

УДК 532.54

## КОНЦЕНТРАЦИОННАЯ КОНВЕКЦИЯ КОЛЛОИДНОГО РАСТВОРА В ШАРОВОЙ ПОЛОСТИ

П. В. Краузин, М. Т. Краузина

Пермский государственный национальный исследовательский университет,  
614990 Пермь, Россия  
E-mails: krauzin@gmail.com, krauzina@psu.ru

Численно решена задача о возникающей вследствие седиментации концентрационной конвекции в шаровой полости. Показано, что течение формируется вследствие неоднородности концентрации вблизи поверхности и имеет вид двух торов, конвекция приводит к ускорению разделения смеси.

Ключевые слова: коллоидный раствор, шаровая полость, распределение концентрации.

DOI: 10.15372/PMTF20210214

**Введение.** Коллоидные растворы (наножидкости) в последнее время широко применяются, например, при охлаждении электронных компонентов микросхем, двигателей транспортных средств, ядерных реакторов и т. д. [1–4]. При создании теплообменных устройств необходимо учитывать влияние на конвективный теплоперенос в коллоидах дополнительных механизмов переноса вещества, таких как диффузия, термодиффузия, гравитационная седиментация частиц [2, 5, 6]. Заметим, что в коллоидных растворах коэффициент термодиффузии на несколько порядков больше [7], чем в бинарных смесях, и имеется седиментация.

Интерес к исследованию перечисленных механизмов переноса при использовании коллоидных растворов обусловлен в первую очередь тем, что возникающее под действием приложенного градиента температуры или силы тяжести расслоение меняет характер теплообмена. Как показали результаты экспериментов [8–12], взаимодействие механизмов теплопереноса приводит к сложной пространственно-временной динамике, в том числе к спонтанному затуханию и последующему самовозбуждению течения. Кроме того, возникновение градиента концентрации приводит к изменению таких параметров жидкости, как вязкость и теплопроводность [1–4, 13, 14].

Известно, что вследствие гравитационной седиментации частиц в поле силы тяжести даже в изотермическом случае в коллоидных растворах могут возникать существенные концентрационные неоднородности [15–18]. Влияние седиментации на конвективные течения изучалось в [15–17]. В экспериментальной работе [15] обнаружено, что вследствие седиментации возникают градиенты плотности, приводящие к концентрационной конвекции. При этом время образования неоднородностей концентрации, влияющих на конвективные

---

Работа выполнена при финансовой поддержке фонда “Норпексаль фонд”.

© Краузин П. В., Краузина М. Т., 2021

процессы, на три порядка меньше характерного диффузионного времени [15]. Таким образом, при изучении конвективных течений коллоидов необходимо учитывать перепады плотности, возникающие вследствие гравитационного осаждения частиц.

В настоящей работе исследуется эволюция перераспределения концентрации изотермического коллоидного раствора в шаровой полости с учетом гравитационной седиментации частиц. Известно, что при наличии наклонных боковых границ образуются неоднородности концентрации и возникает макроскопическое течение коллоида [19–21]. Однако это явление в существенной мере зависит от формы контейнера, заполненного коллоидным раствором, и для случая шаровой полости изучено недостаточно. Вместе с тем в ряде работ (см., например, [22]) используется подход, при котором концентрационной конвекцией в коллоидах пренебрегается.

Целью настоящей работы является исследование установления равновесного состояния коллоидного раствора с постоянной температурой в шаровой полости в двух постановках: с учетом и без учета конвективного переноса частиц.

**1. Постановка задачи.** Рассмотрим шаровую полость радиусом  $R$ , заполненную коллоидным раствором. Введем сферическую систему координат: начало координат совместим с центром полости, полярную ось направим вертикально вверх.

Равновесное распределение объемной концентрации частиц  $\varphi$  слабого коллоидного раствора в шаровой полости в поле силы тяжести описывается барометрическим распределением

$$\varphi = \frac{\varphi_0 e^{-z/l}}{3((R/l) \operatorname{ch}(R/l) - \operatorname{sh}(R/l))} \left(\frac{R}{l}\right)^3,$$

где  $\varphi_0$  — средняя объемная концентрация частиц;  $l = k_B T / (m_* g)$  — длина участка седиментации (высота, на которой концентрация примеси изменяется в  $e$  раз);  $k_B$  — постоянная Больцмана;  $T$  — температура;  $m_* = v_p(\rho_p - \rho_s)$ ;  $v_p$  — объем частицы;  $\rho_p, \rho_s$  — плотности частиц и дисперсионной жидкости соответственно.

Система уравнений, описывающая концентрационную конвекцию несжимаемого коллоидного раствора, имеет вид

$$\rho \left( \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} \right) = -\nabla p + \eta \Delta \mathbf{v} + \rho \mathbf{g}, \quad \nabla \cdot \mathbf{v} = 0,$$

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \varphi = D \Delta \varphi + \frac{D}{l} \mathbf{e}_z \cdot \nabla \varphi.$$

Здесь  $\rho$  — плотность коллоида;  $\mathbf{v}$  — скорость течения;  $p$  — давление;  $\eta$  — динамическая вязкость;  $D$  — коэффициент диффузии;  $\mathbf{e}_z = -\mathbf{g}/g$  — орт вертикальной оси  $z$ . В рассматриваемой модели полагается, что коэффициент вязкости не зависит от концентрации. Такое приближение используется, например, в [19].

В начальный момент времени коллоидный раствор считается однородным и неподвижным:

$$t = 0: \quad \mathbf{v} = 0, \quad \varphi = \varphi_0.$$

На границах полости ставятся условия прилипания для скорости и исчезновения радиальной составляющей потока концентрации:

$$r = R: \quad \mathbf{v} = 0, \quad (\nabla \varphi + l^{-1} \varphi \mathbf{e}_z) \cdot \mathbf{e}_r = 0$$

( $\mathbf{e}_r$  — единичный вектор нормали к поверхности).

Допустим, что плотность линейно зависит от концентрации:

$$\rho = \rho_p \varphi + \rho_s (1 - \varphi) = \rho_0 (1 + \beta_\varphi (\varphi - \varphi_0))$$

( $\rho_0 = \rho_p \varphi_0 + \rho_s (1 - \varphi_0)$  — плотность при средней концентрации;  $\beta_\varphi = (\rho_p - \rho_s) / \rho_0$  — коэффициент концентрационного расширения, рассчитанный по объемной концентрации).

Погрешность осредненной по объему концентрации  
для сеток с различным количеством элементов при  $t = 3 \cdot 10^4$

$N \cdot 10^{-3}$	$\langle \varphi \rangle$
1,1	$3,0 \cdot 10^{-3}$
1,7	$1,6 \cdot 10^{-3}$
3,0	$7,9 \cdot 10^{-4}$
7,0	$3,8 \cdot 10^{-4}$
17,0	$1,6 \cdot 10^{-4}$

Запишем уравнение Навье — Стокса в приближении Буссинеска:

$$\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} = -\frac{1}{\rho_0} \nabla p + \nu \Delta \mathbf{v} + \beta_\varphi \varphi \mathbf{g},$$

где  $p$  — конвективное давление (давление, отсчитываемое от гидростатического, соответствующего средней концентрации);  $\nu$  — кинематическая вязкость;  $\varphi$  — объемная концентрация, отсчитываемая от среднего значения.

Обезразмерим уравнения, выбрав в качестве характерной величины расстояния радиус шаровой полости  $R$ , времени —  $R^2/\nu$ , плотности —  $\rho_0$ , концентрации —  $\varphi_0$ . Получаем систему уравнений

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} &= -\nabla p + \Delta \mathbf{v} - \text{Gr}_d \varphi \mathbf{e}_z, & \nabla \cdot \mathbf{v} &= 0, \\ \frac{\partial \varphi}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \varphi &= \frac{1}{\text{Sc}} \left( \Delta \varphi + \frac{1}{\lambda} \mathbf{e}_z \cdot \nabla \varphi \right), \end{aligned}$$

где  $\text{Gr}_d = g\beta\varphi_0 R^3/\nu^2$  — диффузионное число Грасгофа;  $\text{Sc} = \nu/D$  — число Шмидта (диффузионное число Прандтля). При этом в задаче возникает безразмерный параметр  $\lambda = l/R$ , представляющий собой безразмерную седиментационную длину, отношение характерных времен — седиментационного к диффузионному, безразмерную стоксову скорость осаждения частиц, отношение тепловой и потенциальной энергий. Начальные и граничные условия представим в безразмерном виде

$$\begin{aligned} t = 0: & \quad \mathbf{v} = 0, \quad \varphi = 0, \\ r = 1: & \quad \mathbf{v} = 0, \quad \left( \nabla \varphi + \frac{\varphi + 1}{\lambda} \mathbf{e}_z \right) \cdot \mathbf{e}_r = 0. \end{aligned}$$

Задача решалась численно методом конечных элементов с помощью решателя, интегрированного в вычислительный пакет COMSOL Multiphysics 5.3 [23]. Использовалась неструктурированная сетка, общее число элементов составляло  $N = 7 \cdot 10^3$ . Сходимость метода определялась по осредненной по объему концентрации  $\langle \varphi \rangle$  в момент времени  $t = 3 \cdot 10^4$  (см. таблицу). Данная величина, точное значение которой равно нулю (вследствие сохранения числа частиц), характеризует погрешность вычислений при больших значениях диффузионного времени ( $t \sim \text{Sc}$ ).

В расчетах использовались параметры коллоида Ludox<sup>®</sup> ТМА при температуре, равной 30 °С: радиус частиц  $a = 16 \cdot 10^{-9}$  м, коэффициент концентрационного расширения, рассчитанный по массовой концентрации,  $\beta_c = 0,57$ ,  $\rho_s = 10^3$  кг/м<sup>3</sup>,  $\rho_p = 2,1 \cdot 10^3$  кг/м<sup>3</sup>,  $\nu = 8,18 \cdot 10^{-7}$  м<sup>2</sup>/с,  $D = 2,20 \cdot 10^{-11}$  м<sup>2</sup>/с,  $l = 2,2 \cdot 10^{-2}$  м,  $\varphi_0 = 0,080$ ,  $\rho_0 = 1,1 \cdot 10^3$  кг/м<sup>3</sup>,  $\beta_\varphi = 1,0$ . Коэффициенты  $\beta_c$ ,  $\beta_\varphi$  связаны следующим образом:

$$\beta_\varphi = \beta_c \frac{\rho_p \rho_s}{\rho_0}.$$

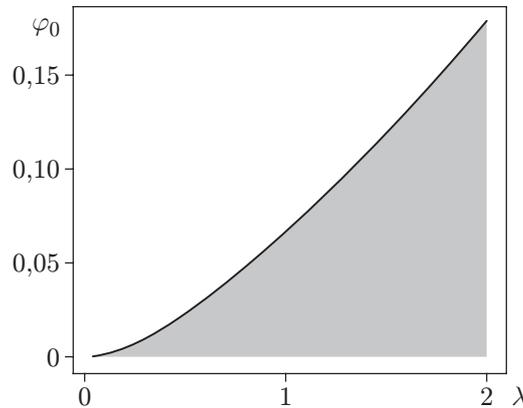


Рис. 1. Область применимости приближения Буссинеска для коллоидного раствора Ludox<sup>®</sup> ТМА

Расчеты проводились при значении  $R = 8 \cdot 10^{-3}$  м, соответствующем экспериментальной установке, использовавшейся в работе [8] при исследовании термогравитационной конвекции ферроколлоидов. В этом случае безразмерные параметры имеют следующие значения:  $Gr_d = 6,1 \cdot 10^5$ ,  $Sc = 3,7 \cdot 10^4$ ,  $\lambda = 2,8$ .

Определим область, удовлетворяющую приближению Буссинеска, на плоскости параметров  $(\varphi_0, \lambda)$ . Условие малой неоднородности плотности вследствие перераспределения частиц имеет вид

$$\beta_\varphi(\varphi - \varphi_0) \ll 1. \quad (1)$$

Граница искомой области определяется уравнением

$$\beta_\varphi(\varphi_{\max} - \varphi_0) = \varepsilon,$$

где  $\varphi_{\max}$  — максимальное значение концентрации при равновесном распределении, достигаемое на “дне” шаровой полости ( $z = -R$ ):

$$\varphi_{\max} = \frac{\varphi_0 e^{1/\lambda}}{3\lambda^3(\operatorname{ch}(1/\lambda)/\lambda - \operatorname{sh}(1/\lambda))}.$$

Полагается, что при  $\varepsilon = 0,1$  неравенство (1) еще выполняется.

Определим параметр  $k$  как относительную разность плотностей частиц и дисперсионной жидкости

$$k = (\rho_p - \rho_s)/\rho_s,$$

тогда уравнение границы области применимости приближения Буссинеска принимает вид

$$\varphi_0 = \frac{1}{k} \left[ \frac{1}{\varepsilon} \left( \frac{e^{1/\lambda}}{3\lambda^3(\operatorname{ch}(1/\lambda)/\lambda - \operatorname{sh}(1/\lambda))} - 1 \right) - 1 \right]^{-1}.$$

На рис. 1 показана найденная область для коллоидного раствора Ludox<sup>®</sup> ТМА ( $k = 1,1$ ). Видно, что для объемной концентрации частиц  $\varphi_0 = 0,080$  приближение Буссинеска выполняется при  $\lambda > 1,1$ .

**2. Результаты исследования и их обсуждение.** Известно, что первой моде неустойчивости тепловой конвекции в шаровой полости соответствует один конвективный вал [24]. Однако при трехмерном моделировании получено, что течение при наличии концентрационной конвекции имеет вид двух торов (рис. 2). Дальнейшие расчеты проводились в осесимметричной постановке.

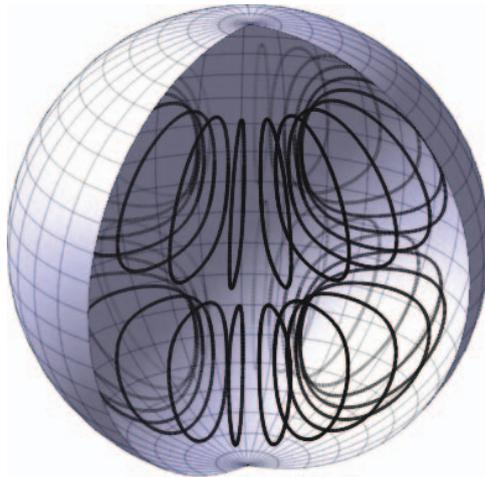
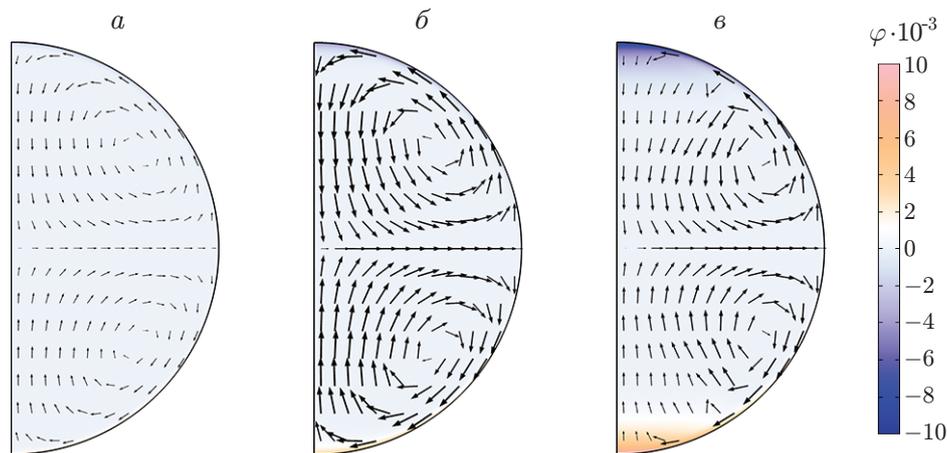


Рис. 2. Структура течения

Рис. 3. Распределения скорости и концентрации в различные моменты времени:  
а —  $t = 3$ , б —  $t = 6$ , в —  $t = 15$ 

Нормальная составляющая седиментационного потока на границе шаровой полости (за исключением экваториальной линии) не равна нулю. При этом в силу условия непроницаемости границ нормальная компонента полного потока должна отсутствовать. Наличие этой компоненты седиментационного потока компенсируется с помощью нормальной составляющей диффузионного потока, обусловленной соответствующим градиентом концентрации. Вследствие этого в горизонтальном направлении, по крайней мере в окрестности границ, возникает неоднородность плотности. Это свидетельствует о нарушении необходимого условия механического равновесия, т. е. о возникновении концентрационной конвекции.

На рис. 3 показана эволюция конвективного течения для значений времени  $t = 3, 6, 15$ . В начальные моменты времени изолинии концентрации значительно искривлены, повторяя форму сферической поверхности. При этом в объеме раствор остается практически однородным, а на границах в верхней и нижней частях полости концентрация частиц уменьшается и увеличивается соответственно вследствие наличия тангенциальной составляющей седиментационного потока. Это приводит к формированию концентрационного течения (см. рис. 3,а), интенсивность которого затем увеличивается (см. рис. 3,б). Далее конвективное течение затухает (см. рис. 3,в) в центральной части полости, вместе с тем

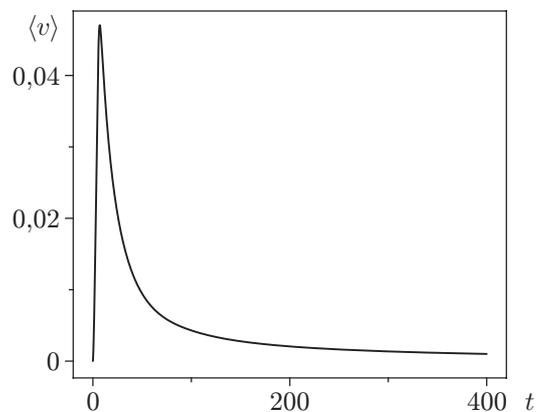


Рис. 4. Зависимость осредненного модуля скорости течения от времени

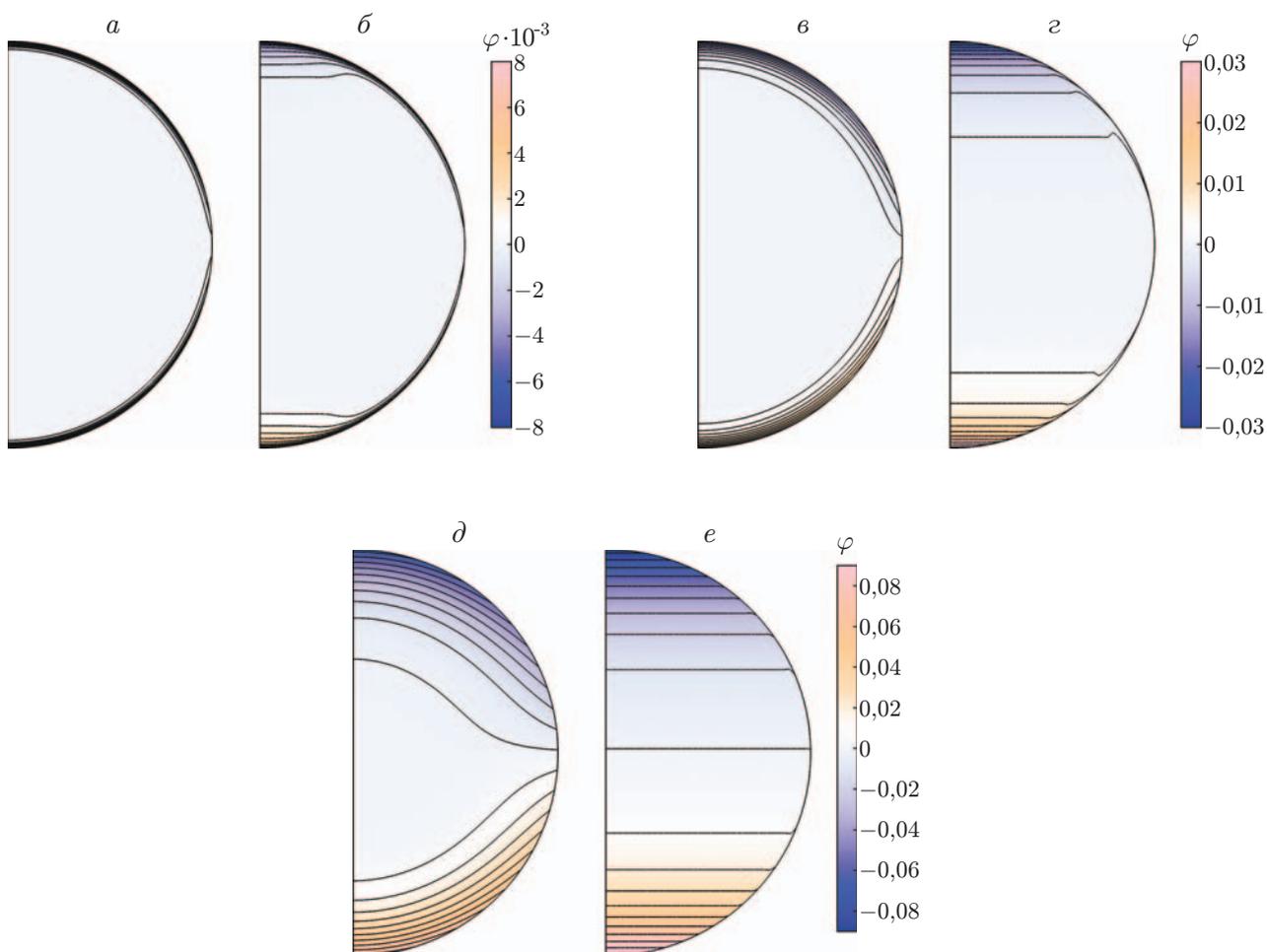


Рис. 5. Поля и изолинии концентрации в отсутствие (*a, в, д*) и при наличии (*б, г, e*) конвекции в различные моменты времени:  
*a, б* —  $t = 10$ , *в, г* —  $t = 100$ , *д, e* —  $t = 1000$

изолинии концентрации становятся горизонтальными. Дальнейшее установление равновесного распределения концентрации происходит в отсутствие макроскопического движения раствора.

Зависимость осредненного модуля скорости от времени приведена на рис. 4. Характерное время затухания конвекции, в течение которого интенсивность течения уменьшается в  $e$  раз, равно  $t = 30$ . Такая зависимость характерна для концентрационной конвекции в замкнутых полостях. Например, в работе [19] аналогичное изменение интенсивности конвекции получено для сосуда с одной наклонной стенкой.

Для изучения влияния концентрационной конвекции на установление барометрического распределения проведено сравнение случаев наличия и отсутствия ( $v = 0$ ) конвекции. На рис. 5 показаны изолинии и поля концентрации при учете и без учета движения коллоида в моменты времени  $t = 10, 100, 1000$ . Видно, что в этих случаях эволюция системы происходит различным образом. Наличие конвекции приводит к однородности концентрации в горизонтальном направлении. Кроме того, скорость конвективного переноса превышает скорости диффузионного и седиментационного переноса, поэтому за время  $t \approx 1$  изолинии концентрации становятся практически горизонтальными всюду, за исключением окрестности границ полости. Можно предположить, что эволюция поля концентрации в замкнутых полостях произвольной геометрии аналогична. Случай отсутствия конвективного движения характеризуется “памятью” формы изолиний концентрации, которые становятся горизонтальными за время  $t \approx Sc$ .

Для того чтобы определить разность  $\tau$  времен установления равновесного состояния коллоида при наличии и в отсутствие конвекции, построены кривые осредненного по объему полости модуля отклонения концентрации от барометрического распределения  $\langle |\varphi - \varphi_\infty| \rangle$  (рис. 6). В соответствии с правилом двух сигм величина  $\tau$  вычислялась как разность времен при  $\langle |\varphi - \varphi_\infty| \rangle = 5\%$ . Из рис. 6 следует, что при наличии концентрационной конвекции расслоение смеси происходит в 1,05 раза быстрее, чем в ее отсутствие, что соответствует значению  $\tau = 0,4 \cdot 10^3$ .

На рис. 7 представлена зависимость времени  $\tau$  установления равновесия вследствие концентрационной конвекции от радиуса полости. При этом число Шмидта остается фикс-

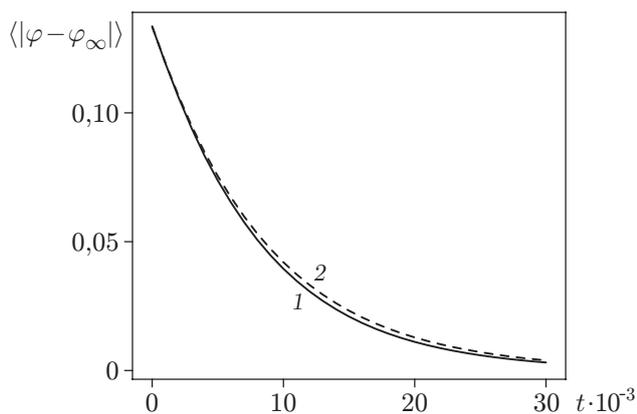


Рис. 6

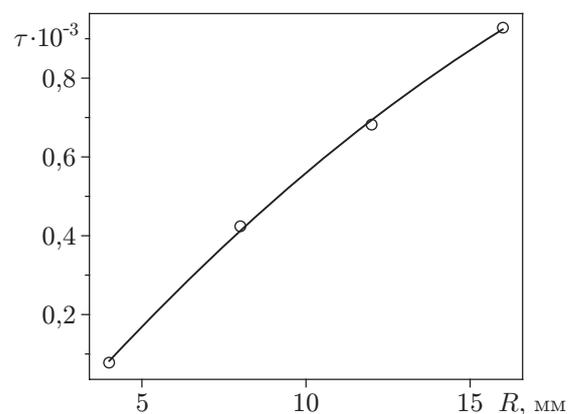


Рис. 7

Рис. 6. Зависимость от времени осредненного по объему модуля отклонения концентрации от барометрического распределения при наличии (1) и в отсутствие (2) конвекции

Рис. 7. Зависимость времени установления равновесия вследствие концентрационной конвекции от радиуса полости

сированным, а число Грасгофа и безразмерная седиментационная длина изменяются в соответствии с выражениями  $\lambda \sim R^{-1}$ ,  $Gr_d \sim R^3$ . Влияние конвективного механизма переноса в наибольшей степени проявляется при увеличении размера полости. Это обусловлено увеличивающейся стратификацией коллоидного раствора, при которой градиенты концентрации вызывают макроскопическое движение большей интенсивности.

**Заключение.** В работе проведено численное моделирование, результаты которого показали, что в шаровой полости, заполненной однородным в начальный момент времени коллоидным раствором, возникает концентрационная конвекция, способствующая ускорению процесса гравитационного разделения смеси. Однако течение, охватывающее весь объем полости, существует на малых гидродинамических временах и оказывает незначительное влияние на время установления барометрического распределения. При этом картины изолиний концентрации с учетом и без учета конвекции существенно различаются. Временной лаг установления равновесия за счет концентрационной конвекции максимален на границе области применимости приближения Буссинеска и достигает 7 %.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. **Choi S. U. S.** Nanofluids: From vision to reality through research // *J. Heat Transfer*. 2009. V. 131, iss. 3. 033106.
2. **Devendiran D. K., Amirtham V. A.** A review on preparation, characterization, properties and applications of nanofluids // *Renewable Sustainable Energy Rev.* 2016. V. 60. P. 21–40.
3. **Saidur R., Leong K. Y., Mohammad H. A.** A review on applications and challenges of nanofluids // *Renewable Sustainable Energy Rev.* 2011. V. 15, iss. 3. P. 1646–1668.
4. **Raja M., Vijayan R., Dineshkumar P., Venkatesan M.** Review on nanofluids characterization, heat transfer characteristics and applications // *Renewable Sustainable Energy Rev.* 2016. V. 64. P. 163–173.
5. **Pshenichnikov A. F., Elfimova E. A., Ivanov A. O.** Magnetophoresis, sedimentation, and diffusion of particles in concentrated magnetic fluids // *J. Chem. Phys.* 2011. V. 134, iss. 18. 184508.
6. **Smorodin B. L., Cherepanov I. N., Myznikova B. I., Shliomis M. I.** Traveling-wave convection in colloids stratified by gravity // *Phys. Rev. E*. 2011. V. 84. 026305.
7. **Sprenger L., Lange A., Odenbach S.** Thermodiffusion in concentrated ferrofluids: A review and current experimental and numerical results on non-magnetic thermodiffusion // *Phys. Fluids*. 2013. V. 25, iss. 12. 122002.
8. **Krauzina M. T., Bozhko A. A., Putin G. F., Suslov S. A.** Intermittent flow regimes near the convection threshold in ferromagnetic nanofluids // *Phys. Rev. E*. 2015. V. 91, N 1. 013010.
9. **Krauzina M. T., Bozhko A. A., Krauzin P. V., Suslov S. A.** Oscillatory instability of convection in ferromagnetic nanofluid and in transformer oil // *Fluid Dynamics. Res.* 2016. V. 48, iss. 6. 061407.
10. **Bozhko A. A., Putin G. F.** Heat transfer and flow patterns in ferrofluid convection // *Magnetohydrodynamics*. 2003. V. 39, N 2. P. 147–168.
11. **Bozhko A. A.** Onset of convection in magnetic fluids // *Phys. Proc.* 2010. V. 9. P. 176–180.
12. **Глухов А. Ф., Путин Г. Ф.** Конвекция магнитных жидкостей в связанных каналах при подогреве снизу // *Изв. РАН. Механика жидкости и газа*. 2010. № 5. С. 41–48.
13. **Bashirnezhad K., Bazri S., Safaei M. R., et al.** Viscosity of nanofluids: A review of recent experimental studies // *Intern. Comm. Heat Mass Transfer*. 2016. V. 73. P. 114–123.
14. **Wang X.-Q., Mujumdar A. S.** Heat transfer characteristics of nanofluids: a review // *Intern. J. Thermal Sci.* 2007. V. 46, iss. 1. P. 1–19.

15. Глухов А. Ф., Путин Г. Ф. Установление равновесного барометрического распределения частиц в магнитной жидкости // Гидродинамика. 1999. Вып. 12. С. 92–103.
16. Райхер Ю. Л., Шлиомис М. И. Кинетика установления равновесного распределения концентрации в магнитной жидкости // Приборы и методы измерения физических параметров ферроколлоидов. Свердловск: Изд-во УрО АН СССР, 1991. С. 27–32.
17. Elfimova E. A., Ivanov A. O., Lakhtina E. V., et al. Sedimentation equilibria in polydisperse ferrofluids: critical comparisons between experiment, theory, and computer simulation // Soft Matter. 2016. V. 12, iss. 18. P. 4103–4112.
18. Bozhko A. A., Putin G. F., Sidorov A. S., Suslov S. A. Convection in a vertical layer of stratified magnetic fluid // Magnetohydrodynamics. 2013. V. 49, N 1. P. 143–152.
19. Черепанов И. Н., Смородин Б. Л. Перенос примеси наночастиц в сосуде с наклонными боковыми границами // Вестн. Перм. ун-та. Физика. 2018. № 1. С. 81–88.
20. Page M. A. Combined diffusion-driven and convective flow in a tilted square container // Phys. Fluids. 2011. V. 23, iss. 5. 056602.
21. Невский Ю. А. Гравитационная конвекция дисперсных систем в сосудах с наклонными стенками // Вестн. Нижегород. ун-та им. Н. И. Лобачевского. Механика жидкости и газа. 2011. № 4. С. 1012–1014.
22. Pshenichnikov A. F., Burkova E. N. Effect of demagnetizing fields on particle spatial distribution in magnetic fluids // Magnetohydrodynamics. 2012. V. 48, N 3. P. 243–253.
23. COMSOL multiphysics reference manual, version 5.3. Burlington: COMSOL Inc, 2017. [Электрон. ресурс]. Режим доступа: [www.comsol.com](http://www.comsol.com).
24. Гершуни Г. З. Конвективная устойчивость несжимаемой жидкости / Г. З. Гершуни, Е. М. Жуховицкий. М.: Наука, 1972.

*Поступила в редакцию 4/III 2020 г.,  
после доработки — 11/VII 2020 г.  
Принята к публикации 27/VII 2020 г.*

---