

**Moldabekova M.S.¹, Asembaeva M.K.¹, Mukamedenkyzy V.¹,
Serik Z.¹, Poyarkov I.V.²**

¹Institute of experimental and theoretical physics at the Kazakh national
University al-Farabi, Almaty c., Kazakhstan

²National research Moscow state university of civil engineering,
Moscow c., Russia

ANALYSIS OF THE ONSET OF CONVECTION DURING DIFFUSIVE MIXING IN TREE-COMPONENT GAS MIXTURES WITH THE ADDITION OF PROPANE

Abstract. Diffusion processes in gases play an important role in many areas of Chemical Technology, aerodynamics, Astrophysics and Applied Physics. The study of diffusion phenomena in multicomponent gas mixtures at different pressures and temperatures makes it possible to understand the mechanisms of mass transfer between components and their effect on the final separation products. This study is aimed at describing the features of diffusion mixing of gases during the transition from molecular diffusion to the zone of concentration gravitational convection. This study is aimed at studying the processes of diffusion and convective mixing in tricomponent gas mixtures. According to the results of the study, it was found that convective flows significantly exceed molecular diffusion. The Biolab method was used, the diffusion mixing of tricomponent gas mixtures was analyzed and the formation of concentration convection in the diffusion cell channel in the gravity field was demonstrated. Mathematical models have been proposed to describe diffusion and convective mixing at different pressures and initial concentrations. In addition, the results of the study, which revealed the dependence of convective flows on pressure and temperature in the helium-propane-methane system, confirmed the violation of mechanical equilibrium. Conditions for the formation of diffusion stability in propane-hydrogen-carbon dioxide and propane-helium-carbon dioxide systems were considered. The results show the influence of thermodynamic parameters on the formation of diffuse mixing and convective flows. The study proves the possibility of Molecular and convection mixing in gas mixtures consisting of components with similar densities.

Keywords: diffusion, gases, mixtures, convection, concentration.

Introduction. Diffusion processes in gases are essential for solving a wide range of problems in chemical technology, aerodynamics, astrophysics, and other fields of applied physics. In particular, the analysis of diffu-

sion phenomena in multicomponent gas mixtures at various pressures and temperatures makes it possible to determine the specific features of the mass transfer mechanism between components and their influence on the final separation products. Such studies are also relevant for describing the characteristics of gas diffusion mixing during the transition from the molecular diffusion region to the region of concentration-driven gravitational convection.

As experimental studies of diffusive mixing in three-component systems in a gravitational field have shown [1], under certain conditions, convective flows arise, and their superposition with molecular transfer leads to diffusive instability, or, in other words, to a disruption of mechanical equilibrium. It should be noted that a state in which the acceleration ($\frac{du_0}{dt}=0$) is zero is considered to be in mechanical equilibrium. In diffusion processes, external forces can exert different effects on different components. Mechanical equilibrium is maintained not only in states with zero acceleration but also in those where the velocity gradient is insignificantly small, resulting in the viscous pressure tensor remaining very low.

The disruption of mechanical equilibrium in multicomponent gas mixtures is currently insufficiently studied from both theoretical and experimental perspectives.

The aim of this work is to investigate convective motions arising during diffusive mixing in a three-component gas system within a vertical diffusion channel. The obtained results will make it possible to assess the influence of various mixing conditions on the characteristics of the final separation products of mixtures, as well as to explore their internal properties.

Research method. For a deeper analysis of diffusion mechanisms using mathematical modeling, the concentration distribution of gas mixture components in the diffusion channel was examined under constant temperature and varying pressures.

Experimental studies of unstable diffusion in isothermal three-component gas mixtures have shown that the transition of the system from a stable to an unstable state is determined by the following parameters: the difference in diffusion coefficients of the components, pressure, initial mixture composition, different positioning of the initial gas mixtures relative to the channel, channel diameter and length, its orientation relative to the vertical, temperature, and the rotational frequency of the diffusion apparatus [2,3].

Under conditions of developed convection, the following effects were observed: the presence of intensity peaks dependent on pressure, multi-

ple transitions of the system from a stable to an unstable state, and anomalous enrichment of the gas mixture [4].

Based on experimental studies, it was shown that the occurrence of diffusive instability in three-component gas mixtures is associated with the fulfillment of a number of necessary conditions:

1) The binary gas mixture (1+2) is at the top, and the pure gas (3) is at the bottom, $p_2 > p_3 > p_1$; $p_{(1+2)} < p_3$; $D_{13} > D_{23}$;

2) The binary gas mixture (1+2) is at the bottom, and the pure gas (3) is at the top, $p_2 > p_3 > p_1$; $p_{(1+2)} < p_3$; $D_{13} > D_{23}$;

3) The binary gas mixture (1+2) is at the top, and another binary mixture (3+2) is at the bottom, $p_2 > p_3 > p_1$; $p_{(1+2)} < p_3$; $D_{12} > D_{23}$;

4) The binary gas mixture (1+2) and the pure gas (3) can be either at the top or at the bottom, $p_2 > p_3 > p_1$; $p_{(1+2)} < p_3$; $D_{13} > D_{23}$;

In this case, an unstable process is possible in any mixing direction, but only under certain parameters, particularly at different pressures.

Thus, in addition to the necessary conditions for the onset of convection during diffusive mixing, the following additional conditions must also be met:

1) The gas mixture must consist of components with diffusion coefficients that differ by several times;

2) The influence of pressure must be significant;

3) Instability arises within a specific range of component concentrations;

4) Instability can occur regardless of the initial arrangement of components in the diffusion apparatus;

5) Temperature affects the occurrence of instability;

6) Changes in the geometric parameters of the diffusion channel alter the conditions of the diffusion-convection transition;

7) Reducing the viscosity of the diffusion mixture may increase the likelihood of an unstable process.

Various kinetic, thermodynamic, and semi-empirical approaches are used to describe anomalous diffusion. In our view, the most effective method is to describe diffusive instability using linear stability theory, as this allows for the formulation of the most general criteria for determining the transition boundary between different regimes. Currently, this problem has been solved for liquids [5]. For gases, a solution exists only in the simplest case - for an infinite flat vertical slit and an infinite cylinder [6]. Of course, such a problem formulation does not fully correspond to experimental conditions, where confined diffusion channels are used. Neverthe-

less, the simple geometry of the channel makes it possible to obtain an analytical solution to the diffusion stability problem in a complex situation where two “thermodynamic forces” and two independent concentration gradients act simultaneously.

The transition between the «diffusion-concentration convection» regimes in three-component gas mixtures can be described using a system of hydrodynamic equations for turbulent parameters based on the Oberbeck-Boussinesq approximation [7].

During the transition from the diffusive to the convective regime, nonlinear isoconcentration lines are observed. The stable mixing time of the mixture is only a few seconds. If the mixing is unstable, transfer pulsations caused by the formation of convective structures can be recorded [8].

In the evolution process of finite disturbances, the type of convective motion is determined based on nonlinear equations.

In this case, the equation for the finite (significant) disturbance differs from that for small disturbances, as it retains certain elements ($u\bar{\nabla}u$) and $(u\bar{\nabla})c_1$.

Thus, the dimensionless equations for the infinite disturbance take the following form [9]:

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_1}{\partial t} + \frac{1}{Pr_{22}} \bar{u} \bar{\nabla} c_1 &= \frac{1}{Pr_{11}} \Delta c_1 + \frac{1}{Pr_{22}} \tau_{12} \Delta c_2 \\ \frac{\partial c_2}{\partial t} + \frac{1}{Pr_{22}} \bar{v} \bar{\nabla} c_2 &= \frac{A_1}{A_2} \frac{1}{Pr_{22}} \tau_{21} \Delta c_1 + \frac{1}{Pr_{22}} \Delta c_2 \\ \frac{\partial \bar{u}}{\partial t} + \frac{1}{Pr_{22}} \bar{\nabla} (\bar{u} \cdot \bar{u}) &= -\bar{\nabla} p + \Delta \bar{u} + (Ra_1 \tau_{11} c_1 + Ra_2 c_2) \bar{\gamma} \\ \text{div} \bar{v} &= 0 \end{aligned} \quad (1)$$

Criteria parameters: $Pr_{ii} = \frac{\nu}{D_{ii}} -$ Diffusion Prandtl number, $Ra_i = \frac{g \beta_i A_i H^4}{D_{22}^* \nu} -$ Partial Rayleigh number. Where, $A_i -$ Dimensionless initial concentration gradient of the i -th component, $\tau_{ii} = \frac{D_{ij}^*}{D_{22}}$ - Parameters defining the relationship between practical diffusion coefficients For this system of equations, appropriate initial and boundary conditions are formulated to accurately describe the physical scenario [10].

Results. To obtain a graphical representation of the mathematical model describing the instability of mechanical equilibrium in a diffusion channel, an algorithm was developed in Fortran. This algorithm employs

numerical methods to solve the system of equations (1). Based on the computed values, graphs characterizing convective diffusion were constructed using Tecplot 360 EX.

The study proposes a method for investigating the isothermal diffusion process in three-component gas mixtures with varying transport coefficient ratios within a vertical cylindrical channel through 2D modeling. Calculations were performed for systems $He + C_3H_8 - CH_4$, $C_3H_8 + H_2 - CO_2$, $C_3H_8 + He - CO_2$, with various molar fractions. For the first system, the parameters were set as follows: pressure $p = 0.8 \text{ MPa}$, temperature $T = 320.2 \text{ K}$, and a time step of 0.005 seconds. The length and radius of the channel were $L = 165 \cdot 10^{-3} \text{ m}$, $r = 3 \cdot 10^{-3} \text{ m}$.

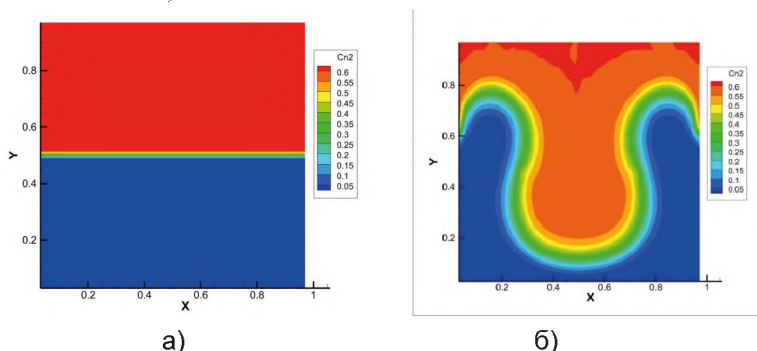


Figure 1 - $p = 0.8 \text{ MPa}$, $T = 320.2 \text{ K}$, The channel length is 165 mm, and the radius is 3 mm.

$0.4He + 0.6 C_3H_8 - CH_4$ for the system C_3H_8 were analyzed isoconcentration lines.

Figure 1a shows the initial state of the components. At this point, the concentration distribution of propane and methane remains unchanged, indicating the absence of a mixing process. In Figure 1b, 0.005 seconds after the start of the experiment, the onset of convection in the mixing process is already noticeable.

Figures 1, 2, and 3 present the results of the numerical experiment, describing the diffusion and convective mixing of a three-component gas mixture $0.4He + 0.6 C_3H_8 - CH_4$ at a given pressure 0.8 MPa and initial concentration over time.

The analysis of the study results shows that the violation of the mechanical equilibrium of the gas mixture leads to changes in the concentration distribution of the components over time (Figure 1). Depending on the experimental pressure, a significant increase in convective mixing is ob-

served over time, as evidenced by the further distortion of the isoconcentration lines (Figure 1). As a result, a complex structured flow is formed in three-component gas mixtures within a vertical channel, enhancing overall mass transfer under isothermal diffusion conditions.

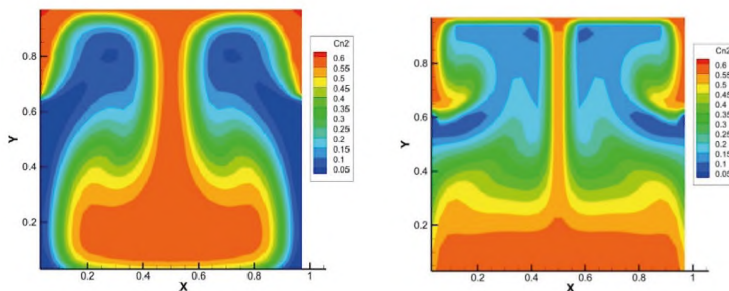


Figure 2 - $p=0.8 \text{ MPa}$, $T=320.2 \text{ K}$, The channel length is 165 mm, and the radius is 3 mm
 $0,4\text{He}+0,6\text{C}_3\text{H}_8-\text{CH}_4$ for the system C_3H_8 were analyzed isoconcentration lines

Further analysis of the isoconcentration lines of the diffusion process components in System $0,4\text{He}+0,6\text{C}_3\text{H}_8-\text{CH}_4$ revealed a pronounced instability phenomenon (Figure 2). The initial, slightly curved isoconcentration lines indicate the onset of convection. As the mixing time increases, along with the initial concentration of heavy components and the pressure, the curvature of the isoconcentration lines intensifies significantly. The results demonstrate that, at the early stage of convective flow development, the concentration distribution is highly dependent on the experiment's duration and pressure. As these parameters increase, the curvature of the isoconcentration lines acquires a complex nonlinear character. This confirms the emergence of more intense flows that accelerate component transfer. The development of convective flows in the diffusion channel leads to a disruption of the mechanical equilibrium state and the emergence of concentration gravitational convection during multicomponent diffusion. In this scenario, an unstable diffusion process is observed.

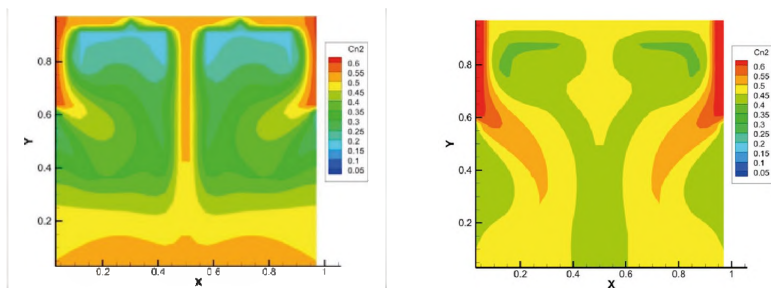


Figure 3 - $p=0.8$ МПа, $T=320.2$ K, the channel length is 165 mm, and the radius is 3 mm.

$0,4\text{He}+0,6\text{C}_3\text{H}_8-\text{CH}_4$ For the system C_3H_8 were analyzed isoconcentration lines.

As evident from the computational results presented in Figure 3, increasing pressure enhances the flow, as indicated by the significant curvature of the concentration lines.

Figures 1–3 demonstrate that convective mixing conditions in the system manifest within the initial seconds. It is shown that further pressure increases lead to intensified unstable diffusion regimes.

For the system $0,4\text{He}+0,6\text{C}_3\text{H}_8-\text{CO}_2$ figure 4 displays isoconcentration lines that remain uncurved, confirming the absence of convective disturbances during gas diffusion mixing; thus, the process remains stable. This temporal concentration distribution indicates that, under these pressures, the diffusion mixing process forms flows with low velocity and low average kinetic energy.

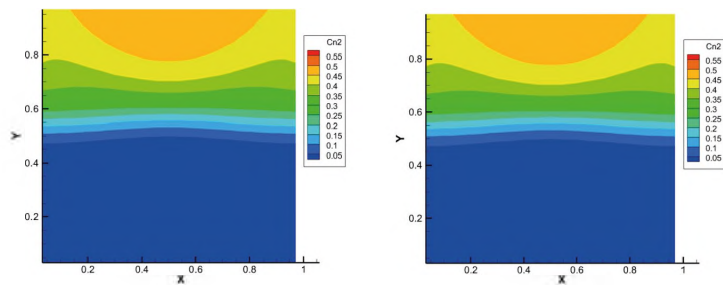


Figure 4 - $p=0.6$ МПа, $T=300$ K, The channel length is 165 mm, and the radius is 3 mm

$0,4\text{He}+0,6\text{C}_3\text{H}_8-\text{CO}_2$ for the system C_3H_8 were analyzed isoconcentration lines.

Based on the analysis of these three systems, it can be concluded that pressure is a significant factor influencing the diffusion process coupled with convection in the first system, while time plays a crucial role in the second and third systems. When varying the molar fraction and pressure, the process remained stable; however, increasing the time step could potentially reveal the onset of convective flow. It's important to note that the current version of the program lacks this capability. Additionally, it was found that similar molar masses of the heavy (C_3H_8) and intermediate (CO_2) components also impact the process. Notably, the gases used in all three systems are of significant technical importance.

Conclusion. Based on the research, the following conclusions can be drawn:

1. The analysis of experimental studies on diffusion in three-component gas mixtures showed that convective flows significantly exceed the corresponding molecular diffusion flows.

2. The diffusion mixing process of three-component gas mixtures was analyzed using the two-flask method. When the composition was unevenly distributed, concentration convection was observed in the diffusion channel under the influence of a gravitational field.

3. Mathematical modeling results were obtained, describing the diffusion and convective mixing of three-component gas mixtures $He+0,6 C_3H_8-CH_4$, $C_3H_8+H_2-CO_2$, $C_3H_8+He-CO_2$ at various pressures and initial concentrations.

4. In the helium-propane-methane system was found that under pressure $p=0,6-0,8 \text{ MPa}$ and temperature $T=300-320,2 \text{ K}$ convective flows occur during the diffusion mixing process under pressure and temperature conditions. The analysis of the obtained results confirmed the violation of mechanical equilibrium in the studied system, leading to the formation of a complex flow structure dependent on pressure, accompanied by molecular diffusion in the vertical channels of three-component gas mixtures.

5. In the propane-hydrogen-carbon dioxide and propane-helium-carbon dioxide systems: For the first system, this stability was at pressure $p=0,4-0,6 \text{ MPa}$ and temperature $T=285-300 \text{ K}$; for the second system, at specific pressure $p=0,4-1,0 \text{ MPa}$ and temperature $T=300-350 \text{ K}$ diffusion stability was observed.

6. The influence of thermodynamic parameters on the emergence of convective flows during the diffusion mixing process was confirmed.

7. As demonstrated in this study, in initially gravitationally stable gas mixtures consisting of components with similar densities, the mixing process can occur both at the molecular level and in a convective regime. These results can be determined either through costly experimental studies or using the numerical method presented in this work.

References

- 1 Zhavrin Y.I., Kosov N.D., Kulzhanov D.U., Fedorenko O.V. Experimental Methods for Studying Diffusion and Concentration Gravitational Convection Caused by Mechanical Equilibrium Instability in Multicomponent Gas Mixtures – Moscow, 2015. – 172 p.
- 2 P. E. Druet. A theory of generalized solutions for ideal gas mixtures with Maxwell-Stefan diffusion // Discrete and continuous: Dynamical systems series S Vol. 14, No 11, 2021. pp. 4035–4067 doi:10.3934/dcdss.2020458.
- 3 Kossov V., Fedorenko O., Asembaeva M., Mukamedenkzy V., Moldabekova M. Intensification of the separation of isothermal ternary gas mixtures containing carbon dioxide // Chem. Eng. Technol. – 2021. – Vol. 44, No. 11. – P. 2034 – 2040. DOI:10.1002/ceat.202100241.
- 4 Moldabekova M.S., Asembaeva M.K., Krasikov S.A., Nurtay G.F. Features of diffusion and convective mixing in mixtures containing hydrocarbons // Journal of Physics: Conference Series, 2020, 1565(1), 012063 (free access).
- 5 Kossov V.N., Krasikov S.A., Fedorenko O.V., Zhakebaev D.B., Asembaeva M.K. Experimental and numerical study of the peculiarities of multicomponent gas mixture separation under natural gravity convection // Proceedings of the International Conference «Modern Problems of Thermophysics and Energy» (Moscow, October 9-11, 2017): in 2 volumes. Vol. 1. – Moscow: Publishing House of MPEI, 2017. – pp. 228-230.
- 6 Moldabekova M.S., Krasikov S.A., Asembaeva M.K., Fedorenko O.V. Modeling the Separation of a Gas Mixture into Components Depending on Pressure // Proceedings of the International Scientific Conference Dedicated to the 80th Anniversary of Academician of the National Academy of Sciences of the Republic of Kazakhstan Abdildin M.M. Abdildin Readings: Current Issues of Modern Physics. April 12-15, Almaty / Edited by M.E. Abishev. – Almaty: Kazakh University, 2018. – pp. 234-238.
- 7 Zhavrin Y.I., Moldabekova M.S., Asembaeva M.K., Mukamedenkzy V., Nurmukhanova A.Z. Study of the Diffusion Process for a Mixture of Some Hydrocarbon Gases in Hydrogen // Bulletin of KazNITU, No. 1 (125). – Almaty: Satbayev University (KazNITU named after K.I. Satbayev), January 2018. – pp. 316-322.
- 8 Moldabekova M.S., Asembaeva M.K. Experimental Investigation of the Effect of Pressure on Separation of a Carbon Dioxide-Containing Gaseous Mixture // Journal of Engineering Physics and Thermophysics, 2019, 92(4), p. 872–876.
- 9 Kossov V., Fedorenko O., Asembaeva M., Mukamedenkzy V., Moldabekova M. Intensification of the Separation of Isothermal Ternary Gas Mixtures Containing Carbon Dioxide // Chemical Engineering and Technology, 2021, 44(11), pp. 2034–2040.
- 10 Kosov V.N., Fedorenko O.V., Asembaeva M.K., Mukamedenkzy V. Changing Diffusion-Convection Modes in Ternary Mixtures with a Diluent Gas // Theoretical Foundations of Chemical Engineering, 2020, 54(2), pp. 289–296.

**Молдабекова М.С.¹, Асембаева М.К.¹, Мукамеденқызы В.¹, З. Серік З.¹,
Поярков И.В.²**

¹Әл-Фараби атындағы Қазақ ұлттық университеті, Алматы қ., Қазақстан

²Ұлттық зерттеу Мәскеу мемлекеттік құрылыс университеті, Мәскеу қ.,
Ресей

ПРОПАН ҚОСЫЛҒАН ҮШКОМПОНЕНТТІ ГАЗ ҚОСПАЛАРЫНДА ДИФУЗИЯЛЫҚ АРАЛАСТЫРУ КЕЗІНДЕ КОНВЕКЦИЯНЫҢ ПАЙДА БОЛУЫНА ТАЛДАУ

Түйіндеме. Газдардағы диффузиялық процестер химиялық технология, аэродинамика, астрофизика және қолданбалы физиканың көптеген салаларында маңызды рөл атқарады. Әр түрлі қысымдар мен температуралардағы көпкомпонентті газ қоспаларындағы диффузиялық құбылыстарды зерттеу компоненттер арасындағы массаалмасу механизмдерін және олардың соңғы бөлу өнімдеріне әсерін түсінуге мүмкіндік береді. Бұл зерттеу молекулалық диффузиядан концентрациялық гравитациялық конвекция аймағына өту кезінде газдардың диффузиялық араласу ерекшеліктерін сипаттауға бағытталған. Бұл зерттеу үшкомпонентті газ қоспаларында диффузиялық және конвективтік араласу процестерін зерттеуге бағытталған.

Зерттеу нәтижелері бойынша конвективтік ағындардың молекулалық диффузиядан айтарлықтай асып түсетіні анықталды. Екіолбалық әдіс қолданылып, үшкомпонентті газ қоспаларының диффузиялық араласуы талданды және гравитация өрісіндегі диффузиялық ұяшық каналында концентрация конвекциясының қалыптасуы көрсетілді. Әртүрлі қысым мен бастапқы концентрацияларда диффузия мен конвективтік араласуды сипаттайтын математикалық модельдер ұсынылды. Сонымен қатар, Гелий-пропан-метан жүйесінде конвективтік ағындардың қысым мен температураға тәуелділігін анықтаған зерттеу нәтижелері механикалық тепе-теңдіктің бұзылуын растады. Пропан-сутек-көмірқышқыл газ және пропан-гелий-көмірқышқыл газ жүйелерінде диффузиялық орнықтылықтың пайда болу жағдайлары қарастырылды. Нәтижелер термодинамикалық параметрлердің диффузиялық араласу және конвективтік ағындардың пайда болуына әсерін көрсетеді. Зерттеу тығыздығы ұқсас компоненттерден тұратын газ қоспаларында молекулалық және конвекциялық араласудың мүмкіндігін дәлелдейді.

Түйінді сөздер: диффузия, газдар, қоспалар, конвекция, концентрация.

**Молдабекова М.С.¹, Асембаева М.К.¹, Мукамеденкызы В.¹, З.Серик З.¹,
Поярков И.В.²**

¹ Казахский Национальный университет имени аль-Фараби, г. Алматы, Казахстан

² Московский Государственный строительный университет, г. Москва, Россия

АНАЛИЗ ВОЗНИКНОВЕНИЯ КОНВЕКЦИИ ПРИ ДИФфуЗИОННОМ СМЕШИВАНИИ В ТРЕХКОМПОНЕНТНЫХ ГАЗОВЫХ СМЕСЯХ С ДОБАВЛЕНИЕМ ПРОПАНА

Аннотация. Диффузионные процессы в газах играют важную роль во многих областях химической технологии, аэродинамики, астрофизики и прикладной физики. Изучение диффузионных явлений в многокомпонентных газовых смесях при различных давлениях и температурах позволяет понять механизмы массообмена между компонентами и их влияние на конечные продукты разделения. Это исследование направлено на описание особенностей диффузионного перемешивания газов при переходе от молекулярной диффузии к области концентрационной гравитационной конвекции. Это исследование направлено на изучение процессов диффузионного и конвективного перемешивания в смесях из трехкомпонентных газов.

Результаты исследования показали, что конвективные потоки значительно превосходят молекулярную диффузию. Применен двухколесный метод, проанализировано диффузионное смешение смесей трехкомпонентных газов и показано формирование конвекции концентраций в канале диффузионных ячеек в гравитационном поле. Были предложены математические модели, описывающие диффузию и конвективное вмешательство при различных давлениях и начальных концентрациях. Кроме того, результаты исследования, выявившие зависимость конвективных потоков от давления и температуры в системе Гелий-пропан-метан, подтвердили нарушение механического равновесия. Рассмотрены случаи возникновения диффузионной устойчивости в системах Пропан-водород-углекислый газ и пропан-гелий-углекислый газ. Результаты показывают влияние термодинамических параметров на образование диффузионных и конвективных потоков. Исследование доказывает возможность молекулярного и конвекционного перемешивания в газовых смесях, содержащих компоненты аналогичной плотности.

Ключевые слова: диффузия, газы, смеси, конвекция, концентрация.

Information about the authors

Moldabekova Mayra Sametovna – Doctor of Pedagogical Sciences, Professor of the Department of Thermophysics and Technical Physics, Al-Farabi Kazakh National University, Almaty c., Kazakhstan, mairamold@mail.ru

Mukamedenkzy Venera – Candidate of Physical and Mathematical Sciences,

Associate Professor, Al-Farabi Kazakh National University, Almaty c., Kazakhstan, mukameden@inbox.ru

Asembaeva Mansia Kabylovna – Candidate of Physical and Mathematical Sciences, Associate Professor, Al-Farabi Kazakh National University, Almaty c., Kazakhstan, m.asembaeva@physics.kz

Poyarkov Igor Viktorovich – Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Associate Professor, Moscow State University of Civil Engineering, Moscow c., Russia, PoyarkovIV@mgsu.ru

Serik Zulina – doctoral student, Al-Farabi Kazakh National University, Almaty c., Kazakhstan, serik.zulina@mail.ru

Авторлар туралы мәліметтер

Молдабекова Майра Саметовна – Педагогика ғылымдарының докторы, термодизика және техникалық физика кафедрасының профессоры, Әл-Фараби атындағы Қазақ ұлттық университеті, Алматы қ., Қазақстан, mairamold@mail.ru

Мукамеденқызы Венера – физика-математика ғылымдарының кандидаты, қауымдастырылған профессор Әл-Фараби атындағы Қазақ ұлттық университеті, Алматы қ., Қазақстан, mukameden@inbox.ru

Асембаева Мансия Кабыловна – физика-математика ғылымдарының кандидаты, қауымдастырылған профессор Әл-Фараби атындағы Қазақ ұлттық университеті, Алматы қ., Қазақстан, m.asembaeva@physics.kz

Поярков Игорь Викторович – физика-математика ғылымдарының докторы, доцент, Мәскеу мемлекеттік құрылыс университеті, Мәскеу қ., Ресей, PoyarkovIV@mgsu.ru

Серік Зулина – докторант, Әл-Фараби атындағы Қазақ ұлттық университеті, Алматы қ., Қазақстан, serik.zulina@mail.ru

Сведения об авторах

Молдабекова Майра Саметовна – доктор педагогических наук, профессор кафедры теплофизики и технической физики, Казахский Национальный университет имени аль-Фараби, г. Алматы, Казахстан, mairamold@mail.ru

Мукамеденқызы Венера – кандидат физико-математических наук, ассоциированный профессор, Казахский национальный университет имени аль-Фараби, г. Алматы, Казахстан, mukameden@inbox.ru

Асембаева Мансия Кабыловна – кандидат физико-математических наук, ассоциированный профессор, Казахский национальный университет имени аль-Фараби, г. Алматы, Казахстан, m.asembaeva@physics.kz

Поярков Игорь Викторович – доктор физико-математических наук, доцент, Московский Государственный строительный университет г. Москва, Россия, PoyarkovIV@mgsu.ru

Серик Зулина – докторант, Казахский Национальный университет имени аль-Фараби, г. Алматы, Казахстан, serik.zulina@mail.ru

МАКАЛАНЫН АУДАРМАСЫ / ПЕРЕВОД СТАТЬИ

***Молдабекова М.С.¹, Асембаева М.К.¹, Мукамеденкызы В.¹,
Серик З.¹, Поярков И.В.²***

¹ Казахский Национальный университет имени аль-Фараби,
г. Алматы, Казахстан

² Московский Государственный строительный университет,
г. Москва, Россия

АНАЛИЗ ВОЗНИКНОВЕНИЯ КОНВЕКЦИИ ПРИ ДИФфуЗИОННОМ СМЕШИВАНИИ В ТРЕХКОМПОНЕНТНЫХ ГАЗОВЫХ СМЕСЯХ С ДОБАВЛЕНИЕМ ПРОПАНА

Введение. Диффузионные процессы в газах необходимы для решения широкого круга задач в химической технологии, аэродинамике, астрофизике и других областях прикладной физики. В частности, анализ диффузионных явлений в многокомпонентных газовых смесях при различных давлениях и температурах позволяет определить особенности механизма массообмена между компонентами и их влияние на конечные продукты разделения. Подобные исследования также актуальны для описания особенностей диффузионного смешивания газов при переходе от области молекулярной диффузии к области концентрационной гравитационной конвекции.

Как показали экспериментальные исследования диффузионного смешивания в трехкомпонентных системах в гравитационном поле [1], при определенных условиях возникают конвективные потоки, суперпозиция которых с молекулярным переносом приводит к диффузионной неустойчивости, или, иначе говоря, к нарушению механического равновесия. Следует отметить, что состояние, при котором ускорение ($\frac{du_0}{dt}=0$) равно нулю, находится в механическом равновесии. В диффузионных процессах внешние силы могут оказывать различное воздействие на разные компоненты. В механическом равновесии находятся не только состояния с нулевым ускорением, но и те, в которых градиент скоростей незначительно мал, а потому вязкостный тензор давления также остается очень малым.

Нарушение механического равновесия в многокомпонентных газо-

вых смесях в настоящее время недостаточно изучено как с теоретической, так и с экспериментальной точки зрения.

Целью данной работы является исследование конвективных движений, возникающих при диффузионном смешивании в трехкомпонентной газовой системе внутри вертикального диффузионного канала. Полученные результаты позволят оценить влияние различных условий смешивания на характеристики конечных продуктов разделения смесей, а также исследовать их внутренние свойства.

Метод исследования. Для более глубокого анализа механизмов диффузии с использованием математического моделирования рассмотрено распределение концентраций компонентов газовой смеси в диффузионном канале при постоянной температуре и различных давлениях.

Экспериментальные исследования неустойчивой диффузии в изотермических трехкомпонентных газовых смесях показали, что переход системы из устойчивого состояния в неустойчивое определяется следующими параметрами: разницей коэффициентов диффузии компонентов, давлением, исходным составом смеси, различным расположением начальных газовых смесей относительно канала, диаметром и длиной канала, его ориентацией относительно вертикали, температурой, а также частотой вращения диффузионного аппарата [2][3].

В условиях развитой конвекции были зафиксированы следующие эффекты: наличие максимумов интенсивности, зависящих от давления; многократный переход системы из устойчивого состояния в неустойчивое; аномальное обогащение газовой смеси [4].

На основе экспериментальных исследований показано, что возникновение диффузионной неустойчивости в трехкомпонентных газовых смесях связано с выполнением ряда необходимых условий:

1) бинарная газовая смесь (1+2) находится в верхней части, а чистый газ (3) в нижней части, $p_2 > p_3 > p_1$; $p_{(1+2)} < p_3$; $D_{13} > D_{23}$;

2) бинарная газовая смесь (1+2) находится в нижней части, а чистый газ (3) в верхней, $p_2 > p_3 > p_1$; $p_{(1+2)} < p_3$; $D_{13} > D_{23}$;

3) бинарная газовая смесь (1+2) в верхней части, бинарная смесь (3+2) в нижней части, $p_2 > p_3 > p_1$; $p_{(1+2)} < p_3$; $D_{12} > D_{23}$;

4) бинарная смесь газов (1+2) и чистый газ (3) могут находиться либо в верхней, либо в нижней части; $p_2 > p_3 > p_1$; $p_{(1+2)} < p_3$; $D_{13} > D_{23}$; в этом случае неустойчивый процесс возможен при любом направлении смешивания, но только при определенных параметрах, в частности, при различных давлениях.

Таким образом, помимо необходимых условий для возникновения конвекции при диффузионном смешивании, должны выполняться следующие дополнительные условия:

- 1) газовая смесь должна состоять из компонентов, коэффициенты диффузии которых различаются в несколько раз;
- 2) влияние давления должно быть значительным;
- 3) неустойчивость возникает в определённом диапазоне концентраций компонентов;
- 4) неустойчивость может наблюдаться независимо от начального расположения компонентов в диффузионном аппарате;
- 5) температура влияет на возникновение неустойчивости;
- 6) изменение геометрических параметров диффузионного канала изменяет условия диффузионно-конвекционного перехода;
- 7) при снижении вязкости диффузионной смеси вероятность возникновения неустойчивого процесса может увеличиваться.

Для описания аномальной диффузии используются различные кинетические, термодинамические и полуэмпирические подходы. Наиболее эффективным, на наш взгляд, является описание диффузионной неустойчивости с использованием методов теории линейной устойчивости, так как это позволяет сформулировать наиболее общие критерии для определения границы перехода от одного режима к другому. В настоящее время эта задача решена для жидкостей [5]. Для газов решение существует лишь в самом простом случае — для бесконечной плоской вертикальной щели и бесконечного цилиндра [6]. Разумеется, такая постановка задачи во многом не соответствует эксперименту, где используются ограниченные диффузионные каналы. Тем не менее, простая геометрия канала позволяет получить аналитическое решение задачи диффузионной устойчивости в сложной ситуации, когда одновременно действуют две «термодинамические силы» и два независимых концентрационных градиента.

Переход между режимами «диффузия-концентрационная конвекция» в трехкомпонентных газовых смесях можно описать с использованием системы гидродинамических уравнений для турбулентных параметров, основанной на приближении Обербека-Буссинеска [7].

При переходе от диффузионного к конвективному режиму наблюдаются нелинейные изоконцентрационные линии. Время устойчивого смешивания смеси составляет всего несколько секунд. Если смешивание нестабильно, можно зафиксировать пульсации переноса, вызванные формированием конвективных структур [8].

В процессе эволюции конечных возмущений тип конвективного движения определяется на основе нелинейных уравнений.

В этом случае уравнение конечного (не менее значимого) возму-

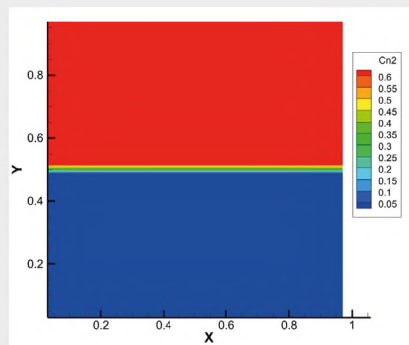
щения отличается от уравнения малых возмущений, так как здесь сохраняются элементы $(u \nabla u)$ и $(u \nabla) c_i$. Таким образом, безразмерные уравнения бесконечного возмущения принимают следующий вид [9]:

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_1}{\partial t} + \frac{1}{Pr_{22}} \vec{u} \nabla c_1 &= \frac{1}{Pr_{11}} \Delta c_1 + \frac{1}{Pr_{22}} \tau_{12} \Delta c_2 \\ \frac{\partial c_2}{\partial t} + \frac{1}{Pr_{22}} \vec{v} \nabla c_2 &= \frac{A_1}{A_2} \frac{1}{Pr_{22}} \tau_{21} \Delta c_1 + \frac{1}{Pr_{22}} \Delta c_2 \\ \frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + \frac{1}{Pr_{22}} \nabla (\vec{u} \cdot \vec{u}) &= -\nabla p + \Delta \vec{u} + (Ra_1 \tau_{11} c_1 + Ra_2 c_2) \vec{y} \\ \text{div} \vec{v} &= 0 \end{aligned} \quad (1)$$

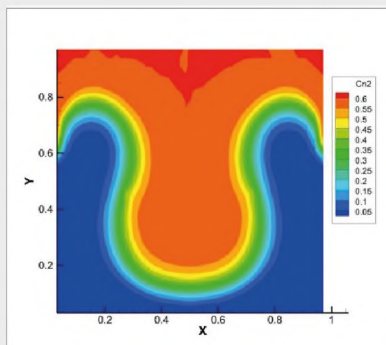
Критериальные параметры: $Pr_{ii} = \frac{\nu}{D_{ii}^*}$ – диффузионное число Прандтля, $Ra_i = \frac{g \beta_i A_i H^4}{D_{zz}^* \nu}$ – парциальное число Рэлея. Где, A_i – безразмерный начальный градиент концентрации i -го компонента, $\tau_{ij} = \frac{D_{ij}^*}{D_{22}^*}$ – параметры, определяющие соотношение между практическими коэффициентами диффузии. Для данной системы уравнений формулируются начальные и граничные условия [10].

Результаты. Для получения графического представления математической модели, описывающей неустойчивость механического равновесия в диффузионном канале, был написан алгоритм на языке программирования Fortran с использованием численного метода решения системы уравнений (1). На основе вычисленных значений в программе Tecplot 360 EX были построены графики, характеризующие конвективную диффузию.

В работе предложен метод исследования диффузионного изотермического процесса в трехкомпонентных газовых смесях с различными соотношениями коэффициентов переноса в вертикальном цилиндрическом канале с помощью 2D-моделирования. Вычисления проводились для систем $He + C_3H_8 - CH_4$, $C_3H_8 + H_2 - CO_2$, $C_3H_8 + He - CO_2$ с различными молярными долями. Для первой системы были заданы параметры: давление $p = 0.8$ МПа, температура $T = 320.2$ К, временной шаг 0,005 с. Длина и радиус канала составляли $L = 165 \cdot 10^{-3}$ м, $r = 3 \cdot 10^{-3}$ м.



а)



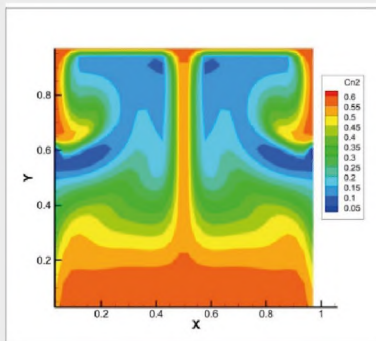
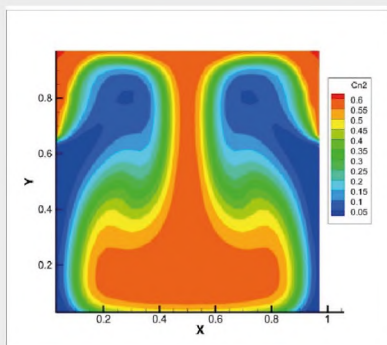
б)

1-рисунок. $p=0.8$ МПа, $T=320.2$ К, длина канала 165 мм, радиус 3 мм
 $0,4\text{He}+0,6\text{C}_3\text{H}_8-\text{CH}_4$ для системы C_3H_8 изоконцентрационные линии

На рисунке 1а показано начальное состояние компонентов. В этот момент распределение концентраций пропана и метана остается неизменным, что свидетельствует об отсутствии процесса смешивания. На рисунке 1б, через 0,005 секунды после начала эксперимента, уже заметно возникновение конвекции в процессе смешивания.

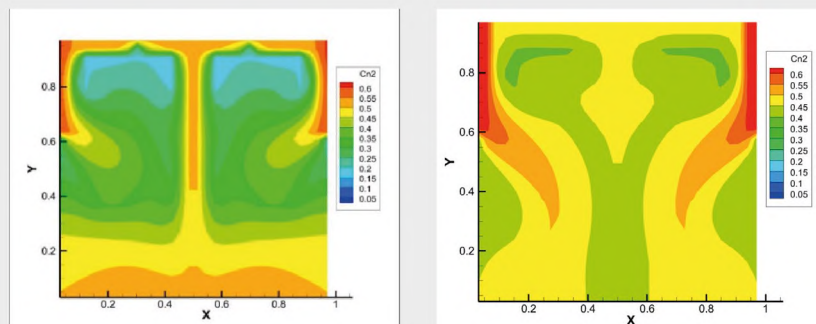
На рисунках 1, 2 и 3 представлены результаты численного эксперимента, описывающие диффузию и конвективное смешивание трехкомпонентной газовой смеси $0,4\text{He}+0,6\text{C}_3\text{H}_8-\text{CH}_4$ при давлении 0,8 МПа и заданной начальной концентрации в разное время.

Анализ результатов исследования показывает, что нарушение механического равновесия газовой смеси приводит к изменению распределения концентраций компонентов во времени (рис. 1). В зависимости от давления эксперимента со временем наблюдается значительное усиление конвективного смешивания, что подтверждается дальнейшим искривлением изоконцентрационных линий (рис. 1). В результате в трехкомпонентных газовых смесях в вертикальном канале формируется сложный структурированный поток, усиливающий общий массообмен в условиях изотермической диффузии.



2-рисунок. - $p=0.8$ МПа, $T=320.2$ К, Длина канала 165 мм, радиус 3 мм
 $0,4\text{He}+0,6\text{C}_3\text{H}_8-\text{CH}_4$ для системы C_3H_8 изоконцентрационные линии

Дальнейшее исследование изоконцентрационных линий компонентов процесса диффузии в системе $0,4\text{He}+0,6\text{C}_3\text{H}_8-\text{CH}_4$ показало наличие ярко выраженного характерного процесса неустойчивости (рисунок 2). Начальные слабо выраженные искривления изоконцентрационных линий указывают на зарождение конвекции. С увеличением времени смешивания, ростом начальной концентрации тяжелых компонентов и повышением давления искривление изоконцентрационных линий значительно усиливается. Из результатов видно, что на начальном этапе развития конвективного потока распределение концентрации существенно зависит от времени эксперимента и давления. По мере их увеличения искривление изоконцентрационных линий приобретает сложный нелинейный характер. Это подтверждает появление более интенсивных потоков, ускоряющих перенос компонентов. Развитие конвективных потоков в диффузионном канале приводит к нарушению состояния механического равновесия и возникновению концентрационной гравитационной конвекции при многокомпонентной диффузии. В этом случае наблюдается неустойчивый диффузионный процесс.

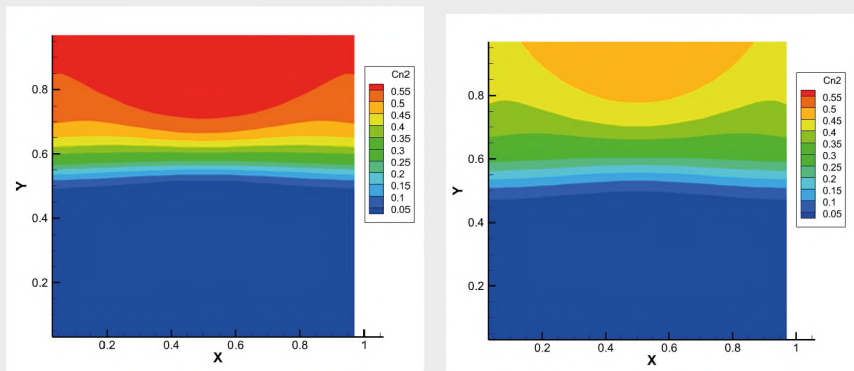


3-рисунок - $p=0.8$ МПа, $T=320.2$ К, длина канала 165 мм, радиус 3 мм $0,4\text{He}+0,6\text{C}_3\text{H}_8-\text{CH}_4$ для системы C_3H_8 изоконцентрационные линии

Как видно из результатов вычислений, представленных на рисунке 3, увеличение давления способствует усилению потока, что подтверждается значительным искривлением линий концентрации.

Из рисунков 1–3 было установлено, что условия конвективного смешивания в системе реализовались с первых секунд. Показано, что дальнейшее увеличение давления приводит к усилению интенсивности неустойчивого диффузионного режима.

Для системы $0,4\text{He}+0,6\text{C}_3\text{H}_8-\text{CO}_2$ на рисунке 4 изоконцентрационные линии не были изогнутыми, что подтверждает отсутствие конвективных возмущений в процессе диффузионного смешивания газа, то есть процесс оставался стабильным. Такое распределение концентрации компонента во времени свидетельствует о том, что при данных давлениях в процессе диффузионного смешивания формируются потоки с низкой скоростью и низкой средней кинетической энергией.



4-рисунок. - $p=0.6$ МПа, $T=300$ К, длина канала 165 мм, радиус 3 мм
 $0,4\text{He}+0,6\text{C}_3\text{H}_8\text{-CO}_2$ для системы C_3H_8 изоконцентрационные линии

По этим трём системам можно сделать вывод, что одним из важных факторов для протекания диффузионного процесса совместно с конвекцией является давление для первой системы, а для второй и третьей – время. Поскольку при изменении мольной доли и давления мы лишь наблюдали стабильность процесса, можно заключить, что при увеличении временного шага можно было бы убедиться в появлении конвективного потока. Однако в текущей версии программы такая возможность отсутствует. Кроме того, было установлено, что близкие значения молярных масс тяжёлого (C_3H_8) и среднего (CO_2) компонентов также оказывают влияние на процесс. Следует отметить, что газы, использованные в трёх системах, являются технически важными.

Заключение. На основе исследования можно сделать следующие выводы:

1 Анализ экспериментальных исследований диффузии в трёхкомпонентных газовых смесях показал, что конвективные потоки значительно превышают соответствующие потоки молекулярной диффузии.

2 В двухколбовом методе проанализирован процесс диффузионного смешивания трёхкомпонентных газовых смесей, и при неравномерном распределении состава выявлена концентрационная конвекция в диффузионном канале в гравитационном поле.

3 Получены результаты математического моделирования, описывающие диффузию и конвективное смешивание трёхкомпонентных

газовых смесей $He+0,6 C_3H_8-CH_4$, $C_3H_8+H_2-CO_2$, $C_3H_8+He-CO_2$ при различных давлениях и начальных концентрациях.

4 В системе гелий-пропан-метан было выявлено, что при давлении $p=0,6-0,8$ МПа и температуре $T=300-320,2$ К возникают конвективные потоки в процессе диффузионного смешивания. Анализ полученных результатов подтвердил нарушение механического равновесия в исследуемой системе, что приводит к формированию сложной структуры потока, зависящей от давления, и сопровождается молекулярной диффузией в вертикальных каналах трёхкомпонентных газовых смесей.

5 В системах пропан-водород-углекислый газ и пропан-гелий-углекислый газ: для первой системы при давлении $p=0,4-0,6$ МПа и температуре $T=285-300$ К; для второй системы при давлении $p=0,4-1,0$ МПа и температуре $T=300-350$ К наблюдалась диффузионная устойчивость.

6 Подтверждено влияние термодинамических параметров на возникновение конвективных потоков в процессе диффузионного смешивания.

7 Как показано в этом исследовании, в первоначально гравитационно устойчивых газовых смесях, состоящих из компонентов с близкой плотностью, процесс смешивания может протекать как на молекулярном уровне, так и в конвективном режиме. Эти результаты можно определить либо с помощью дорогостоящих экспериментальных исследований, либо с использованием численного метода, представленного в данной работе.

Список литературы

- 1 Жаврин Ю.И., Косов Н.Д., Кульжанов Д.У., Федоренко О.В. Экспериментальные методы исследования диффузии и концентрационной гравитационной конвекции, вызванной неустойчивостью механического равновесия в многокомпонентных газовых смесях – М., 2015. – 172 с.
- 2 Druet P. E. A theory of generalized solutions for ideal gas mixtures with Maxwell-Stefan diffusion // Discrete and continuous: Dynamical systems series S Vol. 14, No 11, 2021. pp. 4035–4067 doi:10.3934/dcdss.2020458
- 3 Kossov V., Fedorenko O., Asembaeva M., Mukamedenkyzy V., Moldabekova M. Intensification of the separation of isothermal ternary gas mixtures containing carbon dioxide // Chem. Eng. Technol. – 2021. – Vol. 44, No. 11. – P. 2034 – 2040. DOI: 10.1002/ceat.202100241.
- 4 Moldabekova M.S., Asembaeva M.K., Krasikov S.A., Nurtay G.F. Features of diffusion and convective mixing in mixtures containing hydrocarbons. Journal of Physics: Conference Series, 2020, 1565(1), 012063 (Открытый доступ)
- 5 Kossov V.N., Krasikov S.A., Fedorenko O.V., Zhakebaev D.B., Asembaeva M.K. Experimental and numerical study of the peculiarities of multicomponent gas mixture separation under natural gravity convection // Материалы Международной конференции «Современные проблемы теплофизики и энергетики» (Москва 9-11 октября, 2017 г): в 2 т. Т. 1. – М.: Изд-кий дом МЭИ, 2017. – С. 228-230.
- 6 Молдабекова М.С., Красиков С.А. Асембаева М.К., Федоренко О.В. Моделирование разделения газовой смеси на компоненты в зависимости от давления // Материалы международной научной конференции, посвященной 80-летию академика НАН РК Абдильдина М.М. Абдильдинские чтения: Актуальные проблемы современной физики. 12-15 апреля, г.Алматы / под ред.М.Е. Абишева. – Алматы: Қазақ университеті, 2018.- С. 234-238.
- 7 Жаврин Ю.И., Молдабекова М.С., Асембаева М.К., Мукамеденкызы В., Нурмуханова А.З. Изучение диффузионного процесса для смеси некоторых углеводородных газов в водород // ВЕСТНИК КазННТУ, №1 (125).- Алматы: КазННТУ имени К.И. Сатпаева, январь, 2018.- С. 316 -322.
- 8 Moldabekova M.S., Asembaeva M.K., Fedorenko O.V. Experimental Investigation of the Effect of Pressure on Separation of a Carbon Dioxide-Containing Gaseous Mixture // Journal of Engineering Physics and Thermophysics, 2019, 92(4), p. 872–876.
- 9 Kossov V., Fedorenko O., Asembaeva M., Mukamedenkyzy V., Moldabekova M. Intensification of the Separation of Isothermal Ternary Gas Mixtures Containing Carbon Dioxide. Chemical Engineering and Technology, 2021, 44(11), стр. 2034–2040.
- 10 Kosov V.N., Fedorenko O.V., Asembaeva M.K., Mukamedenkyzy V. Changing Diffusion–Convection Modes in Ternary Mixtures with a Diluent Gas. Theoretical Foundations of Chemical Engineering, 2020, 54(2), стр. 289–296.