

# レーザーホログラフィーを用いた2層系二重拡散対流における密度場の解析

金田 哲生, 中島 栄次, 山根 岳志, 吉田 正道, 宮下 尚

Analysis of density field for double-diffusive  
convection using laser holography

Tetsuo Kaneda, Eiji Nakajima, Takeshi Yamane,  
Masamichi Yoshida, H Miyasita

Double-diffusive convection in a  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  aqueous solution stratified in two-layer destabilized by lateral heating and cooling was studied experimentally. The real-time holographic interferometry was used to visualize the distribution of the reflective index. Since both temperature and concentration influence the reflective index, it was measured for  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  aqueous solution. Calculated reflective index from visualized photographs were found to be reasonable. Local temperatures were also measured on the central vertical line of the test section. Changes in concentration and density distributions with time were obtained by using the visualized reflective index profile and temperature distributions.

Key Words: Double-Diffusive Natural Convection, Laser Holography, Visualization, Reflective Index, Concentration Distribution, Density Distribution

## 1. 緒 言

近年、産業界における革新的な技術の発展に伴ない、より機能性の高い金属系材料が要求されている。このような材料が製造される際、溶解・凝固の過程を経るが、相変化を伴うプロセスでは固液界面上で溶質の排除が起こるため、液相側において温度差と濃度差による対流が個別に発生する。そのとき、これら2つの対流の相互作用によって複雑な対流現象が発生し、場合によっては多重セル構造対流が形成されることがあり<sup>1)</sup>これを二重拡散対流と呼ぶ。このような現象は、結晶成長速度や、不純物分布などに大きく影響していると考えられるが、その詳細は十分に説明されていないのが現状である。

これまでに、側方冷却による水溶液の凝固の際、二重拡散対流によって形成される多重セル構造につ

いて研究が行われ、液相側における対流挙動の詳細が明らかにされた<sup>2)</sup>。その後、二重拡散対流をより詳細に観察するために現象が複雑になる凝固を離れ、多重セル構造を単純化させた系について研究が行われるようになった。例えば、2層系階段状濃度勾配に水平温度勾配を与えた系について、温度場と流れ場の可視化を通して温度分布や対流挙動、また各層の平均濃度の測定などが行われている<sup>3, 4)</sup>。

筆者らも、流れ場や温度場の可視化、局所濃度測定などにより境界面近傍での溶質移動機構や、境界面を通過する溶質の移動速度について検討してきた<sup>5, 6)</sup>。その結果、濃度差によって発生する溶質対流が現象に大きな影響を及ぼしていることが明らかにされた。しかしながら、二重拡散対流現象において重要な要素である濃度や密度分布を場として捉えるには至っていない。さらに詳細な現象の検討をお

こなうには系内の濃度分布を場として測定し、その過渡的な変化を捉える必要がある。

そこで、本研究では  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  水溶液を用いた 2 層系階段状濃度勾配に水平温度勾配を与えた系に対して、新しい解析手段としてレーザーホログラフィー可視化システムを導入し、系内密度分布の可視化方法の検討、および濃度分布、密度分布の算出を試みた。

## 2. レーザーホログラフィー実時間干渉法の原理

本研究で使用する実時間干渉法とは、あらかじめ超微粒子乾板に記録させた、物体光と参照光が作る基準の波面と、実際の波面とを干渉させる方法であり、透過物体の密度変化に起因した位相変調を、干渉縞のかたちで非定常に観察することが可能となる<sup>7)</sup>。物体光と参照光による非常に微細な干渉縞を乾板に記録したもののホログラムと呼び、密度変化などにより位相変調を受けた物体光による波面と、参照光により再生された基準の波面とのずれが、乾板上で縞となって現れる。

図 1 に、本研究で使用する光学系の概略図を示す。レーザー光源から発せられた光はビームスプリッターで、テストセクションを通過する物体光と参照光の 2 つに分離されたのち、再び乾板上で重なりあうようになっている。レーザー光源を除いたこれらの器具は、外部からの振動の影響を受けないように、すべてマグネットベースによって防振台に固定されている。

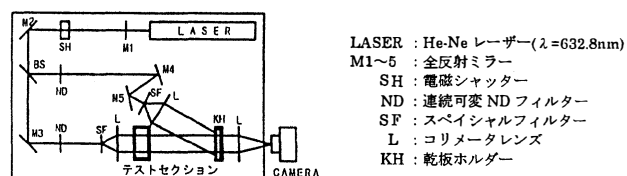


図 1 光学系概略図

## 3. 実験装置及び方法

### 3. 1 実験装置

図 2 に実験装置およびテストセクションの概略図を示す。テストセクションは高さ  $H=44\text{mm}$ 、幅  $W=40\text{mm}$ 、奥行き  $L=20\text{mm}$  (アスペクト比  $A=1.1$ ) の

矩形容器である。レーザー光が透過する可視化面は、温度や歪みによる屈折率変化の少ない厚さ  $10\text{mm}$  のプレキシガラス、左右壁面は銅製、上下壁面はアクリル製である。左右の壁面は右が加熱壁、左が冷却壁となっており、それらと接した加熱、冷却室に恒温槽から一定温度の水を循環させることによって壁温を制御できるようになっている。壁面温度の測定は、壁面に埋め込まれた  $0.1\text{mm}$  ークロメル・アルメル熱電対により行なった。

また、溶液をテストセクション上部からマイクロポンプを用いて静かに注入することにより、内部に溶液の濃度成層を作ることが可能である。

温度測定実験には、直径  $1.5\text{mm}$  のパイプの先端に取り付けられた、可動式のクロメル・アルメル熱電対を用い、これを上下させることによって容器中央垂直断面の任意の高さにおける温度の測定が可能である。なお、図 2 中の黒丸は今回測定を行った箇所である。

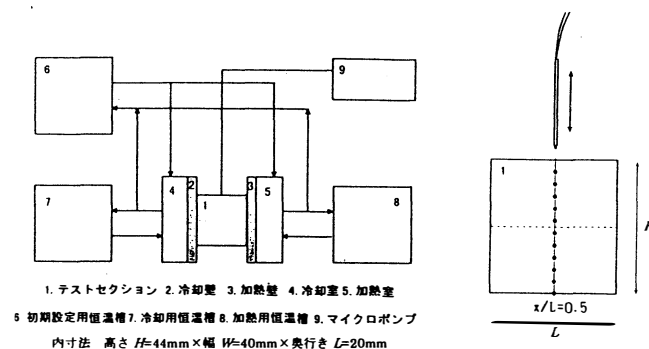


図 2 実験装置およびテストセクション概略図

### 3. 2 実験方法

本実験ではあらかじめ脱気を行った  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  水溶液を用いる。まずテストセクション内を高濃度側の溶液で満たす。そして初期設定用恒温槽から加熱、冷却室に水を循環させ、テストセクション内の溶液を初期温度 ( $30^\circ\text{C}$ ) にする。テストセクション内の温度が均一になったらそれを基準状態とし、ホログラムの作成を行う。ホログラムは、乾板ホルダー内に水を満たした状態で、物体光：参照光の光量の比を 2 : 3、露光時間は  $0.6 \sim 0.9\text{s}$  で乾板にレーザー光を照射し、その後排水、現像、停止、定着、水洗いを行うことにより作成される。

次に、テストセクション上部から中間高さ ( $H=22\text{mm}$ ) まで溶液を排出する。そしてマイクロポンプ

表1 実験条件

	$\Delta T [^{\circ}\text{C}]$	$T_h [^{\circ}\text{C}]$	$T_c [^{\circ}\text{C}]$	$\Delta C_0 [\text{wt}\%]$	$C_d [\text{wt}\%]$	$C_u [\text{wt}\%]$
RUN 1	10.0	35.0	25.0	0.8	4.2	3.4
RUN 2	5.0	32.5	27.5	0.4	4.0	3.6

を用いて30℃の低濃度溶液を静かに注入し、下層が高濃度、上層が低濃度となるように濃度成層させる。その後、テストセクションを密閉し、加熱、冷却室に循環させる恒温層の水を初期設定用から加熱、冷却用に切り替え、この瞬間を実験開始時刻 ( $t=0$ ) として、境界面が崩壊するまで適時写真撮影、あるいはビデオ撮影を行う。

表1に実験条件を示す。

#### 4. 温度、濃度の屈折率への依存性

レーザー光の干渉性を利用した流体中の密度（温度、濃度）の光学的測定では、それらと屈折率との関係が必要となってくる<sup>8)</sup>。ここで注意しなければならないのは、干渉縞はあくまでもの等屈折率線であるということである。本研究のように温度勾配と濃度勾配が共存する場合は、その両方が屈折率に影響するため干渉縞を直接、等密度線として解析をすすめることができない。

##### 4. 1 温度、濃度と屈折率の関係

可視化実験によって得られる縞の解析にあたり、

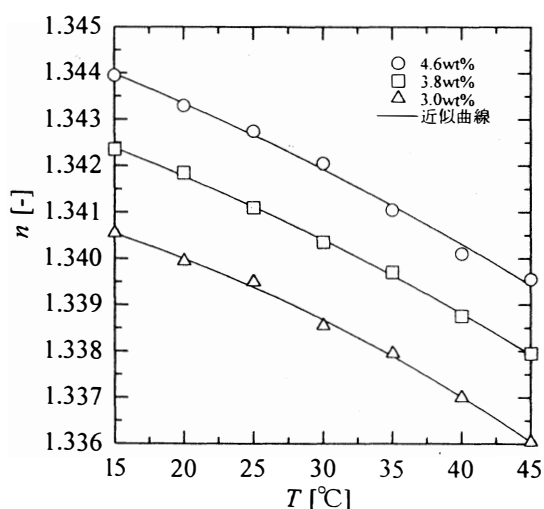


図3  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 水溶液の温度  $T$  および濃度  $C$  と屈折率  $n$  の関係

$\text{Na}_2\text{CO}_3$ 水溶液の温度と濃度を変えて、屈折率の測定を行うことによりその関係を明らかにした。なお、屈折率の測定にはアッペ屈折率計 (Na-D 線、波長 589nm) を用いた。

図3に屈折率の測定結果をプロット点として示す。またそれぞれの濃度について、近似して得られた曲線を実線で示した。これらのデータより、屈折率  $n$  は(1)式のような温度  $T$  及び濃度  $C$  の関数として表される。

$$n = aT^2 + bT + c \quad (1)$$

$$a = -3.90625 \times 10^{-7} C^2 + 3.4003 \times 10^{-6} C - 8.37575 \times 10^{-6}$$

$$b = 1.98102 \times 10^{-5} C^2 - 1.78013 \times 10^{-4} C + 3.07532 \times 10^{-4}$$

$$c = -3.98438 \times 10^{-4} C^2 + 5.49688 \times 10^{-3} C + 1.32874$$

##### 4. 2 密度と屈折率の関係

図4に  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 水溶液の密度  $\rho$  と屈折率  $n$  の関係を示す。なお、密度は(2)式より算出した。

図4中の平行四辺形で囲まれた領域が、今回解析の対象とした実験条件において、密度および屈折率が変化する範囲である。この図から屈折率が同じでも温度、濃度の値によって対応する密度は異なることがわかる。つまり1本の等屈折率線上で密度が

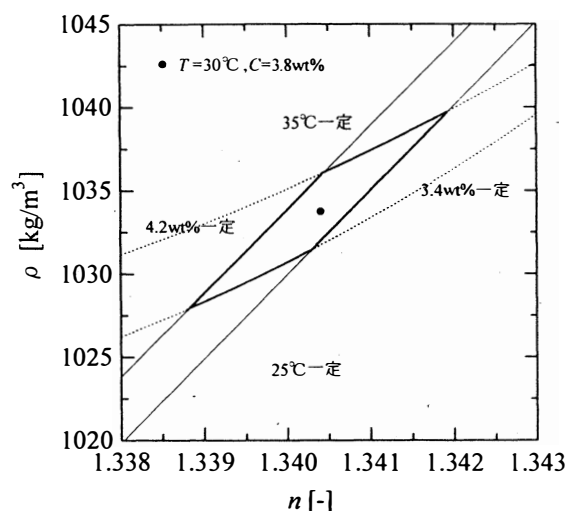


図4  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 水溶液の密度  $\rho$  と屈折率  $n$  の関係

変化する場合がありそのときは等密度線を表さないことになる。

$$\rho = \rho_0 \{1 - \beta_t(T - T_0) + \beta_c(C - C_0)\} \quad (2)$$

$$\beta_c = 9.698 \times 10^{-3}, \quad \beta_t = 4.018 \times 10^{-4}$$

## 5. 結果及び考察

### 5. 1 可視化実験結果

図5にRUN1 ( $\Delta T = 10^\circ\text{C}$ ,  $\Delta C_0 = 0.8\text{wt}\%$ )における可視化実験結果を示す。上段はレーザーホログラフィーを用いた等屈折率線、下段は感温液晶を用いた温度場の可視化写真である。なお、感温液晶は温度の高い方から順に、青、緑、黄、赤と呈色し、緑は約 $30^\circ\text{C}$ である。また、各写真の下に実験開始よりの経過時間を示した。

図5-aは、加熱冷却を始める直前の写真である。上下層境界部分に、狭い間隔で縞が存在しているが、これは濃度拡散層であり、この部分にしか密度勾配がないことがわかる。

図5-bは、熱的擬定常状態初期、図5-cはその中期における写真である。この期間において、壁面および上下層境界近傍を除いた部分において、温度分布および屈折率分布は水平方向にはほぼ一定であるが、このときの上下各層内の濃度はそれぞれほぼ均一であると予想される<sup>4)</sup>ことから、この部分における等屈折率線は近似的に等密度線とみなすことができる。しかし温度勾配および濃度勾配の大きい所、つまり上下層境界面附近では、等屈折率線は正しい等密度線を表していない可能性がある。

また、上下各層で縞が蛇行していることより内部に反時計周りの対流が発生していることがわかる。この期間において温度場にはほとんど変化はなく、上下各層における縞の様子にも大きな変化はなかった。しかし、境界面付近で密だった干涉縞は徐々に粗くなっていくことが確認された。この理由として、上下層間の濃度差が減少したことが考えられる。これらのことより、層内部の密度勾配が保たれたまま、溶質の移動が行なわれることが言える。

図5-dより、溶質移動が進行すると境界面において揺らぎが確認されるが、これはここで縞として確認される、二次元的な渦の発生が原因である。また、このとき上層加熱壁側、下層冷却壁側では縞に

乱れが生じていることから、他層からの異濃度流体の流入が起こっているものと思われる。

図5-e, fより、境界面が崩壊すると、流体の混合が行なわれるところでソルトフィンガー現象が起こるが、この流れは三次元的であるため、縞は大きく乱れて観察された。

### 5. 2 干涉縞の定量化方法

容器中央垂直断面の温度測定、及び現象のビデオ撮影から、得られた干涉縞の定量化を試みる。

図6にRUN2 ( $\Delta T = 5^\circ\text{C}$ ,  $\Delta C_0 = 0.4\text{wt}\%$ )における境界面崩壊後の1層系等屈折率線図、図7に温度測定結果を示す。このとき、系内は平衡濃度(3.8wt%)でそこには温度勾配しか存在しないので、縞の定量化が容易である。図8にこれらの温度 $T$ および濃度 $C$ を(1)式に代入することによって算出した各縞上の屈折率、図9に温度に対する縞1本あたりの屈折率変化 $\Delta n$ を示す。

一般に、縞の間隔 $\delta$ と温度 $T$ 、濃度 $C$ の関係は(3)式で表される(Appendix 参照)。

$$\delta = \frac{\lambda}{L \frac{dn}{dx}} \left( \frac{dn}{dx} = \frac{\partial n}{\partial T} \frac{dT}{dx} + \frac{\partial n}{\partial C} \frac{dC}{dx} \right) \quad (3)$$

均一濃度において、 $\frac{dC}{dx} = 0$ より、温度に対する縞1本あたりの屈折率変化 $\Delta n$ は(4)式で表される。

$$\Delta n = \Delta T \frac{\partial n}{\partial T} = \delta \frac{dn}{dx} = \frac{\lambda}{L} \quad (4)$$

なお、(4)式より算出されるのは理論値であり、 $\Delta n = 4.240 \times 10^{-5}$ となる。図9中にこれを実線で示す。

図9における温度の高いところと低いところ、すなわち容器の上部と底部において実験値 $\Delta n$ は低い値を示しているが、これは上下壁面を通った光が偏向することに起因すると考えられる<sup>9)</sup>。ここではその影響を受けていない、縞がほぼ等間隔に現れている部分から、実験値 $\Delta n$ の平均 $\overline{\Delta n}$ を求めることにする。その結果得られた値は $\overline{\Delta n} = 3.879 \times 10^{-5}$ であり、理論値よりも低い値を示した。ここで理論値は光が純粋にテストセクション奥行き長さだけを透過したときの値であるのに対し、実際は可視化面



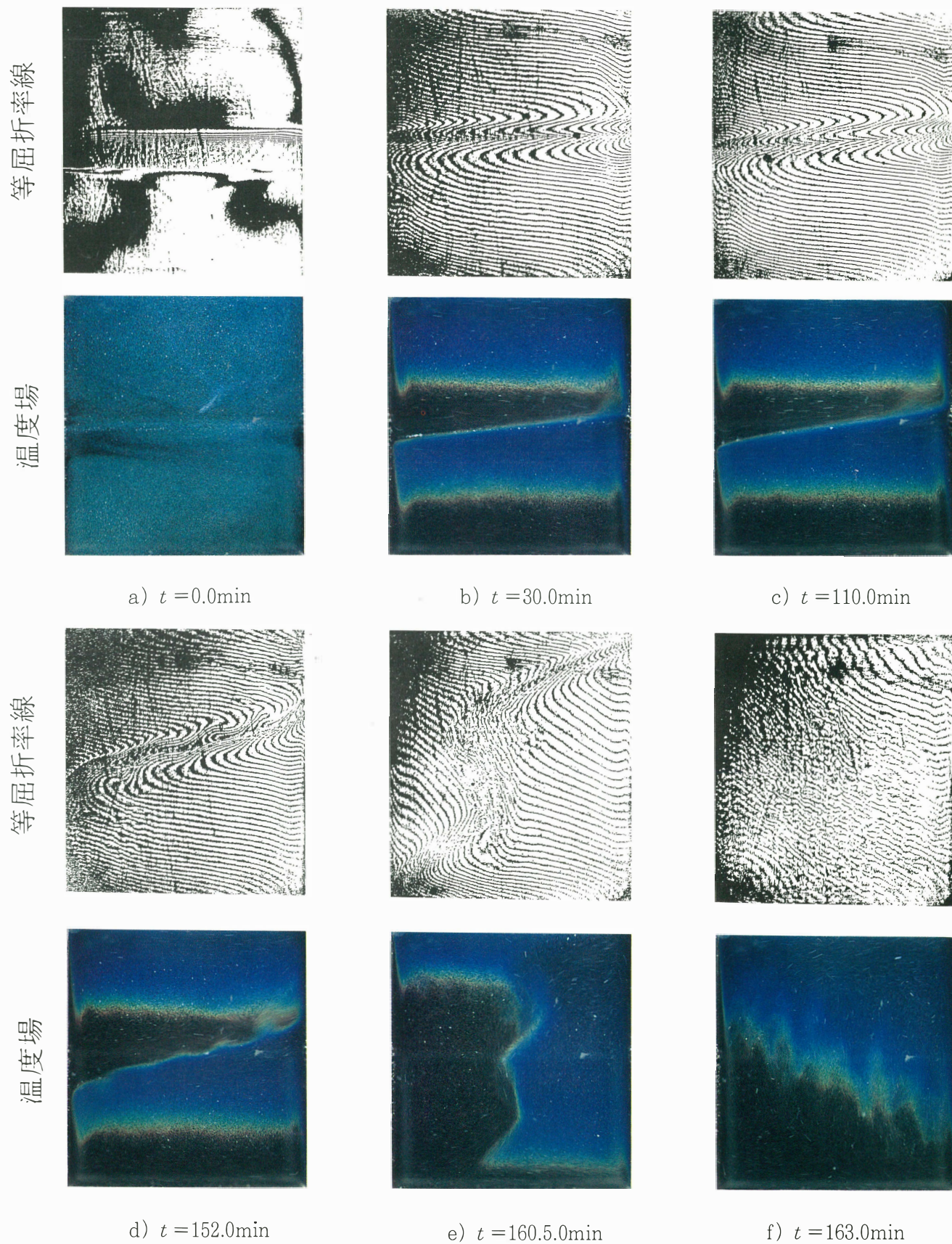


図5 等屈折率線および温度場の可視化実験結果  
(RUN1:  $\Delta T = 10^\circ\text{C}$ ,  $\Delta C_0 = 0.8\text{wt}\%$ )



図6 1層系等屈折率線図

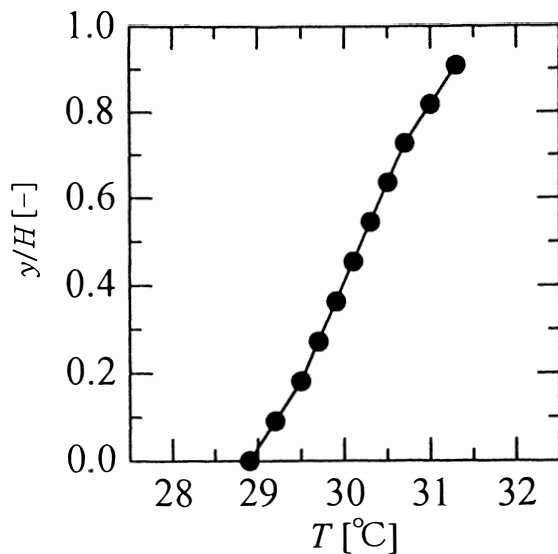


図7 温度測定結果

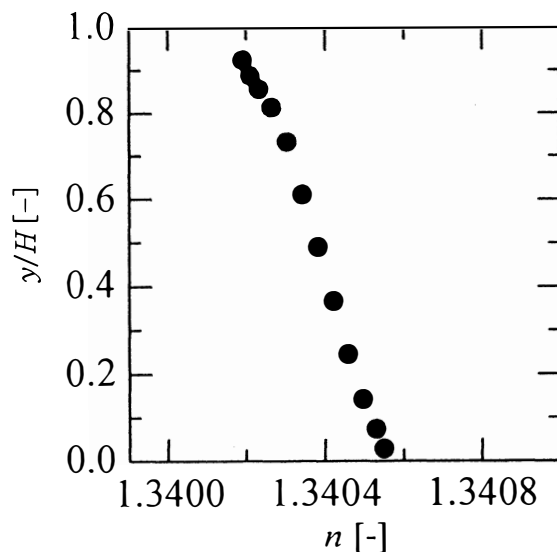
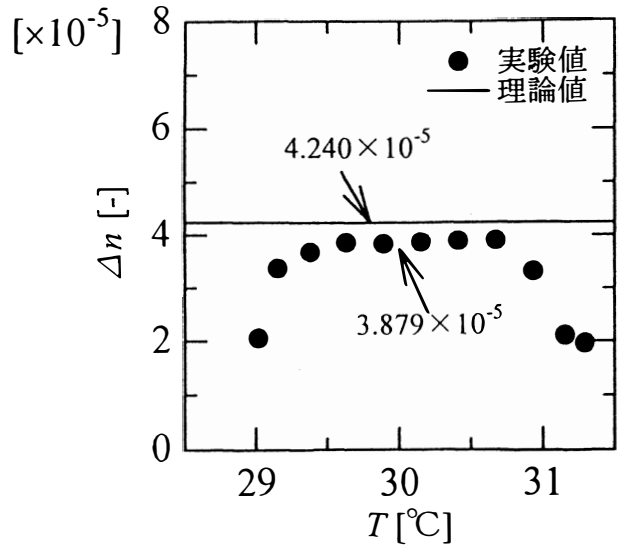


図8 屈折率分布

図9 屈折率変化 $\Delta n$ と温度 $T$ の関係

のガラス板の影響により、光がそこを透過した際に、波長 $\lambda$ が小さくなったことを考慮に入れると、妥当な結果が得られたといえる。

従ってビデオを逆再生することにより、屈折率がわかっている一本の縞をたどっていき、そしてその縞における屈折率と $\Delta n$ の値から、過去の時間における各縞の屈折率を順次算出していくことが可能である。

### 5. 3 濃度及び密度分布の算出結果

図10に各時間に等屈折率線図および容器中央垂直断面における屈折率、温度、濃度、密度分布を示す。

これより上下層における屈折率の値の差は時間とともに徐々に小さくなっていく様子が分かるが、温度分布に関してはほとんど変化はみられなかった。また濃度分布に関しては層内濃度はほぼ均一のままで、上下層の濃度差が時間とともに徐々に減少して行くことがわかる。密度分布に関しては、各層で一定の密度勾配を保ったまま、上下層間の密度差が減少していく様子が分かる。そして上下層間で不連続であった密度分布が連続的になるあたりから境界面が不安定になり、やがて崩壊することがわかった。

## 6. 結 言

レーザーホログラフィーにより得られる干渉縞として、2層系二重拡散対流における系内の等屈折率線が可視化できたが、それは直ちに密度場を可視化

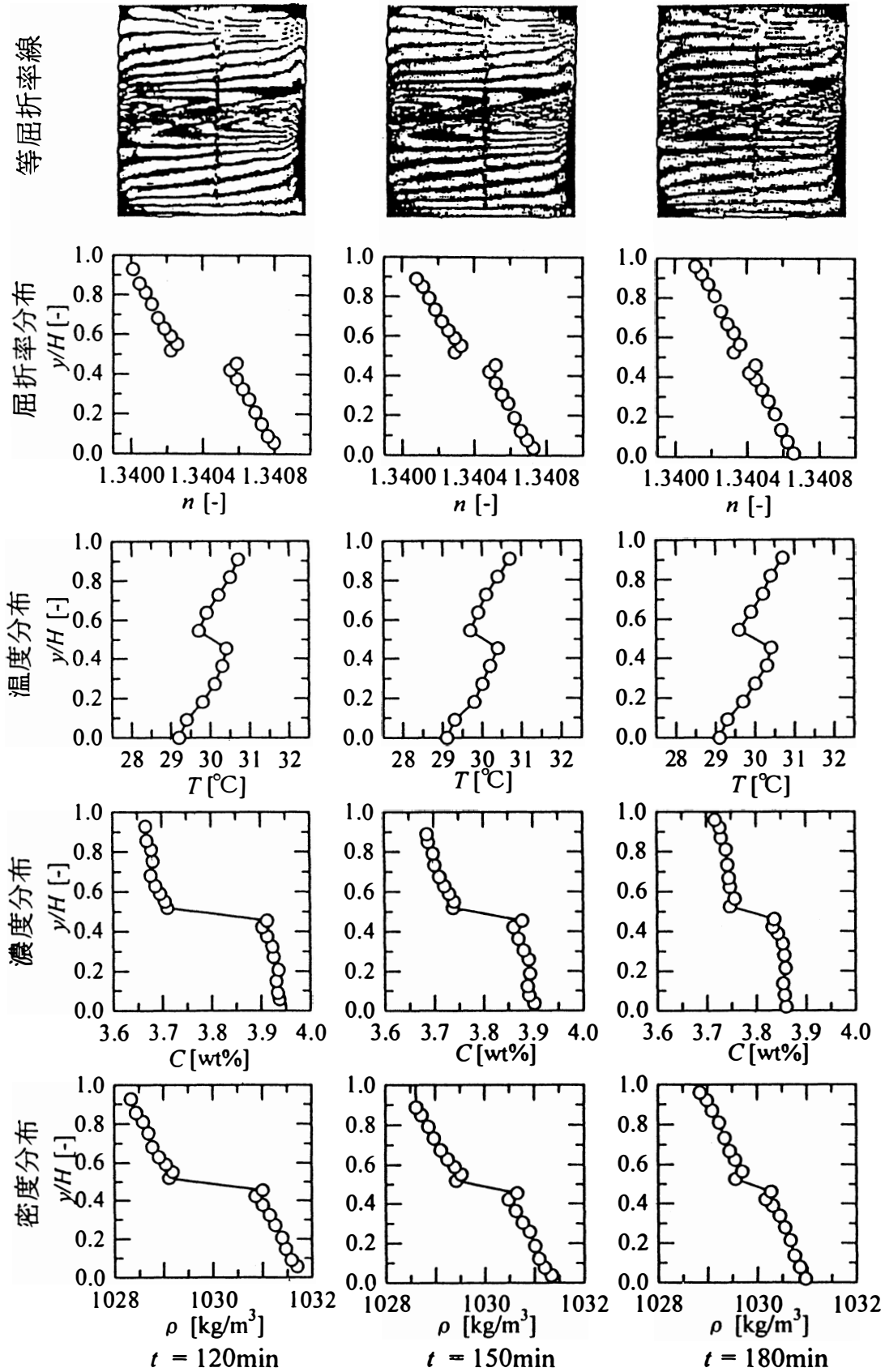


図10 等屈折率線および容器中央垂直断面における屈折率、温度、濃度、密度分布

左： $t=120\text{min}$  中央： $t=150\text{min}$  右： $t=180\text{min}$

(RUN2:  $\Delta T = 5^\circ\text{C}$ ,  $\Delta C_0 = 0.4\text{wt}\%$ , 境界面崩壊時間  $t_m = 214\text{min}$ )

しているとは言えない。

ただし、一本の等屈折率線上で、そこに温度差および濃度差がほとんど存在しない場合、それはほぼ等密度線とみなすことができ、本実験系では、上下層境界付近、及び壁面近傍を除いた部分において、干渉縞は密度分布を表しているとして定性的解析が可能である。

系内垂直断面における局所温度を測定することにより、その部分での濃度分布および密度分布が定量化できた。

その結果、擬定常状態の層境界部分において常に温度場は不安定であるが、濃度場及び密度場は安定に成層していること、そして時間の経過とともに上下層間の濃度差が減少し、密度変化が連続的になった頃に、層の混合が始まることが定量的に示された。

#### 使用記号

$A$	: アスペクト比	[—]
$H$	: テストセクション高さ	[m]
$W$	: テストセクション幅	[m]
$L$	: テストセクション奥行き	[m]
$\Delta C_0$	: 初期濃度差	[wt%]
$T_0$	: 基準温度	[°C]
$C_d$	: 下層濃度	[wt%]
$C_u$	: 上層濃度	[wt%]
$T_h$	: 加熱壁温度	[°C]
$T_c$	: 冷却壁温度	[°C]
$N$	: 屈折率	[—]
$t$	: 経過時間	[min]
$t_m$	: 境界面崩壊時間	[min]
$\Delta C$	: 上下層間濃度差	[wt%]
$\Delta T$	: 左右壁間温度差	[°C]
$\Delta n$	: 縞1本の屈折率変化	[—]
$\beta_c$	: 濃度体膨張係数	[1/wt%]
$\beta_t$	: 温度体膨張係数	[1/°C]
$\delta$	: 縞の間隔	[m]
$\lambda$	: レーザー光波長	[nm]
$\rho$	: 密度	[kg/m <sup>3</sup> ]

#### 参考文献

- 1) 西村龍夫, 藤原昌樹, 宮下 尚: 日本機化学会論文集B, **58**, 194 (1992)
- 2) Nishimura, T., T. Imoto and H. Miyashita: *Int. J. Heat Mass Transfer*, **37**, 1455 (1994)
- 3) Kamakura, K. and H. Ozoe: *J. Chem. Eng. Japan*, **24**, 622 (1991)
- 4) Bergman T. and A. Ungun: *J. Fluid Mech*, **194**, 175 (1988)
- 5) 山根岳志, 外山和宏, 城石昭弘, 吉田正道, 宮下 尚: 富山大学工学部紀要, **46**, 99 (1995)
- 6) 山根岳志, 中島栄次, 外山和宏, 喜多克仁, 吉田正道, 宮下 尚: 富山大学工学部紀要, **84**, 89, (1996)
- 7) 柏木孝夫: 冷凍, **53**, 610 (1978)
- 8) 伊藤昭彦, S. K. Choudhury, 深野 徹: 日本機械学会論文集B, **56**, 255 (1990)
- 9) Hauf, W. and U. Grigull, (T. F. Irvine, Jr. and J. P. Hartnett ed.), *Advances in Heat Transfer*, **6**, 267 (1970)

#### Appendix

微小距離内  $dx$  に屈折率勾配が存在するとき、その区間に生じる光の光路長  $\ell$  の変化率  $d\ell/dx$  は、縞の間隔  $\delta$  および系内を通過する光の波長  $\lambda$  を用いて、

$$\frac{d\ell}{dx} = \frac{\lambda}{\delta} \quad (\text{A-1})$$

と書ける。

厚さ  $L$  の流体層を通過した光の光路長  $\ell$  は、

$$\ell = nL \quad (\text{A-2})$$

であるから(A-1)式は次式となる。

$$\frac{\lambda}{\delta} = L \frac{dn}{dx} \quad (\text{A-3})$$

(A-3)式より、縞1本あたりの屈折率変化  $\Delta n$  は、

$$\Delta n = \delta \frac{dn}{dx} = \frac{\lambda}{L} \quad (\text{A-4})$$

となり、観察される縞の間隔は装置の奥行きによっ



て決まることがわかる。

また、屈折率  $n$  が温度と濃度の関数であるとき、

$$\frac{dn}{dx} = \frac{\partial n}{\partial T} \frac{dT}{dx} + \frac{\partial n}{\partial C} \frac{dC}{dx} \quad (\text{A-5})$$

したがって縞の間隔  $\delta$  は、

$$\delta = \frac{\lambda}{L \left\{ \frac{\partial n}{\partial T} \frac{dT}{dx} + \frac{\partial n}{\partial C} \frac{dC}{dx} \right\}} \quad (\text{A-6})$$

と表される。また、濃度変化がないとき、縞1本あたりの温度変化  $\Delta T$  は

$$\Delta T = \frac{\lambda}{L \frac{dT}{dx}} \quad (\text{A-7})$$

また、濃度変化がないとき、縞1本あたりの濃度変化  $\Delta C$  は

$$\Delta C = \frac{\lambda}{L \frac{dC}{dx}} \quad (\text{A-8})$$

である。