

## ВОЗМУЩЕНИЯ СТРУКТУРЫ ПЛАМЕНИ, ВЫЗЫВАЕМЫЕ ТЕРМОПАРОЙ. I. ЭКСПЕРИМЕНТ

А. Г. Терещенко<sup>1</sup>, Д. А. Князьков<sup>1</sup>, П. А. Сковородко<sup>2</sup>, А. А. Палецкий<sup>1</sup>,  
О. П. Коробейничев<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Институт химической кинетики и горения СО РАН, 630090 Новосибирск, tereshag@kinetics.nsc.ru

<sup>2</sup>Институт теплофизики им. С. С. Кутателадзе СО РАН, 630090 Новосибирск

При проведении термодарных измерений в пламенах газовых или конденсированных систем принято считать, что благодаря малым размерам термодары возмущения пламени, вносимые термодарой, незначительны. Показано, что эти возмущения могут быть значительными. При измерении температуры в ламинарном пламени метана при атмосферном давлении обнаружено систематическое превышение измеренных температур относительно температуры невозмущенного пламени в области градиента температуры, а также в зоне максимума концентрации радикалов. Проведены измерения этих превышений и анализ причин их возникновения. Ранее в литературе данные эффекты практически не обсуждались.

Ключевые слова: горение, пламя, термодара, возмущения, температура, градиент, метан.

### ВВЕДЕНИЕ

Термодары широко используются при экспериментальном изучении тепловой структуры пламени. Знание температурного профиля позволяет рассчитать скорость тепловыделения в различных зонах пламени [1, 2], установить ведущие стадии процесса горения, необходимые для понимания механизма и разработки модели горения. Измеренный профиль температур используют при моделировании структуры пламени с привлечением сложных механизмов химических реакций [3–5]. Определение тепловой структуры пламени с высокой точностью является одной из важнейших задач в исследовании процессов горения [6]. Микротермодарная методика применяется для исследования структуры пламен как газовых смесей [7–9], так и конденсированных систем (КС) [10–14]. Особенность микротермодарной методики состоит в том, что она позволяет измерять профиль температур как под поверхностью горения КС, так и в непосредственной близости к поверхности горения, что в принципе недоступно при оптических методах. Оптическими методами можно проводить измерения в стабилизированных газовых пламенах на расстояниях не ближе чем  $0.5 \div 1$  мм от поверхности горелки [15]. Поэтому они получили наибольшее применение в разреженных пламенах при

низком давлении [16, 17], где зоны горения значительно шире, чем при атмосферном давлении. В пламенах при атмосферном давлении, где основные процессы горения заканчиваются на расстояниях  $0.5 \div 1$  мм от поверхности горения, применение оптических методов в настоящее время проблематично. Нам неизвестны оптические методы, которые использовались бы для измерения температуры на расстоянии порядка  $0.2$  мм от поверхности горелки, — обычно в этой области используют микротермодары. Для пламен КС, характеризующихся узкой зоной горения, микротермодарная методика является в настоящее время практически единственным способом, позволяющим получать информацию об их тепловой структуре в широком диапазоне давлений (от субатмосферных до давлений  $\approx 500$  атм). Большинство работ по моделированию горения газовых смесей и КС опирается в основном на данные, полученные с помощью микротермодарной методики, особенно в области градиента температуры у поверхности горелки в случае газовых пламен и у поверхности горящего топлива в случае пламен КС. Поэтому вопрос о достоверности этих данных имеет важное значение.

В настоящее время сложились определенные представления о том, каким требованиям должна удовлетворять термодара при измерении тепловой структуры пламени,

т. е. какими должны быть ее форма и размеры, чтобы возмущения пламени были минимальными, а точность получаемых при этом данных удовлетворительной.

Одним из важнейших параметров, характеризующих термопару, является пространственное разрешение, которое определяется формой и размером ее поперечного сечения. Очевидно, что для измерения температуры в пламени с хорошим разрешением толщина термопары должна быть намного меньше размера зоны горения. Обычно, как наиболее простой вариант, используют термопары, изготовленные из проволоки круглого сечения, диаметр которой ( $\approx 15 \div 50$  мкм) определяет разрешающую способность термопары. Однако зачастую перед исследователями стоят задачи измерения профилей температуры в пламенах с очень узкими зонами горения (порядка сотен микрометров), например в пламенах КС. В таких пламенах применение термопар с круглым сечением малого диаметра ( $\approx 3 \div 10$  мкм) проблематично из-за трудности их изготовления и слишком сложного обращения с ними. Для этих целей применяют так называемые ленточные термопары, которые получают путем расплющивания круглых термопар диаметром  $\approx 15 \div 50$  мкм. Сечение ленточной термопары представляет собой прямоугольник, одна сторона которого (толщина термопары) в 3–5 раз меньше диаметра проволоки, а другая сторона (ширина термопары) во столько же раз больше этого диаметра. Широкой стороной термопара помещается перпендикулярно газовому потоку. Предполагается, что именно толщина термопары определяет ее пространственное разрешение [14]. Однако на то, как ширина ленточной термопары может повлиять на результаты измерения температуры, исследователи до сих пор внимания не обращали. Здесь и ниже не обсуждается вопрос о влиянии размеров самого спая термопары. Предполагается, что для круглой термопары диаметр спая близок к диаметру проволоки, из которой выполнена термопара, а для ленточных термопар ширина и толщина термопарной ленты в месте спая близки к соответствующим величинам в других ее частях.

Обычно термопаре придают П-образную форму с расположением спая на середине

горизонтального отрезка буквы П. Такая форма обеспечивает малые потери тепла от термопары в концы термопары и достаточную жесткость термопары в газовом потоке продуктов сгорания. Для экспериментальных условий, характерных для измерения профиля температуры в волне горения КС, оценены размеры горизонтального участка термопары, при которых теплопотери в ее концы малы:  $l \geq (100 \div 300)h$ , где  $l$  — длина этого участка,  $h$  — толщина термопары [18–21]. Методика определения коэффициента теплообмена термопары в реальном пламени изложена в работе [22].

При обработке экспериментальных профилей температуры, полученных с помощью термопар, необходимо также учитывать влияние излучения с поверхности термопары на результаты измерений. Вопрос об учете теплопотерь за счет излучения для круглой термопары рассматривался в работах [1, 23, 24].

В отличие от газовых пламен, стабилизированных на горелке, для которых массовый расход газа составляет около  $0.01 \div 0.03$  г/(см<sup>2</sup>·с), массовый расход продуктов горения КС существенно выше. При атмосферном давлении он равен примерно  $0.1 \div 0.5$  г/(см<sup>2</sup>·с) и достигает очень высоких значений при повышенных давлениях, вплоть до  $\approx 5$  г/(см<sup>2</sup>·с) (горение гексогена при давлении 300 атм [25]) и  $\approx 6$  г/(см<sup>2</sup>·с) (горение октогена при давлении 500 атм [26]). Толщина ленточных термопар, использованных в работах [25, 26], варьировалась в диапазоне  $2 \div 7$  мкм, а их ширина —  $40 \div 140$  мкм. Ширина фронта пламени при давлениях 100 и 300 атм, измеренная термопарным методом, составляла около 800 и 130 мкм, а градиенты температуры достигали значений  $2.8 \cdot 10^5$  и  $4 \cdot 10^5$  К/см соответственно [25, 26]. Применение термопар как инструмента для количественного исследования таких процессов вызывает серьезную критику исследователей, занимающихся построением моделей горения КС [27]. Автор работы [27] считает, что пространственное разрешение термопары в области, прилегающей к поверхности горения, связанное с толщиной термопары, является недостаточно высоким для корректного определения градиента температуры у поверхности горения. Следует отметить, что роль другой характеристики

термопары — ее ширины — практически не обсуждается, хотя, как будет показано ниже, именно этот размер термопары является главным фактором, возмущающим течение газового потока. Исследователи, как правило, считают, что ошибки в показаниях термопары возникают только за счет погрешностей, обусловленных собственными свойствами термопары как датчика температуры, т. е. зависят от ее формы, материала, из которого она изготовлена, излучательной способности, скорости ее перемещения в изучаемом пламени и т. д. [28]. Вопросу же газодинамического возмущения термопарой самого газового потока, в котором она находится, до сих пор внимания практически не уделялось.

Неподвижная термопара всегда является препятствием для газового потока, в котором она находится и температуру которого отражает. Возмущения потока продуктов горения, вызванные наличием в нем термопары, могут оказывать существенное влияние на показания термопары, несмотря на кажущиеся малыми ее размеры. Авторам настоящей работы известны единичные публикации, в которых упоминается о возможном возмущении термопарой самого пламени. В работе [1, с. 229] в связи с согласованием профилей температуры и концентрации, полученных с помощью термопар и газоотборного зонда, отмечалось, что термопара локально нарушает профиль скоростей потока в пламени и фактически отражает температуру в области, расположенной ниже по потоку от действительного положения термопары. След смещения, обусловленный внесением термопары, оценен авторами этой работы в  $4 \div 5$  диаметров спая термопары. В работе [29] при обсуждении факторов, приводящих к погрешности термопарных измерений, были рассмотрены аэродинамические возмущения, вызываемые термопарой при обтекании ее газовым потоком, и выполнена оценка только возможности турбулизации газового потока термопарой. Для условий, рассматриваемых в работе [29], число Рейнольдса составляет  $Re \approx 5$ , что значительно ниже критического значения, на основании чего авторы сделали вывод о том, что погрешность из-за возможной турбулизации потока не влияет на профиль температуры в пламени.

Обычно предполагается, что благодаря

относительно малым размерам термопары, возмущения пламени, вносимые ею, незначительны и не требуют какого-либо учета, особенно если число Рейнольдса, вычисленное по диаметру термопары, мало [29] или число Маха ( $M$ ) потока газов в пламени меньше 0.1 [21]. В настоящей работе показано, что и при низких числах Рейнольдса ( $0.1 < Re < 1$ ), и при малой скорости потока газов ( $M < 0.001$ ) возмущения профиля температуры во фронте пламени могут быть существенными.

Еще одним источником погрешности при измерении температуры термопарой являются реакции рекомбинации радикалов на ее поверхности, сопровождающиеся выделением тепла [21, 24]. Для устранения влияния этих реакций, особенно заметных в случае использования платинородиевых термопар, на поверхность термопары наносят так называемое антикаталитическое покрытие. Эффективность его неизвестна, поэтому не исключено, что на его поверхности с какой-то вероятностью могут протекать каталитические реакции рекомбинации радикалов. Выделяющееся при этом тепло может оказать влияние на показания термопары.

В нашей предыдущей работе [30] приведены результаты термопарного измерения профиля температуры в пламени предварительно перемешанной смеси  $CH_4 +$

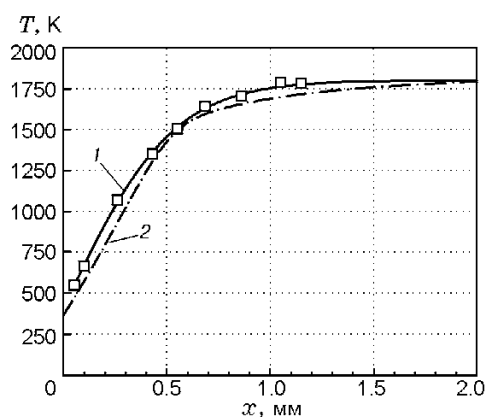


Рис. 1. Профили температуры в пламени метана [30]:

1 (точки и сплошная линия) —  $T_{\text{эксп}}^*$  с учетом потерь тепла излучением (Pt-Pt/10% Rh термопара покрыта слоем  $SiO_2$ , ее диаметр 30 мкм), 2 —  $T_{CH_4}$  (невозмущенный профиль)

$O_2 + Ar$ , стабилизированном на плоской горелке при атмосферном давлении. Анализ этих данных (рис. 12 из [30]), представленных на рис. 1, показал, что измеренные значения температуры в пламени на расстоянии от поверхности горелки  $x \approx 0.2 \div 0.3$  мм и 1 мм выше температуры невозмущенного пламени, полученной расчетным путем с помощью программы CHEMKIN. Эти различия в работе [30] не обсуждались. Мы предполагаем, что указанные различия не связаны с погрешностями моделирования или ошибками измерения температурного профиля, а обусловлены возмущениями пламени, вносимыми термопарой. Проверка этого предположения стала одним из стимулов, инициировавшим постановку настоящего исследования. Другим источником мотивации данного исследования явилась работа [27], содержащая критический анализ результатов термопарных измерений распределений температуры в пламени КС вблизи поверхности горения при высоких давлениях.

Одна из целей настоящей работы — изучить возмущения газового потока, вызываемые присутствием термопары в пламени, и определить, как эти возмущения влияют на результаты термопарных измерений. В качестве объекта исследования выбрано то же, что и в работе [30], одномерное плоское пламя смеси  $CH_4 + O_2 + Ar$  при атмосферном давлении. Использован комплексный подход: экспериментально с помощью термопар различной формы измерены профили температуры в пламени, численно проведены расчеты распределения температуры в пламени по одномерной программе PREMIX [31] из программного пакета CHEMKIN II [32] с применением детального механизма химических реакций для окисления метана GRI-Mech 3.0 [33]. Также выполнено моделирование течения газового потока около термопары в рамках полной системы нестационарных уравнений Навье — Стокса, дополненной источником членом, приближенно учитывающим тепловой эффект химических реакций [30].

Работа состоит из двух частей: в первой приведена экспериментальная часть работы, во второй (см. этот же выпуск журнала) — результаты моделирования течения около термопары в пламени.

Особое внимание уделено возмущениям тепловой структуры пламени термопарой в зоне с большим градиентом температуры, т. е. вблизи поверхности горелки. В данной работе в качестве невозмущенного профиля температуры в пламени (ниже он обозначен как  $T_{CH_4}$ ), с которым проводилось сопоставление результатов измерений, принят профиль температуры, рассчитанный с помощью программы PREMIX и механизма реакций GRI-Mech 3.0 [33]. Плоское пламя предварительно перемешанной смеси  $CH_4 + O_2 + Ar$  выбрано в качестве объекта исследования потому, что результаты моделирования скорости его распространения и химической структуры, с учетом детальной кинетики, достаточно хорошо согласуются с экспериментом [5, 34].

Ожидается, что полученные в работе результаты помогут лучше понять, как форма термопары влияет на результаты измерения профилей температуры в пламенах газовых и конденсированных систем, а также оценить погрешности, обусловленные взаимодействием термопары с пламенем.

## 1. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Пламя предварительно перемешанной смеси  $CH_4 + O_2 + Ar$  (6/15/79 об. %) стабилизировалось на плоской горелке при атмосферном давлении. Верхняя часть горелки представляла собой пористый латунный цилиндр диаметром 16 мм и высотой 5 мм, выполненный из спеченных сфер диаметром  $\approx 0.1$  мм. Пористость латунного цилиндра составляла  $\approx 40$  %. Температура поверхности горелки в ходе эксперимента поддерживалась равной 368 К с помощью термостата. Потоки компонентов горючей смеси устанавливались с точностью  $\pm 1$  % с помощью регуляторов расхода газа фирмы <MKS Instruments> и дополнительной калибровки потоков по барабанному счетчику. Общий расход горючей смеси составлял  $25 \text{ см}^3/\text{с}$  при нормальных условиях. Горелка перемещалась в вертикальном направлении относительно неподвижной термопары с точностью позиционирования 0.01 мм.

Измерение профилей температуры проводилось с использованием трех Pt-Pt/10% Rh термопар различной формы поперечного сечения (ТП1–ТП3). Термопары были покрыты тонким слоем  $SiO_2$  (плавленый

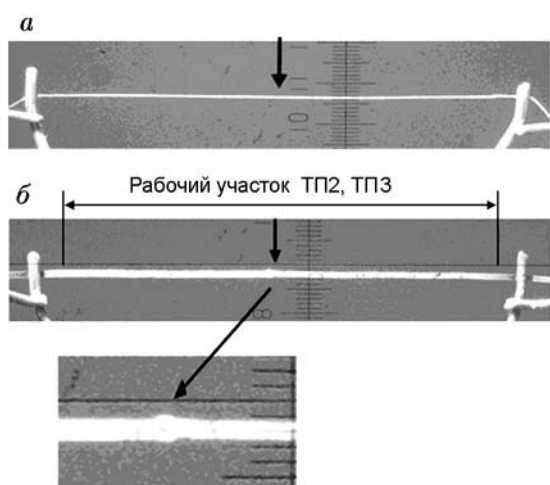


Рис. 2. Фотографии термопар, использованных для измерения профиля температуры в пламени метана:

*a* — круглая термопара ТП1 диаметром 24 мкм, *б* — общий вид ленточных термопар ТП2 (110 × 10 мкм) и ТП3 (125 × 20 мкм) с широкой стороны; стрелкой обозначено место спая

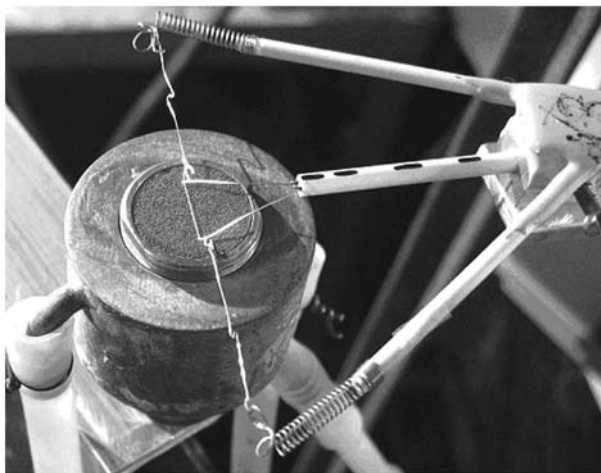


Рис. 3. Термопара в пламени над поверхностью горелки

кварц) толщиной примерно  $2 \div 3$  мкм для предотвращения каталитических процессов на поверхности. Наличие и качество покрытия контролировались визуально под микроскопом до и после проведения экспериментов. Термопары ТП1 и ТП2 были изготовлены из проволоки диаметром 20 мкм, ТП3 — из проволоки диаметром 50 мкм. Термопара ТП1 была круглой диаметром  $\approx 24$  мкм,

включая защитный слой (рис. 2, *a*). Две другие были ленточными с размерами поперечного сечения приблизительно  $10 \times 110$  мкм (ТП2) и  $20 \times 125$  мкм (ТП3), включая защитный слой (рис. 2, *б*). Длина линейного рабочего участка термопары, называемого в работе [14] <плечом>, в центре которого находился спай, составляла  $\approx 10$  мм. Отличие размеров спая термопары от ее диаметра (или ширины) во всех случаях было в пределах  $5 \div 20$  %. Спай термопары во время эксперимента располагался в области, близкой к центру горелки. Растягивающая конструкция подводящих концов термопары обеспечивала параллельность рабочего участка термопары поверхности горелки и предотвращала его деформацию (рис. 3). При использовании ленточных термопар широкая их часть устанавливалась параллельно поверхности горелки. При измерении профилей температуры расстояние от спая термопары до поверхности горелки контролировалось катетометром с точностью до 0.01 мм. Погрешность показаний термопар во всем диапазоне температур была определена из разброса экспериментальных данных и находилась в пределах  $\pm 30$  К. С помощью каждой термопары получено по 4–5 профилей температуры исследуемого пламени. Результирующее распределение температуры построено путем осреднения и сглаживания этих профилей.

## 2. МОДЕЛИРОВАНИЕ ТЕПЛОВОЙ СТРУКТУРЫ ПЛАМЕНИ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ДЕТАЛЬНОГО МЕХАНИЗМА ХИМИЧЕСКИХ РЕАКЦИЙ

Моделирование невозмущенной тепловой структуры пламени метана проводилось с помощью кода PREMIX из программного пакета CHEMKIN II с использованием детального механизма химических реакций для окисления метана GRI-Mech 3.0 [33]. Этот механизм состоит из 325 элементарных реакций с участием 53 соединений. Для каждого из этих соединений и каждой реакции с их участием заданы кинетические, транспортные и термодинамические параметры. Результаты моделирования удовлетворительно описывают огромный набор экспериментальных данных по различным характеристикам горения метаноокислородных смесей. Кинетический механизм, по которому был рассчитан

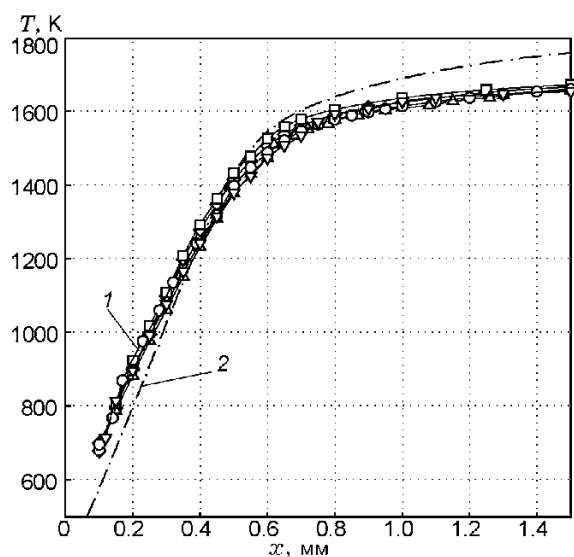


Рис. 4. Профили температуры в пламени метана:

1 (пучок из пяти кривых с точками) — первичные экспериментальные профили  $T_{ТП1}$  без учета потерь тепла излучением, 2 —  $T_{CH_4}$  (невозмущенный профиль)

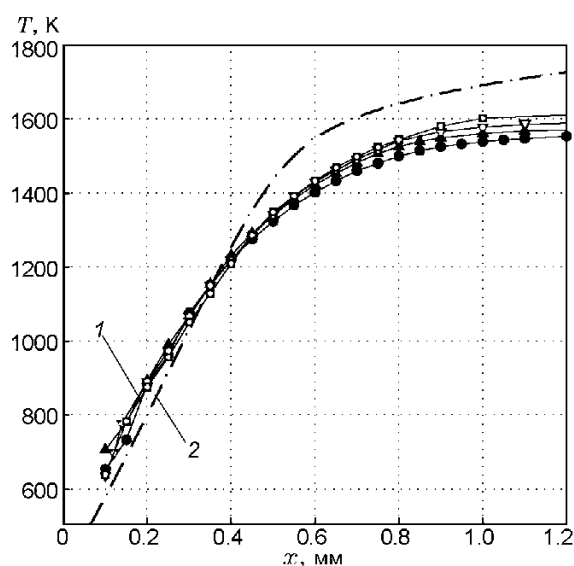


Рис. 5. Профили температуры в пламени метана:

1 (пучок из четырех кривых с точками) — первичные экспериментальные профили  $T_{ТП3}$  без учета потерь тепла излучением, 2 —  $T_{CH_4}$

профиль температур в данной статье, ранее многократно применялся в работах авторов (см., например, [35]), что и позволяет нам использовать рассчитанный по нему профиль ( $T_{CH_4}$ ) в качестве невозмущенного профиля температуры. При проведении расчета все параметры и условия (состав смеси, начальная температура смеси, массовый расход, давление) были заданы такими же, как в эксперименте.

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 4 и 5 приведены результаты измерения температуры термопарами ТП1 и ТП3 соответственно без введения поправок на потери тепла излучением. Кривая 2 на этих рисунках — невозмущенный профиль температуры ( $T_{CH_4}$ ), рассчитанный по программе PREMIX. В области температур  $\approx 800 \div 1100$  К наблюдается превышение измеренной термопарами температуры над расчетной температурой невозмущенного пламени (в дальнейшем для определенности называем эффект превышения измеренной температуры). Разброс данных в этой области для термопары ТП1 (так же, как и для ТП2 и ТП3) по оси абсцисс составил примерно  $\pm 10$  мкм, по оси ординат —  $\pm 15 \div 20$  К.

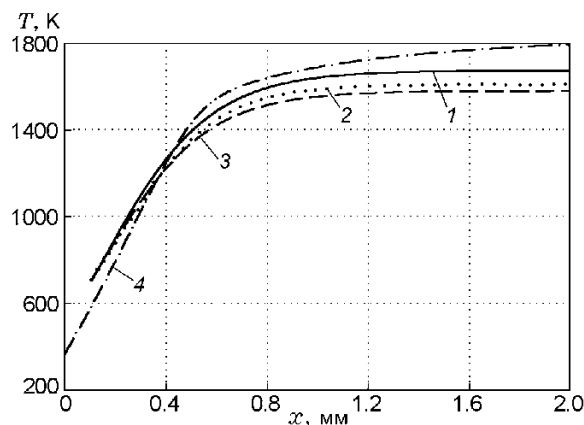


Рис. 6. Профили температуры в пламени метана:

1–3 — сглаженные экспериментальные профили температуры без учета потерь тепла излучением: 1 —  $T_{ТП1}$ , 2 —  $T_{ТП2}$ , 3 —  $T_{ТП3}$ ; линия 4 —  $T_{CH_4}$  (невозмущенное пламя)

Осредненные и сглаженные температурные профили, полученные с помощью каждой из трех термопар, представлены на рис. 6.

В зоне конечных продуктов горения метана (см. рис. 6) значения температуры пламени, измеренные различными термопарами, отличаются друг от друга. При этом все они ниже, чем  $T_{CH_4}$ , вследствие

потерь тепла излучением, которые зависят от формы и размеров термопар, а также от их излучательной способности. Однако вблизи поверхности горелки, на расстояниях примерно  $0.15 \div 0.3$  мм, где температура меняется в диапазоне  $800 \div 1100$  К, измеренные всеми термопарами температуры, даже с потерей тепла на излучение, превышают соответствующие значения температуры невозмущенного пламени: на расстоянии  $0.2$  мм это превышение составляет примерно  $90$  К, что значительно больше ошибки измерения. Таким образом, данные, приведенные на рис. 6, свидетельствуют, что эффект превышения измеренной температуры не является результатом ошибки измерений или расчета. Он наблюдался систематически во всех проведенных экспериментах.

Дополнительными экспериментами было проверено предположение о том, что превышение измеренной температуры может быть связано с искажением температурного профиля из-за перегрева поверхности горелки во время эксперимента. Для этого пористый цилиндр горелки заменили медным диском с отверстиями диаметром  $0.5$  мм и расстоянием между центрами отверстий  $0.7$  мм. В одно из таких отверстий в центре поверхности горелки изнутри впаляли медь-константановую термопару, с помощью которой затем контролировали температуру поверхности. Измерения температуры в пламени, выполненные над такой поверхностью горелки, дали тот же самый результат: профили совпали с теми, что были получены над пористой поверхностью, при этом температура поверхности оставалась неизменной во время измерений и равной  $368$  К. Таким образом, экспериментально было подтверждено, что обнаруженный эффект превышения измеренной температуры над расчетной температурой невозмущенного пламени не связан с перегревом поверхности горелки. Очевидно, что при учете поправки, связанной с теплотерями термопар на излучение, превышение температуры только увеличится, поскольку значение этой поправки положительно.

Чтобы показать, что в зоне продуктов сгорания измеренная температура согласуется с температурой невозмущенного пламени, были рассчитаны температурные поправки на теплотери за счет излучения

для всех термопар (ТП1–ТП3). Для вычисления поправки использовали формулу, предложенную в работе [23] для случая поперечного обтекания цилиндра:

$$\Delta T = T_g - T_c = \frac{1.25 \varepsilon \sigma d^{3/4} (T_c^4 - T_w^4) (\eta / \rho v)^{1/4}}{\lambda}, \quad (1)$$

где  $T_g$  — температура газа,  $T_c$  — температура спаия термопары,  $T_w$  — температура окружающей среды,  $\varepsilon$  — степень черноты термопары,  $d$  — диаметр термопары,  $\sigma$  — постоянная Стефана — Больцмана,  $\lambda$ ,  $\eta$ ,  $\rho$ ,  $v$  — теплопроводность, вязкость, плотность и скорость газа соответственно. Зависимости величин  $\lambda$  и  $\eta$  от температуры взяты теми же, что использовались в расчетах по моделированию течения газа около термопары, приведенными в части II данной работы. При введении поправки на потери тепла излучением для ленточных термопар эквивалентный диаметр определялся как отношение периметра сечения термопары к числу  $\pi$  [36]. Температурный профиль, полученный с поправкой на потери тепла излучением, в работе обозначен как  $T^*$ . Поскольку в наших экспериментах термопары покрыты слоем  $\text{SiO}_2$ , степень черноты поверхности термопары ( $\varepsilon$ ) в зависимости от температуры принята равной степени черноты кварца. Зависимости  $\varepsilon(T)$  для кварца, приведенные в [37, 38], достаточно хорошо согласуются друг с другом и получены в большом диапазоне температуры. На основе этих двух зависимостей построена усредненная сглаженная кривая  $\varepsilon(T)$ , которую аппроксимировали формулой

$$\varepsilon(T) = 0.163297 + \frac{0.766332}{\{1 + \exp[(T - 583.467752)/146.53391]\}}^{0.317496}, \quad (2)$$

где  $T$  выражена в градусах Кельвина. Данная зависимость  $\varepsilon(T)$  показана на рис. 7.

На рис. 8 представлены профили температуры  $T_{\text{ТП}(1-3)}^*$ , измеренные термопарами ТП1–ТП3, с учетом поправки на излучение, рассчитанной по формуле (1) с использованием указанной выше зависимости  $\varepsilon(T)$ , а также невозмущенный профиль температуры. Видно, что при учете поправки

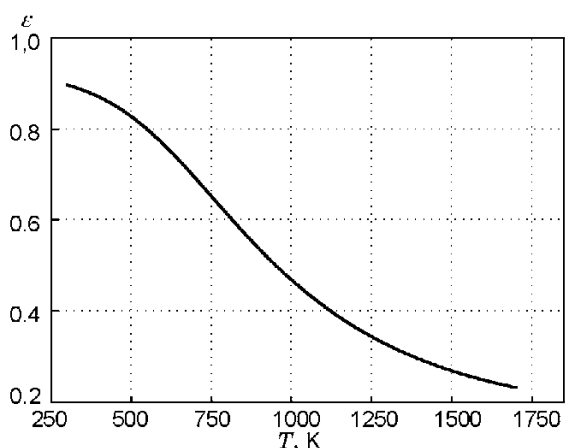


Рис. 7. Нормальная интегральная излучательная способность для кварца

на излучение измеренная и рассчитанная температуры за фронтом пламени ( $x \approx 2$  мм) в целом согласуются между собой, хотя некоторые различия всё же имеются. На расстоянии  $x = 3$  мм (см. увеличенный фрагмент справа на рис. 8) температура невозмущенного пламени (кривая 4) начинает превышать температуру, полученную с помощью термопар. Возможно, это связано с тем, что выбранное значение степени черноты термопар, по данным работ [37, 38], в высокотемпературной зоне несколько занижено. Кроме того, различие между невозмущенным и измеренными профилями температуры может быть вызвано следующими обстоятельствами.

Во-первых, в реальном пламени температура может понижаться за счет излучения продуктов горения, что не учитывается в программе PREMIX, используемой для расчета невозмущенного профиля температуры. Оценка этого эффекта, выполненная с учетом спонтанного ИК-излучения молекулярных компонентов  $H_2O$  и  $CO_2$ , показала, что понижение температуры составляет  $\approx 21$  К при  $x = 3$  мм и  $\approx 30$  К при  $x = 4$  мм. Начиная с  $x = 4$  мм температура пламени с учетом излучения уменьшается с градиентом, близким к 7 К/мм, в то время как программа PREMIX предсказывает монотонный рост температуры.

Во-вторых, в связи с рекомбинацией радикалов на поверхности термопары, что будет рассмотрено ниже, температура термопары может увеличиваться.

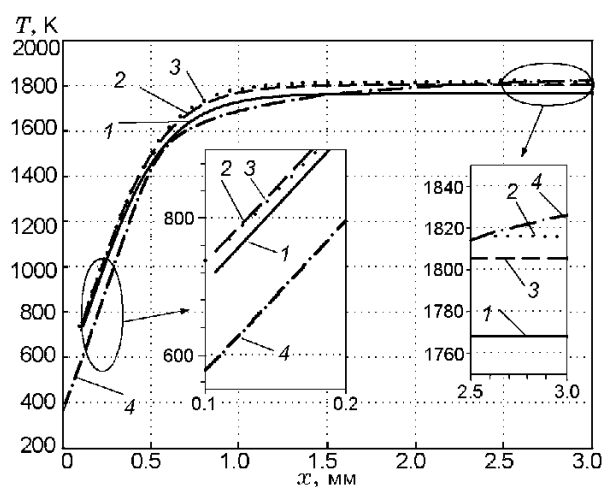


Рис. 8. Сравнение профилей температуры, полученных с учетом потерь тепла излучением, с невозмущенным профилем:

1 –  $T_{ТП1}^*$ , 2 –  $T_{ТП2}^*$ , 3 –  $T_{ТП3}^*$ , 4 –  $T_{СН4}$

Наблюдаемую на расстояниях 1.5 ÷ 3 мм разницу около 40 К в показаниях термопары ТП1 и термопар ТП2, ТП3 можно объяснить, например, зависимостью вероятности рекомбинации радикалов на поверхности термопары от ее температуры: как видно из рис. 6, разность температур круглой и ленточной термопар достигает  $\approx 100$  К.

Для более детального анализа результатов на рис. 9 приведены отклонения измеренной температуры от температуры невозмущенного пламени ( $T_{ТП(1-3)} - T_{СН4}$ ). Как видно, в первой зоне пламени ( $x = 0.1 \div 0.5$  мм) превышение измеренной температуры составляет 120 ÷ 150 К на расстоянии  $x = 0.2$  мм. В связи с этим представляют интерес данные работы [17], где на рис. 10(b) даны профили температуры в пламени этилена, полученные с помощью термопарных и оптических измерений при низком давлении. При этом в области градиента температуры на расстоянии 2 ÷ 4 мм от поверхности горелки (при протяженности области с градиентом температуры около 8 мм) результаты термопарных измерений превышают результаты оптических. Если последние принять за температуру невозмущенного пламени, то указанное превышение, возможно, вызвано тем же эффектом, что исследуется в данной работе. Во второй зоне пламени (на расстоянии от 0.6 до  $\approx 1.5 \div 2$  мм) также наблюдается превышение показаний



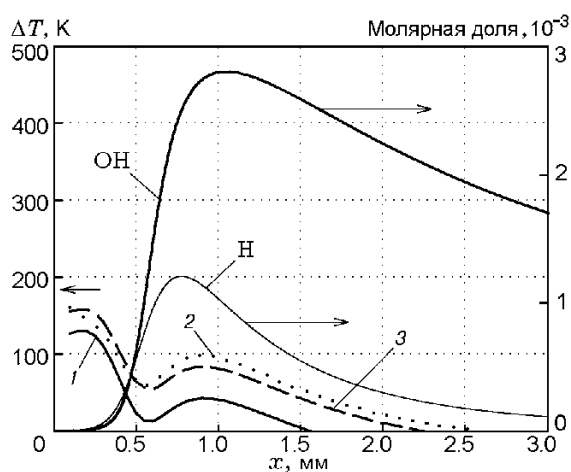


Рис. 9. Превышение термпарных измерений над температурой невозмущенного пламени в сравнении с местоположением профилей концентрации радикалов Н и ОН в невозмущенном пламени:

$$1 - \Delta T = T_{\text{ТП1}}^* - T_{\text{СН}_4}, \quad 2 - \Delta T = T_{\text{ТП2}}^* - T_{\text{СН}_4}, \\ 3 - \Delta T = T_{\text{ТП3}}^* - T_{\text{СН}_4}$$

термопары над температурой невозмущенного пламени, составляющее  $40 \div 100$  К на расстоянии  $x = 0.9$  мм. Для ленточных термопар превышение температуры  $\Delta T$  в первой зоне на  $30 \div 40$  К, а во второй на  $50 \div 60$  К выше, чем для круглой термопары (см. рис. 9).

Физико-химическая картина превышения измеренной температуры в первой зоне может быть связана с торможением реагирующего газа и увеличением времени его пребывания около термопары, что приводит к дополнительному выделению тепла от реакционно-способных продуктов в окрестности термопары. Следует отметить, что при наличии химических реакций наблюдаемый эффект имеет место при ламинарном обтекании термопары реагирующими продуктами горения при низких числах Рейнольдса. Для ТП1–ТП3 значения числа Рейнольдса находились в пределах  $0.1 < Re < 1$ , что не могло приводить к турбулизации потока около термопары, а линейная скорость потока газов в пламени  $\approx 30$  см/с (при  $T \approx 900$  К), что соответствует существенно дозвуковому режиму течения ( $M < 0.001$ ).

Во второй зоне превышение измеренной температуры (см. рис. 9) коррелирует с профилями концентрации радикалов Н и ОН

в невозмущенном пламени, рассчитанными с помощью программы PREMIX, которые также приведены на рис. 9. Известно, что на поверхности термопары может происходить рекомбинация радикалов (в нашем случае — предположительно Н и ОН) с выделением тепла, что может повысить температуру термопары. Количественная оценка тепловыделения при рекомбинации радикалов на поверхности термопары проведена на основе профилей концентраций радикалов Н и ОН в невозмущенном пламени. Было определено число соударений ( $N$ ) радикалов с поверхностью термопары в единицу времени. Тепловой поток к термопаре получен при использовании величины тепловыделения ( $H^*$ ) при единичном акте рекомбинации радикалов на поверхности термопары. Применяя формулу теплообмена (1), использованную при вычислении радиационной поправки [23], и заменяя в ней тепловой поток излучением на величину тепловыделения при рекомбинации радикалов, получаем

$$\Delta T = T_c - T_g = \frac{1.25d^{3/4}KNH^*(\eta/\rho v)^{1/4}}{\lambda}, \quad (3)$$

где  $K$  — вероятность рекомбинации радикалов. Оценка по этой формуле показала, что если наблюдаемое превышение измеренной температуры во второй зоне объяснять реакцией рекомбинации радикалов на поверхности термопары, то вероятность их рекомбинации должна находиться в диапазоне  $K = 10^{-3} \div 10^{-2}$  в зависимости от расстояния до поверхности горелки. Указанный диапазон  $K$  (для радикалов Н) вполне согласуется с литературными данными [39].

Как известно, важнейшей характеристикой пламени как газовых, так и конденсированных систем является градиент температуры у поверхности горения. Обнаруженный эффект превышения измеренной температуры в области высокого градиента температуры существенно влияет на величину этого градиента. Анализ данных, приведенных на рис. 1 и 8, показал, что эффект превышения температуры, регистрируемый термопарой, приводит к <увеличению> градиента температуры у поверхности горелки. Для этих данных экстраполяция измеренной температуры к температуре поверхности горелки дает превышение полученного

градиента на  $\approx 50\%$  по сравнению с градиентом для невозмущенного пламени. Необходимо, однако, отметить, что проводить измерения с помощью термопары ближе 0.1 мм от поверхности горелки крайне затруднительно, поэтому поведение температуры в этой зоне неизвестно. Тем не менее, оценка, приведенная выше, показывает, что погрешность в определении градиента температуры, вносимая при использовании термопарных данных, может быть существенной.

Следует отметить, что поведение температуры в малой ( $\leq 0.1$  мм) окрестности от поверхности горелки может иметь более сложный характер из-за влияния пористости горелки. Последняя может приводить к возникновению в этой области струй газа с более высокой скоростью течения, чем осредненная скорость потока газа у горелки, предсказываемая программой PREMIX. Поэтому вопрос о корректности определения градиента температуры у поверхности горелки нуждается в дополнительных исследованиях.

Изучение влияния термопары на тепловую структуру пламени при больших массовых расходах, каковым является пламя КС при высоких давлениях, сопряжено со значительными экспериментальными и теоретическими трудностями, что обусловлено большой скоростью горения КС и, как следствие, малым временем измерений. Другая проблема состоит в том, что пламена КС, в отличие от газовых пламен, невозможно стабилизировать. Для большинства КС измерения профилей температуры в волне их горения осложнены невозможностью точно установить термопару параллельно поверхности горения из-за неровностей самой этой поверхности, что приводит к плохой воспроизводимости результатов термопарных измерений в идентичных экспериментах. Проблемы в теоретической части обусловлены недостаточной исследованностью механизма горения КС, что не позволяет расчетными методами с достаточной точностью предсказать распределение температуры в невозмущенном пламени. По этим причинам исследование термопарных возмущений в пламени КС было проведено только численно. Результаты этого исследования изложены во второй части данной работы (см. этот же выпуск журнала).

Моделирование термопарных

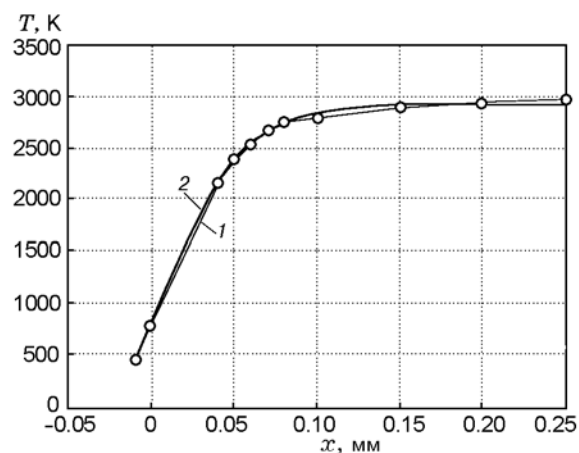


Рис. 10. Профили температуры в пламени гексогена при давлении 20 атм:

1 (тонкая линия и точки) — данные эксперимента [12], 2 — их аппроксимация

возмущений пламени КС проводилось для пламени гексогена при давлении 20 атм, экспериментальное исследование этого пламени выполнено в работе [12]. Распределение температуры, полученное в [12] термопарным методом (точки на рис. 10), во второй части данной работы рассматривается в качестве невозмущенного профиля температуры. Для вычисления источникового члена, приближенно учитывающего тепловой эффект химических реакций [30], этот профиль аппроксимировался плавной зависимостью

$$T = T_0 + \frac{a}{\{1 + \exp[(x_0 - x)/b]\}^c} \text{ [K]}, \quad (4)$$

где расстояние от поверхности горения  $x$  выражено в миллиметрах, остальные параметры зависимости (4) имеют следующие значения:  $T_0 = 31.93$  К,  $a = 2887.15$ ,  $x_0 = -0.058249$  мм,  $b = 0.026215$ ,  $c = 13.651332$ . Как видно из рис. 10, подобранная аппроксимация профиля температуры (сплошная линия) обеспечивает вполне удовлетворительное описание результатов измерений.

## ВЫВОДЫ

1. Профиль температуры в области градиента температуры, зарегистрированный с помощью термопар различной формы в атмосферном пламени метана с учетом радиационной поправки, показал превышение измеренной температуры над расчетной температурой невозмущенного пламени. Максимальное превышение в условиях постановки экспериментов составляет  $\approx 120 \div 150$  К, что в несколько раз превышает погрешность измерений. Это превышение может быть связано с торможением реагирующего газа и увеличением времени его пребывания около термопары, что должно сопровождаться дополнительным выделением тепла от реакционно-способных продуктов в окрестности термопары, в результате чего термопара оказывается в области с более высокой температурой, чем невозмущенное пламя на том же расстоянии от горелки.

2. В области максимума концентрации радикалов также обнаружено превышение измеренной температуры над температурой невозмущенного пламени. Как показывают оценки, превышение температуры предположительно связано с каталитической рекомбинацией радикалов Н и ОН на поверхности термопары, несмотря на то, что термопара покрыта антикаталитическим слоем SiO<sub>2</sub>.

3. Для ленточной термопары превышение измеренной температуры над температурой невозмущенного пламени несколько больше, чем для круглой термопары, изготовленной из той же проволоки.

4. Возмущение пламени термопарой в области градиента температуры у поверхности горелки может приводить к изменению величины этого градиента по сравнению с его значением в невозмущенном пламени.

При измерении профилей температуры пламени с помощью термопар необходимо учитывать возможное влияние описанных выше эффектов. Поскольку эффект превышения измеренной температуры, обнаруженный в области большого градиента температуры, наблюдался для всех используемых термопар, его дальнейшее исследование (см. далее часть II данной работы) было проведено только для одной из них — ленточной термопары ТПЗ.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Фристром Р. М., Вестенберг А. А. Структура пламени. — М.: Metallurgia, 1969.
2. Зельдович Я. Б., Баренблатт Г. И. и др. Математическая теория горения и взрыва. — М.: Наука, 1980.
3. Hartlieb A. T., Atakan B., Kohse-Hoinghaus K. Effects of a sampling quartz nozzle on the flame structure of a fuel-rich low-pressure propene flame // *Combust. and Flame*. — 2000. — V. 121, N 4. — P. 610–624.
4. Leplat N., Seydi A., Vandooren J. An experimental study of the structure of a stoichiometric ethanol/oxygen/argon flame // *Combust. Sci. and Technol.* — 2008. — V. 180. — P. 519–532.
5. Korobeinichev O. P., Shvartsberg V. M., Shmakov A. G., Knyazkov D. A., Rybitskaya I. V. Inhibition of atmospheric lean and rich CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/Ar flames by phosphorus-containing compound // *Proc. Combust. Inst.* — 2007. — V. 31, N 2. — P. 2741–2748.
6. Зенин А. А. Структура температурного распределения при стационарном горении баллистического пороха // *Физика горения и взрыва*. — 1966. — Т. 2, № 3. — С. 67–76.
7. Vandooren J., Bian J. Validation of H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> reaction mechanisms by comparison with the experimental structure of a rich hydrogen-oxygen flame // *23rd Symp. (Intern.) on Combustion*. — Pittsburgh, PA: The Combustion Inst., 1990. — P. 341–346.
8. Hayhurst A. N., Kittelson D. B. Heat and mass transfer considerations in the use of electrically heated thermocouples // *Combust. and Flame*. — 1977. — V. 28. — P. 301–317.
9. Korobeinichev O. P., Plyn S. B., Mokrushin V. V., Shmakov A. G. Destruction chemistry of dimethyl methylphosphonate in H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/Ar flame studied by molecular beam mass spectrometry // *Combust. Sci. and Technol.* — 1996. — V. 116, N 1. — P. 51–67.
10. Зенин А. А. Процессы в зонах горения баллистических порохов // *Физические процессы при горении и взрыве: сб. ст.* — М.: Атомиздат, 1980. — С. 68–105.
11. Zenin A. A. Thermophysics of stable combustion waves of solid propellants // *Progress in Astronautics and Aeronautics*. — 1992. — V. 143. — P. 197–231.
12. Zenin A. A. HMX and RDX: Combustion mechanism and influence on modern double-base propellant combustion // *J. Propulsion and Power*. — 1995. — V. 11, N 4. — P. 752–758.
13. Sinditskii V. P., Egorshv V. Y., Levshenkov A. I., Serushkin V. V. Combustion of ammonium dinitramid. Part 2: Combustion mechanism // *J. Propulsion and Power*. — 2006. — V. 22, N 4. — P. 777–785.

14. **Зенин А. А., Финяков С. В.** Исследование механизма горения гексогена и октогена различными экспериментальными методиками // *Физика горения и взрыва*. — 2009. — Т. 45, № 5. — С. 60–81.
15. **Parr T., Hanson-Parr D.** Optical diagnostics of solid-propellant flame structures // *Solid Propellant Chemistry, Combustion, and Motor Interior Ballistics* / V. Yang, T. B. Brill, W.-Z. Ren (Eds). — Progress in Astronautics and Aeronautics. — Reston, VA, 2000. — V. 185. — P. 381–411.
16. **Hartlieb A. T., Atakan B., Kohse-Hoinghaus K.** Temperature measurement in fuel-rich non-sooting low-pressure hydrocarbon flames // *Appl. Phys. B*. — 2000. — V. 70. — P. 435–445.
17. **Bahlawane N., Struckmeier U., et al.** Non-catalytic thermocouple coatings produced with chemical vapor deposition for flame temperature measurements // *Rev. of Scient. Instruments*. — 2007. — V. 78. — 013905.
18. **Зенин А. А.** Об ошибках показаний термопар, проходящих через пламя // *Инж.-физ. журн.* — 1962. — Т. 5, № 5. — С. 68–74.
19. **Зенин А. А.** О теплообмене микротермопар в условиях горения конденсированных веществ // *Журн. прикл. механики и техн. физики*. — 1963. — № 5. — С. 125–131.
20. **Зенин А. А.** Экспериментальное исследование механизма горения ТРТ и течения продуктов их сгорания: дис. . . д-ра физ.-мат. наук / ИХФ РАН. — М., 1976.
21. **Heitor M. V., Moreira A. L. N.** Thermocouple and sample probes for combustion studies // *Prog. Energy Combust. Sci.* — 1993. — V. 19. — P. 259–278.
22. **Зарко В. Е., Сухинин А. И., Хлевной С. С.** Об измерении температуры в газовой фазе горящего пороха // *Физика горения и взрыва*. — 1970. — Т. 6, № 4. — С. 565–569.
23. **Kaskan W. E.** The dependence of flame temperature on mass burning velocity // *Sixth Symp. (Intern.) on Combustion, Reinhold, 1957*. — P. 134–143.
24. **Shaddix C. R.** Correcting thermocouple measurements for radiation loss: a critical review // *Proc. 33rd National Heat Transfer Conf., August 15–17 1999, Albuquerque, New Mexico*. — HTD99-282. — P. 1–10.
25. **Зенин А. А., Финяков С. В.** Характеристики волн горения гексогена при различных давлениях и начальных температурах // *Физика горения и взрыва*. — 2006. — Т. 42, № 5. — С. 32–45.
26. **Zenin A. A., Finjakov S. V.** Characteristics of octogen and hexogen combustion: A comparison // *Proc. 37th Intern. Annu. Conf. of ICT, Fraunhofer Inst. Chem. Technol. — Karlsruhe, 2006*. — P. 118.1–118.18.
27. **Бекстед М. В.** Ведущие реакции: в конденсированной или газовой фазе? // *Физика горения и взрыва*. — 2007. — Т. 43, № 2. — С. 134–136.
28. **Коробейничев О. П., Палецкий А. А., Волков Е. Н.** Структура пламени и химия горения энергетических материалов // *Хим. физика*. — 2008. — Т. 27, № 4. — С. 34–59.
29. **Ксандопуло Г. И., Копылова Л. И.** Химия волн горения веществ со сложным строением молекул реагентов. 1. Структура фронта богатого пламени изопентана // *Физика горения и взрыва*. — 2004. — Т. 40, № 5. — С. 42–51.
30. **Сковородко П. А., Терещенко А. Г., Коробейничев О. П., Князьков Д. А., Шмаков А. Г.** Исследование возмущений, вносимых в пламя пробоотборным зондом. 1. Возмущения газодинамической структуры течения // *Хим. физика*. — 2006. — Т. 25, № 10. — С. 23–32.
31. **Kee R. J., Grcar J. F., Smooke M. D., Miller J. A.** A Fortran program for modeling steady laminar 1-D premixed flames // *Sandia National Laboratories Report*. — SAND85-8240. — 1985.
32. **Kee R. J., Rupley F. M., Miller J. A.** CHEMKIN-II: A fortran chemical kinetics package for the analysis of gas phase chemical kinetics // *Sandia National Laboratories Report*. — SAND89-8009B. — 1989.
33. [http://www.me.berkeley.edu/gri\\_mech/](http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/).

34. **Князьков Д. А., Шварцберг В. М., Шмаков А. Г., Коробейничев О. П.** Влияние фосфорорганических ингибиторов на структуру атмосферных бедных и богатых метаноокислородных пламен // Физика горения и взрыва. — 2007. — Т. 43, № 2. — С. 23–31.
35. **Knyazkov D. A., Shmakov A. G., Korobeinichev O. P.** Application of molecular beam mass spectrometry in studying the structure of a diffusive counterflow flame of  $\text{CH}_4/\text{N}_2$  and  $\text{O}_2/\text{N}_2$  doped with trimethylphosphate // Combust. and Flame. — 2007. — V. 151. — P. 37–45.
36. **Wong H. Y.** Handbook of Essential Formulae and Data on Heat Transfer for Engineers. — London; New York: Longman, 1977.
37. **Полежаев Ю. В., Юревич Ф. Б.** Тепловая защита. — М.: Энергия, 1976. — С. 383.
38. **Петров В. А., Резник В. Ю.** Экспериментальное исследование интегральной нормальной излучательной способности частично прозрачных материалов // Теплофизические свойства твердых веществ: сб. ст. — М.: Наука, 1973. — С. 120–125.
39. **Рубцов Н. М., Цветков Г. И., Черныш В. И.** О закономерностях горения водорода вблизи нижнего предела воспламенения в кинетической области обрыва цепей // Журн. физ. химии. — 2009. — Т. 83, № 10. — С. 1884–1887.

*Поступила в редакцию 30/VI 2010 г.*