# 2024

• ФИЗИКА •

Вып. 3

УДК 532.5.013.4, 532.23 PACS 47.20.-k, 47.61.-k

# Экспериментальное исследование процесса смешения жидкостей в проточном микроканале в условиях развития неустойчивости Рэлея–Тейлора

# М. И. Каракчеева<sup>†</sup>, Е. А. Краснякова

Институт механики сплошных сред УрО РАН, Пермь, Россия <sup>†</sup>karakcheeva.m@icmm.ru

В работе экспериментально исследовано влияние неустойчивости Рэлея-Тейлора на процесс смешения жидкостей в микроканале проточного типа. На входе в канал при помощи Уобразного смесителя создавалась двухслойная система жидкостей, состоящих из более плотного водного раствора перманганата калия (верхний слой) и менее плотной чистой воды (нижний слой) с фиксированным перепадом плотности. Колориметрический метод, основанный на зависимости поглощения света растворами от содержания растворенного вещества, использован для восстановления двумерного поля концентрации. На основе полученных распределений проведен анализ пространственной структуры конвективных течений и степени смешения жидкостей вдоль канала. Исследования проведены при малых числах Рейнольдса, что исключает развитие турбулентного течения, и в широком диапазоне чисел Ричардсона, показывающего соотношение сил плавучести и инертных сил в формировании конвективных структур. Обнаружено, что в области больших чисел Ричардсона развитие неустойчивости Рэлея-Тейлора обеспечивает практически полное перемешивание жидкостей уже на расстоянии пяти калибров от входа в канал. Уменьшение числа Ричардсона за счет увеличения расхода через канал приводит к замедлению развития неустойчивости и, как следствие, существенному уменьшению эффективности перемешивания вдоль канала. Показано, что при оптимальном выборе параметров удается уменьшить характерную длину смешения жидкостей на порядок по сравнению с диффузионным смешением. Полученные результаты демонстрируют эффективность использования конвективных механизмов неустойчивости для управления процессами массообмена в проточных микроканальных системах.

Ключевые слова: проточные микроканалы; конвекция Рэлея-Тейлора; массоперенос

Поступила в редакцию 07.08.2024; после рецензии 15.08.2024; принята к опубликованию 15.08.2024

# An experimental study of the mixing of liquids in a continuous-flow microchannel under conditions of Rayleigh-Taylor instability

# M. I. Karakcheeva<sup>†</sup>, E. A. Krasnyakova

Institute of Continuous Media Mechanics UB RAS, Perm, Russia †karakcheeva.m@icmm.ru

This study experimentally investigates the influence of Rayleigh-Taylor instability on the liquid mixing process in a flow-type microchannel. We investigated a two-layer liquid-liquid system consisting of a denser aqueous solution of potassium permanganate (upper layer) and less dense pure water (lower layer) with a fixed density gradient. A colorimetric method based on the de-

<sup>©</sup> Каракчеева М. И., Краснякова Е. А., 2024



pendence of light absorption by solutions on the concentration of the dissolved substance was used to reconstruct the two-dimensional concentration field. Based on the obtained data, we analyzed the spatial structure of convective flows and the degree of liquid mixing along the channel. The studies were carried out at low Reynolds numbers, which precludes the development of turbulent flow, and across a wide range of Richardson numbers that indicate the ratio of buoyancy to inertial forces in the formation of convective structures. We found that at high Richardson numbers, the development of Rayleigh-Taylor instability ensures almost complete mixing of liquids within five calibers from the channel inlet. Reducing the Richardson number by increasing the flow rate through the channel leads to a slowdown in the instability development and, consequently, in a significant decrease in mixing efficiency along the channel. We demonstrated that with optimal values of governing parameters, the characteristic liquid mixing length can be reduced by an order of magnitude compared to pure diffusive mixing scenarios. The obtained results demonstrate the effectiveness of convective instability mechanisms in controlling mass transfer processes in flowtype microchannel systems.

Keywords: continuous-flow microchannels; Rayleigh-Taylor convection; mass transfer processes

Received 07 August 2024; revised 15 August 2024; accepted 15 August 2024

doi: 10.17072/1994-3598-2024-3-28-39

### 1. Введение

Проточные микроканалы представляют собой миниатюрные устройства с характерным размером, варьирующимся от нескольких микрометров до миллиметров. Их использование в научных исследованиях началось с разработки эффективных систем для химических реакций и биологических анализов, где необходимость в точном и быстром управлении потоками стала очевидной [1, 2]. В настоящее время микроканалы находят применение в различных областях, от анализа образцов и синтеза химических веществ до разработки новых медицинских технологий, включая лабораторные чипы и микросистемы для медицинских анализов.

Основным преимуществом микроканалов является их малый размер, что, с одной стороны, обусловливает высокое соотношение поверхности к объему, значительно улучшая тепло- и массоперенос по сравнению с традиционными макросистемами [3], а, с другой стороны, снижает расход реагентов, что делает их использование экономически выгодным [4].

В отличие от макроскопических систем, где турбулентное смешивание часто достигается за счет высокой скорости потоков, микрофлюидные системы сталкиваются с трудностью смешивания из-за преобладания ламинарного режима течения. В этих условиях смешивание происходит преимущественно за счет молекулярной диффузии, что может быть недостаточно для быстрой гомогенизации прокачиваемых потоков. Для ускорения смешения используются различные микросмесители, которые подразделяют на активные и пассивные.

Активные микросмесители используют внешние источники энергии для создания дополнительных сил, способствующих смешиванию. Это могут быть электрические поля [5], которые генерируют электрокинетические эффекты, магнитные поля [6], вызывающие магнитогидродинамические движения, или акустические волны [7], создающие ультразвуковые вибрации. Несмотря на их эффективность, такие устройства зачастую сложны и дорогостоящи в изготовлении.

Пассивные микросмесители, напротив, не требуют внешней энергии и работают за счет специально спроектированной геометрии каналов, которая способствует интенсификации процесса смешения. Существуют различные формы пассивных микросмесителей. Одними из наиболее распространенных типов являются Т- и Ү-образные, в которых потоки жидкостей вводятся в канал под углом 90° и менее 90° к друг другу, соответственно [8-11], создавая турбулентные течения (при условии высокой скорости прокачки) в точке соприкосновения потоков, что обеспечивает высокую эффективность смешения. Другие формы включают спиральные и зигзагообразные каналы [12, 13], которые создают сложные траектории течения, способствующие увеличению поверхности контакта между потоками.

Кроме того, в последнее время растет интерес к микросмесителям со сложной внутренней структурой, такой как каналы с чередующимися расширениями и сужениями или со встроенными препятствиями [14, 15]. Эти конструкции создают локализованные турбулентные потоки и вихри, что значительно увеличивает эффективность смешивания. Трехмерные микросмесители [16, 17], где несколько каналов пересекаются и взаимодействуют, также демонстрируют высокую эффективность за счет многократного пересечения потоков.

Современные исследования в области микрофлюидики также изучают возможность применения естественной конвекции для смешения потоков, исключая необходимость использования каналов со сложной геометрией или внешних источников энергии. Одними из ключевых преимуществ применения естественной конвекции является снижение риска загрязнения или повреждения образцов, что особенно важно в биомедицинских и биохимических приложениях, а также финансовая эффективность. Традиционно считалось, что естественная конвекция в микросистемах имеет ограниченную эффективность из-за низких значений чисел Рейнольдса и Рэлея, что ведет к слабой конвекции, неспособной быстро перемешивать потоки. Однако недавние исследования показали, что как гравитационно-зависимые, так и гравитационно-независимые типы конвекции могут значительно повышать эффективность смешивания. В частности, при смешении потоков, содержащих поверхностно-активные вещества, создание межфазной поверхности вызывает интенсивную концентрационно-капиллярную конвекцию Марангони, которая улучшает смешивание на порядок по сравнению с чисто диффузионным смешением [18]. В рамках исследования влияния гравитационно-зависимых типов конвекции было показано, что гидродинамические неустойчивости, такие как конвекция двойной диффузии [19] и конвекция Рэлея-Тейлора [20], приводят к формированию сложных конвективных структур, которые функционируют как локальные микросмесители, значительно сокращая длину смешивания, повышая эффективность процесса гомогенизации прокачиваемых потоков.

Экспериментальные результаты, касающиеся эффективности использования конвекции Рэлея-Тейлора для смешения потоков, представленные в [20], носят качественный характер, поэтому в настоящей работе мы сосредоточились на получении количественных данных, которые бы подтверждали выводы вышеупомянутой работы. В частности, исследуется процесс смешения воды и водного раствора неорганической соли в микроканале с Ү-образным смесителем на входе в условиях прокачки жидкостей с неустойчивой стратификацией по плотности. Эксперименты проведены при фиксированном перепаде плотности между растворами и различных расходах через канал. В работе описана структура конвекции Рэлея-Тейлора, которая формируется в условиях непрерывного потока, а также получены двумерные поля концентрации, отражающие распределение растворённого вещества вдоль канала. На основе полученных экспериментальных результатов проведена количественная оценка степени взаимного смешения прокачиваемых потоков, а также представлено сравнение с результатами, полученными для чисто диффузионного смешения.

## 2. Эксперимент

### 2.1.Установка

Эксперименты выполнены в тонком горизонтальном микроканале проточного типа. Схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. Микроканал (1) образован парой прозрачных стекол и тефлоновым вкладышем, плотно зажатым между стеклами. Размеры вкладыша и стекол совпадают, что обусловливает единую конструкцию микроканала. Вкладыш имеет вырезанную часть, задающую форму и размеры микроканала. Все боковые границы микроканала проклеены химически стойким герметиком. Один конец канала оснащен микросмесителем Ү-типа. С помощью гибких пластиковых трубок плечи микросмесителя подключены к двухканальному шприцевому насосу SPLab 02 (2). При активации насоса жидкости поступают в трубки и проходят через Үмикросмеситель, который обеспечивает плавный и послойный контакт жидкостей внутри канала. На другом конце микроканала находится отверстие, к которому также присоединена трубка, через которую осуществляется свободный вывод прокаченной смеси в сливную емкость (3).



Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 – микроканал, 2 – шприцевой насос, 3 – ёмкость для слива жидкости, 4 – камера, 5 – источник света

Микроканал имеет следующие размеры: длина l = 7.4 см, высота h = 0.2 см, толщина d = 0.02 см. Высота каждого плеча микросмесителя составляет h/2. Исследуемый диапазон расходов составлял Q = 2q = 0.012-0.040 мл/мин, где q – расход, задаваемый на насосе.

Отметим, что использование вкладыша в конструкции микроканала является гибким решением, так как позволяет легко модифицировать геометрию канала путем его замены. Однако плотное зажатие тефлонового вкладыша между стеклами не всегда обеспечивает идеальную герметичность. В случае больших расходов (Q > 0.1 при той же толщине канала) возможны утечка жидкости в пространство между стеклами и вкладышем и, как следствие, снижение качества выполнения экспериментов. Решением проблемы может быть использование другого материала для вкладыша, например, силикона, который обладает высокой степенью адгезии, что исключает возможность протечки.

#### 2.2. Методика проведения эксперимента

В качестве рабочих жидкостей использованы бидистиллированная вода и однородный водный раствор перманганата калия (КМпО4, степень чистоты XЧ) с массовой концентрацией C = 3% и плотностью 1.0187 г/см<sup>3</sup>. Растворы приготовлены путем растворения чистого сухого вещества известной массы (точность 0.01 г) в воде. Концентрация конечного раствора контролировалась путем измерения его плотности на вибрационном плотномере ВИП-2МР (точность 0.0001 г/см<sup>3</sup>) и сравнения полученного значения с табличными данными [21].

В начале эксперимента микроканал устанавливался горизонтально. Затем на насос устанавливались шприцы, заполненные рабочими жидкостями (вода и водный раствор перманганата калия). С помощью пластиковых трубок шприцы соединялись с плечами микроканала. Насос работал в режиме «Infusion», что обеспечивало подвод жидкостей в плечи микросмесителя и их непрерывную прокачку вдоль канала с заданным расходом q. В рамках изучения конвективного сценария смешения более плотный водный раствор перманганата калия подавался через верхнее плечо микросмесителя, менее плотная чистая вода – через нижнее. В рамках изучения диффузионного сценария смешения подводящие трубки менялись местами так, что более плотный водный раствор перманганата калия подавался через нижнее плечо микросмесителя, менее плотная чистая вода – через верхнее. Перепад плотности между слоями во всех экспериментах составлял  $\Delta \rho = 0.0205 \, \text{г/см}^3$ . Съемка производилась с помощью цветной CMOS-камеры Nikon D5200 (4 на рис. 1) с максимальным разрешением 6000×4000 пикселей, которая устанавливалась напротив микроканала.

В рамках исследования анализировалась динамика установившегося течения. Отметим, что время, необходимое для достижения квазистационарного режима, отличается для разных расходов. Как только поток достигал этого состояния, производилась съемка как минимум трех отдельных изображений канала через случайные промежутки времени. Такой подход был выбран, поскольку после установления квазистационарного режима изучаемые нами характеристики становятся независимыми от времени, и, следовательно, временные промежутки между съемками изображений не оказывают влияния на результаты анализа. Визуализация процесса смешения и структуры конвекции была возможна благодаря использованию перманганата калия в качестве рабочей жидкости. Данная соль обладает яркой розовой окраской, что позволяет визуализировать процесс смешения и структурообразования при взаимодействии с прозрачными жидкостями без добавления каких-либо красителей, что исключает возможность формирования неустойчивостей, связанных с эффектами двойной дифференциальной диффузии [22] или кросс-диффузией [23]. Для улучшения качества съемки микроканал освещался с задней стороны коллимированным источником рассеянного света (5 на рис. 1).

# 2.3. Методика восстановления двумерных полей концентраций

Количественная оценка процесса взаимного смешения потоков как в диффузионном, так и конвективном сценариях смешения была проведена с использованием двумерных полей концентрации C(x, z), отражающих распределение перманганата калия в микроканале. Для измерения концентрации мы использовали колориметрический метод, основанный на законе Ламберта-Бера [26], согласно которому поглощение света в растворе пропорционально концентрации растворенного вещества. Суть метода заключается в измерении интенсивности света I, проходящего через однородный цветной раствор известной концентрации, и получении градуировочной кривой I(C), связывающей значения яркости пикселей изображения раствора и значения его концентраций. Метод широко распространен в оптических измерениях концентрации, поэтому в настоящей работе мы не описываем подробности обработки изображений и получения кривой I(C). Для детального знакомства с методом можно обратиться к работам [27-30].

Для проведения серии калибровочных измерений, необходимых для построения градуировочной кривой I(C), были подготовлены однородные водные растворы KMnO<sub>4</sub> с концентрациями *С*, %: 0.25, 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5, 3.0. С помощью насоса раствор с наименьшей концентрацией помещался в микроканал. Затем камера фиксировала изображение распределения световой интенсивности при отсутствии прокачки. После этого раствор удалялся из микроканала и заменялся новым раствором с бо́льшей концентрацией. Этот процесс повторялся для всех концентраций. Полученная серия изображений переводилась в градации серого, после чего для каждого изображения вычислялась средняя по кадру световая интенсивность І. Это позволило построить градировочную кривую I(C). Для минимизации погрешности вся процедура, начиная от заполнения микроканала растворами и заканчивая построением градуировочной кривой, повторялась дважды, что дало возможность построить две независимые кривые I(C). Осредненная калибровочная кривая I(C) представлена на рис. 2. Для удобства дальнейшей обработки полученные данные аппроксимировались линейной функцией:

$$I(C) = -58.82 \cdot C + 245.3 \tag{1}$$

Построение полей концентраций осуществлялось следующим образом. Изображения, демонстрирующие распределение перманганата калия в условиях диффузионного смешения или развития конвекции Рэлея-Тейлора для данного расхода, корректировались для устранения искажений и преобразовывались в градации серого. Затем каждое изображение переводилось в двумерную числовую матрицу, значения которой отражали распределение световой интенсивности *I*(*x*, *z*) по всей области микроканала. Используя калибровочную кривую I(C), восстанавливалось распределение концентрации перманганата калия C(x, z) по всей площади изображения.



**Рис. 2.** Градуировочная зависимость интенсивности освещения от массовой концентрации перманганата калия

## 3. Результаты

### 3.1.Структура течения

Известно, что в отсутствие прокачки неустойчивость Рэлея-Тейлора в двухслойной неустойчиво стратифицированной по плотности системе жидкостей (как смешивающейся [24], так и несмешивающейся [25]) визуализируется в виде конвективных плюмов, симметрично распространяющихся вертикально вверх и вниз от начальной зоны контакта слоев. Под действием силы тяжести более плотная жидкость тонет, а менее плотная всплывает, что приводит к деформации начальной горизонтальной границы между слоями и последующему образованию пальчиковой конвективной структуры. По мере развития плюмы начинают сливаться друг с другом, образуя более крупные структуры. В конечном итоге, если система автономна (нет подвода свежих растворов), то исходные однородные слои перемешиваются, что приводит к исчезновению неустойчивых плотностных градиентов, поддерживающих конвекцию.

При включении прокачки структура и динамика развития конвекции изменяются. На рис. 2 представлена серия изображений, визуализирующая характерный вид структуры конвекции Рэлея-Тейлора, формирующейся в тонком микроканале в условиях продольной непрерывной прокачки. Серия приведена для различных значений расходов при фиксированном значении перепада плотности. В отличие от неподвижной среды, где для анализа динамики системы используется серия изображений, полученных в последовательные моменты времени, в движущейся среде вся временная динамика видна на едином кадре. Наличие прокачки позволяет наблюдать временную развёртку в пространстве: различные участки (срезы) вдоль канала соответствуют различным этапам развития неустойчивости.

Основным ключевым параметром для понимания динамики неустойчивости Рэлея-Тейлора, развивающейся в потоке является число Ричардсона Ri, которое описывает соотношение между силой плавучести и инерционной силой потока, и определяется как  $Ri = Gr / Re^2 = (g \Delta \rho D_h S^2) / (\rho Q^2)$ , где Gr и Re – числа Грасгофа и Рейнольдса соответственно, g – ускорение свободного падения,  $D_h = 2hd / (h+d)$  – гидравлический диаметр, S = hd – площадь сечения канала,  $\rho$  – средняя плотность смеси. Рабочий диапазон управляющих параметров приведен в таблице.

Характерные значения управляющих параметров

$\Delta C = 3\%$	<i>q</i> , мл/мин	Re	Ri
	0.006	0.197	302.19
	0.008	0.263	169.99
	0.010	0.328	108.79
	0.015	0.492	48.35
	0.020	0.657	27.20

На рис. 3 приведена серия изображений, демонстрирующая структуру течения в условиях развития конвекции Рэлея-Тейлора при разных расходах. При низких значениях расхода (q < 0.006 мл/мин, рис. 3, a), что соответствуетбольшим числам Ричардсона, гравитационная неустойчивость доминирует, а влияние потока выражено слабо. В канале наблюдается формирование пальчиковых структур, распространяющихся в направлении потока. Зона формирования пальцев находится максимально близко ко входу в канал. Форма пальчиковых структур слабо отличается от формы тех, что развиваются в неподвижной среде. Однако, ввиду ограниченной высоты канала, пальцы не взаимодействуют, развиваясь независимо друг от друга. По мере перемещения вдоль канала пальцы диффузионно перемешиваются со средой: всплывающие (менее плотные) пальцы перемешиваются с исходной более плотной жидкостью, тонущие (более плотные) пальцы перемешиваются с исходной менее плотной жидкостью. Это обусловливает деформацию начального вертикального распределения плотности, которое из немонотонного и неустойчивого становится монотонным и устойчивым. Изменение вертикального профиля плотности сопровождается исчезновением пальчиковых структур и полным смешением исходных слоев, что подтверждается однородной окраской жидкости в канале. На рис. 3, а видно, что при низких расходах смешение происходит уже на



**Рис. 3.** Серия изображений, демонстрирующая структуру конвекции Рэлея-Тейлора, которая формируется в проточном Y-образном микроканале при различных расходах. Значения расхода q, мл/мин: a) – 0.006; б) – 0.008; в) – 0.010; г) – 0.020

первых калибрах канала, что говорит о высокой эффективности смешения.

При увеличении расхода (при неизменном значении  $\Delta \rho$ ) число Ричардсона уменьшается, что усиливает доминирование адвективных эффектов по сравнению с гравитационной неустойчивостью. Это приводит к изменению расположения зоны формирования пальчиковых структур относительно входа в канал. Отметим, что в случае, когда длина канала ограничена, а значения расхода велики, то пальчиковые структуры могут не успеть развиться, так как будут подавлены сдвиговыми силами еще до достижения критических условий, необходимых для их формирования. В нашем рабочем диапазоне расходов полного подавления конвекции не наблюдается. Увеличение расхода приводит только к снижению интенсивности перемешивания слоев. При этом конвективные структуры формируются и сохраняются, не перемешиваясь с окружающей жидкостей, на протяжении всей длины канала. Это обусловлено тем, что высокая скорость прокачки ограничивает продольную диффузию, замедляя процесс смешения тонущих/всплывающих пальцев с окружающей жидкостью. Поэтому несмотря на то, что пальцы достигают верхней и нижней границ канала, они не исчезают полностью вследствие диффузионного смешения. Это приводит к изменению длины волны пальчиковых структур. На рис. 3, б, в видно, что длина волны структур плавно увеличивается вдоль канала, начиная от точки слияния потоков. При этом характерная форма конвективных структур в виде плюмов исчезает. В результате картина течения, начиная с положения, где плюмы достигли верхней и нижней границ канала, представляет собой периодическую систему «столбов» жидкости разной концентрации. Дальнейшее увеличение расхода (вплоть до q = 0.020 мл/мин, рис. 3, г) ведет к снижению степени перемешивания слоев, о чем свидетельствуют более резкие границы конвективных структур и сохранение слоев исходных растворов в приграничных областях микроканала. При этом адвективные эффекты начинают доминировать над диффузионным массопереносом, что препятствует смешению как пальчиковых структур, так и прокачиваемых потоков в целом. На рис. 3, г видно, что конвективная структура сохраняется на протяжении всей длины канала, а ее длина волны остается практически неизменной. Таким образом, в исследуемом диапазоне расходов обнаружено, что поток влияет и на стабильность, и на пространственное распределение, и на форму пальчиковых структур.

# 3.1.Анализ степени взаимного смешания слоев

Оценка эффективности процесса смешивания проводилась на основе двумерных полей концентрации C(x, z). Серия полей для различных расходов, полученных для изображений, представленных на рис. 3, приведена на рис. 4.

В качестве критерия оценки эффективности смешения мы использовали безразмерный параметр  $E = 1 - (\Delta C_i / \Delta C)$ , где  $\Delta C_i$  – поперечная разность концентраций, рассчитываемая как разность значений концентраций вблизи верхней и нижней



**Рис. 4.** Поля концентрации, отражающие пространственное распределение перманганата калия в проточном Y-образном микроканале в условиях развития конвекции Рэлея-Тейлора, формирующейся при различных расходах. Значения расхода q, мл/мин: a) – 0.006; б) – 0.008; в) – 0.010; г) – 0.020

границ канала в данном срезе  $i, \Delta C$  – начальная (максимальная) разность концентраций. Значение *Е* варьируется от 0 до 1, где E = 0 (0%) указывает на полное пространственное разделение потоков, а значения E = 1 (100%) соответствуют состоянию однородности. Параметр Е рассчитывался как функция продольной координаты х. Для минимизации погрешности для каждого расхода было получено не менее трех зависимостей E(x), после чего вычислялась усредненная зависимость. Отметим, что расчёт критерия Е является упрощенным, но эффективным способом оценки процесса смешения в проточных каналах. Он позволяет определять длину смешения вдоль канала, необходимую для гомогенизации исходных растворов, фокусируясь на глобальном результате, не раскрывая локальные особенности вертикального профиля концентрации в отдельных срезах.

На рис. 5 представлены усредненные зависимости E(x/h), описывающие процесс смешения потоков при диффузионном и конвективном сценариях соответственно. Поскольку данные кривых E(x/h)флуктуируют из-за наличия на изображениях периодической конвективной структуры и шума пикселей, мы использовали метод скользящего среднего для сглаживания кривых, оставив только часть точек, не изменяя при этом основной тренд зависимости.

### 3.1.1. Диффузионный сценарий смешения

Простая геометрия микроканала и изначально устойчивая стратификация растворов по плотности обусловливают диффузионное смешение потоков, что приводит к медленному расширению диффузионной зоны вдоль канала. В этом режиме диффузия является основным и единственным механизмом, определяющим интенсивность перемешивания прокачиваемых жидкостей. Зависимость параметра Е от длины канала, выраженной в калибрах x/h, характеризующая эффективность процесса смешивания при различных скоростях потока, представлена на рис. 5, а. Видно, что при фиксированной начальной разности концентраций перманганата калия и фиксированном расходе степень взаимного смешения потоков медленно увеличивается вдоль канала. При увеличении скорости потока наблюдается более медленный рост степени взаимного смешения слоев. Ухудшение эффективности гомогенизации потоков связано с тем, что время взаимодействия слоев уменьшается, ограничивая процессы диффузии и сдерживая процесс смешения, что подтверждает качественный анализ серии изображений, представленной на рис. 2.

#### 3.1.2.Конвективный сценарий смешения

Включение конвективного механизма изменяет как структуру течения, так и скорость смешения растворов (рис. 5, б). Сравнивая результаты двух различных сценариев смешивания, полученные при минимальном расходе (q = 0.006 мл/мин), видно, что конвективные потоки интенсивно перемешивают растворы, приводя к быстрому уменьшению начального перепада концентраций и более эффективной гомогенизации уже на первых сантиметрах канала. Однако с увеличением расхода, как и в случае диффузионного сценария смешения, наблюдается снижение интенсивности перемешивания, несмотря на наличие конвективных процессов. Это связано с тем, что высокие скорости потока стабилизируют конвективную структуру за счет ограничения диффузионного массопереноса между конвективными пальцами и окружающей жидкостью.



Рис. 5. Зависимость перепада концентраций от продольной координаты канала, выраженной в калибрах х/h, при: а) – диффузионном; б) – конвективном сценарии смешения. Зависимости получены для следующих расходов q, мл/мин: 1 – 0.006, 2 – 0.008, 3 – 0.010, 4 – 0.015, 5 – 0.020

#### 3.1.3.Анализ длины смешения

В дополнение к оценке эффективности смешивания на основе безразмерного параметра E важным аспектом исследования является длина смешения L. Этот критерий характеризует расстояние, необходимое для достижения определенного уровня смешения растворов в микроканале. Поскольку в наших экспериментах полное смешивание не было достигнуто ни при каких условиях, мы сосредоточили внимание на анализе длины L, при которой достигается 40%-ное смешение (E = 0.4). Этот подход позволяет нам объективно сравнить эффективность процесса гомогенизации при различных сценариях смешения. Для измерения длины смешения мы использовали данные зависимостей E(x/h), представленных на рис. 5.



Рис. 6. Зависимость длины смешения, необходимой для достижения 40%-ного (E = 0.4) уровня однородности смеси, от числа Ричардсона для диффузионного и конвективного сценариев смешения

На рис. 6 представлена зависимость безразмерной длины смешения L/h, необходимой для достижения 40%-ного уровня однородности смеси (E = 0.4), от числа Ричардсона для диффузионного и конвективного сценариев смешения. В случае конвективного сценария безразмерная длина смешения L/h плавно уменьшается с ростом числа Ричардсона, что указывает на позитивное влияние повышения скорости прокачки на смешивание. Это происходит из-за увеличения вклада конвективного механизма массобмена, ускоряющего процесс гомогенизации. Для диффузионного сценария 40%-ное смешивание достигается только на самом маленьком расходе (в рамках рабочего диапазона). При больших значениях расхода эффективность смешивания ухудшается, приводя к уровням однородности менее 40%, что не имеет практического значения. Сравним значения безразмерной длины смешения L/h для Ri = 302.19, что соответствует наименьшему значению расхода. При диффузионном сценарии  $L/h \approx 31$ , в то время как при конвективном сценарии это значение уменьшается более чем на порядок и составляет  $L/h \approx 2.5$ , что еще раз подчеркивает эффективность неустойчивости Рэлея-Тейлора при смешении в условиях низкой скорости прокачки. При маленьких значениях числа Ri, что соответствует большим расходам, данный тип неустойчивости не может быть использован в качестве инструмента смешения потоков ввиду малоэффективности.

### 4. Заключение

В настоящей работе экспериментально исследовано влияние неустойчивости Рэлея–Тейлора на процесс смешения жидкостей в микроканале проточного типа. Эксперименты выполнены с двухслойной системой смешивающихся жидкостей «водный раствор перманганата калия–вода», где менее плотная вода занимала нижний слой системы. Эксперименты выполнены при фиксированном перепаде концентраций  $\Delta C = 3\%$  и расходах в диапазоне q = (0.006-0.020) мл/мин. Данный диапазон соответствует числам Рейнольдса Re < 1, что исключает развитие турбулентности и позволяет сосредоточиться на исследовании влияния конвекции Рэлея-Тейлора.

В условиях отсутствия потока наблюдается классическая неустойчивость Рэлея-Тейлора, характеризующаяся формированием конвективных плюмов, способствующих перемешиванию системы. При включении прокачки конвективные структуры приобретают горизонтальную составляющую скорости: формирующиеся в начале канала пальчиковые структуры распространяются вниз по потоку, оказывая влияния на процесс смешения. Показано, что при больших значениях чисел Ричардсона Ri (при низких расходах) гравитационная неустойчивость доминирует над адвективными эффектами. В этом случае распространение пальчиковых структур вдоль канала сопровождается их диффузионным смешением: сформированные в начале канала плюмы исчезают за счет диффузионного перемешивания прежде, чем успеют пройти вдоль всего канала. С увеличением расхода усиливается влияние адвективных эффектов, что препятствует диффузионному смешению конвективных структур с окружающей жидкостью. В этом случае наблюдается своего рода стабилизация: сформированные структуры сохраняют свою форму на протяжении всей длины канала, что обусловливает низкие показатели степени гомогенизации прокачиваемых потоков.

В работе была проведена количественная оценка степени взаимного смешения потоков для диффузионного и конвективного сценариев смешения. Экспериментальные результаты подтвердили, что конвекция Рэлея-Тейлора значительно повышает эффективность смешивания в микроканалах при низких расходах, сокращая характерную длину смешения более чем на порядок (для данной геометрии канала). Однако, при высоких расходах конвективные структуры стабилизируются, а процесс смешивания замедляется, но по-прежнему остается эффективным по сравнению с чисто диффузионным сценарием смешения, однако малоэффективным с точки зрения технологических приложений.

Работа выполнена при поддержке Минобрнауки РФ (121031700169-1, ИМСС УрО РАН).

### Список литературы

 Hessel V., Lowe H., Schonfeld F. Micromixers – a review on passive and active mixing principles // Chemical Engineering Science. 2005. Vol. 60. N. 8. P. 2479–2501.

DOI: 10.1016/j.ces.2004.11.033

- 2. *Nguyen N. T.* Micromixers: Fundamentals, Design, and fabrication. New York: Norwich, 2008. 368 p.
- Farahinia A., Jamaati J., Niazmand H. Investigation of slip effects on electroosmotic mixing in heterogeneous microchannels based on entropy index // SN Applied Sciences. 2019. Vol. 1. N. 7. P. 728–740. DOI: 10.1007/s42452-019-0751-6.
- Kutter J. P. Current developments in electrophoretic and chromatographic separation methods on microfabricated devices // Trends in Analytical Chemistry. 2000. Vol. 19. N. 6. P. 352–363. DOI: 10.1016/S0165-9936(00)00014-5
- Heidari R., Khosroshahi A. R., Sadri B., Esmaeilzadeh E. The electrohydrodynamic mixer for producing homogenous emulsion of dielectric liquids // Colloids and Surfaces A. 2019. Vol. 578, 123592. DOI: 10.1016/j.colsurfa.2019.123592
- Lemoff A. V., Lee A. P. An AC magnetohydrodynamic micropump // Sensors and Actuators B: Chemical. 2000. Vol. 63. N. 3. P. 178–185. DOI: 10.1016/S0925-4005(00)00355-5
- Yang Z., Goto H., Matsumoto M., Maeda R. Active micromixer for microfluidic systems using leadzirconate-titanate (PZT)-generated ultrasonic vibration // Electrophoresis. 2000. Vol. 21. N. 1. P. 116–119. DOI: 10.1002/(SICI)1522-2683(20000101)21:1<116::AIDELPS116>3.0.CO; 2-Y
- Alzoubi M. A., Al-Ketan O., Muthusamy J., Sasmito A. P., Poncet S. Mixing performance of Tshape micromixers equipped with 3D printed Gyroid matrices: a numerical evaluation // Results in Engineering. 2023. Vol. 17, 100811. DOI: 10.1016/j.rineng.2022.100811

- Rasheed K. et al. Parametric study on the influence of varying angled inlet channels on mixing performance in simple T micromixers and vortex T micromixers across a wide range of Reynolds numbers // Microfluidics and Nanofluidics. 2024. Vol. 28, 50. DOI: 10.1007/s10404-024-02746-8
- Pascal H., Jens T., Marko H., Michael S., Christian H., Patrick L., Dirk Z. Optimization of a split and recombine micromixer by improved exploitation of secondary flows // Chemical Engineering Journal. 2018. Vol. 334. P. 1996–2003. DOI: 10.1016/j.cej.2017.11.131
- Farahinia A., Zhang W. J. Numerical analysis of a microfluidic mixer and the effects of different cross-sections and various input angles on its mixing performance // Journal of the Brazilian Society of Mechanical Sciences and Engineering. 2020. Vol. 42. N. 4, 190. DOI: 10.1007/s40430-020-02275-9
- Mengeaud V., Josserand J., Girault H. H. Mixing processes in a zigzag microchannel: finite element simulations and optical study // Analytical Chemistry. 2002. Vol. 74. N. 15. P. 4279–4286. DOI: 10.1021/ac025642e
- Jiang F., Drese K. S., Hardt S., Kupper M., Schonfeld F. Helical flows and chaotic mixing in curved micro channels // AIChE Journal. 2004. Vol. 50, N. 9. P. 2297–2305. DOI: 10.1002/aic.10188
- Hossain S., Husain A., Kim K.-Y. Shape optimization of a micromixer with staggered-herringbone grooves patterned on opposite walls // Chemical Engineering Journal. 2010. Vol. 162. N. 2. P. 730– 737. DOI: 10.1016/j.cej.2010.05.056
- Howell P. B., Mott D. R., Fertig S., Kaplan C. R., Golden J. P., Oran E. S., Ligler F. S. A microfluidic mixer with grooves placed on the top and bottom of the channel // Lab on a Chip. 2005. Vol. 5, N. 5. P. 524–530. DOI: 10.1039/B418243J
- Liu R. H., Stremler M. A., Sharp K. V., Olsen M. G., Santiago J. G., Adrian R. J., Aref H., Beebe D. J. Passive mixing in a three-dimensional serpentine microchannel // Journal of Microelectromechanical Systems. 2000. Vol. 9. P. 190–197. DOI: 10.1109/84.846699
- Hossain S., Husain A., Kim K. Y., Lin Y. Numerical characterization of simple three-dimensional chaotic micromixers // Chem. Eng. J. 2015. Vol. 277. P. 303-311. DOI: 10.1016/j.cej.2015.04.123
- Mosheva E. A., Shmyrov A. V., Mizev A. I. Solutions mixing visualization in continuous-flow microreactors via interferometric technique // Scientific Visualization. 2023. Vol. 15, N. 3. P. 72–82. DOI: 10.26583/sv.15.3.08
- 19. Bratsun D.A. et al. Mixing enhancement by gravity-dependent convection in a Y-shaped continuous-flow microreactor // Microgravity Science and

Technology. 2022. Vol. 34. N. 5. P. 90. DOI: 10.1007/s12217-022-09994-9

- Bratsun D., Pismen L., Siraev R. On the efficiency of convective mixing in a Y-shaped channel // Journal of Physics: Conference Series. 2022. Vol. 2317. N. 1, 012022. DOI: 10.1088/1742-6596/2317/1/012022
- 21. *Никольский Б. П.* Справочник химика. Т. 3. М.: Химия, 1964. 490 с.
- 22. *Radko T.* Double-diffusive convection. Cambridge: Cambridge University Press, 2013. 242 p.
- Budroni M. A. Cross-diffusion-driven hydrodynamic instabilities in a double-layer system: General classification and nonlinear simulations // Physical Review E. 2015. Vol. 92. N. 6, 063007. DOI: 10.1103/PhysRevE.92.063007
- 24. Young Y. N. et al. On the miscible Rayleigh– Taylor instability: two and three dimensions // Journal of Fluid Mechanics. 2001. Vol. 447. P. 377-408. DOI: 10.1017/S0022112001005870
- Chandrasekhar S. Hydrodynamic and hydromagnetic stability. Oxford: Clarendon Press, 1961. 652 p.
- Крешков А. П. Основы аналитической химии. Физико-химические (инструментальные) метода анализа. Кн. 3. М.: Химия, 1970.
- 27. Красноперов Я. И., Скляренко М. С. Экспериментальная зависимость скорости массопереноса красителя в плоском горизонтальном слое воды от его толщины // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2012. Т. 158. № 4. С. 85–91.
- Alipour M., De Paoli M., Soldati A. Concentrationbased velocity reconstruction in convective Hele– Shaw flows // Experiments in Fluids. 2020. Vol. 61. P. 1–16. DOI: 10.1007/S00348-020-03016-3
- Nimafar M. Study and development of new passive micromixers based on split and recombination principle. PhD Thesis. Politecnico di Torino, 2013. 162 p.
- Salinas C. Experimental investigation on carbon dioxide dissolution in saline aquifers. Master's thesis. Technische Universität Wien, 2018. 73 p.

### References

- Hessel V., Lowe H., Schonfeld F. Micromixers a review on passive and active mixing principles. *Chemical Engineering Science*, 2005, vol. 60, no. 8, pp. 2479–2501. DOI: 10.1016/j.ces.2004.11.033
- Nguyen N. T. Micromixers: Fundamentals, Design, and Fabrication. New York: Norwich, 2008. 368 p.
- 3. Farahinia A., Jamaati J., Niazmand H. Investigation of slip effects on electroosmotic mixing in

- Kutter J. P. Current developments in electrophoretic and chromatographic separation methods on microfabricated devices. *Trends in Analytical Chemistry*, 2000, vol. 19, no. 6, pp. 352–363. DOI: 10.1016/S0165-9936(00)00014-5
- Heidari R., Khosroshahi A. R., Sadri B., Esmaeilzadeh E. The electrohydrodynamic mixer for producing homogenous emulsion of dielectric liquids. *Colloids and Surfaces A*, 2019, vol. 578, 123592. DOI: 10.1016/j.colsurfa.2019.123592
- Lemoff A. V., Lee A. P. An AC magnetohydrodynamic micropump. *Sensors and Actuators B*. 2000. vol. 63, no. 3, pp. 178–185. DOI: 10.1016/S0925-4005(00)00355-5
- Yang Z., Goto H., Matsumoto M., Maeda R. Active micromixer for microfluidic systems using lead-zirconate-titanate (PZT)-generated ultrasonic vibration. *Electrophoresis*, 2000, vol. 21, no. 1, pp. 116–119. DOI: 10.1002/(SICI)1522-2683(20000101)21:1<116::AIDELPS116>3.0.CO; 2-Y
- Alzoubi M. A., Al-Ketan O., Muthusamy J., Sasmito A. P., Poncet S. Mixing performance of T-shape micromixers equipped with 3D printed Gyroid matrices: a numerical evaluation. *Results in Engineering*, 2023, vol. 17, 100811. DOI: 10.1016/j.rineng.2022.100811
- Rasheed K. et al. Parametric study on the influence of varying angled inlet channels on mixing performance in simple T micromixers and vortex T micromixers across a wide range of Reynolds numbers. *Microfluidics and Nanofluidics*, 2024, vol. 28, 50. DOI: 10.1007/s10404-024-02746-8
- Pascal H., Jens T., Marko H., Michael S., Christian H., Patrick L., Dirk Z. Optimization of a split and recombine micromixer by improved exploitation of secondary flows. *Chemical Engineering Journal*, 2018, vol. 334, pp. 1996–2003. DOI: 10.1016/j.cej.2017.11.131
- 11. Farahinia A., Zhang W. J. Numerical analysis of a microfluidic mixer and the effects of different cross-sections and various input angles on its mixing performance. *Journal of the Brazilian Society* of Mechanical Sciences and Engineering, 2020, vol. 42, no. 4, 190. DOI: 10.1007/s40430-020-02275-9
- Mengeaud V., Josserand J., Girault H. H. Mixing processes in a zigzag microchannel: finite element simulations and optical study. *Analytical Chemistry*, 2002, vol. 74, no. 15, pp. 4279–4286. DOI: 10.1021/ac025642e
- 13. Jiang F., Drese K. S., Hardt S., Kupper M., Schonfeld F. Helical flows and chaotic mixing in curved

micro channels. *AIChE Journal*, 2004, vol. 50, no. 9, pp. 2297–2305 DOI: 10.1002/aic.10188

- 14. Hossain S., Husain A., Kim K.-Y. Shape optimization of a micromixer with staggered-herringbone grooves patterned on opposite walls. *Chemical Engineering Journal*, 2010, vol. 162, no. 2, pp. 730–737. DOI: 10.1016/j.cej.2010.05.056
- 15. Howell P. B., Mott D. R., Fertig S., Kaplan C. R., Golden J. P., Oran E. S., Ligler F. S. A microfluidic mixer with grooves placed on the top and bottom of the channel. *Lab on a Chip*, 2005, vol. 5, no. 5, pp. 524–530. DOI: 10.1039/B418243J
- 16. Liu R.H., Stremler M.A., Sharp K.V., Olsen M.G., Santiago J.G., Adrian R.J., Aref H., Beebe D.J. Passive mixing in a three-dimensional serpentine microchannel. *Journal of Microelectromechanical Systems*, 2000, vol. 9, pp. 190–197. DOI: 10.1109/84.846699
- 17. Hossain S., Husain A., Kim K. Y., Lin Y. Numerical characterization of simple three-dimensional chaotic micromixers. *Chem. Eng. J.*, 2015, vol. 277, pp. 303–311. DOI: 10.1016/j.cej.2015.04.123
- Mosheva E. A., Shmyrov A. V., Mizev A. I. Solutions mixing visualization in continuous-flow microreactors via interferometric technique. *Scientific Visualization*, 2023, vol. 15, no. 3, pp. 72–82. DOI: 10.26583/sv.15.3.08
- Bratsun D. A. et al. Mixing enhancement by gravity-dependent convection in a Y-shaped continuous-flow microreactor. *Microgravity Science and Technology*, 2022, vol. 34, no. 5, 90. DOI: 10.1007/s12217-022-09994-9
- Bratsun D., Pismen L., Siraev R. On the efficiency of convective mixing in a Y-shaped channel. *Journal of Physics: Conference Series*, 2022, vol. 2317, 012022. DOI: 10.1088/1742-6596/2317/1/012022
- 21. Nikolsky B. P. *Spravochnik Khimika* [A Chemist's Handbook]. Vol. 3. Moscow: Khimiya, 1964. 490 p. (In Russian)
- 22. Radko T. *Double-diffusive convection*. Cambridge: Cambridge University Press, 2013. 242 p.
- 23. Budroni M. A. Cross-diffusion-driven hydrodynamic instabilities in a double-layer system: General classification and nonlinear simulations. *Physical Review E*, 2015, vol. 92, no. 6, 063007. DOI: 10.1103/PhysRevE.92.063007
- 24. Young Y. N. et al. On the miscible Rayleigh– Taylor instability: two and three dimensions. *Journal of Fluid Mechanics*, 2001, vol. 447, pp. 377– 408. DOI: 10.1017/S0022112001005870
- Chandrasekhar S. Hydrodynamic and Hydromagnetic Stability. Oxford: Clarendon Press, 1961, 652 p.
- 26. Kreshkov A. P. Osnovy analiticheskoi khimii. Fiziko-khimicheskie (instrumental'nye) metody analiza [Fundamentals of Analytical Chemistry. Physico-

chemical (Instrumental) Methods of Analysis]. Moscow: Khimiya, 1970 (In Russian).

- 27. Krasnoperov Ya. I., Sklyarenko M. S. Experimental dependence of the mass transfer rate of a dye in a flat horizontal layer of water on its thickness. St. Petersburg Polytechnical University Journal: Physics and Mathematics, 2012, vol. 158, no. 4, pp. 85–91.
- 28. Alipour M., De Paoli M., Soldati A. Concentration-based velocity reconstruction in convective

Hele–Shaw flows. *Experiments in Fluids*. 2020, vol. 61, pp. 1–16. DOI: 10.1007/S00348-020-03016-3

- 29. Nimafar M. Study and Development of New Passive Micromixers Based on Split and Recombination Principle: PhD Thesis. Politecnico di Torino, 2013. 162 p.
- 30. Salinas C. *Experimental Investigation on Carbon Dioxide Dissolution in Saline Aquifers*. Master's thesis. Technische Universität Wien, 2018. 73 p.

### Просьба ссылаться на эту статью в русскоязычных источниках следующим образом:

Каракчеева М. И., Краснякова Е. А. Экспериментальное исследование процесса смешения жидкостей в проточном микроканале в условиях развития неустойчивости Рэлея-Тейлора // Вестник Пермского университета. Физика. 2024. № 3. С. 28–39. doi: 10.17072/1994-3598-2024-3-28-39

### Please cite this article in English as:

Karakcheeva M. I., Krasnyakova E. A. An experimental study of the mixing of liquids in a continuous-flow microchannel under conditions of Rayleigh-Taylor instability. *Bulletin of Perm University. Physics*, 2024, no. 3, pp. 28–39. doi: 10.17072/1994-3598-2024-3-28-39

### Сведения об авторах

- 1. *Каракчеева Мария Ивановна*, лаборант, Институт механики сплошных сред УрО РАН, ул. Ак. Королева, 1, Пермь, 614013
- 2. Краснякова Елена Александровна, канд. физ.-мат. наук, научный сотрудник, Институт механики сплошных сред УрО РАН, ул. Ак. Королева, 1, Пермь, 614013

### **Author information**

- 1. *Maria I. Karakcheeva*, Laboratory Assistant, Institute of Continuous Media Mechanics UB RAS; 1, Akademika Koroleva st., Perm, 614013, Russia.
- 2. *Elena A. Krasnyakova*, Candidate of Physical and Mathematical Sciences, Researcher, Institute of Continuous Media Mechanics UB RAS; 1, Akademika Koroleva st., Perm, 614013, Russia.