

## 動的散乱法による乱流研究

京大・基研 小 貫 明

(1987年11月11日受理)

## Abstract

homodyne spectroscopy を利用することによって乱流中の粒子対の相対運動の観測が可能である。この手法によりレーザービームの太さ位で与えられる狭い領域内の相対速度  $\vec{v}_R = \vec{v}(\vec{r} + \vec{R}, t) - \vec{v}(\vec{r}, t)$  の分布が精密にかつ瞬時にえられる。現在までの実験は、相対距離  $R$  がいわゆる慣性領域にある時、 $\vec{v}_R$  の分布がかなり広い速度領域で Lorentzian-like になることを示している。

## § 1 Homodyne Spectroscopy as Applied to Turbulence

乱流場の速度変動の実験的知見に大きな意味があることはいうまでもない。従来の測定手段として、「hot-wire anemometer」「Doppler-shift velocimeter」などがあげられる。後者は散乱体が乱流場とともに動くことによるドップラーシフトを利用して、ある空間の一点における速度場の変動を観測する。その結果「一点の速度場  $\vec{v}(\vec{r}, t)$  の確率分布  $P(\vec{v})$  はほとんどガウス分布である」といわれている (Batchelor : *Homogeneous Turbulence*, Cambridge Univ. Press)。

ここでは別な散乱法として、homodyne 法について解説してみる。この方法はその利点が充分認識されていなかったために乱流研究にはほとんど使われたことはなかった<sup>1)</sup>。しかし最近になりピッツバーグ大学の Goldberg らによる challenging な試みの結果<sup>2)</sup> この方法の新たな有用性が明らかになりつつあると考える。私自身は去年当大学に滞在しその実験原理を考え結果の解釈に関与してきた<sup>3)</sup>。従って、この方法について最もよく知りうる立場にあるわけで、この方法が他の流体研究者にも知られることを願いつつこの小論を書く。

## § 2 Experimental Principles

実験では図1のように細くしぼったレーザービームを乱流状態にある水にあてて、ある角度  $\theta$  をもった位置に photomultiplier を配置する。図では  $\theta = 90^\circ$  としている。水はポンプでパ

小貫 明

イプの中を回流させ適当な位置に grid をおく。水にはわずかの散乱体をまぜる。Goldburg らの実験では直径  $a = 0.06$  ミクロンのポリスチレン球 (比重  $\cong 1$ ) を使っている。photomultiplier では散乱光の光子数  $I(t)$  (= energy) が検出される。エネルギーは photomultiplier 面上の電場エネルギーに比例するので、

$$I(t) = |\vec{E}(t)|^2. \quad (1)$$

動的光散乱では次の相関関数を測定する。

$$g(t) = \langle I(t_0 + t) I(t_0) \rangle. \quad (2)$$

$E(t)$  として散乱光と入射光の一部をまぜることが一般的におこなわれている。これを heterodyne 法という<sup>4)</sup>

$$\vec{E}(t) = \text{Re} [\vec{E}_0 e^{i\omega t} + \vec{E}_{\text{scat}}(t) e^{i\omega t}]. \quad (3)$$

ここで  $\vec{E}_0$  は定数ベクトルで  $\vec{E}_{\text{scat}}(t)$  は散乱光を表わす。  $|\vec{E}_0| \gg |\vec{E}_{\text{scat}}|$  ととる。  $\text{Re}[\dots]$  は実数部をとるの意味。光は高周波  $\omega = ck_1$  で振動しているので高周波部を  $e^{i\omega t}$  としてとり出している。一方、homodyne 法では散乱光のみを検出する<sup>4)</sup>

$$\vec{F}(t) = \text{Re} [\vec{E}_{\text{scat}}(t) e^{i\omega t}] \quad (4)$$

散乱領域中の散乱体の密度変位を  $s(\vec{r}, t) = \rho(\vec{r}, t) - \rho_0$  と書こう。すると、

$$\vec{E}_{\text{scat}}(t) = \int_V d\vec{r} s(\vec{r}, t) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}}. \quad (5)$$

ここで積分はレーザ光の太さと detector の大きさ・位置で決まる散乱領域内に限られる。 $\vec{q}$  は散乱ベクトルで  $\vec{q} = \vec{k}_S - \vec{k}_I$  で書ける。 $\vec{k}_S$  と  $\vec{k}_I$  は散乱光及び入射光の波数ベクトルである。このことより heterodyne 法では、2体相関が観測できる。

$$g(t) = A_1 + A_2 \text{Re} \int_V d\vec{r}_1 \int_V d\vec{r}_2 \langle s(\vec{r}_1, t) s(\vec{r}_2, 0) \rangle e^{i\vec{q} \cdot (\vec{r}_1 - \vec{r}_2)}. \quad (6)$$

homodyne 法では、4体相関がわかる。

$$g(t) = B_1 \text{Re} \int_V d\vec{r}_1 \int_V d\vec{r}_2 \int_V d\vec{r}'_1 \int_V d\vec{r}'_2$$

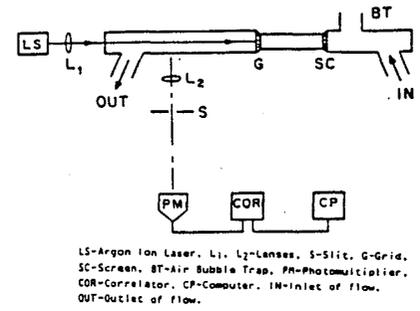


Fig.1 Schematic diagram of the experimental setup.

$$\times \langle s(\vec{r}_1, t) s(\vec{r}_2, t) s(\vec{r}'_1, 0) s(\vec{r}'_2, 0) \rangle e^{i\vec{q} \cdot (\vec{r}_1 - \vec{r}_2) - i\vec{q} \cdot (\vec{r}'_1 - \vec{r}'_2)}. \quad (7)$$

$A_1, A_2, B_1$  は定数である。以下  $A_2 = B_1 = 1$  とおく。

散乱体が乱流場で運ばれるとき、個々のサンプルに対し、短時間  $t$  では、

$$s(\vec{r}, t) \cong s(\vec{r} - \vec{v}(\vec{r}, 0) t, 0). \quad (8)$$

ここで散乱体は充分大きく diffusion constant は小さいとする（この条件については §3 でさらに議論する。）すると、heterodyne 法では、

$$\begin{aligned} g(t) &\cong A_1 + \text{Re} \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \langle s(\vec{r}_1 - \vec{v}(\vec{r}_1, 0) t, 0) s(\vec{r}_2, 0) \rangle e^{i\vec{q} \cdot (\vec{r}_1 - \vec{r}_2)} \\ &\cong A_1 + n_I \text{Re} \int d\vec{r}_1 \langle \exp [i\vec{q} \cdot \vec{v}(\vec{r}_1, 0) t] \rangle. \end{aligned} \quad (9)$$

密度の同時相関は次のように低密度での値でおきかえた。

$$\langle s(\vec{r}_1, 0) s(\vec{r}_2, 0) \rangle \cong n_I \delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) \quad (10)$$

ここで  $n_I$  は散乱体密度である。(9) の第2式では  $\vec{v}(\vec{r}_1, 0)$  が確率変数とみなされており、被積分函数はその分布の特性函数となっている。散乱領域  $V$  の中で分布がほぼ一様ならば、

$$g(t) \cong A_1 + n_I V \text{Re} \langle e^{it\vec{q} \cdot \vec{v}} \rangle. \quad (11)$$

次に homodyne 法ではどうなるか。 $s$  の4体の同時相関に対し次の低密度近似を使う。

$$\begin{aligned} &\langle s(\vec{r}_1, 0) s(\vec{r}_2, 0) s(\vec{r}'_1, 0) s(\vec{r}'_2, 0) \rangle \\ &\cong n_I^2 [\delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) \delta(\vec{r}'_1 - \vec{r}'_2) + \delta(\vec{r}_1 - \vec{r}'_1) \delta(\vec{r}_2 - \vec{r}'_2) \\ &\quad + \delta(\vec{r}_1 - \vec{r}'_2) \delta(\vec{r}_2 - \vec{r}'_1)]. \end{aligned} \quad (12)$$

第3項からの寄与はほとんど無視できて、

$$g(t) \cong V^2 n_I^2 + n_I^2 \text{Re} \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \langle \exp \{ i\vec{q} \cdot [\vec{v}(\vec{r}_1) - \vec{v}(\vec{r}_2)] t \} \rangle. \quad (13)$$

即ち、被積分函数は2点間の速度差  $\vec{v}_R \equiv \vec{v}(\vec{r}_1) - \vec{v}(\vec{r}_2)$  の分布  $P(\vec{v}_R)$  の特性函数である。

これを  $Q(qt; R)$  とかこう。

小貫 明

$$\begin{aligned}
 Q(qt; R) &= \langle \exp(i\vec{q} \cdot \vec{v}_R t) \rangle \\
 &= \int d\vec{v}_R P(\vec{v}_R) \exp(i\vec{q} \cdot \vec{v}_R t).
 \end{aligned}
 \tag{14}$$

すると,

$$g(t) \cong V^2 n_I^2 + n_I^2 \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 Q(qt; |\vec{r}_1 - \vec{r}_2|).
 \tag{15}$$

かくして homodyne 法により相対速度  $\vec{v}_R$  の分布がわかる。 $Q(qt; R)$  をフーリエ変換すればよい。

Goldburg らは散乱領域として細長い円柱をとった。円柱の直径  $d$  はレーザービームの直径でもあり  $d \sim 0.1$  mm 位, 円柱の長さ  $L$  は散乱光を通過させるスリット長であり自由に動かすことができる。すると (15) における 2 重積分は次のような簡単な 1 次元積分となる。

$$g(t)/V^2 n_I^2 \cong 1 + \frac{2}{L} \int_0^L dR \left(1 - \frac{R}{L}\right) Q(qt; R).
 \tag{16}$$

定義 (14) より明らかなように  $Q(qt; R)$  の減衰時間  $\tau(R)$  は次のようになる。

$$\tau(R) = 1/q\bar{u}(R).
 \tag{17}$$

ここで  $\bar{u}(R)$  は  $\vec{v}_R$  の特徴的な大きさである。ふつうのレーザ光では  $q \sim 10^5 \text{ cm}^{-1}$  であるため  $\bar{u}(R)$  が小さくとも  $\tau(R)$  は極めて短くなる。

### § 3 Brownian Motion Effect

前章では (8) のように粒子の熱運動を無視している。粒子の Brownian motion をとりいれると, homodyne intensity  $g(t)$ , は次のようになる。

$$g(t) \cong V^2 n_I^2 + n_I^2 \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 e^{-2Dq^2 t} Q(qt; |\vec{r}_1 - \vec{r}_2|).
 \tag{18}$$

この式は (15) の拡張である。

ここで  $D = k_B T / 6 \pi \eta a$  は粒子の拡散係数である。従って実験で  $Q(qt; R)$  を見るためには,  $Q(qt; R)$  の減衰時間  $\tau(R)$ , (17), が拡散時間  $\tau_D = 1/2Dq^2$  より速くしなければならない。(16) 式より  $R$  を  $L$  でおきかえて, この条件は,

$$\tau(L) < \tau_D \quad \text{or} \quad \bar{u}(L) > 2Dq.
 \tag{19}$$

例えば直径  $a = 0.06$  ミクロンの球であれば  $D \sim 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{sec}$  であり  $q \sim 10^5 \text{ cm}^{-1}$  なので  $2Dq \sim$

$10^{-2}$ cm/secとなる。

実験では層流領域でレーザ光がパイプの中央を通過する時、 $g(t)$  は拡散で減衰した。しかしいったん乱流状態にはいると  $\tau(L)$  は  $\tau_D$  よりすぐに小さくなり Brownian motion は無視できるようになることがわかった。

#### § 4 いままでの実験結果

乱流状態では次の驚ろくほど簡単な近似式がえられた。

$$Q(qt; R) \cong \exp[-qt\bar{u}(R)]. \quad (20)$$

ここで特性的な速さ  $\bar{u}(R)$  は slit width  $L$  を変化させ (16) に基づいて解析すると、

$$\bar{u}(R) \sim \text{const. } R^{1/3}. \quad (21)$$

この結果は Kolmogorov のスケーリング則と合致している。 $R$  は慣性領域にあると思われる。図 2 にデータの一例を示す。点は実測値であり実線は (20) を (16) に代入して得たカーブである。一致は驚ろく程よい。ただし (21) は  $L$  を 1 decade 位しか変化させていないので決定的ではない。

(20) で与えられる特性関数をフーリエ変換して  $P(\vec{v}_R)$  を求めよう。3次元フーリエ変換をすると、

$$P(\vec{v}_R) = \pi^{-2} \bar{u}(R) / [\bar{u}(R)^2 + |\vec{v}_R|^2]^2. \quad (22)$$

1次元フーリエ変換をすると、 $\vec{v}_R$  の  $q$  の方向成分である  $v_R = \vec{v}_R \cdot \vec{q} / q$  の分布が求まる。

$$P_{1D}(v_R) = \pi^{-1} \bar{u}(R) / [\bar{u}(R)^2 + v_R^2]. \quad (23)$$

(23) 式は Cauchy 分布として知られているものであり (22) はその3次元への拡張である。ここで気がつくことは、 $P(\vec{v}_R) \propto |\vec{v}_R|^{-4}$  であり分布に long tail が出てくることである。上の分布を使うとモーメント  $\langle |\vec{v}_R|^n \rangle$  はすべて発散してしまうことになる。勿論このようなことはありえず  $P(\vec{v}_R)$  に  $|\vec{v}_R|$  の大きいところで cut-off がなければならない。この cut-off の速さを  $u(R)$  と書こう。 $P(\vec{v}_R)$  は (Lorentzian)  $\times f(\vec{v}_R/u(R))$  のようになるはずである。ここでスケーリング関数  $f(x)$  は  $x \gg 1$  で急減少するものと予想される。このように仮定すると、モーメン

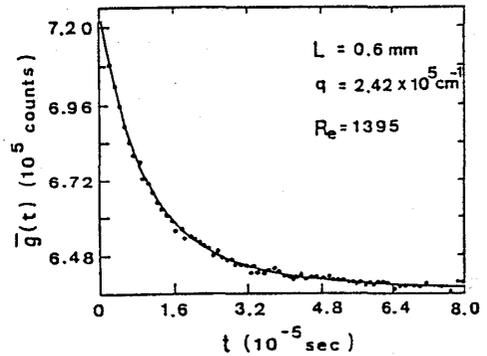


図 2. 乱流中でのホモダイン強度の時間発展。点はデータ、太線は (20) からえられるカーブ。

小貫 明

トは次のようになる。

$$\langle |\vec{v}_R|^n \rangle \sim \bar{u}(R) [u(R)]^{n-1}. \quad (24)$$

実験で上記の cut-off を見るためには、 $g(t)$  の  $t$  がごく小さいところのふるまいを測定する必要がある。なぜなら特性函数(14)の定義より  $Q(qt; R)$  は次のように cumulant 展開できるからである。

$$Q(qt; R) = 1 - \frac{1}{6} \langle |\vec{v}_R|^2 \rangle (qt)^2 + \dots \quad (25)$$

ここですべてのモーメントは有限と仮定されている。Goldburgらは最近になって(25)式のようなふるまいを見ることに努力している。しかしレイノルズ数が大きいところ ( $Re \geq 1000$ ) では(20)のみしか見えずこの試みは成功せず、 $Re \sim 800$ 位でやっと  $g(t)$  の bending が見えている。ここで  $Re \equiv d_0 U / \nu$ ,  $d_0$  はグリッドの格子間隔で数ミリ、 $U$  はパイプ流の平均速度。 $Re \sim 400$ 位で流れは激しく乱れている。

実験で得られる exponential form (20) は大変に安定である。グリッドを取り去ったパイプ流でも平均流は大きく違うにもかかわらず同様な結果がえられた<sup>5)</sup> さらに § 6 で紹介するようにかくはんされた臨界溶液でも同様な形である<sup>5)</sup>

## § 5 Remarks

相対速度分布は  $v_R$  が小さければ(22), (23)に示すように Lorentzian likeであった。点分布とは大きく違うふるまいである。また  $v_R$  が  $u(R)$  より大きいと分布は Gaussian になるようである。今までのところ  $Re$  が比較的小さいところで (bendingが見えるところで)  $u(R)/\bar{u}(R) \sim 7$ 位である。この結果はいわゆる慣性領域に2つの相対速度があることを示している。しかし実現できる  $Re$  がそれ程大きくなく今のところ決定的なことはいえない。

実験手法としての homodyne 法によって極めて狭い領域の相対速度分布が能率よく測定できる。さらに波数ベクトル  $q$  を変えることによっていろいろな方向の相対速度成分  $\vec{v}_R \cdot \vec{q} / q$  の分布もわかる。このためパイプ流での非等方性の情報もえられる。「turbulent shear flow」・「turbulent boundary layer」の研究に役に立つかもしれない。

## § 6 臨界流体・高分子系での乱流

上記の実験では散乱体の熱運動を小さくするため 0.06 ミクロン程度の粒子を使った。しかしこのことは散乱するゆらぎの熱運動が遅ければ同様な効果が存在することを示唆している。

例えば流体として臨界点に近い2成分溶液が考えられる。この系のゆらぎの特徴的寿命は $\tau_\xi \sim 6\pi\eta\xi^3/k_B T$ で与えられる。 $\eta$ は粘性率( $\sim 0.01$  cgs)で $\xi$ は相関距離で $10^3 \text{Å}$ 程度にすることは難かしくない。すると $\tau_\xi \sim 5 \times 10^{-3}$  sec。実際にこの系を1相領域でかくはん(stirring)しながら homodyne intensity を測定する試みがなされた<sup>5)</sup>。恒温槽内の容器内に沈められた磁石のプロペラを外部電流で回転させている。結果は Brownian particles の場合とほぼ同様に(20)式がえられたのであった。

さらにこのことだけにとどまらず臨界ゆらぎは乱流によるローカルな(一点における)シェア(= velocity gradient)によって大きな影響をうけるようにすることができる。このことが様々な興味深い現象をひきおこす。その一例としてかくはん下における nucleation の問題がある。実験はやはり Goldberg のグループによってなされてきた<sup>6)</sup>

いわゆる metastable region にまで溶液の温度をさげていき散乱光の強度 $\langle I(t) \rangle = \text{const.}$   $\langle |s_q(t)|^2 \rangle$  の時間発展を測定する。この強度はドロプレットの大きさに強く依存している。ここで  $s_q(t)$  は溶液の濃度変動のフーリエ成分である。すると droplet 分布は ( $T \rightarrow T_c$  に従い) stirring に対し極めて鋭敏になってくることがわかった。stirring の強さを容器内のプロペラの1秒当りの回転数  $f$  で表わそう。すると「散乱光は  $f \neq 0$  で定常的な値に落ち着く(= droplet の生長がある大きさでとまる。)」 「 $f$  が小さいと散乱光は  $f$  とともに増加する。」 「さらに  $f$  が大きくなると散乱光は  $f$  とともに急減少しついには droplet は完全に存在しなくなる。」

以上のような現象を理解するためには乱流中の aggregation・droplet growth についての新たな理論が必要である。

臨界ゆらぎは乱流による local shear に極めて敏感であるため乱流に対する「fascinating probe」になりうると思うのであるが、この小論を読まれた読者はどのような印象をもたれるであろうか? さらに近年低密度高分子溶液での turbulent suppression の問題が注目されてきている。これは高分子と乱流中の微細構造との強い相互作用の問題である。ここでも動的散乱法は大きな意味をもつ可能性はある。

- 1) P.J. Bourke, J. Butterworth, L.E. Drain, P. A. Egelstaff, A. J. Hughes, P. Hutchinson, D.A. Jackson, E. Jakeman, B. Moss, J. O'shaughnessy, E.R. Pike and P. Schofield: J. Phys. A 3 (1971) 216.
- 2) P. Tong, W.I. Goldberg, C.K. Chan and A. Sirivat, a preprint, "A study of the Turbulent Transition by Photon correlation Spectroscopy", to be published in Phys. Rev. A.

小貫 明

- 3) A. Onuki, P. Tong and W.I. Goldberg, preprints.
- 4) B.J. Berne and R. Pecora, *Dynamic Light Scattering*, Wiley-Interscience, New-York (1976).
- 5) W.I. Goldberg, private communication.
- 6) W.I. Goldberg, J. Stavans and R. Piazza, a preprint.