

垂直加振下の懸濁液界面における パターンダイナミクス

江端宏之、佐野雅己

平成 22 年 4 月 1 日

概要

垂直加振下の複雑流体の界面はファラデーウェーブ、オシロン等、様々な不安定性を示す。我々は垂直加振下のポテトスターチ懸濁液界面において、分裂する穴 (replicating hole) を発見した。ある加振強度以上で、界面に加えた変形が成長するようになり、液体の層を底まで貫く穴が形成される。この穴は丸い形が不安定であり、反応拡散系における self-replicating spots と同じように分裂を始める。self-replicating spots は反応拡散系や化学反応系では発見されているが、複雑流体の系では初めての報告である。replicating hole は生成・消滅を繰り返しながら界面全体へと広がってゆくが、十分に加振強度が大きいと spatiotemporal chaos を示すようになる。そこで我々は defect-mediated turbulence やグレイスコットモデルでの spatiotemporal chaos で使われている、確率的な解析方法を使い穴の個数のダイナミクスを解析した。その結果、定常状態での穴の個数の時間ゆらぎはマスター方程式で良く記述できることが分かった。

1 Introduction

容器の中に水を入れ、水の表面に凹みを作ったとする。一般にこのような変形は水圧によって押しつぶされてしまい長時間残ることはなく、これは非ニュートン流体を使った場合も同様である。このように重力に垂直な自由界面を支えることは容易ではなく、このような界面は不安定である。しかし、Merkt らの研究により、垂直加振下のコーンスターチ懸濁液において興味深い界面の不安定性が発見された [1]。それは、界面に変形を加えるとその変形が液体の層を底まで貫く程に成長し、非常に安定な穴 (stable hole) を作るというものである。上記の現象以外にも垂直加振下の高濃度懸濁液系においては様々な界面の不安定性が発見されている。

ニュートン流体と非ニュートン流体では界面の不安定性にどのような違いが見られるのか？非ニュートン流体のどのような特徴が界面の不安定性に寄与しているのか？これらの観点から非ニュートン流体におけるパターン形成を研究するこ

とが重要であると思われる。本研究では垂直加振下の高濃度懸濁液に見られる界面の不安定性に着目している。

垂直加振下の自由界面に現れる不安定性は古くから研究が行われている。例えば、ニュートン流体や粉体ではファラデー波 [2] やレイリー・テイラー不安定性 [3]、オシロン [4] などが発見されている。一方、垂直加振下の懸濁液系においても懸濁液の特性を反映した界面の不安定性が幾つか発見されている。粘土の懸濁液でもオシロンが見つかったが、懸濁液の粘性が shear thinning であるため臨界加振強度に対するヒステリシスが大きくなることが報告されている [6]。また、ブロンズと水の懸濁液では懸濁液が一カ所に集まってきて盛り上がり (heap) を作る現象が発見されており、レイリー・テイラー不安定性との関連が指摘されている [7]。

一方我々は垂直加振下のポテスターチ懸濁液では、初期に作った界面の変形が小さな穴に成長し ($\sim 1\text{cm}$)、その穴が自発的に分裂して増えていく現象を発見した。この分裂していく穴 (replicating hole) は反応拡散系においてみられる replicating spot に似ている。このような自発的に分裂・消滅を起こすパターンは化学反応系では報告されているものの、粉体や流体系では初めてである。また、加振強度が十分に大きい場合 replicating hole は分裂と消滅を激しく起こすようになり、spatiotemporal chaos になる。そこで spatiotemporal chaos における穴の個数の時間変化を replicating spot や defect mediated-turbulence で行われている確率的な解析方法を用いて解析した。

2 垂直加振下の複雑流体のパターン形成

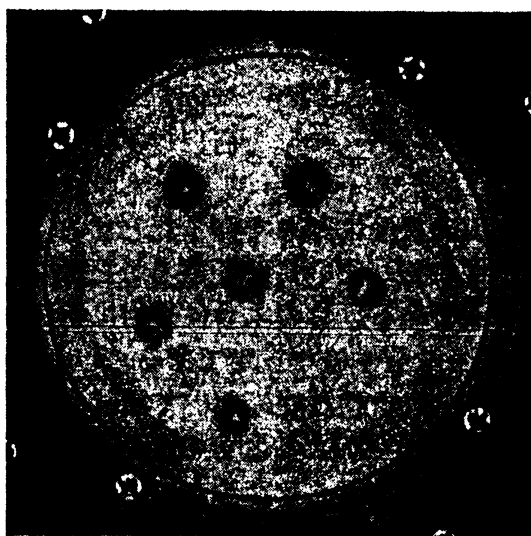


図 1: stable hole

ここでは本研究に関わりの深い現象を幾つか紹介する。まずは垂直加振下のコー

ンスターチ懸濁液において発見された界面の不安定性について説明する [1]。

垂直加振下のコーンスターチ懸濁液は十分な加振強度を加えられると気液界面が不安定化し、界面の微小な変形が成長して液体の層を底まで貫く穴が形成される (図 1)。この穴は数分から数十分消えることがなく、非常に安定であり stable hole と呼ばれている。穴は流体の塑性によって変形が残っているわけではなく、加振を止めると直ちに消えてしまう。また穴はある決まった大きさを選んでおり、初期に界面に加える変形の大きさに寄らず、最終的に出来る穴の大きさはほぼ一定になる。この stable hole は加振強度が非常に大きくなると不安定化し、穴の縁の部分に指状の細い盛り上がりが出来ようになる。そして出来た盛り上がりの周辺に新たな穴が形成されるということを繰り返し、穴と盛り上がりが界面全体を埋め尽くすようになる。この界面の不安定性は delocalized hole と呼ばれている。

stable hole が現れる条件はファラデーウェーブが現れているかどうかには関係ないことが分かっている。また、初期に界面の変形を与える必要がある。

stable hole、delocalized hole は比重マッチングをしたガラスビーズと水溶液の懸濁液でも現れる事が確認されているが、濃厚懸濁液以外での報告はなく濃厚懸濁液に特有の現象と考えられている。そこでこれらの界面の不安定性の機構に、濃厚懸濁液の示す shear thickening が関わっているのではないかという議論がなされている。stable hole の縁にかかる剪断速度を見積もり、コーンスターチ懸濁液のレオロジー曲線と比較すると shear thickening を起こしている剪断速度である事が報告されている。(注:ただしこの議論で使用している剪断速度と粘性の関係は単純剪断流れで測定したものである)

2.1 Expanding hole

次に垂直加振下のガラスビーズとシリコンオイルの懸濁液において発見された界面の不安定性について説明する [8]。垂直加振下のガラスビーズとシリコンオイルの懸濁液でも、コーンスターチ懸濁液と同様に十分な加振強度を加えられると気液界面が不安定化し、界面の微小な変形が成長して液体の層を底まで貫く穴が形成される。しかし、stable hole と異なりこの穴は時間と共に広がってゆき、容器とほぼ同程度の大きさ (～30cm) まで成長する (図 2(a)～(d))。この広がってゆく穴 (expanding hole) は最終的に容器の壁にぶつかり、穴の形が崩れて懸濁液の存在する部分と存在しない部分に完全に分かれる (separated state、図 2(e))。expanding hole は stable hole と同様、初期に界面の変形が必要であり subcritical 分岐を示す。

expanding hole の穴の縁にも separated state の懸濁液部分の縁にも対流状の流れが出来ており、対流状の流れが穴を広げたり、separated state の懸濁液部分を支えている。expanding hole は超撥水基盤上での水薄膜の撥水過程に似ているが、expanding hole の駆動力は表面張力ではなく穴の周囲の対流状の流れによるものである。そのため、expanding hole での膜厚 (0.5～3cm) は撥水過程の膜厚 (20～100 μ m) に比べて遙かに厚い。

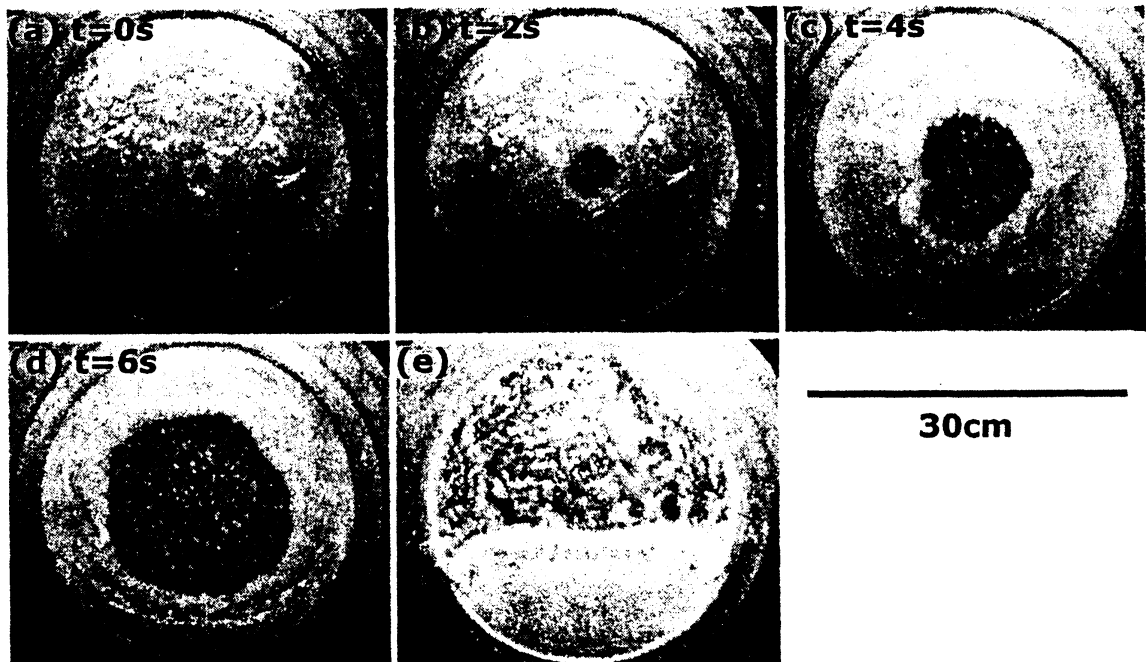


図 2: Expanding hole と separated state : (a–d) 穴の時間発展の様子 $t = 0, 2, 4, 6$ s ($r = 0.2$ mm, $\nu = 500$ mm²/s, $\phi = 0.56$, $\Gamma = 230$ m/s², $f = 40$ Hz, ν はシリコンオイルの粘性) ; (e) Separated state ($r = 0.2$ mm, $\nu = 500$ mm²/s, $\phi = 0.56$, $\Gamma = 290$ m/s², $f = 40$ Hz)

3 実験系

本研究では試料として濃厚懸濁液を使用している。懸濁液の粉体部分はポテトスターチ (Sigma 社製)、コーンスターチ (Sigma 社製)、中空ガラスビーズ (ポッターズ・バロティーニ社製) を用いた。水溶液としては純水、CsCl 水溶液を使用している。CsCl 水溶液は粉体と水溶液の密度を合わせる事を目的に使用している。

ポテトスターチの粒子はなめらかな楕円球状のものが多く、粒径分散も大きい (図 3(a))。一方でコーンスターチは球状のものと楕円球状のものも見られるが、角張った形をしたものが多い (図 3(b))。中空ガラスビーズは真球状をしている。コーンスターチの平均粒径は $12.3\mu\text{m}$ [9] で、ポテトスターチの平均粒径は $30.1\mu\text{m}$ [10] である。また中空ガラスビーズの平均径は $13\mu\text{m}$ である。ポテトスターチとコーンスターチは 50°C で一週間乾燥させたものをデシケーターで保管しているものを使用している。また二週間に一回、1g のポテトスターチを 105°C で 2 時間乾燥させたときの重量変化を測定し水分含有量を測定している。

実験では内径 8.8cm のガラスシャーレに懸濁液を深さ約 0.45mm 入れて、サイン型の鉛直加振を電磁石式の加振機によって加えている。この時、垂直方向へ

の変位は $z(t) = A \sin(2\pi ft)$ と書け、ピーク加振強度は $\Gamma \equiv A(2\pi f)^2$ となる。この実験では、加振周波数 f を 40Hz～120Hz まで、加振強度を 0～260m/s² まで変えている。

この系においては界面の不安定性はサブクリティカル分岐をするため、初期条件として界面にある有限の変形を加える必要がある。そこで、初期条件として小さな穴(～5mm)をスティックを使い界面に作り、界面の不安定性の時間発展を CCD カメラ (30frame/s) を使い測定した。

実験を行う際、水の蒸発を防ぐため容器の周りをアクリルの箱で覆い、湿度を保ち実験を行っている。(ほとんどの実験で 95%以上) 実験中の気温は 23℃～25℃ である。

実験で使用している懸濁液の多くが、粉体と水溶液の密度が異なっている。そこで、粉体と水溶液の密度を合わせたもので実験を行い、密度を合わせていない場合と定性的に同じ結果が得られる事を確認している。

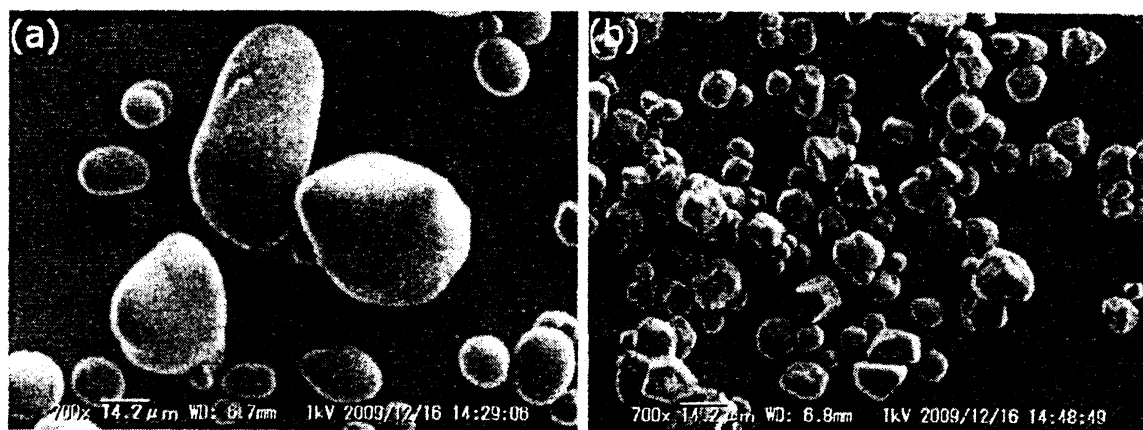


図 3: (a) ポテトスターチ粒子の SEM 画像 (b) コーンスターチ粒子の SEM 画像

4 実験結果

4.1 Replicating hole

垂直加振下のポテトスターチ懸濁液では初期に与えた界面の変形が成長し、穴が出来る不安定性が現れる。この時現れる穴はコーンスターチ懸濁液 [1] で現れる stable hole に近い。この穴は容器と同じサイズになるまで際限なく広がっていく Expanding hole とは違い、典型的な大きさ(～5mm)を持っている。コーンスターチ懸濁液 [1] で現れる stable hole と最も異なる点は穴が自発的に分裂・消滅を繰り返し界面全体に広がってゆく点である。この自発的に分裂・消滅する穴は反応拡散系における replicating spot [11][13] に非常に振るまいが似ている。そこでこの

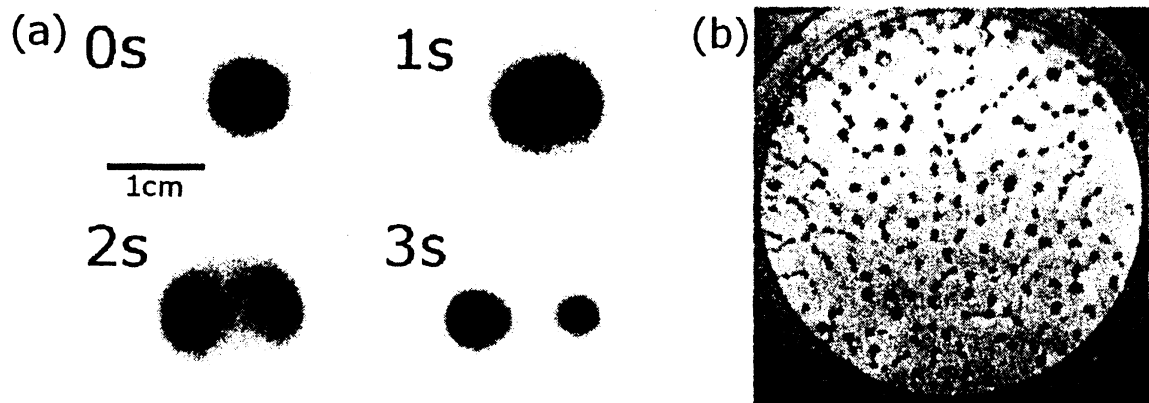


図 4: (a) 穴が分裂する様子 (b) 最初に作った一つの穴が分裂してゆき容器全体に広がっている。

界面の不安定性を Replicating hole と呼ぶことにする。

このような自発的に分裂・消滅するパターンに関する実験は化学反応においては報告があるが [12]、流体や粉体系では初めての例であり反応拡散系との関係に興味を持たれる。そこで本研究では主に Replicating hole のパターンダイナミクスに注目していく。

Replicating hole は典型的にはポテトスターチ懸濁液の $f=100\text{Hz}$ 、 $\phi=0.33$ 、 $\Gamma > 156\text{m/s}^2$ で現れる。穴の分裂は以下のようにして繰り返される。

1. stable hole と同様に界面に作った変形が成長し、懸濁液の層を容器の底近くまで貫く穴に成長する (図 4(a) 0s)。
2. できた丸い穴は安定にはならず、丸い形状から楕円形に変形する (図 4(a) 1s)。
3. その後も変形は大きくなって行き、楕円の短軸方向から懸濁液が穴に向かって流れ込んでくる (図 4(a) 2s)。
4. 最終的に二つの穴に分裂をする (図 4(a) 3s)。
5. 出来た二つの穴は互いに反発するように離れて行き、ある程度時間が経つと再度分裂を始める。

穴の変形が大きくなったからといって必ずしも上手く分裂をするとは限らない。穴の形状の非対称性が強いとひょうたん形に変形した際 (図 4(a) 2s)、片方のふくらみがしぼんでしまい分裂に失敗することがある。また、分裂直後に穴が形状を保てず潰れて消えてしまうことも多い。

穴の密度が高くなってくると穴同士がぶつかるようになる。穴同士がぶつかると多くの場合片方の穴だけが潰れて消える partial annihilation が起こる。また Replicating hole は Expanding hole と同様に subcritical 分岐を示す。一般的に subcritical

分岐ではパラメータを変えると一つの状態だけが安定になる。しかし、実験をした加振強度の領域 ($<250\text{m/s}^2$) では穴が一個もない状態は常に安定である。したがって穴が増えていく際は必ず分裂が起こっており、何もないところから対生成を起こすことはない。

Replicating hole は非常に狭い充填率でしか見られず、臨界加振強度の充填率依存性も非常に強い。Expanding hole では充填率が 45%~57% で見ることが出来、充填率の幅は 12% あるが Replicating hole は 30%~35% の間でしか現れず充填率の幅は 5% しかない。また、Replicating hole では充填率が 5% 変化する間に臨界加振強度は 100m/s^2 も高くなる。充填率が 36% 以上になると Replicating hole から次第に delocalized hole へと移り変わってゆく [1]。つまり、穴の縁が高く盛り上がるようになりその盛り上がるの縁に新しい穴が出来るという、分裂とは異なる穴の増え方をするようになる。充填率が 35% 以下でも低周波、高加振強度になるほど穴の縁が盛り上がる現象が現れる。Replicating hole の縁には Expanding hole や stable hole と同様の対流が出来ており、Expanding hole 同様この対流が穴のダイナミクスに大きく関わっていることが考えられる。

Replicating hole は今のところ極めて狭いパラメーターでしか発見できていない。まず、間隙流体として表面張力の弱いシリコンオイルを使用すると delocalized hole しか現れない。間隙流体をグリセリン水溶液にすることで粘性を上げていくと、グリセリン水溶液の粘性が $10\text{mm}^2/\text{s}$ で Replicating hole は見られなくなった。これは粘性が上がったことで臨界加振強度が増えたためであると考えられる。一方で CsCl 水溶液を使い、ポテトスターチと水溶液の密度を合わせて実験を行っても Replicating hole は現れた。ただしこの場合 Expanding hole も同時に現れ、Replicating hole と Expanding hole が共存する様子が見られた。

コーンスターチとポテトスターチを混ぜたものと水の懸濁液を使うと stable hole から replicating hole へと変わってゆく様子が見られた。コーンスターチとポテトスターチを 1:1 に混ぜた場合、stable hole が現れる。一方でコーンスターチとポテトスターチを 1:4 に混ぜた場合、低加振強度では楕円状に変形し動き回る stable hole が現れ、高加振強度にすると Replicating hole に変わる。このことは stable hole と replicating hole は同じメカニズムで生じており、同じ方程式により記述できる可能性を示している。今のところ replicating hole はポテトスターチを使用した場合しか現れていない。stable hole はコーンスターチと同じぐらいの粒径のガラスビーズ [1] や中空ガラスビーズを使っても現れることが知られている。よってポテトスターチと同じぐらいの粒径の粉体を使えば replicating hole が現れる可能性は高い。

以上の結果より、replicating hole が現れるには高い表面張力をもつ液体と 0.03mm 程度の粒径の粉体の懸濁液である必要があると考えられる。

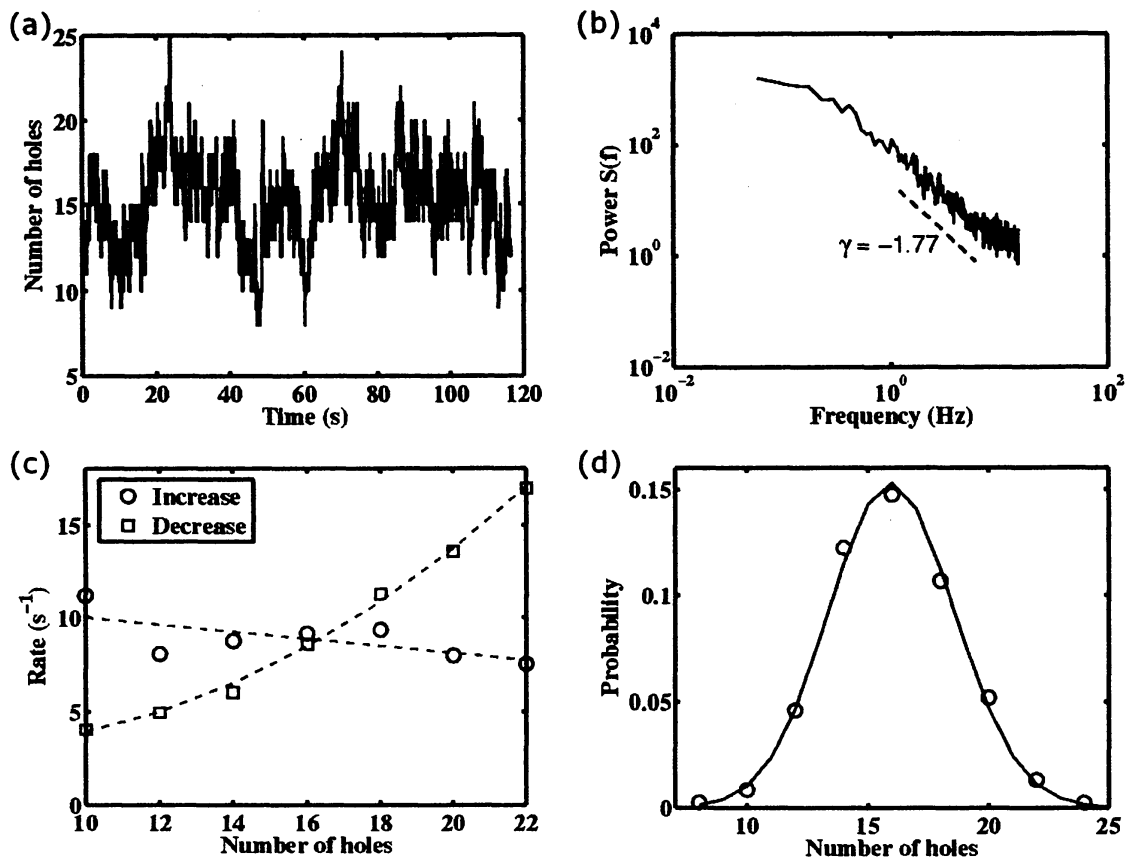


図 5: (a) 穴の個数の時間変化; (b)(a) のパワースペクトル; 破線は $\sim f^\gamma$, $\gamma = -1.77$; データを 500 点毎に FFT し、平均を取った。(c) 容器の中にある個数 n 穴があるとき、一秒間に分裂・流入により増える穴の個数 $\circ$ と一秒間に消滅・流出により消える穴の個数 $\square$; 破線はフィッティングした曲線 (d) master 方程式の解 (式 (6)) から求めた穴の個数の確率分布関数 (実線) と (a) より直接計算した穴の個数の確率分布関数 $\circ$; (a)~(d) $\phi=0.33$, $f=100\text{Hz}$, $\Gamma=202\text{m/s}^2$

4.2 穴の個数の時間ゆらぎ

spatiotemporal chaos が現れる時のスポットの個数のゆらぎに対する統計的な解析は、complex Ginzburg-Landau 方程式 [14] や反応拡散系 [15] においてみられる defect-mediated turbulence における defect のゆらぎに対し行われている。また、実験では白金触媒表面での一酸化炭素の酸化反応における defect-mediated turbulence において調べられている [16]。一方最近では Gray-scott モデルの spatiotemporal chaos [18] において self-replicating spot の個数のゆらぎに対して同様の解析が行われている [19]。そこでこれらの手法を用い、穴の個数の時間変化を調べた。

まずは定常状態における穴の個数の時間変化を調べた。図 5(a) は $\phi=0.33$, $f=100\text{Hz}$, $\Gamma=202\text{m/s}^2$ の定常状態における穴の個数の時間変化を示している。図 5(a) より穴

の個数は平均値の周りを揺らいでいるのが分かる。これは穴の分裂・消滅が頻繁に起こっているためである。また、同じパラメーターにおいて画像から auto correlation function を求めると、距離と共に急激に減衰して 0.7cm 程度で相関がほぼ 0 になることが分かった。したがって空間的にも非常に乱れた状態であり、spatiotemporal chaos になっていると考えられる。

次に穴の時間変化 (図 5(a)) のパワースペクトルを計算した (図 5(b))。穴の個数の増減が独立な確率的事象であるなら、パワースペクトル

$$S(f) = \left| \frac{1}{T} \int_0^T dt n(t) \exp(-i2\pi ft) \right|^2 \quad (1)$$

を計算するとローレンチアンになるはずである。つまり $S(f) \propto f^\gamma$ 、 $\gamma = -2$ となるはずであるが、図 5(d) では指数の値が有意に -2 からずれており -1.77 となっている。したがって穴の個数の増減には相関があることが分かる。このように相関があるために spatiotemporal chaos においてパワースペクトルの指数が 2 からずれる様子は defect-mediated turbulence の欠陥の数の時間変化においても報告されている [15][16]。

次に容器内での穴の増減に関わるイベントが一秒間に何回平均で起こっているかを調べた。実際の解析では画像処理の関係上、容器の壁付近の画像は除いて解析を行っている。つまり容器の中心付近の領域だけを取り出して測定を行っている。

測定している領域内に穴がある個数ある時に、穴の増減に関わるイベントは以下のような物がある [15][16][19]。

Replication rate 測定している領域内で穴の分裂が一秒間に起こる回数。分裂が一回起こることで穴は一個増えることになる。

Inflow rate 測定している領域に外の領域から一秒間に入ってくる穴の個数。

Annihilation rate 測定している領域内で穴の消滅が一秒間に起こっている回数。

Outflow rate 測定している領域内から領域外へと一秒間に出て行く穴の個数。

画像処理上の問題から生じる測定誤差の量は全体のイベントの 1% 程度である。(注: replication rate, annihilation rate, inflow rate, outflow rate のグラフは載せていない)。

まず Replication rate は穴の数に対して直線的に増えているが、傾きは非常に小さい。これは穴の数が増えているのに分裂の総数はほとんど増えていない事を示しており、穴の数が増え穴の密度が高くなると分裂しにくくなることを示している。

つぎに Annihilation rate であるが、これは穴の数に対して二次関数で増加していることが分かった。穴の消滅は、穴の衝突など穴同士が強く相互作用している

状態で起こる事が大半であるため、穴の組み合わせ方の個数が効き二次関数になっていると考えられる [15][16]。Inflow と Outflow を比べると Inflow の方が多い事がわかった。このことは、平均的に容器の壁から容器中心に向かって穴が流れ込んでいることを示している。

Inflow のほうが多い理由は以下の通りである。Replicating hole は容器の壁に張り付く性質を持っている。また、壁に張り付いた穴も分裂することが出来るが、分裂する際に消滅する確率が極めて低くなる。臨界加振強度付近では、壁から離れた穴が 30 秒程度で消滅してしまうような場合でも、壁に張り付くと 2~4 分消えずに残ることが多々ある。このように壁に張り付いた穴の寿命は極めて長くなり、分裂しては容器中央に向かって穴を送り出す穴の湧き出し口となってしまう。これが Inflow の方が多い理由である。

つぎに、一秒間に測定している領域に穴が増える個数 (Increase rate) と穴が消える個数 (decrease rate) を求めた (図 5(c))。Increase rate は Replication rate と Inflow rate を足すことで求められ、Decrease rate は Annihilation rate、Outflow rate を足すことで求められる図 5(c) より Increase rate Ξ_+ は穴の個数 n に対して直線になり、Decrease rate Ξ_- は二次関数になることが分かる。そこで、フィッティングを行うと以下ようになる。

$$\Xi_+ = i_0 + i_1 n \quad (2)$$

$$\Xi_- = d_0 + d_1 n + d_2 n^2 \quad (3)$$

フィッティングパラメーターは $i_0=11.1$ 、 $i_1 = -0.125$ 、 $d_0=5.37$ 、 $d_1 = -0.709$ 、 $d_2=0.0563$ となった。

この Increase rate、Decrease rate をつかい defect-mediated turbulence での確率論的な解析 [14] を replicating hole に対して行う [19]。穴同士の平均距離は 100Hz、180m/s² において 1.05cm であるが、穴の空間相関は 0.7cm 程度でほぼ完全に無くなる。このことから穴の空間的な相関は弱いと考えられる。そこで、穴の個数の時間変化は生成・消滅レートが Ξ_+ と Ξ_- の discrete birth-death Markov stochastic process に従っていると仮定する。時間 t で穴の個数が n である確率を $P(n, t)$ とすると、マスター方程式は

$$\begin{aligned} P(n, t + dt) = & P(n, t) \{1 - [\Xi_+(n) + \Xi_-(n)] dt\} \\ & + \Xi_+(n-1) P(n-1, t) dt \\ & + \Xi_-(n+1) P(n+1, t) dt \end{aligned} \quad (4)$$

ここで定常状態であることを要求すると $P(n, t + dt) = P(n, t)$ となるため、結局

$$P(n) = \frac{\Xi_+(n-1)}{\Xi_-(n)} P(n-1) \quad (5)$$

この漸化式を解くことで穴の個数の確率分布関数を求めることが出来る。

$$P(n) = P(0) \prod_{j=0}^{n-1} \frac{i_0 + i_1 j}{d_0 + d_1(j+1) + d_2(j+1)^2} \quad (6)$$

図 5(d) は図 5(a) から直接求めた穴の個数の確率分布関数と式 (6) から求めた確率分布関数を示している。この二つの確率分布関数は非常に良く一致しており、穴の個数の時間変化はマルコフモデルによる記述で非常に上手く説明できることが分かる。

5 まとめと考察

垂直加振下のポテトスターチ懸濁液界面において replicating hole を発見した。定常状態での replicating hole の統計的な振る舞いについては、反応拡散系や complex Ginzburg-Landau 方程式における defect-mediated turbulence で良く行われている確率論的な解析方法を応用した。その結果、master 方程式と穴の Increase rate、Decrease rate を使うことにより穴の個数の確率分布関数が再現できることを示した。

この確率論的な方法では穴の増減には相関がないと仮定している。しかし実際はパワースペクトルの指数が 2 から大きくずれることから空間相関があることが示唆されている。このような空間相関は defect-mediated turbulence でも報告されている。空間相関の大きさを測る方法として defect の個数の平均値と分散の比 $\sigma^2/\langle n \rangle$ を調べるものが導入されている [17]。FitzHugh-Nagumo 方程式では spiral breakup transition に近づき相関が強くなるほどに $\sigma^2/\langle n \rangle$ が 0 に近づき、Hopf 分岐に近づき相関が弱くなるほど 1 に近づく事が報告されている。replicating hole においては $\phi=0.33$ 、 $f=100\text{Hz}$ 、 $\Gamma=202\text{m/s}^2$ では $\sigma^2/\langle n \rangle = 0.44$ となり非強い相関があることが示唆されている。defect-mediated turbulence においても同様であるが、穴同士が相互作用をしているにもかかわらず、無相関を仮定しているはずの確率的な記述方法が非常に上手くいくのは興味深い。

次に穴の分裂レートと消滅レートの穴の個数に対する依存性について考察する。穴の分裂レートは $\Xi_r = -0.120n + 6.32$ となり、穴の数に対して非常にゆっくりと減少していることが分かる。穴の分裂レートは、穴の数が 0 個の場合は定義から 0 になるはずである。しかしこのフィッティングでは 6.32 と大きな正の値になってしまう。従って穴の分裂レートは穴の数が低いところで直線からずれているか、 $n=0$ と $n=1$ の所で不連続になっている可能性が考えられる。

一方で穴の消滅レートは $\Xi_a = 0.0367n^2 - 0.32n + 2.45$ となる。二次関数の部分は穴同士が衝突することによって穴が消滅する過程を反映していると考えられる。もし異なる穴同士の対消滅しか起こらないとすると n の一次と定数項の部分は現れないはずである。分裂直後の穴が消滅してしまう過程は n の一次に比例す

ると考えられるが [16]、 n の係数は正になるはずである。しかし replicating hole では n の一次の項の係数は負になっている。この原因の一つとして考えられるのが Replicating hole では穴同士の相互作用が強く、クラスターを作りやすいことである。異なる穴同士の対消滅で n の二次の項がでる理由としては、対消滅を起こすペアを作る方法がおよそ n^2 に比例するからである。しかし、クラスターを作ること対消滅をするペアの組み合わせ方に制限がつき、 n の一次関数の補正がかかっている可能性が考えられる。

参考文献

- [1] F. Merkt, R.D. Deegan, D. Goldman, E. Rericha, and H.L. Swinney, Phys. Rev. Lett. **92**, 184501 (2004)
- [2] M. Faraday, Philos. Trans. R. Soc. London, **121**, 299 (1831)
- [3] G.I. Taylor, Proc. R. Soc. London A, **201**, 192 (1950)
- [4] P. Umbanhowar, F. Melo, and H.L. Swinney, Nature (London) **382**, 793 (1996)
- [5] P. Ballesta and S. Manneville, Europhys. Lett., **76**, pp. 429-435 (2006)
- [6] O. Lioubashevski, Y. Hamiel, A. Agnon, Z. Reches, and J. Fineberg, Phys. Rev. Lett. **83**, 3190 (1999)
- [7] J.M. Schleier-Smith and H.A. Stone, Phys. Rev. Lett. **86**, 3016 (2001)
- [8] H. Ebata, S. Tatsumi and M. Sano, Phys. Rev. E **79**, 066308 (2009)
- [9] S. A. Adebayo, E. Brown-Myrie and O. A. Itiola, Powder Technol. **181** 98-103 (2008)
- [10] G. Zhou, J. L. Willett, C. J. Carriere and Y. V. Wu, Journal of Polymers and the Environment, Vol. 8, No. 3, 145 (2000)
- [11] J. E. Pearson, Science **261**, 189-192 (1993)
- [12] K-J. Lee, W. D. McCormick, J. E. Pearson and H. L. Swinney, Nature **369**, 215 (1994)
- [13] C. B. Muratov and V. V. Osipov, Phys. Rev. E **54**, 4860 (1996)
- [14] L. Gil, J. Lega and J. L. Meunier, Phys. Rev. A **41**, 1138 (1990)
- [15] J. Davidsen and R. Kapral, Phys. Rev. Lett. **91**, 058303 (2003)

- [16] C.Beta, A.S.Mikhailov, H.H.Rotermund and G.Ertl, *Europhys. Lett.* **75**, 868-874 (2006)
- [17] M. Hildebrand, M.Bär, and M. Eiswirth, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1503 (1995)
- [18] Y. Nishiura and D. Ueyama, *Physica D* **150**, 137-162 (2001)
- [19] H. Wang and Q. Quyang, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 214102 (2007)