

УДК 536.46

ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ БЕЗГАЗОВОГО ГОРЕНИЯ С УЧЕТОМ ГЕТЕРОГЕННОСТИ СТРУКТУРЫ И ЗАВИСИМОСТИ ДИФФУЗИИ ОТ ТЕМПЕРАТУРЫ

Д. С. Шульц¹, А. Ю. Крайнов²

¹Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники, 634050 Томск
d_schulz@mail.ru

²Томский государственный университет, 634050 Томск, akrainov@ftf.tsu.ru

Приведены результаты численного моделирования процесса самораспространяющегося высокотемпературного синтеза на основе модели, учитывающей гетерогенность смеси порошков реагентов и взаимную диффузию, зависящую от температуры. Получены зависимости скорости фронта горения от размера осредненного элемента гетерогенной структуры при различных значениях энергии активации диффузии. Выявлено, что при увеличении энергии активации диффузии распространение фронта горения переходит в колебательный режим. Определена граница перехода от стационарного режима распространения фронта горения к колебательному.

Ключевые слова: безгазовое горение, гетерогенная структура, реакционная ячейка, диффузия, скорость горения, численное моделирование.

Математическая постановка задачи определения скорости горения [1] состоит из уравнения переноса тепла с учетом скорости тепловыделения в химической реакции и выгорания реагентов. Для ее решения применяются численные методы [2], которые позволяют получать зависимости скорости горения от определяющих безразмерных параметров задачи. В зависимости от параметров задачи реализуются различные режимы горения: устойчивые, автоколебательные, неустойчивые, а также срыв распространения пламени, который происходит при сильном теплоотводе из зоны химической реакции [1, 3–6]. В работах [4, 7] проведен анализ устойчивости фронта безгазового горения к малым возмущениям и представлены результаты численного моделирования автоколебательных режимов безгазового горения. В пространственном случае анализ устойчивости фронта горения аналитическими методами вызывает большие затруднения, поэтому распространение фронта безгазового горения исследовалось путем численного моделирования. В работах [8–11] выполнено моделирование неустойчивых режимов безгазового горения в трехмерном представлении.

При распространении пламени в безгазовых конденсированных системах важную роль играет гетерогенная структура вещества. В

работах [5, 12–16] для описания гетерогенной структуры СВС-составов предложена модель реакционной ячейки. Для учета гетерогенной структуры исходных составов разработаны модели, учитывающие особенности реакции путем введения различных кинетических функций в закон Аррениуса. В работах [17–20] исследованы процессы в реакционной ячейке в условиях самораспространяющегося высокотемпературного синтеза (СВС). Сформулированные в [12–20] модели основаны на стационарных уравнениях теории горения и учитывают макрокинетические процессы в гетерогенных системах. Устойчивость распространения фронта горения в этих работах не анализировалась. Некоторые результаты моделирования СВС в нестационарной постановке с использованием модели реакционной ячейки сферической формы представлены в [21]. В этой работе на макроуровне решалась задача переноса тепла, а в реакционных ячейках по длине образца (на микроуровне) определялась скорость реакции с учетом взаимной диффузии компонентов.

В настоящей работе предложена модель, развивающая модели [14, 21]. Проведено численное исследование нестационарного распространения фронта горения СВС-состава. Скорость химического реагирования в каждой точке по длине образца СВС определялась из решения задачи диффузии и химического реагирования в реакционных ячейках, учитывалась за-

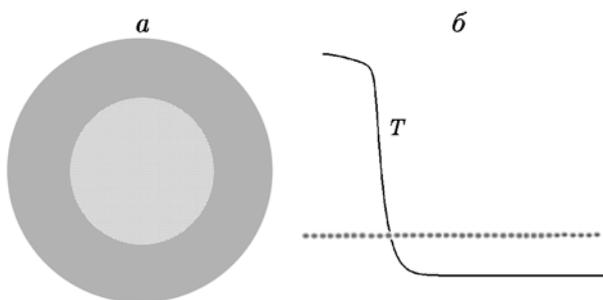


Рис. 1. Схема реакционной ячейки (а) и расположение ячеек по длине образца (б)

зависимость коэффициента диффузии компонентов от температуры. Под реакционной ячейкой понимается осредненный элемент гетерогенной структуры смеси порошков, способных к СВС, который содержит вступающие в реакцию вещества в пропорции, равной их концентрации в смеси. Элемент гетерогенной структуры принят в форме шарика, в котором вещество в центре окружено слоем другого вещества (рис. 1). В каждом элементе гетерогенной структуры СВС-состава происходят процессы диффузии и реагирования при температуре в соответствующих точках образца, меняющейся при реагировании (см. рис. 1). Предполагается, что плотность исходных веществ не зависит от температуры; реагирующие компоненты взяты в стехиометрическом соотношении; продукты реакции не влияют на диффузию компонентов в реакционной ячейке; пространственное распределение температуры в ячейке отсутствует. Предполагается также, что коэффициент взаимной диффузии зависит от температуры по экспоненциальному закону и не зависит от концентрации [22].

С учетом описанного подхода математическая модель представляет собой уравнение теплопроводности с источниками тепла:

$$c\rho \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + Q\Phi(T(x, t)), \quad (1)$$

начальные и граничные условия:

$$T(x, 0) = T_0, \quad T(0, t) = T_a, \quad \frac{\partial T(\infty, t)}{\partial x} = 0.$$

Здесь t — время, x — координата, c — удельная теплоемкость, ρ — плотность, T — температура, λ — коэффициент теплопроводности, Q — тепловой эффект реакции, $\Phi(T(x, t))$ — скорость химической реакции, T_0 — начальная

температура, T_a — адиабатическая температура.

Скорость реакции $\Phi(T(x, t))$ определяется из решения задачи диффузии и химического реагирования в реакционной ячейке:

$$\frac{\partial b_1}{\partial t} = D(T) \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial b_1}{\partial r} \right) - b_1 b_2 k_0 \exp \left(-\frac{E}{RT} \right), \quad (2)$$

$$\frac{\partial b_2}{\partial t} = D(T) \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial b_2}{\partial r} \right) - b_1 b_2 k_0 \exp \left(-\frac{E}{RT} \right), \quad (3)$$

$$D(T) = D_0 \exp \left(-\frac{E_d}{RT} \right). \quad (4)$$

Начальные условия для уравнений (2), (3):

$$b_1(r, 0) = \begin{cases} b_{10}, & 0 < r < r_m, \\ 0, & r_m < r < r_0, \end{cases} \quad (5)$$

$$b_2(r, 0) = \begin{cases} 0, & 0 < r < r_m, \\ b_{20}, & r_m < r < r_0. \end{cases}$$

Здесь b_1, b_2 — концентрации первого и второго реагентов, r — радиальная координата сферической системы координат в реакционной ячейке, E, k_0 — энергия активации и предэкспоненциальный множитель в законе Аррениуса для скорости химической реакции, $D(T)$ — коэффициент диффузии, E_d — энергия активации диффузии, D_0 — предэкспоненциальный множитель в зависимости коэффициента диффузии от температуры, r_m — координата места контакта первого и второго веществ до реакции. Полагая, что реакционная ячейка окружена себе подобными, запишем граничные условия для уравнений (2), (3) в виде

$$\frac{\partial b_1(0, t)}{\partial r} = \frac{\partial b_1(r_0, t)}{\partial r} = \frac{\partial b_2(0, t)}{\partial r} = \frac{\partial b_2(r_0, t)}{\partial r} = 0. \quad (6)$$

Из решения задачи (2), (3) с начальными и граничными условиями (5), (6) средняя по объему ячейки скорость реакции $\Phi(T(x, t))$ определяется в виде

$$\begin{aligned} \Phi(T(x, t)) = & \\ & (7) \\ = \frac{1}{r_0^3} \int_0^{r_0} b_1(r, t) b_2(r, t) k_0 \exp\left(-\frac{E}{RT(x, t)}\right) r^2 dr. \end{aligned}$$

Скорость $\Phi(T(x, t))$, получаемая в каждой точке по координате x в каждый момент времени, используется в уравнении (1).

Система уравнений (1)–(7) записана в традиционных для теории горения безразмерных переменных и параметрах. В качестве масштабов выбраны величины

$$\begin{aligned} t_* &= \frac{c\rho RT_a^2}{Qb_{11}b_{21}Ek_0 \exp(-E/RT_a)}, \\ x_* &= \sqrt{\frac{t_*\lambda}{c\rho}}, \quad T_a = T_0 + \frac{Qb_{11}}{c\rho}, \end{aligned}$$

где b_{11} , b_{21} — приведенные концентрации реагентов. В реакционной ячейке в качестве линейного масштаба принят ее радиус r_0 . Используются безразмерные переменные

$$\begin{aligned} \xi = \frac{x}{x_*}, \quad \tau = \frac{t}{t_*}, \quad \theta = \frac{E}{RT_a^2}(T - T_a), \\ c_1 = \frac{b_1}{b_{10}}, \quad c_2 = \frac{b_2}{b_{20}}, \quad \bar{r} = \frac{r}{r_0}. \end{aligned}$$

С учетом выбранных масштабов задача (1)–(7) в безразмерной постановке принимает вид:

$$\frac{\partial \theta}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 \theta}{\partial \xi^2} + \bar{\Phi}(\theta(\xi, \tau)), \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_1}{\partial \tau} = \frac{Le}{R_0^2} \exp\left(E_D \frac{\theta}{1 + \beta\theta}\right) \frac{1}{\bar{r}^2} \frac{\partial}{\partial \bar{r}} \left(\bar{r}^2 \frac{\partial c_1}{\partial \bar{r}}\right) - \\ - \gamma c_1 c_2 \exp \frac{\theta}{1 + \beta\theta}, \quad (9) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_2}{\partial \tau} = \frac{Le}{R_0^2} \exp\left(E_D \frac{\theta}{1 + \beta\theta}\right) \frac{1}{\bar{r}^2} \frac{\partial}{\partial \bar{r}} \left(\bar{r}^2 \frac{\partial c_2}{\partial \bar{r}}\right) - \\ - \gamma c_1 c_2 \exp \frac{\theta}{1 + \beta\theta}. \quad (10) \end{aligned}$$

Начальные и граничные условия:

$$\theta(\xi, 0) = -1/\gamma,$$

$$\begin{aligned} c_1(\bar{r}, 0) = \begin{cases} 1, & 0 < \bar{r} < \bar{r}_m, \\ 0, & \bar{r}_m < \bar{r} < 1, \end{cases} \\ c_2(\bar{r}, 0) = \begin{cases} 0, & 0 < \bar{r} < \bar{r}_m, \\ 1, & \bar{r}_m < \bar{r} < 1, \end{cases} \end{aligned} \quad (11)$$

$$\theta(0, \tau) = 0, \quad \frac{\partial \theta(\infty, \tau)}{\partial \xi} = 0,$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_1(0, \tau)}{\partial \bar{r}} = \frac{\partial c_2(0, \tau)}{\partial \bar{r}} = \\ = \frac{\partial c_1(r_0, \tau)}{\partial \bar{r}} = \frac{\partial c_2(r_0, \tau)}{\partial \bar{r}} = 0, \quad (12) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \bar{\Phi}(\theta(\xi, \tau)) = \\ = \frac{1}{\bar{r}_0^3} \int_0^{\bar{r}_0} c_1(\bar{r}, \tau) c_2(\bar{r}, \tau) \exp \frac{\theta(\xi, \tau)}{1 + \beta\theta(\xi, \tau)} \bar{r}^2 d\bar{r}. \end{aligned} \quad (13)$$

Получившиеся параметры задачи характеризуют: $Le = D_0/(\lambda/c\rho)$ — интенсивность диффузии, $R_0 = r_0/\xi_*$ — размер гетерогенной структуры, $E_D = E_d/E$ — энергию активации диффузии, $\gamma = \frac{c\rho}{Qb_{11}} \frac{RT_a^2}{E}$ — тепловой эффект реакции, $\beta = RT_a/E$ — энергию активации химической реакции.

Уравнение (8) решалось по явной разностной схеме. В каждой точке разностной сетки задавалась реакционная ячейка, процессы в которой, описываемые уравнениями (9), (10), решались по неявной разностной схеме методом прогонки.

Расчеты выполнены при $\gamma = 0.14286$, $\beta = 0.05$ (из области устойчивости распространения фронта безгазового горения [3]) в диапазоне параметров задачи $0.5 \leq E_D \leq 1.6$, $0.0 \leq R_0 \leq 1.0$, $10^{-4} \leq Le \leq 10^{-5}$. Результаты представлены на рис. 2–5.

Расчетная зависимость скорости фронта горения от размера элемента гетерогенной структуры R_0 приведена на рис. 2, а. Видно, что с увеличением размера элемента скорость фронта горения уменьшается. Данная зависимость качественно соответствует экспериментальной зависимости из работы [5]. С увеличением числа Льюиса Le скорость фронта горения возрастает. В математической постановке (8)–(13) параметры задачи R_0 и Le присутствуют в виде отношения Le/R_0^2 (в уравнениях (9) и

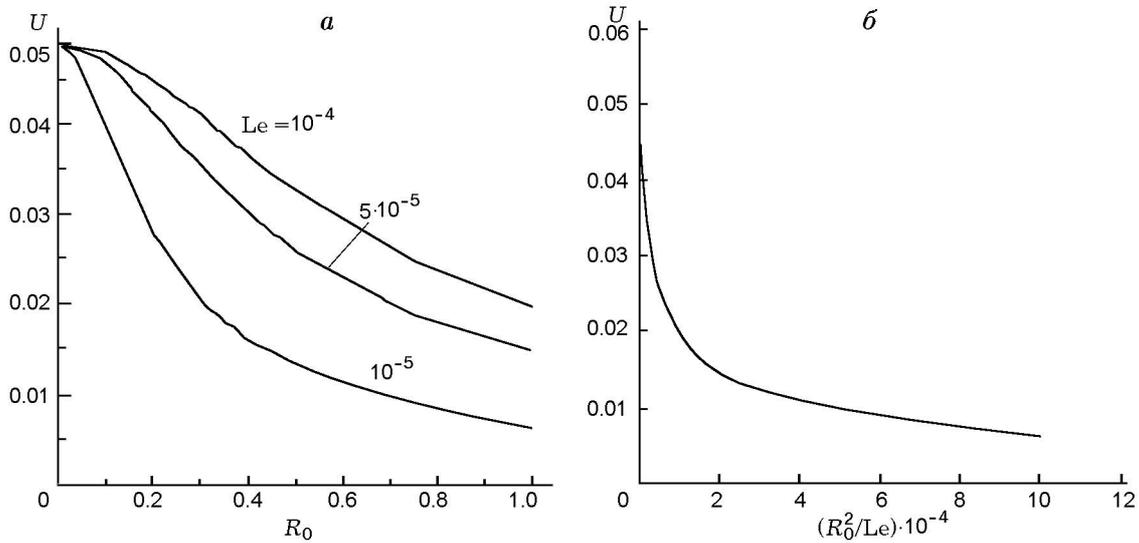


Рис. 2. Зависимость скорости распространения фронта горения от размера элемента гетерогенной структуры при различных значениях Le и $E_D = 1$ (а) и от отношения R_0^2/Le (б), $\gamma = 0.14286$, $\beta = 0.05$

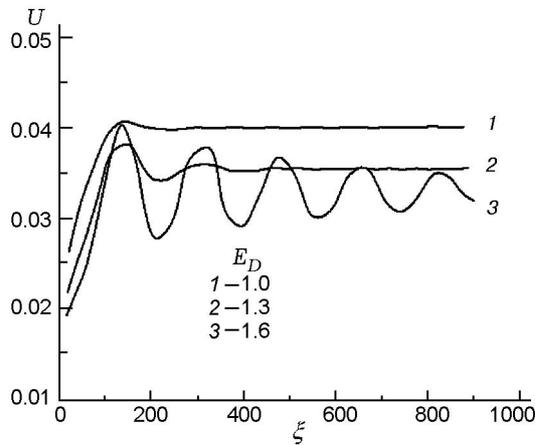


Рис. 3. Зависимость скорости горения U от координаты ξ при различных значениях E_D ($Le = 10^{-5}$, $R_0 = 0.1$, $\gamma = 0.14286$, $\beta = 0.05$)

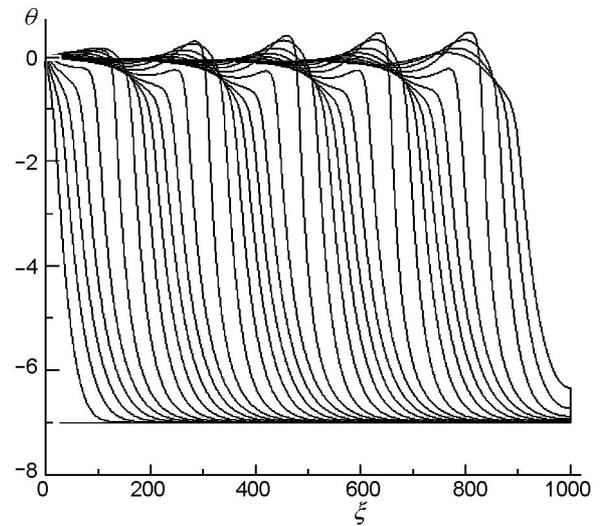


Рис. 4. Распределение температуры θ по координате ξ в последовательные моменты времени ($\gamma = 0.14286$, $\beta = 0.05$, $R_0 = 0.1$, $Le = 5 \cdot 10^{-5}$, $E_D = 1.6$)

(10)), поэтому полученные зависимости $U(R_0)$, приведенные на рис. 2, а, были обработаны в виде зависимости $U(R_0^2/Le)$. Все они совпали (рис. 2, б).

Исследование влияния параметра E_D на скорость фронта горения показало, что скорость уменьшается с увеличением E_D и начиная с некоторого значения скорости распространение фронта переходит в пульсирующий режим (рис. 3). На рис. 4 видно, что при $E_D = 1.6$ в распределениях температуры по длине образца имеются периодические всплески, при

этом скорость фронта горения меняется колебательным образом (см. рис. 3).

Изучалось также влияние параметров E_D и R_0 на границу перехода от стационарного к пульсирующему режиму распространения фронта горения. Результаты представлены на рис. 5.

Таким образом, на основе математической модели безгазового горения с учетом гетеро-

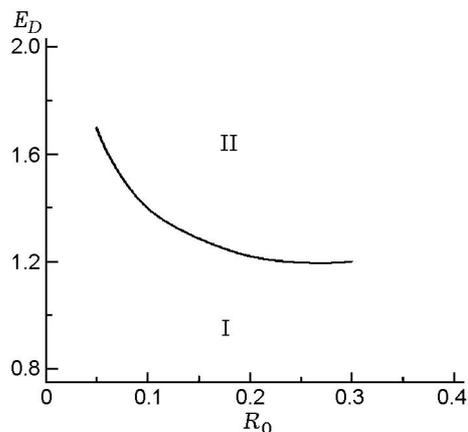


Рис. 5. Области стационарного (I) и колебательного (II) режимов распространения фронта горения при $Le = 10^{-5}$, $\gamma = 0.14286$, $\beta = 0.05$

генности структуры и зависимости диффузии от температуры в рамках модели реакционной ячейки получены зависимости скорости распространения фронта безгазового горения от размера гетерогенности структуры, качественно согласующиеся с экспериментальными данными. Выявлено, что при больших энергиях активации диффузии фронт распространяется в пульсирующем режиме при γ и β , взятых из области устойчивости [3]. Определена граница существования устойчивого и пульсирующего режимов распространения фронта безгазового горения в поле параметров «отношение энергий активации диффузии и химической реакции — размер гетерогенной структуры» при фиксированных значениях параметров γ и β , взятых из области устойчивого распространения фронта безгазового горения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Зельдович Я. Б., Баренблатт Г. И., Либрович В. Б., Махвиладзе Г. М. Математическая теория горения и взрыва. — М.: Наука, 1980.
2. Самарский А. А. Теория разностных схем. — М.: Наука, 1977.
3. Шкадинский К. Г., Хайкин Б. И., Мержанов А. Г. Распространение пульсирующего фронта экзотермической реакции в конденсированной фазе // Физика горения и взрыва. — 1971. — Т. 7, № 1. — С. 19–28.
4. Алдушин А. П., Мартемьянова Т. М., Мержанов А. Г., Хайкин Б. И., Шкадинский К. Г. Автоколебательное распространение фронта горения в гетерогенных конденсированных средах // Физика горения и взрыва. — 1973. — Т. 9, № 5. — С. 613–626.
5. Мержанов А. Г., Мукасян А. С. Твердопламенное горение. — М.: Торус пресс, 2007.
6. Максимов Э. И., Шкадинский К. Г. Об устойчивости стационарного горения безгазовых составов // Физика горения и взрыва. — 1971. — Т. 7, № 3. — С. 454–458.
7. Алдушин А. П., Мержанов А. Г., Хайкин Б. И. О некоторых особенностях горения конденсированных систем с тугоплавкими продуктами реакции // Докл. АН СССР. — 1972. — Т. 204, № 5. — С. 1139–1142.
8. Шербак С. Б. Режимы неустойчивого горения образцов безгазовых составов в форме стержней квадратного и кругового сечения // Физика горения и взрыва. — 1983. — Т. 19, № 5. — С. 9–12.
9. Шербак С. Б. Пространственные режимы неустойчивого горения образца безгазового состава в форме длинного стержня квадратного сечения // Физика горения и взрыва. — 1984. — Т. 20, № 2. — С. 23–28.
10. Ивлева Т. П., Мержанов А. Г. Математическое моделирование трехмерных спиновых режимов волн безгазового горения // Докл. РАН. — 1999. — Т. 369, № 2. — С. 186–191.
11. Ивлева Т. П., Мержанов А. Г. Трехмерные спиновые волны безгазового горения // Докл. РАН. — 2000. — Т. 371, № 6. — С. 753–758.
12. Алдушин А. П., Хайкин Б. И. К теории горения смесевых систем, образующих конденсированные продукты реакции // Физика горения и взрыва. — 1974. — Т. 10, № 3. — С. 313–323.
13. Алдушин А. П., Хайкин Б. И. К вопросу о распространении фронта горения при реакционной диффузии в конденсированных смесях // Теория и технология металлургических процессов. — Новосибирск, 1974. — № 3. — С. 11–12.
14. Хайкин Б. И. К теории процесса горения в гетерогенных конденсированных средах // Процессы горения в химической технологии и металлургии. — Черноголовка: Изд-во ОИХФ АН СССР, 1975. — С. 227–244.
15. Алдушин А. П., Каспарян С. Г., Шкадинский К. Г. Распространение фронта экзотермической реакции в конденсированных смесях, образующих двухфазные продукты // Горение и взрыв: материалы IV Всесоюз. симпоз. по горению и взрыву. — М.: Наука, 1977. — С. 207–212.
16. Мержанов А. Г., Руманов Э. Н. Образование твердых растворов в режимах горения // Изв. АН СССР. Металлы. — 1977. — № 3. — С. 188–193.
17. Смоляков В. К., Некрасов Е. А., Максимов Ю. М. О влиянии граничной кинетики в процессах стационарного горения безгазовых систем // Физика горения и взрыва. — 1982. — Т. 18, № 3. — С. 59–62.

18. Некрасов Е. А., Смоляков В. К., Максимов Ю. М. Математическая модель горения системы титан — углерод // Физика горения и взрыва. — 1981. — Т. 17, № 5. — С. 39–46.
19. Лапшин О. В., Овчаренко В. Е. Математическая модель высокотемпературного синтеза интерметаллического соединения Ni_3Al на стадии воспламенения // Физика горения и взрыва. — 1996. — Т. 32, № 2. — С. 46–54.
20. Лапшин О. В., Овчаренко В. Е. Математическая модель высокотемпературного синтеза алюминида никеля Ni_3Al в режиме теплового взрыва порошковой смеси чистых элементов // Физика горения и взрыва. — 1996. — Т. 32, № 3. — С. 68–76.
21. Чернецова В. В., Шкадинский К. Г. Математическое моделирование макрокинетики взаимодействия во фронте горения гетерогенных составов с конденсированными продуктами реакции // Химическая физика процессов горения и взрыва: материалы XII симпоз. по горению и взрыву. — Черногловка, 2000. — Ч. I. — С. 153–155.
22. Болтакс Б. И. Диффузия в полупроводниках. — М: Физматгиз, 1961.

*Поступила в редакцию 14/X 2011 г.,
в окончательном варианте — 24/IV 2012 г.*
