

# INTEGRACION DE ECUACIONES DIFERENCIALES RIGIDAS DE VALOR DE CONTORNO EN PROBLEMAS DE COMBUSTION CON CINETICA DE REACCION DETALLADA

W.A. HAHN  
y  
J.O.L. WENDT

*Exxon Production Research Company  
P. O. Box 2189  
Houston, TX 77252-2189*

*Department of Chemical Engineering  
University of Arizona  
Tucson, AZ 85721*

## RESUMEN

Modelos detallados de la llama de difusión plana, laminar de jets opuestos requieren la solución de las ecuaciones de conservación de cantidad de movimiento, energía y especies químicas en conjunto con una cinética de reacción química stiff. El problema tiene soluciones autosimilares y se puede resolver mediante integración numérica de un conjunto de ecuaciones diferenciales ordinarias stiff de segundo orden, con condiciones de contorno, cada una de las cuales tiene un punto de contorno de primer orden debido a la ecuación de conservación de cantidad de movimiento.

El uso de discretización en diferencias finitas standard (en el dominio espacial) y la expansión en serie de Taylor alrededor de la iteración anterior (en el espacio temporal) del término cinético de las reacciones químicas lleva a una ecuación de matrices en la cual la matriz de coeficientes es del tipo tridiagonal en bloques y muy grande de tamaño. También representa una matriz de banda y se puede obtener una solución al problema mediante una descomposición LU.

Inestabilidades numéricas debidas a la malla finita de espaciado irregular y a la difusión de errores numéricos hacia los bordes forzaron el uso de una malla regular con un gran número de puntos. Esto restringió el estudio a la solución de problemas con esquemas cinéticos relativamente simples, debido a la alta necesidad de memoria de computador. Este dilema fue resuelto por el desarrollo de un esquema de diferenciación modificado, que asume que la solución puntual del problema está dada por una suma de exponenciales.

Usando esta nueva técnica fue posible hallar la solución de una llama con 150 reacciones envolviendo las ecuaciones de conservación de 70 especies químicas.

En este artículo formulamos el problema y describimos resultados de los varios esquemas numéricos mediante los que se intentó resolver el mismo. El foco principal, sin embargo, está dirigido hacia la modificación del esquema de diferencias finitas, acoplado con la expansión en serie de Taylor de los términos de reacción química.

Recibido: Septiembre 1984

### SUMMARY

Detailed models of the flat, laminar, opposed jet diffusion flame involve the solution of the momentum, energy and species conservation equations coupled with stiff chemical kinetics. The problem has self similar solutions and can be solved through numerical integration of a set of second order, stiff, boundary valued, ordinary differential equations, each with a regular first order turning point arising from convection.

Use of standard finite difference discretization (in the spatial domain) and expansion of the reaction rate source terms in a Taylor series about the backward iteration (in the temporal domain), lead to a matrix equation in which the coefficient matrix is a very large block tridiagonal matrix. It is also a band matrix and solution is obtained through LU decomposition.

Instabilities originating from the unevenly spaced grid and from diffusion of numerical errors towards the boundaries forced the use of a large number of equally spaced grid points which constrained the program to solution of relatively small kinetic problems (due to core storage limitations). This dilemma was resolved by developing a modified central difference discretization which assumes that the solution at a mesh point is given by the sum of exponentials. Using the new technique it was possible to obtain the solution of the opposed jet problem with 150 reactions and 70 species on the available CYBER 175 computer.

### EL PROBLEMA

La llama de difusión laminar de jets opuestos, mostrada en la Figura 1, es una configuración de combustión que posee una serie de atributos de gran utilidad para el investigador. Primero, permite establecer una llama plana en el espacio sin la influencia de quemadores o superficies que en muchos casos se comportan como catalizadores; segundo, permite la investigación de mecanismo cinéticos de combustión que ocurren en regiones extremadamente ricas en combustible y en un gran rango de condiciones, que no se pueden establecer en la modalidad de llama premezclada por limitaciones de flamabilidad del combustible; tercero, se puede pensar que esta llama representa un modelo prototipo de pequeñas llamas laminares las cuales sufren deformación en su propio plano y que representan las zonas de reacción importantes de una llama turbulenta de difusión. La utilidad de la llama laminar como una herramienta para el estudio y corroboración de mecanismos de cinética detallada se debe al hecho que se puede escribir y resolver numericamente un modelo matemático de ella. Este modelo matemático está representado por un sistema de ecuaciones diferenciales rígidas de valor de contorno. Dicho sistema tiene un número de ecuaciones igual al número de especies químicas presente en el esquema de reacción más dos.

A diferencia de trabajos previos (Fendell, 1965; Krishnamurthy y Williams, 1974) que han sido enfocados hacia soluciones analíticas de modelos que emplean cinética de combustión muy simplificada basados o en reacciones infinitamente rápidas o reacciones simples con energía de activación muy alta (Peters, 1978), el presente artículo está enfocado hacia los procedimientos numéricos necesarios para resolver el problema con un esquema de reacciones con un gran número de reacciones que describe en detalle la interacción de los radicales libres pertinentes a la llama. Las ecuaciones que describen la llama de difusión laminar de jets opuestos son una prueba severa para cualquier esquema numérico de integración. El problema es un problema de valor de contorno con concentraciones y temperatura conocidas en  $\pm\infty$ . Además éste es uno de los

casos en que existe una relación directa entre los balances de energía y cantidad de movimiento por intermedio de la densidad de los gases envueltos en la combustión. Una predicción de gran precisión del perfil de velocidad, que es altamente no lineal, es de gran importancia pues la influencia de este perfil en todos los demás es de primer orden. Inclusión de los efectos de viscosidad y otros efectos dinámicos sobre los perfiles de concentración es lo que diferencia esta llama premezclada en cuyo caso de puede predecir el perfil de velocidad basado solamente en consideraciones cinemáticas.

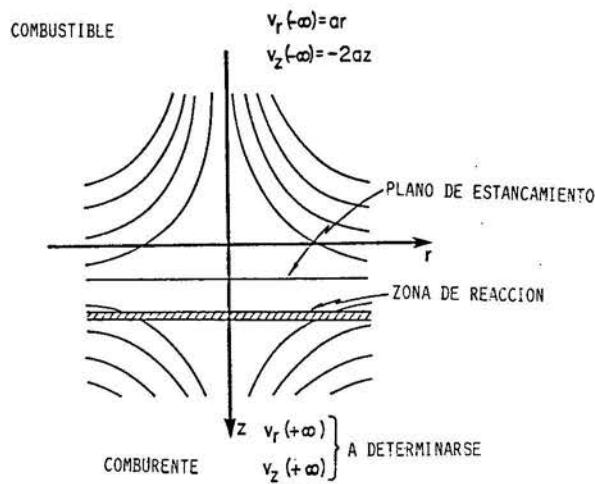


Figura 1. Esquema de la llama laminar de difusión de jets opuestos

El grosor de la zona de reacción de la llama depende de un parámetro, a saber, la velocidad de deformación lateral de la llama, y es en general muy pequeño. Debido a esto, altos gradientes espaciales de los perfiles de temperatura y concentración son la norma más bien que la excepción. Un mecanismo químico detallado de combustión típicamente contiene muchas reacciones entre radicales libres con tiempos característicos que pueden variar en más de treinta ordenes de magnitud en un dado punto en el espacio. Esto naturalmente introduce problemas de rigidez en las ecuaciones diferenciales y técnicas especiales deben ser empleadas en la resolución numérica de dichas ecuaciones. El propósito del presente artículo es demostrar cualitativamente el problema para dar un ejemplo ingenieril de cómo y dónde las ecuaciones rígidas se presentan en la naturaleza, y en seguida, presentar los procedimientos empleados en el presente trabajo para resolver este problema particular. El procedimiento ataca ambas dificultades, el tamaño de los gradientes de los perfiles de las variables dependientes y la rigidez de las ecuaciones diferenciales, en forma simultánea.

**SOLUCION SIMILAR DE LAS ECUACIONES DIFERENCIALES**

Una descripción matemática completa del sistema mostrado en la Figura 1 incluye la solución simultánea de las siguientes ecuaciones en geometría cilíndrica:

**Continuidad:**

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (\rho r v_r) + \frac{\partial}{\partial z} (\rho v_z) = 0 \quad (1)$$

**Cantidad de movimiento en r:**

$$\rho \frac{\partial v_r}{\partial t} + \rho v_r \frac{\partial v_r}{\partial r} + \rho v_z \frac{\partial v_r}{\partial z} = - \frac{\partial P}{\partial r} - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \tau_{rr}) - \frac{\tau_{\theta\theta}}{r} + \frac{\partial \tau_{rz}}{\partial z} \quad (2)$$

**Cantidad de movimiento en z:**

$$\rho \frac{\partial v_z}{\partial t} + \rho v_r \frac{\partial v_z}{\partial r} + \rho v_z \frac{\partial v_z}{\partial z} = - \frac{\partial P}{\partial z} - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \tau_{rz}) + \frac{\tau_{zz}}{z} \quad (3)$$

**Energía:**

$$c C_p \left( \frac{\partial T}{\partial t} + v_r \frac{\partial T}{\partial r} + v_z \frac{\partial T}{\partial z} \right) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r k \frac{\partial T}{\partial r}) + \frac{\partial}{\partial z} (k \frac{\partial T}{\partial z}) + r_j \Delta h_j \quad (4)$$

**Especies químicas:**

$$\frac{\partial (c x_A)}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (c r x_A v_r) + \frac{\partial}{\partial z} (c x_A v_z) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r c D_A \frac{\partial x_A}{\partial r}) + \frac{\partial}{\partial z} (c x_A \frac{\partial x_A}{\partial z}) + R_A \quad (5)$$

(A = 1, 2, ..., NS)

**Ley de los gases ideales:**

$$\frac{P}{c} = RT \quad (6)$$

En estas ecuaciones se ha asumido difusión pseudobinaria y pérdidas de calor por radiación y difusión térmica han sido despreciadas siguiendo a Field, et al. (1967). La dependencia temporal se ha mantenido ya que las ecuaciones van a ser resueltas desde una estimación inicial a tiempo cero, de la solución hasta el estado estacionario, a tiempo infinito. Las condiciones de borde de las ecuaciones (1) a (6) son:

$$V_z = -2\epsilon z \quad z = -\infty \quad \forall r \quad (7)$$

$$P = P_\infty \quad z = \pm \infty \quad \forall r \quad (8)$$

$$T = T_\infty \quad z = \pm \infty \quad \forall r \quad (9)$$

$$x = x_{A1} \quad z = \pm \infty \quad \forall r \quad (10)$$

Se puede demostrar que las ecuaciones (1) a (5) se reducen a un sistema de ecuaciones ordinarias si se asume una solución similar de la siguiente forma:

$$v_r = \epsilon r \psi(z) \quad ; \quad v_z = v(z) \quad (11)$$

$$\frac{\partial P}{\partial r} = f(r) \quad ; \quad \frac{\partial P}{\partial z} = g(z) \quad (12)$$

$$\rho = \rho(z) \quad ; \quad T = T(z) \quad ; \quad x_A = x_A(z) \quad (13)$$

Además, ya que

$$\frac{\partial P}{\partial r} = - \frac{\partial(\rho v)}{\partial z} + 2 \epsilon r \psi \quad (14)$$

se ha demostrado (Hahn, 1979), que la solución similar propuesta es consistente con las ecuaciones originales, que en su forma transformada son totalmente independientes de la coordenada radial. Es conveniente definir una temperatura adimensional de la forma  $\theta = \frac{T-T_\infty}{T_\infty}$ , para obtener el siguiente sistema de ecuaciones diferenciales a resolver:

**Masa:**

$$\frac{\partial P}{\partial r} = \epsilon^2 \rho_\infty r \quad (15)$$

**Cantidad de movimiento en r:**

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} = \frac{\mu}{\rho} \frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2} + \left( \frac{1}{\rho} \frac{\partial \mu}{\partial z} - v \right) \frac{\partial \psi}{\partial z} - \epsilon \psi^2 + \frac{\rho_\infty}{\rho} \epsilon \quad (16)$$

**Energía:**

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \frac{k}{c C_p} \frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2} + \left( \frac{1}{c C_p} \frac{\partial k}{\partial z} - v \right) \frac{\partial \theta}{\partial z} + \frac{1}{T_\infty c C_p} \sum_{j=1}^{nr} r_j \Delta h_j \quad (17)$$

**Especies químicas:**

$$\begin{aligned} \frac{\partial x_A}{\partial t} &= D_A \frac{\partial^2 x_A}{\partial z^2} + \left( \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial z} (c D_A) - v \right) \frac{\partial x_A}{\partial z} + \\ &+ \left( \frac{-1}{c} \frac{\partial c}{\partial t} - 2\epsilon \psi - \frac{1}{c} \frac{\partial c v}{\partial t} \right) x_A + \frac{1}{c} R_A \quad (A = 1, 2, \dots, NS) \end{aligned} \quad (18)$$

La ecuación de cantidad de movimiento en la dirección  $z$  sólo sirve para evaluar  $\frac{\partial P}{\partial z}$  y no es necesaria para cerrar el sistema de ecuaciones diferenciales.

Es de interés la solución a tiempo infinito, cuando los lados izquierdos de las ecuaciones es cero ya que esa es la solución del estado estacionario en una sola dimensión. Se debe notar que en la solución todas las propiedades físicas que son

función de la temperatura y composición del gas varían con la posición en el espacio y además que la ecuación de conservación de especies químicas se simplificó suponiendo que es válida la difusión pseudobinaria.

### SOLUCION NUMERICA

Las ecuaciones (16) a (18) fueron resueltas numéricamente en forma totalmente implícita y totalmente acoplada. Las ecuaciones tienen la siguiente forma general:

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = A_i(z) \frac{\partial^2 c_i}{\partial z^2} + B_i(z) \frac{\partial c_i}{\partial z} + D_i(z) + R_i(z) \quad (i = 1, 2, \dots, NS + 2) \quad (19)$$

donde los coeficientes están dados por:

	$A_i$	$B_i$	$D_i$	$R_i$
$X_A$	$D_A$	$\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial z}(cD_A) - v$	$-\frac{1}{c} \frac{\partial c}{\partial t} - 2\epsilon c - \frac{1}{c} \frac{\partial cv}{\partial z}$	$\frac{1}{c} R_A$
$\theta$	$\frac{k}{cC_p}$	$\frac{1}{cC_p} \frac{\partial k}{\partial z} - v$	0	$\frac{1}{T_\infty cC_p} \sum_{j=i}^{NS} r_j \Delta h_j$
$\Phi$	$\frac{\mu}{\rho}$	$\frac{1}{\rho} \frac{\partial \mu}{\partial z} - v$	0	$-\epsilon \Psi^2 + \frac{\rho_\infty}{\rho} \epsilon$

(20)

La solución numérica se encuentra en el dominio finito

$$-l/2 < z < +l/2$$

en que  $l$  es una distancia grande comparada con la dimensión característica del problema. Las condiciones de borde del problema son los valores conocidos de las concentraciones y temperatura en  $z = -l/2$  y  $z = +l/2$ . Para la función  $\psi$  los valores de contorno son  $\psi = 1$  y  $\psi = \sqrt{\frac{\rho - \infty}{\rho + \infty}}$ .

La ecuación de continuidad, que es de primer orden, se resuelve en forma explícita en el espacio después de reorganizarla de la siguiente manera:

$$\frac{\partial}{\partial z}(\rho v) = -2\epsilon \rho \psi - \frac{\partial \rho}{\partial t} \quad (21)$$

donde:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{(MW)P}{R} \frac{\partial(\frac{1}{T})}{\partial t} \quad (22)$$

La rigidez de la ecuación (19) se debe a la función forzante  $R_i(z)$  que contiene las velocidades de reacción del mecanismo detallado de combustión. Además, el coeficiente  $B_i(z)$  cambia de signo en la vecindad del plano de estancamiento dando lugar a un punto de torno regular de primer orden.

Una forma explícita de resolver el sistema de ecuaciones (19) sería evaluar las funciones  $A_i, B_i$  y  $R_i$  usando valores de una iteración anterior y resolver para  $C_i$ . De esa forma las ecuaciones estarían desacopladas y la solución se obtendría con la inversión de una serie de matrices tridiagonales. Este esquema numérico fue intentado, pero la solución falló de converger; mas bien se observaron grandes oscilaciones en los perfiles de concentración de las distintas especies químicas. Tyson (1964) desarrolló una técnica para la solución de problemas representados por sistemas de ecuaciones diferenciales rígidas de valor inicial en la cual el término  $R_i(z)$  es expandido en serie de Taylor alrededor del paso anterior en el tiempo. Esta idea fue ampliada por Wendt, et al. (1979), para resolver sistemas de valor de contorno. Este método fue empleado en el presente trabajo. Sea

$$R_i^{k+1}(z) = R_i^k(z) + \sum_{j=1}^N \left. \frac{\partial R_i}{\partial c_j} \right|^k (c_j^{k+1} - c_j^k) \quad (23)$$

con  $N = NS + 2$  y  $k$  refiriéndose al paso en el tiempo. La expansión se lleva a cabo en cada uno de los nodos espaciales.

### DIFERENCIAS FINITAS STANDARD

Si se considera una malla de distancia variable entre nodos, las fórmulas apropiadas para las primeras dos derivadas son:

$$\begin{aligned} \frac{dc_i}{dz} = & \frac{\Delta z_{p-1}}{\Delta z_{p+1}(\Delta z_{p+1} + \Delta z_{p-1})} c_{i,p+1}^{k+1} - \frac{\Delta z_{p-1} - \Delta z_{p+1}}{\Delta z_{p-1} \Delta z_{p+1}} C_{i,p}^{k+1} - \\ & - \frac{\Delta z_{p+1}}{\Delta z_{p-1}(\Delta z_{p+1} + \Delta z_{p-1})} c_{i,p-1}^{k+1} \end{aligned} \quad (24)$$

$$\frac{d^2 c_i}{dz^2} = \frac{2}{\Delta z_{p+1} + \Delta z_{p-1}} \left[ \frac{c_{i,p+1}^{k+1} - c_{i,p}^{k+1}}{\Delta z_{p+1}} - \frac{c_{i,p}^{k+1} - c_{i,p-1}^{k+1}}{\Delta z_{p-1}} \right] \quad (25)$$

La ecuación (19) se puede representar en diferencias finitas como:

$$[\alpha_{i,p}; \beta_{i,p} - \frac{1}{\Delta t}; \gamma_{i,p}] \begin{bmatrix} \Delta c_{i,p-1} \\ \Delta c_{i,p} \\ \Delta c_{i,p+1} \end{bmatrix} + \frac{\partial R_i}{\partial c_j} \Big|_p^k \begin{bmatrix} \Delta c_{1,p} \\ \Delta c_{2,p} \\ \vdots \\ \Delta c_{Np} \end{bmatrix} = -F_{i,p}^k \quad (26)$$

con

$$\alpha_{i,p} = \frac{1}{\Delta z_{p-1}(\Delta z_{p+1} + \Delta z_{p-1})} [2 - \Delta z_{p+1} A_{i,p}] \quad (27)$$

$$\beta_{i,p} = - \left[ \frac{2}{\Delta z_{p+1} + \Delta z_{p-1}} \left( \frac{1}{\Delta z_{p+1}} + \frac{1}{\Delta z_{p-1}} \right) + \frac{(\Delta z_{p-1} - \Delta z_{p+1}) A_{i,p}}{\Delta z_{p+1} \Delta z_{p-1}} - B_{i,p} \right] \quad (28)$$

$$\gamma_{i,p} = \frac{1}{\Delta z_{p+1}(\Delta z_{p+1} + \Delta z_{p-1})} [2 + \Delta z_{p-1} A_{i,p}] \quad (29)$$

$$\Delta c_{j,p} = c_{j,p}^{k+1} - c_{j,p}^k \quad (30)$$

El término  $F_{j,p}^k$  contiene todos los términos restantes que son conocidos en el paso  $k$  y las funciones  $\alpha_{i,p}$ ,  $\beta_{i,p}$ ,  $\gamma_{i,p}$  y  $\frac{\partial R_i}{\partial C_j}$  también son evaluadas en el paso anterior. Si  $m$  es el número de nodos en la malla espacial, entonces la ecuación (26) representa un sistema de  $N * m$  ecuaciones algebraicas simultáneas para los incrementos  $\Delta c_{i,p}$  durante el intervalo  $\Delta t$ . El sistema se puede reescribir usando notación matricial (Wendt, et al., 1979):

$$\mathbf{A} \Delta \mathbf{C} = - \mathbf{F} \quad (31)$$

donde  $\mathbf{A}$  es una matriz tridiagonal de bloques, i.e. una matriz de  $m * m$  en la cual cada elemento es a su vez una matriz de  $N * N$ . Los bloques diagonales son matrices llenas y diagonalmente dominantes (para valores suficientemente pequeños de  $\Delta t$ ) mientras los bloques no diagonales son matrices diagonales.

Lógica clásica de inversión de matrices, como la empleada por (Wendt, et al., 1979) no dio resultados satisfactorios en el presente problema debido a la restricción del tamaño de números grandes que se pueden representar en el computador (Overflow). Sin embargo se puede hacer uso del hecho de que la matriz  $\mathbf{A}$  es una matriz de banda y el problema se resolvió mediante el uso de una descomposición LU. Además de dar excelentes resultados, esta técnica también permitió reducir la cantidad de memoria necesaria para la solución del problema ya que sólo es necesario almacenar la banda de tamaño  $2N * (m * N)$ .

Con una malla regularmente espaciada un gran número de nodos fue necesario cuando la zona de reacción era pequeña y los gradientes de las funciones dependientes eran extremadamente altos. Por ejemplo, con una llama de CO, la cual envuelve 8 especies químicas y 7 reacciones entre ellas, con  $\varepsilon = 10 \text{ sec}(-1)$ , 101 nodos fueron

empleados para obtener una solución satisfactoria. Se obtuvo una solución de este problema con 35 nodos, pero los máximos calculados para las funciones dependientes eran erróneos.

El hecho de que sistemas que envuelven 35 especies o más son la norma en este tipo de problemas, hacía claro que una discretización que permitiera menos nodos era esencial. La primera solución que se intentó usar fue una malla que colapsa cerca de los gradientes altos.

La malla usada se puede observar en la Figura 2. En cada paso de la solución la malla se ajustaba en forma automática de la siguiente manera. Primero se ubicaba el lugar en el cual se producía el máximo del perfil de temperatura y la malla se creaba a un lado de este punto con un factor de expansión conocido. El factor de expansión usado al otro lado se obtenía de las restricciones que a cada lado de la malla el número de nodos debía ser igual y además, que los valores de los  $\Delta z$  centrales fueran idénticos. Esta malla permitió resolver la llama de CO con sólo 35 nodos, provisto que el valor de  $\epsilon$  fuera menor que  $7 \text{ sec}(-1)$ .

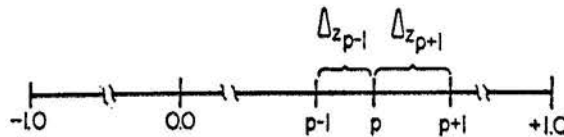


Figura 2. Malla variable usada en la solución standard

En estos casos una malla regular de 35 nodos era demasiado tosca en el centro para permitir convergencia. Sin embargo para valores de  $\epsilon$  mayores de  $7 \text{ sec}(-1)$  la malla expandida generaba problemas debido a difusión de errores numéricos no simétrica que originaba oscilaciones en los bordes de la región y hacía imposible el satisfacer las condiciones de borde.

La distancia,  $l$ , entre los quemadores o el dominio en el que se resolvía el problema era automáticamente ajustado de tal manera de que no hubiera flujo neto de ninguna especie química en la dirección de los quemadores. La distancia  $l$  era aumentada en un 50% si se notaba un flujo neto de alguna especie hacia un quemador. Por otro lado, si el perfil de temperatura indicaba que una mayor resolución del problema era posible sin inducir flujos hacia quemadores,  $l$  era disminuído a  $2/3$ . Cada vez que la malla era ajustada, los perfiles de las funciones dependientes eran obtenidos de los perfiles anteriores mediante interpolación lineal. Esta práctica demoraba el proceso de convergencia, pero era necesaria para obtener una solución razonable.

La estimación inicial de los perfiles de las especies mayores a  $t = 0$  se puede obtener de una llama clásica de Burke y Shuman con una zona de llama infinitesimal. En el centro de la llama es conveniente introducir concentraciones arbitrarias de radicales libres para permitir el inicio de la combustión. Es posible ahorrar mucho tiempo de computación si resultados convergidos o no convergidos de un problema similar se guardan en disco y se usan como perfil inicial para el siguiente problema. El valor ajustable de  $\Delta t$  era controlado exclusivamente por el perfil de temperatura. El mayor cambio de temperatura permitido de un paso al siguiente era de un 1%. Convergencia al

estado estacionario se determinaba cuando no se observaban cambios en ninguno de los perfiles de concentración o temperatura y el valor de  $\Delta t$  se había hecho grande, mayor de 1 sec. Esto típicamente sucedía después de entre 200 y 400 iteraciones siempre que se hubiera partido de una estimación inicial razonable para los perfiles. El valor inicial de  $\Delta t$  típicamente era de  $1.E - 6$  sec.

### DISCRETIZACION EN DIFERENCIAS CENTRALES MODIFICADA

Al resolver el modelo correspondiente a una llama laminar de difusión de jets opuestos con un alto valor de la velocidad de deformación lateral se observaron oscilaciones en el perfil de temperatura, el perfil de velocidad y de los perfiles de concentración de las especies químicas. Estas oscilaciones ocurrían cerca de los bordes del dominio y no permitían obtener convergencia ya que las condiciones de borde no se podían satisfacer. Las inestabilidades recién mencionadas eran originadas por la malla de intervalo irregular y la consecuente difusión de errores numéricos hacia los bordes. Sin embargo, este tipo de malla era imprescindible para poder tratar los altos gradientes de los perfiles de las funciones dependientes cerca de la zona en que ocurría la llama. Una solución era usar una malla regular de alrededor de 100 nodos lo que permitía obtener convergencia, pero con este gran número de nodos sólo era posible resolver problemas relativamente simples desde el punto de vista químico. Esto impedía el estudio de llamas de interés, que envuelven hidrocarbones más especies conteniendo nitrógeno. La química envuelta en este tipo de llama contiene típicamente sobre 30 especies químicas.

El dilema presentado en el párrafo anterior se resolvió desarrollando un esquema de diferencias finitas centrales en que la primera y segunda derivadas (en mallas regulares) están dadas por:

$$\frac{dc_i}{dz} = \frac{W_{1,p+1} c_{i,p+1} - W_{1,p-1} c_{i,p-1}}{2h} \quad (32)$$

y

$$\frac{d^2 c_i}{dz^2} = \frac{W_{2,p+1} c_{i,p+1} - 2C_{i,p} + W_{2,p-1} c_{i,p-1}}{h^2} \quad (33)$$

con las funciones de peso  $W_{1,p+1}$ ,  $W_{1,p-1}$ ,  $W_{2,p+1}$  y  $W_{2,p-1}$  calculadas en la forma descrita en el apéndice. La médula de este esquema consiste en aproximar las ecuaciones a resolver dentro de un intervalo de la malla por ecuaciones diferenciales lineales de coeficientes constantes. Debido a esto la discretización es exacta para ecuaciones lineales de coeficientes constantes y funciones forzantes constantes mientras la discretización standard no lo es. Ya que las ecuaciones que representan la llama de difusión de jets opuestos ciertamente no es lineal, la discretización no es exacta, pero es superior ya que el comportamiento de las soluciones se asemeja más a una suma de exponenciales que a funciones cuadráticas en  $z$ .

La implementación de este esquema de discretización modificada permitió resolver la llama de jets opuestos con cinética de  $CO$  y con un valor de  $\varepsilon$  de  $10 \text{ sec}^{-1}$  con 35

nodos. Esto no había sido posible con la discretización standard con malla regular o malla irregular. La nueva discretización permitió disminuir el mínimo número de nodos para la solución de este problema de 101 a 35 permitiendo el desarrollo de un código general para este tipo de llamas.

Este programa general se empleó para resolver una llama de  $CH_4/O_2/N_2$  que contiene 28 especies químicas y 86 reacciones entre ellas. Limitaciones de memoria restringieron el número de nodos a 35 en este caso. La solución no fue posible de obtener con discretización standard.

### RESULTADOS

Un objetivo del presente modelo fue el determinar bajo cuáles condiciones era posible obtener una llama de difusión de jets opuestos en el laboratorio con una zona de reacción suficientemente ancha como para permitir tomar muestras de los gases con una resolución espacial suficiente para obtener perfiles de especies químicas mayores y sus primeras y segundas derivadas. Las condiciones estudiadas corresponden a velocidades reducidas en la boca de los quemadores debido a limitaciones de flujo de gases en el laboratorio. El problema enfrentado aquí es idéntico al problema encontrado en llamas premezcladas, en las cuales la zona de reacción es también relativamente pequeña.

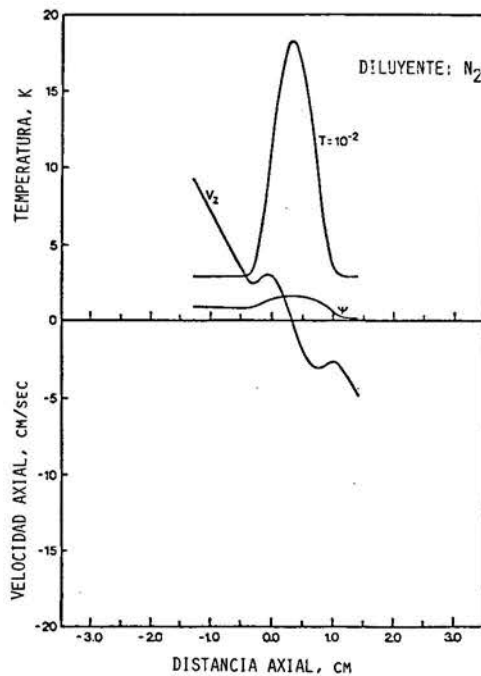


Figura 3. Perfiles de velocidad, temperatura y de la llama con  $N_2$  como diluyente y  $\epsilon = 3,62 \text{ sec}^{-1}$ .

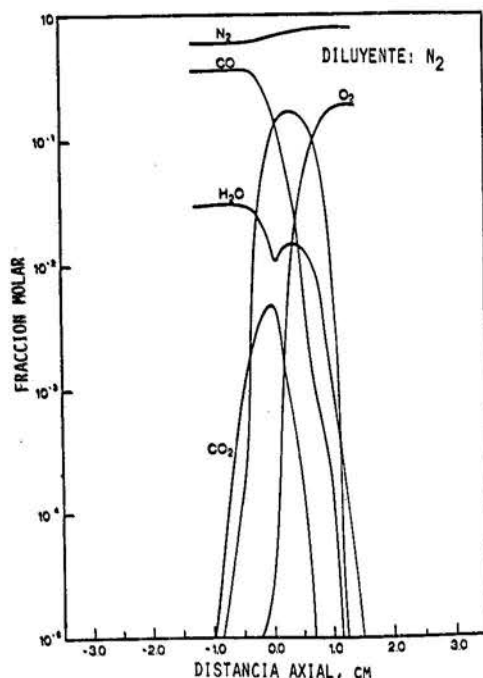


Figura 4. Perfiles de las especies químicas mayores

Figuras 3 a 5 muestran los perfiles de temperatura, velocidad, la función similar  $\Psi$  y concentración de especies mayores e intermedias de una llama de jets opuestos con  $CO/H_2O/N_2$  como combustible y  $O_2/N_2$  como comburente. El valor del parámetro  $\epsilon$  era de  $3.62 \text{ sec}^{-1}$ . Nótese como el cambio de densidad de los gases influencia el perfil de velocidad axial y la ubicación del plano de estancamiento (Figura 3). El grosor predicho de la llama es de aproximadamente 1 cm., lo cual es apenas suficiente para obtener muestras de gases en forma detallada a lo largo del eje de la llama. La Figura 5 muestra que la zona en que existen radicales libres es del mismo tamaño o aún menor.

Debido a los resultados presentados en el párrafo anterior se investigó la posibilidad de aumentar el grosor de la llama. Un caso que se investigó es la opción de establecer la llama a presión subatmosférica. La Figura 6 muestra el efecto que el decrecer la presión tiene en el grosor de la zona de reacción para el mismo valor del parámetro  $\epsilon$  de  $3.62 \text{ sec}^{-1}$ . Es aparente que el grosor de la llama no aumenta en forma apreciable hasta que la presión es menor de 0.2 Atm. Desgraciadamente a estas presiones el obtener una muestra del gas y luego analizar dicha muestra es muy difícil, debido a esto se intentó un camino diferente para ampliar la zona de reacción de la llama.

Dado que He tiene un coeficiente de difusión muy alto, se pensó que usándolo como diluyente en lugar de  $N_2$  se iba a lograr una llama con zona de reacción más amplia. Las Figuras 7 a 9 muestran las predicciones para una llama de difusión de  $CO/H_2/O_2$  diluida en He. En la figura 7 se puede observar que la zona de reacción es de más de 2.5 cm. Las figuras 8 y 9 muestran que también los radicales libres varían en una zona suficientemente ancha como para permitir tomar muestras en varios puntos incluso a presión atmosférica.

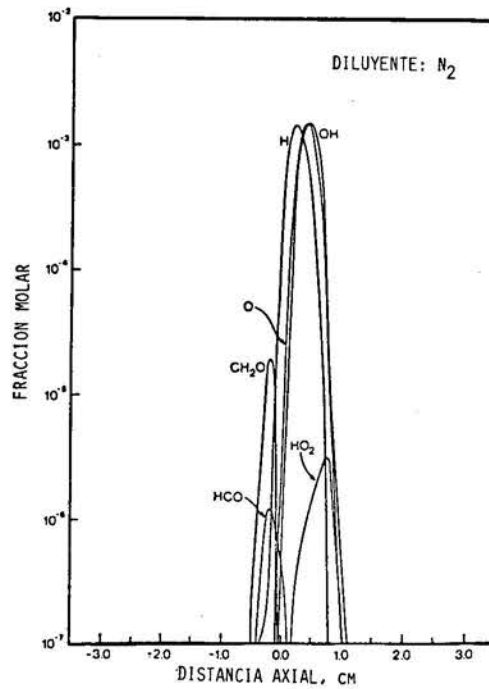


Figura 5. Perfiles de los radicales libres

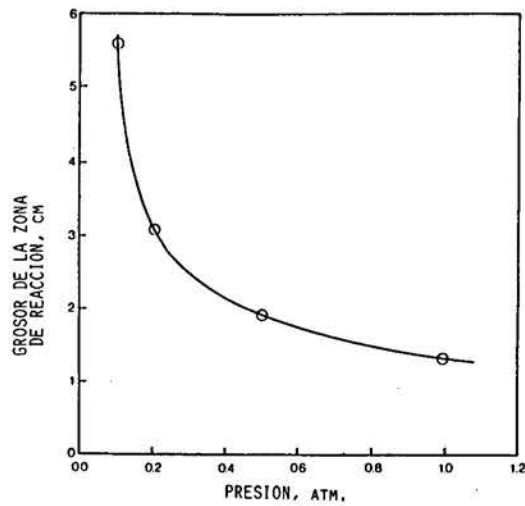


Figura 6. Influencia de la presión en el espesor de la zona de reacción

### CONCLUSIONES

Es posible modelar la llama laminar de jets opuestos en detalle y se puede usar dicha llama para la investigación de mecanismos cinéticos en un gran rango de condiciones. Las ecuaciones rígidas resultantes pueden ser resueltas numéricamente en forma implícita y totalmente acoplada usando una aproximación modificada en el

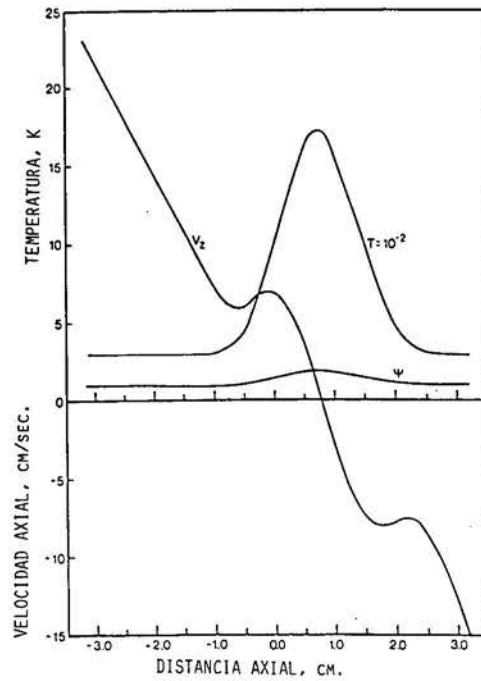


Figura 7. Perfiles de velocidad, temperatura y  $\Psi$  de la llama con *He* como diluyente y  $\epsilon = 3.62 \text{ sec}(-1)$ .

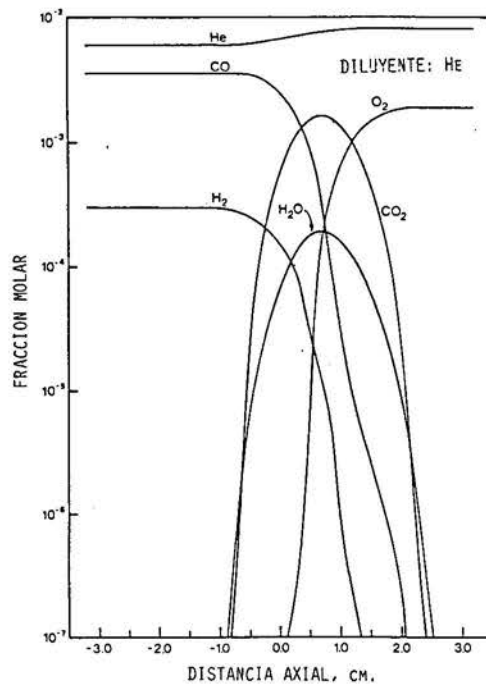


Figura 8. Perfiles de las especies químicas mayores

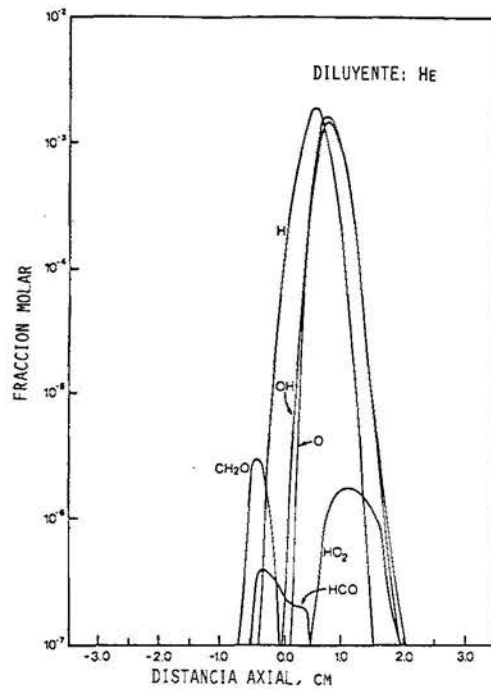


Figura 9. Perfiles de los radicales libres

dominio espacial. Esta discretización está basada en aproximar la forma de la ecuación diferencial en un intervalo de la malla más bien que aproximar la forma de la solución como se hace en diferencias centrales tradicionales.

### NOMENCLATURA

<b>A</b>	Matriz tridiagonal de bloques
<i>c</i>	Densidad molar
$C_p$	Capacidad calórica
<i>k</i>	Conductividad térmica
<i>n</i>	Número de reacciones químicas
<i>nr</i>	Número de reacciones químicas
<i>NS</i>	Número de especies químicas en el esquema cinético
$r_k$	Velocidad de reacción de la reacción <i>j</i>
$R_A$	Velocidad de formación de la especie <i>A</i>
$x_A$	Fracción molar de la especie <i>A</i>

### AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen al Sr. Steven Lanier por su sugerencia de tratar de implementar el esquema de discretización presentado en el presente artículo. También

queremos agradecer discusiones de gran valor con los Señores J. C. Heinrich y C.J. Kau. Este trabajo se realizó bajo el auspicio del U. S. Enviromental Agency bajo contrato R806685-01 a la Universidad de Arizona.

### APENDICE

Si se asume que la función dependiente buscada es la solución de una ecuación diferencial ordinaria de segundo orden de coeficientes constantes

$$a \frac{d^2 C}{dz^2} + b \frac{dC}{dz} + \varepsilon = f \quad (A.1)$$

su forma será

$$C = A_1 e^{\alpha_1 z} + A_2 e^{\alpha_2 z} + f \quad (A.2)$$

donde  $\alpha_1$  y  $\alpha_2$  pueden ser reales y distintos, reales e iguales o complejos conjugados.

De la ecuación (A.2)

$$C_{p+1} = A_1 e^{\alpha_1 z_p} e^{\alpha_1 h} + A_2 e^{\alpha_2 z_p} e^{\alpha_2 h} + f \quad (A.3)$$

$$C_{p-1} = A_1 e^{\alpha_1 z_p} e^{-\alpha_1 h} + A_2 e^{\alpha_2 z_p} e^{-\alpha_2 h} + f \quad (A.4)$$

Expandiendo  $C$  en serie de Taylor en ambas direcciones, evaluando todas las derivadas y no truncando se obtienen los siguientes resultados:

$$\frac{dC}{dz} = \frac{C_{p+1} - C_{p-1}}{2h} - \frac{1}{h} A_1 e^{\alpha_1 z_p} [\sinh(\alpha_1 h) - \alpha_1 h] - \frac{1}{h} A_2 e^{\alpha_2 z_p} [\sinh(\alpha_2 h) - \alpha_2 h] \quad (A.5)$$

$$\begin{aligned} \frac{d^2 C}{dz^2} = & \frac{C_{p+1} - 2C_p + C_{p-1}}{h^2} - \frac{2}{h^2} A_1 e^{\alpha_1 z_p} \left[ \cosh(\alpha_1 h) - 1 - \frac{\alpha_1^2 h^2}{2} \right] - \\ & - \frac{2}{h^2} A_2 e^{\alpha_2 z_p} \left[ \cosh(\alpha_2 h) - 1 - \frac{\alpha_2^2 h^2}{2} \right] \end{aligned} \quad (A.6)$$

Introduciendo (A.3) y (A.4) se obtiene

$$A_1 e^{\alpha_1 z_p} = \frac{e^{\alpha_2 h} C_{p+1} - e^{\alpha_2 h} C_{p-1}}{2 \sinh[(\alpha_1 - \alpha_2)h]} \quad (A.7)$$

$$A_2 e^{\alpha_2 z_p} = \frac{e^{-\alpha_1 h} C_{p+1} - e^{-\alpha_1 h} C_{p-1}}{2 \sinh[(\alpha_2 - \alpha_1)h]} \quad (A.8)$$

Si las expresiones (A.7) y (A.8) se introducen en los términos del lado derecho de las ecuaciones (A.5) y (A.6) entonces se pueden obtener expresiones para las funciones de peso usadas en (32) y (33). Estas funciones de peso dependen del valor de  $\alpha_1$  y  $\alpha_2$ .

a) Raíces reales y distintas ( $\alpha_1, \alpha_2$ )

$$W_{1,p+1} = 1 - \frac{e^{-\alpha_2 h} [\sinh(\alpha_1 h) - \alpha_1 h]}{\sinh [(\alpha_1 - \alpha_2)h]} - \frac{e^{-\alpha_1 h} [\sinh(\alpha_2 h) - \alpha_2 h]}{\sinh [(\alpha_2 - \alpha_1)h]} \quad (A.9)$$

$$W_{1,p-1} = 1 - \frac{e^{-\alpha_2 h} [\sinh(\alpha_1 h) - \alpha_1 h]}{\sinh [(\alpha_1 - \alpha_2)h]} - \frac{e^{\alpha_1 h} [\sinh(\alpha_2 h) - \alpha_2 h]}{\sinh [(\alpha_2 - \alpha_1)h]} \quad (A.10)$$

$$W_{2,p+1} = 1 - \frac{e^{-\alpha_2 h} [\cosh(\alpha_1 h) - 1 - \frac{\alpha_1^2 h^2}{2}]}{\sinh [(\alpha_1 - \alpha_2)h]} - \frac{e^{-\alpha_1 h} [\cosh(\alpha_2 h) - 1 - \frac{\alpha_2^2 h^2}{2}]}{\sinh [(\alpha_2 - \alpha_1)h]} \quad (A.11)$$

$$W_{2,p-1} = 1 + \frac{e^{\alpha_2 h} [\cosh(\alpha_1 h) - 1 - \frac{\alpha_1^2 h^2}{2}]}{\sinh [(\alpha_1 - \alpha_2)h]} + \frac{e^{\alpha_1 h} [\cosh(\alpha_2 h) - 1 - \frac{\alpha_2^2 h^2}{2}]}{\sinh [(\alpha_2 - \alpha_1)h]} \quad (A.12)$$

b) Raíces complejas conjugadas ( $\alpha_R + i\alpha_I, \alpha_R - i\alpha_I$ )

$$W_{1,p+1} = 1 - \frac{2e^{-\alpha_R h} (M_1 + M_2)}{\sen(2\alpha_I h)} \quad (A.15)$$

$$W_{1,p-1} = 1 - \frac{2e^{\alpha_R h} (M_1 - M_2)}{\sen(2\alpha_I h)} \quad (A.16)$$

con

$$M_1 = \cos(\alpha_I h) [\alpha_I h - \cosh(\alpha_R h) \sen(\alpha_I h)] \quad (A.17)$$

$$M_2 = \sen(\alpha_I h) [\alpha_R h - \sinh(\alpha_R h) \cos(\alpha_I h)] \quad (A.18)$$

mientras

$$W_{2,p+1} = 1 + \frac{2e^{-\alpha_R h} (N_1 - N_2)}{\sen(2\alpha_I h)} \quad (A.19)$$

$$W_{2,p-1} = 1 - \frac{2e^{\alpha_R h} (N_1 + N_2)}{\sen(2\alpha_I h)} \quad (A.20)$$

$$N_1 = \cos(\alpha_I h) [\alpha_R \alpha_I h^2 - \sinh(\alpha_R h) \sen(\alpha_I h)] \quad (A.21)$$

$$N_2 = \text{sen}(\alpha_I h) [\cosh(\alpha_R h) \cos(\alpha_I h) - 2 - \alpha_R^2 h^2 + \alpha_I^2 h^2] \quad (\text{A.22})$$

c) Raíces reales iguales ( $\alpha$ )

La solución ahora es

$$C = A_1 e^{\alpha z} + A_2 e^{\alpha z} z + f \quad (\text{A.23})$$

y las funciones de peso son:

$$W_{1,p+1} = 1 - e^{-\alpha h} [\text{senh}(\alpha h) - \cosh(\alpha h) - \alpha h - 1] \quad (\text{A.24})$$

$$W_{1,p-1} = 1 + e^{\alpha h} [\text{senh}(\alpha h) - \cosh(\alpha h) - \alpha h + 1] \quad (\text{A.25})$$

$$W_{2,p+1} = 1 - e^{-\alpha h} \left[ \cosh(\alpha h) + \text{senh}(\alpha h) - \frac{\alpha^2 h^2}{2} - \alpha h - 1 \right] \quad (\text{A.26})$$

$$W_{2,p-1} = 1 - e^{\alpha h} \left[ \cosh(\alpha h) - \text{senh}(\alpha h) - \frac{\alpha^2 h^2}{2} + \alpha h - 1 \right] \quad (\text{A.27})$$

Se puede ver que la formulación de diferencias finitas es exacta, sin error de truncación, si la ecuación diferencial se comporta localmente como una ecuación de coeficientes constantes. Las raíces  $\alpha_1$  y  $\alpha_2$  al igual que la integral particular se calculan a partir de la ecuación diferencial en cada uno de los nodos de la malla computacional. Debido a que las ecuaciones de la llama de jets opuestos pueden caer en esta categoría (véase ecuaciones A.1 y 19) es posible que la nueva formulación permita reducir drásticamente el número de nodos de la malla computacional.

### COMPARACION SIMPLE ENTRE DISCRETIZACION STANDARD Y MODIFICADA

En la solución de ecuaciones ordinarias de coeficientes constantes, usando 11 nodos, usando la discretización modificada fue exacta dentro de 7 cifras significativas, mientras sólo 2 a 4 cifras exactas se lograron con discretización standard. El computador usado tiene 7 cifras significativas en precisión simple, que fue la modalidad empleada en esta prueba.

Además, se resolvió la ecuación

$$0.5 \frac{d^2 C}{dz^2} + 2.0 z = -10^6 e^{-\frac{z^2}{0.08}}$$

con condiciones de borde

$$z = -1.5 \quad C = 1.0$$

$$z = +1.5 \quad C = 0.0$$

La discretización modificada daba resultados estables con 5 nodos, mientras la discretización standard era inestable con menos de 35 nodos, presentaba oscilaciones en los bordes y no se podía representar las condiciones de borde. Sin embargo, a pesar de ser estable en los bordes la discretización standard era inferior prediciendo el valor máximo de la función  $C$ . Sin lugar a duda esto era debido a la asunción de una función forzante constante en un intervalo computacional. Trabajo futuro debería estar dirigido hacia la posibilidad de representar la función forzante mediante una función exponencial en cada intervalo computacional.

### REFERENCIAS

1. F. E. Fendell, "Ignition and Extinction in Combustion of Initially Unmixed Reactants", *J. Fluid Mech.*, Vol. **21**, pp. 281, (1965).
2. M. A. Field, D. W. Gill, B. B. Morgan y P. G. W. Hawksley, *Combustion of Pulverized Coal*, BCURA Leatherhead, Cherey and Sons, Ltd., Bamburg, England, (1967).
3. W. A. Hahn, "Pollutant Formation in Flat Sheet in the Stagnation-Point Boundary Layer of a Condensed Fuel", *Acta Astronáutica*, Vol. **1**, pp. 711, (1974).
4. L. Krishnamurthy y F. A. Williams, "A Flat Sheet in the Stagnation-Point Boundary Layer of a Condensed Fuel", *Acta Astronáutica*, Vol. **1**, pp. 711, (1974).
5. J. O. L. Wendt, C. H. Martinez, D. G. Willey y T. L. Corley, "Numerical Solution of Stiff Boundary Valued Problems in Kinetics and Diffusion", *Chem. Engr. Sci.*, Vol. **34**, pp. 527, (1979).