КОМПЬЮТЕРНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ И МОДЕЛИРОВАНИЕ 2020 Т. 12 № 1 С. 9–31
DOI: 10.20537/2076-7633-2020-12-1-9-31

Ки&М

МАТЕМАТИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ И ЧИСЛЕННЫЕ МЕТОДЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

УДК: 532.5:517.925

Моделирование пространственного сценария перехода к хаосу через разрушение тора в задаче с концентрационно-зависимой диффузией

Д. А. Брацун

Пермский национальный исследовательский политехнический университет,
Россия, 614990, г. Пермь, ул. Комсомольский проспект, д. 29

E-mail: DABracun@pstu.ru

Получено 14.10.2019, после доработки — 26.11.2019.
Принято к публикации 27.11.2019.

Универсальные сценарии перехода к хаосу в динамических системах к настоящему моменту хорошо изучены. К типичным сценариям относятся каскад бифуркаций удвоения периода (сценарий Фейгенбаума), разрушение тора малой размерности (сценарий Рюэля–Такенса) и переход через перемежаемость (сценарий Помо–Манневилля). В более сложных пространственно-распределенных динамических системах нарастающая с изменением параметра сложность поведения по времени тесно переплетается с формированием пространственных структур. Однако вопрос о том, могут ли в каком-то сценарии пространственная и временная оси полностью поменяться ролями, до сих пор остается открытым. В данной работе впервые предлагается математическая модель конвекции–реакции–диффузии, в рамках которой реализуется пространственный аналог перехода к хаосу через разрушение квазипериодического режима в рамках сценария Рюэля–Такенса. Исследуемая физическая система представляет собой два водных раствора кислоты (A) и основания (B), в начальный момент времени разделенных по пространству и помещенных в вертикальную ячейку Хеле–Шоу, находящуюся в статическом поле тяжести. При приведении растворов в контакт начинается фронтальная реакция нейтрализации второго порядка: $A + B \to C$, которая сопровождается выделением соли (C). Процесс характеризуется сильной зависимостью коэффициентов диффузии реагентов от их концентрации, что приводит к возникновению двух локальных зон пониженной плотности, в которых независимо друг от друга возникают хемоконвективные движения жидкости. Слои, в которых развивается конвекция, все время остаются разделенными прослойкой неподвижной жидкости, но они могут влиять друг на друга посредством диффузии реагентов через прослойку. Формирующаяся хемо-конвективная структура представляет собой модулированную стоячую волну, постепенно разрушающуюся со временем, повторяя последовательность бифуркаций сценария разрушения двумерного тора. Показано, что в ходе эволюции системы пространственная ось, направленная вдоль фронта реакции, выполняет роль времени, а само время играет роль управляющего параметра.

Ключевые слова: пространственный аналог сценария перехода к хаосу, разрушение тора, хемоконвекция, реакция нейтрализации, нелинейная диффузия, смешивающиеся жидкости

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда, грант № 19-11-00133.

COMPUTER RESEARCH AND MODELING
2020 VOL. 12 NO. 1 P. 9–31
DOI: 10.20537/2076-7633-2020-12-1-9-31

MATHEMATICAL MODELING AND NUMERICAL SIMULATION

UDC: 532.5:517.925

Modeling the spatial scenario of the transition to chaos via torus breakup in the problem with concentration-dependent diffusion

D. A. Bratsun

Perm National Research Polytechnic University,
29 Komsomolsky prospect, Perm, 614990, Russia

E-mail: DABracun@pstu.ru

Received 14.10.2019, after completion — 26.11.2019.
Accepted for publication 27.11.2019.

In the last decades, universal scenarios of the transition to chaos in dynamic systems have been well studied. The scenario of the transition to chaos is defined as a sequence of bifurcations that occur in the system under the variation one of the governing parameters and lead to a qualitative change in dynamics, starting from the regular mode and ending with chaotic behavior. Typical scenarios include a cascade of period doubling bifurcations (Feigenbaum scenario), the breakup of a low-dimensional torus (Ruelle–Takens scenario), and the transition to chaos through the intermittency (Pomeau–Manneville scenario). In more complicated spatially distributed dynamic systems, the complexity of dynamic behavior growing with a parameter change is closely intertwined with the formation of spatial structures. However, the question of whether the spatial and temporal axes could completely exchange roles in some scenario still remains open. In this paper, for the first time, we propose a mathematical model of convection–diffusion–reaction, in which a spatial transition to chaos through the breakup of the quasi–periodic regime is realized in the framework of the Ruelle–Takens scenario. The physical system under consideration consists of two aqueous solutions of acid (A) and base (B), initially separated in space and placed in a vertically oriented Hele–Shaw cell subject to the gravity field. When the solutions are brought into contact, the frontal neutralization reaction of the second order A + B → C begins, which is accompanied by the production of salt (C). The process is characterized by a strong dependence of the diffusion coefficients of the reagents on their concentration, which leads to the appearance of two local zones of reduced density, in which chemoconvective fluid motions develop independently. Although the layers, in which convection develops, all the time remain separated by the interlayer of motionless fluid, they can influence each other via a diffusion of reagents through this interlayer. The emerging chemoconvective structure is the modulated standing wave that gradually breaks down over time, repeating the sequence of the bifurcation chain of the Ruelle–Takens scenario. We show that during the evolution of the system one of the spatial axes, directed along the reaction front, plays the role of time, and time itself starts to play the role of a control parameter.

Keywords: spatial analog of scenario of the transition to chaos, torus breakup, chemoconvection, neutralization reaction, nonlinear diffusion, miscible liquids

Citation: *Computer Research and Modeling*, 2020, vol. 12, no. 1, pp. 9–31 (Russian).

The work was supported by Russian Science Foundation, grant No. 19-11-00133.

1. Введение

Как известно, понятие *динамическая система* может иметь довольно общий смысл, который абстрагируется от природы протекающего процесса. Например, систему можно определить как динамическую, если есть способ указать набор таких величин, которые однозначно характеризуют состояние системы, а их значения в любой последующий момент времени получаются из исходного набора по определенному правилу, задаваемого оператором эволюции системы [Кузнецов, 2001]. Начиная с 60-х годов прошлого века, когда при моделировании изменения погоды был случайно обнаружен странный аттрактор Лоренца [Lorenz, 1963], динамические системы, характеризуемые конечным числом степеней свободы, интенсивно исследовались на предмет выявления в них универсальных сценариев перехода к хаосу. В результате к настоящему моменту эти типичные сценарии установлены, а детали переходов подробно рассмотрены на множестве примеров динамических систем, описывающих реальные процессы или объекты. К универсальным сценариям перехода к хаосу относят возникновение и разрушение тора малой размерности (сценарий Рюэля–Такенса [Ruelle, Takens, 1971]), каскад бифуркаций удвоения периода (сценарий Фейгенбаума [Feigenbaum, 1978]) и переход к хаотическому поведению через перемежаемость (сценарий Помо–Манневилля [Pomeau, Manneville, 1980]). Парадоксально, но последовательность бифуркаций, ведущая к появлению странного аттрактора Лоренца, не была признана универсальной из-за его гиперболичности (аттрактор Лоренца классифицируется как сингулярно-гиперболический странный аттрактор [Кузнецов, 2009]). В случае пространственно распределенных динамических систем, характеризуемых бесконечным числом степеней свободы, переход к временному хаосу сопровождается сложными пространственными перестройками сплошной среды, которые стали предметом изучения *теории структурообразования* (англ. pattern formation) — специального раздела нелинейной физики [Cross, Hohenberg, 1993]. Однако, как известно, добавление динамической системе пространственных степеней свободы не ведет к появлению новых универсальных сценариев перехода к хаосу.

Остановимся подробнее на сценарии разрушения малоразмерного тора, который традиционно называют сценарием Рюэля–Такенса. В работах [Ruelle, Takens, 1971; Newhouse et al., 1978] было показано, что как только динамическая система теряет устойчивость по отношению к трем (или четырем) колебательным возмущениям на некоторых частотах, которые находятся между собой в иррациональных соотношениях, в системе с очень большой вероятностью возникает странный аттрактор, который характеризуется неустойчивостью принадлежащих ему фазовых траекторий. Такого рода переход был обнаружен экспериментально и теоретически в задачах различных разделов естествознания. Например, в механике жидкости это тепловая конвекция в однородной жидкости [Jensen et al., 1985], тепловая конвекция в пористой среде [Bratsun et al., 1995]. В математической биологии это процессы синхронизации в сетях связянных генетических осцилляторов [Ullner et al., 2007; Потапов, Волков, 2010]. В радиофизике это нестационарные процессы в электрических цепях [Anishchenko et al., 1993]. Критика устоявшегося в литературе термина «сценарий Рюэля–Такенса» в основном идет из математического сообщества и базируется на утверждении, что теорема Рюэля–Такенса в строгом смысле не указала точный сценарий перехода к хаосу. И действительно, в различных конкретных системах были найдены переходы к хаосу после пяти и даже шести последовательных бифуркаций Хопфа. Например, такой затянутый переход был обнаружен экспериментально и численно в работе одного из авторов, посвященной устойчивости течения в плоском вертикальном слое жидкости, подогреваемой сбоку [Bratsun et al., 2003]. Более подробно с математической точки зрения вопрос о возможных путях разрушения тора малой размерности был исследован в работах [Grebogi et al., 1985; Afraimovich, Shilnikov, 1991; Anishchenko et al., 1993; Afraimovich, Hsu, 2003]. Здесь были выявлены достаточно разнообразные варианты разрушения тора. Несмотря на критику, вне математического сообщества исследователи продолжают использовать термин «сценарий Рюэля–Такенса», под которым теперь понимается целый набор возможностей, которые, однако, все связаны с разрушением малоразмерного квазипериодического движения.

Вообще говоря, с формальной математической точки зрения разница между пространством и временем не очень большая. Например, теорема Нётер в механике утверждает, что свойство однородности как пространства, так и времени неизбежно порождает закон сохранения. Если отвлечься от разной размерности пространства и времени, то очевидно, что теория симметрии работает для них одинаково. Можно также вспомнить, что в псевдоевклидовом пространстве Минковского, используемого в качестве модели четырехмерного континуума специальной теории относительности, разница между пространством и временем вообще стирается, а преобразования Лоренца формально описывают поворот в таком континууме. В нелинейной динамике и теории бифуркаций это приводит к интересному вопросу о том, могут ли универсальные сценарии перехода к хаосу, сформулированные изначально для систем, в которых время выполняет роль независимой переменной, быть воспроизведены для каких-то систем, в которых такую роль играет пространственная переменная. Такая постановка задачи представляет как фундаментальный, так и практический интерес. Из общих соображений ясно, что пространственно распределенная динамическая система должна быть организована специальным образом, чтобы ответ на поставленный выше вопрос был положительным.

В данной работе впервые рассматривается физическая система, в которой реализуется пространственный аналог сценария Рюэля–Такенса. Она представляет собой двухслойную систему водных растворов кислоты и основания, помещенных в вертикально ориентированную в статическом поле тяжести ячейку Хеле–Шоу. Под ячейкой Хеле–Шоу в гидродинамике понимается закрытая кювета, один из характерных пространственных размеров которой существенно меньше двух других, что позволяет рассматривать движения жидкости в такой кювете как квазидвумерные. Эволюция системы стартует с начального состояния, в котором растворы разделены и располагаются один над другим. Сразу после приведения растворов в контакт начинается их смешивание, которое сопровождается реакцией нейтрализации кислоты основанием с образованием продукта реакции — соли. Данная реакция второго порядка обладает сравнительно простой, хотя и нелинейной кинетикой. В ходе процессов реакции–диффузии между растворами формируется переходная зона, в которой локализован фронт реакции. Результаты экспериментальных работ с разными реагентами [Eckert, Grahn, 1999; Rongy et al., 2008; Zalts et al., 2008; Almarcha et al., 2010] показали, что в поле силы тяжести протекание реакции сопровождается возникновением конвективного движения, обусловленного разностью скоростей диффузии реагирующих компонентов (конвекция двойной диффузии). Формирующееся конвективное движение представляет собой неупорядоченную пальчиковую структуру, распространяющуюся по обе стороны от переходной зоны. При этом вблизи фронта реакции массоперенос по-прежнему осуществляется за счет диффузии, что приводит к медленному протеканию реакции. В теоретической работе [Trevelyan et al., 2015] была сделана попытка общей классификации всех возможных видов неустойчивостей, возникающих в двухслойных смешивающихся системах, основанная на изучении асимптотики больших времен эволюции системы. Были выделены неустойчивости двойной диффузии в узком смысле (DD-конвекция), диффузионного слоя (DLC-конвекция) и Рэлея–Тейлора (RT-конвекция). В недавней серии работ автора [Bratsun et al., 2015; Bratsun et al., 2016; Bratsun et al., 2017] было показано, что данная классификация не является полной, так как, вообще говоря, коэффициенты диффузии реагентов зависят от концентрации растворов, что в данном конкретном случае при определенных условиях может приводить к полной перестройке профиля плотности в ходе реакции. Главной особенностью данной системы является возможность формирования локальных карманов пониженной плотности, внутри которых возникает неустойчивость, которую авторы назвали конвекцией концентрационно-зависимой диффузии (CDD-конвекция) [Bratsun et al., 2015]. Структура представляет собой периодическую систему хемоконвективных ячеек, формирующихся внутри карманов плотности параллельно фронту реакции и перпендикулярно направлению силы тяжести [Bratsun et al., 2016]. Так как в системе может формироваться не один карман плотности, то конвективные структуры разделены между собой прослойкой малоподвижной жидкости, что не мешает, однако, им взаимодействовать друг с другом посредством обмена диффузионными сигналами.

Часть предварительных результатов по заявленной теме была опубликована в недавней работе [Bratsun, 2019] в формате короткого сообщения. Данная работа предназначена для того, чтобы познакомить российского читателя с результатами исследований в полном виде.

2. Математическая модель конвекции–реакции–диффузии

Пусть два смешивающихся жидких раствора кислоты и основания в начальный момент времени заполняют соответственно верхний и нижний слои в ячейке Хеле–Шоу и разделены контактной поверхностью (рис. 1). Декартова система координат введена так, как это показано на рисунке. Ячейка имеет ширину $0 \le x \le L$, высоту $-H \le z \le H$ и толщину $-d \le y \le d$. При этом выполняются условия, при которых движение жидкости в кювете можно считать двумерным: $d << L$ и $d << H$, то есть справедливо приближение Хеле–Шоу.

Так как свойства модели существенно зависят от законов диффузии, которым подчиняются реагенты, а эти законы строго индивидуальны для каждого вещества, то математическую формулировку задачи проведем для конкретной пары реагентов. Законы диффузии должны быть предварительно изучены или взяты из справочной литературы. Ранее было показано, что эффект концентрационно-зависимой диффузии долгое время исследователями недооценивался, поэтому справочные данные даже по простым веществам фрагментарны и обрывочны [Bratsun et al., 2015]. Как оказалось, лучше всего в литературе исследованы свойства диффузии гидроксида натрия NaOH, азотной кислоты HNO_3 и их соли $NaNO_3$. Пусть верхний слой представляет собой водный раствор кислоты HNO_3, концентрацию которой обозначим как A, а нижний — водный раствор основания NaOH, концентрацию которого обозначим как B. Будем считать далее, что начальные концентрации кислоты и основания одинаковы и равны A_0. С точки зрения химической кинетики в этой системе происходит следующее. Азотная кислота в водном растворе диссоциирует, распадаясь на катион гидроксония и на анион кислотного остатка:

$$\mathrm{NO_2\,OH + H_2O \rightarrow NO_2\,O^- + H_3O^+},$$

а основание, соответственно, диссоциирует следующим образом:

$$\mathrm{Na\,OH \rightarrow Na^+ + OH^-}.$$

Далее, катионы H_3O^+ находят анионы OH^- и образуют воду, в то время как катионы основания, встречаясь с анионами кислотного остатка, образуют нитрат натрия, концентрацию которого обозначим как C:

$$\mathrm{NO_2\,O^- + Na^+ \rightarrow Na\,NO_3}. \tag{1}$$

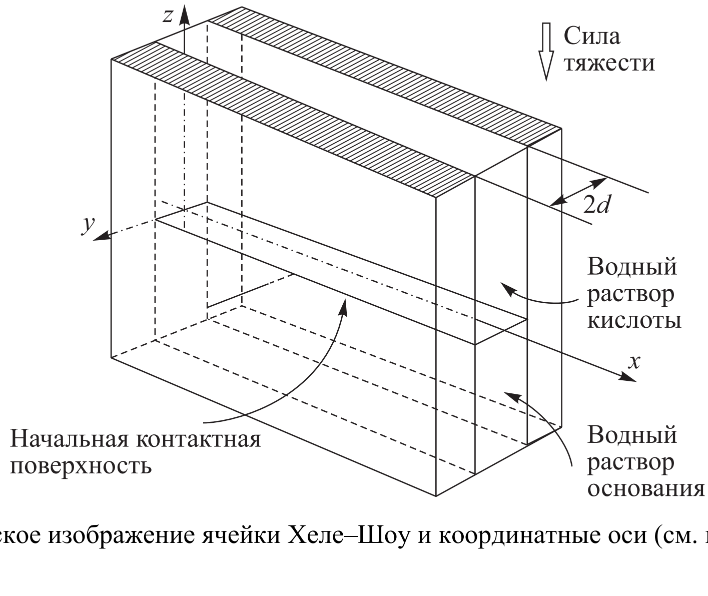


Рис. 1. Схематическое изображение ячейки Хеле–Шоу и координатные оси (см. пояснения в тексте)

Таким образом, при смешивании растворов протекает реакция нейтрализации, которая, вообще говоря, сопровождается выделением теплоты. В данной работе влияние тепловыделения рассматриваться не будет. Это допущение основывается на данных экспериментальных наблюдений [Bratsun et al., 2015; Bratsun et al., 2016]. Реакция (1) протекает со скоростью k. Вообще говоря, значение кинетической константы скорости реакции вида (1) огромно и составляет порядка $k \approx 10^{11}$ л·моль$^{-1}$·с$^{-1}$, т. е. продукт реакции образуется сразу же после столкновения ионов. Однако это значение теоретическое, оно выведено из предположений о строении взаимодействующих молекул и о полном диффузионном перемешивании реагентов. В реальных условиях, когда реакция протекает в сплошной среде, ее скорость может принимать различные значения в зависимости от скорости диффузии веществ и интенсивности конвективного массопереноса. Если перенос реагентов осуществляется только за счет диффузии, то вероятность встречи ионов мала, и реакция в этом случае может протекать сутками. Если же в среде возникает интенсивное макроскопическое движение жидкости, то скорость реакции может возрастать на несколько порядков.

Выберем в качестве характерных единиц измерения длины ($2d$), времени ($4d^2/D_{a0}$), скорости ($D_{a0}/2d$) и концентрации (A_0), где D_{a0} — табличное значение коэффициента диффузии азотной кислоты в воде при температуре 25 °C. Тогда, с учетом сделанных предположений, получим уравнения конвекции–реакции–диффузии в приближении Буссинеска и Хеле–Шоу в безразмерной форме (последнее означает, что все переменные являются функциями только двух пространственных переменных, x и z, а также времени t):

$$\Phi + \Delta\Psi = 0, \tag{2}$$

$$\frac{1}{\mathrm{Sc}}\left(\frac{\partial\Phi}{\partial t} + \frac{6}{5}\frac{\partial(\Psi,\Phi)}{\partial(z,x)}\right) = \nabla^2\Phi - 12\,\Phi - \mathrm{Ra}_A\frac{\partial A}{\partial x} - \mathrm{Ra}_B\frac{\partial B}{\partial x} - \mathrm{Ra}_C\frac{\partial C}{\partial x}, \tag{3}$$

$$\frac{\partial A}{\partial t} + \frac{\partial(\Psi,A)}{\partial(z,x)} = \nabla D_A(A)\nabla A - \mathrm{Da}\,AB, \tag{4}$$

$$\frac{\partial B}{\partial t} + \frac{\partial(\Psi,B)}{\partial(z,x)} = \nabla D_B(B)\nabla B - \mathrm{Da}\,AB, \tag{5}$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial(\Psi,C)}{\partial(z,x)} = \nabla D_C(C)\nabla C + \mathrm{Da}\,AB. \tag{6}$$

В уравнениях (2)–(6) использована двухполевая запись для функции тока Ψ и завихренности Φ, которые связаны уравнением Пуассона (2). Реакционные слагаемые в уравнениях (4)–(6) записаны на основании кинетического уравнения (1). Уравнение (3) отличается от стандартного уравнения Навье–Стокса коэффициентом 6/5 перед инерционным слагаемым, а также дополнительным слагаемым, пропорциональным завихренности, которое описывает гидродинамическое сопротивление широких граней ячейки Хеле–Шоу [Gondret, Rabaud, 1997]. Коэффициент перед инерционным слагаемым зависит от аппроксимирующей функции, используемой при усреднении. В данном случае был использован стандартный параболический профиль течения, который приводит к поправочному коэффициенту 6/5. Диффузионные слагаемые в уравненииях (4)–(6) записаны в наиболее общей форме [Crank, 1975], допускающей зависимость коэффициентов диффузии от концентрации соответствующих веществ. Предполагается, что каждое вещество может влиять только на скорость своей собственной диффузии.

К уравнениям (2)–(6) необходимо добавить граничные условия:

$$x = 0, L:\ \ \Psi = 0,\ \ \frac{\partial\Psi}{\partial x} = 0,\ \ \frac{\partial A}{\partial x} = 0,\ \ \frac{\partial B}{\partial x} = 0,\ \ \frac{\partial C}{\partial x} = 0, \tag{7}$$

$$z = \pm H:\ \ \Psi = 0,\ \ \frac{\partial\Psi}{\partial z} = 0,\ \ \frac{\partial A}{\partial z} = 0,\ \ \frac{\partial B}{\partial z} = 0,\ \ \frac{\partial C}{\partial z} = 0, \tag{8}$$

которые означают, что на твердых границах предполагается условие прилипания жидкости. Кроме того, равенство нулю на границе потоков вещества означает, что свежие реагенты в ходе реакции не пополняются. Из этого следует необратимый характер протекающих процессов.

Начальные условия для задачи при $t = 0$ сформулируем следующим образом:

$$z < 0:\ \Phi = 0,\ \Psi = 0,\ A = 0,\ B = 1,\ C = 0, \tag{9}$$

$$z \ge 0:\ \Phi = 0,\ \Psi = 0,\ A = 1,\ B = 0,\ C = 0. \tag{10}$$

Чтобы оценить вид функциональных зависимостей, стоящих в диффузионных слагаемых уравнений (4)–(6), для системы водных растворов HNO_3/NaOH в работе [Bratsun et al., 2015] был произведен поиск в литературе всех имеющихся экспериментальных данных. Ограничиваясь лишь линейной аппроксимацией в диапазоне концентраций от 0 до 3 моль/л, получим следующие выражения, которые представлены уже в безразмерном виде:

$$D_A(A) \approx 0.158A + 0.881, \quad D_B(B) \approx -0.087B + 0.594, \quad D_C(C) \approx -0.284C + 0.478, \tag{11}$$

где выражения (11) были обезразмерены с помощью табличного значения коэффициента диффузии для азотной кислоты 3.15×10^{-5} см^2/с.

В задаче (2)–(11) появилось несколько безразмерных критериев подобия:

$$\mathrm{Sc} = \frac{\nu}{D_{a0}}, \quad \mathrm{Da} = \frac{4d^2kA_0}{D_{a0}}, \quad \mathrm{Ra}_A = \frac{8d^3g\beta_A A_0}{\nu D_{a0}}, \quad \mathrm{Ra}_B = \frac{8d^3g\beta_B A_0}{\nu D_{a0}}, \quad \mathrm{Ra}_C = \frac{8d^3g\beta_C A_0}{\nu D_{a0}} \tag{12}$$

— соответственно число Шмидта, число Дамкёлера, набор из трех концентрационных чисел Рэлея для каждого реагента. Число Шмидта представляет собой отношение характерного времени диффузии кислоты к характерному гидродинамическому времени. Оценка параметра для азотной кислоты дает значение Sc = 317. Число Дамкёлера имеет смысл отношения характерного диффузионного времени к характерному времени протекания реакции. Оценка для числа Дамкёлера не такая очевидная, так этот параметр содержит константу скорости реакции, о трудностях определения которой для сплошной среды упоминалось выше. Подстановка табличного значения k, полученного в приближении полного перемешивания реагентов и прямого контакта двух молекул, приводит к нереально высокому значению, для которого расчет по любой численной схеме будет затруднен. Имеющиеся в литературе оценки дают довольно широкий интервал значений, от 10^2 до 10^5. В данной работе мы берем достаточно большое значение Da = 10^3, которое позволяет без проблем интегрировать уравнения. Концентрационные числа Рэлея характеризуют вклад в плотность каждого компонента, растворенного в воде. Считается, что каждый реагент тяжелее воды, поэтому все числа Рэлея положительны. Удобно ввести в рассмотрение следующую безразмерную величину:

$$\rho(x,z,t) = \mathrm{Ra}_A\, A(x,z,t) + \mathrm{Ra}_B\, B(x,z,t) + \mathrm{Ra}_C\, C(x,z,t), \tag{13}$$

которая представляет собой изменяющуюся по пространству и времени добавку к плотности чистой воды. Сами значения чисел Рэлея (12) для азотной кислоты и гидроксида натрия были оценены в работе [Bratsun et al., 2015]: $\mathrm{Ra}_A = 3.18\times10^5$, $\mathrm{Ra}_B = 3.82\times10^5$, $\mathrm{Ra}_C = 5.1\times10^5$. Таким образом, в задаче (2)–(11) определены значения всех безразмерных параметров.

3. Основное состояние реакции–диффузии и его устойчивость

3.1. Свойства профиля плотности в основном состоянии реакции–диффузии

Задача (2)–(11) не имеет стационарных решений из-за необратимости протекающих процессов. Однако она допускает нестационарное решение, описывающее динамику процессов реакции–диффузии без участия жидкости, которая остается в состоянии механического равновесия. Будем называть такое состояние системы основным. Положим в (2)–(11) функцию тока и завихренность равными нулю и будем рассматривать поля концентраций, зависящие только от вертикальной координаты и времени: $A^0(z,t)$, $B^0(z,t)$, $C^0(z,t)$. Тогда получим нестационарную нелинейную задачу с концентрационно зависимой диффузией реагентов:

$$\frac{\partial A^0}{\partial t} = D_A(A^0)\frac{\partial^2 A^0}{\partial z^2} + \frac{dD_A(A^0)}{dA^0}\left(\frac{\partial A^0}{\partial z}\right)^2 - \mathrm{Da}\, A^0 B^0, \tag{14}$$

$$\frac{\partial B^0}{\partial t} = D_B(B^0)\frac{\partial^2 B^0}{\partial z^2} + \frac{dD_B(B^0)}{dB^0}\left(\frac{\partial B^0}{\partial z}\right)^2 - \mathrm{Da}\, A^0 B^0, \tag{15}$$

$$\frac{\partial C^0}{\partial t} = D_C(C^0)\frac{\partial^2 C^0}{\partial z^2} + \frac{dD_C(C^0)}{dC^0}\left(\frac{\partial C^0}{\partial z}\right)^2 + \mathrm{Da}\, A^0 B^0, \tag{16}$$

которая должна быть дополнена граничными и начальными условиями (7)–(10). Задача для основного состояния решалась численно, метод получения численного решения обсуждается ниже. На рис. 2, *а* представлены профили плотности $\rho(z,t)$ для трех последовательных моментов времени $t = 0, 2, 10$. Как видно из рисунка, в начальный момент времени $t = 0$ стратификация системы по плотности имеет вид ступеньки и полностью устойчива, так как раствор азотной кислоты легче раствора основания и расположен выше него. Сразу после начала реакции профиль плотности резко изменяется — в нем появляются два локальных минимума. Если определить фронт реакции как линию в пространстве, на которой концентрации кислоты и основания равны, а реакция происходит наиболее интенсивно (вероятность встречи молекулы кислоты с молекулой основания здесь максимальная), то один минимум расположен выше фронта реакции, а другой — ниже (рис. 2, *а*; $t = 2$). В дальнейшем структура профиля качественно не меняется, хотя под действием диффузии профиль медленно растягивается по вертикальной координате (рис. 2, *а*; $t = 10$). Ранее было показано, что профиль плотности, приведенный на рис. 2, формируется благодаря эффекту концентрационно-зависимой диффузии [Bratsun et al., 2015].

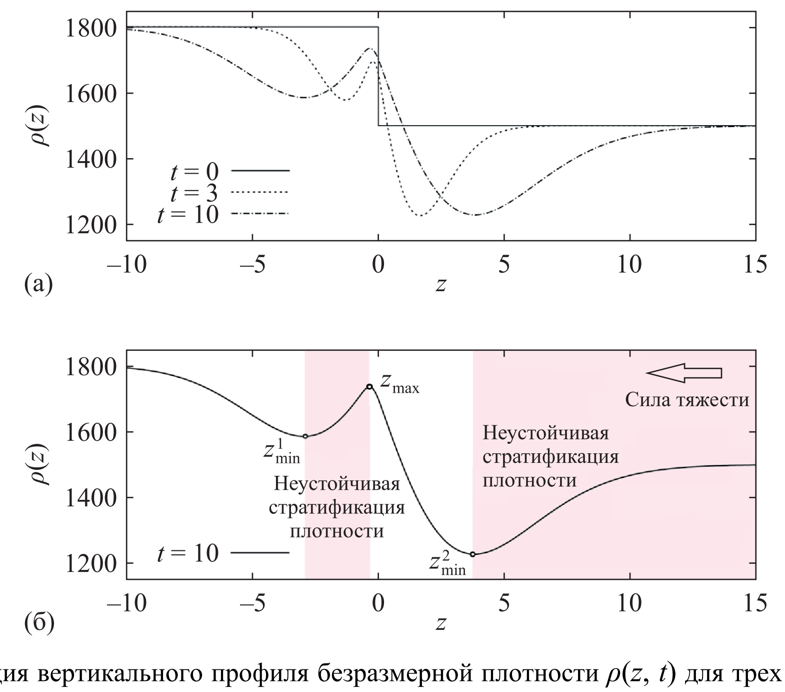


Рис. 2. (а) Эволюция вертикального профиля безразмерной плотности $\rho(z,\ t)$ для трех последовательных моментов времени $t = 0, 2, 10$ в основном состоянии реакции−диффузии; (б) локальные зоны неустойчивой стратификации плотности выделены цветом для $t = 10$

Если в задаче (14)–(16) в численном расчете использовать постоянные табличные значения для коэффициентов диффузии реагентов, то профиль плотности будет выглядеть совершенно по-другому. Физическая причина появления локальных карманов плотности заключается в следующем: как видно из (11), скорость диффузии соли быстро уменьшается с ростом ее концентрации, что приводит к локальному накоплению продукта реакции в зоне реакции. Так как соль является самым тяжелым компонентом в растворе (на это указывает значение числа Рэлея), то ее вклад в плотность (13) существенен, что приводит к возникновению локального максимума плотности. С ростом своей концентрации соль все медленнее диффундирует и в большей степени откладывается вблизи фронта реакции.

На рис. 2, *б* представлен профиль плотности, который формируется к моменту времени $t = 10$, и выделены области, в которых система приобретает неустойчивую стратификацию по плотности (в этих областях градиент плотности направлен вверх). Таким образом, система имеет вид слоеного пирога, в котором области устойчивой и неустойчивой стратификации чередуются. Стоит обратить внимание на то, почему такая конструкция вообще в принципе может существовать: плотность верхнего слоя в любой момент времени эволюции системы остается меньшей, чем плотность среды в нижней зоне потенциальной неустойчивости. Таким образом, несмотря на слоистую структуру, система остается глобально устойчивой.

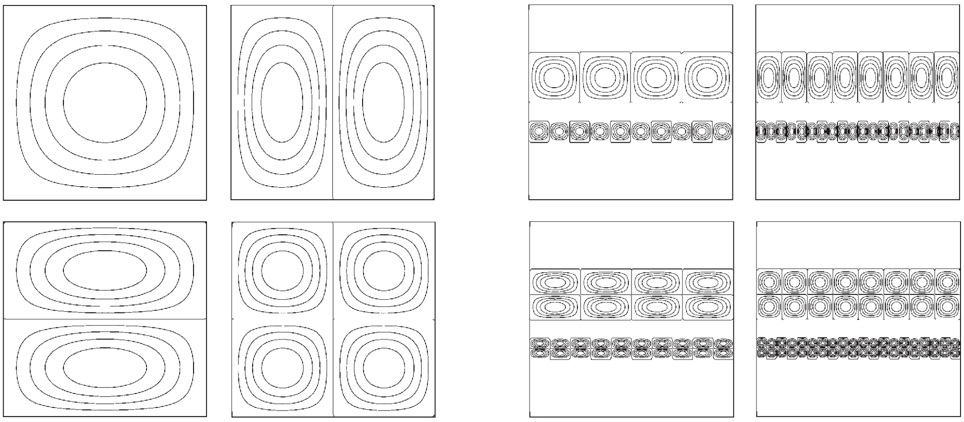
В следующих разделах исследуется конвективная устойчивость основного состояния, задаваемого уравнениями (14)–(16), по отношению к бесконечно малым возмущениям.

3.2. Замечание о модах неустойчивости

Чтобы подчеркнуть специфику рассматриваемой системы, обсудим терминологический вопрос о конвективных модах движения жидкости, возникающих в системе. Определение нормальной конвективной моды в механике жидкости обычно формулируется по аналогии с определением нормальной колебательной моды в механике: будем называть так определенный тип движения жидкости во всей системе сразу, который характеризуется фиксированной длиной волны по каждой пространственной координате и экспоненциальной зависимостью амплитуды движения по времени. Ключевые слова здесь — «во всей системе сразу». Нормальные конвективные моды обычно определяются путем решения линеаризованной задачи в рамках теории гидродинамической (конвективной) устойчивости [Гершуни, Жуховицкий, 1972]. На рис. 3, *а* схематически представлены четыре первые нормальные моды конвективного движения жидкости в квадратной области, помещенной в статическое поле тяжести и подогреваемой снизу. Каждая мода движения возникает сразу по всему пространству квадратной полости. Моды могут сосуществовать одновременно, поэтому конвективное движение жидкости любой сложности может быть представлено в виде суперпозиции нормальных мод. Как правило, в механике жидкости считается, что ограничить движение жидкости может только твердая или межфазная граница.

Рис. 3, *б* схематически иллюстрирует ситуацию в рассматриваемой задаче. Как показано выше, в результате работы механизма концентрационно-зависимой диффузии в кювете формируются локальные зоны (полосы) с неустойчивой стратификацией среды по плотности внутри.

Ниже будет показано, что конвективное движение жидкости возникает прежде всего в таких карманах плотности. Вся остальная жидкая среды остается в состоянии механического равновесия, так как стратификация среды в поле тяжести не позволяет раскачать здесь течение. Таким образом, не выполняется главное условие, которое позволяет рассматривать конвективное движение как «нормальную моду» конвекции. Система разбивается на отдельные подсистемы, внутри которых независимо формируется определенный тип движения. Если ограничить рассмотрение пространством только одного определенного кармана плотности, то для него можно ввести границы и ввести иерархию конвективных мод. Четыре моды из такой иерархии приведены на рис. 3, *б* для каждого кармана плотности. Для каждого кармана процессы, которые происходят за его границами, выступают как внешние. В принципе, конвективные движения, формирующиеся в разных областях сплошной среды, могут влиять друг на друга посредством диффузии вещества или тепла (в случае экзотермической или эндотермической реакции).



(а) (б)

Рис. 3. (а) Четыре первые моды движения жидкости в квадратной области, находящейся в поле тяжести и подогреваемой снизу; (б) четыре моды движения жидкости в двух локализованных карманах плотности, возникающих благодаря протекающей реакции второго порядка и механизму концентрационно-зависимой диффузии. За пределами отмеченных зон жидкость остается в состоянии покоя

Ситуация, изображенная на рис. 3, *б*, больше похожа на систему двух связанных осцилляторов, каждый из которых индивидуален в своем поведении, но может оказывать влияние на соседа. Эта конфигурация привычна для обычной механики сосредоточенных масс, но выглядит необычной для механики жидкости, в которой сплошная среда, как правило, передает возмущения всем точкам системы. Однако такое необычное свойство рассматриваемой системы оказывается полезным для моделирования сценария перехода к хаосу Рюэля–Такенса.

3.3. Задача устойчивости для диффузионно связанных нестационарных слоев

Рассмотрим вопрос об устойчивости основного состояния реакции–диффузии, неявно задаваемого динамическими уравнениями (14)–(16) с граничными и начальными условиями (7)–(10), по отношению к малым монотонным возмущениям нормального типа:

$$\begin{bmatrix} \Phi(t,x,z) \\ \Psi(t,x,z) \\ A(t,x,z) \\ B(t,x,z) \\ C(t,x,z) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ A^0(t,z) \\ B^0(t,z) \\ C^0(t,z) \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \phi(t,z) \\ \psi(t,z) \\ a(t,z) \\ b(t,z) \\ c(t,z) \end{bmatrix} \exp(Ikx), \tag{17}$$

где φ, ψ, a, b, c — амплитуды возмущений соответственно для завихренности, функции тока, концентраций кислоты, основания и соли, k — волновое число вдоль оси x, I — мнимая единица. Представление (17) означает, что система предполагается бесконечно протяженной вдоль горизонтальной оси x.

Подставляя разложения (17) в уравнения (2)–(6) и линеаризуя последние около основного состояния (14)–(16), получаем следующую систему нестационарных амплитудных уравнений для определения критических возмущений:

$$\phi + \frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2} - k^2 \psi = 0, \tag{18}$$

$$\frac{1}{Sc}\frac{\partial \phi}{\partial t} = \frac{\partial^2 \phi}{\partial z^2} - (k^2 + 12)\phi - k^2(\mathrm{Ra}_A\, a + \mathrm{Ra}_B\, b + \mathrm{Ra}_C\, c), \tag{19}$$

$$\frac{\partial a}{\partial t}=D_A\left(\frac{\partial^2 a}{\partial z^2}-k^2 a\right)+\frac{dD_A}{dA^0}\left(2\frac{\partial A^0}{\partial z}\frac{\partial a}{\partial z}+a\frac{\partial^2 A^0}{\partial z^2}\right)-\mathrm{Da}(A^0 b+aB^0)-\psi\frac{\partial A^0}{\partial z}, \quad (20)$$

$$\frac{\partial b}{\partial t}=D_B\left(\frac{\partial^2 b}{\partial z^2}-k^2 b\right)+\frac{dD_B}{dB^0}\left(2\frac{\partial B^0}{\partial z}\frac{\partial b}{\partial z}+b\frac{\partial^2 B^0}{\partial z^2}\right)-\mathrm{Da}(A^0 b+aB^0)-\psi\frac{\partial B^0}{\partial z}, \quad (21)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t}=D_C\left(\frac{\partial^2 c}{\partial z^2}-k^2 c\right)+\frac{dD_C}{dC^0}\left(2\frac{\partial C^0}{\partial z}\frac{\partial c}{\partial z}+c\frac{\partial^2 C^0}{\partial z^2}\right)+\mathrm{Da}(A^0 b+aB^0)-\psi\frac{\partial C^0}{\partial z}, \quad (22)$$

с граничными условиями:

$$z=\pm H:\ \phi=0,\ \psi=\frac{\partial\psi}{\partial x}=0,\ a=0,\ b=0,\ c=0, \quad (23)$$

$$x=0,L:\ \phi=0,\ \psi=\frac{\partial\psi}{\partial x}=0,\ a=0,\ b=0,\ c=0 \quad (24)$$

и начальными условиями:

$$t=0,\ z<0:\ \phi=0,\ \psi=\psi_0,\ a=0,\ b=0,\ c=0, \quad (25)$$

$$t=0,\ z\geq 0:\ \phi=0,\ \psi=\psi_0,\ a=0,\ b=0,\ c=0. \quad (26)$$

Замкнутая спектрально-амплитудная задача включает в себя подзадачу для определения амплитуд возмущений функции тока, завихренности и концентраций возмущений (18)–(26), подзадачу для нахождения основного состояния (7)–(10) и (14)–(16), а также законы диффузии (11). Все эти уравнения должны решаться совместно.

Нестандартной особенностью полученной спектрально-амплитудной задачи является нестационарный характер не только самих амплитуд возмущений, но и основного состояния. Это следствие свойства необратимости процессов в исходной динамической системе, которое возникает из-за того, что реакция протекает в закрытом реакторе и свежие реагенты в ходе эволюции не поступают. Подробное обсуждение методов решения таких задач можно найти в работе [Tan, Homsy, 1986]. Существует два основных метода определения устойчивости нестационарных непериодических течений. Первый метод, который получил в англоязычной литературе название *quasi-steady state approximation* (QSSA), предполагает, что в каждый фиксированный момент времени основное состояние является стационарным и рассматривает задачу устойчивости этого «замороженного» состояния по отношению к растущим возмущениям. Таким образом, время здесь выступает дополнительным параметром спектрально-амплитудной задачи. Второй метод, *initial value problem* (IVP), предложен в работе [Tan, Homsy, 1986]. Он представляет собой разновидность задачи Коши — простое интегрирование спектрально-амплитудных уравнений для возмущений совместно с динамически меняющимся основным состоянием, начиная с некоторых начальных условий. Было показано, что оба метода дают близкие результаты, за исключением короткого начального периода времени, когда функции, описывающие основное состояние, быстро меняются. В нашем случае проблема начального времени решается сама собой, так как критически растущие возмущения появляются только спустя некоторое время после начала эволюции, которое заведомо больше времени релаксации в методе IVP.

Таким образом, общая схема численного анализа выглядит следующим образом. Уравнения, как для основного состояния, так и возмущений, дикретизируются по пространству. Затем для фиксированного значения волнового числа обе системы интегрируются во времени методом конечных разностей. В процессе эволюции вычисляется инкремент λ, определяющий рост или затухание возмущения во времени. Как известно, инкремент возмущений в задачах об устойчивости нестационарных течений не может быть однозначно определен, как это было в классе стационарных задач. Теперь эта величина зависит как от времени, так и пространства.

Поэтому может быть определен достаточно произвольно. В наших численных расчетах было обнаружено, что определение инкремента не сказывается существенно на конечных результатах вычислений. Ранее авторы работы [Tan, Homsy, 1986] пришли к подобному же заключению. Таким образом, в ходе эволюции рассматриваемой системы вычисляется величина $\lambda(t)$, которая фактически имеет смысл показателя Ляпунова:

$$\lambda(t) = \frac{1}{N}\sum_{j=1}^{N}\frac{1}{\Delta t}\ln\frac{a_j(t+\Delta t, z^i_{\min})}{a_j(t, z^i_{\min})}, \tag{27}$$

где Δt — шаг интегрирования, N — количество независимых реализаций (обычно 10–15). Каждое независимое интегрирование системы начиналось со случайных начальных условий для возмущений функции тока ψ_0 с амплитудой не более 10^{-4}. Наступление неустойчивости (или выход из нее) фиксировалось по изменению знака величины $\lambda(t)$, усредненной по нескольким реализациям. Возмущения концентрации кислоты, используемые в определении (27), вычисляются в минимуме профиля плотности на рис. 2, т. е. на дне условной потенциальной ямы каждой области неустойчивости. Из сказанного выше в подпараграфе 3.2 ясно, что задача устойчивости может быть рассмотрена в рамках четырех различных сценариев развития неустойчивости:

1) инкремент $\lambda(t)$ вычисляется в нижней зоне неустойчивости $z = z^1_{\min}$, а возмущения из верхнего слоя игнорируются: $a(t, z) = 0$ для всех $z > z_{\max}$ (см. рис. 2, *б*);
2) инкремент $\lambda(t)$ вычисляется в верхней зоне неустойчивости $z = z^2_{\min}$, а возмущения из нижнего слоя игнорируются: $a(t, z) = 0$ для всех $z < z_{\max}$ (см. рис. 2, *б*);
3) инкремент $\lambda(t)$ вычисляется в нижней зоне неустойчивости $z = z^1_{\min}$, а возмущения вычисляются для всей области $-H \le z \le H$;
4) инкремент $\lambda(t)$ вычисляется в верхней зоне неустойчивости $z = z^2_{\min}$, а возмущения вычисляются для всей области $-H \le z \le H$.

Случаи 3 и 4 отличаются от 1 и 2 тем, что здесь учитывается взаимное влияние возмущений друг на друга в ходе эволюции системы. Такое влияние неизбежно происходит, так как центральная область с устойчивой стратификацией по плотности, ограниченная полосой $z_{\max} < z < z^2_{\min}$ (рис. 2, *б*), является проницаемой для диффузии реагентов.

Результаты расчетов спектрально-амплитудной задачи устойчивости представлены на рис. 4. Первые два фрагмента показывают независимое развитие хемоконвективных неустойчивостей соответственно в верхнем (рис. 2, *а*) и нижнем (рис. 2, *б*) карманах плотности таким образом, чтобы другая неустойчивость не могла оказывать влияние (сценарий 1 и 2).

Рис. 4 показывает, что возникающие неустойчивости весьма отличаются друг от друга по характеристикам. Неустойчивость в верхнем кармане плотности начинает развиваться в момент времени $t_2 \approx 0.253$ с критическим волновым числом в момент появления $k_2 \approx 0.75$ (рис. 4, *а*), в то время как неустойчивость в нижнем кармане плотности возникает при $t_1 \approx 0.156$, а критическое волновое число у нее больше: $k_1 \approx 4.4$. Это легко объясняется разной шириной карманов плотности, которые в свою очередь являются результатом определенного сочетания свойств реакции и диффузии реагентов. В дальнейшем волновые числа неустойчивостей, отвечающие наиболее быстро растущим возмущением, меняются в сторону более длинных волн, так как полосы неустойчивости расплываются из-за диффузии (рис. 2, *а*). Однако характерная длина волны нижней неустойчивости меняется быстрее: рис. 4, *в* показывает, что уже к моменту времени $t = 1$ волновое число уменьшается почти вдвое.

Интересный результат демонстрирует рис. 4, *г*, на котором хорошо видно сильное влияние неустойчивости выше фронта реакции на эволюцию неустойчивости в нижнем кармане плотности: за счет взаимодействия спектр неустойчивых волн последней существенно расширяется в область более длинных волн. Это особенно хорошо видно в сравнении с расчетом, где взаимо-

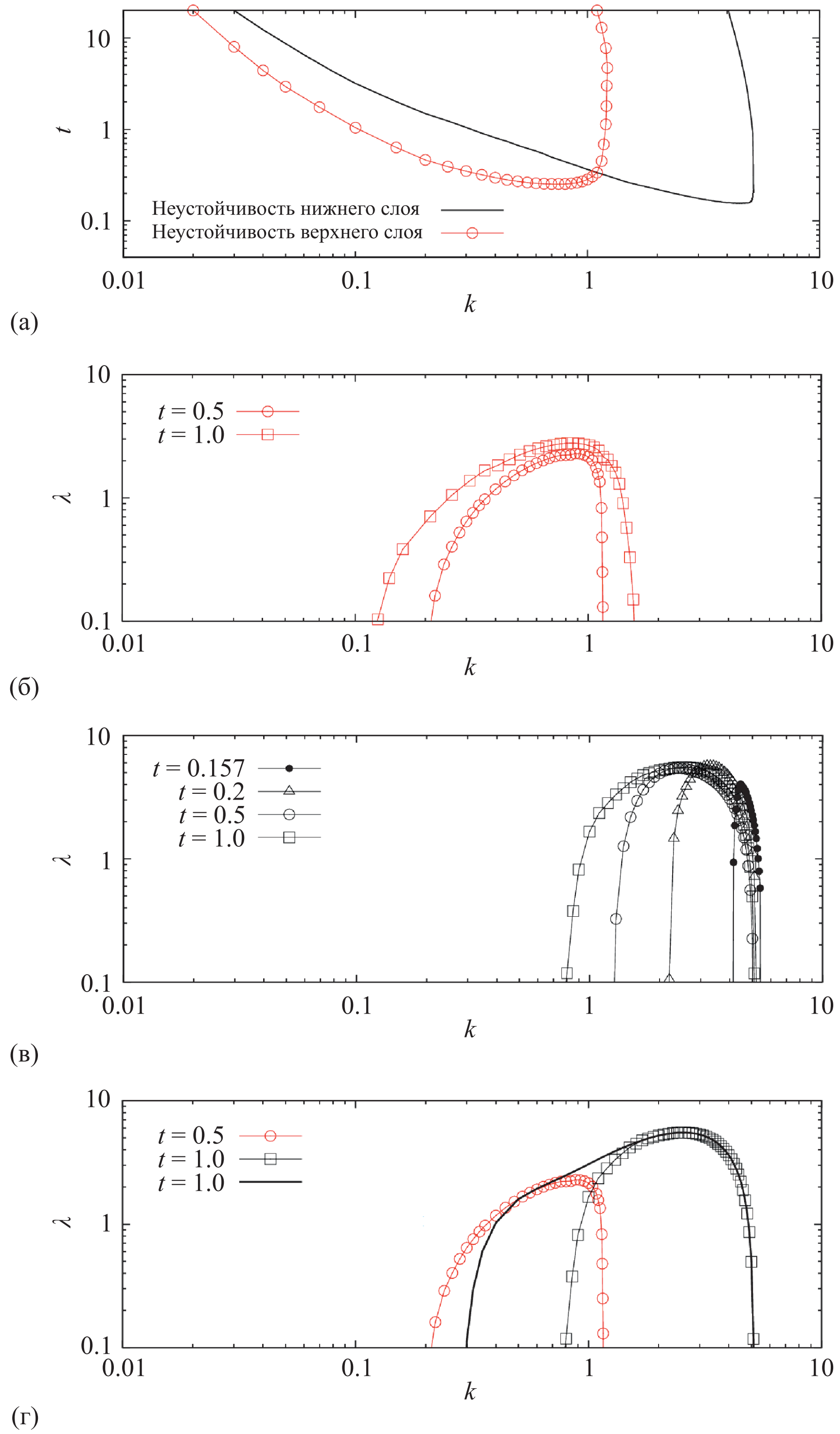


Рис. 4. (а) Нейтральные кривые для двух хемоконвективных неустойчивостей, возникающих в верхнем (отмечено красным) и нижнем (отмечено черным) карманах плотности. Инкремент неустойчивости $\lambda(t)$ как функция волнового числа k для разных моментов времени: (б) конвективная неустойчивость, развивающаяся в верхнем кармане плотности $z^2_{\min} < z < H$ при отсутствии внешнего влияния; (в) конвективная неустойчивость, развивающаяся в нижнем кармане плотности $z^1_{\min} < z < z_{\max}$ при отсутствии внешнего влияния; (г) конвективная неустойчивость в верхнем и нижнем карманах, развивающаяся при взаимном влиянии друг на друга посредством диффузионного контакта через устойчивую прослойку $z_{\max} < z < z^2_{\min}$

действие неустойчивостей с самого начала было исключено. Интересно отметить, что обратное влияние практически отсутствует. Это можно объяснить тем, что кислота, заполняющая верхний слой, имеет очень высокое значение коэффициента диффузии, что позволяет служить ей идеальным переносчиком возмущения из верхнего кармана плотности в нижний. Обратный процесс мог бы поддерживаться диффузией основания. Однако скорость диффузии гидроксида натрия гораздо меньше, и он успевает прореагировать быстрее, чем достигает верхней полосы неустойчивости.

Таким образом, в пространстве сплошной среды складываются идеальные условия для перехода Рюэля–Такенса, связанного с разрушением квазипериодичности. Во-первых, в системе возникает квазипериодическая пространственная структура. Она формируется в нижнем кармане плотности и имеет при рождении характерную длину волны $2\pi/k_1$, а также испытывает модуляцию вдоль горизонтальной оси со стороны неустойчивости верхнего слоя с длиной волны $2\pi/k_2$. Во-вторых, очевидно, что длины волн возмущений являются независимыми параметрами, так как являются продуктом сложного взаимодействия реакции и концентрационного-зависимой диффузии. Вполне ожидаемо, что при определенных условиях отношение длин волн k_1/k_2 будет иррациональным числом. В-третьих, рис. 4 хорошо показывает, что характерные длины волн возмущений эволюционируют во времени по-разному, что связано с неравноценным влиянием их друг на друга. Это означает, что отношение k_1/k_2 будет меняться со временем, что неизбежно должно приводить к бифуркациям квазипериодического пространственного режима. Все эти предположения могут быть подтверждены только в рамках полноценного численного решения полной нелинейной задачи (2)–(11).

4. Нелинейная динамика

4.1. Численный метод

Численное решение задачи (2)–(11) осуществлялось с помощью метода конечных разностей. Вообще говоря, большое значение числа Шмидта дает возможность отбросить в уравнении (3) левую часть уравнения. С точки зрения вычислительной процедуры, однако, проще и эффективнее решать нестационарное уравнение движения, чем производить итерирование в ходе решения уравнения Пуассона. Поэтому нелинейное слагаемое в (3) не отбрасывалось, хотя большое значение числа Шмидта накладывает особое условие на величину шага по времени. Таким образом, использовалась явная схема, для обеспечения устойчивости которой шаг по времени вычислялся по формуле

$$\Delta t = \frac{\Delta x^2}{2(2 + \max(|\Psi|, |\Phi|))}. \tag{28}$$

Точность интегрирования уравнения Пуассона (2) составляла 10^{-4}. На твердых границах использовалось аппроксимация для вихря, обеспечивающая второй порядок точности. Например, на горизонтальных границах использовалась следующие формулы:

$$\Phi(x,-H) = -\frac{1}{2\Delta z}(\Psi(x,-H+2\Delta z) - 8\Psi(x,-H+\Delta z)), \tag{29}$$

$$\Phi(x,H) = \frac{1}{2\Delta z}(\Psi(x,H-2\Delta z) - 8\Psi(x,H-\Delta z)). \tag{30}$$

Расчеты производились на однородной сетке, в которой квадратная область со стороной 1 аппроксимировалась сеткой 6×6 узлов. Такое разрешение было выбрано на основании предыдущего опыта численного моделирования хемоконвективных структур в подобной геометрии

[Bratsun et al., 2016]. В качестве начального условия задавалось случайное распределение поля функции тока с амплитудой не более 10^{-3}. Область интегрирования соответствовала аспектному соотношению сторон в эксперименте.

Основная проблема численного расчета заключалась в том, что моделируется квазипериодическая пространственная структура. Если квазипериодическое поведение по времени разрешается с помощью достаточно широкого расчетного окна по времени, то в пространственном случае это накладывает жесткое условие на пространственные масштабы рассматриваемой области. Основные вычисления проводились на сетке 625×201 узлов в области $H = 20$, $L = 125$ (125 на 40 единиц безразмерной длины). Такой выбор сетки гарантирует $2^9 = 512$ точек для применения алгоритма быстрого преобразования Фурье. Кроме того, необходимо учитывать, что часть данных на концах последовательности неизбежно должна быть отброшена из-за краевых эффектов. Конечно, для того, чтобы сделать вывод о конкретном сценарии разрушения квазипериодического движения в рамках теоремы Афраймовича–Шильникова [Afraimovich, Shilnikov, 1991], необходимо рассмотреть систему, гораздо более протяженную по горизонтальной оси. Однако численное интегрирование задачи (2)–(11) на сетке с разрешением 1250×201 и выше на вычислительных мощностях, которыми располагает автор, требует нереально большего расчетного времени.

4.2. Результаты численного моделирования

На рис. 5 и 6 представлены результаты численного расчета задачи (2)–(11) с помощью метода конечных разностей. На рис. 5 показана временная эволюция поля плотности $\rho(t, x, z)$, а на рис. 6 — поле функции тока $\psi(t, x, z)$. Опишем основные этапы нелинейной динамики рассматриваемой системы. На первом фрагменте эволюции для момента времени $t = 0.1$ основное состояние реакции–диффузии является абсолютно устойчивым, жидкость находится в состоянии механического равновесия. При этом хорошо видно, что у поля плотности возникло две области с потенциально неустойчивой стратификацией. Одна из них располагается выше фронта реакции, а другая — ниже. Эти наблюдения находятся в хорошем согласии с результатами расчета динамики основного состояния (14)–(16) и анализом его устойчивости в рамках линейного анализа (рис. 4).

На следующем фрагменте при $t = 0.5$ видно, как в нижней полосе неустойчивой стратификации возникает хемоконвективная неустойчивость, которая представляет собой идеальную периодическую систему конвективных ячеек, которая разделяет область повышенной кислотности (при $z > z_{\max}$) и область практически нулевой кислотности (при $z < z^1_{\min}$).

Таким образом, конвективные ячейки представляют собой типичный продукт самоорганизации системы, которая порождает эффективную для перемешивания реагентов структуру в полосе $z^1_{\min} \le z \le z_{\max}$. При $t = 0.5$ волновое число хемоконвективного паттерна примерно равно $k_1 \approx 2.46$, что находится в хорошем согласии с результатами линейной теории (рис. 4, *в*).

Следующий — третий — фрагмент на рис. 5 и 6 соответствует моменту эволюции $t = 5$. К этому времени в верхней части области интегрирования развивается еще одна неустойчивость, которая имеет волновое число $k_2 \approx 0.5$. Верхняя периодическая система конвективных вихрей приводит к пространственной модуляции уже сформировавшейся нижней структуры с характерной длиной волны $2\pi/k_2$. Физическая причина появления квазипериодичности заключается в формировании в верхней области периодической системы конвективных вихрей, которые приводят к фокусированию вертикального массопереноса кислоты между соседними вихрями. Эта система подпитывает только часть пальчиковых структур в нижнем кармане плотности и позволяет им расти быстрее соседей. На фрагментах $t = 5$ и 10 рис. 5 и 6 ясно видна квазипериодическая структура в нижней полосе неустойчивости. Дальнейшая эволюция системы, очевидно, приводит к ее разрушению (рис. 5, $t = 15$).

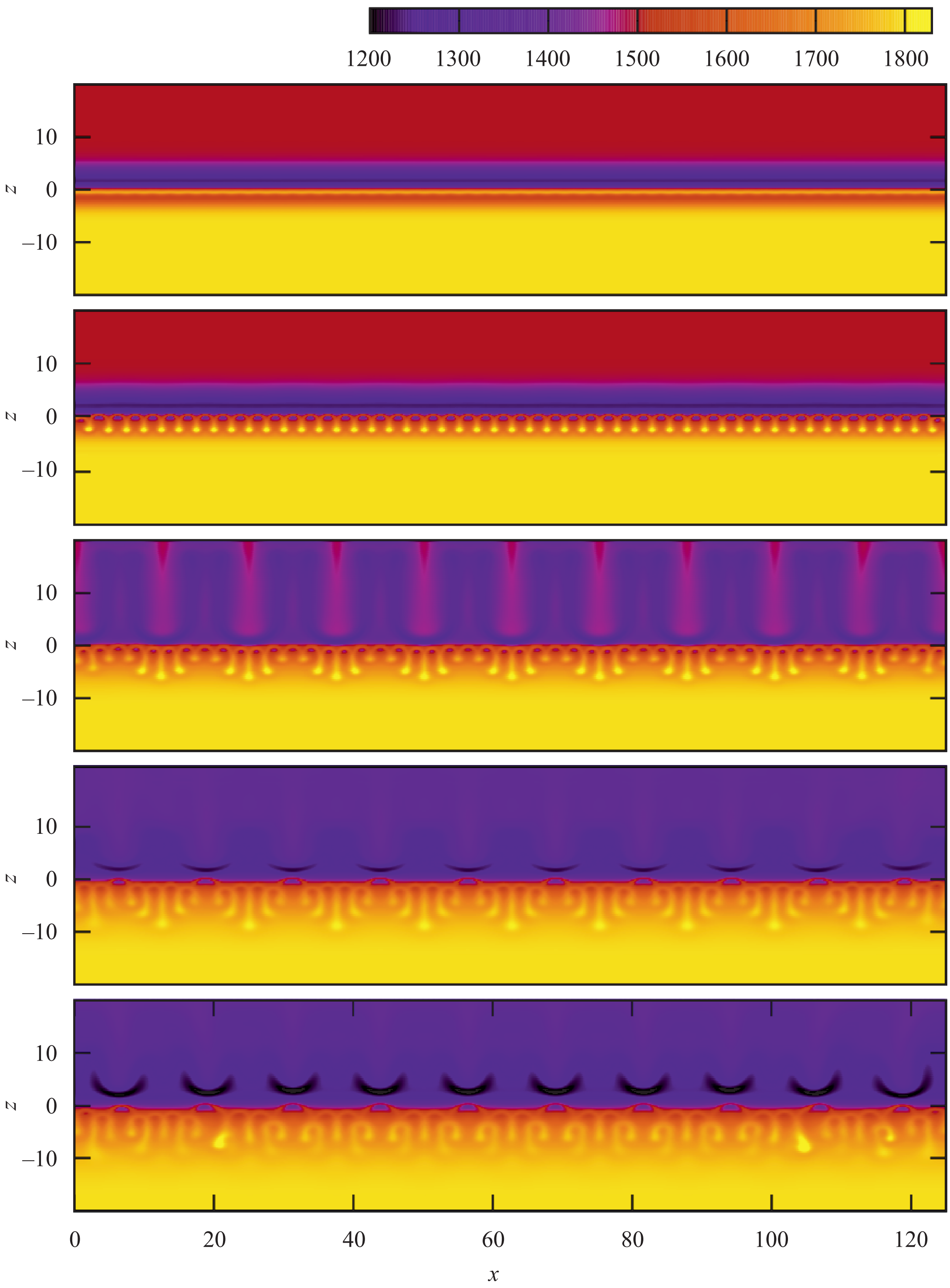


Рис. 5. Эволюция поля безразмерной плотности $\rho(t, x, z)$, демонстрирующая формирование и постепенный распад квазипериодической хемоконвективной структуры в нижнем кармане плотности, находящейся в диффузионном взаимодействии с неустойчивостью верхнего слоя. Поля получены в результате численного расчета нелинейной задачи (2)–(11) методом конечных разностей. Фрагменты сверху вниз соответствуют моментам времени $t = 0.1, 0.5, 5, 10, 15$. Область интегрирования: $0 \le x \le 125$, $-20 \le z \le 20$

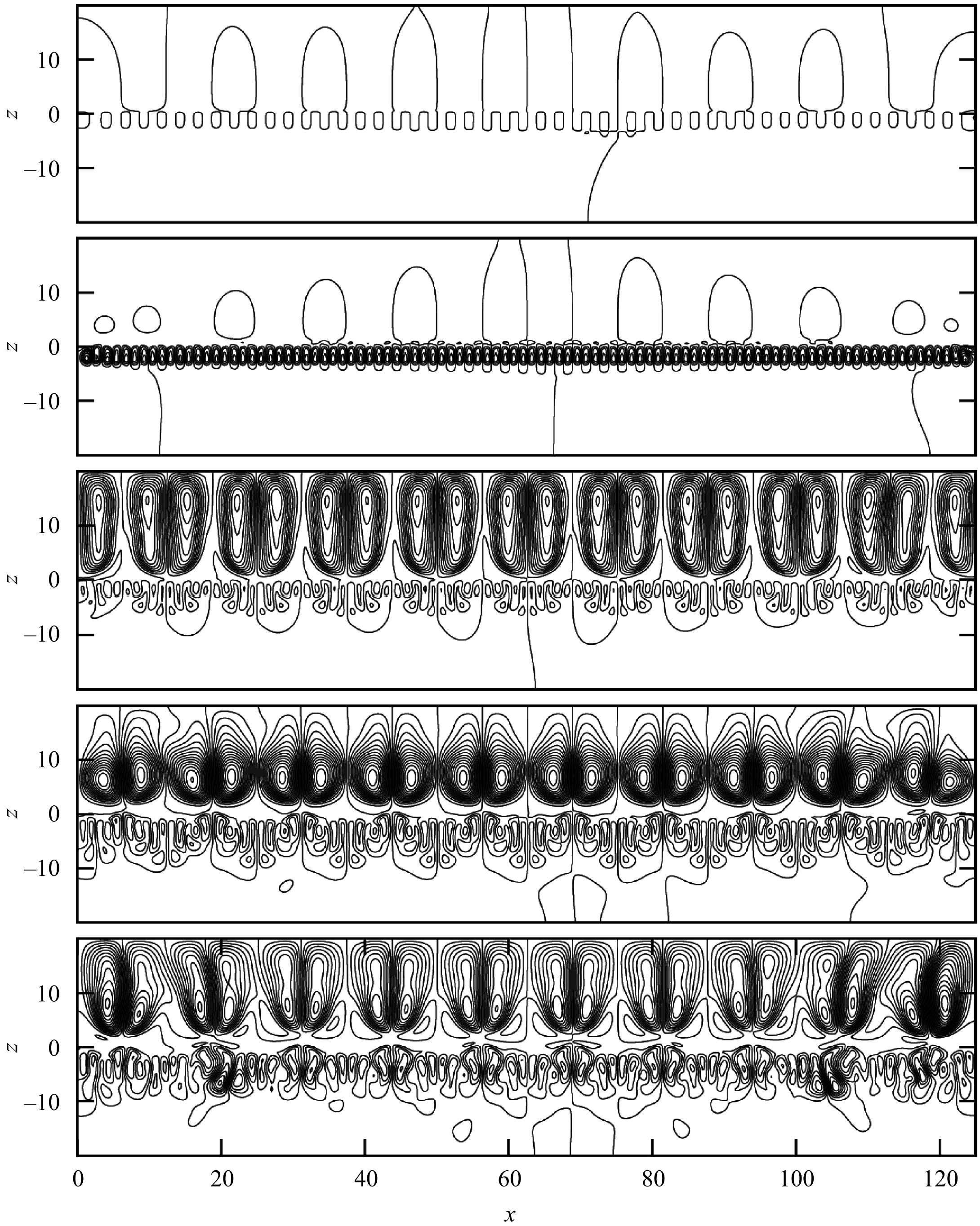


Рис. 6. Эволюция поля безразмерной функции тока $\psi(t, x, z)$, демонстрирующая формирование и постепенный распад квазипериодической хемоконвективной структуры в нижнем кармане плотности, находящейся в диффузионном взаимодействии с неустойчивостью верхнего слоя. Поля получены в результате численного расчета нелинейной задачи (2)–(11) методом конечных разностей. Фрагменты сверху вниз соответствуют моментам времени $t = 0.1, 0.5, 5, 10, 15$. Область интегрирования: $0 \le x \le 125$, $-20 \le z \le 20$

4.3. Метод восстановления фазового портрета

Как известно, одним из наиболее эффективных методов исследования свойств произвольной динамической системы является рассмотрение ее свойств в фазовом пространстве состояний. При изменении состояния динамической системы со временем изображающая точка также сдвигается и описывает в фазовом пространстве кривую, называемую фазовой траекторией. Исследование поведения динамической системы при таком подходе сводится к изучению топологических свойств объектов, возникающих при движении изображающей точки, и выяснению зависимости этих свойств от значений физических параметров системы.

Для построения эффективного фазового пространства квазипериодической хемоконвективной структуры применим метод запаздывания [Packard et al., 1980]. Идея метода чрезвычайно проста. Предположим, что при измерении через одинаковые интервалы времени Δt некоторой переменной $\xi(t)$ динамической системы была получена последовательность из N точек: $\xi_1, \xi_2, \ldots, \xi_N$. Тогда, чтобы сконструировать эффективное фазовое пространство размерности 2, первая точка откладывается против второй, вторая против третьей и т. д., то есть x_i рассматривается как функция от x_{i+n}, где n определяет время запаздывания $\tau = n\Delta t$. Описанная процедура легко может быть обобщена на случай построения пространства большей размерности. Метод имеет важную особенность: если время запаздывания τ выбрано неудачно, то между отдельными направлениями фазового пространства возникает сильная корреляция, которая существенно искажает фазовый портрет. Хотя выбор n не влияет на топологию полученного аттрактора, аккуратный подбор этого параметра является важным, так как при неудачном выборе этого параметра аттрактор может быть настолько сжат по одним направлениям и растянут по другим, что дальнейшее исследование его свойств становится практически невозможным. Необходимо подобрать время запаздывания таким, чтобы искажения были минимальны.

Как строго доказано в работе [Takens, 1981], фазовый портрет, восстановленный методом запаздывания, топологически эквивалентен действительному фазовому портрету исходной физической системы. Таким образом, этот метод позволяет восстановить характерный динамический режим конвекции в фазовом пространстве всего по одной реализации по времени.

Важным дополнением метода запаздывания является метод разложения на сингулярные значения (SVD), предложенный в работе [Broomhead, King, 1986]. Проблема в том, что в методе запаздывания единственная реализация процесса во времени проектируется на произвольный базис. С помощью метода SVD прежде всего формируется матрица траекторий $M \times N$, столбцами которой являются M-мерные векторы эффективного фазового пространства, сконструированного методом запаздывания. Заметим, что M может быть произвольным, но должно быть достаточно большим, чтобы описывать наименьшую частоту в исходном сигнале. Далее производится стандартное разложение матрицы траекторий на сингулярные значения и соответствующие им сингулярные векторы. Последние образуют «собственный» базис, на который и проектируется исходный сигнал. Вся процедура напоминает приведение механического тела к главным осям инерции, только преобразование это осуществляется в M-мерном фазовом пространстве. В сконструированном таким образом собственном фазовом пространстве сингулярные значения, по сути, выступают весовыми характеристиками интенсивности движения изображающей точки фазовой траектории в соответствующем направлении пространства. Если теперь отложить все сингулярные значения в порядке убывания, то окажется, что только несколько из них (скажем, L) значительно выделяются. Это и есть подпространство реальных фазовых движений изображающей точки. Остальные же $M - L$ значения лежат практически на одной линии и соответствуют подпространству шума. Таким образом, естественным путем определяется размерность вложения L, то есть минимальная размерность, в которую возможно поместить аттрактор. Она же является оценкой сверху размерности аттрактора. Кроме того, отсекаются лишние размерности, связанные с тем, что реальная физическая система всегда шумит. Резкие изменения размерности вложения при изменении управляющего параметра естественным образом отражают перестройку течения и дают еще одну опосредованную методику для определения основных бифуркаций в системе.

4.4. Исследование свойств «пространственного» аттрактора

Исследуем свойства квазипериодического пространственного режима, который формируется в нижней полосе неустойчивости. Для этого будем считать координату x новым эффективным временем. Чтобы получить переменную, однозначно характеризующую динамический процесс, показанный на рис. 5 и 6, проведем усреднение плотности в полосе нижнего кармана плотности:

$$P(t,x)=\frac{1}{(z_{\max}-z_{\min}^{1})}\int_{z_{\min}^{1}}^{z_{\max}}\rho(t,x,z)\,dz. \qquad (31)$$

Таким образом, в результате пространственной дискретизации задачи (2)–(11) и последующим ее решением на каждом шаге по времени получаем вектор $P(t, 1)$, $P(t, 2)$, …, $P(t, 625)$. Нетрудно заметить, что время здесь играет роль управляющего параметра. На самом деле к этому выводу можно было прийти и раньше — изучая рис. 4, *а*. На этом рисунке время действительно выполняет роль типичного гидродинамического или конвективного параметра, например числа Рейнольдса или Рэлея. На самом деле нам нужны не все 625 значений вектора, так как часть значений необходимо отбросить из-за краевых эффектов.

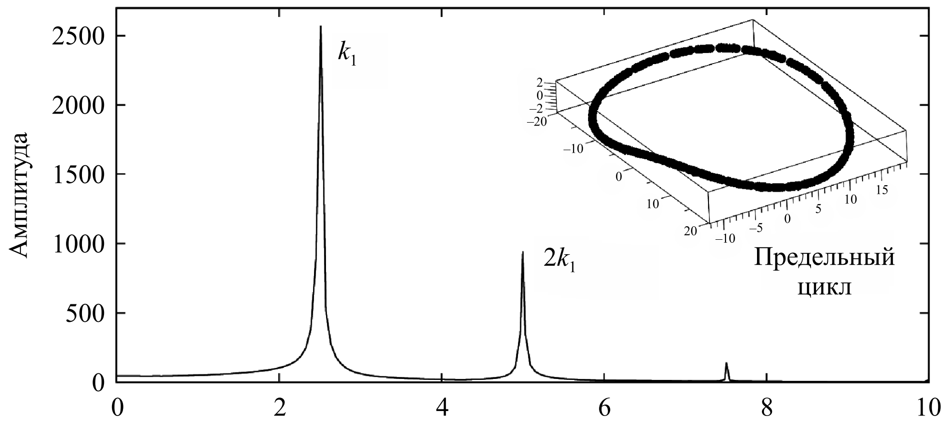
На рис. 7 представлены спектры Фурье, вычисленные по 512 значениям вектора $P(t, x)$ (31), а также фазовые портреты, восстановленные по единственной реализации (31) методом запаздывания и последующей SVD-редукцией эффективного фазового пространства. Фрагменты представлены для трех характерных значений управляющего параметра времени.

Проведем анализ полученных численных результатов. Основное состояние реакции–диффузии, показанное на рис. 5, $t = 0.1$, в рамках построенного эффективного фазового пространства с независимой переменной x может быть интерпретировано как состояние равновесия динамической системы (устойчивый фокус). Рис. 7, *а* наглядно показывает, что уже при $t = 0.5$ в фазовом пространстве возникает предельный устойчивый цикл. Таким образом, переход от основного состояния к системе хемоконвективных ячеек в нижнем кармане плотности происходит благодаря бифуркации Андронова–Хопфа. Следующий фрагмент рис. 7, *б* демонстрирует, что с течением времени в системе происходит вторичная бифуркация Андронова–Хопфа, которая приводит к рождению в фазовом пространстве предельного двумерного тора. Фурье-спектр этого режима при $t = 5$ содержит только такие пики, которые являются линейными комбинациями двух независимых волновых чисел — k_1 и k_2.

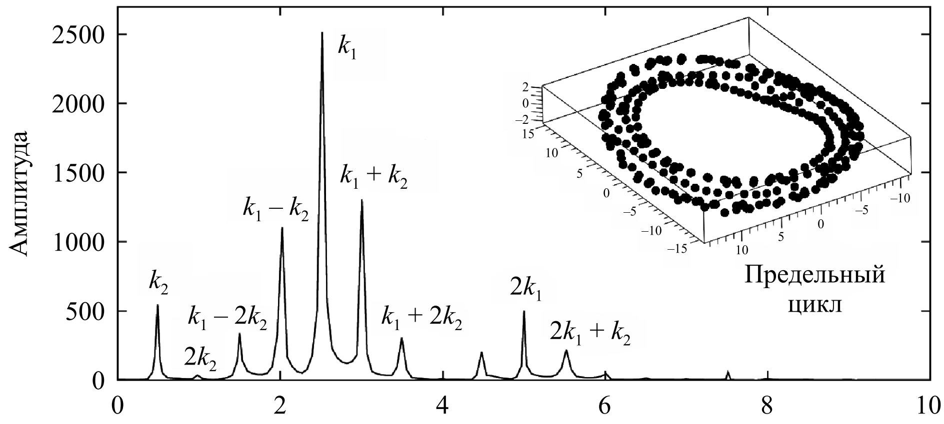
Последний фрагмент на рис. 7, *в* при $t = 15$ показывает, что в конце концов квазипериодический регулярный аттрактор разрушается, уступая место тороподобному хаотическому аттрактору, который характеризуется непрерывным диапазоном возбуждаемых волн в спектре.

4.5. Обсуждение полученных результатов

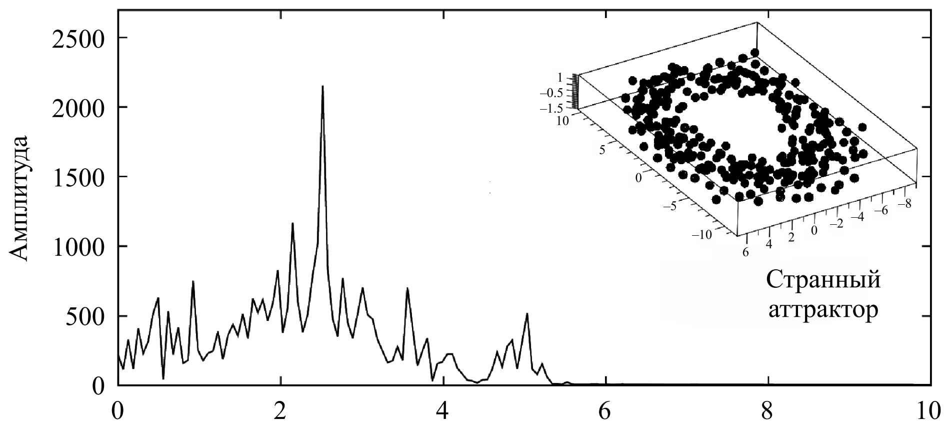
К сожалению, количество точек в сигнале (порядка 500, если исключить краевые эффекты) не позволяет сделать определенные выводы о конкретном сценарии разрушения тора в рамках теоремы Афраймовича–Шильникова [Afraimovich, Shilnikov, 1991; Anishchenko et al., 1993; Afraimovich, Hsu, 2003]. Согласно теореме здесь имеется по крайней мере три варианта развития событий. В каждом из этих случаев на торе сначала возникает резонанс и через касательную бифуркацию появляется пара предельных циклов — устойчивый и неустойчивый (в общем случае может быть не одна такая пара). В рамках первого сценария (*1*) устойчивый цикл может начать каскад удвоения периода, который заканчивается соответствующим странным аттрактором. В рамках второго (*2*) сценария неустойчивый цикл может выдавить устойчивый с поверхности тора и сформировать гомоклиническую поверхность. В этом случае сразу после распада гомоклиники в фазовом пространстве появляется странный аттрактор тороидного типа. В рамках третьего сценария (*3*) переход к хаосу переходит мягко через постепенное возникновение на торе негладкости [Anishchenko et al., 1993].



(а)



(б)



(в)

Рис. 7. Фурье-спектры и восстановленные фазовые портреты развития хемоконвективной неустойчивости в нижнем кармане плотности для трех характерных значений управляющего параметра: (а) пространственно-периодический режим при $t = 0.5$, характеризуемый длиной волны $2\pi/k_1$; (б) пространственный квазипериодический режим при $t = 5$, характеризуемый базовой длиной волны $2\pi/k_1$ и длиной волны внешней модуляции $2\pi/k_2$; (в) пространственно-хаотический режим при $t = 15$, характеризующийся широким диапазоном возбуждаемых волн

В рамках того разрешения, которое было доступно автору, можно, пожалуй, только утверждать, что первый сценарий (*1*) вряд ли реализуется в данной системе. На это указывает отсутствие в спектрах на рис. 7 субгармонических пиков, которые характерны для каскада удвоения периода Фейгенбаума. Что касается сценария (*2*) или (*3*), то разделить их оказывается очень трудно. С одной стороны, в рамках сценария (*2*) переход к хаосу происходит скачком в результате разрушения гомоклинической поверхности, однако вблизи порога странный аттрактор мало отличим от двумерного тора [Bratsun et al., 1995]. С другой стороны, мягкая потеря гладкости тора в сценарии (*3*) происходит при соотношении частот 1:6, но в данном случае мы имеем сравнительно близкое соотношение $0.5 : 2.46 \approx 4.92$.

5. Заключение

В работе впервые предложена математическая модель физической системы, в которой реализуется пространственный сценарий перехода к хаосу через разрушение двумерного тора. Специфика рассматриваемой системы реакции–диффузии–конвекции заключается в том, что благодаря механизму концентрационно-зависимой диффузии в сплошной среде формируются замкнутые области, внутри которых, независимо от остальной части сплошной среды, возникает хемоконвективная неустойчивость. Конвективные течения, возникающие в разных частях системы, тем не менее могут влиять друг на друга посредством обмена диффузионными сигналами. Это приводит к образованию пространственных квазипериодических структур, распад которых происходит по сценарию перехода к хаосу Рюэля–Такенса.

Список литературы (References)

Гершуни Г. З., Жуховицкий Е. М. Конвективная устойчивость несжимаемой жидкости. — М.: Наука, 1972. — 392 с.

Gershuni G. Z., Zhukovitskii E. M. Convective stability of incompressible fluids. — Jerusalem: Keter Publications, 1976. — P. 330. (Russ. ed.: *Gershuni G. Z., Zhukhovitskii E. M.* Konvektivnaya ustoichivost' neszhimaemoi zhidkosti. — Moscow: Nauka, 1972. — 392 p.)

Кузнецов С. П. Динамический хаос (курс лекций). — М.: Изд-во физико-математической литературы, 2001. — 296 с.

Kuznecov S. P. Dinamicheskij haos [Dynamical chaos]. — Moscow: Fizmat literatura, 2001. — 296 p. (in Russian).

Кузнецов С. П. Гиперболические странные аттракторы систем, допускающих физическую реализацию // Известия вузов. ПНД. — 2009. — Т. 17, вып. 4. — С. 5–34.

Kuznecov S. P. Giperbolicheskie strannye attraktory sistem, dopuskajushchix fizicheskuju realizaciju [Hyperbolic strange attractors of physically realizable systems] // Izvestiya VUZ. Applied Nonlinear Dynamics. — 2009. — Vol. 17, iss. 4. — P. 5–34 (in Russian).

Потапов И. С., Волков Е. И. Анализ динамических режимов взаимодействующих синтетических генетических репрессиляторов // Компьютерные исследования и моделирование. — 2010. — Т. 2, № 4. — С. 403–418.

Potapov I. S., Volkov E. I. Analiz dinamicheskix rezhimov vzaimodejstvujushchix sinteticheskix geneticheskix oscilljatorov [Dynamics analysis of coupled synthetic genetic repressilators] // Computer Research and Modeling. — 2010. — Vol. 2, No. 4. — P. 403–418 (in Russian).

Afraimovich V., Hsu S.-B. Lectures on chaotic dynamical systems. — International Press, Somerville, MA, 2003. — P. 353.

Afraimovich V. S., Shilnikov L. P. On invariant two-dimensional tori, their breakdown and stochasticcity // Amer. Math. Soc. Transl. — 1991. — Vol. 149. — P. 201–212.

Almarcha C., Trevelyan P. M. J., Grosfils P., De Wit A. Chemically driven hydrodynamic instabilities // Phys. Rev. Lett. — 2010. — Vol. 104, No. 4. — Art. 044501(4).

Anishchenko V. S., Safonova M. A., Chua L. O. Confirmation of the Afraimovich–Shilnikov torus-breakdown theorem via torus circuits // IEEE Trans. Circuits Syst. — 1993. — Vol. 40. — P. 792–800.

Bratsun D. A., Lyubimov D. V., Roux B. Co-symmetry Breakdown in Problems of Thermal Convection in Porous Medium // Physica D. — 1995. — Vol. 82. — P. 398–417.

Bratsun D. A., Zyuzgin A. V., Putin G. F. Nonlinear Dynamics and Pattern Formation in a Vertical Fluid Layer Heated from the Side // Int. J. Heat and Fluid Flow. — 2003. — Vol. 24, No. 6. — P. 835–852.

Bratsun D., Kostarev K., Mizev A., Mosheva E. Concentration-dependent diffusion instability in reactive miscible fluids // Phys. Rev. E. — 2015. — Vol. 92, No. 1. — Art. 011003(5).

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, No. 6. — P. 575–585.

Bratsun D., Mizev A., Mosheva E., Kostarev K. Shock-wave-like structures induced by an exothermic neutralization reaction in miscible fluids // Phys. Rev. E. — 2017. — Vol. 96, No. 5. — Art. 053106(6).

Bratsun D. A. Spatial analog of the two-frequency torus breakup in a nonlinear system of reactive miscible fluids // Phys. Rev. E. — 2019. – Vol. 100, No. 3 — Art. 031104(5).

Broomhead D. S., King G. P. Extracting qualitative dynamics from experimental data // Physica D. — 1986. — Vol. 20. — P. 217–239.

Crank J. The mathematics of diffusion. — The United States, New York, Oxford, University Press, 1975. — P. 414.

Cross M. C., Hohenberg P. C. Pattern formation outside of equilibrium // Rev. Mod. Phys. — 1993. — Vol. 65, No. 3. — P. 851–1112.

Eckert K., Grahn A. Plume and finger regimes driven by an exothermic interfacial reaction // Phys. Rev. Lett. — 1999. — Vol. 82, No. 22. — P. 4436–4439.

Feigenbaum M. J. Quantitative Universality for a Class of Non-Linear Transformations // J. Stat. Phys. — 1978. — Vol. 19, No. 1. — P. 25–52.

Gondret P., Rabaud M. Shear instability of two-fluid parallel flow in a Hele-Shaw cell // Phys. Fluids. — 1997. — Vol. 9. — P. 3267–3274.

Grebogi C., Ott E., Yorke J. A. Attractors on an N-torus. Quasiperiodicity versus chaos // Physica. — 1985. — Vol. D15. — P. 354–373.

Jensen M. H., Kadanoff L. P., Libchaber A., Procaccia I., Stevens J. Global universality at the onset of chaos: results of forced Rayleigh–Benard experiment // Phys. Rev. Lett. — 1985. — Vol. 55. — P. 439–441.

Lorenz E. N. Deterministic nonperiodic flow // J. Atmos. Sci. — 1963. — Vol. 20, No. 2. — P. 130–141.

Newhouse S., Ruelle D., Takens F. Occurrence of strange Axiom A attractors near quasi-periodic flows on T^m, $m \geq 3$ // Commun. Math. Phys. — 1978. — Vol. 64. — P. 35–40.

Packard N. H., Crutchfield J. P., Farmer J. D., Shaw R. S. Geometry from a time series // Phys. Rev. Lett. — 1980. — Vol. 45. — P. 712–715.

Pomeau Y., Manneville P. Intermittent Transition to Turbulence in Dissipative Dynamical Systems // Commun. Math. Phys. — 1980. — Vol. 74, No. 2. — P. 189–197.

Rongy L., Trevelyan P. M. J., De Wit A. Dynamics of A+B→C reaction fronts in the presence of buoyancy-driven convection // Phys. Rev. Let. — 2008. — Vol. 101, No. 8. — Art. 084503(5).

Ruelle D., Takens F. On the nature of turbulence // Commun. Math. Phys. — 1971. — Vol. 20. — P. 167–192.

Takens F. Detecting strange attractors in turbulence. In: Dynamical Systems and Turbulence // Rand D. A., Young L. S. (eds.). Lecture Notes in Mathematics. — Springer-Verlag, Berlin, 1981. — Vol. 898. — P. 366–381.

Tan C. T., Homsy G. M. Stability of miscible displacements in porous media: Rectilinear flow // Phys. Fluids. — 1986. — Vol. 29. — P. 3549–3556.

Trevelyan P. M. J., Almarcha C., De Wit A. Buoyancy-driven instabilities around miscible A+B→C reaction fronts: a general classification // Phys. Rev. E. — 2015. — Vol. 91, No. 2. — Art. 023001(8).

Ullner E., Zaikin A., Volkov E., Garcıa-Ojalvo J. Multistability and clustering in a population of synthetic genetic oscillators via phase-repulsive cell-to-cell communication // Phys. Rev. Lett. — 2007. — Vol. 99. — Art. 148103(5).

Zalts A., El Hasi C., Rubio D., Urena A, D'Onofrio A. Pattern formation driven by an acid-base neutralization reaction in aqueous media in a gravitational field // Phys. Rev. E. — 2008. — Vol. 77, No. 1. — Art. 015304(5).