

УДК 536.46

Э.П. Ильченко, Н.И. Полетаев, Т.А. Флорко, А.В. Флорко

*Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова, г. Одесса
Институт горения и нетрадиционных технологий*

Излучательные характеристики пылевых пламен частиц циркония

В статье приведены основные характеристики ламинарного дисперсного диффузионного (ЛДДФ) и ламинарного предварительно перемешанного (ЛППФ) факелов циркония. Предложена методика определения оптических характеристик и температуры конденсированной фазы, образующейся в ЛДДФ циркония. Показано, что исследуемый объект можно считать серым источником излучения в спектральном диапазоне $0.35 \div 1$ мкм. Теплопотери излучением в теплообмене ЛДДФ циркония составляют около 20% от общего тепловыделения, а в ЛППФ Zr – 30%. Зависимость мнимой части показателя преломления от температуры и длины волны для оксида циркония для температур свыше 2500 К аппроксимирована аналитическим выражением. Оценен вклад массовой доли субмикронной фракции в излучение ЛППФ циркония, что позволяет оценить ее содержание в конечном продукте.

Введение

Проблема переноса излучения в рассеивающих, поглощающих и излучающих средах представляет интерес как для физики горения, астрофизики и т.д., так и для решения сугубо практических задач, связанных с созданием различного рода энергетических, технологических и т.п. устройств. Решение задач о переносе излучения применительно к конкретным системам требует информации о факторах эффективности рассеяния (Q_s) и поглощения излучения (Q_a), которую, как правило, получают расчетным путем на основе теории Ми [1]. При вычислениях используются комплексные показатели преломления $m = n - i\chi$, величины которых должны быть известны в широком интервале температур. Понятны, в связи с этим, трудности, с которыми приходится сталкиваться при определении n и χ при температурах горения, тем более вблизи фазовых переходов.

Иной аспект указанной проблемы тесно связан с диагностикой по спектрам излучения параметров высокотемпературных объектов, содержащих частицы микронного и субмикронного размера.

Настоящая работа посвящена исследованию спектральных излучательных и оптических характеристик частиц оксида циркония для температур 2500 К и выше. В настоящее время результаты подобных систематических исследований мы не обнаружили.

Экспериментальная установка, методики измерений

Объект исследования – стационарный ламинарный диффузионный дисперсный факел (ЛДДФ) циркония – стабилизировали на коаксиальной «пылевой горелке» [2]. По внутренней трубе горелки подавались газозвесь частиц циркония в азоте с наиболее вероятным радиусом $r_m \approx 2.1$ мкм. По кольцевому зазору между внешней и внутренней трубой поступал окислитель (кислород). Массовая концентрация горючего во взвеси на выходе горелки определялась методом фильтрации ($C_f = 0.55 \cdot 10^{-3}$ г/см³ при объемном расходе несущего газа $W = 250$ см³/с). Частицы циркония (в условиях ЛДДФ) горят гетерогенно [3], поэтому размер частиц продуктов сгорания с учетом плотностей металлического циркония, окиси циркония и стехиометрического коэффициента, должен быть примерно в 1.1÷1.2 раза больше размера частиц исходного металла. Мы здесь не учитываем образование некоторого количества полых сфер [3] и дробление горящих частиц в результате взрывов. Дисперсный анализ исходных частиц (Zr) и конденсированных продуктов сгорания (к-частиц ZrO₂) проводился с использованием оптического и электронного микроскопов.

Исходной информацией для исследования излучательных и оптических характеристик частиц при температурах горения являлась спектральная светимость r_λ , измерение которой проводилось в диапазоне длин волн $\lambda = 0,35 \div 1$ мкм, и интегральная светимость в области $\lambda = 2 \div 20$ мкм. В качестве эталонных источников света использовались банд-лампа СИ 10-300 с увиолевым окном и модель абсолютно черного тела. Результаты измерения спектральной светимости для приведенных выше условий представлены на рис. 1.

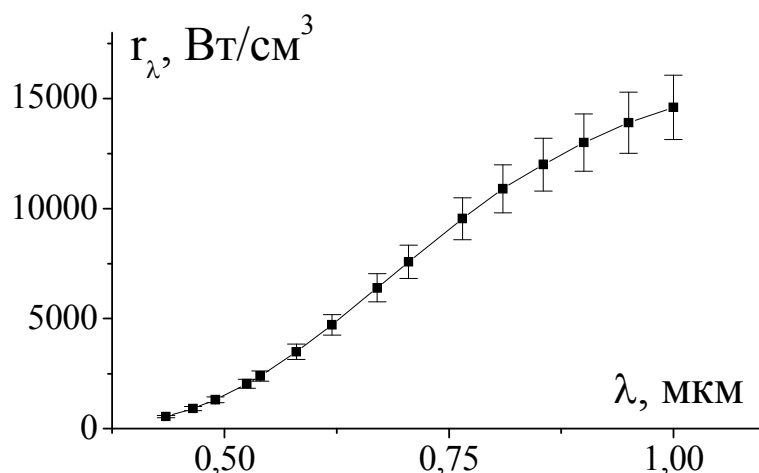


Рис. 1. Спектральная светимость ЛДДФ циркония

Температура конденсированной фазы (к-фазы) определялась полицветовым методом [4] из графика зависимости $\ln(r_\lambda \cdot \lambda^5)$ от $1/\lambda$. В исследованном диапазоне длин волн указанный график представлял собой прямую, что, с одной стороны, свидетельствовало о серости источника в диапазоне длин волн $\lambda = 0,35 \div 1$ мкм, а, с другой стороны, позволило по тангенсу угла наклона прямой определить истинную температуру к-фазы во фронте факела ($T_k = 2510 \pm 70$ К). Спектральная испускательная способность факела ε_λ определялась как отношение спек-

тральной светимости объекта и спектральной светимости абсолютно черного тела $r_{\lambda,b}$ при температуре T_k : $\varepsilon_\lambda = r_\lambda/r_{\lambda,b} = 0.006 \pm 0.001$. Ширину фронта факела $L_{\text{эфф}}$ находили из радиальных распределений световых потоков путем абелевских преобразований. Это стало возможным благодаря достаточно высокому пространственному разрешению спектральной установки ($\sim 50 \div 100$ мкм) и в силу того, что объект исследования, как показали оценки, оказался оптически тонким. Действительно, длину свободного пробега фотона $\lambda_{a,s}$ по отношению к поглощению (индекс а) или рассеянию (s) к-частицей можно оценить согласно соотношению:

$$\lambda_{a,s} = \frac{1}{\sigma_{a,s} n_{Zr}} = \frac{1}{Q_{a,s} \pi r^2 n_{Zr}}, \text{ где } \sigma_{a,s} - \text{сечение поглощения или}$$

рассеяния, $Q_{a,s}$ – фактор эффективности соответствующего процесса, n_{Zr} - счетная концентрация частиц Zr, см^{-3} . Принимая $Q_{a,s} = 1$ и $n_{Zr} = \frac{3C_f}{4\pi r_{03}^3 \rho_{Zr}}$, где: r_{03} , ρ_{Zr}

– среднекубический размер и плотность частиц Zr, получаем $\lambda_{a,s} \approx 3$ см. Это значение существенно выше протяженности источника излучения (ширина фронта факела $L_{\text{эфф}}$ не превышает 2 мм).

Очевидно, что во фронте факела с учетом теплового расширения счетная концентрация частиц и окиси циркония (n_{pf}) будет равна $n_{pf} = n_{Zr} T_{g0}/T_{gf}$, где T_{g0} и T_{gf} – температура газа вблизи среза горелки и во фронте факела соответственно. Последняя определялась по абсолютным интенсивностям резонансных линий Na и оказалась близкой по величине к температуре к-фазы. Высоту факела (h) находили с помощью видеосъемки. Основные параметры факела представлены в таблице 1.

Таблица 1. Основные параметры ЛДДФ Zr

Объемный расход W , $\text{см}^3/\text{с}$	250±50
Концентрация горючего C_f , $\text{г}/\text{см}^3$	$(5.5 \pm 0.6) \cdot 10^{-4}$
Наиболее вероятный размер частиц Zr r_m , мкм	2.1
Счетная концентрация частиц Zr, n_{Zr} , см^{-3}	$(2.5 \pm 0.3) \cdot 10^6$
Средняя скорость газозвеси на срезе горелки v , $\text{см}/\text{с}$	55±2
Температура конденсированной фазы во фронте факела T_k , К,	2510±70
Диаметр устья горелки d , мм	24
Высота факела h , см	17
Массовый расход горючего, $\text{г}/\text{с}$	0,14
Ширина фронта факела $L_{\text{эфф}}$, мм	1.5±0.3
Концентрация частиц во фронте факела n_{pf} , см^{-3}	$(3 \pm 0.4) \cdot 10^5$

Вклад излучения в тепловом балансе пылевого факела частиц циркония

Как показали измерения, при горении циркония развивается достаточно высокая температура, которая может обеспечить большие световые потоки, влияющие на теплообмен. Для оптически тонких источников между интенсив-

ностью излучения I и интегральной светимостью $R = \varepsilon\sigma_B T^4$ имеет место соотношение:

$$I = \frac{4R}{L_{\text{эфф}}} = \frac{4\varepsilon\sigma_B T^4}{L_{\text{эфф}}} \quad (1)$$

Под интенсивностью понимаем мощность излучения единицы объема в 4π телесный угол на всех длинах волн.

Учитывая (1), получаем мощность излучения от факела:

$$P_{\text{изл}} = 4\varepsilon\sigma_B T^4 \cdot S \quad (2)$$

где S – площадь боковой поверхности факела.

С другой стороны, мощность тепловыделения в результате горения равна:

$$P_{\text{хим}} = WC_f q = qC_f v \cdot \frac{\pi d^2}{4} \quad (3)$$

где $q = 1.2 \cdot 10^4$ Дж/г – тепловой эффект реакции ($Zr + O_2$); v – скорость подачи газозвеси; d – диаметр горелки.

В результате, разделив (2) на (3), получаем долю излучения в тепловом балансе факела:

$$\eta = \frac{P_{\text{изл}}}{P_{\text{хим}}} = \frac{8\varepsilon\sigma_B T^4 h}{d \cdot v \cdot C_f q} \approx 0.21 \pm 0.03 \quad (4)$$

Из проведенного анализа видно, что роль излучения в теплообмене ЛДДФ Zr сводится к теплотерям, которые составляют около 20% от общего тепловыделения. Следует отметить, что вычисления величин интегральных световых потоков проводились на базе данных для видимого и ближнего ИК - диапазона длин волн. Иначе говоря, в предположении постоянства ε_λ . Насколько это верно, можно судить лишь на основе измерений величин световых потоков в ИК-диапазоне длин волн. Такие измерения были проведены с помощью пироэлектрического приемника МГ-30 для $\lambda = 2 \div 20$ мкм. Оказалось, что интегральная светимость $R_{2-20} = 5300 \pm 700$ Вт/м². После расширения результата измерений с помощью функции Планка на весь диапазон длин волн получаем: $R_\phi = 14000 \pm 2000$ Вт/м².

С другой стороны, результаты вычислений $R = \varepsilon\sigma_B T^4$ показали, что $R_\phi = 13500 \pm 2000$ Вт/м².

Видно хорошее согласие результатов. Таким образом, можно считать, что спектральная испускательная способность фронта ЛДД факела ε_λ в достаточно широком интервале длин волн от 0.3 до 20 мкм меняется несущественно. Это облегчает учет излучения в теплообмене. К сожалению, ε_λ не является первичной информацией и зависит от ряда параметров горячей системы, таких как концентрация частиц, протяженность источника, факторов эффективности поглощения Q_a и рассеяния Q_s . Эти безразмерные оптические характеристики зависят как от характерного размера частицы, действительной и мнимой частей комплексного показателя преломления $\tilde{n} = n - i \cdot \chi$ (и, как следствие, температуры), так и от длины волны излучения λ . Расчеты Q_a и Q_s , как правило, проводятся с использованием теории Ми. При этом исходной информацией является \tilde{n} . Параметр n слабо зависит от температуры и поэтому хорошо известен, в то

время как χ может быть экспоненциальной функцией температуры. Исследованию оптических характеристик ZrO_2 при высоких температурах и посвящен следующий раздел.

Оптические константы оксида циркония при температурах горения

При высоких температурах оксид циркония можно отнести к полупроводникам, что видно из экспоненциальной зависимости электропроводности σ от температуры, которые ограничены величиной $T = 2273$ К. Данные для температуры, реализующейся при горении Zr $T \approx 2500$ К и выше, отсутствуют. Можно, однако, ожидать, что результаты [5, 6] допускают экстраполяцию в область высоких температур. Сказанное требует экспериментальной проверки. Отметим, что электропроводность ZrO_2 нас интересует в связи с тем, что от нее зависит мнимая часть показателя преломления χ в соответствии с соотношением [7]:

$$\chi(T) = \frac{\lambda \sigma(T)}{4\pi \epsilon_0 n c} \quad (5)$$

Мнимая часть показателя преломления χ является исходной информацией при расчете факторов эффективности поглощения Q_a и рассеяния Q_s . Впрочем, последние, при условии, что $\chi \ll n$, слабо зависят от χ и определяются, главным образом, действительной частью показателя преломления, величина которого весьма слабо зависит от температуры.

Другой аспект решаемой в данном разделе задачи связан с проверкой зависимости $\chi(\lambda)$, что позволит убедиться в справедливости формулы (5) и в надежности результатов измерений мнимой части показателя преломления при высоких температурах.

Определение величины χ для различных длин волн проводилось следующим образом. По результатам измерений спектральной светимости r_λ ЛДДФ циркония и по ширине фронта определялась спектральная интенсивность излучения I_λ конденсированной фазы ZrO_2 согласно (1).

Интенсивность I_λ с учетом полидисперсности может быть представлена в виде:

$$I_\lambda = N_k \cdot r_{\lambda b} \int 4\pi r^2 Q_a(r) \cdot f(r) dr = \frac{4r_\lambda}{L_{эфф}} \quad (6)$$

где $f(r)$ - функция распределения частиц по размерам. Функция $f(r)$ определялась на основе дисперсного анализа. Было установлено, что распределение частиц по размерам подчиняется логнормальному закону:

$$f(r) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \gamma r} \exp\left(-\left(\ln^2\left(\frac{r_0}{r}\right)\right)/(2\gamma^2)\right), \quad (7)$$

где $\gamma = 0.5$; $r_0 = 2.1$ мкм.

В соответствии с [1] полагаем, что величина Q_a равна испускательной способности частиц ZrO_2 . Принимая во внимание, что спектральный коэффициент поглощения для единичной концентрации представляет собой интеграл:

$$\beta_{a\lambda} = \int_0^{\infty} Q_a(r, \lambda) \pi r^2 f(r) dr, \quad (8)$$

и учитывая, что $\varepsilon_{\lambda} = \frac{\Gamma_{\lambda}}{\Gamma_{\lambda b}}$, из (8) получаем:

$$\beta_{a\lambda} = \frac{\varepsilon_{\lambda}}{L_{\text{эфф}} \cdot N_k} \quad (9)$$

С другой стороны, величину $\beta_{a\lambda}$ можно рассчитать с использованием теории Ми и функции распределения $f(r)$ для различных значений мнимой части показателя преломления χ и длины волны λ .

Для заданной λ расчетным путем подбиралось такое значение χ , при котором вычисленная величина $\beta_{a\lambda}$ равнялась $\beta_{a\lambda \text{эксп}}$, найденной экспериментально согласно соотношению (9). Результаты вычислений представлены на рис.2. Видно, что χ зависит от λ практически по линейному закону:

$$\chi = A + B \cdot \lambda = \chi_1 + \chi_2(\lambda) \quad (10)$$

где $A = (1.2 \pm 0.12) \cdot 10^{-4}$; $B = (6.4 \pm 0.16) \cdot 10^{-3} \text{ мкм}^{-1}$. Согласно (10), χ представимо в виде суммы двух слагаемых: постоянной составляющей χ_1 и зависящей от длины волны χ_2 , причем $\chi_2 \sim \lambda$, что соответствует зависимости (5).

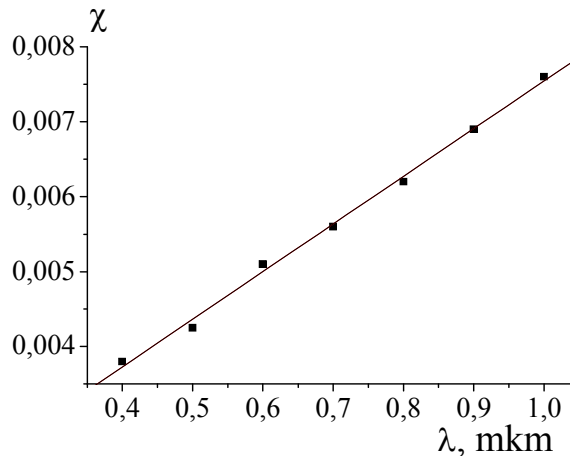


Рис. 2. Мнимая часть показателя преломления оксида циркония при $T \approx 2510 \text{ К}$

Таким образом, χ_2 связано с взаимодействием излучения и электронов зоны проводимости, что и обуславливает ее экспоненциальную зависимость от температуры. Физический смысл первого слагаемого не очевиден, однако вклад его в поглощение излучения по крайней мере при $T \sim 2500 \text{ К}$ и выше в видимом и ИК-диапазонах длин волн не столь существенен. Найдем теперь по данным измерений величину электропроводности σ для ZrO_2 при температуре $T = 2510 \text{ К}$, имея в виду, что $\sigma_1 = B \cdot 4 \pi \varepsilon_0 \cdot n c \approx 470 \text{ Ом} \cdot \text{м}^{-1}$.

Сравним полученный результат с данными [5, 6], которые были экстраполированы в область высоких температур. Для $T = 2510 \text{ К}$ получили:

$$\sigma_2 = (230 \pm 60) \text{ Ом} \cdot \text{м}^{-1}.$$

Видно, что найденная величина σ_1 практически вдвое превышает результат экстраполяции данных [5, 6]. Возможно, это связано с температурной зависи-

мостью ширины запрещенной зоны ZrO_2 или с тем, что горящие частицы циркония представляют собой раствор Zr и ZrO_2 . Тем не менее, в первом приближении температурную зависимость $\chi(T)$ можно учесть на основе соотношения (7) и функции $\sigma(T)$, найденной по данным [5, 6]:

$$\sigma(T) = \sigma_0 \cdot T^{3/2} \cdot \exp(-10000/T) \quad (11)$$

Используя соотношения (5), (10), (11), окончательно получаем:

$$\chi(T, \lambda) = 1.2 \cdot 10^{-4} + 2.7 \cdot 10^{-6} \cdot T^{3/2} \cdot \exp(-10000/T) \cdot \lambda \quad (12)$$

В формуле (12) длина волны λ измеряется в мкм.

О степени надежности полученного выражения (12) можно судить, сравнивая результаты расчетов и измерений спектральной светимости факела r_λ частиц Zr с существенно отличающейся температурой к-фазы. Были проведены измерения r_λ ламинарного предварительно перемешанного факела (ЛППФ) газовзвеси частиц циркония. Несущим газом являлся окислитель. Для обеспечения 100% полноты сгорания частиц в ЛППФ создавался избыток окислителя (3÷5). Концентрация горючего и скорость подачи сохранялись такими же, как и в ЛДДФ (см. табл. 1). Однако параметры факела и дисперсный состав продуктов сгорания оказались отличными. Помимо "крупной" фракции с наиболее вероятным радиусом 2.1 мкм появилась "мелкая" фракция – 0.01 мкм, причем массовая доля последней достигала 30%. Очевидно, что в этом случае горение не является чисто гетерогенным. Основные параметры факела представлены в таблице 2 и определялись согласно методикам, описанным выше.

Фотография факела приведена на рис. 3.



Рис.3. Внешний вид ЛППФ циркония

Табл. 2. Основные параметры ЛПП - факела Zr

Температура к-фазы во фронте факела T_k , К	3580 ± 70
Высота факела, см	3-5
Ширина фронта факела $L_{эфф}$, мм	1.5-2
Концентрация частиц ("крупная" фракция) во фронте факела N_k , $см^{-3}$	$(2 \pm 0,3) \cdot 10^5$
Диаметр устья горелки, d, мм	16

На рис. 4 представлены результаты расчетов спектральной светимости ЛППФ в приближении аддитивного вклада в световой поток обеих фракций. Вычисления проводились с использованием формул (6), (12) и теории Ми. Из рис. 4 видно, что результаты измерений (2) и расчетов (3) находятся в неплохом согласии. Причем, результаты 3, учитывающие наличие во фронте факела 30% мелкой фракции, лучше описывают результаты измерений, чем результаты 1, полученные в предположении чисто гетерогенного горения. Интересно отметить, что ведущую роль в излучении факела циркония играют микронные частицы. Образование мелкой фракции, массовая доля которых составляет 30%, приводит к снижению приблизительно на такую же величину спектральной светимости. Эта особенность может использоваться при качественном анализе выхода мелкой фракции.

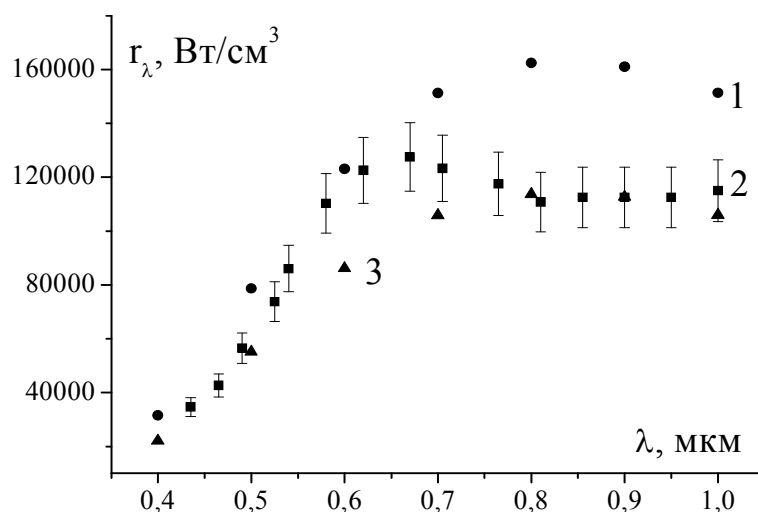


Рис. 4. Спектральная светимость ЛППФ циркония (эксперимент – 2; расчет – 1, 3)

Результаты измерений позволили выявить (по схеме, описанной выше и соотношению (4)) роль излучения в тепловом балансе ЛППФ циркония, достигающую величины $\eta = 0,3 \pm 0,05$.

Выводы

Экспериментальные исследования спектральной светимости показали, что ЛДДФ циркония в спектральном диапазоне $0,35 \div 1$ мкм можно считать серым источником излучения. Это позволило определить с использованием полицветового метода температуру истинную температуру к-фазы во фронте факела, которая оказалась равной 2510 ± 70 К. Такая температура обеспечивает боль-

шие световые потоки, влияющие на теплообмен. Оценки роли излучения (на базе данных для видимого и ближнего ИК - диапазона длин волн) в теплообмене ЛДДФ циркония показали, что она сводится к теплотерям, которые составляют около 20% от общего тепловыделения. Для ЛППФ циркония она достигает величины 30%. При температурах, развивающихся во фронте факела, оксид циркония можно считать полупроводником. Это позволяет по результатам измерений спектральной светимости и с использованием теории Ми предложить зависимость вида $\chi(T, \lambda) = 1.2 \cdot 10^{-4} + 2.7 \cdot 10^{-6} \cdot T^{3/2} \cdot \exp(-10000/T) \cdot \lambda$, применимой для температур свыше 2500 К и широкого спектрального диапазона. Также проведена оценка вклада субмикронной фракции оксида циркония, образующейся в ЛППФ циркония, в его излучение, что позволяет по результатам спектральных исследований оценить долю субмикронной фракции.

Литература

1. Борен К. Ф., Хафмен Д.Р. Поглощение и рассеяние света малыми частицами. – М: Мир, – 1986. – 660 с.
2. Агеев Н. Д., Вовчук Я. И., Горошин С. В., Золотко А. Н., Полетаев Н. И. Стационарное горение газозвесей твердых горючих. Ламинарный диффузионный факел // Физика горения и взрыва. – 1990. – Т. 26, № 6. – С. 54-62.
3. Золотко А.Н., Вовчук Я.И., Полетаев Н.И., Флорко А.В. Синтез нанооксидов в двухфазных ламинарных пламенах // Физика горения и взрыва. – 1996. – Т.32, №3. – С. 24-33.
- 4.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.
5. Самсонов Г.В. Физико-химические свойства окислов. – М.: Металлургия, 1978. – 471 с.
6. Таблицы физических величин: Справочник / Под ред. акад. Кикоина И.К. - М.: Атомиздат, – 1976. – 1006 с.
7. Уханов Ю. И. Оптические свойства полупроводников. – М.: Наука, 1977. – 368 с.

Е.П.Ильченко, М.І. Полетаєв, Т.А. Флорко, А.В. Флорко
Випромінювальні характеристики пилових полум'їв
частинок цирконію

АНОТАЦІЯ

У статті наведені основні характеристики ламинарного дисперсного дифузійного (ЛДДФ) та ламинарного попередньо перемішаного (ЛППФ) факелів цирконію. Запропоновано методику визначення оптичних характеристик та температури конденсованої фази, що утворюється у ЛДДФ цирконію. Показано,

що об'єкт, що досліджується, можна вважати сірим джерелом випромінювання у спектральному діапазоні $0.35\div 1$ мкм. Втрати тепла випромінюванням у теплообміні ЛДДФ Zr становлять близько 20% від загального тепловивільнення, а у ЛППФ цирконію – 30%. Залежність уявної частини показника заломлення від температури та довжини хвилі для оксиду цирконію для температур вищих за 2500 К апроксимована аналітичним виразом. Оцінений внесок масової долі субмікронної фракції у випромінювання ЛППФ цирконію, що дозволяє оцінити її вміст у кінцевому продукті.

E.P. Ilchenko, N.I. Poletaev, T.A. Florko, A.V. Florko

Radiation Characteristics of the Dust Flames of Zirconium Particles

SUMMARY

The main features of laminar diffusion disperse (LDDF) and laminar premixed (LPF) flames of zirconium are presented in the article. The methodic that allows determining of optical characteristics and the temperature of the condensed phase forming in LDDF Zr is offered. It's shown that the investigated object can be considered as a gray radiator in the spectral range $0.35\div 1$ mkm. The radiation losses of heat in heat-transfer of LDDF of zirconium are about 20% of the general produce of heat, and are 30% for LPF of zirconium. The dependence of imaginary part of complex refractive index on temperature and wavelength for zirconium oxide for temperatures higher than 2500 K is approximated by the analytical formula. The contribution of mass share of submicron fraction to the radiation of LPF Zr is evaluated. It allows to evaluate its content in the final product.