

УДК 533.15:536.25

*М.К. АСЕМБАЕВА, М.С. МОЛДАБЕКОВА, И.В. ПОЯРКОВ*

## ИССЛЕДОВАНИЕ НЕУСТОЙЧИВОГО ДИФФУЗИОННОГО ПРОЦЕССА В ЧЕТЫРЕХКОМПОНЕНТНОЙ ГАЗОВОЙ СМЕСИ ГЕЛИЯ - ПРОПАНА – МЕТАНА - ЗАКИСИ АЗОТА

Показано, что в четырехкомпонентной газовой системе при неустойчивом диффузионном процессе смешения наблюдаются конвективные потоки компонентов не только одного направления, но и циркуляция смеси по длине диффузационного канала.

Из всего многообразия особенностей многокомпонентной диффузии особый интерес при массопереносе компонентов вызывает диффузионная неустойчивость.

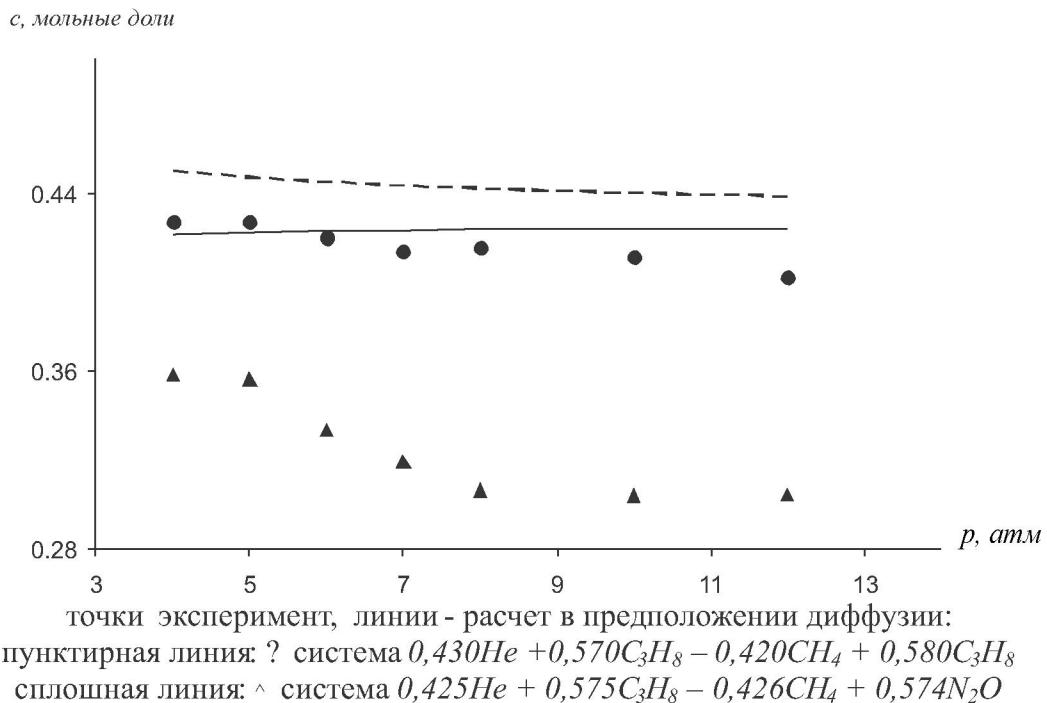
В работах [1,2] был исследован в режиме диффузионной неустойчивости массоперенос в трехкомпонентных системах, когда два основных газа в равных пропорциях разбавляются третьим - балластным газом, градиент концентрации которого равен нулю. Из полученных этими авторами результатов следовало, что при неустойчивом диффузионном процессе концентрация балластного газа возрастает в нижней колбе диффузационного аппарата (при молекулярной диффузии возрастание концентрации балластного газа наоборот наблюдается в верхней колбе), таким образом проявляется одна из особенностей многокомпонентного массопереноса, так называемая, «противодиффузия» или «обратная диффузия» [3]. Дальнейшие экспериментальные исследования в некоторых трехкомпонентных газовых системах обнаружили циркуляцию газа-разбавителя по диффузионному каналу, т.е. переноса его из одной колбы диффузионного аппарата в другую с последующим возвращением в первую [2,4].

В газовой системе  $H_2 + C_3H_8 - CH_4 + N_2O$  во время неустойчивого диффузионного процесса авторы [5] наблюдали циркуляцию балластного газа, которая влияла на характер процесса смешения. При давлении 1,07 МПа и  $T=298,0$  К было обнаружено, что в начальный момент времени процесс смешения подчинялся законам молекулярной диффузии, затем при увеличении продолжительности опыта в какой-то момент времени этот процесс нарушился, появился конвективный перенос. Дальнейшее увеличение времени эксперимента показало преобладание диффузии над конвекцией. Из этих результатов исследова-

ния следовало, что циркуляция балластного газа позволяет поддерживать неустойчивой характер диффузии в течение длительного времени.

Однако эти исследования не позволили полностью раскрыть характер появления циркуляции балластного газа в различных многокомпонентных системах в зависимости от условий опыта (давления, температуры, концентрации диффундирующих компонентов, продолжительности опыта). В данной работе приводятся результаты экспериментального исследования процесса смешения в многокомпонентной системе гелий - пропан – метан – закись азота. Основными диффундирующими компонентами в этих опытах являлись гелий и метан. Пропан и закись азота выполняли роль балластного газа, так как по своим диффузионным свойствам они близки – одинаковые молекулярные веса, равные коэффициенты вязкости, совпадающие коэффициенты диффузии.

Для изучения была выбрана четырехкомпонентная система со следующими концентрациями компонентов:  $0,575He + 0,425C_3H_8 - 0,574CH_4 + 0,426N_2O$  (концентрации компонентов даны в мольных долях). Эксперименты проводились в двухколбовом диффузионном аппарате при различных давлениях опыта и температуре 298,0 К. Продолжительность опытов один час. Объемы колб аппарата были одинаковы, каждый 62,0 см<sup>3</sup>, а длина и диаметр диффузионного канала равны 63,1 мм и 4,0 мм соответственно. Анализ смеси газов до диффузии проводился на интерферометре ИТР-1, а после диффузии – на хроматографе ХРОМ-4. Газ-носитель – гелий. Погрешность концентрации при анализе смеси составляет для интерферометрического метода – 0,1%, а хроматографического – 0,3%. Результаты экспериментов приведены на рисунке.

Рис. Изменение концентрации  $\text{C}_3\text{H}_8$  в верхней колбе аппарата

На рисунке представлено изменение концентрации пропана, перешедшего в верхнюю колбу в процессе диффузионного смешения из нижней колбы, в зависимости от давления опыта в системе  $0,575\text{He} + 0,425\text{C}_3\text{H}_8 - 0,574\text{CH}_4 + 0,426\text{N}_2\text{O}$ . На этом же рисунке для сравнения зависимости концентрации пропана в четырехкомпонентной смеси с закисью азота приведены экспериментальные данные для трехкомпонентной системы  $0,570\text{He} + 0,430\text{C}_3\text{H}_8 - 0,580\text{CH}_4 + 0,420\text{C}_3\text{H}_8$ , где пропан выступает балластным газом [6]. При неустойчивой диффузии в трехкомпонентной системе с балластным газом концентрация пропана растет в нижней колбе. Это приводит к появлению градиента концентрации газа-разбавителя (пропан) и возникает встречный (по отношению к конвективному) перенос его из нижней колбы в верхнюю.

На этом же рисунке приведены результаты теоретического расчета концентраций пропана, согласно уравнениям Стефана-Максвелла в предположении устойчивого процесса диффузии, когда преобладает молекулярный перенос [3,4].

Как видно из рисунка, сравнение экспериментальных данных с вычисленными значениями концентрации пропана в предположении устойчивого процесса диффузии (пунктирная ли-

ния) наблюдается неустойчивый диффузионный процесс. В этом случае концентрация балластного газа (пропан) увеличивается в нижней колбе диффузионного аппарата. Это следует из взаимного расположения пунктирной линии, полученной из расчета в предположении молекулярного массопереноса и экспериментальных точек, находящихся ниже. Следует также отметить, что интенсивность конвективного процесса до давления 5,0 атм для обеих систем остается постоянной.

Как было экспериментально обнаружено, при неустойчивом процессе смешения в системах с балластным газом может возникать не только направленное движение газовой смеси из верхней колбы в нижнюю, но и циркуляционные потоки. Для выяснения типа конвективного процесса в четырехкомпонентной смеси мы в нижней колбе заменили пропан на закись азота. Анализ результатов исследования показал, что до давления 5,0 атм интенсивность конвективного массопереноса постоянно, то есть наблюдается направленное движение балластного газа, а следовательно и всей смеси из верхней колбы диффузионного аппарата в нижнюю (см. рисунок). Начиная с давления 5,0 атм и до 8,0 атм, видим уменьшение концентрации про-

Таблица

Система	Концентрация компонентов после диффузии Верхняя колба / нижняя колба, мольные доли			
	He	C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	CH <sub>4</sub>	N <sub>2</sub> O
1. 0,430He + 0,570C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> – 0,420CH <sub>4</sub> + 0,580C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	0,5369	0,4110	0,482	-
	0,0330	0,4650	0,122	-
2. 0,425He + 0,575C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> – 0,426CH <sub>4</sub> + 0,574N <sub>2</sub> O	0,5142	0,3035	0,477	0,3410
	0,0437	0,1070	0,1198	0,0961

пана в верхней колбе в системе с балластным газом C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>, N<sub>2</sub>O. При этом же давлении для системы, где газ-разбавитель C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>, концентрация пропана остается практически постоянной. Это свидетельствует о циркуляционном движении пропана из верхней колбы в нижнюю и обратно. При давлении более 8,0 атм опять наблюдаем стабилизацию конвективного массопереноса. Повторяющийся конвективный поток, но возможно большей интенсивности, имеет направление из верхней колбы в нижнюю.

Количество перешедших компонентов в газовых смесях при неустойчивом диффузионном процессе при T = 298,0 К и P = 10 атм. Продолжительность опытов 1 час.

Из таблицы видно, что в первой системе (0,430He + 0,570C<sub>3</sub>H<sub>8</sub> – 0,420CH<sub>4</sub> + 0,580C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>) чистый перенос концентрации пропана в нижней колбе возросла всего на 0,054 мольных долей, а концентрация закиси азота во второй системе (0,425He + 0,575C<sub>3</sub>H<sub>8</sub> – 0,426CH<sub>4</sub> + 0,574N<sub>2</sub>O) изменилась почти на 0,24 мольных долей. Таким образом, если отождествить пропан в верхней колбе первой системы с закисью азота в этой же колбе второй системы, то количество пропана примерно - 0,1965 мольных долей, то есть эта разность концентраций весьма существенна, примерно 0,14 мольных долей которая, не улавливаясь из-за невозможности разделить пропан в верхней и нижней колбах аппарата.

Таким образом, исследование системы He + C<sub>3</sub>H<sub>8</sub> – CH<sub>4</sub> + N<sub>2</sub>O, показало, что при неустойчивом диффузионном процессе перенос закиси азота значительно превышает перенос пропана при диффузии смеси гелия и пропана в смесь метана и пропана, так как в этой системе невозможно разделить потоки пропана в противоположных направлениях. Это говорит о том, что в системе He + C<sub>3</sub>H<sub>8</sub> – CH<sub>4</sub> + C<sub>3</sub>H<sub>8</sub> во время неустойчивого процесса газа-разбавитель (пропан) циркулиру-

ет по диффузионному каналу из одной колбы в другую, непрерывно участвуя в процессе. В нижнюю колбу пропан переносится конвективным потоком, плотность которого больше средней плотности находящейся там смеси, а в верхнюю - потоком по плотности меньше средней плотности смеси. Из полученных данных следовало, что циркуляция балластного газа позволяет поддерживать нестабильный характер диффузии в течение продолжительного времени. При этом происходит как бы самоорганизация (самовоспроизведение) процесса. Такое самоподдержание продолжается до тех пор, пока основные диффундирующие газы (гелий и метан) при достаточной концентрации пропана будут способствовать формированию структур, приводящих к неустойчивой диффузии.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Айткожаев А.З., Жаврин Ю.И., Косов Н.Д. О переносе газа-разбавителя в трехкомпонентной системе в случае неустойчивого диффузионного процесса // Изв АН КазССР, серия физ. - мат. -1991. - №6. - С. 88 - 92.

2. Айткожаев А.З., Жаврин Ю.И., Косов В.Н., Косов Н.Д. Концентрационная конвекция в изотермических трехкомпонентных газовых смесях с балластным газом // Доклады НАН РК.-1993. -№2.-С. 21-26.

3. Toog H.L. Diffusion in three-component gas mixture // A.I.Ch.E Journal -1957 -V 3 N2 -P. 198-207.

4. Ивакин В.А., Суетин П.Е., Харин Г.С. О неустойчивости трехкомпонентной диффузии// Труды УПИ. №172. Свердловск, 1969. С. 154-156.

5. Асембаева М.К., Поярков И.В., Молдабекова М.С. Диффузионная неустойчивость в углеводородных газовых смесях. Тезисы докладов XII Всероссийская конференция по теплофизическим свойствам веществ. Москва. Россия. 7-10 октября, 2008. С.173-175.

6. Асембаева М.К., Поярков И.В. Исследование диффузионной неустойчивости в многокомпонентных газовых смесях с балластным газом. Тезисы докладов IX Всероссийской школы - конференции молодых ученых. Новосибирск. Изд-во ИТ СО РАН. Новосибирск, 17-21 ноября, 2008. – С. 17-20.

КазНУ им. аль-Фараби

Поступила 11.11.09 г.