

ОБ АДЕКВАТНОСТИ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ И ТЕОРЕТИЧЕСКИХ МОДЕЛЕЙ ПРОЦЕССОВ ГОРЕНИЯ

А. Г. Мержанов¹, В. И. Быков²

¹Институт структурной макрокинетики и проблем материаловедения РАН, 142432 Черноголовка
merzh@ism.ac.ru

²Российский химико-технологический университет им. Д. И. Менделеева, 125047 Москва

Проведен анализ проблемы адекватности экспериментальных и математических моделей процессов горения. Предложена классификация степени адекватности используемых моделей, включающая в себя четыре уровня. Приведены примеры, которые характеризуют различную степень адекватности известных в науке о горении математических моделей и экспериментальных представлений.

Ключевые слова: горение, математические модели, адекватность модели.

ВВЕДЕНИЕ

В научных исследованиях теоретического и экспериментального характера всегда интересно знать, как соответствуют друг другу полученные результаты. Однако нередко такое сравнение не дает удовлетворения не по причине ошибок, допущенных исследователями, а из-за неадекватности рассматриваемых экспериментальных и теоретических представлений и моделей. Вопрос о том, как связаны выводы научно-исследовательских работ с адекватностью используемых моделей, фактически не изучен.

Под экспериментальной моделью в данной работе понимается совокупность физико-химических представлений о природе изучаемого процесса; в качестве математической модели традиционно принимается система соответствующих законов сохранения, записанная в математической форме. На физическом уровне строгости адекватность экспериментальных и теоретических моделей означает равенство условий, параметров и основных характеристик изучаемого процесса и сопоставляемой ему модели.

В работе сделана попытка провести анализ проблемы адекватности экспериментальных и математических моделей процессов горения. Предложена классификация степени адекватности используемых моделей, включаю-

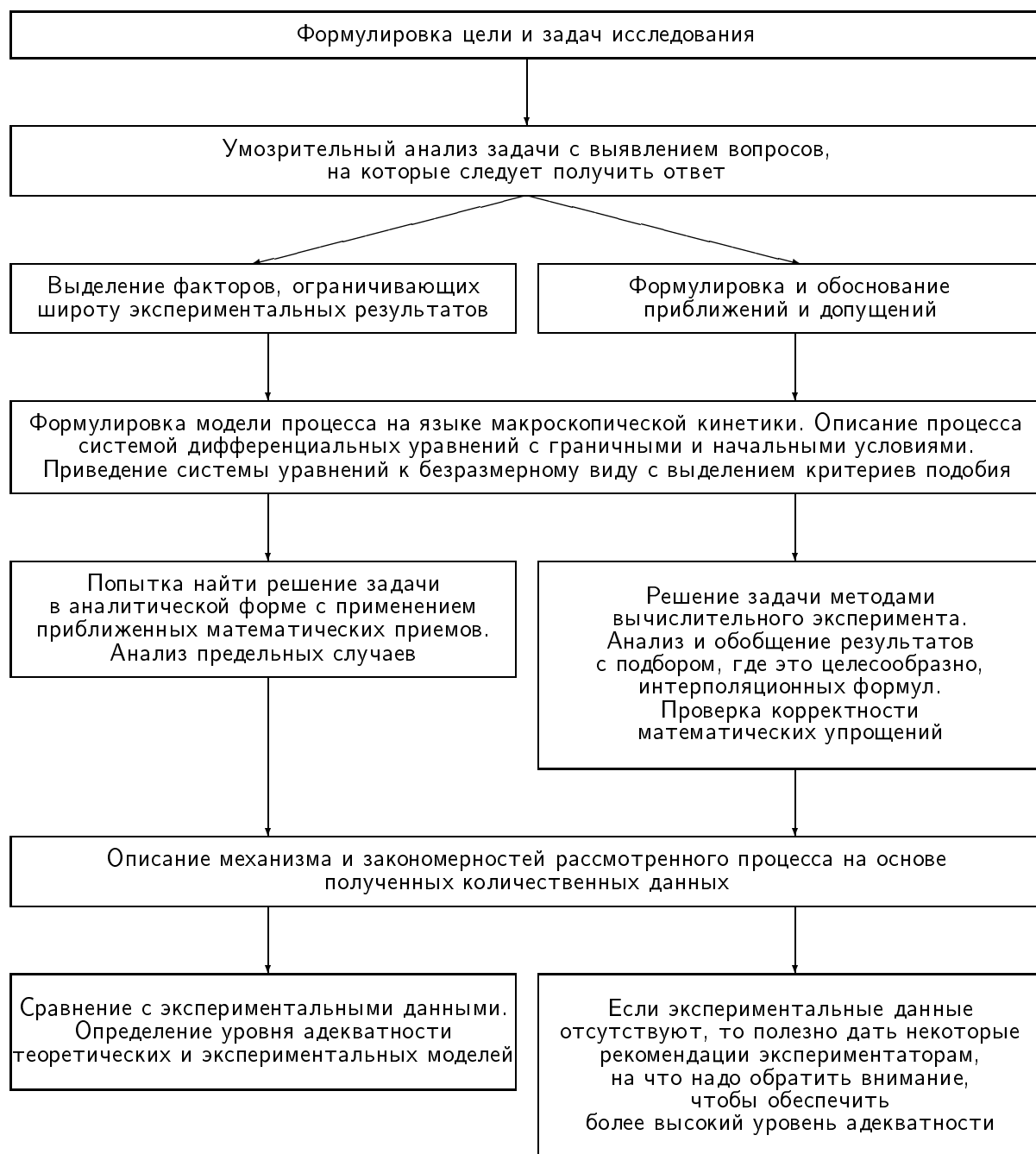
щая четыре уровня. Приведены примеры, которые характеризуют различную степень адекватности известных в науке о горении математических моделей и экспериментальных представлений.

Процессы горения очень разнообразны. Они реализуются в средах с любым агрегатным состоянием вещества, протекают в разных формах и режимах, с разной скоростью. Все это создает определенные трудности при обобщении результатов исследований. Подчеркнем, тем не менее, что изучение процессов горения привело к созданию собственного научного аппарата, который обеспечил соответствующим исследованиям возможность развития в ранге самостоятельной научной дисциплины.

Анализ состояния исследований в области горения свидетельствует о том, что постановки теоретических и экспериментальных работ не всегда согласованы, и это приводит к некоторой разобщенности результатов и выводов, так что решение одной и той же задачи разными методами не всегда дает одинаковый результат. Поэтому вопрос об адекватности моделей авторы считают весьма актуальным.

Рассмотрим эту проблему на примере типичной схемы «от теории к эксперименту», принятой в макроскопической кинетике. Как следует из приведенной здесь схемы, теоретик должен сравнивать свои результаты с данными экспериментов. Необходимо выявить, какие экспериментальные данные соответствуют его теоретическим выводам, а какие нет. Важно понять причину их несоответствия и, если оно связано с постановкой задачи, определить уро-

Работа выполнена при поддержке Федерального агентства по образованию РФ в рамках проекта по аналитической ведомственной целевой программе «Развитие научного потенциала высшей школы» (2009–2010 годы) (грант № 2.1.1/2104).



Типичная схема теоретических исследований процессов горения в макроскопической кинетике

вень неадекватности моделей. Если эксперименты подобного содержания не проводились, желательно, чтобы в теоретической статье автор изложил свои соображения по постановке эксперимента с целью проверки его теоретических предсказаний. Аналогично должен поступать экспериментатор, предлагая теоретикам описать (и, если нужно, объяснить) его экспе-

риментальные результаты.

Введем в рассмотрение четыре уровня адекватности теоретических и экспериментальных моделей и приведем несколько примеров из опыта исследования процессов твердопламенного горения.

Первый уровень адекватности. Требования к моделям этого уровня минимальны и наиболее

просты. Здесь важно, чтобы совпадала главная характеристика рассматриваемого процесса (и только она). В качестве примера приведем спиновое горение. В экспериментальной работе [1] впервые был описан обнаруженный авторами необычный режим горения, в котором реакция горения была локализована в очаге, движущемся по винтовой траектории по боковой поверхности цилиндрического образца, но объяснения этому явлению не было дано. Впоследствии были высказаны соображения о том, что спиновая волна возникает вследствие потери устойчивости плоского фронта горения к малым поперечным возмущениям и, как результат, в распавшейся зоне реакции в порядке самоорганизации возникает спиновая волна. Принципиальная возможность существования спиновой волны показана в работах [2, 3]. В дальнейшем были проведены теоретические и экспериментальные исследования, но в вопросе адекватности продвижения не было. Спиновые волны так и остались на первом уровне адекватности. Этот низший уровень адекватности имеет место в том случае, когда исследователи еще не разобрались «что к чему».

Второй уровень адекватности. Здесь должно присутствовать не только сходство процессов, но и качественное совпадение их закономерностей, т. е. хода зависимостей характеристик процесса от параметров (возрастающая, убывающая, с насыщением, с максимумом и др.). Примером могут служить зависимости упомянутых скорости и температуры стационарного режима твердопламенного горения от размера частиц реагента, плотности образца, соотношения реагентов в шихте, диаметра образца и др. [4].

Подчеркнем, что на этом уровне сравнивается только характер поведения зависимостей, а их количественное выражение может быть различным.

Третий уровень адекватности. На этом уровне требуется, чтобы зависимости каких-либо характеристик процесса от параметров совпадали не только качественно, но и количественно. Например, если расчетная зависимость скорости твердопламенного горения от размера частиц наиболее крупного реагента имеет вид $u = ar^m$, где $m = -1$, то экспериментальное определение этой зависимости должно описываться аналогичной формулой, например, вида $u = br^n$. Причем для третьего уровня адекватности должны выполняться условия

$m = n$ и $a = b$. Если $m \neq n$, адекватность «возвращается» на второй уровень. Такое же требование предъявляется и к другим характеристикам процесса.

В работе [5] впервые экспериментально были изучены волны горения 2-го рода на примере безгазового горения смесей порошков Ni и Al. Модель этого процесса соответствовала третьему уровню адекватности. Используя формулы теоретической работы [6], авторы [5] определили вид кинетической функции $Y(\eta) \sim \eta^{-1}$ и показали, что взаимодействие никеля с алюминием в волне горения происходит в режиме реакционной диффузии по гиперболическому закону.

Может оказаться, что для одних характеристик совпадения количественные, а для других — только качественные. Такие случаи будем относить ко второму уровню.

Четвертый уровень адекватности. Этот уровень предполагает абсолютное совпадение результатов: математическая модель должна полностью количественно описывать экспериментальную ситуацию, иными словами, результат экспериментов может быть полностью предсказан. По существу, четвертый уровень — это то, что называют математическим моделированием.

Но здесь возникает одна важная проблема — это незнание всех размерных параметров, необходимых для описания процесса. И вот тут-то мы часто спотыкаемся — для высокотемпературных процессов, каковым является горение, почти невозможно получить точные значения всех параметров. Если из-за этого расчетные и экспериментальные характеристики окажутся не идентичными, то, не разобравшись в причинах расхождения, нельзя отнести этот случай к четвертому уровню адекватности.

Однако выход из положения можно найти, если приравнять выражения для теоретических и экспериментальных характеристик, решить обратную задачу для коэффициентов и с их помощью определить уточненные значения размерных параметров. Такой подход может дать полезные результаты, но он совсем не исследован. Для многопараметрических задач возможны ситуации, когда система алгебраических уравнений для коэффициентов неразрешима или дает неединственное решение. В таких случаях предложенным приемом невозможно воспользоваться. Однако для малопарамет-

рических задач его наверняка можно использовать. Более того, после детальной проработки решения обратной задачи (с учетом возможности варьировать интерполяционные формулы выражающие зависимость характеристик от параметров) такой прием можно рассматривать как способ приближенного определения высокотемпературных констант.

Создание адекватных моделей может стать эффективным направлением в развитии науки о горении. Наиболее благоприятная ситуация складывается, когда теоретическая и экспериментальная модели создаются одновременно и в одном творческом коллективе. Зародыш такого подхода продемонстрировал недавно В. В. Грачев в серии работ по фильтрационному горению СВС-систем (см., например, [7, 8]).

Хочется напомнить малоизвестную историю о резкой, но по своей сути справедливой критике Д. А. Франк-Каменецким [9] теории теплового взрыва Н. Н. Семенова [10], из которой, как принято считать, «выросла» современная теория горения. В конце 20-х годов XX столетия уже было понятно, что известные из эксперимента критические условия самовоспламенения газовой смеси в сосуде могут иметь тепловую природу. Они обусловлены конкуренцией между скоростью тепловыделения при протекании реакции (теплоприходом) и скоростью теплоотдачи в окружающую среду (теплоотводом). Такие процессы Н. Н. Семенов назвал тепловым взрывом. Понимая это, он легко получил выражение для критических условий теплового взрыва, сделав два допущения:

1) реакция имеет нулевой порядок (т. е. не учитывается уменьшение концентрации исходного вещества в ходе реакции);

2) температура во всех точках реакционного объема одинакова, т. е. температура усредняется по объему и в выражении для теплоотвода появляется неопределенная величина — эффективный коэффициент теплоотдачи.

Д. А. Франк-Каменецкий, решая такую же задачу, поступил более корректно. Он, используя уравнение теплопроводности и граничные условия 1-го рода, учел распределение температуры в объеме сосуда при постоянной температуре на его поверхности. Таким образом, вместо неопределенного эффективного коэффициента теплоотдачи в задаче появилась величина с четким физическим смыслом (коэффициент теплопроводности).

циент теплопроводности).

В результате стало ясно, что теория Д. А. Франк-Каменецкого позволяет «предвычислять» критические условия возникновения теплового взрыва газа в сосуде (четвертый уровень адекватности), а теория Н. Н. Семенова — не может из-за неопределенности (третий уровень). В ходе критики было забыто, что теория Н. Н. Семенова дала очень много для понимания механизма возникновения теплового взрыва: количественно правильный ход зависимости критической температуры от размеров сосуда и давления газа смеси, малость предвзрывного разогрева, разложение аррениусовской экспоненты. Всем этим воспользовался Д. А. Франк-Каменецкий, когда разрабатывал свою теоретическую модель.

Заметим, что в то время единственными объектами исследований в этой области были газы. И специфические черты этих низкоплотных объектов исследований ограничивали широту мышления ученых, которые считали, что создание теории теплового взрыва завершено.

Примерно через 20 лет вновь возник интерес к теории теплового взрыва в связи с обеспечением безопасности изготовления крупных зарядов мощных взрывчатых веществ и твердых ракетных топлив. Появилось много новых задач, на которые существующая «газовая» теория не могла дать ответа из-за специфических характеристик конденсированных систем. Одной из таких особенностей является реальное разнообразие граничных условий при рассмотрении тепловых процессов.

В работе [11] была решена задача Д. А. Франк-Каменецкого для граничных условий 3-го рода. Было введено в рассмотрение число $Bi = \alpha r / \lambda$ (где r — радиус образца, α — коэффициент теплоотдачи от поверхности образца в окружающую среду, λ — коэффициент теплопроводности вещества), которое выражало отношение между скоростями теплопередачи внутри реагирующего объема вещества и теплоотдачи с его поверхности в окружающую среду [12]. Авторам удалось получить аналитическое выражение для критических условий, из которого следует, что изменение числа Bi от 0 до ∞ имеет два предельных случая: при $Bi \rightarrow \infty$ процесс лимитируется внутренней теплопередачей (тепло, поступившее из внутренних областей образца к его поверхности, быстро отводится в окружающую среду, и температура поверхности держится постоянной). При $Bi \rightarrow 0$,

наоборот, теплопередача внутри заряда протекает с большой скоростью, а с поверхности удаляется медленно. В этом предельном случае отсутствует распределение температур в образце, а коэффициент теплоотвода имеет четкий физический смысл и может быть определен независимо. Этот предельный случай есть не что иное, как модель Н. Н. Семенова, такая же абсолютная, как и модель Д. А. Франк-Каменецкого. По иронии судьбы, бывшие «противники» стали равноправными партнерами.

Н. Н. Семенову очень понравился этот результат, но ему показалось, что этого недостаточно, и он попросил авторов сделать адекватный эксперимент и подтвердить возможность предсказания критических условий [10]. Обеспечить безградиентность было легко. Для этого были изготовлены специальные сосуды типа сосудов Дьюара с почти теплоизолированными стенками. Но хотелось в экспериментальной модели осуществить и другое условие — найти или создать реакцию разложения конденсированного вещества нулевого порядка. И здесь авторам повезло. Они обратили внимание на взрывчатое вещество «Дина». Оно разлагалось в жидкой фазе (в расплаве) почти полностью, выделяя только небольшой конденсированный остаток, т. е. почти все вещество при разложении переходило в газообразные продукты, которые быстро удалялись из реагировавшего расплава, и в зоне реакции находилось только исходное вещество. Так было найдено вещество, реагирующее по закону реакции нулевого порядка. Заметим также, что конденсированный остаток был очень мал, его возможное каталитическое действие не проявлялось. Таким образом, тепловыделение в единице объема подчинялось реакции нулевого порядка. Ранее Г. Б. Манелисом с сотрудниками была изучена кинетика термического разложения этого вещества, и, таким образом, все необходимые, независимо полученные данные для расчета были известны. Такая тщательная подготовка к эксперименту «сказала свое слово». Был получен отличный результат, экспериментальные и расчетные значения температур отличались на величину точности измерения ($\pm 0.5^\circ$). Авторы для страховки провели еще одну серию экспериментов — в больших сосудах с мешалкой, которая дала такой же результат.

Так была создана первая адекватная модель четвертого уровня в науке о горении. Ав-

торы позволили себе достаточно подробно обсудить эту модель еще и потому, что она касается двух знаменитых ученых — основоположников химической физики и макроскопической кинетики.

Таким образом, в данной работе предложена четырехуровневая классификация адекватности моделей процессов горения. Тот или иной уровень определяется степенью соответствия результатов расчетов по математическим моделям результатам экспериментов. Приведенные примеры характеризуют различную степень адекватности известных в науке о горении математических моделей и экспериментальных данных [13, 14].

ЛИТЕРАТУРА

1. Мержанов А. Г., Филоненко А. К., Боровинская И. П. Новые явления при горении конденсированных веществ // Докл. АН СССР. — 1973. — Т. 208, № 4. — С. 892–894.
2. Ивлева Т. П., Мержанов А. Г., Шкадинский К. Г. Математическая модель спинового горения // Докл. АН СССР. — 1978. — Т. 239, № 5. — С. 1086–1088.
3. Ивлева Т. П., Мержанов А. Г. Трехмерные спиновые волны безгазового горения // Докл. АН. — 2003. — Т. 391, № 1. — С. 769–773.
4. Мержанов А. Г. Самораспространяющийся высокотемпературный синтез // Физическая химия. Современные проблемы / под ред. Я. М. Колотыркина. — М.: Химия, 1983. — С. 5–45.
5. Маслов В. М., Боровинская И. П., Мержанов А. Г. Экспериментальное определение максимальных температур процессов самораспространяющегося высокотемпературного синтеза // Физика горения и взрыва. — 1978. — Т. 14, № 5. — С. 79–85.
6. Маслов В. М., Боровинская И. П., Мержанов А. Г. К вопросу о механизме безгазового горения // Физика горения и взрыва. — 1976. — Т. 12, № 5. — С. 703–709.
7. Grachev V. V., Solov'ev R. V. Two-dimensional model of infiltration-mediated combustion: Effect of heat losses // Intern. J. Self-Propagat. High-Temperature Synth. — 2007. — V. 16, N 3. — P. 105–109.
8. Грачев В. В., Соловьев Р. В., Студеникин И. А., Линде А. В. Влияние теплотеря на структуру волны фильтрационного горения // Докл. АН. — 2008. — Т. 423, № 4. — С. 488–492.
9. Франк-Каменецкий Д. А. Диффузия и теплопередача в химической кинетике. — М.: Наука, 1987.
10. Семенов Н. Н. К теории кинетики химических реакций // Журн. рус. физ.-хим. о-ва. — 1928. — Т. 60, вып. 6. — С. 533–537.

11. **Барзыкин В. В., Мержанов А. Г.** Решение задачи о распространении пламени для краевых условий третьего рода // Докл. АН СССР. — 1958. — Т. 121, № 4. — С. 1271–1273.
12. **Барзыкин В. В.** Тепловые режимы экзотермической кинетики (избранные труды). — Черноголовка: ИСМАН, 2004.
13. **Мержанов А. Г.** Процессы горения и синтез материалов. — Черноголовка: ИСМАН, 1999.
14. **Мержанов А. Г., Мукасьян А. С.** Твердопламенное горение. — М.: Торус пресс, 2007.

Поступила в редакцию 29/III 2010 г.
