

DOI: [10.7242/1999-6691/2023.16.1.1](https://doi.org/10.7242/1999-6691/2023.16.1.1)
УДК 532.5

ХЕМОКОНВЕКЦИЯ СМЕШИВАЮЩИХСЯ РАСТВОРОВ В НАКЛОННОМ СЛОЕ

Е.А. Мошева^{1,2}, Р.Р. Сираев¹, Д.А. Брацун¹

¹Пермский национальный исследовательский политехнический университет, Пермь, Российская Федерация

²Институт механики сплошных сред УрО РАН, Пермь, Российская Федерация

Работа посвящена экспериментальному и численному исследованию хемоконвективного течения двух смешивающихся реагирующих растворов, которые заполняют плоский слой, ориентированный под некоторым углом к полю силы тяжести. В экспериментах используются водные растворы азотной кислоты и гидроксида натрия. Система эволюционирует из начального состояния, при котором однородные растворы реагентов разделены в пространстве и занимают по половине слоя, а поверхность между ними является плоской. При контакте растворов реагентов начинается реакция нейтрализации кислоты основанием с образованием соли и воды. Конфигурация системы выбрана таким образом, что менее плотная кислота находится над более плотным основанием. За счёт этого исключается развитие неустойчивости Релея–Тейлора. Эксперименты выполнены для таких начальных концентраций реагентов, при которых реакция протекает в волновом режиме. Волна состоит из быстро продвигающегося в направлении действия силы тяжести скачка плотности, разделяющего неподвижный раствор щелочи и слой, содержащий смесь кислоты и соли, конвекция которого обеспечивает поступление свежей кислоты к реакционному фронту. Визуализация течения в эксперименте выполнена с использованием интерферометра Физо. Численное исследование полной трёхмерной задачи проведено с помощью программы гидродинамического моделирования ANSYS CFX. Исследована перестройка течения при постепенном увеличении угла наклона от 0 до 70°. Установлено, что наклон слоя приводит к существенному изменению структуры и интенсивности конвективного движения. Уже при малых углах отклонения (до 30°) течение становится трёхмерным, что делает приближение ячейки Хеле-Шоу не применимым к данному случаю. В спутном потоке волны плотности происходит спонтанное расслоение полей концентрации соли и кислоты. С увеличением угла наклона скорость волны уменьшается, хемоконвекция в спутном потоке становится менее интенсивной и приобретает определенную вихревую структуру. При больших углах наклона (от 50 до 70°) фронт волны либо сильно деформируется, либо волна распадается. В слое выше скачка плотности развивается подъёмно-опускное течение, которое теряет устойчивость по отношению к возмущениям в виде вертикальных валов концентрационной конвекции Релея. Наблюдается хорошее согласование данных экспериментальных измерений и численного моделирования задачи.

Ключевые слова: хемоконвекция, реакция нейтрализации, смешивающиеся жидкости, волна плотности, численные эксперименты

CHEMOCONVECTION OF MISCIBLE SOLUTIONS IN AN INCLINED LAYER

E.A. Mosheva^{1,2}, R.R. Siraev¹ and D.A. Bratsun¹

¹Perm National Research Polytechnic University, Perm, Russian Federation

²Institute of Continuous Media Mechanics UB RAS, Perm, Russian Federation

This paper presents an experimental and numerical investigation of the chemoconvective flow of two miscible reacting solutions that generate a plain layer oriented at some angle to the gravity field. In the experiments, the aqueous solutions of nitric acid and sodium hydroxide were used. The system evolves from an initial state, in which each homogeneous solution occupies half of the layer, and the contact surface between the layers is flat. When the reacting solutions come into contact with each other, an acid-base neutralization reaction occurs, forming salt and water. The system configuration is chosen so that the acid solution of lower density rests on top of the denser base. This excludes the development of the Rayleigh–Taylor instability. The experiments were performed for such initial concentrations of the reagents at which a wave regime is realized in the system. The wave comprises a density jump rapidly advancing in the direction of gravity and separating the immobile alkali solution and the layer of acid and salt mixture, the convective motion of which feeds the frontal reaction with fresh acid. The visualization of the flow in the experiments was performed using a Fizeau interferometer. The numerical study of a complete three-dimensional problem was carried out using the ANSYS CFX hydrodynamic simulation program. We studied the flow evolution at a gradual increase in the angle of inclination from 0° to 70°. We found that the layer inclination leads to a significant change in the structure and intensity of the convective motion. Already at small inclination angles (up to 30°), the flow becomes three-dimensional, which makes the Hele-Shaw approximation inapplicable to this case. We show that there is a spontaneous stratification of salt and acid concentration fields in the cocurrent wave flow. With an increase in the angle of inclination, the wave velocity decreases, and chemoconvection in the cocurrent flow becomes less intense and acquires a certain vortex structure. At larger angles (from 50° to 70°), the wave front is strongly deformed or the wave breaks up. We demonstrate that an up-and-down fluid flow develops in the layer above the density jump. This flow eventually loses its stability with respect to the vertical rolls of solutal Rayleigh convection. There is a good agreement between the experimental measurements and the results of numerical simulation of the 3D problem.

Key words: chemoconvection, neutralization reaction, miscible liquids, density wave, numerical experiments

1. Введение

Химическая реакция, как правило, сопровождается резкими пространственно-временными вариациями физико-химических параметров реагирующих сред [1, 2]. Если среда является газообразной или жидкой, эти изменения могут приводить к возбуждению различных гидродинамических неустойчивостей, инициирующих развитие конвективного движения. Наличие конвективного массопереноса в свою очередь способно существенным образом повлиять на сценарий протекания реакции. Это может быть использовано

при проектировании технологического процесса для управления скоростью образования конечного продукта реакции. Стоит отметить, что к изучению указанных процессов наблюдается всё возрастающий интерес, который стимулируется многочисленными технологическими приложениями, такими как нефтепереработка [3], фотополимеризация [4], фармацевтическое производство [5, 6], утилизация углекислоты хемосорбцией [7, 8], сепарация руд [9] и др.

Одним из перспективных способов управления процессами реакции диффузии–конвекции является воздействие полем инерции. Все гравитационно-зависимые типы неустойчивости чувствительны к изменениям направления и интенсивности внешнего инерционного поля [10]. Перечислим методы варьирования поля от простых до самых сложных с точки зрения практической реализации. Простейший путь ослабить действие постоянного поля силы тяжести на конвективную систему заключается в её переориентации по отношению к полю. Впервые задача о тепловой конвекции в наклонном плоском слое, обогреваемом сбоку, сформулирована и решена для основного состояния в [11]. При наклоне течение перестраивается, а его скорость уменьшается. Численное решение для устойчивости подъёмно-опускного течения получено в [12–14]. В этих работах обнаружена и описана спиральная мода возмущений. Интересно отметить, что пространственные возмущения становятся наиболее опасными, начиная с определенного значения угла наклона. Более сложным методом управления является нестационарное изменение ориентации кюветы в поле силы тяжести, которое может быть дополнено интеллектуальным управлением с обратной связью [15]. Мощным инструментом воздействия на жидкие системы являются искусственно генерируемые силы инерции [10]. Инерционное поле, создаваемое линейно-поляризованными вибрациями, оказывает стабилизирующее действие на неустойчивые градиенты плотности, образованные в результате развития конвекции Релея–Тейлора [16] и двойной диффузии [17]. В литературе встречается гибридный метод управления, который включает и вибрации, и наклон слоя [18, 19].

Ранее авторами изучалась устойчивость двухслойной системы смешивающихся реагирующих жидкостей на примере реакции нейтрализации [20, 21]. Показано, что в зависимости от начальных концентраций реагентов в слоях реакционные процессы могут развиваться либо в рамках устойчивого диффузионно-контролируемого режима, либо сопровождаться развитием интенсивного движения жидкости как конвективно-контролируемого режима. В последнем случае в системе формируется неустойчивость Релея–Тейлора, обусловленная всплыванием менее плотной, по сравнению с верхним слоем, реакционной зоны. Формирующееся конвективное движение интенсифицирует массообменные процессы и увеличивают скорость реакции на несколько порядков. Из обнаруженных режимов с точки зрения прикладных задач наиболее интересен именно конвективно-контролируемый режим. Возможность управлять конвективным массопереносом переключением режимов реакции: подавлять его, когда конвекция в системе нежелательна и, наоборот, интенсифицировать с целью ускорения реакции и образования продукта, открывает широкие возможности для реализации наиболее эффективных химических технологий.

Некоторые способы управления конвективным массопереносом в системах с реакцией нейтрализации также апробированы. Простые из них связаны с вариацией физико-химических свойств исходных реагентов [22–24] и геометрических параметров реакторной зоны [25]. Управление массопереносом за счёт реального изменения уровня гравитации исследовалось в экспериментах, проведенных в условиях параболического полета [26]; путем искусственного изменения гравитации — в условиях воздействия инерционного поля, создаваемого вибрациями [27, 28] и центрифугированием [29].

В настоящей работе экспериментально и численно рассмотрена возможность управления протеканием реакции путём варьирования эффективного силового воздействия. Исследование осуществляется на примере двухслойной системы смешивающихся реагирующих жидкостей в тонкой наклонной ячейке. Изменение взаимной ориентации анализируемой системы и направления действия силы тяжести сказывается как на форме основного течения, так и на процессе структурообразования.

2. Экспериментальное исследование

2.1. Экспериментальная установка и методика проведения испытаний

Эксперименты выполнены в двух тонких, состоящих из верхней и нижней частей ячейках (Рис. 1а), боковыми гранями которых служили плоскопараллельные интерференционные стёкла. Высота и толщина ячеек были одинаковыми и составляли 10 и 0,12 см. Ширина ячеек отличалась примерно в 2 раза и равнялась, соответственно, 2,4 и 5,0 см. Боковые стекла ячеек имели в средней части неглубокие пазы (с внутренней стороны), куда вставлялась специальная заслонка, которая разграничивала жидкости, заполняющие верхнюю и нижнюю части, и создавала в ячейках двухслойную систему.

Для исследования динамики реакции, а также структуры и интенсивности возникающей конвекции использовался метод интерферометрии. Для визуализации распределения показателя преломления, обусловленного разными концентрациями реагентов и продукта реакции, применялся лазерный интерферометр, собранный по схеме Физо. Поскольку диффузионное время на три порядка превышало

вязкое время (число Шмидта $Sc \sim 10^3$), потоки различной концентрации оказывались «вмороженными» в движущуюся жидкость, что позволяло рассматривать интерференционные полосы как индикаторы движения.

Перед каждым экспериментом ячейка устанавливалась вертикально (см. на Рис. 1б, положение 1, угол наклона $\alpha = 0^\circ$) в специальную конструкцию, которая позволяла регулировать угол наклона ячейки относительно направления действия силы тяжести. Далее в ячейке формировалась двухслойная устойчиво стратифицированная система жидкостей, состоящая из водных растворов кислоты и основания. Нижний слой был образован водным раствором гидроксида натрия NaOH с плотностью $1,0610 \text{ г/см}^3$ и концентрацией $C_b = 1,5$ моль/л, верхний — водным раствором азотной кислоты HNO₃ с плотностью $1,0585 \text{ г/см}^3$ и концентрацией $C_a = 1,8$ моль/л. Концентрация готового раствора определялась путем измерения плотности денсиметром ТЕРМЕКС, Россия и последующего использования данных о её концентрационной зависимости согласно [30]. До начала эксперимента слои реагентов разграничивались заслонкой, что позволяло контролировать момент контакта реагентов. Затем ячейка наклонялась на определенный угол α (Рис. 1б, положение 2) и фиксировалась в этом положении. Далее заслонка аккуратно удалялась из ячейки, и реагенты вступали в контакт. Этот момент времени принимался за начало эксперимента t_0 . Угол наклона в экспериментах изменялся в диапазоне $\alpha = 0 \div 70^\circ$. Все эксперименты были проведены при температуре окружающей среды $(22 \pm 1)^\circ\text{C}$. Вид экспериментальной ячейки сбоку и её пространственное положение при заданном угле наклона проиллюстрированы на рисунке 1б.

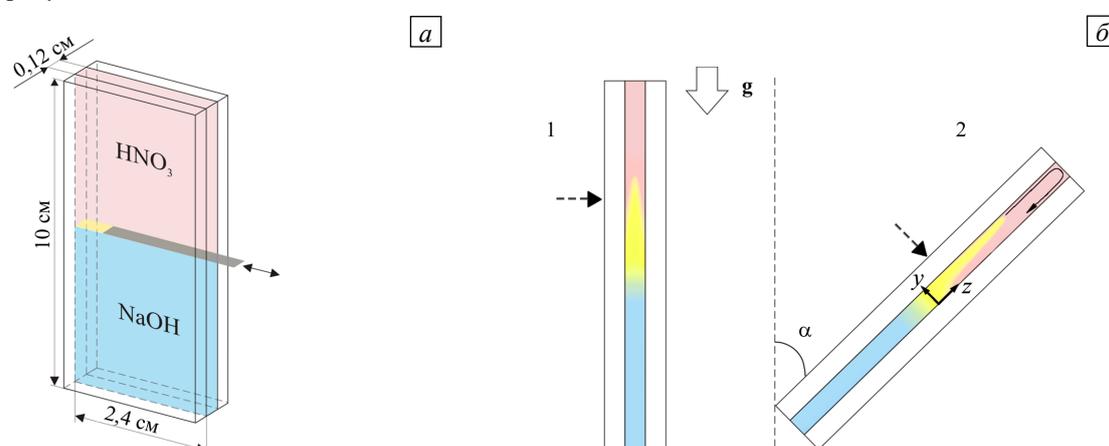


Рис. 1. Схема экспериментальной ячейки, верхняя часть которой заполнена азотной кислотой, нижняя – гидроксидом натрия: вид спереди (а); вид сбоку (б) (цифрами 1 и 2 обозначены положения при угле наклона $\alpha = 0^\circ$ и его произвольном значении; пунктирная стрелка указывает на переднюю грань ячейки); желтым цветом обозначена всплывающая реакционная зона

2.2. Экспериментальные результаты

В работе исследуется влияние наклона на один из режимов протекания реакции, обнаруженный и описанный ранее в [20, 21], а именно конвективно-управляемый. В рамках данного режима в системе формируется неустойчивость Релея–Тейлора, обусловленная всплытием реакционной зоны, более лёгкой по сравнению с верхним слоем системы. Специфика задачи заключается в том, что развитие неустойчивости ограничено потенциальным барьером плотности, который не позволяет пальчиковым структурам хаотично распространяться по всей области. В системе формируется волна плотности, которая разделяет жидкость на область интенсивного перемешивания выше волны и область, где жидкость остается неподвижной. Сама волна быстро распространяется по направлению действия силы тяжести. Динамика волны в вертикально-ориентированной ячейке ранее изучалась в [20, 21]. Эксперименты, обсуждаемые в данной работе, показали, что наклон ячейки приводит к изменению как интенсивности, так и структуры возникающей конвекции.

На рисунке 2 представлены две серии интерферограмм, полученных для двух последовательных моментов времени $t = 7$ и 180 с. В зависимости от величины угла наклона α каждая серия демонстрирует другую структуру конвекции. В целом при увеличении угла наклона структура конвекции остаётся аналогичной той, что наблюдается в случае вертикально ориентированной ячейки ($\alpha = 0^\circ$). Над фронтом реакции конвекция интенсивная, в то время как ниже фронта реакции жидкость сохраняет покой. Однако, подробный визуальный анализ интерферограмм выявил некоторые существенные особенности. Сравним интерферограммы для начальных моментов времени ($t = 7$ с). При $\alpha = 0^\circ$ имеет место типичное для неустойчивости Релея–Тейлора развитие конвективных плюмов. Они активно формируются и

свободно всплывают независимо друг от друга. В наклонной ячейке вертикальное движение плумов ограничивает передняя грань ячейки; достигнув её плумы объединяются и продолжают всплывать, образуя единое течение вдоль передней грани, натекающее при этом на верхний слой системы подобно интрузивным течениям [31].

При увеличении угла наклона уменьшается высота слоя, где плумы могут свободно всплывать. Как следствие, время, требуемое на запуск процесса натекания, также уменьшается, а само натекание становится более выраженным. Сравним вырезки, показанные на рисунке 2 при $t = 7$ с крупным планом, которые демонстрируют процесс развития плумов. Видно, что при $\alpha = 60^\circ$ плумы распространяются в виде единого натекающего слоя, а не раздельно как это происходит при $\alpha = 0^\circ$. Ввиду того, что вначале плумы всплывают с разной скоростью, граница натекающего фронта оказывается не прямой.

Натекание в условиях несжимаемости жидкости инициирует возвратное течение верхнего слоя системы вдоль задней стенки ячейки (см. Рис. 1б, положение 2). На существование такого движения указывает возникающая в средней части канала структура, которая визуализируется как нисходящий поток жидкости (Рис. 2, $t = 180$ с, $\alpha > 0^\circ$). Процесс натекания продолжается до момента достижения реакционной зоны. Так как реакция имеет фронтальный характер, то именно реакционная зона, точнее формирующиеся в ней конвективные плумы, являются движущей силой, которая поддерживает процесс натекания. Поэтому, достигнув реакционной зоны, нисходящий поток не может проникнуть сквозь фронт в нижний слой, чтобы запустить глобальное перемешивание всей системы. Вместо этого поток натекает на реакционную зону, разворачивается, смешивается со вновь появившимися плумами и продолжает свое движение вдоль верхней грани ячейки; над реакционной зоной формируется крупномасштабное трёхмерное конвективное течение.

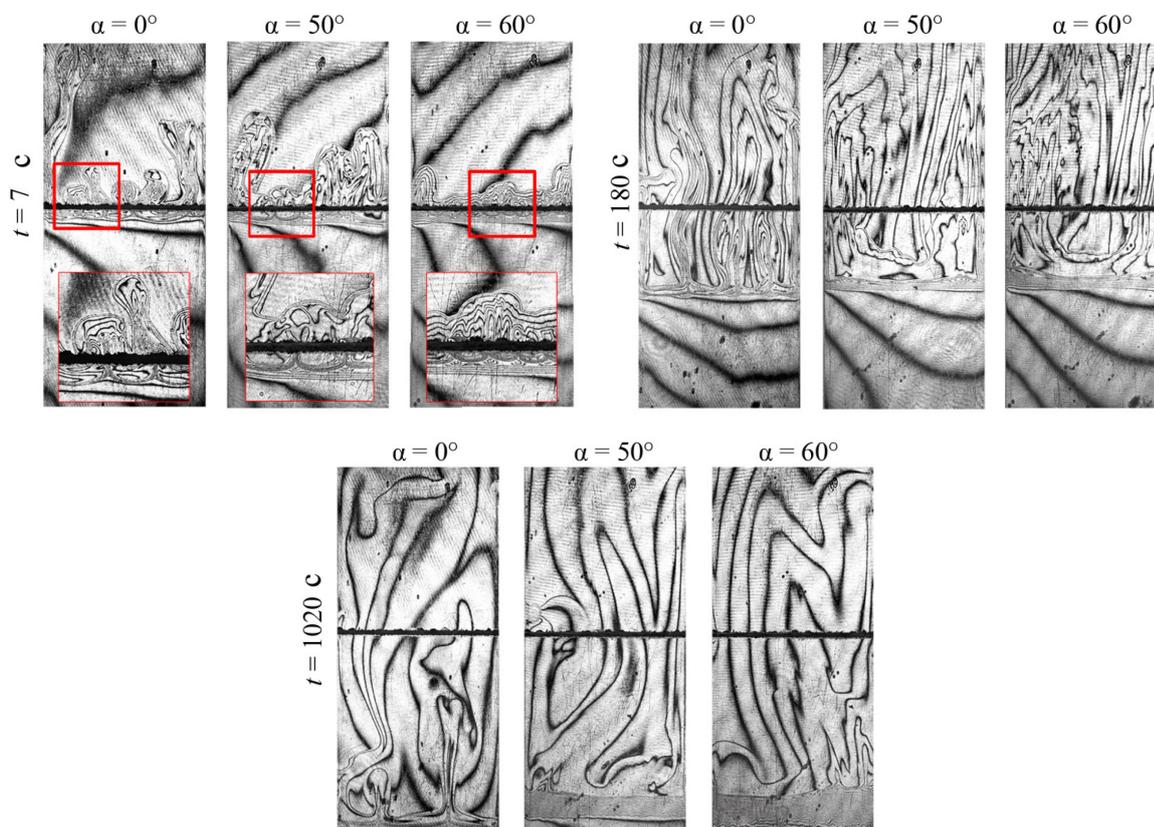


Рис. 2. Интерферограммы при различных углах наклона ячейки в разные моменты времени; ширина ячейки 2,4 см

Экспериментальные наблюдения показали, что появление трёхмерного течения ведет к изменению места всплытия плумов. В начальный момент времени независимо от значения α плумы формируются по всей ширине реакционной зоны. После того как в верхнем слое системы появляется трёхмерное конвективное движение, всплытие плумов происходит только вблизи боковых границ ячейки (см. Рис. 2, $t = 180$ с, $\alpha > 0^\circ$). По-видимому, это связано с тем, что нисходящий поток в момент своего разворота сносит часть плумов к боковым границам, а с другой частью плумов перемешивается. В то же время в экспериментах, проведённых в ячейке с удвоенной шириной (5 см), обнаружено, что плумы развиваются преимущественно в центре канала, а сама структура, указывающая на наличие нисходящего потока, видоизменяется: количество плумов удваивается и они локализуются вблизи двух боковых стенок ячейки. С течением времени реакция затухает вследствие выгорания реагентов. К концу реакции интенсивность всплытия плумов на порядок ниже, чем в начальный момент времени [21]. Вследствие этого конвективное

течение, поддерживаемое натеканием плюмов, постепенно затухает, а нисходящий поток в центральной части ячейки исчезает (см. Рис. 2, $t = 1020$ с). При этом структура конвекции приобретает свойственный подобным реакционным системам хаотичный характер.

На скорость конвективного движения влияет как угол наклона ячейки, так и интенсивность всплытия плюмов. С одной стороны, при увеличении угла наклона уменьшается значение вертикальной проекции вектора силы тяжести. Ввиду того, что всплытие плюмов обусловлено гравитационно-зависимой неустойчивостью Релея–Тейлора, это ведет к замедлению роста скорости распространения плюмов. С другой стороны, увеличение α приводит к увеличению площади соприкосновения слоев реагентов, что сопровождается растяжением фронта реакции и увеличением области реакции. Такое изменение геометрии реакционной зоны ведет к ускорению реакции и, как следствие, к интенсификации процесса зарождения, всплытия и распространения плюмов. Исследовать влияние этих двух механизмов на скорость интрузии плюмов независимо друг от друга в такой постановке эксперимента невозможно. Однако, анализируя динамику фронта реакции, можно прийти к выводу, что изменения, вызванные уменьшением значения проекции силы тяжести, оказывают большее влияние.

На рисунке 3а представлена зависимость координаты положения фронта реакции от времени. Также для наглядности на рисунке 3б приведена скорость распространения фронта, определяемая как функция угла наклона начального участка $x(t)$ (см. вырезанный фрагмент в увеличенном масштабе, Рис. 3а). Хорошо видно, что увеличение наклона приводит к замедлению продвижения фронта реакции. По-видимому, если бы превалировали механизмы, ускоряющие интрузию плюмов, то конвективное движение над фронтом реакции было бы интенсивнее, чем оно есть в действительности. Это привело бы к ускорению распространения фронта за счёт того, что нисходящее течение вдоль задней грани ячейки проталкивало бы и деформировало реакционный фронт. Однако эксперименты показали, что только в начале реакции фронт её незначительно прогибается в центральной части, а по истечении некоторого времени (около 30 с после начала реакции) он выравнивается и становится горизонтальным. Подобная деформация в осуществлённых экспериментах наблюдается, начиная с $\alpha = 50^\circ$ и в целом не сказывается на скорости фронта реакции. Отметим, что шаг по углу наклона грубый и неравномерный, [град]: 0, 20, 40, 50, 60, 70, поэтому не исключено, что деформация фронта возможна и в диапазоне $40^\circ < \alpha < 50^\circ$.

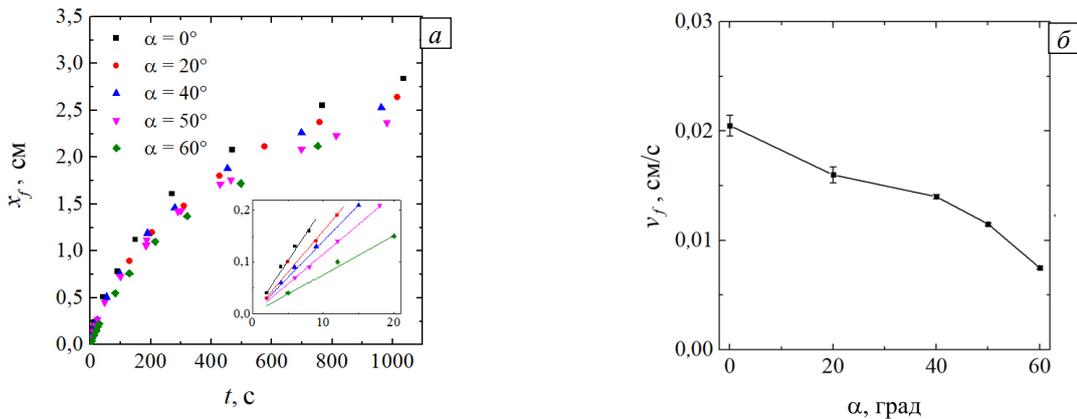


Рис. 3. Зависимости координаты положения фронта x от времени (а) и скорости движения фронта в начальный момент времени от угла наклона α (б)

В условиях наклона исследуемая конвекция не может считаться квазидвумерной. Развитие натекания приводит к тому, что конвекция приобретает трёхмерный характер, что осложняет анализ интерферограмм. Сложность заключается в том, что интерференционная картина, наблюдаемая сквозь широкие грани ячейки, содержит информацию, суммированную по толщине системы. То есть по интерферограммам однозначно различить структуру конвекции, имеющей место вблизи передней и задней граней ячейки невозможно. Но несмотря на это, интерферометрия позволила качественно изучить структурообразование и выявить процесс натекания плюмов.

3. Численное моделирование

3.1. Математическая модель

Как и в эксперименте, будем рассматривать область (в дальнейшем кювету), заполненную водными растворами азотной кислоты и гидроксида натрия (Рис. 1а). Начало декартовой системы координат разместим с краю таким образом, чтобы границы кюветы определялись неравенствами: $0 < x < l$, $0 < y < d$, $-h < z < h$, где $l = 2,4$ см и $h = 5$ см — ширина и половина высоты кюветы, $d = 0,12$ см —

зазор между широкими гранями. Таким образом, кювета представляет собой прямоугольный параллелепипед, сплюснутый по оси y . Будем считать, что кювета может менять свое положение в пространстве по отношению к направлению вектора силы тяжести следующим образом: $\mathbf{g} = g\mathbf{n}$, где \mathbf{n} — единичный вектор с компонентами $(0, \sin \alpha, -\cos \alpha)$. Начальное состояние включает два однородных водных раствора реагентов, которые в момент $t = 0$ разделены в кювете поверхностью $z = 0$. После приведения растворов в контакт начинается процесс смешивания и реакция нейтрализации кислоты основанием, скорость которой характеризуется константой k . Хотя реакция сопровождается выделением некоторой теплоты, далее рассматриваем изотермическую задачу. Это допущение основывается на данных предшествующих экспериментов о влиянии тепловыделения и обсуждается в [20, 21].

Запишем уравнения переноса для концентраций кислоты A , основания B и их соли S как

$$\frac{\partial A}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) A = \operatorname{div} [D_a(A) \nabla A] - kAB, \quad (1)$$

$$\frac{\partial B}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) B = \operatorname{div} [\nabla D_b(B) \nabla B] - kAB, \quad (2)$$

$$\frac{\partial S}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) S = \operatorname{div} [\nabla D_s(S) \nabla S] + kAB. \quad (3)$$

Авторы работы [22] провели расчёт скорости протекания реакции нейтрализации в бездиффузионном и бесконвективном приближении. Полученный интервал её значений оказался довольно широким — от 10^2 до 10^5 м³/с·моль. В настоящем исследовании характерное значение скорости реакции составляет 10^3 м³/с·моль, что позволяет без проблем интегрировать уравнения (1)–(3) и в то же время согласуется с интервалом значений из работы [22].

Реакция нейтрализации является реакцией второго порядка. В данной работе используем модель концентрационно-зависимой диффузии, разработанную в [10–13] для водных растворов HNO₃, NaOH и их соли NaNO₃, которая хорошо работает в диапазоне концентраций до 3 моль/л:

$$D_a(A) \approx 0,158A + 0,881, \quad D_b(B) \approx -0,087B + 0,594, \quad D_s(S) \approx -0,284S + 0,478. \quad (4)$$

Как показывают экспериментальные наблюдения, при постепенном наклоне слоя по отношению к направлению вектора силы тяжести в кювете устанавливается нестационарное пространственное течение. Причём трёхмерные эффекты нарастают с увеличением угла наклона α . Таким образом, квазидвумерное приближение ячейки Хеле-Шоу, которое использовалось авторами данного исследования в своих предыдущих работах и предполагало строго вертикальную ориентации кюветы, здесь является чрезмерным упрощением задачи и не может применяться. Поэтому для расчёта течения многокомпонентной среды возьмём трёхмерное уравнение Навье–Стокса, записанное в приближении Буссинеска для несжимаемой жидкости:

$$\rho_0 \left(\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} \right) = -\nabla p + \eta \nabla^2 \mathbf{v} + \mathbf{g} \rho, \quad (5)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0, \quad (6)$$

где ρ_0 — плотность растворителя (воды), η — динамическая вязкость, ρ — добавка к плотности растворителя за счёт растворённых реагентов и продукта реакции:

$$\rho = \beta_a A + \beta_b B + \beta_s S. \quad (7)$$

Коэффициенты объёмного расширения β в (7) можно считать постоянными при небольших значениях концентраций (до 3 моль/л) и в соответствии с [14, 15] задать следующие значения: $\beta_a = 0,03374$ г/см³·л/моль, $\beta_b = 0,043$ г/см³·л/моль, $\beta_s = 0,056$ г/см³·л/моль. Вклад плотности растворителя в плавучесть элемента среды является градиентным слагаемым и может быть учтён в (5) путём переопределения давления.

Сформулируем граничные условия задачи. Внутреннее пространство кюветы ограничим твёрдыми стенками Γ , на которых скорость обращается в нуль:

$$\mathbf{v}|_{\Gamma} = 0. \quad (8)$$

Положим, что поток реагентов через границы полости отсутствует:

$$\left. \frac{\partial A}{\partial \gamma} \right|_{\Gamma} = 0, \quad \left. \frac{\partial B}{\partial \gamma} \right|_{\Gamma} = 0, \quad \left. \frac{\partial S}{\partial \gamma} \right|_{\Gamma} = 0. \quad (9)$$

Начальные условия задачи запишем в следующем виде:

$$t = 0: \quad \mathbf{v} = 0, \quad A = \begin{cases} A_0, & z \geq 0, \\ 0, & z < 0, \end{cases} \quad B = \begin{cases} 0, & z \geq 0, \\ B_0, & z < 0, \end{cases} \quad S = 0. \quad (10)$$

Система уравнений и граничных условий (2)–(10) содержит размерные параметры: скорость реакции k и начальные концентрации реагентов A_0 , B_0 . Так как скорость реакции в распределённых системах не определена, предположим, что реакция протекает существенно быстрее диффузии. Для вычислений возьмём значение $k = 10^{-3} \text{ м}^3/\text{с} \cdot \text{моль}$. Начальные концентрации зададим такими: $A_0 = 1,8 \text{ моль/л}$, $B_0 = 1,5 \text{ моль/л}$, что обеспечивает попадание в область хемоконвекции типа ударной волны [23].

3.2. Численный метод

Задача (2)–(10) решалась в трёхмерной постановке с помощью программы гидродинамического моделирования ANSYS CFX (лицензия № 1062978) на вычислительном кластере ПНИПУ. Расчётная область представляла собой параллелепипед размерами $2,4 \times 10 \times 0,12 \text{ см}$. Она разбивалась равномерной декартовой сеткой на ячейки Hexahedra размерами $0,07 \times 0,07 \times 0,015 \text{ см}$. Гидродинамическая часть численной модели основывалась на стандартной модели течения несжимаемой жидкости из ANSYS CFX с добавлением в уравнение Навье–Стокса источникового слагаемого, описывающего подъёмную силу. Турбулентность и тепловые явления не учитывались. Для расчёта химической реакции вводились дополнительные переменные A , B и S и уравнения, описывающие их эволюцию.

3.3. Результаты численных экспериментов

В вертикально ориентированной кювете ($\alpha = 0^\circ$) развивающееся хемоконвективное движение имеет ярко выраженный квазидвумерный характер. Явление описано авторами настоящей работы ранее в [20, 23, 28], где представлена разработанная упрощённая математическая модель в приближении Хеле–Шоу. Также показано, что течение представляет собой волну, которая быстро распространяется в направлении действия силы тяжести. За скачком плотности формируется сильно нестационарный конвективный хвост, который питает фронт реакции (совпадает с фронтом волны) свежей кислотой, поставляя её из частей среды, которые удалены от фронта реакции. Перед волной располагается невозмущённый (неподвижный) раствор основания. Таким образом, структура напоминает турбулентную бору, которая иногда формируется на поверхности рек и водоёмов. Этим термином обычно обозначают подвижную часть гидравлического прыжка, который оставляет после себя на поверхности турбулированную жидкость. Указанная аналогия условна, так как в обсуждаемом здесь случае волна плотности является внутренней.

В данной работе обнаружено, что минимальный наклон кюветы в поле силы тяжести делает течение трёхмерным. Проиллюстрируем это следующим расчётом для угла наклона 30° . На рисунке 4 продемонстрировано трёхмерное поле концентраций соли и кислоты в момент времени $t = 50 \text{ с}$ в трёх разных сечениях плоскости слоя. Отметим, что режим волны плотности, который формируется при выбранном сочетании начальных концентраций реагентов, относится к движениям жидкости, развивающимся под контролем конвекции Релея–Тейлора. Процессы протекают стремительно, и движение жидкости на 50-й секунде представляет собой уже полностью развитое течение. Как видно из рисунка, сечения концентрационного поля, выполненные на разной глубине, заметно отличаются. Если в сечении $y = 0,03 \text{ см}$ (на четверти толщины слоя от края) концентрация соли в среднем невелика (Рис. 4а), а концентрация кислоты достигает почти своего максимального стартового значения A_0 (Рис. 4б), то в сечении $y = 0,09 \text{ см}$ (на четверти толщины слоя от другого края) концентрация кислоты падает почти на порядок, а соль, наоборот, достигает максимального значения концентрации. Это свидетельствует о том, что поле концентрации расслаивается в поперечном направлении даже при небольших углах отклонения от вертикали. В результате над фронтом реакции, помимо плюмов в плоскости ячейки Oxz , возникает циркуляция в перпендикулярной плоскости Oyz . Облегчённая реакционная зона вместе с продуктом реакции всплывает вверх. Но так как слой ориентирован под углом к вектору силы тяжести, то соль

накапливается преимущественно у верхней широкой стенки, а раствор с кислотой тонет и скапливается у нижней стенки. Обнаружено, что такая циркуляция интенсивно развивается в первые 30–60 с эволюции системы, а затем, по мере продвижения волны плотности, она ослабевает. Однако течение остаётся трёхмерным вплоть до полного выгорания реагентов. Обнаруженная дополнительная степень свободы течения указывает на правильность постановки задачи, основанной на решении полной трёхмерной задачи. Наклон в 30° уменьшает интенсивность конвективных процессов, но это не влияет на существование самой волны. На всех фрагментах фронт реакции выглядит прямым, а переход от кислой к щелочной среде происходит очень резко. Некоторую «усталость» волны можно заметить на поздних временах развития, когда первоначальный запас реагентов подходит к концу и фронт размывается.

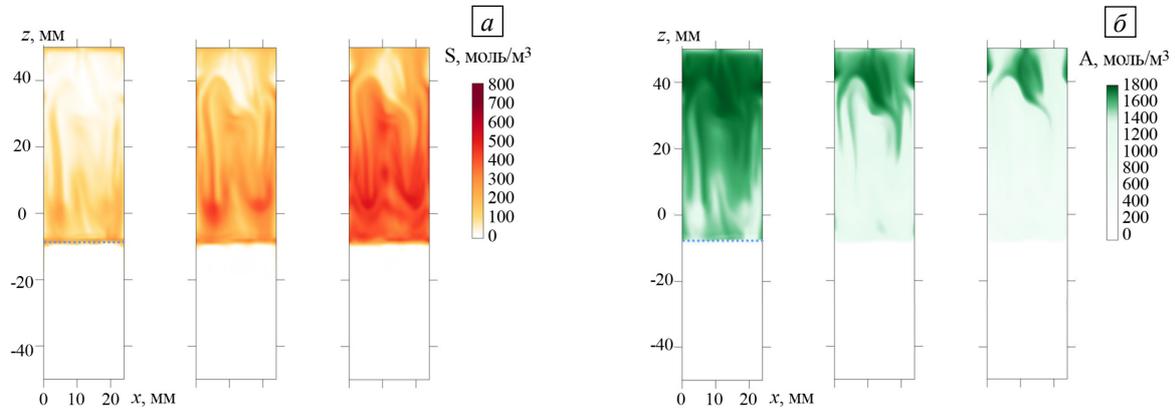


Рис. 4. Поле концентрации продукта реакции S (а) и кислоты A (б) при угле наклона слоя к направлению вектора силы тяжести $\alpha = 30^\circ$ в момент времени $t = 50$ с; в каждом из рядов фрагменты соответствуют сечениям слоя (слева направо): $y = 0,03; 0,06; 0,09$ см; фронт реакции отмечен пунктирной линией

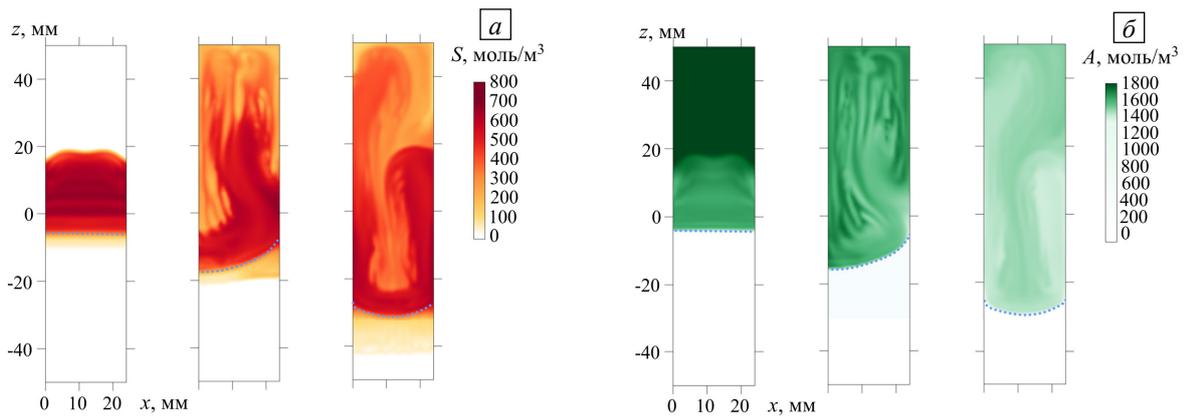


Рис. 5. Поле концентрации продукта реакции S в сечении $y = 0,1$ см (а) и кислоты A в сечении $y = 0,06$ см (б) для трёх последовательных моментов времени $t = 30; 120; 600$ с при $\alpha = 60^\circ$; фронт реакции отмечен пунктирной линией

Рассмотрим процессы переноса при значительных углах наклона. На рисунке 5 приведены поля концентрации соли и кислоты, соответственно, в сечениях $y = 0,1$ см и $y = 0,06$ см для трёх последовательных моментов времени. Хорошо видно сильное расслоение полей поперёк слоя. Построенное для этого случая поле скорости выявило, что в системе организуются струйные течения вдоль верхней стенки слоя вверх и вдоль нижней стенки вниз (Рис. 6).

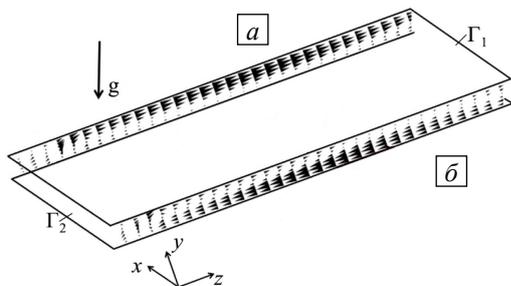


Рис. 6. Поле скорости при $\alpha = 70^\circ$ в момент времени $t = 50$ с в двух вертикальных сечениях плоскостями $x = 0,9$ см (а), $x = 0,3$ см (б); максимальное значение скорости $0,2$ см/с; верхняя и нижняя поверхности слоя обозначены соответственно как Γ_1 и Γ_2

Остановимся еще на двух интересных моментах. При больших углах наклона кюветы в поле силы тяжести фронт реакции может существенно деформироваться (Рис. 5). Это связано с ослаблением конвекции, питающей реакцию, а также с сильным давлением раствора щелочи, плавучесть которого существенно отличается от плавучести зоны реакции. Другой эффект, который бросается в глаза — наличие в полях концентрации вертикальных полос сгущения. Полосы возникают на поздних временах эволюции и требуют некоторого времени для своего

формирования. Очевидно, что это конвективная концентрационная неустойчивость релеевского типа. Как известно, первая мода неустойчивости встречных течений выглядит как периодическая система конвективных валов, направленных по течению. В данном случае периодичность структуры смазывается из-за развития трёхмерной циркуляции жидкости в плоскости слоя.

Ещё одной особенностью развития хемоконвекции является ослабление хемоконвективного хвоста, питающего волну плотности, по мере увеличения угла наклона α . Для характеристики интенсивности течения над фронтом введём в рассмотрение следующую интегральную характеристику:

$$V_{ave}(t) = \iiint_V |\mathbf{v}| dx dy dz, \quad (11)$$

которая представляет собой среднее по области значение модуля скорости V_{ave} . На рисунке 7а приведены зависимости $V_{ave}(t)$ для трёх значений угла наклона. Можно сделать вывод, что с ростом α интенсивность хемоконвекции над фронтом постепенно ослабевает, что согласуется с экспериментальными наблюдениями. Кроме того, замедляется развитие волны плотности: если при $\alpha = 0^\circ$ величина V_{ave} достигает максимального значения уже в момент $t = 30$ с, то при $\alpha = 60^\circ$ это время увеличивается до $t = 120$ с. Можно заметить, что процесс изменения с ростом угла нарастает неравномерно. Если при наклоне $\alpha = 30^\circ$ можно говорить лишь о небольшом количественном влиянии, то при наклоне $\alpha = 60^\circ$ преобразования носят уже качественный характер (Рис. 5). Например, можно заметить, что процесс стремится к стационарности, а хемоконвекция в спутном потоке становится двухвихревой.

Механизм рассматриваемой реакции с движением фронта по типу ударной волны предполагает прямую связь интенсивности конвективного перемешивания над фронтом реакции и скорости движения фронта реакции. В расчётах данная корреляция так же, как и в лабораторном эксперименте была обнаружена: по мере увеличения угла наклона скорость движения фронта уменьшается (Рис. 7б).

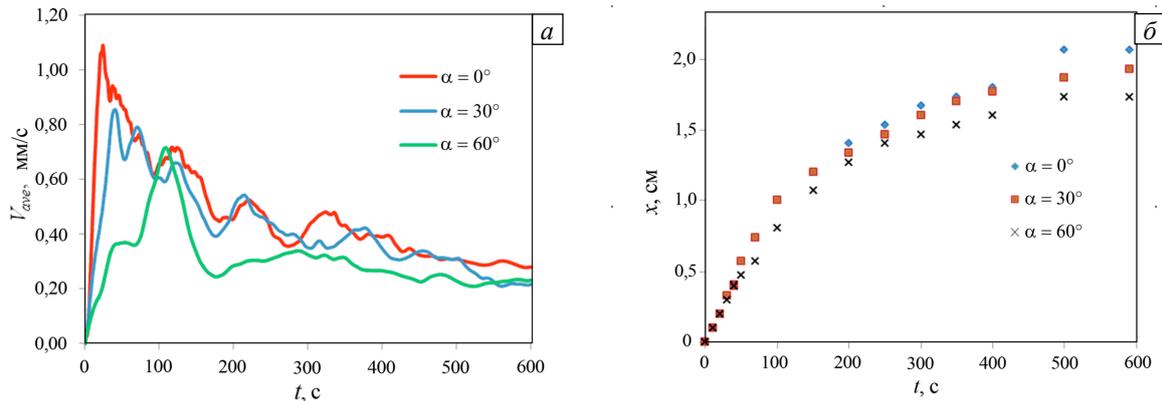


Рис. 7. Зависимости среднего по ячейке значения скорости конвекции от времени, измеренные при различных углах наклона ячейки (а) и координаты положения фронта x от времени t (б)

4. Сравнение эксперимента и численного анализа

Сравнение данных экспериментальных наблюдений и измерений с результатами численного исследования хемоконвекции в прямоугольном параллелепипеде показывает, что имеется как качественное, так и количественное согласование. Эксперимент и теория надежно фиксируют возникновение пространственных течений в слое, которые делают бессмысленным применение приближения Хеле-Шоу в теоретическом анализе течений. Численное моделирование раскрывает структуру концентрационных полей соли и кислоты и демонстрирует их расслоение в направлении поперек слоя. Это запускает глобальную 3D циркуляцию раствора, в которой кислота доставляется к фронту реакции преимущественно струйными течениями вдоль нижней границы слоя, а соль всплывает вместе с зоной реакции струйными течениями вдоль верхней границы. Расслоение поля концентрации приводит ко вторичным неустойчивостям подъёмно-опускного течения, например, концентрационной неустойчивости Релея (образованию вертикальных роллов в направлении течения).

Количественное сравнение может быть проведено на основе сопоставления графиков скорости фронта реакции, представленных на рисунке 3а (эксперимент) и 7б (численный анализ). Например, экспериментальное измерение указывает на координату позиции фронта $x = 1,5$ см в момент $t = 300$ с ($\alpha = 40^\circ$). Теоретическое значение для тех же значений времени и наклона находится с этим в хорошем согласии: $x = 1,54$ см (Рис. 7б).

5. Заключение

Экспериментально с помощью интерференционного метода, а также численно исследована структура конвекции, возникающей в двухслойной системе реагирующих жидкостей в узком наклонном слое. Анализировалась реакция нейтрализации, протекающая в конвективно-управляемом режиме. В рассмотренном диапазоне углов наклона $\alpha = 0 \div 70^\circ$ сохраняется режим хемоконвекции, при котором волна плотности, имеющая плоский фронт, распространяется в направлении действия силы тяжести со скоростью, на порядок превышающей скорость диффузионных процессов. Течение в ячейке приобретает трёхмерный характер. С увеличением угла наклона снижается интенсивность хемоконвекции над фронтом, а также уменьшается скорость распространения фронта.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда, грант 19-11-00133.

Литература

1. Левич В.Г. Физико-химическая гидродинамика. М.: Физматлит, 1959. 699 с.
2. Кутепов А.М., Полянин А.Д., Запryanov А.Д., Вязьмин А.Д., Казенин Д.А. Химическая гидродинамика. М.: Квантум, 1996. 336 с.
3. Dupuyrat M., Nakache E. 205 – Direct conversion of chemical energy into mechanical energy at an oil water interface // Bioelectrochem. Bioenerg. 1978. Vol. 5. P. 134-141. [http://dx.doi.org/10.1016/0302-4598\(87\)87013-7](http://dx.doi.org/10.1016/0302-4598(87)87013-7)
4. Belk M., Kostarev K.G., Volpert V., Yudina T.M. Frontal photopolymerization with convection // J. Phys. Chem. B. 2003. Vol. 107. P. 10292-10298. <http://dx.doi.org/10.1021/jp0276855>
5. Reschetilowski W. Microreactors in preparative chemistry. Weinheim: Wiley-VCH, 2013. 352 p. <http://dx.doi.org/10.1002/9783527652891>
6. Baumann M., Baxendale I.R. The synthesis of active pharmaceutical ingredients (APIs) using continuous flow chemistry // Beilstein J. Org. Chem. 2015. Vol. 11. P. 1194-1219. <https://doi.org/10.3762/bjoc.11.134>
7. Карлов С.П., Казенин Д.А., Баранов Д.А., Волков А.В., Полянин Д.А., Вязьмин А.В. Межфазные эффекты и макрокинетика хемосорбционных процессов при поглощении CO₂ водными растворами щелочей и аминов // ЖФХ. 2007. Т. 81, № 5. С. 775-791. (English version <https://doi.org/10.1134/S0036024407050019>)
8. Wylock C., Rednikov A., Haut B., Colinet P. Nonmonotonic Rayleigh-Taylor instabilities driven by gas-liquid CO₂ chemisorption // J. Phys. Chem. B. 2014. Vol. 118. P. 11323-11329. <http://dx.doi.org/10.1021/jp5070038>
9. Thomson P.J., Batey W., Watson R.J. Interfacial activity in two phase systems UO₂(NO₃)₂/Pu(NO₃)₄/HNO₃-H₂O-TBP/OK // Proc. of Extraction '84: Symposium on Liquid-Liquid Extraction Science. Scotland, Dounreay, November 27-29, 1984. Vol. 88. P. 231-244.
10. Gershuni G.Z., Lyubimov D.V. Thermal vibrational convection. New York: Wiley & Sons, 1998. 372 p.
11. Гершуни Г.З. К вопросу об устойчивости плоского конвективного движения жидкости // ЖТФ. 1955. Т. 25, № 2. С. 351-357.
12. Бирух Р.В., Гершуни Г.З., Жуховицкий Е.М., Рудаков Р.Н. Гидродинамическая и тепловая неустойчивость стационарного конвективного движения // ПММ. 1968. Т. 32, № 2. С. 256-263.
13. Hart J.E. Stability of the flow in a differentially heated inclined box // J. Fluid Mech. 1971. Vol. 47. P. 547-576. <http://dx.doi.org/10.1017/S002211207100123X>
14. Korpela S.A. A study on the effect of Prandtl number on the stability of the conduction regime of natural convection in an inclined slot // Int. J. Heat Mass Tran. 1974. Vol. 17. P. 215-222. [https://doi.org/10.1016/0017-9310\(74\)90083-0](https://doi.org/10.1016/0017-9310(74)90083-0)
15. Bratsun D.A., Krasnyakov I.V., Zyuzgin A.V. Active control of thermal convection in a rectangular loop by changing its spatial orientation // Microgravity Sci. Technol. 2018. Vol. 30. P. 43-52. <http://doi.org/10.1007/s12217-017-9573-6>
16. Wolf G.H. Dynamic stabilization of the Rayleigh-Taylor instability of miscible liquids and the related “frozen waves” // Phys. Fluids. 2018. Vol. 30. 021701. <https://doi.org/10.1063/1.5017846>
17. Kozlov N. Numerical investigation of double-diffusive convection at vibrations // J. Phys.: Conf. Ser. 2021. Vol. 1809. 012023. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1809/1/012023>
18. Demin V.A., Gershuni G.Z., Verkholantsev I.V. Mechanical quasi-equilibrium and thermovibrational convective instability in an inclined fluid layer // Int. J. Heat Mass Tran. 1996. Vol. 39. P. 1979-1991. [https://doi.org/10.1016/0017-9310\(95\)00239-1](https://doi.org/10.1016/0017-9310(95)00239-1)
19. Демин В.А. Вибрационная конвекция в наклонном слое жидкости при подогреве снизу // Изв. РАН. МЖГ. 2005. № 6. С. 38-48. (English version <https://doi.org/10.1007/s10697-006-0003-5>)
20. Брацун Д.А., Мошова Е.А. Особенности формирования волн плотности в двухслойной системе смешивающихся реагирующих жидкостей // Вычисл. мех. сплош. сред. 2018. Т. 11, № 3. С. 302-322. <http://doi.org/10.7242/1999-6691/2018.11.3.23>
21. Mizev A.I., Mosheva E.A., Bratsun D.A. Extended classification of the buoyancy-driven flows induced by a neutralization reaction in miscible fluids. Part 1. Experimental study // J. Fluid Mech. 2021. Vol. 916. A22. <http://doi.org/10.1017/jfm.2021.201>
22. Демин В.А., Попов Е.А. Об оценке числа Дамкёлера в хемоконвективных задачах // Вестник Пермского университета. Серия Физика. 2015. № 2 (30). С. 44-50.
23. Bratsun D.A., Mizev A.I., Mosheva E.A. Extended classification of the buoyancy-driven flows induced by a neutralization reaction in miscible fluids. Part 2. Theoretical study // J. Fluid Mech. 2021. Vol. 916. A23. <http://doi.org/10.1017/jfm.2021.202>

24. Loodts V., Thomas C., Rongy L., De Wit A. Control of convective dissolution by chemical reactions: General classification and application to CO₂ dissolution in reactive aqueous solutions // *Phys. Rev. Lett.* 2014. Vol. 113. P. 114501. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.113.114501>
25. Bratsun D., Siraev R. Controlling mass transfer in a continuous-flow microreactor with a variable wall relief // *Int. Comm. Heat Mass Tran.* 2020. Vol. 113. 104522. <https://doi.org/10.1016/j.icheatmasstransfer.2020.104522>
26. Eckert K., Rongy L., De Wit A. A + B → C reaction fronts in Hele-Shaw cells under modulated gravitational acceleration // *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2012. Vol. 14. P. 7337-7345. <https://doi.org/10.1039/C2CP40132K>
27. Mosheva E., Kozlov N. Study of chemoconvection by PIV at neutralization reaction under normal and modulated gravity // *Exp. Fluids.* 2021. Vol. 62. 10. <https://doi.org/10.1007/s00348-020-03097-0>
28. Bratsun D.A., Stepkina O.S., Kostarev K.G., Mizev A.I., Mosheva E.A. Development of concentration-dependent diffusion instability in reactive miscible fluids under influence of constant or variable inertia // *Microgravity Sci. Technol.* 2016. Vol. 28. P. 575-585. <http://doi.org/10.1007/s12217-016-9513-x>
29. Utochkin V.Yu., Siraev R.R., Bratsun D.A. Pattern formation in miscible rotating Hele-Shaw flows induced by a neutralization reaction // *Microgravity Sci. Technol.* 2021. Vol. 33. 67. <http://doi.org/10.1007/s12217-021-09910-7>
30. Справочник химика. Т. 3. Химическое равновесие и кинетика. Свойства растворов. Электродные процессы. М.-Л.: Химия, 1965. 1008 с.
31. Schöpf W., Stiller O. Three-dimensional patterns in a transient, stratified intrusion flow // *Phys. Rev. Lett.* 1997. Vol. 79. P. 4373-4376. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.79.4373>

References

1. Levich V.G. *Physicochemical hydrodynamics*. New Jersey, Prentice-Hall Inc., 1962. 700 p.
2. Kutepov A.M., Polyanin A.D., Zapryanov A.D., Vyaz'min A.D., Kazenin D.A. *Khimicheskaya gidrodinamika* [Chemical fluid dynamics]. Moscow, Kvantum, 1996. 336 p.
3. Dupeyrat M., Nakache E. 205 – Direct conversion of chemical energy into mechanical energy at an oil water interface. *Bioelectrochem. Bioenerg.*, 1978, vol. 5, pp. 134-141. [http://dx.doi.org/10.1016/0302-4598\(87\)87013-7](http://dx.doi.org/10.1016/0302-4598(87)87013-7)
4. Belk M., Kostarev K.G., Volpert V., Yudina T.M. Frontal photopolymerization with convection. *J. Phys. Chem. B*, 2003, vol. 107, pp. 10292-10298. <http://dx.doi.org/10.1021/jp0276855>
5. Reschetilowski W. *Microreactors in preparative chemistry*. Weinheim, Wiley-VCH, 2013. 352 p. <http://dx.doi.org/10.1002/9783527652891>
6. Baumann M., Baxendale I.R. The synthesis of active pharmaceutical ingredients (APIs) using continuous flow chemistry. *Beilstein J. Org. Chem.*, 2015, vol. 11, pp. 1194-1219. <https://doi.org/10.3762/bjoc.11.134>
7. Karlov S.P., Kazenin D.A., Baranov D.A., Volkov A.V., Polyanin D.A., Vyaz'min A.V. Interphase effects and macrokinetics of chemisorption in the absorption of CO₂ by aqueous solutions of alkalis and amines. *Russ. J. Phys. Chem.*, 2007, vol. 81, pp. 665-679. <http://dx.doi.org/10.1134/S0036024407050019>
8. Wylock C., Rednikov A., Haut B., Colinet P. Nonmonotonic Rayleigh-Taylor instabilities driven by gas-liquid CO₂ chemisorption. *J. Phys. Chem. B*, 2014, vol. 118, pp. 11323-11329. <http://dx.doi.org/10.1021/jp5070038>
9. Thomson P.J., Batey W., Watson R.J. *Proc. of Extraction '84: Symposium on Liquid-Liquid Extraction Science. Scotland, Dounreay, November 27-29, 1984. Vol. 88, pp. 231-244.*
10. Gershuni G.Z., Lyubimov D.V. *Thermal vibrational convection*. New York, Wiley & Sons, 1998. 372 p.
11. Gershuni G.Z. On the problem of stability of plane convective motion of liquids. *Technical Physics*, 1955, vol. 25, no. 2, pp. 351-357.
12. Birikh R.V., Gershuni G.Z., Zhukhovitskiy E.M., Rudakov R.N. Gidrodinamicheskaya i teplovaya neustoychivost' stacionarnogo konvektivnogo dvizheniya [Hydrodynamic and thermal instability of a steady convective flow]. *PMM – Journal of Applied Mathematics and Mechanics*, 1968, vol. 32, no. 2, pp. 256-263.
13. Hart J.E. Stability of the flow in a differentially heated inclined box. *J. Fluid Mech.*, 1971, vol. 47, pp. 547-576. <http://dx.doi.org/10.1017/S002211207100123X>
14. Korpela S.A. A study on the effect of Prandtl number on the stability of the conduction regime of natural convection in an inclined slot. *Int. J. Heat Mass Tran.*, 1974, vol. 17, pp. 215-222. [https://doi.org/10.1016/0017-9310\(74\)90083-0](https://doi.org/10.1016/0017-9310(74)90083-0)
15. Bratsun D.A., Krasnyakov I.V., Zyuzgin A.V. Active control of thermal convection in a rectangular loop by changing its spatial orientation. *Microgravity Sci. Technol.*, 2018, vol. 30, pp. 43-52. <http://doi.org/10.1007/s12217-017-9573-6>
16. Wolf G.H. Dynamic stabilization of the Rayleigh–Taylor instability of miscible liquids and the related “frozen waves”. *Phys. Fluids*, 2018, vol. 30, 021701. <https://doi.org/10.1063/1.5017846>
17. Kozlov N. Numerical investigation of double-diffusive convection at vibrations. *J. Phys.: Conf. Ser.*, 2021, vol. 1809, 012023. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1809/1/012023>
18. Demin V.A., Gershuni G.Z., Verkholantsev I.V. Mechanical quasi-equilibrium and thermovibrational convective instability in an inclined fluid layer. *Int. J. Heat Mass Tran.*, 1996, vol. 39, pp. 1979-1991. [https://doi.org/10.1016/0017-9310\(95\)00239-1](https://doi.org/10.1016/0017-9310(95)00239-1)
19. Demin V.A. Vibrational convection in an inclined fluid layer heated from below. *Fluid Dyn.*, 2005, vol. 40, pp. 865-874. <https://doi.org/10.1007/s10697-006-0003-5>
20. Bratsun D.A., Mosheva E.A. Peculiar properties of density wave formation in a two-layer system of reacting miscible liquids. *Vychisl. mekh. splosh. sred – Computational Continuum Mechanics*, 2018, vol. 11, no. 3, pp. 302-322. <http://doi.org/10.7242/1999-6691/2018.11.3.23>

21. Mizev A.I., Mosheva E.A., Bratsun D.A. Extended classification of the buoyancy-driven flows induced by a neutralization reaction in miscible fluids. Part 1. Experimental study. *J. Fluid Mech.*, 2021, vol. 916, A22. <http://doi.org/10.1017/jfm.2021.201>
22. Demin V.A., Popov E.A. The estimation of Damkohler number in chemiconvective problems. *Vestnik Permskogo universiteta. Seriya Fizika – Bulletin of Perm University. Physics*, 2015, no. 2 (30), pp. 44-50.
23. Bratsun D.A., Mizev A.I., Mosheva E.A. Extended classification of the buoyancy-driven flows induced by a neutralization reaction in miscible fluids. Part 2. Theoretical study. *J. Fluid Mech.*, 2021, vol. 916, A23. <http://doi.org/10.1017/jfm.2021.202>
24. Loodts V., Thomas C., Rongy L., De Wit A. Control of convective dissolution by chemical reactions: General classification and application to CO₂ dissolution in reactive aqueous solutions. *Phys. Rev. Lett.*, 2014, vol. 113, 114501. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.113.114501>
25. Bratsun D., Siraev R. Controlling mass transfer in a continuous-flow microreactor with a variable wall relief. *Int. Comm. Heat Mass Tran.*, 2020, vol. 113, 104522. <https://doi.org/10.1016/j.icheatmasstransfer.2020.104522>
26. Eckert K., Rongy L., De Wit A. A + B → C reaction fronts in Hele-Shaw cells under modulated gravitational acceleration. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2012, vol. 14, pp. 7337-7345. <https://doi.org/10.1039/C2CP40132K>
27. Mosheva E., Kozlov N. Study of chemoconvection by PIV at neutralization reaction under normal and modulated gravity. *Exp. Fluids*, 2021, vol. 62, 10. <https://doi.org/10.1007/s00348-020-03097-0>
28. Bratsun D.A., Stepkina O.S., Kostarev K.G., Mizev A.I., Mosheva E.A. Development of concentration-dependent diffusion instability in reactive miscible fluids under influence of constant or variable inertia. *Microgravity Sci. Technol.*, 2016, vol. 28, pp. 575-585. <http://doi.org/10.1007/s12217-016-9513-x>
29. Utochkin V.Yu., Siraev R.R., Bratsun D.A. Pattern formation in miscible rotating Hele-Shaw flows induced by a neutralization reaction. *Microgravity Sci. Technol.*, 2021, vol. 33, 67. <http://doi.org/10.1007/s12217-021-09910-7>
30. *Spravochnik khimika. T. 3. Khimicheskoye ravnovesiye i kinetika. Svoystva rastvorov. Elektroodnyye protsessy* [Chemist's handbook. Vol. 3. Chemical equilibrium and kinetics. Properties of solutions. Electrode processes]. Moscow, Leningrad, Khimiya, 1965. 1008 p.
31. Schöpf W., Stiller O. Three-dimensional patterns in a transient, stratified intrusion flow. *Phys. Rev. Lett.*, 1997, vol. 79, pp. 4373-4376. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.79.4373>

Поступила в редакцию 02.11.2022; после доработки 14.11.2022; принята к опубликованию 14.11.2022

Сведения об авторах

Мошева Елена Александровна, кфмн, нс, Институт механики сплошных сред УрО РАН (ИМСС УрО РАН), 614018, г. Пермь, ул. Академика Королёва, д. 1; e-mail: mosheva@icmm.ru

Сираев Рамиль Рифгатович, кфмн, доц., Пермский национальный исследовательский политехнический университет (ПНИПУ), 614990, г. Пермь, Комсомольский пр., д. 29а; e-mail: romauld@mail.ru

Брацун Дмитрий Анатольевич, дфмн, зав. каф., ПНИПУ; e-mail: DABracun@pstu.ru