

## КОНВЕКТИВНАЯ ДИФФУЗИЯ К РЕАГИРУЮЩЕЙ ТВЕРДОЙ СФЕРЕ В СТОКСОВОМ ПОТОКЕ

Ю. А. Сергеев

(Москва)

Решение задачи о конвективной диффузии к реагирующей твердой сфере было получено ранее [1] для малых чисел Пекле и Рейнольдса и конечных скоростей реакции методом сращиваемых асимптотических разложений. В данной работе задача о диффузионном потоке на твердую сферу в стоксовом потоке при конечных скоростях химической реакции первого порядка на поверхности сферы решена для больших чисел Пекле. Метод решения аналогичен примененному в [2] к задаче о конвективной диффузии к реагирующей плоской пластине, продольно обтекаемой потоком вязкой жидкости.

Рассматривается конвективная диффузия вещества к твердой сфере, обтекаемой стоксовым потоком вязкой несжимаемой жидкости со скоростью  $U$  вдали от сферы. Предполагается, что числа Пекле  $P = aU / D$  велики ( $a$  — радиус сферы,  $D$  — коэффициент диффузии вещества в потоке). На поверхности сферы протекает химическая реакция первого порядка с константой скорости  $k$ .

Процесс конвективной диффузии при больших числах Пекле описывается уравнением диффузионного пограничного слоя, которое в сферической системе координат  $(r, \theta)$ , связанной с центром сферы (полярная ось направлена против скорости потока на бесконечности), имеет вид

$$(1) \quad v_r \frac{\partial c}{\partial r} + \frac{v_\theta}{r} \frac{\partial c}{\partial \theta} = D \frac{\partial^2 c}{\partial r^2}$$

Здесь  $v_r$  и  $v_\theta$  — радиальная и угловая компоненты скорости в сферической системе координат.

Граничными условиями для уравнения (1) служат

$$(2) \quad \begin{aligned} r \rightarrow \infty, \quad c &= c_0 \\ r = a, \quad D \frac{\partial c}{\partial r} &= kc \\ r = a, \quad \theta = 0, \quad c &= c_0 \end{aligned}$$

Здесь  $c_0$  — концентрация реагента вдали от сферы; последнее условие (2) представляет собой дополнительное условие необедненности потока в точке набегания.

Функцию тока в диффузионном пограничном слое (при малых  $y = r - a$ ) запишем в виде

$$\begin{aligned} \psi &\approx -\frac{3}{4} U y^2 \sin \theta \\ \left( v_\theta = -\frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial \psi}{\partial y}, \quad v_r = \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial \psi}{\partial \theta} \right) \end{aligned}$$

Введем переменные

$$(3) \quad \varphi = \sqrt{-\psi}, \quad \xi = \int_0^\theta Da^2 \frac{\sqrt{3U}}{4} \sin^2 \theta d\theta = \\ = Da^2 \frac{\sqrt{3U}}{8} \left( \theta - \frac{\sin 2\theta}{2} \right)$$

В переменных  $(\varphi, \xi)$  задача (1), (2) принимает вид

$$(4) \quad \frac{\partial c}{\partial \xi} = \frac{1}{\varphi} \frac{\partial^2 c}{\partial \varphi^2}, \quad \varphi \rightarrow \infty, \quad c = c_0 \\ \varphi = 0, \quad D\xi(\xi) \frac{\partial c}{\partial \varphi} = kc \quad \left( \xi(\xi) \equiv \frac{\sqrt{3U}}{2} \sin \theta \right) \\ \varphi = 0, \quad \xi = 0, \quad c = c_0$$

Здесь функция  $\xi(\xi)$  определяется обращением преобразования (3) для  $\xi$ .

Решение задачи (4) аналогично решению задачи [2] о конвективной диффузии к реагирующей плоской пластине, продольно обтекаемой потоком вязкой жидкости, и приведено в приложении к данной работе.

Диффузионный поток на поверхность сферы определяется, как следует из второго граничного условия (4) и приложения, выражением

$$(5) \quad j(\xi, 0) = j(\theta, 0) = \frac{kc_0}{\Gamma(2/3)} \int_0^\infty \exp(-\gamma t^{2/3}) e^{-t^{-1/3}} dt$$

Здесь

$$(6) \quad \gamma = \frac{3^{2/3} \Gamma(1/3) \xi^{1/3}}{2D\xi(\xi)} = \varepsilon \frac{(\theta - 1/2 \sin 2\theta)^{1/3}}{\sin \theta} \\ \varepsilon = \frac{3^{1/3} \Gamma(1/3) ka^{2/3}}{2D^{2/3} U^{1/3} \Gamma(2/3)}$$

Выражение (5) для дифференциального потока можно представить в виде ряда по  $\gamma$ , сходящегося при любых  $\gamma$  [2]

$$(7) \quad j(\theta, 0) = \frac{kc_0}{\Gamma(2/3)} \left\{ \sum_{n=0}^N \frac{(-1)^n}{n!} \Gamma\left(\frac{2+2n}{3}\right) \gamma^n + \right. \\ \left. + \frac{1}{(N+1)!} \Gamma\left(\frac{4+2N}{3}\right) \gamma^{N+1} S_{N+1} \right\}, \quad S_{N+1} = O(1)$$

Однако этот ряд сходится чрезвычайно медленно уже при  $\gamma \gtrsim 1$ , поэтому целесообразно пользоваться рядом (7) лишь для малых  $\gamma$ . При больших  $\gamma$ , записывая выражение для дифференциального потока аналогично [2] при помощи замены  $\gamma t^{2/3} = u$  в виде

$$(8) \quad j(\theta, 0) = \frac{3}{2} \frac{kc_0}{\gamma} \frac{1}{\Gamma(2/3)} \int_0^\infty \exp\left[-\left(\frac{u}{\gamma}\right)^{3/2}\right] e^{-u} du$$

и разлагая подынтегральное выражение в ряд по  $\gamma^{-3/2}$ , получим представ-

ление дифференциального потока в виде следующего ряда:

$$(9) \quad j(\theta, 0) = \frac{3^{3/2} c_0 D^{2/3} U^{1/3} \sin \theta}{\Gamma(1/3) a^{2/3} (\theta - 1/2) \sin 2\theta)^{1/3}} \left\{ \sum_{n=0}^N \frac{(-1)^n}{n!} \Gamma\left(\frac{2+3n}{2}\right) \gamma^{-3/2n} + \right. \\ \left. + \frac{1}{(N+1)!} \Gamma\left(\frac{5+3N}{2}\right) \gamma^{-3/2(N+1)} R_{N+1} \right\}, \quad R_{N+1} = O(1)$$

Полученные результаты свидетельствуют о том, что при любой конечной константе скорости реакции в окрестности передней критической точки лимитирующей стадией процесса массообмена является химическая реакция, а в окрестности задней критической точки лимитирующей стадией является конвективная диффузия вещества к поверхности сферы. В промежуточной области имеет место смешанный режим, что учитывается полученными выше разложениями. С ростом константы скорости реакции область поверхности сферы, работающая в диффузионном режиме, растет. При  $k \rightarrow \infty$  ( $\gamma \rightarrow \infty$ ) вся поверхность сферы работает в диффузионном режиме и выражение (9) совпадает с полученным в [2] для предельного диффузионного потока на сферу. При  $k \rightarrow 0$  вся поверхность сферы работает в кинетическом режиме и  $j(\theta, 0) = kc_0$ .

Перейдем теперь к определению полного потока  $I$  на поверхность сферы. Среднее число Шервуда  $Sh = I / (4\pi a D c_0)$  выражается, как следует из (5) и (8), любым из двух интегралов

$$(10) \quad Sh = \frac{1}{3^{1/2} \Gamma(1/3)} \varepsilon^{P^{1/2}} \int_0^\infty \left\{ \int_0^\pi \exp[-\gamma(\theta) t^{3/2}] \sin \theta d\theta \right\} e^{-t} t^{-1/2} dt$$

$$(11) \quad Sh = \frac{3^{3/2}}{2\Gamma(1/3)} P^{1/2} \int_0^\infty \left\{ \int_0^\pi \frac{\sin \theta}{(\theta - 1/2 \sin 2\theta)^{1/3}} \times \right. \\ \left. \times \exp\left[-\left(\frac{u}{\gamma(\theta)}\right)^{3/2}\right] \sin \theta d\theta \right\} e^{-u} du$$

Зависимость числа Шервуда от параметра  $\varepsilon$ , полученная численным расчетом интегралов (10) и (11), приведена на фиг. 1. Здесь  $Sh_0 = [3^{3/2} \pi^{2/3} / (8\Gamma(1/3))] P^{1/2}$  — число Шервуда для предельного потока на сферу, вычисленное в [2].

При больших скоростях реакции, т. е. при большом значении параметра  $\varepsilon$ , полный поток удастся представить в виде ряда по степеням  $\varepsilon^{-3/2}$ . Воспользуемся для этого интегралом (11), разложив в нем экспоненту по степеням  $\varepsilon^{-3/2}$ . Полученный таким образом во внутреннем интеграле (11) ряд сходится равномерно по  $\theta$  и может быть проинтегрирован по  $\theta$  почленно. Выполняя почленное интегрирование также и во внешнем интеграле (11), получим ряд

$$(12) \quad \frac{3^{3/2}}{2\Gamma(1/3)} P^{1/2} \sum_{n=0}^{\infty} \varepsilon^{-3/2n} J_n \\ J_n = \frac{1}{n!} \Gamma\left(\frac{2+3n}{2}\right) \int_0^\pi \left[ \frac{\sin \theta}{(\theta - 1/2 \sin 2\theta)^{1/3}} \right]^{1+3/2n} \sin \theta d\theta$$

Легко доказать, что ряд (12) сходится к интегралу (11), и получить оценку остаточного члена  $Q_{N+1}$  ряда  $J_0 + J_1 + \dots$  в виде

$$|Q_{N+1}| < \varepsilon^{-3/2(N+1)} \frac{\Gamma(5/2 + 3/2N)}{(N+1)!}$$

Задача сводится к вычислению интегралов  $J_n$ . Полученные результаты удобно представить в виде разложения среднего числа Шервуда по параметру  $\varepsilon^{-1/2}$ . Вычисление шести интегралов  $J_n$  приводит к следующему разложению:

$$(13) \quad \text{Sh} = \text{Sh}_0 (1 - 1.135\varepsilon^{-1/2} + 2.415\varepsilon^{-3} - \\ - 1.167\varepsilon^{-5/2} + 24.87\varepsilon^{-6} - 205.4\varepsilon^{-13/2} + \\ + \varepsilon^{-9}\pi^{1/2} \frac{4\Gamma(10)}{3 \cdot 6!} T_6), \quad T_6 < 1$$

Зависимость (13) числа Шервуда от параметра  $\varepsilon$  при больших значениях последнего приведена пунктиром на фиг. 1. Отметим, что некоторое расхождение результатов, полученных расчетом ряда (13), с вычисленными при помощи интегралов (10) и (11) обусловлено медленной сходимостью ряда (13).

При малых  $\varepsilon$  получить разложение интеграла (10) по  $\varepsilon$  не удастся. Математически это связано с наличием в подынтегральном выражении внутреннего интеграла (10) особенности в окрестности точки  $\pi$  вида  $\exp\{-\varepsilon V / (\pi - \theta)\}(\pi - \theta)$  и связанной с этим неравномерной сходимостью ряда, полученного разложением экспоненты. Физически это обусловлено тем, что при малых скоростях реакции (малых  $\varepsilon$ ) тем не менее существует область в окрестности точки  $\theta = \pi$ , работающая в диффузионном режиме, где  $\gamma(\theta)$  может стать сколь угодно большим. Легко показать, что в этом случае область малых  $\gamma$  (почти кинетический режим) и область больших  $\gamma$  (почти диффузионный режим) вносят в полный поток вклады одного и того же порядка  $O(\varepsilon)$ , в отличие от случая больших  $\varepsilon$ , где вклад кинетической области в полный поток пренебрежимо мал.

Область поверхности сферы, соответствующую переходу от кинетического к диффузионному режиму, можно оценить из соотношения  $\gamma(\theta^*) = O(1)$ . На фиг. 1 заштрихована область углов  $\theta^*$ , соответствующая смешанной кинетике; здесь  $I$  — кинетическая область,  $II$  — диффузионная.

Полученные выше результаты позволяют оценить также эффективную толщину диффузионного пограничного слоя  $\delta = D(c_0 - c_{r=a}) / j_{r=a}$  при различных  $\varepsilon$ . Используя разложения (7), (9) и второе граничное условие (2), можно показать, что

$$\delta = 1.08P^{-1/2} (\theta - 1/2 \sin 2\theta)^{1/2} / \sin \theta, \quad \varepsilon \rightarrow \infty \\ \delta = 0.78P^{-1/2} (\theta - 1/2 \sin 2\theta)^{1/2} / \sin \theta, \quad \varepsilon \rightarrow 0$$

Первая из приведенных формул совпадает с полученной в [2] для толщины диффузионного пограничного слоя в случае предельного потока.

Видно, что в случае кинетического режима пограничный слой несколько тоньше, чем для диффузионного. Численный расчет интегралов (5) и (8) показывает, что в промежуточной области значений  $\varepsilon$  толщина пограничного слоя возрастает с увеличением  $\varepsilon$ .

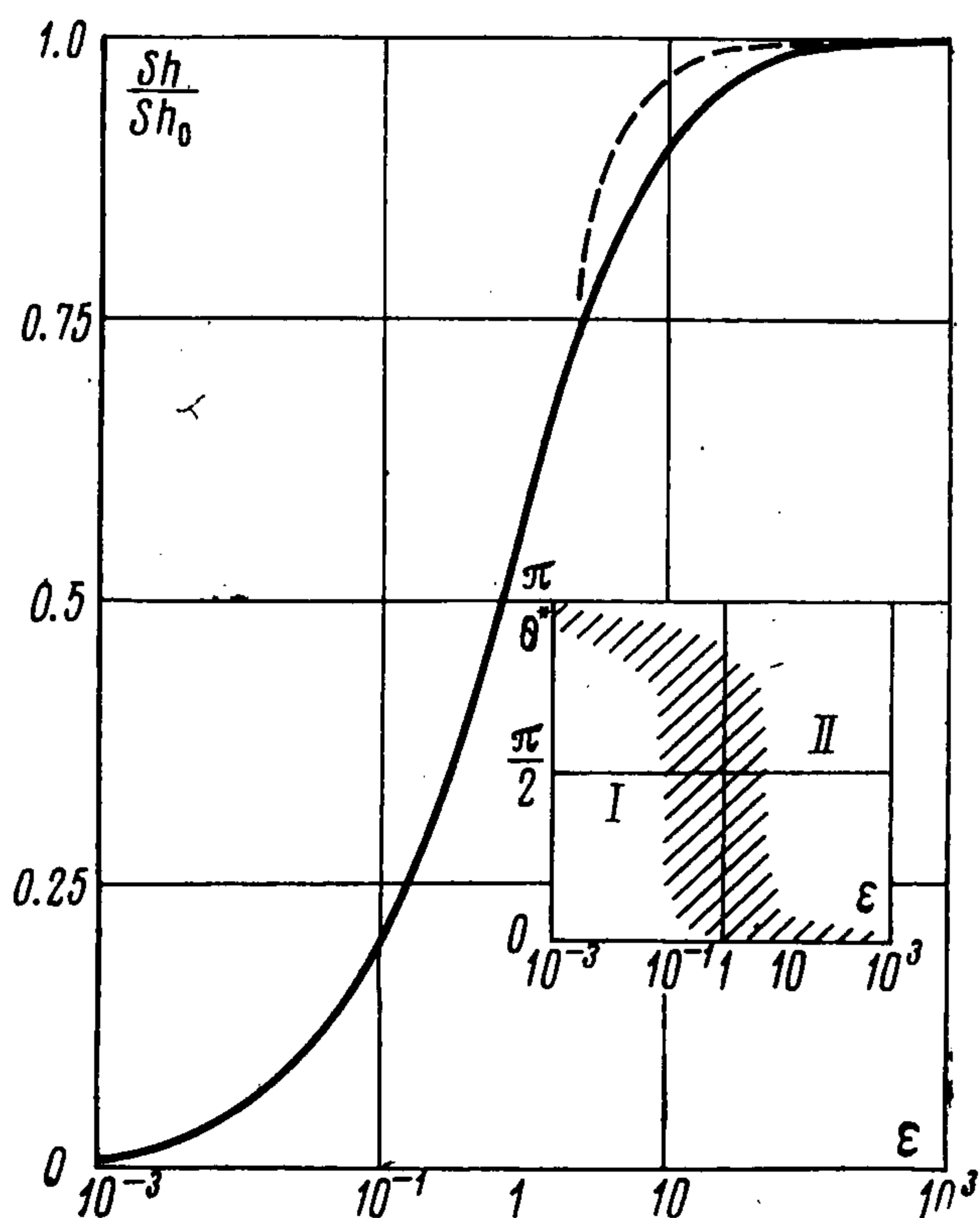


Рис. 1

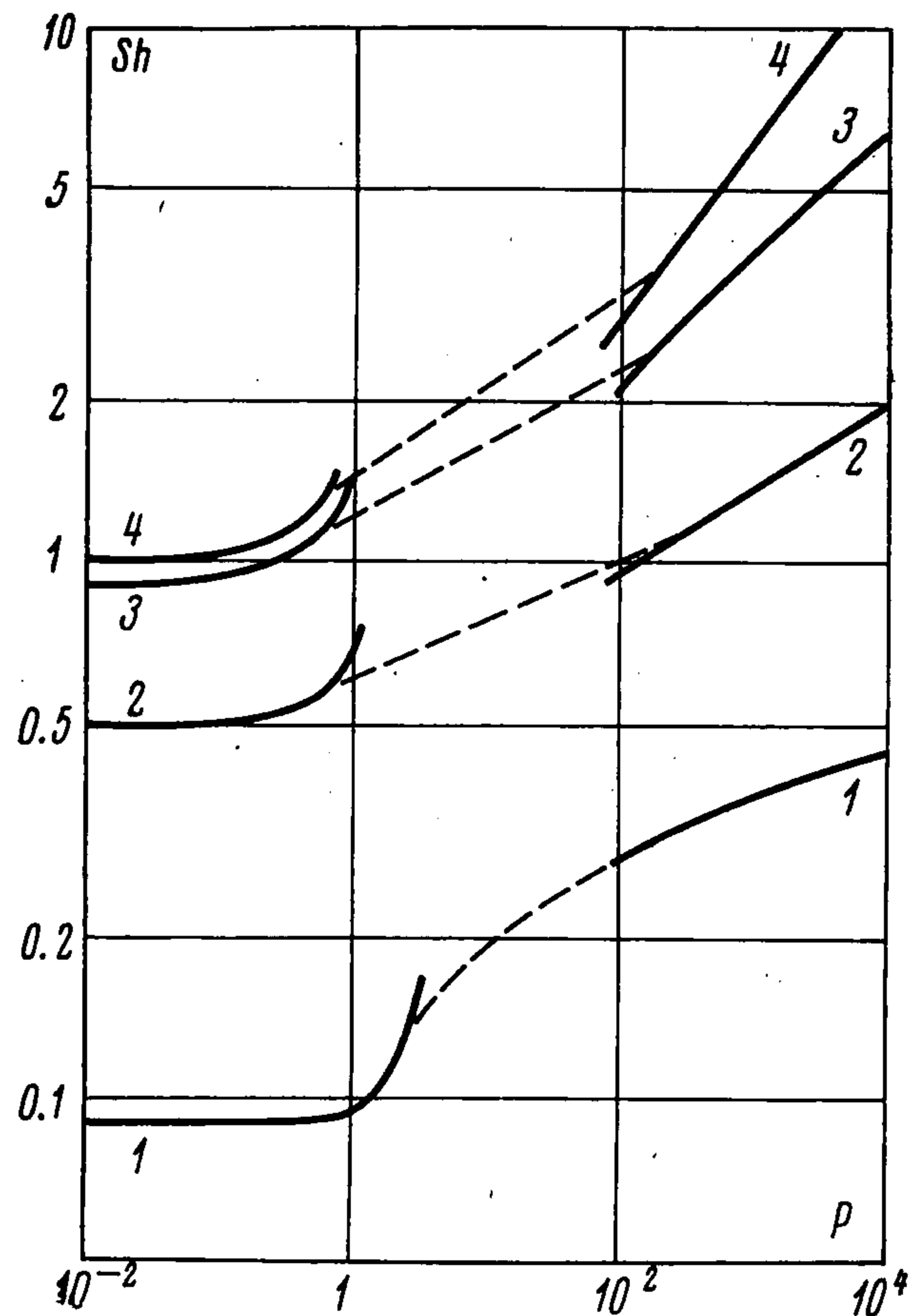


Рис. 2

Представляет интерес сопоставить полученные выше результаты с результатами [1] для малых чисел Пекле. На фиг. 2 сплошными линиями приведены зависимости числа Шервуда от числа Пекле при малых (согласно [1] в частном случае стоксова потока) и больших значениях последнего при различных значениях безразмерной константы скорости реакции  $k' = ka / D = [2\Gamma(2/3) / (3^{1/2}\Gamma(1/3))] P^{1/3}\epsilon$ . Кривые 1 соответствуют  $k' = 0.1$ , 2 —  $k' = 1$ , 3 —  $k' = 10$ , 4 —  $k' \rightarrow \infty$ . Из фиг. 2 следует возможность интерполяции для промежуточных значений числа Пекле и любых скоростей химической реакции. Примеры интерполяции показаны на фиг. 2 пунктиром.

*Приложение.* Ниже приводится решение задачи (4). Замена

$$z = 2/3 \varphi^{3/2}, \quad c(z, \xi) = z^{1/3} S(\xi, z)$$

приводит уравнение (4) к виду, допускающему применение метода Сэттона, аналогичного методу Гурса решения задач теории теплопроводности (см., например, [2])

$$(П.1) \quad \frac{\partial^2 S}{\partial z^2} + \frac{1}{z} \frac{\partial S}{\partial z} - \frac{1}{9z^2} S = \frac{\partial S}{\partial \xi}$$

Уравнение (П.1) допускает решения [2]

$$\chi_{1,2}(\xi, z; \lambda, \rho) = \frac{\lambda^{1/3} z^{1/3}}{2(\xi - \rho)} \exp\left[-\frac{z^2 + \lambda^2}{4(\xi - \rho)}\right] I_{\pm 1/3}\left[\frac{\lambda z}{2(\xi - \rho)}\right];$$

$$\xi \leq \rho, z > 0, \chi_{1,2} \equiv 0$$

являющиеся фундаментальными в том смысле, что любым граничным условиям можно удовлетворить, выбрав надлежащим образом контур  $L$  в плоскости  $(\lambda, \rho)$  и построив функцию

$$c(\xi, z) = \int_L [A_1(\lambda, \rho) \chi_1 + A_2(\lambda, \rho) \chi_2] [P(\lambda, \rho) d\lambda + Q(\lambda, \rho) d\rho]$$

Здесь функции  $A_1, A_2, P, Q$  также должны быть выбраны определенным образом с учетом граничных условий.

Аналогично [2] выберем в качестве контура интегрирования прямую  $\rho = 0$  в полуплоскости  $\lambda \geq 0$  и положим

$$A_i(\lambda, 0)P(\lambda, 0) = \lambda^{1/3} f_i(\lambda), \quad i = 1, 2.$$

Функции  $f_1$  и  $f_2$  предполагаются непрерывными и ограниченными на интервале  $(0, \infty)$ . Тогда

$$(П.2) \quad c(\xi, z) = c_1(\xi, z) + c_2(\xi, z)$$

$$c_i = \int_0^{\infty} \frac{f_i(\lambda) \lambda^{2/3} z^{1/3}}{2\xi} \exp\left(-\frac{z^2 + \lambda^2}{4\xi}\right) I_j\left(\frac{\lambda z}{2\xi}\right) d\lambda$$

$$i = 1, \quad j = 1/3; \quad i = 2, \quad j = -1/3$$

и задача сводится к выбору функций  $f_1$  и  $f_2$ .

Система граничных условий в переменных  $\xi, z$  имеет вид

$$(П.3) \quad \left(\frac{3}{2}\right)^{1/3} D\xi(\xi) \lim_{z \rightarrow +0} \left( z^{1/3} \frac{\partial c(\xi, z)}{\partial z} \right) = k \lim_{z \rightarrow +0} c(\xi, z)$$

$$\lim_{z \rightarrow \infty} c(\xi, z) = c_0, \quad \lim_{\xi \rightarrow +0} c(\xi, z) = c_0$$

Используя граничные условия (П.3) и свойства разложения (П.2), полученные в [3] (и приведенные в [2] для задачи о конвективной диффузии к плоской пластине), получим соотношения

$$(П.4) \quad f_2(\lambda) = c_0 - f_1(\lambda)$$

$$(П.5) \quad \frac{3^{1/3}}{\Gamma(1/3)} D\xi(\xi) \xi^{-1/3} \int_0^{\infty} f_1(2\sqrt{\xi\rho}) e^{-\rho} d\rho = \frac{k}{\Gamma(2/3)} \int_0^{\infty} [c_0 - f_1(2\sqrt{\xi\rho})] e^{-\rho} \rho^{-1/3} d\rho$$

Замена переменных

$$\xi\rho = t, \quad \xi = 1/u, \quad f_1(2\sqrt{t}) = \beta(t)$$

приводит уравнение (П.5) к виду

$$\eta(u) \int_0^{\infty} \beta'(t) e^{-ut} dt = \int_0^{\infty} [c_0 - \beta(t)] e^{-ut} t^{-1/3} dt \quad \eta(u) = \frac{3^{1/3} D\Gamma(2/3)}{k\Gamma(1/3)} \zeta\left(\frac{1}{u}\right) u^{-1/3}$$

Тогда функцию  $\beta(t)$  можно определить из уравнения

$$\eta(u) \beta'(t) = [c_0 - \beta(t)] t^{-1/3}$$

начальное условие для которого запишем в виде  $\beta(0) = 0$ . Решение этого уравнения приводит к следующему выражению для функции  $f_1(t)$ :

$$f_1(t) = \beta\left(\frac{t^2}{4}\right) = c_0 \left[ 1 - \exp\left(-\frac{3t^{4/3}}{8\eta}\right) \right]$$

Отсюда следует

$$(П.6) \quad \lim_{z \rightarrow +0} c(\xi, z) = \frac{c_0}{\Gamma(2/3)} \int_0^{\infty} \exp\left[-\frac{3}{2\eta} (\xi\rho)^{2/3}\right] e^{-\rho} \rho^{-1/3} d\rho$$

Полученный результат (П.6) в совокупности с первым граничным условием (П.3) позволяет определить диффузионный поток на поверхность сферы, равный, как следует из второго граничного условия (2),  $k \lim_{z \rightarrow +0} c(\xi, z)$ , что приводит к формуле (5).

Автор благодарит Ю. П. Гупало и Ю. С. Рязанцева за постоянное внимание к работе и полезные обсуждения.

Поступила 16 IV 1976

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Гупало Ю. П., Рязанцев Ю. С. О массо- и теплообмене сферической частицы в ламинарном потоке вязкой жидкости. ПММ, 1971, т. 35, вып. 2.
2. Левич В. Г. Физико-химическая гидродинамика. М., Физматгиз, 1959.
3. Sutton W. G. L. On the equation of diffusion in turbulent medium. Proc. Roy. Soc., A, 1943, vol. 182, p. 43.