

В то же время можно утверждать, что в данном случае основная роль в процессе тепло- и массообмена зоны горения с окружающей средой принадлежит естественной конвекции, поскольку в данной области давлений длина свободного пробега молекул составляет около 0,007 мм, а ширина теплового пограничного слоя по нашим измерениям — около 50 мм, значение числа Кнудсена не превышает 10^{-5} , т. е. газовую среду можно рассматривать как сплошную [6], в которой процесс молекулярного переноса не является определяющим. Сферическая форма пламени при давлении 7,5 мм рт. ст. объясняется низкой плотностью окислительного потока, не искажающего при взаимодействии с пламенем его естественную сферическую форму. О плотности потока, необходимой для горения на предельных режимах горения, можно судить по результатам работы [7].

Поступила в редакцию 19/V 1981

ЛИТЕРАТУРА

1. А. А. Зенин. Канд. дис. М., ИХФ АН СССР, 1962.
2. А. С. Штейнберг. Теплообмен в процессах горения. Черногоровка, 1980.
3. Р. Рид, Т. Шервуд. Свойства газов и жидкостей. М.: Физматгиз, 1964.
4. С. Кумагои. Горение. М.: Химия, 1979.
5. А. С. Штейнберг и др.— В сб.: Горение и взрыв. М.: Наука, 1972.
6. В. П. Исаченко и др. Теплопередача. М.—Л.: Энергия, 1965.
7. А. С. Мелихов, В. И. Потякин. Матер. VI Всесоюз. симпозиума по горению и взрыву. Черногоровка, 1980.

УДК 536.46

НЕУСТОЙЧИВОСТЬ ГОРЕНИЯ КОНДЕНСИРОВАННЫХ СИСТЕМ С ФИКСИРОВАННОЙ ТЕМПЕРАТУРОЙ ПРОДУКТОВ РЕАКЦИИ

А. П. Алдушин
(Черногоровка)

Элементарные модели горения (ЭМГ), используемые для описания распространения фронта экзотермической реакции в конденсированной среде, можно разделить на две группы [1]. К одной из них (ЭМГ-1) относятся модели с полным превращением вещества во фронте горения. Модели второго рода (ЭМГ-2) предполагают незавершенность реакции к моменту прекращения тепловыделения в к-фазе. До недавнего времени ЭМГ-2 были известны лишь для горения взрывчатых веществ и порохов [2—4].

Развитие технологического направления в горении [5] выявило ряд новых моделей второго рода, реализующихся при распространении фронта реакции в негазофицирующихся системах. К их числу относятся модели высокотемпературного плавления и диссоциации продукта [6]. При разогреве смеси до температуры фазового перехода T_n реакция либо прекращается вообще (вследствие диссоциации), либо выделяющееся тепло полностью расходуется на фазовый переход (плавление). В обоих случаях температура продуктов является фиксированной величиной, а глубина реакции определяется начальной температурой T_0 и калорийностью системы. Теория стационарного распространения фронта экзотермической реакции в конденсированной среде для моделей горения второго рода построена в работе [6]. Настоящая заметка посвящена исследованию устойчивости стационарных режимов.

Расчет устойчивости проведем в приближении бесконечно тонкого фронта реакции, разделяющего область несгоревшего вещества ($x < \xi$) и область продукта при температуре фазового перехода T_{π} ($x > \xi$). Уравнения нестационарного распространения волны горения в конденсированной среде запишем в системе отсчета, движущейся со скоростью стационарного фронта u_0 ,

$$\partial T / \partial t + u_0 \partial T / \partial x = \kappa (\partial^2 T / \partial x^2 + \partial^2 T / \partial y^2) + qw, \quad (1)$$

$$\partial \eta / \partial t + u_0 \partial \eta / \partial x = w, \quad \kappa = \lambda / c\rho, \quad q = Q/c. \quad (2)$$

Здесь x, y — нормальная и тангенциальная к фронту координаты; λ, ρ, c — теплопроводность, плотность и теплоемкость среды; η — глубина превращения; Q — тепловой эффект; w — скорость реакции, локализованной при $x = \xi(y, t)$.

Зададим малое искривление зоны реакции в виде

$$\xi = \varepsilon \exp(\omega t + iKy), \quad (3)$$

где ω — инкремент; K — волновое число.

Решение системы (1), (2), определяющее эволюцию возмущения (3), будем искать в виде суммы стационарной составляющей и малой поправки

$$T(x, y, t) = T^0(x) + T'(x)e^{\omega t + iKy}.$$

В зоне прогрева стационарная температура $T^0(x)$ и амплитуда возмущения $T'(x)$, определяемая из решения линеаризованного уравнения (1), экспоненциально убывают в направлении холодных слоев

$$x < \xi, \quad T_1 = T_1^0 + T', \quad T_1^0 = (T_{\pi} - T_0) e^{ux/\kappa} + T_0, \quad T_1' = A e^{zx + \omega t + iKy}, \\ z = \frac{u_0}{2\kappa} [1 + \sqrt{1 + 4\Omega + s^2}], \quad \Omega = \frac{\omega\kappa}{u_0^2}, \quad s = 2 \frac{K\kappa}{u_0^2}. \quad (4)$$

Температурное состояние продуктов полностью зафиксировано условием постоянства T

$$x > \xi, \quad T_2 = T_{\pi} \quad (\partial T_2 / \partial x = 0). \quad (5)$$

Исключив источник из (1) с помощью (2) и интегрируя полученное уравнение в окрестности $x = \xi$, найдем тепловой поток в свежую смесь. В линейном по амплитуде искривления приближении имеем

$$\kappa \frac{\partial T}{\partial x} \Big|_{\xi-0} = qm, \quad m = (u_0 - d\xi/dt) \eta_{\pi}. \quad (6)$$

Нестационарная скорость выгорания m определяется скоростью переработки вещества до глубины η_{π} , которая может отличаться от своего стационарного значения η_{π}^0 . При фиксированной температуре в бесконечно тонкой, безынерционной зоне реакции и нулевом градиенте в продуктах ($dT_2^0/dx = 0$) функция $m(\eta_{\pi})$, характеризующая изотермическую (при $T = T_{\pi}$) кинетику, имеет тот же вид, что и в стационарном фронте:

$$m = m_0(\eta_{\pi}). \quad (7)$$

Линеаризуем по малым возмущениям уравнение (6) и условие непрерывности температурного профиля в зоне реакции ($T_1(\xi) = T_{\pi}$):

$$T_1^0(0) + T_1'(0) + \frac{\partial T_1^0}{\partial x} \Big|_{x=0} \xi = T_{\pi}, \quad (8)$$

$$\frac{\partial T_1^0}{\partial x} \Big|_{x=0} + \frac{\partial T_1'}{\partial x} \Big|_{x=0} + \frac{\partial^2 T_1^0}{\partial x^2} \Big|_{x=0} \xi = q(m_0 + m') \kappa^{-1}.$$

Вариацию скорости m' можно выразить через возмущение глубины превращения η_{π}' из уравнения (7)

$$m' = \beta \frac{m_0}{\eta_{\pi}^0} \eta_{\pi}', \quad \beta = \frac{\partial \ln m_0}{\partial \ln \eta_{\pi}^0}.$$

С другой стороны, имеем очевидные равенства

$$m' = (u\eta_{\Pi})' = u'\eta_{\Pi}^c + u_0\eta_{\Pi}', \quad u' = -\omega\xi,$$

позволяющие связать m' с величиной ξ :

$$m' = \frac{\beta}{1-\beta} \omega\xi\eta_{\Pi}^0. \quad (9)$$

Дифференциальный коэффициент скорости выгорания β является характеристикой стационарного фронта и должен определяться из стационарной теории. Согласно [6], скорость стационарного выгорания вещества m_0 связана с осредненной на интервале $0 < \eta < \eta_{\Pi}^0$ скоростью химической реакции ($w = \varphi(\eta)e^{-E/RT}$) в зоне горения:

$$m_0^2(\eta_{\Pi}^0) = \frac{\lambda}{Q\rho} \frac{RT_{\Pi}^2}{E} \bar{\varphi}(\eta_{\Pi}^0) e^{-E/RT},$$

$$\bar{\varphi}(\eta_{\Pi}^0) = (\eta_{\Pi}^0)^2 \left[\int_0^{\eta_{\Pi}^0} (\eta_{\Pi}^0 - \eta) \varphi^{-1}(\eta) d\eta \right]. \quad (10)$$

Вычисление β приводит к выражению

$$\beta = \int_0^{\eta_{\Pi}^0} (\eta_{\Pi}^0 - 2\eta) \varphi^{-1}(\eta) d\eta / 2 \int_0^{\eta_{\Pi}^0} (\eta_{\Pi}^0 - \eta) \varphi^{-1}(\eta) d\eta, \quad (11)$$

раскрывающему физический смысл этого параметра в качестве характеристики кинетической функции. Величина $\beta = 0$ при нулевом порядке реакции ($\varphi(\eta) = \text{const}$) отрицательна в случае торможения скорости с глубиной превращения ($\varphi' < 0$) и положительна для автокаталитических реакций ($\varphi' > 0$). Абсолютное значение β тем больше, чем сильнее зависимость $\varphi(\eta)$. Для степенного торможения скорости реакции с глубиной превращения ($\varphi = \text{const} \eta^{-n}$): $\beta = -n/2$, для первого порядка реакции ($\varphi = \text{const} (1 - \eta)$)

$$\beta = -\frac{1}{2} \frac{(\eta_{\Pi}^0/2 - 1) \ln(1 - \eta_{\Pi}^0) - \eta_{\Pi}^0}{(1 - \eta_{\Pi}^0) \ln(1 - \eta_{\Pi}^0) + \eta_{\Pi}^0}.$$

Автокаталитические реакции нетипичны для конденсированных систем, взаимодействующих через слой продукта. Однако будем рассматривать не только отрицательные, но и положительные значения параметра β , имея в виду возможность изменения теплопроводности λ с глубиной превращения. В этом случае при вычислении интегралов в выражениях (10), (11) вместо φ следует подставлять произведение $\lambda(\eta)\varphi(\eta)/\lambda(0)$ [7], которое может возрастать вместе с η даже при торможении реакции.

Подставляя в (8) соотношение (9) и учитывая стационарные связи ($T_1^0(0) = T_{\Pi}$, $\kappa \partial T_1^0 / \partial x = qm_0$, $T_{\Pi} - T_0 = q\eta_{\Pi}^0$), получим систему однородных уравнений для амплитуд A и ε

$$\kappa u_0^{-1} A + \varepsilon (T_{\Pi} - T_0) = 0,$$

$$(T_{\Pi} - T_0) u_0^2 \varepsilon \kappa^{-1} + \kappa A z = \omega \varepsilon (T_{\Pi} - T_0) \beta (1 - \beta)^{-1}.$$

Требование ее нетривиального решения приводит к характеристическому уравнению для инкремента возмущения Ω

$$\Gamma(\Omega) = 1 + 2\Omega\beta(\beta - 1)^{-1}, \quad \Gamma = \sqrt{1 + 4\Omega + s^2}. \quad (12)$$

Наличие положительных корней γ этого уравнения в области $\text{Re}\Gamma > 0$, а вместе с этим и устойчивость фронта реакции определяются параметром β . При отрицательных β , т. е. в случае торможения реакции с глубиной превращения фронт горения абсолютно неустойчив как к одномерным, так и к двумерным возмущениям, причем искривления развива-

ются быстрее плоских возмущений ($\Omega(s) > \Omega(0)$). В интервале $0 \leq \beta < 1$ (нулевой порядок реакции или слабый автокатализ) горение устойчиво к любым возмущениям. В случае сильного автокатализа ($\beta > 1$) фронт реакции теряет устойчивость к искривлениям, оставаясь устойчивым к плоским возмущениям. Инкремент Ω в области неустойчивости определяется выражением

$$\Omega = (1 - \beta)[1 + \text{sign}(1 - \beta)\sqrt{1 + \beta^2 s^2}]/2\beta^2. \quad (13)$$

Для плоских возмущений ($s = 0$) помимо (13) всегда существует нулевой корень уравнения (12), указывающий на инвариантность структуры стационарной волны относительно сдвига [8].

Инкремент Ω не содержит мнимой части, т. е. возмущения нарастают монотонно, а не колебательно, как при горении безгазовых систем с полным выгоранием вещества [9]. Там не менее природа неустойчивости остается той же, что и в случае горения безгазовых составов и порохов — наличие избытка энтальпии перед зоной реакции [2, 9]. Для рассматриваемых систем механизм развития возмущений можно представить следующим образом. При случайном ускорении фронта реакция распространяется по предварительно прогретому веществу с эффективной температурой $T'_0 > T_0$. Поэтому T_n достигается при глубине превращения $\eta_n < \eta_n^0$. В случае торможения реакции продуктом ($\beta < 0$) скорость выгорания вещества до глубины $\eta_n < \eta_n^0$ больше, чем до глубины η_n^0 . Поскольку линейная скорость растет с уменьшением η_n ($u = m(\eta_n)/\eta_n$), возмущение фронта будет прогрессировать. Напротив, для автокаталитической реакции ($\beta > 0$) скорость выгорания $m(\eta_n)$ уменьшается с η_n , поэтому случайно ускорившийся фронт начнет тормозиться. С этих же позиций можно понять неустойчивость автокаталитических реакций к искривлениям фронта. Вследствие дополнительных потерь тепла, вызванных искривлением, выдвинутые вперед участки фронта должны реагировать до более высоких η_n , что осуществляется с повышенной скоростью ($\beta > 0$). Двумерная неустойчивость реакций с торможением, по-видимому, индуцируется неустойчивостью плоских участков фронта. При анализе спектра инкрементов возмущений $\Omega(s)$ заслуживают внимания два обстоятельства. Первое — это неограниченный рост частоты Ω при уменьшении масштаба искривлений фронта. Аналогичная ситуация имеет место в обнаруженной Ландау и Дарье гидродинамической неустойчивости пламени, которая приводит к его автотурбулизации [10].

Другой интересный факт — увеличение инкремента неустойчивости при $\beta \rightarrow 0$, т. е. с уменьшением коэффициента торможения скорости реакции, в то время как реакция нулевого порядка ($\beta = 0$) абсолютно устойчива. Исходя из соображения о непрерывной трансформации характера процесса при изменении параметров, следует ожидать, что, несмотря на наличие большого положительного значения частоты Ω при малых β , можно реализовать стационарный (или близкий к нему) режим горения, если не вносить в систему резких возмущений.

В заключение отметим, что приведенные результаты исследования устойчивости полностью применимы для модели беспламенного горения взрывчатых веществ с постоянной температурой поверхности и ведущей реакцией в ж-фазе. Для плоского фронта реакции в конденсированной среде условие устойчивости $\beta > 0$ формально совпадает с критерием устойчивости горения пороха, полученным Я. Б. Зельдовичем [2, 11]:

$$k < 1, \quad k = (\partial \ln u_0 / \partial T_0)(T_n - T_0) = 1 - \beta.$$

Следует подчеркнуть, что тождественность критериев имеет место лишь на феноменологическом уровне, т. е. до тех пор, пока не расшифровывается физический смысл параметров k , β . При горении пороха значения k и β определяются характеристиками газовой фазы. В частности, для модели Беляева — Зельдовича [2] $k = c_k E (T_n - T_0) / 2RT_n^2 c_r$, где c_k , c_r —

теплоемкости конденсированной и газовой фазы; E — энергия активации газофазной реакции; T_r — температура пламени. Для конденсированных систем с фиксированной температурой продуктов величина $k = 1 - \beta$ характеризует зависимость скорости твердофазной реакции от глубины преобразования. Глубокое различие в физическом содержании параметров не позволяет отождествлять условия устойчивости в обоих случаях.

Автор благодарит Я. Б. Зельдовича и А. Г. Мержанова за обсуждение работы.

Поступила в редакцию 5/V 1981

ЛИТЕРАТУРА

1. A. G. Merzhanov. Comb. Flame, 1969, 13, 2, 143.
2. Я. Б. Зельдович. ЖЭТФ, 1942, 12, 11, 498.
3. А. Г. Мержанов, Ф. И. Дубовицкий. Докл. АН СССР, 1959, 129, 1, 153.
4. Б. И. Хайкин, А. Г. Мержанов. Докл. АН СССР, 1967, 173, 6, 1382.
5. А. Г. Мержанов. Усп. химии, 1976, 45, 5, 327.
6. А. Г. Мержанов. Докл. АН СССР, 1977, 233, 6, 1130.
7. А. П. Алдушин. ПМТФ, 1974, 3, 96.
8. Г. И. Баренблатт, Я. Б. Зельдович. ПММ, 1957, 21, 6, 42.
9. К. Г. Шкадинский, Б. И. Хайкин, А. Г. Мержанов. ФГВ, 1971, 7, 1, 19.
10. Л. Д. Ландау. ЖЭТФ, 1944, 14, 6, 240.
11. Я. Б. Зельдович, О. И. Лейпунский, В. Б. Либрович. Теория нестационарного горения пороха. М.: Наука, 1975.

УДК 621.43.019.7 : 546.26

ОБРАЗОВАНИЕ САЖИ ПРИ ГОРЕНИИ ГОМОГЕННЫХ ГЕКСАНО-ВОЗДУШНЫХ СМЕСЕЙ ПРИ ДАВЛЕНИЯХ ДО 1,5 МПа

*Ф. Г. Бакиров, Н. Х. Баширов, В. М. Захаров,
И. З. Полещук, В. Н. Кружков, Э. Г. Шайхутдинов
(Уфа)*

Исследованию сажеобразования при горении различных углеводородных топлив посвящено значительное число работ, наиболее полный обзор которых выполнен в работе [1]. Тем не менее ряд аспектов рассматриваемой проблемы изучен недостаточно, в частности количественные характеристики сажеобразования при высоких давлениях.

Сильное влияние давления на интенсивность сажеобразования в пламенах углеводородных топлив отмечалось многими авторами [2, 3]. Однако эти результаты получены в основном на диффузионных горелках или в различного типа камерах сгорания с непосредственным впрыском жидкого топлива. В этих условиях давление проявляется через ряд взаимосвязанных факторов, таких как характеристики распыления жидкого топлива, интенсивность процессов смешения и диффузии компонентов, от которых в конечном итоге зависит образование дисперсного углерода в пламенах. В таких условиях трудно выделить в явной форме воздействие давления на кинетику и механизм сажеобразования.

Образование сажи в пламенах гомогенных, предварительно смешанных с воздухом восьми «чистых» углеводородных топлив исследовалось в [4]. Но использование малоразмерных горелок диаметром 5 и 7,5 мм ограничивает применимость полученных результатов, так как для подобных горелок характерны большие теплотери из реакционной зоны. В данной работе рассматриваются результаты изучения сажеобразования при горении гомогенных гексано-воздушных смесей в условиях, близких к адиабатным.