

УДК 519.142.1+512.643.8

Свердлова Ольга Леонидовна,

к.т.н., доцент кафедры физико-математических наук,
ФГБОУ ВО «Ангарский государственный технический университет»,
тел.: +7 (3955) 51-29-50, olgasv273@mail.ru

Кондратьева Лариса Михайловна,

к.х.н., доцент кафедры физико-математических наук,
ФГБОУ ВО «Ангарский государственный технический университет»,
тел.: +7 (3955) 51-29-50, kondrateva_lm@mail.ru

ОБЩИЙ ПОДХОД К ОПИСАНИЮ НЕЛИНЕЙНОЙ ДИНАМИКИ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ НА ГРАНИЦЕ РАЗДЕЛА ФАЗ ГАЗ-ТВЕРДОЕ ТЕЛО

Sverdlova O.L., Kondrateva L.M.

GENERAL APPROACH TO DESCRIPTION OF NONLINEAR DYNAMICS INTERACTION ON THE BOUNDARY OF PHASES GAS-SOLID

Аннотация. В статье представлен возможный подход к описанию нелинейной динамики взаимодействия на границе раздела фаз газ-твердое тело. Изучение взаимодействия предполагает построение взаимосопряженных математических моделей процедуры ранжирования элементарных стадий по степени важности и расчета скорости процесса адсорбции газа на неоднородной поверхности адсорбента. Представленный материал следует рассматривать как изложение общего подхода к исследованию модельного примера, допускающего практическую реализацию на ЭВМ.

Ключевые слова: физико-химический процесс, схема реакции, ключевые вещества, адсорбционные процессы, флуктуации, элементарные стадии, скорость процесса, структурная схема.

Abstract. The article presents a possible approach to the description of the nonlinear interaction on the boundary of phases in gas-solid. The study of interaction involves the construction of interconnected mathematical models of the procedure for ranking elementary stages in order of importance and calculating the speed of the process of gas adsorption on heterogeneous surface of the adsorbent. Submitted material should be seen as a statement of the general approach to the study of a model example that allows practical implementation on a computer.

Keywords: physico-chemical process, reaction scheme, key substances, adsorption processes, fluctuations, elementary stages, process speed, structural scheme.

Изучение явлений, происходящих на поверхности раздела фаз, представляет большой общенаучный и прикладной интерес. Поверхностные процессы включают в себя широкий круг каталитических, адсорбционных, мембранных и т.д. процессов, которые широко применяются в фармацевтике, микроэлектронике, горнодобывающей, металлургической и пищевой промышленности. Также изучение поверхностных явлений представляет большой интерес с точки зрения академической науки, так как эта область находится на стыке различных дисциплин и здесь еще много нерешенных проблем. Одним из способов изучения процессов, происходящих на границе раздела фаз, является математическое моделирование.

Большой интерес к изучению поверхностных процессов связан еще и с тем, что многие химические реакции, происходящие

на поверхности, проходят либо с низкой скоростью, либо с низким выходом полезных продуктов. Осуществление реакции на поверхности катализатора, обладающего нужными свойствами, позволяет ускорить процесс и повысить выход полезных продуктов. Оптимизация проведения подобного рода реакций невозможна без детального изучения их кинетики. Цель работы заключается в формировании общего подхода к описанию нелинейной динамики взаимодействия поверхности кристалла с неидеальным слоем адсорбата.

Химическая реакция, происходящая на поверхности газ-твердое тело, это сложный процесс, протекающий через ряд элементарных стадий. Каждая стадия представляет элементарную реакцию или элементарный процесс, в результате которого изменяется пространственное расположение какого-либо

компонента реакционной системы (миграция частиц по поверхности) [1]. В ходе сложных химических процессов, происходящих на поверхности, образуются промежуточные вещества, концентрация которых сначала возрастает, а потом уменьшается до нуля. Для гетерофазных реакций физическое описание происходящих процессов получить проблематично. В таком случае механизм протекания реакции, соотношение между числами элементарных и линейно независимых реакций устанавливается в результате математического моделирования [2]. В большинстве случаев важно оперировать компактным механизмом подобных реакций, включающим наиболее важные стадии. Математическое моделирование подобного рода задач позволяет выбрать наиболее существенные физико-химические процессы, влияющие на скорость реакции. На основании знания скоростей элементарных стадий можно рассчитать суммарный многостадийный процесс, т.е. скорость реакции и оптимальные условия ее проведения.

Построение общей математической модели процессов взаимодействия на границе раздела фаз газ-твердое тело представляет довольно сложную задачу, в рамках которой необходимо построить взаимосопряженные математические модели процедуры ранжирования элементарных стадий по степени важности и расчета скорости процесса адсорбции газа на поверхности твердого тела [3]. Необходимо учитывать, что сокращенная схема полученного процесса создается при фиксированных условиях. При других условиях протекания реакции сокращенная схема будет недостаточно точно описывать процесс.

Формирование математической модели для определения ключевых веществ физико-химических процессов представлена в [4]. Решение задачи выбора наиболее важных процессов и определение пути прохождения реакции производится с помощью специально разработанного программного обеспечения.

Вследствие неоднородности адсорбента, латеральных взаимодействий между адсорбированными частицами и различного рода перестроек поверхности в результате адсорбции, описание кинетики элементарных стадий химических реакций, происходящих на поверхности, составляет иерархическую последовательность математических моде-

лей. В первую очередь строится микроскопическая стохастическая модель, она наиболее детально и учитывает влияние спонтанных флуктуаций на динамику реакции [5, 6]. Пример построенной микроскопической стохастической модели, учитывающей стадию взаимодействия контактирующих фаз, рассматривается в [7, 8]. Глобальная стохастическая модель следует из микроскопической при наличии случайного перемешивания частиц на кристалле. Глобальная стохастическая модель позволяет учитывать влияние спонтанных флуктуаций на эволюцию реакционной системы при небольших размерах поверхности адсорбента, насчитывающей несколько тысяч поверхностных атомов. Глобальная детерминистическая модель следует из стохастической, если число поверхностных атомов бесконечно велико. Глобальная детерминистическая модель не учитывает влияние спонтанных флуктуаций и предполагает случайное перемешивание адсорбированных частиц на поверхности твердого тела. Сравнивая результаты моделирования по стохастической и детерминистической модели, можно оценить влияние спонтанных флуктуаций на динамику реакции и выбрать наиболее оптимальный подход к расчету скорости процесса.

Таким образом, общий подход к описанию нелинейной динамики на границе раздела фаз газ-твердое тело можно представить в виде следующего алгоритма:

I. Анализ исходных данных.

II. Построение физико-химической модели процесса:

1) механизм протекания реакции, включающий процедуру ранжирования элементарных стадий процесса. Процедура ранжирования осуществляется с помощью автоматизированной информационной системы;

2) кинетика протекания реакции формируется с учетом сокращенной схемы процесса, сформированной в пункте 1).

III. Математическое описание процесса адсорбции газа на неоднородной поверхности.

IV. Алгоритм расчета осредненной скорости процесса. Процедура расчета скорости процесса основана на расчете скорости элементарных актов.

V. Программный комплекс расчета скорости процесса.

VI. Анализ результатов расчетов.

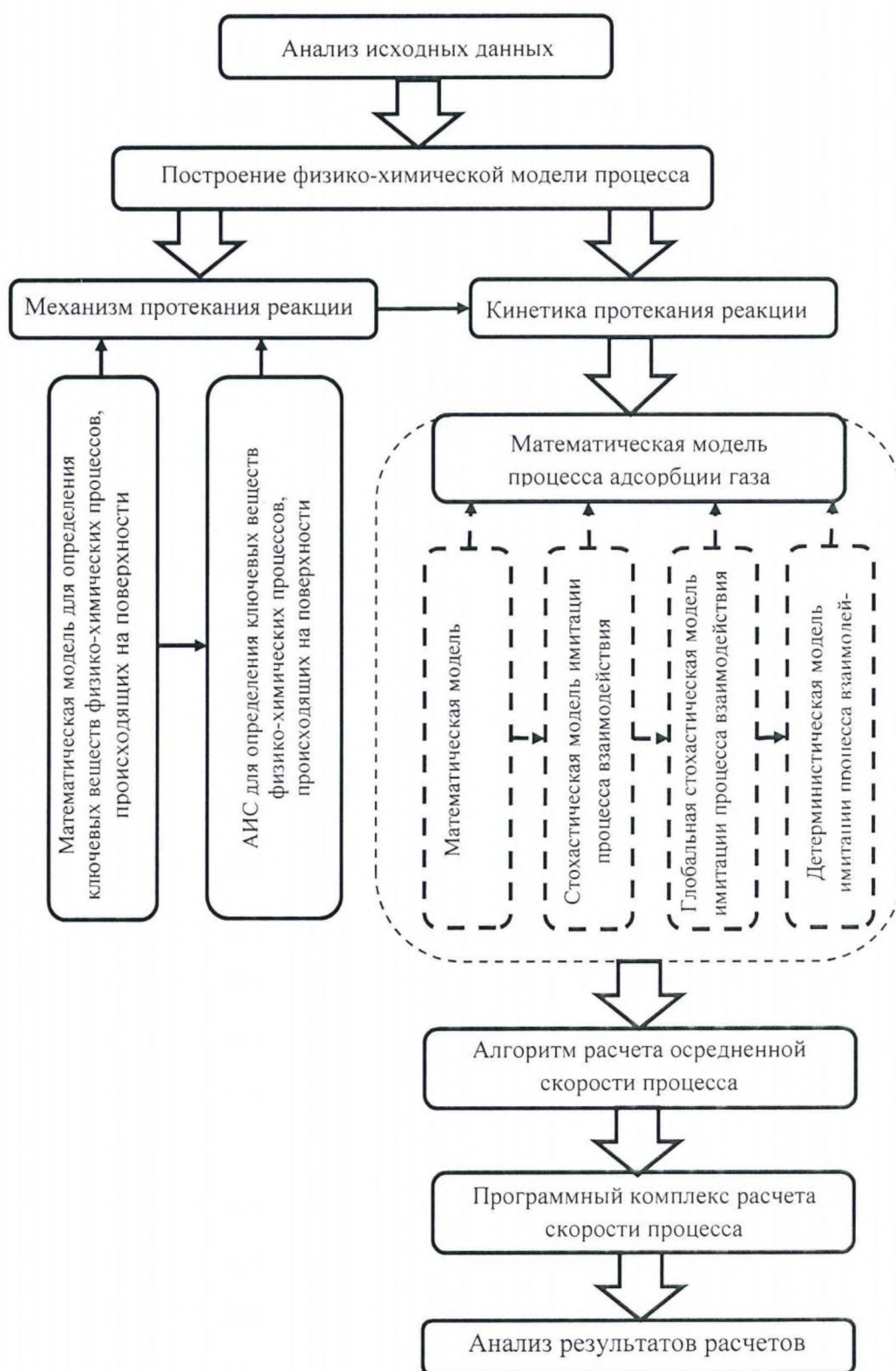


Рис. 1. – Структурная схема имитационной модели процесса взаимодействия на границе раздела фаз газ-твердое тело

Математическое описание процесса адсорбции газа и расчета осредненной скорости процесса и алгоритм расчета осредненной скорости процесса производится для поверхности с заданными пространственными масштабами. Геометрия адсорбента представлена в виде масштаба отдельных адсорбционных центров и позволяет исследовать процессы, происходящие на участках поверхности, содержащих несколько тысяч поверхностных атомов. Это число не является макроскопическим, но оно достаточно большое для того, чтобы результаты, полученные данным методом, считать практически точными [4, 7].

Более детальное описание алгоритма представлено в виде структурной схемы на рисунке 1.

Таким образом, изучение явлений, происходящих на границе раздела фаз, как сложной иерархической структуры, позволяет разделить данный процесс на отдельные составные части. Подобное представление физико-химического процесса значительно упрощает задачу изучения какой-либо стороны процесса и построения его общей математической модели.

Предлагаемый подход позволяет анализировать недетерминированные процессы с многозначной стохастической картиной связи между происходящими явлениями. В условиях физического моделирования такие результаты получить достаточно сложно.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Товбин Ю.К. Кинетика хемосорбции в системе взаимодействующих молекул // Кинетика и катализ. – 1979. – Т.20. – №5. – С. 1226-1234.
2. Кафаров В.В., Глебов М.Б. Математическое моделирование основных процессов химических производств: Учеб. пособие для вузов. М: Высшая школа, 1991. 367 с.
3. Свердлова О.Л., Иванова С.В., Кондратьева Л.М. Методика моделирования нелинейной динамики взаимодействия газ-твердое тело // Современные технологии и научно-технический прогресс: Междунар. научн.-техн. конф. имени проф. В.Я. Баденикова: Тез. докл. – Ангарск: ФГБОУ ВО «Ангар. гос. техн. универ.», 2017. С. 164-165
4. Свердлова О.Л., Евсевлева Л.Г., Туркина Н.М. Формирование математической модели для определения ключевых веществ физико-химических процессов // Сборник научных трудов Ангарского государственного технического университета. – Ангарск: Издательство АНГТУ. 2016 г. С. 314-317.
5. Макеев А.Г., Семендяева Н.Л. Автоколебания скорости гетерогенной каталитической реакции: сравнение детерминистического и стохастического подходов к моделированию // Математическое моделирование. 1996. Т8. №8. С 76-96.
6. Свердлова О.Л., Добрынина Н.Н., Евсевлева Л.Г., Туркина Н.Н. Математическое моделирование затухания автоколебаний адсорбции кислорода на неоднородной поверхности с использованием стохастического подхода // Современные технологии. Системный анализ. Моделирование Иркутск. 2015. № 4. С. 88-91.
7. Свердлова О.Л. Автоматизация управления технологическими процессами разделения газов в промышленности: дисс. кан. технич. наук: 05.13.06 / Свердлова О.Л. Ангарск, 2014. 117 с.
8. Свердлова О.Л., Иванова С.В., Туркина Н.М. Математическая модель процесса взаимодействия кислорода с поверхностью моносульфида железа // Вестник АГТА. 2014. № 8. С. 118-122.