

第 1 章 マランゴニ対流の基礎

今石 宣之

Fundamental of the Marangoni Convection

Nobuyuki IMAISHI

1.1 Benard の実験と自然対流

流体層内に生じる流れは、流体層内に存在する温度差による浮力などによって引き起こされる自然対流 (natural convection) と外部からの人為的・機械的仕事によって引き起こされる強制対流 (forced convection) とに分類される。古くは流体層内の温度差に起因する浮力が引き起こす流れを対流と呼んでいたが、現在では上記のように自然対流、強制対流含めて対流と理解されている。浮力による自然対流は、古来より加熱・冷却されるコップの中の流れなど、我々の身近な現象として認識されてきた。しかしその定量的・詳細な理解は 20 世紀になってから急速に進展した。流体の運動を表す基礎方程式系 (連続の式, Navier-Stokes の式, エネルギー方程式) は 19 世紀には整っていたものの、これらの基礎式の強い非線形性のため、複雑な現象の詳細な解析は困難であったためである。自然対流の研究に刺激を与えたのは、1900 年に発表された Benard の論文^{1,2)}であった。Benard は Fig. 1 に示す装置を用い、深さ $d = 0.5 \sim 1\text{mm}$ 程度の浅い鯨口ウ油層を下から水蒸気で加熱した。下からの熱流束 (液層内の垂直方向の温度勾配) が小さいと、液相下部は高温低密度、上部は低温高密度という不安定な密度成層状態

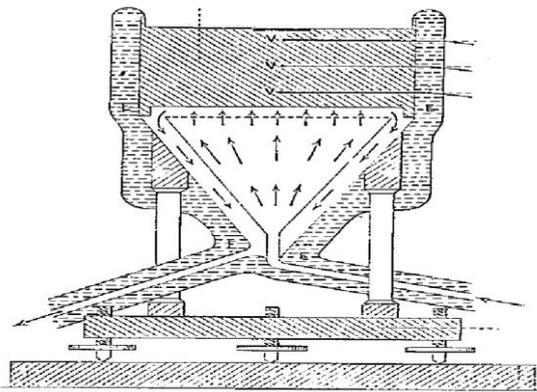


Fig.1 Benard's experimental apparatus.

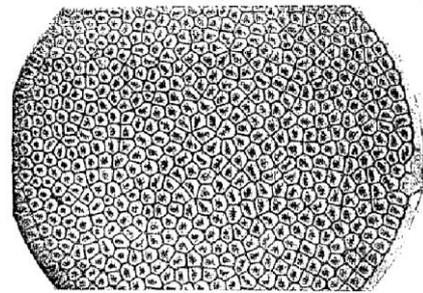


Fig. 2 Benard's convection cells.

にもかかわらず静止状態を保っており、熱流束が臨界値を超えると流れが発生することを発見した。微細な花粉を懸濁させた可視化法と干渉計による液面変形計測によって、Fig. 2 に示す規則正しい多角形のパターンが発生しており、その中心を上昇し、辺の部分で下降する循環流であり、中心部が凹で周辺部が凸であることなどを見出した。この観察結果はしばらく注目されなかったが、対流発生に臨界値があることに注目した Rayleigh 卿³⁾が、上下面共に自由表面という液層内に浮力対流が発生するための条件を線形安定解析し無次元数 $\rho g \beta_r d^3 \Delta T / \kappa \nu$ の値が $27\pi^4/4=657.434$ になるまでは液層は静止状態を保つが、それ以上になると不安定化し、波長が $\lambda=2\pi/k_x=2.828d$ の対流セル群 (Fig. 3) が発生し得ることを示した。ここで、 ρ は密度、 g は重力加速度、 β_r は熱膨張係数、 ΔT は温度差であり、 κ および ν はそれぞれ熱拡散率と動粘

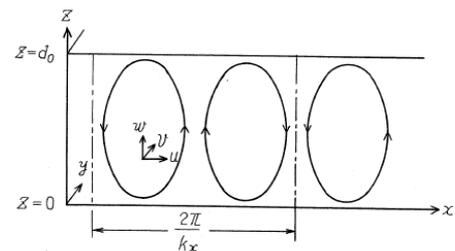


Fig.3 Convection cell model.

度である。この解析は、液層を下から加熱する場合に浮力による対流が発生するには、臨界温度差が存在すること、対流は液深の 3 倍程度の空間的周期性を持つこと、を示した点できわめて斬新で、その後、液層を下から加熱した場合の自然対流の発生条件や伝熱速度に関する研究は急速に展開した。この無次元パラメータは Rayleigh 数、対流発生に必要なその値は臨界 Rayleigh 数 (Ra_c) と呼ばれている。しかし前述の Benard の実験に対応する境界条件 (上面自由表面・下面固体板) を課した場合⁴⁾ には $Ra_c=669$ 、波長は $2.342d$ となる。液深 1mm の鯨口ウ油層内に対流が発生する臨界温度差 ΔT_c をこれらの臨界 Ra_c から算出すると、Benard の実験における ΔT_c の 100 倍も大きな値となり、Benard のセル状対流には浮力以外の不安定化機構を探る必要があった。

なお、下から加熱される流体層内に生じる浮力対流はしばしば Rayleigh-Benard 対流と呼ばれる。

上記では温度変化による浮力のみを取り上げたが、溶液系における密度変化は温度と濃度に依存する。溶液における浮力は温度と濃度の分布によって生じ

$$\text{buoyancy} = g \cdot \Delta\rho = g \cdot \left(\frac{\partial\rho}{\partial T} dT + \sum_{i=1}^N \frac{\partial\rho}{\partial C_i} dC_i \right) \quad (1)$$

であることを考慮すれば、溶液中の各成分の濃度の不均一分布による浮力対流も、 β_T を濃度による密度変化率 β_c に、 κ を拡散係数 D に置換えれば熱対流の場合と同様に取り扱える。この場合 $D \ll \kappa$ であり、しばしば $\beta_T \ll \beta_c$ もあるので、浅い液層でも Ra の値は大きくなる。

1.2 Benard の対流セルとマランゴニ効果

一方 Thomson⁵⁾ (1855) は、広く深い液体表面にアルコール滴を落下させると、表面張力差によって水表面は急速に広がり、アルコール滴近傍での流速は 10cm/s 以上にもなること、水層が浅い場合には水層が押しつけられてアルコール滴が底まで到達すること、アルコール水溶液は容器壁を濡れ上がり液面より上部の容器壁に若干厚いリング状の液溜まりを形成し一定間隔で流下する “ワインの涙” (Fig.4)、などの液体の運動は表面張力の不均一分布によって引き起される現象であると説明した。

Marangoni⁷⁾ (1871) もオイル滴による水面の運動が

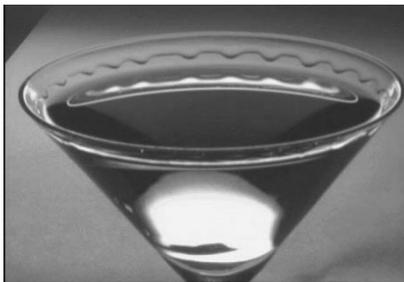


Fig. 4 Tear of Liqueur : an example of soluto-capillary convection phenomena⁶⁾

表面張力差によって惹起されることを発表した。彼は、界面活性剤が水表面に形成する単分子膜が表面積の変化に抗する作用 (表面弾性) も研究し、シャボン玉の安定化機構 Plateau-Marangoni-Gibbs 効果にも名前を残している。ただし、Thomson の論文⁵⁾ は 19 世紀後半の研究者らには全く引用されず、流体力学の研究者からは 100 年もの間顧みられなかった。

歴史的見地からは、表面張力分布に起因する現象は、本来 “Thomson 効果” と呼ばれて然るべきであるが、20 世紀前半の界面化学の本などで “Marangoni (マランゴニ) 効果” と命名され、それ以後その呼称が定着している。

ここでマランゴニ効果の基礎を簡単に説明しておく。表面張力が一様な液体層は、その表面の曲率と内外圧力差が平衡する形状で静止状態を保つ。しかし、液体表面の温度や濃度が不均一の場合、それに応じて表面張力分布も発生し、表面張力差は表面 (界面) 上のせん断力 τ (界面) に接する液体の運動を惹起する。Figure 5 に示す平坦な表面 (界面) での接線方向の運動量収支式は、表面粘度 μ_s による τ_s も考慮すると (2) 式となる。

$$\tau_A - \tau_B + \tau_s = \frac{\partial\sigma}{\partial x} \quad (2)$$

$$-\mu_A \frac{\partial u_x}{\partial z} + \mu_B \frac{\partial u_x}{\partial z} - \mu_s \frac{\partial^2 u_x}{\partial x^2} = \frac{\partial\sigma}{\partial x}$$

表面張力 σ が温度、溶質濃度等に依存すると考えると、(2) 式中の $\partial\sigma/\partial x$ は次式となり、表面上の温度・濃度勾配と相関づけられる。

$$\frac{\partial\sigma}{\partial x} = \frac{\partial\sigma}{\partial T} \frac{\partial T}{\partial x} + \frac{\partial\sigma}{\partial C} \frac{\partial C}{\partial x} + \frac{\partial\sigma}{\partial \Gamma} \frac{\partial \Gamma}{\partial x} \quad (3)$$

(3) 式の右辺第 3 項は油や活性剤の表面吸着量 Γ [mol m⁻²] が液表面積の変化に抗する “表面弾性” (Plateau-Marangoni-Gibbs 効果) に相当する。この項はシャボン玉の安定化のみならず、微量の油の混入によりマランゴニ対流が停止する “界面汚染” の要因でもある。

Block⁸⁾ (1956) は、深さ 1mm 以下の液層内には、重力方向が逆になっても多角形セル状対流パターンが発生すること、セルの中心の液面がセル周辺の沈み込み部の液面よりも低いこと、シリコンオイルを添加すると対流が停止すること等の実験事実から、Benard の対流セルの駆動機構は表面上の温度変化によるマランゴニ効果であると指摘した。その後 Pearson⁹⁾ (1958) がマランゴニ効

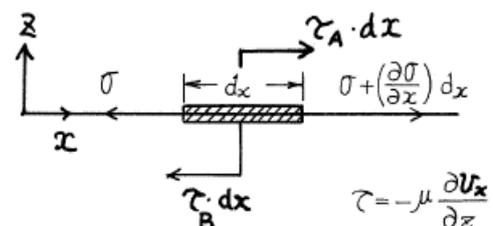


Fig. 5 Momentum balance on a flat interface.

果による液層の安定性の線形解析を行い、無次元数 $\sigma_T d \Delta T / \mu \kappa$ が臨界値を超えると静止液膜は不安定化し、波長 $\lambda = 3.15d$ の周期的な対流セルが発生することを示した。ここで $\sigma_T = -(\partial\sigma/\partial T)$ は表面張力の温度係数である。この無次元数はマランゴニ数 (Ma) と呼ばれる。表面が断熱の場合の臨界条件は、 $Ma_c = 80$ である。さらに Nield¹⁰⁾ (1964) は浮力と表面張力の両機構を考慮した安定解析を行い、浮力とマランゴニ効果とは Fig. 6 に示すように強くカップリングしており、液深・重力の向きの様々な条件下での対流発生臨界条件は、原点から引いた勾配 ϕ の直線と曲線との交点で表わされる。直線の勾配は

$$\phi = \frac{Ra}{Ma} = \frac{g(\partial\rho/\partial T)d^2}{\rho(\partial\sigma/\partial T)} \quad (4)$$

である。Figure 6 から液深が小さい液層ではマランゴニ効果が支配的であるが、液深 d が増すと浮力対流が支配的となることが分かる。図中には液面からの放熱に関する Biot 数 ($Bi = hd/k$: h は熱伝達率, k は熱伝導率) の影響も示されている。なお、マランゴニ効果が引き起こすセル状の対流を Marangoni-Benard 対流と呼ぶこともある。

上記の液表面に垂直な方向に熱あるいは物質が移動するときに生じる自然対流は、自然界でもまた産業機械の中でも頻りに現れる現象である。Scriven¹¹⁾(1960) は Newton 流体的挙動をする界面の一般的な運動方程式を示し、これ以後界面を取り入れた移動現象論が盛んに解析されるようになった。伝熱工学の分野では自然対流(浮力対流)による伝熱促進に関する広範な研究が展開されてきた。一方、マランゴニ対流については、地上では多くの場合、浮力対流と共存しており、単独に対流を惹起するのは 1mm 以下の薄い液膜内など微細な個所に限定されること、僅かな油や表面活性剤の混入によって対流が停止してしまうことなどから、熱工学分野での研究は比較的限定的であったが、酸化物の単結晶育成用の CZ 炉 (Czochralski 炉) 内の高温酸化物融液表面に出現するスポークパターンや多角形パターンの発生原因である¹²⁾。これらの派生流が結晶品質に及ぼす影響などは今後の研究課題である。

一方、前述のように常温下での物質移動系においては界面張力の濃度係数は温度係数に比して大きく、拡散係数は熱拡散係数より小さいので、熱移動系よりも大きなマランゴニ数が出現し易く、激しいマランゴニ対流が発生する可能性が大である。その典型例が液々抽出時に出現する界面攪乱と呼ばれる激しい対流現象¹³⁾である。2 流体相間の物質移動時のマランゴニ対流の発生限界に関しては Sternling & Scriven¹⁴⁾ (1959) の線形安定論をはじめとしていくつかの解析があるが、気液系の問題に比して、関与するパラメータが多く、気液系での対流発生条件のような明快な表現は得られない。しかし、2 液相間の物質移動時には、少なくともどちらかの移動方向におい

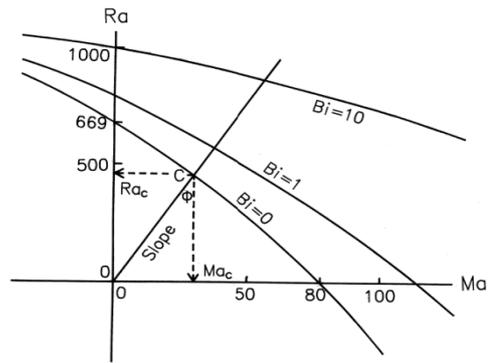


Fig. 6 Critical condition for the onset of buoyant-Marangoni convection based on Nield's analysis¹⁰⁾.

てマランゴニ対流が発生すること、拡散係数が小さい相から大きい相への移動、動粘度が大きい相から小さい相への移動時に対流が発生しやすいことが予測される。液々系物質移動時の界面攪乱の様子はシュリーレン法などでの観測例が多いが、発生時の濃度分布の干涉計による観測¹⁵⁾もある。しかし、液-液系での界面攪乱は複雑現象であるため、その定量的な研究は進んでいなかったが、近年再びシミュレーションなどによるアプローチ¹⁶⁾が始まっている。気液系については、界面活性な溶質の放散時¹⁷⁻²⁰⁾、アミン溶液による炭酸ガス反応吸収時²¹⁻²³⁾、あるいは微量のヘキサノールなどを含む LiBr 水溶液による水蒸気吸収時²⁴⁻²⁶⁾、等に発生する界面攪乱による物質移動速度増大効果は、炭酸ガス回収や吸収式ヒートポンプの高性能化などの工業的利用にも利用されている。

1.3 水平方向の温度勾配による対流

前節では、流体-流体界面に垂直方向の温度(濃度)勾配によって引き起こされる対流現象を取り上げたが、それとは別に、界面に沿った温度勾配によって惹起される自然対流が存在する。前節の界面に垂直方向の温度勾配による対流の発生には臨界温度差が存在したのに対して、接線方向の温度勾配の場合には、浮力対流、表面張力対流いづれも、伝熱面間に僅かでも温度差があれば流れは直ちに発生する。加熱面の高温液体の密度、表面張力共に冷却壁近傍の低温液体よりも小さい。したがって、液表面には高温部から低温部に向かって増加する表面張力勾配が発生し、マランゴニ効果により、液表面は冷却壁に向かって流れる。有限深さの容器であれば、冷却面で冷やされた低温液が底面に沿って逆方向に流れる 2 次元定常な循環流が発生する。この液層内の垂直方向の温度分布は、上面高温・下面低温となっており、Marangoni-Benard 対流の発生は困難である。しかし、このような循環流も常に安定ではあり得ないことが Smith and

Davis²⁷⁾ (1983) (以後 S&D と記す) の線形安定解析によって示唆された. 水平方向に無限に広がり, 表面および固体底板が断熱された深さ d の液層の表面に一定の温度勾配 $(-dT^\circ/dx)$ が印加された場合, 深さ方向に Fig. 7 に示す温度, 速度分布を持つ流れ場 (basic flow) が生じる.

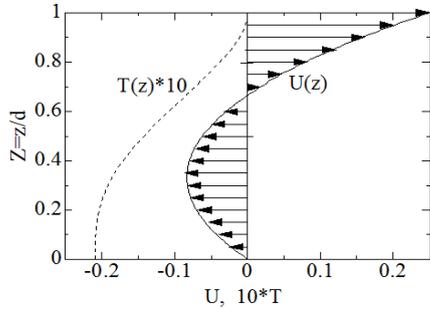


Fig. 7 Basic velocity and temperature distributions in thin liquid layer with a constant temperature gradient on the surface.

この流れ場はマランゴニ数 $Ma = \sigma_T d^2 (dT^\circ/dx) / \mu \kappa$ が

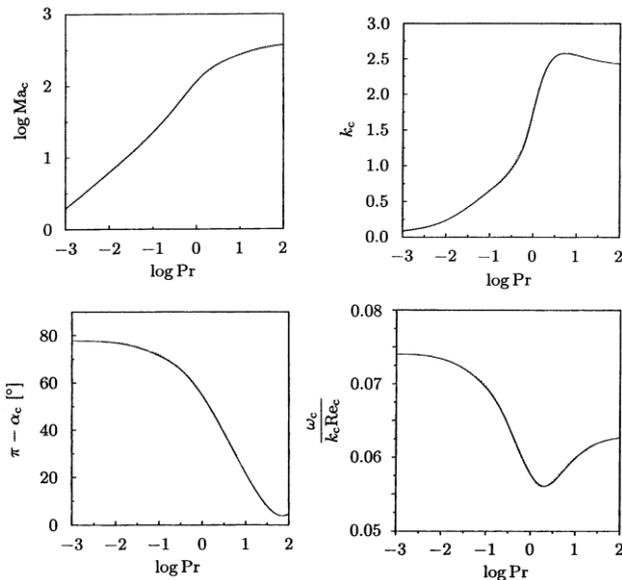
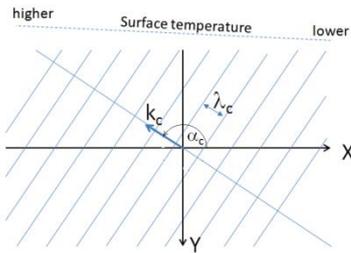


Fig. 8 Characteristics of critical parameters for the onset of Hydrothermal wave instability^{26, 27)}.

ある臨界値 Ma_c を超えると, Fig. 8 最上段に示すように, 波数 k_c のロール状の対流群 (Hydrothermal wave instability: 以後 HTW と記す) が発生し, x 軸 (温度勾配の逆方向) から角度 α_c 傾いた方向に伝搬する. (ただし, 伝搬方向に関しては縮重しており α_c の正負いずれの解も等価である.) Ma_c, k_c, α_c および角振動数 $\omega_c = 2\pi f_c d^2 / \nu$ は Pr によって Fig. 8 のように変化する^{27,28)}. 高 Pr の場合には, x 軸 $(-VT^\circ)$ の方向) にほぼ直交する回転軸を持つロールセルが低温側から高温側へ向かって伝搬する. $Pr=13.9$ の液層内の擾乱速度および温度擾乱のある瞬間での x - z 断面内の分布を Fig. 9 に示す. 図の左から右へと温度が低下する表面上の温度分布によって惹起された速度擾乱と T° の相互作用によって表面近傍の高温液, 底部の低温液がそれぞれ下向き, 上向きに運ばれ強い高温塊, 低温塊が $z=0.5$ 近傍に形成される. これら高・低温塊は表面を加熱・冷却するが, U° の影響で等温線は下流方向に伸長され, その結果, 表面温度の極大点 (擾乱の湧き出し点) は, 下からの伝熱によって, 上流側へと移動する. 同様に表面温度極小の位置も上流側へと移動するため, Fig. 9 のパターン全体が高温側へと伝搬する結果となる. また, Fig. 9 のように HTW の擾乱流は高温塊中を下降流が, 低温塊中を上昇流が通過する構造であるため, 重力下では浮力がこの流れを抑制するため Ma_c は増大すると予測される. このことは S&D と同じ無限液層についての Chan and Chen³⁰⁾ (2010) の線形解析でも確認され, また低 Pr 液層の液表面からの放熱も Ma_c を増大させる³¹⁾.

HTW は, シリコンオイルなどを用いた地上実験によってその存在が確認された³²⁾. ただし, 実際には必ず容器壁が存在するため, 2次元定常流や擾乱の空間構造も, 加熱・冷却壁および側壁の影響を強く受ける. 中~高 Pr の場合には加熱・冷却壁近傍に温度境界層が発生するため, 実際の液面上の温度勾配は, 側壁間温度差 ΔT と壁間距離 L から算出する見かけの温度勾配 $(\Delta T/L)$ より小さくなるため, 場所によらず一定の温度勾配が存在する無

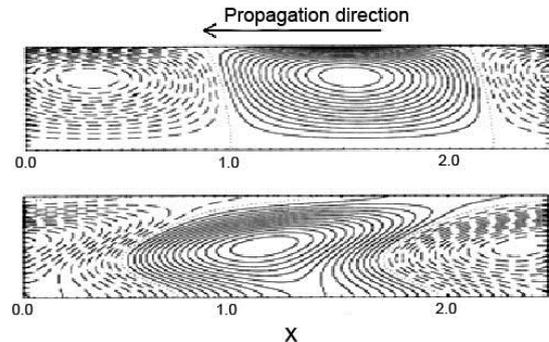


Fig. 9 Isolines of stream-function (top) and perturbation temperature (bottom) at $Ma_c=294.7, Pr=13.9, Gr=Bi=0, k_c=2.54, \omega_c=3.26, \pi - \alpha_c=16.8^\circ$ ²⁸⁾.

限広がり液層を仮定した S&D の理論と比較するには表面温度勾配を計測する必要がある。同一長の矩形プールでも深さが増すと浮力の影響が増大し basic flow の状態も変化する。異なるアスペクト比 ($As=L/d$) を持つ有限液層内の HTW および 3 次元定常流の発生機構は Kuhlmann and Albensoelder³³⁾ が詳しく解析している。また、中～高 Pr の場合には加熱面近傍に出現する定常渦の影響で、動的ボンド数 ($Bo_d=\rho\beta\tau_c d^2/\sigma_T$) が 0.22 以上となる深い液層では、HTW 発生以前に、同方向に回転する定常渦列 (cat's-eye flow) が発生し、さらに大きな温度差で HTW が発生する³²⁾。また、 Bo_d が約 2 以上になると、3 次元定常流が発生し HTW は発生しなくなる³³⁾。また、矩形プール内に発生する HTW の表面温度パターンは加熱壁近傍で屈曲し、通常の HTW が低温壁から高温壁に向かって伝搬するのに対して、加熱壁近傍には高温壁から低温壁に向かって伝搬する HTW が存在するかに見える (Fig. 10)。Kawamura ら³⁴⁾ の数値解析により、この屈曲は加熱壁近傍に存在する強い定常渦が HTW 温度縞を巻き込んだ結果発生することが判明した。

環状プールを用いれば側壁の影響は避けられる^{35,36)} と考えて、Schwabe ら³⁶⁾ は半径 $R_i=20\text{mm}$, $R_o=40\text{mm}$ の同心円筒間の液層を外壁加熱、内壁冷却したときに発生す

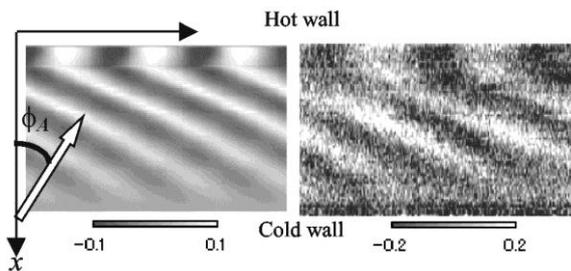


Fig. 10 Bent of HTW's surface temperature patterns near the hot wall. Experimental (right) and simulation (left).

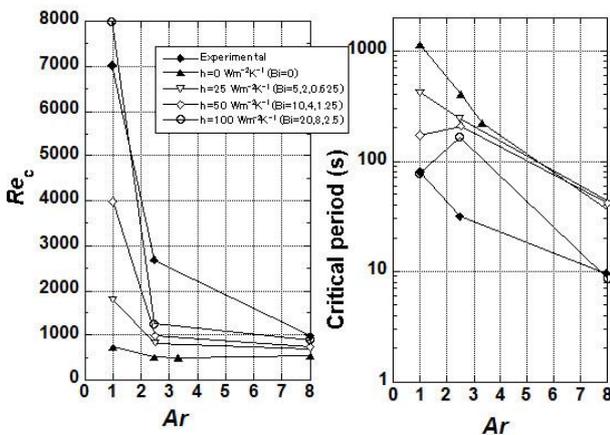


Fig. 11 Critical Reynolds number and oscillation period in annular pool of silicone oil: $\nu=0.65\text{cSt}$, $Pr=6.84$ ³⁷⁾.

る振動流発生臨界条件 Re_c および温度振動の周期を微小重力下で測定(1999)し Fig. 11を得た。ここで $Re_c = \sigma_T d \Delta T_c / \mu \nu$, $Ar = (R_o - R_i) / d$ である。断熱表面を仮定した数値解析による臨界温度差は μG 下の実験結果より小さく、実験結果を再現するためには大きな表面熱損失を仮定する必要があった³⁷⁾。

その後フランス、スペイン、日本と中国の研究グループが環状プール内のマランゴニ関連対流についての研究を進め、重力、アスペクト比、内外壁の半径比、液面および底面での熱的境界条件の影響などを検討した³⁸⁻⁴⁰⁾。

一方、S&Dの理論によれば、低 Pr 液層内の擾乱は温度勾配に直交する方向に伝搬する長波長のロールセルの形態をとると予測される。この場合の振動流は、表面張力勾配で駆動される強いbasic flow 自体が不安定化し、マランゴニ効果とは無関係に発生する。有限の容器内で側壁から加熱・冷却される低 Pr 液層内には温度境界層は生じず全表面を通じてbasic flow は加速され、冷却壁近傍に強い定常渦が発生する。この渦流の不安定性の影響を受けて、S&D理論より波数の大きい(波長の短い)ロール状の3次元振動流(場合によっては3次元定常流)が出現すると予想されるが、液深、アスペクト比、重力、表面熱伝達などの影響についての詳細な解析および実験的検証はいまだに不十分な状態である。

シリコン CZ 炉内の融液表面のスポーク状の温度パターンが HTW で説明できないかとの疑問⁴¹⁾から開始された低 Pr 流体の環状プール内の 3 次元振動流の数値解析はその後も Y.R. Li らによって続けられているが、体系的な理解には至っていない。

1.4 液柱内のマランゴニ対流

界面に沿った温度勾配によって引き起されるマランゴニ対流で実用上最も重要なのは、Floating Zone 法(以後 FZ 法と記す)による結晶育成の分野である。Chang and Wilcox⁴²⁾(1975,1976)は、円筒状のシリコン融液 ($Pr=0.023$)の表面を放射加熱した場合に生じる定常マランゴニ対流の数値解析をおこない、Fig. 12 の流れ関数を得た。この場合のマランゴニ数はヒータから融液表面への熱供給速度 q と半径 a を用いて、 $Ma = \sigma_T q a^2 / \mu \kappa$ と定義

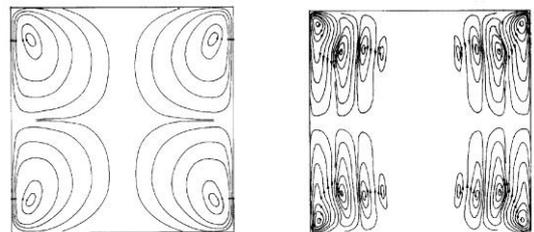


Fig. 12 Stream functions in silicon FZ melt pool⁴²⁾.

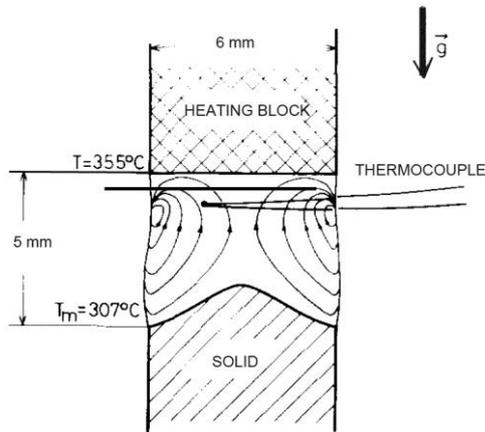


Fig. 13 Half zone liquid bridge of Schwabe⁴³⁾.

されている。この解析では上下の固体-融液界面は融点に保たれた平面と仮定している。 $Ma=350$ の場合には上下対称な一対の循環流が形成されるが、 $Ma=7000$ の場合には多数の渦が算出され、 Ma が大きくなると実際には振動流あるいは乱流が発生すると推測した。

融液内の流れが 3 次元流になったり振動流や乱流になると、固液界面近傍の融液温度、不純物濃度が時空間的に変動し、結晶の成長速度や不純物取り込み速度も変動する。その結果として結晶中に微細成長縞が形成され結晶品質低下の原因となる。振動流発生を抑制・回避するためにはその発生機構、発生条件を理解する必要がある、FZ 炉内のマランゴニ対流に関する関心が高まった。

Schwabe ら⁴³⁾ は FZ のメルトゾーン全体の代わりに、Fig. 13 の half-zone 液柱 (以後 HZ) を使用し、溶融塩 (NaNO_3 : $Pr=2.6$) を用いた実験で、規則的な温度振動を観測した。

HZ は、FZ の流れを中心に切り分けたもので、FZ の中心を固体板で置き換えたために FZ とは流れが異なるものの、上下の固体間温度差が容易に測定できる利点がある。この後、下部の個体も金属棒で置き換え、上下の固液界面ともに平滑な HZ を用いて、各種の有機液体や溶融塩の HZ の実験が行われ、液柱サイズ、アスペクト比、 Pr 、加熱方向などが臨界マランゴニ数、擾乱パターン、振動様式、振動周波数等に及ぼす影響が明らかにされた^{28,44)}。Preisser ら⁴⁵⁾ (1978) は小型ロケットを用いた μG 実験で観察したトレーサー粒子の軌跡から、中 Pr 流体の HZ に生じる周方向波数 $m=1$ の振動流の流れの模式図として Fig. 14 を示した。図は周方向波数 $m=1$ の回転型の派生流の概要を示している。中央断面内の等温線は周方向波数によって Fig. 15 のように変化する。また、振動形態には、回転型以外に、定在波型の振動も生じる。中・高 Pr 流体の液柱の場合、不安定化は振動型の派生流を伴う Hopf bifurcation である。臨界条件 (Re_c, Ma_c, m_c, f_c) は、液柱の長さ、アスペクト比、 Pr 、表面からの吸・放熱などによって複雑に変化する (第 2 章参照)。

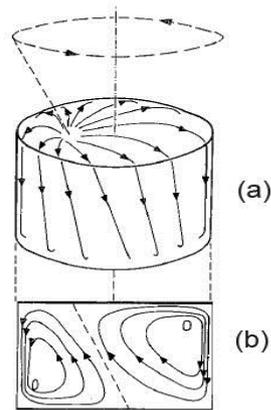


Fig. 14 A qualitative picture of a three dimensional oscillatory flow with mode number $m=1$ in a HZ of NaNO_3 ($Pr=8.9$) with $a=3\text{mm}$, $L=5\text{mm}$ ⁴⁵⁾.

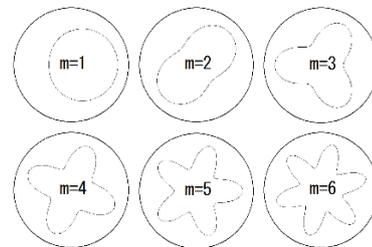


Fig. 15 Patterns with m fold symmetry.

一方、低 Pr 流体は多くの場合不透明な熔融金属であるため内部の流動状態の観察も困難で、FZ メルト中の振動流の実験的研究は、結晶育成を行い、結晶中に残された微細な成長縞の形態から推測するしかなかった。自然対流が消滅する微小重力下で育成したシリコン結晶中にも微細成長縞が発生することから、マランゴニ対流による振動流が発生することが確認された。その後、Croell ら⁴⁶⁾は FZ 装置のメルトの表面を薄い SiO_2 膜で覆い、メルトの自由表面長さを変える結晶成長実験を行い、自由表面長が長い時に成長した結晶中には微細成長縞があり、自由表面長が短くなると消滅することを確認し、この手法で臨界マランゴニ数を求め、振動流は $140 < Ma < 200$ 程度で発生すると報告した。その後、水銀⁴⁷⁾、錫⁴⁸⁾、シリコン⁴⁹⁾、銀⁵⁰⁾などの HZ を用いた実験が行われたが、温度差を小さくすることが困難で、振動流発生時の温度変動の計測はできても、3 次元非振動流や振動流発生条件の決定は不可能であった。実験的研究が困難な低 Pr 液柱内の流れの詳細を知るために、数値解析が盛んに実施された。Rupp ら⁵¹⁾は HZ について 3 次元非定常数値解析を行い、GaAs ($Pr=0.023$) の軸対称定常流れはある臨界温度差 ΔT_{c1} において 3 次元定常(非振動)流へと遷移し、さらに大きな温度差 ΔT_{c2} において振動流へと遷移することを

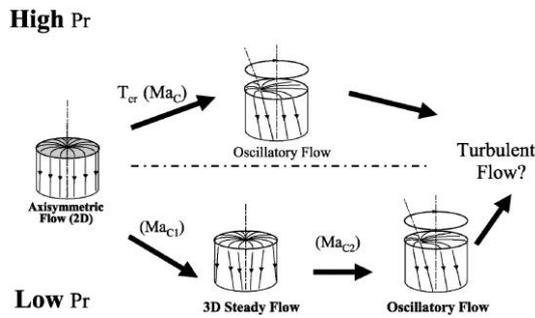


Fig. 16 Flow transitions in HZ liquid bridges.

示した。つまり、HZ 中の軸対称定常マランゴニ対流は、温度差の増加とともに強くなるが、ある臨界値を超えると 3 次元流へと遷移する。その遷移挙動は Pr によって異なり、Fig.16 に示すように、高 Pr では振動流へと直接遷移し、低 Pr では 3 次元定常（非振動）を経て振動流へと遷移する 2 段階遷移を示す。

低 Pr 流体液柱における 3 次元定常流、振動流の挙動は線形安定解析⁵²⁻⁵⁵⁾および数値解析⁵⁴⁾から、周方向波数は液柱のアスペクト比等に依存すること、振動形態は、速度・温度場の 3 次元構造が中心軸の周りでのねじれ振動、回転振動、あるいは、ある垂直断面に沿った 1 次元往復運動など様々な形態をとること、などが知られている。なお、有限広がりでの低 Pr プール内に発生する 3 次元流れは、 Re_c が Pr に依らずほぼ一定値となることから、S&D が提唱した Hydrothermal 機構ではなく Hydrodynamical な不安定化現象であると考えられている（第 2 章参照）。

低 Pr と高 Pr の境界については、Fig. 17 中の太線で示した $As=1.0$ の HZ 内の軸対称定常マランゴニ対流の安定限界（3 次元対流の発生条件）の Pr 依存性から、 $0 \leq Pr \leq 0.057$ では 2 段階の遷移で振動流へと変化し、 $Pr \geq 0.057$ では振動流への直接遷移が起こると予測される。

3 次元振動流が発生した後、さらに温度差を増すと流れはカオス状になり、さらに大きな温度差では乱流化する

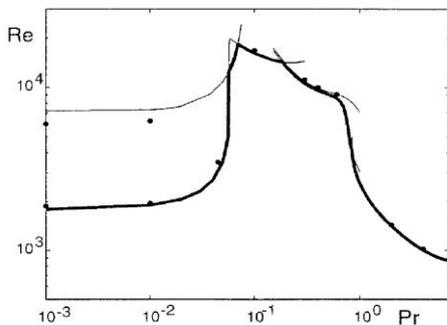


Fig. 17 Critical Reynolds number as a function of Pr for a HZ with $As = 1.0$ ⁵³⁾. Lines: results of linear stability analysis. Dots: critical point determined by numerical simulation⁵⁴⁾.

と期待される。通常の管路内の乱流の場合等では、流れの駆動力（圧力勾配）は、流れの状態にかかわらず、外的に与えられ維持されている。しかし、マランゴニ対流の場合の駆動力は、表面上高温壁から低温壁まで続く、表面温度勾配のみである。したがって乱流化によって表面上の温度勾配が寸断されるならば、駆動力が減衰される可能性がある。このような特殊な場での乱流の挙動は、流体力学にとってもきわめて興味深い基礎的問題である。

1.5 まとめ

マランゴニ効果による表面張力駆動流は、浮力と協同して“自然対流”を引き起こすのみならず、界面周辺での微小スケールの対流を引き起こし、熱・物質の相間移動速度促進によって各種の工業装置内でも重要な役割を果たしている。さらに、浮力がほぼ消滅する宇宙空間においても強い対流を引き起こす点で重要な宇宙工学的な課題である。微小重力環境利用においては、表面張力対流の発生機構・挙動・特性の正確かつ定量的な理解、流動の制御・抑制法、あるいは、より強い流動場の形成手法など広範なエンジニアリングサイエンス基盤の構築が必要不可欠である。また、微小重力環境における高品質結晶育成のためには、表面張力駆動流が軸対称定常流であることが必要で、3 次元定常流や振動流への遷移は絶対に避けねばならない。そのため、結晶育成装置設計には、3 次元定常流や振動流への遷移の臨界条件の正確な推算手段、制御因子や制御法、などについての実験及びシミュレーションに基づく研究が必要不可欠である。

参考文献

- 1) H. Benard: Rev Gen. Sci. Pure. Appl., **11** (1900) 1309.
- 2) H. Benard: Rev Gen. Sci. Pure. Appl., **11** (1900) 1261.
- 3) Lord Rayleigh: Phil. Mag. J. Sci., Ser. 6, **32** (1916) 529.
- 4) E.M. Sparrow, R.J. Goldstein and V.K. Jonsson: J. Fluid Mech., **18** (1963) 513.
- 5) J. Thomson: Phyl. Mag. Ser. 4, **10** (1855) 330.
- 6) H. Kawamura and I. Ueno: Surface tension-driven flows and applications, Research Signpost, Kerala, 2006.
- 7) C. G.M. Marangoni: Ann. Phys. Chem. (Poggendorff) **143** (1871) 337.
C. Marangoni, J. Plateau: Nuovo Cimento Giornale di Fisica, Chimica e storia Naturale, Ser.2, **V-VI**, (1871) 239.
- 8) M.J. Block: Nature, **178** (1956) 650.
- 9) I.R.A. Pearson: J. Fluid Mech., **4** (1958) 489.
- 10) D.A. Nield: J. Fluid Mech., **19** (1964) 341.
- 11) L.E. Scriven: Chem. Eng. Sci., **12** (1960) 98.
- 12) C.J. Jing, N. Imaishi, S. Yasuhiro and Y. Miyazawa: J. Crystal Growth, **200** (1999) 204.
- 13) J.B. Lewis: Chem. Eng. Sci., **3** (1954) 260.
- 14) C.V. Sternling and L.E. Scriven: A. I. Ch. E. J., **5** (1959) 514.
- 15) Y. Nakaike, Y. Tadenuma, T. Sato and K. Fujinawa: Int. J. Heat Mass Transfer, **14** (1971) 1951.
- 16) J. Wang, Z. Wang, P. Liu, C. Yang, and Z.S. Mao: A. I. Ch. E. J., **57** (2011) 2671.
- 17) P.L.T. Brian, J.E. Vivian and S.T. Mayr: Ind. Eng. Chem. Fund., **10** (1971) 75.
- 18) P.L.T. Brian: A.I.Ch.E. J., **17** (1971) 765.
- 19) P.L.T. Brian and J.R. Ross: A. I. Ch. E. J., **18**, (1972) 582.

- 20) N. Imaishi, Y. Suzuki, M. Hozawa and K. Fujinawa: Kagaku Kogaku Ronbunshu, **8** (1982) 127 (in Japanese), Int. Chem. Eng., **23** (1983) 466.
- 21) P.L.T Brian, J.E. Vivian and D.C. Matiatos: A. I. Ch. E. J., **13**, (1967) 28.
- 22) N. Imaishi and K. Fujinawa: Kagaku Kogaku Ronbunshu, **4** (1978) 484 (in Japanese), Int. Chem. Eng., **20** (1980) 226.
- 23) N. Imaishi and K. Fujinawa: Kagaku Kogaku Ronbunshu, **4** (1978) 490 (in Japanese).
- 24) T. Kashiwagi: Trans. Japan Soc. Mech. Eng., **B 51** (1985) 1002.
- 25) M. Hozawa, M. Inoue, J. Sato, T. Tsukada, and N. Imaishi: J. Chem. Eng. Japan, **24** (1991) 209.
- 26) H. Daiguji, E. Hihara and T. Saito: Int. J. Heat Mass Transfer, **40** (1997) 1743.
- 27) M. Smith and S.H Davis: J. Fluid Mech., **132** (1983) 119.
- 28) H.C. Kuhlmann: Springer Tracts in Modern Physics, Springer, Berlin, 1999.
- 29) M. Smith: Phy. Fluids, **29** (1986) 3182.
- 30) C.L. Chan and C.F. Chen: J. Fluid Mech., **647** (2010) 91.
- 31) J. Priede, and G. Gerbeth: Phys. Fluids, **9** (1997) 1621.
- 32) R.J. Riley and G.P. Neitzel: J. Fluid Mech., **359** (1998) 143.
- 33) H.C. Kuhlmann and S. Albensoelder: Phys. Rev. E, **77** (2008) 036303-1.
- 34) H. Kawamura, E. Tagaya, and Y. Hoshino: Int. J. Heat Mass Transfer, **50** (2007) 1263.
- 35) Y. Kamotani, J.H. Lee, S. Ostrach, and A. Pline: Phys. Fluids, **A4**, (1992) 955.
- 36) D. Schwabe, A. Zebib, B.C. Sim: J. Fluid Mech., **491** (2003) 239.
- 37) B.C. Sim, A. Zebib, and D. Schwabe: J. Fluid Mech., **491** (2003) 259.
- 38) N. Garnier and A. Chiffaudel: Eur. Phys. J. B **19** (2001) 87.
- 39) M.A.M. Galceran: Dr. Thesis, School of Science, Universidad de Navarra, 2009.
- 40) WY. Shi and N. Imaishi: J. Crystal Growth, **290** (2006) 280.
- 41) Y.R. Li, N. Imaishi, T. Azami and T. Hibiya: J. Crystal Growth, **260** (2004) 28.
- 42) C.E. Chang and W.R. Wilcox: J. Crystal Growth, **28** (1975) 8. C.E. Chang and W.R. Wilcox: Int. J. Heat Mass Transfer, **19** (1976) 355.
- 43) D. Schwabe, A. Scharmann, F. Preisser, and R. Oeder: J. Crystal Growth, **43** (1978) 305.
- 44) M. Lappa: Thermal Convection, Patterns, Evolution and Stability, Wiley, UK, 2009.
- 45) F. Preisser, D. Schwabe, and A. Scharmann: J. Fluid Mech., **126** (1983) 545.
- 46) A. Croell, W. Mueller-Sebert and R. Nitsche: Mat. Res. Bull., **24** (1989) 995.
- 47) J.H. Han, Z.W. Sun, L.R. Dai, J.C. Xie and W.R. Hu: J. Crystal Growth, **169** (1996) 129.
- 48) Y.K. Yang and S. Kou: J. Crystal Growth, **222** (2001) 135.
- 49) T. Hibiya and S. Nakamura: Adv. Space Res. **24** (1999) 1225.
- 50) T. Hibiya, K. Nagafuchi, S. Shiratori, N. Yamane and S. Ozawa: Adv. Space Res., **41** (2008) 2107.
- 51) R. Rupp, G. Mueller, and G. Neumann: J. Crystal Growth, **97** (1989) 34.
- 52) M. Wanschura, V.M. Shevtsova, H.C. Kuhlmann, H.J. Rath: Phys. Fluids, **7** (1995) 912.
- 53) G. Chen, A. Lizee, and B. Roux: J. Crystal Growth, **180** (1997) 638.
- 54) M. Levenstam, G. Amberg and C. Winkler: Phys. Fluids, **13** (2001) 807.
- 55) K. Fujimura: J. Phys. Soc. Japan, **82** (2013) 074401.

付録

マランゴニ対流の基礎式

流体の流れ，伝熱，物質移動は輸送方程式で表わされる． Boussinesq 近似が成り立つ場合の輸送方程式は，定常の場合，次式と書ける．

$$\text{連続の式} \quad : \quad \nabla \cdot \mathbf{V} = 0 \quad (\text{A1})$$

$$\text{運動方程式} \quad : \quad \mathbf{V} \cdot \nabla \mathbf{V} = -\nabla p + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau} + \rho g \mathbf{e}_z \quad (\text{A2})$$

$$\text{熱収支式} \quad : \quad \mathbf{V} \cdot \nabla T = \kappa \nabla^2 T \quad (\text{A3})$$

$$\text{物質収支式} \quad : \quad \mathbf{V} \cdot \nabla C = D \nabla^2 C \quad (\text{A4})$$

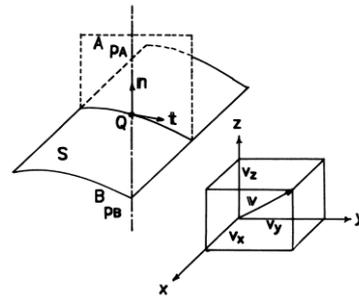
ここで $\boldsymbol{\tau} = -\mu(\nabla \mathbf{V} + \nabla \mathbf{V}^T)$ である．

浮力対流は運動方程式中の ρg 項によって発生する．

一方，マランゴニ対流の発生機構は基礎式中には現れず運動方程式（運動量収支式）の境界条件の接線方向成分の中に現れる．界面での表面粘性 μ_s の効果も考慮すると，流体 A と流体 B との界面 S 上での運動量収支式は

$$(p_A - p_B) : \mathbf{n} + (\boldsymbol{\tau} : \mathbf{n})_B - (\boldsymbol{\tau} : \mathbf{n})_A + 2\sigma H \mathbf{n} + \mu_s \nabla_s (\nabla_s \cdot \mathbf{V}) = \nabla_s \sigma \quad (\text{A5})$$

である．ここで ∇_s は界面上での微分演算子， H は界面の曲率である．



(A5)式を界面 S の法線方向成分と接線方向成分に分割すると接線方向成分，法線方向成分として

$$(\boldsymbol{\tau} : \mathbf{nt})_A - (\boldsymbol{\tau} : \mathbf{nt})_B \sigma - \mu_s \mathbf{t} \cdot \nabla_s (\nabla_s \cdot \mathbf{V}) = \mathbf{t} \cdot \nabla_s \sigma \quad (\text{A6})$$

$$(p_A - p_B) + (\boldsymbol{\tau} : \mathbf{nn})_B - (\boldsymbol{\tau} : \mathbf{nn})_A + 2\sigma H_c = 0 \quad (\text{A7})$$

が得られ，(A6)式が(A2)式の境界条件として用いられる． σ は温度や溶質濃度の関数であるから，(A2)式を解くには(A3)式あるいは(A4)式と一緒に解く必要がある．

一方， $\mathbf{V}=0$ すなわち流体が静止している場合の(A7)式からは，静止流体の界面形状を表す Young-Laplace 式が得られる．

$$(p_A - p_B) = 2\sigma H_c \quad (\text{A8})$$