

УДК: 536.46

Математическое моделирование СВС процесса в гетерогенных реагирующих порошковых смесях

Д. С. Шульц^{1,а}, А. Ю. Крайнов²

¹Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, д. 40

²Томский государственный университет,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, д. 36

E-mail: ^аd_schulz@mail.ru

Получено 30 мая 2011 г.

В настоящей работе приводится математическая модель и результаты численного исследования распространения фронта горения СВС состава, когда скорость химического реагирования в каждой точке по длине образца СВС определяется из решения задачи диффузии и химического реагирования в реакционных ячейках. Получены зависимости скорости фронта горения от размера усредненного элемента гетерогенной структуры при различных значениях интенсивности диффузии. Данные зависимости качественно согласуются с экспериментальными зависимостями. В работе проведено исследование влияния энергии активации диффузии на скорость распространения фронта горения. 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 режиму.

Ключевые слова: безгазовое горение, реакционная ячейка, диффузия, самораспространяющийся высокотемпературный синтез (СВС)

Mathematical modeling of SHS process in heterogeneous reactive powder mixtures

D. S. Shultz¹, A. Yu. Krainov²

¹Tomsk State University of Control Systems and Radioelectronics, 634050 Tomsk, 40, Lenin av.

²Tomsk State University, 634050 Tomsk, 36, Lenin av.

Abstract. – In this paper we present a mathematical model and numerical results on a propagation of the combustion front of the SHS compound, where the rate of chemical reaction at each point of the SHS sample is determined by solving the problem of diffusion and chemical reaction in the reaction cell. We obtained the dependence of the combustion front on the size of the average element of a heterogeneous structure with different values of the diffusion intensity. These dependences agree qualitatively with the experimental data. We studied the effect of activation energy for diffusion on the propagation velocity of combustion front. It is revealed the propagation of the combustion front transforms to an oscillatory regime at increase in activation energy of diffusion. A transition boundary of the combustion front propagation from the steady-state regime to the oscillatory one is defined.

Keywords: gasless burning, reactive cell, diffusion, self-propagating high temperature synthesis (SHS)

Citation: *Computer Research and Modeling*, 2011, vol. 3, no. 2, pp. 147–153 (Russian).

В работах [Алдушин, Мержанов, Хайкин, 1972; Мержанов, Мукасьян, 2007] для описания гетерогенной структуры СВС составов была предложена модель реакционной ячейки. Для учета гетерогенной структуры исходных составов были предложены модели, учитывающие особенности реакции записью кинетических функций в законе Аррениуса. В работе [Лапшин, Овчаренко, 1996] проведены исследования процессов в реакционной ячейке в условиях самораспространяющегося высокотемпературного синтеза (СВС) при нагревании образца внешним источником при заданном законе изменения температуры от времени. В работе [Чернецова, Шкадинский, 2000] для моделирования процессов химического реагирования СВС составов предложен подход, в котором исходный гетерогенный состав моделируется периодической ячеистой структурой, которая предполагается гомогенной в тепловом и гетерогенной в химическом процессах. На макроуровне описывается процесс переноса тепла с учетом локальной динамики химического тепловыделения внутри каждой элементарной ячейки. На микроуровне (в размере элементарной ячейки) моделируется процесс взаимной диффузии и химического реагирования.

В настоящей работе приводится математическая модель и результаты численного исследования распространения фронта горения СВС состава, когда скорость химического реагирования в каждой точке по длине образца СВС определяется из решения задачи диффузии и химического реагирования в реакционных ячейках.

Будем понимать под реакционной ячейкой усредненный элемент гетерогенной структуры смеси порошков, способных к СВС синтезу, содержащий вступающие в реакцию вещества в пропорции, равной их концентрации в смеси. Примем форму элемента гетерогенной структуры в виде шарика, в котором в центре находится вещество, окруженное шаровым слоем другого вещества (рис. 1). В каждом элементе гетерогенной структуры СВС состава происходят процессы диффузии и реагирования реагентов при температуре в соответствующих точках образца, меняющейся во времени в процессе реагирования (рис. 1). При этом полагается, что пространственное распределение температуры по радиусу в реакционной ячейке отсутствует, коэффициент взаимной диффузии зависит от температуры по экспоненциальному закону [Болтакс, 1961].

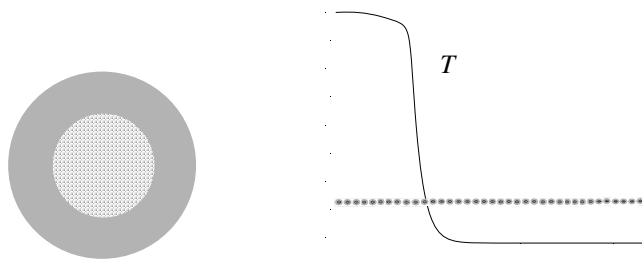


Рис. 1. Схема реакционной ячейки

В соответствии с подходом [Мержанов, Мукасьян, 2007] запишем уравнение теплопроводности в СВС образце в одномерном приближении, в котором учитываются источники от химической реакции:

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

Начальные и граничные условия:

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

В уравнении (1) приняты следующие обозначения: 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 – температура поджигающей стенки на границе $x = 0$.

Скорость химической реакции $\Phi(T(x, t))$ определяется из решения задачи 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):

$$b_1(x, r, 0) = \begin{cases} b_{10}, & 0 < r < r_m, \\ 0, & r_m < r < r_0, \end{cases} \quad b_2(x, r, 0) = \begin{cases} 0, & 0 < r < r_m, \\ b_{20}, & r_m < r < r_0. \end{cases} \quad (5)$$

Полагая, что реакционная ячейка окружена себе подобными, можно записать граничные условия для уравнений (2)–(3) в виде:

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

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

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

Обозначения: b_1, b_2 – плотность реагентов, r – координата сферической системы координат, 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 диффузии от температуры.

Получаемая средняя по ячейкам скорость химической реакции в зависимости от температуры, зависящей от координаты и времени (7), используется в уравнении (1).

Система уравнений (1)–(7) записывалась в традиционных в теории горения безразмерных переменных и параметрах. В качестве масштабов были выбраны: $t_* = \frac{c\rho RT_a^2}{Qb_{11}b_{21}Ek_0 \exp(-E/RT_a)}$,

$x_* = \sqrt{t_* \lambda / c\rho}$, $T_a = T_0 + Qb_{11}/(c\rho)$, где b_{11}, b_{21} – приведенные плотности реагентов. В реакционной ячейке в качестве масштаба по пространству принят её радиус: $\bar{r} = r/r_0$.

С учётом выбранных масштабов безразмерная постановка задачи (1)–(7) принимает вид:

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

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

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

Начальные и граничные условия в безразмерных переменных запишутся следующим образом:

$$\theta(\xi, 0) = \theta_0, \quad \theta(0, \tau) = 0, \quad \frac{\partial \theta(\infty, \tau)}{\partial \xi} = 0, \quad (11)$$

$$c_1(\xi, \bar{r}, 0) = \begin{cases} 1, & 0 < \bar{r} < \bar{r}_m \\ 0, & \bar{r}_m < \bar{r} < 1 \end{cases}, \quad c_2(\xi, \bar{r}, 0) = \begin{cases} 0, & 0 < \bar{r} < \bar{r}_m \\ 1, & \bar{r}_m < \bar{r} < 1 \end{cases}, \quad (12)$$

$$\frac{\partial c_1(\xi, 0, \tau)}{\partial \bar{r}} = \frac{\partial c_2(\xi, 0, \tau)}{\partial \bar{r}} = \frac{\partial c_1(\xi, r_0, \tau)}{\partial \bar{r}} = \frac{\partial c_2(\xi, r_0, \tau)}{\partial \bar{r}} = 0, \quad (13)$$

$$\bar{\Phi}(\theta(\xi, \tau)) = \frac{1}{r_0^3} \int_0^{\bar{r}_0} c_1 c_2 \exp\left(\frac{\theta(\xi, \tau)}{1 + \beta\theta(\xi, \tau)}\right) \bar{r}^2 d\bar{r}. \quad (14)$$

Получившиеся параметры задачи характеризуют: $Le = D_0 / (\lambda / c\rho)$ – интенсивность диффузии, $R_0 = r_0 / \xi_*$ – размер гетерогенной структуры, $E_D = E_a / E$ – 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.

Система уравнений (8)–(10) с краевыми условиями (11)–(13) решалась численно. Уравнения (9)–(10) решались по неявной разностной схеме методом прогонки, уравнение (8) решалось по явной разностной схеме.

Расчеты проводились для значений $\gamma = 0.07143$, $\beta = 0.05$ (из области устойчивости распространения фронта безгазового горения) [Мержанов, Мукасян, 2007] в диапазоне изменения 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 рисунках 2–4.

Было проведено численное исследование зависимости скорости фронта горения от размера усредненного элемента гетерогенной структуры $U(R_0)$. Результаты расчетов представлены на рисунке 2.

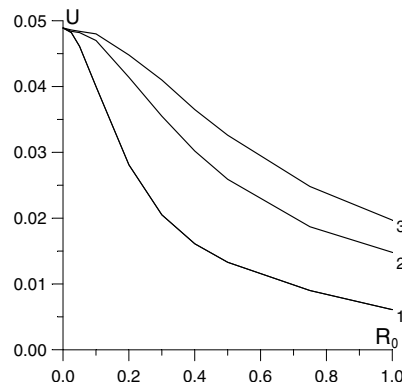


Рис. 2. Зависимость скорости распространения фронта горения от R_0 при различных значениях Le : 1 – $Le = 10^{-5}$, 2 – $Le = 5 \cdot 10^{-5}$, 3 – $Le = 10^{-4}$, $E_D = 1$

Видно, что с увеличением размера частиц реагентов R_0 скорость распространения фронта горения уменьшается. Зависимость скорости фронта горения от радиуса, $U(R_0)$, качественно соответствует экспериментальной зависимости, представленной в [Мержанов, Мукасян, 2007]. С увеличением числа Le скорость фронта горения увеличивается. В исходной постановке задачи имеется один параметр, представляющий собой отношение числа Льюиса к квадрату начального размера гетерогенной структуры образца, Le/R_0^2 . Данные, представленные на рисунке 2, были обработаны в виде зависимости скорости горения от отношения R_0^2/Le и представлены на рисунке 3. Кривые 1–3 рисунка 3 совместились в одну кривую.

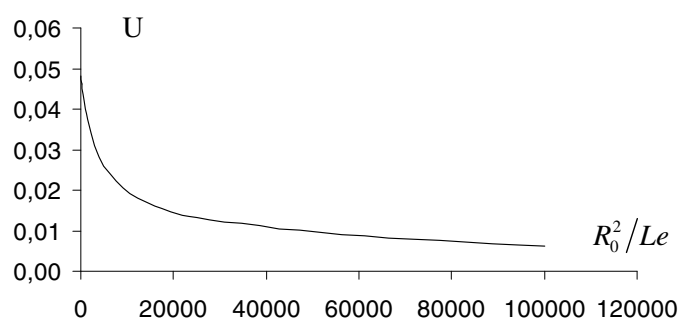


Рис. 3. Зависимости скорости горения от величины R_0^2/Le

Было проведено исследование влияния параметра E_D на скорость распространения фронта горения. С увеличением E_D скорость горения уменьшается, и, начиная с некоторого его значения, распространение фронта горения переходит в пульсирующий режим. На рисунке 4 видно, что при значении $E_D = 1.6$ в распределениях температуры по длине образца имеются периодические всплески. При этом скорость фронта горения меняется колебательным образом (рис. 5).

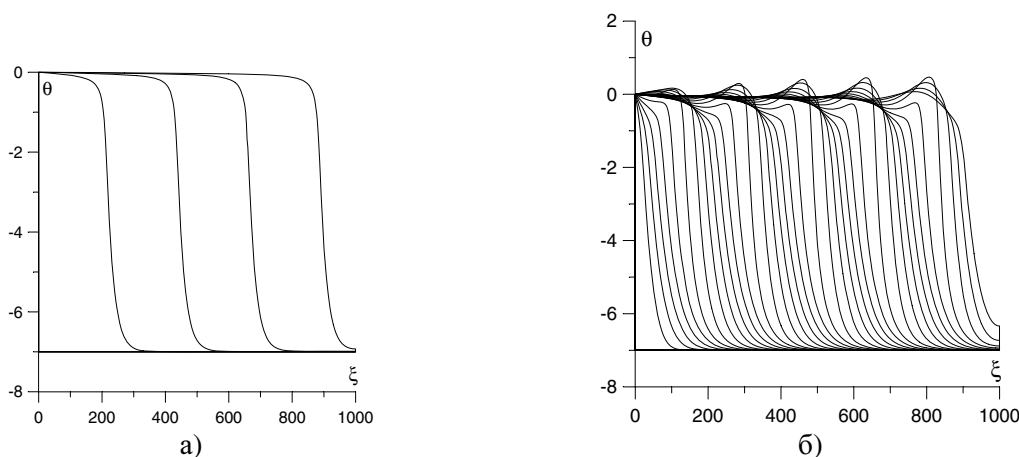


Рис. 4. Распределения температуры θ по ξ в последовательные моменты времени.

$$\gamma = 0.07143; \beta = 0.05; R_0 = 0.1; Le = 5 \cdot 10^{-5}. \text{ а) } E_D = 1.0, \text{ б) } E_D = 1.6$$

На рисунке б) представлены зависимости стационарной скорости распространения фронта пламени от параметра E_D . Зависимости представлены до значения E_D , выше которого распространение фронта горения переходит в пульсирующий режим. При фиксированных значениях размера гетерогенной структуры образца, R_0 , скорость фронта горения с увеличением E_D уменьшается.

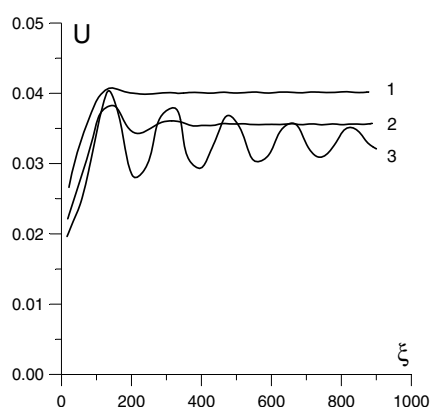


Рис. 5. Зависимость скорости горения U от координаты ξ при различных значениях E_D :
 1 – $E_D = 1.0$, 2 – $E_D = 1.3$, 3 – $E_D = 1.5$. $Le = 10^{-5}$, $R_0 = 0.1$

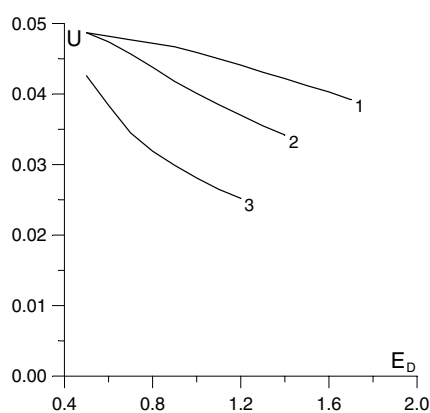


Рис. 6. Зависимость скорости горения U от параметра E_D при различных значениях R_0 :
 1 – $R_0 = 0.05$, 2 – $R_0 = 0.1$, 3 – $R_0 = 0.2$. $Le = 10^{-5}$

Было проведено исследование влияния параметров E_D и R_0 на границу перехода от стационарного к пульсирующему распространению фронта горения. На рисунке 7 представлены области существования стационарного и пульсирующего режимов распространения фронта горения и граница между ними в области параметров $E_D - R_0$.

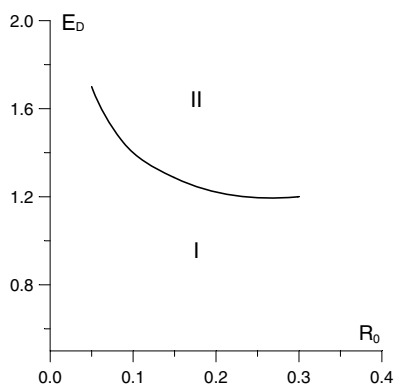


Рис. 7. Области стационарного (I) и колебательного (II) режимов распространения фронта горения при $Le = 10^{-5}$

Таким образом, разработана физико-математическая модель СВС процесса в гетерогенных реагирующих порошковых смесях, учитывающая влияние дисперсности состава смеси порошков на процесс безгазового горения и взаимную диффузию компонентов. Из численного решения системы уравнений математической модели получены зависимости скорости фронта горе-

ния от размера усредненного элемента гетерогенной структуры при различных значениях интенсивности диффузии. Они качественно согласуются с экспериментальными зависимостями. 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 режиму.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке гранта РФФИ № 11-08-00370-а.

Список литературы

- 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.
- Болтакс Б. И.* Диффузия в полупроводниках. – М.: Физматгиз, 1961. – 462 с.
- Латишин О. В., Овчаренко В. Е.* Математическая модель высокотемпературного синтеза алюминиды никеля Ni_3Al в режиме теплового взрыва порошковой смеси чистых элементов // ФГВ, 1996. – Т. 32. – № 3. – С. 68–76.
- Мержанов А. Г., Мукасян А. С.* Твердопламенное горение. М.: ТОРУС ПРЕСС, 2007. – 336 с.
- Чернецова В. В., Шкадинский К. Г.* Математическое моделирование макрокинетики взаимодействия во фронте горения гетерогенных составов с конденсированными продуктами реакции // Материалы XII симпозиума по горению и взрыву. Часть I. – Черноголовка, 2000. – С. 153–155.