

КРИТИЧЕСКИЕ И УСТОЙЧИВЫЕ УСЛОВИЯ ТЕПЛОМАССО- ОБМЕНА ЧАСТИЦ КАТАЛИЗАТОРА ПРИ ГЕТЕРОГЕННОМ ОКИСЛЕНИИ МАЛЫХ СОДЕРЖАНИЙ ГОРЮЧИХ И ТОКСИЧНЫХ ГАЗООБРАЗНЫХ ВЕЩЕСТВ

*Калинчак В.В., Черненко А.С., Калугин В.В.,
Одесский национальный университет имени И.И. Мечникова,
Софронков А.Н.,
Одесская национальная академия связи им А.С. Попова*

В работе с учетом массообмена газообразных компонентов и теплообмена излучением проводится анализ критических условий воспламенения и погасания малого содержания горючего или токсичного газообразного вещества в воздухе на частице катализатора. Основное внимание уделяется рассмотрению влияния температуры газа, концентрации горючего, а также диаметра катализатора. Показана роль теплообмена излучением на образование второго верхнего предела воспламенения и погасания по диаметру, а также в понижении критической температуры катализатора при воспламенении ниже температуры газа. Установлена роль массообмена газообразных веществ и теплообмена излучением на критическое значение температуры вырождения критических условий. Ключевые слова: гетерогенный катализ, горючие и токсичные газы, воспламенение, погасание, вырождение, массообмен, теплообмен излучением.

Постановка проблемы. Охрана жизни человека и атмосферы от ядовитых и горючих газообразных веществ в настоящее время является актуальной проблемой [1-3]. Транспорт является одним из главных источников загрязнения атмосферы газами, среди которых угарный газ, окислы азота и серы. Единственным коммерчески доступным средством, позволяющим эффективно улучшать экологические показатели транспортных средств и снизить выброс вредных веществ, остается их оснащение каталитическими нейтрализаторами. Эффективность катализатора во многом определяется размером частиц платиновых металлов, нанесенных на носитель с развитой поверхностью.

В целом проблема охраны окружающей среды имеет два пути решения. Первый путь направлен на создание приборов (каталитические газоанализаторы), способных измерить малые концентрации токсичных и горючих газообразных веществ в воздухе (аммиак NH_3 , водород H_2 , угарный газ CO , сернистый ангидрид SO_2 и др.). Второй путь состоит в превращении токсичных и взрывоопасных веществ в целевые продукты, с выделением полезной энергии путем применения установок аэрозольного катализа.

Для эффективного решения перечисленных задач необходимо знание критических и устойчивых условий тепломассообмена катализатора с окружающим газом, которые определяются следующими параметрами:

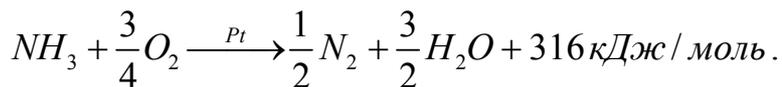
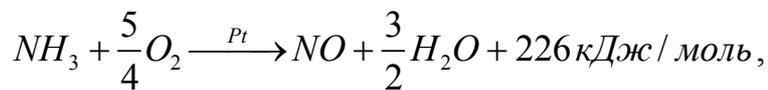
- интервалы размеров частиц катализаторов;
- концентрации горючих и токсичных газообразных реагентов;
- температура и давление окружающей газовой среды.

Это позволит прогнозировать режимы для обеспечения устойчивого протекания высокотемпературных процессов окисления и теплообмена на поверхности частиц катализатора.

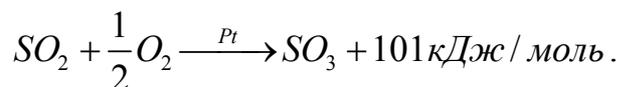
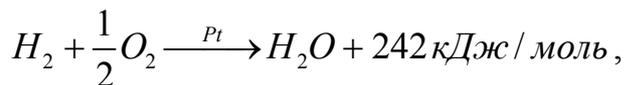
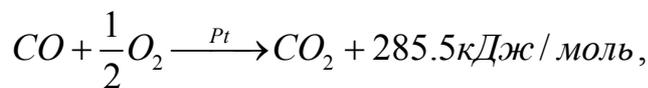
Цель данной работы – выяснение механизма протекания гетерогенно-каталитических реакций, роли процессов теплообмена излучением и массопереноса газообразных реагентов в процессах каталитического горения, критических условий воспламенения и погасания газов на поверхности частицы катализатора.

Степень изученности проблемы. Анализ литературы [4-5] показал, что малоизученными вопросами являются: детальный механизм ряда гетерогенно-каталитических реакций, роль теплообмена и влияние теплообмена излучением.

Изложение основного материала. В работе в качестве примера выбрано каталитическое окисление аммиака на платиновом шарике, которое может протекать согласно уравнениям



Аналогичные результаты можно получить, рассматривая следующие гетерогенно-каталитические реакции:



Считаем, что в гетерогенно-каталитической реакции согласно ударному механизму молекулы горючего газообразного вещества, находящегося в недостатке в газе, сталкивается с адсорбированной на поверхности молекулой окислителя, образуя продукты реакции. Скорость гетерогенно-каталитической реакции прямо пропорциональна относительной массовой концентрации горючего, при его содержании в газе в недостатке. При протекании этой реакции выделяется энергия, которая идет на нагревание катализатора.

Формально примем, что изменение температуры катализатора, на поверхности которого протекает экзотермическая гетерогенно-каталитическая реакция, с течением времени определяется химическим тепловыделением, а уменьшение – в результате теплоотдачи к окружающим телам (газу и стенкам реакционной установки):

$$\frac{V_c}{S_c} c_c \rho_c \frac{dT}{dt} = q_{eff}, \quad T(t=0) = T_b \quad (1)$$

$$q_{eff} = q_{ch} - q_g - q_w = q_{ch} - q_h, \quad q_{ch} = Q_a W_a,$$

$$W_a = k \rho_{gs} C_{as}, \quad k = k_0 \exp\left(-\frac{E}{RT}\right),$$

$$q_w = \varepsilon \sigma (T^4 - T_w^4), \quad q_g = \alpha (T - T_g).$$

$$C_{as} = C_a (1 + \psi_{td}) \left(1 + \frac{k}{\beta}\right)^{-1} = C_a (1 + \psi_{td}) \cdot (1 + Se)^{-1}, \quad Se = \frac{k}{\beta_a}$$

$$\psi_{td} = 2 \left(\frac{T - T_g}{T + T_g} \right) Lu^m (2 - n), \quad \alpha = \beta \tilde{n}_g \rho_g Lu^{-1+m},$$

$$\beta_a = \frac{D_a Nu}{d}, \quad \frac{1}{8} < m < \frac{1}{3},$$

где q_{ch} – поверхностная плотность химического тепловыделения, Вт/м²; q_g – плотность теплового потока молекулярно-конвективным путем от частицы к окружающему газу, Вт/м²; q_w – плотность теплообмена излучением между частицей и холодными стенками установки, Вт/м²; Q_a – тепловой эффект реакции, рассчитанный на килограмм горючего, Дж/кг; W_a – скорость гетерогенно-каталитической реакции, кг/м²с; \tilde{N}_{as} , \tilde{N}_a – относительная массовая концентрация активного компонента на поверхности катализатора и в окружающем газе; k – константа гетерогенно-каталитической реакции, м/с; Se – кинетическое число Семенова (диффузионно-кинетическое отношение), $Lu = D_a/a_g$ – критерий Льюиса, D_a – коэффициент концентрационной диффузии активного компонента, м²/с; a_g – коэффициент температуропроводности газа, м²/с; ψ_{td} – поправка на термодиффузию, ρ_g – плотность газовой смеси, кг/м³; T , T_g , T_w – температура поверхности катализатора, газа и стенок, К, Nu – число Нуссельта; d – диаметр сферического катализатора, м; n – показатель степени в зависимости коэффициента диффузии от температуры (от 1,5 до 2).

Для выше указанной реакции число Льюиса $Lu \approx 1$ и вкладом термодиффузии горючего компонента можно пренебречь.

В тоже время при определении содержания горючего газа в газовой среде часто пользуются относительной объемной концентрацией C_{av} , которая связана с относительной массовой C_a соотношением

$$C_{av} = C_a \frac{M_g}{M_a},$$

где M_g , M_a – молярные массы газа и горючего вещества.

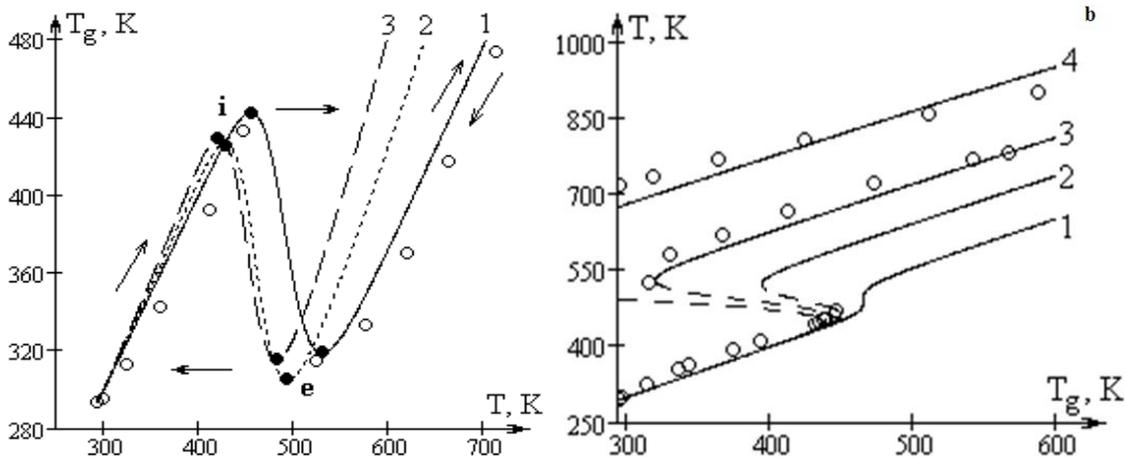


Рисунок 1 – а) зависимость температуры газа от стационарной температуры сферического катализатора при относительной объемной концентрации 3.1% (при $T_w = 293$ К): 1) $d/Nu = 200$ мкм, 2) $d/Nu = 2000$ мкм, 3) $d/Nu = 4000$ мкм; б) зависимость стационарной температуры сферического катализатора $d/Nu = 200$ мкм от температуры газовой среды при различных относительных объемных концентрациях аммиака в воздухе (при $T_w = 293$ К): 1) 0.8%, 2) 2.0%, 3) 3.1%, 4) 5.2%. Сплошные линии – устойчивые режимы, пунктирные – неустойчивые критические состояния, соответствующие влиянию начальной температуры катализатора, о – экспериментальные точки для $C_{av} = 3.1\%$ и 5.2% [6]

Определение критических условий. Устойчивые и критические режимы теплообмена на поверхности частицы катализатора, которые определяются температурой газовой среды, концентрацией горючего газообразного вещества, температурой и диаметром катализатора, находятся из условия стационарности (1)

$$q_{eff}(T, T_g, C_a, d) = Q_a \rho_g C_a k \left(1 + \frac{k}{\beta}\right)^{-1} - \beta c_g \rho_g (T - T_g) - \varepsilon \sigma (T^4 - T_w^4) = 0.$$

Из условия стационарности температуры катализатора получим зависимость температуры газа от стационарной температуры определенного размера катализатора при постоянной концентрации горючего в воздухе:

$$T_g = T - \frac{1}{\alpha} \left[C_a \frac{Q_a \rho_g k_0}{(1 + Se)} \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) - \varepsilon \sigma (T^4 - T_w^4) \right]. \quad (2)$$

Все стационарные состояния, которые образуются в результате изменения температуры газа и, следовательно, изменения температуры катализатора (рис.1) описывается дифференциальным уравнением:

$$\frac{\partial q_{eff}}{\partial T} \partial T + \frac{\partial q_{eff}}{\partial T_g} \partial T_g = 0 \text{ или } \frac{\partial T_g}{\partial T} = - \frac{\partial q_{eff}}{\partial T} / \frac{\partial q_{eff}}{\partial T_g}.$$

В критических точках i и e , соответствующих каталитическому зажиганию и потуханию газов, выполняется условие Семенова $\partial q_{eff} / \partial T = 0$ и, так как величина $\partial q_{eff} / \partial T_g$ всегда положительна, то $\partial T_g / \partial T = 0$. Вырождение критических и гистерезисных условий отвечает $\partial^2 T_g / \partial T^2 = 0$.

При достижении температуры газа и температуры частицы катализатора критических значений (точка i , каталитическое зажигание, максимум на зависимости $T_g(T)$) происходит скачкообразный переход на высокотемпературную ветвь. Дальнейшее увеличение температуры газа приводит к практически линейному росту температуры катализатора.

Если на высокотемпературной ветви уменьшать температуру газа, то при достижении критических значений T_g и T (точка e , каталитическое потухание, минимум на зависимости $T_g(T)$) произойдет скачкообразный переход на низкотемпературную ветвь (рис. 1а). Интервал $T_{ge} < T_g < T_{gi}$ описывает влияние T_g на критические значения начальной температуры, при которых начинается вынужденное каталитическое зажигание (гистерезисный режим).

Именно выбор в качестве основной реакции окисления аммиака до оксида азота NO (реакция с меньшим тепловым эффектом) позволил получить согласование с экспериментальными данными (рис. 1а).

Расчеты проводились при следующих значениях параметров: $E = 139$ кДж/моль, $k_0 = 13 \cdot 10^{13}$ м/с, $Q_a = 13.3$ МДж/кгNH₃; $\rho_g = 0.785$ кг/м³, $c_g = 1040$ Дж/(кг·К), $\lambda_g = 0.035$ Вт/(м·К), $D_a = 0.429 \cdot 10^{-4}$ м²/с (свойства воздуха рассчитаны для температуры 450 К), $\varepsilon = 0.15$.

Увеличение диаметра катализатора приводит к монотонному понижению температуры каталитического горения газов в связи с увеличением относительной роли теплообмена излучением. В тоже время значения температур воспламенения T_{gi} и погасания T_{ge} проходят через минимум (рис. 1а).

С уменьшением концентрации горючего площадь гистерезисной петли уменьшается и при некотором значении происходит вырождение критических условий (рис. 1б). Например, для частицы диаметром $d/Nu = 200$ мкм объемная концентрация горючего, соответствующая вырождению, равна 0.8%. При этом температура газа близка к 465 К.

Зависимости критических температур каталитического воспламенения T_{gi} и погасания T_{ge} от концентрации горючего компонента представим в параметрическом виде, применив условие экстремума на зависимости (2)

температуры газа от стационарной температуры частицы катализатора $\partial T_g / \partial T = 0$:

$$\begin{cases} T_{gi,e} = T + \frac{\varepsilon\sigma(T^4 - T_w^4)}{\alpha} - \frac{RT^2}{E} \cdot \frac{(k + \beta)}{\beta} \cdot \left(1 + \frac{4\varepsilon\sigma T^3}{\alpha}\right) \\ C_{avi,e} = \frac{M_g}{M_a} \left(1 + \frac{4\varepsilon\sigma T^3}{\alpha}\right) \frac{c_g RT^2}{Q_a E} \frac{(k + \beta)^2}{k\beta} \end{cases} \quad (3)$$

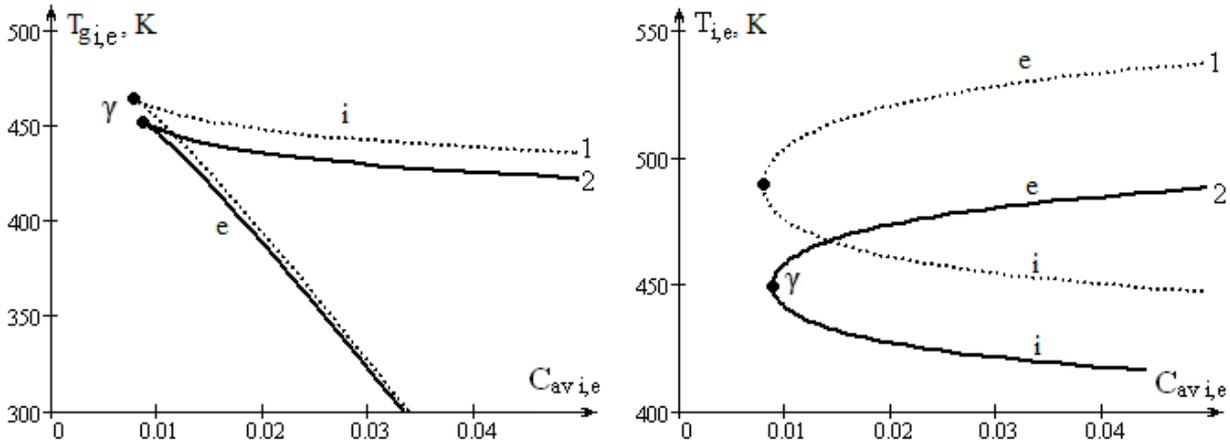


Рисунок 2 – Зависимость температуры воспламенения и погасания газа (а) и критических температур катализатора (б) от концентрации горючего для катализатора (при $T_w = 293$ К): 1) $d/Nu = 200$ мкм, 2) $d/Nu = 4000$ мкм

На рис. 2 представлены зависимости критических температур воспламенения и погасания газа и соответствующих температур катализатора от концентрации горючего двух диаметров частицы катализатора. Качественно данные зависимости для различных диаметров похожи: увеличение концентрации активного горючего компонента ведет к уменьшению температур воспламенения T_{gi} и погасания T_{ge} газа. Критическая температура катализатора при погасании T_e возрастает. Следует отметить слабую зависимость температуры воспламенения газа T_{gi} от концентрации активного компонента в области далекой от вырождения.

Для оценки параметров точки вырождения воспользуемся условием равенства второй производной по температуре $\partial^2 T_g / \partial T^2 = 0$ или условию экстремума $\partial T_{gi,e} / \partial T = 0$. В результате получим температуру катализатора в точке вырождения в виде

$$T_\gamma = \frac{E}{2R} \cdot \left(\frac{1 - k/\beta}{1 + k/\beta}\right) \cdot \left(\frac{1 + 4\varepsilon\sigma T^3/\alpha}{1 + 10\varepsilon\sigma T^3/\alpha}\right) \quad (4)$$

Полученное выражение позволяет увидеть, что учет массопереноса газообразных компонентов реакции существенно уменьшает температуру

вырождения в сравнении с классическим значением $T_{\gamma 0} = E/2R$. В этой точке число Семенова близко, но меньше единицы ($Se = k/\beta \approx 1$). Влияние теплотеря на излучение с холодными стенками установки более слабо.

Для определения диаметра катализатора в точке вырождения, используем известное приближение $\alpha = c_g \rho_g \beta$, в результате из (4) получим квадратное уравнение для определения числа Семенова

$$A_\gamma \left(\frac{k}{\beta} \right)^2 + 2B_\gamma \frac{k}{\beta} - C_\gamma = 0,$$

где $A_\gamma = \frac{4\varepsilon\sigma T^3}{kc_g\rho_g} \left(1 + \frac{5RT}{E} \right)$, $B_\gamma = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{2RT}{E} - \frac{4\varepsilon\sigma T^3}{kc_g\rho_g} \left(1 - \frac{5RT}{E} \right) \right)$, $C_\gamma = 1 - \frac{2RT}{E}$.

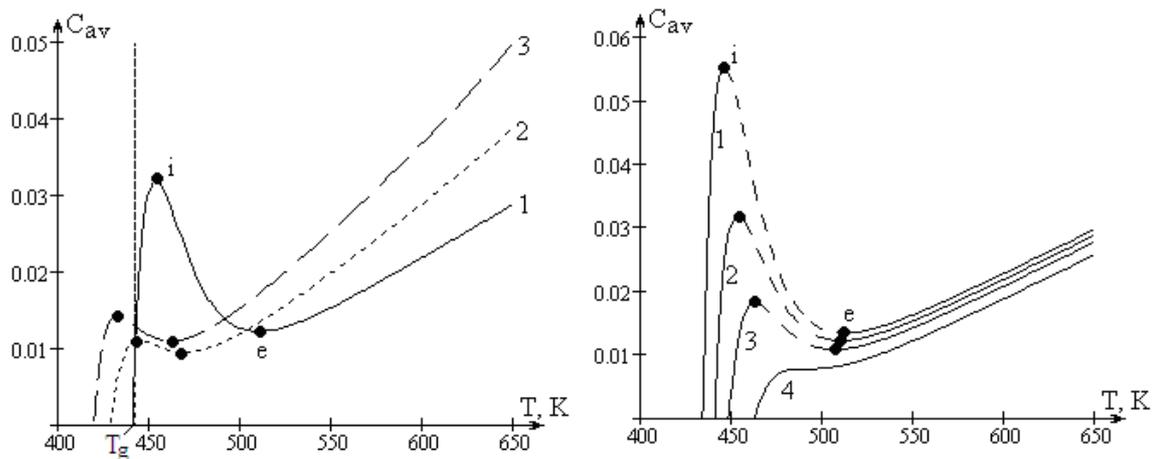


Рисунок 3 – Зависимость относительной объемной концентрации горючего в воздухе от стационарной температуры сферического катализатора (при $T_w = 293$ К):

- а) при постоянной температуре газа $T_g = 442$ К для частиц катализатора: 1) $d/Nu = 200$ мкм, 2) $d/Nu = 2000$ мкм, 3) $d/Nu = 4000$ мкм;
- б) для частицы размером $d/Nu = 200$ мкм при различных температурах газа: 1) $T_g = 430$ К, 2) $T_g = 442$ К, 3) $T_g = 450$ К, 4) $T_g = 465$ К. Сплошные линии – устойчивые режимы, пунктирные – неустойчивые критические состояния, соответствующие влиянию начальной температуры катализатора

Решение квадратного уравнения представим в виде

$$\frac{d}{Nu|_\gamma} = \frac{D_a}{k} \cdot \frac{C_\gamma}{\left(B_\gamma + \sqrt{B_\gamma^2 + A_\gamma C_\gamma} \right)}.$$

Соответствующие значения температуры газа и концентрации горючего определяются после подстановки в (3).

Влияние размера катализатора на критические условия. Для анализа критических условий в зависимости от диаметра частицы удобно рассмотреть все стационарные состояния (устойчивые и критические) по

температуре катализатора, определяемые концентрацией активного компонента, в виде зависимости:

$$C_{av} = \frac{M_g}{M_a} \left(\frac{\beta}{k} + 1 \right) \left(\frac{c_g (T - T_g)}{Q_a} + \frac{\varepsilon \sigma (T^4 - T_w^4)}{Q_a \beta \rho_g} \right).$$

Можно показать, что на стационарной зависимости $C_{av}(T)$, максимум характеризует критическое условие самопроизвольного воспламенения (т.і), а минимум – критическое условие погасания (т.е).

Поведение температуры катализатора с изменением концентрации горючего можно описать следующим образом (рис. 3а). В режиме низкотемпературного окисления температура катализатора слабо возрастает с ростом концентрации горючего. При достижении T_i происходит скачкообразный переход на устойчивый высокотемпературный режим каталитического горения газов на поверхности частицы катализатора. Температура каталитического горения также растет с ростом C_{av} . С обратным уменьшением C_{av} температура каталитического горения уменьшается и при достижении C_{ave} и T_e происходит погасание каталитической химической реакции.

В интервале $C_{avi} < C_{av} < C_{ave}$ наблюдается аномальное уменьшение стационарной температуры катализатора с ростом концентрации горючего C_{av} (неустойчивые критические состояния, соответствующие влиянию начальной температуры катализатора T_{bi}). При начальной температуре катализатора больше соответствующего значения на стационарной кривой $C_{av}(T_{bi})$ температура катализатора с течением времени будет расти, пока не достигнет устойчивой температуры каталитического горения. Если взята начальная температура катализатора $T_b < T_{bi}$, то температура катализатора будет уменьшаться, приближаясь к температуре низкотемпературного окисления.

С увеличением диаметра частицы катализатора при условии холодных стенок установки значения концентрации активного компонента в газе, соответствующих воспламенению и погасанию, также проходят через минимум. При этом температура воспламенения катализатора уменьшается и для крупных частиц оказывается меньше температуры газа (рис. 3а).

Увеличение температуры газа, также как и уменьшение концентрации горючего, приводит к вырождению критических условий (рис. 3б).

Критические условия воспламенения (т.і) и погасанию (т.е) определяется условием $\partial C_{av} / \partial T = 0$. Применяя его совместно с условием стационарности (4), получим в параметрическом виде выражения для диаметров катализатора и концентрации горючего, соответствующих воспламенению и погасанию

$$\left\{ \begin{aligned} \left. \frac{d}{Nu} \right|_{i,e} &= \frac{D_a}{k} \cdot \left(\frac{T - T_g}{RT^2/E} - 1 \right) \cdot \frac{1}{\left(B \pm \sqrt{B^2 + AC} \right)} \\ C_{ai,e} &= \frac{c_g RT^2}{Q_d E} \left(1 + C + D + \frac{1+C}{C} \left(B \pm \sqrt{B^2 + AC} \right) + \frac{DC}{B \pm \sqrt{B^2 + AC}} \right) \end{aligned} \right\}, \quad (5)$$

$$A = \frac{4\varepsilon\sigma T^3}{k\rho_g c_g}, \quad D = \frac{\varepsilon\sigma(T^4 - T_w^4)}{k\rho_g c_g RT^2/E}, \quad 2B = 1 - D + A, \quad C = \frac{T - T_g}{RT^2/E} - 1$$

На рис. 4 представлена залежність критичного значення концентрації горючого від розміра частини каталізатора. При даній температурі газу існує дві критичні залежності концентрації від діаметра частини, на яких спостерігається мінімум.

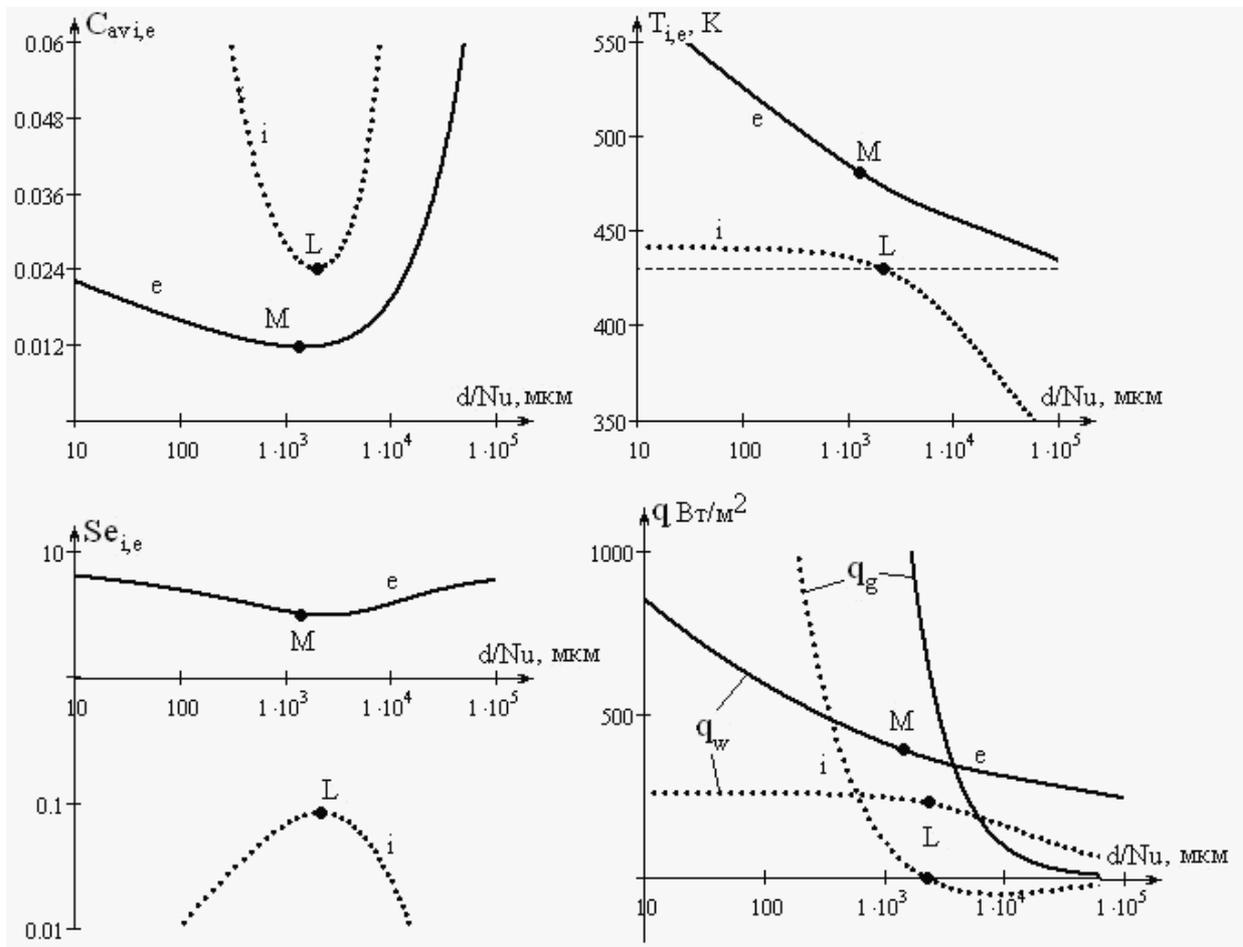


Рисунок 4 – Залежність критичних значень концентрації горючого (а), температури (б) каталізатора, числа Семенова (с) і теплових потоків (д) від діаметра частини при $T_g = 430$ К, $T_w = 300$ К з урахуванням теплових втрат на випромінювання

Верхню криву (т.і, рис. 4а) назовемо кривою запалення. При малих діаметрах частини з ростом розміру зменшується тепловіддача к

более холодному газу (рис. 4d). Поэтому для воспламенения можно понизить концентрацию активного компонента в газовой среде. Вблизи точки минимума критическая температура воспламенения частицы близка к температуре газовой среды (практически равны). При дальнейшем увеличении диаметра газ уже нагревает частицу (критическая температура частицы меньше температуры газа), но тем меньше, чем больше размер частицы. Помимо этого увеличивается относительная роль теплотерь на излучение.

Таким образом, для воспламенения необходимо повысить концентрацию горючего. Влияние диаметра частицы на химическое тепловыделение мало, т.к. химическая реакция в критических точках протекает практически в кинетической области ($Se_i < 0.2$, рис. 4c). Нижний предел воспламенения по диаметру определяется теплотерями с газом молекулярно-конвективным путем, а теплотери на излучение определяют верхний предел.

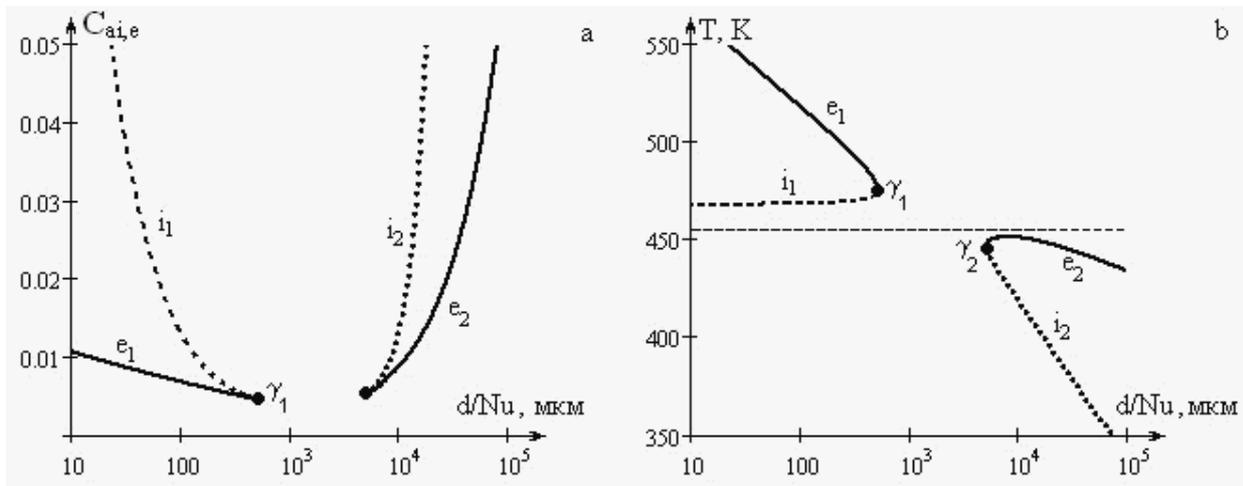


Рисунок 5 – Зависимость критических значений концентрации горючего (а), температуры (б) катализатора от диаметра частицы при $T_g = 455$ К, $T_w = 300$ К

Следовательно, можно ввести определенный критерий, который позволит разделить всю область диаметров на мелкие ($d < d_{min}$) и крупные ($d > d_{min}$). Для этого определим минимум на зависимости $C_{avi}(d/Nu)$ при условии протекания химической реакции в кинетической области, т.е., используем условия стационарности (4), $\partial C_a / \partial T = 0$ и $\partial C_a / \partial d = 0$. В результате чего получим:

$$\left. \frac{d}{Nu} \right|_{\min} = \frac{\lambda_g RT_g^2}{\varepsilon \sigma T_g^4 E} \left(1 - \frac{4RT_g}{E} - \frac{T_w^4}{T_g^4} \right)^{-1},$$

$$C_{av\min} = \frac{M_g}{M_a} \frac{\varepsilon \sigma (T_g^4 - T_w^4)}{Q_a k_0 \rho_g} \exp\left(\frac{E}{RT_g} \right).$$

Оценка этих значений для $T_g = 430$ К, $T_w = 300$ К показала, что $C_{av\min} = 2.25\%$ и $d/Nu|_{\min} = 2000$ мкм.

Нижнюю кривую (т.е.) назовем кривой погасания (рис. 4а). При параметрах системы, находящимися между кривыми воспламенения и погасания, наблюдается гистерезисный режим. Частица может перейти на высокотемпературный режим окисления путем увеличения ее начальной температуры выше критического значения.

Качественно ход кривой напоминает кривую воспламенения. При малых частицах основную роль в теплопотери вносит теплоотдача к более холодному газу. Поэтому необходимо уменьшить концентрацию активного компонента для вынужденного перехода на высокотемпературный режим окисления. Уменьшение с ростом диаметра массопереноса горючего к поверхности частицы и, следовательно, химического тепловыделения существенное (число Семенова $Se_e > 1$), но не определяющее. Поэтому темп падения критического значения концентрации с ростом диаметра более пологий, чем в случае кривой воспламенения.

В ростом диаметра увеличивается относительная роль в общих теплопотерях теплообмена излучением, а также уменьшается массоперенос горючего к поверхности частицы и, следовательно, химическое тепловыделение. Таким образом, для вынужденного перехода на высокотемпературный режим окисления необходимо помимо повышения начальной температуры повысить концентрацию активного компонента.

Как отмечалось ранее, при увеличении температуры газа происходит вырождение критических условий (рис. 5). Учет теплопотерь излучением приводит к появлению двух точек вырождения для мелких и крупных частиц катализатора. Критические температуры воспламенения T_i и погасания T_e крупных частиц катализатора меньше, чем температура нагретого газа, т.е. частица нагревается от газа.

Следовательно, существует область изменения диаметров катализатора $d_{\gamma_1} < d < d_{\gamma_2}$, внутри которых происходит самопроизвольные переходы на высокотемпературный режим окисления независимо от начальной температуры и практически при любой концентрации активного компонента. При уменьшении концентрации горючего для этой области диаметров температуры каталитического горения приближаются к эффективной температуре окружающей среды, т.е. происходит вырождение высокотемпературного окисления. Анализ показал, что именно теплопотери на излучение приводят к появлению некоторого минимального значения температуры газа, выше которой наблюдается две точки (условия) вырождения, а ниже – их отсутствие.

Выводы. Сравнение с экспериментальными данными по температуре каталитического горения газов на катализаторе позволяет установить механизм протекания гетерогенно-каталитической реакции.

В результате анализа зависимостей температуры газа и концентрации горючего от стационарной температуры катализатора в параметрическом виде получены зависимости критических значений размера частицы, концентрации окислителя и температуры газа от температуры катализатора, соответствующих каталитическому воспламенению и погасанию малых содержаний горючих и токсичных газообразных веществ на катализаторе.

За счет возрастания роли теплообмена излучение для достаточно крупных частиц катализатора возникает верхний предел воспламенения и погасания по диаметру катализатора.

Предлагаемый метод исследования критических условий позволил дополнительно в аналитическом виде описать вырождение критических условий теплообмена катализатора с газом и установить роль теплообмена и теплообмена излучением.

Данная методика предсказания режимов работы частиц катализаторов позволит создавать новые катализаторы, не содержащих драгоценных металлов, для диагностики и утилизации горючих и токсичных веществ нужных малых концентраций в воздухе.

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННОЙ ЛИТЕРАТУРЫ

1. Попова Н. М. Катализаторы очистки газовых выбросов промышленных производств / Н. М. Попова. – М. : Химия, 1991. – 176 с.
2. Матрос Ю. Ш. Обезвреживание газовых выбросов промышленных производств / Ю. Ш. Матрос, А. С. Носков // Успехи химии. – 1990. – Т. 59, №10. – С. 1700-1727.
3. Гликин М. А. Аэрозольный катализ // Теоретические основы химической технологии. – 1996. – Т. 30, №4. – С. 430-434.
4. Критические условия и период индукции поверхностного горения газов на частицах катализатора / В. В. Калинин, А. Н. Софронков, А. С. Черненко, А. А. Мойса, А. А. Головкин // Космический вызов XXI века. – 2012. – Т. 4. – С. 134-138.
5. Калинин В. В. Критические и устойчивые условия теплообмена химически активной частицы для реакции первого порядка / В. В. Калинин, А. С. Черненко, А. А. Мойса // Физика аэродисперсных систем. – 2009. – № 46. – С. 28-38.
6. Франк-Каменецкий Д. А. Диффузия и теплопередача в химической кинетике. – М. : Наука, 1987. – 502 с.

Калінчак В.В., Черненко О.С., Калугін В.В., Софронков О.М. КРИТИЧНІ ТА СТИЙКІ УМОВИ ТЕПЛОМАСООБМІНУ ЧАСТИНОК КАТАЛІЗАТОРА ПРИ ГЕТЕРОГЕННОМУ ОКИСЛЕННІ МАЛОГО ВМІСТУ ГОРЮЧИХ І ТОКСИЧНИХ ГАЗОПОДІБНИХ РЕЧОВИН

В роботі з врахуванням масообміну газоподібних речовин і теплообміну випромінюванням проводиться аналіз критичних умов займання і погасання малого вмісту горючої або токсичної газоподібної речовини в повітрі на частинці каталізатора. Основну увагу приділяється розгляду впливу газу, концентрації горючого, а також діаметру каталізатора. Показана роль теплообміну випромінюванням на утворення другої верхньої межі займання і погасання по діаметру, а також в зниженні критичної температури каталізатора при займанні нижче температури газу. Встановлена роль масообміну газоподібних речовин і теплообміну випромінюванням на критичне значення температури виродження критичних умов.

Ключові слова: гетерогенний каталіз, горючі та токсичні гази, займання, погасання, виродження, масообмін, теплообмін випромінюванням.

Kalinchak V.V., Chernenko A.S., Kalugin V.V., Sofronkov A.N. CRITICAL AND STEADY CONDITIONS OF CATALYST PARTICLES EXCHANGE WHILE HETEROGENEOUS OXIDATION OF SMALL CONTENT OF COMBUSTIBLE AND TOXIC GASEOUS SUBSTANCES

The analysis of critical conditions of ignition and putting down of the small content of combustible or toxic gaseous substance in the air on a catalyst particle is carried out in the work, taking into account mass exchange of gaseous substances and heat exchange by means of radiation. The basic attention is given to consideration of gas, fuel concentration, and also diameter of the catalyst influence. The role of heat exchange by means of radiation on formation of the second top limit of ignition and putting out on diameter is shown, and also in fall of catalyst critical temperature at ignition below gas temperature. The role of gaseous substances mass exchange and heat by means of radiation on critical value of temperature of critical conditions degeneration is established.

Keywords: heterogeneous catalysis, combustible and toxic gases, ignition, putting down, degeneration, mass exchange, heat exchange by radiation.