

УДК 535.333

ИЗМЕРЕНИЕ СТЕПЕНИ СМЕШЕНИЯ УГЛЕРОДОСОДЕРЖАЩИХ ГАЗОВ С ВОЗДУХОМ МЕТОДОМ СПЕКТРОСКОПИИ ИЗЛУЧЕНИЯ ПРОБНОГО РАЗРЯДА

© 2019 г. А. А. Фирсов¹*, С. Б. Леонов¹, М. А. Шурупов¹, Д. А. Яранцев¹¹Объединенный институт высоких температур РАН, Москва, Россия

*E-mail: af@ijht.org

Поступила в редакцию 14.12.2018 г.

После доработки 14.03.2019 г.

Принята к публикации 27.03.2019 г.

Предложен метод оценки степени смешения углеводородных топлив с воздухом и азотом, основанный на спектральном анализе излучения маломощного высоковольтного электрического разряда. В качестве аналитических полос выбраны полосы переходов $N_2(C^3P_u \rightarrow B^3P_g, 0-2)$ и $CN(B^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Sigma^+, 0-0)$. Проведена серия калибровочных измерений для нескольких модельных смесей. Определен диапазон применимости метода по отношению к концентрации углеродосодержащего газа. Предлагаемый подход использован для оценки эффективности интенсификации смешения струи газообразного топлива с воздухом при помощи мощного импульсного разряда.

DOI: 10.1134/S0040364419050053

ВВЕДЕНИЕ

Исследования процессов смешения в многокомпонентных средах требуют проведения измерений пространственного распределения и динамики состава газовой среды. Если лимитирующим фактором является кинематическое перемешивание, например, в случае турбулентного сверхзвукового потока химически реагирующих веществ [1–3], метод измерений концентраций должен обладать особенно высоким временным и пространственным разрешением. Для измерения состава простых смесей широкое распространение получили методы, в основе которых лежит диссоциация среды в ограниченной области с дальнейшим анализом атомного состава плазмы. В настоящее время широко используется метод LIBS, в котором для диссоциации газа применяется лазерная искра, а состав плазмы анализируется на основе эмиссионных спектров [4, 5]. Данный метод обладает пространственным и временным разрешением на уровне $\sim 3 \times 1$ мм и ~ 10 нс соответственно. К его недостаткам относятся трудное использование при низком давлении из-за повышения порога лазерного пробоя и высокая стоимость лазерной системы. В данной работе рассмотрена модификация метода LIBS, в которой для диссоциации газа предлагается использовать электрический искровой разряд, используемый в исследуемой области при помощи импульсного высоковольтного источника питания. Такой разряд в дальнейшем будем называть пробным. Предлагаемый метод спектроскопии пробного

разряда обладает по сравнению с методом LIBS несколько худшими пространственным ($\sim 10 \times 3$ мм) и временным (~ 100 нс), определяемым длительностью разряда, разрешениями, которые, однако, достаточны для большинства приложений, включая измерение степени смешения в сверхзвуковом потоке.

Сам по себе метод определения состава газовой смеси по спектру излучения электрического разряда хорошо известен и широко применяется в аналитической химии [6–8]. Также известны работы, например [9, 10], в которых спектральный анализ применен для оценки локальной степени смешения компонент в сверхзвуковом потоке. Однако в этих работах состав смеси анализируется посредством спектрального анализа собственного излучения плазмы высокоэнтальпийного потока.

Описываемая работа состояла из двух серий экспериментов. В первой серии была проведена калибровка системы измерений с несколькими модельными смесями (рис. 1а). Измерения проводились для трех разных смесей: $CO_2/воздух$, N_2/CO_2 и N_2/C_2H_4 . Выбор газов для исследования обусловлен задачами горения, при этом CO_2 является модельным газом, имитирующим углеродосодержащее топливо. Смесь $C_2H_4/воздух$ в экспериментах не применялась из-за возможности воспламенения. Вторая серия экспериментов была посвящена применению разработанного метода для оценки эффективности смешения лами-

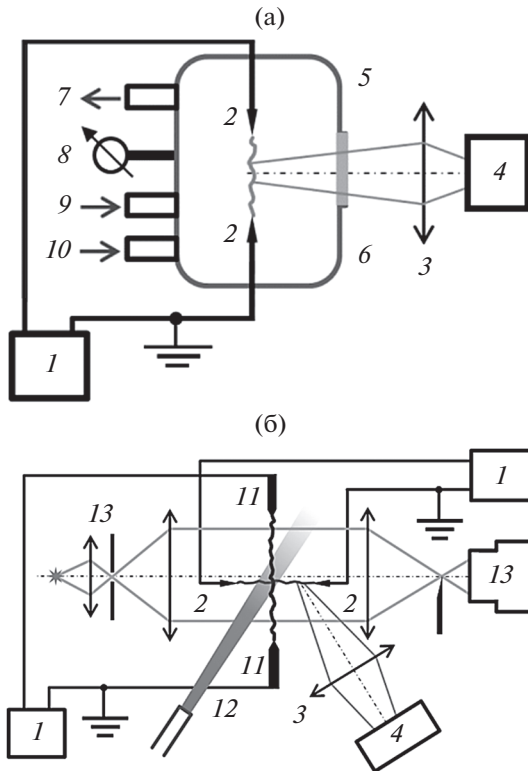


Рис. 1. Схемы калибровочных измерений (а) и определения концентрации CO_2 (б) в эксперименте с ламинарной струей: 1 – высоковольтный источник, 2 – электроды пробного разряда, 3 – линза, 4 – монохроматор и спектроскопическая камера, 5 – тестовая камера, 6 – оптическое окно, 7 – вакуумная откачка, 8 – манометр, 9 – подача газа № 1, 10 – подача газа № 2, 11 – электроды перемешивающего разряда, 12 – ламинарная струя, 13 – оптическая система Тейлера.

нарной струи CO_2 с воздухом под воздействием мощного импульсного разряда (рис. 1б).

ОПИСАНИЕ МЕТОДА

Основу калибровочной установки составляла герметичная камера с контролируемым составом газов, в которой между электродами создавался пробный электрический разряд (рис. 1а). Излучение пробного разряда при помощи собирающей оптики направлялось на входную щель светосильного монохроматора. Для измерений использовался монохроматор МДР-2 с дифракционной решеткой 1200 мм^{-1} и спектроскопической камерой ANDOR-DU420, установленной вместо выходной щели. Такая система позволяла получать спектры в интервале $\Delta\lambda = 20 \text{ нм}$ со спектральным разрешением 0.25 нм с минимальным временем экспозиции 2 мс .

Для возбуждения пробного разряда использован источник высокого напряжения на основе трансформатора Теслы с импульсным возбужде-

нием. Для снижения влияния на газодинамические характеристики удельный энерговклад в разряд ограничен, для чего в качестве нагрузки трансформатора использована паразитная емкость вторичной обмотки и в цепь разряда добавлена резистивная нагрузка, рассеивающая большую часть энергии. Такая схема источника питания позволила получить высоковольтные импульсы с амплитудой до 90 кВ , длительностью импульса менее 400 нс и энерговкладом в разряд на уровне $0.1\text{--}0.2 \text{ Дж}$, что сопоставимо с энерговкладом в лазерную искру при использовании метода LIBS.

Нестационарность и стохастический характер процессов смешения определяют необходимость проведения измерений за один импульс пробного разряда. При учете относительно небольшого спектрального интервала измерений критически важным становится выбор спектральных компонент излучения исследуемых веществ. Наличие углерода и азота в представляющих интерес смесях позволило выбрать для измерений спектральный диапазон $370\text{--}390 \text{ нм}$, содержащий близко расположенные характерные полосы азота и циана, образующегося в разрядной плазме: $\text{N}_2(\text{C}^3\text{P}_u \rightarrow \text{B}^3\text{P}_g, 0\text{--}2)$ с кантом $\lambda = 380.3 \text{ нм}$ и $\text{CN}(\text{B}^2\Sigma^+ \rightarrow \text{X}^2\Sigma^+, 0\text{--}0)$ с кантом $\lambda = 388.3 \text{ нм}$.

В серии калибровочных экспериментов в качестве основного газа использовался воздух или азот при атмосферном давлении. К основному газу подмешивался вторичный газ (CO_2 или C_2H_4) с контролируемой концентрацией (парциальным давлением). Спектры излучения пробного разряда в указанном спектральном диапазоне для смеси воздуха с CO_2 представлены на рис. 2а. Спектр излучения пробного разряда в воздухе и азоте в данном диапазоне содержит только секвенцию полос второй положительной системы азота $\text{N}_2(\text{C}^3\text{P}_u \rightarrow \text{B}^3\text{P}_g, \Delta v = -2)$. При увеличении парциального давления вторичного газа интенсивности полос азота снижаются, и появляется интенсивная секвенция полос $\Delta v = 0$ фиолетовой системы CN (переход $\text{B}^2\Sigma^+ \rightarrow \text{X}^2\Sigma^+, \Delta v = 0$). Видно, что полоса азота накладывается на вращательную структуру полос циана, что вносит дополнительную погрешность в измерения. На рис. 2а также представлен результат расчета спектра, проведенный в программе SpecAir. Этот расчет позволяет получить информацию об основных параметрах плазмы пробного разряда. В данном случае наилучшее совпадение модельного и экспериментального спектров происходит при следующих значениях температур: $T_{tr} = T_r = 7000 \text{ К}$, $T_v = 10000 \text{ К}$, где T_{tr} , T_r , T_v – поступательная, вращательная и колебательная температуры соответственно. Соотношение мольных долей излучающих компонент в модельном спектре следующее: $x(\text{N}_2) = 0.77\%$, $x(\text{O}_2) = 0.18\%$, $x(\text{CN}) = 0.05\%$.

Соотношение интенсивностей указанных выше спектральных полос зависит от соотношения компонент газовой смеси в области, из которой производится сбор излучения. В данной работе для аналитического описания степени смешения использовалось соотношение интенсивностей $S = I_{CN}(\lambda_1 = 388.3 \text{ нм}) / (I_{CN}(\lambda_1 = 388.3 \text{ нм}) + I_{N_2}(\lambda_2 = 380.5 \text{ нм}))$. Калибровочные кривые строились как зависимость указанного показателя от парциального давления вторичного газа (рис. 2б). Предлагаемый метод, с одной стороны, демонстрирует высокую чувствительность в области малых концентраций; с другой стороны, выбранный показатель подвержен насыщению при высоких относительных концентрациях вторичного газа. Использование в качестве аналитической полосы азота $N_2(C^3P_u \rightarrow B^3P_g, 0-0, 337.1 \text{ нм})$ позволило бы значительно отодвинуть предел насыщения. Спектр пробного разряда более чувствителен к содержанию этилена в смеси, чем CO_2 , поэтому при добавлении этилена насыщение наступает уже при парциальном давлении вторичного газа $\sim 13 \text{ кПа}$, в то время как в экспериментах с углекислым газом насыщение наблюдается при давлении $\sim 20 \text{ кПа}$. Повышенная чувствительность метода к парциальному давлению этилена связана, по-видимому, с большим массовым содержанием углерода в C_2H_4 по сравнению с CO_2 . Таким образом, предложенный метод спектроскопии пробного разряда применим для определения малых концентраций вторичного углеродсодержащего газа – до парциального давления 13 кПа , что подходит для его использования в задачах горения, так как в указанный диапазон попадают стехиометрические и близкие к ним смеси [11]. Для сравнения, парциальное давление этилена в стехиометрической смеси с воздухом при атмосферном давлении $P = 6.2 \text{ кПа}$. Следует еще раз отметить, что в данной постановке метод демонстрирует различную чувствительность для модельного газа (CO_2) и топлива (C_2H_4) и требует отдельной калибровки для каждой смеси.

ИЗМЕРЕНИЕ СТЕПЕНИ СМЕШЕНИЯ СТРУИ CO_2 С ВОЗДУХОМ

Ранее было показано, что генерация газодинамических возмущений после пробоя протяженного искрового разряда позволяет значительно ускорить процесс смешения [3], однако количественных экспериментальных данных по оценке эффективности искрового разряда для перемешивания представлено не было. Предлагаемый в настоящей работе метод измерений был опробован при исследовании интенсификации смешения струи CO_2 с окружающим воздухом с помощью такого разряда. Схема проведения эксперимента показана на рис. 1б. Высоковольтный субмикросекундный разряд длиной 50 мм с мощностью

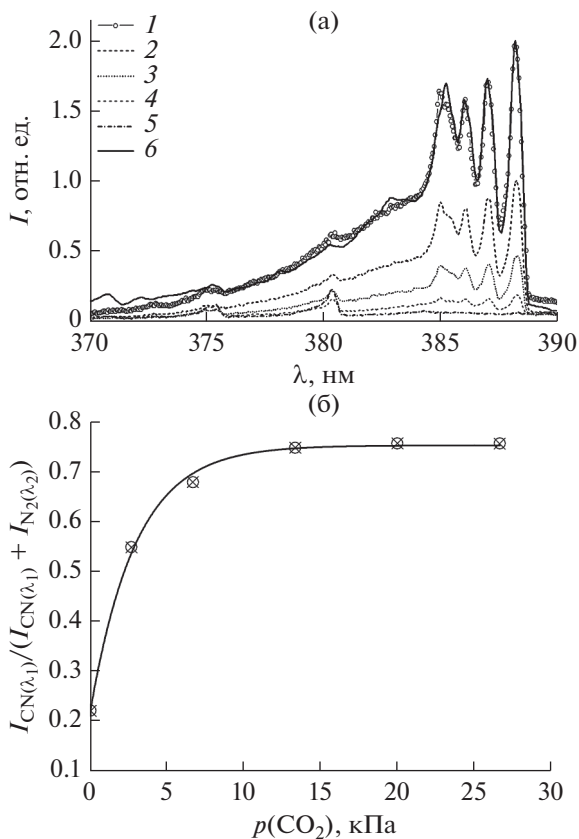


Рис. 2. Спектры излучения пробного разряда (а) для различных парциальных давлений CO_2 в смеси с воздухом ($I - P(CO_2) = 26.6 \text{ кПа}$, 2 – 13.3, 3 – 6.7, 4 – 2.7, 5 – 0) и их сравнение с расчетным спектром при $T_{tr} = T_r = 7 \text{ кК}$, $T_v = 10 \text{ кК}$ для 5% CN в воздухе (б); (б) – калибровочная кривая для смеси воздуха с CO_2 .

энерговклада до 100 МВт возбуждался в среде с высоким градиентом концентраций компонент между двумя газами. Неоднородность создавалась в атмосферном воздухе при помощи ламинарной струи вторичного газа. Интенсивные газодинамические возмущения струйного типа, возникающие при распаде мощного импульсного разряда [12], инициируют смешение ламинарной струи CO_2 с окружающим воздухом. Скорость распространения газодинамических возмущений, вызванных основным разрядом, составляет $\sim 100 \text{ м/с}$, что с учетом экспериментальной геометрии приводит к задержке в $150\text{--}200 \text{ мкс}$ между возбуждением основного (смешивающего) разряда и появлением газодинамических возмущений в области измерений.

Перпендикулярно смешивающему разряду возбуждался пробный разряд длиной 25 мм с регулируемой задержкой относительно основного импульса. Использование двух электродных систем, расположенных в непосредственной близости

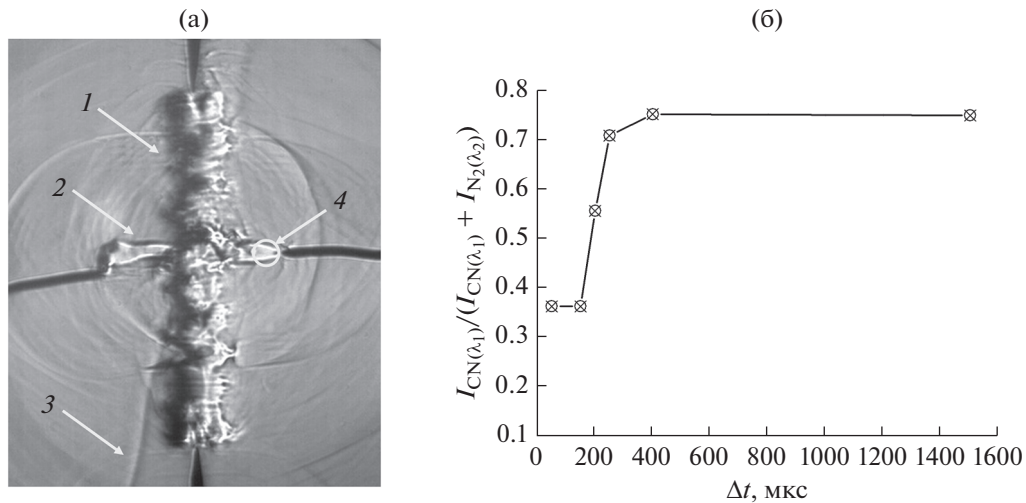


Рис. 3. Визуализация методом Теплера (а) при задержке выполнения измерений 150 мкс и зависимость соотношения интенсивностей (б) от задержки между разрядами ($\lambda_1 = 388.3$ нм, $\lambda_2 = 380.5$ нм): 1 – перемешивающий разряд, 2 – пробный разряд, 3 – ламинарная струя CO_2 , 4 – область фокусировки спектроскопической системы.

сти друг от друга, искажает конфигурацию электрического поля для каждого из разрядных промежутков, что накладывает ограничения на конфигурацию электродов. Экспериментально установлено, что наименьшее взаимодействие разрядов обеспечивает конфигурация с плавающим потенциалом дополнительных электродов и соизмеримыми межэлектродными расстояниями основного и дополнительного разрядов, как показано на рис. 3а. Другой аспект взаимодействия разрядов определяется временем задержки между их возбуждением. Экспериментально было установлено, что задержка между импульсами должна быть не менее 50 мкс. При меньших задержках остаточная проводимость плазмы основного разряда и газодинамические возмущения от его стримерной фазы воздействуют на геометрию пробного разряда, делая ее непредсказуемой. Тепловая визуализация газодинамических возмущений от основного и пробного разрядов в процессе измерения показана на рис. 3а.

В описанной выше разрядной конфигурации были проведены измерения зависимости отношения интенсивностей аналитических спектральных полос от задержки между разрядами. Излучение собиралось из области размером менее 3 мм (рис. 3а), расположенной на расстоянии 10 мм от невозмущенной струи углекислого газа. В отсутствие основного разряда спектр пробного разряда содержал излучение CN низкой интенсивности, соответствующей парциальному давлению CO_2 около 1.3 кПа. При наличии струи и задержке $t < 150$ мкс соотношение S не отличается от случая отсутствия струи, так как газодинамическим возмущениям от смешивающего разряда требуется определенное время, чтобы до-

стичь области измерений. Увеличение задержки инициирования пробного разряда приводит к появлению в спектре интенсивной полосы излучения CN ($B^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Sigma^+, 0-0$), как показано на рис. 3б. При задержке, превышающей 300 мкс, соотношение интенсивностей достигает насыщения, т.е. парциальное давление CO_2 в смеси к этому моменту увеличивается до 20 кПа.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе применительно к задаче исследований физических методов интенсификации кинематического перемешивания продемонстрирована возможность измерения относительной концентрации углеродосодержащего газа в воздухе с помощью анализа спектра излучения пробного искрового разряда. Высокая чувствительность метода позволяет производить измерения малых концентраций веществ. Малый поперечный размер разряда $d < 1$ мм и его длительность $t < 1$ мкс определяют достаточно высокое временное и пространственное разрешение метода для большинства приложений. Использование электрического искрового разряда вместо лазерного пробоя существенно снижает стоимость системы измерений и делает измерения возможными в условиях пониженного давления, где лазерный пробой проблематичен. Предложенный подход также не лишен недостатков. Наличие дополнительных электродов может привести к газодинамическим возмущениям при исследовании течений, а использование высокого напряжения предъявляет дополнительные технические требования к экспериментальной установке. Дальнейшая модификация метода может быть направлена на увеличение пределов измеряемой концентрации.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 18-08-01452).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Dessornes O., Jourden C.* Mixing Enhancement Techniques in a Scramjet // AIAA 1998-1517. 1998. <https://doi.org/10.2514/6.1998-1517>
2. *Pandey K.M., Sivasakthivel T.* Recent Advances in Scramjet Fuel Injection – A Review // Int. J. Chem. Eng. Appl. 2010. V. 1. № 4. P. 294. <https://doi.org/10.7763/IJCEA.2010.V1.52>
3. *Firsov A.A., Savelkin K.V., Yarantsev D.A., Leonov S.B.* Plasma-enhanced Mixing and Flameholding in Supersonic Flow // Phil. Trans. A. 2015. V. 373. № 2048. <https://doi.org/10.1098/rsta.2014.0337>
4. *Radziemski L.J., Cremers D.A.* Handbook of Laser-induced Breakdown Spectroscopy. N.Y.: John Wiley, 2006. 302 p.
5. *Tropea C., Yarin A.L., Foss J.F.* Springer Handbook of Experimental Fluid Mechanics. Berlin–Heidelberg: Springer, 2007. 1557 p.
6. *Зайдель А.Н.* Основы спектрального анализа. М.: Наука, 1965. 399 с.
7. *Очкин В.Н.* Спектроскопия низкотемпературной плазмы. М.: Физматлит, 2006. 472 с.
8. *Бочкова О.П., Шрейдер Е.Я.* Спектральный анализ газовых смесей / Под ред. Фриша С.Э. М.: Физматгиз, 1963. 307 с.
9. *Deng X.L., Nikiforov A. Yu., Vanraes P., Leys Ch.* Direct Current Plasma Jet at Atmospheric Pressure Operating in Nitrogen and Air // J. Appl. Phys. 2013. V. 113. 023305. <https://doi.org/10.1063/1.4774328>
10. *Babou Y., Lequang D., Chazot O., Surzhikov S. T., Dikaljuk A.S., Panarese A., Cicala G., Longo S., Hoffman J., Szumanski Z., Kaminska A., Dudeck M., Vacher D.* Thermodynamic Characterization of High-Speed and High-Enthalpy Plasma Flows // Open Plasma Phys. J. 2014. V. 7. P. 155. <https://doi.org/10.2174/1876534301407010155>
11. *Кузнецов В.Р., Сабельников В.А.* Турбулентность и горение. М.: Наука, 1986.
12. *Шурупов М.А., Леонов С.Б., Фирсов А.А., Яранцев Д.А., Исаенков Ю.И.* Газодинамические неустойчивости при распаде канала субмикросекундного искрового разряда // ТВТ. 2014. Т. 52. № 2. С. 186.