

03;12
© 1995

ВЛИЯНИЕ ВЯЗКОСТИ НА УСТОЙЧИВОСТЬ ДИФФУЗИОННОГО МАССОПЕРЕНОСА В ИЗОТЕРМИЧЕСКИХ ТРЕХКОМПОНЕНТНЫХ ГАЗОВЫХ СМЕСЯХ

Ю.И.Жаврин, А.З.Айткоожаев, В.Н.Косов, С.А.Красиков

При диффузии в замкнутых системах из-за различия тепловых скоростей компонентов на концах диффузационного пути возникает разность давления, порождающая гидродинамическое течение смеси как целого [1]. Если в бинарных системах наложение гидродинамического переноса на молекулярный приводит к выравниванию потоков компонентов, то в многокомпонентных смесях такая суперпозиция носит более сложный характер. Возможен перенос компонента в отсутствие градиента его концентрации, перенос по градиенту концентрации и отсутствие переноса компонента при наличии собственного градиента концентраций. Эти аномалии при тройной диффузии получили название “эффектов Тура” [2]. Их математическое описание [2,3] и физическая интерпретация [4] укладываются в традиционное кинетическое представление о диффузионном массопереносе. С другой стороны, различие в коэффициентах диффузии (при определенной концентрации тяжелого компонента и некоторых критических условиях) вызывает образование у границы раздела газов стратифицированных по плотности областей. Под действием сил Архимеда происходит их инверсия с последующим развитием концентрационной конвекции [5,6]. Наложение на молекулярную диффузию конвективных течений приводит к диффузионно неустойчивому процессу, перенос компонентов при котором в зависимости от параметров (давлении, температуры, исходного состава, геометрических характеристик диффузационного канала и т.п.) носит явно немонотонный характер и значительно отличается от ожидаемого [5–7]. К таким параметрам, оказывающим стабилизирующее (дестабилизирующее) действие на неустойчивый процесс, можно отнести вязкость газовой смеси. Ниже приводятся экспериментальные результаты по изучению влияния вязкости на интенсивность неустойчивого диффузионного переноса.

Для решения поставленной задачи необходимо было подобрать в исходных смесях такие газы, которые по физико-

химическим свойствам (плотность, диффузионные свойства и пр.), влияющим на возникновение концентрационной конвекции, были приблизительно одинаковыми, но в то же время отличались по вязкости. В качестве основных газов были взяты водород (H_2) и метан (CH_4), которые в равной степени разбавлялись в одном случае закисью азота (N_2O), а в другом — пропаном (C_3H_8). Два последних газа при температуре $T = 298$ К в области их парциальных давлений в смесях $P = (0.1\text{--}0.5)$ МПа имеют близкие плотности и практически одинаковые коэффициенты взаимной диффузии в основные диффундирующие компоненты, но отличаются величиной динамической вязкости примерно в два раза ($\eta_{N_2O} > \eta_{C_3H_8}$). Для исследования были приготовлены следующие смеси:

1. $0.5118H_2 + 0.4882N_2O - 0.5129CH_4 + 0.4871N_2O$,
2. $0.5155H_2 + 0.4845C_3H_8 - 0.5163CH_4 + 0.4837C_3H_8$

(здесь и далее концентрации компонентов приведены в мольных долях). Плотность смеси, находящейся в верхней части диффузионного аппарата, всегда была меньше плотности смеси, расположенной в нижней части. Эксперименты проводились на установке, реализующей двухколбовый метод, по ранее описанной методике [6,7]. Объемы колб аппарата были одинаковыми и равными $V_a = V_b = (62.0 \pm 0.6) \cdot 10^{-3}$ м³. Длина и диаметр диффузионного канала $L = (63.10 \pm 0.05) \cdot 10^{-2}$ и $d = (4.00 \pm 0.01) \cdot 10^{-3}$ м соответственно. Давление и температура в опытах были постоянными и равны $P = 1.07$ МПа и $T = 298.0$ К. Исходный состав смесей анализировался на интерферометре ИТР-1 с погрешностью не более 0.1%, а после диффузии на хроматографе ХРОМ-4 с суммарной погрешностью, не превышающей 0.3%. Изучалась зависимость количества продиффундировавших компонентов от времени τ для данного начального состава. Это достигалось путем сравнения характерных особенностей массопереноса для первой и второй смеси за одинаковый временной интервал.

На рис. 1 и 2 представлены изменения концентрации балластных газов и одного из основных диффундирующих компонентов — CH_4 — в колбах аппарата с течением времени. Как видно из рис. 1, перенос закиси азота в первой системе значительно отличается от переноса пропана во второй. Начиная с продолжительности опыта в 30 мин, отличие составляет примерно два раза. С течением времени в системе $H_2 + N_2O - CH_4 + N_2O$ интенсивность неустойчивого процесса уменьшается и наступает его стабилизация, о чем свидетельствует проявление “эффектов Тура” (концентрация

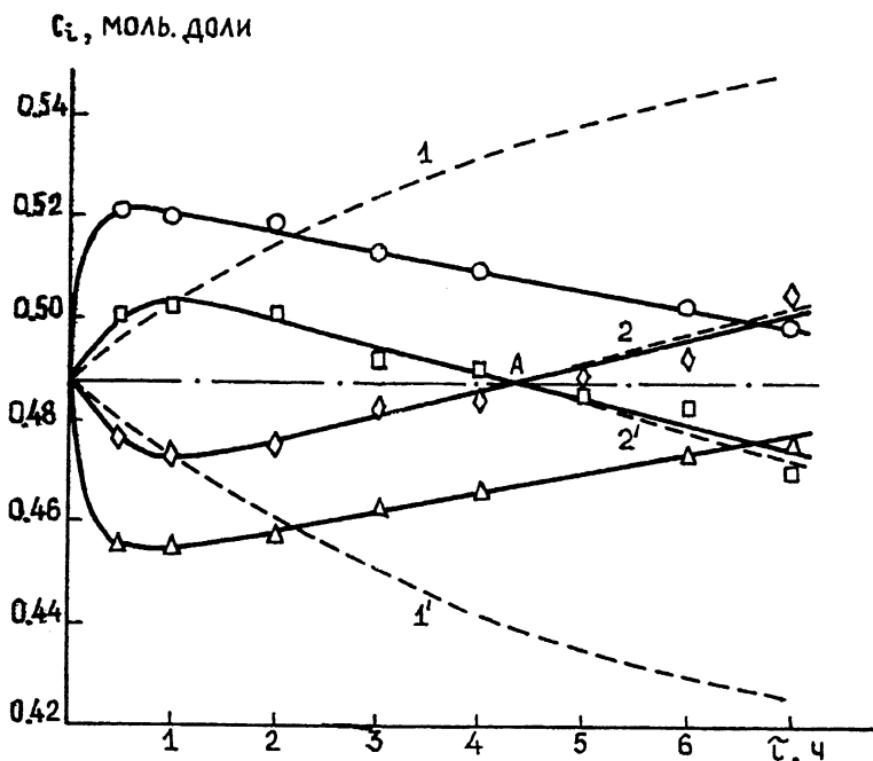


Рис. 1. Зависимость концентрации газа-разбавителя в колбах диффузионного аппарата от времени при диффузии в системах $\text{H}_2 + \text{N}_2\text{O} - \text{CH}_4 + \text{N}_2\text{O}$ и $\text{H}_2 + \text{C}_3\text{H}_8 - \text{CH}_4 + \text{C}_3\text{H}_8$. \square , \circ и \diamond , Δ — экспериментальные данные для верхней и нижней колб для N_2O и C_3H_8 соответственно. Сплошные линии — аппроксимация экспериментальных данных. Пунктирные линии 1, 2 и 1', 2' — расчет в предположении устойчивого диффузионного процесса для верхней и нижней колб аппарата. Штрих-пунктирная линия — равновесная концентрация балластных газов.

балластного газа растет в верхней колбе — “противодиффузия”). Аналогичная картина наблюдалась бы в предположении отсутствия концентрационной конвекции, т.е. в режиме устойчивой диффузии. Кривые 1 и 1' рассчитаны для этого условия для системы $\text{H}_2 + \text{N}_2\text{O} - \text{CH}_4 + \text{N}_2\text{O}$ согласно уравнениям Стефана–Максвелла [8].

В расчетах использовались следующие значения коэффициентов взаимной диффузии пар газов при $P = 0.101$ МПа и $T = 293$ К $D_{\text{H}_2-\text{N}_2\text{O}} = 0.623$, $D_{\text{H}_2-\text{CH}_4} = 0.726$, $D_{\text{CH}_4-\text{N}_2\text{O}} = 0.158 \cdot 10^{-4} \text{ м}^2 \text{ с}^{-1}$. Отличие вычисленных исходных значений от измеренных объясняется наложением на диффузионные потоки конвективных. Если провести расчет с момента времени $\tau \approx 4.5$ ч с учетом распределения концентраций, вызванного конвекцией, т.е. с точки A на рис. 1 и 2 для систе-

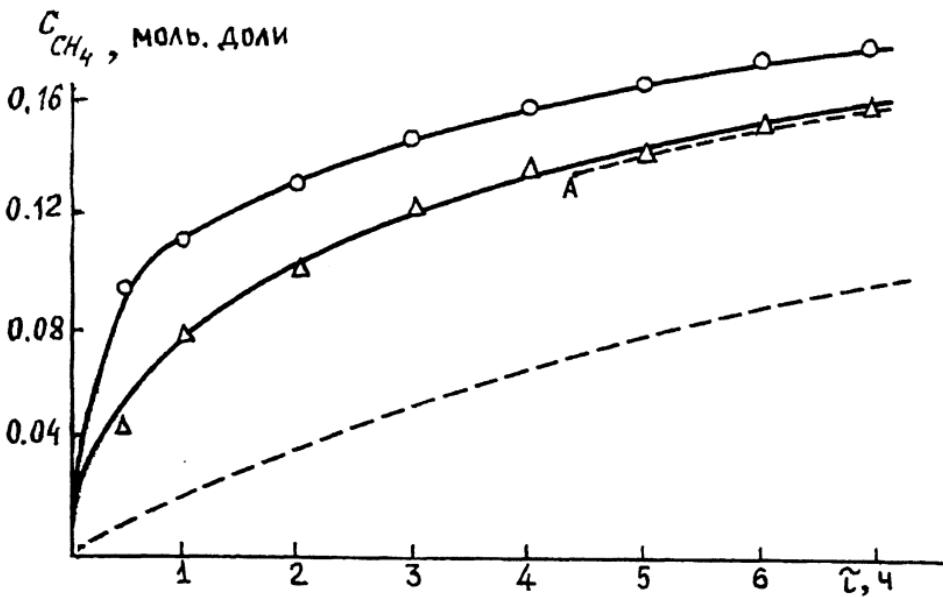


Рис. 2. Изменение концентрации метана в верхней колбе с течением времени. \circ , Δ — экспериментальные данные для систем $H_2 + C_3H_8 \rightarrow CH_4 + C_3H_8$ и $H_2 + N_2O \rightarrow CH_4 + N_2O$ соответственно. Сплошные линии — аппроксимация экспериментальных данных. Пунктирная линия — расчет в предположении устойчивого диффузионного процесса.

мы $0.3833H_2 + 0.1290CH_4 + 0.4877N_2O \rightarrow 0.1286H_2 + 0.3839CH_4 + 0.4875N_2O$, то наблюдается достаточная сходимость с экспериментальными данными, что подтверждает преобладающую роль диффузии в суммарном массопереносе.

В другой смеси, где C_3H_8 является газом-разбавителем, интенсивность концентрационной конвекции хотя и уменьшается со временем, но о стабилизации в интервале 4–7 ч говорить не приходится, т.е. при всех прочих равных условиях оказывается вязкость балластного газа. Чем вязкость больше, тем система более “диффузионно устойчива”, и при возникновении концентрационной конвекции она быстрее приходит в стабильное состояние. Подобные рассуждения можно привести и для основных дифундирующих газов, если обратиться к рис. 2.

Таким образом, методом двухколбового диффузионного прибора исследован неустойчивый диффузионный процесс в системах: $H_2 + N_2O \rightarrow CH_4 + N_2O$, $H_2 + C_3H_8 \rightarrow CH_4 + C_3H_8$. Показано, что на неустойчивый процесс значительное влияние оказывает вязкость газа-разбавителя. Подбирая ее соответствующим образом, можно влиять на интенсивность неустойчивого диффузионного переноса.

Список литературы

- [1] Суетин П.Е., Волобуев П.В. // ЖТФ. 1964. Т. 34. В. 6. С. 1107–1114.
- [2] Toor H. // A. I. Ch. E. J. 1957. V. 3. N 2. P. 198–207.
- [3] Селезнев В.Д., Смирнов В.Г. // ЖТФ. 1981. Т. 51. В. 4. С. 795–800.
- [4] Косов Н.Д., Новосад З.И. // ЖТФ. 1969. Т. 39. В. 3. С. 582–586.
- [5] Miller L., Spurling T., Mason E. // Phys. Fluids. 1967. V. 10. P. 1809–1813.
- [6] Жаврин Ю.И., Косов Н.Д. и др. // ЖТФ. 1984. Т. 54. В. 5. С. 943–947.
- [7] Жаврин Ю.И., Косов В.Н. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. В. 10. С. 18–21.
- [8] Жаврин Ю.И., Косов Н.Д., Новосад З.И. // ЖФХ. 1975. Т. 49. В. 3. С. 706–709.

Научно-исследовательский институт Поступило в Редакцию
экспериментальной и теоретической физики 2 ноября 1994 г.
при Казахском государственном
национальном университете
Алма-Ата
