蒸発管における熱水力学的不安定流動の カオス挙動に関する実験的研究*

中西 重康^{*1}, 澤井 徹^{*2}, 山内 庄司^{*2}

An Experimental Study on Chaotic Behavior of Thermohydraulic Oscillation in an Evaporating Tube

Shigeyasu NAKANISHI, To'oru SAWAI and Shoji YAMAUCHI

The characteristics of flow oscillations in density wave instabilities are experimentally investigated by means of the deterministic manner based on chaotic dynamics. The results are as follows. (1) The least number of significant figures of the time-series data is two, but it is plausible to take more than three if possible. (2) The flow oscillation analyzed in this paper is chaotic and obeys a dynamics with a small degree of freedom. (3) Given the mass flux, the dimension of the attractor in the unstable region decreases with the heat flux, which means that the randomness of the dynamics gradually attenuates with departure from the stability threshold and the structure of the attractor becomes simpler. (4) The dimension of the attractor can be related to the fundamental frequency, which means that the characteristics of the chaotic dynamics generating the density wave instability depend mainly on the fundamental frequency in the flow oscillation independent of the differences in the experimental conditions.

Key Words: Multiphase Flow, Chaos, Boiling, Evaporating Tube, Thermohydraulic Oscillation

1. 緒 論

管内沸騰二相流に付随する流れの変動は非常に幅広く種々のものが存在している。巨視的な観点から流れの変動を見た場合、ある特定の条件下で観測される不安定流動現象がある。この不安定流動は巨視的流動変動を総称して用いられる用語でありその範囲は非常に幅広く、その発生機構あるいは蒸発管の管路構成などの面からいくつかに大別され扱われている。この流動変動の中でも密度波振動は比較的広範囲の装置および条件下で観測されるため、これまで多くの理論的、実験的研究が行われその発生メカニズムならびに安定限界の定性的・定量的な推定はかなり明らかとなってきた⁽¹⁾。このような研究が行われてきた理由は、言うまでもなく不安定流動を好ましくない現象としてとらえ流動振動を発生させないためであった。したがって従来行われてきた研究は安定解析に主眼が置かれ、不安定流動時の振動そのものに着目し振動の特性を議論した研究はほとんど見あたらないようである。

本研究ではこの不安定流動域における振動特性の把

握を目的に、実験により得られた振動特性を最近注目されている非線形力学系に付随したカオスの視点から解析することを試みた。カオスの視点である現象をとらえようとする研究は工学の分野においても最近かなり増えてきてはいるが、本研究のように実験データの特性をカオス的方法でとらえたものはそれほど多くはない。気液二相流の分野に限定すれば萩原⁽²⁾、Biage⁽³⁾、著者ら⁽⁴⁾による研究が行われている程度であり、これらはいずれも界面波の変動を扱ったものである。不安定流動に関しては、実験によってではないが数値シミュレーションによって得られた流動振動をカオスでとらえた研究はいくつか報告されている。Lahey⁽⁵⁾あるいはRizwan-uddin⁽⁶⁾はある特定の条件下で不安定流動時の振動からストレンジアトラクタを見だし、振動の振舞いがある条件下でカオスであることを報告している。これら数値計算による結果は実際の流動振動もカオスの振舞いをしている可能性があることを示唆している。しかしながら、文献(5)、(6)で行われた数値シミュレーションはある特定条件下において密度波振動を解析した結果、そこからカオスの挙動を見いだすことができた一例が報告されているものであり、その計算条件は文献(5)ではフルード数の小さい出口乾き度の低い一領域において、文献(6)ではテ

* 原稿受付 平成4年5月6日。

^{*1} 正員、姫路工業大学 (〒671-22 姫路市書写 2167)。

^{*2} 正員、高松工業高等専門学校 (〒761 高松市勅使町 355)。

スト部差圧に周期的変動を加えた場合と計算時のパラメータを特別な値に設定して行ったものとなっている。実機の運転条件により近い条件下で実験的に行われた密度波振動のカオスの立場に立った振動解析はこれまでになく、しかも振動のカオスの挙動の変化を定性的に説明するため本研究では実験により得られた流量振動の時系列データを次の方法で解析を行った。

(1)カオスの振舞いを行っているか否かの判断をリヤプノフ指数を計算することによって行う。(2)もし流動振動がカオスの挙動をしていると認められればカオスを特徴付ける物理量(リヤプノフ指数, アトラクタ次元)によって振動特性の把握を行う。

以下ではまず2・1節で時系列実験データのカオス判定法およびカオスを特徴付ける物理量の算出法について説明を行い、2・2節で解析データに要求される精度の問題について検討する。2章に引き続き3章以降で流動振動の実験データを解析した結果を報告する。

2. 時系列実験データ解析方法

2・1 カオスの判定 不規則な様相を呈する時系列データがカオスの変動であるか否かを判定するためには、もとの力学系の法則そのものを明らかにすればよい。しかし今のところその法則を知り得る一般的手法は確立されていない。あるいはもしカオスが N 自由度の力学系から生じていることがわかっており、しかも N 個の独立なデータを測定できれば、 N 次元相空間における軌道の動的振舞いを追跡することによりカオスの判定はできる。残念ながらこの方法も自由度 N の値がわからない限りにおいては一般的とは言えない。現状では Takens の埋込み定理⁽⁷⁾により単一の時系列データから相空間における軌道を再構成し、この軌道の初期値の差異に対する敏感性を調べカオスの判定を行っている。この初期値の差異に対する敏感性はリヤプノフ指数の一つが正の値であることで確認でき、本研究においては Wolf ら⁽⁸⁾の方法を用いてリヤプノフ指数を算出した。またカオス力学系の軌道の集合であるストレンジアトラクタの次元を Grassberger-Procaccia⁽⁹⁾が提案した二体相関関数から求まる相関指数の収束値で求めた。詳細な次元算出の手順は既報⁽⁴⁾を参照されたい。したがって本研究ではアトラクタ次元を相関次元で定義していることになる。カオスのアトラクタの場合、この次元は一般的に非整数値のフラクタル次元となっている。フラクタル次元はストレンジアトラクタのフラクタル構造の複雑さと相空間におけるカオスの力学系の運動の自由度の下限値に関する情報を与えてくれる。本研究ではカオスの振動特

性の把握をこのアトラクタ次元(相関次元)を用いて行った。

2・2 解析時に必要なデータの精度に関する検討

Takens の埋込み定理を用い軌道を再構成するときに問題となるのが時間遅れ軸の選択の問題である。時間遅れが小さすぎる場合は空間の狭い部分に軌道が再構成され、軌道の形の認識のためには高いデータ精度が要求される。一方時間遅れが大きすぎ振動の代表的周期を超えてしまうような場合は意味のない解析をしてしまうことになる。時間遅れ軸の最適選択は相空間内における再構成軌道の広がり最も広くなるようにするという意味を持ち⁽¹⁰⁾、十分な精度を有する実験データであれば時間遅れ軸の選択に対する考慮はそれほど重要ではない。しかしながら一般的にはデータに付随する各種誤差あるいは雑音が再構成軌道の形状に大きく影響し、したがってこの再構成軌道から求められるアトラクタ次元あるいはリヤプノフ指数にも多大な影響を与えることになる。そのためこの時間遅れ軸の選択は雑音を含む実験データの解析には必ず検討を要することであり、本節ではこの時間遅れ軸の選択の問題とデータ精度との関係について考察を行った。

実験データの精度はさまざまな要因に依存している。たとえば A-D 変換時の量子化誤差の場合は量子化時のビット数によって、計算機内での丸め誤差はデータの有効けた数によって、雑音の場合は SN 比によってデータ精度が決定されることになる。しかし、いずれの場合でも結局はデータの持つ有効数字のけた数がそのデータの精度を表しているわけで、この有効けた数がアトラクタ次元に及ぼす影響をカオスの力学系でフラクタル構造を持つことがすでに知られているレスラーアトラクタで検討した。本研究で使用されたレスラーアトラクタは次式に示す力学系の方程式で与えられる。

$$dx/dt = -y - z$$

$$dy/dt = x + 0.15y$$

$$dz/dt = 0.2 + z(x - 10)$$

検討手順を以下に示す。(1)レスラー方程式をルンゲ・クッタ法を用いて数値積分しこれにより得られた変数 x の変動を時系列データとみなす。ただし数値積分の際時間刻み間隔は $\Delta t = \pi/100$ とし一周期の約1/200程度としている。(2)求められた変数 x を最大値・最小値を用いて正規化し大きさを $[0, 1]$ の値とする。(3) x の有効けた数 F を設定する。 F の設定は x の小数点第 F 位までを残すことにより行う。有効けた数の変化範囲は変数 x を計算機内で4 byteの浮動小数点データとして扱っているため、10進数にして7け

た程度の有効けた数を持っていることから1~7けたまでとした。(4)二体相関関数のアルゴリズムを用いアトラクタ次元の計算を行う。

上記検討手順により得られた種々の有効けた数 F に対する相関指数 ν を埋込み次元 $d=1\sim7$ の範囲で図1に示す。なお、図1(a)は再構成軌道の広がり最も広がるような時間遅れの最適値を用いて求めたもの、図1(b)は時間遅れをデータのサンプリング時間間隔と同じにして求めた結果となっている。レスラー方程式で得られるストレンジアトラクタのアトラクタ次元は $D_c=2.01$ とされているが、図1(a)においては有効けた数が1けたの ν の変化が他のけた数のものと多少異なっているがいずれの有効けた数であっても2.01に収束しつつあることが確認される。図1(b)においては有効けた数がある程度高くないと2.01には収束していない。以上の結果を整理した結果を図2に示す。図2中の縦軸は図1で得られた ν を d の関数として修正指数曲線で近似し $d \rightarrow \infty$ としたとき得られる⁽⁴⁾アトラクタ次元、横軸は変数 x の有効けた数

F である。図2中の○は図1(a)、△は図1(b)の相関指数から得られたアトラクタ次元を表している。時間遅れ軸を考慮した解析の場合、有効けた数が1けたであってもある程度次元の推定は可能であり、2けたもあればほぼ満足のいく結果が得られた。一方時間遅れ軸が小さく再構成された軌道の広がり狭い場合、少なくとも3けた程度の有効けた数がないと軌道形状が把握できず適切な次元が得られない。

以上より実際の時系列実験データを解析するには最低でも2けたの有効けた数は確保しておく必要があることがわかった。ただしこのような場合には時間遅れの最適選択について十分検討しておく必要はある。しかしながら次元の算出精度向上が時間遅れの最適選択のみに依存するということは一般的でなく、まず第1にデータ測定時の雑音あるいはA-D変換時のデジタル側のビット数(最低10 bit, 1024 digit)などを考慮し、できれば有効けた数3けたぐらいの精度は確保しておくことが望ましい。本研究においてもデータの有効けた数を3けた確保するようA-D変換時にも注意を払い、さらにそのうえ個々のデータに対して時間遅れの最適値を求め解析を行った。

3. 実験装置・方法

図3に本研究で用いたフロン系冷媒 R 113 を作業流体とした伝熱実験ループの概略を示す。サービスタンク⑥を出た液はダイヤフラムポンプ⑦で加圧され⑧のアクチュエータでポンプ脈動を減衰させた後、定値流量制御弁⑩およびロータメータ⑫で一定の流量に設定・確認され予熱器⑭へ送り込まれる。予熱器はステンレスパイプにパイプヒータを埋めこんだもので、⑬の電圧調整器で電圧を調整することによって所定のサブクール度を得ることができるようにしている。予熱器を出た液は空気を封入したサージタンク(容積 $11.3 \times 10^{-3} \text{m}^3$)⑮を経由し流量変動測定用オリフィス

(a)

(b)

図1 データ精度と相関指数

図2 データ精度とアトラクタ次元

⑬入口絞り弁⑬を通りテスト部①へ送られる。なお⑬は微差圧変換器で1kHz程度まではフラットな応答特性を有している。テスト部①は外径9mm内径7mm長さ2.5mのSUS304ステンレス管を垂直に配置し加熱長が2.1mになるよう銅製のブスバを接続している。テスト部の加熱は低電圧の交流を直接通電加熱して行い⑭の電圧調整器により加熱量を調整する。ここで沸騰二相流あるいは過熱蒸気となった流体は出口絞り弁②を経て出口タンク④へ送り込まれ⑤のコンデンサで凝縮され再びサービスタンク⑥に戻る。

図 3 実験装置

流体温度に関しては $T_1 \sim T_5$ において、圧力に関しては $P_1 \sim P_6$ およびオリフィス差圧を測定している。

実験はサージタンク⑤に流入する流体の質量速度および温度を一定に保った後テスト部の加熱量を徐々に上げ不安定流動を発生させる。本実験範囲を図4に示す。3種類の質量速度 [$G=250, 500, 750 \text{ kg}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$] 3種類の入口サブクール度 ΔT_{sub} に対して、合計9とおりの実験を行った。図4中の黒色印は安定流動状態、白色印は不安定流動状態であったことを表している。いずれの条件下においても安定限界付近から不安定流動内部域において加熱量を約 $5 \text{ kW}/\text{m}^2$ ずつ上昇させ、各条件でのオリフィス差圧および P_1, P_2, P_3, P_6 の圧力変動を測定した。時系列データとしてデータ長は200s、サンプリング時間間隔20msで10000点採取した。なお、いずれの実験条件においても出口タンク圧力(代表圧力)は $P=120 \text{ kPa}$ 一定、出口タンクとサ

図 4 実験範囲

 図 5 流量振動波形 [$G=250 \text{ kg}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$] 図 6 流量振動波形 [$G=500 \text{ kg}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$] 図 7 流量振動波形 [$G=750 \text{ kg}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$]

ージタンク間差圧一定, 出入口絞りも絞り係数 $K_{in}=90.1$, $K_{ex}=29.4$ 各々一定として実験している。

4. 不安定流動域における振動特性

4.1 流量振動波形 図5~7は質量速度 $G=250, 500, 750 \text{ kg}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ における流量振動波形の一例を示したものである。図5~7における(a)~(g)は熱流束以外の条件を一定に保ち熱流束 ϕ を変化させていったときの様子を示している。熱流束の小さい図(a), (b)はいずれも流量振動の振幅は小さく特定の周期も確認できず, 沸騰二相流に付随する固有のランダムな微振動と考えられ本研究においては安定流動と判断している。一方, 図(c)~(g)は安定限界付近から熱流束を徐々に増加させたときの不安定流動域におけるデータである。安定限界付近では比較的流量振動波形が滑らかで, 質量速度のいちばん小さい図5(c)では左右対称な形をしているのに対して, 熱流束が高くなると流量振動増大と同時に立上り付近が急峻な非対称な形に変化している。この形状変化の傾向は質量速度の高いデータほど顕著になっている。また変動周波数については加熱量増大に伴い高くなってきているが, これは加熱量が増しテスト部流動時間が減少することによるものであり当然いずれの実験条件下においても確認されている。なお, ここで注目すべき事実は流量振動が決して完全な周期振動でなく, 振動の振幅が各振動ごとに振幅を一見ランダムに変化していることである。このランダム性の確認は図5~7の振動波形と4.2

節で後述する図8~10の二次元平面上のアトラクタとの対応により明らかとなる。すなわちアトラクタの軌道がある有限な幅でランダムに動き, リミットサイクルとは異なる様相を示しているためである。

4.2 アトラクタ形状 図8~10はTakensの埋込み定理により流量振動の時系列データを二次元の相空間に埋め込んで得られたアトラクタの形状を示したものである。図8~10は質量速度250, 500, 750 $\text{kg}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ における不安定流動域のアトラクタである。なお時間遅れ軸はアトラクタの平面上での広がり最も広がるように相互情報量から最適値⁽¹⁰⁾を決定した。また図8~10中の $x(t)$ は図5~7の流量振動時系列データ, Δt はデータのサンプリング間隔20 msである。図8~10においては安定限界に近い[図(1), (2)]ほどアトラクタの軌道の幅が広くカオスに特有のストレンジアトラクタの外観を示している。また質量速度が小さいほど全般的に軌道の幅は広い。一方質量速度の大きいしかも安定限界から遠い条件の振動のアトラクタは軌道の幅が狭く, リミットサイクルで現れるアトラクタに類似した形状になっている。

4.3 スペクトル解析 図11~13はパワースペクトルを示したもので図5~7の流量振動波形に対するものである。図11~13の(1)の安定流動時の周波数分布はランダムな白色雑音の分布に類似している。図11~13の(2)~(6)は不安定流動時のものであり各図とも最も低周波側にあるいちばん高いピークは図5~7の波形から認められる基本振動周波数 f_0 と一致

 図 11 パワースペクトル
 $[G=250 \text{ kg}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})]$

 図 12 パワースペクトル
 $[G=500 \text{ kg}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})]$

 図 13 パワースペクトル
 $[G=750 \text{ kg}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})]$

している。図 11～13 の (2) では基本振動周波数以外にその 2 倍、3 倍の高調波成分もいくつか見られるがその大きさは比較的小さく、全体的に見た場合基本振動周波数 f_0 をピークになだらかに広がる種々の周波数成分を含むカオス特有の分布となっている。ところが図 11～13 の (3) 以降では、特に図 12, 13 の質量速度の大きいデータでは高調波成分の大きさおよび数も増え特定の周波数 (f_0 とその高調波成分) が優勢となっている。このことは同時に波形形状の急峻化にも対応している。

4.4 アトラクタ次元 図 14 は質量速度 $250 \text{ kg}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ の各実験条件で得られたストレンジアトラクタの次元 D_c を $\phi - \Delta T_{\text{sub}}$ 面上に示したものである。図 14 中の一点鎖線は安定限界曲線で左側は安定領域、右側は不安定領域を示している。安定領域では埋込み次元 $d=11$ 次元まで相関指数を求めたが完全に収束するまでには至らず、相関指数を埋込み次元の関数として修正指数曲線を用いて近似し $d \rightarrow \infty$ の極限値を図 14 中に記している⁽⁴⁾。不安定領域では $d=5 \sim 10$ 次元程度で相関指数はほぼ収束したが、このときも修正指数曲線で近似した極限値でアトラクタ次元を決定した。安定領域と不安定領域のアトラクタ次元を見れば明らかなように安定限界付近で極端に次元が減少しているのがわかる。これは安定流動域の微振動が不安定流動域の振動とは異なる振動特性を有しており、非常に自由度の高い白色雑音に類似したランダムな振動であることを表している。しかしながら、このことは次元を調べずとも図 5 で示した流量振動波形を見ても判

 図 14 $\phi - \Delta T_{\text{sub}}$ 面上におけるアトラクタ次元

断できることであるが、ここで興味深いのは不安定流動域のアトラクタ次元の大きさとその変化である。一般的に不安定領域のアトラクタ次元は 1～1.5 程度と低く、このことは密度波振動に伴う流量振動が少数自由度のカオス的力学系に支配されていることを示唆するものと考えられる。この次元の大きさについては数値計算によるものではあるが Lahey ら⁽⁵⁾ による報告があり、ほぼ同程度の大きさが示されている。この計算は本実験と密度波振動の発生条件がかなり異なっており、本実験結果と完全に対応可能な条件下の数値シミュレーションではないものの、同じ密度波振動を解析し参照し得るという意味において、本実験結果はある意味でその裏付けになっている可能性がある。次に不安定流動域のアトラクタ次元の大きさの変化を図 15 に示した。ただし入口サブクール度の違いによるアトラクタ次元への影響は顕著に見られず図 15 中の記

図 15 加熱量、質量速度とアトラクタ次元

号の区別は質量速度の区別のみを表している。いずれの質量速度においても加熱量増大により安定限界から遠ざかるにしたがってアトラクタ次元は減少しているのがわかる。このことは加熱量増大に伴うスペクトル成分の既知周波数成分の増加ならびに二次元相空間のストレンジアトラクタの軌道の幅減少に対応し、安定限界から遠ざかるほどカオス的力学系のランダムな要因が減少し振動のフラクタル構造が単純化していくものと考えられる。以上の結果は不安定流動域におけるカオス的挙動の性格の変化を表す非常に興味深い結果と言える。

最後に本実験で得られたすべてのアトラクタ次元を実験条件の違いによらずまとめることを試みた。図 16 に流動の基本振動周波数とアトラクタ次元の関係を示す。この図 16 より本実験範囲内においてアトラクタ次元が基本振動周波数とほぼ一義的に対応し振動周波数が低いほど次元は高くなることわかる。流動の基本振動周波数は実験条件の違いをすべて集約した不安定流動域の振動を特徴付ける一つの重要な物理量と考えられ、これとカオスの現象の変化を表すアトラクタ次元とが対応することに物理的必然性を見いだせる。さらに、このことは密度波振動を支配しているカオス的力学系の特性を実験条件の違いによらず基本振動周波数を知ることによって逆に推測し得ることを意味しているものと考えられる。

4.5 リヤプノフ指数 4.1 節で示した流動振動の不規則な振舞いがカオス的であると推測されることから 4.2 節から 4.4 節までの間でカオスを特徴付ける物理量と不安定流動振動について検討を行ってきた。本節では最後に検討を行ってきた不規則振動がカオスであるか否かを確認する。カオスの判定のため実験データのアトラクタの初期値の差異に対する敏感性が調べられた。初期値の差異に対する敏感性はリヤプノフ指数の符号によって判断できる。その計算法を以下に

図 16 基本振動周波数に対するアトラクタ次元

示す。隣接する二つの軌道上にとられた 2 点間の距離 L がある時間発展 ($t_k \sim t_{k+1}$ s) の後に距離 L' になったとき、両者の比 L'/L を M 回調べ平均し次式でリヤプノフ指数が求められる⁽⁸⁾。

$$\lambda = \frac{1}{t_M - t_0} \sum_{k=1}^M \log_2 \frac{L'(t_k)}{L(t_{k-1})}$$

本研究で得られた実験データに上式を適用した場合、式中の時間発展の設定あるいは L の上限値・下限値の設定などの違いによりその値にかなりばらつきが見られた。確定的なリヤプノフ指数を算出するためにはこれら計算に必要な設定値に対する検討を十分に行い、さらに単にアトラクタの次元を求めるときとは異なり動的振舞いの解析のためにはデータに対するより高い精度を要求しなければならないものと考えられる。しかしながら確定的ではないにせよ本実験で扱ったデータのリヤプノフ指数は 0.01~1 bits/s 程度の値を有する正の値を有していた。このことは周期が 10 s の振動であれば 10 周期後には初期値のわずかな差が $2 \sim 10^{30}$ 倍程度になることを意味している。これより本実験で得られた流動振動は確かにカオス的挙動をしていたと判断でき、振動特性をカオスと結び付けて考えることができることが示された。

5. 結 論

カオスの視点から不安定流動域における振動特性の把握を目的に実験を行い以下の結論を得た。

(1) アトラクタ次元を計算する際解析すべき実験データの精度は最低でも 2 けた、一般的には 3 けた程度が望ましい。

(2) 本研究で扱った不安定流動域の流動振動はすべてカオスとしてみなすことができ、しかも比較的少数自由度のカオス的力学系に支配されている。

(3) 安定限界から遠ざかるにつれアトラクタ次元(相関次元)は減少する。このことは振動を支配するカ

オスの力学系のランダムな要因が減少し振動のフラクタル構造が単純化していくことに対応するものと考えられる。

(4) 密度波振動を支配しているカオスの力学系の特性が実験条件の違いによらず基本振動周波数に集約して反映していることが確認された。不安定流動域の基本振動周波数は基本的にテスト部内の流体通過時間により決まり、この流体通過時間は質量速度、熱流束、入口サブクール度といった種々の実験条件の違いをすべて反映し、基本振動周波数は不安定流動域の振動を特徴付ける一つの重要な物理量と考えられる。この基本振動周波数とカオス特性との対応により、実験条件の差異によらず基本振動周波数の大小でカオスの挙動のランダム性(アトラクタ次元)の大小が推測可能となることが示された。

本研究を遂行するにあたり実験装置の作成ならびにデータ解析にご協力いただいた高松高専技官 佃芳

行、高松高専学生 賀門寛之、河野清孝各諸氏に付記して謝意を表す。

文 献

- (1) 例えば, 小沢, 大阪大学学位論文, (1976).
- (2) Hagiwara, Y., *Phys. Chem. Hydrodyn.*, **10**-2(1988), 135.
- (3) Biage, M., Delhaye, J. M. and Nakach, R., *AIChE Symp. Ser.*, **85**-269(1989), 274.
- (4) 澤井・山内・中西, 機論投稿中
- (5) Lahey, R. T., Clause, A. and DiMarco, P., *AIChE Symp. Ser.*, **85**-269(1989), 256.
- (6) Rizwan-uddin, *AIChE Symp. Ser.*, **85**-269(1989), 249.
- (7) Takens, F., (Rand, D. A. and Young, L. S., eds), *In Dynamical Systems and Turbulence*, (1981), 366, Springer.
- (8) Wolf, A., Swift, B., Swinney, H. L. and Vastano, A., *Physica*, **16 D**(1985), 285.
- (9) Grassberger, P. and Procaccia, I., *Phys. Rev. Lett.*, **50** (1983), 153.
- (10) Fraser, A., M. and Swinny, H., L., *Phys. Rev.*, **A**, **33**-2(1986), 1134.