水溶液の加熱冷却による 2 層系二重拡散対流†

山根岳志††・中島栄次・吉田正道・宮下 尚

富山大学工学部 物質生命システム工学科, 930-8555 富山市五福 3190

矩形容器内で階段状に 2 層に濃度成層する Na_2CO_3 水溶液を側方から加熱冷却したときに発生する二重拡散対流を対象に, 広い初期浮力比 $N_0=0.54\sim 7.17$ のもと, 感温液晶とポリスチレン粒子を用いた温度場と流れ場の同時可視化実験を行なった。

加熱冷却後, 間もなく熱と溶質の二重拡散により 2 層のセル対流構造が形成され, それは比較的長い擬定常状態を経て崩壊した。崩壊前に界面の波打ち現象が確認されたが, このときの界面近傍の流れ構造, 温度場形状は非常に複雑であり, その現象のスケールは熱レイリー数に依存した。また, 界面崩壊時間は条件により 10~600 分まで変化するが, それは初期浮力比に大きく依存した。さらに, 本結果と溶液・条件が異なる既往の研究結果との間で界面崩壊時間の比較を行ったところ, 2 つ研究で得られた界面崩壊時間は無次元時間 $Fo_m Sc$ を用いて良好に相関できることがわかった。

緒 言

Czochralski 法 (Cz 法) による集積回路基盤用の単結晶材料育成など融液晶析をはじめ, 多成分融液の凝固プロセスでは, 凝固界面において融液内不純物 (結晶に所望の機能性を持たせるために添加する不純物や増粘に含まれる不純物等) の排除つまり溶質再分配, および結晶化潜熱の放出が起こるため, 液相内において二重拡散対流が発生する場合がある (Ostrach, 1983)。この詳細が多くの凝固を対象とした研究 (Thompson and Szekely, 1988; Christenson and Incropera, 1989; Nishimura *et al.*, 1994) により調べられ, さらに発生した二重拡散対流は液相内に不連続な密度成層 (多重セル) を形成し得ること, その場合は特に結晶材料の内部構造や結晶成長速度に大きく影響し, 品質の低下をもたらす可能性があることが指摘された。

以来, セル構造を伴う二重拡散対流が大きな関心事項になっており, 多重セル構造を単純化させた矩形容器内の 2 層系二重拡散対流の研究が盛んに行なわれている。例えば, Bergman and Ungun (1988) は NaCl 水溶液の 2 層の階段状濃度成層に水平温度差を与えた場合について, 初期浮力比 $N_0=0.59$ および 1.17 のもとで温度場と流れ場の可視化実験を行い, 複雑な対流挙動を明らかにした。また, 無次元層混合時間が熱レイリー数 Ra_t と N_0 に依存する結果を得ている。Nishimura *et al.* (1999) は同様な系について, 小さな浮力比条件 $N_0=0.441\sim 0.882$ を対象とし, 実験的に系の対流構造と混合過程の検討を行った。その結果, 混合時の対流挙動は Ra_t と N_0 に依存して変化し, 無次元混合時間が Ra_t と N_0 の関数として記述されることを示した。また, 同様な系における数値シミュレーションが Hyun and Bergman (1995) や Kamakura and Ozoe (1995) により行われているが, いずれも実験結果との比較検討を行っていない。

上記を含め最近の研究動向は二重拡散対流が持つ興味深い不安定挙動に大きく関連し, そのほとんどで不安定要素の高い系 (例えば低初期浮力比や低ルイス数の系) が選ばれている。一方, セル構造の安定度の高い条件 $N_0=2.7\sim 27$ について, 擬定常状態の

セル構造を検討した Wirtz and Reddy (1976) の報告もあるが, 層混合過程に関する検討はなされていない。

そこで本研究では依然として基礎的知見が十分でない初期浮力比条件 $N_0=0.54\sim 7.17$ を対象とし, 矩形容器内の Na_2CO_3 水溶液中で発生する 2 層系二重拡散対流の温度場と流れ場の同時可視化を行ない, 二重拡散対流の発生から消失に伴う対流挙動と温度分布の時間的変化の詳細について検討した。また, 実験条件が界面崩壊時間に及ぼす影響について検討し, 本研究の界面崩壊時間と Nishimura *et al.* (1999) が NaCl 水溶液で得たそれとの相関を行なった。

1. 実験装置および方法

1.1 実験装置

Fig. 1 に実験装置の概略図を示す。本研究で用いたテストセクションは高さ $H=44$ mm, 幅 $L=40$ mm, 奥行き $W=30$ mm (アスペクト比 $A=1.1$) のアクリル製矩形容器である。なお側壁は銅製で, 左が冷却壁, 右が加熱壁である。テストセクションは内部に 2 層の濃度成層が作れるよう, 中央高さ ($y=H/2$) に薄いプラスチック板 (0.5 mm) を水平に挿入可能である。加熱, 冷却面はそれぞれ加熱室, 冷却室に接しており, テストセクション前面を除く試験部全体は厚さ 60 mm の発泡スチロールによって断熱されている。前面の断熱には 60 mm のアクリルブロックを使用した。

冷却室に接続された冷却用恒温槽, 加熱室に接続された加熱用恒温槽, そして両方に接続された初期温度用恒温槽から一定温度の水を冷却, 加熱室に循環させることにより側壁の温度制御を行なった。壁面温度の測定には, 壁面に埋め込まれた 0.1 mm のクロメル-アルメル熱電対を用いた。

1.2 実験方法

本研究では Na_2CO_3 水溶液を使用した。テストセクションの中央高さに仕切り板を挿入し, 仕切り板の下に高濃度, 上に低濃度の溶液を封入する。このとき両側壁温度は初期温度 30°C とし, このまま定常な内部状態となるまで静置する。定常状態確認後, 仕切り板を静かに引き抜き, 溶液を 2 層に濃度成層させ, 再び 10 分間放置する。これは仕切り板の引き抜きにより上下層境界付近に生じる溶液の微少な速度変動を鎮静化させるためである。なお,

† 1999 年 12 月 3 日受理

†† yama@eng.toyama-u.ac.jp

1. Test section 2. Styrofoam insulation 3. Cooling wall
4. Heating wall 5. Cooling chamber 6. Heating chamber
7. Refrigeration unit 1 8. Refrigeration unit 2
9. Refrigeration unit 3 × Measurement point of temperature

Fig. 1 Experimental apparatus

実験開始前の放置時間を60分としたときも界面崩壊時間に有意の差は認められなかった。従って実験前に起こる溶質の拡散はほとんど無視できるといい、その後、側方から加熱冷却することにより実験を開始 ($t=0$) した。

本実験では感温液晶とポリスチレン粒子を用いて可視化実験を行った。感温液晶は29~40℃の温度域で赤、黄、緑、青と呈色し、それ以外の温度では無呈色である。粒径10~20 μm 、比重1.02であり、温度変化に対する時定数は0.2秒である。一方、ポリスチレン粒子を懸濁した流れを写真撮影すると明瞭な流跡線が得られるが、本実験範囲において流れは層流であり、また露出時間(1秒)が流れ変化の時間スケールに比べて短いためこれを流線とみなして差し支えない。粒径は70~110 μm 、比重は1.04である。感温液晶、ポリスチレン粒子の懸濁量はそれぞれ0.002 wt%, 0.04 wt%とした。なお、実験における内部現象はごく前後壁面近傍および上下層流体の混合時を除いて二次性が保たれているため、テストセクション奥行き方向中間の xy 垂直断面の写真撮影を行った。

2. 実験結果および考察

2.1 実験条件

本研究ではTable 1に示すような条件を設定し、温度場と流れ場の同時可視化実験を行った。なお N_0 ($=Ra_c/Ra_t=\beta_c\Delta c_0/\beta_t\Delta T$) は初期浮力比であり、二重拡散界面の安定性を大きく支配するパラメータである。

いずれも初期温度は30℃、平衡濃度は3.8 wt%であり、このとき $Pr=6.62$, $Sc=1,388$ である。また同表に実験結果として界面崩壊時間 t_m も併せて示してある。なお界面崩壊時間とはその条件において上層流体と下層流体とが混合し始めたと判断された時間である。

2.2 温度場・流れ場の可視化実験結果

本実験系における密閉容器内2層系二重拡散対流の発生から消失までのプロセスについて、初期濃度差 $\Delta c_0=0.8$ wt%, 加熱冷却壁間温度差 $\Delta T=15^\circ\text{C}$ 、初期浮力比 $N_0=1.43$ の条件 (run 11) における温度場と流れ場の可視化実験結果を例に取り上げ説明する。

Fig. 2に実験で得られた可視化写真を示す。各写真の下に示した数字は加熱冷却開始よりの時刻 t である。なお、写真撮影の際の露出時間は1秒とした。

2.2.1 2層系二重拡散界面の形成と擬定常状態 均一温度30℃にある2層の階段状濃度成層の右側を加熱、左側を冷却すると上下各層の両側壁近傍において熱浮力による対流が発生し、反

Table 1 Experimental condition

run No.	Δc_0 [wt%]	ΔT [°C]	$Ra_c \times 10^{-7}$ [-]	$Ra_t \times 10^{-7}$ [-]	N_0 [-]	t_m [min]
1	0.4	3.0	2.29	0.64	3.58	270
2	0.4	4.5	2.29	0.96	2.39	197
3	0.4	6.0	2.29	1.28	1.79	141
4	0.4	15.0	2.29	3.20	0.72	27
5	0.4	20.0	2.29	4.27	0.54	10
6	0.6	10.0	3.44	2.13	1.61	120
7	0.6	15.0	3.44	3.20	1.07	45
8	0.8	6.0	4.59	1.28	3.59	271
9	0.8	7.5	4.59	1.60	2.87	261
10	0.8	10.0	4.59	2.13	2.15	180
11	0.8	15.0	4.59	3.20	1.43	96
12	0.8	20.0	4.59	4.27	1.07	63
13	1.2	7.5	6.88	1.60	4.30	410
14	1.2	10.0	6.88	2.13	3.22	275
15	1.2	15.0	6.88	3.20	2.15	166
16	1.2	20.0	6.88	4.27	1.61	119
17	1.6	6.0	9.18	1.28	7.17	601
18	1.6	7.5	9.18	1.60	5.73	545
19	1.6	10.0	9.18	2.13	4.30	355
20	1.6	15.0	9.18	3.20	2.87	210
21	1.6	20.0	9.18	4.27	2.15	148
22	2.0	20.0	11.47	4.27	2.69	184

時計回りの4つの渦となる (Fig. 2-a)。上下各層において壁面近傍の2つの渦は層内側へ成長、合併し、試験槽内には上下に反時計回りの2つの対流(以後これらを主対流と呼ぶ)が形成される。またこの流れの成長に伴い各層内上部に青色の高温域、下部に無呈色の低温域が拡大してゆく。その際に層間に対流の影響を受けず殆ど静止している中間層が比較的厚い状態で形成される (Fig. 2-b)が、これは上下の主対流に押しつぶされるように次第に薄くなり、 $t=1$ minには薄い界面となる (Fig. 2-c)。

層内で十分に発達した流れは壁面近傍および界面近傍に限定され、系内の温度分布は水平方向に一樣となり、以後しばらく変化しなくなる。この状態を熱的擬定常状態と呼ぶ (Fig. 2-d)。この間、界面上側が低温低濃度流体、界面下側が高温高濃度流体という状態であり、安定な濃度成層が温度不安定により界面部に生じ得る擾乱を抑制していることがわかる。この様な擬定常状態にあるときの界面を一般に振動型あるいは diffusive 型と呼ぶ。ただし時間と共に上下層濃度差が減少するため、安定効果が小さくなり、界面は徐々に不安定となる。

2.2.2 界面の不安定挙動 約80分間の熱的擬定常状態の後、界面近傍の等温線が乱れ始め (Fig. 2-e)、その後 $t=88$ minには波打ち状態に発達する(界面の波打ち現象と称する) (Fig. 2-f)。写真より、このとき界面間には複数の小さな渦(二次流れ)が数珠状に存在し、さらに二次流れの存在箇所等温線が乱れていることがわかる。Fig. 3に界面の波打ち現象の模式図を示す。現象の観察より、二次流れは界面の中央で周期的に発生すること、発生後は左右に分かれて近傍温度場を大きく乱しながら界面間を移動し、壁面到達とともに消失すること、回転方向は時計回りで主対流と逆向きであり、また、その移動速度は剪断流れの速度とほぼ同じであること、そしてこのような二次流れの挙動を原因とし、界面が波を打っている様にみえることがわかった。

この二次流れは層間濃度差が減少したため、界面が不安定となり、これまで抑えられていた温度不安定あるいは剪断流れによる擾乱が発生、増幅したものであり、Kelvin-Helmholtz 不安定でみられる集中渦列と同様のものであると考えられる。また、先に示

Fig. 2 Transient behavior of temperature and flow fields
(run 11: $\Delta T=15^{\circ}\text{C}$, $\Delta c_0=0.8\text{ wt\%}$, $N_0=1.43$)

Fig. 3 Flow and temperature fields of the undulation phenomenon

した二次流れの移動は、同じ垂直位置における界面上部の剪断流れと下部の剪断流れに速度の差があることを原因とし、つまり右上がりの界面に沿って側壁から離れた流れは加速し対向壁に到達するため、加熱壁側では界面上部の流れ、冷却壁側では界面下部の流れが速く、これらの流れに二次流れが引っ張られているものと思われる。

2.2.3 界面の崩壊現象 波打ち状態にある界面は徐々に傾きを増し、 $t=94\text{ min}$ 頃より加熱壁近傍においては下層から上層へ向上きに、冷却壁近傍においては上層から下層へ下向きに界面が侵入を始め、大きく突出し始める（突出部を垂直境界層と称する）(Fig. 2-g)。そして $t=96\text{ min}$ に加熱壁側垂直境界層の最先端部より下層流体が上層流体中へ流入し始める。本実験ではこの瞬間を界面の崩壊とした。同時にこれまで持続していた界面の波打ちは治まる (Fig. 2-h) が、これは個別だった2つの対流セルが崩壊・合併を始めたことにより、界面を挟んだ剪断流れが著しく弱くなったためであると考えられる。容器右上において、下層高濃

Fig. 4 Occurrence condition of the undulation phenomenon

度流体が上層低濃度流体中へ流入し始めると (Fig. 2-i)、そこで濃度不安定が生じるため、finger 型対流 (salt finger) が発生し両層は激しく混合する (Fig. 2-j)。溶質の不均一分布が解消されると系はひとつの熱対流に支配される (Fig. 2-k)。

2.3 初期条件が現象に及ぼす影響

初期条件が変化した場合も現象の大局は前述の通りであった。ただし、界面の波打ちのスケール、界面崩壊時間等に N_0 や Ra_t に依存した変化が確認された。

2.3.1 定性的現象変化 Fig. 4 は界面の波打ちが発生する条件を調べたものである。図中の実線は波打ち発生境界であり、実線の上側のプロット点は波打ちの発生が確認された条件、下側のプロット点は確認されなかった条件である。図より、 $Ra_t \approx 1.3 \times 10^7$ 以下の条件において波打ちは観察されなかったことが

Fig. 5 Temperature dependence of β_t and ν

分かる。また、発生条件に関して、 N_0 、 Ra_c に関係無く Ra_t が大きな条件ほど界面は激しく波打ち、 Ra_t が小さな条件ほどそれは穏やかなものであった。つまり、界面の波打ち発生とそのスケールは熱レイリー数 Ra_t に大きく依存した。これは Ra_t が大きいほど界面を挟んだ剪断流れの速度、および界面における温度の不安定勾配が大きくなり、これらが界面の不安定化を助長するためと考えられる。

また、垂直境界層は Ra_t の大きな条件ほど顕著に突出・発達し、界面自体が大きく傾く前に界面の崩壊が起こった。ただし、条件によらず垂直境界層の発達は冷却壁側に比べ加熱壁側で大きく、さらに界面の崩壊は必ず加熱壁側から起こった。この現象の非対称性は Ra_t の大きな条件ほど顕著であった。ここで、Fig. 5 に平衡濃度 3.8 wt% における Na_2CO_3 水溶液の温度に関する体膨張係数 β_t および動粘度 ν の温度依存性を示す。なお、これらは全て 22.5°C の値で正規化してある。温度の増加と共に β_t は増加し、また ν は減少することが分かる。 Ra_t の定義が示す通り、熱浮力の大きさは β_t に比例し、また ν に反比例するため、2つの物性値の大きな温度依存性は低温壁側の熱浮力と比べて高温壁側の熱浮力を増大させることになる。例えば、Fig. 5 より 2.3 節で取り上げた run 11 ($\Delta T = 15^\circ\text{C}$) では加熱壁 (37.5°C) 側の熱浮力が冷却壁 (22.5°C) 側のそれより約 1.7 倍大きくなることがわかった。これを理由に現象に非対称性が表れ、加熱壁側で垂直境界層が大きく発達し、そこから界面が崩壊するものと考えられる。

2.3.2 初期浮力比と界面崩壊時間との関係 界面崩壊時間 t_m は条件により 10~600 分と大きく変化した (Table 1 参照)。Fig. 6 は初期浮力比 N_0 とフーリエ数 Fo_m の関係について調べたものである。なお現象のタイムスケールは拡散係数に支配されることから、 Fo_m は次式で定義される。

$$Fo_m = \frac{Dt_m}{L^2} \quad (1)$$

図中のプロット点より本実験系・実験範囲 (Na_2CO_3 水溶液: $Pr = 6.62$, $Sc = 1388$, $Ra_t = 0.64 \times 10^7 \sim 4.27 \times 10^7$, $N_0 = 0.54 \sim 7.17$) について、 N_0 と $Fo_m Sc$ の関係はほぼ一本の直線で相関でき、界面崩壊時間 t_m が N_0 により予測できることがわかる。ただし、幾分 Ra_c にも依存しているが、これは N_0 が同じでも Ra_c が大きい条件、つまり Ra_t が大きい条件ほど、先にも記した通り界面が不安定となり易いことに関係すると考えられる。なお本研究では N_0 が 1 より小さな場合については、熱的擬定常状態をとることなく、実験開始直後から界面は大きく傾き、ただちに界面の崩壊、層の混合が起こった。安定な二重拡散界面の形成限

Fig. 6 Relationship between initial buoyancy ratio N_0 and dimensionless breaking time of interface Fo_m

界は $N_0 = 1$ 付近であると判断された。

同図に示した実線は Nishimura *et al.* (1999) (NaCl 水溶液: $Pr = 7.15$, $Sc = 685$, $Ra_t = 2 \times 10^7 \sim 7 \times 10^8$, $N_0 = 0.441 \sim 0.882$) が得た実験結果であり、破線はその結果を外挿したものである。本実験結果と Nishimura *et al.* (1999) の結果との比較より、溶液が異なるとき界面崩壊時間が大きく異なること、またそれらは Fo_m (Eq. (1)) 単独では相関できないが、 Fo_m にシュミット数 Sc を考慮すること (Eq. (2)) により、Nishimura *et al.* (1999) が $N_0 = 0.441 \sim 0.882$ において得た結果およびそれを外挿したものと、 $N_0 = 0.54 \sim 7.17$ で行った本実験の結果が比較的良好に一致することがわかった。

$$Fo_m Sc = \frac{Dt_m}{L^2} \frac{\nu}{D} = \frac{\nu t_m}{L^2} \quad (2)$$

2 種のみ、そして大まかな比較であるため、Eq. (2) は現象を説明し得る物理的意味を与えるものではないが、今回の結果は 2 層系二重拡散対流の層間物質移動に界面近傍での運動量移動、つまり剪断流れの強さが大きく関わることを示唆するものと考えられる。更なるこの詳細については、今後の重要な課題である。

結 言

本研究では 2 層に濃度成層した Na_2CO_3 水溶液に水平温度差を加えた時に発生する二重拡散対流を対象に、広範囲の浮力比 $N_0 = 0.54 \sim 7.17$ のもと、感温液晶とポリスチレン粒子を用いた温度場と流れ場の同時可視化実験を行った。

加熱・冷却後、間もなく熱と溶質の二重拡散により 2 層のセル対流構造が形成され、それは比較的長い擬定常状態を経て崩壊した。崩壊前には界面の波打ち現象が起こるが、このとき界面間に数珠状の二次流れが存在し、それらが界面間を移動する際に近傍の温度場を大きく乱していることが示され、また波打ちのスケールは熱レイリー数 Ra_t に大きく依存することが明らかとなった。界面崩壊時間 t_m は条件により大きく異なるが、これは初期浮力比 N_0 により決定されることがわかった。本研究で得た t_m と NaCl 水溶液を用いた Nishimura *et al.* (1999) のそれは無次元時間 $Fo_m Sc$ により良好に相関された。

Nomenclature

A	= aspect ratio ($= H/L$)	[-]
D	= diffusion coefficient	[m^2/s]
Fo_m	= Fourier number ($= Dt_m/L^2$)	[-]

g	=gravity acceleration	[m ² /s]
H	=height of the vessel	[m]
L	=length of the vessel	[m]
Le	=Lewis number ($=\alpha/D$)	[-]
N_0	=initial buoyancy ratio ($=\beta_c\Delta c_0/\beta_t\Delta T$)	[-]
Pr	=Prandtl number ($=\nu/\alpha$)	[-]
Ra_c	=solutal Rayleigh number ($=g\beta_c\Delta c_0H^3/\alpha\nu$)	[-]
Ra_t	=thermal Rayleigh number ($=g\beta_t\Delta TH^3/\alpha\nu$)	[-]
Sc	=Schmidt number ($=\nu/D$)	[-]
t	=time	[s]
t_m	=breaking time of interface	[s]
W	=width of the vessel	[m]
α	=thermal diffusivity	[m ² /s]
β_c	=solutal expansion coefficient	[1/wt%]
β_t	=thermal expansion coefficient	[1/°C]
Δc_0	=initial concentration difference	[wt%]
ΔT	=temperature difference	[°C]
ν	=kinematic viscosity	[m ² /s]
μ	=viscosity	[kg/m·s]

Literature cited

Bergman, T. L. and A. Ungan ; "A Note on Lateral Heating in a

Double-diffusive System," *J. Fluid Mech.*, **194**, 175-186 (1988)
Christenson, M. S. and F. P. Incropera ; "Solidification of an Aqueous Ammonium Chloride Solution in a Rectangular Cavity -]. Experimental Study," *Int. J. Heat Mass Transfer*, **32**, 47-68 (1989)
Hyun, M. T. and T. L. Bergman ; "Direct Simulation of Double-diffusive Layered Convection," *Trans. ASME, J. Heat Transfer*, **117**, 334-339 (1995)
Kamakura, K. and H. Ozoe ; "Mass Transfer Across an Interface between Layers in a Double Diffusive Natural Convection," *J. Chem. Eng. Japan*, **28**, 745-749 (1995)
Nishimura, T., T. Imoto and H. Miyashita ; "Occurrence and Development of Double-diffusive Convection during Solidification of a Binary System," *Int. J. Heat Mass Transfer*, **37**, 1455-1464 (1994)
Nishimura, T., Y. Ogata, S. Sakura and A. M. Morega ; "Interfacial Breakdown of Double-diffusive Layers by a Horizontal Temperature Gradient," *Int. J. Heat Mass Transfer*, **42**, 1479-1489 (1999)
Ostrach, S. ; "Fluid Mechanics in Crystal Grows," *ASME J. Fluid Eng.*, **101**, 5-20 (1983)
Thompson, M. E. and J. Szekeley ; "Mathematical and Physical Modeling of Double-diffusive Convection of Aqueous Solutions Crystallizing at a Vertical Wall," *J. Fluid Mech.*, **187**, 409-433 (1988)
Wirtz, R. A. and C. S. Reddy ; "Heat and Mass Transport Across Diffusive Interface Bounded by Turbulent Convecting Regions," *Int. J. Heat Mass Transfer*, **19**, 471-478 (1976)

Double-diffusive Convection in a Two Layered Aqueous Solution by Lateral Heating and Cooling

TAKESHI YAMANE, EIJI NAKAJIMA, MASAMICHI YOSHIDA
and HISASHI MIYASHITA

Department of Material Systems Engineering and Applied Life Science, Toyama University, Toyama 930-8555

Key words: buoyancy ratio, double-diffusion, natural convection, secondary flow, visualization.

Double-diffusive convection in a solutally stratified fluid destabilized by lateral heating and cooling two-layer was studied experimentally. In the range of initial buoyancy ratio $N_0=0.54 - 7.17$, details of double-diffusive phenomena were investigated by visualization of temperature and flow fields using encapsulated liquid crystals and polystyrene particles.

On starting the experiment, roll cell convection of two layer was formed by double-diffusion of heat and solute, and the interface broke after thermally quasi-steady state. Attention was focused on the undulation of the interface which occurred before interface breaks. The detailed structure and occurrence condition of undulation were elucidated . It is found that the time when the mixing of the two layer starts is determined by the buoyancy ratio N_0 though it changed largely by experimental conditions.