

シア一流れを伴う薄膜下での相転移における 固液界面の ripple 形成機構

名古屋大学大学院工学研究科 計算理工学専攻 上之 和人 (kazuto Ueno)

Department of Computational Science and Engineering,
Graduate School of Engineering, Nagoya University

1 はじめに

薄い液膜はどこにでも存在し多様な興味深いダイナミックスを示すことが知られている [1]. 例えば, 雨水が窓ガラスをシート状に落ちるときのように, 固い壁を流れ落ちる薄膜状の液体の複雑な流れパターンは日常生活でよく目にする現象である. Benjamin は, 重力の作用のもとで傾斜面を流れ落ちる粘性流体の層流の安定性を調べた [2]. この場合は, 液体の片側は自由表面であり, もう片側は変形することのない平板である. ところが, 液体が固液界面上を流れ落ちながら相転移を起こす場合, 固液界面の形態不安定が生じることがある. そのような例が, 図 1 (a) に示すようなつららの表面上にできるリングを積み重ねたような波模様である [3]. その波模様は, つららの表面上を流れる薄膜状の水が, 0°C 以下の周囲の冷たい外気にさらされながら凍るときに発生する. この波模様の平均波長は, 外気温, 水の供給率, つららの半径にはよらずに常に約 1 cm であることが知られている. また図 1 (b) は, つららの表面上を流れ落ちる水に含まれていた空気が, つららの任意の突部のちょうど上方域からたくさんの小さな気泡となって結晶の中に捕りこまれた跡を示している [3]. それらが一定間隔で斜め上の方向に動いていることは, つららの成長とともに初期の平坦な固液界面 (氷-水) は形態不安定を起こすだけでなく上方に移動することを示している.

図 2 (a) に示すような装置を $-8 \pm 1^{\circ}\text{C}$ の低温実験室内に設定し, 傾斜角 θ , 長さ 60 cm , 幅 $l = 3\text{ cm}$ の溝に, 傾斜面の上から $Q = 160\text{ ml/h}$ の割合で 0°C の水を流し続けた時にも, つららと同じような波模様が発生することが知られている [4]. 流出口からは 0°C に近い水が流れ出しているために流出口近くの水はまだ過冷却が進んでいないが, 下にいくにつれて低温室内の外気に冷やされて過冷却状態の水になる. 図 2 (b) の■が実験結果であるが, 斜面角 θ の減少にともなって波模様の波長が長くなることを示している. つららのように鉛直下に水が流れる場合はこの実験でいうと $\theta = \pi/2$ の場合に対応しているが, このとき波模様の波長は約 8 mm であった.

結晶成長における形態不安定性の基本となるのは, Mullins-Sekerka (MS) 理論である [5]. MS 理論は, 固液界面の初期の攪乱に対する成長条件を与える. 固化進行中の平らな界面の一部が揺らぎで過冷却液体側に突出すると, 突出部の前の温度勾配が大きくなるために熱拡散による潜熱の排除がはやくなり, この揺らぎは助長される傾向がある. これは, Mullins-Sekerka (MS) 不安定性と呼ばれている. しかし, 固液界面の突出部は界面張力により平衡温度が下がる. その結果, 界面での実効的過冷却度が小さくなり突出部の加速が抑えられる. これを Gibbs-Thomson (GT) 効果という. この MS 不安定性と呼ばれる拡散過程による平坦な界面の不安定化と GT 効果による安定化の拮抗の結果として, $10 \sim 100\ \mu\text{m}$ のオーダーの波長 $\lambda_{\text{max}} = 2\pi\sqrt{3l_d d_0(1+n)}$ をもつパターンが発達してくる. ここで $n = K_s/K_l$ であり, K_s, K_l はそれぞれ固体, 液体の熱伝導度である. λ_{max} にはふたつの特徴的な長さが含まれている. ひとつは, 凝固により放出された潜熱が固液界面前方の液体内にたまることによって形成された層の厚みを表す熱拡散長 $l_d = \kappa_l/\bar{V}$ である. これは通常, 結晶成長の平均速度 \bar{V} と液体の熱拡散係数 κ_l の値で決まるマクロな長さである. もうひとつは固液界面の界面張力 Γ に関係した毛管長 $d_0 = T_m\Gamma C_p/L^2$ であり, オングストロームのオーダーのマイクロな長さである. ここで, T_m は融点

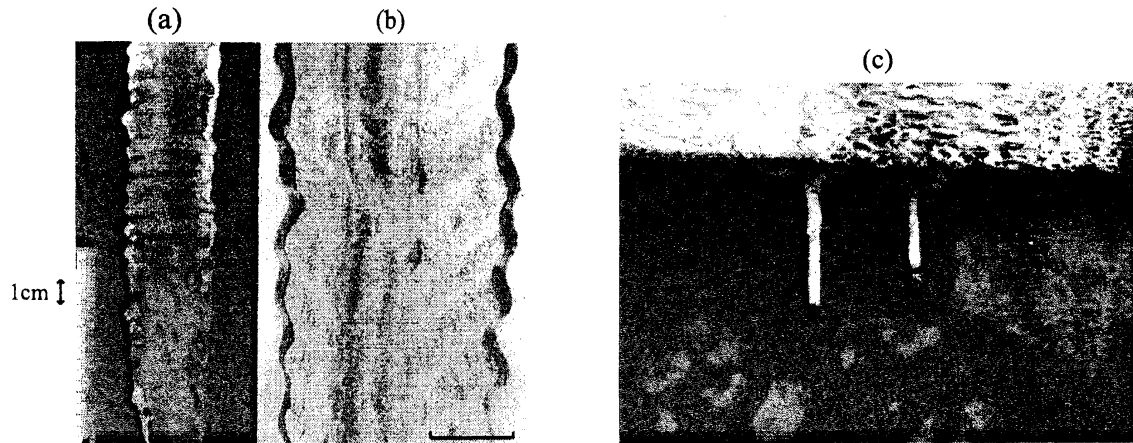


図1 (a) つららの波模様. (b) 波模様をもつららの鉛直断面の薄片写真. (前野氏提供) (c) コンクリートつららの波模様. (小西氏提供)

温度, C_p は液体の定圧比熱, L は単位体積当たりの潜熱である [6, 7]. つららの表面上を流れる水の液膜の典型的な厚さは約 $100 \mu\text{m}$ なので, 熱拡散の層は液体内に形成されない. さらに, つららの波模様の波長は約 1 cm なので GT 効果は無視できる. また, つららの表面には水が流れているので, 結晶化した際に界面で発生する潜熱の輸送過程が拡散だけではないことに注意しなければならない. つららの波模様の波長は, MS 理論で予測される波長に比べると数桁長いから, MS 理論に登場する特徴的な長さとは違うものを導入し, つららの波模様形成に対する全く新しいメカニズムを展開する必要がある.

固液での相転移の過程で液体内に流れがあると, 新しい種類の界面の不安定性が起こることはよく知られている [8]. しかし, 著者の知る限りでは, 自由表面をもつシア一流れのある液膜からの結晶成長界面の形態不安定性はほとんど調べられたことはなかった. 最近, Ogawa と Furukawa によってはじめてつららの表面上の波模様形成を定量的に説明する理論的な試みがなされた [9, 10]. 彼らは, 図 2 (c) に示すように変形する固液界面と気液界面 (特に, 氷-水と水-空気の界面) を考慮し, 両界面での温度の連続性と熱流の保存側の境界条件から, 気体内と流れのある液膜内の温度分布を計算した. このモデルによると, つららの波模様の成長ではふたつの効果が重要な役割を果たしているという. 第 1 の効果はラプラス不安定性である. 潜熱はつららの凸面からのほうが凹面からよりも速く失われていくので, つららの飛び出たところのほうがくぼんだところよりも速く氷が積み重なってゆき, 波模様が増幅されるという. ふたつめの要因は流体効果である. 薄い水膜における流れが水膜内の温度分布を一様にすることによってラプラス不安定性を抑制する. これらふたつの効果の競合の結果としてある特定の波長をもつ波模様が現れるとした. しかし, 図 2 (b) に示すように彼らの理論から計算された波模様の波長 ▲ の傾斜面の角度依存性は実験結果 ■ から大きくずれている. さらに彼らの理論は, 波模様はつららの平均速度のおよそ半分の速度で下の方向に移動することを予測したが, これは図 1 (b) に示す観察結果とは反対である. 彼らの理論結果と実験や観察結果との矛盾点を明らかにするために, つららの波模様形成と移動の全く異なるメカニズムが著者によって提唱された [11, 12]. 以下では著者の理論から得られた結果を簡単に要約する.

最初の論文 [11] では, 固液界面の形態不安定性を線形安定性解析によって調べた. 重力と表面張力による復元力は気液界面に作用するけれども, 液膜が非常に薄いために, 固液界面の振幅と気液界面の振幅が復元力をもとに関係していることは重要であることを明らかにした. この復元力の効果は [9] では考慮されていなかった. 著者が得た分散関係式はふたつの特徴的な長さを含んでいる. ひとつは液膜の厚さであり, もうひとつは気液界面の表面張力に関係した毛管長である. 水の場合には毛管長は mm のオーダーである [13]. MS 理論に登場するのはと違うこれらの特徴的な長さのために, つららの表面上の波模様の波長は MS 理論から予測され

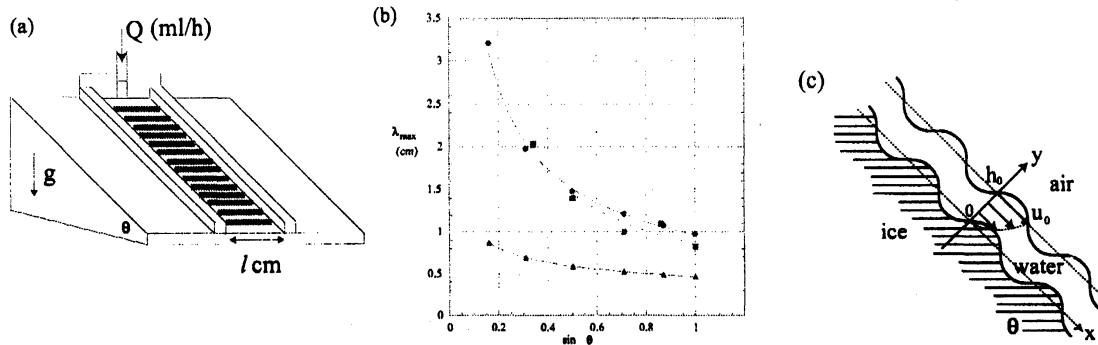


図2 (a) 木製の板の上を流れ落ちる過冷却水の液膜からの氷の成長の模式図。一様間隔の影の部分の水結晶の周期的な波模様を表す。(b) 波模様の波長 λ_{max} の $\sin\theta$ 依存性。■: 実験結果 [4], ▲: Ogawa-Furukawa 理論の結果 [9], ●: 著者の理論結果 [11]。(c) 角度 θ の傾斜面の垂直断面 (x, y) の模式図。

るものよりずっと長いことがわかった。実験と同じ水の供給率 $Q = 160 \text{ ml/h}$ を使い傾斜面の角度 θ を変えることによって波模様の波長を計算した結果、図 2 (b) の●が示すように角度の減少に伴って波長は長くなることを示し、その傾向は実際の実験結果■とも非常によく一致した。さらに、著者の理論では界面が上方に移動することを示し、それは図 1 (b) に示す観察結果とも矛盾していない。

次の論文 [12] では、変形した固液界面とそこでの熱流の分布との位相差 $|\phi|$ の大きさが界面の不安定性、安定性の原因であることを明らかにした。変形した固液界面の波数に依存して、重力や表面張力による復元力の大きさは変化し、 $|\phi|$ の大きさも変化することを示した。 $|\phi| < \pi/2$ ならば固液界面は不安定であり、 $|\phi| > \pi/2$ ならば安定であることがわかった。また熱流分布の固液界面に対する位相差の方向、つまり ϕ の符号が固液界面の移動の方向に関係していることを示した。[9] では、気液界面に作用する復元力の効果は無視されているので、気液界面は固液界面と同振幅、同位相で揺らぐことになる。その結果、[9] で導かれた分散関係式は気液界面の表面張力に関係した毛管長を含んでいない。このことが原因で、つららの波模様形成のメカニズムに対して著者とは違う解釈をもたらした。

前の論文 [11, 12] では、実験 [4] と同じ水の供給率で傾斜面の角度 θ を変えることによって波模様の波長を計算した。実験は、数々の条件で試した中で、 $Q = 160 \text{ ml/h}$ の場合が見た目に最も明瞭な波模様が形成されたということでこの値に固定して行われた。著者の分散関係式は液膜の厚さ $h_0 = [3\nu Q / (lg \sin\theta)]^{1/3}$ を含んでいる。ここで、 l は平板の溝の幅、 ν は動粘性係数、 g は重力加速度である。 h_0 は、角度を減少させることによって増加するが、 Q を変えることによってでも変化する。実験と著者の理論の結果では、波模様の波長は、 θ の変化による液膜の厚さに関係していることを示していたので、 Q が変化しても波模様の波長は変化するものと期待される。それにもかかわらず、天然のつららの表面上の波模様の波長は Q には依存しないようである。それを明らかにするために、波模様の波長の供給率依存性を調べる必要がある。しかし、以前の定式化 [11] は少量の供給率でのみ妥当なものなので Q が大きいときにはそのままの形では適用できないことを示す。ここでは、もっと多量の供給率にも適用できる形に以前のものを拡張し、天然のつららの表面上の波模様の波長の普遍性を説明するパラメーターを同定する。また、固液界面の位相速度の供給率依存性についても述べる。最後に、つららの表面上にできる波模様と鍾乳石の表面上に出来る波模様との関連性について述べる。

2 支配方程式

図 2 (c) に示すように、以下の解析は 2 次元の垂直平面 (x, y) に限定する。 x 軸は斜面の方向に平行であり、 y 軸はそれに垂直な方向である。 $y = 0$ は、結晶の平均の成長速度 \bar{V} で動く座標系から見たときの固液界面の

位置とする。本来は、基盤の上に有限の厚さをもつ結晶が成長していくわけだが、簡単のため、結晶領域は半無限遠に広がっていると仮定する。

\bar{V} で固液界面とともに動く座標系での、液体、結晶、空気内の温度 T_l , T_s , T_a の方程式は、それぞれ、

$$\frac{\partial T_l}{\partial t} + u \frac{\partial T_l}{\partial x} + v \frac{\partial T_l}{\partial y} = \kappa_l \left(\frac{\partial^2 T_l}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_l}{\partial y^2} \right), \quad (1)$$

$$\frac{\partial T_s}{\partial t} - \bar{V} \frac{\partial T_s}{\partial y} = \kappa_s \left(\frac{\partial^2 T_s}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_s}{\partial y^2} \right), \quad (2)$$

$$\frac{\partial T_a}{\partial t} - \bar{V} \frac{\partial T_a}{\partial y} = \kappa_a \left(\frac{\partial^2 T_a}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_a}{\partial y^2} \right), \quad (3)$$

で与えられる。ここで、 t は時刻、 κ_l , κ_s , κ_a は、それぞれ、液体、結晶、空気の熱拡散係数である。 u , v は、 \bar{V} で動く座標系から測定した x , y 方向の速度である。実際のつららの直径の成長速度の測定によると、風速の増加によって、液膜を通しての空気中への潜熱の放出が促進され、 \bar{V} の値は増加することが知られている [3]。 \bar{V} の値によって、固液界面の揺らぎの成長率の大きさは変化するが、最大成長率から決まる波模様の波長は変化しないことを後で見る。我々の興味が波模様の特徴的な波長を求めることにある限り、 T_a の方程式には空気の流れはないものと仮定する。

角度 θ の傾斜面を流れ落ちる流れの流速 u , v に対する Navier-Stokes 方程式は、

$$\frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} = -\frac{1}{\rho_l} \frac{\partial p}{\partial x} + \nu \left(\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \right) + g \sin \theta, \quad (4)$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial x} + v \frac{\partial v}{\partial y} = -\frac{1}{\rho_l} \frac{\partial p}{\partial y} + \nu \left(\frac{\partial^2 v}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} \right) - g \cos \theta, \quad (5)$$

である。ここで p は圧力、 ρ_l は液体の密度である。連続の方程式は、

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} = 0, \quad (6)$$

である。

3 境界条件

3.1 熱力学的境界条件

変形した固液界面 $y = \zeta(t, x)$ での温度の連続性は、

$$T_l|_{y=\zeta} = T_s|_{y=\zeta} = T_m + \Delta T, \quad (7)$$

であるとし、 T_m は平衡論的融点温度であり、結晶と液体の化学ポテンシャルを等しいとおくことによって得られる。 ΔT はそれからのずれである。1 cm 程度の波長では、GT 効果による融点の降下 ΔT を無視することができる。しかし、 $T_l|_{y=\zeta} = T_s|_{y=\zeta} = T_m$ の条件を課して液体内の温度揺らぎの解を求めると、実験や観察結果と矛盾しない結果を得ることができなかった [11, 12]。それ故に、GT 効果とは違うずれ ΔT を考慮に入れなければならないが、 ΔT は液体内の温度揺らぎの解が決まった後で決めることができる。

固液界面での熱流の保存則は

$$L \left(\bar{V} + \frac{\partial \zeta}{\partial t} \right) = K_s \frac{\partial T_s}{\partial y} \Big|_{y=\zeta} - K_l \frac{\partial T_l}{\partial y} \Big|_{y=\zeta}, \quad (8)$$

である。ここで、 L は単位体積あたりの潜熱、 K_s, K_l は結晶と液体の熱伝導度である。

一方、変形した気液界面 $y = \xi(t, x)$ での温度の連続性は、

$$T_l|_{y=\xi} = T_a|_{y=\xi} = T_{l_a}, \quad (9)$$

であり、 T_{l_a} は気液界面での温度である。これは、以下で議論するように周囲の空気の条件から決定されるべきものである。

気液界面での熱流の保存則は、

$$-K_l \frac{\partial T_l}{\partial y} \Big|_{y=\xi} = -K_a \frac{\partial T_a}{\partial y} \Big|_{y=\xi}, \quad (10)$$

であり、 K_a は空気の熱伝導度である。

3.2 流体力学的境界条件

液膜内の流れの両方の速度成分は、固液界面上で次の条件を満たさなければならない。

$$u|_{y=\zeta} = 0, \quad (11)$$

$$v|_{y=\zeta} = 0. \quad (12)$$

ここでは固液の密度差により誘導された流れは無視した。

気液界面上での運動学的条件は、

$$\frac{\partial \xi}{\partial t} + u|_{y=\xi} \frac{\partial \xi}{\partial x} = v|_{y=\xi}, \quad (13)$$

である。自由表面上ではシアーストレスはゼロにならなければならないので

$$\frac{\partial u}{\partial y} \Big|_{y=\xi} + \frac{\partial v}{\partial x} \Big|_{y=\xi} = 0. \quad (14)$$

また、気液界面の表面張力 γ で誘導されたストレスを含むノーマル方向のストレスの連続性より、

$$-p|_{y=\xi} + 2\rho_l \nu \frac{\partial v}{\partial y} \Big|_{y=\xi} - \gamma \frac{\partial^2 \xi}{\partial x^2} = -P_0. \quad (15)$$

ここで、 P_0 は大気圧である。

4 線形安定性解析

4.1 摂動

T_l, T_s, T_a, u, v, p を、次のようにバーで記した定常な非摂動部分とプライムで記した摂動部分に分割する： $T_l = \bar{T}_l + T'_l, T_s = \bar{T}_s + T'_s, T_a = \bar{T}_a + T'_a, u = \bar{U} + u', v = v', p = \bar{P} + p'$ 。図 1 (a) に示すように、つららの波模様は主流方向の x 方向のみに変動していて周方向の変動は特に見られないので、固液界面に次のような形の摂動を考える。

$$\zeta(t, x) = \zeta_k \exp[\sigma t + ikx]. \quad (16)$$

ここで k は波数、 $\sigma = \sigma_r + i\sigma_i$ であり、 $\sigma_r, \sigma_i \equiv -\sigma_i/k$ はそれぞれ固液界面の揺らぎの成長率、位相速度を表す。 ζ_k は界面の微小振幅であり、以下は ζ_k の 1 次までを考慮した線形安定性解析である。この固液界面の摂動に対して、気液界面、液体、固体、気体、流れ関数、圧力の摂動が次のような形に書けると仮定する。

$$\xi(t, x) = h_0 + \xi_k \exp[\sigma t + ikx], \quad (17)$$

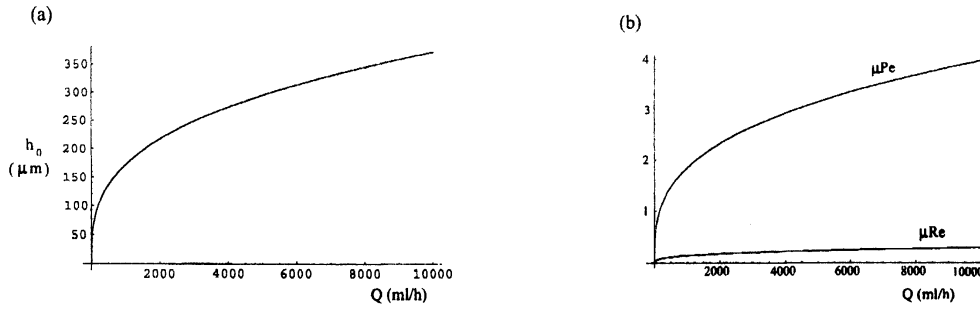


図3 $l = 3 \text{ cm}$, $\theta = \pi/2$ のとき, (a) 液膜の平均の厚さ h_0 の水の供給率 Q による変化. (b) $k = 2\pi/0.01 \text{ m}^{-1}$ のときの μPe , μRe の値の Q による変化.

$$T'_i(t, x, y) = g_i(y) \exp\left(-\frac{\rho \bar{V}}{2\kappa_i} y\right) \exp[\sigma t + ikx], \quad (18)$$

$$T'_s(t, x, y) = g_s(y) \exp\left(-\frac{\bar{V}}{2\kappa_s} y\right) \exp[\sigma t + ikx], \quad (19)$$

$$T'_a(t, x, y) = g_a(y) \exp\left[-\frac{\bar{V}}{2\kappa_a}(y - h_0)\right] \exp[\sigma t + ikx], \quad (20)$$

$$\psi'(t, x, y) = F(y) \exp[\sigma t + ikx], \quad (21)$$

$$p'(t, x, y) = \Pi(y) \exp[\sigma t + ikx]. \quad (22)$$

ここで, ξ_k , g_i , g_s , g_a , F , Π は振動部分の振幅であり ζ_k のオーダーである. (6) 式から, u' , v' は次のように流れ関数から求めることができる.

$$u' = u_0 \frac{\partial \psi'}{\partial y}, \quad v' = -u_0 \frac{\partial \psi'}{\partial x}. \quad (23)$$

非振動部分の \bar{U} の解は, パラボラ型のシアー流れ

$$\bar{U}(y) = u_0 \left\{ 2\frac{y}{h_0} - \left(\frac{y}{h_0}\right)^2 \right\}, \quad (24)$$

である [13]. $u_0 = gh_0^2 \sin \theta / (2\nu)$ は自由表面での最大流速である. そのとき, 水の供給率 Q は

$$Q = l \int_{\zeta}^{\xi} dy (\bar{U} + u') \sim \frac{2}{3} u_0 h_0 l, \quad (25)$$

で与えられる. ここで u' については次に求める流れ関数の近似解を使う. (25) 式の結果は, ζ_k のオーダーでは液膜の平均の厚さ h_0 はほとんど変化しないことを意味する. これより h_0 は次のように表現できる.

$$h_0 = \left(\frac{3\nu Q}{lg \sin \theta} \right)^{1/3}. \quad (26)$$

実際の実験では, h_0 , u_0 の値は, Q , θ , l を変えることによって簡単に制御できる. ここでは, ν は液体の温度には依存しないと仮定する.

実験では [3], 人工つららは, 温度, 水の供給率, 風速を制御することによって作られた. 水の供給率は, $Q = 14.4$ から 108 ml/h の範囲で変化させた. 一方, 実験 [4] での水の供給率は $Q = 160 \text{ ml/h}$ に固定されていた. $Q = 160 \text{ ml/h}$, $\theta = \pi/2$, $l = 3 \text{ cm}$, 水の $\nu = 1.8 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ のとき, $h_0 = 93 \mu\text{m}$, $u_0 = 2.4 \text{ cm/s}$ となる. このときレイノルズ数を $Re = u_0 h_0 / \nu$ で定義するとその値は約 1.24 であり, 斜面上の流れは層流であ

る。先の h_0, u_0 を使うと $Re = 3Q/(2l\nu)$ と表現できるので、 Re は Q/l のみに依存し θ には依存しないことに注意する。図 3 (a) は、 $\theta = \pi/2$ のとき、 h_0 の Q 依存性を示している。 h_0 は Q とともにゆっくりと増加している。 Re の値が非常に大きくなると、流れの不安定性を無視することができない。そのような状況では、基本流 (24) 式が不安定になるので、 h_0 の値を見積もる際に (26) 式を使うことはできない。

4.2 流れ関数の摂動部分の振幅の方程式とその近似解

u', v', p' を (4), (5) 式の摂動部分の方程式に代入し、(4) 式を y 微分、(5) 式を x 微分することによって Π を消去すると、次の Orr-Sommerfeld 方程式を得ることができる。

$$\begin{aligned} \frac{d^4 f}{dy_*^4} - 2\mu^2 \frac{d^2 f}{dy_*^2} + \mu^4 f \\ = i\mu Re \left\{ \left(2y_* - y_*^2 - \frac{i\sigma}{ku_0} \right) \left(\frac{d^2 f}{dy_*^2} - \mu^2 f \right) + 2f \right\}. \end{aligned} \quad (27)$$

ここで、 $f = F/\zeta_k$, $y_* = y/h_0$, $\mu = kh_0$ である無次元量である。後の時間スケールの節のところで議論するように $\sigma/(ku_0)$ の項は無視できる。これは、 f の時間依存性を無視することに相当する。 h_0 は Q とともにゆっくりと増加するので、たとえ Q がかなり増加してもつららの表面上に観測される約 1 cm の波模様の波長に対して μ の値は非常に小さい。それ故に、長波長近似 $\mu \ll 1$ を使うことができ μ に関して高次の項は無視できる。 Re は Q とともに増加するが、図 3 (b) に示すように μRe の値の変化は非常に小さい。その時、 μRe の 1 次までの Orr-Sommerfeld 方程式を考えるだけで十分である。

$$\frac{d^4 f}{dy_*^4} = i\mu Re \left\{ (2y_* - y_*^2) \frac{d^2 f}{dy_*^2} + 2f \right\}. \quad (28)$$

流体力学的境界条件 (11)-(15) 式の線形化した形の式を用いると、(28) 式の近似解は、

$$\begin{aligned} f(y_*) = -2y_* + \frac{3(2-i\alpha)}{6-i\alpha} y_*^2 + \frac{i\alpha}{6-i\alpha} y_*^3 + \mu Re \alpha \left\{ \frac{-96-8i\alpha}{105(6-i\alpha)^2} y_*^2 + \frac{4i\alpha}{35(6-i\alpha)^2} y_*^3 \right. \\ \left. + \frac{1}{15(6-i\alpha)} y_*^5 - \frac{1}{30(6-i\alpha)} y_*^6 + \frac{1}{210(6-i\alpha)} y_*^7 \right\}, \end{aligned} \quad (29)$$

となる。ここで、

$$\alpha = \frac{\mu Re \cos \theta}{F^2} + \mu^3 Re W = 2 \cot \theta h_0 k + 2a^2 h_0 k^3 \quad (30)$$

は、重力と表面張力による復元力を表し [2], $F = u_0/(gh_0)^{1/2}$ はフルード数、 $W = \gamma/(\rho_l h_0 u_0^2)$ はウェーバー数、 $a = [\gamma/(\rho_l g \sin \theta)]^{1/2}$ は θ のときの、気液界面の表面張力 γ に関係した毛管長である [13].

Benjamin による層流の安定性解析 [2] とここでの固液界面の安定性解析の違いに注意すべきである。傾斜した固い平面上を流れ落ちる粘性流体の安定性解析では、平坦な面上での境界条件 $u|_{y=0} = 0$, $v|_{y=0} = 0$ を使う。 f の時間微分の項を無視しないでこれらと (13), (14) 式を使うことによって、4 階の微分方程式 (27) の解を長波長近似のもとで求める。残りの境界条件 (15) 式にこの f の解を代入することによって自由表面の揺らぎの分散関係を決定する。ところが、今の場合は、5 個の流体力学的境界条件 (11)-(15) 式があり、(28) 式を解く上で境界条件がひとつ余分であるようにみえるが、(13) 式からは次のように気液界面の振幅 ξ_k と固液界面の振幅 ζ_k の関係を知ることができる。

$$\xi_k = -f|_{y_*=1} \zeta_k = \frac{6}{6-i\alpha} + \frac{24\mu Re \alpha}{35(6-i\alpha)^2}. \quad (31)$$

固液界面の揺らぎに対する分散関係式を見出すためには、以下で議論するように熱力学的境界条件を使わなければならない。

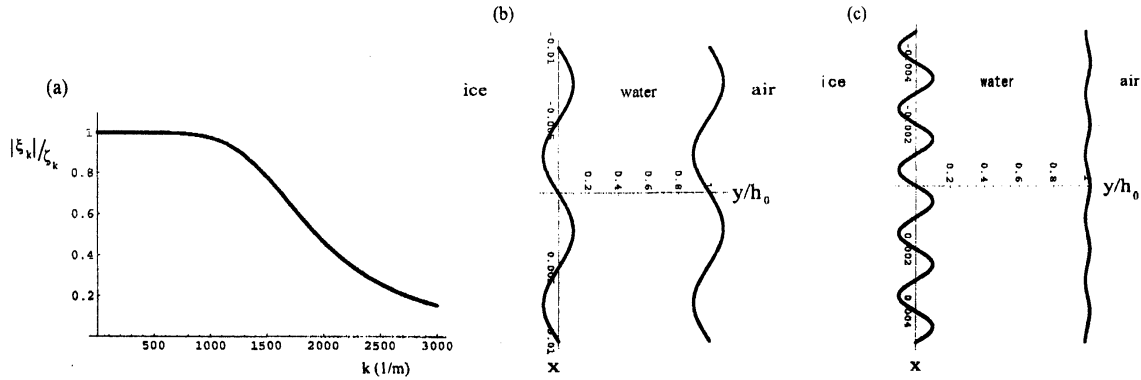


図4 $\theta = \pi/2$, $Q = 160$ ml/h のとき, (a) 気液界面と固液界面の振幅の比 $|\xi_k|/\zeta_k$ の波数 k 依存性. (b) 固液界面の波長 1 cm ($k = 628$ /m), (c) 固液界面の波長 2mm ($k = 3142$ /m) に対する気液界面の形.

α の値は波数 k あるいは h_0 中の Q によって変化する. 図 4 (a) は, $\theta = \pi/2$, $Q = 160$ ml/h のとき, 両界面の振幅の比 $|\xi_k|/\zeta_k$ の波数依存性を示している. ここで, $|\xi_k|/\zeta_k$ は次のように定義される.

$$\frac{|\xi_k|}{\zeta_k} = \sqrt{\{\text{Re}[-f|_{y^*=1}]\}^2 + \{\text{Im}[-f|_{y^*=1}]\}^2}, \quad (32)$$

ここで, Re , Im は変数の実部と虚部を表す. 実験 [3, 4] で使われた水の供給率に対してレイノルズ数 Re は $O(1)$ であることに注意する. 図 4 (a) に示すように, $|\xi_k|/\zeta_k$ は k とともに単調に減少しているのがわかる. 図 4 (a) の波数の値が小さい領域では, 気液界面に作用する表面張力による復元力は無視することができるので, 気液界面の振幅は固液界面の振幅とほぼ同じである. 一方, 高波数領域では表面張力による復元力の効果が有効になり, 固液界面の変形に対して気液界面の形は平坦になろうとする. $\theta = \pi/2$ のとき, $\gamma = 7.6 \times 10^{-2}$ N/m, $\rho_l = 1.0 \times 10^3$ Kg/m³ に対して, 水の毛管長 a の典型的な値は約 2.8 mm であり波数でいうと $k = 2224$ /m となる. このことは, 図 4 (b) に示すように, 固液界面の変形の波長が a より大きいならば水は変形した固液界面に沿って流れ落ち, 一方, 図 4 (c) に示すように, 固液界面の変形の波長が a よりも小さいならば, 水は変形した固液界面の形を感じることなく流れ落ちる. しかも, 固液界面に対して気液界面の位相のずれがある. ここで, x 軸は実スケールで描いてあるが, 液膜の厚さは固液界面の変形に対する波長に比べて非常に小さいので, y 軸は液膜の厚さを拡大して見せるために h_0 で規格化して描いてある. また固液界面の振動の振幅は $\zeta_k/h_0 = 0.1$ とした.

4.3 液体内の温度の振動部分の振幅の方程式とその近似解

境界条件, $y = 0$ で $\bar{T}_l = T_m$, $y = h_0$ で $\bar{T}_l = T_{la}$ のもとで, (1) 式の変動部分の方程式の解は

$$\bar{T}_l(y) = T_m - \bar{G}_l y, \quad (33)$$

となる. ここで, $\bar{G}_l = -d\bar{T}_l/dy|_{y=0} = (T_m - T_{la})/h_0$ は液体内の非変動部分の温度勾配を表す. T'_l , v' の仮定した形を (1) 式の変動部分の方程式に代入すると, g_l の方程式は次のようになる.

$$\frac{d^2 g_l}{dy^2} - \left\{ k^2 + \frac{ik\bar{U}(y)}{\kappa_l} + \frac{\sigma}{\kappa_l} \right\} g_l = \frac{ik u_0}{\kappa_l} f(y) \exp\left(\frac{\rho\bar{V}}{2\kappa_l} y\right) \bar{G}_l \zeta_k. \quad (34)$$

$y = (1-z)h_0$ を (34) 式に代入し, 準定常近似 $\sigma/(\kappa_l k^2) \ll 1$ (これは g_l の時間依存性を無視することに相当する) を使うと,

$$\frac{d^2 g_l}{dz^2} - \{\mu^2 + i\mu Pe(1-z^2)\} g_l = i\mu Pe f(z) \exp\left[\frac{\rho\bar{V}h_0}{2\kappa_l}(1-z)\right] \bar{G}_l \zeta_k, \quad (35)$$

となる。ここで、 $Pe \equiv u_0 h_0 / \kappa_l = Pr Re$ は最大流速に関連したペクレ数であり、 $Pr = \nu / \kappa_l$ はプラントル数である。このペクレ数は $Pe = 3Q / (2l\kappa_l)$ と表現できるので、レイノルズ数と同じように Q/l に依存し θ には依存しないことに注意する。

(35) 式の右辺をゼロとおき、長波長近似のもとで μ^2 の項を無視すると、独立な解は

$$\phi_1(z) = \exp\left(-\frac{1}{2}(-i\mu Pe)^{1/2} z^2\right) {}_1F_1\left(\frac{1}{4}\left[1 + \frac{i\mu Pe}{(-i\mu Pe)^{1/2}}\right], \frac{1}{2}, (-i\mu Pe)^{1/2} z^2\right), \quad (36)$$

$$\phi_2(z) = z \exp\left(-\frac{1}{2}(-i\mu Pe)^{1/2} z^2\right) {}_1F_1\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{4}\left[1 + \frac{i\mu Pe}{(-i\mu Pe)^{1/2}}\right], \frac{3}{2}, (-i\mu Pe)^{1/2} z^2\right), \quad (37)$$

で与えられる。ここで、 ${}_1F_1$ は合流超幾何関数である [14]。ふたつの解 $\phi_1(z)$ 、 $\phi_2(z)$ のロンスキアンは 1 なので、 B_1 、 B_2 を未定数として (35) 式の一般解は次のように書ける。

$$g_l(z) = B_1 \phi_1(z) + B_2 \phi_2(z) + i\mu Pe \bar{G}_l \zeta_k \int_0^z \{\phi_2(z)\phi_1(z') - \phi_1(z)\phi_2(z')\} f(z') \exp\left[\frac{\rho \bar{V} h_0}{2\kappa_l}(1-z')\right] dz'. \quad (38)$$

(35) 式から、長波長領域での液体内の熱揺らぎの輸送は、シアー流れ \bar{U} と固液界面の変形により生じた鉛直方向の速度揺らぎ v' に支配されているとすることができる。

境界条件、 $y = h_0$ で $\bar{T}_a = T_{la}$ 、 $y = h_0 + l_a$ で $\bar{T}_a = T_\infty$ のもとで、 \bar{V} を含んだ項を無視したときの (3) 式 of 非摂動部分の方程式の解は、

$$\bar{T}_a(y) = T_{la} - \bar{G}_a(y - h_0), \quad (39)$$

となる。ここで、 $\bar{G}_a = -d\bar{T}_a/dy|_{y=h_0} = (T_{la} - T_\infty)/l_a$ は $y = h_0$ での空気中の非摂動部分の温度勾配を表し、 l_a は $y = h_0$ からの距離とする。(20) 式を (3) 式の摂動部分の方程式に代入し、準定常近似 $\sigma/(\kappa_a k^2) \ll 1$ を使うと

$$g_a(y) = T_{ka} \exp[-k(y - h_0)], \quad (40)$$

となる。ここで、 T_{ka} は空気中の温度の摂動部分の振幅である。ここでは、 $\bar{V} h_0 / \kappa_l \ll 1$ について調べる。 $\bar{V} h_0 / \kappa_l$ は結晶成長速度に関連したペクレ数である。

$y = h_0$ で (9) 式を線形化すると、 ξ_k の 0 次のオーダーで、

$$\bar{T}_l|_{y=h_0} = \bar{T}_a|_{y=h_0} = T_{la}, \quad (41)$$

となり、 ξ_k の 1 次のオーダーで

$$-\bar{G}_l \xi_k + B_1 = -\bar{G}_a \xi_k + T_{ka} = 0. \quad (42)$$

となる。ここで、 $\phi_1|_{z=0} = 1$ 、 $\phi_2|_{z=0} = 0$ より $g_l|_{z=0} = B_1$ となることを使った。次に、 $y = h_0$ で (10) 式を線形化すると、 ξ_k の 0 次のオーダーで、

$$K_l \bar{G}_l = K_a \bar{G}_a, \quad (43)$$

となり、 ξ_k の 1 次のオーダーで

$$K_l B_2 = \mu K_a T_{ka}, \quad (44)$$

となる。ここで、 $d\phi_1/dz|_{z=0} = 0$ 、 $d\phi_2/dz|_{z=0} = 1$ より $dg_l/dz|_{z=0} = B_2$ となることを使った。

(42)-(44) 式から、 $B_1 = \bar{G}_l \xi_k$ 、 $B_2 = \mu B_1$ となり、(31) 式を使うと、(38) 式は

$$g_l(z) = \left[-f|_{z=0} \{\phi_1(z) + \mu \phi_2(z)\} + i\mu Pe \int_0^z \{\phi_2(z)\phi_1(z') - \phi_1(z)\phi_2(z')\} f(z') dz'\right] \bar{G}_l \zeta_k \equiv H_l(z) \bar{G}_l \zeta_k, \quad (45)$$

となる。

結晶中では $\bar{T}_s = T_m$ の仮定のもとで、(8) 式を $y = 0$ で線形化すると、 ζ_k の 0 次のオーダーで、

$$\bar{V} = \frac{C_p \kappa_l (T_m - T_{la})}{L h_0}, \quad (46)$$

となる。ここで、 C_p は液体の定圧比熱である。(46) 式から、 $\bar{V} h_0 / \kappa_l \ll 1$ は

$$\frac{\bar{V} h_0}{\kappa_l} = \frac{C_p (T_m - T_{la})}{L} \ll 1, \quad (47)$$

に対応する。これは、液体の過冷却度 $T_m - T_{la}$ が L/C_p よりずっと小さいことを意味している。この場合には、 $h_0 \ll \kappa_l / \bar{V}$ なので凝固面前方に厚さ κ_l / \bar{V} の熱拡散長をもつ層は液体中に形成されず、潜熱は薄い液膜を通して空気中に放出されることになる。実験 [3] で報告されている典型的な値 $\bar{V} \sim 10^{-6}$ m/s, $h_0 \sim 10^{-4}$ m, 水の $\kappa_l = 1.3 \times 10^{-7}$ m²/s を使うと、(47) 式は実際に満たされていることがわかる。

(43) 式から、 T_{la} は

$$T_{la} = \frac{T_m + \frac{K_a}{K_l} \frac{h_0}{l_a} T_\infty}{1 + \frac{K_a}{K_l} \frac{h_0}{l_a}}, \quad (48)$$

となる。もし T_∞ , h_0 , l_a の値が与えられれば (9) 式の T_{la} の値は決まる。(48) 式を (46) 式に代入すると、

$$\bar{V} = \frac{K_l}{L h_0} \frac{T_m - T_\infty}{1 + \frac{K_l}{K_a} \frac{l_a}{h_0}}, \quad (49)$$

となる。 $K_l/K_a \approx 22.7 \gg 1$ から、もし $l_a > h_0$ のときは、(49) 式は

$$\bar{V} \approx \frac{K_a}{L} \frac{T_m - T_\infty}{l_a}, \quad (50)$$

と近似できる。 h_0 は Q とともに変化するが、 \bar{V} は h_0 に依存しないことに注意すると、 \bar{V} は Q の変化には影響されないことがわかる。この結果は、つららの直径の成長速度が水の供給率の増加に対してほとんど変化しないという実験結果 ([3] の Fig. 6b を参照) と矛盾していない。

4.4 分散関係式

$y = 0$ で (8) 式を線形化すると、 ζ_k の 1 次のオーダーで

$$L \sigma \zeta_k = K_s \left. \frac{dg_s}{dy} \right|_{y=0} - K_l \left. \frac{dg_l}{dy} \right|_{y=0}, \quad (51)$$

となる。結晶内での熱揺らぎは固液界面から離れるとゼロにならなければならないという条件と準定常近似 $\sigma / (\kappa_s k^2) \ll 1$ を使うと、(2) 式の摂動部分の方程式の解は

$$g_s(y) = T_{k_s} \exp(ky), \quad (52)$$

となる。ここで、 T_{k_s} は結晶内の温度の摂動部分の振幅であり、(7) 式の摂動部分の方程式から決めることができる。

$$(-\bar{G}_l \zeta_k + g_l|_{y=0}) \exp[\sigma t + ikx] = T_{k_s} \exp[\sigma t + ikx] = \Delta T. \quad (53)$$

ここで、 ΔT は ζ_k のオーダーであると仮定した。 $g_l|_{y=0}$ が決まると ΔT を知ることができる。

(45), (51), (52), (53) 式から、固液界面の揺らぎに対する分散関係式は

$$\sigma = \frac{\bar{V}}{h_0} \left\{ \left. \frac{dH_l}{dz} \right|_{z=1} + n\mu (H_l|_{z=1} - 1) \right\}, \quad (54)$$

となる。ここで、 $n = K_s/K_l$,

$$H_l|_{z=1} = -f|_{z=0} \{ \phi_1|_{z=1} + \mu\phi_2|_{z=1} \} + i\mu Pe \int_0^1 \{ \phi_2|_{z=1} \phi_1(z') - \phi_1|_{z=1} \phi_2(z') \} f(z') dz', \quad (55)$$

$$\frac{dH_l}{dz}|_{z=1} = -f|_{z=0} \left\{ \frac{d\phi_1}{dz}|_{z=1} + \mu \frac{d\phi_2}{dz}|_{z=1} \right\} + i\mu Pe \int_0^1 \left\{ \frac{d\phi_2}{dz}|_{z=1} \phi_1(z') - \frac{d\phi_1}{dz}|_{z=1} \phi_2(z') \right\} f(z') dz', \quad (56)$$

である。成長率 σ_r と位相速度 $v_p = -\sigma_i/k$ は (54) 式の実部、虚部から得ることができる。

[11] で議論したように、 $Q = 160$ ml/h のとき、つららの表面上の波模様の波長に対しては $\mu Pe \sim O(1)$ なので、 ϕ_1, ϕ_2 を μPe に関して 1 次まで展開すれば十分であった。なぜならば、 μPe の高次の項の係数の値は、低次の項に比べると非常に小さいからである。しかしながら、図 3 (b) に示すように、 Q が増加するにつれて μPe の値は大きくなるので、 ϕ_1, ϕ_2 を μPe に関して高次まで展開する必要がある。そのために、[11] の付録に示した漸化式を使う。(36) 式を実部と虚部に分解する。

$$\begin{aligned} \phi_1(z) = & \exp\left(-\frac{(\mu Pe)^{1/2}}{2\sqrt{2}}z^2\right) \left[\cos\left(\frac{(\mu Pe)^{1/2}}{2\sqrt{2}}z^2\right) \left(1 + \sum_{j=0}^{\infty} a_{2j+1}z^{2j+2}\right) \right. \\ & - \sin\left(\frac{(\mu Pe)^{1/2}}{2\sqrt{2}}z^2\right) \left(\sum_{j=0}^{\infty} a_{2j+2}z^{2j+2}\right) \\ & \left. + i \left\{ \cos\left(\frac{(\mu Pe)^{1/2}}{2\sqrt{2}}z^2\right) \left(\sum_{j=0}^{\infty} a_{2j+2}z^{2j+2}\right) + \sin\left(\frac{(\mu Pe)^{1/2}}{2\sqrt{2}}z^2\right) \left(1 + \sum_{j=0}^{\infty} a_{2j+1}z^{2j+2}\right) \right\} \right]. \quad (57) \end{aligned}$$

最初の 2 個の係数

$$a_1 = \frac{1}{2\sqrt{2}}(\mu Pe)^{1/2}, \quad a_2 = \frac{1}{2}\mu Pe - \frac{1}{2\sqrt{2}}(\mu Pe)^{1/2}, \quad (58)$$

を使うと、奇数番目と偶数番目の他の係数 a_j は

$$a_{2j+1} = \frac{1}{(j+1)(2j+1)} \left\{ a_1 a_{2j-1} - a_2 a_{2j} + \frac{2j}{\sqrt{2}}(\mu Pe)^{1/2}(a_{2j-1} + a_{2j}) \right\} \quad (j = 1, 2, 3, \dots), \quad (59)$$

$$a_{2j+2} = \frac{1}{(j+1)(2j+1)} \left\{ a_1 a_{2j} + a_2 a_{2j-1} - \frac{2j}{\sqrt{2}}(\mu Pe)^{1/2}(a_{2j-1} - a_{2j}) \right\} \quad (j = 1, 2, 3, \dots), \quad (60)$$

から求めることができる。同様に、(37) 式を実部と虚部に分解する。

$$\begin{aligned} \phi_2(z) = & \exp\left(-\frac{(\mu Pe)^{1/2}}{2\sqrt{2}}z^2\right) \left[\cos\left(\frac{(\mu Pe)^{1/2}}{2\sqrt{2}}z^2\right) \left(z + \sum_{j=0}^{\infty} c_{2j+1}z^{2j+3}\right) \right. \\ & - \sin\left(\frac{(\mu Pe)^{1/2}}{2\sqrt{2}}z^2\right) \left(\sum_{j=0}^{\infty} c_{2j+2}z^{2j+3}\right) \\ & \left. + i \left\{ \cos\left(\frac{(\mu Pe)^{1/2}}{2\sqrt{2}}z^2\right) \left(\sum_{j=0}^{\infty} c_{2j+2}z^{2j+3}\right) + \sin\left(\frac{(\mu Pe)^{1/2}}{2\sqrt{2}}z^2\right) \left(z + \sum_{j=0}^{\infty} c_{2j+1}z^{2j+3}\right) \right\} \right]. \quad (61) \end{aligned}$$

$$c_1 = \frac{1}{3}a_1 + \frac{1}{3\sqrt{2}}(\mu Pe)^{1/2}, \quad c_2 = \frac{1}{3}a_2 - \frac{1}{3\sqrt{2}}(\mu Pe)^{1/2}, \quad (62)$$

を使うと、奇数番目、偶数番目の他の係数 c_j は、

$$c_{2j+1} = \frac{1}{(j+1)(2j+3)} \left\{ a_1 c_{2j-1} - a_2 c_{2j} + \frac{2j+1}{\sqrt{2}}(\mu Pe)^{1/2}(c_{2j-1} + c_{2j}) \right\} \quad (j = 1, 2, 3, \dots), \quad (63)$$

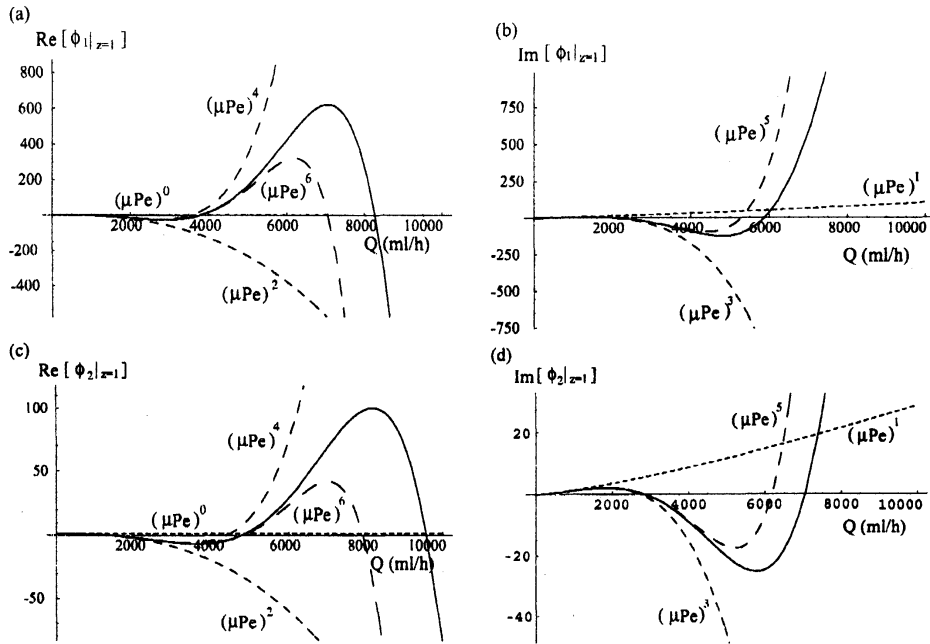


図5 $\theta = \pi/2$, $k = 2\pi/0.01 \text{ m}^{-1}$ のとき, (a) $\phi_1|_{z=1}$ の実部, (b) $\phi_1|_{z=1}$ の虚部, (c) $\phi_2|_{z=1}$ の実部, (d) $\phi_2|_{z=1}$ の虚部. 実線は, $z = 1$ での (36), (37) 式の実部と虚部である. それぞれの波線は, $z = 1$ での (57), (61) 式の μPe に関する $(\mu Pe)^j$ ($j = 1, 2, 3, 4, 5, 6$) までの展開である.

$$c_{2j+2} = \frac{1}{(j+1)(2j+3)} \left\{ a_1 c_{2j} + a_2 c_{2j-1} - \frac{2j+1}{\sqrt{2}} (\mu Pe)^{1/2} (c_{2j-1} - c_{2j}) \right\} \quad (j = 1, 2, 3, \dots), \quad (64)$$

から求めることができる.

図5 (a), (b), (c), (d) の実線は, 近似解 (36), (37) 式の $z = 1$ での値の実部と虚部を示したものである. 一方, それぞれの波線は $z = 1$ での (57), (61) 式を μPe に関して $(\mu Pe)^j$ ($j = 1, 2, 3, 4, 5, 6$) まで展開したときの实部と虚部を示している. $k = 2\pi/0.01 \text{ m}^{-1}$ のとき, (57), (61) 式の $(\mu Pe)^6$ までの展開は, Q が約 4000 ml/h 以下まではよい近似になっている. もっと大きな Q に対してそれらを実線に合わせるためには, ここで示した小さな波数に対してでさえ, $(\mu Pe)^6$ よりもっと高次の項まで展開する必要がある. これは, μRe の展開の場合とは対照的である. 水のプラントル数の値は約 13.8 であるから, 図3 (b) に示すように, Q による μPe 値の増加は, μRe に比べて大きいからである.

図6 (a) は, 固液界面の成長率 σ_r であり, (57), (61) 式を使って $(\mu Pe)^6$ まで展開したものと $f|_{z=0} = -6/(6 - i\alpha) - 24\mu Re\alpha/35(6 - i\alpha)^2$ を (55), (56) 式に代入して得られたものである. ここで, $l = 0.03 \text{ m}$, $L = 3.3 \times 10^8 \text{ J/m}^3$, $\kappa_l = 1.3 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$, $\nu = 1.8 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$, $\gamma = 7.6 \times 10^{-2} \text{ N/m}$, $n = K_s/K_l = 3.92$ の値を使った. 波模様の波長 λ_{\max} は, σ_r が最大値をとる波数で定義する. Q が増加するにつれて λ_{\max} は長波長領域にシフトし, σ_r の大きさは減少している. 大きな Q に対しては, 縞模様を観測するには非常に長い時間を要するであろう. 周囲の空気の温度による \bar{V} の変化は, σ_r の最大値の大きさに影響を与えるが, σ_r の最大値から決定した波模様の特徴的な波長を変えることはない. これは, Fig. 6 (a) の実線と波線で示されていて, それぞれは $\bar{V} = 10^{-6} \text{ m/s}$, $\bar{V} = 2 \times 10^{-6} \text{ m/s}$ のときの結果である. 固液界面の波模様の原型としての周期構造は, $Q = 160 \text{ ml/h}$ のときは, 約 30 分後に現れることが報告されている [4]. 最も不安定なモードの特徴的な時間は σ_r^{-1} であり, $\bar{V} = 10^{-6} \text{ m/s}$, $Q = 160 \text{ ml/h}$ のときは約 30 分となる. この結果は実験とも矛盾していない. 周囲の空気の温度を下げることによって \bar{V} の値が大きくなれば, 周期構造をもっと早く見ることが期待でき, $\bar{V} = 2 \times 10^{-6} \text{ m/s}$, $Q = 160 \text{ ml/h}$ のときは約 15 分であろう.

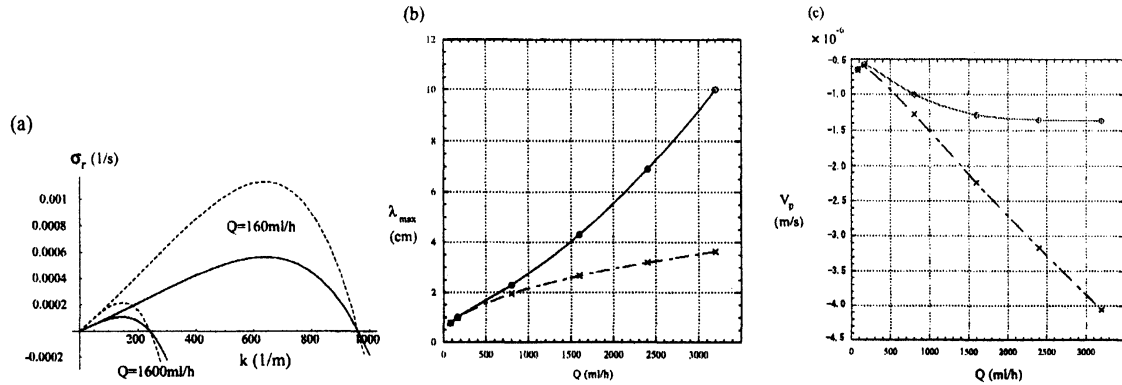


図 6 (a) $\theta = \pi/2$ のとき, $Q = 160$ ml/h, $Q = 1600$ ml/h に対する成長率 σ_r の波数 k 依存性. $\bar{V} = 10^{-6}$ m/s (実線), $\bar{V} = 2 \times 10^{-6}$ m/s (波線). $\theta = \pi/2$ のとき, (b) λ_{\max} の Q 依存性. ○と×はそれぞれ (54) 式の実部, (65) 式から得られたものである. (c) v_p の Q 依存性. ○と×はそれぞれ (54) 式の虚部, (66) 式から得られたものである

図 6 (b) は, $\theta = \pi/2$ のときの λ_{\max} の Q 依存性を示している. ○は, (57), (61) 式を使って $(\mu Pe)^6$ まで展開し, $f|_{z=0} = -6/(6 - i\alpha) - 24\mu Re\alpha/35(6 - i\alpha)^2$ を使って得られた λ_{\max} を示している. 一方, ×は

$$\sigma_r = \frac{\bar{V}}{h_0} \left[\frac{-\frac{3}{2}\alpha(\mu Pe) + \mu \left\{ 36 - \frac{3}{2}\alpha(\mu Pe) \right\}}{36 + \alpha^2} + n\mu \frac{-\frac{7}{10}\alpha(\mu Pe) - \alpha^2 + \mu \left\{ 36 - \frac{7}{10}\alpha(\mu Pe) \right\}}{36 + \alpha^2} \right], \quad (65)$$

から得られたものであり, μPe の 1 次まで展開し, $f|_{z=0} = -6/(6 - i\alpha)$ を使ったものである [11]. この図から, (65) 式は, 大きな Q に対してはよくないことは明らかである.

図 6 (c) は, $\theta = \pi/2$ のときの位相速度 v_p の Q 依存性を示している. ここで, v_p の値は, σ_r が最大値をとる波数で定義した. ○は, (57), (61) 式を使って $(\mu Pe)^6$ まで展開し, $f|_{z=0} = -6/(6 - i\alpha) - 24\mu Re\alpha/35(6 - i\alpha)^2$ を使って得られた v_p を示している. 一方, ×は

$$v_p = -\frac{\bar{V}}{\mu} \left[\frac{-\frac{1}{4}\alpha^2(\mu Pe) + \mu \{ 6\alpha + 9(\mu Pe) \}}{36 + \alpha^2} + n\mu \frac{6\alpha - \frac{7}{60}\alpha^2(\mu Pe) + \mu \{ 6\alpha + \frac{21}{5}(\mu Pe) \}}{36 + \alpha^2} \right], \quad (66)$$

から得られたものであり, μPe の 1 次まで展開し, $f|_{z=0} = -6/(6 - i\alpha)$ を使ったものである [11]. (66) 式は大きな Q に対してはよくないことがわかる. Q に対する v_p の値の変化は小さく, 約 10^{-6} m/s の程度の値をとり, 平均速度 \bar{V} と同程度である. 負の符号は, 固液界面が主流方向に対して反対の方向に動くことを意味し, このことは, 氷の中に閉じ込められた多くの小さな空気の気泡が上流方向に移動しているという観察結果 [3] と矛盾していない.

天然のつららの表面上の波模様の波長は, 水の供給率 Q やつららの半径 R には依存していないようにみえる [3, 4]. [9] で議論しているように, 天然のつららでは, 単位長さ当たりの体積流量率 Q/R を保ちながら Q は R とともに変化することが期待される. 著者の理論式で $l = 2\pi R$, $\theta = \pi/2$ と置くと, $Re = 3Q/(4\pi R\nu)$, $Pe = 3Q/(4\pi R\kappa_i)$, $h_0 = \{3\nu Q/(2\pi Rg)\}^{1/3}$, $\alpha = a^2 h_0 k^3$ と表現できる. ここで, $a = \{\gamma/(\rho_l g)\}^{1/2}$. これらのパラメーターは Q/R の形でのみ依存していることに注意すべきである. α は, [9] のモデルでは現れない. 実験での溝の幅 $l = 0.03$ m をもつ樋は約 $R = 4.8$ mm の半径をもつつららに相当している. 方程式 $h_0 = \{3\nu Q/(2\pi Rg)\}^{1/3}$ から, もし Q が結晶成長の間一定に保たれながらつららの半径 R が増加すると h_0 は減少する. その時, つららの半径が増加するにつれて Q/R が減少することになるので, つらら自体の成長が止まることになる. 一方, 結晶成長の間 Q/R が一定に保たれるならば, 分散関係式 (54) に含まれているすべてのパラメーターは Q/R のみに依存するから, 波模様の波長はある普遍的な値をとるであろう. しかし, 実験

[4] は固定した溝の幅で行われた。それゆえに実験では、溝上の波模様の波長は Q を変化させることによって変化するであろう。これは、傾斜面の実験と天然のつららの主要な違いである。固定した l で Q を変化させたときの実験データは今のところ調べられていない。図 6 (b), (c) の λ_{\max} , v_p の Q 依存性の予測を確かめるためには実験で検証する必要がある。

4.5 時間スケール

前節で暗黙のうちに仮定した時間スケールの問題について議論する。摂動を受けた液体流れの揺らぎの時間依存性を無視したが、これは (27) 式の $\sigma/(ku_0)$ の項を無視してもいいことに相当する。この仮定は、図 6 (a) から、 $\sigma_r \sim 10^{-4} \sim 10^{-3}/s$ となるのがわかるので妥当なものである。それ故に、観測される波模様の典型的な波長と $u_0 \sim 10^{-2} \text{ m/s}$ に対して条件 $\sigma_r/(ku_0) \ll 1$ は満足される。一方、 $-\sigma_i/k$ は位相速度であることに注意すると、 $\sigma/(ku_0)$ の虚部は $|v_p|/u_0$ と表現できる。図 6 (c) から、 $|v_p|/u_0 \ll 1$ が満たされるのがわかる。同じことは摂動を受けた温度の揺らぎに対しても言える。波数 k をもつ変形に対して、温度の揺らぎの特徴的な緩和時間は、 $\Delta t_{\text{thermal}} \approx (\kappa_i k^2)^{-1}$ ($i = l, s, a$) のオーダーである。 $\Delta t_{\text{thermal}}$ は、不安定モードの特徴的な時間 σ_r^{-1} よりずっと小さい。故に、 $\sigma_r/(\kappa_i k^2) \ll 1$ ($i = l, s, a$) の条件が満たされる。これは準定常近似である [7]。摂動を受けた液体の流れ場や温度場は、固液界面の摂動のゆっくりした発展に対して比較的是やく応答すると言える。

5 まとめと課題

自由表面をもつ流れる過冷却状態の液膜からの結晶成長の間、固液界面の形態不安定性を液膜の厚さを変えることによって調べた。 $\bar{V}h_0/\kappa_l \ll 1$ の極限で、成長率 σ_r の最大値で決定した波長 λ_{\max} はふたつの特徴的な長さ、つまり液膜の厚さ h_0 と気液界面の表面張力に関係した毛管長 a に依存する。 λ_{\max} は、水の供給率 Q とともに増加することがわかった。これは、固定した幅をもつ傾斜面の実験に対してのみ正しい。つららの場合には、 R はつららの成長の間変化するから、単位長さ当たりの体積流量率 Q/R が保たれれば、分散関係式はこのパラメーターのみに依存するから波模様の普遍的な波長を決定する際の決定的なパラメーターとなる。天然のつららの表面上の波模様の波長が供給率 Q やつららの半径 R に依存しないことに関係している。

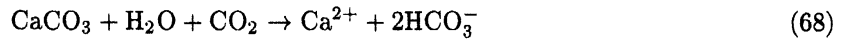
シアー流れ下での流体の熱力学は、現代の非平衡熱力学や統計力学において最もチャレンジングな課題である [15]。局所平衡熱力学の仮説では、流れは状態方程式を変えることはなく、平衡論的な融点温度は結晶と液体の化学ポテンシャルを等しいと置くことによって決定される。ここで扱った問題に対しては、(53) 式から、平衡論的融点 T_m からのずれが存在する。

$$\Delta T = (H_l|_{z=1} - 1)\bar{G}_l\zeta. \quad (67)$$

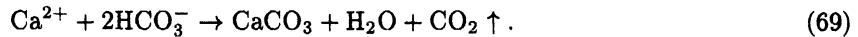
ここで、 $H_l|_{z=1}$ は (55) 式で与えられ液体内の温度の揺らぎの解から決まる。流れが存在しないときには、この関係式から GT 効果を再現することができる [12]。GT 効果にしても今の場合にしても波数 $k \rightarrow 0$ の極限では ΔT はゼロになり固液界面の温度は T_m となる。今の場合は固液界面が変形したときのみ ΔT はゼロでなくなるのでこのずれの原因は単なるシアー流れ \bar{U} の効果のせいではないだろう。復元力の効果は、GT 効果が有効である長さスケールに比べるとより長い波長をもつ揺らぎに対してもっと有効である。つららの表面上にできる波模様の波長に対して GT 効果による ΔT は無視できるが復元力によるものは無視できない。復元力 α は、純粋に流体力学的なものであるが、 ΔT には熱力学的効果と流体力学的効果の相互作用がある。それは、 H_l の中の αPe の項に反映されている。この ΔT の熱力学的な理解の決定的な一歩は、流れの特性に陽に依存する自由エネルギーあるいはケミカルポテンシャルを定式化することである。しかしながら、シアー流れ下での結晶と液体の共存は、ケミカルポテンシャルの非平衡論的なアナロジーをひきあいに出すことによっては説

明できないという報告もあるので今後慎重に検討する必要がある [16].

鍾乳洞の中では、二酸化炭素を含む水が石灰岩の割れ目に入り染み込み、石灰岩を溶かして洞穴の割れ目から出てくる.



という反応で炭酸カルシウムが、炭酸水素イオンとして溶けてしまう. 普通, 鍾乳石が形成されるときは (68) 式の反応が逆に起こって, すなわち, 水溶液から二酸化炭素が放出されて炭酸カルシウムが析出する次の反応が起こっていると考えられている [17].



鍾乳石は, 1 年間に 1 ~ 0.25 mm, 1 cm のびるのに 10 年もかかり, 氷のつららの成長速度とは時間スケールが桁違いに違う. 図 1 (c) に示すようなコンクリートつららも主に鍾乳石と同じ物質で構成されていると思われる. コンクリート表層にできた炭酸カルシウムが酸性の水に溶け, 滴下するうち二酸化炭素が放出されて炭酸カルシウムが再び析出することでつららができると考えられる. しかし, コンクリートつららの成長速度は鍾乳石のそれに比べると異様なまでに速い. その理由のひとつとして, 鍾乳石とコンクリートつららの生成される周りの環境の違いが考えられる.

注目すべき点は, 鍾乳石や図 1 (c) の右側のコンクリートつららの表面上にも氷のつららと同じようなセンチメートルスケールの波模様が見られることである. 表面は薄い水膜で覆われている. この出現に関する定量的な理論は今のところ存在しないが, つららの表面上にできる波模様に対して今回の理論的枠組みを鍾乳石の波模様形成に適用することは可能であるかもしれない. 二酸化炭素の濃度を $C = [\text{CO}_2]$ とすると, (1) 式の温度場の代わりに

$$\frac{\partial C}{\partial t} + u \frac{\partial C}{\partial x} + v \frac{\partial C}{\partial y} = D_l \left(\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} \right) + k_- [\text{HCO}_3^-] - k_+ C, \quad (70)$$

を考えればよい [18, 19]. (70) 式の右辺の最後の項は二酸化炭素の局所生成率を表し, これは流れ下での反応拡散系を表す方程式となる. 鍾乳石の表面上にも薄い水膜ができていると考えられるから, u, v に関しては, Navier-Stokes 方程式を解く必要がある. 表面張力に関係した毛管長も重要だろう. 変形した固液と気液界面での温度の連続性と熱流の保存の代わりに, 二酸化炭素の濃度の連続性と物質流の保存を考慮に入れて液膜内の二酸化炭素の揺らぎの解を求めればよいはずである. その分散関係式には $\text{Pe} = \text{RePr} = \left(\frac{u_0 h_0}{\nu}\right) \left(\frac{\mu}{\kappa_l}\right)$ の代わりに $\text{ReSc} = \left(\frac{u_0 h_0}{\nu}\right) \left(\frac{\mu}{D_l}\right)$ が現れるだろうと予想している. ここで, D_l は二酸化炭素の液体内での拡散係数, Sc はシュミット数である. もし鍾乳石についてもつららと同様な結果ができればかなり普遍的なことがいえるはずである. これは今後の課題である.

謝辞

この研究は, 21 世紀 COE プログラム「計算科学フロンティア」の援助を受けて行われた. 図 1(a), (b) の写真を提供して下さった前野氏, 図 1(c) の写真を提供して下さった小西氏に感謝します.

参考文献

- [1] A. Oron, S. H. Davis, and S. G. Bankoff, "Long-scale evolution of thin liquid films," *Rev. Mod. Phys.* **69**, 931 (1997).
- [2] T. B. Benjamin, "Wave formation in laminar flow down an inclined plane," *J. Fluid Mech.* **2**, 554 (1957).
- [3] N. Maeno, L. Makkonen, K. Nishimura, K. Kosugi, and T. Takahashi, "Growth rates of icicles," *J. Glaciol.* **40**, 319 (1994).

- [4] S. Matusda, "Experimental study on the wavy pattern of icicle's surface," Master's thesis, Institute of Low Temperature Sciences, Hokkaido University (1997).
- [5] W. W. Mullins and R. F. Sekerka, "Morphological stability of a particle growing by diffusion or heat flow," *J. Appl. Phys.* **34**, 323 (1963).
- [6] J. S. Langer, "Instabilities and pattern formation in crystal growth," *Rev. Mod. Phys.* **52**, 1 (1980).
- [7] B. Caroli, C. Caroli, and B. Roulet, "Instabilities of planar solidification fronts," in *Solids Far From Equilibrium*, edited by C. Godrèche, (Cambridge University Press, 1992).
- [8] S. H. Davis, *Theory of Solidification*, (Cambridge University Press, 2001).
- [9] N. Ogawa and Y. Furukawa, "Surface instability of icicles," *Phys. Rev. E* **66**, 041202 (2002).
- [10] P. Schewe, J. Riordon, and B. Stein. "Icicle Instability," *Physics News Update Number 613*, November 13, 2002.
- [11] K. Ueno, "Pattern formation in crystal growth under parabolic shear flow," *Phys. Rev. E* **68**, 021603 (2003).
- [12] K. Ueno, "Pattern formation in crystal growth under parabolic shear flow II," *Phys. Rev. E* **69**, 051604 (2004).
- [13] L. Landau and E. Lifschitz, *Fluid Mechanics*, (Pergamon Press, 1959).
- [14] H. Jeffreys and B. S. Jeffreys, *The Methods of Mathematical Physics*. (Cambridge University Press, 1956).
- [15] D. Jou, J. Casas-Vázquez and M. Criado-Sancho, *Thermodynamics of Fluids Under Flow*, (Springer-Verlag, Berlin, 2001).
- [16] S. Butler and P. Harrowell, "Factors determining crystal-liquid coexistence under shear," *Nature* **415**, 1008 (2002).
- [17] "秋吉台の鍾乳洞-石灰洞の科学-", 河野通弘編 (河野通弘教授退官記念事業会) (1980).
- [18] M. B. Short, J. C. Baygents, J. W. Beck, D. A. Stone, R. S. Toomey III, and R. E. Goldstein, "Stalactite Growth as a Free-Boundary Problem: A Geometric Law and Its Platonic Ideal" *Phys. Rev. Lett.* **94**, 018501 (2005).
- [19] M. B. Short, J. C. Baygents, and R. E. Goldstein, "Stalactite growth as a free-boundary problem" *Phys of Fluids* **17**, 083101 (2005).