

# РАЗДЕЛ III

## ХИМИЧЕСКИЕ НАУКИ

---

УДК 533.15:536.25

DOI:

### НЕКОТОРЫЕ ОСОБЕННОСТИ СМЕШЕНИЯ ТРОЙНЫХ ГАЗОВЫХ СМЕСЕЙ НА ГРАНИЦЕ СМЕНЫ РЕЖИМОВ «ДИФФУЗИЯ – КОНЦЕНТРАЦИОННАЯ ГРАВИТАЦИОННАЯ КОНВЕКЦИЯ» В КВАЗИСТАЦИОНАРНЫХ УСЛОВИЯХ

**Косов В.Н.<sup>1</sup>, Мукамеденкызы В.<sup>2</sup>, Федоренко О.В.<sup>2</sup>**

<sup>1</sup> *Казахский национальный педагогический университет имени Абая  
050010, Алматы, проспект Достык, 13, Казахстан*

<sup>2</sup> *НИИ Экспериментальной и теоретической физики  
при Казахском национальном университете имени аль-Фараби  
050040, Алматы, проспект аль-Фараби, 71, Казахстан*

**Аннотация.** В тройных газовых смесях, где за счет различия в коэффициентах диффузии может возникнуть конвективная неустойчивость, проанализированы концентрационные распределения компонентов смеси. Показано, что в многокомпонентных системах, где проявляются особые диффузионные режимы, возможно возникновение немонотонных изоконцентрационных распределений. Проанализировано влияние содержания самого тяжелого по плотности компонента системы на степень немонотонности распределения плотности смеси. Результаты вычислений сравниваются с опытными данными.

**Ключевые слова:** диффузия, концентрация, плотность, смеси, квазистационарное смешение.

### SOME MIXING FEATURES OF TERNARY GAS MIXTURES ON THE REGIME TRANSITION BOUNDARY BETWEEN TWO MIXING REGIMES – DIFFUSION TO CONCENTRATION GRAVITATIONAL CONVECTION – IN QUASI-STATIONARY CONDITIONS

**V. Kossov<sup>1</sup>, V. Mukamedenkyzy<sup>2</sup>, O. Fedorenko<sup>2</sup>**

<sup>1</sup> *Abai Kazakh National Pedagogical University  
050010, Almaty, Dostyk Ave. 13, Kazakhstan*

<sup>2</sup> *Institute of Experimental and Theoretical Physics at al-Farabi Kazakh National University  
050040, Almaty, al-Farabi Ave. 71, Kazakhstan*

---

© СС BY Косов В.Н., Мукамеденкызы В., Федоренко О.В., 2018.

**Abstract.** Concentration distributions of the mixture's components are analyzed in the ternary gas mixtures, where convective instability may occur due to the difference in the diffusion coefficients. It is shown that non-monotonic isoconcentration distributions are possible in multicomponent systems, where special diffusion regimes appear. The content influence of the system's heaviest component on the degree of nonmonotonicity of the mixture density distribution is analyzed. The calculation results are compared with the experimental data.

**Key words:** diffusion, concentration, density, mixtures, quasi-stationary mixing.

### Введение

Изучение изотермической диффузии в многокомпонентных газовых смесях при различных давлениях [2, с. 179] и составах [4, с. 118; 5, с. 933] показало возможность появления концентрационной конвекции, которая значительно интенсифицирует суммарный массоперенос. Причиной возникновения кинетического перехода «диффузия – конвекция» является сложная взаимосвязь между молекулярной и гидродинамической составляющими парциальных потоков компонентов. Исследуя особенности перехода от диффузионного состояния к конвективному было установлено, что наиболее ярко смена режимов проявляется в системах, где имеет место существенное различие в коэффициентах переноса [6, с. 84]. Для случая тройных газовых смесей с малым содержанием самого тяжелого по плотности компонента смеси было получено решение системы уравнений диффузии, которое показало возможность нелинейных изоконцентрационных распределений [7, с. 15]. Причем по мере увеличения концентрации компонента с наибольшим молекулярным весом нелинейность распределений в диффузионном канале возрастает. Распространяя подход [8, с. 975; 7, с. 14] на случай произвольного состава в [1, с.

22] было получено численное решение квазистационарной системы уравнений трехкомпонентной диффузии для системы двух колб соединенных капилляром. Решение для парциальных значений концентраций содержит экспоненциальные по координате члены, что приводит к нелинейному профилю для систем, где проявляются особые режимы смешения [8, с. 975; 3, с. 2359]. Наконец в [6, с. 105] на основе результатов приведенных в [1, с. 22] было получено выражение для градиента плотности тройной смеси, анализ которого показал возможность возникновения инверсии градиента плотности смеси при многокомпонентном смешении.

Целью настоящей работы является изучение особенностей квазистационарного смешения в системах, где имеет место переход «диффузия – конвекция» на основе результатов полученных в [1, с. 21; 6, с. 105].

### Квазистационарное распределение тройных газовых смесей на границе смены режимов «диффузия – конвекция»

Рассмотрим эквимолярную изотермическую трехкомпонентную диффузию в системе двух колб соединенных вертикальным цилиндрическим каналом (рис. 1) [1, с. 21; 6, с. 105]:

$$\begin{aligned}
 p &= \text{const}, \\
 T &= \text{const}, \\
 \sum_{i=1}^3 c_i &= 1; \quad n \sum_{i=1}^3 c_i \mathbf{u}_i = 0, \\
 \text{div}(n \cdot c_i \cdot \mathbf{u}_i) &= 0, \quad i = 1, 2; \\
 \sum_{j \neq i} \frac{c_i \cdot c_j}{D_{ij}} \cdot (\mathbf{u}_i - \mathbf{u}_j) &= -\text{grad}(c_i), \quad i = 1, 2; \quad j = 1, 2, 3;
 \end{aligned} \tag{1}$$

где  $p$  – давление,  $T$  – температура,  $n$  – числовая плотность,  $\mathbf{u}_i$  – вектор средней скорости молекул  $i$ -го компонента;  $D_{ij}$  – коэффициенты взаимной диффузии [9, с. 70]. Концентрации компонентов  $c_i$  определяются соотношением:

$$c_i = n_i / (n_1 + n_2 + n_3) = n_i / n$$

Считая, что геометрия канала соответствует условию  $d \ll L$  ( $d$  – диаметр,  $L$  – длина), можно предположить, что газовая смесь в целом остается неподвижной, а поперечным распределением концентрации и скорости в нем можно пренебречь, то после усреднения (1) по сечению канала в одномерном случае получим:

$$\begin{aligned}
 \sum_{i=1}^3 c_i &= 1, \quad p = \text{const}, \quad T = \text{const}; \\
 n \cdot \sum_{i=1}^3 c_i \cdot u_i &= 0, \\
 n \cdot c_i \cdot u_i &= j_i = \frac{J_i}{S} = \text{const}, \quad i = 1, 2; \\
 \sum_{j \neq i} \frac{c_i \cdot c_j}{D_{ij}} \cdot (u_i - u_j) &= -\frac{d}{dz} c_i, \quad i = 1, 2; \quad j = 1, 2, 3;
 \end{aligned} \tag{2}$$

где  $J$  – полный числовой поток через капилляр;  $J_i$  – полный числовой поток  $i$ -го компонента через капилляр;  $S$  – площадь поперечного сечения капилляра;  $n$  – числовая плотность газа;  $J$  и  $J_i$  – полная и парциальные плотности числового потока, соответственно.

Граничные условия имеют вид:

$$\begin{aligned}
 z = L, \quad c_1 &= c_{1I}, \quad c_2 = c_{2I}, \quad c_3 = c_{3I}, \\
 z = 0, \quad c_1 &= c_{1II}, \quad c_2 = c_{2II}, \quad c_3 = c_{3II}
 \end{aligned} \tag{3}$$

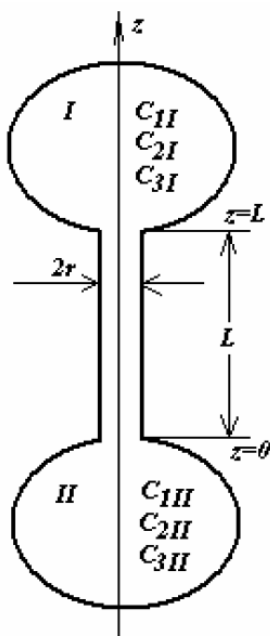


Рис. 1. Система координат в диффузионной ячейке двухколбового аппарата

Решение (2) при учете (3) имеет вид [1, 22; 6, 108]:

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

где  $K_p$ ,  $X_p$ ,  $A$ ,  $B$ ,  $j_i$  – константы, вычисляемые для заданных значений концентраций компонентов.

Соотношения (4) позволяют найти распределение плотности смеси  $\rho$ , а также ее градиент [6, 111]:

$$\begin{aligned}
 \frac{1}{n} \rho(z) &= m_1 c_1 + m_2 c_2 + m_3 c_3, \\
 \frac{1}{n} \frac{d\rho}{dz} &= (m_1 - m_2) \cdot \frac{dc_1}{dz} + (m_3 - m_2) \cdot \frac{dc_3}{dz} = \\
 &= -B \cdot X_3 \cdot (\Delta m_1 \cdot j_1 + \Delta m_3 \cdot j_3) + X_2 \cdot e^{\frac{z}{B}} \cdot (\Delta m_1 \cdot K_1 - \Delta m_3 \cdot K_3), \\
 \Delta m_i &= m_i - m_2
 \end{aligned} \tag{5}$$

В уравнениях (5)  $m_i$  обозначает массу молекулы  $i$ -го сорта.

Общий анализ уравнений (4) показывает, что содержащиеся в них экспоненциальные по координате члены, приводят к существенно нелинейному распределению концентраций при выполнении условий ( $D_{23} \ll D_{12}, D_{13}$ ).

Наконец из соотношения (5) следует, что при определенных составах может возникнуть инверсия градиента плотности, несмотря на начальные условия, определяющие смешение более легкой по плотности смеси с третьим газом большей плотности.

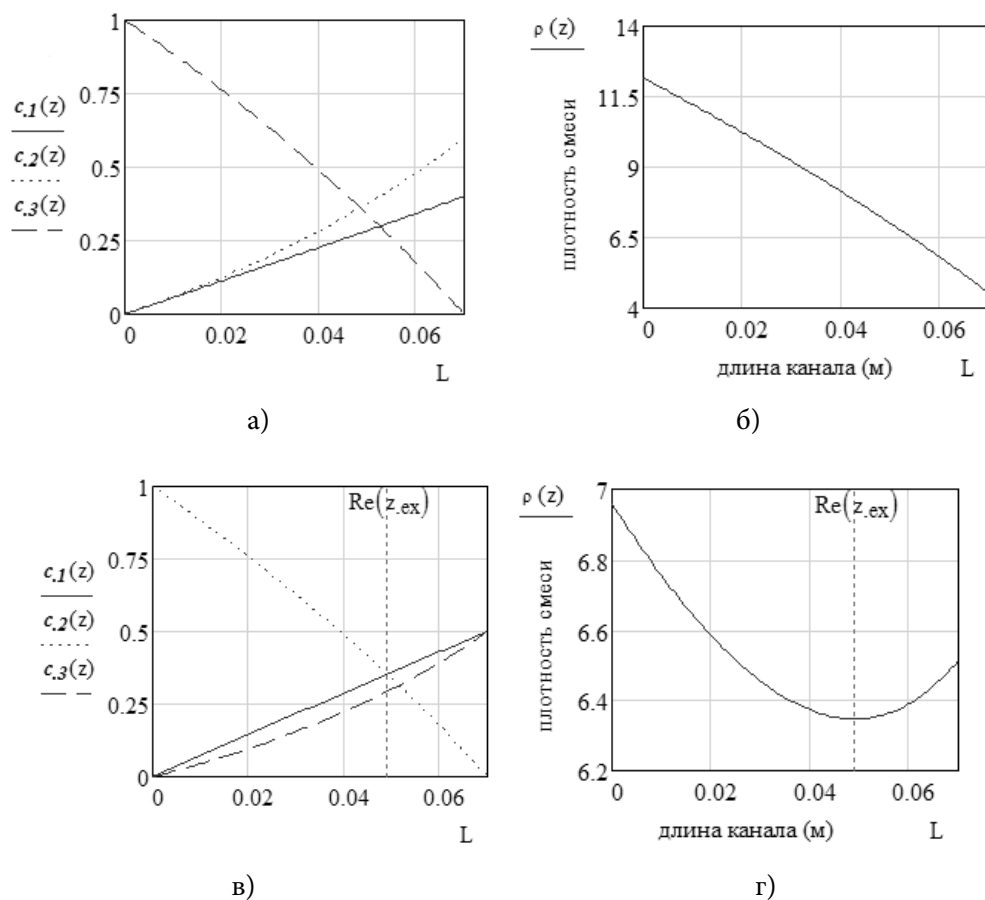


Рис. 2. Распределение концентраций компонентов и плотности трехкомпонентных смесей при  $T = 298,0$  К,  $L = 70,05 \cdot 10^{-3}$  м,  $r = 3 \cdot 10^{-3}$  м.

Система  $0,4 \text{ H}_2 + 0,6 \text{ CH}_4 - \text{N}_2$ : а, б

Система  $0,5 \text{ H}_2 + 0,5 \text{ N}_2 - \text{CH}_4$ : в, г.

На рис. 2 приведены распределения концентрации и плотности смеси для тройной газовой системы  $\text{H}_2 + \text{CH}_4 - \text{N}_2$ . Как видно из рис. 2а при смешении

смеси водорода и метана с азотом наблюдается нелинейное распределение концентрации метана по длине канала. Уменьшение величины парциального

потока метана связано с проявлением бароэффекта при диффузии активного водорода в азот. Наблюдаемая особенность многокомпонентной диффузии не приводит к возникновению гравитационной конвекции. Распределение плотности смеси по длине канала монотонно (рис. 2б).

Однако, если поменять местами относительно диффузионного канала азот и метан, выполняя при этом условие неизменности направления градиента плотности смеси, то наблюдается уже другая картина. Распределения концентраций компонентов приведенные на рис. 2в показывают, что в системе, как и для предыдущего случая, проявляются особые режимы

[3, с. 2359], а распределение плотности смеси имеет явно немонотонный характер (рис. 2г). Причем существуют локальные области по координате, при которых градиент плотности меняет знак. Как показали проведенные в условиях квазистационарного смешения опыты [6, с. 41] в такой системе проявляется конвективная неустойчивость с последующим возникновением гравитационной концентрационной конвекции.

С уменьшением концентрации компонента с наибольшим молекулярным весом в системе немонотонность в распределении плотности минимизируется и при определенных составах исчезает (рис. 3).

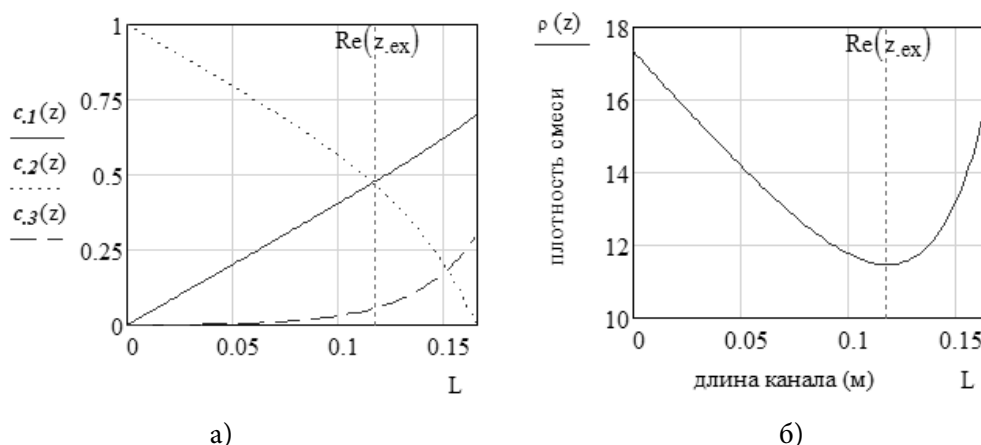


Рис. 3. Распределение концентраций компонентов (а) и плотности (б) тройной смеси  $0,7 \text{ H}_2 + 0,3 \text{ CH}_4 - \text{N}_2$  при  $T = 298,0 \text{ K}$ ,  $L = 70,05 \cdot 10^{-3} \text{ м}$ ,  $r = 3 \cdot 10^{-3} \text{ м}$ .

Аналогичная тенденция была ранее установлена опытным путем при изучении квазистационарного смешения в смесях  $\text{H}_2 + \text{R12} - \text{Ar}$ ,  $\text{He} + \text{R12} - \text{Ar}$ ,  $\text{CH}_4 + \text{R12} - \text{n-C}_4\text{H}_{10}$  [4, с. 120].

### Заключение

Таким образом, проведенный анализ показывает, что особенностью ква-

зистационарной изотермической многокомпонентной диффузии является возможность существования немонотонного распределения концентраций компонентов. Для частного случая смешения бинарной смеси с третьим компонентом при значительном отличии коэффициентов диффузии величина парциального потока компонента с

наибольшим молекулярным весом существенно уменьшается. Смена режимов «диффузия – концентрационная гравитационная конвекция» возможна только в случае немонотонного распределения плотности газовой смеси.

#### БЛАГОДАРНОСТИ

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 и гранта «Лучший преподаватель вуза – 2017» Министерства образования и науки Республики Казахстан.

#### ACKNOWLEDGMENTS

Work is executed within the framework of project №AP05130986 “Particular treatments and origin of the spatio-temporal конвективных forming at diffusion in multicomponent gas mixtures” of Committee of science of Department of education and science of Republic of Kazakhstan and underback the “Best teacher of institution of higher learning – 2017” Departments of education and science of Republic of Kazakhstan.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Александров О.Е. Точное решение уравнения диффузии через капилляр для трехкомпонентной смеси // Журнал технической физики. 2001. Т. 71. Выпуск 11. С. 21-24.
2. Жаврин Ю.И., Косов В.Н., Федоренко О.В., Акжолова А.А. Некоторые особенности изотермического многокомпонентного массопереноса при конвективной неустойчивости газовой смеси // Теоретические основы химической технологии. 2016. Т. 50. №2. С. 177-183.
3. Каминский В.А. Особые режимы трехкомпонентной диффузии в газах // Журнал физической химии. 2011. Т. 85. № 12. С. 2359-2364.
4. Косов В.Н., Жаврин Ю.И. Коэффициенты диффузии некоторых бинарных и трехкомпонентных газовых смесей, содержащих фреон-12 // Теплофизические свойства веществ и материалов. Вып. 28. М.: Издательство стандартов. 1989. С. 112-122.
5. 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 // Журнал физической химии. 2017. Т. 91. №6. С. 931–936.
6. Косов В.Н., Селезнев В.Д. Аномальное возникновение свободной гравитационной конвекции в изотермических тройных газовых смесях. Екатеринбург: УрО РАН, 2004. 149 с.
7. Косов В.Н., Селезнев В.Д., Жаврин Ю.И. Инверсия градиента плотности и диффузионный «затвор» при изотермическом смешении газов // Журнал технической физики. 1998. Т. 68. Выпуск 5. С. 14-17.
8. Селезнев В.Д., Смирнов В.Г. Диффузия трехкомпонентной смеси газов в системе двух колб // Журнал технической физики. 1981. Т. 51. Выпуск 4. С. 975-980.
9. Шервуд Т., Пигфорд Р., Уилки Ч. Массопередача. М.: Химия, 1982. 695 с.

#### REFERENCES

1. Aleksandrov O.E. Tochnoe reshenie uravneniya diffuzii cherez kapillyar dlya trekhkomponentnoi smesi [Exact solution of the diffusion equation through a capillary for a three-component mixture]. In: Zhurnal tekhnicheskoi fiziki. 2001. Vol. 71. Edition of 11, pp. 21-24

2. Zhavrin Yu.I., Kosov V.N., Fedorenko O.V., Akzholova A.A. [Some of the features of isothermal multicomponent mass transfer in convective instability of a gas mixture]. In: *Teoreticheskie osnovy khimicheskoi tekhnologii*. 2016. Vol. 50. , no. 2, pp. 177-183.
3. Kaminskii V.A. [Special modes of three-component diffusion in gases]. In: *Zhurnal fizicheskoi khimii*. 2011. Vol. 85. , no. 12, pp. 2359-2364.
4. Kosov V.N., Zhavrin Yu.I. [Diffusion coefficients of some binary and ternary gas mixtures containing freon-12]. In: *Teplofizicheskie svoistva veshchestv i materialov* (no 28). M.: Izdatel'stvo standartov, 1989, pp. 112-122.
5. Kosov V.N., Kul'zhanov D.U., Zhavrin Yu.I., Fedorenko O.V. [The effect of the concentration of mixture components on the occurrence of convective regimes of mixing by diffusion in ternary gas mixtures]. In: *Zhurnal fizicheskoi khimii*. 2017. Vol. 91, no. 6, pp. 931-936.
6. Kosov V.N., Seleznev V.D. Anomal'noe vozniknovenie svobodnoi gravitatsionnoi konveksii v izotermicheskikh troinykh gazovykh smesyakh [Abnormal appearance of the free gravitational convection in an insulated triple gas mixtures]. *Ekaterinburg, UrO RAN Publ.*, 2004. 149 p.
7. Kosov V.N., Seleznev V.D., Zhavrin Yu.I. Inversiya gradienta plotnosti i diffuzionnyi «zatvor» pri izotermicheskom smeshenii gazov [Inversion of the density gradient and diffusion "gate" in an isothermal mixture of gases]. In: *Zhurnal tekhnicheskoi fiziki*. 1998. Vol. 68, Issue 5, pp. 14-17
8. Seleznev V.D., Smirnov V.G. Diffuziya trekhkomponentnoi smesi gazov v sisteme dvukh kolb [Diffusion in three component gas mixtures in the two flasks]. In: *Zhurnal tekhnicheskoi fiziki*. 1981. Vol. 51. Issue 4, pp. 975-980
9. Shervud T., Pigford R., Uilki Ch. *Massoperedacha* [Mass transfer]. Moscow, Khimiya Publ., 1982. 695 p.

---

#### ИНФОРМАЦИЯ ОБ АВТОРАХ

*Косов Владимир Николаевич* – доктор физико-математических наук, профессор, член-корреспондент Национальной Академии Наук РК, академик Национальной Академии Наук Высшей Школы РК, директор центра прикладных исследований и функциональных технологий Казахского Национального Педагогического Университета имени Абая; e-mail: kosov\_vlad\_nik@list.ru

*Мукамеденкызы Венера* - кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник НИИ экспериментальной и теоретической физики Казахского Национального Университета имени аль-Фараби; e-mail: mukameden@inbox.ru

*Федоренко Ольга Владимировна* – кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник НИИ экспериментальной и теоретической физики Казахского Национального Университета имени аль-Фараби; e-mail: fedor23.04@mail.ru

#### INFORMATION ABOUT THE AUTHORS

*Vladimir N. Kossov* – doctor of physical and mathematical sciences, professor, corresponding member of the National Academy of Sciences of the Republic of Kazakhstan, academician of the National Academy of Sciences of the High School of RK, director of the center of applied researches and functional technologies of Abai Kazakh National Pedagogical University; e-mail: kosov\_vlad\_nik@list.ru



*Venera Mukamedenkyzy* – candidate of physical and mathematical sciences, senior research scientist of the Research Institute of Experimental and Theoretical Physics at al-Farabi Kazakh National University;  
mukameden@inbox.ru

*Olga V. Fedorenko* – candidate of physical and mathematical sciences, senior research scientist of the Research Institute of Experimental and Theoretical Physics at al-Farabi Kazakh National University;  
fedor23.04@mail.ru

---

#### ПРАВИЛЬНАЯ ССЫЛКА НА СТАТЬЮ

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 // Вестник Московского государственного областного университета. Серия «Естественные науки». 2018. № 2. doi:

#### FOR CITATION

Kossov V.N., Mukamedenkyzy V., Fedorenko O.V. Some mixing features of ternary gas mixtures on the regime transition boundary between two mixing regimes – diffusion to concentration gravitational convection – in quasi-stationary conditions. In: Bulletin of the Moscow State Regional University, Series “Natural Sciences”, 2018, no 2, doi: