高プラントル数流体液柱内温度差マランゴニ対流における
各種流れ場の発現*上野 一郎^{*1}, 田中 志穂^{*2}, 河村 洋^{*1}Various Flow Patterns Emerging in Oscillatory Thermocapillary
Convection in a Liquid Bridge of High Prandtl Number FluidIchiro UENO^{*3}, Shiho TANAKA and Hiroshi KAWAMURA^{*3} Department of Mechanical Engineering, Fac. Science & Technology, Tokyo University of Science,
2641 Yamazaki, Noda-shi, Chiba, 278-8510 Japan

Thermocapillary-driven convection in a half-zone liquid bridge of high-Prandtl-number fluid was investigated experimentally. It is widely known that the flow field in the liquid bridge exhibits a transition from two-dimensional steady flow to three-dimensional 'oscillatory' one at a critical temperature difference. In this study, special attention was paid upon the flow structures far beyond the critical condition. Types of the induced flows were categorized into several regimes mainly according to the suspended particle motion in the bridge and the surface temperature variation. Chaotic and turbulent flows were realized in this configuration. The flow regimes were analyzed by applying the pseudo-phase-space reconstruction from the time series of the surface temperature, and the evaluations of the correlation dimension and the maximum Lyapunov exponent.

Key Words: Thermocapillary Convection, Liquid Bridge, Flow Patterns, Chaotic Flow, Turbulence

1. 緒 言

一般に表面張力は、表面上の温度や濃度に依ってその値が変化することが知られている。したがって、自由表面上に温度差もしくは濃度差が存在すると、それに起因した表面張力差が生じ、この表面張力の不均一分布による剪断力を駆動力として表面近傍の流体に流れが発生する。このような流れをマランゴニ対流、このうち、特に温度差によるものを温度差マランゴニ対流と呼び、これまで1世紀以上に渡り様々な体系を用いて研究が行われてきた。

本研究では、微小重力環境下での高品質材料生成における有力な手法と考えられているフローティングゾーン法 (Floating-Zone method, 以下 FZ 法) において、高品質化の妨げとなる大きな要因となっている^[1]温度差マランゴニ対流場の解析を行う。特に、FZ 法の半分を模擬したハーフゾーン法 (Half-Zone method, 以下 HZ 法) を研究の対象体系とする。当該体系においては、同一直径を有する2本の円柱ロッド間に表面張力によって液柱を形成し、両端に温度差を付加してマランゴニ対流を発生させるものである。ここでは特に、プラントル数 $Pr > 10$ となる高 Pr 流体の HZ 液柱を解析対象とした。従来の研究により、以下のことが明らかに

されている。すなわち、液柱に付加した温度差がある臨界点を越えた時点で、液柱内対流場は2次元定常流から3次元非定常「振動」流に遷移する^{[2][3]}。この臨界点を臨界温度差という。マランゴニ対流の強さを表す無次元数であるマランゴニ数

$$Ma = \frac{\sigma_T \Delta T \cdot H}{\rho \nu \kappa} = \frac{\sigma_T \Delta T \cdot H}{\rho \nu^2} \cdot \frac{\nu}{\kappa} = Re_\sigma \cdot Pr$$

において、臨界温度差に対応するものを、臨界マランゴニ数 Ma_c と呼ぶ。ここで、 σ_T : 表面張力温度係数($= |\partial \sigma / \partial T|$)、 ΔT : 液柱端面間温度差、 ρ : 密度、 ν : 動粘性係数、 H : 液柱高さ、 κ : 温度拡散率、 Re_σ : 温度差マランゴニ・レイノルズ数である。高 Pr 流体を用いた実験によると、振動流状態での流れ場は、周方向に波数を有する周期的振動流となる。マランゴニ数が比較的小さい場合には定在的な振動を示す脈動振動流となり、それ以上では周方向に回転する回転振動流となる。著者らは、試験流体の蒸発を防ぎつつ高い温度差を付加しうる実験装置系を構築し、また上方からの観察系の導入によって、広範囲に亘る様々なアスペクト比を有する液柱内対流場に関し上記臨界条件および2種類の振動流発生条件を求めてきた^[3]。しかしながら、前

* 原稿受付 2002年3月28日。

^{*1} 正員、東京理科大学理工学部機械工学科(〒278-8510 野田市山崎2641)。^{*2} 東京理科大学大学院理工学研究科機械工学専攻。
E-mail: ich@rs.noda.tus.ac.jp

述の回転振動流が生起する条件よりも高い温度差を付加した場合に関しては、若干の実験的研究^[4]が行われているに限られている。また、数値解析においては、臨界条件および詳細な熱対流場の解析が行われている^{eg[5]}が、現在までのところ $Pr = 0.01 \sim 4$ 程度の低～中 Pr 流体の液柱に限られており、高 Pr 流体液柱の高 Ma を付加した条件に関する研究はほとんど行われていない。特に、このような高 Pr 流体の高 Ma 状態下対流場の解析は計算負荷が非常に大きいため、そのような対流場に関する詳細な知見はほとんど得られていないのが現状である。そこで著者らは、文献^[3]と同様の高温差を付加しうる実験装置系を用いて、従来ほとんど行われていない振動流遷移臨界点よりもはるかに大きなマランゴニ数領域における対流場の実験及び解析を行い、その特性を把握することを本研究の目的とした。実験においては、液柱内部の対流場の可視化と併せて表面温度変動の時系列データを取得し、この結果を用いて表面温度変動のフーリエ解析、さらに、時系列データを用いた擬位相空間の再構成、相関次元および最大リアプノフ指数の評価を行った。

2. 実験

本研究における実験装置は、文献^[3]で用いたものとほぼ同一のものである。ここでは、液柱保持部および対流場観察系のみを図1に示す。本実験は約 -20°C の低温度恒温槽内で行っている。試験流体には動粘度が 2 cSt のシリコンオイル ($Pr = 28.1$ at 25°C) (信越化学工業(株)製, KF-96-L-2cSt) を使用した。試験流体の物性値^[6]を表1に示す。それぞれの値は 25°C におけるものである。同一液柱接触面直径 5 mm を有する上下ロッド間に液柱を形成する。上部ロッドには透明な人工サファイア製のものを用い、上方からの観察を可能とした。本研究では、体積比がほぼ1、すなわち、上下ロッド直径とロッド間距離によって決定される真円柱体積とほぼ同一体積を有する液柱を用いて実験を行

Fig. 1 Experimental apparatus

った。また、液柱の高さ H 及び半径 R により決定される液柱アスペクト比 $\Gamma = H/R$ は、ほぼ 0.64 で一定とした。このアスペクト比では、液柱内振動流は周方向波数 $m=3$ のモード構造を呈する^[3]。

対流場は、公称直径 $20\text{ }\mu\text{m}$ のポリスチレンをトレーサ粒子として試験流体中に混入して可視化し、上方および側方より CCD カメラを用いて観察した。液柱端面間温度差 $\Delta T = 0$ 、すなわち、 $Ma = 0$ 状態下の液柱を上方および側方より観察した写真を図2に示す。本装置系では、液柱全体を連続光光源を用いて照明している。したがって得られる画像は、それぞれ高さ方向および半径方向すべての領域を可視化したものとなる。

Fig. 2 Top and side views of the liquid bridge ($Ma = 0$).

液柱自由表面よりわずかに内側の時系列温度データを、直径 $25\text{ }\mu\text{m}$ の K タイプ熱電対を用いて 50 Hz のサンプリング周波数により測定した。高さ方向は、液柱高さ半分的位置に固定した。温度を測定する際に重要となるのが、熱電対ジャンクションの半径方向位置である。半径方向にジャンクション位置を変更して温度計測を行う予備実験の結果、自由表面の外側にジャンクションを設置する場合には周囲気体の対流による温度変動をも検出してしまうため、液柱表面温度変動のみを測定するのが困難となる。また、液柱内部に深く挿入する場合においては、液柱内対流場そのものに著しい擾乱を加えることとなる。そこで本研究においては、出来る限り表面温度振動以外の外乱を除き、かつ、可能な限り液柱内対流場を乱さないジャンクションの最適位置として、自由表面より $0.15 \pm 0.003\text{ mm}$ 内側の位置を決定した。マランゴニ数の上昇に伴い、液柱の自由表面は外側に膨らむため、測定を行うそれぞれのマランゴニ数状態においてジャンクション位置の調整を行った。以下の結果はすべてこの位置での温度測定値であり、本報においてはこの温度変動を表面温度変動とする。

本実験においては、前述の通り液柱両端面間に大きな温度差を付加するため、試験流体の動粘性係数の温度依存性が無視できない。したがって、前報^[3]と同様に動粘性係数の温度依存性を考慮し、さらに、各流れ場を記述する Ma の算出にあたっては、代表温度として液柱の中間温度 $T = (T_H + T_L)/2$ を用いた。ここで、 T_H

Table 1 Physical properties at 25 °C of silicone oil of 2 cSt^[6]

ν [m ² /s]	ρ [kg/m ³]	κ [m ² /s]	σ [N/m]	$ \partial\sigma/\partial T ^*$ [N/m-K]	β [1/K]	Pr [-]
2.0×10^{-6}	8.70×10^2	7.12×10^{-8}	1.83×10^{-2}	7.15×10^{-5}	1.24×10^{-3}	28.1

*Note: the temperature coefficient of the surface tension $|\partial\sigma/\partial T|$ was measured by the present authors

および T_L はそれぞれ上下ロッド温度である。一方、温度拡散率の温度依存性に関しては、一般の液体についてみられるように、動粘性係数のそれと比較してその依存度が相対的に非常に小さいとの前提のもとで、25 °C における値で一定としてこれ以降記述する Pr を算出している。

3. 実験結果および考察

前述の通り、振動流遷移後の HZ 液柱内温度差マランゴニ対流場においては、そのアスペクト比 $\Gamma = H/R$ を変化させると様々な周方向波数を有するモード構造が生起する^[3]。本研究では特に、波数 $m=3$ を有するモード構造を呈するアスペクト比領域 $\Gamma \sim 0.64$ に絞って、広範囲に亘るマランゴニ数下での対流場を解析対象とする。以下、本節において対流パターンの定義を行い、それぞれの流れ場に対して詳述する。

3.1 各流れ場の定義

液柱端面に付加する温度差 ΔT を大きくしていく、すなわちマランゴニ数 Ma を大きくしていくことにより、振動流に遷移した後、液柱内に様々な対流パターンが発生する。これらのパターンは、図 3 に示すような(1)液柱内に加えたトレーサ粒子の挙動、(2)表面温度変動及び(3)そのフーリエ・スペクトル、さらに(4)表面温度変動時系列データを用いた擬位相空間再構成によって、Rg1 から Rg8 まで大きく 8 つのパターンに分類出来る。各対流パターンは基本的には Γ 及び Ma により決定され、一般に Rg の数字が大きいものほど高い Ma において発生する。ただし、対流パターンの発生は、アスペクト比 Γ 、温度差の時間的変化割合及び履歴に依存するため、 Ma の変化履歴によってはあるパターンが発生しないという場合もある。したがって、ここに挙げた各種対流場は、液柱内温度差マランゴニ対流において出現しうるものを示しており、温度差を大きくしていく過程においてこれらのすべての対流場が出現するわけではなく、これらのいずれかを呈示しながら最終的にカオス的狀態に至る、ということに注意しておく。

対流場の分類において用いた擬位相空間は、実験で得られた表面温度変動 $T(t)$ から ξ 次元遅れ時間座標系 $v_\xi(t)$ を求めて再構成した。

$$v_\xi(t) = (T(t), T(t+\tau), T(t+2\tau), \dots, T(t+(\xi-1)\tau))$$

ここで、図 3-(4)には 3 次元擬位相空間を示している。本研究においては、予備解析において様々な遅れ時間 τ を用いて再構成を行い、Rg1 から Rg6 までの流れ場に対しては $\tau=0.10$ s、Rg7 および Rg8 に対しては $\tau=0.06$ s を用いて遅れ時間座標系への変換を行った。

3.1.1 定常流 (Rg1)

液柱端面間温度差が臨界値よりも小さな場合には、流れ場は 2 次元定常流 (Rg1) となる。ここでは、 r - z 平面内でのみ対流が発生し、周方向速度成分はほとんど存在しない。したがって、液柱内の粒子は基本的に r - z 平面内でのみ回転運動し(図 3-(a)-(1))、表面温度はほぼ一定値を示す(図 3-(a)-(2))。

3.1.2 第 1 脈動振動流 (Rg2)

マランゴニ数を上げていくと、対流場は脈動(Rg2)および回転振動流(Rg3)へと遷移する。Rg1 と Rg2 の境界が振動流遷移の臨界点となる。振動流に遷移すると、周方向速度成分が生じ、トレーサ粒子は r - z 平面内での運動に加え、 θ 方向に運動するようになる。第 1 脈動振動流 Rg2 および第 1 回転振動流 Rg3 の振動流では、周方向波数 m に対応した形状を有する粒子不在領域が形成される。当該アスペクト比を有する液柱では、粒子不在領域は三角形となる。脈動振動流では、液柱中心軸に対し周方向に π だけ空間位相がずれた粒子不在領域が、各辺の 3 分の 1 の点を節として定在波のように「脈動」する。このとき、粒子は周方向に 6 つに分かれたセクター内において運動し、隣接するセクターに移動することはほとんどない。このセクターの数は、一般に周方向波数 m に対し、 $2m$ 個形成される。図 3-(b)-(1) ($Ma=3.2 \times 10^4$) は、不在領域が充分発達した三角形となった時点から、時間的位相が $\pi/2$ だけずれた瞬間を示している。

3.1.3 第 1 回転振動流 (Rg3)

マランゴニ数をさらに上昇させると、粒子不在領域が、発達した多角形領域(この場合は 3 角形)を形成したまま周方向に回転する(図 3-(c)-(1): $Ma=3.4 \times 10^4$)。この場合には、Rg2 で見られていたセクターの境界線は消失し、また、液柱内の粒子は周方向に大きく移動するようになる。回転方向に関しては、その方向を予測することは出来ず、どちらの方向についても同様に発生した。Rg2 および Rg3 においては、表面温度はと

Fig. 3 Flow regimes of (a) Rg1: steady flow (the data shown here indicate the case of $\Delta T = 28.5$ [K], $Ma = 2.6 \times 10^4$, $Pr = 49.0$), (b) Rg2: Pulsating flow I ($34.2, 3.2 \times 10^4, 45.9$), (c) Rg3: Rotating flow I ($36.6, 3.4 \times 10^4, 44.6$), (d) Rg4: Transition ($69.7, 6.4 \times 10^4, 31.2$), (e) Rg5: Pulsating flow II ($67.5, 6.2 \times 10^4, 31.9$), (f) Rg6: Rotating flow II ($83.7, 7.7 \times 10^4, 27.1$), (g) Rg7: Chaotic flow I ($90.7, 8.4 \times 10^4, 25.3$) and (h) Rg8: Chaotic flow II (Turbulence) ($103.9, 9.6 \times 10^4, 22.4$); Column (1) indicates top view of the flow field, (2) time series of the surface temperature variation, (3) its Fourier spectrum and (4) reconstructed pseudo-phase space (PPS). Aspect ratio of (a) ~ (h) except (d) and (e) is 0.64 ((d): $\Gamma = 0.62$, (e): 0.68).

もに、若干の高調波を含む正弦波状に変動する(図 3-(b)-(2), -(c)-(2)). したがって、再構成アトラクタはともにリミットサイクル(図 3-(b)-(4), -(c)-(4))となる。

ここで、表面温度変動の基本周波数に注目する。脈動振動流よりも回転振動流において、液柱に付加したマランゴニ数が大きいにもかかわらず、その基本周波数が小さくなっている。当該実験条件では、Rg2 での基本周波数は、 $f_{0,Rg2} = 1.9$ Hz、一方 Rg3 においては $f_{0,Rg3} = 1.8$ Hz である。この現象は、中 Pr 流体に関する数値計算^[5]でも同様の結果が得られている。脈動および回転振動流によって生起する表面温度振動は、同位相逆方向に進行する 2 つの波の重ね合わせで記述できると考えられている。振動流に遷移した後、対流場は脈動振動流を経て回転振動流の形態を呈示するが、これは、脈動時には 2 つの波の振幅が等しく、回転に遷移する場合にはどちらか一方の波のみが残存することによって一方向の回転振動が発生するものと考えられている。この表面温度振動のモデルを用いて振動流遷移直後の弱非線形領域における振動場の挙動を記述するモデルとして、複素ギンツブルグーランダウ方程式 (Complex Ginzburg-Landau equation) をベースとした振幅方程式が提唱されている^[5]。このモデルにより、振動流遷移時に同一振動周波数を有する脈動および回転それぞれの振動流場について、液柱に付加する Ma を大きくしていくにしたがい、脈動振動流における表面温度変動周波数の Ma 依存性が、回転振動流におけるそれと比較して大きいことが示されている^[5]。本実験で見られた表面温度振動における周波数の違いは、このモデルによって充分説明できる。

なお、対流場の振動流遷移及び第 1 振動流の発生条件、その周方向波数とアスペクト比の関係等は文献^[3]に詳述されている。従来行われてきた研究は、この領域までのものがほとんどである。

3.1.4 遷移状態 (Rg4)

マランゴニ数を Rg3 の状態から増加させると、粒子が液柱全体に拡がって、液柱内に形成されていた粒子不在領域がいったん消失する(Rg4: 図 3-(d)-(1): $Ma = 6.2 \times 10^4$)。更に増加させると、Rg2 および Rg3 と粒子挙動が類似した、新しい脈動(Rg5)あるいは回転振動流(Rg6)が生起する。

遷移状態である Rg4 においては、粒子は回転と脈動の混在した動きを示し、その前後のパターンに見られるような規則的な挙動は見られない。しかしながら、図 3-(d)-(2)および-(3)に示す通り、その温度変動は正弦波とは大きく異なるものの、依然基本周波数を有する周期的変動を示しており、アトラクタの形状も周期的運動を示している。

ここで、ある周方向波数 m を呈する対流場は、ある限られたアスペクト比領域において発生する^[3]。その発生領域の端部においては、脈動振動流場が安定して

存在する。温度差を大きくしていく過程においても、安定した回転振動流場を呈することなく、当該遷移状態(Rg4)を経由して後述の Rg5 へ遷移するが多い。一方、発生アスペクト比領域中央部においては、回転振動流が非常に安定して存在する。振動流直後に脈動振動流(Rg2)が発生し、その後 Ma を大きくしていくにしたがい、安定した回転振動流(Rg3)へと遷移し、さらに、Rg4 を経由せずに後述の第 2 回転振動流 Rg6 に遷移するが多い。

3.1.5 第 2 脈動振動流 (Rg5)

前述の、ある周方向波数を有する対流場が発生するアスペクト比領域の最中心部および最端部を除くほとんどの領域では、遷移状態を経て、液柱内には再び粒子が周方向に分割されたセクター内で脈動的な振動流が生起する。本研究ではこの流れ場を、第 2 脈動振動流 Rg5 とする。この対流場においては、上部ロッドより観察すると、粒子不在領域が Rg2 と比較して小さくなり、またその形状も全く異なるものとなる(図 3-(e)-(1): $Ma = 6.4 \times 10^4$)。粒子不在領域が小さくなることは、マランゴニ数の上昇によって、自由表面を下部ロッドに向かっていった流れが液柱中心部により深く流れ込むことに依ると考えられる。粒子不在領域は、Rg2 のような多角形状は呈さず、 $6 = 2m$ 本のアーム状構造を形成する。このアーム状構造は、各セクターに 1 本ずつ存在し、それぞれのセクター内で周方向に往復運動をする。温度変動に関しては、Rg2 の場合と比較して高調波成分が強く現れており(図 3-(e)-(2)および-(3))、したがって、アトラクタは Rg2 と比較してねじれの部分が生じ、3 次元的な構造が見られる(図 3-(e)-(4))。しかしながら、依然として一定の軌道を繰り返し辿るリミットサイクルとなっている。

3.1.6 第 2 回転振動流 (Rg6)

周方向波数 m の存在するアスペクト比領域の中央部近傍において Rg3 の状態からマランゴニ数をさらに上昇させると、対流場は再度回転振動流へと遷移する(第 2 回転振動流)。この対流場が発生する温度差領域において、ある狭い温度差領域では粒子挙動が同じく回転振動流である Rg3 とは全く異なっている。図 3-(f)-(1) ($Ma = 7.7 \times 10^4$)に示す通り、この状態に遷移すると、次第に粒子が一つの繋がった軌道の上に集合するようになる。このような粒子が集合する現象は、Schwabe et al.^[7]により動的粒子集合現象(dynamic PAS: dynamic particle accumulation structure)と名付けられた。その 3 次元構造は、対流場の上方及び側方同時観察によって Tanaka et al.^[8]により明らかにされている。対流場 Rg6 においては、図中に示したような粒子挙動に加え、もう一つ別種の構造と、さらにそれらの複合型構造が生起する。これら 3 次元構造の詳細や、発生条件、別種類の動的粒子集合現象に関しては、文献^{[8][9]}に詳述した。表面温度は、Rg5 の場合と比較して、低温領域が急峻に現れ

るようになるが基本的には周期運動を呈しており(図 3-(f)-(2)および(3)), アトラクタの形状も, 高調波によるねじれが生じてはいるがリミットサイクルであることがわかる(図 3-(f)-(4)). ここで注意すべきこととして, Rg6 における表面温度変動は, マランゴニ数が小さい Rg5 よりも, 低い基本周波数を有する ($f_{0,Rg5} = 2.1$ Hz, $f_{0,Rg6} = 2.0$ Hz). これは Rg2 及び Rg3 でも同様の関係が見られている. このように非線形性が強くなった場では前述の振幅方程式によるモデルは適用できないが, 本実験によって, 一般に脈動振動流よりも高いマランゴニ数状態で生起する回転振動流は, 第 1 および第 2 振動流場ともに脈動状態よりも低い基本周波数を有することを明らかにした.

3.1.7 第 1 カオス流 (Rg7) および第 2 カオス流れ (Rg8)

さらに高いマランゴニ数を付加すると, それまで生起していた規則的な構造が崩れ, 液柱内の粒子は一見ランダムに運動をするようになる(図 3-(g)-(1): $Ma = 8.4 \times 10^4$, -(h)-(1): $Ma = 9.6 \times 10^4$). 表面温度変動に関しても規則性が失われ(図 3-(g)-(2)および-(h)-(2)), 基本周波

数は広帯域ノイズに埋没する(図 3-(g)-(3)および-(h)-(3)). Rg6 よりも大きなマランゴニ数下での流れ場は, したがって, トレーサ粒子挙動や表面温度変動からはその差違を識別することが困難となる. そこで, 以下では, 表面温度変動時系列データの短時間フーリエ解析, また, 時系列データから再構成した遅れ時間座標系より相関次元及び最大リアプノフ指数を求め, 定量的に高マランゴニ数状態下の流れ場の解析を行う. これらの解析により, 異なる対流パターンである Rg7 及び Rg8 の 2 種類の流れ場が存在することを明らかにする. 次節にその詳細を述べる.

なお, 本実験装置系における温度差付加能力の限界のため, Rg8 以降の対流場に関しては実現することが出来なかった.

3.2 高マランゴニ数領域における対流場

液柱内粒子挙動や表面温度変動からは大きな差違の確認が困難であった流れ場に対しても, 擬位相空間における軌道は, その違いを明確に示す. 対流場 Rg7 (図 3-(g)-(4)) では, 軌道は擬位相空間内に拡がり, もはやリミットサイクルの状態を呈していないが, 準周期的な挙動が依然確認される. 一方, Rg8 (図 3-(h)-(4)) においては, 軌道が空間内にランダムに拡がり, 乱流状態へと遷移したことを示している. これらの特徴は, 表面温度変動の短時間フーリエ解析によって, より明確にその構造を把握することが出来る.

図 4 に(1)Rg6 から Rg7 への遷移時におけるフーリエ・スペクトログラム, および(2)Rg8 におけるフーリエ・スペクトログラムを示す. 窓関数は, 512 点の温度データに対して Hanning 窓を用いた. 図 4 はともに, 液柱表面温度変動を 35 秒間測定したものに對し当該処理を施したものである. 図 4-(1)は, 時刻 $t \sim 17$ s までが対流場 Rg6 の状態を, その後 Rg7 へと遷移していく様子を示している. ここで, 図に示した Rg6 の状態は, 図 3-(f)に示した状態よりも高い Ma 下での対流場である($Ma \sim 8.2 \times 10^4$). 対流場 Rg6 での規則的な温度変動を呈する状態においては, スペクトログラムは, 時間に依らず一定の基本周波数及びその高調波成分を示す. 基本周波数 $f_{0,Rg6} \sim 2.3$ Hz がもっとも強いパワーを有し, 高次高調波となるにしたがってそのパワーが弱くなっている. これは一般的なフーリエ・スペクトルで得られる情報と変わらない. 時刻 $t > 17$ s では, 各周波数成分が時間的に不安定に振動し, かつ, 周波数空間において拡散していく様子が明確に捉えられている. この状態が対流場 Rg7 における一般的な挙動を示している. 一般のフーリエ解析においては, この時間的周波数変動の情報は欠落し, 平均化された周波数分布のみが呈示されている. ここで注目すべきは, 基本周波数 $f_{0,Rg6}$ 近傍の周波数成分が依然として残余しており, 温度変動が準周期的に変動していることである. この準周期的変動が, 擬位相空間を再構成した際にアトラ

Fig. 4 Short-time Fourier spectra of the surface temperature variations; (1) transition from Rg6 to Rg7 at $t \sim 17$ s and (2) fully developed Rg8.

クタの形状に大きく影響を与える。それまでリミットサイクルを示していた Rg6 における軌道(図 3-(f)-(4))が、基本周波数成分の時間的変動に伴って擬位相空間内において拡がりを示すが、Rg6 の基本周波数近傍の周波数成分が強く残っているため、リミットサイクルの面影を残しつつ Rg6 の軌道の周りでのみ軌道の拡がりを示す(図 3-(g)-(4))ことになる。

一方、対流場が十分に発達した Rg8 に遷移すると、図 4-(2)に示すように温度変動はもはや基本周波数を有さず、広帯域の周波数成分を有する変動へと変化する。これは、乱流状態における連続的な周波数分布と同様の状態を示しており、擬位相空間内の軌道が規則的な構造を有さず、空間に広く拡がっている(図 3-(h)-(4))ことと対応している。

これらの定性的結果より、Rg8 は乱流状態を示し、また、Rg7 は、Rg6 までの規則的な対流場と、より発達した乱流場 Rg8 の間の過渡状態を示すものと考えられる。したがって、本研究では Rg7 を第 1 カオス流れ、Rg8 を第 2 カオス流れ(乱流)と名付ける。

つぎに、各対流場の状態をより定量的に評価するため、遅れ時間座標系から求められる相関次元 D_c 及び最大リアプノフ指数 λ_1 を推算する。力学系の自己相似性を示す指標として相関次元が考えられており、非整数値の次元を有する力学系がフラクタル構造を持つとされている。

相関次元は、Grassberger & Procaccia^[10]により提唱された、いわゆる GP アルゴリズムを用いて算出した。十分発達した各流れ場の表面温度時系列データにおいて、約 10000 点から成る 2 次元から 10 次元までの遅れ時間座標系 $v_d(t)$ を用いた。

その結果、Rg6 までの対流場に関しては、 D_c はほぼ 1 の値を取り、リミットサイクルの状態であることが

示された。Rg7 及び Rg8 においては、2 以上の非整数値を取った。図 5 に、両対流場の相関積分の値の空間的変化率を示す。この空間的変化率が収束した値が D_c を表す。Rg7 においては、相関次元 $D_c \sim 2.2$ と推算出来るが(図 5-(1))、Rg8 においては、相関次元 D_c が $2.1 < D_c < 2.6$ であることはわかるが、その収束値を正確に判別することは難しい(図 5-(2))。予備解析において様々な遅れ時間に対して相関次元の推算を試みたが、同様の傾向を得た。これはデータ点数の不足等が原因として考えられるが、このような高 Ma を付加した条件下での長時間にわたる実験実施は、抑制をしているとはいえ試験流体の蒸発が無視出来ず、本実験系では困難である。したがって、本研究において Rg8 における D_c は $2.1 < D_c < 2.6$ として考える。以上の結果より、図 3 に示した各対流場 Rg2 から Rg8 における相関次元の値を図 6 に示す。Rg7 以降の流れ場においては、フラクタル構造を有するであろうことが実験的に示された。

つぎに、Kantz^[11]により提唱されたアルゴリズムをもとに、最大リアプノフ指数 λ_1 を推算した。本研究においては、ある時刻における軌道上の任意の点の座標を $v(t)$ 、その ε -近傍内の M 個の点の座標を $v(k_i)$ ($1 \leq k_i \leq M$) として、初期微小変位の τ_d 時間後の平均発展対数距離割合 $S(\tau_d)$ を以下の式で定義した。

$$S(\tau_d) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \log \left(\frac{1}{M} \sum_{k_i=1}^M \frac{|v(t+\tau_d) - v(k_i+\tau_d)|}{|v(t) - v(k_i)|} \right)$$

したがって、 M 個の初期微小変位が τ_d 時間後に全く発達せず、同じ変位を保つ場合には、 $S(\tau_d)$ はゼロとなる。この推算法によって得られた、図 3 に示した各対流場の最大リアプノフ指数の値を、同じく図 6 に示す。Rg6 までの規則的な構造を有する対流場においては、その値はほとんどゼロとなっており、擬位相空間内においてリミットサイクルを描くアトラクタ形状と対応している。対流場が Rg7 及び Rg8 へと移行すると、 λ_1 は正の値を取り、軌道不安定性を示している。

図 6 に併せて示した通り、各対流場での相関次元及び最大リアプノフ指数から、Rg7 及び Rg8 の対流場に

Fig. 5 Gradient of the correlation integral to evaluate the correlation dimension by applying GP algorithm; (1) Rg7 and (2) Rg8.

Fig. 6 Correlation dimension and maximum Lyapunov exponent for the flow regimes. The experimental condition for each regime is the same as shown in Fig. 3.

において、フラクタル構造と軌道不安定性の両性質を有することが示され、Rg7以降の流れ場がカオスの力学系を有する場であると結論できる。

液柱内粒子挙動あるいは表面温度振動から区別が困難であった対流場に関し、前述したRg7とRg8の定性的な区別に加え、定量的にも分類が可能であることを実験的に初めて示した。以上の解析により、Rg7はカオス状態ではあるが、まだ乱流状態であるとは言えず、対流場はRg8においてより発達した乱流へ移行したものの結論を得た。

4. 結 言

ハーフゾーン液柱内における、温度差マランゴニ対流に関し実験的に研究を行った。従来にない、広範囲に亘る液柱端面間温度差を付加し、すなわち、広範囲に亘るマランゴニ数状態を実現し、液柱内に発生する対流場の各種パターンの特徴を明らかにした。さらに、対流場の可視化及び表面温度変動計測に基づき、Rg1～Rg8の大きく8つの流れ場に分類した。

従来の実験的研究においては、2次元定常流から3次元振動流に遷移した後に、脈動振動流および回転振動流状態を経て乱流状態へ移行すると考えられていたが、本研究によって初めて、液柱内対流場が過渡状態を挟んで2対の脈動及び回転振動流が存在することを示した。ただし、液柱端面間温度差を大きくしていく過程において、Rg2からRg6のすべての対流場を呈しながらRg7およびRg8に到達するのではなく、液柱アスペクト比や温度差上昇速度、外気温などの実験条件に依存して、Rg2からRg6までの対流場のうち、とりうる対流場のみを示し、その後カオス的な流れ場を経て乱流状態へと移行することを明らかにした。

また、第1および第2それぞれの脈動・回転振動流場において、付加するMaが低い脈動時の表面温度振動の周波数の方が回転時のそれよりも高いことを実験的に示した。第1脈動・回転振動流時の周波数の大小関係に関しては、複素ギンツブルグーランダウ方程式を用いた理論モデル^[5]によって予測する傾向と定性的に一致した。

カオス的・乱流的流れ場において、表面温度変動時系列データから擬位相空間を再構成し、相関次元や最大リアプノフ指数を用いて各流れ場の定量的な評価を行った。その結果、Rg7及びRg8はカオス状態にあると定量的にも示し、かつ、乱流状態であるRg8の対流場が生起する前に、カオス的ではあるが乱流状態に遷

移していない状態Rg7が存在することを明らかにした。さらに、予備的に行った実験により、カオスの対流場であるRg7において、より細かい分枝となる対流場が存在することがわかっている。この内容に関しては今後さらなる研究が必要であると考えられる。

謝 辞

本研究は、文部省科学研究費基盤研究(B)(No. 11450089)の補助を援助を受けた。また、本研究における実験及びデータ解析は、東京理科大学大学院 理工学研究科学生の永野 大、西畑 衡平両君の協力のもとに行われた。記して謝意を表す。

文 献

- [1] Cröll, A. *et al.*, Natural and thermocapillary convection in partially confined silicon melt zones, *Microgravity Sci. Technol.* 3 (1991), pp.204-215.
- [2] Preisser, F. *et al.*, Steady and Oscillatory Thermocapillary Convection in Liquid Columns with Free Cylindrical Surface, *J. Fluid Mech.*, Vol. 126 (1983), pp.545-567.
- [3] 河村 洋 他2名, 液柱内マランゴニ対流における振動流遷移とモード構造, *日本機械学会論文集 (B編)*, 67 (2001), pp.1466-1473.
- [4] Frank, S. and Schwabe, D., Temporal and Spatial Elements of Thermocapillary Convection in Floating Zones, *Experiments in Fluids*, 23 (1997), pp.234-251.
- [5] Leypoldt, J. *et al.*, Three-dimensional numerical simulation of thermocapillary flows in cylindrical liquid bridges, *J. Fluid Mech.*, 414 (2000), pp.285-314.
- [6] 信越シリコーン:シリコーンオイルKF96性能試験結果, 信越化学工業技術資料 (1991).
- [7] Schwabe, D. *et al.*, New Features of Thermocapillary Convection in Floating Zones Revealed by Tracer Particle Accumulation Structures (PAS), *Microgravity Sci. Technol.*, 9 (1996), pp. 163-168.
- [8] Tanaka, S. *et al.*, Dynamic Particle Accumulation Structure in Half-Zone Liquid Bridge -Part I: Experimental Study-, *J. Jpn. Soc. Microgravity Appl.*, 17 (Supp.) (2000), pp.111-112.
- [9] Ueno, I. *et al.*, Modal Oscillatory Structure and Dynamic Particle Accumulation in Liquid-Bridge Marangoni Convection, *Proc. of 4th KSME-JSME Thermal Eng. Conf.*, Vol. 3. (2000), pp. 265-270.
- [10] Grassberger, P. & Procaccia, I., Measuring the strangeness of strange attractors, *Physica*, 9D (1983), pp.189-208.
- [11] Kantz, H., A robust method to estimate the maximal Lyapunov exponent of a time series, *Phys. Lett. A*, 185 (1994), pp.77-87.