

О ДЕТОНАЦИИ В ГАЗЕ, НАГРЕТОМ УДАРНОЙ ВОЛНОЙ

P. И. Солоухин

(Новосибирск)

К необходимости специального исследования свойств детонационных волн в газе, предварительно нагретом до температур в 600—1800°К, приводит анализ ряда явлений, характерных для газовой детонации. Прежде всего это относится к переходу медленного горения в детонацию [1]. Здесь предварительный нагрев обусловлен нестационарным расширением продуктов горения, в процессе которого перед пламенем формируется ударная волна (или волна непрерывного сжатия) и развивается взрыв сжатого газа. Кроме того, рассматриваемый вопрос интересен и для объяснения особенностей многофронтового характера детонации, так как фронт воспламенения обычно не совпадает с фронтом «головной» ударной волны [1]. Заметим, что основные черты упомянутых процессов тесно связаны с рассмотренным ранее [2] очаговым характером развития самовоспламенения в адиабатически нагретом газе.

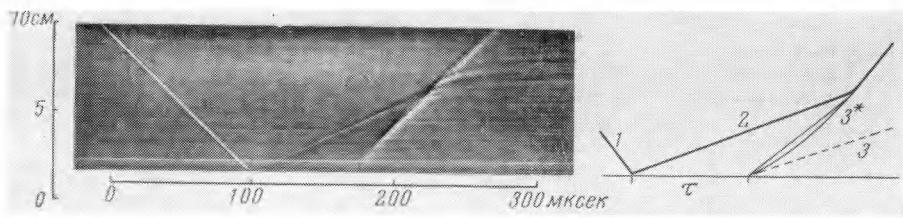
1. Фронт реакции и возникновение детонации. Особенности формирования детонационной волны в нагретом газе удобно рассмотреть на примере смеси, сильно разбавленной инертным газом. Развортки такого процесса за отраженной ударной волной в ударных трубках получены различными авторами [3—5] (такого же рода развертки здесь представлены на фиг. 1—5). Наиболее интересны последние две работы, где отмечается возможность введения особого разрыва — «фронта реакции».

На фиг. 1 показана развертка развития самовоспламенения за отраженной ударной волной в смеси $0.8 \text{ Ar} + 0.1 \text{ H}_2 + 0.1 \text{ O}_2$ в ударной трубке прямоугольного сечения $5 \text{ см} \times 5 \text{ см}$. Схема поясняет ход процесса, который естественнее всего представить следующим образом. Фронт отраженной волны 2 является границей полного торможения потока газа за падающей волной 1. В то же время момент прохождения частицами газа фронта 2, если отвлечься пока от нагрева в волне 1, служит началом отсчета задержки воспламенения (периода индукции) нагретой смеси τ , т. е. фронт 2 является по существу фронтом начала реакции. В силу однородности состояния газа за волнами 1 и 2 на расстоянии τ за фронтом 2 должен был бы распространяться фронт основного тепловыделения или «фронт реакции» 3, параллельный на развертке линии волны 2. Этот, не совсем точный термин употребляется здесь, чтобы подчеркнуть отличие данной ситуации от случая обычного горения.

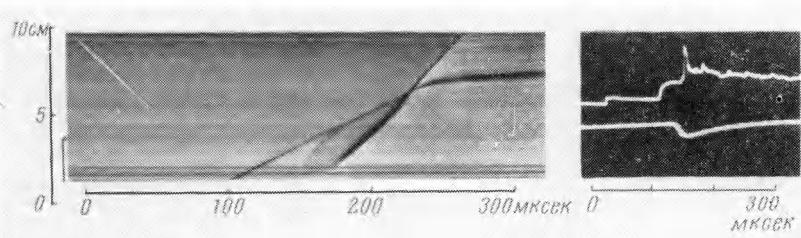
Выделение тепла, начинающееся у отражающей стенки за фронтом 3, приводит к «сдвигу» всей картины к фронту 2 из-за движения продуктов горения от стенки, которые, подобно поршню, формируют в несгоревшем газе волну сжатия 3*. Кроме своей первоначальной скорости распространения относительно несгоревших частиц $S = D_-$, фронт реакции приобретает относительно стенок дополнительную скорость смещения u — скорость потока газа в волне сжатия. Учитывая необходимость выполнения граничного условия $u' = 0$ возле стенки, амплитуду волны 3* в начальной стадии естественно определить так, чтобы приобретаемая в ней скорость частиц u в точности равнялась разнице в скоростях на фронте реакции.

Таким образом, можно принять следующие условия переходов 1-2-3:

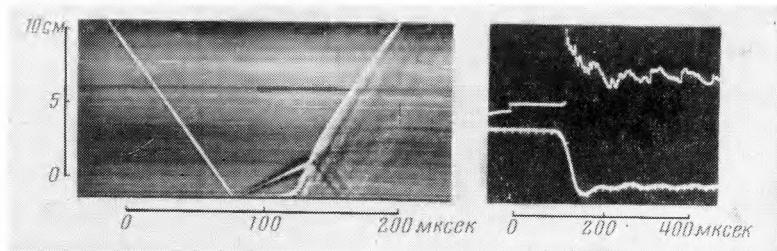
$$\frac{\rho_2 S}{\rho_2 S u} = \frac{\rho_3 (S + u)}{p_2 - p_3}, \quad u = \frac{2}{\gamma - 1} (c_2 - c_1), \quad \frac{p_3}{\rho_3} = \frac{R}{\mu_3} T_3 = \alpha(T_2)$$



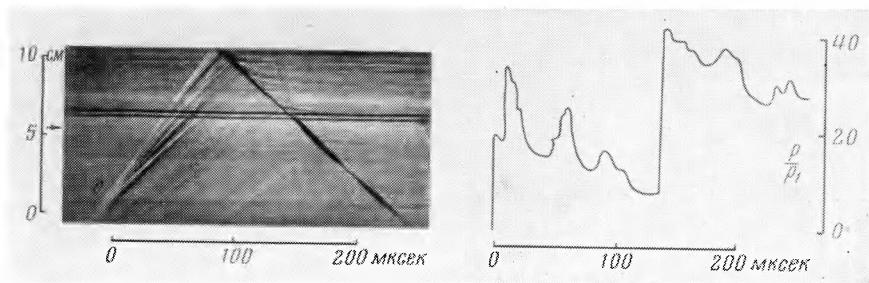
Фиг. 1. Шлирен-снимок (развертка) и схема перехода горения в детонацию за фронтом отраженной ударной волны



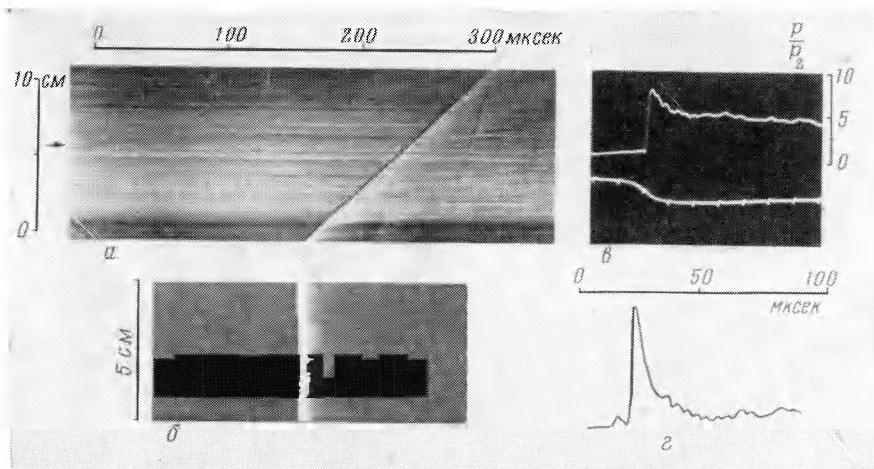
Фиг. 2. Сопоставление оптической развертки процесса с записью давления в стенке трубы миллиметровым импульсным пьезодатчиком. Стрелкой показано положение датчика на развертке; запись второго луча — свечение газа



Фиг. 3. Развертка формирования детонации за отраженной волной в смеси $H_2 + O_2$



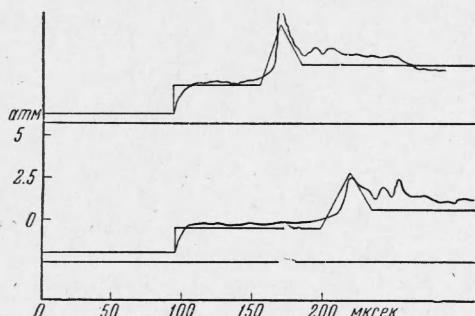
Фиг. 4. Развертка и давление картины самовоспламенения газа за фронтом детонации в разбавленной смеси без предварительного нагрева



Фиг. 5. Записи «одномерной» детонации: а — шлирен-развертка через щель, перпендикулярную фронту, б — шлирен-развертка через щель, параллельную фронту, с — полной компенсацией движения фронта («моментальный снимок» фронта), д — осциллограммы давления и свечения ($\lambda = 4140 \text{ \AA}$) процесса, е — фотография

Здесь индекс 3 относится к продуктам горения, T_3 — температура горения смеси, вычисленная с учетом предварительного нагрева T_2 , а c — скорость звука. Полагая $S = D_{\perp}$, можно однозначно определить параметры газа в состояниях 2 и 3. На фиг. 6 вычисленная таким способом скорость фронта реакции относительно стенок трубы $S' = S + u$ сравнивается с ее опытным значением, полученным из разверток процесса вблизи отражающей стенки, до фазы ускорения фронта 3 (см. фиг. 1). Для иллюстрации одномерности процесса же графике приведены расчетные и опытные данные о скорости отраженной ударной волны D_{\perp} . Необходимо заметить, что скорость фронта 3 относительно стенок $u + S$ больше скорости звука за отраженной волной c_1 в 1.15—1.3 раза, поэтому приближение адиабатической волны здесь может быть справедливым лишь в самой начальной стадии существенно неуставновившегося процесса.

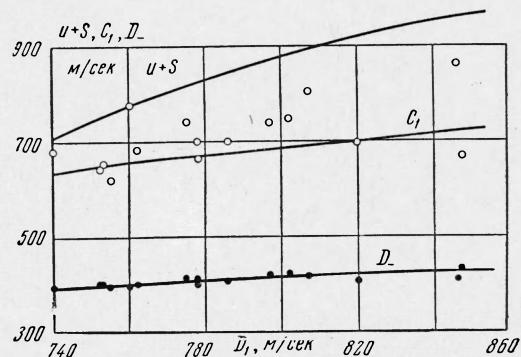
Таким образом, проведенный расчет может дать лишь верхнюю оценку величины $u + S$ и служит в основном для ориентировки. Как видно из фиг. 6, на опыте скорость фронта 3 в начальной стадии, как правило, ниже вычисленной и лишь незначительно превышает скорость звука c_1 .



Фиг. 7. Сравнение осциллограмм давления с «профилем» процесса, восстановленным по разверткам в соответствии с принятой расчетной схемой: 1 — $T = 1180^\circ \text{K}$; 2 — $T = 1150^\circ \text{K}$

дает с фронтом реакции и т. д. На фиг. 7 дано количественное сопоставление измерений давления с расчетом по описанной схеме. Из этих графиков также нетрудно убедиться, что расчетное и измеренное на опыте изменения давления при переходах 1-2 и 2-3 хорошо согласуются.

Как видно из разверток, приведенных на фиг. 1 и 2, скорость фронта реакции постепенно возрастает до величины порядка детонационной. По-видимому, к формированию ударной волны здесь добавляются еще два фактора: сокращение периода индукции смеси вследствие дополнительного нагрева в области 2-3 и влияние на задержки воспламенения разницы во времени пребывания последующих слоев газа в состоянии предвари-



Фиг. 6. Сравнение расчетных и опытных данных о скорости отраженной ударной волны и скорости «фронта реакции» относительно стенок трубы

Тем не менее, сравнение опыта с расчетом указывает на возможность применения рассмотренной схемы для описания начальной стадии процесса. Наиболее убедительно об этом свидетельствуют измерения давления на стенке трубы, проведенные с применением импульсного пьезодатчика [1], имеющего диаметр воспринимающей поверхности 1 мм. Выбранную схему подтверждает фиг. 2, где показаны развертка и осциллограмма одного и того же процесса: волна сжатия имеет непрерывный фронт, ее максимум совпадает с фронтом реакции и т. д. На фиг. 7 дано количественное сопоставление измерений давления с расчетом по описанной схеме. Из этих графиков также нетрудно убедиться, что расчетное и измеренное на опыте изменения давления при переходах 1-2 и 2-3 хорошо согласуются.

Как видно из разверток, приведенных на фиг. 1 и 2, скорость фронта реакции постепенно возрастает до величины порядка детонационной. По-видимому, к формированию ударной волны здесь добавляются еще два фактора: сокращение периода индукции смеси вследствие дополнительного нагрева в области 2-3 и влияние на задержки воспламенения разницы во времени пребывания последующих слоев газа в состоянии предвари-

тельного нагрева за падающей ударной волной, где температура смеси для разных волн составляет от 700 до 850° К. Влияние нагрева в волне 3* наиболее существенно, так как в этом случае изменение температуры газа, например, для падающей ударной волны с $D_1 = 800$ м/сек, будет

$$\left(\frac{P_2}{P_1} \right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}} T_1 = 1.4 T_1 = 1800^\circ K$$

что приводит к сокращению задержки воспламенения (см. кинетические данные п. 2 статьи) от 56 до 12 мксек, в то время как период индукции за падающей волной по порядку величины не менее 10^{-3} сек.

Чтобы закончить описание схемы формирования детонации в нагретом газе, необходимо рассмотреть случай «богатой» смеси, где в целом сохраняется описанная выше последовательность процессов. Отличие состоит лишь в том, что явление менее «растянуто» во времени и пространстве, а переход от быстрого горения к детонации происходит с большим ускорением и сопровождается образованием детонационной волны. Нагрев газа 1.9 ± 0.2 атм

Фиг. 8. Расчетные и опытные данные о задержках самовоспламенения в смеси $H_2 + O_2$, разбавленной аргоном. Давление газа 1.9 ± 0.2 атм

Развертка такого процесса в смеси $H_2 + O_2$ показана на фиг. 3. Сравнивая этот снимок с фиг. 1 и 2, можно также заметить, что в богатой смеси с высоким тепловыделением наиболее выражен многоочаговый характер воспламенения в окрестности области горения.

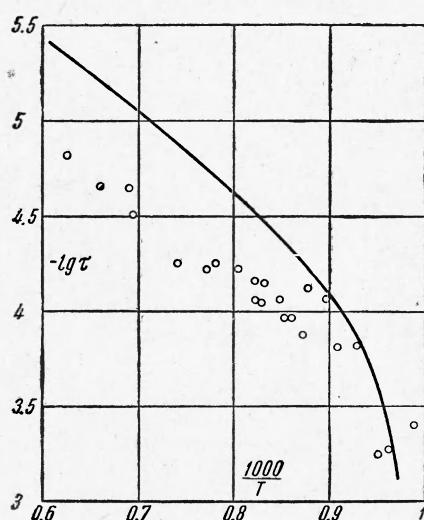
2. О кинетике самовоспламенения в смеси водорода с кислородом, разбавленной аргоном. Кинетические данные о температурной зависимости периода индукции в смеси водорода с кислородом, значительно разбавленной аргоном, впервые были приведены в работе [6]. Несмотря на большой разброс экспериментальных точек в этих опытах, из сравнения с нашими расчетами [7] можно было убедиться, что константа скорости ведущей реакции периода индукции в разбавленной смеси ниже, чем в чистом газе. На фиг. 8 приведены результаты наших измерений для смеси $0.8Ar + 0.1H_2 + 0.1O_2$, где эта разница выражена наиболее отчетливо; сплошной линией проведена расчетная зависимость периода индукции данной смеси от температуры, полученная аналогично [7] по формуле

$$\frac{1}{\tau} = \frac{10^8 p}{V T} \left[\exp \left(-\frac{18000}{RT} \right) - \frac{10^{-4} p^*}{T} \right] \frac{1}{\ln 10^5}$$

где учитывается «конкуренция» между основной реакцией разветвления (k_2) $H + O_2 \rightarrow OH + O$, имеющей энергию активации 18 ккал/моль, и реакцией гомогенного обрыва цепей по схеме $H + O_2 + M \rightarrow HO_2 + M$.

Давление газа p^* и парциальное давление смеси p выражены в мм рт. ст., период индукции τ — в сек. Последний множитель характеризует скорость реакции зарождения цепей.

Из сравнения опытных и расчетных данных видно, что энергия активации реакции выбрана правильно, а значение константы скорости реакции ($2k_2$) в области высоких температур приблизительно вдвое ниже, чем в опытах с неразбавленной смесью [7].



Интересно сопоставить с полученными кинетическими данными значения задержек воспламенения в детонационной волне. Картину воспламенения за фронтом детонации без предварительного подогрева газа иллюстрируют развертка и осциллограмма (фиг. 4) давления процесса, полученные в ударной трубе, при начальном давлении $p_0 = 0.06 \text{ atm}$ для смеси $0.8 \text{ Ar} + 0.1 \text{ H}_2 + 0.1 \text{ O}_2$ (фиг. 4). На шлирен-снимке четко виден очаг воспламенения O , возникший в сжатом несгоревшем газе. Горение распространяется из очага воспламенения в виде замкнутой поверхности пламени, имеющей в системе координат, связанной с частицами газа за волной, скорость расширения около 400 m/sec . Из снимка также видно, что процесс носит периодический характер и напоминает картину локальных взрывов, предложенную ранее Р. Беккером для объяснения спиновой детонации. Периодическое возникновение очагов в смеси водорода с кислородом было замечено также в работе [8].

Определив по скорости потока газа за ударной волной время жизни «несгоревших» частиц в нагретом состоянии в точке возникновения очага воспламенения, находим период индукции для температуры, соответствующей скачку во фронте ударной волны ($T = 1550^\circ \text{ K}$, $\tau = 45 \text{ мксек}$). На фиг. 8 нанесена соответствующая данному случаю экспериментальная точка с величиной τ , приведенной по давлению к условиям воспламенения за отраженной волной. Можно отметить хорошее согласование полученного таким способом значения периода индукции с аналогичными изменениями в отраженных волнах.

Таким образом, протяженность зоны реакции для «детонационных» температур ($T = 1800—2000^\circ \text{ K}$) в разбавленной смеси водорода с кислородом составляет для атмосферного давления за фронтом не менее 25 мксек .

Зону реакции такой длины можно было бы легко регистрировать при помощи имеющейся аппаратуры, однако локальный, «очаговый» механизм воспламенения в большинстве наиболее интересных случаев приводит к неодномерности течения и исключает наблюдение одномерной и стационарной зоны реакции за ударным фронтом детонации. Как будет ясно из дальнейшего, предварительный нагрев смеси перед фронтом может существенно изменить картину самовоспламенения газа, поэтому в некоторых случаях появляется возможность реализации самоподдерживающейся плоской детонационной волны с одномерной зоной химической реакции за фронтом.

3. Стационарные волны в предварительно нагретом газе. Одномерная детонация. Для смеси водорода с кислородом, разбавленной аргоном, характерно отсутствие очагового самовоспламенения за отраженной ударной волной — как во время формирования детонации, так и после установления стационарного режима (см. фиг. 1, 2). С учетом этой особенно-

Таблица 1

Одномерная детонация в смеси $0.8 \text{ Ar} + 0.1 \text{ H}_2 + 0.1 \text{ O}_2$, $p_0 = 0.05—0.07 \text{ atm}$

№	D_1	u	$D' + u$	$T_2, ^\circ \text{K}$	M_2	$(p_D/p_2)_p$	$(p_s/p_2)_p$	$(p_s/p_2)_g$
1	766	484	1399	677	2.82	6.3	9.4	10.5
2	812	527	1370	741	2.65	5.6	8.75	7.4
3	818	533	1343	749	2.58	5.4	7.8	7.4
4	834	548	1361	768	2.58	5.4	7.8	8.1
5	842	555	1357	776	2.57	5.35	7.45	7.5
6	847	561	1333	783	2.5	5.15	7.45	8.7
7	866	578	1355	805	2.51	5.15	7.45	8.3
8	907	617	1337	848	2.46	5.0	7.1	7.0

сти и данных по кинетике, приведенных в предыдущем разделе, естественно было ожидать, что в этой смеси можно наблюдать «классическую», т. е. одномерную волну детонации. Шлирен-снимки и записи давления полностью подтвердили существование такой волны.

На фиг. 5 показаны развертки процесса, сделанные на расстоянии 5 см от торца через щели, установленные параллельно и перпендикулярно фронту волны, а также осциллограммы давления и свечения газа за фронтом. В табл. 1 приведены данные о рассчитанных и измеренных параметрах газа до и после фронта детонации. В этой таблице, как и в дальнейшем: D_1 [м/сек] — скорость ударной волны; u [м/сек] — скорость потока; $D' + u$ — скорость детонации; T_2 [°К] — температура; M_2 — число Маха детонации; p [атм] — давление. Индекс r означает расчет, индекс θ означает эксперимент. В опытах измерение давления получило хорошее пространственное разрешение: кроме малого размера воспринимающей поверхности пьезоэлемента (1 мм), оно обеспечивалось небольшой скоростью (~ 800 м/сек) детонационной волны относительно стенок трубы из-за ее распространения навстречу потоку за падающей ударной волной.

Измеренное по осциллограммам отношение давления за фронтом детонации к давлению за падающей волной точно соответствует ударному переходу без химической реакции (табл. 1). Затем следует плавный спад давления до величины, составляющей 60—65% от максимального значения. Изменение давления в волне разрежения (индекс R), следующей за фронтом детонации, в данном случае можно оценить так:

$$\left(\frac{p'}{p}\right)_R \approx \left(\frac{T'}{T}\right)^{\frac{\gamma}{\gamma-1}} = \left(1 - \frac{\gamma-1}{2} \frac{\Delta u}{c}\right)^{\frac{2\gamma}{\gamma-1}} \approx 0.85$$

Падение давления в зоне реакции по расчету должно составлять около 31%.

Следовательно, ожидаемое изменение давления за фронтом детонации $p'_3/p_3 \sim 0.59$ вполне согласуется с измерениями по осциллограммам.

Попытки получить одномерную детонацию в смеси $0.8 \text{ Ar} + 0.2 (\text{CH}_4 + 2\text{O}_2)$ к успеху не привели: в установившейся волне наблюдаются высокочастотные колебания, а амплитуда давления за фронтом детонационному давлению. В этом случае картина процесса вполне аналогична детонации в неразбавленных смесях.

Фиг. 9. Давление за фронтом; точки: 1— $p=0.15$, 2— $p=0.01 \div 0.02$, 3— $p=0.03$, 4— $p=0.04 \div 0.05$, 5— $p=0.08 \div 0.1$, 6— p = отражение; стрелкой указана амплитуда колебаний

В литературе по существу отсутствуют сведения о влиянии начальной температуры (более 100° С) на скорость детонации и давление за детонационной волной. В описываемых опытах диапазон изменения начальной температуры, например для смеси $\text{H}_2 + \text{O}_2$, составил 600—1100° К. Этот диапазон интересен тем, что число Маха детонационной волны падает в 1.5—2 раза по сравнению с детонацией в обычных условиях при этом в 2.5—4 раза уменьшается и скачок давления во фронте детонации.

На фиг. 9 приведен график изменения детонационного давления и давления за фронтом ударной волны, имеющей скорость детонации для смеси $\text{H}_2 + \text{O}_2$ при различных начальных температурах. Экспериментальная точка при $T_0 = 300$ ° К является средним значением для 12 опытов, проведенных при начальном давлении 0.1—0.15 атм в ударной трубе. Средняя скорость детонации в этих опытах 2220 ± 60 м/сек. Среднее значение давления в этом случае из-за сильных колебаний газа определялось



экстраполяцией к фронту некоторой условной линии равновесного уровня для колебаний. На графике также отмечены верхняя и нижняя границы измеренных колебаний в газе.

В предварительно нагретой смеси колебания выражены гораздо слабее и практически отсутствуют при высокой температуре. Можно также заметить тенденцию к смещению экспериментальных точек к расчетным данным для давления в ударной волне без горения, особенно заметную при пониженных начальных давлениях газа. При давлениях порядка 0.1 атм, а также при высокой температуре мы имеем практически равновесные давления за фронтом детонации. Смещение вверх точек для начальных давлений 0.01—0.03 атм может иметь вполне правдоподобное объяснение с точки зрения конечных размеров зоны реакции, однако в данном случае еще сохраняются колебания газа и отклонения от одномерности волны.

На фиг. 10 показаны результаты измерений скорости детонации в той же смеси для различных начальных давлений. Сплошная линия — расчетные данные [9], пунктир — приближенная экстраполяция этих данных в область низких давлений, сделанная с учетом изменения состава продуктов детонации с давлением (сдвиг диссоциации паров воды), согласно термодинамическим данным [10]. Можно видеть, что экспериментальные точки в области малых начальных давлений смещаются вниз гораздо сильнее, чем это предсказывают равновесные расчеты. По-видимому, это вызвано взаимодействием волны разрежения с зоной реакции, что не противоречит рассмотренным выше данным по скачкам давления в волнах детонации при малых начальных давлениях смеси (фиг. 9).

В табл. 2—4 приведены результаты аналогичных измерений для детонационных волн в стехиометрических смесях окиси углерода и метана с кислородом. Для этих смесей измеренные параметры детонационных волн в предварительно нагретом газе близки к их равновесным значениям. В той и другой смесях на шлирен-снимках четко фиксируются высокочастотные колебания в окрестности детонационного фронта.

Таблица 2

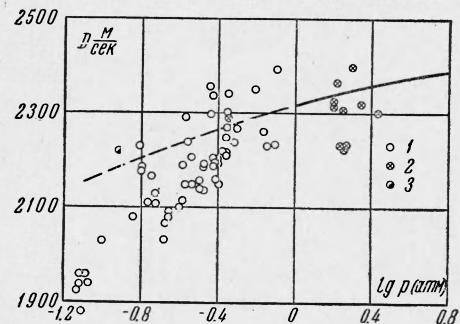
Детонационные волны в смеси $\text{CH}_4 + 2\text{O}_2$

$N_{\#}$	D_1	u	p_2	$T_2, ^\circ\text{K}$	$D' + u$	M_2	$(p_D/p_S)p$	$(p_D/p_S)s$
1	1412	1173	0.39	968	2418	4.02	0.565	0.56
2	1430	1190	0.4	978	2350	3.86	0.566	0.73
3	1540	1292	0.46	1067	2319	3.65	0.572	0.52
4	1558	1310	0.24	1083	2397	3.76	0.569	0.64

Таблица 3

Смесь 0.8 Ar + 0.2 ($\text{CH}_4 + 2\text{O}_2$)

$N_{\#}$	D_1	D	$T_s, ^\circ\text{K}$	p_s	M_D	$(p_D/p_s)p$	$(p_D/p_s)s$
5	1000	1421	1787	3.92	1.94	3.25	2.90
6	1053	1390	1915	3.17	1.83	3.05	2.88



Фиг. 10. Скорость детонации в нагретой смеси $\text{H}_2 + \text{O}_2$ при различных начальных давлениях: 1 — начальная температура газа $T = 650—850^\circ\text{K}$, 2 — $T = 900—1100^\circ\text{K}$, 3 — среднее значение скорости детонации без предварительного нагрева

Таблица 4

Скорость детонации в смеси $2\text{CO} + \text{O}_2 + 1\% \text{H}_2$

N _o	D ₁	u	p ₂	T ₂ , °K	D' + u	p ₃	T ₃ , °K	D
1	1043	780	—	—	—	7.1	1310	1832
2	1056	792	1.56	800	1906	—	—	—
3	1090	825	1.68	832	1848	—	—	—
4	1090	825	1.44	832	1889	—	—	—
5	1097	832	1.45	840	1875	—	—	—
6	1116	843	1.75	853	1801	—	—	—

Из приведенных выше экспериментальных данных, несомненно, особого внимания заслуживает вопрос о физической природе разницы в механизме зарождения реакции в условиях, одинаковых по конечной температуре и давлению и отличающихся лишь предварительным нагревом газа перед ударным фронтом (см. фиг. 4 и 5). Здесь можно, пожалуй, указать на два внешних обстоятельства, различающих эти случаи. Во-первых, при ударном переходе без предварительного нагрева смеси могут сильнее сказываться задержки возбуждения колебаний молекул газа, в частности кислорода. Во всяком случае, период колебательной релаксации в данных условиях имеет величину, сравнимую с периодом индукции воспламенения. Другая причина — разница в акустических импедансах на ударном фронте (приблизительно вдвое) в нагретом и холодном газе. Пока нельзя сделать более конкретных суждений по этому вопросу. Нужно заметить, что оценка границы устойчивости по критерию К. И. Щелкина [11] также не решает этой проблемы, так как оба случая, с точки зрения схемы, принятой для анализа устойчивости горения, равнозначны. Кроме того, в условиях рассматриваемых опытов величина этого критерия меньше единицы (~ 0.5), что, вообще, должно было привести к устойчивости процесса воспламенения в любом из рассматриваемых случаев.

Автор признателен Г. А. Заварзину за помощь в проведении опытов.

Поступила 28 III 1964

ЛИТЕРАТУРА

- Соловухин Р. И. Ударные волны и детонация в газах. Физматгиз, М., 1963.
- Зайцев С. Г., Соловухин Р. И. К вопросу о воспламенении адиабатически нагретой газовой смеси. Докл. АН СССР, 1958, т. 122, № 6, 1039.
- Борисов А. А., Когарко С. М., Любимов А. В. О применении ударных труб для исследования химических реакций. ПМТФ, 1960, № 3, 175.
- Strehlow R. A., Cohen A. Initiation of Detonation. Phys. Fluids, 1960, No. 3, p. 320; 1962, No 5 (1), p. 97.
- Schott G. L., Kinsey J. L. Ignition Times in Hydrogen-Oxygen Reaction. J. Chem. Phys., 1958, v. 29, No. 5, 1177.
- Strehlow R. A., Dugue H. B. One-Dimensional Initiation of Detonation. AJAA-Journ., 1963, v. 1, No. 3, p. 58.
- Воеводский В. В., Соловухин Р. И. О механизме и пределах цепного самовоспламенения водорода с кислородом в ударных волнах. Докл. АН СССР, 1964, т. 154, № 6.
- Greif B., Cooper J. C., Gibson F. C., Mason C. M. Combustion and Detonation in Gases. J. Appl. Phys., 1957, v. 27, No. 3, p. 289.
- Болиджер Л., Эдсе Р. Термодинамические расчеты детонационных параметров смеси водород — кислород при различных начальных давлениях. Ракетная техника, 1961, № 2.
- Варгатик Н. Б. Справочник по теплофизическим свойствам газов и жидкостей. Физматгиз, М., 1963.
- Щелкин К. И. Два случая неустойчивого горения. Ж. эксперим. и теор. физ., 1959, т. 36, № 2, стр. 600.