

модиффузии. Тогда с использованием условий (16), (18) и $\Delta\varphi \approx \psi^2/4$ получим

$$\frac{40 a_{*}^2}{u_*^2} \left[\frac{R_0^2 u_*^2}{40 \varepsilon D_c (T_r) a_r} \right]^{4/5} > H_0^2,$$

$$m_0 < \frac{3}{5} + \frac{3}{10} \left[\frac{40 \varepsilon D_c (T_r) a_r}{R_0^2 u_*^2} \right]^{2/5}.$$

Принимаем $D_c(T_r) \sim 10^{-9}$ см²/с, $\varepsilon \approx 10^{-3}$, $u \approx 1$ см/с, тогда $H_0 < 30$ см, $m_0 < 0.6$.

ЛИТЕРАТУРА

1. Хайкин Б. И.— В кн.: Горение и взрыв.— М.: Наука, 1977.
2. Алдушин А. П., Мартемьянова Т. М., Мержанов А. Г. и др. ФГВ, 1972, 8, 2, 202.
3. Дульнев Г. Н., Заричняк Ю. П. Теплопроводность смесей и композиционных материалов.— Л.: Энергия, 1974.
4. Чудновский А. Ф. Теплофизические характеристики дисперсных материалов.— М.: Физматгиз, 1962.
5. Еремеев В. С. Диффузия и напряжения.— М.: Энергоатомиздат, 1984.
6. Гегузин Я. Е. Физика спекания.— М.: Наука, 1984.
7. Chermant J. L., Coster M., Jernot J. P. Met. et etud. sci. Rev. met., 1984, 81, 1, 5.
8. Klemens P. G. Therm. Conduct. Vol. 17. Proc. 17-th Int. Conf., Gaithersburg, Md., 15—18 June, 1981.— N. Y.— L., 1983.
9. Kuczynski G. Science of sintering, 1977, 9, 3, 243.
10. Алдушин А. П., Луговой В. Д., Мержанов А. Г. и др. Докл. АН СССР, 1978, 243, 6, 1434.
11. Шкадинский К. Г. Докт. дис. ОИХФ АН СССР, 1983.
12. Любов Б. Я. Диффузионные процессы в неоднородных твердых средах.— М.: Наука, 1981.

Поступила в редакцию 8 /VII 1986,
после доработки — 11/V 1987

ОБ УСТОЙЧИВОСТИ СТАЦИОНАРНЫХ РЕЖИМОВ ГОМОГЕННОГО ГОРЕНИЯ ПРИ СЕЛЕКТИВНОМ ВОЗДЕЙСТВИИ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

А. С. Бухарбаева, П. Г. Ицкова, А. Т. Лукьянов
(Алма-Ата)

Развитие квантовой электроники и доступность лазеров позволяют рассматривать подвод к газу большой энергии посредством поглощения лазерного излучения. Благодаря высокой монохроматичности лазерного излучения появилась возможность управлять поведением химически реагирующей системы путем избирательного воздействия на компоненты смеси [1], что приводит к различным динамическим закономерностям химических реакций [2]. В данной работе теоретически исследуется влияние селективности воздействия лазерного излучения на динамическое поведение химического реактора.

Рассматривается модель проточного гомогенного химического реактора идеального перемешивания, в котором протекает экзотермическая реакция типа $A \rightarrow B$. Газ находится в тонкой кювете, расположенной перпендикулярно лазерному лучу. Селективный характер лазерного воздействия учитывает нормированная поглощательная способность смеси $f(C)$. Если излучение резонансно поглощается добавкой буферного газа, не принимающего непосредственного участия в реакции, то $f(C)=1$, если продуктом реакции — $f(C)=1-C$, исходным веществом — $f(C)=C$ [2]. Интенсивность излучения задается экспоненциальным законом $I = I_0 \exp(-r^2/r_0^2)$, где I_0 , r_0 — константы, характеризующие интенсивность и радиус пучка.

Математически в безразмерных переменных задача формулируется следующими уравнениями теплопроводности и диффузии:

$$Fo > 0, 0 < s_1 < 1, 0 < s_2 < 1,$$

$$\frac{\partial \Theta}{\partial Fo} = -Pe \frac{\partial \Theta}{\partial s_1} + \frac{\partial^2 \Theta}{\partial s_1^2} + \varphi \xi_1^2 \frac{1}{s_2} \frac{\partial}{\partial s_2} \left(s_2 \frac{\partial \Theta}{\partial s_2} \right) + Ff(C) \exp \left(-\frac{\xi_2^2}{\xi_1^2} \right) -$$

$$- B Da C \exp \left(-\frac{1}{\Theta} \right), \quad (1)$$

$$\frac{\partial C}{\partial Fo} = -Pe \frac{\partial C}{\partial s_1} + Le_L \frac{\partial^2 C}{\partial s_1^2} + Le_r \xi_1^2 \frac{1}{s_2} \frac{\partial}{\partial s_2} \left(s_2 \frac{\partial C}{\partial s_2} \right) +$$

$$+ A \frac{\partial}{\partial s_1} \left(\frac{C(1-C)}{\Theta} \frac{\partial \Theta}{\partial s_1} \right) - Da C \exp \left(-\frac{1}{\Theta} \right)$$

с начальными

$$Fo = 0: 0 \leq s_1 \leq 1, 0 \leq s_2 \leq 1, \Theta = \Theta_0, C = C_0$$

и граничными условиями

$$Fo > 0: s_1 = 0, 0 \leq s_2 \leq 1, \Theta = \Theta_{\text{вх}}, C = C_{\text{вх}},$$

$$s_1 = 1, 0 \leq s_2 \leq 1, \frac{\partial \Theta}{\partial s_1} = 0, \frac{\partial C}{\partial s_1} = 0,$$

$$s_2 = 0, 0 \leq s_1 \leq 1, \frac{\partial \Theta}{\partial s_2} = 0, \frac{\partial C}{\partial s_2} = 0,$$

$$s_2 = 1, 0 \leq s_1 \leq 1, -\frac{\partial \Theta}{\partial s_2} = Bi_T (\Theta - \Theta_\infty), \frac{\partial C}{\partial s_2} = 0.$$

Безразмерные переменные и параметры получены следующим образом:

$$s_1 = \frac{x}{L}, s_2 = \frac{r}{R_0}, a = \frac{D_L^T}{\rho c_p}, Fo = \frac{at}{L^2}, \Theta = \frac{RT}{E}, \xi_1 = \frac{L}{R_0}, \xi_2 = \frac{R_0}{r_0},$$

$$\varphi = \frac{D_r^T}{D_L^T}, Pe = \frac{vL}{a}, Le_L = \frac{D_L^C}{a}, Le_r = \frac{D_r^C}{a}, A = \frac{\alpha}{a}, Da = \frac{k_0 L^2}{a},$$

$$Bi_T = \frac{\alpha_1 R_0}{\lambda_1}, B = \frac{(-\Delta H) R}{\rho c_p E}, F = \frac{\delta I_0 L^2 R}{\rho c_p a E}.$$

Здесь x, r, t — продольная, радиальная координаты, время; Θ — температура смеси; C — массовая доля концентрации исходного вещества; ρ — плотность; $D_L^C, D_L^T, D_r^C, D_r^T$, $\alpha, \lambda_1, c_p, \alpha_1$ — коэффициенты продольной и радиальной диффузии, термодиффузии, теплопроводности, удельной теплоемкости смеси, теплопередачи; v — скорость подачи реагента; $k_0, E, (-\Delta H)$ — предэкспоненциальный множитель, энергия активации, тепловой эффект реакции; δ — коэффициент поглощения излучения в среде; $Bi_T, A, Pe, Le_L, Le_r, Da$ — тепловой критерий Био, безразмерный коэффициент термодиффузии, числа Пекле, Льюиса, Дамкеллера. Индекс ∞ относится к окружающей среде.

Для приближенного аналитического исследования использована нульмерная модель [3], которая получается заменой в (1) пространственных дифференциальных операторов разностной аппроксимацией по трем точкам с учетом граничных условий

$$\frac{d\Theta}{dFo} = -(A_1 + A_2 \varphi \xi_1^2) \Theta + A_1 \Theta_{\text{вх}} + A_2 \varphi \xi_1^2 \Theta_\infty + F'f(C) +$$

$$+ B Da C \exp \left(-\frac{1}{\Theta} \right) = \Psi(\Theta, C), \quad (2)$$

$$\frac{dC}{dFo} = -(A_1 + A_3)(C - C_{\text{вх}}) + \frac{4A(\Theta - \Theta_{\text{вх}})}{\Theta^2} (2C\Theta\Theta_{\text{вх}} - \Theta C_{\text{вх}} -$$

$$- C\Theta + C\Theta_{\text{вх}} - C^2\Theta_{\text{вх}}) - Da C \exp \left(-\frac{1}{\Theta} \right) = Q(\Theta, C),$$

$$Fo = 0: \Theta = \Theta_{\text{вх}}, C = C_{\text{вх}},$$

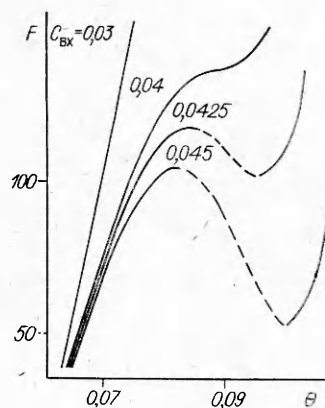


Рис. 1. Бифуркационные кривые $F(\Theta)$; $A = 0$, $f(C) = C$.

где $A_1 = 2(\text{Pe} + 2)$, $A_2 = \frac{6\text{Bi}_1}{2 + \text{Bi}_T}$, $A_3 = 4(\text{Le}_L - 1)$ — эффективные коэффициенты, характеризующие скорость подачи реагента, теплообмен с окружающей средой и диффузию; $F' = F \exp(-\xi_2^2)$. С целью упрощения записи в дальнейшем штрих опускается и вводятся переменные $B_1 = A_1 + A_2\varphi\xi_1^2$, $B_2 = A_1\Theta_{\text{вх}} + A_2\varphi\xi_1^2\Theta_\infty$, $B_3 = A_1 + A_3$.

Стационарные состояния системы (2) определяются уравнениями

$$\Psi(\Theta_s, C_s) = 0, \quad Q(\Theta_s, C_s) = 0 \quad (3)$$

и могут быть найдены с помощью бифуркационной диаграммы

$$F(\Theta_s) = \frac{1}{f(C_s)} \left[B_1\Theta_s - B_2 - B \text{Da} C_s \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right) \right],$$

где

$$C_s(\Theta_s) = -\frac{\Theta_s^2}{4A(\Theta_s - \Theta_{\text{вх}})} \left[B_3 - \frac{4A(\Theta_s - \Theta_{\text{вх}})}{\Theta_s^2} (2\Theta_s C_{\text{вх}} + \Theta_{\text{вх}} - \Theta_s) + \text{Da} \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right) \right] + \sqrt{\left\{ \frac{\Theta_s^2}{8A(\Theta_s - \Theta_{\text{вх}})\Theta_{1x}} \left[B_3 - \frac{4A(\Theta_s - \Theta_{\text{вх}})}{\Theta_s^2} (2\Theta_s C_{\text{вх}} + \Theta_{\text{вх}} - \Theta_s) + \text{Da} \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right) \right]^2 - \frac{\Theta_s^2 C_{\text{вх}}}{4A(\Theta_s - \Theta_{\text{вх}})\Theta_{1x}} \left[-B_3 + \frac{4A(\Theta_s - \Theta_{\text{вх}})}{\Theta_s^2} \right] \right\}}.$$

Если влияние термодиффузии незначительно ($A = 0$), то $C_s = \frac{B_3 C_{\text{вх}}}{B_3 + \text{Da} \exp(-1/\Theta_s)}$. На рис. 1 для этого случая представлены возможные типы кривых $F(\Theta_s)$ при различных значениях $C_{\text{вх}}$. Все остальные параметры соответствуют разложению окиси углерода [4], излучение поглощается исходным веществом ($f(C) = C$). Как видно, при различных значениях C на входе в реактор система обладает одним или тремя стационарными состояниями. В зависимости от начальных условий процесса устанавливается низко- или высокотемпературное стационарное состояние, промежуточное неустойчиво и не реализуется.

Параметрические уравнения границы неединственных стационарных состояний находятся из условия (3) и равенства $\partial F / \partial \Theta_s = 0$. Для плоскости «концентрация реагента на входе в реактор — интенсивность излучения» эти уравнения имеют вид

$$F = \frac{1}{f(C_s)} \left[B_1\Theta_s - B_2 - B \text{Da} C_s \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right) \right],$$

$$C_{\text{вх}} = \frac{C_s \left\{ B_3 - \frac{4A(\Theta_s - \Theta_{\text{вх}})}{\Theta_s^2} (\Theta_{\text{вх}} - \Theta_s - C_s \Theta_{\text{вх}}) + \text{Da} \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right) \right\}}{B_3 + \frac{4A(\Theta_s - \Theta_{\text{вх}})}{\Theta_s^2} (2C_s - 1)}, \quad (4)$$

где C_s — решение уравнения

$$\Phi_1 C^4 + \Phi_2 C^3 + \Phi_3 C^2 + \Phi_4 C + \Phi_5 = 0. \quad (5)$$

Соотношения, определяющие коэффициенты Φ_i , имеют вид

$$\begin{aligned}
 f(C) = 1: \quad & \Phi_1 = 0, \quad \Phi_2 = P_1 - P_5 B \text{Da} \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right), \quad \Phi_3 = P_2 - \\
 & - P_6 B \text{Da} \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right), \\
 & \Phi_4 = 0, \quad \Phi_5 = P_4; \\
 f(C) = 1 - C: \quad & \Phi_1 = -P_1^2, \quad \Phi_2 = P_1 - P_2 - P_5 \left[B \text{Da} \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right) - B_1 \Theta_s + B_2 \right], \\
 & \Phi_3 = P_2 - P_3 - P_6 \left[B \text{Da} \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right) - B_1 \Theta_s + B_2 \right], \\
 & \Phi_4 = P_3 - P_4 - P_7 \left[B \text{Da} \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right) - B_1 \Theta_s + B_2 \right], \quad \Phi_5 = P_4; \\
 f(C) = C: \quad & \Phi_1 = 0, \quad \Phi_2 = P_1, \quad \Phi_3 = P_2 - P_5 (B_1 \Theta_s - B_2), \\
 & \Phi_4 = P_3 - P_6 (B_1 \Theta_s - B_2), \quad \Phi_5 = P_4 - P_7 (B \Theta_s - B_2). \\
 \\
 & P_1 = -\frac{2s_1^2 \Theta_{\text{BX}}}{\Theta_s^3} B \text{Da} \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right); \quad P_2 = \frac{2s_1^2 \Theta_{\text{BX}}}{\Theta_s^3} B_1 - \\
 & - \frac{2s_1 s_2 \Theta_{\text{BX}}}{\Theta_s^3} B \text{Da} \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right); \quad P_3 = \frac{s_2^2}{\Theta_s^2} B \text{Da} \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right) + \\
 & + \frac{2s_1 s_2 \Theta_{\text{BX}}}{\Theta_s} B_1; \quad P_4 = s_2 s_3 B_1; \quad P_5 = \frac{8A \Theta_{\text{BX}}}{\Theta_s^2} \left(\frac{\Theta_{\text{BX}}}{\Theta_s} - 1 \right) s_1; \\
 & P_6 = \frac{4A \Theta_{\text{BX}}}{\Theta_s^2} \left(2s_3 - \frac{\Theta_{\text{BX}}}{\Theta_s} s_1 + s_2 \right) - \frac{4s_1^2 \Theta_{\text{BX}}}{\Theta_s^2} - \frac{2s_1}{\Theta_s^2} \text{Da} \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right); \\
 & P_7 = -\frac{4A \Theta_{\text{BX}}}{\Theta_s^2} s_3 - \frac{2s_1 s_2 \Theta_{\text{BX}}}{\Theta_s^2} - \frac{\text{Da}}{\Theta_s^3} s_2 \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right); \\
 & s_1 = \frac{4A (\Theta_s - \Theta_{\text{BX}})}{\Theta_s}; \quad s_2 = B_3 - s_1; \\
 & s_3 = B_3 + \frac{4A (\Theta_s - \Theta_{\text{BX}})^2}{\Theta_s^2} + \text{Da} \exp\left(-\frac{1}{\Theta_s}\right).
 \end{aligned}$$

Из условий Рауса — Гурвица [5] находятся параметрические уравнения границы седел

$$\Delta = \Psi'_\Theta Q'_C - \Psi'_C Q'_\Theta = 0 \quad (6)$$

и нейтральной устойчивости

$$\sigma = -(\Psi'_\Theta + Q'_C) = 0.$$

Как оказалось, выражение (6) совпадает с уравнениями (4). Таким образом, стационарное состояние типа седло может существовать только в области неединственных стационарных состояний. Граница колебательных режимов, ограничивающая область существования фокусов, определяется [5] условием

$$\sigma^2 - 4\Delta = 0.$$

Линейная теория [5] дает также формулу для расчета периода колебаний

$$\tau_a = 4\pi / \sqrt{4\Delta - \sigma^2}. \quad (7)$$

Уравнения границы нейтральной устойчивости $\sigma = 0$ и колебательных режимов $\sigma^2 - 4\Delta = 0$ не приводятся здесь из-за их громоздкости. На рис. 2 показана картина деления плоскости C_{BX}, F на области возможных стационарных режимов горения смеси бифуркационными кривыми. В об-

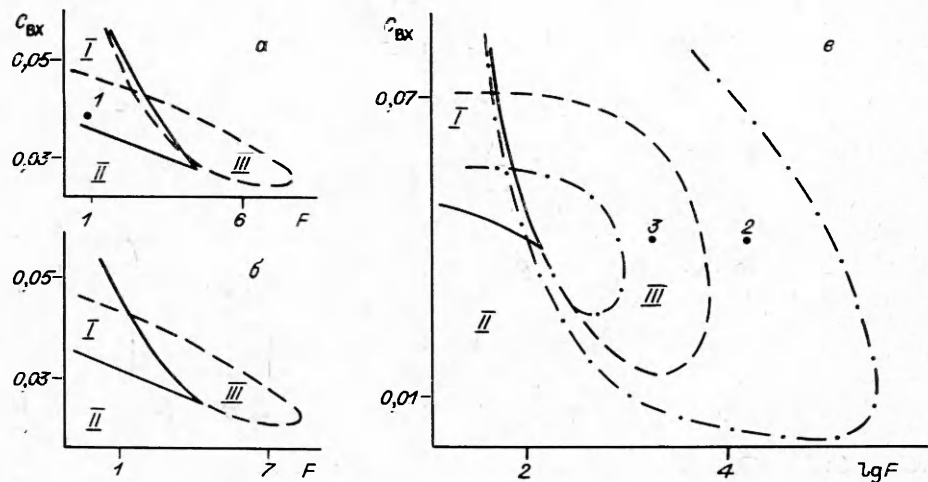


Рис. 2. Взаимное расположение кривых $\Delta = 0$ (сплошные), $\sigma = 0$ (штриховые) и $\sigma^2 - 4\Delta = 0$ (штрихпунктирные) на плоскости $C_{вх}, F$ при $A = 0$, $f(C) = 1$ (а), $1 - C$ (б) и C (в).

ласти II реализуется единственное устойчивое, а в III — неустойчивое положение равновесия. Область I соответствует трем стационарным режимам горения, средний из которых не реализуется. Как видно из рис. 2, области возможных режимов горения незначительно отличаются, если излучение поглощается буферным газом или продуктом реакции. В последнем случае они смещаются в сторону более высоких концентраций и интенсивностей излучения. Если излучение поглощается исходным веществом, то эти области значительно смещаются в сторону более высоких концентраций и интенсивностей излучения. При этом увеличиваются области неединственных (I) и особенно автоколебательных (III) режимов. Последнее связано с возникновением дополнительной отрицательной обратной связи концентрация — температура (за счет уменьшения концентрации исходного вещества снижается интенсивность поглощения лазерного излучения).

Изменение взаимного расположения границ $\Delta = 0$, $\sigma = 0$ и $\sigma^2 - 4\Delta = 0$ происходит как вследствие селективного поглощения лазерного излучения, так и из-за влияния на процесс определяющих его течение физико-химических свойств. Рассмотрим, например, каким образом коэффициент термодиффузии влияет на поведение системы. Практический интерес представляет случай, когда термодиффузионный поток направлен в горячую область, т. е. $A < 0$. Вычисления показали, что с увеличением термодиффузионного потока границы $\Delta = 0$ и $\sigma = 0$ смещаются в сторону более низких концентраций исходного вещества на входе в реактор, при этом область нейтральной устойчивости сужается (рис. 3). Последнее объясняется тем, что с понижением коэффициента A растет термодиффузионный поток, сопутствующий потокам, обусловленным молекулярной диффузией и конвекцией. При этом уменьшается различие между эффективными коэффициентами массо- и теплопереноса, что способствует стабилизации режима горения.

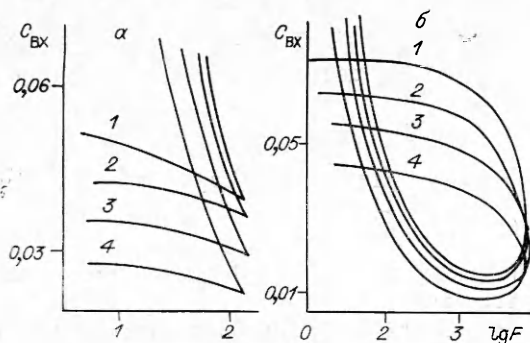


Рис. 3. Влияние коэффициента термодиффузии на расположение границ $\Delta = 0$ (а) и $\sigma = 0$ (б) при $f(C) = C$.
A равно: 1 — 0, 2 — 1, 3 — 3, 4 — 6.

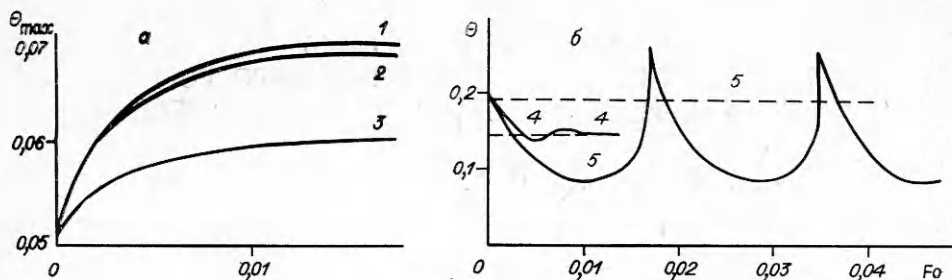


Рис. 4. Изменение со временем максимальной температуры.
а) низкотемпературный режим $f(C) = 1$ (1), $1 - C$ (2) и C (3); б) режим затухающих колебаний (4) и автоколебательный (5). Сплошные линии — численное решение (1), штриховые — решение задачи (3).

В случае, когда лазерное излучение поглощается буферным газом, расчеты, выполненные по теории теплового режима горения [3] и нестационарной теории теплового взрыва [6], позволили установить в случае $A = 0$ максимальную при горении температуру

$$\Theta_{\max} = \Theta_{\text{вх}} + \vartheta + \frac{\delta I_0 R}{c_p E} \quad (8)$$

(здесь ϑ — приведенная теплотворность смеси) и максимальное значение периода индукции у самого предела воспламенения

$$\tau_i = \frac{2.703 \left[\frac{B_1}{\Theta_{\text{вх}}^2} + \frac{1}{2} \frac{F}{\Theta_{\text{вх}}^2} \frac{\exp\left(\frac{E}{RT_0}\right)}{\text{Da}} \right]^{1/3}}{B_1 \left[1 + \frac{1}{2} \frac{F}{\Theta_{\text{вх}}^2 B_1} \exp \left\{ 1 + \frac{A_2 \varphi_{\text{сг}}^2}{\Theta_{\text{вх}}^2 B_1} \left(\frac{\Theta_{\infty}}{\Theta_{\text{вх}}} - 1 \right) + \frac{F}{\Theta_{\text{вх}}^2 B_1} \right\} \right]^{2/3}} \quad (9)$$

Для проверки результатов приближенного анализа задача (1) решалась на ЭВМ по условно-устойчивым конечно-разностным формулам. В качестве примера на рис. 4, а показано временное распределение максимальной температуры, соответствующее низкотемпературному режиму (точка 1 на рис. 2, а) для различных зависимостей $f(C)$. В случае $f(C) = 1$ $\Theta_{\max} = 0,072$, а период индукции $\tau_i = 0,018$, а по (8) и (9) получается $\Theta_{\max} = 0,0728$ и $\tau_i = 0,0132$. На рис. 4, б представлена численная реализация режима с затухающими колебаниями (точка 2 на рис. 2, в) и автоколебательного режима (точка 3 на рис. 2, в). В последнем случае $\tau_a = 0,018$, а формула (2) дает $\tau_a = 0,0163$.

Таким образом, численный эксперимент подтверждает характер режимов и их параметры, предсказанные аналитически. Наличие термодиффузии и селективный характер лазерного воздействия оказывают существенное влияние на динамическое поведение химически реагирующей системы. Это дает возможность управлять поведением системы при перестройке лазерного излучения с одного компонента реакции на другой.

ЛИТЕРАТУРА

1. Грунвальд Э., Дивер Д., Кин Ф. Мощная инфракрасная лазерохимия. — М.: Мир, 1981.
2. Бункин Ф. Б., Кириченко Н. В., Лукьянчук Б. С. УФН, 1982, 138, 1, 45.
3. Вулис Л. А. Тепловой режим горения. — М.: Госэнергоиздат, 1954.
4. Puszynski J., Shita D., Hlavacek V. e. a. Chem. Engng. Sci., 1981, 36, 10, 1605.
5. Вольтер Б. В., Сальников И. Е. Устойчивость режимов работы химических реакторов. — М.: Химия, 1981.
6. Франк-Каменецкий Д. А. Диффузия и теплопередача в химической кинетике. — М.: Наука, 1967.

Поступила в редакцию 10/X 1986