

УДК 533.15:536.25

СМЕНА РЕЖИМОВ ДИФфуЗИЯ–КОНВЕКЦИЯ В ТРОЙНЫХ СМЕСЯХ С ГАЗОМ-РАЗБАВИТЕЛЕМ

© 2020 г. В. Н. Косов^{a, b, *}, О. В. Федоренко^b, М. К. Асембаева^b, В. Мукамеденкызы^b

^aКазахский национальный педагогический университет им. Абая, Алматы, Республика Казахстан

^bНаучно-исследовательский институт экспериментальной и теоретической физики
при Казахском национальном университете им. аль-Фараби, Алматы, Республика Казахстан

*e-mail: kosov_vlad_nik@list.ru

Поступила в редакцию 07.12.2018 г.

После доработки 06.09.2019 г.

Принята к публикации 16.09.2019 г.

Экспериментально изучены особенности диффузии гелия и оксида азота, в равной степени разбавленных пропаном, при различных давлениях и содержании газа-разбавителя в смеси. Обнаружено, что при определенном давлении в системе возникают конвективные течения, усиливающие парциальный массоперенос, что не типично для диффузии. Возрастание давления интенсифицирует смешение компонентов смеси. Увеличение содержания газа-разбавителя в смеси приводит к стабилизации конвективных режимов. Решение уравнений диффузии показывает, что в системах с балластным газом реализуются условия для нелинейного распределения концентраций компонентов смеси по длине канала, которые могут приводить к возникновению экстремума плотности смеси (т.е. инверсии градиента плотности смеси), вызывающего возникновение конвективных течений. Численным образом исследована устойчивость механического равновесия тройной смеси в вертикальном цилиндрическом канале при действии силы тяжести и заданных градиентах концентрации компонентов. Определена граница кинетического перехода диффузия–конвекция. В координатах числа Рэлея и давления проведено сравнение опытных и численных результатов.

Ключевые слова: многокомпонентный массоперенос, диффузия, конвекция, газ-разбавитель, давление

DOI: 10.31857/S0040357120020086

ВВЕДЕНИЕ

В газовых смесях наличие нескольких механизмов переноса тепла и массы приводит к возникновению особенностей, влияющих на различные режимы многокомпонентного массопереноса. Примерами могут служить эксперименты по изучению диффузии бинарной смеси паров растворов в инертный газ [1], изотермического смешения газов при различных давлениях и составах [2, 3], которые показали, что в системах могут возникать конвективные течения, приводящие к значительному росту парциальных потоков компонентов.

Опыты по изучению диффузии в тройных газовых смесях [3, 4] показали, что для систем, у которых коэффициенты взаимной диффузии (КВД) компонентов существенно отличаются друг от друга, возникшие конвективные течения существенным образом интенсифицируют суммарный массоперенос. Определенные значения давления и концентрации компонента с наибольшим молекулярным весом в смеси способствуют переходу системы из диффузионной об-

ласти в конвективную. Самопроизвольное возникновение конвекции в [1–4] связывалось с тем, что молекулярная диффузия за счет неравенства в КВД компонентов приводит к формированию по вертикальной оси характерных областей с различными плотностями. При определенных условиях такое расположение в поле силы тяжести может быть неустойчивым с последующим возникновением конвекции.

Появление конвекции можно предсказывать в рамках традиционных представлений тепловых задач Рэлея [5, 6]. Исследования, проведенные в [7], показали, что в бинарных смесях нереагирующих компонентов за счет неоднородности температуры и состава возможно проявление конвективной неустойчивости с последующим нарушением молекулярного переноса. Дальнейшее изучение термоконцентрационной конвекции в бинарных системах в геометрических каналах различной формы показало ее существенное влияние на ожидаемое при неизотермической диффузии смешение [8–10].

Вместе с тем необходимо отметить, что пространство подходов [8–10] на случай смешения

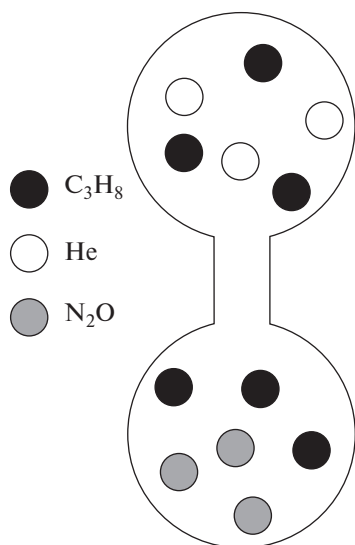


Рис. 1. Схема экспериментальной диффузионной ячейки двухколбового метода.

ния изотермических тройных газовых смесей ограничено особенностями регистрации смены режимов диффузия–конвекция, отмеченными в [1–3]. Экспериментально, кинетические переходы реализуются не в традиционных условиях, соответствующих тепловым задачам Рэлея [5, 6] и Рэлея–Тейлора [11], а возникают при начальной гидростатически устойчивой стратификации, которая предполагает убывание плотности смеси с высотой. В этой ситуации необходимо оценить роль перекрестных эффектов [12, 13], которые в силу специфики рассматриваемых в [9, 10] задач, не были приняты во внимание.

В настоящей работе экспериментальным образом при различных давлениях исследуется диффузия бинарной смеси в третьем газе–растворителе. Определение границы смены режимов диффузия–конвекция проводится численным образом в рамках анализа на устойчивость для соответствующей опыту геометрии.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ

Смена кинетических режимов изучалась при смешении гелия и оксида азота, в равной степени разбавленных пропаном. В отличие от опытов [1–4], в рассматриваемом случае градиент концентрации одного из компонентов в начальный момент времени практически равен нулю и это позволяет выявить специфические особенности переноса при взаимной диффузии основных смешивающихся компонентов He и N₂O. Изучение смешения при разных составах C₃H₈ также позволяет оценить влияние газа–разбавителя на суммарный массоперенос компонентов смеси.

При дальнейших рассуждениях условимся, что в смеси He (1) + C₃H₈ (2)–N₂O (3) + C₃H₈ (2) цифры перед химическим элементом соответствуют начальной концентрации компонента, а числа в скобках после химического элемента определяют их нумерацию. На момент начала смешения изучаемая смесь является гидростатически устойчивой, а градиент концентрации газа–разбавителя (пропана) практически равен нулю. В данной системе молекулярные веса оксида азота и пропана одинаковы, а КВД при $T = 298.0$ К и $p = 0.1$ МПа составляют: $D_{\text{He-C}_3\text{H}_8} = 0.409 \times 10^{-4}$ м²/с, $D_{\text{He-N}_2\text{O}} = 0.608 \times 10^{-4}$ м²/с, $D_{\text{N}_2\text{O-C}_3\text{H}_8} = 0.086 \times 10^{-4}$ м²/с [14]. Такое же соотношение между КВД сохраняется и при более высоких давлениях.

Парциальный перенос компонентов изучался на опытном устройстве, реализующем метод двух колб, соединенных вертикальным каналом [15]. Опыты проводились в диапазоне давлений от 0.2 до 1.7 МПа при температуре 298.0 К. Схема экспериментального стенда и процедура работы на нем была детально описана в [3, 4], поэтому на рис. 1 приведено только схематическое изображение диффузионной ячейки, которое проясняет некоторые специфические особенности проведения опыта. Геометрические характеристики аппарата следующие: $V_u = V_l = (55.5 \pm 0.5) \times 10^{-6}$ м³ – объемы верхней и нижней колб, $r = (2.00 \pm 0.05) \times 10^{-3}$ м и $L = (64.00 \pm 0.05) \times 10^{-3}$ м – радиус и длина соединительного капилляра. Продолжительность опыта составляла 2–4 ч, что позволяло получить информацию о характерных особенностях массопереноса.

Методика проведения эксперимента была апробирована в [2, 3] и предполагала следующие процедуры. Верхняя V_u и нижняя V_l колбы аппарата заполнялись исследуемыми смесями газов до давления опыта. Затем с помощью специального устройства соединяющий колбы канал открывался и одновременно фиксировалось время начала процесса смешения. По окончании опыта канал перекрывался и регистрировалось время окончания смешения. Анализ газовых смесей из каждой колбы осуществлялся на хроматографе с погрешностью в измерении концентрации до $\pm 0.5\%$. Во всех опытах в верхней колбе аппарата располагалась бинарная смесь гелия и пропана, а в нижней – пропана и оксида азота.

На рис. 2 и 3 приведены концентрации основных продиффундировавших компонентов при различных давлениях для смесей: 0.293He (1) + 0.707C₃H₈ (2) – 0.697C₃H₈ (2) + 0.303N₂O (3) и 0.570He (1) + 0.430C₃H₈ (2) – 0.403C₃H₈ (2) + 0.597N₂O (3). Обратим внимание на следующие особенности парциального переноса. Для двух основных диффундирующих компонентов явно про-

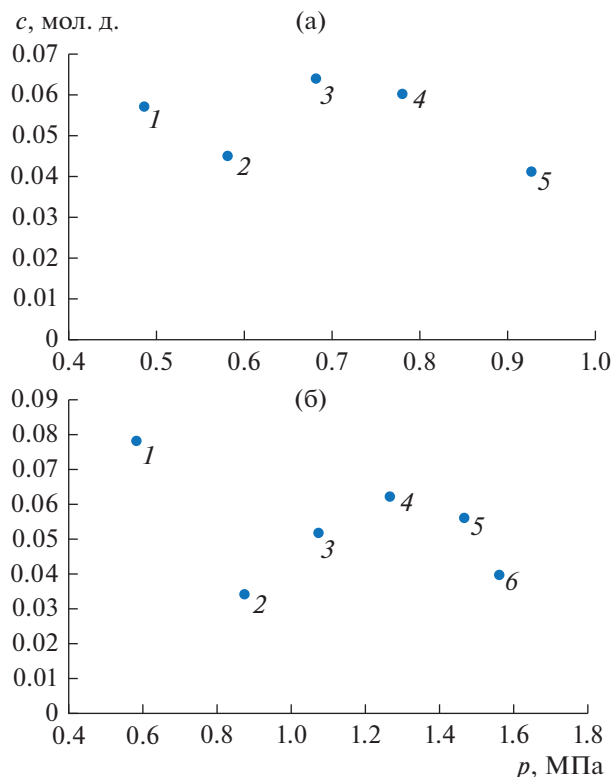


Рис. 2. Концентрации гелия, перешедшие в нижнюю колбу аппарата при различных давлениях: (а) — $0.293\text{He} + 0.707\text{C}_3\text{H}_8 - 0.697\text{C}_3\text{H}_8 + 0.303\text{N}_2\text{O}$, точки: 1 — 0.487 МПа; 2 — 0.582; 3 — 0.683; 4 — 0.780; 5 — 0.926 МПа; (б) — $0.570\text{He} + 0.430\text{C}_3\text{H}_8 - 0.403\text{C}_3\text{H}_8 + 0.597\text{N}_2\text{O}$, точки: 1 — 0.583 МПа; 2 — 0.876; 3 — 1.074; 4 — 1.27; 5 — 1.467; 6 — 1.565 МПа.

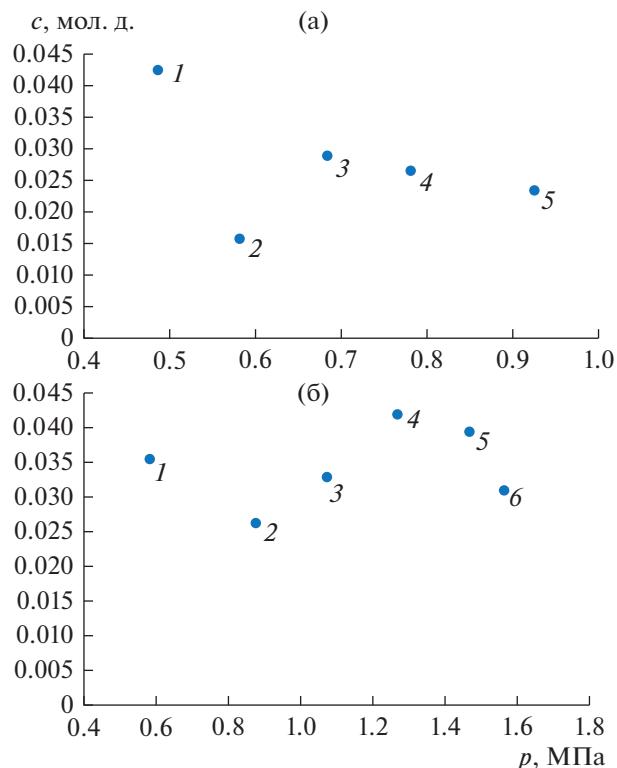


Рис. 3. Концентрации закиси азота, перешедшие в верхнюю колбу аппарата в зависимости от давления: (а) — $0.293\text{He} + 0.707\text{C}_3\text{H}_8 - 0.697\text{C}_3\text{H}_8 + 0.303\text{N}_2\text{O}$, точки: 1 — 0.487 МПа; 2 — 0.582; 3 — 0.683; 4 — 0.780; 5 — 0.926 МПа; (б) — $0.570\text{He} + 0.430\text{C}_3\text{H}_8 - 0.403\text{C}_3\text{H}_8 + 0.597\text{N}_2\text{O}$, точки: 1 — 0.583 МПа; 2 — 0.876; 3 — 1.074; 4 — 1.27; 5 — 1.467; 6 — 1.565 МПа.

слеживается нелинейная зависимость суммарного переноса от давления. Зависимости, изображенные на рис. 2 и 3, являются нетипичными для диффузии, при которой наблюдается монотонное уменьшение интенсивности смешения с ростом давления. Не соответствуют общепринятому представлению диффузии зарегистрированные максимумы по интенсивности смешения для He и N_2O , которые при уменьшении состава газа-разбавителя в тройной смеси смещаются в область более высоких значений давления.

Если говорить о поведении пропана, то перенос газа-разбавителя имеет сложный характер, что проиллюстрировано на рис. 4. Для системы 0.293He (1) + $0.707\text{C}_3\text{H}_8$ (2) — $0.697\text{C}_3\text{H}_8$ (2) + $0.303\text{N}_2\text{O}$ (3) (рис. 4а) до давления 0.68 МПа наблюдается уменьшение концентрации пропана в нижней и увеличение в верхней колбах аппарата. Такое поведение связано с проявлением реверсивной диффузии, которая, как и другие особенности многокомпонентного молекулярного переноса, была описана Туром в [16] и детализирована, например, в [17, 18]. Дальнейшее увеличение

давления $p > 0.68$ МПа приводит к изменению отмеченной тенденции у газа-разбавителя в обеих колбах ячейки, что говорит о возникновении новых механизмов переноса, не описанных в [17]. Соизмеримо с реверсивной диффузией изменение концентрации газа-разбавителя, временами ее одновременный рост или падение в колбах аппарата может быть связано с циркуляцией при конвекции, которая отчетливо регистрируется по зависимостям для He и N_2O , изображенным на рис. 2 и 3. Поведение пропана в системе 0.570He (1) + $0.430\text{C}_3\text{H}_8$ (2) — $0.403\text{C}_3\text{H}_8$ (2) + $0.597\text{N}_2\text{O}$ (3) изображено на рис. 4б. В дополнение к особенностям, описанных для предыдущего состава, отметим, что уменьшение содержания газа-разбавителя в смеси оказывает дестабилизирующее влияние. Так, уже начиная с давления 0.6 МПа и выше отмечается волнообразная зависимость интенсивности пропана от давления, связанная, по-видимому, с различным вкладом молекулярной и конвективной составляющей переноса в приграничных областях смены режимов диффузия—конвекция. Такой характер смешения нетипичен для парци-

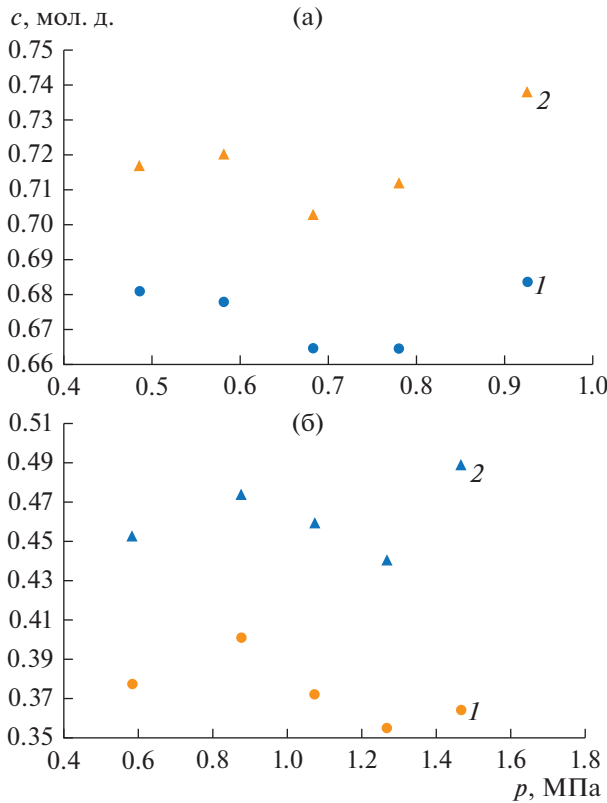


Рис. 4. Зависимость концентрации пропана от давления в системах: (а) – 0.293He + 0.707C₃H₈–0.697C₃H₈ + + 0.303N₂O; (б) – 0.570He + 0.430C₃H₈–0.403C₃H₈ + + 0.597N₂O; 1 – концентрация пропана в нижней колбе; 2 – концентрация пропана в верхней колбе.

ального переноса, связанного с присутствием особых диффузионных режимов [16–18], которые были отмечены для этой смеси, но с большим содержанием C₃H₈ в ней. Начиная с давлений 1.3–1.4 МПа и выше отмечается устойчивый рост концентрации пропана в нижней колбе, что говорит о сформировавшемся типе конвективных течений. Это может быть связано с появлением существенного градиента концентрации газа-разбавителя и возникновением встречного (по отношению к конвективному) переносу его за счет диффузии и выталкиванием некоторой части смеси газов из нижней колбы в верхнюю, тем самым поддерживая циркуляцию C₃H₈.

Таким образом, из проведенных исследований следует, что в системах с балластным газом наблюдается концентрационная конвекция, вызванная неустойчивостью механического равновесия смеси. При этом интенсивность процесса зависит от концентрации газа-разбавителя и давления в системе.

ТЕОРЕТИЧЕСКОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ ГРАНИЦЫ СМЕНЫ РЕЖИМОВ ДИФфуЗИЯ–КОНВЕКЦИЯ В СИСТЕМАХ С ГАЗОМ-РАЗБАВИТЕЛЕМ

Как отмечалось в [19], обобщенное описание диффузионного переноса, сопровождаемого конвекцией, для многокомпонентных смесей представляется сложной задачей. Однако для смешения вблизи границы смены режимов диффузия–конвекция возможны некоторые допущения, которые позволяют выполнять численные расчеты по определению характерных особенностей парциального массопереноса. Параметры, определяющие кинетический переход от диффузионного смешения к конвективному, получим в рамках теории устойчивости [7] для случая изотермической тройной газовой смеси. Для условия независимой диффузии

$\sum_{i=1}^3 \mathbf{j}_i = 0; \sum_{i=1}^3 c_i = 1$ макроскопическое движение смеси описывается системой уравнений гидродинамики, которая включает в себя уравнения Навье–Стокса, сохранения числа частиц смеси и компонентов [3, 4]:

$$\begin{aligned} \rho \left[\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \nabla \mathbf{u}) \right] &= -\nabla p + \eta \nabla^2 \mathbf{u} + \\ &+ \left(\frac{\eta}{3} + \xi \right) \nabla \operatorname{div} \mathbf{u} + \rho \mathbf{g}, \quad \frac{\partial n}{\partial t} + \operatorname{div} (n \mathbf{v}) = 0, \\ \frac{\partial c_i}{\partial t} + \mathbf{v} \nabla c_i &= -\operatorname{div} \mathbf{j}_i, \quad \mathbf{j}_1 = -\left(D_{11}^* \nabla c_1 + D_{12}^* \nabla c_2 \right), \\ \mathbf{j}_2 &= -\left(D_{21}^* \nabla c_1 + D_{22}^* \nabla c_2 \right). \end{aligned} \quad (1)$$

где $\mathbf{u} = \frac{\rho_1 \mathbf{u}_1 + \rho_2 \mathbf{u}_2 + \rho_3 \mathbf{u}_3}{\rho}$ – среднемассовая скорость, $\mathbf{v} = \frac{n_1 \mathbf{u}_1 + n_2 \mathbf{u}_2 + n_3 \mathbf{u}_3}{n}$ – среднечисловая скорость тройной смеси, ρ – плотность, p – давление, c_i – концентрация i -го компонента, \mathbf{g} – ускорение силы тяжести, η и ξ – коэффициенты сдвиговой и объемной вязкости, \mathbf{j}_i – плотность диффузионного потока i -го компонента, D_{ij}^* – практические коэффициенты диффузии, связанные с КВД соотношениями

$$\begin{aligned} D_{11}^* &= \frac{D_{13} [c_1 D_{32} + (c_2 + c_3) D_{12}]}{D}, \\ D_{12}^* &= -\frac{c_1 D_{23} (D_{12} - D_{13})}{D}, \\ D_{22}^* &= \frac{D_{23} [c_2 D_{13} + (c_1 + c_3) D_{12}]}{D}, \\ D_{21}^* &= -\frac{c_2 D_{13} (D_{12} - D_{23})}{D}, \\ D &= c_1 D_{23} + c_2 D_{13} + c_3 D_{12}. \end{aligned}$$

Уравнения (1) дополняются уравнением состояния среды

$$\rho = \rho(c_1, c_2, p), \quad T = \text{const}. \quad (2)$$

Перед дальнейшим преобразованием системы уравнений (1), (2) необходимо отметить, что результаты вычислительного эксперимента по изучению особенностей неэквимолярной диффузии в тройных парогазовых смесях, проведенных в [20] на основе решений уравнения Стефана–Максвелла, показали существование в системах немонокотных изоконцентрационных распределений. Такие распределения являются нетипичными для бинарной диффузии и показывают сложное взаимодействие молекулярного и конвективного механизмов переноса, которое может привести к аномальным режимам смешения. Поэтому при преобразовании системы уравнений (1), (2) и последующем их решении необходимо учитывать нелинейное распределение концентраций компонентов в диффузионном канале, которое позволит определить парциальные градиенты концентраций в координатах, наиболее “опасных” с точки зрения смены режимов и соответствующих максимальной величине градиента плотности смеси.

Для решения системы уравнений (1), (2) применим метод малых возмущений [7], который позволяет представить c_i и p следующим образом:

$$c_i = \langle c_i \rangle + c_i', \quad p = \langle p \rangle + p',$$

где $\langle c_i \rangle, \langle p \rangle$ – постоянные средние значения, принимаемые в качестве начала отсчета, а c_i', p' – возмущенные величины, которые не приводят к существенному отклонению плотности ρ' от среднего значения ρ_0 . Далее полагаем, что при выполнении условия $L \gg d/2$ различия между возмущениями среднечисловой \mathbf{v} и среднемассовой \mathbf{u} скоростей в уравнении Навье–Стокса будут несущественны [3, 4]. Тогда уравнения (1), (2) можно свести к системе уравнений для возмущений, обезразмеренных относительно заданных масштабов: расстояния – d , времени – d^2/ν , скорости – D_{22}^*/d , концентрации i -го компонента – $A_i d$, давления – $\rho_0 \nu D_{22}^*/d^2$. Окончательно система возмущенных безразмерных уравнений (штрихи опущены) принимает вид

$$\begin{aligned} \text{Pr}_{22} \frac{\partial c_1}{\partial t} - (\mathbf{u}\boldsymbol{\gamma}) &= \tau_{11} \nabla^2 c_1 + \frac{A_2}{A_1} \tau_{12} \nabla^2 c_2, \\ \text{Pr}_{22} \frac{\partial c_2}{\partial t} - (\mathbf{u}\boldsymbol{\gamma}) &= \frac{A_1}{A_2} \tau_{21} \nabla^2 c_1 + \nabla^2 c_2, \\ \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} &= -\nabla p + \nabla^2 \mathbf{u} + (\text{Ra}_1 \tau_{11} c_1 + \text{Ra}_2 c_2) \boldsymbol{\gamma}, \\ \text{div} \mathbf{u} &= 0, \end{aligned} \quad (3)$$

где $\text{Pr}_{ii} = \nu / D_{ii}^*$ – диффузионное число Прандтля,

$\text{Ra}_i = g \beta_i A_i d^4 / \nu D_{ii}^*$ – парциальное число Рэлея,

$\tau_{ij} = D_{ij}^* / D_{22}^*$ – параметры, определяющие соотношение между практическими коэффициентами диффузии, $\boldsymbol{\gamma}$ – единичный вектор, направленный вертикально вверх.

Система уравнения (3) имеет частные решения, зависящие от времени по экспоненциальному закону [7]:

$$\{\mathbf{u}, \mathbf{v}, p, c_i\} \approx \exp(-\lambda t),$$

где λ – временной декремент возмущений. В случае вещественного декремента λ возмущения изменяются со временем монотонно. Для устойчивости механического равновесия необходимо, чтобы вещественные части декрементов всех нормальных возмущений были положительными. Если в спектре имеется хотя бы одно возмущение с отрицательным действительным декрементом λ , то это свидетельствует о неустойчивости равновесия по отношению к данному возмущению.

Потеря устойчивости газовой смеси означает, что декременты λ некоторых характеристических возмущений при определенном числе Рэлея меняют знак. Обращение в нуль декремента определяет условия, при которых возмущение нейтрально [3, 7], т.е. не нарастает и не затухает. Это условие и характеризует границу устойчивости механического равновесия относительно данного возмущения. Таким образом, для определения границы монотонной неустойчивости нейтральное возмущение должно быть стационарным (или квазистационарным).

Рассмотрим квазистационарное смешение смеси в вертикальном диффузионном канале конечной длины. С учетом граничных условий

$$z = L, \quad c_1 = c_{1L}, \quad c_2 = c_{2L}, \quad c_3 = c_{3L},$$

$$z = 0, \quad c_1 = c_{10}, \quad c_2 = c_{20}, \quad c_3 = c_{30}$$

решение диффузионных уравнений в (1) имеет вид [20]

$$\begin{aligned} c_1(z) &= -B \left[j_1 \left(X_3 z - X_1 + \frac{A}{B} \right) - X_2 K_1 \exp\left(\frac{z}{B}\right) \right], \\ c_3(z) &= -B \left[j_3 \left(X_3 z - X_1 - \frac{A}{B} \right) + X_2 K_3 \exp\left(\frac{z}{B}\right) \right], \\ c_2(z) &= 1 - c_1(z) - c_3(z), \end{aligned} \quad (4)$$

где K_i, X_i, A, B, j_i – константы, вычисляемые для заданных значений концентраций компонентов. В отличие от бинарной диффузии решение (4) содержит экспоненциальные по координате члены. Для исследуемой системы выполняется условие $D_{23} \ll D_{12}, D_{13}$, за счет чего происходит нарушение линейности распределения парциальных распределений концентраций в канале (рис. 5). С точки

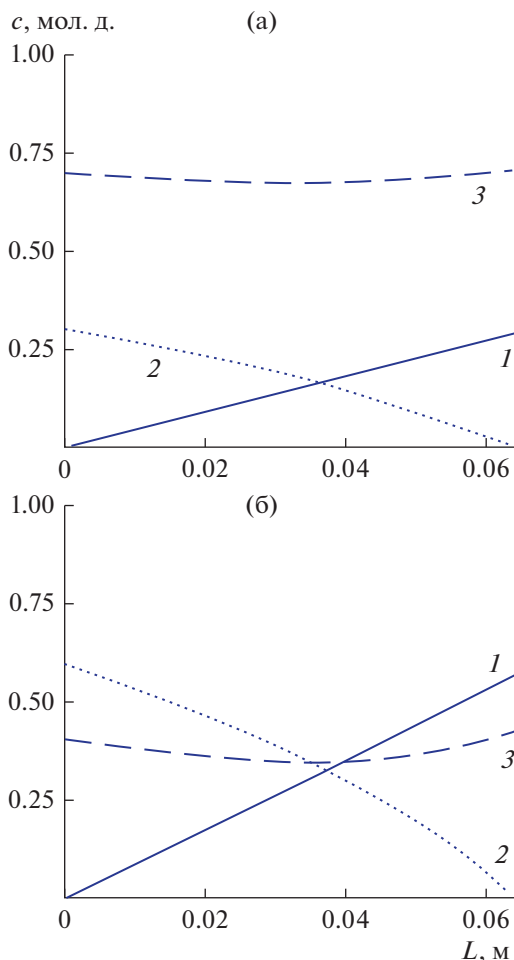


Рис. 5. Распределение концентраций по длине канала: (а) – 0.293He + 0.707C₃H₈–0.697C₃H₈ + 0.303N₂O; (б) – 0.570He + 0.430C₃H₈–0.403C₃H₈ + 0.597N₂O; 1 – гелий; 2 – закись азота; 3 – пропан.

зрения задачи, связанной с определением граничной линии кинетического перехода диффузия–конвекция, нас будут интересовать парциальные градиенты концентраций в координатах с максимальной реализацией перепада плотностей, что соответствует условию $z = L$. Определив характерное значение c_i и величину ее градиента в наиболее “опасной” с точки зрения смены режимов координате, соответствующей максимальной величине градиента плотности смеси, эти соотношения подставляем в систему уравнений (3), полагая их справедливость в точке $z = L$.

Для определения границы монотонной устойчивости рассматриваемой задачи умножим скалярно третье уравнение системы (3) на вектор \mathbf{u} и проинтегрируем по всему объему V цилиндрического диффузионного канала конечной высоты при условиях, что $\nabla p = 0, \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} = 0$ [4]:

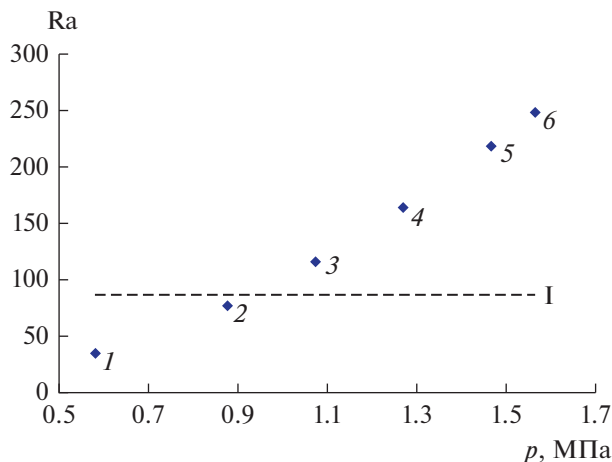


Рис. 6. Зависимость парциального числа Рэлея от давления для системы 0.570He + 0.430C₃H₈–0.403C₃H₈ + 0.597N₂O. Точки – экспериментальные числа Рэлея при различных давлениях: 1 – 0.583 МПа, 2 – 0.876, 3 – 1.074, 4 – 1.27, 5 – 1.467, 6 – 1.565 МПа. I – критическая линия.

$$\int \mathbf{u} \nabla^2 \mathbf{u} dV + Ra_1 \tau_{11} \int u_z c_1 dV + Ra_2 \int u_z c_2 dV = 0. \quad (5)$$

В работе [4] приведены выражения для компонент скорости, а также процедура нахождения c_i в уравнении (5). Выражения для \mathbf{u} и c_i позволяют вычислить критическое число Рэлея с помощью интегрального соотношения

$$Ra_1 = - \frac{\int \mathbf{u} \nabla^2 \mathbf{u} dV}{\tau_{11} \int u_z c_1 dV} - \frac{\int u_z c_2 dV}{\tau_{11} \int u_z c_1 dV} Ra_2. \quad (6)$$

Критическое число Рэлея для основной моды возмущения вычисляется из уравнения (6) с помощью стандартного пакета программы MathCad. Для системы 0.570He (1) + 0.430C₃H₈ (2)–0.403C₃H₈ (2) + 0.597N₂O (3) (при $Ra_2 = 0$) оно будет равным $Ra_1 = 86.99$.

Уравнение (5) определяет на плоскости (Ra_1, Ra_2) граничную линию, разделяющую области диффузии (затухающие возмущения) и конвекционной конвекции (нарастающие возмущения) в координате $z = L$ (рис. 6). Этот подход позволяет определить критическое число Рэлея каждого компонента, зависящее от термодинамических параметров. Для частного случая смешения двух компонентов, растворенных в третьем газе, граничную линию можно определить в координатах (Ra_i, p).

Для сравнения результатов по определению областей устойчивости и неустойчивости представим опытные данные, приведенные, например, на рис. 2б, в виде парциальных чисел Рэлея. Парциальные числа Рэлея в соответствии с (3) в применении к

цилиндрическому диффузионному каналу с радиусом r и длиной L можно записать следующим образом [21]:

$$Ra_1 = \frac{gnr^4 \Delta m_1}{\rho v D_{11}^*} \frac{\partial c_1}{\partial z}, \quad Ra_2 = \frac{gnr^4 \Delta m_2}{\rho v D_{22}^*} \frac{\partial c_2}{\partial z}, \quad (7)$$

где $\Delta m_1 = m_1 - m_2$, $\Delta m_2 = m_2 - m_3$, m_i – масса молекулы i -го сорта, $n = p/k_B T$. Если известны условия проведения опыта (давление, температура, состав смесей в каждой из колб, размеры диффузионного канала), то по формулам (7) можно найти Ra_1 , Ra_2 и тем самым определить изображающую данный опыт точку на плоскости (Ra_1, p) или (Ra_2, p) . Из опыта известно, какой режим (диффузия или конвекция) имеет место при заданных условиях. Совокупность таких точек на плоскости (Ra_1, p) или (Ra_2, p) определяет переход из диффузионной области в конвективную через нейтральную линию устойчивости.

Параметры ρ , v , D_{11}^* , D_{22}^* , входящие в определение парциальных чисел Рэлея (7), зависят от p , T и среднего состава смеси, который реализуется после полного смешения. Распределения концентраций компонентов вдоль диффузионного канала рассчитаны по формулам (4). Для определения градиентов концентраций в (7) были вычислены первые производные от распределения концентраций компонентов (4) по координате z .

На рис. 6 приведены восстановленные экспериментальные числа Рэлея и критическая линия для системы $0.570\text{He} + 0.430\text{C}_3\text{H}_8 - 0.403\text{C}_3\text{H}_8 + 0.597\text{N}_2\text{O}$ при различных давлениях. Точки, расположенные ниже линии I, соответствуют диффузии, а лежащие выше линии I – неустойчивому режиму с нарастающими конвективными возмущениями. Сравнительный анализ рис. 2б, 3б и 6 свидетельствует о том, что смена режимов для системы $0.570\text{He} + 0.430\text{C}_3\text{H}_8 - 0.403\text{C}_3\text{H}_8 + 0.597\text{N}_2\text{O}$ происходит в интервале давлений от $p = 0.88$ МПа до $p = 1.074$ МПа, т.е. наблюдается переход от диффузионного процесса смешения к конвективному, соответствующему антисимметричному критическому движению (цилиндрический диффузионный канал делится вертикальной плоскостью, проходящей через ось, на две части, в одной из которых газ поднимается, а в другой – опускается).

Таким образом, результаты расчета показывают, что неустойчивый диффузионный процесс происходит в тройных системах с газом-растворителем при увеличении давления.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Экспериментальное изучение диффузии гелия и оксида азота, растворенных в пропане, при различных составах показало, что в системе при опре-

деленном давлении возникают конвективные течения, интенсифицирующие суммарный массоперенос. Возрастание интенсивности парциального переноса компонентов от давления наблюдается для гелия и оксида азота. Влияние давления на перенос газа-разбавителя (пропана) не настолько значительно как для других компонентов смеси, однако перенос все равно превышает значения концентраций, характерных для диффузионного массопереноса. Полученные распределения концентраций компонентов по длине канала имеют немонотонный характер, вызывающий конвективную неустойчивость. Граница смены режимов диффузия–концентрационная гравитационная конвекция была получена в рамках теории устойчивости, распространённой на случай изотермического смешения тройных газовых смесей. Сравнение с опытом показало удовлетворительное согласие по определению областей диффузии и конвекции, что позволяет использовать предлагаемую модель для расчетов параметров, определяющих кинетический переход между режимами смешения для смесей с газами-разбавителями.

Работа выполнена в рамках проекта № AP05130986 “Особые режимы и возникновение пространственно-временных конвективных формирований при диффузии в многокомпонентных газовых смесях” Комитета науки Министерства образования и науки Республики Казахстан.

ОБОЗНАЧЕНИЯ

A_i	парциальный градиент концентрации i -го компонента, мол. д./м
c_i	концентрация i -го компонента, мол. д.
$\langle c_i \rangle$	постоянное среднее значение концентрации i -го компонента, принимаемое в качестве начала отсчета, мол. д.
c_i'	возмущенное значение концентрации i -го компонента, мол. д.
D_{ij}	коэффициент взаимной диффузии, м ² /с
D_{ij}^*	практические коэффициенты диффузии, м ² /с
d	характерный линейный масштаб, м
g	ускорение силы тяжести, м ² /с
\mathbf{g}	вектор ускорения силы тяжести, м ² /с
J_i	парциальная плотность диффузионного потока i -го компонента, м/с
n	мода возмущений
p	давление, Па
$\langle p \rangle$	постоянное среднее значение давления, принимаемое в качестве начала отсчета, Па
p'	возмущенное значение давления, Па
T	температура, К

t	время, с
\mathbf{u}	вектор среднemasсовой скорости тройной смеси, м/с
V_1	объем нижней колбы диффузионного аппарата, м ³
V_u	объем верхней колбы диффузионного аппарата, м ³
\mathbf{v}	вектор среднечисловой скорости тройной смеси, м/с
β_i	коэффициент линейной зависимости плотности i -го газового компонента от концентрации
γ	единичный вектор, направленный вертикально вверх
η	коэффициент динамической вязкости, Па с
ν	кинематическая вязкость смеси, м ² /с
ξ	объемная вязкость, Па с
ρ	плотность смеси, кг/м ³
ρ_0	среднее значение плотности смеси, кг/м ³
ρ'	возмущенное значение плотности смеси, кг/м ³
τ_{ij}	безразмерный параметр, определяющий соотношение между практическими коэффициентами диффузии
Pr_{ii}	число Прандтля i -го компонента
Ra_i	парциальное число Рэлея i -го компонента

ИНДЕКСЫ

i, j	нумерация компонентов в многокомпонентной смеси
l	нижний
u	верхний
'	возмущенная характеристика
<>	среднее значение

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Dil'man V.V., Lipatov D.A., Lotkhov V.A., Kaminskii V.A.* Instability in unsteady-state evaporation of binary solutions into an inert gas // *Theor. Found. Chem. Eng.* 2005. V. 39. № 3. P. 566. [*Дильман В.В., Липатов Д.А., Лотхов В.А., Каминский В.А.* Возникновение неустойчивости при нестационарном испарении бинарных растворов в инертный газ // *Теор. осн. хим. технол.* 2005. Т. 39. № 3. С. 600.]
- Kosov V.N., Seleznev V.D., Zhavrin Yu.I.* Separation of components during isothermal mixing of ternary gas systems under free convection conditions // *Tech. Phys.* 1997. V. 42. № 10. P. 1236. [*Косов В.Н., Селезнев В.Д., Жаврин Ю.И.* Эффект разделения компонентов при изотермическом смешении тройных газовых систем в условиях свободной конвекции // *Журн. тех. физ.* 1997. Т. 67. № 10. С. 139.]
- Zhavrin Yu.I., Kosov V.N., Fedorenko O.V., Akzholova A.A.* Some features of isothermal multicomponent mass transfer in the convective instability of gas mixture // *Theor. Found. Chem. Eng.* 2016. V. 50. № 2. P. 171. [*Жаврин Ю.И., Косов В.Н., Федоренко О.В., Акжолова А.А.* Некоторые особенности изотермического многокомпонентного массопереноса при конвективной неустойчивости газовой смеси // *Теор. осн. хим. технол.* 2016. Т. 50. № 2. С. 177.]
- Kosov V.N., Kul'zhanov D.U., Zhavrin Yu.I., Fedorenko O.V.* Emergence of convective flows during diffusional mass transfer in ternary gas systems: The effect of component concentrations // *Russ. J. Phys. Chem. A.* 2017. V. 91. № 6. P. 984. [*Косов В.Н., Кульжанов Д.У., Жаврин Ю.И., Федоренко О.В.* Влияние концентрации компонентов смеси на возникновении конвективных режимов смешения при диффузии в тройных газовых смесях // *Журн. физ. хим.* 2017. Т. 91. № 6. С. 931.]
- Гершуни Г.З.* Гидродинамическая неустойчивость. Изотермические течения // *Соросовский образ. журн.* 1997. № 2. С. 99.
- Ermolenko A.N.* Rayleigh–Benard problem for an anomalous fluid // *J. Appl. Mech. Tech. Phys.* V. 48. № 2. P. 166. [*Ермоленко А.Н.* Задача Рэлея–Бенара для аномальной жидкости // *Прикл. мех. тех. физ.* 2007. Т. 48. № 2. С. 27.]
- Гершуни Г.З., Жуховицкий Е.М.* Конвективная устойчивость несжимаемой жидкости. М.: Наука, 1972.
- Lücke M., Barten W., Büchel P., Fütterer C., Hollenger St., Jung Ch.* Pattern formation in binary fluid convection and in system with throughflow // *Lect. Notes Phys.* 1998. V. 55. P. 127.
- Ryzhkov I.I., Shevtsova V.M.* On the cross-diffusion and Soret effect in multicomponent mixtures // *Microgravity Sci. Technol.* 2009. V. 21. № 1–2. P. 37.
- Любимова Т.П., Зубова Н.А.* Устойчивость механического равновесия тройной смеси в квадратной полости при вертикальном градиенте температуры // *Вычисл. мех. сплошных сред.* 2014. Т. 7. № 2. С. 200.
- Ruev G.A., Fedorov A.V., Fomin V.M.* Description of the anomalous Rayleigh–Taylor instability on the basis of the model of dynamics of a three-velocity three-temperature mixture // *J. Appl. Mech. Tech. Phys.* 2009. V. 50. № 1. P. 49. [*Рувев Г.А., Федоров А.В., Фомин В.М.* Описание аномальной неустойчивости Рэлея–Тейлора на основе модели динамики трехскоростной температурной смеси // *Прикл. мех. тех. физ.* 2009. Т. 50. № 1. С. 58.]
- Шашков А.Г., Абраменко Т.Н.* Перекрестные эффекты в газовых смесях. Минск: Наука и техника, 1976.
- Cussler E.L.* Diffusion: Mass Transfer in Fluid Systems. Cambridge: Cambridge Univ. Press, 2009.
- Варгафтик Н.Б.* Справочник по теплофизическим свойствам газов и жидкостей. М.: Старс, 2006.
- Dunlop P., Bignell C.M.* Diffusion and thermal diffusion in binary mixtures of hydrogen with noble gases // *J. Chem. Phys.* 1987. V. 6. P. 2922.

16. *Toor H.L.* Diffusion in three-component gas mixture // *AIChE J.* 1957. V. 3. № 2. P. 198.
17. *Dil'man V.V., Kashirskaya O.A., Lotkhov V.A.* Specific features of multicomponent diffusion // *Theor. Found. Chem. Eng.* 2010. V. 44. № 4. P. 379. [*Дильман В.В., Каширская О.А., Лотхов В.А.* Особенности многокомпонентной диффузии // *Теор. осн. хим. технол.* 2010. Т. 44. № 4. С. 396.]
18. *Kaminskii V.A.* Special modes of three-component diffusion in gases // *Russ. J. Phys. Chem. A.* 2011. V. 85. № 12. P. 2203. [*Каминский В.А.* Особые режимы трехкомпонентной диффузии в газах // *Журн. физ. хим.* 2011. Т. 85. № 12. С. 2359.]
19. *Kaminskii V.A.* Determining the diffusion flows and concentration distribution of ternary diffusion // *Russ. J. Phys. Chem. A.* 2011. V. 85. № 11. P. 1986. [*Каминский В.А.* Расчет диффузионных потоков и распределения концентраций для трехкомпонентной диффузии // *Журн. физ. хим.* 2011. Т. 85. № 11. С. 2127.]
20. *Косов В.Н., Мукамеденкызы В., Федоренко О.В.* Некоторые особенности смешения тройных газовых смесей на границе смены режимов “диффузия – концентрационная гравитационная конвекция” в квазистационарных условиях // *Вестн. Моск. гос. обл. унив. Сер.: Естеств. науки.* 2018. № 2. С. 125.
21. *Kossov V., Krasikov S., Fedorenko O.* Diffusion and convective instability in multicomponent gas mixtures at different pressures // *Eur. Phys. J.: Spec. Top.* 2017. V. 226. № 6. P. 1177.