ソフトモード乱流における粒子拡散の local な挙動と global な挙動について —— Anomalous 拡散から Normal 拡散へ——

九州大学大学院工学研究院 (Faculty of Engineering, Kyushu University) 田村公洋 (Koyo Tamura) 日高芳樹 (Yoshiki Hidaka) 甲斐昌一 (Shoichi Kai)

1 はじめに

時空カオスによるマクロな「拡散」の研究は時空カオスの統計的性質を知るために 有用であり、主に乱流と熱対流系においてなされてきた [1-5].時空カオスは非平衡 散逸系に特有な現象で、ここで言う「拡散」も平衡系における熱的拡散とはまったく 異なり、非熱的な揺動(時空カオスからのランダム力)による物質輸送である.

「拡散」を観測するには2つの手法がある.「拡散」していく物質の集団全体を観 測する方法[2]と,「拡散」していく物質の集団のうちの一粒子の挙動(熱的拡散では これはブラウン運動である)を観測する方法である.熱的拡散の研究では,特に後者 の方法から揺動の統計的性質についての多くの情報が得られた[6,7].また,非熱的 な系においても後者の方法から揺動の統計的性質について有益な情報が得られてい る[8,9].しかし,時空カオスによるマクロな「拡散」の研究においてはまだほとん どこの方法はとられていない.従来「拡散」の研究で行われてきた方法(拡散してい く物質の集団全体を観測する方法)では,多粒子の平均を直接観測している.このた め,一粒子の自己相関関数などはこの方法では得られない.

ところで、このような「拡散」においては拡散物質は分子拡散ではなく流れによっ て運ばれる.流れの取り扱い方には、流れ場(流線)のダイナミクスを追う Euler 形式 と流れによる流体要素の移動を追う Lagrange 形式がある.拡散していく物質の集団 のうちの一粒子の挙動を観測する方法と言うのは、Lagrange 的視点からの研究であ る. Euler 形式ではランダムではないが、Lagrange 的視点ではカオス的振る舞いを顕 にする Lagrange カオスの存在も知られている.このような系ではまさに一粒子の自 己相関関数等の Lagrange 的な量が重要であり、Euler 的視点(時空間パターン解析)と Lagrange 的視点の両面からの研究が必要である.我々は以前、Soft-mode turbulence(以 降 SMT) という時空カオスをとりあげ、そこでの「拡散」に関し Lagrange 的視点か ら実験的研究を行い、SMT での「拡散」が通常の熱的拡散と量的にも質的にも異な る事を示した [10,11]. SMT は 96 年 homeotropic 配向の液晶の電気対流系で発見され [12], その後新しい 型の時空カオスとして,その性質,発生機構が研究されてきた [13–16]. ある種の液 晶系に電場を加えると,ある閾値電圧 V_F で系の 2 次元回転対称性が自発的に破れる. さらに, V_F より高い閾値電圧 V_c で電気対流が発生する.このとき,回転対称性の自発 的な破れに伴う南部-Goldstone mode と対流モードの非線形相互作用で,対流パターン は時空カオス状態となる.これが SMT である.この時空カオスは電圧でコントロール できるが,通常 V_c を用いて規格化した無次元量 $\epsilon = (V^2 - V_c^2)/V_c^2$ をコントロールパラ メータとして用いる.このように,SMT は平面回転対称性が自発的に破れた後に,短 波長の対流のモードが現れる系において,南部-Goldstone mode と対流のモードが非 線形結合することで発生する 2 次元時空カオスである.発生機構が単純であるため, 南部-Goldstone mode と短波長のモードが共存する系では同様の時空カオスが広く見 られると期待されている [15,16].SMT は次のような特徴をもつ.

- 1. 局所的には対流構造を保ったまま,対流の波数ベクトルの向きがランダムになっている時空カオスである.
- 2. 空間2次元の時空カオスと見なすことができる.

3. マクロに見ると等方的である.

- 対流発生と同時に超臨界的に時空カオスが現れる. つまり ϵ = 0 は, 対流の発生 点であると同時に時空カオスの発生点でもあり, そこではカオス揺らぎの相関 時間が発散する.
- 5. SMT は電場によって制御できるため、熱対流系に比べて系の制御が容易である。
- 6. SMT を記述する方程式が提案されており [15], 数値計算と実験の両面から扱 える.

時空カオスの統計的性質を調べるにあたってこのように普遍的な時空カオスである SMTを用いることで,液晶の電気対流系に留まらない一般的な性質が得られると期 待できる.

我々はSMTでの「拡散」に関して2つのことを行った.以前の研究[10,11]においてSMTの空間的パッチ構造の「拡散」への影響が見られたので、まずパッチ構造の可視化と、パッチの平均サイズの ϵ 依存性の測定を行った.次に、未だ「拡散」の印加電圧依存性は求めていないので、 $D(\tau)$ に着目し、異なる印加電圧で $D(\tau)$ を求める実験を行った.その結果、 $D(\tau)$ の挙動が変わる特性時間 τ_0 が存在すること、 $\tau < \tau_0$ の領域での振る舞いが異常拡散であることが判った.

2 実験

実験は以下のように行った.用いた液晶は,MBBA(p-Methoxy-Benziliden-p'-Buthyl-Annyline) にTBAB(Tetra-n-Buthyl-Ammonium Bromid) を 0.01wt%混合して,電気伝 導度を $5 \times 10^{-8} \Omega^{-1} m^{-1}$ に調整したものである.これを観察用のセルに封入した.この セルは内部の厚さ $50\mu m$,縦及び幅が 15.0mm で,上下の面が電極になっている.この 電極は ITO(Indium Tin Oxide) を蒸着したガラスであり,これを通して顕微鏡で観察を 行った.さらに,ITO の上には DMAOP(*n*-Octadecyl-Dimethyl-Ammonium chloride) が 配向剤として塗布されており,homeotropic 配向が実現されている.電場は AC 100Hz を印加した.実験中、セルの温度は 30.0 °C に保持した.

空間パターンの解析では、SMT の顕微鏡画像 (リレーレンズ ×0.6、対物レンズ ×4.0) を時間間隔 10 秒で 200 枚取得した. この際、カメラからの画像は直接コンピューター に取り込んだ. また、AD 変換は 12bit(4096 階調) で行った. 以上を、0.05 ~ 0.10 の 範囲の異なる ϵ の値について行った. こうして得た画像から、パッチ構造の可視化と パッチの平均サイズの導出を行った.

一方「拡散」の実験では、同様のセルに流れのトレーサーとして、ミクロパール (積水化学 粒径3.88 μ m,粒径の標準偏差0.21 μ m,密度1.28×10³ kg/m^3)を少量混入 して観察用のセルに封入した.トレーサーの上下方向の動きについては無視し、2次 元運動として扱った.以上のような条件下にて、トレーサーの位置を3秒ごとに記録 した.このとき、追跡するトレーサーを一つ決め、その粒子の時系列を作成した.こ の時系列 $x(t_i)$ をもとに

$$D(\tau) = \frac{\langle |\vec{x}(t+\tau) - \vec{x}(t)|^2 \rangle}{4\tau}$$
(1)

を計算した.ここで $\langle \cdot \rangle$ は時間に関する平均である. $D(\tau)$ は $\tau \to \infty$ で, 拡散定数の定義と一致する. $D(\tau)$ の挙動は以下のようになる.

- 1. 拡散粒子がランダムウォークで記述される場合, D(τ) は一定になる.
- 2. 粘性項の無い Langevin eq. に従う系では $D(\tau)$ は τ に比例する.
- 3. 異常拡散で拡散する系では $D(\tau)$ は τ の冪で変化し, 冪の指数 η は $0 < \eta < 1$ を 満たす非整数である.

また, τ が導入されていることで, $D(\tau)$ は「拡散」の時間スケールへの依存性を顕に する. 各時間スケールにおいて「拡散」がどのようにみえるかを $D(\tau)$ の τ 依存性は 示している.

3 結果と考察

波数ベクトルの空間分布を Fig.1 に示す. これは SMT のスナップショット (Fig.1a)の各点で,周囲の小領域を 切り出して小領域でフーリエ変換を行うことにより,そ の点での局所的波数ベクトルを求めている. その結果 (波数ベクトルの向き)を明暗で示したのが Fig.1b であ る.具体的には局所的波数ベクトル $\vec{k} \in k_0 \simeq const.$ と して,

$$\vec{k}(x, y) = (k_0 \cos(\phi(x, y)), k_0 \sin(\phi(x, y)))$$
(2)

とした時の $\phi \in -90^\circ \le \phi \le 90^\circ$ の範囲で表示した.波 数ベクトルの向きが揃った領域がモザイク状に存在し ている.この小領域の平均サイズの ϵ 依存性を Fig.2 に 示す.これは以下のようにして求めた.

まず,パッチの内部はきれいな周期パターンであり, 各パッチの内部ではパターンは

$$g_j(x) = A_j \exp(ik_j x) + c.c.$$
(3)

であるとする. ここで jはパッチを識別するインデック スとし、 $k_j = k_c(k_c$ は定数) が成立するとする. x は全観 察領域における座標である. $g_j(x)$ の値はパッチ j の外 では0とする. つまり, $g_j(x)$ は全観察領域で定義され

た関数であるが,パッチjの内部でのみ0以外の値をとる.このとき,全領域でのパ ターンは

$$f(x) = \sum_{j} g_{j}(x).$$

これをフーリエ変換する. パッチ jの面積を σ_j , 全領域の面積を σ とすると, $\sigma_j \gg k_j^2$ が成立すればこのフーリエ変換の k_j での値は,

$$\hat{f}(k_j) = A_j \sigma_j / \sigma. \tag{4}$$

それに伴いスペクトルの強度は

$$S(k_i) = |A_i|^2 \sigma_i^2 / \sigma^2 \tag{5}$$

Fig. 1: SMT のスナップショ ット (a) 及び,局所的な波数 ベクトルの空間分布 (b).





Fig. 2: パッチのサイズの ϵ 依存性. 実線は ϵ の -1/2 乗の曲線.

となる. 従って, 波数 k_jのスペクトルが全スペクトルに占める割合いは

$$\frac{\sum_{j} S(k_{j})}{\int S(k) dk} = \frac{\sum_{j} |A_{j}|^{2} \sigma_{j}^{2}}{\sigma^{2} \sum_{j} |A_{j}|^{2} \sigma_{j} / \sigma}$$
(6)

であり、 |A,| = Aを仮定すると,

$$\frac{\sum_{j} S(k_{j})}{\int S(k) dk} = \sum_{j} \frac{\sigma_{j}^{2}}{\sigma^{2}}.$$
(7)

この右辺は、パッチのサイズが一様だとすれば σ_p/σ に等しい. 但し σ_p はパッチのサイズである. そこで、

$$\frac{l_p^2}{l_s^2} = \frac{\sum_j S(k_j)}{\int S(k) dk}$$
(8)

とすることで、パッチ分布の特性長 l_p を求めた. 但し、 l_s は視野のサイズである. Fig.2 に示したように l_p は $\epsilon^{-1/2}$ に比例した.

Fig.3に「拡散」の実験の結果を示す. (a)(b) どちらも同じデータを使っている. Fig.3a から判るように, ϵ のどの値についても τ が数 100秒の辺りまでは急激に $D(\tau)$ は増加 している. それが τ が 200s ~ 500s の辺りから激しく振らつき始める. 以降, $D(\tau)$ が 振らつき始める前の領域をL領域, 振らつき始めた後の領域をN領域とする. Fig.3b は同じデータを両対数でプロットした図であるが, L領域では $D(\tau)$ は τ の冪関数で あることが見て取れる. また, この冪関数の指数は ϵ を変えてもほとんど変化してい ない.

L領域における特徴は冪の指数である. Fig.3b において指数は明らかに1未満の非 整数であり、従って系は異常拡散である. 異常拡散では

$$\langle |\vec{x}(t+\tau) - \vec{x}(t)|^2 \rangle \propto \tau^{1+\eta} \quad (t \to \infty) \quad 0 < \eta < 1$$
⁽⁹⁾



Fig. 3: SMT 中での粒子拡散における $D(\tau)$. それぞれ linear scale での plot(a) と log-log plot(b).

となることが知られている [17]. したがって,異常拡散での $D(\tau)$ は指数が η の冪関数になる.SMTのL領域においては τ は有限の値までであるが,L領域とN領域の境界 τ_0 は100s ~ 500sであり,これは対流による回転の周期(数秒)に比べて十分大きい.従って,対流ロール間の移動を議論する場合 $\tau_0 \to \infty$ として,時間のスケールとして「対流による回転の周期」だけが現れるモデルで扱えると考えられる.SMTではこのモデルが異常拡散で「拡散」するモデルであることをFig.3bは示している. それが τ_0 のスケールに達することで, $\tau_0 \to \infty$ が妥当でなくなったと考えられる.

パターンの解析から判るように、SMT では対流ロールが揃っている領域がパッチ 状になっている.パッチの平均的なサイズを l_p とすると拡散を観測するスケールが l_p に比べて大きいか小さいかで、挙動が変化すると考えられる.この場合パッチの変 化を無視すれば τ_0 と l_p との間に

$$l_p^2 = 4\tau_0 D(\tau_0)$$
 (10)

が成立する. つまり、 τ_0 は拡散で l_p 程度の距離を移動する平均時間である. パッチ のサイズより小さいスケールでは異常拡散であることを Fig.3 は示していると考えら れる. パッチの内部では対流ロールが揃っており、それが揺らいでいる. この状況は 振動 Rayleigh-Bénard 対流と良く似ている. 振動 Rayleigh-Bénard 対流ではレヴィフラ イトによる異常拡散が確認されており [2,3]、こちらも同様な現象が起きていると考 えられる. また、異常拡散は Lagrange 的な視点での流れの時間相関が冪で減衰する 現象であるが、 τ_0 は異常拡散が見られなくなるスケールであることから Lagrange 的 な視点での流れの時間相関が消失する減衰時間であると考えられる. 従って Fig.3a の N領域に属する時間で系を離散化すれば、粒子の運動は各時間で無相関となり、通常のランダムウォークで記述されると考えられる.

4 まとめ

本研究では SMT に関して次のことを行った.まず,パッチ構造の可視化とパッチ のサイズの ϵ 依存性の測定を行った (Euler 的視点).次に,そこでの「拡散」の ϵ 依存 性を調べた (Lagrange 的視点).その結果以下のことが判った.SMT では

- 1. 空間パターンにパッチ状の構造があり、パッチの平均サイズは *ϵ*^{-1/2} に比例する.
- 2. 「拡散」の挙動が変るスケール τ₀ が存在する.
 - (a) τ_0 より小さいスケールL領域では異常拡散である.異常拡散の冪の指数は ϵ に依存しない.
 - (b) To より大きなスケールN領域ではランダムウォークである.

参考文献

- [1] T. H. Solomon and J. P. Gollub. Passive transport in steady rayleigh-bénald convection. *Phys. Fluids*, 31:1372, 1988.
- [2] T. H. Solomon and J. P. Gollub. Chaotic particle transport in time-dependent rayleighbénard convection. *Phys. Rev. A*, 38:6280, 1988.
- [3] Katsuya Ouchi and Hazime Mori. Anomalous diffusion and mixing in an oscillating rayleigh-bénard flow. *Prog. Theor. Phys.*, 88:467, 1992.
- [4] Syuji Miyazaki. Anomalous time scaling of the mean square distance in on-off diffusion. J. Phys. Soc. Jpn., 69:2719, 2000.
- [5] Hidetsugu Sakaguchi. Chaotic diffusion of particles with finite mass in oscillating convection flows. *Phys. Rev. E*, 65:067201, 2002.
- [6] R. Kubo, M. Toda, and N. Hashitsume. Statistical Physics II. Springer, 1985.
- [7] Robert J. Rubin. Statistical dynamics of simple cubic lattices. model for the study of brownian motion. J. Math. Phys., 1:309, 1960.

- [8] Frank Schweitzer, Werner Ebeling, and Benno Tilch. Complex motion of brownian particles with energy depots. *Phys. Rev. Lett.*, 80:5044, 1998.
- [9] Michio Tomishige, Yasushi Sako, and Akihiro Kusumi. Regulation mechanism of the lateral diffusion of band 3 in erythrocyte membranes by the menbrane skeleton. J. Cell Biol., 142:989, 1998.
- [10] Koyo Tamura, Yusril Yusril, Yoshiki Hidaka, and Shoichi Kai. Nonlinear transport and anomalous brownian motion in soft-mode turbulence. J. Phys. Soc. Jpn., 70:2805, 2001.
- [11] Koyo Tamura, Yoshiki Hidaka, Yusril Yusuf, and Shoichi Kai. Anomalous diffusion and lévy distribution of particle velocity in soft-mode turbulence in electroconvection. *Physica A*, 306:157, 2002.
- [12] Shoichi Kai, Ken ichi Hayashi, and Yoshiki Hidaka. Pattern forming instability in homeotropically aligned liquid crystals. J. Phys. Chem., 100:19007, 1996.
- [13] Yoshiki Hidaka, Jong-Hoon Huh, Ken ichi Hayashi, and Shoichi Kai. Soft-mode turbulence in electrohydrodynamic convection of a homeotropically aligned nematic layer. *Phys. Rev. E*, 56:R6256, 1997.
- [14] Tomoyuki Nagaya and Hiroshi Orihara. Dynamic image analysis for the fluctuations of electrohydrodynamic convection in a homeotropically aligned nematic liquid crystal. J. Phys. Soc. Jpn., 69:3146, 2000.
- [15] Michael I. Tribelsky. Statistical properties of chaos at onset of electroconvection in a homeotropically aligned nematic layer. *Phys. Rev. E*, 59:3279, 1999.
- [16] Hirokazu Fujisaka and Tomoji Yamada. Possibility of soft-mode turbulence in reaction-diffusion systems. *Prog. Theor. Phys.*, 106:315, 2001.
- [17] X.-J. Wang. Dynamical sporadicity and anomalous diffusion in the lévy motion. Phys. Rev. A, 45:8407, 1992.