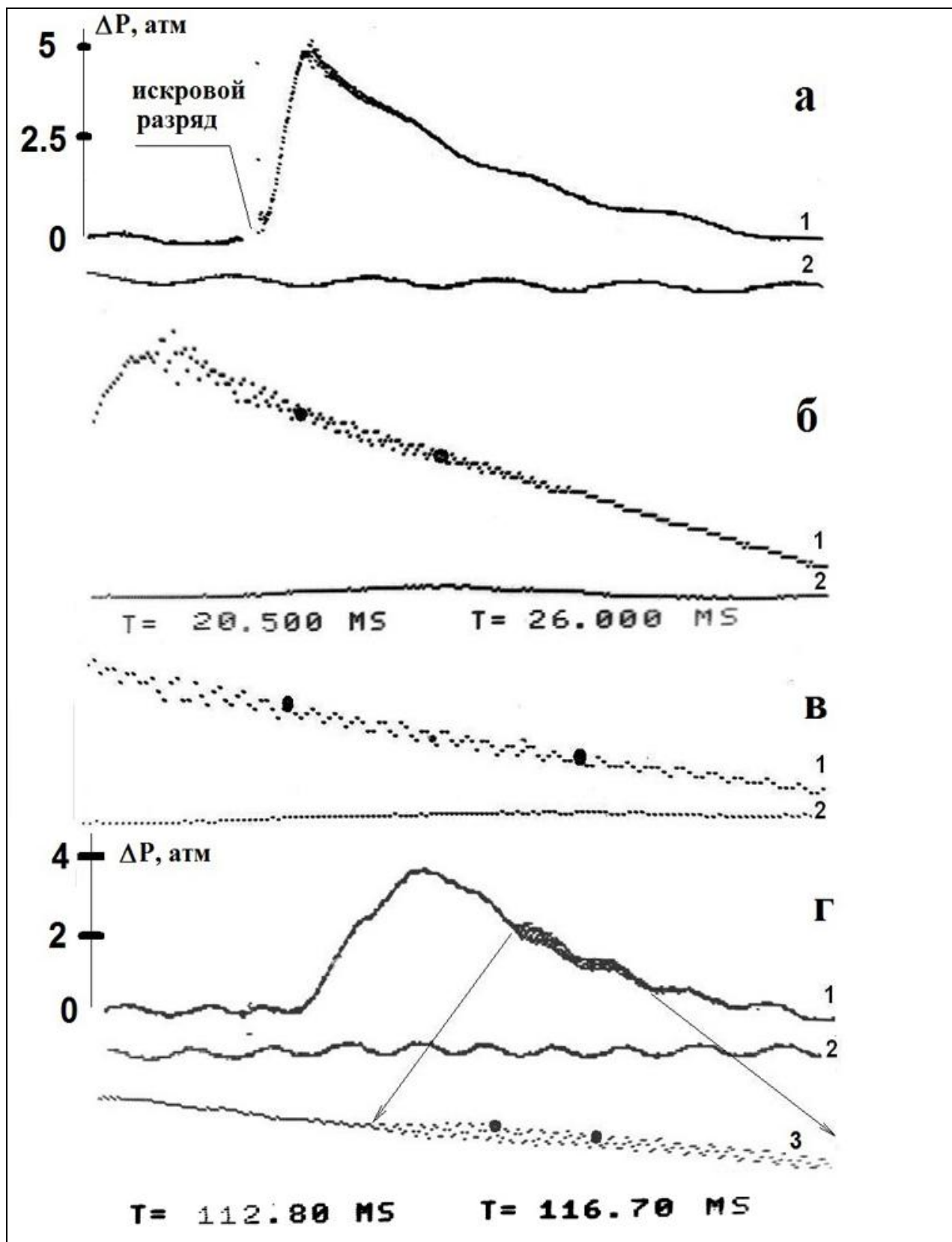


Рис.2. Осциллограммы изменения давления при воспламенении горючих смесей, 1 – сигнал при инициированном воспламенении, 2 – сигнал сравнения, жирные точки – временной интервал:

а, б, в –  $(\text{H}_2 + \text{воздух})_{\text{стех}}$ , различные временные интервалы;

г -  $15\% \text{H}_2 + \text{воздух} + 3\% \text{CCl}_4$ , 3 – растянутый временной интервал.

На Рис. 1 в,г и Рис. 3 а,б представлены результаты видеосъемки горения стехиометрической водородо-воздушной смеси в интервале времени, соответствующем возникновению и развитию осцилляций давления для различных материалов поверхности реактора (нержавеющая сталь,  $\text{TiO}_2$  с гофрами, Рис.1; Pt и Ta, Рис.3). На рисунках видно, что после касания пламенем боковой стенки реактора догорание горючей смеси происходит неравномерно в вертикальном сечении реактора, при этом симметричная картина догорания соответствует реализации продольных колебаний газа в реакторе. Это означает, что метод скоростной киносъемки позволяет визуализировать продольные колебания догорающего газа. Из этих рисунков видно, что в случае гладкой внутренней поверхности реактора наблюдаемый характер догорания горючей смеси (ср. кадр 8 Рис. 1в, кадр 6 Рис. 3а, кадр 8 Рис. 3б) не зависит от материала поверхности реактора.

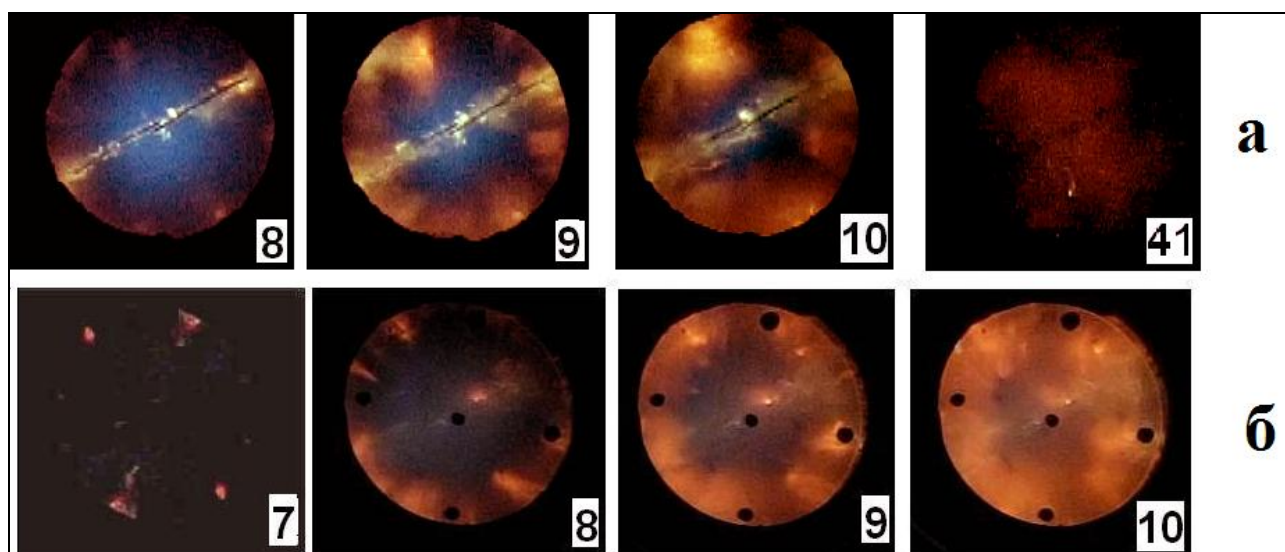


Рис. 3. Киносъемка процесса распространения сферического фронта пламени с частотой кадров  $600 \text{ с}^{-1}$ . Цифра на кадре соответствует номеру кадра при съемке,  $T_0 = 298\text{K}$ ,  $E_0 = 1.5$  Дж.

а –  $(\text{H}_2 + \text{воздух})_{\text{стех}}$ , 1 фильтр НС-1, Pt фольга расположена в нижней части реактора,

б –  $(\text{H}_2 + \text{воздух})_{\text{стех}}$ , 2 фильтра НС-1, Ta фольга расположена в нижней части реактора.

В следующей серии экспериментов были обеспечены неоднородные течения газа путем введения в реактор титановой фольги с тремя продольными гофрами, выступавшими вглубь реактора на 1 см (см экспериментальную часть). Было установлено (Рис. 1г, фольга  $\text{TiO}_2$  с гофрами), что в случае негладкой внутренней поверхности реактора наиболее интенсивное догорание горючей смеси происходит в области неоднородных течений газа, а именно в области гофров.

Представляет интерес сопоставить частоты осцилляций, наблюдаемые непосредственно на осциллограммах давления (Рис.2) и собственные частоты продольных колебаний наполненного газом цилиндра (Рис.1в, Рис.3), наблюдаемые визуально по различной пространственной интенсивности догорания горючей смеси.

Для определения продольных мод цилиндрического реактора, достаточно положить правую часть уравнения (1) равной нулю. Полагая  $P(x,y,z,t) = \exp(i \omega t) v(x,y,z)$  получим хорошо известное [15] уравнение на собственные значения:

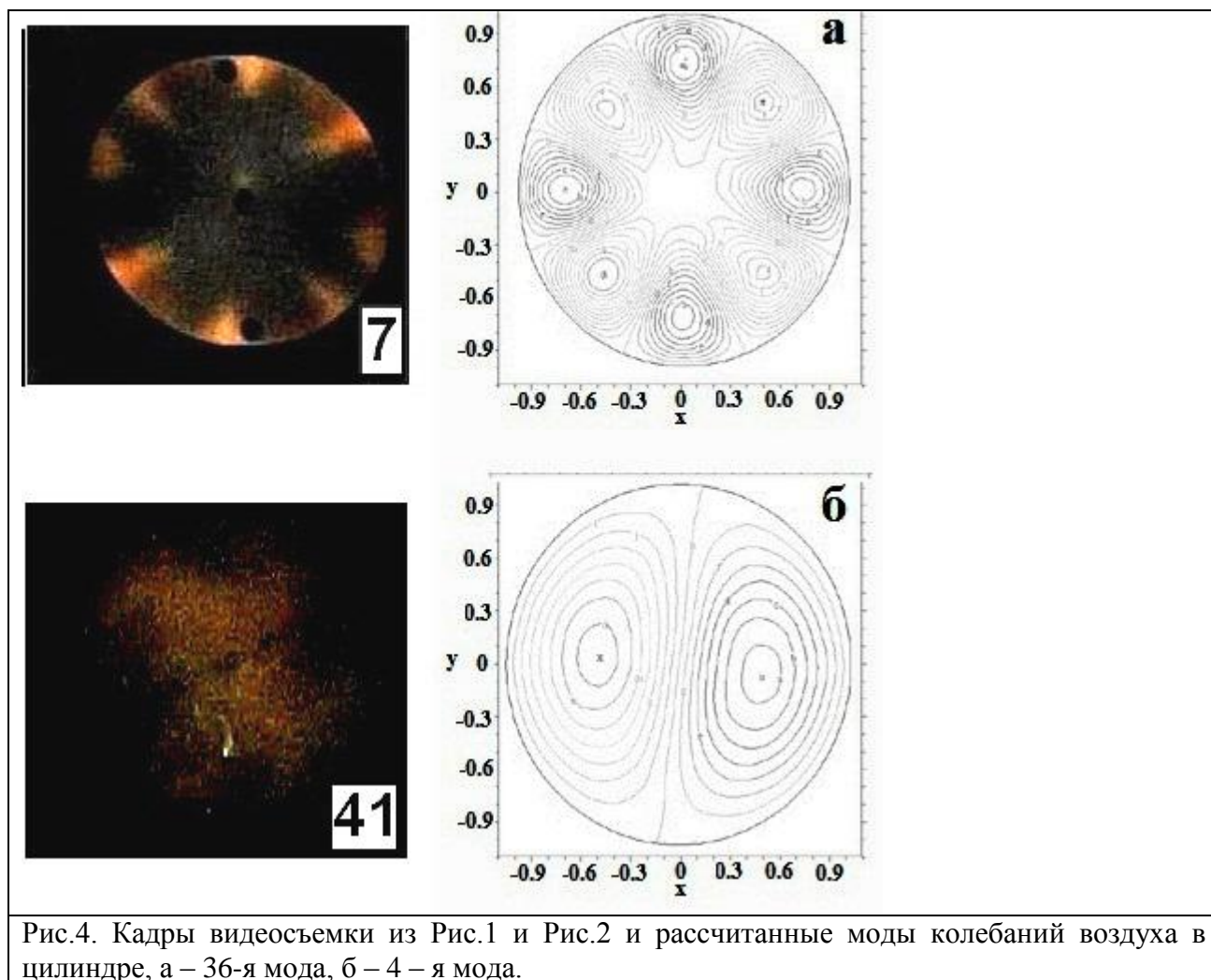
$$\nabla^2 v(x,y,z) = -\frac{\omega^2}{c_0^2} v(x,y,z)$$

(2)

где  $W$  - частота моды колебаний газа.

Решение этой задачи методом конечных элементов для собственных частот продольных колебаний заполненного инертным газом цилиндра с фиксированными стенками и высотой, равной диаметру, осуществляли с помощью пакета программ (FlexPDE 6.08, A Flexible Solution System for Partial Differential equations, 1996-2008 PDE Solutions inc. [16]), в которой данная задача фигурирует в качестве примера.

Поскольку горение протекает в условиях, близких к адиабатическим, можно оценить температуру в реакторе в данный момент времени из соотношения  $\frac{\Delta P}{P} = \frac{\Delta T}{T}$  по осциллограмме давления. Из Рис. 2б для момента времени 21 мс  $\Delta P = 4$ ,  $P=1$ , и, соответственно  $\Delta T = 273 \cdot 4 \approx 1000\text{C}$ , для этой температуры  $c_0 \approx 1000$  м/с [17], а для момента времени 27 мс  $\Delta P = 3.5$ ,  $P=1$ , и, соответственно  $\Delta T = 273 \cdot 3.5 \approx 900\text{C}$ ; для этой температуры  $c_0 \approx 900$  м/с [17]. На Рис. 4 представлены кадр видеосъемки 7 из Рис.1 и кадр 41 из Рис.2 и рассчитанные моды колебаний воздуха в цилиндре: 36-я мода и 4-я мода. Видно, что рассчитанные колебательные моды хорошо коррелируют с визуально наблюдаемой картиной догорания для стехиометрической водородо-воздушной смеси.



С учетом длины цилиндра 0.15 м для 36-й моды колебаний получаем  $w = 1.11$  КГц, при  $c_0 = 900$  м/с ( $T \approx 900\text{C}$ ) получаем для 4-й моды  $w = 0.7$  КГц. Из рис. 2б в интервале времени 20.5 мс – 26 мс и рис 2г в интервале времени 112.5 мс – 116.7 мс из осциллограмм давления



получим частоту осцилляций  $\sim 1.9$  КГц, которая согласуется со значением  $\omega = 1.11$  КГц, рассчитанным из уравнения (2) по алгоритму [16]. Из Рис. 2 видно также, что в конце процесса догорания горючей смеси, на конечных участках осциллограмм давления, соответствующих остывающему реактору, частота осцилляций заметно уменьшается и достигает 1 КГц на осциллограмме 3 Рис. 2, что также согласуется с проведенным расчетом для более низкой моды продольных колебаний  $\omega = 0.7$  КГц.

Проведенное выше сопоставление носит иллюстрационный характер и не позволяет, например, интерпретировать более сложный модовый состав колебаний, наблюдаемый для 15% водородо-воздушной смеси (Рис. 1б, кадр 49).

Резюмируем кратко полученные результаты.

На примере горения водородо-воздушных смесей (30% и 15%  $H_2$ ) показано, что метод скоростной киносъемки позволяет визуализировать продольные колебания догорающего газа. Установлено, что особенности распространения пламени в стехиометрической водородо-воздушной смеси при центральном иницировании искрой не зависят от материала внутренней поверхности реактора (нержавеющая сталь,  $TiO_2$ , Ta, Pt) но зависят от степени ее шероховатости. Обнаружено, что термоакустические колебания при горении водородо-воздушных смесей в цилиндрическом реакторе при атмосферном давлении возбуждаются иначе, чем в сферическом реакторе и при этом зависят от размера реактора.

Работа частично поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (проект 10-08-00305а).

## Литература

1. T.C. Lieuwen. Experimental investigation of limit-cycle oscillations // *Journal of Propulsion and Power*, 2002, V.18, P.61-67.
2. Ларионов В.М., Зарипов Р.Г. Автоколебания газа в установках с горением. Казань: Изд-во Казан. гос. техн. ун-та, 2003. 227 С.
3. Kampen, J. F. van, Acoustic pressure oscillations induced by confined turbulent premixed natural gas flames, PhD thesis, University of Twente, Enschede, The Netherlands, March 2006, ISBN 90-365-2277-3, Printed by Febodruk BV, Enschede, The Netherlands.
4. Williams, F. A., *Combustion Theory*, 2nd edition, Addison-Wesley, Redwood City, CA, 1985, 485 P.
5. Я.Б. Зельдович, Г.А. Баренблатт, Д.В. Махвиладзе, А.Б. Либрович, Математическая теория распространения пламени, М., Изд-во АН СССР, 1980, 620 С.
6. Я.Б. Зельдович, Избранные труды, Химическая физика и гидродинамика, п/ред ак. Ю.Б.Харитона, М.: Наука, 1984, 379 С.
7. Nikolai M. Rubtsov, Boris S. Seplyarskii, Kirill Ya. Troshin, Victor I. Chernysh and Georgii I. Tsvetkov, Initiation and propagation of laminar spherical flames at atmospheric pressure // *Mendeleev Commun.*, 2011, V.21, P.218-220.
8. J. W. S. Rayleigh, *The theory of sound*. New York: Dover, 1945.
9. Putnam A.A., Dennis W.R. Organ-pipe oscillations in a burner with deep ports // *JASA*. 1956. Vol.28. P.260-268.
10. Al-Shahrany, A. S. , Bradley, D. , Lawes, M. , Liu, K. and Woolley, R., Darrieus-Landau and thermo-acoustic instabilities in closed vessel explosions // *Combustion Science and Technology*, 2006, V.178, N10, P.1771 -1802.
11. Maxwell, G.B. and Wheeler, R.V., Some flame characteristics of motor fuels // *Ind. Eng. Chem.*, 1928, V.20, 1041–1044.
12. Lewis, B. and von Elbe, G., *Combustion, Flames and Explosions of Gases*, 1987, 3rd ed., Academic Press, Inc., New York.
13. Megalchi, M. and Keck, J.C., Burning velocities of mixtures of air with methanol, isooctane and indolene at high pressure and temperature // *Combust. Flame*, 1982, V.48, P.191–210.
14. Clanet C., Searby G., Clavin P., Primary acoustic instability of flames propagating in tubes: cases of spray and premixed gas combustion *J. Fluid Mech.* , 1999, V. 385, P. 157.

15. Clavin, P. Premixed combustion and gasdynamics. *Ann. Rev. Fluid Mech.*, 1994, V.26, P. 321.
16. G. Backstrom, *Simple Fields of Physics by Finite Element Analysis* (Paperback), GB Publishing (2005), 324 P.
17. И.П.Соловьянова, И.С.Шабунин, Теория волновых процессов. Акустические волны, Екатеринбург: ГОУ ВПО УГТУ-УПИ, ISBN 5-321-00398 X, 2004. 142С.

Статья поступила в редакцию журнала 24 ноября 2011 г.