

薄いシアー流れ下の固液界面の形態不安定性

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

屋根雪の融解水で生じる軒先のつらは、北国ではしばしば見られる光景である。つらは、薄い水の膜がその表面を流れ落ちることにより成長していく。流れ落ちる水の一部が凍り、残りはつらの先端から滴り落ちる。つらが鉛直下向きに細い円柱状を成して成長する過程で、多くのつらにはその表面に、図 1 (a) に示すようなリングを積み重ねたような波模様が形成される [1, 2]。天然のつらの波模様の波長の測定結果によると、波長は 9 mm を中心とした正規分布を示し、全体の 70% が 9 ± 2 mm の範囲に入る [1]。図 1 (b) は、波模様をもつつらの鉛直断面の薄片写真である。つら内部の気泡は帯状の群をなしており、水膜に溶解していた空気が凍結の際気泡となってとりこまれた跡を示している。それぞれの気泡群は波模様と同じ波長で並んでおり、各々の気泡群の位置はつらが太くなるとともに上方に移動していること、および気泡群がつら表面の凸部上方で氷に捕りこまれているのがわかる。偏向顕微鏡の観察によると、この部分の結晶粒は、他の部分に比べて細かいことが知られている [1]。この気泡群の存在と配列の仕方および細かな結晶粒の存在から、つらの波模様の凸部上方では氷の成長が他より速いと考えられている。この観察結果は、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唆している。

つらの表面に形成された波模様は、つららに特有のものではない。外気温が 0°C 以下の環境下で、図 1 (c) に示すような熱伝導率の小さい木製の平らな板（溝の幅 3 cm, 長さ 60 cm）[3] や配水管 [4] の表面上に水を流した場合でも氷の波模様が形成されることが知られている。一方、木製の板よりも 100 倍以上も熱伝導率のよいアルミ板上に水を流した場合に形成された氷は表面が滑らかな硬い氷で、波模様は形成されないことが報告されている [3]。つらの表面や木製の板の場合は、結晶化により発生した潜熱が必ず水膜を通して 0°C より低い外気側へ放出されるが、アルミ板の場合は、潜熱はほとんど氷を通してアルミ板のほうへ逃げるからである。水の供給が止まり表面が乾いたつらや、気温が 0°C 以上に上がり融解中のつららにはこのような波模様は存在しないこと、気温や気流の乱れがあるほうが波模様が発生しやすいことが知られている [2, 3]。

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（図 2 (a)）の一部が揺らぎで過冷却液体側に突出すると、図 2 (b) に示すように突出部 A 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速くなり、この揺らぎは助長される傾向がある。ここで、点線は等温線を示す。これは、Mullins-Sekerka (MS) 不安定性と呼ばれている。図 2 (c) は液体と結晶の化学ポテンシャル μ_l, μ_s の温度依存性を示している。平面界面を介して 2 相が共存するとき、 $\mu_l = \mu_s$ から融点 T_m が決まる。突出部の曲率により結晶のケミカルポテンシャルは μ_s から μ'_s に増加する。 $\mu_l = \mu'_s$ から融点は T_m から $T_i = T_m - T_m \Gamma \kappa / L$ に変わる。ここで、 Γ は固液界面の界面張力、 κ は界面の曲率、 L は単位体積当たりの潜熱である。 T_i は曲率を考慮した平衡温度である。これを Gibbs-Thomson (GT) 効果という。図 2 (b) の右側に示すように、固液界面の突出部 A は界面張力により平衡温度は T_m から T_i に下がる。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競合の結果として、 $10 \sim 100 \mu\text{m}$ 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

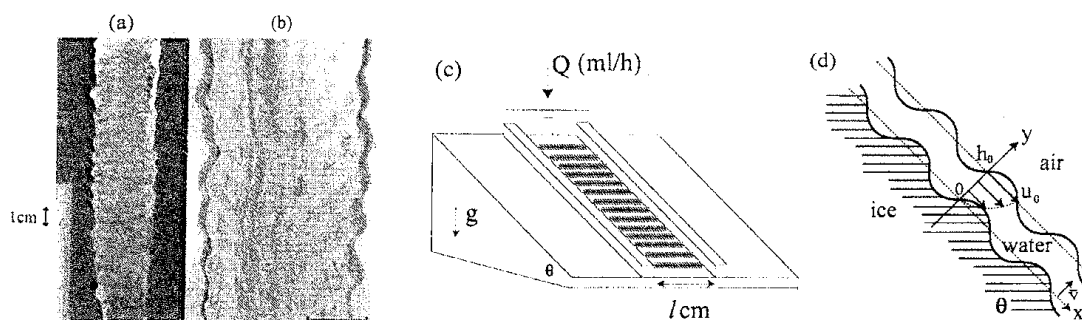


図1 (a) つららの波模様. (b) 波模様をもつららの鉛直断面の薄片写真 [2] (c) 木製の樋の上を流れ落ちる過冷却水の液膜からの氷の成長の模式図. 一様間隔の影の部分は氷結晶の周期的な波模様を表す. (d) 角度 θ の傾斜面の垂直断面 (x, y) の模式図.

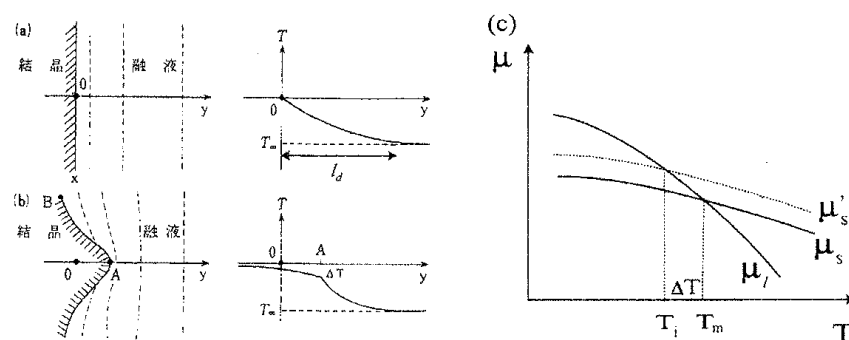


図2 (a), (b) Mullins-Sekerka 不安定性を説明する模式図. [6] (c) 化学ポテンシャルの温度依存性. [8]

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. $\lambda_{\max}$ にはふたつの特徴的な長さが含まれている. ひとつは, 図2 (a) の右側に示すように, 凝固により放出された潜熱が固液界面前方の液体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ミクロな長さである. ここで, C_p は液体の定圧比熱である [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.

固液の1次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 [9]. しかし, 著者の知る限りでは, 自由表面をもつシアー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. つららの波模様に関しても昔から多くの人に気づかれていたが [10], その形成機構について調べた研究は極めて少なかった. 最近, 小川と古川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 [11]. 彼らは, 図1 (d) に示すように同振幅で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 [12]。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か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樣にすることによってラプラス不安定性を抑制するという。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、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松田による実験結果 [3] 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。最近、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 [13, 14]。以下では著者の理論から得られた結果を簡単に紹介する。

2 支配方程式

図 1 (d) 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 [2]。 $\bar{V}$ 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限る限り、 T_a の方程式には空気の流はないものと仮定する。

角度 θ の傾斜面を流れ落ちる液体の流速 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. 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つた [13, 14]. 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求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,

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

であり, T_{la} 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. K_a を空気の熱伝導度とすると, 気液界面での熱流の保存則は,

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

である. 小川-古川モデルでは, (7), (9) 式の代わりに, $T_l|_{y=\zeta} = T_s|_{y=\zeta} = T_m, T_l|_{y=\xi} = T_a|_{y=\xi}$ の境界条件を課していることに注意する [11].

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

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

となる. 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,

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

を課す. 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、平坦な固液界面に摂動

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

を与える。ここで k は波数、 $\sigma = \sigma_r + i\sigma_i$ であり、 $\sigma_r, v_p \equiv -\sigma_i/k$ 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、以下では ζ_k の 1 次までを考慮した線形安定性解析を行う。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。

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

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

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

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

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

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

ここで、 $\xi_k, g_l, g_s, g_a, F, \Pi$ は摂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： $u' = u_0 \partial \psi' / \partial y, v' = -u_0 \partial \psi' / \partial x$.

非摂動部分の $\bar{U}$ の解は、パラボラ型のシアー流れ $\bar{U}(y) = u_0 \{2y/h_0 - (y/h_0)^2\}$ である [15]。ここで、 $u_0 = gh_0^2 \sin \theta / (2\nu)$ 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、

$$Q = l \int_{\zeta}^{\xi} dy (\bar{U} + u') \sim \frac{2}{3} u_0 h_0 l, \quad (23)$$

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摂動部分の近似解を使う。(23) 式の結果は、 ζ_k の 1 次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している。これより、

$$h_0 = \left(\frac{3\nu Q}{lg \sin \theta} \right)^{1/3}, \quad (24)$$

となる。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 [2] での人工つらは、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 [3] での水の供給率は $Q = 160$ ml/h に固定されていた。 $Q = 160$ ml/h, $\theta = \pi/2, l = 3$ cm, 水の $\nu = 1.8 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ のとき、 $h_0 \sim 93 \mu\text{m}, u_0 \sim 2.4 \text{ cm/s}$ 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。前の 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。 h_0 は Q とともにゆっくりと増加する [2]。

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 II を消去すると, 次の Orr-Sommerfeld 方程式を得ることができる.

$$\frac{d^4 f}{dy_*^4} - 2\mu^2 \frac{d^2 f}{dy_*^2} + \mu^4 f = i\mu Re \left\{ \left(2y_* - y_*^2 - \frac{i\sigma}{ku_0} \right) \left(\frac{d^2 f}{dy_*^2} - \mu^2 f \right) + 2f \right\}. \quad (25)$$

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, $\sigma/(ku_0)$ の項の値は非常に小さいので無視できる. これは, f の時間依存性を無視できることに相当する. 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ので長波長近似 $\mu \ll 1$ を使うことができる. μ に関して高次の項を無視すると (25) 式の Orr-Sommerfeld 方程式は次のようになる.

$$\frac{d^4 f}{dy_*^4} = i\mu Re \left\{ (2y_* - y_*^2) \frac{d^2 f}{dy_*^2} + 2f \right\}. \quad (26)$$

流体力学的境界条件 (11)-(15) 式を $y_* = 0$ と $y_* = 1$ で線形化した形の式を用いると, (26) 式の近似解は,

$$f(y_*) = -2y_* + \frac{3(2-i\alpha)}{6-i\alpha} y_*^2 + \frac{i\alpha}{6-i\alpha} y_*^3 + \mu Re \alpha \left\{ \frac{-96-8i\alpha}{105(6-i\alpha)^2} y_*^2 + \frac{4i\alpha}{35(6-i\alpha)^2} y_*^3 \right. \\ \left. + \frac{1}{15(6-i\alpha)} y_*^5 - \frac{1}{30(6-i\alpha)} y_*^6 + \frac{1}{210(6-i\alpha)} y_*^7 \right\}, \quad (27)$$

となる. ここで,

$$\alpha = \frac{\mu Re \cos \theta}{F^2} + \mu^3 Re W = 2 \cot \theta h_0 k + 2a^2 h_0 k^3 \quad (28)$$

は, 重力と表面張力による復元力を表し [16], $F = u_0/(gh_0)^{1/2}$ 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 [15].

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 [16]. 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. Benjamin による自由表面の安定性解析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, (11), (12) 式の代わりに, 平坦な面上での境界条件 $u|_{y=0} = 0$, $v|_{y=0} = 0$ を使う. これらと (13), (14) 式を使うことによって, f の時間微分の項を考慮に入れた 4 階の微分方程式 (25) 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式を導出する. 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, (26) 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, f が決まると, (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.

$$\xi_k = -f|_{y_*=1} \zeta_k = \left\{ \frac{6}{6-i\alpha} + \frac{24\mu Re \alpha}{35(6-i\alpha)^2} \right\} \zeta_k. \quad (29)$$

固液界面の揺らぎに対する分散関係式を導出するためには, 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.

α の値は波数 k , Q , θ によって変化する. 図 3 (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. 実験 [2, 3] で使われた Q に対してレイノルズ数 Re の値は $O(1)$ であることに注意すると, (29) 式の右辺の第 2 項は第 1 項に比べると非常に小さいので無視してもかまわない. 図 3 (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

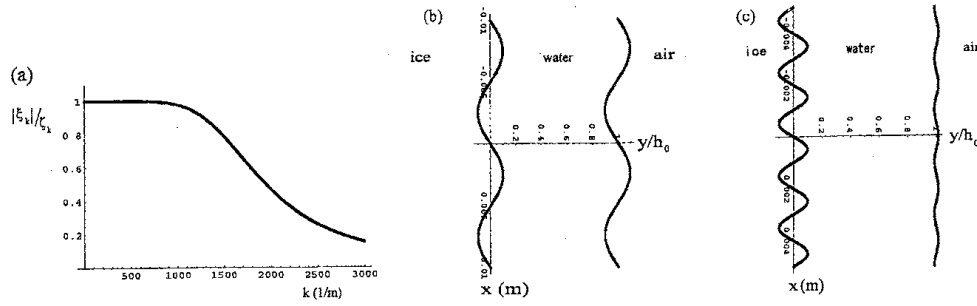


図3 $\theta = \pi/2$, $Q = 160$ ml/h のとき, (a) 両界面の振幅の比 $|\xi_k|/\zeta_k$ の波数 k 依存性. 固液界面の変形に対する気液界面の形の例. (b) 固液界面の波長 1 cm ($k \sim 628$ /m), (c) 固液界面の波長 2mm ($k \sim 3142$ /m) .

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り気液界面をもとにもどそうとする力が働くので, 固液界面の変形に対して気液界面の形は平坦になるとうする. $\theta = \pi/2$ 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 $k \sim 2224$ /m となる. 図 3 (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る. 一方, 図 3 (c) に示すように, 固液界面の変形の波長が a より小さいならば, 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がずれているのがわかる. 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. また固液界面の摂動の振幅は $\zeta_k/h_0 = 0.1$ とした. $\theta = \pi/2$ でないときは, 気液界面に作用する復元力として表面張力に加えて重力もあることに注意する. 小川-古川モデルでは, (29) 式の α の項の効果を無視しているの, $\xi_k = \zeta_k$ となる.

4.3 液体内の温度の摂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 of 非摂動部分の方程式の解は, $\bar{T}_l(y) = T_m - \bar{G}_l y$ となる. ここで, $\bar{G}_l = -d\bar{T}_l/dy|_{y=0} = (T_m - T_{la})/h_0$ は液体内の非摂動部分の温度勾配を表す. T'_l, v' の仮定した形を (1) 式の摂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.

$$\frac{d^2 g_l}{dy^2} - \left\{ k^2 + \frac{ik\bar{U}(y)}{\kappa_l} + \frac{\sigma}{\kappa_l} \right\} g_l = \frac{iku_0}{\kappa_l} f(y) \exp\left(\frac{\rho\bar{V}}{2\kappa_l} y\right) \bar{G}_l \zeta_k. \quad (30)$$

$y = (1-z)h_0$ を (30) 式に代入し, 長波長近似 $\mu \ll 1$, 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, (30) 式は,

$$\frac{d^2 g_l}{dz^2} - i\mu Pe(1-z^2)g_l = i\mu Pe f(z) \exp\left[\frac{\rho\bar{V}h_0}{2\kappa_l}(1-z)\right] \bar{G}_l \zeta_k, \quad (31)$$

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, レイノルズ数と同様に Q/l に依存し θ には依存しないことに注意する. (31) 式の左辺の第 2 項はシア流れ $\bar{U}$ からの寄与であり, 右辺は固液界面の変形により生じた鉛直方向の速度揺らぎ v' からの寄与である. 長波長近似が使える範囲での液体内の熱揺らぎの輸送は, これらの流れによる熱輸送が熱拡散より支配的であるといえる.

最初に (31) 式の右辺をゼロとおくと, 独立な解は,

$$\phi_1(z) = \exp\left(-\frac{1}{2}(-i\mu Pe)^{1/2} z^2\right) {}_1F_1\left(\frac{1}{4}\left[1 + \frac{i\mu Pe}{(-i\mu Pe)^{1/2}}\right], \frac{1}{2}, (-i\mu Pe)^{1/2} z^2\right), \quad (32)$$

$$\phi_2(z) = z \exp\left(-\frac{1}{2}(-i\mu Pe)^{1/2} z^2\right) {}_1F_1\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{4}\left[1 + \frac{i\mu Pe}{(-i\mu Pe)^{1/2}}\right], \frac{3}{2}, (-i\mu Pe)^{1/2} z^2\right), \quad (33)$$

で与えられる。ここで、 ${}_1F_1$ は合流超幾何関数である [17]。ふたつの解 $\phi_1(z)$, $\phi_2(z)$ のロンスキアン $W(z) = \phi_1(z)d\phi_2(z)/dz - \phi_2(z)d\phi_1(z)/dz = 1$ なので、 B_1 , B_2 を未定定数として (31) 式の一般解は次のような形に書ける。

$$g_l(z) = B_1\phi_1(z) + B_2\phi_2(z) + i\mu Pe \bar{G}_l \zeta_k \int_0^z \{\phi_2(z)\phi_1(z') - \phi_1(z)\phi_2(z')\} f(z') \exp\left[\frac{\rho \bar{V} h_0}{2\kappa_l}(1 - z')\right] dz'. \quad (34)$$

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、 $\bar{T}_a(y) = T_{la} - \bar{G}_a(y - h_0)$ 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、 $g_a(y) = T_{ka} \exp[-k(y - h_0)]$ 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。 $y = h_0$ で (9) 式を線形化すると、 ξ_k の 0 次のオーダーで、 $\bar{T}_l|_{y=h_0} = \bar{T}_a|_{y=h_0} = T_{la}$ となり、 ξ_k の 1 次のオーダーで、 $-\bar{G}_l \xi_k + B_1 = -\bar{G}_a \xi_k + T_{ka} = 0$ 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、 $K_l \bar{G}_l = K_a \bar{G}_a$ となり、 ξ_k の 1 次のオーダーで、 $K_l B_2 = \mu K_a T_{ka}$ 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。これらの関係式から、 $B_1 = \bar{G}_l \xi_k$, $B_2 = \mu B_1$ となり、(29) 式を使うと、(34) 式は、

$$g_l(z) = \left[-f|_{z=0} \{\phi_1(z) + \mu \phi_2(z)\} + i\mu Pe \int_0^z \{\phi_2(z)\phi_1(z') - \phi_1(z)\phi_2(z')\} f(z') dz'\right] \bar{G}_l \zeta_k \equiv H_l(z) \bar{G}_l \zeta_k, \quad (35)$$

となる。ここで、 $[]$ の中を $H_l(z)$ と定義した。

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、

$$\bar{V} = \frac{C_p \kappa_l (T_m - T_{la})}{L h_0}, \quad (36)$$

となる。ここで、 C_p は液体の定圧比熱である。これは、次のように書き換えられる。

$$\frac{\bar{V} h_0}{\kappa_l} = \frac{C_p (T_m - T_{la})}{L}. \quad (37)$$

液体の過冷却度 $T_m - T_{la}$ が潜熱の発生による温度上昇 L/C_p よりずっと小さいときは、 $\bar{V} h_0/\kappa_l \ll 1$ となる。この場合には、 $h_0 \ll \kappa_l/\bar{V}$ なので凝固面前方に厚さ $\kappa_l/\bar{V}$ 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气中に放出されることになる。実験 [2] 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、 $\bar{V} h_0/\kappa_l \ll 1$ は実際に満たされていることがわかる。

$K_l \bar{G}_l = K_a \bar{G}_a$ から、 T_{la} は、

$$T_{la} = \frac{T_m + \frac{K_a h_0}{K_l l_a} T_\infty}{1 + \frac{K_a h_0}{K_l l_a}}, \quad (38)$$

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。(38) 式を (36) 式に代入すると、

$$\bar{V} = \frac{K_l}{L h_0} \frac{T_m - T_\infty}{1 + \frac{K_l l_a}{K_a h_0}}, \quad (39)$$

となる。 $l_a > h_0$ を仮定すると、 $K_l/K_a \sim 22.7 \gg 1$ から (39) 式は、

$$\bar{V} \sim \frac{K_a}{L} \frac{T_m - T_\infty}{l_a}, \quad (40)$$

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は、外気温 \$T_\infty\$ には強く依存するが、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 ([2] 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、\$\zeta_k\$ の 1 次のオーダーで、

$$L\sigma\zeta_k = K_s \left. \frac{dg_s}{dy} \right|_{y=0} - K_l \left. \frac{dg_l}{dy} \right|_{y=0}, \quad (41)$$

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_{ks} \exp(ky)\$ となる。ここで、\$T_{ks}\$ は結晶内の温度の摂動部分の振幅である。(7) 式の摂動部分は次のようになる。

$$(-\bar{G}_l \zeta_k + g_l|_{y=0}) \exp[\sigma t + ikx] = T_{ks} \exp[\sigma t + ikx] = \Delta T. \quad (42)$$

ここで、\$\Delta T\$ は \$\zeta_k\$ のオーダーであると仮定した。\$g_l\$ が求まると \$\Delta T = (H_l|_{z=1} - 1)\bar{G}_l \zeta\$ と決まる。

\$g_l, g_s\$ の解を (41) 式に代入し、\$T_{ks}\$ に対しては (42) 式を使うと、固液界面の揺らぎに対する分散関係式は、

$$\sigma = \frac{\bar{V}}{h_0} \left\{ \left. \frac{dH_l}{dz} \right|_{z=1} + n\mu (H_l|_{z=1} - 1) \right\}, \quad (43)$$

となる。ここで、\$n = K_s/K_l\$、

$$H_l|_{z=1} = -f|_{z=0} \{ \phi_1|_{z=1} + \mu\phi_2|_{z=1} \} + i\mu Pe \int_0^1 \{ \phi_2|_{z=1} \phi_1(z') - \phi_1|_{z=1} \phi_2(z') \} f(z') dz', \quad (44)$$

$$\left. \frac{dH_l}{dz} \right|_{z=1} = -f|_{z=0} \left\{ \left. \frac{d\phi_1}{dz} \right|_{z=1} + \mu \left. \frac{d\phi_2}{dz} \right|_{z=1} \right\} + i\mu Pe \int_0^1 \left\{ \left. \frac{d\phi_2}{dz} \right|_{z=1} \phi_1(z') - \left. \frac{d\phi_1}{dz} \right|_{z=1} \phi_2(z') \right\} f(z') dz', \quad (45)$$

である。成長率 \$\sigma_r\$ と位相速度 \$v_p = -\sigma_i/k\$ は (43) 式の実部、虚部から得ることができる。\$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、\$\phi_1, \phi_2\$ を \$\mu Pe\$ に関して高次まで展開する必要があるが、\$\mu Pe\$ に関する高次の項の係数の値は、低次の項の値に比べると非常に小さいので次のように 1 次まで展開する：\$\phi_1(z) = 1 + i(z^2/2 - z^4/12)\mu Pe\$、\$\phi_2(z) = z + i(z^3/6 - z^5/20)\mu Pe\$。(44)、(45) 式にこれらの式を使い、(29) 式の右辺の第 2 項は第 1 項に比べると非常に小さいので \$f|_{z=0} = -6/(6 - i\alpha)\$ を用いると、

$$\sigma_r = \frac{\bar{V}}{h_0} \left[\frac{-\frac{3}{2}\alpha(\mu Pe) + \mu \{ 36 - \frac{3}{2}\alpha(\mu Pe) \}}{36 + \alpha^2} + n\mu \frac{-\frac{7}{10}\alpha(\mu Pe) - \alpha^2 + \mu \{ 36 - \frac{7}{10}\alpha(\mu Pe) \}}{36 + \alpha^2} \right], \quad (46)$$

$$v_p = -\frac{\bar{V}}{\mu} \left[\frac{-\frac{1}{4}\alpha^2(\mu Pe) + \mu \{ 6\alpha + 9(\mu Pe) \}}{36 + \alpha^2} + n\mu \frac{6\alpha - \frac{7}{60}\alpha^2(\mu Pe) + \mu \{ 6\alpha + \frac{21}{5}(\mu Pe) \}}{36 + \alpha^2} \right], \quad (47)$$

となる。

図 4 (a) は、固液界面の成長率 \$\sigma_r\$ を示している。ここで、\$\bar{V} = 10^{-6}\$ m/s、\$l = 0.03\$ m、\$L = 3.3 \times 10^8\$ J/m\$^3\$、\$\kappa_l = 1.3 \times 10^{-7}\$ m\$^2\$/s、\$\nu = 1.8 \times 10^{-6}\$ m\$^2\$/s、\$\gamma = 7.6 \times 10^{-2}\$ N/m、\$n = K_s/K_l = 3.92\$ の値を使った。外気温による \$\bar{V}\$ の変化は、\$\sigma_r\$ の最大値の大きさに影響を与えるが、\$\sigma_r\$ の最大値から決定した波模様の特徴的な波長 \$\lambda_{max}\$ を変えることはない。固液界面の波模様の原型としての周期構造は、\$Q = 160\$ ml/h のときは、約 30 分後に現れることが報告されている [3]。最も不安定なモードの特徴的な時間は、図 4 (a) より \$\sigma_r^{-1} \sim\$ 約 30 分となるので実験結果の時間スケールとも矛盾していない。図 4 (b) は、\$\lambda_{max}\$ の \$\sin \theta\$ 依存性を示している。● が (46) 式から得られた結果であり、実験結果 ■ [3] と非常によく合っている。▲ は小川-古川モデル [11] か

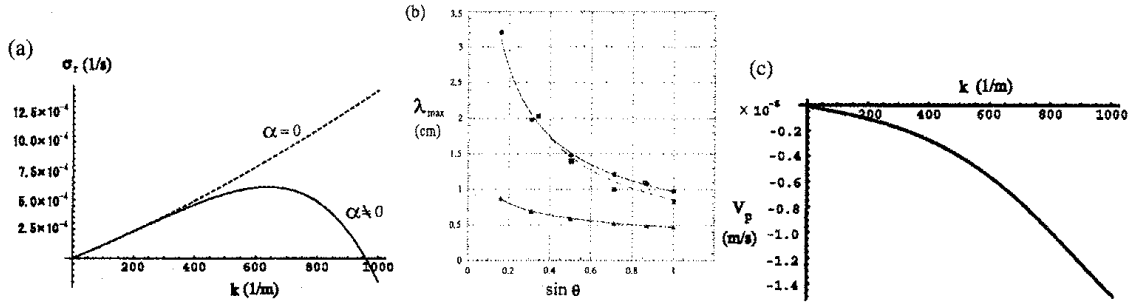


図4 (a) $Q = 160$ ml/h, $\theta = \pi/2$ のとき, 成長率 σ_r の波数 k 依存性. 実線は復元力 α を考慮した場合, 点線は $\alpha = 0$ の場合. (b) $Q = 160$ ml/h のとき, $\lambda_{\max}$ の $\sin \theta$ 依存性. ■: 実験結果 [3], ▲: 小川-古川モデルの結果 [11], ●: 著者の結果 [13]. (c) $Q = 160$ ml/h, $\theta = \pi/2$ のとき, 位相速度 v_p の波数 k 依存性.

ら得られた結果である. 図 4 (c) は, (47) 式から得られた位相速度 v_p を示している. ここで, v_p の値を, σ_r が最大値をとる波数で定義すると, $v_p \sim -0.6\bar{V}$ となる. 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, 氷の中に捕りこまれた気泡群が上方に移動していることを示している観察結果の図 1 (b) とも矛盾していない.

4.5 時間スケールの分離

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 (25) 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 4 (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 $u_0 \sim 10^{-2}$ 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 4 (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, $\Delta t_{\text{thermal}} \sim (\kappa_i k^2)^{-1}$ ($i = l, s, a$) 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. 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時間変動に対して非常に速く応答していると言えるので, ここの解析では準定常近似は妥当なものである.

5 安定性のメカニズム

図 5 (a)-(c) の左側の太い実線に示すように, $\zeta_k/h_0 = 0.1$ の微小な固液界面の揺らぎ $\text{Im}[\zeta/h_0] = \sin[k(x - v_p t)](\zeta_k/h_0) \exp(\sigma_r t)$ を与える. ここで Im は引数の虚部を表す. それに対応する気液界面の揺らぎは, $\xi_k = -f|_{z=0} \zeta_k$ の関係式を使うと, $\text{Im}[\xi/h_0] = \text{Im}[-f|_{z=0} \exp[ik(x - v_p t)]](\zeta_k/h_0) \exp(\sigma_r t)$ となり, 右側の太い実線で表されている. また, 固液界面上での液体中への熱流の揺らぎ q_l と固体中への熱流の揺らぎ q_s , 気液界面上での空気中への熱流の揺らぎ q_a は, それぞれ,

$$q_l \equiv \text{Im} \left[-K_l \frac{\partial T'_l}{\partial y} \Big|_{y=\zeta} \right] = \text{Im} \left[\frac{dH_l}{dz} \Big|_{z=1} \exp[ik(x - v_p t)] \right] K_l \bar{G}_l \frac{\zeta_k}{h_0} \exp(\sigma_r t), \quad (48)$$

$$q_s \equiv \text{Im} \left[-K_s \frac{\partial T'_s}{\partial y} \Big|_{y=\zeta} \right] = -\text{Im} [(H_l|_{z=1} - 1) \exp[ik(x - v_p t)]] n \mu K_l \bar{G}_l \frac{\zeta_k}{h_0} \exp(\sigma_r t), \quad (49)$$

$$q_a \equiv \text{Im} \left[-K_a \frac{\partial T'_a}{\partial y} \Big|_{y=\zeta} \right] = \text{Im} [-f|_{z=0} \exp[ik(x - v_p t)]] \mu K_l \bar{G}_l \frac{\zeta_k}{h_0} \exp(\sigma_r t), \quad (50)$$

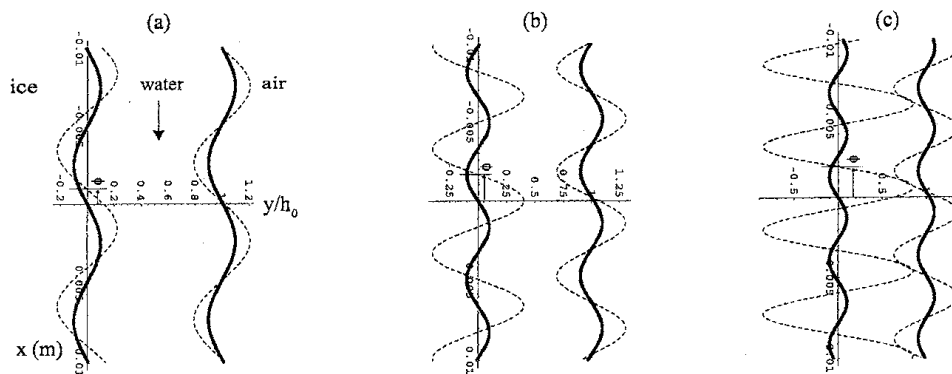


図5 固液界面の揺らぎ $\text{Im}[\zeta/h_0]$ (左側の太い実線), 気液界面の揺らぎ $1+\text{Im}[\xi/h_0]$ (右側の太い実線), $\text{Im}[\zeta/h_0]$ での熱流 $q_l - q_s$ (左側の点線), $1+\text{Im}[\xi/h_0]$ での熱流 q_a (右側の点線). (a) 不安定領域での波数, (b) 中立安定点での波数, (c) 安定領域での波数. ϕ は $\text{Im}[\zeta/h_0]$ に対する $q_l - q_s$ の位相のずれを表す.

となる. 図5 (a)-(c) の左側の点線は $q_l - q_s$ を, 右側の点線は q_a を表していて, それぞれの界面と熱流の位相のずれを見るために, 便宜上それらを0.1倍に縮小して重ねて描いてある. (8) 式の摂動部分の虚部から, $L\text{Im}[\sigma \exp(\sigma t + ikx)]\zeta_k = q_l - q_s$ が得られる. この式の左辺の一部は,

$$\text{Im}[\sigma \exp(\sigma t + ikx)] = |\sigma| \exp(\sigma_r t) \sin[k(x - v_p t) - \phi], \quad (51)$$

と変形できることに注意する. ここで, $|\sigma| = \sqrt{\sigma_r^2 + \sigma_i^2}$, $\sigma_r = |\sigma| \cos \phi$, $\sigma_i = -|\sigma| \sin \phi$ で, ϕ は固液界面 $\text{Im}[\zeta/h_0]$ と熱流分布 $q_l - q_s$ の位相差を表す. 図5 (a)-(c) は, $\phi < 0$ であることを示している. $v_p = -\sigma_i/k$ であることに注意すると, $\phi < 0$ のとき $\sigma_i > 0$ となり, $v_p < 0$ となる. 一方, σ_r の符号は以下に示すように ϕ の大きさで変化する.

図5 (a) は, (46) 式の $\sigma_r > 0$ となる不安定領域内の波数での分布を示している. 熱流 q_a は, 気液界面の凸部で大きいことを示している. そこでは, 温度勾配が増大し空気中への熱拡散が大きい. ところが, この波数領域では復元力の大きさを表す α の値は小さいので, 気液界面は固液界面とほぼ同振幅で変動し, $\text{Im}[\xi/h_0]$ と $\text{Im}[\zeta/h_0]$ の位相のずれは無視できる. よって, 固液界面の凸部で冷却が速く凝固を促進するかのように見える. この形態不安定性の描像は Mullins-Sekerka 理論と同じである. しかし, 熱流 $q_l - q_s$ の最大値は固液界面に対して ϕ だけ上方にずれているので, 界面の凸部で一番温度勾配が大きいのではなく, 固液界面の凸部のちょうど上方域で温度勾配が大きく成長が他より速いことを示している. 一方, 凸部の下方域では $q_l - q_s$ が非摂動部の熱流 $K_l \bar{G}_l$ より小さいので融解しようとする. この結果, $-\pi/2 < \phi < 0$ の範囲では, 固液界面は不安定になるだけでなく上方へ移動しようとする. これは (47) 式で予測された位相速度の向きとも合致するし, 図1 (b) の観察結果とも合致する. これらのメカニズムは, 単に拡散による不安定機構である Mullins-Sekerka 不安定や小川-古川モデルによるラプラス不安定とは違うことに注意する. 図5 (b) は, (46) 式の $\sigma_r = 0$ となる中立安定点の波数での分布を示している. このとき, $\text{Im}[\zeta/h_0]$ に対する $q_l - q_s$ の位相のずれ ϕ は, ちょうど $-\pi/2$ となる. 図5 (c) は, (46) 式の $\sigma_r < 0$ となる安定領域の波数での分布を示している. この波数領域では α の値が大きいので, $\text{Im}[\xi/h_0]$ と q_a の位相が上方へわずかにだけずれているのがわかる. また, $\text{Im}[\zeta/h_0]$ と $q_l - q_s$ の位相のずれは, $-\pi < \phi < -\pi/2$ となる. このような配置をとると, 固液界面の凸部では $q_l - q_s$ が小さいので融解しようとし, 凹部では $q_l - q_s$ が大きいので成長しようとするので, やがて固液界面の凹凸はなくなって平坦になっていく. この長波長領域における安定性のメカニズムは, GT 効果とは全く違う.

6 まとめ

つららの表面や傾斜面を流れ落ちる過冷却液体からの結晶成長過程で起こる波模様の波長を線形安定性解析より定量的に求めた。固液界面の変形波長に依存して気液界面に作用する重力と表面張力による復元力の大きさが変化するので液膜内の流れ場が変化する。その結果、液膜内の温度揺らぎの場はその流れ場の変化の影響を受ける。固液界面の揺らぎとそこでの熱流分布に位相差が生じ、その位相差が固液界面の形態不安定性、安定性に関係していることを示した。また、固液界面の揺らぎに対する熱流分布の位相のずれの向きが固液界面の揺らぎの移動の方向に関係していることを示した。

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」の援助を受けています。図 1 (a), (b) の写真を提供してくださった前野紀一氏に感謝します。

参考文献

- [1] 前野紀一, 高橋庸哉 “つららの研究 II.” 低温科学, 物理篇, **43**, 139 (1984).
- [2] N. Maeno, L. Makkonen, K. Nishimura, K. Kosugi, and T. Takahashi, “Growth rates of icicles,” *J. Glaciol.* **40**, 319 (1994).
- [3] S. Matusda, “Experimental study on the wavy pattern of icicle’s surface,” Master’s thesis, Institute of Low Temperature Sciences, Hokkaido University (1997).
- [4] <http://www.physics.utoronto.ca/~smorris/edl/icicleripples/icicleripples.html>
- [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] W. Kurz and D. J. Fisher, *FUNDAMENTALS OF SOLIDIFICATION*, (TRANS TECH PUBLICATIONS, 1986).
- [9] S. H. Davis, *Theory of Solidification*, (Cambridge University Press, 2001).
- [10] 戸塚武彦 “つららに出来る縞模様.” 科学, 第 8 巻, 第 6 号, 218 (1938).
- [11] N. Ogawa and Y. Furukawa, “Surface instability of icicles,” *Phys. Rev. E* **66**, 041202 (2002).
- [12] P. Schewe, J. Riordon, and B. Stein. “Icicle Instability,” *Physics News Update* Number 613, November 13, 2002.
- [13] K. Ueno, “Pattern formation in crystal growth under parabolic shear flow,” *Phys. Rev. E* **68**, 021603 (2003).
- [14] K. Ueno, “Pattern formation in crystal growth under parabolic shear flow II,” *Phys. Rev. E* **69**, 051604 (2004).
- [15] L. Landau and E. Lifschitz, *Fluid Mechanics*, (Pergamon Press, 1959).
- [16] T. B. Benjamin, “Wave formation in laminar flow down an inclined plane,” *J. Fluid Mech.* **2**, 554 (1957).
- [17] H. Jeffreys and B. S. Jeffreys, *The Methods of Mathematical Physics*, (Cambridge University Press, 1956).