

ОДНОМЕРНАЯ НЕУСТОЙЧИВОСТЬ И ЗАТУХАНИЕ ДЕТОНАЦИИ

Р. М. Зайдель, Я. В. Зельдович

(Москва)

Вследствие сильной зависимости скорости химической реакции от температуры простая схема [10³] стационарной детонационной волны оказывается неустойчивой [4-7], что подтверждается опытом в газах [8] и в жидких и твердых взрывчатых веществах (ВВ) [9].

До сих пор рассматривались возмущения, сопровождающиеся искривлением фронта ударной волны. На различных участках фронта при этом возникают различные температуры. Нарастание таких возмущений приводит к столкновению отдельных участков ударной волны и возникновению отдельных очагов зажигания, т. е. к спиновой детонации. Ниже рассматривается устойчивость детонации по отношению к изменению расстояния между ударной волной и зоной химической реакции, что вызывает также изменение всего поля скорости и величин, характеризующих состояние газа (давления, температуры и т. п.). Однако фронт волны, так же как и поверхность, на которой идет реакция, остаются плоскими, а направление скорости в рассматриваемом возмущении не изменяется; эти возмущения назовем «одномерными». Такая постановка вопроса представляет интерес несмотря на уже известную неустойчивость по отношению к косым возмущениям. В узкой трубе с абсолютно жесткими стенками согласно [7] детонация становится устойчивой относительно косых возмущений. При этом «одномерная» неустойчивость может проявиться в действительности; она существенно изменит условия протекания химической реакции и может привести к затуханию детонации.

До вычислений (см. § 2) приведем качественные соображения в пользу предположения о возможности одномерной неустойчивости при достаточно большой теплоте активации реакции.

§ 1. Напомним исходные предположения. Воспользуемся идеализированной схемой (фиг. 1) с узкой зоной реакции [4,6].

В точке *A* происходит сжатие газа ударной волной, в точке *B* — химическая реакция. На *p, V*-диаграмме (фиг. 2) начальное состояние (правее *A*) обозначено *O*, состояние сжатого газа (между *A* и *B*) — *S*, состояние продуктов горения (левее *B*) — *J*.

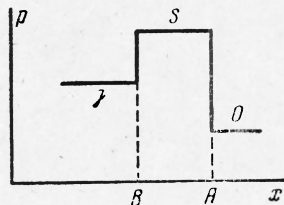
Предполагается, что тепло реакции выделяется мгновенно в точке *B*. На отрезке *AB* газ находится в состоянии периода индукции. Выделением тепла во время периода индукции пренебрегаем. Строго такая схема может быть обоснована для цепной реакции, у которой во время периода индукции происходит накопление активных центров без выделения тепла, а взрыв происходит после достижения критической концентрации n_c активных центров. Тогда из уравнения типа

$$\frac{dn}{dt} = nf(T) \quad (1.1)$$

с условиями $n = n_0$ в *A* и $n = n_c$ в *B* следует условие воспламенения частиц газа (здесь и в дальнейшем индекс *c* означает «химический»),

$$\int f(T) dt = \ln \left(\frac{n_c}{n_0} \right) = \text{const} = c \quad (1.2)$$

В этой формуле в общем случае для данной частицы $T = T(t)$. В частном случае стационарного режима $f(T_0) = 0$, на участке от *A* до *B* тем-



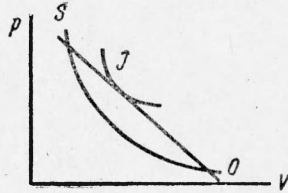
Фиг. 1

температура T_s постоянна, поэтому период индукции равен

$$\tau = c / f(T_s) \quad (1.3)$$

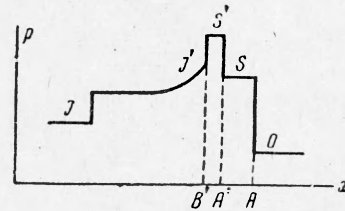
Расстояние от A до B равно $L = u\tau$, где u — скорость газа в системе координат, в которой фронт детонации покоится.

В случае не цепной реакции, моно- или бимолекулярной в период индукции (т. е. между A и B) происходит постепенное повышение температуры, и, строго говоря, нет резкой границы B . Однако¹, если $E / RT_s \gg 1$, то решение будет очень похоже на фиг. 1. В частности, подъем температуры перед точкой B порядка $\Delta T \sim RT_s^2 / E$, так что $\Delta T \ll T_s$ (такому повышению температуры соответствует увеличение скорости реакции в e раз при переходе от A к B). Спрашивается: не может ли по сжатому газу в зоне AB пройти детонационная волна² (не затрагивая причины возникновения



Фиг. 2

такой волны); при этом в координатах x, p получилась бы картина фиг. 3; соответствующие состояния на плоскости pV показаны на фиг. 4. В этой картине зона реакции находится в точке B' . В зоне $A'B'$ находится газ, сжатый дважды двумя последовательными ударными волнами A и A' или OS и $S'S'$ на фиг. 4. После реакции достигается новое состояние J' , за которым следует расширение. Картина, представленная на фиг. 4, существенно нестационарна: скорость волны A' больше скорости волны A , так что, если первоначально комплекс $A'B'$ возник в точке B фиг. 1, то вскоре за время порядка τ точка A' догонит A , и картина изменится.



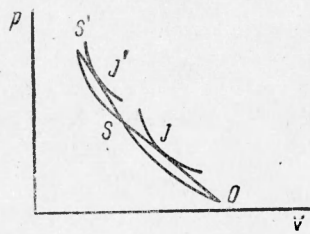
Фиг. 3

Для того чтобы картина, представленная на фиг. 3, была возможна (как промежуточное состояние) в течение некоторого времени, очевидно, количество вещества в зоне $A'B'$ должно быть весьма мало по сравнению с общим количеством вещества в зоне AB фиг. 1. Иными словами, период индукции τ' сжатого вещества должен быть мал по сравнению с периодом индукции в нормальной схеме. Только в этом случае зона $A'B'$ может сформироваться за время, составляющее малую долю времени жизни состояния с двумя волнами (фиг. 3).

Нестационарность этого состояния не препятствует стандартному рассмотрению волны $A'B'$, если $\tau' \ll \tau$. Но τ' относится к температуре $T_{s'}$, которая выше T_s . При показателе адиабаты $\gamma = 1.3$ приблизительно $T_{s'} = 2.2 T_s$. Однако при большой теплоте активации такого различия между $T_{s'}$ и T_s оказывается достаточно для того, чтобы было $\tau' \ll \tau$. Например, если $E / RT_s = 11$, то $E / RT_{s'} = 5$ и $\tau' = e^{5-11} \tau = \tau / 400$.

¹ Эта величина стоит в показателе в формуле для скорости химической реакции: $w = \exp(-E / RT)$. В случае цепной реакции будем также предполагать, что $f(T) \sim \exp(-E / RT)$, т. е. в обоих случаях периоды индукции $\tau \sim \exp(E / RT_s)$.

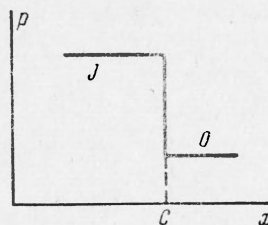
² Косая детонационная волна, бегущая по ударно-сжатому газу, рассматривалась Б. В. Войцеховским в схеме спиновой детонации [10].



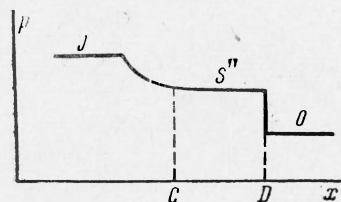
Фиг. 4

Строго говоря, нужно учесть, что в момент, когда возникает состояние $A'B'$, около B в точку A' поступает газ, который уже прошел почти весь свой путь индукции при T_s . При подходе $A'B'$ к A степень химической подготовки газа, попадающего в A' , уменьшается до нуля. Следовательно, расстояние между A' и B' меняется от нуля до величины, соответствующей τ' , вычисленному по T_s . Таким образом, комплекс $A'B'$ не точно стационарен, расстояние между A' и B' медленно растет за то время, пока комплекс проходит путь от B до A . Это отклонение от стационарности мало, если τ' мало по сравнению с τ .

Рассмотрим возмущение противоположного типа, наложенное на нормальную картину фиг. 1. Предположим, что по каким-то причинам зона AB исчезла и с некоторого момента в точке C (фиг. 5) граничат продукты горения в состоянии J и газ в начальном состоянии O . Что произойдет? Восстановится ли картина фиг. 1 и за какое время? Очевидно, произойдет распад разрыва; получится состояние типа фиг. 6. При этом по газу пойдет ударная волна D , переводящая газ в состояние S'' . Эта волна гораздо слабее волны A нормальной схемы. В самом деле, $p_S \approx 2p_J$, тогда как $p_{S''} < p_J$ ($p_{S''} \approx 0.8p_J$ при $\gamma = 1.3$). Химическая реакция начнется лишь по истечении периода индукции τ'' , соответствующего состоянию S'' и температуре $T_{S''}$. Химическая реакция приведет в свою очередь к усилению волны. Однако надо иметь в виду, что $T_{S''} < T_S$, и, следовательно, $\tau'' \gg \tau$. Поэтому вполне вероятна такая ситуация, что



Фиг. 5



Фиг. 6

потери (теплоотдача стенкам и т. п.) за большое время τ'' приведут к ликвидации самовоспламенения и к затуханию детонации. Это вполне возможно даже в том случае, когда потерями за время τ , т. е. в нормальном режиме, можно пренебречь.

Итак, при сильной зависимости скорости химической реакции от температуры нормальный режим неустойчив относительно больших возмущений: возможно появление второй волны с почти удвоенным давлением

и возможно затухание детонации. В рассуждениях, приведенных выше, не затрагивались причины, вызывающие сильные возмущения, которые уже рассматривались. К этому вопросу целесообразно подойти с другой стороны, а именно рассмотреть (сперва также качественно) устойчивость нормальной картины относительно сколь угодно малых возмущений. Такие возмущения при наличии неустойчивости могут нарастать, начиная хотя бы с молекулярных флуктуаций.

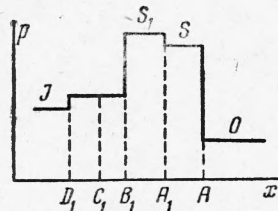
В нормальной картине (фиг. 1) фронт реакции B движется со скоростью u относительно газа, находящегося в состоянии S . Соответствующая массовая скорость горения $m_0 = \rho_S \cdot u$ г/см²сек. Предположим, что в момент t_0 величина m подверглась малому изменению, заменена на $m_1 = m_0 + \Delta m$. Это изменение вызовет перестройку картины движения, так как состояния слева и справа от точки B при $t \leq t_0$ представляли собой решения уравнений гидродинамики с условием сшивания, в которое входило $m = m_0$. Если при $t \geq t_0$ задано $m = m_1$, а состояние при $t = t_0$ соответствовало $m = m_0$, то при $t > t_0$ произойдет распад разрыва, вызванный несоответствием начального состояния и условия сшивания.

Положим для определенности $\Delta m > 0$. Влево и вправо от B пойдут волны сжатия, так как увеличение m вызовет повышение давления. Амплитуда этих волн, очевидно, пропорциональна Δm , так что при малом Δm волны можно рассматривать как звуковые. На фиг. 7 A_1 представляет собой фронт звуковой волны в сжатом газе, D_1 то же для волны, распространяющейся в продуктах горения. В продуктах горения можно еще различить энтропийный разрыв C_1 между продуктами, образовавшимися до t_0 и после t_0 . B_1 есть новое положение фронта реакции. Рассматривается момент времени, когда волна A_1 не достигла A , для чего нужно

$$t - t_0 < \frac{u}{c_s - u} \tau$$

где c_s — скорость звука в состоянии S .

Теперь рассмотрим ключевой вопрос: какое обратное влияние окажет такая перестройка потока на химическую реакцию? При $t < t_0$ каждая частица проходила свой период индукции при постоянной температуре T_S . Следовательно, период индукции всех частиц был одинаков и равнялся $\tau = \tau_0 = c / f(T_S)$. В ударной волне в точке A частицы подвергаются



Фиг. 7

сжатию одна за другой в темпе, характеризуемом m_0 . Так как период индукции всех частиц одинаков, то они в том же темпе и сгорают. При $t > t_0$ каждая частица подвергается сперва ударному сжатию до состояния S , а затем дополнительному слабому сжатию до состояния S_1 (фиг. 7). Легко найти момент t_2 , когда произошло дополнительное сжатие той частицы, которая попадает в B в момент t_1 . Момент t_2 определяется встречей траектории частицы со звуковой волной. Удобно пользоваться координатами ξ , t , где

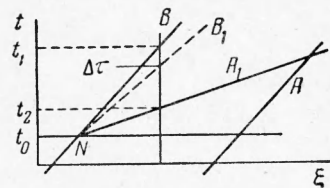
$$\xi = \int \rho dx$$

— лагранжева координата частицы (фиг. 8). В этих координатах траектория частицы изображается вертикальной прямой. Ударная волна A идет с наклоном $d\xi / dt = m_0$, с тем же наклоном идет невозмущенный фронт горения B . В момент t_0 от B отходит звуковая волна A_1 , у которой $d\xi / dt = c_s \rho_s$, где c — скорость звука, ρ — плотность, индекс указывает состояние вещества. Если $c_s \rho_s > m_0$ (так как $c_s > u$), то линия A_1 идет более полого, чем линия A , и пересекает ее. Из графика следует, что

$$t_2 - t_0 = (t_1 - t_0) \frac{m_0}{c_s \rho_s} \quad (1.4)$$

Отсюда

$$t_1 - t_2 = (t_1 - t_0) \frac{c_s - u}{c_s} \quad (1.5)$$



Фиг. 8

Последняя величина дает время пребывания частицы в состоянии S_1 . Но в состоянии S_1 частица химически созревает быстрее. Поэтому при $t_1 > t_0$ период индукции оказывается зависящим от t_1 . Так как время пребывания в S_1 пропорционально $t_1 - t_0$, то изменение периода индукции также пропорционально $t_1 - t_0$. Это изменение, кроме того, пропорционально и амплитуде волны, т. е.

$$\tau(t_1) = \tau_0 - k(t_1 - t_0) \Delta m \quad (1.6)$$

При постоянной (равной m_0) скорости сжатия вещества волной A и линейно со временем меняющемся τ произойдет, очевидно, изменение скорости горения. На фиг. 8 показан отрезок $\Delta \tau = k(t_1 - t_0) \Delta m$.

Линейная зависимость $\Delta\tau$ от $t_1 - t_0$ означает, что между линиями NB и NB_1 есть угол, пропорциональный Δm . Легко установить, что

$$m_{1c} = \frac{m_0}{1 + d\tau/dt} = \frac{m_0}{1 - k\Delta m} \approx m_0 + m_0 k \Delta m \quad (1.7)$$

Таким образом, навязанное извне изменение скорости горения Δm вызывает, в силу изменения условий протекания химической реакции (сокращения периода индукции), изменение скорости горения

$$\Delta m_c = m_{1c} - m_0 = m_0 k \Delta m \quad (1.8)$$

Выдвигается критерий: нормальный процесс устойчив при

$$\frac{\Delta m_c}{\Delta m} = \alpha < 1 \quad (\alpha = m_0 k) \quad (1.9)$$

При обратном знаке неравенства процесс неустойчив. Величина α содержит в качестве множителя E/RT_s , так как в расчет входит производная функции $f(T)$ по температуре при $T = T_s$. Следовательно, увеличивая E/RT_s , всегда можно сделать $\alpha > 1$.

Можно рассуждать так, что внесенное извне возмущение $\mu = \Delta m$ вызовет химическое изменение $\Delta m = \alpha\mu$, последнее вызовет изменение $\alpha^2\mu$ и т. д., возмущение нарастает в геометрической прогрессии. Симптоматично, однако, что это рассуждение не дает никакой величины размерности времени для процесса нарастания возмущений. Время τ не играет такой роли, так как условие

$$t_1 - t_0 < \frac{u}{c_s - u} \tau$$

лишь ограничивает область применимости проведенного рассмотрения. Но развитие возмущений происходит локально около точки B и момента t_0 , так что величина τ не дает никакой нижней границы для времени возрастания возмущений.

Проведенное суждение привело к бесконечной скорости нарастания возмущений. Такой результат получился потому, что время реакции считалось бесконечно малым, вследствие этого фронт горения B на фиг. 1 получился резким, и, следовательно, бесконечная скорость нарастания возмущений есть результат чрезмерной идеализации химической реакции. Следует полагать, что аккуратное рассмотрение реакции, как, например, в [5, 7], или аналогичное для цепной реакции даст конечное значение ω в законе $e^{\omega t}$ нарастания возмущений; при этом значение ω будет порядка $1/\tau_2$ (τ_2 — время реакции), а не порядка $1/\tau$ (τ — период индукции); знак ω с хорошей точностью определится критерием, выведенным выше.

§ 2. При нахождении параметра α , входящего в соотношение (1.9), для облегчения выкладок будем пользоваться обозначениями работы [6]. Представим себе, что фронт горения самопроизвольно стал двигаться влево, его отклонение от плоскости $x = L$ обозначим через $\varepsilon_2(t)$. По веществу в областях 1 и 2 пойдут слабые возмущения (звуковые волны), в которых все величины будут немного изменены. Из законов сохранения имеем связь между величинами возмущений слева и справа от разрыва

$$\begin{aligned} V_2' (h_2 p_2 + p_1) + p_2' (h_2 V_2 - V_1) - V_1' (h_1 p_1 + p_2) - p_1' (h_1 V_1 - V_2) &= 0 \\ v_2' - v_1' &= \frac{1}{2j} [p_1' - p_2' - j^2 (V_1' - V_2')] \quad \left(h = \frac{\gamma + 1}{\gamma - 1} \right) \quad (2.1) \\ \frac{v_1'}{v_1} - \frac{v_2'}{v_2} &= \left(\frac{1}{v_1} - \frac{1}{v_2} \right) \frac{\partial \varepsilon_2}{\partial t} + \frac{V_1'}{V_1} - \frac{V_2'}{V_2} \end{aligned}$$

Здесь $j = \rho_0 v_0 = \rho_1 v_1 = \rho_2 v_2$ — поток вещества при отсутствии возмущений, $V = 1/\rho$ — удельный объем, газ считаем идеальным с показателем изэнтропы γ . В области химика величины в звуковой волне,

идущей справа налево, связаны соотношениями

$$-\frac{v_1'}{c_1} = \frac{p_1'}{\rho_1 c_1^2} = -\frac{V_1'}{V_1} \quad (2.2)$$

В продуктах горения помимо звуковой волны слева направо распространяется вместе с газом энтропийное возмущение, в котором отличны от нуля только возмущения плотности и энтропии запишем

$$\frac{v_2'}{c_2} = \frac{p_2'}{\rho_2 c_2^2} = -\frac{V_2''}{V_2}, \quad V_2' = V_2'' + V_2''' \quad (2.3)$$

Условия (2.4, 2.2, 2.3) позволяют все величины выразить через $\partial \varepsilon_2 / \partial t$.

Период индукции зависит от эффективных значений давления и температуры при прохождении частицей зоны химика. Соответствующее условие для малых возмущений имеет вид [6]

$$v_1 \int_{t_1}^{t_1+\tau} \left(M \frac{p_1'}{p_1} + N \frac{T_1'}{T_1} - \frac{v_1'}{v_1} \right) dt' - \varepsilon_1(t_1) + \varepsilon_2(t_1 + \tau) = 0 \quad (2.4)$$

$$M = \frac{\partial \ln f}{\partial \ln p}, \quad N = \frac{\partial \ln f}{\partial \ln T}$$

Здесь t_1 — момент прохождения данной частицей фронта ударной волны, который при этом находился в точке $x = \varepsilon_1(t_1)$; $f(p, T)$ — функция, характеризующая зависимость периода индукции от давления и температуры (производные берутся при $p = p_1, T = T_1$). Будем считать, что $\varepsilon_1 = 0$; это возможно, если звуковая волна не дошла до точки $x = 0$. Предположим, что возмущение фронта горения началось в момент $t = 0$, сигнал об этом дойдет до фронта ударной волны за время

$$t_* = \frac{v_1}{c_1 - v_1} \tau$$

Для моментов $t_1 < t_*$ условие $\varepsilon_1 = 0$ можно считать выполненным. В момент $t' > 0$ звуковой сигнал от фронта горения находится в точке

$$x(t') = v_1 \tau - (c_1 - v_1) t' \quad (2.5)$$

Частица, которой предстоит сгореть в момент t , должна пройти через фронт ударной волны в момент $t_1 = t - \tau$. В дальнейшем траектория этой частицы описывается уравнением

$$x(t') = v_1(t' - t_1) = v_1 \tau + v_1(t' - t) \quad (2.6)$$

Встреча данной частицы с фронтом звуковой волны произойдет в момент t' , определяемый равенством выражений (2.5) и (2.6); получим

$$t' = (v_1 / c_1) t \quad (2.7)$$

В зоне повышенного давления рассматриваемая частица будет находиться в течение времени

$$\Delta t = t - t' = \left(1 - \frac{v_1}{c_1} \right) t \quad (2.8)$$

В интеграле (2.4) все величины считаем кусочно-постоянными. Тогда, имея в виду, что $\varepsilon_1 = 0$, получим

$$v_1 \left(M \frac{p_1'}{p_1} + N \frac{T_1'}{T_1} - \frac{v_1'}{v_1} \right) \left(1 - \frac{v_1}{c_1} \right) t + \varepsilon_2(t) = 0 \quad (2.9)$$

В случае идеального газа имеем

$$pV = \text{const } T, \quad \frac{p'}{p} + \frac{V'}{V} = \frac{T'}{T} \quad (2.10)$$

Поэтому (2.9) можно записать так

$$v_1 \left[(M + N) \frac{p_1'}{p_1} + N \frac{V_1'}{V_1} - \frac{v_1'}{v_1} \right] \left(1 - \frac{v_1}{c_1} \right) t + \varepsilon_2(t) = 0 \quad (2.11)$$

Продифференцируем это равенство по времени

$$v_1 \left[(M + N) \frac{p_1'}{p_1} + N \frac{V_1'}{V_1} - \frac{v_1'}{v_1} \right] \left(1 - \frac{v_1}{c_1} \right) - \frac{\partial \varepsilon_2^*}{\partial t} = 0 \quad (2.12)$$

Получающееся в результате ускорения химической реакции смещение фронта горения в уравнении (2.12) обозначено через $\varepsilon_2^*(t)$ в отличие от $\varepsilon_2(t)$ в предыдущих формулах. Очевидно, что величины $a = \partial \varepsilon_2 / \partial t$ и $b = \partial \varepsilon_2^* / \partial t$ с точностью до множителя совпадают с величинами Δm и Δm_c , о которых шла речь в конце § 1. Тогда согласно (1.9) условием локальной неустойчивости фронта горения будет

$$\alpha = b/a > 1 \quad (2.13)$$

Ограничимся для простоты случаем сильной детонационной волны в режиме Жуге. Предположим также, что $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma$; так что $h_1 = h_2 = h$. Условие (2.13) примет вид

$$\alpha = \frac{b}{a} = \frac{(h+2)(h-1)(\sqrt{h+1}-1)(\mu + \sqrt{h+1})}{(h+1)[(h+2)(h-1) + 2\sqrt{h+1}]} > 1 \quad (\mu = \gamma M + (\gamma-1)N) \quad (2.14)$$

Неравенство (2.14) выполняется, если

$$\mu > \frac{(h+3)(h+1 + \sqrt{h+1})}{(h+2)(h-1)} \quad (2.15)$$

Если $M = 0$ (т. е. период индукции не зависит от давления), то фронт горения в рассматриваемой модели будет неустойчив, когда

$$N = \frac{\partial \ln f}{\partial \ln T} = \frac{E}{RT_s} > \frac{(h+3)(h+1 + \sqrt{h+1})}{2(h+2)} \quad (2.16)$$

Заметим, что для $\gamma = 7/5$ ($h = 6$), $\gamma = 9/7$ ($h = 8$), $\gamma = 11/9$ ($h = 10$) правая часть неравенства (2.16) равна соответственно 5.4, 6.6, 7.7.

Интересно отметить, что неравенство (2.15) в точности совпадает с условием неустойчивости, полученным в [6], формула (14)]. Объясняется это тем, что характеристическое уравнение (12), полученное в [6], для нормальной детонационной волны, пригодно и в том предельном случае, когда, с одной стороны, в силу малости волнового числа k_0 возмущения можно считать одномерными, а, с другой стороны, при очень больших периодах индукции можно пренебречь взаимодействием фронта горения и фронта ударной волны. Приведенные выше соображения показывают, что при выполнении неравенства (2.15) по крайней мере для $k_0 = 0$ не имеет смысла находить собственные частоты по уравнению (12) из [6], так как в этом случае развитие возмущений определяется временем реакции τ_2 .

Поступила 5 VIII 1963

ЛИТЕРАТУРА

1. Зельдович Я. В. К теории распространения детонации в газообразных системах. Ж. эксперим. и теор. физ., 1940, 10, стр. 542.
2. D ö r i n g W. Über der Detonation-vorgang in Gasen. Ann. Physik, 1943, vol. 43.
3. N e u m a n n J. v. Theory of detonation waves. OSRD, 1942, rep. No 549.
4. Щелкин К. И. Два случая неустойчивого горения. Ж. эксперим. и теор. физ., 1959, т. 36, вып. 2, стр. 600.
5. Зельдович Я. В., Компанец А. С. Теория детонации: Гостехиздат, 1955.
6. Зайдель Р. М. Об устойчивости детонационных волн в газовых смесях. Докл. АН СССР, 1960, т. 136, № 5.
7. Пухначев В. В. Об устойчивости детонации Чепмена — Жуге. Докл. АН СССР, 1963, т. 149, № 4, стр. 798.
8. Денисов Ю. Н., Трошин Я. К. Пульсирующая и спиновая детонация газовых смесей в трубах. Докл. АН СССР, 1959, т. 125, № 1, стр. 110.
9. Дремин А. Н., Розанов О. К., Трофимов В. С. О механизме детонации жидких взрывчатых веществ. ПМТФ, 1963, № 1, стр. 130.
10. Войцеховский Б. В. Стационарная детонация. Докл. АН СССР, 1959, т. 129, № 6, стр. 1254.