

# НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЕ ПРОБЛЕМЫ ГОРЕНИЯ И ВЗРЫВА

№ 2

1965

УДК 532.593+534.222.2

*P. И. Солоухин*

(Новосибирск)

## СТРУКТУРА МНОГОФРОНТОВОЙ ДЕТОНАЦИОННОЙ ВОЛНЫ В ГАЗЕ

В свете ряда исследований, выясняющих природу гидродинамических неоднородностей во фронте детонации в газах [1—4], возникает интерес к вопросу о структуре детонационных волн, далеких от предела, т. е. волн, имеющих почти плоский фронт. На первый взгляд не ясно, сохранится ли и в этом случае «дискретность» воспламенения и горения или течение в волне будет приближаться к классической одномерной схеме детонации. В этом отношении весьма показательны опыты [5], где методом отражения света от фронта детонации водородо-кислородной смеси при начальных давлениях до 20 атм были обнаружены аномальные широкие (с точки зрения одномерной схемы и химической кинетики) зоны ударного перехода. Данная работа посвящена описанию результатов комплексных исследований многофронтовых (терминология см. в [1]) волн детонации в газе путем регистрации давления, плотности, температуры и свечения во фронте с разрешением во времени менее 0,5 мксек (около 1 мм). Из этих опытов также следует, что процесс сгорания газа за ударным фронтом детонации остается существенно неодномерным, а зона химического превращения из-за гидродинамических эффектов оказывается по крайней мере на порядок шире ожидаемой одномерной зоны реакции.

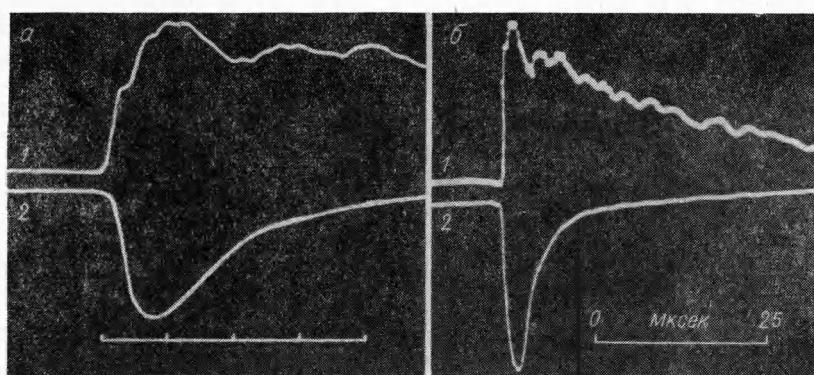


Рис. 1. Осциллограммы давления (1) и свечения (2) детонации в смеси  $C_2H_2 + 2,5O_2$ ,  $p_1 = 0,076$  атм.  
а) быстрая развертка, метки 2 мксек; б) медленная развертка.

**1. Давление и свечение газа.** Из сопоставления одновременной записи давления и свечения газа сразу же обнаруживается интересная особенность процесса: скачок давления, надежно регистрируемый пьезодатчиком в начале процесса ( $p_2=20-25 p_1$ ), заведомо меньше не только давления за плоской ударной волной, имеющей скорость детонации, но также меньше равновесного давления точки Чемпена — Жуге.

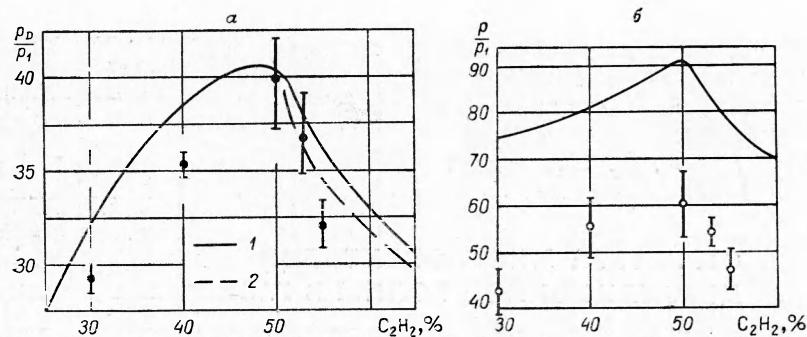


Рис. 2. «Равновесные» (а) и максимальные (б) давления детонации в смеси  $C_2H_2+2,5O_2$  ( $p_1=0,2$  атм) в сравнении с одномерным расчетом.  
1 — полное равновесие; 2 — без учета образования углерода.

Свечение газа запаздывает по отношению к этому первоначальному скачку давления, быстро нарастает и переходит через максимум (рис. 1, а, б). Опыты проводились в смесях ацетилена с кислородом при начальных давлениях 0,04—0,2 атм в трубках прямоугольного сечения  $30\times 15$  и  $30\times 5$  мм. Давление измерялось датчиком, описанным в [2], с диаметром пьезоэлемента 1 мм с тарировкой ударными волнами с точностью в пределах менее 5% измеряемой величины. Расстояние до места наблюдения — 1,5 м. Для сравнения на рис. 1 приведены записи одного и того же процесса с быстрой (а) и относительно медленной (б) разверткой. Хорошо заметно, что при медленной развертке, обычно используемой при подобных регистрациях, трудно уловить ряд деталей процесса, хорошо видимых на быстрой ( $\sim 10$  мксек) развертке. На рис. 2 показаны результаты измерений «равновесных» (а) и максимальных (б) давлений для ацетилено-кислородных смесей различного состава при начальном давлении 0,2 атм. Сплошная линия — равновесный расчет (а) и расчет для ударных волн (б), имеющих данную измененную скорость детонации (без реакции). Измерения скорости детонации проводились скоростным регистратором с точностью около 0,5%.

При регистрации свечения с помощью спектрографа ИСП-51 выделялись центральные участки водородных линий серии Бальмера ( $H_\beta$  и  $H_\gamma$ ) шириной  $\Delta\lambda = 2\text{ \AA}$ . Усилительная часть электронной аппаратуры при фотометрировании и записях давления была проверена в отношении частотных искажений до 10 Мгц. Световой поток записывался двумя фотоумножителями ФЭУ-18.

Сдвиг начала свечения по отношению к началу подъема давления уменьшается при переходе к более высоким начальным давлениям и почти исчезает в пределах разверток 10 мксек при  $p_1 \sim 0,15$  атм, хотя форма кривой давления при этом сохраняется.

**2. Профиль плотности газа.** Измерения плотности газа за фронтом детонации дополняют данные по давлению и наглядно подтверждают существование «пульсационной» структуры фронта в целом — как следствие локально-периодического воспламенения газа в многофронтовых

волнах. Вначале были произведены «интегральные» измерения скачка плотности методом преломления светового пучка шлирен-установки при его косом падении на ударный фронт. Этот метод при исследованиях в инертных газах применялся с постоянным источником света [6]. Сильное собственное свечение газа, особенно в ацетиленовых смесях, явилось причиной перехода к импульсному освещению. На рис. 3 показаны

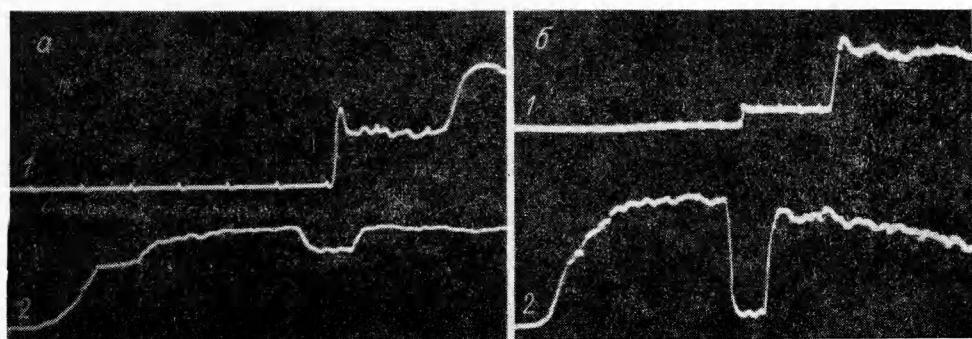


Рис. 3. Осциллограммы давления (1) и светового потока шлирен-установки (2) при измерении скачка плотности методом косого пучка.  
а) детонация; б) тарировка ударной волной.

осциллограммы измерения плотности методом косого пучка (прямоугольный выброс вниз на осциллограмме свечения импульсной лампы), полученные одновременно с записью давления при детонации (а) и в той же смеси в ударной волне без воспламенения (б) — для тарировки. В таблице приведены результаты измерений для смесей различного состава при сравнительно больших (0,2 атм) начальных давлениях. Из этих данных видно, что абсолютная величина скачка плотности немного выше равновесного. Заметим, что без учета изменения состава газа (а следовательно, и показателя преломления) за фронтом скачок плотности близок к равновесному, однако в таблице приведены данные, пересчитанные в соответствии с рефрактометрическими измерениями [4, 7] в предположении о равновесном составе продуктов реакции.

При уменьшении начального давления смеси ниже 0,15 атм измеренный шлирен-методом скачок плотности увеличивается. Данные этих измерений приведены на рис. 4 (пунктир — равновесная плотность).

Начиная именно с этих начальных давлений и ниже, появляются заметные деформации фронта детонации (среднее расстояние между поперечными волнами становится более 1 мм), поэтому отнесим этот эффект к вкладу в преломляющую способность фронта плотных масс сжатого и несторевшего газа, а также к неидеальности плоскости преломляющей свет границы раздела. Характерно, что интерферометрические измерения «равновесной» плотности (см. ниже) также реагируют на появление интенсивных по-

	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> , %				
	25	30	40	50	55
$\rho_2/\rho_1$ (шлир.), $P_1=0,2$ атм	2,11	2,17	2,13	2,13	2,02
$\rho_2/\rho_1$ (интерф.), $P_1=0,06$ атм	—	1,85	—	2,12	—

перечных волн, однако в интегральном смысле применение шлирен-метода становится ограниченным в области начальных давлений 0,13—0,055 atm, в то время как интерферометрические измерения в этой области давлений еще могут быть проведены.

Рассмотрим теперь результаты интерферометрических исследований поля плотности за фронтом детонации. Нужно отметить, что первые интерферометрические исследования этого вида на высоком научном и техническом уровне были сделаны Д. Уайтом [4, 7], однако в его опытах для количественных исследований выбирались пересжатые детонационные волны, в то время как для самоподдерживающихся многофронтовых волн из-за сильных возмущений и при большой оптической длине луча (трубка  $8,25 \times 8,25$  см) разрешить структуру волны вблизи фронта практически не удавалось.

Ударная трубка в настоящих опытах имела сечение  $1,5 \times 3$  см, причем меньший размер — в направлении луча интерферометра. В опытах использовался интерферометр типа Майкельсона с полем зрения  $32 \times 26$  мм и со стандартными объективами коллиматора и наблюдения ( $F = 30$  см). Интерфе-

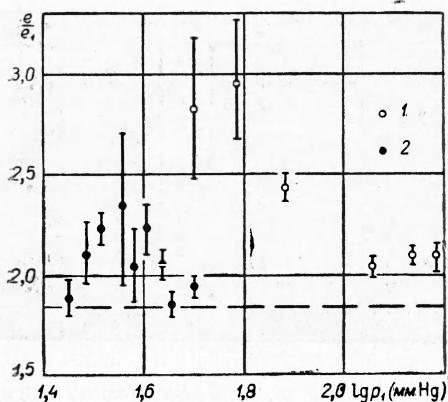


Рис. 4. Сводные данные по измерению плотности за фронтом детонации.

1 — шлирен-метод; 2 — интерферометр.

рометр смонтирован на стальной плите  $60 \times 60$  см, прошедшей термическую обработку для снятия внутренних напряжений. Применялись два вида съемки процесса: а) фотоаппаратом с подсветкой аргоновой лампой с давлением аргона 2 atm ( $\sim 0,5$  мксек) и б) развертка через щель, параллельную фронту, с полной компенсацией движения волны [2]. При втором методе источником освещения была импульсная лампа (200 мксек), а скорость развертки (с учетом уменьшения объектива регистратора) подбиралась с точностью, равной скорости детонации. Снимки процесса, полученные обоими методами, практически совпадают. На рис. 5, а, б приведены интерферограммы фронта детонации в смеси  $C_2H_2 + 2,5O_2$ . Волна движется справа налево, увеличение плотности дает сдвиг полос вверх.

На приведенных интерферограммах характерная ширина зоны ударного перехода при  $p_1 \sim 0,05$  atm составляет около 7 мм  $\sim 3$  мксек. Необходимо заметить, что четкая структура фронта регистрируется на развертках лишь при полной компенсации скорости волны. Вообще говоря, в этом случае качество изображения не должно зависеть от ширины щели, через которую производится съемка. В качестве примера съемки с частичной ( $\sim 0,15 D$ ) компенсацией, а также для иллюстрации поведения плотности на больших расстояниях от фронта детонации, на рис. 5, в приведена интерферограмма процесса при начальных условиях, близких к 5, а. Детали структуры фронта в этом случае не разрешаются, а постепенное падение плотности за фронтом соответствует течению в волне разрежения. Сопоставление интерферограммы с записями других параметров газа будет дано ниже.

3. Измерение температуры. Ранее [2] для измерений температуры за фронтом детонации ацетилено-кислородных смесей был применен фотоэлектрический метод, основанный на записи обращения линии  $C_2$ .

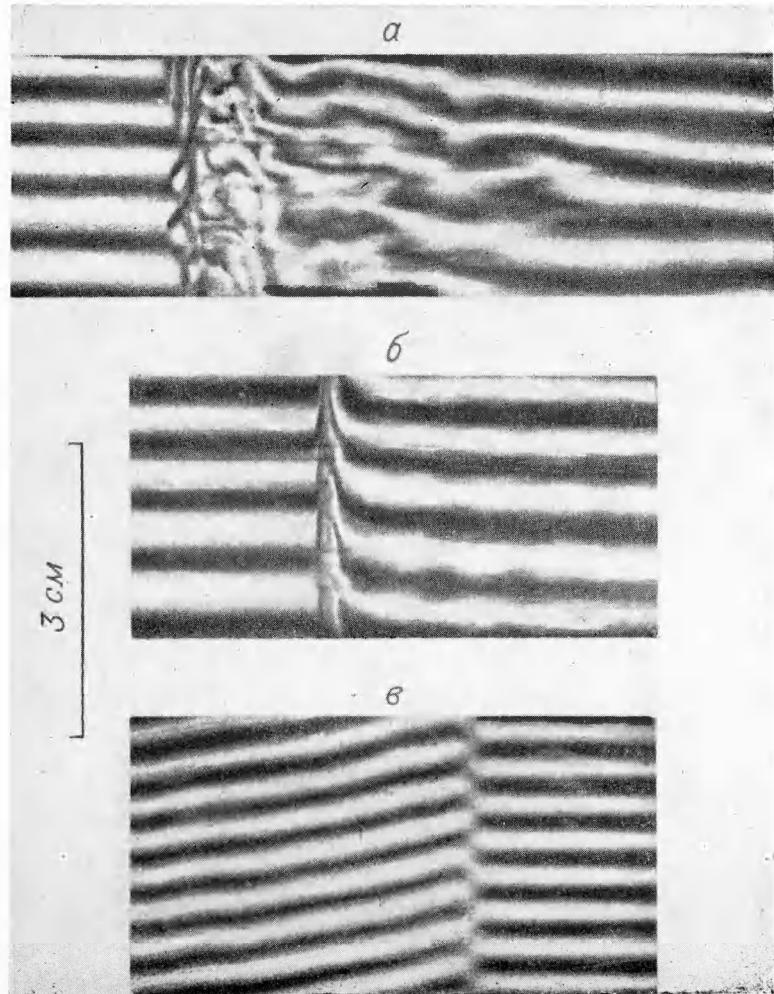


Рис. 5. Интерферограммы фронта детонации в смеси  $C_2H_2 + 2,5O_5$ .  
а —  $p_i = 0,04$  атм; б —  $p_i = 0,05$  атм; в — то же, без компенсации.

Микросекундных исследований в этих опытах не проводилось, поэтому было лишь отмечено, что вблизи фронта либо могут быть температуры выше равновесных, соответствующие резкому выбросу свечения газа, либо существуют отклонения от равновесного свечения частиц  $C_2$ . В работах [8] также наблюдались начальные выбросы свечения в детонационных волнах, которые приписывались хемилюминесценции. Основываясь на приводимых ниже данных по температуре, представляется целесообразным вновь вернуться к природе начального выброса свечения. Из сопоставлений результатов измерений методом обращения с измерениями относительной интенсивности двух линий свечения водорода ( $H_\beta$ ,  $H_\gamma$ ) второй из этих методов оказался наиболее точным и удобным в детонационных исследованиях по следующим причинам [9]:

а) он не требует решения проблемы высокотемпературного источника сравнения, при измерении цветовой температуры которого вносятся дополнительные погрешности;

б) атомы водорода присутствуют в зоне горения большинства практически интересных смесей и имеют малые релаксационные времена;

в) силы осцилляторов для излучения водородной серии достаточно хорошо определяются [10].

Метод был проверен по равновесным температурам детонации ацетиленовых смесей различного состава. В соответствии с теоретической оценкой точность измерений оказалась в пределах 2% измеряемой температуры, т. е. не выше  $\pm 100^\circ$ . К недостаткам метода следует отнести то обстоятельство, что в рассматриваемых опытах в отличие от плотности регистрируется не среднее по сечению, а максимальное значение температуры, связано сдвиг максимума температуры и свечения в сторону фронта, по сравнению с плотностью и давлением (см. рис. 6). При уменьшении начальных давлений (см. рис. 1) максимумы давления и свечения сближаются во времени. Сопоставляя результаты измерения температуры, приведенные на рис. 6, с записями давления и плотности, можно понять и природу выброса свечения — высокой ( $T_2 \sim 5000^\circ\text{K}$ ) температуре соответствуют достаточно высокие скачки давления и плотности, которые скорее всего связаны с адиабатическим сжатием продуктов горения поперечными волнами. Остановимся на этом вопросе несколько подробнее.

**4. Обсуждение. Сравнение с кинетическими данными.** Из общей картины изменения различных параметров газа во фронте детонации

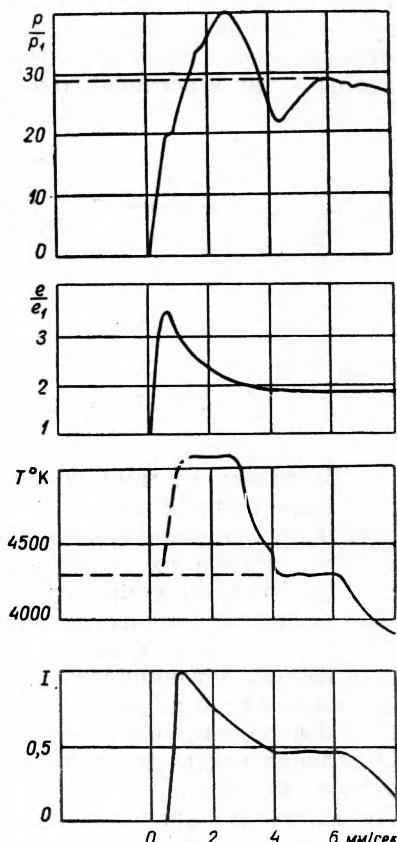


Рис. 6. Изменение давления, плотности, температуры и свечения  $H_\beta$  газа в одном масштабе времени.

Именно с этим, по-видимому, связано сдвиг максимума температуры и свечения в сторону фронта, по сравнению с плотностью и давлением (см. рис. 6). При уменьшении начальных давлений (см. рис. 1) максимумы давления и свечения сближаются во времени. Сопоставляя результаты измерения температуры, приведенные на рис. 6, с записями давления и плотности, можно понять и природу выброса свечения — высокой ( $T_2 \sim 5000^\circ\text{K}$ ) температуре соответствуют достаточно высокие скачки давления и плотности, которые скорее всего связаны с адиабатическим сжатием продуктов горения поперечными волнами. Остановимся на этом вопросе несколько подробнее.

(рис. 6) можно составить следующую последовательность физико-химических процессов, развивающихся в волне. В соответствии с общей схемой фронта спиновых и многофронтовых волн [1, 2, 11] существуют две области горения газа с малыми задержками воспламенения (рис. 7): а) этой способностью обладают наиболее искривленные участки (типа 1) переднего ударного фронта и б) подготовленная смесь, сжатая в «затухающей» ударной волне типа 2' с заметной задержкой воспламенения, сгорает в поперечных волнах 3, которые периодически сталкиваются между собой в многофронтовой волне, порождая как вновь поперечные волны 3, так и постепенно затухающие головные волны типа 2.

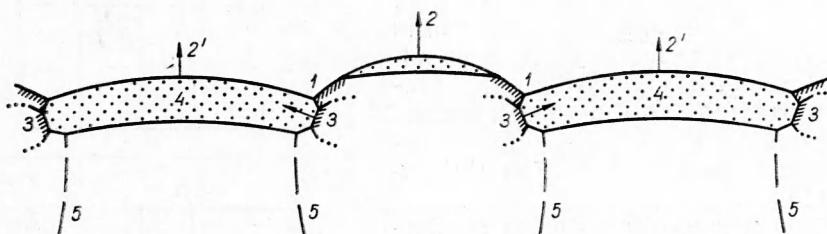


Рис. 7. Схема фронта многофронтовой детонации.

В отличие от многофронтовых волн, в спиновой детонационной волне с единственной волной 3 картина течения стационарна и может быть детально проанализирована [1]. При оптической регистрации процесса в плоских каналах также можно отчетливо наблюдать структуру течения, изображенную на рис. 7, если число поперечных волн невелико [11]. При большом количестве поперечных волн (см. рис. 5) картина становится глобальной, поэтому можно говорить лишь о некоторых средних параметрах детонации в целом. Во всяком случае сопоставление записей вида рис. 6 явно указывает на то, что значительная часть газа сгорает в передних участках фронта типа 1 с задержками не более 1 мксек. Остальная часть смеси (область 4 за ослабленной волной типа 2') сгорает в поперечных волнах 3 позади крайнего фронта 2—1—2'. Именно это дополнительное сжатие можно считать причиной повышенного значения плотности на интерферограммах рис. 5 и максимумов давления и температуры (см. рис. 6) в зоне за передним ударным фронтом.

Температура продуктов горения стехиометрической ацетилено-кислородной смеси в детонационных волнах около  $4200^{\circ}\text{K}$ . Если в качестве оценки считать в среднем сжатие сгоревших продуктов поперечными волнами адиабатическим с изменением давления от 20 до 40 единиц начального давления (см. рис. 6), получим изменение температуры сгоревшего газа до  $T'_2 = 4200 \cdot 2^{\frac{i-1}{\gamma}} \approx 4900^{\circ}\text{K}$ , что вполне согласуется с измерениями. Ожидаемое в этом случае изменение плотности в 1,7 раза на 10% ниже измерений рис. 6, что указывает прежде всего на грубость адиабатического приближения в проведенной оценке. Тем не менее уже из качественных рассуждений такого рода можно получить вполне реальное объяснение природы зоны высокой температуры во фронте детонации.

Чтобы подтвердить предположение о том, что значительная часть газа может сгорать в передних участках волны, рассмотрим количественные данные по кинетике воспламенения ацетилено-кислородных смесей. Методом отраженных ударных волн [2] были произведены из-

мерения индукционных задержек воспламенения в смеси  $0,1(C_2H_2 + 2,5 O_2) + 0,9 Ar$  и  $0,03(C_2H_2 + 2,5 O_2) + 0,97 Ar$  в интервале температур  $1000-2000^{\circ}K$  при давлении смеси 2 атм. Данные измерений приведены на рис. 8. Там же сплошными точками нанесены результаты опытов [12], где измерения задержек проводились в проходящих ударных волнах по задержке тока ионизационного датчика. Анализ этих данных показывает, что в диапазоне температур от  $1000$  до  $2500^{\circ}K$  ход реакции хорошо описывается аррениусовой зависимостью (прямая линия) с энергией активации  $\epsilon_{акт} = 25 \pm 2,2$  ккал/моль. В работе [12] анализ данных проводится в предположении о том, что ход реакции окисления определяется разветвляющей схемой:  $H + O_2 \rightarrow OH + O$  с энергией активации около 17 ккал/моль, что явно не согласуется с нашими результатами, полученными в более широком интервале температуры. В то же время данные [12], несмотря на разные методики, прекрасно дополняют наши измерения. Это указывает на необходимость еще раз вернуться в дальнейшем к вопросу о ведущей стадии реакции окисления ацетилена.

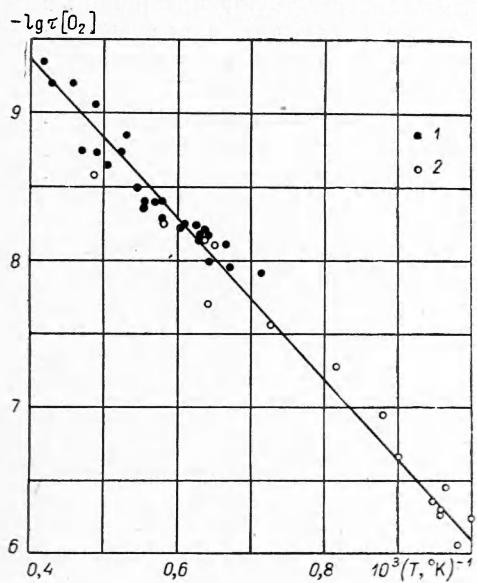


Рис. 8. Зависимость задержек воспламенения  $\tau \cdot [O_2]$  сек · моль/л ацетилено-кислородной смеси от температуры.

1 — опыты [12]; 2 — измерения в отраженных волнах.

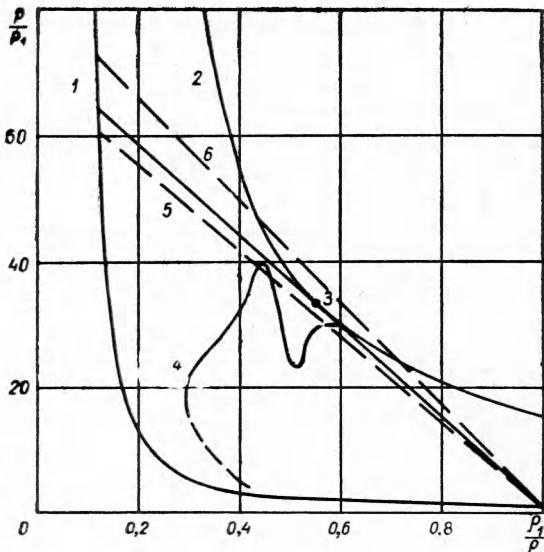


Рис. 9. Ударная адиабата стехиометрической ацетилено-кислородной смеси.

Результаты измерений, приведенные на рис. 8, исчерпывают область температур, интересную для анализа воспламенения в детонационных волнах, поэтому имеется возможность сопоставить с ними приведенные выше данные о структуре фронта детонации. Прежде всего для одномерной и стационарной ударной волны, имеющей скорость детонации ( $p_2 \sim 60 p_1$ ), длительность периода индукции, согласно данным рис. 8, составляет около  $2,5 \cdot 10^{-8}$  сек. В измерениях типа 1 свечение и давление сдвинуты примерно на  $0,5 \text{ мксек}$ , что соответствует более умеренным волнам ( $p_2 \sim 40 p_1$ ). Волны с  $p_2 = 20 p_1$  соответствуют задержкам порядка  $50 \text{ мксек}$ , т. е. «ослабленные» передние участки типа 2' не могут поджигать смесь с микросекундными задержками. Однако их

регистрация датчиком давления наиболее вероятна, что и дает первый выступ на осцилограммах рис. 1 ( $p_2 \sim 20-25 p_1$ ).

На рис. 9 приведена ударная адиабата детонации в стехиометрической смеси ацетилена с кислородом. Здесь 1 — адиабата ударной волны, 2 — кривая состояния продуктов реакции, 3 — расчетная точка Чепмена — Жуге для  $p_1 = 1 \text{ atm}$ , пунктирные линии 5 и 6 — границы изменения измеренной скорости детонации с увеличением начального давления  $p_1$  от 0,04 до 0,15  $\text{atm}$ . Кривая 4 иллюстрирует изменение параметров в многофронтовой волне согласно данным рис. 6. Схему процесса, изображенную на рис. 7, едва ли можно описать «решаемой» системой гидродинамических уравнений. Поэтому попытки построения ударной адиабаты детонации с учетом пульсационных процессов за фронтом [1, 4] можно рассматривать лишь как способ выявления наиболее общих тенденций в изменениях некоторых средних характеристик неодномерной детонации. Так, предсказываемое этими расчетами увеличение скорости детонации по сравнению с равновесным одномерным расчетом, действительно, в опытах наблюдается (см. рис. 9, б). В равнообъемной смеси, например, в области  $p_1 = 0,17 \text{ atm}$ , где существуют интенсивные поперечные волны, скорость детонации даже переходит через максимум. В остальном пока еще трудно указать пути построения теоретической схемы явления.

В проведении опытов принимали участие С. Токтомышев, Ю. Н. Сердюк и Г. А. Заварзин, которым автор выражает свою признательность. Автор признателен также Э. П. Круглякову за полезные советы по методам интерферометрических измерений.

Поступила в редакцию  
8/III 1965

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Б. В. Войцеховский, В. В. Митрофанов, М. Е. Топчян. Структура фронта детонации в газах. Новосибирск, Изд-во СО АН СССР, 1963.
2. Р. И. Солоухин. Ударные волны и детонация в газах. Физматгиз, 1963.
3. К. И. Шелкин, Я. К. Трошин. Газодинамика горения. М., Изд-во АН СССР, 1963.
4. D. R. White. Phys. Fluids, 1961, 4, 4, 465.
5. D. F. Hornig. Prepr. Frick Chem. Lab. Princeton Univ., XII, Solv. Congr. Brussel, 1962.
6. Р. И. Солоухин. Научно-технические проблемы горения и взрыва, 1965, 1.
7. D. R. White. Phys. Fluids., 1961, 4, 1, 40.
8. A. G. Gaydon, I. R. Huriel. The Shock Tube in High-temperature Chemical Physics. London, 1963.
9. Р. И. Солоухин, С. Токтомышев. ПМТФ, 1965, 5.
10. Г. Бете, Э. Солитер. Квантовая механика атомов с одним и двумя электронами. Физматгиз, М., 1960, стр. 414—418.
11. В. В. Митрофанов, Р. И. Солоухин. Доклады АН СССР, 1964, 159, 1003.
12. G. B. Kistiakowsky, L. W. Richards. J. Chem. Phys., 1962, 36, 1707.