

К ДИНАМИКЕ БЕГУЩИХ ИМПУЛЬСОВ

А. Ю. Довженко, Э. Н. Руманов*

Институт структурной макрокINETИКИ и проблем материаловедения Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 9 октября 2006 г.

С ростом потерь активатора бегущий импульс затухает. В кольцевом реакторе, наряду с таким пределом распространения, есть предел по диаметру кольца. В численных экспериментах с импульсами экзотермической реакции обнаружены переход от импульса к однородному горячему режиму, а также установившиеся режимы с периодическими изменениями скорости импульса и его колебательное затухание. Когда среда за счет изменения параметров становится «бистабильной», это не препятствует распространению импульсов, однако их структура изменяется.

PACS: 05.45.-a, 05.65.+b

1. ВВЕДЕНИЕ

Бегущие импульсы принадлежат к числу наиболее известных разновидностей автоволн (см., например, [1]). Для их изучения часто используется математическая модель в виде двух уравнений диффузии с источниками. Интенсивность источника растет с увеличением одной из концентраций (активатор) и уменьшается с ростом другой (ингибитор) [2]. В системах с экзотермической реакцией роль активатора играет тепло, сильная температурная нелинейность источника дает контрастную картину [3], легче обнаруживаются новые эффекты. Мы рассматриваем уравнения

$$\partial_t \eta - L \chi \partial_{xx} \eta = \Phi(\eta, T) - \frac{\eta}{\tau}, \quad (1)$$

$$\partial_t T - \chi \partial_{xx} T = \frac{Q}{c} \Phi - \alpha(T - T_a), \quad (2)$$

где η — концентрация продукта реакции, L — число Льюиса (Lewis), отношение коэффициента диффузии к теплопроводности χ , Q — теплота реакции, Φ — ее скорость, T_a — температура термостата, c — теплоемкость. В простейшем случае

$$\Phi = (1 - \eta)k \exp(-E/T), \quad (3)$$

E — энергия активации, множитель k имеет размерность частоты. Систему, которую описывают уравнения (1), (2), можно представить как цепочку малых проточных реакторов, τ — время пребывания

смеси в реакторе, $\alpha = \tau^{-1} + \tau_c^{-1}$, τ_c — время остывания без протока (т. е. при $\tau \rightarrow \infty$), проток считается «поперечным», вдоль цепочки течения нет. Соседние элементы цепочки взаимодействуют благодаря диффузии и теплопроводности.

Обычно $E \gg T$, что и обеспечивает контрастность. Когда τ достаточно мало, реакция не успевает пройти, вещество течет, почти не испытывая превращения, температура близка к T_a . Если замедлять проток, такой холодный режим теряет устойчивость и переходит в горячий режим с температурой

$$T_h = T_a + Q(c\alpha\tau)^{-1}, \quad (4)$$

причем концентрация η близка к 1. Обратный переход при уменьшении τ сопровождается гистерезисом [4], так что в пространстве параметров имеется область бистабильности однородных (не зависящих от x) режимов. Наряду с такими решениями, уравнения (1), (2) имеют решения в виде уединенных волн, удовлетворяющие граничным условиям

$$x \rightarrow \pm\infty, \quad \partial_x \eta = 0, \quad \partial_x \theta = 0. \quad (5)$$

Пусть параметры принадлежат бистабильной области. Тогда можно рассмотреть состояния, в которых одна часть цепочки холодная, другая — горячая. Волна переключения [5] — это переходная область между ними, подобная межфазной границе. Она движется в сторону той из «фаз», холодной или горячей, которая при данных параметрах «метастабильна» [6]. Температура в пределах волны меняет-

*E-mail: ed@ism.ac.ru

ся от T_h , определяемой выражением (4), до значения, близкого к T_a , а скорость реакции, — соответственно, от $1/\tau$ до пренебрежимо малой величины, причем профиль $\Phi(x)$ более резкий, чем профиль $T(x)$, в силу экспоненциальной зависимости Φ от T . Поэтому Φ в уравнении (2) можно приближенно заменить функцией Хевисайда (Heaviside),

$$\Phi(T < T_1) = 0, \quad \Phi(T > T_1) = 1/\tau,$$

где T_1 определяется условием

$$\tau k \exp(-E/T_1) \approx 1, \tag{6}$$

после чего скорость волн переключения легко найти с хорошей точностью, за исключением тех случаев, когда T_1 приближается к T_a или T_h , т. е. параметры попадают в окрестность границ бистабильной области.

Для волн других типов сильная нелинейность (3) также позволяет использовать аналогичный прием. В предельном случае, когда $\tau \rightarrow \infty$ (протока нет), по цепочке, заполненной исходным веществом ($\eta = 0, T = T_a$), может двигаться фронт реакции. Позади фронта продукты реакции остывают, $\eta = 1, T = T_a$, так что профиль температуры имеет максимум, $T = T_m$. Превращение сосредоточено в окрестности максимума (зона реакции). Впереди этой зоны реакцией можно пренебречь, так как температура ниже T_m (зона прогрева), позади — вещество уже израсходовано, $\eta = 1$ (зона остывания). В системе координат, движущейся вместе с фронтом, выберем точку $x = 0$ при $T = T_m$. Максимум функции $\Phi(x)$ намного острее температурного, поэтому в формулах (1), (2) можно приближенно заменить Φ на $\text{const} \cdot \delta(x)$. Из уравнения (1) видно, что $\text{const} = u$. Из уравнения (2) получаем:

$$\chi \left[\left(\frac{dT}{dx} \right)_{x=-0} - \left(\frac{dT}{dx} \right)_{x=+0} \right] = \frac{Q}{c} u. \tag{7}$$

Равенство (7) содержит две неизвестные величины u и T_m . Еще одно соотношение между ними следует из соображений размерности:

$$u \sim \sqrt{\chi \Phi(\eta \neq 1, T_m)}$$

или

$$u^2 = u_0^2 \exp \left[E \left(\frac{1}{T_b} - \frac{1}{T_m} \right) \right], \quad T_b = T_a + \frac{Q}{c}, \tag{8}$$

где u_0 — скорость фронта без потерь (не только $\tau \rightarrow \infty$, но и $\tau_c \rightarrow \infty$). Впервые δ -аппроксимация

и условие (8) были введены в работе [7], где был найден предел распространения фронта — слияние двух ветвей решения (7), (8), устойчивой и неустойчивой. В точке слияния $u \approx u_0/\sqrt{\epsilon}$. Предел обусловлен обратной связью между скоростью и толщиной фронта. Потери активатора снижают скорость, фронт расплывается, что ведет к дальнейшему росту потерь. Для степенного источника приближение, подобное (7), (8), непригодно, в этом случае предел получен в численных экспериментах [8, 9]. В случае неравномерно движущейся волны δ -аппроксимация, вообще говоря, не приводит к упрощению задачи. Однако вблизи порога скорость u меняется медленно, и для нее можно получить простое уравнение [10].

Обратимся теперь к решениям уравнений (1), (2) в виде бегущих импульсов [11]. Импульс отличается от фронта тем, что позади зоны реакции исходное состояние ($\eta = 0, T = T_a$) восстанавливается благодаря потоку. Но в передней своей части, зонах прогрева и реакции, импульс мало отличается от фронта. Проток дает лишь малую добавку к перерабатываемому в зоне реакции, если $u^2 \gg \chi/\tau$. А скорость u ограничена снизу пределом распространения, причем $u^2 \gg \alpha\chi$, тем самым справедливо и предыдущее неравенство. Поэтому влияние протока на скорость импульса также мало. Существенно меняется по сравнению с фронтом область позади зоны реакции, $x > 0$. Непосредственно позади температурного максимума $\eta \approx 1$ без протока скорость реакции обратилась бы в нуль. Благодаря потоку скорость реакции $\Phi \approx 1/\tau$, но этого недостаточно, чтобы поддерживать температуру, достигнутую в максимуме, она понижается (зона остывания). Наконец, при $T < T_1$ реакцией вновь можно пренебречь, она не успевает переработать поступающее вещество, η уменьшается от значения, близкого к 1, почти до 0 (зона восстановления). Если достаточно длинную реакторную цепочку замкнуть в кольцо, получится равномерное вращение импульса.

Пусть температура T_1 достигается в точке x_1 . Условия непрерывности температуры и ее производной в этой точке дают:

$$T_h + A_+ \exp(q_+ x_1) + A_- \exp(q_- x_1) = T_1, \tag{9}$$

$$q_+ A_+ \exp(q_+ x_1) + q_- A_- \exp(q_- x_1) = q_- (T_1 - T_a), \tag{10}$$

$$q_+ \approx \frac{u}{\chi} + \frac{\alpha}{u}, \quad q_- \approx -\frac{\alpha}{u}. \tag{11}$$

Для точки $x = 0$ (зона реакции) условие (7) перепишем в виде

$$q_+ A_+ + q_- A_- \approx \frac{Q}{c} \frac{\alpha}{u} - \frac{u}{\chi} (T_b - T_m), \quad (12)$$

добавив к нему условие непрерывности температуры

$$T_h + A_+ + A_- = T_m. \quad (13)$$

Равенства (8)–(10), (12), (13) позволяют найти пять величин: u , T_m , x_1 , A_+ , A_- . Вычисления упрощаются тем, что $|A_+| \ll A_-$. Действительно, длина зоны остывания x_1 , как и в случае фронта, велика по сравнению с характерным масштабом χ/u . Поэтому множитель при $\exp(q_+ x_1)$ в формулах (9), (10) должен быть достаточно мал. Из условия (13) следует, что $A_- \approx T_m - T_h$. Исключая $A_+ \exp(q_+ x_1)$ из равенств (9), (10), находим

$$x_1 = \frac{u}{\alpha} \ln \frac{\left(\frac{u}{\chi} + \frac{2\alpha}{u}\right) (T_m - T_h)}{\left(\frac{u}{\chi} + \frac{\alpha}{u}\right) (T_1 - T_h) + \frac{\alpha}{u} (T_1 - T_a)}. \quad (14)$$

По мере увеличения T_h длина зоны остывания растет и расходится при $Q(c\tau)^{-1} \approx \alpha(T_1 - T_a)$, что в «ступенчатой» аппроксимации отвечает границе бистабильной области. Что касается зоны восстановления, то ее масштаб имеет порядок $u\tau$. Для равномерно движущегося импульса численное моделирование дает распределения температуры и других величин, согласующиеся с описанной выше четырехзонной структурой (см. ниже, рис. 1).

2. РЕЗУЛЬТАТЫ ЧИСЛЕННОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Для численных экспериментов уравнения (1), (2) переписаны в безразмерных переменных: масштаб времени $\tau_R = (1/k) \exp(E/T_b)$, масштаб длины $\sqrt{\chi\tau_R}$, безразмерная температура θ отсчитывается от T_b в единицах T_b^2/E . Наряду с L решения зависят от параметров $D = \tau/\tau_R$ (число Дамкелера, Damköhler), $S = D/(1 + \tau\tau_c^{-1})$ (число Семенова), $Z = EQ(cT_b^2)^{-1}$ (число Зельдовича). Изучалась зависимость решений от S при фиксированных значениях других параметров: $D = 1500$, $L = 1$, $Z = 7$, $Q/c = 9T_a$. При таких значениях весь интервал изменений S , отвечающий существованию импульсов, относительно невелик. Методика расчета и тестирования результатов описана в работе [10], шаг по времени и по длине равен 0.1. Расчетный промежуток

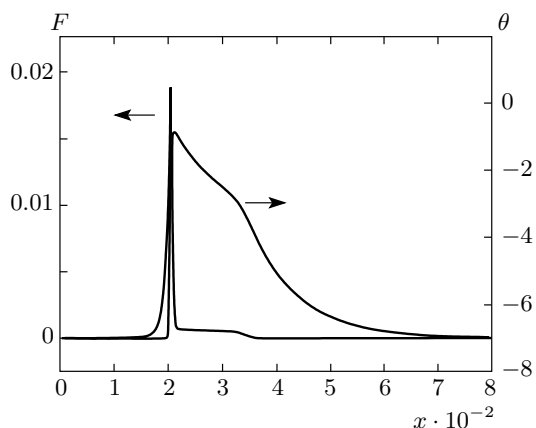


Рис. 1. Профили безразмерных величин $\theta = E(T - T_b)/T_b^2$ и $F = \Phi\tau_R$ для импульса, движущегося справа налево, $S = 800$. Пик F отвечает зоне реакции, плато — зоне остывания

$0 < x < x_0$, $x_0 = 800$, значительно превышает возможную длину импульса. Кольцевой реактор имитируют периодические граничные условия — равенство значений каждой из функций η , θ , $\partial_x \eta$, $\partial_x \theta$ в точках $x = 0$ и $x = x_0$.

Чтобы обеспечить быстрый переход к установившемуся режиму равномерного движения импульса, в качестве начальных условий использовались функции $\eta(x)$, $\theta(x)$, рассчитанные в работе [11]. На рис. 1 показаны профили θ и «химического» источника F для импульса, движущегося с постоянной скоростью $u \approx 0.143$, масштаб безразмерной скорости равен $\sqrt{\chi/\tau_R}$. В отличие от бегущих фронтов, позади пика на графике F расположено плато, высота которого определяется скоростью протока и приближенно равна $1/D$. Для бегущего импульса, как и для бегущего фронта, есть предел распространения из-за потерь активатора. С ростом потерь скорость автоволны уменьшается, а длина увеличивается, что ведет к дополнительным потерям. Следствием такой обратной связи является затухание [7] при критическом значении $S = S_d$. На рис. 2 показано, как зависит от времени мощность импульса при S , близких к этому критическому значению. По мере уменьшения разности $S - S_d$ время перехода к режиму равномерного движения растет, а сам этот переход оказывается колебательным. При S_d размах колебаний нарастает, и после достаточно глубокого спада затухание становится необратимым. Для бегущего фронта при $L = 0$ также имеет место [12] колебательная динамика вблизи предела, но там она обусловлена диффузионной неустойчивостью. Соответствующие частоты

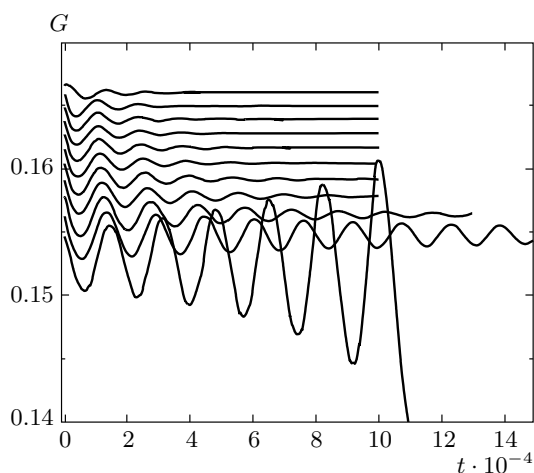


Рис. 2. Зависимость мощности импульса $G = \int F dx$ от времени вблизи предела распространения. Верхняя кривая отвечает $S = 770$, каждая из последующих получена при уменьшении S на 1. При $S_d = 760$ импульс затухает

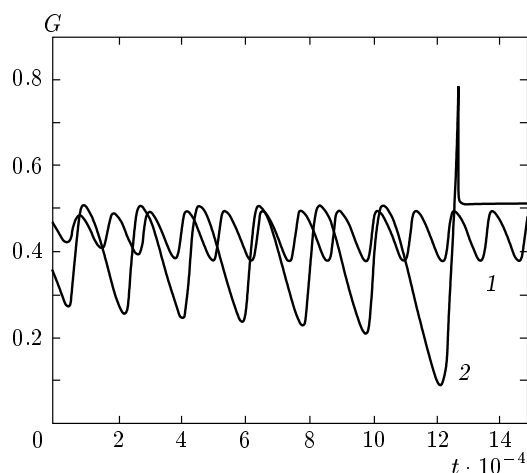


Рис. 3. Выход на режим с периодически меняющейся скоростью импульса при $S = 956$ (1) и на горячий однородный режим при $S_u = 957.3$ (2)

имеют порядок Z^{-2} , тогда как, согласно рис. 2, в данном случае частоты на два порядка ниже.

В отличие от бегущего фронта, импульс в кольцевом реакторе имеет не только нижний S_d , но и верхний S_u пределы распространения. По мере роста S длина зоны остывания (плато на рис. 1) увеличивается за счет зоны восстановления. В конце концов восстановление оказывается невозможным, во всем реакторе устанавливается однородный режим с температурой T_h . Плотность мощности в горячем режи-

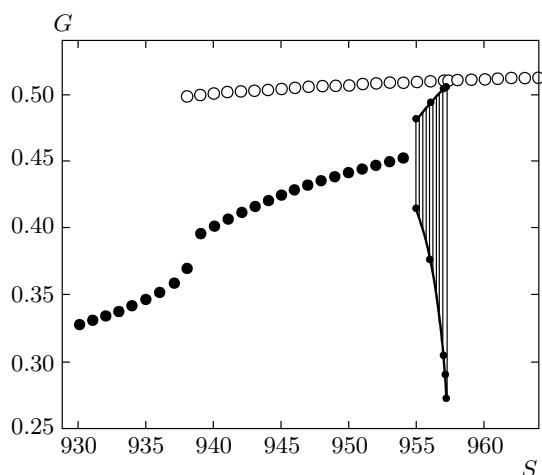


Рис. 4. Участок бифуркационной диаграммы. Точки \bullet относятся к импульсу, \circ — к горячему однородному состоянию. Область колебательных режимов заштрихована, верхняя и нижняя границы этой области дают зависимость от S соответственно максимума и минимума G . Окончанию линии горячих состояний и излому на кривой $G(S)$ для импульсов отвечает $S_q = 938$

ме такая же, как и на плато (рис. 1). Однако, прежде чем произойдет переход к горячему режиму, равномерное движение импульса превращается в движение с периодически меняющейся около среднего значения скоростью (мощность при этом тоже колеблется). Для выбранных параметров эта бифуркация реализуется при $S_v = 955$. На рис. 3 показан пример выхода на периодический режим распространения, а также переход к горячему однородному состоянию при S_u . В интервале $S_v < S < S_u$ и амплитуда, и период колебаний растут с увеличением S . По величине период установившихся колебаний примерно такой же, как у осцилляций на рис. 2, т. е. много больше масштаба времени для диффузионной (колебательной) неустойчивости. Следует отметить, что в рассматриваемой системе нет условий для развития диффузионной неустойчивости. Действительно, всегда $S < D$ согласно определению этих величин (наряду с протоком есть другие каналы отвода тепла). Поэтому при $L = 1$ диффузионная длина для η больше, чем для тепла, и в одномерной системе неустойчивость не развивается (см. [3] и имеющиеся там ссылки). Отметим также, что в момент замедления импульса появляется слабый максимум F в конце плато, обусловленный диффузией свежего вещества из зоны восстановления. Аналогичный эффект имеет место для фронта обратимой реакции [13].

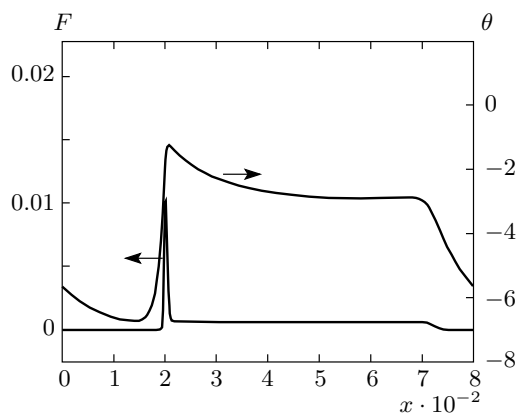


Рис. 5. Структура импульса, бегущего в бистабильной среде. Отличие от рис. 1 — плато на кривой $\theta(x)$, $S = 940$

На рис. 4 показан участок бифуркационной диаграммы, видны области реализации горячих состояний, режимов равномерного и колебательного распространения импульсов. Эти области перекрываются, поэтому переход к тому или иному режиму зависит от начальных условий. Быстрый переход обеспечивают начальные распределения $\eta(x)$, $\theta(x)$, близкие к установившимся. При расчете горячего состояния с данным S в качестве начального использовалось состояние с $S + 1$, а при расчете импульса — импульс с $S - 1$. При $S = S_q$ горячее состояние неустойчиво, после нескольких осцилляций скорость реакции и температура уменьшаются, устанавливается холодный режим, $\eta \approx 0$, вещество уходит из реактора почти без превращения. Холодные состояния (с $G \approx 0$) на рис. 4 не показаны, они возможны при всех рассматриваемых S . По терминологии, использованной в работах [1, 2], система с $S > S_q$ является «бистабильной» (по отношению к однородным режимам), а при $S < S_q$ — «возбудимой» (можно, например, возбуждать бегущие импульсы). Для бистабильной среды характерны волны переключения, их распространение подобно движению межфазной границы, когда устойчивая фаза растет за счет метастабильной. Вблизи S_q метастабильно горячее состояние, если в начальный момент времени создать в реакторной цепочке холодный участок, он будет расширяться. Учитывая сказанное, вернемся к линии импульсов на рис. 4 и посмотрим, как влияет на эти волны переход к бистабильной среде при S_q .

Пока $S < S_q$, во всей зоне остывания (рис. 1) интенсивность отвода тепла превышает скорость его выделения реакцией. При $S > S_q$ эти величины ста-

новятся равными, когда температура понижается до значения T_h , определяемого формулой (4). Наряду с плато F образуется температурное плато (рис. 5). В бесконечно длинной цепочке протяженность таких плато могла бы быть неограниченной (ср. замечание о расходимости x_1 в конце предыдущего раздела). Пусть, однако, позади плато с температурой T_h имеется холодный участок (зона восстановления). Переходную область между плато и этим участком можно интерпретировать как волну переключения (с горячего режима на холодный). Скорость такой волны вблизи S_q много больше скорости импульса. Но высокая скорость получается в задаче с граничными условиями: $x \rightarrow -\infty$, $T = T_h$; $x \rightarrow \infty$, $T \approx T_a$ (холодный режим). В случае импульса есть дополнительный слабый тепловой поток из зоны реакции (окрестности температурного максимума), равенство (4) выполняется на плато лишь приближенно. Дополнительный поток тормозит волну переключения, обеспечивая равенство ее скорости и скорости зоны реакции, необходимое для равномерного движения импульса. Величина потока определяется шириной плато. Легко видеть, что при отклонении от установившегося значения длины поток меняется так, чтобы вернуть это значение. Изучение импульса экзотермической реакции, бегущего по кольцу, способствует пониманию природы спиновых режимов медленного горения и детонации.

3. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Решения уравнений (1), (2) обладают контрастной структурой, что, в частности, делает более ясным соотношения между бегущими импульсами и волнами переключения. Бистабильная область параметров делится на две части, на границе между ними скорость волн переключения обращается в нуль, меняя свое направление, когда параметры проходят через границу. В той части, где холодное состояние метастабильно, волна переключения имеет дополнительный источник питания в виде исходного вещества на ее пути. Чем больше скорость волны, тем интенсивнее этот источник. Формируется максимум, за которым следует плато. (Сходный максимум получится, например, при фронтальной кристаллизации аморфного стержня.) С другой стороны, параметрам, допускающим импульс со структурой, показанной на рис. 5, отвечает метастабильность горячих однородных состояний цепочки. Если увеличивать S , ширина плато увеличивается. В бесконечно длинной цепочке такое увеличение ширины не ограничено, импульс превращается в быструю волну переключения. Высокая скорость обусловлена перед-

ним пиком. Таким образом, бистабильность имеет место не только для однородных состояний (горячего и холодного), но и для автоволн. Наряду с медленной волной переключения [5], кратко описанной во Введении, при тех же значениях параметров может распространяться быстрая волна перехода от холодного состояния к горячему, а при меньшем S — бегущий импульс. Выход на тот или иной режим зависит от условий возбуждения.

Как уже отмечалось, периоды установившихся колебаний (в интервале $S_v < S < S_u$), а также осцилляций, сопровождающих затухание импульса на нижнем пределе, $S = S_d$, и однородного горячего режима при $S = S_q$ велики по сравнению с характерным для волн экзотермической реакции временем порядка Z^2 . Для стационарных режимов можно ввести восприимчивость $\alpha(\omega)$ как отношение отклика на возмущение какого-либо параметра с частотой ω к амплитуде возмущения. В случае однородных состояний реактора и $\text{Re}\alpha$, и $\text{Im}\alpha$ содержат [6] лоренцев знаменатель $(\omega^2 - \omega_0^2)^2 + \gamma^2\omega^2$, причем резонансная частота $\omega_0 \rightarrow 0$ по мере приближения параметров к точке бифуркации. Для бегущего фронта и импульса вычисления α громоздки, но причина роста восприимчивости около точек бифуркации проста. Мала «сила», возвращающая систему к стационарному режиму после отклонения (случай «почти безразличного равновесия»). Впервые такой эффект был отмечен в теории непрерывных фазовых переходов, но он присущ любым бифуркациям стационарных режимов, в том числе режимов равномерного движения автоволн. В свою очередь, малость «возвращающей силы» обусловлена тем, что в пространстве состояний к точке-аттрактору приближается граница ее бассейна притяжения — хотя бы по некоторым направлениям. Связь описанных здесь низкочастотных колебаний с поведением восприимчивости вероятна, но не может пока считаться установленной.

Шум, имеющийся во всякой реальной системе, с ростом α усиливается. Поэтому достаточно близко от точки бифуркации «стационарный» режим на деле оказывается хаотическим: дисперсия флуктуаций сопоставима со средним значением флуктуирующей величины, как при развитой турбулентности. В спектре, нормированном на величину дисперсии, наблюдается рост на всех частотах, но мягкие моды усиливаются в большей степени. В отличие от фликкер-шума (см. [14]), эти пульсации исчезают при удалении параметров от точки бифуркации. Если к одному из параметров системы сделать добавку в виде слабого белого шума, то связь

спектра пульсаций с величиной $\text{Im}\alpha$ напоминает [6] классический (низкочастотный) предел флуктуационно-диссипационной теоремы (см., например, [15] формула (124.13)) с заменой множителя T (температуры) на дисперсию шума. Реальный шум не является, вообще говоря, белым. Но его корреляционное время ограничено и заведомо меньше корреляционного времени пульсаций, если параметры достаточно приблизились к точке бифуркации. В этом смысле использование [10, 16] белого шума при численном моделировании критических явлений оправдано. Для сложной (искусственной или природной) системы нарастание низкочастотного шума может служить признаком приближающейся «катастрофы».

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 04-03-32397, 06-07-89259).

ЛИТЕРАТУРА

1. В. А. Васильев, Ю. М. Романовский, В. Г. Яхно, УФН **128**, 625 (1979).
2. Б. С. Кернер, В. В. Осипов, УФН **157**, 201 (1989).
3. A. G. Merzhanov and E. N. Rumanov, Rev. Mod. Phys. **71**, 1173 (1999).
4. Я. Б. Зельдович, ЖТФ **11**, 493 (1941).
5. А. Г. Мержанов, В. В. Барелко, И. И. Курочка, К. Г. Шкадинский, ДАН СССР **221**, 1114 (1975).
6. Э. Н. Руманов, ДАН **408**, 325 (2006).
7. Я. Б. Зельдович, ЖЭТФ **11**, 159 (1941).
8. Б. В. Новожилов, В. С. Посвянский, Физика горения и взрыва **9**, 191 (1973).
9. R. C. Casten, H. Cohen, and P. A. Lagerstrom. Appl. Math. (Germany) **32**, 305 (1975).
10. А. Ю. Довженко, С. В. Маклаков, И. Э. Руманов, Э. Н. Руманов, ЖЭТФ **122**, 1125 (2002).
11. Э. Н. Руманов, ДАН **393**, 188 (2003).
12. А. Ю. Довженко, Э. Н. Руманов, ЖЭТФ **125**, 406 (2004).
13. А. П. Алдушин, Физика горения и взрыва **20**, 310 (1984).
14. M. V. Weissman, Rev. Mod. Phys. **60**, 537 (1989).
15. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Статистическая физика*, Физматлит, Москва (1995).
16. Н. И. Ваганова, О. Д. Ваганова, Э. Н. Руманов, ДАН **396**, 174 (2004).