

НАЦИОНАЛЬНАЯ АКАДЕМИЯ НАУК БЕЛАРУСИ
ИНСТИТУТ ТЕПЛО- И МАССООБМЕНА им. А. В. ЛЫКОВА
Журнал основан в январе 1958 г.

ИФЖ

И
НЖЕНЕРНО-ФИЗИЧЕСКИЙ
ЖУРНАЛ

JOURNAL
OF ENGINEERING PHYSICS
AND THERMOPHYSICS

Отдельный оттиск
Offprint

Том 89, № 1
Vol. 89, No. 1

ЯНВАРЬ–ФЕВРАЛЬ
JANUARY–FEBRUARY

2016

ИНЖЕНЕРНО-ФИЗИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ

Основан в январе 1958 г.

2016. ТОМ 89, № 1 (ЯНВАРЬ–ФЕВРАЛЬ)

СОДЕРЖАНИЕ

ТЕПЛО- И МАССОПЕРЕНОС В ДИСПЕРСНЫХ И ПОРИСТЫХ СРЕДАХ

Пицуха Е. А., Теплицкий Ю. С., Бородуля В. А., Рослик А. Р. О трансформации гидродинамического состояния зернистого слоя при неизотермической фильтрации	3
Ряжских А. В., Богер А. А., Слюсарев М. И., Ряжских В. И. Конвективно-диффузионная модель переноса седиментирующей малоконцентрированной полидисперсной взвеси стоковых частиц в плоском канале. Часть I	10
Ряжских А. В., Богер А. А., Слюсарев М. И., Ряжских В. И. Конвективно-диффузионная модель переноса седиментирующей малоконцентрированной полидисперсной взвеси стоковых частиц в плоском канале. Часть II	19
Зиновьев В. Н., Казанин И. В., Пак А. Ю., Верещагин А. С., Лебига В. А., Фомин В. М. Проницаемость полых микросферических мембран по отношению к гелию	24
Ольшанский А. И. Регулярный тепловой режим и влияние критериев подобия теплообмена на процесс конвективной сушки пористой керамики	37
Саломатов Вл. В., Пашенко С. Э., Сладков С. О., Саломатов Вас. В. Применение СВЧ-излучения для получения измельченного твердого топлива	49
Мальшев В. Л. Импульсный метод интенсификации массопереноса в эластичных каналах	63

ГИДРОГАЗОДИНАМИКА В ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ ПРОЦЕССАХ

Исаев С. А., Баранов П. А., Жукова Ю. В., Калинин Е. И., Мяс Дж. Дж. Верификация модели переноса сдвиговых напряжений и ее модификаций на примере расчета турбулентного обтекания полукругового профиля под нулевым углом атаки	70
Суров В. С. Моделирование взаимодействия подводной ударной волны с препятствием при наличии пузырькового экрана	86
Антонов Д. В., Волков Р. С., Кузнецов Г. В., Стрижак П. А. Экспериментальное исследование последствий столкновения капель воды в потоке высокотемпературных газов	94
Кочурова Н. Н., Коротких О. П., Абдулин Н. Г., Айрапетова Е. Р., Караев Р. Р., Petzold G. Влияние поверхностных явлений на испарение и конденсацию водных систем	104
Utpal Jyoti Das. Mixed Convective Flow of an Elastico-Viscous Fluid Past a Vertical Plate in the Presence of Thermal Radiation and Chemical Reaction with an Induced Magnetic Field	109
Матвиенко О. В., Бубенчиков А. М. Математическое моделирование теплообмена и химического реагирования закрученного потока диссоциирующего газа	118
Тукмаков А. Л., Мубаракшин Б. Р., Тонконог В. Г. Моделирование процесса одоризации природного газа	127

ТЕПЛОПЕРЕНОС ПРИ ФАЗОВЫХ ПРЕВРАЩЕНИЯХ

Высокоморная О. В., Кузнецов Г. В., Стрижак П. А. Испарение капель воды в высокотемпературной газовой среде	133
Власов В. А., Волокитин О. Г., Волокитин Г. Г., Скрипникова Н. К., Шеховцов В. В. Расчет процесса плавления частицы кварца в условиях низкотемпературной плазмы	143
Доброго К. В., Давыденко В. Ф., Козначеев И. А. Использование ориентированных брызгальных сопел для придания вращения паровоздушному потоку в надросительном пространстве башенной испарительной градирни	148
Кологривов М. М., Бузовский В. П. Численное моделирование тепло- и массообмена в эжекционном аппарате	158

ТЕПЛОПРОВОДНОСТЬ И ТЕПЛООБМЕН В ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ ПРОЦЕССАХ

Алифанов О. М., Палешкин А. В., Терентьев В. В., Фирсюк С. О. Математическое моделирование теплового состояния изотермического элемента с учетом лучистого теплообмена между частями космического аппарата	170
Симанков Д. С. Задача кратковременного взаимодействия жидкого и аморфного тел	177
Кот В. А. Метод взвешенной температурной функции	183

ТЕПЛО- И МАССОПЕРЕНОС В ПРОЦЕССАХ ГОРЕНИЯ

Матвиенко О. В. Математическое моделирование теплообмена и условий воспламенения турбулентного потока реагирующего газа	203
Бачев Н. Л., Бетинская О. А., Бульбович Р. В. Численное моделирование рабочего процесса в камере сгорания для утилизации попутного нефтяного газа	212
Мансуров З. А., Мофа Н. Н., Садыков Б. С., Сабаев Ж. Ж., Баккара А. Е. Механохимическая обработка, особенности структуры, свойств и реакционная способность СВС-систем на основе природных материалов. 4. Получение СВС-керамики на основе механоактивированных материалов	221

НАНОСТРУКТУРЫ

Футыко С. И., Чорный А. Д., Шулицкий Б. Г., Лабунов В. А. Моделирование двумерных газодинамических, температурных и концентрационных полей в инжекционном реакторе химического парофазного осаждения для синтеза массивов углеродных нанотрубок	229
--	-----

ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА

Фокин Л. Р., Калашников А. Н. Транспортные свойства смеси разреженных газов $\text{CH}_4\text{-N}_2$	240
---	-----

РАЗНОЕ

Гусев Е. Л., Бакулин В. Н. Оптимальное проектирование структурно-неоднородных материалов и конструкций с требуемыми свойствами	250
Алиев Е. Т., Дабынов Б. М., Бодыков Д. У., Мусабеков У. С., Мансуров З. А. Разработка и применение модифицированной установки импульсного электроспиннинга для получения волокон короткой длины	256
Алексеев В. В., Орлова Е. А., Козлов Ф. А., Варсеев Е. В. Эволюция двухслойного оксидного покрытия на поверхности стали первого контура в ходе эксплуатации ядерной энергетической установки	262
Manoj K. Mondal and V. Mukhopadhyay. Rheological Consequence of the Behavior of Thermoviscoelastic Substances in the Presence of an Instantaneous Point Heat Source	269

ЛЮДИ НАУКИ

Сталий Андреевич Лосев	278
Геннадий Степанович Романов	279

ИНФОРМАЦИОННАЯ ЛИНИЯ

О веб-конференции "Первые международные Лыковские научные чтения, посвященные 105-летию академика А. В. Лыкова"	280
---	-----

Подготовка оригинал-макета и сопровождение компьютерной системы в Internet осуществляется в редакции "Инженерно-физического журнала",
Институт тепло- и массообмена им. А. В. Лыкова
Национальной академии наук Беларуси
220072, г. Минск, ул. П. Бровки, 15

Ответственный за выпуск: Л. Н. Шемет

Подписано в печать 04.01.2016. Формат 60×84%. Бумага офсетная.
Усл. печ. л. 32,67. Уч.-изд. л. 29,41. Тираж 108 экз. Заказ 2.

Отпечатано в Республиканском унитарном предприятии «Издательский дом «Беларуская навука».
Свидетельство о государственной регистрации издателя, изготовителя, распространителя печатных изданий №1/18 от 02.08.2013.
ЛП № 02330/455 от 30.12.2013.

Ул. Ф. Скорины, 40. 220141, г. Минск.

ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА

УДК 546.212;533.16

Л. Р. Фокин, А. Н. Калашиников

ТРАНСПОРТНЫЕ СВОЙСТВА СМЕСИ РАЗРЕЖЕННЫХ ГАЗОВ $\text{CH}_4\text{-N}_2$

Рассмотрена область применения смеси разреженных нейтральных газов метан–азот, проведены анализ и обобщение опытных данных о транспортных свойствах этой смеси и ее компонентов на основе соотношений молекулярно-кинетической теории с использованием потенциалов парных однородных и перекрестных взаимодействий молекул CH_4 и N_2 . С помощью нелинейного весового метода наименьших квадратов восстановлены параметры трех сферически симметричных трехпараметрических потенциалов взаимодействия Леннарда-Джонса $m-6$ с варьируемой жесткостью отталкивательной ветви. Рассчитаны таблицы справочных данных о вязкости указанной смеси и коэффициенте взаимной диффузии ее компонентов в интервалах концентраций $0-1$ и температур $100-1150$ К. С помощью матрицы ошибок параметров потенциалов сделаны оценки достоверных погрешностей в определении свойств смеси. Проведено сравнение результатов расчетов с ранее полученными справочными данными для рассматриваемой смеси газов.

Ключевые слова: смесь газов, коэффициент взаимной диффузии, молекулярно-кинетическая теория, интеграл столкновений, потенциал взаимодействия, достоверная погрешность.

Введение. В последние годы интересы исследователей транспортных свойств газов в значительной степени смещаются от индивидуальных веществ к смесям, поскольку именно смеси образуют основу окружающей нас среды: атмосфера Земли, продукты сгорания топлив и рабочие вещества двигателей внутреннего сгорания, компоненты многих химико-технологических процессов. В этом ряду веществ особое место занимают смеси газов при относительно невысоких давлениях. Такие смеси с позиций молекулярно-кинетической теории можно рассматривать в рамках парных столкновений компонентов и парных межчастичных потенциалов.

Работы по обобщению термодинамических и транспортных свойств смесей разреженных газов образуют два направления. В первом анализ и обобщение опытных данных проводится независимо для чистых компонентов и отдельно для смесей с учетом фиксируемых результатов предыдущего этапа [1, 2] и затем рассчитываются свойства бинарных смесей во всем интервале концентраций $x = 0-1$. Работы второго направления предусматривают совместную обработку опытных данных для чистых компонентов и смесей с использованием некоторого критерия на базе соотношений кинетической теории и потенциалов однородных и разнородных взаимодействий атомов и молекул. При этом данные о свойствах чистых компонентов и смесей естественным образом дополняют друг друга и одновременно формируют, с одной стороны, согласованную систему справочных данных для бинарных смесей газов и, с другой, что не менее важно, согласованную систему их погрешностей. Авторы настоящей статьи являются сторонниками второго направления работ. В течение ряда лет при нашем участии было проведено обобщение опытных данных для большой группы бинарных смесей технически важных газов, в частности, для $\text{Ar-(H}_2, \text{N}_2)$, $\text{H}_2\text{-(N}_2, \text{CH}_4)$, $\text{N}_2\text{-(O}_2, \text{CO}_2, \text{H}_2\text{O)}$ и $\text{H}_2\text{O-(O}_2, \text{CO}_2, \text{CO)}$ [3–7]. При этом для расчета транспортных свойств (вязкости, коэффициентов диффузии и термодиффузии) чистых газов и бинарных смесей неполярных газов последовательно использовались потенциалы Леннарда-Джонса (Л-Дж) $m-6$ с параметрами ϵ , d и m , т. е. трех потенциалов для каждой пары компонентов смеси. Предварительно была проведена параметрическая аппроксимация входящих в расчетные выражения транспортных свойств интегралов столкновений $\Omega^{*(ls)}(T^*, m)$ в интервале приведенных температур $T^* = 0.4-200$ и показателей $m = 8-\infty$ [8].

При расчете свойств газов с дипольными молекулами (типа H_2O) в потенциалах взаимодействия используются усредненные по углам поправки, учитывающие диполь-дипольные и диполь-поляризационные взаимодействия [4]. В указанных работах промежуточное положение занимают расчеты транспортных свойств бинарных смесей разреженных газов, при проведении которых обобщение опытных данных для чистых компонентов и смесей проводилось одновременно с использованием двух потенциалов Л-Дж m -6 для одноименных i - i и j - j взаимодействий и правил комбинирования для оценки параметров потенциала перекрестных i - j взаимодействий [9].

Метан и азот относятся к основным компонентам атмосферы. Свойства смеси этих газов, в первую очередь коэффициенты взаимной диффузии (КВД), рассматриваются при моделировании многих процессов. В частности, современные расчеты процессов нестехиометрического горения метана и углеводородных топлив в воздухе сопровождаются оценками не только КВД, но и коэффициентов термодиффузии этой пары газов в широкой области температур [10]. При моделировании газотранспортных процессов образования алмазных пленок в метановодородной среде специально изучают влияние примесей азота на свойства конечного продукта [11]. Метан играет важную роль при анализе процессов не только в атмосфере Земли, но и других планет. Например, исследования поверхности и атмосферы Титана (спутника Сатурна) с помощью космических аппаратов "Кассини" и "Гюйгенс", проведенные в 2005–2006 гг., показали, что различные явления в атмосфере Титана связаны с процессами диффузии паров жидкого метана с поверхности спутника в окружающую атмосферу газообразного азота, которые происходят при температуре 90–150 К и давлении ~ 1.5 бар [12]. Эти примеры можно продолжить.

Исходные данные. Список немногочисленных опытных данных о вязкости η , коэффициенте взаимной диффузии D_{12} и термодиффузионном факторе (ТДФ) α_T рассматриваемой смеси приведен в табл. 1. Измерения вязкости смеси $\text{CH}_4\text{-N}_2$ проводились в нескольких работах методом капилляра [14, 15], методом диска [20] и методом вращающегося цилиндра [21] в интервале температур 253–473 К. Табличные данные для разреженного газа получены в работах [14, 15] при экстраполяции экспериментальных изотерм вязкости при давлении 10–490 бар к низкому давлению. Опыт предыдущих обобщений данных по вязкости газов [3–7] показывает, что опытные данные работ [14, 15], полученные при температуре 450–500 К, обычно занижены на 1.5%, а данные работы [20] завышены на 0.6–0.7%. Поэтому в дальнейшем при обобщении свойств смеси при 475 К с использованием этих данных погрешности составили 2% [14, 15] и 0.7% [20] соответственно. Опытные данные о вязкости смеси $\text{CH}_4\text{-N}_2$ в работе 2009-го года [21] получены с использованием классического метода вращающегося цилиндра при давлениях 1.5–20 бар и средств современной измерительной техники. В обработку (табл. 1) включены результаты экстраполяции этих опытных данных к состоянию разреженного газа с погрешностью 0.4%.

Таблица 1. Опытные данные для смеси газов метан–азот

№	Авторы, год, ссылка	Параметр	ΔT , К	Число экспериментальных точек	Метод, мольная доля CH_4 , принятая погрешность
1	Mueller, Cahill, 1964, [13]	D_{12}	298, 352, 382	3	Метод двух колб, $x(\text{CH}_4) \sim 0.5$, $\delta = 3\%$
2	Голубев, Гнездилов, 1968, [14, 15]	η	273–473	15	Метод капилляра, $x(\text{CH}_4) = 0.28$ и 0.55 , $\delta = 2\%$, $x(\text{CH}_4) = 0.8$, $\delta = 5\%$
3	Hampreys, Gray, 1971, [16]	α_T	(300–750) 450–750	18 12	Метод двух колб, $x(\text{CH}_4) = \rightarrow 0, 0.5 \rightarrow 1$, $\delta = 10\%$
4	Engel, Кнаар, 1973, [17]	D_{12}	173, 193, 273	3	Метод двух колб, $x(\text{CH}_4) \sim 0.5$, $\delta = 3\%$
5	Wakeham, Slater, 1973, [18]	D_{12}	313–671	7	Метод двух колб, $x(\text{CH}_4) = \sim 0.1$, $\delta = 5\%$
6	Pal, Bhattacharyya, Barua, 1974, [19]	α_T	348–491 420	8 7	Метод двух колб, $x(\text{CH}_4) = 0.5$, $\delta = 10\%$, $x(\text{CH}_4) = 0.09$ – 0.8 , $\delta = 15\%$
7	Kestin, Ro, 1974, [20]	η	298–473	25	Метод диска, $x(\text{CH}_4) = 0$ – 0.8 , $\delta = 0.3$ – 0.7%
8	El Hawary, 2009, [21]	η	253–473	35	Метод вращающегося цилиндра, $x(\text{CH}_4) = 0$ – 1 , $\delta = 0.4\%$
9	Богатырев и др., 2014, [22]	α_T	452	7	Метод двух колб, $x(\text{CH}_4) = 0.065$ – 0.904 , $\delta = 5\%$

Измерения КВД для смеси $\text{CH}_4\text{-N}_2$ проведены в интервале температур 173–673 К методом двух колб [13, 17, 18]. Опытные данные [17] при температурах 193 и 173 К представляют интерес при восстановлении притягательной ветви межмолекулярного потенциала. Имеется группа работ, в которых при комнатной температуре разными методами проведены измерения КВД смеси. Эти результаты в виде усредненного значения $D_{12} = 0.220 \pm 0.002 \text{ см}^2/\text{с}$ (293 К, 1 атм, $x = 0.5$) включены в процедуру дальнейшей обработки данных. В табл. 1 включены также известные опытные данные о ТДФ смеси газов $\text{CH}_4\text{-N}_2$ [16, 19, 22] в первую очередь для иллюстрации характера отклонения этих данных от теоретической модели упругих столкновений [23, 24]. По сути явления коэффициент термодиффузии отражает конкуренцию двух потоков при наличии градиентов концентрации и температуры в смеси газов. Для вязкости и КВД модель упругих столкновений обычно выполняется с хорошей точностью в пределах погрешности современных экспериментов. Однако, как известно, при расчете теплопроводности молекулярных газов, таких как CH_4 и N_2 , необходимо учитывать роль неупругих столкновений за счет обмена, в первую очередь, между поступательными и вращательными уровнями энергии. В работе [16] для этой смеси газов при средней температуре опытов 420–450 К наблюдается нестандартный вид концентрационной зависимости ТДФ, а именно, с ростом концентрации легкого компонента CH_4 коэффициент термодиффузии смеси не увеличивается, как это имеет место для многих смесей молекулярных газов [3, 5–7, 23], а уменьшается (рис. 1). Для смеси $\text{CH}_4\text{-N}_2$ теоретическая модель упругих столкновений при расчете ТДФ является заведомо нестрогой, и здесь мы ограничиваемся лишь демонстрацией этой ситуации.

В связи с тем, что обобщение транспортных свойств смесей разреженных газов проводится с использованием парных потенциалов межчастичных взаимодействий, представляет интерес априорная информация о потенциалах для смеси $\text{CH}_4\text{-N}_2$. Такая информация содержится в основном в работах, посвященных рассеянию высокоэнергетических пучков атомов и молекул и квантово-химическим расчетам их потенциальной поверхности. Результаты измерений малоугловых сечений атомов и молекул, выполненных в 50–70-е годы прошлого столетия, и восстановленные на их основе отталкивательные потенциалы взаимодействия содержатся в основном в обзорах [25, 26]. Хотя прямых данных по рассеянию молекул $\text{CH}_4\text{-N}_2$ в этих обзорах нет, разработанные правила комбинирования параметров потенциалов позволяют проводить оценки параметров перекрестных взаимодействий $i\text{-}j$ на основе опытных данных для одноименных пар $i\text{-}i$ и $j\text{-}j$. В частности, для отталкивательного потенциала Борна–Майера $V = V_0 \exp(-R/\rho)$, где $R = 2\text{--}3 \text{ \AA}$, на основе анализа данных о рассеянии пучков $\text{N}_2\text{-N}_2$ и $\text{CH}_4\text{-CH}_4$ с использованием правил комбинирования были получены и приведены в работе [2] следующие оценки параметров потенциала $\text{CH}_4\text{-N}_2$: $V_0 = 3.11 \cdot 10^7 \text{ К}$, $\rho = 0.327 \text{ \AA}$. При этом значение энергии взаимодействия при характерном расстоянии между центрами молекул $R = 2.5 \text{ \AA}$ равно $1.48 \cdot 10^4 \text{ К}$ (с погрешностью $\sim 20\%$) и оно служит ориентиром при восстановлении отталкивательной ветви потенциала по теплофизическим данным. Что касается квантово-химических расчетов, то для рассматриваемой пары молекул известны три работы [27–29], в которых представлены результаты расчетов потенциалов

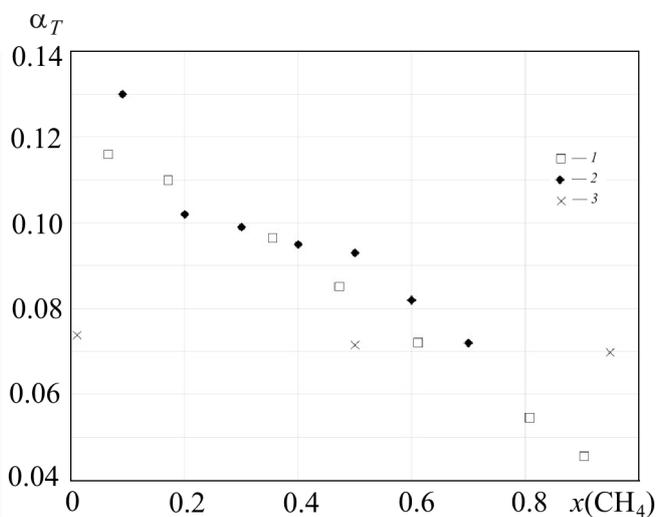


Рис. 1. Концентрационная зависимость ТДФ смеси при $T = 420\text{--}450 \text{ К}$: 1 — [19]; 2 — [22]; 3 — [16]

при фиксированных ориентациях в интервале расстояний 3–15 \AA . Расчеты показывают, что для наиболее стабильной ориентации глубина потенциальной ямы $\epsilon_{\text{max}} \sim 220 \text{ К}$, равновесное расстояние $R_{\text{мин}} \sim 3.6 \text{ \AA}$, диаметр столкновения $d \sim 3.16 \text{ \AA}$. Эти значения были использованы в качестве ограничений для оценок параметров перекрестного усредненного по ориентациям потенциала, который восстанавливался при обработке опытных данных по транспортным свойствам смеси газов. В работе [28] проведено также усреднение потенциалов по ориентациям и усредненный потенциал представлен тремя функциями: двухпараметрическим потенциалом Л-Дж 12-6, трехпараметрическим потенциалом Кихары и трехпараметрическим потенциалом exp-6. Последний с параметрами

$\varepsilon \sim 125$ К, $R_{\text{мин}} \sim 4.15$ Å и $\alpha \sim 4.12$ представляет собой наибольший интерес при рассмотрении отталкивательной ветви потенциала. Значение энергии взаимодействия молекул для этого потенциала $V = 1.4 \cdot 10^4$ К (2.5 Å) хорошо коррелирует с приведенным выше значением $1.48 \cdot 10^4$ К, полученным на основе анализа опытных данных о рассеянии молекулярных пучков.

Совместная обработка и согласование данных одновременно для чистых компонентов и смеси азот–метан проводилась на массиве $N = 319$ точек. Из них 194 точки — значения вязкости и коэффициентов самодиффузии с оценками погрешностей для чистых компонентов. Соответствующая информация содержится в основном в статье 2009-го года [5] для азота и в статье 2011-го года [7] для метана. Для рассматриваемой смеси, кроме опытных данных о ее вязкости и КВД (табл. 1), массив данных из 125-ти точек включал 1) априорные оценки параметров и оценки их погрешностей $a_{ij} \pm \Delta a_{ij}$ для сферически симметричного потенциала взаимодействия Л-Дж m -6 молекул N₂ и CH₄, 2) усредненное справочное значение КВД при 293 К с погрешностью 0.5% и значение КВД при 2773 К, рассчитанное на основе экспоненциального потенциала с погрешностью 10% и, наконец, 3) пять значений КВД с погрешностью 5% в интервале 273–673 К из известного обзора Марреро и Мейсона по КВД газов 1971-го года, представленном [30]. Расчет вязкости и коэффициента самодиффузии чистых компонентов проводился во втором приближении теории [24]. При расчете вязкости смеси газов использована схема Сторвика–Мейсона [31]. При этом в известном выражении для вязкости бинарной смеси газов [24] значения коэффициентов вязкости компонентов $[\eta_{11}]_1$ и $[\eta_{22}]_1$ и коэффициента $[\eta_{12}]_1$, рассчитанные в первом приближении, заменялись на соответствующие значения второго приближения.

Обобщение опытных данных. В результате проведенной обработки совокупности опытных данных о транспортных свойствах чистых газов CH₄ и N₂ и их смеси с помощью весового нелинейного метода наименьших квадратов (МНК) была получена согласованная система параметров трех потенциалов: $V(\text{N}_2\text{-N}_2)$, $V(\text{CH}_4\text{-CH}_4)$, $V(\text{CH}_4\text{-N}_2)$, и матрица ошибок $\mathbf{D}(\mathbf{a})$ для девяти ($p = 9$) элементов вектора параметров \mathbf{a} . Для массива точек $N = 319$ функционал МНК равен $S = 114.5$, т. е. погрешности исходных данных были завышены приблизительно в полтора раза. Оценки параметров и их погрешностей, т. е. диагональных элементов матрицы ошибок $\sigma(a_{ij}) = D^{1/2}(a_{ij})$ приводятся в табл. 2. Найденные параметры для азота и метана близки к их оценкам, полученным ранее при обобщении свойств смесей N₂-H₂ [5] и CH₄-H₂ [7].

В табл. 3 для иллюстрации взаимных влияний погрешностей параметров потенциала $V(\text{CH}_4\text{-N}_2)$ показан фрагмент общей матрицы ошибок, где на диагонали и выше нее приводятся дисперсии параметров и их ковариации, а ниже диагональные коэффициенты корреляции $r_{ij} = \text{cov}(a_{ij}) = D_{ij} / (D_{ii} D_{jj})^{1/2}$. Коэффициент корреляции $r(d_{12}, \varepsilon_{12})$ близок к единице. Тем самым можно показать, сколь велико взаимное влияние погрешностей определения диаметра столкновений d_{12} и глубины потенциальной ямы ε_{12} перекрестного потенциала. Коэффициенты корреляции показателя m_{12} отталкивательной ветви потенциала и параметров d_{12} и ε_{12} составляют примерно 0.37 и имеют разнонаправленный характер.

На рис. 2 и 3 приведены графики отклонений опытных данных для вязкости и КВД от результатов расчетов. Указанные отклонения находятся в основном в пределах оцененных погрешностей (табл. 1). Для смеси газов, как и ожидалось, данные по вязкости, полученные методом диска в работе [20] при температурах выше 350 К, лежат систематически выше, а данные, полученные методом капилляра [15], лежат систематически ниже. Показанные на рис. 2 положительные отклонения опытных данных о вязкости выше 0.5% — это данные для чистого

Таблица 2. Оценки параметров потенциалов Л-Дж m -6 компонентов смеси CH₄-N₂

Потенциал	d , Å	ε , К	m
N ₂ -N ₂	3.647 ± 0.023	97.78 ± 4.21	11.44 ± 0.49
CH ₄ -N ₂	3.571 ± 0.019	145.04 ± 4.97	13.72 ± 0.62
CH ₄ -CH ₄	3.578 ± 0.029	203.62 ± 11.6	17.37 ± 1.78

Таблица 3. Фрагмент матрицы ошибок параметров перекрестного потенциала $V(\text{CH}_4\text{N}_2)$

	d_{12}	ε_{12}	m_{12}
d_{12}	0.0003657	-0.0937205	-0.0044575
ε_{12}	-0.9854866	24.7328113	1.1297250
m_{12}	-0.3745329	0.3659786	0.3852660

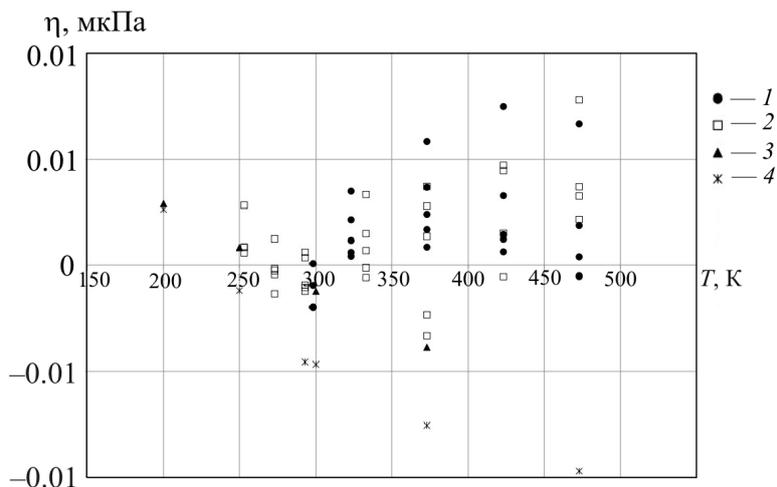


Рис. 2. Относительные отклонения опытных и справочных данных по вязкости смеси от расчетных: 1 — [20]; 2 — [21]; 3 — [2]; 4 — [33]

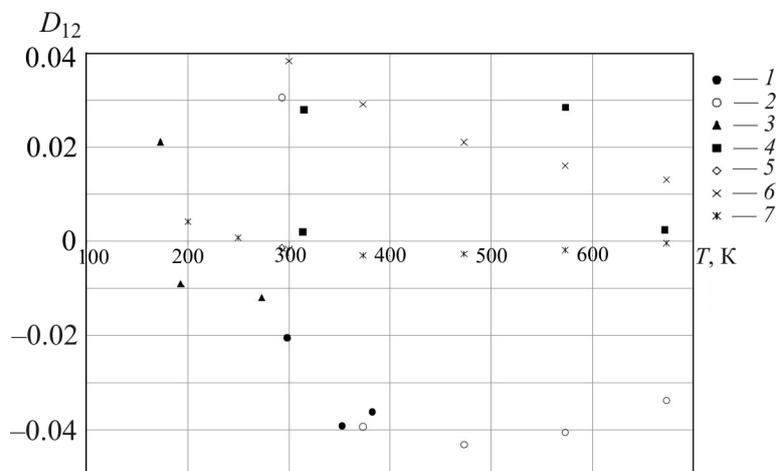


Рис. 3. Относительные отклонения опытных и справочных данных по КВД смеси от расчетных: 1 — [13]; 2 — [30]; 3 — [17]; 4 — [18]; 5, 6 — [2]; 7 — [33]

азота [20]. Для смесей, богатых метаном, отклонения уменьшаются до 0.2%. Как ни странно, новые опытные данные для вязкости смеси метан–азот [21] практически дублируют результаты работы 1974-го года [20], и эта ситуация нуждается в дальнейшем анализе.

Ранее корреляции транспортных свойств смеси метан–азот рассматривались на базе потенциалов взаимодействия в трех работах [2, 32, 33]. В работе [2] для смеси девяти многоатомных газов, в частности, для $\text{CH}_4\text{-N}_2$ обобщение свойств проводилось с использованием принципа соответственных состояний таким образом, что параметры парных потенциалов взаимодействия с учетом некоторых поправок для чистых компонентов находились при сравнении данных о вязкости данного газа и вязкости аргона. Для последнего значения вязкости рассчитывались на базе некоторого потенциала, принятого за эталон. Параметры потенциалов перекрестных взаимодействий находились с помощью модифицированных правил комбинирования параметров чистых компонентов. В статье [2] приводятся подробные таблицы значений второго вириального коэффициента вязкости, коэффициентов диффузии и ТДФ для эквимольной концентрации компонентов в смеси $\text{CH}_4\text{-N}_2$ в интервале температур 200–3000 К. Здесь же указаны соответствующие данные (параметры однородных и разнородных потенциалов и таблицы свойств) для девяти многоатомных газов.

В работах [32, 33] для смеси $\text{CH}_4\text{-N}_2$ реализована разработанная Е. Смитом и коллегами (Оксфорд, Англия) [34] процедура восстановления потенциала межчастичных взаимодействий с использованием опытных данных о вязкости смеси. При этом каждая точка на потенциальной кривой, вид которой заранее не известен, восста-

навливаются в результате некоторой итерационной процедуры с использованием опытных данных о вязкости. Недостатки этой процедуры связаны, в частности, с тем, что ее применение ограничено одним видом опытных данных (здесь вязкость) и одним набором опытных точек. В указанных работах потенциал $V(\text{CH}_4\text{-N}_2)$ был восстановлен на базе опытных данных одной работы [20], полученных в узком интервале температур 298–473 К. В [32, 33] представлены таблицы данных о вязкости, коэффициенте диффузии и ТДФ смеси $\text{CH}_4\text{-N}_2$ эквимолярной концентрации в широком интервале температур. При этом сами потенциалы, использованные при расчете свойств смеси, не приводятся и в ряде случаев трудно проследить важные детали расчета. Например, известное выражение для расчета вязкости смеси газов [24] включает значения вязкости чистых компонентов η_{ii} и η_{ij} и условную вязкость η_{ij} . Однако по тексту статей [32, 33] трудно проследить, в каком приближении теории (в первом или во втором) подставляются эти значения вязкости в общее выражение для вязкости смеси газов.

На рис. 2 и 3, кроме отклонений опытных данных по вязкости и коэффициенту диффузии смеси газов метан–азот от результатов наших расчетов, приводятся для сравнения также отклонения соответствующих расчетных данных из работ [2, 32, 33]. Следует отметить, что в отклонениях последних трудно увидеть какую-либо систему и они не противоречат проведенному нами обобщению транспортных свойств смеси газов метан–азот.

В 2014 г. опубликована новая работа, посвященная расчетам потенциалов взаимодействия молекул метана и азота и моделированию второго вириального коэффициента и транспортных свойств смеси этих газов в разреженном состоянии [35]. Ранее авторы этой работы провели аналогичные расчеты для чистых компонентов указанной смеси. Расчеты несферической потенциальной поверхности были выполнены методами квантовой химии для десяти конфигураций взаимодействия жестких ротаторов N_2 и CH_4 в интервале расстояний центров масс молекул 2–10 Å. Отмечается хорошее согласие результатов этих расчетов и расчетов потенциальной поверхности, выполненных ранее в работе [29]. Для расчета интегралов столкновений, входящих в выражения молекулярно-кинетической теории, был использован метод траекторий на сетке 33-ех энергий взаимодействия при различных ориентациях молекул (порядка 10^8 траекторий для каждой энергии). В результате были рассчитаны подробные таблицы вязкости и КВД в интервале температур 70–1200 К для 11 составов смеси $\text{CH}_4\text{-N}_2$. По оценкам авторов, погрешность результатов расчетов при температурах выше 400 К не превышает 0.2–0.3%, однако она увеличивается до 0.5% для вязкости и до 1.5% для КВД при 70 К (температура поверхности Титана [12]). В статье [35] приводится график отклонений расчетных данных от опытных, полученных в двух экспериментальных работах по вязкости смеси газов в интервале температур 253–473 К и концентраций $x = 0\text{--}1$ [20, 21]. Характер и значения этих отклонений в рассматриваемой работе и на графике рис. 2, построенном по результатам аппроксимации совокупности опытных данных с использованием трех потенциалов Л-Дж $m\text{-}6$, практически совпадают (!).

Найденные параметры потенциалов и их матрица оценок погрешностей позволяют рассчитать с использованием аппарата кинетической теории разреженных газов таблицы справочных данных, включая оценки их погрешностей, о вязкости и коэффициентах диффузии смеси $\text{CH}_4\text{-N}_2$ в широком интервале температур в интервале концентраций $x = 0\text{--}1$. Фрагмент справочных данных о вязкости этой смеси в интервале температур 100–1150 К приводится в табл. 4.

На изотермах для рассматриваемой смеси газов следовый КВД со стороны тяжелого компонента N_2 не превышает 1% КВД со стороны метана. Поэтому в табл. 5 приводятся значения этого коэффициента только для эквимолярной концентрации в расширенном интервале температур 70–2000 К.

Как можно видеть из в табл. 2, даже ненормированные оценки погрешностей параметров потенциалов значительно меньше самих параметров. Это дает возможность использовать для оценок доверительных погрешностей $\text{err}(y)$, приведенных в таблицах справочных данных, правило переноса ошибок:

$$\text{err}(y) = t_p [S/(N-p) \sum_i \sum_j (\partial y/\partial a_i) (\partial y/\partial a_j) \text{cov}(a_i a_j)]^{1/2}, \quad (1)$$

где в квадратных скобках представлены оценки дисперсий функций $D[y(T, x, a)]$, ковариации $\text{cov}(a_i a_j)$ представляют собой элементы матрицы ошибок параметров, фрагмент которой показан в табл. 3, $t_p = 6$ — множитель для перехода от оценок $D^{1/2}[y(T, x, a)]$ к оценкам доверительных погрешностей $\text{err}(y)$ при вероятности $P \sim 0.9$. При этом принят ряд допущений. Во-первых, в матрице весов опытных данных \mathbf{W}_{NN}^* исключены все ковариации погрешностей отдельных точек $Y(T, x)$, т. е. все опытные точки считаются независимыми. При этом в весовой матрице сохраняются только диагональные члены $w_i = (\delta Y)^2$, где δ — относительная погрешность серии опытных данных, отражающая одновременно источники случайных

Таблица 4. Вязкость η смеси $\text{CH}_4\text{-N}_2$ в интервале температур 100–1150 К и погрешность ее определения err

T, К		Мольная доля $x(\text{N}_2)$						
		$x = 0$	$x = 0.2$	$x = 0.4$	$x = 0.5$	$x = 0.6$	$x = 0.8$	$x = 1$
100	η , мкПа	3.97	4.49	5.02	5.29	5.57	6.13	6.71
	err, %	9.2	5.8	4.0	3.4	3.0	2.7	3.4
150	η , мкПа	5.81	6.64	7.48	7.90	8.31	9.15	9.97
	err, %	3.2	2.6	2.7	2.6	2.5	2.3	2.8
200	η , мкПа	7.68	8.75	9.81	10.34	10.86	11.88	12.88
	err, %	0.92	1.29	1.68	1.69	1.62	1.44	1.63
250	η , мкПа	9.46	10.73	11.98	12.59	13.19	14.36	15.50
	err, %	0.43	0.81	1.08	1.09	1.03	0.89	0.95
300	η , мкПа	11.15	12.59	13.98	14.67	15.34	16.64	17.89
	err, %	0.34	0.57	0.75	0.75	0.70	0.56	0.60
350	η , мкПа	12.73	14.32	15.85	16.60	17.33	18.75	20.10
	err, %	0.29	0.52	0.68	0.68	0.63	0.46	0.49
400	η , мкПа	14.22	15.94	17.60	18.41	19.20	20.72	22.17
	err, %	0.32	0.58	0.78	0.79	0.73	0.51	0.51
450	η , мкПа	15.63	17.48	19.26	20.12	20.96	22.59	24.13
	err, %	0.41	0.70	0.94	0.95	0.88	0.61	0.56
500	η , мкПа	16.97	18.93	20.82	21.74	22.63	24.35	25.99
	err, %	0.51	0.82	1.10	1.10	1.03	0.71	0.60
550	η , мкПа	18.24	20.32	22.32	23.28	24.23	26.05	27.77
	err, %	0.59	0.93	1.24	1.25	1.17	0.79	0.63
600	η , мкПа	19.46	21.65	23.75	24.77	25.76	27.67	29.48
	err, %	0.65	1.03	1.37	1.38	1.28	0.87	0.66
650	η , мкПа	20.63	22.92	25.13	26.19	27.23	29.23	31.13
	err, %	0.70	1.12	1.49	1.49	1.39	0.94	0.68
700	η , мкПа	21.75	24.15	26.46	27.57	28.65	30.75	32.73
	err, %	0.73	1.19	1.59	1.59	1.48	1.00	0.70
750	η , мкПа	22.84	25.34	27.74	28.90	30.03	32.22	34.29
	err, %	0.76	1.26	1.67	1.68	1.57	1.06	0.72
800	η , мкПа	23.89	26.49	28.99	30.19	31.37	33.64	35.80
	err, %	0.78	1.32	1.75	1.76	1.64	1.11	0.76
850	η , мкПа	24.90	27.61	30.20	31.45	32.67	35.03	37.27
	err, %	0.80	1.37	1.83	1.83	1.71	1.16	0.79
900	η , мкПа	25.89	28.69	31.38	32.67	33.94	36.39	38.71
	err, %	0.83	1.42	1.89	1.90	1.78	1.21	0.84
950	η , мкПа	26.86	29.75	32.53	33.87	35.18	37.71	40.12
	err, %	0.85	1.47	1.95	1.96	1.83	1.26	0.88
1000	η , мкПа	27.80	30.78	33.65	35.04	36.39	39.01	41.50
	err, %	0.88	1.51	2.01	2.02	1.89	1.31	0.94
1050	η , мкПа	28.71	31.79	34.75	36.18	37.58	40.28	42.86
	err, %	0.92	1.56	2.06	2.08	1.94	1.36	1.00
1100	η , мкПа	29.61	32.78	35.83	37.30	38.74	41.53	44.19
	err, %	0.96	1.60	2.12	2.13	1.99	1.40	1.06
1150	η , мкПа	30.49	33.75	36.88	38.40	39.89	42.76	45.50
	err, %	1.01	1.64	2.16	2.18	2.04	1.45	1.12

Таблица 5. Коэффициент взаимной диффузии при давлении 1 атм и $x = 0.5$ и погрешность его определения

T, K	70	80	90	100	110	120	130	140	150	160
$D_{12}, cm^2/c$	0.013	0.017	0.022	0.027	0.032	0.039	0.045	0.052	0.060	0.068
err, %	6.3	5.8	5.3	5.0	4.6	4.3	4.0	3.7	3.4	3.1
T, K	170	180	200	250	300	350	400	450	550	600
$D_{12}, cm^2/c$	0.076	0.085	0.105	0.159	0.223	0.29	0.37	0.46	0.65	0.76
err, %	2.8	2.6	2.2	1.5	1.4	1.6	1.9	2.3	2.8	3.1
T, K	700	750	800	900	1000	1200	1400	1600	1800	2000
$D_{12}, cm^2/c$	0.98	1.11	1.23	1.51	1.80	2.44	3.14	3.92	4.76	5.66
err, %	3.5	3.7	3.8	4.1	4.4	4.8	5.2	5.5	5.8	6.0

и систематических погрешностей конкретного эксперимента. Во-вторых, как можно видеть из рис. 2 и 3, отклонения отдельных групп опытных данных от расчетных носят систематический характер и в целом картина отклонений далека от нормального закона распределения случайных величин. Как известно [37], для большой группы симметричных распределений вероятностей при средних квадратических отклонениях имеется узкая область квантилей $\pm(\Delta/\sigma)_p = 1.7-2$, где оценки доверительных интервалов погрешностей практически совпадают и этому интервалу соответствует доверительная вероятность $P \sim 0.9$. С другой стороны, наш опыт моделирования влияния систематических погрешностей больших групп опытных данных по транспортным свойствам газов на получаемые в рамках метода наименьших квадратов оценки погрешностей параметров [5, 7] показывает, что оценки последних увеличиваются приблизительно в два раза. Для рассматриваемой здесь смеси метан–азот мы имеем только два основных массива опытных данных по вязкости [20, 21] и два массива опытных данных для КВД [13, 18]. Увеличивая несколько произвольно коэффициент влияния систематических погрешностей отдельных серий опытных данных на оценки погрешностей параметров до трех, мы получаем для доверительного интервала погрешностей в (1) $t_p = 6$. Именно с этим коэффициентом сделаны оценки погрешностей справочных данных в табл. 2 и 3. В работах [1, 2, 32, 33] также приводятся оценки погрешностей для справочных данных по вязкости и КВД с ориентировкой в основном на разброс опытных данных относительно расчетных. Например, в [32] приведена погрешность 0.8% для вязкости и 6% для КВД.

Изложенная выше процедура оценок погрешностей, включающая, естественно, элементы субъективизма, имеет следующие преимущества по сравнению с оценками погрешностей, сделанными на основе анализа границ разброса опытных точек. Во-первых, изложенная выше процедура оценок алгоритмизирована и полностью воспроизводима. Во-вторых, мы имеем возможность проследить характер изменения оценок погрешностей как в зависимости от температуры при $x = \text{const}$, так и при изменении состава смеси на изотермах и сравнить оценки погрешностей вязкости и КВД в одинаковых условиях. Например, оценки погрешностей КВД, зависящие практически целиком от оценок погрешностей параметров перекрестного потенциала, приблизительно в два раза выше соответствующих оценок для вязкости. С другой стороны, можно видеть, что оценки погрешностей вязкости на изотермах $\text{err}(y, x)_T$ проходят через максимум при изменении состава. Это отражает структуру тероретической зависимости вязкости смеси, которая включает, кроме перекрестного коэффициента вязкости η_{12} , более точные значения вязкостей азота и метана η_{11} и η_{22} .

Заключение. Проведены анализ и обобщение данных по транспортным свойствам смеси метан–азот, которые демонстрируют возможности применения потенциалов взаимодействия в современной молекулярно-кинетической теории газов и одновременно позволяют выявить ряд проблем, возникающих при анализе свойств конкретных смесей. К таким проблемам относится, в первую очередь, малое число экспериментальных работ по вязкости и КВД бинарных смесей молекулярных газов, выполненных на современном уровне с погрешностью опытных данных менее 1%. Это важно, в частности, для тестирования результатов новых расчетов транспортных свойств смесей газов, которые проводятся с использованием несферических потенциалов и которые претендуют на высокую точность при погрешности меньше 0.5% [35]. Кроме того, не ясно, как при анализе лучше использовать многочисленные опытные данные, например, по вязкости газов [20], которые заведомо завышены при температурах 400–600 К, — вводить ли заранее поправки к опытным данным или использовать их в обработке с повышенной погрешностью. При расчете теплопроводности и термодиффузии чистых молекулярных газов и их смесей необходимо учитывать роль неупругих столкновений при обмене энергией в рас-

смагиваемом интервале температур в первую очередь между поступательными и вращательными степенями свободы молекул. Однако информация о соответствующих релаксационных характеристиках для чистых газов ограничена, а для смесей при перекрестном взаимодействии молекул практически отсутствует. Понимание указанных проблем — это залог дальнейшего развития теории и экспериментальных исследований тем более, если существуют запросы практики.

Настоящая работа является частью общей программы по созданию базы данных о транспортных свойствах технически важных нейтральных газов и газовых смесей в разреженном состоянии с использованием соотношений молекулярно-кинетической теории и потенциалов парных взаимодействий атомов и молекул. Ранее аналогичные обобщения транспортных свойств были сделаны для смесей N_2-H_2 [5] и H_2-CH_4 [6]. Мы планируем с учетом результатов нашей работы для смеси CH_4-N_2 провести совместную обработку и согласование свойств чистых компонентов и смесей одновременно для тройной системы $H_2-N_2-CH_4$: 6 наборов данных, 6 потенциалов, 18 параметров потенциалов, матрица ошибок параметров $D(a)_{18,18}$, что позволяет делать разработанная ранее программа [3].

Настоящая работа выполнена при поддержке Программы фундаментальных исследований Президиума РАН по стратегическому направлению развития науки № 4, координатор акад. В. Б. Бателин.

Обозначения

a — вектор параметров потенциала; a_{ij} — параметр потенциала; $\text{cov}(a_{ij})$ — ковариация ошибок параметров потенциала a_i и a_j МНК; D — матрица ошибок параметров потенциалов; D_{ij} — элемент матрицы ошибок потенциалов; D_{12} — коэффициент взаимной диффузии компонентов, 1 атм, $\text{см}^2/\text{с}$; d — диаметр столкновений, Å; $\text{err}(y)$ — оценка доверительной погрешности функции y ; m — показатель степени отталкивательной ветви потенциала; N — число опытных точек; p — число параметров; P — вероятность; S — сумма квадратов отклонений весового МНК; T — температура, К; $T^* = T/\varepsilon$ — приведенная температура; r_{ij} — коэффициент корреляции параметров МНК; R — расстояние между центрами масс молекул, Å; V — межчастичный потенциал взаимодействий; V_0 — параметр потенциала Борна–Майера; x — мольная доля компонента в смеси газов; Y, y — опытная и расчетная величины соответственно; W_{NN}^* — матрица весов опытных данных; w_i — диагональный элемент матрицы ошибок исходных данных; α — параметр потенциала Букингема $\exp(-6)$; α_T — термодиффузионный фактор; δ — относительная ошибка, %; ε — глубина потенциальной ямы, К; η — вязкость, $\text{мкПа}\cdot\text{с}$; ρ — параметр потенциала Борна–Майера; σ — среднее квадратическое отклонение; $\Omega^{*(ls)}$ — приведенный интеграл столкновений; Δ/σ — квантиль распределения вероятностей. Индексы: p — переход, * — относительное значение параметра.

Литература

1. Boushehri A., Bzowski J., Kestin J., and Mason E. A. Equilibrium and transport properties of eleven polyatomic gases at low densities. *J. Phys. Chem. Ref. Data*. 1987. Vol. 16, No. 3. Pp. 445–466.
2. Bzowski J., Kestin J., Mason E. A., and Uribe F. J. Equilibrium and transport properties of gas mixtures at low densities: Eleven polyatomic gases and five noble gases. *J. Phys. Chem. Ref. Data*. 1990. Vol. 19, No. 5. Pp. 1176–1231
3. Калашников А. Н. Система справочных данных о кинетических коэффициентах для расчета процессов переноса по газовоздушному тракту котельной установки. Дис. канд. техн. наук. Москва: ОИВТ РАН, 2001.
4. Фокин Л. Р., Калашников А. Н. Вязкость и коэффициент самодиффузии разреженного водяного пара. Уточнение справочных данных. *Теплофизика высоких температур*. 2008. Т. 46, № 5. С. 674–679
5. Фокин Л. Р., Калашников А. Н. Транспортные свойства смесей разреженных газов N_2-H_2 в базе данных ЭПИДИФ. *Теплофизика высоких температур*. 2009. Т. 47, № 5. С. 675–687.
6. Шашков А. Г., Золотухина А. Ф., Фокин Л. Р., Калашников А. Н. Транспортные свойства смесей разреженных нейтральных газов. Система водород–аргон. *Инженерно-физический журнал*. 2010. Т. 83, № 1. С. 179–188.
7. Фокин Л. Р., Калашников А. Н., Золотухина А. Ф. Транспортные свойства смесей разреженных газов. Система водород–метан. *Инженерно-физический журнал*. 2011. Т. 84, № 6. С. 1306–1317.
8. Попов В. Н., Фокин Л. Р., Калашников А. Н. Аналитическое представление интегралов столкновений для потенциала Л-Дж $m-6$. *Теплофизика высоких температур*. 1999. Т. 37, № 1. С. 49–55.
9. Zarkova L., Hohm U., and Damyanova M. Viscosity and pVT-second virial coefficient of binary noble-globular gas and globular-globular gas mixtures calculated by means of an isotropic temperature-dependent potential. *J. Phys. Chem. Ref. Data*. 2003. Vol. 32, No. 4. Pp. 1591–1605.
10. Palle S. and Miller R. S. Analysis of high-pressure hydrogen, methane, and heptane laminar diffusion flames: Thermal diffusion factor modeling. *Combust. Flame*. 2007. Vol. 151, No. 4. Pp. 581–600.
11. Clay K. C., Speakman S. P., Amaratunga G. A. J., and Silva S. R. P. Characterization of $a-C:H:N$ deposition from CH_4/N_2 rf plasmas using optical emission spectroscopy. *J. Appl. Phys.* 1996. Vol. 79, No. 6. Pp. 7229–7233.
12. Luspay-Kuti A., Chevrier V. F., Wasiak F. C. et al. Experimental simulations of CH_4 evaporation on Titan. *Geophys. Res. Lett.* 2012. Vol. 39. Pp. L23203 (5).

13. **Mueller C. R. and Cahil R. W.** Mass spectrometric measurement of diffusion coefficient. *J. Chem. Phys.* 1964. Vol. 40, No. 3. Pp. 651–654.
14. **Голубев И. Ф.** *Вязкость газов и газовых смесей.* Москва: Физматгиз, 1959.
15. **Гнездилов Н. Е., Голубев И. Ф.** Вязкость смесей метан–азот и метан–азот–водород при температурах от 273 до 473 К и давлениях до $490.3 \cdot 10^5$ Н/м². *Газовая промышленность.* 1968. № 4. С. 46–48.
16. **Humphreys A. E. and Gray R.** Thermal diffusion as a probe of binary diffusion coefficient at elevated temperatures. II. CH₄-N₂ and CH₄-CO₂. *Proc. Royal Soc. (L) A.* 1971. Vol. 322, No. 1548. Pp. 89–100.
17. **Engel J. and Knaap H.** Experimental determination of binary diffusion coefficients in gaseous systems He-CH₄, He-N₂, CH₄-N₂. *Wärme- und Stoffübertragung.* 1973. Bd 6, No. 3. S. 146–152.
18. **Wakeham W. A. and Slater D. H.** Diffusion coefficients for *n*-alkanes in binary gaseous mixtures with nitrogen. *J. Phys. B.* 1973. Vol. 6. Pp. 886–896.
19. **Pal A. K., Bhattacharyya S. K., and Barua A. K.** Thermal diffusion in polyatomic gas mixtures CH₄-N₂ and CH₄-CO₂. *J. Phys. B.* 1974. Vol. 7, No. 1. Pp. 178–184.
20. **Kestin J. and Ro S. T.** The viscosity of nine binary and two ternary mixtures of low density. *Ber. Bunsen Ges. Physik. Chemie.* 1974. Bd 78, No. 1. S. 20–23.
21. **El Hawary T.** *Messung der Dichte und Viskosität in Gasphase von Methan, Stickstoff und Methan–Stickstoff–Gemischen.* Dissertation, Ruhr-Universität Bochum, 2009.
22. **Bogatyrev A. F., Makeenkova O. D., and Nezovitinova M. A.** Experimental study of thermal diffusion in multicomponent gaseous mixtures. *Int. J. Thermophys.* 2015. Vol. 36, No. 4. Pp. 633–647.
23. **Шашков А. Г., Золотухина А. Ф., Василенко В. Б.** *Фактор термодиффузии газовых смесей. Методы определения.* Минск: Белорусская наука, 2007.
24. **Модели процессов молекулярного переноса в физико-химической газодинамике:** в *Физико-химические процессы в газовой динамике.* Т. 3. Под ред. С. А. Лосева. Москва: Физматлит, 2012.
25. **Мейсон Е. А.** Перенос в нейтральном газе: в *Кинетические процессы в газах и плазме.* Пер. с англ. А. Хохштива. Москва: Атомиздат, 1972. С. 52–91.
26. **Леонас В. Б.** Исследование короткодействующих молекулярных сил. *Усп. физ. наук.* 1972. Т. 107, вып. 1. С. 29–55.
27. **Schindler H., Vogelsang R., Staemmler V., et al.** Ab initio intermolecular potentials of methane, nitrogen and methane + nitrogen and their use in Monte Carlo simulations of fluids and fluid mixtures. *Molec. Phys.* 1993. Vol. 88, No. 6. Pp. 1413–1429.
28. **Shadman M., Veganegi S., and Ziaie F.** Ab initio interaction potential of methane and nitrogen. *Chem. Phys. Lett.* 2009. Vol. 467. Pp. 237–242.
29. **Kalugina Yu. N., Cherepanov V. N., Buldakov M. A., et al.** Theoretical investigation of the potential energy surface of the van der Waals complex CH₄-N₂. *J. Chem. Phys.* 2009. Vol. 131. Pp. 134304 (8).
30. **CRC Handbook of Chemistry and Physics.** 74th edit. Ed. D. R. Lide. Boca Rayon a. o. CRC Press, 1993. Ch. 6. Pp. 205–206.
31. **Storvik T. S. and Mason E. A.** Determination of diffusion coefficient from viscosity measurements: effect of higher Chapman–Enskog approximations. *J. Chem. Phys.* 1966. Vol. 45, No. 10. Pp. 3752–3754.
32. **Maghari A. and Jaili A. H.** Calculation of transport coefficients for CH₄-N₂ and CH₄-O₂ by the inversion method. *J. Phys. Soc. Jap.* 2004. Vol. 73, No. 5. Pp. 1191–1196.
33. **Moghadasi J., Papari M. M., and Yousefi F.** Transport coefficients of natural gases. *J. Chem. Eng. Jap.* 2007. Vol. 40, No. 9. Pp. 698–710.
34. **Каплан И. Г.** *Введение в теорию межмолекулярных взаимодействий.* Москва: Наука, 1982. Гл. V, пар. 3.3.
35. **Hellmann R., Bich E., Vogel E., and Vesovic V.** Intermolecular potential energy surface and thermophysical properties of the CH₄-N₂ system. *J. Chem. Phys.* 2014. Vol. 141. Pp. 224301(10).
36. **Новицкий П. В., Зограф И. А.** *Оценка погрешностей результатов измерений.* Ленинград: Энергоатомиздат, 1991.