

ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ НЕЛИНЕЙНЫХ ЯВЛЕНИЙ В ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИХ СИСТЕМАХ С КАТАЛИЗАТОРОМ

И.С. ВЕРЖБИЦКАЯ, П.Г. ИЦКОВА, А.Т. ЛУКЬЯНОВ

Казахский Государственный Университет им. Аль-Фараби, Алматы

e-mail: i_verb@mail.ru

The catalytic oxidation of the gas mixture with non-uniform porosity distribution in a fixed bed of catalyst is considered. Two-dimensional mathematical models of heat and mass transfer with constant and variable: flow velocity, thermal properties of reacting gas mixture, catalytic activity are presented.

For planning numerical experiments on initial models are constructed their zero-dimensional analogues and the detailed parametrical analysis of dynamics of processes is executed. The nonlinear appearances, predicted by the zero-dimensional analysis at instantaneous and periodic external perturbations of stationary regimes numerically are implemented. The results of numerical and analytical solutions are compounded with experiments, known from literature.

Сложность экспериментальных исследований усиливает интерес к теоретическим методам. В связи с этим актуальна разработка новых математических моделей химических реакторов. Эти исследования важны также в связи с решением проблем управления и оптимизации.

В настоящей работе рассматриваются квазигомогенные модели окисления газовой смеси, записанные в безразмерных переменных с использованием температуры Франк-Каменецкого Д.А. (табл. 1). В качестве базовой используется двумерная модель тепло-и массопереноса [1] в неподвижном слое катализатора с неоднородным распределением порозности (задача 1). Процесс осуществляется в слое сферических частиц катализатора, расположенных между двумя инертными укладками, температуры твердого вещества и газа равны, теплофизические свойства постоянны, диффузия в частицах катализатора отсутствует. Слой катализатора считается квазигомогенным, а перенос тепла и вещества характеризуется эффективными коэффициентами диффузии и теплопроводности. Химическая реакция моделируется одностадийной брутто-реакцией 1-го порядка по реагенту, скорость изменяется с температурой по закону Аррениуса. Тепло-и массообмен системы с окружающей средой осуществляется по закону Ньютона.

Разработаны двумерные математические модели, учитывающие: неоднородное распределение скорости потока и переменные теплофизические свойства газовой смеси (задача 2), дезактивацию и восстановление катализатора (задачи 3, 4).

В работе использовался комплексный подход к анализу динамического поведения систем и закономерностей процессов. Он включает в себя построение нульмерных аналогов [2] исходных двумерных моделей, анализ нульмерных задач методами качественной теории дифференциальных уравнений и численные решения исходных двумерных задач. Нульмерные модели, полученные заменой пространственных операторов линейными алгебраическими, приводятся в табл. 2. (в качестве безразмерной используется температура Вулиса Л.А.).

На основе нульмерных моделей (табл. 2, задачи 1, 2, 4) первым методом Ляпунова с помощью условий Рауса-Гурвица исследовалась устойчивость режимов окисления [3]. Координаты стационарных состояний (при $P_i(\mathcal{D}_s, C_s, \dots) = 0$) определялись из бифуркационных диаграмм. Выявлялись области возможных режимов окисления, обусловленные взаимным расположением границ неединственности и устойчивости. Исследовалось влияние на них различных физико-химических параметров и условий процесса. При проведении численных экспериментов аналитические решения использовались для прогноза динамической обстановки в реакторе и выбора параметров необходимого режима. Параметры расчетов соответствуют процессу окисления этана.

При численном решении использовалась условно-устойчивая явная конечно-разностная схема. Уравнение (3) в задачах 3, 4 решалось методом Эйлера. Расчеты выполнялись при фиксированных шагах по пространственным координатам $\Delta S_1, \Delta S_2$. Для устойчивости вычислений на каждом временном слое шаг по времени $\Delta \tau_k$ "автоматически" уменьшался с ростом скоростей реакций. Достоверность полученных результатов подтверждалась расчетами, выполненными на последовательности сгущающихся сеток.

Остановится кратко на основных результатах исследования.

Задача 1. Нульмерный аналог квазигомогенной модели при постоянных скорости течения и активности катализатора (табл. 2, задача 1) – динамическая система второго порядка (табл. 2, задача 1). На ее основе исследовалась устойчивость стационарных состояний, и проводился детальный параметрический анализ. С помощью бифуркационных диаграмм установлено, что в зависимости от эффективных температуры \mathcal{D}_{ef} и концентрации C_{ef} , система может обладать одним или тремя стационарными состояниями, т.е. возможны как

бескризисные (кривые 1, 2, рис. 1,а), так и гистерезисные, с несовпадающими условиями воспламенения (В) и потухания (П) (кривая 3 на рис. 1,а и кривые 2, 3 на рис. 1,б) режимы окисления. При определенных условиях кривые зависимости стационарной температуры ϑ_s от скорости поступления реагентов Pe имеют характер изол (кривая 1, рис. 1,б).

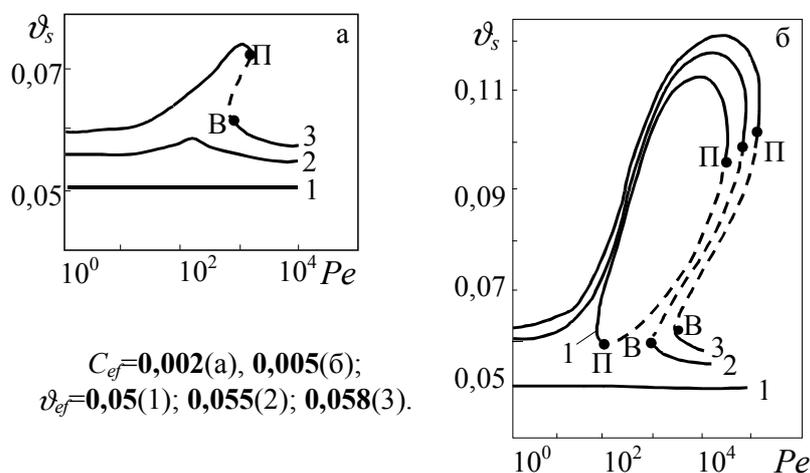


Рис. 1.

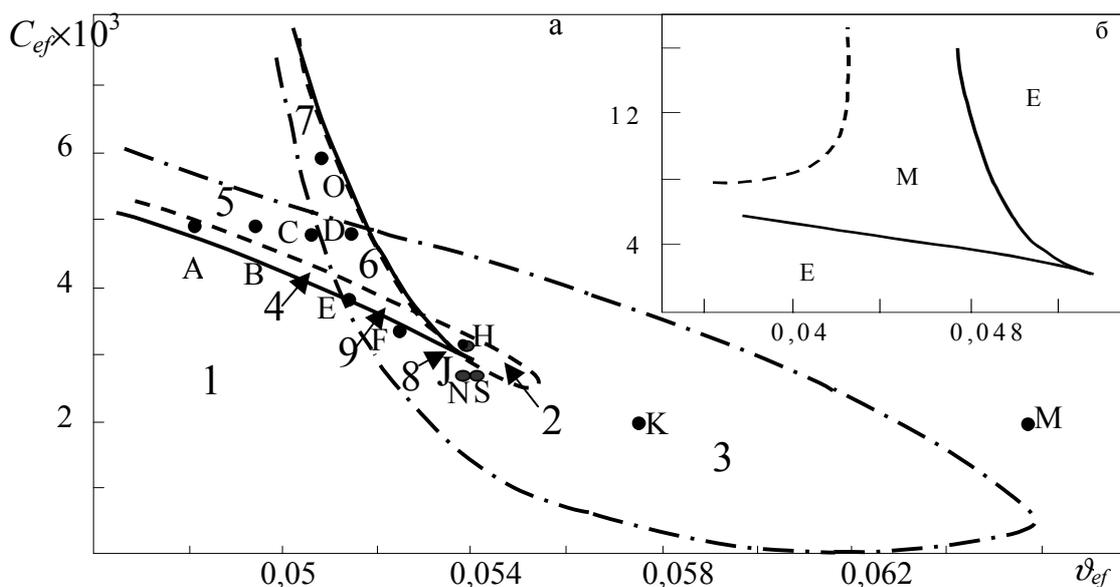


Рис. 2.

На параметрической плоскости ϑ_{ef} , C_{ef} выявлены области режимов окисления, обусловленные взаимным расположением границы неединственности (сплошная линия, клин), границы нейтральной устойчивости (пунктирная линия с петлей), и границы области колебаний (штрихпунктирная линия с петлей). Эти кривые делят параметрическую плоскость на 9 областей различных режимов окисления (см. рис. 2,а). В областях 1–3 стационарный режим единственный: без колебаний (1), автоколебательный (2), с затухающими колебаниями (3). В областях 4–9 реализуются неединственные режимы: низкотемпературный или высокотемпературный, в зависимости от начальных условий. Низкотемпературный неколебательный режим (4, 5) или с затухающими колебаниями (6–9). Высокотемпературный автоколебательный (4,8,9), с затухающими колебаниями (5, 6), без колебаний (7).

Установлено, что функция порозности $F(\varepsilon)$ и параметр γ не влияют на координаты стационарных состояний, положение и размер границы неединственности (клин на рис. 2,а,б) и оказывают значительное влияние на области параметров, в которых реализуется автоколебательный режим.

Таблица 1

N Задачи	Постановка задачи	Начальные и граничные условия
<p><u>Задачи 1,3,4</u></p> <p>Задача 1: $a=1,$ $Da_1=0,$ $Da_2=0.$</p> <p>Задача 3: $Da_1 \neq 0,$ $Da_2 = 0.$</p> <p>Задача 4: $Da_1 \neq 0,$ $Da_2 \neq 0.$</p>	<p>$\tau > 0: \quad \mathbf{0} < S_1 < \mathbf{1}, \quad \mathbf{0} < S_2 < \mathbf{1},$</p> $F(\varepsilon) \frac{\partial \theta}{\partial \tau} + Pe \frac{\partial \theta}{\partial S_1} = n \frac{\lambda_r^{ef}}{\lambda_G} \frac{1}{S_2} \frac{\partial}{\partial S_2} (S_2 \frac{\partial \theta}{\partial S_2}) + \frac{\lambda_x^{ef}}{\lambda_G} \frac{\partial^2 \theta}{\partial S_1^2} + \quad (1)$ $+ q \cdot Da \cdot a \cdot C \cdot \Gamma(\theta) - q_2 \cdot Da_2 \cdot a \cdot \Gamma_2(\theta);$ $\frac{\partial C}{\partial \tau} + Pe \frac{\partial C}{\partial S_1} = n \frac{1}{S_2} \frac{\partial}{\partial S_2} (S_2 \cdot Le_r \frac{\partial C}{\partial S_2}) + \quad (2)$ $+ Le_x \frac{\partial^2 C}{\partial S_1^2} - Da \cdot a \cdot C \cdot \Gamma(\theta);$ $\frac{da}{d\tau} = -Da_1 \cdot a \cdot C \cdot \Gamma_1(\theta) + Da_2 \cdot a \cdot \Gamma_2(\theta); \quad (3)$	<p>$\tau = 0: \quad \theta = \theta_H, \quad C = C_H, \quad a = 1; \quad (4)$</p> <p>$\tau > 0: \quad 0 \leq S_2 \leq 1, \quad S_1 = 0;$ $\theta = \theta_{ex}; \quad C = C_{ex};$ $S_1 = 1, \quad \frac{\partial \theta}{\partial S_1} = 0; \quad \frac{\partial C}{\partial S_1} = 0; \quad (5)$ $0 \leq S_1 \leq 1, \quad S_2 = 0,$ $\frac{\partial \theta}{\partial S_2} = 0; \quad \frac{\partial C}{\partial S_2} = 0;$ $S_2 = 1, \quad -\frac{\partial \theta}{\partial S_2} = Bi_T (\theta - \theta_\infty);$ $-\frac{\partial C}{\partial S_2} = Bi_D (C - C_\infty).$</p>
<p><u>Задача 2</u></p>	<p>$\tau > 0: \quad \mathbf{0} < S_1 < \mathbf{1}, \quad \mathbf{0} < S_2 < \mathbf{1},$</p> $[\varepsilon(r) \tilde{\rho} + (1 - \varepsilon(r)) \gamma] \frac{\partial \theta}{\partial \tau} + \tilde{\rho} U \frac{\partial \theta}{\partial S_1} = \quad (6)$ $= n \frac{\lambda_r^{ef}}{\lambda_{G0}} \frac{1}{S_2} \frac{\partial}{\partial S_2} \left(S_2 \frac{\partial \theta}{\partial S_2} \right) +$ $+ \frac{\lambda_x^{ef}}{\lambda_{G0}} \frac{\partial^2 \theta}{\partial S_1^2} + q \cdot Da \cdot \tilde{\rho} \cdot C \cdot \Gamma(\theta);$ $\tilde{\rho} \frac{\partial C}{\partial \tau} + \tilde{\rho} U \frac{\partial C}{\partial S_1} = n \left[\frac{1}{S_2} \cdot \frac{\partial}{\partial S_2} \left(S_2 \cdot Le_r \cdot \tilde{\rho} \frac{\partial C}{\partial S_2} \right) \right] + \quad (7)$ $+ Le_x \left[\frac{\partial}{\partial S_1} \left(\tilde{\rho} \frac{\partial C}{\partial S_1} \right) \right] - Da \cdot \tilde{\rho} \cdot C \cdot \Gamma(\theta);$ $\tilde{\rho} \frac{\partial U}{\partial \tau} + \tilde{\rho} U \frac{\partial U}{\partial S_1} = Pr_0 \left[\frac{1}{S_2} \frac{\partial}{\partial S_2} \left(S_2 \tilde{\mu} \frac{\partial U}{\partial S_2} \right) \right] n + \quad (8)$ $+ Pr_0 \left[\frac{\partial}{\partial S_1} \left(\tilde{\mu} \frac{\partial U}{\partial S_1} \right) \right] + P -$ $- \frac{(1 - \varepsilon(r))^2}{\varepsilon(r)^3} AU \tilde{\mu} - \frac{1 - \varepsilon(r)}{\varepsilon(r)^3} BU^2 \tilde{\rho}.$	<p>$\tau = 0: \quad \theta = \theta_H, \quad C = C_H, \quad U = U_H. \quad (9)$</p> <p>$\tau > 0: \quad 0 \leq S_2 \leq 1, \quad S_1 = 0,$ $\theta = \theta_{ex}; \quad C = C_{ex}; \quad U = Pe;$ $S_1 = 1,$ $\frac{\partial \theta}{\partial S_1} = 0; \quad \frac{\partial C}{\partial S_1} = 0; \quad \frac{\partial U}{\partial S_1} = 0; \quad (10)$ $0 \leq S_1 \leq 1, \quad S_2 = 0,$ $\frac{\partial \theta}{\partial S_2} = 0; \quad \frac{\partial C}{\partial S_2} = 0; \quad \frac{\partial U}{\partial S_2} = 0;$ $S_2 = 1,$ $-\frac{\partial \theta}{\partial S_2} = Bi_T (\theta - \theta_\infty);$ $-\frac{\partial C}{\partial S_2} = Bi_D (C - C_\infty); \quad U = 0.$</p>

Таблица 2

N задачи	Нульмерная модель
----------	-------------------

Задача 1: $a=1,$ $Da_1=0,$ $Da_2=0.$	$F(\hat{\varepsilon}) \frac{d\hat{\vartheta}}{d\tau} = m_{ef1}(\hat{\vartheta}_{ef} - \hat{\vartheta}) + \tilde{q}Da \cdot \hat{a} \cdot \hat{C} \tilde{\Gamma}(\hat{\vartheta}) - \tilde{q}Da_2 \hat{a} \tilde{\Gamma}_2(\hat{\vartheta}) \equiv P_1(\hat{\vartheta}, \hat{C}, \hat{a}); \quad (11)$
Задача 3: $Da_1 \neq 0,$ $Da_2 = 0.$	$\frac{d\hat{C}}{d\tau} = m_{ef2} \left(C_{ef} - \hat{C} \right) - Da \cdot \hat{a} \cdot \hat{C} \cdot \tilde{\Gamma}(\hat{\vartheta}) \equiv P_2(\hat{\vartheta}, \hat{C}, \hat{a}); \quad (12)$
Задача 4: $Da_1 \neq 0,$ $Da_2 \neq 0.$	$\frac{d\hat{a}}{d\tau} = -Da_1 \cdot \hat{a} \cdot \hat{C} \cdot \tilde{\Gamma}_1(\hat{\vartheta}) + Da_2 \cdot \hat{a} \cdot \tilde{\Gamma}_2(\hat{\vartheta}) \equiv P_3(\hat{\vartheta}, \hat{C}, \hat{a}); \quad (13)$
	$\tau = 0: \quad \hat{\vartheta} = \vartheta_H, \quad \hat{C} = C_H, \quad \hat{a} = 1. \quad (14)$
Задача 2.	$F_1(\varepsilon, \hat{\vartheta}) \frac{d\hat{\vartheta}}{d\tau} = m_1(\vartheta_\infty - \hat{\vartheta}) + [m_2 + \frac{\vartheta_0}{\hat{\vartheta}} U](\vartheta_{BX} - \hat{\vartheta}) + \frac{\vartheta_0}{\hat{\vartheta}} \tilde{q}Da \hat{C} \Gamma(\hat{\vartheta}) \equiv P_1(\hat{\vartheta}, \hat{C}, \hat{U}); \quad (15)$ $\frac{d\hat{C}}{d\tau} = \left[m_3 - m_3 \frac{\vartheta_\infty - \hat{\vartheta}}{\hat{\vartheta}} \right] (C_\infty - \hat{C}) + \left[Le_X \left(5 - \frac{\vartheta_{BX}}{\hat{\vartheta}} \right) + \hat{U} \right] (C_{BX} - \hat{C}) - Da \cdot \hat{C} \cdot \tilde{\Gamma}(\hat{\vartheta}) \equiv P_2(\hat{\vartheta}, \hat{C}, \hat{U}); \quad (16)$ $\frac{d\hat{U}}{d\tau} = - \frac{(1 - \varepsilon(r))^2}{(\varepsilon(r))^3} A \hat{U} \left(\frac{\hat{\vartheta}}{\vartheta_0} \right)^{z+1} - \frac{1 - \varepsilon(r)}{(\varepsilon(r))^3} B \hat{U}^2 + Pr_0 n \hat{U} \left(\frac{\hat{\vartheta}}{\vartheta_0} \right)^{z+1} \left[-5 - z \left(\frac{\vartheta_\infty}{\hat{\vartheta}} - 1 \right) \frac{Bi_T}{2 + Bi_T} \right] +$ $+ Pr_0 (Pe - \hat{U}) \left(\frac{\hat{\vartheta}}{\vartheta_0} \right)^{z+1} \left[z \left(\frac{\vartheta_{BX}}{\hat{\vartheta}} - 1 \right) + 4 \right] + \hat{U} (Pe - \hat{U}) + P \frac{\hat{\vartheta}}{\vartheta_0} \equiv P_3(\hat{\vartheta}, \hat{C}, \hat{U}), \quad (17)$ $\tau = 0: \quad \hat{\vartheta} = \vartheta_H, \quad \hat{C} = C_H, \quad \hat{U} = U_H. \quad (18)$

Автоколебательный режим существует, в случае, $\gamma < 1$. При увеличении параметра γ размер области автоколебательных режимов уменьшается, а при $\gamma > 1$ петля на границе нейтральной устойчивости исчезает, автоколебательные режимы становятся невозможными (рис. 2,б). Нарушается условие существования колебаний [4].

На рис. 3 на плоскости параметров "входная температура" (T_{ex}) – "скорость подачи смеси" (u) сравниваются границы неединственности, полученные при различных значениях коэффициента теплоотдачи Bi_T (кривые 1, 2, 3) с известным из литературы [1] экспериментом по окислению этана (пунктирная линия). Как видно, эти области перекрываются, причем наилучшее согласование наблюдается при меньших значениях коэффициента теплоотдачи.

Динамика окисления, предсказанная аналитически, проверялась численным решением двумерной задачи (табл. 1, задача 1). На рис. 4, в качестве примера, показаны численно реализованные неединственные стационарные режимы для т. Е на рис. 2,а: высокотемпературный автоколебательный (кривая 1) и низкотемпературный медленного окисления (кривая 2), $S_1 = S_2 = 0,8$. Период колебаний в высокотемпературном стационарном состоянии (кривая 1, рис. 4) одного порядка с полученным из нульмерного анализа. Рассчитанные численно кривые 1, 2 изменения со временем температуры располагаются вблизи стационарных значений, полученных из нульмерной модели (пунктир на рис. 4). Расчеты показали, что промежуточный режим неустойчив, и численно не реализуется.

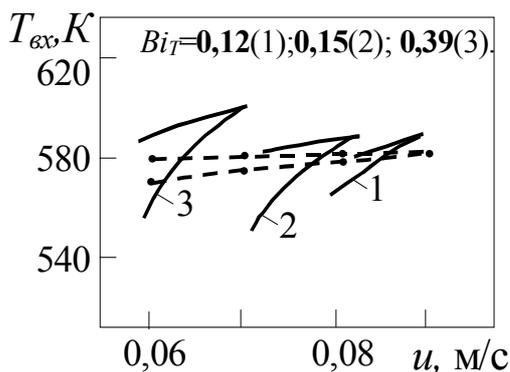


Рис. 3.

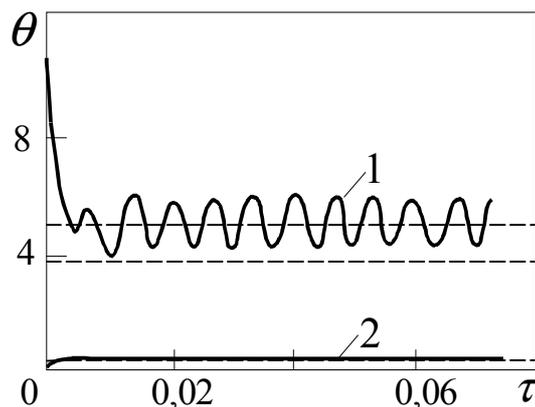


Рис.4.

Сопоставление режимов, предсказанных нульмерным анализом, и полученных численно, показало их согласование.

Задача 2. Рассматривается влияние неоднородного распределения скорости потока, градиента давления, диаметра частиц катализатора, теплофизических свойств газовой смеси (табл. 1, задача 2). Движение газовой смеси в слое катализатора описывается уравнением Бринкмана. Выполняются характерные для идеального газа температурные зависимости плотности и динамической вязкости. Нульмерная модель имеет вид динамической системы 3-го порядка (табл. 2, задача 2).

На рис. 5 показано влияние неоднородного распределения скорости потока и переменных теплофизических свойств газа на границу неединственности. Кривая 1 на рис. 5 соответствует границе неединственности, при однородном распределении скорости потока и постоянных теплофизических свойствах газа. Неоднородное распределение скорости потока в радиальном направлении (кривую 2, рис. 5) сильнее влияет на критические условия воспламенения, чем на критические условия потухания. Видно, что расчеты, выполненные для неоднородного распределения скорости потока не только в радиальном, но и продольном направлениях и с учетом температурных зависимостей вязкости и плотности, приводят к уменьшению области неединственных стационарных состояний и ее смещению в сторону более низких значений входной температуры (кривая 3).

На рис. 6,а показано численно рассчитанное радиальное распределение порозности слоя катализатора (кривая 1). Здесь же нанесены вычисленные стационарные профили скорости потока при учете радиального распределения порозности (кривые 2-4 на рис. 6,а) и без его учета (рис. 6,б, кривые 2-4). Видно, что из-за увеличения порозности слоя вблизи стенок, связанного с их шероховатостью и неплотным прилеганием сферических частиц катализатора, скорость потока вначале возрастает (тем сильнее, чем меньше размер частиц, см. кривые 2-4, рис. 6,а) а затем понижается из-за трения. При однородной порозности профили скорости течения имеют параболическую форму.

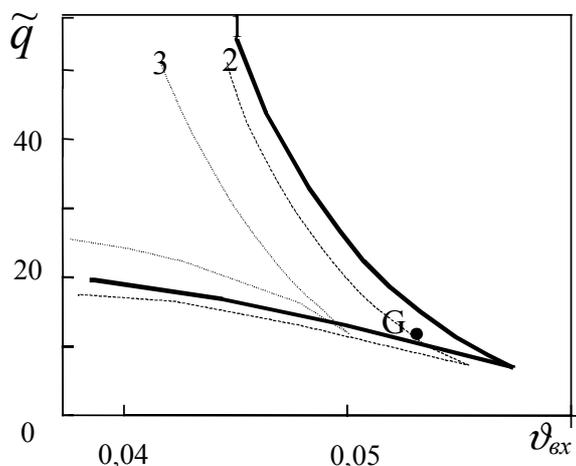


Рис.5.

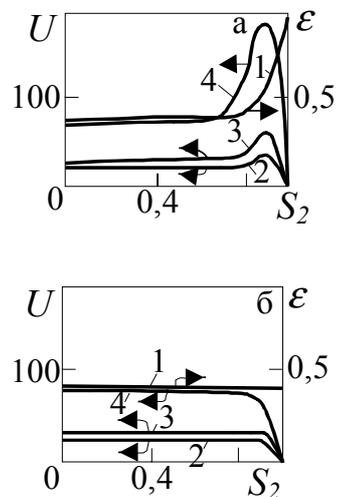


Рис. 6.

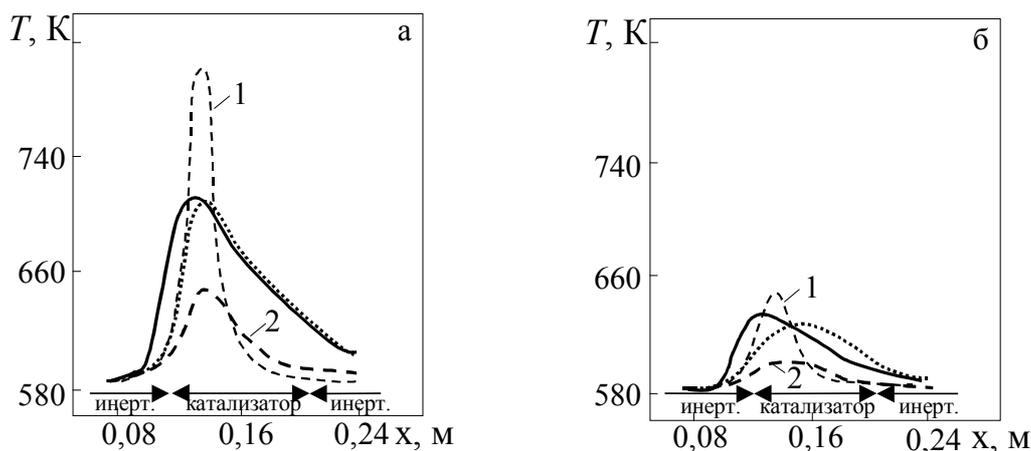


Рис.7.

Численно рассчитан режим, соответствующий параметрам эксперимента по окислению этана (т. G, рис. 5). На рис. 7 точками нанесены экспериментальные профили температуры по длине реактора на его оси (а) и стенках (б) [1]. Пунктирными линиями показаны решения задачи 1, сплошными - решения задачи 2.

В случае задачи 1, численно реализованы предсказанные нульмерным анализом неединственные режимы окисления (т. G относительно кривой 1 на рис. 5). Экспериментальный профиль располагается между вычисленными в высокотемпературном (кривые 1 на рис. 7,а,б) и в низкотемпературном (кривые 2 на рис. 7,а,б) режимах окисления. В результате численного решения задачи 2 получен единственный режим (сплошные линии на рис. 7), хорошо согласующийся с экспериментом и аналитическим решением (т. G относительно кривой 3 на рис. 5). Таким образом, учет неоднородного распределения скорости потока и переменных теплофизических свойств газа оказывает существенное влияние на характер режима окисления. Профили температуры по длине реактора становятся более заполненными, улучшается согласование с экспериментом.

Задачи 3 и 4. На основе динамической системы 3-го порядка (табл. 2, задача 3), приближенно аппроксимирующей исходную квазигомогенную модель (табл. 1, задача 3), прямым методом Ляпунова исследуется асимптотическая устойчивость окисления на дезактивирующемся катализаторе. Проблема устойчивости режимов работы реактора формулируется как проблема устойчивости движения. Получены условия, когда исследуемое невозмущенное движение асимптотически устойчиво. На рис. 8, в качестве примера, приведены аналоги фазовых портретов для двух различных, предсказанных аналитически, асимптотически устойчивых режимов окисления.

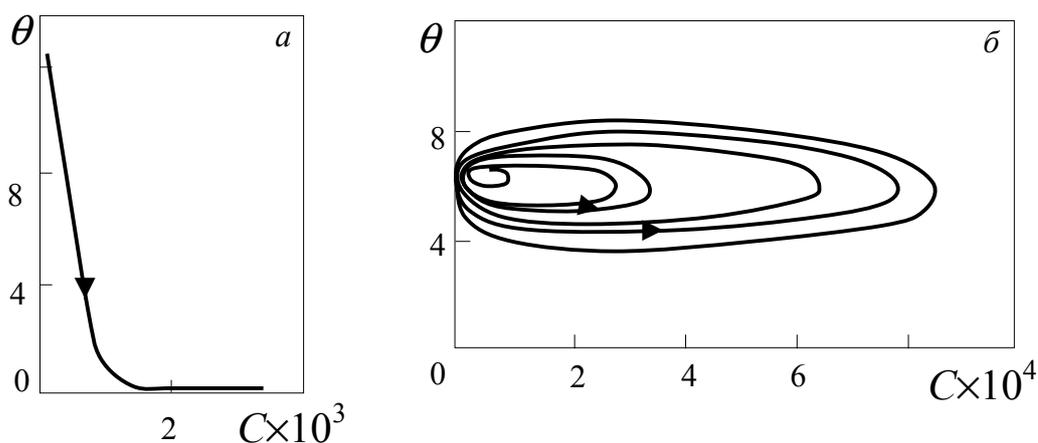


Рис.8.

Численно исследовано влияние скорости поступления газовой смеси Pe на продолжительность реакции (τ_S) и установившуюся активность катализатора (a_S) (рис. 9). Установлено, что при малых значениях скорости вдува имеет место быстрый срыв окисления, катализатор остается без изменения (кривые 1, 2, рис. 9). С увеличением Pe , продолжительность реакции увеличивается, резко возрастая при некотором значении $Pe=Pe^*$, дальнейший рост скорости поступления газовой смеси приводит к уменьшению продолжительности реакции (кривая 1).

Установившаяся активность катализатора уменьшается с увеличением скорости вдува, резко падая при значении $Pe=Pe^*$, соответствующем максимальной продолжительности реакции (кривая 2).

Полученные результаты могут быть использованы для уменьшения дезактивации катализатора при окислении.

На основе задачи 4 исследуется каталитическое окисление газовой смеси с дезактивацией и восстановлением катализатора. Предварительное приближенно-аналитическое исследование осуществлялось на нульмерном аналоге (табл. 2, задача 4), имеющем вид динамической системы 3-го порядка. Сравнение границ неединственности (см. рис. 10), полученных без учета (кривая 1^*) и с учетом процессов дезактивации и восстановления катализатора (кривая 1) показало, что в последнем случае область неединственных стационарных состояний значительно увеличивается и смещается в сторону более высоких значений v_{ef} и m_{ef1} (кривые 1 и 1^* на рис. 10).

На рис. 11 показаны результаты решения задачи 1 для режима, соответствующего т. А на рис. 10. Точка А находится в области множественных стационарных состояний по отношению к границе неединственности в задаче без учета дезактивации и восстановления катализатора (кривая 1^* , рис. 10). Кривые 1 на рис. 11 соответствуют высокотемпературному автоколебательному режиму (1) и устойчивому режиму медленного окисления (1'). Кривая 2 на рис. 11 иллюстрирует режим окисления на дезактивирующемся катализаторе без учета его восстановления (табл. 1, задача 3). В этом случае из-за дезактивации катализатора происходит срыв процесса окисления. Кривая 3 на рис. 11 соответствует режиму окисления при дезактивации и восстановлении катализатора (табл. 1, задача 4). В этом случае реализуется предсказанный единственный высокотемпературный режим затухающих колебаний (т. А относительно кривой 1 на рис. 10). Видно, что численные решения располагаются вблизи прогнозируемых соответствующими нульмерными моделями (пунктир).

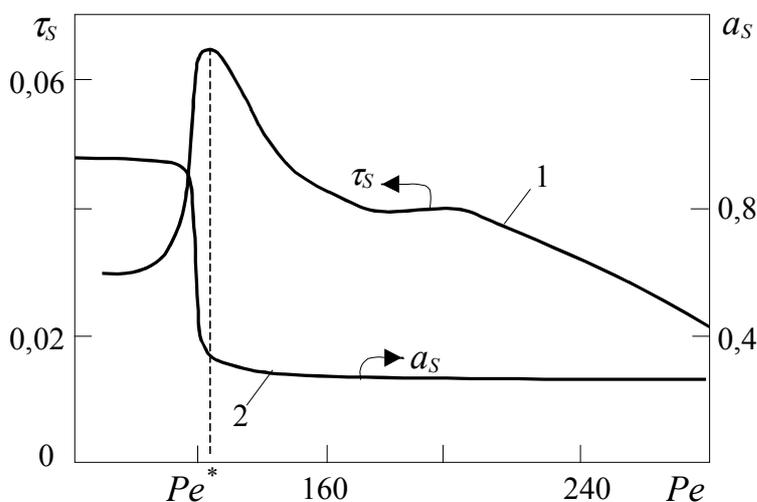


Рис. 9.

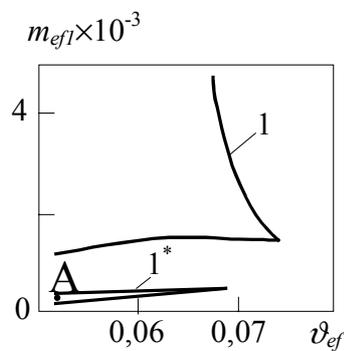


Рис. 10.

Таким образом, дезактивация и восстановление катализатора оказывают существенное влияние на тепловой режим.

Анализ нульмерных решений использовался при численном исследовании влияния внешних периодических воздействий на различные стационарные режимы. На основе приведенных выше двумерных моделей тепломассопереноса изучалось влияние периодического изменения скорости поступления реагентов, перепада давления, температуры входа и стенок реактора на динамические режимы каталитического окисления.

На рис. 12 показаны амплитудно-частотные характеристики для задачи 1 (табл. 1) при воздействии вида:

$$Pe(\tau) = Pe_1(\tau) \cdot [1 + A_1 \sin(\omega_1 \cdot \tau)], \quad (1)$$

для $A_1=0,5$, $\theta_n=0$ на неединственный низкотемпературный устойчивый (кривая 1), единственные: автоколебательный (кривая 2), и режимы затухающих колебаний (кривые 3,4). Наблюдается параметрический резонанс вблизи частоты воздействия $\omega_1=\omega_0/2$, причем резонансный пик тем острее и выше, чем больше

добротность колебательной системы (см. кривую 2). При воздействии на режим затухающих колебаний (кривые 3,4) возникает также резонанс вблизи частоты, близкой к $2\omega_0$ (кривая 4) или $3\omega_0$ (кривая 3).

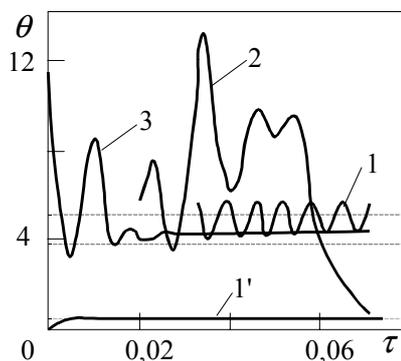


Рис. 11.

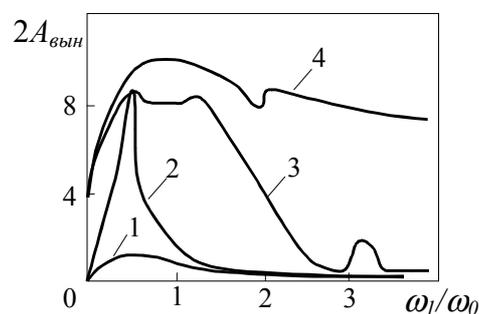


Рис. 12.

Установлено, что изменение скорости газовой смеси Pe_1 по закону (1) существенно влияет на время срыва процесса, и падение активности катализатора. На рис. 13,а представлены зависимости продолжительности реакции от Pe_1 при различных частотах ω внешнего периодического воздействия по закону (1) (для $A_1=1$). При отсутствии внешних периодических воздействий $\omega=0$, зависимость имеет один максимум (кривая 1). Этот максимум наблюдается при скорости поступления газовой смеси Pe_1 , соответствующей высокотемпературному автоколебательному режиму из области неединственных стационарных состояний (рис. 4, кривая 1). При наложении пульсаций (1) для некоторых частот воздействия или появляется ещё один максимум (см. кривые 3,4), или вообще исчезает зависимость продолжительности химической реакции от скорости подачи смеси Pe_1 (кривая 2). Зависимости от времени для активности катализатора приведены на рис. 13,б. Как видно, активность катализатора либо медленно уменьшается со временем (кривая 2), либо, при определенном Pe_1 , соответствующем “резонансу” на рис. 13,а резко падает (см. кривые 1,3,4). Таким образом, изменяя скорость подачи смеси и частоту воздействия, можно существенно влиять на дезактивацию катализатора и продолжительность реакции.

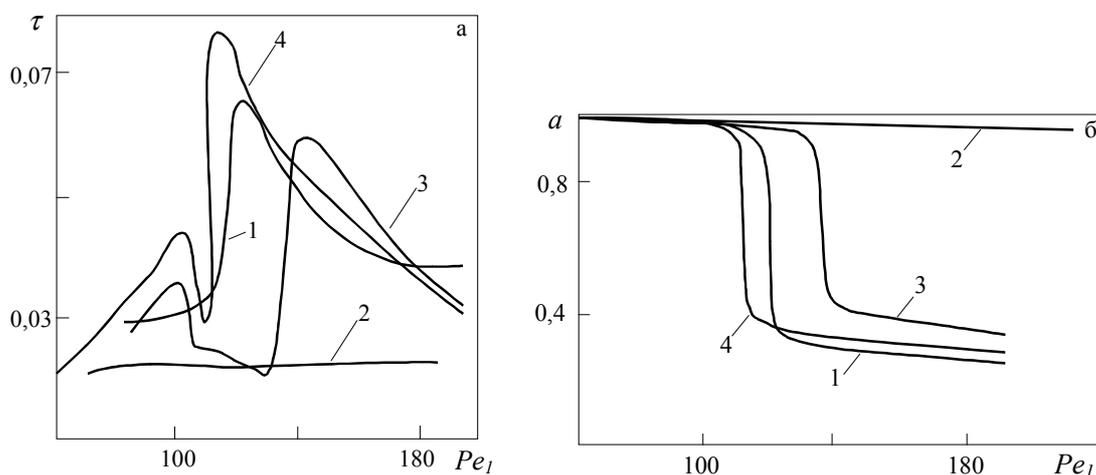


Рис. 13.

Список литературы.

- [1] Kalthoff O., Vortmeyer D. Ignition/extinction phenomena in a wall cooled fixed bed reactor // Chem. Eng. Sci., 1979, Vol. 35. P. 1637-1643.
- [2] Лукьянов А.Т., Артюх Л.Ю., Ицкова П.Г. Резонансное равновесие в задачах теории горения // Алма-Ата: Наука. 1989. 179 с.
- [3] Вольтер Б.В., Сальников И.Е. Устойчивость режимов работы химических реакторов // Москва: Химия. 1981. 200 с.
- [4] Вержбицкая И.С., Ицкова П.Г., Лукьянов А.Т. О влиянии возмущений на динамические режимы каталитического окисления // ТОХТ. 1990. Т. 24. С. 412-416.