

KfK 4683
Januar 1990

Bénard-Konvektion in binären Flüssigkeitsmischungen mit Thermodiffusion

G. Zimmermann
Institut für Reaktorbauelemente

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
Institut für Reaktorbauelemente

KfK 4683

**Bénard-Konvektion in binären Flüssigkeitsmischungen mit
Thermodiffusion**

Gerhard Zimmermann

Von der Fakultät für Maschinenbau der Universität Karlsruhe (T.H.)
genehmigte Dissertation.

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

Bénard-Konvektion in binären Flüssigkeitsmischungen mit Thermodiffusion

Zusammenfassung

Bei der Kristallzüchtung können zeitabhängige, konvektive Transportvorgänge in der Schmelze die Eigenschaften des Kristalls maßgeblich beeinträchtigen. So ist es das Ziel dieser Arbeit, den Einfluß einer ebenen, horizontalen Eisschicht auf die Konvektionsinstabilität einer binären Flüssigkeitsmischung zu untersuchen, die von unten beheizt und von oben gekühlt wird. Eine besondere Eigenschaft des untersuchten Fluids ist sein negativer Sorét-Effekt. Darunter versteht man die stabilisierende Wirkung, die ein Konzentrationsgradient ausübt, der von der außen anliegenden Temperaturdifferenz induziert wird.

Die Berechnungen mit Hilfe der linearen Theorie zeigen, daß wegen der um Größenordnungen verschiedenen Zeitskalen für thermische und molekulare Diffusion in der Flüssigkeit, die Konvektion zeitlich periodisch einsetzt. Eine zunehmende Eisschichtdicke destabilisiert das System und führt zu niedrigeren kritischen Rayleigh-Zahlen und höheren Frequenzen.

Die Experimente werden in Äthanol-Wasser-Mischungen durchgeführt. Nach Überschreiten der Stabilitätsgrenze wandert ein intensitätsschwaches Konvektionsrollenmuster mit konstanter Geschwindigkeit durch die Meßzelle. Dieser transient auftretende Zustand von Wanderwellen ("traveling waves") läßt sich im Rahmen der linearen Theorie quantitativ gut beschreiben.

Im Experiment sind weitere, nichtlineare Wanderwellenzustände zu beobachten. Wenn die Nicht-Boussinesqschen Eigenschaften im Fluid vernachlässigbar sind und man die Eisbildung vermeidet, findet man stabile Wanderwellen in einem weiten Rayleigh-Zahl-Bereich. Dabei kommt es zu Hystereseeffekten bei den Übergängen in den Wärmeleitungsgrundzustand und in den Zustand der stationären Konvektion.

Wenn das nichtlineare Verhalten der Flüssigkeitseigenschaften anwächst, schrumpft der Existenzbereich der stabilen Wanderwellen zusammen und verschwindet schließlich. In Gegenwart einer Eisschicht erfolgt sofort ein Übergang in ein stationäres, dreidimensionales Hexagonalmuster.

Bénard-Convection in Binary Liquid Mixtures with Thermal Diffusion

Abstract

In systems with a solid-liquid phase transition, it is important to know the stability behaviour. In this paper, morphological instabilities caused by a moving interface are excluded by quasi-steady changes in state. The aim is to study the influence of a plane, horizontal ice-layer on the convective instability of a binary liquid-mixture, which is heated from below and cooled from above. A special property of this fluid is its negative Sorét effect. This means that a concentration gradient in the liquid induced by the external temperature difference stabilizes the system.

The numerical calculations, which are based on a linear theory, predict time-periodic convection at onset. The reason is the big difference of thermal and molecular diffusion time scales. In case of an ice-layer, the theoretical results show a destabilizing effect with lower critical Rayleigh-numbers and higher frequencies.

The experiments are done in mixtures of ethanol and water. At the onset of convection, we find a pattern of convection rolls of low intensity traveling through the test cell with constant velocity. The critical values of this transient traveling wave state agree very well with the predictions of linear theory.

In the experiments we find nonlinear traveling waves. If we can neglect non-Boussinesq effects in the fluid, and if there is no ice-layer, stable traveling waves exist in a wide range of Rayleigh-numbers. The transitions to the heat conducting state and to the steady convection state are hysteretic.

If nonlinearities in the liquid properties increase, the range of existing stable traveling waves shrinks until they vanish completely. The presence of a solid-liquid interface forces a transition to a steady, three-dimensional, hexagonal, convection pattern.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	
Abstract	
1. Einleitung	1
1.1 Problemstellung	1
1.2 Literaturübersicht	3
2. Theorie	10
2.1 Modellierung des Problems	10
2.2 Grundgleichungen für feste und flüssige Phasen	11
2.3 Randbedingungen	13
2.4 Stationärer Grundzustand	16
2.5 Kennzahlen und dimensionslose Form der Gleichungen	18
2.6 Lineare Stabilitätstheorie	22
2.7 Näherungslösung	25
3. Numerische Lösung	28
3.1 Numerisches Lösungsverfahren	28
3.2 Vergleich mit der Literatur	29
3.3 Numerische Ergebnisse	30
3.3.1 Stabilitätsdiagramm, Kodimension-Zwei-Verzweigung	30
3.3.2 Abhängigkeit von der Anfangskonzentration	32
3.3.3 Abhängigkeit von der Eisdicke	34
3.3.4 Abhängigkeit von der Schmelzwärme	36
4. Experimente	38
4.1 Auswahl der Flüssigkeitsmischung	38
4.2 Versuchsaufbau und Durchführung der Experimente	40
4.2.1 Experimenteller Aufbau	40
4.2.2 Meßtechnik und Fehlerabschätzung	42
4.2.3 Klassifizierung der Wellenzustände	45
4.3 Meßergebnisse in Flüssigkeitsmischungen ohne Eisschicht	47
4.3.1 Überblick über die beobachteten Phänomene	47
4.3.2 Lineare, amplitudenmodulierte Wanderwellenzustände, MTW	47
4.3.3 Transiente Wanderwellenzustände (TW) und Störfronten ..	53
4.3.4 Nichtlineare, stabile Wanderwellenzustände (TW)	56
4.3.5 Stationäre Konvektionszustände	66
4.4 Diskussion der Meßergebnisse ohne Eis	67
4.4.1 Entstehungsmechanismus der Wanderwellen	67
4.4.2 Lineare, amplitudenmodulierte Wanderwellenzustände (MTW)	69
4.4.2.1 Entstehungsmechanismus	69
4.4.2.2 Vergleich mit der Theorie	71

4.4.3	Transiente Wanderwellen und Störfrent	72
4.4.4	Nichtlineare, stabile Wanderwellen (TW)	74
4.4.5	Verzweigungsdiagramm	80
4.4.6	Stationäre Konvektionszustände	81
4.5	Meßergebnisse in Flüssigkeitsmischungen unter der Wirkung dünner Eisschichten	82
4.5.1	Lineare, amplitudenmodulierte Wanderwellen- zustände (MTW)	82
4.5.2	Stationäre Konvektionszustände	85
4.6	Diskussion der Meßergebnisse mit Eisschicht	88
4.6.1	Lineare, amplitudenmodulierte Wanderwellen- zustände (MTW)	88
4.6.2	Stationäre Konvektionszustände	91
5.	Zusammenfassung	92
6.	Literaturverzeichnis	95
7.	Anhang	107
7.1	Stoffdaten	107
7.1.1	Stoffdaten für Äthanol-Wasser-Mischungen	107
7.1.2	Kennzahlen für Äthanol-Wasser-Mischungen	107
7.1.3	Temperatur- bzw. konzentrationsabhängige Stoffdaten für die feste und flüssige Phase	108
7.1.4	Schmelzdiagramm	109
7.1.5	Weitere Stoffparameter	109
7.2	Anschlußrechnung an Literatur für $S \rightarrow S^*$	110
7.3	Einfluß der Zellberandungen auf das Temperaturprofil im Wärmeleitungs Zustand	110
7.3.1	Optimierung der Seitenfenster	111
7.3.2	Optimierung der Randtemperaturvorgabe	111
7.4	Auswahl der Äthanolkonzentration	113
	Verzeichnis der Formelzeichen	115

1. Einleitung

1.1 Problemstellung

Energie- und Massetransport in einer Flüssigkeit werden entscheidend von Strömungsvorgängen bestimmt. Der Konvektionszustand wird dabei durch die Eigenschaften der Flüssigkeit sowie durch die äußeren Randbedingungen bestimmt. Erfolgt zusätzlich ein Übergang aus der flüssigen in die feste Phase und umgekehrt, so beeinflussen sich die Strömungsstruktur und die Form der Phasentrennfläche gegenseitig.

Ein typisches Beispiel hierfür ist die Zucht von Kristallen aus einer Schmelze. So kann ein zu schnelles Ausfrieren zu lokaler Unterkühlung vor der Grenzfläche und zur Dendritenbildung führen. Besteht die flüssige Phase aus zwei Komponenten, sind morphologische Instabilitäten der Phasentrennfläche möglich, hervorgerufen durch die Kopplung von Temperatur- und Konzentrationsfeld in der Flüssigkeit. Zusätzlich beeinflussen Konvektionsinstabilitäten im Fluid die Form der Grenzfläche.

Zur Eingrenzung des Problemkreises werden in dieser Arbeit nur quasistationäre Zustandsänderungen betrachtet. Damit werden morphologische Instabilitäten der Grenzfläche ausgeschlossen. Krümmungseffekte der Grenzfläche und eine Unterkühlung der Flüssigkeit werden daher vernachlässigt.

In die Betrachtungen wird die Thermodiffusion oder der sogenannte Sorét-Effekt (Sorét (1879)) einbezogen, die besonders in binären Mischungen von ^3He und ^4He , Alkohol und Wasser sowie Salzlösungen auftritt. Man versteht darunter den Aufbau eines Konzentrationsprofils in einer Flüssigkeitsmischung durch einen von außen angelegten Temperaturgradienten. Betrachtet man eine ebene horizontale Flüssigkeitsschicht, die von unten geheizt und von oben gekühlt wird (Bénard-Problem), so beeinflußt der Sorét-Effekt die Stabilität des Wärmeleitungsgrundzustandes. Je nach Vorzeichen kann der induzierte Konzentrationsgradient das destabilisierende Dichteprofil abbauen oder weiter verstärken. Flüssigkeitsmischungen wie die oben erwähnten, besitzen in bestimmten Mischungsverhältnissen und Temperaturbereichen einen negativen Sorét-Koeffizienten. Dies bedeutet, daß der durch den äußeren Temperaturgradienten induzierte Konzentrationsgradient versucht, das System zu stabilisieren. Allerdings sind die Zeitskalen für thermische und molekulare Diffusionsvorgänge in realen Flüssigkeiten um mehrere Größenordnungen verschieden. Als Folge

davon ist beim Übergang des Wärmeleitungs Zustandes in den Konvektionszustand ein zeitabhängiges Strömungsverhalten möglich.

Die physikalische Ursache des Sorét-Effektes ist weitgehend ungeklärt. In neueren Arbeiten wird der Effekt mittels Gleichgewichts-Moleküldynamik simuliert (Vogelsang et al. (1987, 1988)). Man findet, daß der Sorét-Koeffizient dann besonders große negative Werte annimmt, wenn die beiden Mischungskomponenten deutliche Unterschiede in ihren Molekülmassen und den jeweiligen Bindungsenergien aufweisen. Der Sorét-Effekt ist jedoch nahezu unabhängig von der Wechselwirkung zwischen den beiden Molekülsorten, die entscheidend für die Viskosität und Wärmeleitfähigkeit der Mischung ist. Deshalb besitzen Lösungen von Salzen und Alkoholen in Wasser, das durch die Bildung von Wasserstoffbrückenbindungen große Bindungsenergie besitzt, stark negative Sorét-Koeffizienten.

Das zeitabhängige Einsetzen der Konvektion, bedingt durch negative Sorét-Koeffizienten, ist in den letzten Jahren Gegenstand der Untersuchungen vieler Forschergruppen (vgl. Kap. 1.2). In experimentellen und theoretischen Arbeiten findet man eine Vielzahl von möglichen, zeitabhängigen Konvektionsstrukturen. Sie reichen von linearen Wanderwellen über transiente, räumlich begrenzte, amplitudenmodulierte Wanderwellen bis hin zu nichtlinearen, stabilen Wanderwellen. Das Auftreten der einzelnen Zustände ist dabei abhängig von der verwendeten Flüssigkeitsmischung und den Randbedingungen, die experimentell vorgegeben bzw. theoretisch gefordert werden.

Der experimentelle Teil dieser Arbeit beschränkt sich auf die Untersuchung der Konvektionsströmung in zwei Äthanol-Wasser-Mischungen bei verschiedenen Temperaturen. Dabei wird auch die Wirkung eines "fest-flüssig" Phasenüberganges auf die Konvektion studiert.

Das generelle Ziel dieser Arbeit ist es, das dynamische Verhalten der Bénard-Konvektion in einer Flüssigkeitsmischung mit negativen Sorét-Koeffizienten und unter der Wirkung einer horizontalen Eisschicht zu untersuchen. Die Arbeit ist wie folgt gegliedert: Nach der Literaturübersicht in Abschnitt 1.2 wird in Kapitel 2 eine lineare Theorie zur Beschreibung des Grenzflächeneinflusses auf zeitabhängige Konvektionsvorgänge entwickelt. Die numerische Lösung erfolgt in Kapitel 3. Das Kapitel 4 beschäftigt sich ausführlich mit den experimentellen Ergeb-

nissen und stellt Vergleiche mit der Theorie und der Literatur her. Eine kurze Zusammenfassung der Ergebnisse folgt in Kapitel 5.

1.2 Literaturübersicht

Um Konvektionsstrukturen unter Gefrierflächen zu studieren, bietet sich als Modell eine ebene, horizontale Schicht an, über der ein Temperaturgradient anliegt. Den Einfluß der Bénard-Konvektion in einer einkomponentigen Flüssigkeit auf eine Gefrierfläche untersuchen Dietsche (1984), Davis et al. (1984), Dietsche, Müller (1985) und Grauer, Haken (1988). Es zeigt sich theoretisch und im Experiment, daß der Wärmeleitungszustand nach Überschreiten der kritischen Temperaturdifferenz in einen Konvektionszustand mit Hexagonalzellen übergeht. Dieser wird wegen der deformierbaren, nicht perfekt wärmeleitenden oberen Berandung gegenüber der Rollenlösung bevorzugt.

Die Literatur zur Konvektionsinstabilität in einer binären Mischung mit negativem Sorét-Effekt ohne Phasenübergang ist vielfältig. Es folgt deshalb eine Zusammenstellung der wichtigsten Veröffentlichungen, gegliedert in grundlegende, experimentelle und theoretische Arbeiten.

Der Sorét-Effekt ist nach Charles Sorét benannt, der bei der Untersuchung von Salzlösungen (Sorét (1897)) den Einfluß der Thermodiffusion berücksichtigt. Es handelt sich dabei um eine Erweiterung des Diffusionsgesetzes, die die Auswirkung eines zusätzlichen Temperaturgradienten beschreibt (vgl. Kap. 2.2). Eine thermodynamische Formulierung der Sorét-Effektes findet sich in den klassischen Arbeiten von DeGroot (1945) und DeGroot, Mazur (1969).

Die Forschungsarbeiten bis 1970 beschränken sich darauf, den Soret-Koeffizienten als Maß für die Stärke der Kopplung von Temperatur- und Konzentrationsgradienten für verschiedene Flüssigkeitsmischungen zu bestimmen. Erst Caldwell (1970, 1973, 1974) erkennt die Auswirkungen eines negativen Sorét-Koeffizienten auf die Konvektion. In Meereswasser findet er eine Stabilisierung des Wärmeleitungszustandes durch die Thermodiffusion. Lokale Temperaturmessungen in der Flüssigkeitsschicht zeigen bei Überschreiten der Stabilitätsgrenze zuerst instabile, zeitlich periodische Schwankungen geringer Amplitude. Anschließend wächst die Amplitude an und die Periodendauer nimmt zu. Als stabiler Endzustand stellen sich Temperaturschwankungen mit endlicher Amplitude und konstanter Periodendauer ein. Das gleiche Verhalten beim Einsetzen der Konvektion

findet Caldwell auch in LiJ-Lösungen, in denen der Einfluß der Thermodiffusion noch größer ist (Caldwell (1975, 1976)). Hurle, Jakeman (1971) und Platten, Chavepeyer (1972a) untersuchen das System Alkohol-Wasser. Aufgrund der zu geringen Auflösung ihrer Meßapparatur finden sie keine transienten Temperaturschwankungen, sondern nur stabile Oszillationen mit konstanter Periodendauer.

Alkohol-Wasser-Mischungen haben sich als besonders geeignet erwiesen, um periodische Strömungsvorgänge zu studieren. Bei allen im nächsten Abschnitt aufgeführten Arbeiten werden Meßzellen verwendet, deren unterer Rand verspiegelt und deren oberer Rand durchsichtig ist. Beleuchtet man das Meßvolumen von oben, liefert das Streulicht ein Abbild von der räumlichen Konvektionsstruktur. Außerdem wird die Intensität des Streulichtes entlang einer Linie zu verschiedenen Zeiten detektiert. Damit lassen sich Bewegungen des Konvektionsmusters bestimmen. Aus den Experimenten lassen sich folgende generellen Aussagen treffen:

- Unmittelbar nach dem Einsetzen der Konvektion erfolgt eine relativ schnelle Bewegung des noch sehr schwachen, linearen Konvektionsmusters in horizontaler Richtung.
- Dieser schwache Wanderwellenzustand ("traveling waves", TW) ist instabil. Die Konvektionsintensität nimmt kontinuierlich zu und die Wandergeschwindigkeit nimmt ab.
- Als stabiler Endzustand stellt sich ein nichtlinearer Wanderwellenzustand mit konstanter Wandergeschwindigkeit ein.
- Dieser stabile, periodische Konvektionszustand verlangsamt seine Wandergeschwindigkeit bei weiterer Erhöhung der treibenden Temperaturdifferenz, bis das Konvektionsmuster schließlich zum Stillstand kommt. Es erfolgt ein Übergang in den Zustand stationärer Konvektion.

Die folgenden Arbeiten beschäftigen sich vor allem mit dem Einsetzen der Konvektion und den dabei auftretenden intensitätsschwachen, transienten Konvektionszuständen: Steinberg et al. (1987) und Moses et al. (1987) vermuten den Auslöser der TW in Fehlstellen in der Zelle. Sie finden dabei auch Wanderwellen, die auf Teilbereiche der Meßzelle beschränkt sind. Räumlich begrenzte TW mit Amplitudenmodulation beobachten auch Heinrichs et al. (1987) und Ahlers et al. (1987). In einem Kreisring, der einem eindimensionalen System mit periodischen Randbedingungen entspricht, detektieren Kolodner et al. (1988b)

und Bensimon et al. (preprint) gleichzeitig mehrere transiente Wanderwellenzustände. In verschiedenen Abschnitten des Kreisrings entstehen transiente TW mit unterschiedlichen Wanderrichtungen und Geschwindigkeiten. Kolodner, Surko (1988) und Fineberg et al. (1988a) finden in Rechteckzellen weitere, transiente TW, deren Amplitude räumlich und zeitlich moduliert ist ("blinking state"). Für kurze Zeitabschnitte läßt sich dieses Verhalten durch Überlagerung von zwei gegeneinander laufenden, linearen TW mit gleichen (Kolodner (1989)) bzw. unterschiedlichen Frequenzen und Wellenzahlen (Fineberg et al. (1989)) erklären. Für das Langzeitverhalten scheinen jedoch nichtlineare Effekte wichtig zu sein. Die Frage, ob die Wanderbewegung des Konvektionsmusters mit einem Massentransport verbunden ist, versuchen Moses, Steinberg (1988) zu klären. Bei der Beobachtung von fluoreszierenden Farbstoffpartikeln in der Flüssigkeitsmischung ist kein Stofftransport feststellbar. Kolodner et al. (1986, 1987a) und Surko, Kolodner (1987) beobachten ein exponentielles Anwachsen der Amplituden des transienten TW-Zustandes. Damit verbunden ist meist eine räumliche Umbildung des Strömungsmusters.

Die stabilen, nichtlinearen TW-Zustände sind in der Regel gekennzeichnet durch eine Bewegung des intensiven Konvektionsmusters senkrecht zur Rollachse mit konstanter Geschwindigkeit (Moses, Steinberg (1986), Steinberg, Moses (1987)). Die TW sind auch bei weiterer Erhöhung der Temperaturdifferenz stabil. Dabei nimmt jedoch ihre Wandergeschwindigkeit kontinuierlich ab, bis das Muster schließlich zum Stehen kommt. Der Übergang in diesen Zustand der stationären Konvektion zeigt eine Hysterese.

Kolodner et al. (1988b) und Bensimon et al. (preprint) finden in ihrem gesamten Kreisring TW, die mit konstanter Geschwindigkeit in einer Richtung wandern. In Rechteckzellen mit großer Erstreckung in Längsrichtung beobachten auch Heinrichs et al. (1987) und Ahlers et al. (1987) einen regelmäßigen TW-Zustand. Hier entsteht an einer Seite kontinuierlich eine neue Konvektionsrolle, während an der gegenüberliegenden Seite eine Rolle verschwindet. In Rechteckzellen mit einem Längen- zu Tiefenverhältnis von etwa 2 erfolgt eine Verwindung der Rollen in der Zelltiefe. Walden et al. (1985) und Surko et al. (1986) finden Konvektionsrollen, die in einer Richtung ("transition") oder gegeneinander ("zipper") wandern, oder aber räumlich völlig ungeordnete Zustände ("chaos"). In langen Meßzellen beobachten Kolodner et al. (1988a) bei einem bestimmten Längen- zu Höhenverhältnis TW mit Amplitudenmodulation. Dies ist darauf zurückzuführen, daß gleichzeitig zwei Zustände angeregt werden, die sich in der Anzahl der

Rollenpaare um eins unterscheiden. Fineberg et al. (1988b) variieren die Wärmeleitfähigkeit der seitlichen Zellberandungen. Sie finden dabei keinen Einfluß auf die Wandergeschwindigkeit der Rollen und den Wärmetransport durch die Schicht. Lediglich der Existenzbereich der stabilen TW ist abhängig von den Randeigenschaften. Anders als im Fall der schwachen, linearen Wanderwellen beobachten Moses, Steinberg (1988) einen Massentransport bei den intensiven, stabilen Wanderwellen. Stofftransport findet dabei sowohl in Richtung der Wanderbewegung statt, als auch aus Kontinuitätsgründen entgegengesetzt dazu. Im Experiment wird dies anhand der Bewegung von fluoreszierenden Farbstoffpartikeln sichtbar. Kolodner et al. (1987b) untersuchen die Überlagerung von zwei gegenläufigen, pulsformigen Wanderwellen. Beide Wellen laufen ohne erkennbare Verzerrung oder Phasenverschiebung durcheinander hindurch. Durch geeignete Modulation der äußeren Temperaturdifferenz in Betrag und Frequenz ist es möglich, stehende Wellen zu erzielen (Rehberg et al. (1988)). Dieser Zustand ist charakterisiert durch ein räumlich stehendes Konvektionsmuster, bei dem sich die Strömungsrichtung in jeder Konvektionsrolle periodisch umkehrt.

Neben der globalen Erfassung der Wanderbewegung durch das Auswerten des Streulichtes gibt es auch Messungen der lokalen Geschwindigkeit mit Hilfe eines hochauflösenden Laser-Doppler-Anemometers. Platten et al. (1986), Lhost et al. (1987) und Lhost, Platten (1988, 1989) detektieren damit horizontale Wandergeschwindigkeiten bis zu $1 \mu\text{m/s}$.

Der Vollständigkeit halber sei noch auf Messungen in ^3He - ^4He -Mischungen hingewiesen. Dieses System weist bei bestimmten Temperaturen ebenfalls eine negative Thermodiffusion auf. So schließen Ahlers, Rehberg (1986) und Rehberg, Ahlers (1985, 1986) aus Messungen des Wärmestromes durch die Fluidschicht auf einen periodischen Konvektionszustand. Mit Erhöhung der reibenden Temperaturdifferenz wird die Periodendauer länger, bis sich ein stationärer Zustand einstellt. Sullivan, Ahlers (1988a,b) beobachten neben diesen periodischen auch nichtperiodische Schwankungen. In einer Zylindergeometrie können Gao, Behringer (1986, 1987) dagegen keine Oszillationen nachweisen.

Der Einfluß der Thermodiffusion auf den Übergang des Wärmeleitungszustandes in den Konvektionszustand wird in einigen grundlegenden Arbeiten theoretisch untersucht. Man findet dabei ein Stabilitätsdiagramm, das in Abb. 1.1 qualitativ gezeigt ist.

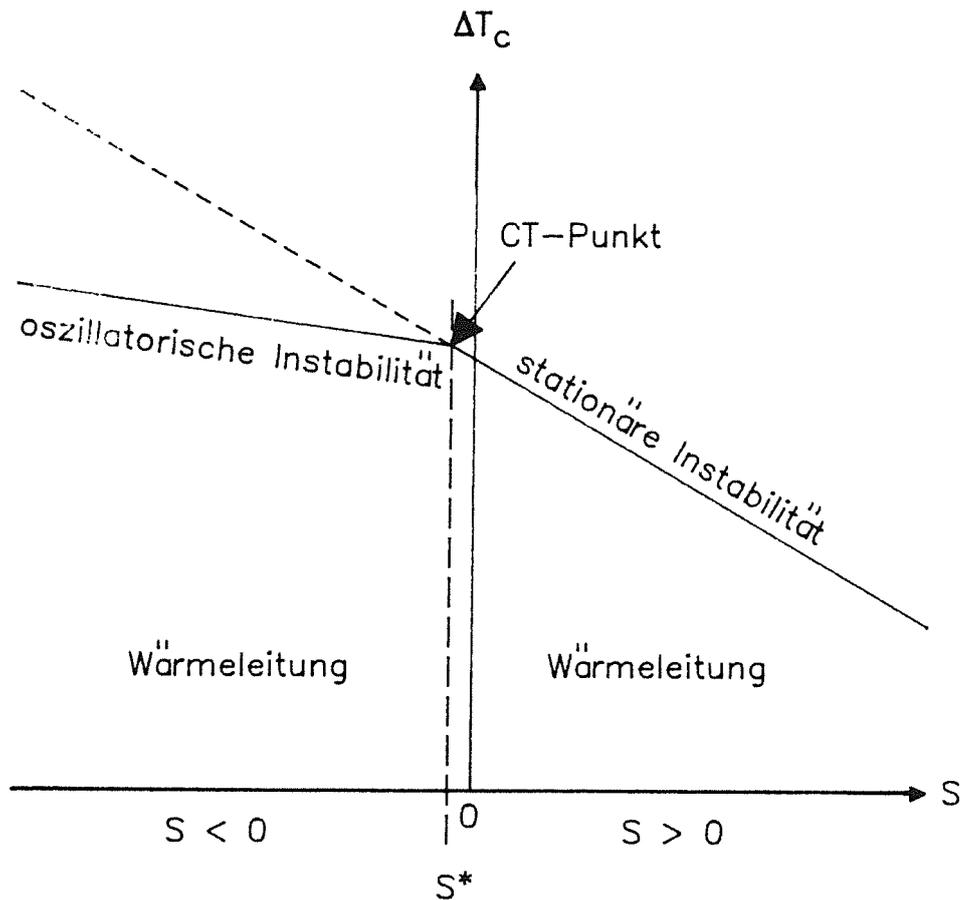


Abb. 1.1: Stabilitätsdiagramm

Der Sorét-Koeffizient S ist ein Maß für die Stärke der Thermodiffusion. Es zeigt sich, daß der Wärmeleitungszustand bei Erhöhung der Temperaturdifferenz ΔT für $S > S^*$ in einen Zustand stationärer Konvektion übergeht, für $S < S^*$ jedoch oszillatorische Konvektion auftritt. Der Schnittpunkt S^* der beiden Lösungsäste wird als Kodimension-Zwei-Verzweigungspunkt ("codimension-two-point", CT-Punkt) bezeichnet.

Hurle, Jakeman (1971), Velarde, Schechter (1971) und Schechter et al. (1972) finden dieses Verhalten mit Hilfe der linearen Störungstheorie an vereinfachten Gleichungen. Platten (1971), Legros et al. (1972) und Platten, Chavepeyer (1972b) verwenden ein Variationsverfahren, um eine Näherungslösung für verdünnte Lösungen zu finden. Zusätzlich bestimmen sie die Lage des Kodimension-Zwei-Punktes in Abhängigkeit von den wichtigsten Eigenschaften der Flüssigkeitsmischung. Chock, Li (1975) führen die lineare Störungsrechnung an den exakten Gleichungen durch und lösen das Problem numerisch.

Die theoretischen Arbeiten der letzten Jahre versuchen die verschiedenen, in den Experimenten gefundenen Wanderwellenzustände zu beschreiben. Generell findet man wieder stationäre und periodische Lösungen, die als stehende Wellen (SW), Wanderwellen (TW) oder modulierte Wanderwellen ("modulated traveling waves", MTW) interpretiert werden können. Cross (1986a) und Ahlers, Lücke (1987) geben durchlässige, horizontale Berandungen vor, die im Experiment nicht realisiert werden können. Bei Linz, Lücke (1987, 1988), Lücke (1988), und Linz et al. (1988) werden die Ränder als undurchlässig für den Massenstrom angenommen. Alle diese Autoren verwenden einen 8-Moden-Galerkin-Ansatz. Sie leiten damit ein verallgemeinertes Lorenzsystem aus den allgemeinen Gleichungen her. Diese Erweiterung des 5-Moden-Grundmodells von Veronis (1965) liefert nicht nur SW, sondern auch TW und MTW als Lösungen. Auch Schöpf, Zimmermann (1989) finden bei der numerischen Berechnung der nichtlinearen Koeffizienten einer Amplitudengleichung SW und TW als Lösung. Knobloch, Moore (1988) betrachten sowohl konstante Temperatur- als auch Wärmestromvorgabe an der oberen Berandung. Mit Hilfe der linearen Stabilitätstheorie erhalten sie Konvektionsrollen, die im TW-Zustand eine leicht unsymmetrische, räumliche Struktur aufweisen.

Brand et al. (1986) und Brand, Steinberg (1984) lösen eine nichtlineare, zeitabhängige Amplitudengleichung und finden eine Benjamin-Feir-Instabilität (Benjamin, Feir (1967)) direkt beim Einsetzen der Konvektion. Es handelt sich dabei um ein unterschiedliches Zeitverhalten der Strömung in verschiedenen räumlichen Gebieten. Damit lassen sich räumlich lokalisierte TW-Zustände beschreiben.

Das Verhalten der periodischen und stationären Lösung in der Nähe von S^* ist Ziel der Arbeiten von Brand et al. (1984), Zielinska, Brand (1987), Linz, Lücke (1987) und Cross, Kim (1988a,b). Sucht man nach der minimalen, kritischen Rayleigh-Zahl für das Einsetzen der Konvektion, so ergeben sich für die stationäre und periodische Lösung leicht unterschiedliche Wellenzahlen. Bei der Annäherung an S^* zeigt die Wellenzahl der oszillatorischen Lösung einen signifikanten Abfall mit einem anschließenden Sprung auf den Wert der stationären Lösung (vgl. Kap. 7.2).

Dem Einfluß einer endlichen Zellgeometrie auf den TW-Zustand untersuchen Deane et al. (1988) sowie Cross (1986b, 1988). Sie finden nahezu stehende Wellen in den Endbereichen der Zelle. In einer eindimensionalen Geometrie

führt Cross dies auf die Reflektion der TW an den Zellenden und der damit verbundenen Überlagerung der entgegengesetzt laufenden TW zurück.

Die numerische Lösung von gekoppelten Amplitudengleichungen erlaubt auch Wellen mit Fehlstellen. Cross (1988), Couillet et al. (1987a,b,c; 1988, 1989) und Gil, Lega (1988) finden solche "Defekt"-Lösungen. Es handelt sich dabei um das Auftreten von Unregelmäßigkeiten in der räumlichen Konvektionsstruktur, die Quellen oder Senken von TW oder Versetzungen von TW oder SW entsprechen.

2. Theorie

Die Stabilität des Wärmeleitungszustandes einer binären Flüssigkeitsmischung unter einer Eisschicht ist von vielen Systemparametern abhängig. Neben den thermischen und kinematischen Eigenschaften der Mischung spielen auch die Zusammensetzung der Mischung und die Dicke der Eisschicht eine entscheidende Rolle. In dieser Arbeit wird zusätzlich der Einfluß des Sorét-Effektes, d.h. die Kopplung der Konzentration in der Flüssigkeitsschicht an den äußeren Temperaturgradienten, auf das Stabilitätsverhalten untersucht. Der genannte Effekt ist auch unter dem Begriff Thermodiffusion bekannt.

2.1 Modellierung des Problems

Das theoretisch betrachtete Gebiet ist eine unendlich ausgedehnte, horizontale Schicht. Sie ist begrenzt von zwei parallelen, festen Platten im Abstand h . Die untere Platte befindet sich an der Position $z = 0$ und besitzt die Temperatur T_U ; die obere Platte mit Temperatur T_O befindet sich bei $z = h$. Da $T_U > T_O$ gilt, handelt es sich um ein Bénard-Problem. Damit gibt es einen festen, kritischen Wert für die Temperaturdifferenz $\Delta T = T_U - T_O$, bei der der Wärmeleitungszustand instabil wird und Konvektion in der Flüssigkeitsschicht einsetzt.

Reduziert man die Temperatur des oberen Randes unter die Schmelztemperatur des Fluids T_S , beginnt dieses auszufrieren. Für den Fall $T_U > T_S > T_O$ liegt dann im oberen Teil der Schicht feste Phase, im unteren Teil weiterhin flüssige Phase vor. Die Phasengrenzfläche befindet sich im Wärmeleitungsfall bei der konstanten Höhe $z = h_L$, im Konvektionszustand an der x,y -abhängigen Position $z = \eta(x,y)$, die aufgrund der Deformation der Phasengrenzfläche durch die Strömung in der Flüssigkeit entsteht. Wärmeleitungs- und Konvektionszustand in der (x,y) -Ebene sind in Abb. 2.1 schematisch dargestellt. Durch Variation der Randtemperaturen T_U und T_O kann bei gegebener Schmelztemperatur T_S die Eisdicke beliebig eingestellt werden.

Die Eigenschaften der flüssigen Phase sind charakterisiert durch Stoffparameter bei der mittleren Temperatur $\bar{T} = 1/2 (T_U - T_S)$ und der Anfangskonzentration der Mischung C_0 . Dies sind Dichte ρ_0 , spezifische Wärme c_p , Wärmeleitfähigkeit λ , Temperaturleitfähigkeit κ , kinematische Viskosität ν und Expansionskoeffizienten aufgrund von Temperatur- und Konzentrationsänderungen α und α' . Für

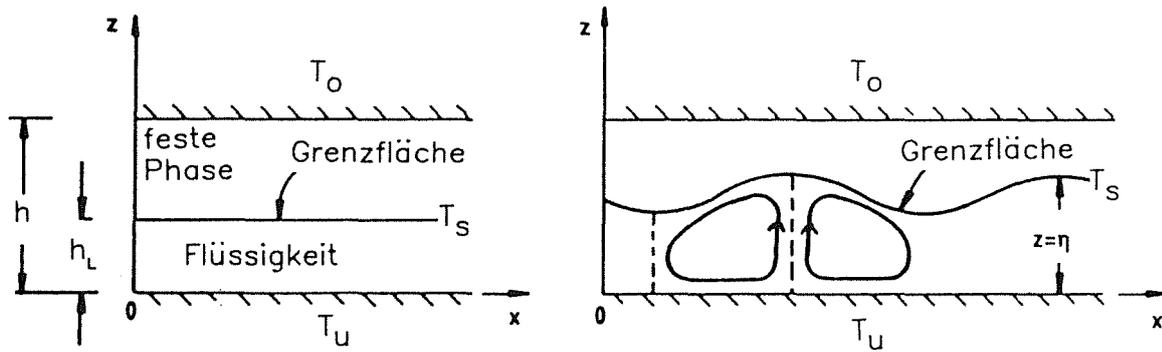


Abb. 2.1: Prinzipielle Darstellung der teilweise verfestigten Flüssigkeitsschicht bei reiner Wärmeleitung und Konvektion.

die Mischung sind noch molekulare Diffusionskonstante D_m und thermische Diffusionskonstante und der Sorét-Koeffizient S_0 relevant.

Die Konzentrationen der beiden Flüssigkeitskomponenten sind in Gewichtsanteilen ("mass fraction") angegeben und auf eins normiert ($C_1 + C_2 = 1$). Zur Vereinfachung der theoretischen Untersuchung wird angenommen, daß die Komponente 1 im Überschuß vorliegt ($C_1 \geq 1$) und für Komponente 2 gilt $C_2 \ll 1$. Weiterhin wird vorausgesetzt, daß nur die Komponente 1 ausfriert ($C_2^{(s)} \equiv 0$), während Komponente 2 vollständig in Lösung bleibt.

Im folgenden sind Größen wie Konzentration C und Massenstrom j jeweils auf die Komponente 2 bezogen. Der Index 2 wird deshalb weggelassen.

2.2 Grundgleichungen für feste und flüssige Phasen

In der festen Phase soll der Energietransport nur durch Wärmeleitung stattfinden. Dann ergibt sich für die Temperatur $T^{(s)}$ in der festen Phase

$$\frac{\partial T^{(s)}}{\partial t} = \kappa^{(s)} \nabla^2 T^{(s)} \quad (2.1)$$

Der Index (s) bezeichnet jeweils die Größen in der festen Phase, $\partial/\partial t$ bedeutet die partielle Ableitung der Größe nach der Zeit t und ∇^2 den Laplace-Operator.

Die flüssige Phase wird durch die Bilanzgleichungen für Masse, Impuls, Energie und Massenstrom beschrieben. Für das Fluid soll die Boussinesq-Approximation gelten, d.h. außer im Auftriebsterm der Impulsgleichungen wird das Medium als

inkompressibel mit konstanter mittlerer Dichte ρ_0 angesehen. Es gelte die Zustandsgleichung

$$\rho = \rho_0 (1 - \alpha (T - T_S) - \alpha' (C - C_S)) , \quad (2.2)$$

die eine lineare Abhängigkeit der Dichte von der Temperatur T und der Konzentration C darstellt. Dies ist der typische Ansatz für doppeldiffusive Systeme. Als Referenztemperatur wird die Schmelztemperatur der Mischung T_S gewählt. Für die Referenzkonzentration der Komponente 2 im Eis gilt nach Voraussetzung $C(S) \equiv 0$ und damit auch an der Grenzfläche $C_S \equiv 0$. α und α' bezeichnen die Expansionskoeffizienten bei Temperatur- bzw. Konzentrationsänderungen:

$$\alpha = - \frac{1}{\rho_0} \left. \frac{\partial \rho}{\partial T} \right|_{C=C_0} , \quad \alpha' = - \frac{1}{\rho_0} \left. \frac{\partial \rho}{\partial C} \right|_{T=\bar{T}} . \quad (2.3)$$

Die Erhaltung der Masse wird durch die Gleichung

$$\operatorname{div} \mathbf{v} = 0 \quad (2.4a)$$

beschrieben. Dabei bedeutet \mathbf{v} die Geschwindigkeit der Flüssigkeit. Die Navier-Stokes-Gleichungen für die Impulsbilanz lauten:

$$\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + (\mathbf{v} \nabla) \mathbf{v} = - \frac{1}{\rho_0} \nabla p + \nu \nabla^2 \mathbf{v} + \left[\alpha (T - T_S) + \alpha' C \right] \mathbf{g} . \quad (2.4b)$$

Dabei ist p der Druck und \mathbf{g} die in negativer z -Richtung zeigende Erdbeschleunigung.

Bei der Bilanzgleichung für die Energie wird im Gegensatz zur festen Phase der konvektive Wärmetransport mit berücksichtigt. Es ergibt sich

$$\frac{\partial T}{\partial t} + (\mathbf{v} \nabla) T = \kappa \nabla^2 T . \quad (2.4c)$$

Da eine Kopplung der Temperatur an den Konzentrationsgradienten (Dufour-Effekt) in Flüssigkeiten gegenüber dem Sorét-Effekt vernachlässigbar ist (Platten, Legros (1984)), beschreibt diese Gleichung den Energietransport ausreichend gut.

In einer Flüssigkeitsmischung ist zusätzlich noch eine Erhaltungsgleichung für den Massenstrom notwendig. In Analogie zum Wärmetransport ergibt sich

$$\frac{\partial C}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) C = -\nabla \cdot \mathbf{j} \quad (2.4d)$$

Der Massenstrom \mathbf{j} ist ebenfalls auf die Komponente 2 bezogen und hat die Form

$$\mathbf{j} = -D_m \left[\nabla C - S_o C(1-C) \nabla T \right] \quad (2.5)$$

Der erste Term berücksichtigt die gewöhnliche molekulare Diffusion gemäß dem 1. Fickschen Gesetz. Im zweiten Term kommt die Kopplung des Konzentrationsgradienten an den äußeren Temperaturgradienten zum Ausdruck. Ein Maß dafür ist der Sorét-Koeffizient S_o , der eine Stoffgröße für jede Flüssigkeitsmischung darstellt. Das Vorzeichen von S_o wird in Anlehnung an die Literatur (z.B. Legros, Platten (1977)) über das Stabilisierungsverhalten des Sorét-Effektes festgelegt. So bedeutet $S_o > 0$ eine Verschiebung der dichteren Komponente zur kälteren Berandung hin. Im Bénard-Problem führt dies zu einer Destabilisierung des Systems. Umgekehrt bleiben Mischungen mit $S_o < 0$ im Vergleich zu reinen Flüssigkeiten länger stabil, da die dichtere Komponente verstärkt zur wärmeren Wand nach unten transportiert wird.

2.3 Randbedingungen

An der oberen Berandung bei $z = h$ wird die Temperatur vorgegeben. Dort gilt

$$T^{(S)} = T_o \quad (2.6)$$

Am unteren festen Rand wird die Temperatur T_u aufgeprägt.

$$T = T_u \quad (2.7a)$$

Es gilt ferner:

$$\mathbf{v} = \mathbf{0} \quad (2.7b)$$

$$\mathbf{j} \cdot \mathbf{e} = 0 \quad (2.7c)$$

mit $\mathbf{e} = (0,0,1)$.

Die Gl. (2.7b) gewährleistet die Haftbedingung für das Fluid am Rand. Das Verschwinden des Massenflusses senkrecht zur Berandung in Gl. (2.7c) stellt die Undurchlässigkeit des Randes sicher.

An der deformierbaren Phasentrennfläche zwischen fester und flüssiger Phase bei $z = \eta$ gelten folgende Randbedingungen: Vernachlässigt man Nichtgleichgewichtseffekte wie etwa Unterkühlung (Gibbs-Thompson-Effekt) an der Grenzfläche, so ist der Temperaturverlauf stetig:

$$T = T_S ; \quad T^{(S)} = T_S \quad (2.8)$$

Die Schmelztemperatur T_S der Mischung ist abhängig von der Konzentration des Fluids an der Grenzfläche. Im thermodynamischen Gleichgewicht wird der Zusammenhang durch ein Phasendiagramm beschrieben (vgl. Rosenberger (1979)), wie es in Abb. 2.2 qualitativ gezeigt ist:

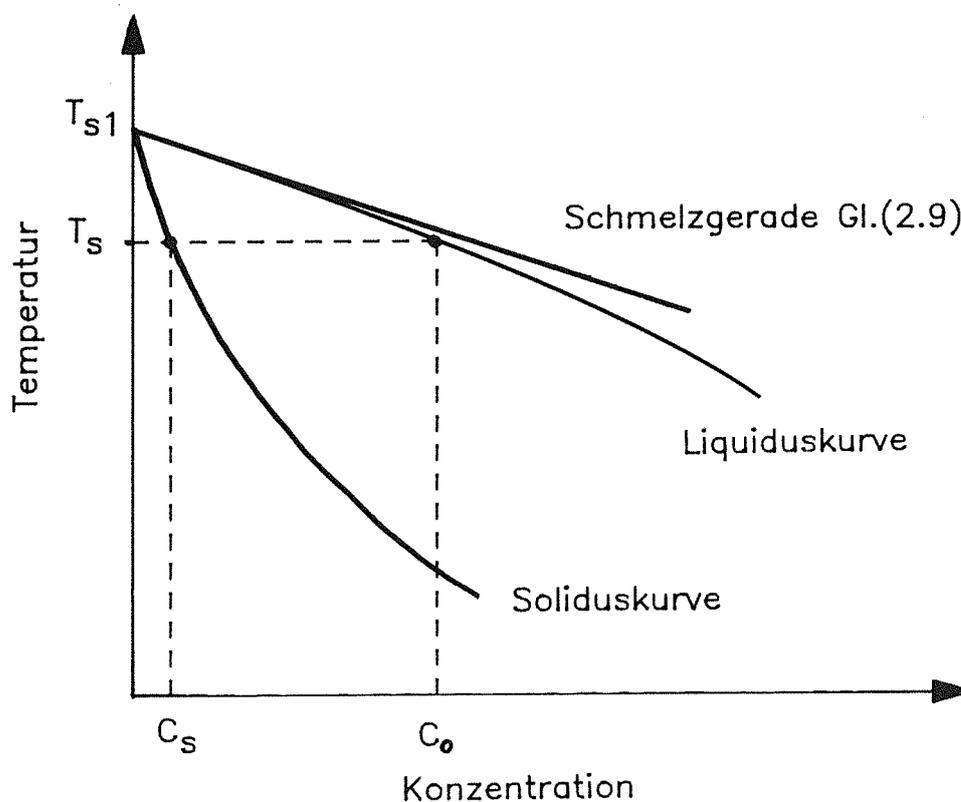


Abb. 2.2: Phasendiagramm einer idealen, binären Mischung

Die Liquiduskurve bezeichnet den Ort aller Gefrierpunkte T_S , bei der eine Mischung der Konzentration C_o auszufrieren beginnt. Für nicht zu große Konzentrationen gilt in guter Näherung der lineare Zusammenhang

$$T_S = T_{S1} + m' C \quad (2.9)$$

Dabei ist T_{S1} die konstante Schmelztemperatur der Überschubkomponente 1. Die Größe m' ist durch die Steigung der Schmelzkurve einer idealen Mischung an der Stelle $C = 0$ gegeben und definiert als

$$m' = -R T_{S1}^2 / L \quad (2.10)$$

Die Größe R ist die universelle Gaskonstante und L die Schmelzwärme der ausfrierenden Komponente 1. Die zu T_S gehörende Konzentration C_S des Eises wird durch die Soliduskurve beschrieben (vgl. Abb. 2.2). Man erkennt sofort, daß für kleine Konzentrationen in guter Näherung gilt: $C_S \approx 0$. Damit ist die in Kapitel 2.1 gemachte Annahme, daß nur die Überschubkomponente ausfriert, bei dünnen Eisschichten gerechtfertigt.

Die Energiebilanz an der Phasentrennfläche beschreibt die Stefan-Gleichung:

$$\rho^{(S)} L \frac{\partial \eta}{\partial t} = \left[\lambda^{(S)} \nabla T^{(S)} - \lambda \nabla T \right] \cdot \mathbf{n} \quad (2.11)$$

Sie besagt, daß die Produktion von Latentwärme an der Grenzfläche zu einem Sprung in den Wärmeströmen durch feste und flüssige Phase führt. Der normierte Vektor \mathbf{n} steht senkrecht auf der Grenzfläche und zeigt ins Eis hinein:

$$\mathbf{n} = \left(1 + \left(\frac{\partial \eta}{\partial x} \right)^2 + \left(\frac{\partial \eta}{\partial y} \right)^2 \right)^{-\frac{1}{2}} \cdot \left(-\frac{\partial \eta}{\partial x}, -\frac{\partial \eta}{\partial y}, 1 \right) \quad (2.12)$$

Da nur eine Komponente der Mischung ausfrieren soll, vereinfacht sich die Massenbilanz an der Grenzfläche zu

$$\rho^{(S)} C \frac{\partial \eta}{\partial t} = \rho_v \mathbf{j} \cdot \mathbf{n} \quad (2.13)$$

Sie gewährleistet, daß etwa aus der flüssigen Phase vom Massenstrom \mathbf{j} antransportierter Stoff an der Grenzfläche ausfriert und dort zu einer Änderung des Grenzflächenprofils η führt.

Die Phasentrennfläche soll zwar an der Stelle $z = \eta$ verbleiben, aber deformierbar sein. Dies führt auf die kinematische Bedingung

$$(\rho_0 - \rho^{(S)}) \frac{\partial \eta}{\partial t} = \rho_0 \mathbf{v} \cdot \mathbf{n} . \quad (2.14)$$

Damit wird der Dichtesprung beim instationären Phasenübergang durch geringfügiges Ausdehnen oder Zusammenziehen der Flüssigkeitsschicht ausgeglichen.

Schließlich gelte auch an der Grenzfläche die Haftbedingung:

$$\mathbf{v} \cdot \mathbf{t}_1 = 0, \quad \mathbf{v} \cdot \mathbf{t}_2 = 0 . \quad (2.15)$$

Hierbei sind \mathbf{t}_1 und \mathbf{t}_2 die orthonormalen Tangentenvektoren an die Phasentrennfläche:

$$\mathbf{t}_1 = \left(1 + \left(\frac{\partial \eta}{\partial y} \right)^2 \right)^{-\frac{1}{2}} \left(0, 1, \frac{\partial \eta}{\partial y} \right) . \quad (2.16a)$$

$$\mathbf{t}_2 = \left[\left(1 + \left(\frac{\partial \eta}{\partial y} \right)^2 \right) \left(1 + \left(\frac{\partial \eta}{\partial x} \right)^2 + \left(\frac{\partial \eta}{\partial y} \right)^2 \right) \right]^{-\frac{1}{2}} \left(1 + \left(\frac{\partial \eta}{\partial y} \right)^2, -\frac{\partial \eta}{\partial x}, \frac{\partial \eta}{\partial y}, \frac{\partial \eta}{\partial x} \right) . \quad (2.16b)$$

2.4 Stationärer Grundzustand

Bei teilweisem Ausfrieren ist es nötig, die Zusammensetzung der Flüssigkeitsmischung zu bestimmen. Ohne Ausfrieren beträgt die Anfangskonzentration C_0 . Ist ein Teil der Zelle mit Eis gefüllt, so gilt die Massenbilanz

$$C_0 h = \frac{1}{A} \int_A \int_0^\eta C \, dz \, dA \quad (2.17)$$

für die in der flüssigen Phase verbleibende Komponente 2. Die Integration von C erstreckt sich in z -Richtung über die Höhe der Flüssigkeitsschicht η und in horizontaler Richtung über eine räumliche Periode des Konvektionsmusters der Grundfläche A .

Der Grundzustand des betrachteten Systems ist der stationäre Wärmeleitungs-zustand mit ebener Grenzfläche bei $z = \eta = h_L$. Die Flüssigkeit ist in Ruhe ($\mathbf{v} = \mathbf{0}$), es wirkt nur der hydrostatische Druck p und die Energie wird nur durch Wärmeleitung transportiert. Als lineare, stationäre Temperaturprofile ergeben sich dann

$$T_{\text{stat}}(z) = T_S - (T_u - T_S) \frac{z - h_L}{h_L}, \quad (2.18a)$$

$$T_{\text{stat}}^{(S)}(z) = T_S - (T_S - T_o) \frac{z - h_L}{h - h_L}, \quad (2.18b)$$

die die Temperaturrandbedingungen bei $z = 0$ (Gl. 2.7a)), $z = h_L$ (Gl. (2.8)) und $z = h$ (Gl. (2.6)) erfüllen. T_S ist die gemäß Gl. (2.9) von der Konzentration abhängige Schmelztemperatur im Grundzustand. Um das stationäre Konzentrationsprofil in der Flüssigkeit zu bestimmen, löst man die Gln. (2.4d) und (2.5) zusammen mit der Randbedingung Gl. (2.7c) und erhält

$$\frac{\partial C_{\text{stat}}}{\partial z} - S_o C_{\text{stat}} (1 - C_{\text{stat}}) \frac{\partial T_{\text{stat}}}{\partial z} = 0. \quad (2.19)$$

Die Bedingung für die Massenbilanz an der Grenzfläche (Gl. (2.13)) ist dabei automatisch erfüllt. Mit dem linearen Temperaturprofil aus Gl. (2.18a) liefert Gl. (2.19) als Lösung

$$C_{\text{stat}}(z) = \left(1 + \frac{1 - C_{\text{stat}}(h_L)}{C_{\text{stat}}(h_L)} \exp\left(\frac{(T_u - T_S)}{h_L} S_o (z - h_L) \right) \right)^{-1}. \quad (2.20)$$

Die Integrationskonstante $C_{\text{stat}}(h_L)$, die Konzentration direkt an der Grenzfläche, wird aus der Massenerhaltung für die Komponente 2 aus Gl. (2.17) ermittelt zu

$$C_{\text{stat}}(h_L) = \frac{\exp\left(\frac{(T_u - T_S)}{h_L} S_o h C_o \right) - 1}{\exp\left(\frac{(T_u - T_S)}{h_L} S_o h_L \right) - 1}. \quad (2.21)$$

Die Schmelztemperatur T_S ist dann in linearer Näherung entsprechend Gl. (2.9) gegeben als

$$T_S = T_{S1} + m' C_{\text{stat}}(h_L). \quad (2.22)$$

Damit wird ersichtlich, daß die Position der Phasentrennfläche im Wärmeleitungsfall von den äußeren Temperaturvorgaben T_u und T_o sowie von der Schmelztemperatur T_S und der Anfangskonzentration C_o festgelegt wird.

Zur Verdeutlichung sind die Temperatur- und Konzentrationsprofile des Wärmeleitungszustandes in Abb. 2.3 für $S_0 < 0$ qualitativ dargestellt.

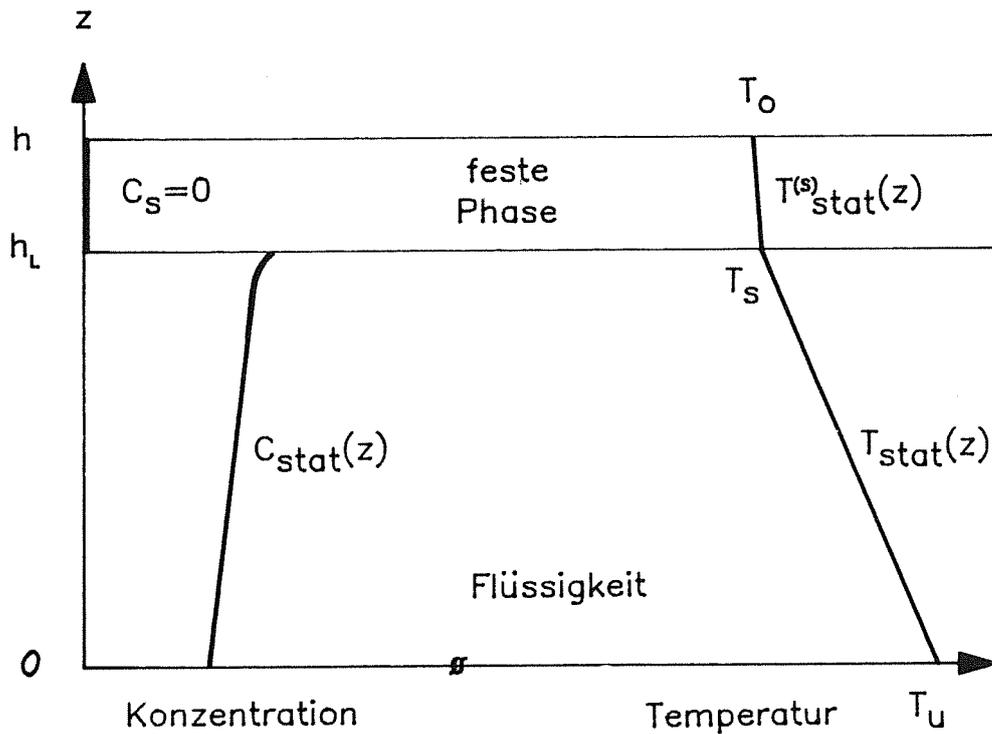


Abb. 2.3: Qualitative Darstellung der Temperatur- und Konzentrationsprofile des Wärmeleitungszustandes in fester und flüssiger Phase für $S_0 < 0$.

Die Temperaturverläufe sind in fester und flüssiger Phase linear, besitzen jedoch unterschiedliche Steigungen. Die Konzentration C_S im Eis ist gemäß der Voraussetzung gleich Null (vgl. Kap. 2.2). Das durch Gl. (2.20) gegebene Konzentrationsprofil der flüssigen Phase ist abhängig von S_0 und T_S . Für nicht zu große Sorét-Koeffizienten und Eisdicken ist $C_{stat}(z)$ nahezu linear. Lediglich im obersten Teil der Flüssigkeitsschicht erfolgt eine leichte Konzentrationszunahme.

2.5 Kennzahlen und dimensionslose Form der Gleichungen

Für die weitere Behandlung ist es zweckmäßig, die Gleichungen und Randbedingungen geeignet dimensionslos zu machen. Dazu werden folgende Skalierungen gewählt:

Länge: $x, y, z \sim h_L$,

Zeit: $t \sim h_L^2 / \kappa$,

Geschwindigkeit: $u, v, w \sim \kappa/h_L$, (2.23)

Druck: $p \sim \rho_0 v \kappa / h_L^2$,

Temperatur: $T - T_S \sim T_u - T_S$,

Konzentration: $C \sim C_0$.

Das Differentialgleichungssystem für die flüssige Phase (Gl. (2.4) in dimensionslosen Größen lautet:

$$\operatorname{div} \mathbf{v} = 0 , \quad (2.24a)$$

$$\frac{1}{\operatorname{Pr}} \left[\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + (\mathbf{v} \nabla) \mathbf{v} \right] = -\nabla p + \nabla^2 \mathbf{v} + \operatorname{Ra} \left[T + R_S C_0 C \right] \mathbf{e} , \quad (2.24b)$$

$$\frac{\partial T}{\partial t} + (\mathbf{v} \nabla) T = \nabla^2 T , \quad (2.24c)$$

$$\frac{1}{\operatorname{Le}} \left[\frac{\partial C}{\partial t} + (\mathbf{v} \nabla) C \right] = -\nabla \mathbf{j} , \quad (2.24d)$$

mit

$$\mathbf{j} = - \left[\nabla C - S C (1 - C_0 C) \nabla T \right] . \quad (2.24e)$$

Die Wärmetransportgleichung in der festen Phase hat die Form

$$\frac{\partial T^{(S)}}{\partial t} = \kappa^* \cdot \nabla^2 T^{(S)} . \quad (2.25)$$

Als Randbedingungen ergeben sich

bei $z = 0$:

$$T = 1 , \quad (2.26a)$$

$$\mathbf{v} = \mathbf{0} , \quad (2.26b)$$

$$\mathbf{j} \cdot \mathbf{e} = 0 , \quad (2.26c)$$

und bei $z = \eta$:

$$T = T^{(S)} = \frac{T_{S1} - T_S}{T_S - T_u} + m C_0 C , \quad (2.27a)$$

$$\rho^* \operatorname{Ste} \frac{\partial \eta}{\partial t} = \left[\lambda^* \nabla T^{(S)} - \nabla T \right] \cdot \mathbf{n} , \quad (2.27b)$$

$$\frac{1}{Le} \rho^* C \frac{\partial \eta}{\partial t} = \mathbf{j} \cdot \mathbf{n} , \quad (2.27c)$$

$$(1 - \rho^*) \frac{\partial \eta}{\partial t} = \mathbf{v} \cdot \mathbf{n} , \quad (2.27d)$$

$$\mathbf{v} \cdot \mathbf{t}_1 = 0 , \quad \mathbf{v} \cdot \mathbf{t}_2 = 0 , \quad (2.27e)$$

und bei $z = 1 + B$:
$$\tau^{(S)} = - \frac{B}{\lambda^*} . \quad (2.28)$$

In der dimensionslosen Form der Gleichungen und Randbedingungen sind folgende typischen Kennzahlen enthalten:

Rayleigh-Zahl
$$Ra = \frac{\alpha g (T_u - T_s) h_L^3}{\nu \kappa} , \quad (2.29a)$$

Expansionsverhältnis
$$R_S = \frac{\alpha'}{\alpha} \cdot \frac{1}{(T_u - T_s)} , \quad (2.29b)$$

Biot-Zahl
$$B = \lambda^* \cdot \frac{T_s - T_o}{T_u - T_s} , \quad (2.29c)$$

Prandtl-Zahl
$$Pr = \frac{\nu}{\kappa} , \quad (2.29d)$$

Lewis-Zahl
$$Le = \frac{D_m}{\kappa} , \quad (2.29e)$$

Stefan-Zahl
$$Ste = \frac{\rho_o L \kappa}{\lambda (T_u - T_s)} , \quad (2.29f)$$

Sorét-Zahl
$$S = S_o (T_u - T_s) , \quad (2.29g)$$

Steigungs-Zahl
$$m = \frac{m'}{(T_u - T_s)} , \quad (2.29h)$$

Dichteverhältnis
$$\rho^* = \frac{\rho^{(S)}}{\rho} , \quad (2.29i)$$

Wärmeleitungsverhältnis $\lambda^* = \frac{\lambda^{(S)}}{\lambda}$, (2.29j)

Temperaturleitfähigkeitsverhältnis $\kappa^* = \frac{\kappa^{(S)}}{\kappa}$, (2.29k)

Anfangskonzentration C_0 . (2.29l)

Das klassische Bénard-Problem einer unendlich ausgedehnten horizontalen Flüssigkeitsschicht ist durch zwei unabhängige Kennzahlen charakterisiert: Die Rayleigh-Zahl beschreibt das Stabilitätsverhalten der Flüssigkeit und die Prandtl-Zahl gewichtet den relativen Einfluß der nichtlinearen und instationären Terme in der Impuls- und Energiegleichung.

Der Phasenübergang fest-flüssig wird durch zwei weitere unabhängige Größen beschrieben: Die Biot-Zahl ist ein Maß für den Temperaturabfall über der Eisschicht und damit für ihre Dicke. Die Stefan-Zahl beschreibt bei transienten Schmelz- und Gefriervorgängen den Einfluß der Schmelzwärme.

Bei der Verwendung einer binären Flüssigkeitsmischung kommen weitere drei relevante Kennzahlen hinzu: Die Kopplung von molekularen und thermischen Diffusionsvorgängen in der Flüssigkeit wird in der Lewis-Zahl berücksichtigt. In der Massenstrombilanz sowohl für die Flüssigkeit als auch für den Phasenübergang beschreibt sie den Einfluß zeitabhängiger oder nichtlinearer Terme. Das Expansionsverhältnis charakterisiert die Änderung des Stabilitätsverhaltens einer Mischung im Vergleich zu dem einer reinen Flüssigkeit. In der Sorét-Zahl wird ein zusätzlicher Kopplungseffekt zwischen Temperatur- und Konzentrationsgradient berücksichtigt, der auf das Stabilitätsverhalten und die Art der Instabilität entscheidenden Einfluß hat.

Die Gleichungen (2.24) bis (2.29) beschreiben das gesamte nichtlineare Konvektionsproblem der binären Flüssigkeitsmischung mit teilweisem Ausfrieren.

Im Wärmeleitungsgrundzustand ergeben sich Temperatur- und Konzentrationsverlauf in dimensionsloser Form zu

$$T_{\text{stat}} = 1 - z \quad , \quad (2.30a)$$

$$T_{\text{stat}}^{(S)} = \frac{1}{\lambda^*} (1 - z), \quad (2.30b)$$

$$C_{\text{stat}} = \left(C_0 + \frac{1 - C_0 C_{\text{stat}}(1)}{C_{\text{stat}}(1)} \cdot \exp \left[S(z-1) \right] \right)^{-1}, \quad (2.30c)$$

mit

$$C_{\text{stat}}(1) = \frac{1}{C_0} \frac{\exp \left[(1+B) S C_0 \right] - 1}{\exp \left[S \right] - 1}. \quad (2.30d)$$

2.6 Lineare Stabilitätstheorie

Ziel der Untersuchung ist es, kritische Rayleigh-Zahlen, Wellenzahlen und Frequenzen zu berechnen. Dafür wird der Grundzustand der reinen Wärmeleitung auf Stabilität gegenüber kleinen Störungen untersucht. Die Variablen C , T , $T^{(S)}$, p , η und $\mathbf{v} = (u, v, w)$ werden dazu in erster Ordnung um den Wärmeleitungszustand (Gl. (2.30)) entwickelt. Die Störgrößen lauten:

$$\begin{aligned} C &= C_{\text{stat}}(z) + \varepsilon C'(x, y, z, t) + O(\varepsilon^2), \\ T &= T_{\text{stat}}(z) + \varepsilon T'(x, y, z, t) + O(\varepsilon^2), \\ T^{(S)} &= T_{\text{stat}}^{(S)}(z) + \varepsilon T^{(S)'}(x, y, z, t) + O(\varepsilon^2), \\ p &= p_{\text{stat}}(z) + \varepsilon p'(x, y, z, t) + O(\varepsilon^2), \\ \eta &= 0 + \varepsilon \eta'(x, y, z, t) + O(\varepsilon^2), \\ \mathbf{v} &= \mathbf{0} + \varepsilon \mathbf{v}'(x, y, z, t) + O(\varepsilon^2). \end{aligned} \quad (2.31)$$

Die Störgrößen sind mit Index (') bezeichnet. Der Entwicklungsparameter $\varepsilon \ll 1$ trägt der Forderung kleiner Störungen des Grundzustandes Rechnung. Setzt man die Störungsansätze in die Gln. (2.24) ein, ergibt sich für die Störgrößen folgendes Differentialgleichungssystem für die flüssige Phase:

$$\text{div } \mathbf{v}' = 0, \quad (2.32a)$$

$$\frac{1}{\text{Pr}} \frac{\partial \mathbf{v}'}{\partial t} = -\nabla p' + \nabla^2 \mathbf{v}' + \text{Ra} \left[T' + R_S C_0 C' \right] \mathbf{e}, \quad (2.32b)$$

$$\frac{\partial T'}{\partial t} = \nabla^2 T' + \mathbf{v}' \cdot \mathbf{e} \quad , \quad (2.32c)$$

$$\frac{1}{Le} \frac{\partial C'}{\partial t} = -\nabla^2 \mathbf{j}' + \frac{1}{Le} C_{stat} \mathbf{v}' \cdot \mathbf{e} \quad , \quad (2.32d)$$

mit

$$\mathbf{j}' = - \left[\nabla C' - S (C_{stat} (1 - C_0 C_{stat}) \nabla T' - (1 - 2 C_0 C_{stat}) C' \mathbf{e} \right] . \quad (2.32e)$$

In der festen Phase gilt:

$$\frac{\partial T^{(S)'}}{\partial t} = \kappa^* \nabla^2 T^{(S)'} \quad (2.33)$$

Die zugehörigen Randbedingungen lauten

bei $z = 0$:

$$T' = 0 \quad , \quad (2.34a)$$

$$\mathbf{v}' = \mathbf{0} \quad , \quad (2.34b)$$

$$\mathbf{j}' \cdot \mathbf{e} = 0 \quad , \quad (2.34c)$$

bei $z = 1$:

$$T^{(S)'} - T' = -\eta' (1 - 1/\lambda^*) \quad , \quad (2.35a)$$

$$T' - \eta' = m C_0 \left(C' + \eta' \frac{\partial C_{stat}}{\partial z} \Big|_{z=1} \right) \quad , \quad (2.35b)$$

$$\rho Ste \frac{\partial \eta'}{\partial t} = \lambda^* \frac{\partial T^{(S)'}}{\partial z} - \frac{\partial T'}{\partial z} \quad , \quad (2.35c)$$

$$\rho \frac{1}{Le} \frac{\partial \eta'}{\partial t} = \mathbf{j}' \cdot \mathbf{e} \quad , \quad (2.35d)$$

$$(1 - \rho) \frac{\partial \eta'}{\partial t} = \mathbf{v}' \cdot \mathbf{e} \quad , \quad (2.35e)$$

$$\mathbf{v}' \times \mathbf{e} = \mathbf{0} \quad , \quad (2.35f)$$

und bei $z = 1 + B$:

$$T^{(S)'} = 0 \quad . \quad (2.36)$$

Die betrachtete Flüssigkeitsschicht ist in horizontaler Richtung unendlich ausgedehnt. Deshalb wird als Lösung eine in x- und y-Richtung periodische Strömung angenommen. Für jede Störgröße $\phi' = (C', T', T^{(S)'}, p', \eta', \mathbf{v}')$ ist eine Zerlegung in Eigenschwingungen in der folgenden Form möglich:

$$\phi'(x,y,z,t) = \phi(z) e^{-\omega t + i(k_x x + k_y y)} \quad (2.37a)$$

Dabei gilt

$$k = (k_x^2 + k_y^2)^{1/2} \quad (2.37b)$$

für die Wellenzahl. Die Größe ω ist die dimensionslose Frequenz. Man setzt die Ansatzfunktion (Gl. (2.37a)) in Differentialgleichungen und Randbedingungen ein, eliminiert die Geschwindigkeitskomponenten in x,y-Richtung sowie den Druck p' . Mit der Abkürzung $D = d/dz$ erhält man Beziehungen, in denen die Störgrößen nur mehr von z abhängig sind.

Für die flüssige Phase ergibt sich das System der gewöhnlichen Differentialgleichungen:

$$(D^2 - k^2 + \omega)T + W = 0 \quad (2.38a)$$

$$(D^2 - k^2)(D^2 - k^2 + \frac{\omega}{Pr})W - k^2 Ra (T - R_S C_o C) = 0 \quad (2.38b)$$

$$J + DC - S \left[C_{stat} (1 - C_o C_{stat}) DT - (1 - 2 C_o C_{stat}) C \right] = 0 \quad (2.38c)$$

$$DJ + k^2 \left[C - S C_{stat} (1 - C_o C_{stat}) T \right] - \frac{\omega}{Le} C + \frac{1}{Le} \frac{dC_{stat}}{dz} W = 0 \quad (2.38d)$$

für die feste Phase entsprechend

$$(D^2 - k^2 + \frac{\omega}{k^*}) T^{(S)} = 0 \quad (2.39)$$

Zusammen mit den Randbedingungen bei $z = 1$ und $z = 1 + B$ läßt sich Gl. (2.39) lösen. Man erhält das Temperaturprofil in der festen Phase zu

$$T^{(S)}(z) = \left[T - (1 - 1/\Lambda^*) H \right] \Lambda \left(\frac{z-1}{B} \right) \quad (2.40)$$

H ist der z-unabhängige Anteil der Störung von η , und Λ ist gegeben durch

$$\Lambda = \frac{\sinh \left[\left(k^2 - \frac{\omega}{k^*} \right)^{1/2} B \left(1 - \left(\frac{z-1}{B} \right) \right) \right]}{\sinh \left[\left(k^2 - \frac{\omega}{k^*} \right)^{1/2} B \right]} \quad (2.41)$$

Mit der Kenntnis von $T^{(S)}(1)$ aus Gl. (2.40) lassen sich die Randbedingungen noch vereinfachen und man erhält schließlich

bei $z = 0$:

$$T = W = DW = J = 0, \quad (2.42)$$

bei $z = 1$:

$$DW = 0, \quad (2.43a)$$

$$W + (1 - \rho) \omega K_1 (T - m C_0 C) = 0, \quad (2.43b)$$

$$J + \frac{\rho}{Le} \omega C_{stat}(1) K_1 (T - m C_0 C) = 0, \quad (2.43c)$$

$$DT + \left\{ \left[1 + \lambda^* m C_0 \frac{dC_{stat}}{dz} \right]_{z=1} \left[-\omega \rho Ste \right] K_1 T - m C_0 \left[K_2 (1 - \lambda^*) - \omega \rho Ste \right] K_1 C \right\} = 0, \quad (2.43d)$$

und bei $z = 1 + B$:

$$T^{(S)} = 0. \quad (2.44)$$

Dabei bedeuten K_1 und K_2 die Abkürzungen

$$K_1 = \left(1 + m C_0 C_{stat}(1) \right)^{-1} \quad (2.45a)$$

und

$$K_2 = \left(k^2 - \frac{\omega}{k^*} \right)^{\frac{1}{2}} \coth \left[\left(k^2 - \frac{\omega}{k^*} \right)^{\frac{1}{2}} B \right]. \quad (2.45b)$$

Als Ergebnis der linearen Stabilitätsanalyse erhält man ein Differentialgleichungssystem für die z -abhängigen Störgrößen in der Flüssigkeit (Gln. (2.38)) und Ausdrücke für die zugehörigen Randbedingungen am unteren Rand (Gl. (2.42)) und an den Phasentrennfläche (Gl. (2.43)). Die weitere Behandlung erfolgt numerisch.

2.7 Näherungslösung

Die explizite Formulierung des Massenstromes j gemäß Gl. (2.5) liefert ein kompliziertes Profil für die Konzentration im Wärmeleitungszustand. In der Literatur (Platten, Legros (1984); Legros et al. (1972); Hurle, Jakeman (1971)) wird dabei häufig der Term $C(1-C)$ in Gl. (2.5) linearisiert. Die Näherung $C \ll 1$ reicht für einen konstanten Konzentrationsgradienten nicht aus, da C weiterhin von z abhängig ist. Deshalb entwickelt man C in einer Taylor-Reihe um den An-

fangswert C_0 . Man erhält dann als Näherung $C(1-C) \approx C_0(1-C_0) = \text{const.}$ Die Voraussetzung für die Gültigkeit dieser Näherung ist, daß $|S_0 \Delta T| \ll 1$ gilt, was für die meisten Flüssigkeitsmischungen erfüllt ist. Physikalisch ergibt dies ein lineares Temperatur- und Konzentrationsprofil im Wärmeleitungszustand.

Durch diese Näherung vereinfacht sich das Differentialgleichungssystem (Gln. (2.38)) entscheidend. Es treten nur noch Produkte der drei Kennzahlen R_S , S und C_0 auf. Sie lassen sich zu einer neuen, unabhängigen Kennzahl, dem Separationskoeffizienten Ψ ,

$$\Psi = C_0 (1 - C_0) R_S S = C_0 (1 - C_0) \frac{\alpha'}{\alpha} S_0, \quad (2.46)$$

zusammenfassen. Das Differentialgleichungssystem für die Störgrößen (Gln. (2.38)) reduziert sich mit der neuen Skalierung $S_0 C_0 (1-C_0) (T_0-T_S)$ für C auf folgende drei Gleichungen:

$$(D^2 - k^2 + \omega) T + W = 0, \quad (2.47a)$$

$$(D^2 - k^2)(D^2 - k^2 + \frac{\omega}{Pr}) W - k^2 Ra \left[T + \Psi C \right] = 0, \quad (2.47b)$$

$$(D^2 - k^2 + \frac{\omega}{Le}) C - \frac{1}{Le} W + (D^2 - k^2) T = 0. \quad (2.47c)$$

Dieses Gleichungssystem läßt sich exakt lösen, wenn die horizontalen Berandungen frei und durchlässig für den Massenstrom angenommen werden. Man erhält stationäre und oszillatorische kritische Rayleigh-Zahlen sowie die Frequenz als Funktion von Pr , Le und Ψ (vgl. Hurle, Jakeman (1969), (1971)). Für den physikalisch relevanten Fall fester, undurchlässiger Berandungen wird ein Reihenansatz für die Variablen eingeführt. Unter der Annahme $Le \ll 1$ ergeben sich Näherungsausdrücke für die kritischen Rayleigh-Zahlen und Frequenzen:

$$Ra_{c,osc}(\Psi) \approx R_{c0} \left(1 - K_3 \frac{\Psi}{1 + \Psi + \frac{1}{Pr}} \right), \quad (2.48)$$

$$\omega_c(\Psi) \approx \frac{3 \pi^2}{2} K_4 \left(\frac{-\Psi}{1 + \Psi + \frac{1}{Pr}} \right)^{1,2}. \quad (2.49)$$

Für die stationäre Zellularkonvektion im klassischen Bénard-Problem mit festen Berandungen besitzt die kritische Rayleigh-Zahl R_{c0} den Wert 1707,8. Die kritische Kreisfrequenz ω_c ist mit der thermischen Diffusionszeit $\tau_K = h^2/\kappa$ skaliert. Nach Kolodner et al. (1987b) haben die Konstanten K_3 und K_4 für feste Berandungen die Werte $K_3 = 1,05$ bzw. $K_4 = 1,43$.

Die Beziehungen (2.48) und (2.49) sind zweckmäßig für die schnelle Abschätzung des Stabilitätsverhaltens einer Flüssigkeitsmischung und werden deshalb später im Sinne einer Faustformel verwendet.

3. Numerische Lösung

3.1 Numerisches Lösungsverfahren

Ziel der numerischen Behandlung des Problems (Gln. (2.38) und Gln. (2.42 und 2.43)) ist die Bestimmung kritischer Rayleigh-Zahlen Ra_c und Wellenzahlen k_c für das Einsetzen der Konvektion in Abhängigkeit von den verschiedenen Stoffparametern und Kennzahlen. Dabei lassen sich zwei Fälle unterscheiden: die Eigenwerte ω sind reell oder komplex. Physikalisch bedeuten reelle Eigenwerte den Übergang des Wärmeleitungszustandes in einen stationären, zeitunabhängigen Konvektionszustand, gekennzeichnet durch kritische Werte $Ra_{c,stat}$ und $k_{c,stat}$. Bei komplexen Eigenwerten $\omega = \omega_r + i\omega_i$ erfolgt der Übergang in einen periodischen, zeitabhängigen Konvektionszustand mit dimensionsloser Frequenz $\omega_c = \omega_i$. Im folgenden wird die Forderung $\omega_r \equiv 0$ gestellt. Dies bedeutet eine Beschränkung auf neutralstabile Lösungen ohne Anfachung oder Dämpfung. Die kritischen Kennzahlen sind hier mit $Ra_{c,osc}$, $k_{c,osc}$ und ω_c bezeichnet.

Das Lösungsverfahren ist für das stationäre und zeitabhängige Problem gleich. Dazu werden die Real- und Imaginärteile der Variablen W , T und C sowie ihrer höheren Ableitungen als neue Variablen eingeführt. Das komplexe Gleichungssystem (Gln. (2.38)) geht dann in ein System von 16 gewöhnlichen Differentialgleichungen erster Ordnung über; entsprechend liefern die Gln. (2.42) und (2.43) je 8 reelle Gleichungen für die obere und untere Berandung.

Es zeigt sich, daß in der Temperaturreandbedingung an der Phasengrenzfläche der Eigenwert ω explizit auftritt. Zur Lösung des Rand-Eigenwertproblems wird das Rechenprogramm SUPORE von Scott und Watts (1979) verwendet. Es basiert auf einem Shooting-Verfahren. In Teilintervallen zwischen beiden Rändern wird die Lösung mit einem Runge-Kutta-Iterationsverfahren variabler Schrittweite berechnet. Linear abhängige Lösungsvektoren werden dabei automatisch reorthonormalisiert und so aneinander angepaßt, daß die Randbedingungen bei $z = 0$ und $z = 1$ erfüllt sind (vgl. Watts et al. (1983)).

Im stationären Fall ($\omega \equiv 0$) wird iterativ nach der kleinsten Rayleigh-Zahl als Funktion der Wellenzahl gesucht, für die noch eine Lösung des Rand-Eigenwertproblems existiert. Das so ermittelte Zahlenpaar entspricht dann den kritischen Werten ($Ra_{c,stat}$, $k_{c,stat}$).

Bei der Suche nach der zeitabhängigen Lösung $\omega_c \neq 0$ werden Rayleigh-Zahl, Wellenzahl und Frequenz als Startwerte vorgegeben. Dann werden Ra und k sukzessive so lange variiert, bis der Realteil von ω verschwindet ($\omega_r < 10^{-4}$), der Imaginärteil von ω endlich bleibt und Ra gleichzeitig minimal wird. Man erhält so das Zahlentripel $(Ra_{c,osc}, k_{c,osc}, \omega_c)$ für den Übergang in die oszillatorische Konvektion.

Da bei diesem Lösungsverfahren nach einem globalen Minimum der Rayleigh-Zahl in Abhängigkeit von zwei Parametern k und ω_i gesucht wird, hat sich in der Praxis gezeigt, daß iterative Änderungen von Ra und k nicht immer zum gewünschten Ziel führen. Wenn die Schrittweiten nicht genau genug gewählt werden, besteht die Gefahr, lediglich ein lokales Minimum zu finden. Deshalb wird ein rechenzeitaufwendigeres Verfahren gewählt, bei dem mit einem groben Raster in einem (Ra, k) -Feld nach der Lösung gesucht wird. Dann wird die Umgebung der Lösung mit immer kleiner werdendem Raster untersucht. Die kritische Rayleigh-Zahl wird auf 0,5 genau bestimmt, wobei $\omega_r < 10^{-4}$ als Nebenbedingung gelten muß.

3.2 Vergleich mit der Literatur

Ein Vergleich der Rechenergebnisse mit der Literatur ist nur für den Fall möglich, daß kein Phasenübergang stattfindet. Der Einfluß einer Eisschicht ($B \neq 0$) auf das Stabilitätsverhalten einer binären Flüssigkeitsmischung ist noch nicht untersucht. Als einzige Autoren verwenden Chock und Li (1975) das exakte Differentialgleichungssystem. Für die Kennzahlen $Pr = 10$, $Sc = 1000$, $C_o = 0,1$ und $Ra_{S, C_o} = 1,5 \cdot 10^7$ werden mit den Computerprogrammen SAND.FORT (F) und SANDI.FORT (D) die stationären und oszillatorischen, kritische Lösungen für $-6 \cdot 10^{-4} < S < 0$ berechnet. Der Vergleich mit dem in Fig. 2 der Arbeit von Chock und Li (1975) für den gleichen Datensatz berechneten Stabilitätsdiagramm läßt keine Unterschiede erkennen, die Stabilitätskurven und -grenzen fallen zusammen.

Um die Genauigkeit des Rechenprogrammes auszutesten, wird speziell die Umgebung der Kodimension-Zwei-Verzweigung S^* untersucht. Cross und Kim (1988a,b), Knobloch und Moore (1988), Linz und Lücke (1987, 1988) sowie Zielinska und Brand (1987, 1988) finden einen Abfall der kritischen oszillatorischen Wellenzahl $k_{c,osc}$ an der Stabilitätsgrenze der zeitabhängigen Lösung für $S \rightarrow S^*$. Dieses Verhalten ergibt sich auch mit diesem Rechenprogramm, wobei die

Wellenzahl bis in die dritte Nachkommastelle genau ist. Ein direkter quantitativer Vergleich ist jedoch nicht möglich, da die oben genannten Autorengruppen die Kennzahl Ψ variieren. In ihr sind implizit die Größen R_S , C_0 und S verknüpft, die bei der exakten Lösung separat vorgegeben werden müssen.

Im Anhang (Kap. 7.2) wird für ein konkretes Beispiel der Verlauf $k_{c,osc}(S)$ berechnet und mit der Literatur verglichen. Dabei zeigt sich eine gute Übereinstimmung.

3.3 Numerische Ergebnisse

Ziel der Rechnungen ist es, für einen festen Satz von Kennzahlen das Stabilitätsdiagramm zu bestimmen. Von besonderem Interesse ist der Einfluß des Phasenüberganges fest-flüssig. Dazu wird über die Variation der Biot-Zahl B der Einfluß der Eisdicke modelliert. Der Einfluß der Konzentrationsänderung im Fluid bei Ausfrieren nur einer Flüssigkeitskomponente wird durch die Variation von C_0 untersucht. Rechnungen mit verschiedenen Stefan-Zahlen beschreiben für den instationären Fall den Einfluß der Schmelzwärme auf die Stabilitätsgrenzen.

Die Rechnungen in diesem Kapitel werden mit Kennzahlen durchgeführt, wie sie für eine organische Mischung (z.B. Benzol und Cyclohexan) typisch sind. Es gilt: $Pr = 17,6$, $Sc = 1047$, $Le = 0,017$, $R_S = 28,4$, $m' = -80$, $Ste = 5,91$ und $\kappa^* = \lambda^* = \rho^* = 1,001$.

3.3.1 Stabilitätsdiagramm, Kodimension-Zwei-Verzweigung

Die Abb. 3.1 zeigt für $C_0 = 0,01$ und $B = 0$ die Abhängigkeit der kritischen Rayleigh-Zahl, Wellenzahl und Frequenz von der Sorét-Zahl S .

Für $S = 0$ verschwindet der Sorét-Effekt und der Wärmeleitungszustand wird wie im klassischen Bénard-Problem mit festen Rändern bei $Ra_{c,stat} = 1707,8$ und $k_{c,stat} = 3,117$ instabil gegenüber stationärer Konvektion. Stationäre Konvektion existiert auch für $S > 0$. In diesem Fall wird durch die Thermodiffusion zusätzlich dichtere Mischungskomponente nach oben zur kälteren Berandung transportiert. Dadurch wird das System bereits bei kleineren kritischen Rayleigh-Zahlen instabil. Umgekehrt baut der Sorét-Effekt bei $S < 0$ den destabilisierenden Dichtegradienten ab, die Stabilitätsgrenze $Ra_{c,stat}$ steigt an.

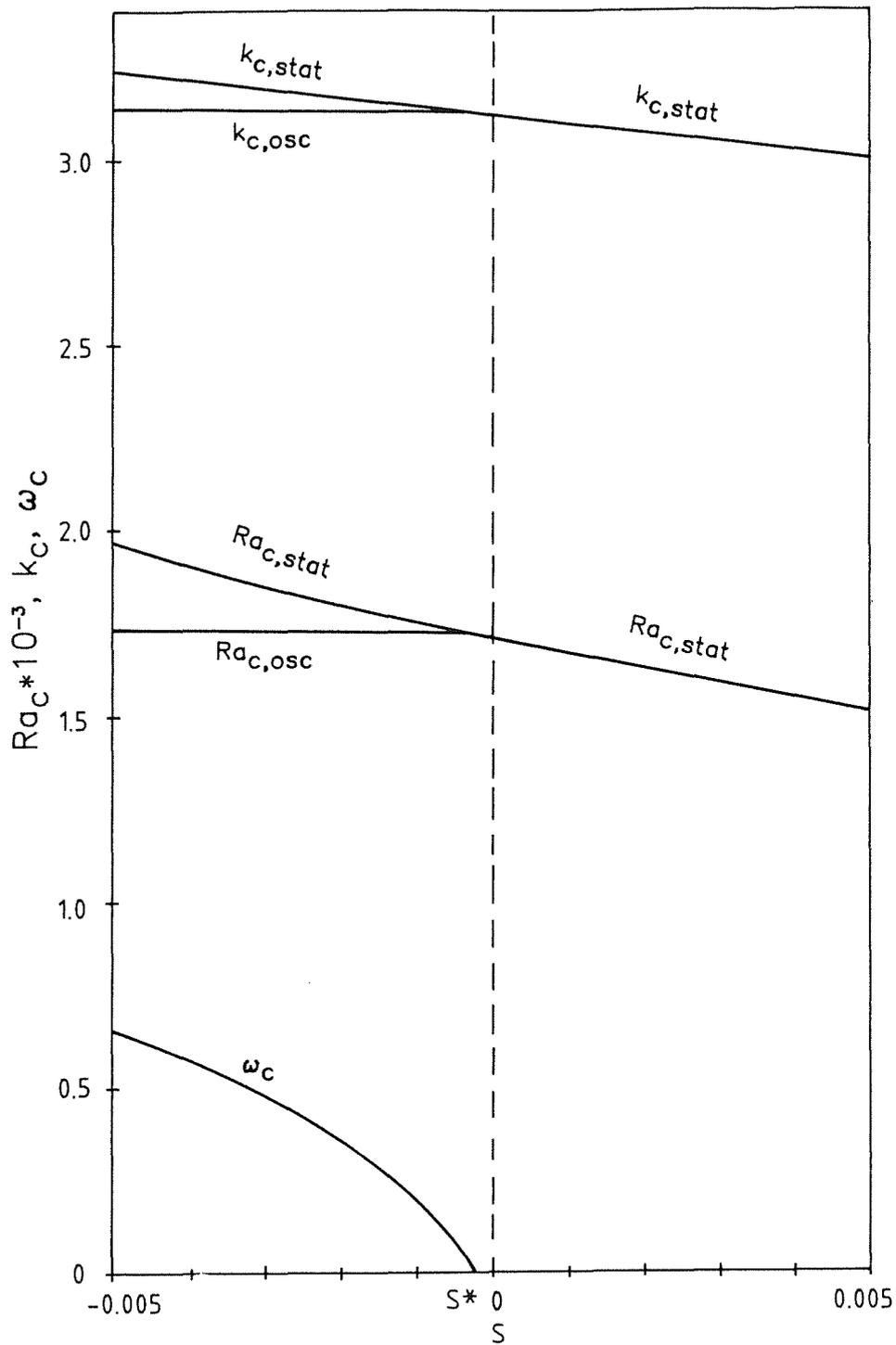


Abb. 3.1: Stabilitätsdiagramm für $C_0 = 0,01$ und $B = 0$.

Für $S < S^* < 0$ zeigen die Rechnungen zusätzlich eine zeitabhängige Lösung. Die kritischen Rayleigh-Zahlen $Ra_{C,osc}$ und Wellenzahlen $k_{C,osc}$ liegen niedriger als die der stationären Lösung $Ra_{C,stat}$ und $k_{C,stat}$. Die zugehörige kritische Frequenz ω_C strebt für $S \rightarrow S^*$ gegen Null. Der Schnittpunkt der Trajektorien der stationären und oszillatorischen Lösung bei S^* wird als Kodimension-Zwei-Punkt bezeichnet. Für die Parameter $C_0 = 0,01$ und $B = 0$ beträgt der Wert für $S^* = -0,00025$. Der

Wert von S^* ist abhängig von den Kennzahlen Pr , Sc und R_S (Platten, Legros (1984)).

Das Auftreten einer zeitabhängigen, periodischen Lösung für $S < S^*$ ist die Folge eines doppel-diffusiven Mechanismus, bei dem Temperatur- und Konzentrationsgradienten entgegengesetzt gerichtet sind. Temperatur und Konzentrationsfelder variieren auf deutlich unterschiedlichen Zeitskalen, nämlich mit thermischer bzw. molekularer Diffusionszeit $\tau_K = h^2/\kappa$ und $\tau_D = h^2/D_m$. Da $\tau_K \ll \tau_D$ gilt, gleicht ein in der Fluidschicht nach oben steigendes warmes Flüssigkeitselement seine Temperatur mit der Zeitskala τ_K der Umgebung an, ändert aber seine ursprüngliche Konzentration kaum. Deshalb ist das Fluidelement jetzt schwerer als seine Umgebung und sinkt in die wärmere Schicht zurück. Da der Konzentrationsausgleich nur langsam in der Zeit τ_D stattfindet, ist es jetzt leichter als seine Umgebung und beginnt erneut nach oben zu steigen. Dieser Mechanismus ist die Ursache für das Auftreten eines periodischen Konvektionszustandes in einer Flüssigkeitsmischung mit $S < S^*$. Bei Erhöhen der Rayleigh-Zahl wird zuerst der Zustand der periodischen Konvektion erreicht. Wie und ob ein Übergang in einen stationären Strömungszustand bei weiterer Erhöhung von Ra erfolgt, läßt sich durch eine lineare Störungstheorie nicht klären. Die Antwort auf diese Frage wird das Experiment liefern (vgl. Kap. 4).

3.3.2 Abhängigkeit von der Anfangskonzentration

In Abb. 3.2 ist die Abhängigkeit der kritischen Rayleigh-Zahlen, die Wellenzahlen und der Frequenz von der Sorét-Zahl S für $B = 0$ und den Anfangskonzentrationen $C_0 = 0,01$ (—) und $C_0 = 0,02$ (----) dargestellt. Bei $S = 0$ schneiden sich die Stabilitätskurven, da dort keine Thermodiffusion vorhanden ist. Für $S > 0$ nimmt die kritische Rayleigh-Zahl mit zunehmenden Werten von C_0 ab, für $S < 0$ dagegen zu.

Dieser Sachverhalt ist dadurch zu erklären, daß eine Erhöhung von C_0 zu einer betragsmäßig größeren, effektiveren Sorét-Zahl S_{eff} führt. An den Gln. (2.38c,d) sieht man, daß S im wesentlichen in der Kombination $S C_{stat} (1 - C_0 C_{stat})$ auftritt. Für kleine Konzentration C_0 , $C_{stat} \ll 1$ und einen kleinen Konzentrationsgradienten $|DC_{stat}| < 10^{-3}$, wie er sich aus den Rechnungen ergibt, gilt näherungsweise

$$S C_{stat} (1 - C_0 C_{stat}) \approx S C_0 = S_{eff} \quad (3.1)$$

Deshalb bedingt eine Zunahme von C_0 eine Erhöhung von $|S|$.

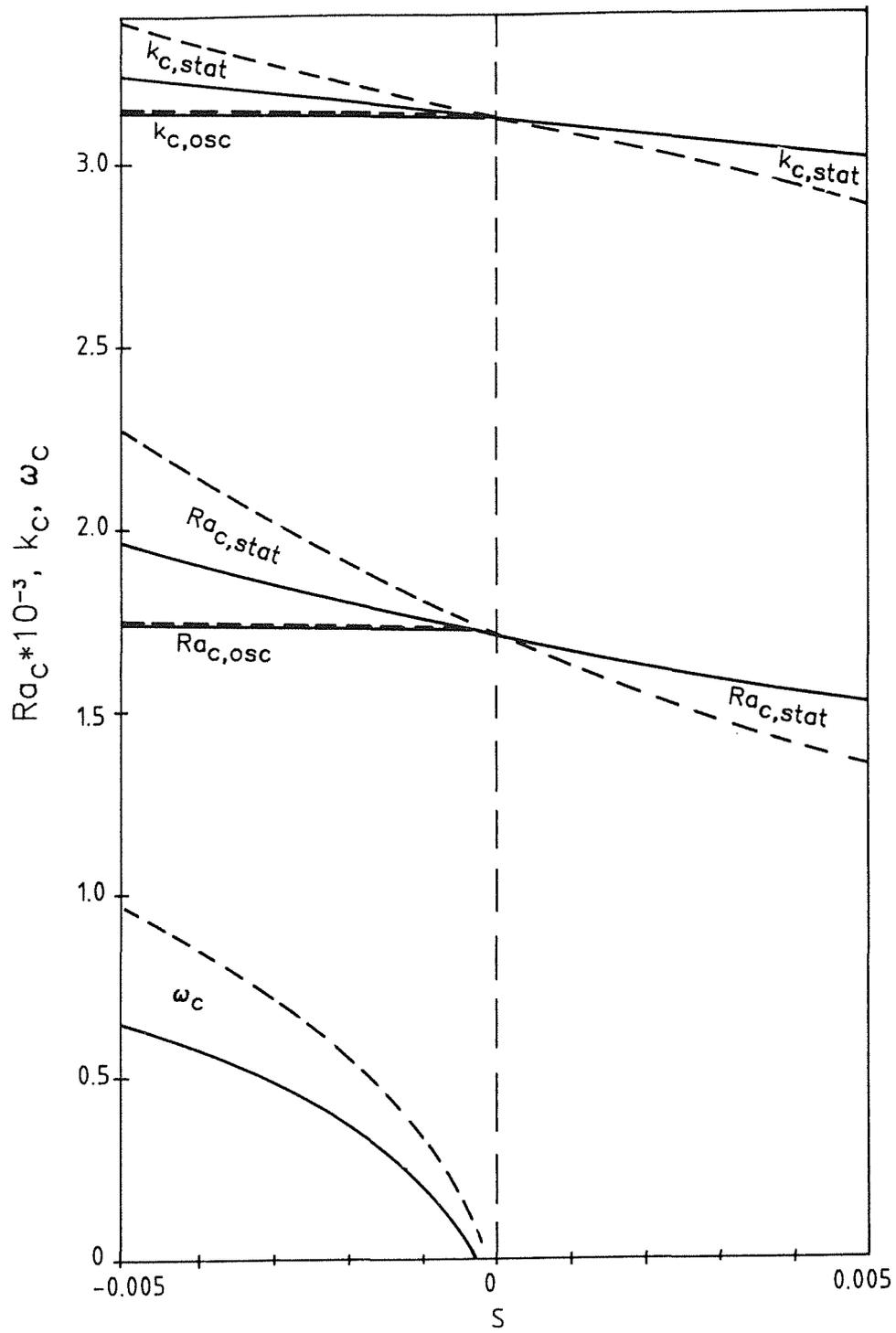


Abb. 3.2: Stabilitätsdiagramm für $B = 0$ und $C_0 = 0,01$ (—) sowie $C_0 = 0,02$ (----).

3.3.3 Abhängigkeit von der Eisdicke

Für die Anfangskonzentration $C_0 = 0,01$ zeigt Abb. 3.3 den Verlauf der kritischen Werte als Funktion der Sorét-Zahl für den Fall ohne Phasenübergang, $B = 0$ (—) und den Fall einer in der oberen Hälfte mit Eis gefüllten Schicht. Dies entspricht einer Kennzahl $B = 1$ (----).

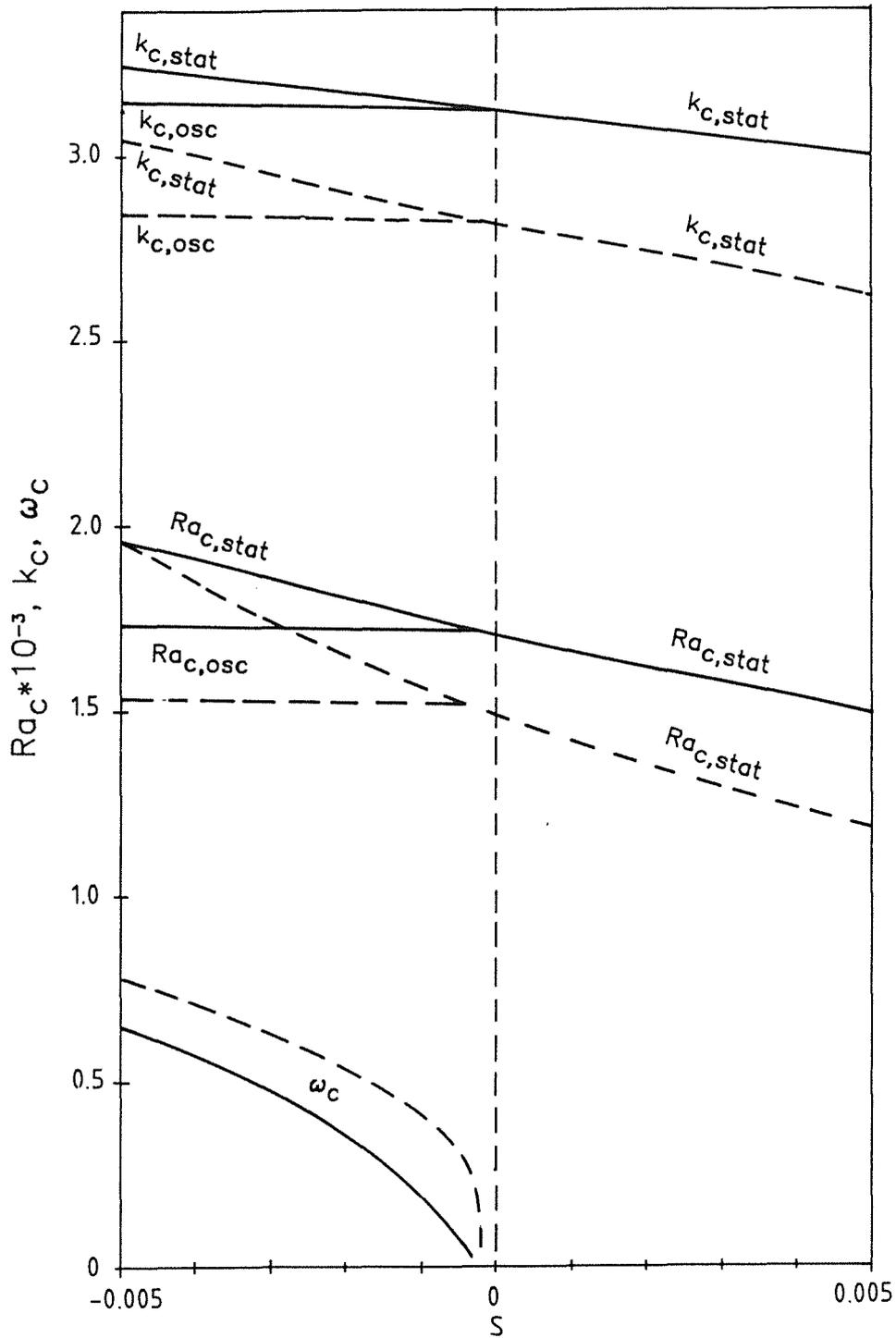


Abb. 3.3: Stabilitätsdiagramm für $C_0 = 0,01$ und $B = 0$ (—) sowie $B = 1$ (----).

Bei verschwindendem Sorét-Effekt ($S = 0$) verhält sich das System wie eine ein-komponentige Flüssigkeit. Mit zunehmender Eisdicke wird die Wärmeleitfähigkeit der oberen Berandung der Fluidschicht schlechter. Dies führt zu einer Absenkung der Stabilitätsgrenze. Dieses Verhalten wird bereits von Davis et al. (1984) gefunden. Für den Fall $B = 1$ ergibt sich bei $S = 0$ der Wert $Ra_{c,stat} = 1493$ (vgl. Abb. 3.3).

Für $S > 0$ verstärkt eine zunehmende Eisdicke die destabilisierende Wirkung des Sorét-Effektes zusätzlich. Für $S < 0$ wird die stabilisierende Wirkung des Sorét-Effektes durch die Bildung einer Eisschicht reduziert. Mit wachsenden negativen Werten von S nimmt jedoch die stabilisierende Wirkung von S zu. Dies führt sogar dazu, daß sich die Kurven $Ra_{c,stat} (B = 0)$ und $Ra_{c,stat} (B = 1)$ bei $S = -5 \cdot 10^{-3}$ schneiden und für $S < -5 \cdot 10^{-3}$ das System mit $B = 1$ bei größeren kritischen Rayleigh-Zahlen instabil wird. Ein entsprechendes Verhalten zeigt auch die zeitabhängige Lösung $Ra_{c,osc}$.

Dieser Effekt ist eine direkte Folge der Voraussetzung, daß nur die Überschußkomponente ausfrieren soll. Dadurch verdoppelt sich bei $B = 1$ die Konzentration C_0 in der Flüssigkeitsschicht. Die Folge ist eine effektiv größere Sorét-Zahl, wie bereits in Kap. 3.3.2 erläutert. Der zusätzliche Einfluß der Eisdicke auf das Stabilitätsverhalten läßt sich aus Gl. (2.30d) abschätzen. Mit der Näherung für C_{stat} aus Kap. 3.3.2 ergibt sich

$$C_{stat} \approx (1 + B) C_0 \quad (3.2)$$

und damit als effektive Sorét-Zahl

$$S_{eff} \approx S (1 + B) C_0 \quad (3.3)$$

In einer Flüssigkeitsmischung mit $S < 0$ führt also Eisbildung zu einer Destabilisierung wegen der schlechten wärmeleitenden, oberen Flüssigkeitsberandung. Dem überlagert ist ein Stabilisierungseffekt gemäß Gl. (3.3), bedingt durch die Konzentrationserhöhung in der Flüssigkeit.

3.3.4 Abhängigkeit von der Schmelzwärme

Die Schmelzwärme L beeinflusst das System in zweierlei Weise. Zum einen bestimmt sie direkt über die Stefan-Bedingung (Gl. (2.11)) die Bewegung der Phasengrenzfläche. Zum anderen ist sie indirekt proportional zur Steigung der Schmelzkurve (Gl. (2.10)) und beeinflusst so die Schmelztemperatur (Gl. (2.9)). Verdoppelt man in den Rechnungen die Latentwärme L , so ändern sich die stationären Lösungen $Ra_{c,stat}$ und $k_{c,stat}$ um weniger als 0,1 %. Der Grund für diese geringe Veränderung ist, daß im stationären Fall die Stefan-Zahl keine Rolle spielt und sich nur die Steigung der Schmelzkurve ändert. Im untersuchten Parameterbereich $0 < B < 1$ und $0 < C_0 < 0,1$ ist die resultierende Änderung von T_s sehr gering ($< 1 \%$) und hat damit kaum Auswirkung auf die Stabilitätsgrenze.

In Abb. 3.4 sind die zeitabhängigen kritischen Werte $Ra_{c,osc}$, $k_{c,osc}$ und ω_c als Funktion von B für feste Sorét-Zahlen $S = -0,001$ und $S = -0,005$ für die Stefan-Zahlen $Ste = 5,91$ (—) und $Ste = 10,82$ (----) eingezeichnet. Bei den kritischen Wellenzahlen (Abb. 3.4a) ist im Rahmen der Rechengenauigkeit kein Unterschied zu erkennen. Auch die Stabilitätsgrenzen (Abb. 3.4c) verschieben sich nur unwesentlich. Einzig in den kritischen Frequenzen ω_c (Abb. 3.4b) tritt eine merkliche Absenkung auf. Der Grund dafür ist, daß im Falle zeitabhängiger Konvektion an der

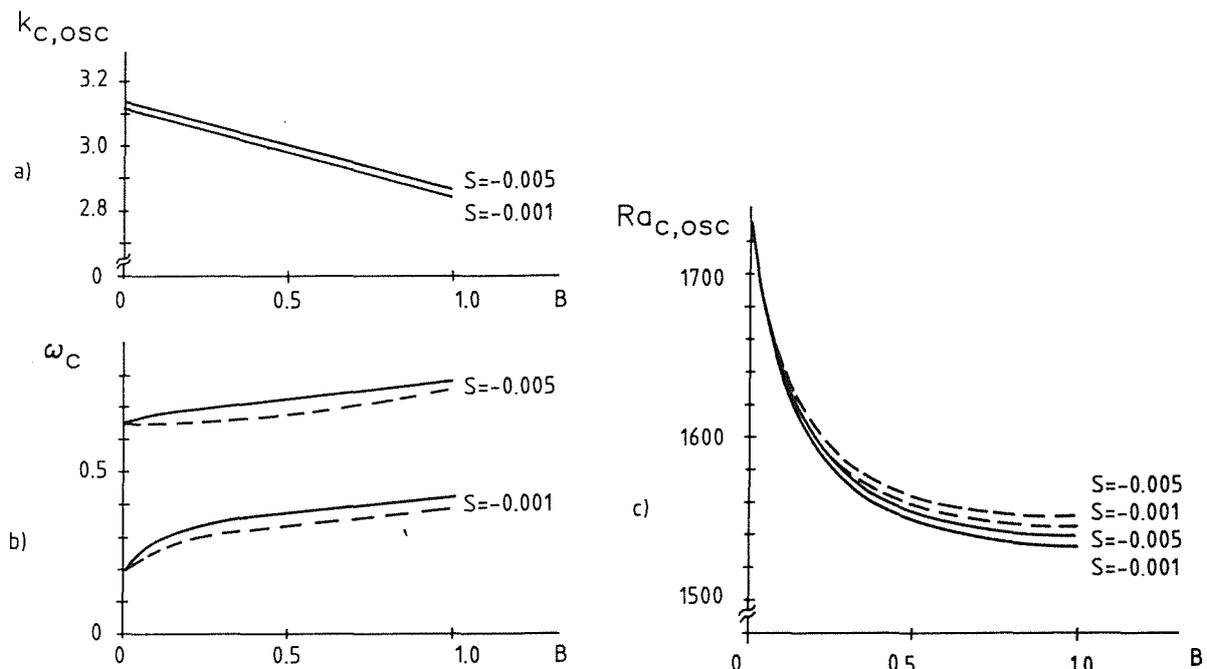


Abb. 3.4: Kritische Wellenzahl $k_{c,osc}$ (a), Frequenz ω_c (b) und Rayleigh-Zahl $Ra_{c,osc}$ (c) als Funktion von B für $S = -0,001$ und $S = -0,005$ bei Verdoppelung der Stefan-Zahl von $Ste = 5,91$ (—) auf $Ste = 10,82$ (----).

Phasengrenzfläche lokale Ausfrier- und Abschmelzvorgänge stattfinden. Wird die Latentwärme erhöht, dauern diese Vorgänge länger. Damit sinkt die Oszillationsfrequenz ω_c ab.

4. Experimente

Erinnert man sich an die vielen Kennzahlen, mit denen eine binäre Flüssigkeitsmischung mit negativem Sorét-Koeffizienten und Phasenübergang in der linearen Störungstheorie beschrieben wird, bekommt man eine Vorstellung von der Komplexität des Problems und der möglichen auftretenden Effekte.

Ziel der Experimente ist es deshalb, mit einer geeigneten Modellmischung die Aussagen der linearen Theorie zu überprüfen. Dies gilt sowohl hinsichtlich des zeitabhängigen Konvektionsbeginns, als auch für den Einfluß der deformierbaren, schlechter wärmeleitenden, oberen Berandung im Falle des Phasenübergangs. Zusätzlich findet man nichtlineare, zeitabhängige Zustände, die im Rahmen der linearen Theorie nicht erklärbar sind.

4.1 Auswahl der Flüssigkeitsmischung

Die Hauptforderungen an die Flüssigkeitsmischung sind folgende Eigenschaften:

- genügend negativer Sorét-Koeffizient, um zeitabhängige Konvektionsstrukturen experimentell nachweisen zu können;
- gute Transparenz der Mischung, um optische Meßverfahren (Differentialinterferometer) gut einsetzen zu können;
- ideale Flüssigkeitsmischung mit möglichst geringer Temperaturabhängigkeit der Stoffparameter, um die Boussinesq-Approximation zu erfüllen;
- Ausfrieren nur einer Mischungskomponente bei quasistationärer Temperaturabsenkung, um der Voraussetzung bei den theoretischen Überlegungen zu genügen;
- Phasenübergang im Bereich von 0 °C, um konventionelle Thermostate verwenden zu können.

Nach ersten Überlegungen wird eine Mischung aus Cyclohexan mit geringem Anteil Benzol ins Auge gefaßt. Dies deshalb, weil bereits Experimente zu Konvektionszuständen unter dem Einfluß einer Eisschicht mit reinem Cyclohexan existieren (Dietsche, (1984)). Bei einer Benzolkonzentration von 5 % liegt der Sorét Koeffizient bei $S_0 \approx -10^{-3}K^{-1}$ (Story, Turner (1969), Tichacek et al. (1956) und eigene Messungen). Die Berechnungen mit SUPORE mit den entsprechenden Kennzahlen bei 20 °C liefern eine oszillatorische Instabilität des Wärmeleitungszustandes bei $Ra_{c,osc} = 1729$ mit einer Periodendauer von 11,5 Minuten. Damit liegt man im Stabilitätsdiagramm sehr nahe am Kodimension-Zwei-Ver-

zweigungspunkt S^* . Ursache hierfür ist weniger der betragsmäßig kleine Wert von S_0 , sondern vielmehr das relativ kleine Verhältnis der Expansionskoeffizienten α'/α . Mit $\alpha'/\alpha \approx 85 \text{ K}$ ergibt sich ein Separationskoeffizient von $\Psi \approx -0,004$. Linz et al. (1988) und Lücke (1988) haben den Existenzbereich von oszillatorischen Konvektionszuständen für $\Psi \rightarrow \Psi^*$ theoretisch abgeschätzt. Extrapoliert man das in Fig. 2 ihrer Arbeit angegebene Stabilitätsfenster bis zu $\Psi \approx -0,004$, so existieren zeitabhängige Lösungen nur in Rayleigh-Zahl-Intervall $1729 \geq Ra \geq 1732$. Im Experiment entspricht dies einem typischen Temperaturintervall von ca. $0,002 \text{ K}$. Damit ist auch einsichtig, daß im Experiment mit Cyclohexan-Benzol-Mischungen keine stabilen, zeitabhängigen Konvektionszustände gefunden werden, sondern das System sofort in eine stationäre Konvektion übergeht.

In der Literatur (vgl. Kap. 1.2) findet man im wesentlichen drei verschiedene Flüssigkeitsmischungen, bei denen zeitabhängiger Konvektionseinsatz beobachtet wird: ^3He - ^4He -Mischungen, Salzlösungen und Wasser-Alkohol-Mischungen.

Um geeignete Ψ -Werte zu erhalten, müssen die Experimente mit ^3He - ^4He -Mischungen bei tiefen Temperaturen von etwa 2 K durchgeführt werden. Dort existiert jedoch kein Übergang in die feste Phase, deren Einfluß jedoch untersucht werden soll.

Bei der Wahl zwischen Lösungen von Wasser mit Salzen oder Alkoholen fällt die Entscheidung für letztere. Solche Alkohol-Wasser-Mischungen verwenden auch eine Reihe von anderen Autoren für ihre Untersuchungen, da dieses System sehr leicht experimentell handhabbar ist. Neben Wasser und Methanol (Hurle, Jake-man (1971 und 1973)) sowie Wasser und Isopropanol (Villers, Platten (1984), Platten et al. (1986) und Lhost, Platten (1988)) sind Wasser und Äthanol geeignete Mischungskomponenten. Durch Variieren der Äthanolkonzentration sowie der mittleren Experimentiertemperatur läßt sich der Separationskoeffizient von $\Psi \approx -0,6$ bis hin zu positiven Werten beliebig einstellen (Kolodner et al. (1988)). Damit können hinreichend weite Bereiche des Stabilitätsdiagrammes untersucht werden.

Eine Reihe von Wissenschaftlern hat sich bereits mit dem Stabilitätsverhalten von Äthanol-Wasser-Mischungen bei verschiedenen Ψ -Werten beschäftigt: Für $0,01 \leq \Psi \leq 0,10$ finden Moses und Steinberg (1986) stationäre Konvektion. Für den Bereich $\Psi \leq \Psi^*$ erhalten Moses et al. (1987), Steinberg et al. (1987), Fineberg et

al. (1988 a,b) sowie Kolodner, Surko (1988) ein komplexes Stabilitätsverhalten. Dort existieren transiente, räumlich begrenzte, periodische Zustände mit räumlicher und zeitlicher Amplitudenmodulation sowie stabile, periodische Wanderwellen. Im Bereich $\Psi \leq -0,1$ liegen die Experimente bei verschiedenen Zellgeometrien der Autoren Platten, Chavepeyer (1972a), Walden et al. (1985), Kolodner et al. (1986, 1987a und 1988 a,b), Surko et al. (1986, 1987), Heinrichs et al. (1987) sowie Ahlers et al. (1987). Übereinstimmend finden alle einen transienten Übergang vom Wärmeleitungsgrundzustand in einen stabilen Zustand nichtlinearer, oszillatorischer Konvektion, bei dem sich das gesamte Strömungsmuster in horizontaler Richtung bewegt.

Auf der Basis dieser Erkenntnisse wird die Flüssigkeitsmischung folgendermaßen ausgewählt: Um Anschluß an die Literatur (z.B. Walden et al. (1985)) zu erhalten, werden zunächst Experimente in einer Mischung von 8 Gewichtsprozent Äthanol in Wasser bei $\bar{T} = 20\text{ °C}$ durchgeführt.

Für die Untersuchungen zum Einfluß einer Eisschicht auf das Stabilitätsverhalten ist diese Mischung jedoch wenig geeignet. Es zeigt sich nämlich, daß die Mischung bei etwa $T = 2\text{ °C}$ ein Dichtemaximum aufweist. Diese Dichteanomalie, ähnlich der von reinem Wasser, läßt die Boussinesq-Approximation nicht mehr zu und verursacht unerwünschte, nichtlineare Effekte. Erhöht man die Äthanolkonzentration, so verschwindet das Dichtemaximum aus der flüssigen Phase (vgl. Kap. 7.4). Gleichzeitig nimmt der Sorét-Effekt ab, da sich Ψ immer mehr Ψ^* nähert (vgl. Kolodner et al. (1988 c)). Hinzu kommt, daß mit zunehmender Alkoholkonzentration die Schmelztemperatur der Flüssigkeitsmischung immer niedriger wird. Damit gelangt man schnell an den Rand des Arbeitsbereichs der im Experiment eingesetzten Kühlaggregate.

So wird als Kompromiß eine Mischung ohne Dichteanomalie aus 15 Gewichtsprozent Äthanol in Wasser mit einer Schmelztemperatur von ca. $T_S = -8\text{ °C}$ gewählt.

4.2 Versuchsaufbau und Durchführung der Experimente

4.2.1 Experimenteller Aufbau

Eine in horizontaler Richtung unendlich ausgedehnte Flüssigkeitsschicht, wie sie der Theorie in Kap. 2 zugrunde liegt, ist im Experiment nicht zu realisieren. Um trotzdem ein möglichst großes Längen- zu Höhenverhältnis zu erreichen, werden

folgende Abmessungen gewählt: Länge $l = 200 \text{ mm}$, Breite $b = 20,0 \text{ mm}$ und Höhe $h = 3,12 \text{ mm}$. Die Zellhöhe h ist auf $\pm 0,01 \text{ mm}$ genau. Einen Querschnitt der symmetrischen Meßkammer zeigt die Abb. 4.1.

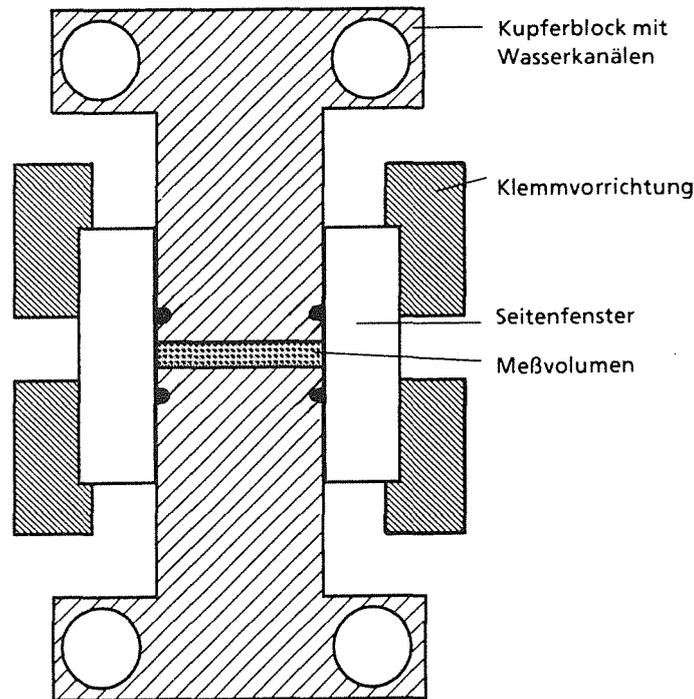


Abb. 4.1: Querschnitt der Meßkammer

Die horizontalen Berandungen bestehen aus gut wärmeleitendem Kupfer zur Vorgabe der Randtemperaturen T_U und T_O . Die Begrenzung des Meßvolumens nach vorne und hinten bilden je eine 10 mm dicke Kristallglasscheibe, abgedichtet mit O-Ringen. An den Stirnseiten ist das Meßvolumen mit Teflonstegen begrenzt. Der Konstruktion der Meßzelle liegen Rechnungen mit dem Programm HEATING 5 (Turner et al. (1983)) zugrunde, die in Kap. 7.3 näher beschrieben sind. Danach liegt die horizontale Inhomogenität der oberen und unteren Flüssigkeitsberandung selbst am Rand unter 0,1 %. In 80 % der Zelle liegt die Abweichung unter 0,01 %. Diese nahezu isotherme Temperaturverteilung ist wichtig im Hinblick auf die zeitabhängigen Konvektionsstrukturen, die durch horizontale Gradienten gestört werden.

Die gesamte Meßzelle ist mit Styrodur thermisch isoliert. Zusätzlich ist sie in eine Klimakammer aus Aluminium mit fensterbewehrten Sichtschlitzen eingebaut, die separat thermostatisiert wird. Die Temperatur der Klimakammer wird entsprechend der mittleren Fluidtemperatur $\bar{T} = (T_U + T_O)/2$ eingestellt. Damit werden Umgebungseinflüsse minimiert. Dieser Aufwand ist besonders im Falle einer

dünnen Eisschicht nötig, da bereits geringste thermische Störungen aus der Umgebung die Eisdicke verändern und die Bestimmung der Rayleigh-Zahl für das Einsetzen der Konvektion erschweren.

Für die Experimente in einer Mischung aus 8 Gewichtsprozent Äthanol wird eine zweite Meßzelle verwendet, deren Meßvolumen $3,05 \pm 0,02$ mm hoch ist. Die horizontale Temperaturinhomogenität liegt am Rand bei maximal 0,5 %. Mit dieser Zelle werden die Messungen bei einer mittleren Temperatur von 20°C durchgeführt, die in erster Linie als Anschlußmessungen dienen. In diesem Temperaturbereich ist die Genauigkeit ausreichend. Bei Temperaturen des oberen Randes von $T_o \approx T_s$ beträgt $\Delta T_c \approx 30$ K. Dieser Wert ändert sich in der Nähe der Zellenden um bis zu 0,15 K. Im Falle eines Phasenüberganges bedeutet dieser nicht mehr isotherme Rand, daß die Phasengrenzfläche im Wärmeleitungsfall an den Enden leicht gekrümmt ist. Damit liegen lokal unterschiedliche Rayleigh-Zahlen vor, die diese Meßzelle für Experimente unter dem Einfluß einer Eisschicht ungeeignet machen.

4.2.2 Meßtechnik und Fehlerabschätzung

Entscheidend für die Qualität der Messungen ist eine möglichst konstante Vorgabe der Temperaturen der oberen (T_o) und unteren (T_u) Berandung über mehrere Tage. Dazu dienen je ein Badthermostat mit einer Temperaturkonstanz von $\pm 0,01^\circ\text{C}$. Als Badflüssigkeiten werden Wasser und bei tiefen Temperaturen Äthanol verwendet. Diese werden von den Thermostaten über isolierte Schläuche zur Meßzelle geleitet. Sie durchströmen gegensinnig die in die Kupferblöcke eingelassenen Kanäle (vgl. Abb. 4.1). Die so aufgeprägten Randtemperaturen werden mit Präzisionsplatinwiderständen (Pt 100) in Vierleitertechnik gemessen. Die Auflösungen des Meßgerätes liegt bei $\pm 0,001^\circ\text{C}$. Wichtig für die Bestimmung der Rayleigh-Zahlen ist die Temperaturdifferenz $\Delta T = T_u - T_o$. Wird ΔT im isothermen Zustand auf Null abgeglichen, betragen die Fehler bei der Messung von ΔT nur noch $\pm 0,002^\circ\text{C}$. Wenn stabile Strömungszustände in der Zelle vorherrschen, bleibt ΔT über viele Tage auf $\pm 0,003^\circ\text{C}$ konstant.

Zur Bestimmung von lokalen Temperaturfluktuationen in der Flüssigkeitsschicht ragt genau aus der Mitte der unteren Kupferschiene ein NiCr-Ni-Thermoelement mit 0,25 mm Durchmesser 0,90 mm weit ins Meßvolumen. Gemessen wird die Spannungsdifferenz zwischen diesem Thermoelement und einem Referenzthermoelement in der unteren Kupferschiene ($z = 0$). Diese Spannungsdifferenz wird

um den Faktor 1000 verstärkt und anschließend ihres Gleichspannungsanteils bereinigt. Der verbleibende Wechsellspannungsanteil wird nochmals um den Faktor 10 verstärkt und als Schreibersignal aufgezeichnet. Rechnet man diese Spannungsänderungen in Temperaturschwankungen T' um, so liegt die Auflösung bei $\pm 0,02$ °C.

Treten periodische Temperaturschwankungen auf, so läßt sich ihre Periodendauer τ aus den Mitschriften des Schreibers durch Ausmessen von mehr als 20 Perioden auf wenigstens 1 % genau festlegen. Wenn die Periodendauer nicht exakt konstant ist, wird sie über viele Perioden gemittelt. Die Amplituden der Temperaturschwankungen T'_m werden auf 2 % genau bestimmt.

Zur Visualisierung der Strömungsstruktur wird ein Differentialinterferometer verwendet (Bühler et al. (1978), Kirchartz (1980), Dietsche (1984)). Damit werden die Dichtegradienten in der Flüssigkeit sichtbar gemacht. Da sich das Integrationsvolumen über die ganze Zelltiefe erstreckt, liefert dieses Meßverfahren nur bei Konvektionsrollen parallel zu den Stirnseiten der Zelle interpretierbare Ergebnisse. Die Empfindlichkeit des Interferometers wird den Eigenschaften der Flüssigkeit durch geeignete Wahl der Wollastonprismen angepaßt. Es werden Prismen mit Schnittwinkeln von $2'$ und $10'$ verwendet. Wegen der geringen Zellhöhe von 3 mm wird eine horizontale Strahltrennung bevorzugt. In dieser Strahltrennung liefert das Interferenzstreifenmuster Linien konstanter, horizontaler Dichtegradienten. Da diese in grober Näherung dem Stromlinienbild entsprechen, ergibt sich direkt ein sehr anschauliches Bild bei walzenförmiger Konvektionsströmung (vgl. Abb. 4.5).

Die Aufnahme der Interferogramme erfolgt mit einer hochauflösenden schwarz-weiß Videokamera. Die Weiterverarbeitung geschieht in einem digitalen Bildverarbeitungssystem, das jedes Interferogramm in einem Raster von 512×512 Bildpunkten abspeichert. Jedes Interferogramm zeigt einen Ausschnitt von 43 mm aus dem 200 mm langen Meßvolumen. Damit entspricht das Bildraster einer Auflösung von etwa 0,1 mm in Wirklichkeit. Um alle Bereiche des Meßvolumens untersuchen zu können, wird die gesamte optische Bank mit dem Interferometer quer zur Meßkammer verschiebbar aufgebaut. Damit kann schnell das gesamte Zellvolumen abgefahren werden und können Rand- oder Mittenbereiche beobachtet werden.

Für den Fall, daß keine Eisschicht vorhanden ist, läßt sich aus den Interferogrammen die Wellenlänge λ der Konvektionszellen bestimmen. Mit der beschriebenen Bildraasterung beträgt der Fehler für λ etwa 4 %.

Findet eine Wanderbewegung des Konvektionsmusters in horizontaler Richtung durch die Meßzelle statt, so läßt sich aus Aufnahmen zu definierten Zeiten die Richtung und die Geschwindigkeit der Bewegung bestimmen. Zusammen mit der Wellenlänge kann man so die Periodendauer aus den Interferogrammen auf 5 % genau bestimmen.

Qualitativ einwandfreie Interferometeraufnahmen im Konvektionszustand sind nur möglich, wenn die Dichtegradienten im Meßvolumen klein genug sind. Dies ist bei den schwachen, transienten Wanderwellenzuständen gegeben, die direkt nach dem Einsetzen der Konvektion auftreten (vgl. Abb. 4.6) und für stabile TW-Zustände bei geringen äußeren Temperaturdifferenzen (vgl. Abb. 4.16a).

Werden die Dichtegradienten im Fluid größer, so findet eine Beugung der Lichtstrahlen beim Durchgang durch das Meßvolumen statt. Dadurch werden die Interferenzlinien verzerrt und die horizontalen Zellberandungen erscheinen periodisch verformt (vgl. Abb. 4.16b,c). Die Bestimmung der Wellenlänge und der Wandergeschwindigkeit aus den Differentialinterferometeraufnahmen ist jedoch weiterhin möglich.

Befindet sich im oberen Teil der Meßzelle eine dünne ebene Eisschicht, so erscheint der obere Rand der einzelnen Differentialinterferometeraufnahmen unscharf. Dies liegt daran, daß selbst im Wärmeleitungszustand die Grenzfläche eine Rauigkeit von ca. 0,02-0,05 mm in vertikaler Richtung aufweist. Die Eisdicke h_5 wird mit einem in den drei Koordinatenachsen verschiebbaren Stereomikroskop vermessen. Bei Vergrößerung bis 22fach sind reproduzierbare Meßgenauigkeiten von $\pm 0,02$ mm bei der Höhenmessung erreichbar.

Der Fehler bei der Berechnung der kritischen Rayleigh-Zahl wird hauptsächlich vom Fehler bei der Bestimmung der Flüssigkeitshöhe verursacht. Vernachlässigt man die Fehler der Stoffgrößen und der Temperaturdifferenzmessung ($< 0,1$ %), so läßt sich im Falle ohne Eisschicht die Rayleigh-Zahl auf etwa 1 % genau angeben. Unter einer Eisschicht verdoppelt sich der Fehler, da die Eisdicke nur auf etwa $\pm 0,02$ mm bestimmt werden kann. Bei der Biot-Zahl ist ebenfalls der Fehler bei der Eisdickenbestimmung entscheidend. B läßt sich auf $\pm 0,02$ genau angeben.

4.2.3 Klassifizierung der Wellenzustände

Im experimentellen Teil der Arbeit werden die verschiedenen Konvektionszustände als Wellen bezeichnet. Der Übersichtlichkeit wegen werden diese Zustände im Rahmen der Wellenlehre charakterisiert.

Eine eindimensionale, ebene Welle läßt sich allgemein durch folgende Gleichung beschreiben:

$$\chi(x,t) = a(t) \sin(kx - \varphi(t)) . \quad (4.1)$$

Dabei ist $a(t)$ die zeitabhängige Amplitude der Welle, k die Wellenzahl und $\varphi(t)$ eine zeitabhängige Phasenverschiebung. Diese allgemeine Darstellung einer Welle läßt sich in verschiedene Typen von Wellen unterteilen:

a) $a(t) = \text{konst}$; $\varphi(t) = \text{konst}$.

Für diesen Fall erhält man eine räumlich stehende Welle mit der Wellenlänge $\lambda = 2\pi/k$. Physikalisch entspricht dies dem Zustand der stationären Konvektion.

b) $a(t) = \text{konst}$; $\varphi(t) = \omega t$:

Für diesen Fall erhält man eine Welle, die in x -Richtung fortschreitet. Dabei wird mit ω die Oszillationsfrequenz an jeden Punkt x bezeichnet. Die Wandergeschwindigkeit v ist konstant und gegeben durch $v = \omega/k$. Je nach Vorzeichen von v bewegt sich dabei die Welle nach rechts oder links. Aus der Oszillationsfrequenz ω ergibt sich die Periodendauer zu $\tau = 2\pi/\omega$. Dies ist die Zeit, die vergeht, bis sich die Welle um ihre Wellenlänge λ mit der Geschwindigkeit v weiterbewegt hat. Der entsprechende physikalische Zustand wird als Wanderwellenzustand ("traveling wave", TW) bezeichnet.

c) $a(t) = a_m \cdot \sin \omega_a t$; $\varphi(t) = \text{konst}$.:

In diesem Fall bewegt sich die Welle nicht räumlich fort, jedoch ändert ihre Amplitude periodisch mit der Oszillationsfrequenz ω_a zwischen den Maximalwerten $\pm a_m$. Physikalisch entspricht dies dem Zustand der stehenden Wellen ("standing wave", SW).

d) $a(t) = \text{beliebig}$; $\varphi(t) = \omega t$:

Dieser allgemeine Fall beschreibt eine ebene Welle, die sich mit konstanter Geschwindigkeit fortbewegt. Gleichzeitig ist eine Modulation der Amplitu-

de zulässig. Der entsprechende physikalische Zustand entspricht den amplitudenmodulierten Wanderwellen ("modulated traveling waves", MTW).

Für alle räumlich oder zeitlich periodischen Konvektionszustände lassen sich die Störungen der Zustandsgrößen Temperatur, Konzentration und Geschwindigkeit in Form von Wellen darstellen. Die lokal an einer Stelle des Meßvolumens registrierten Temperaturschwankungen T' , die mit dem Thermoelement gemessen und zeitabhängig auf den Schreiber ausgegeben werden, lassen sich darstellen durch

$$T'(t) = T'_m(t) \sin(kx - \omega t) \quad (4.2)$$

Im Falle der TW ist T'_m zeitlich konstant und gibt die Maximalamplitude der Temperaturschwankung wieder. Bei den MTW-Zuständen ist im allgemeinen die Maximalamplitude T'_m zeitabhängig.

4.3 Meßergebnisse in Flüssigkeitsmischungen ohne Eisschicht

4.3.1 Überblick über die beobachteten Phänomene

Wird die Temperaturdifferenz über der Flüssigkeit quasistationär erhöht, bleibt das System bis zur kritischen Temperaturdifferenz ΔT_c im Wärmeleitungszustand. Nach dem Überschreiten von ΔT_c tritt ein transienter, linearer Wanderwellenzustand mit Amplitudenmodulation (MTW) auf. Das Thermoelement in der Flüssigkeitsschicht registriert lokal zeitlich periodische Temperaturschwankungen geringer Amplitude. Wird ΔT auf dem knapp überkritischen Wert konstant gehalten, so wachsen die Amplituden exponentiell an.

Überschreitet die Amplitude einen kritischen Schwellwert, folgt ein transienter Übergangsbereich. Der Wärmeübergang durch die Flüssigkeitsschicht ist jetzt gegenüber dem im Wärmeleitungszustand deutlich verbessert. Dadurch sinkt ΔT unter den kritischen Wert ΔT_c ab. In der verwendeten Meßzelle erfolgt das Überschreiten des Schwellwertes zuerst im Bereich der Zellenden. Dort entsteht ein transienter Wanderwellenzustand mit großen Amplituden, während in weiten Bereichen der Zelle der Wärmeleitungszustand vorherrscht. Das Übergangsgebiet Wärmeleitung - Konvektion schiebt sich im weiteren Verlauf langsam als Störfront in die Meßzelle hinein, bis das gesamte Meßvolumen mit transienten Wanderwellen gefüllt ist.

Hat diese Störung die ganze Zelle durchlaufen, stellt sich entweder ein stabiler, nichtlinearer Wanderwellenzustand mit einer kleineren Frequenz ein, der in einem begrenzten Rayleigh-Zahl-Bereich stabil existiert, oder die Horizontalbewegung des Musters kommt zum Stillstand und das System geht in den Zustand stationärer Konvektion über. Die einzelnen Phänomene werden in den folgenden Abschnitten detailliert beschrieben.

4.3.2 Lineare, amplitudenmodulierte Wanderwellenzustände, MTW

Bei Überschreiten der kritischen Temperaturdifferenz ΔT_c setzt die Konvektionsströmung in Form von amplitudenmodulierten Wanderwellen ein. Die in diesem Kapitel dargestellten Meßergebnisse stammen aus Experimenten mit einer Flüssigkeitsmischung von 15 % Äthanol in Wasser. Bei den Versuchen wird die Temperaturdifferenz unterschiedlich stark über den Wert ΔT_c erhöht und zusätzlich die Zeit, in der die Temperaturveränderung erfolgt, variiert.

Die Abb. 4.2 bis 4.4 zeigen jeweils die lokale Temperaturschwankung T' des Thermoelementes in der Fluidschicht als Funktion der Zeit kurz nach Überschreiten von ΔT_c . Die periodischen Schwankungen kennzeichnen das Vorbeiwandern von Konvektionsrollen mit konstanter Geschwindigkeit. Maximalausschläge in T' entsprechen Bereichen eines lokalen, kalten Abstromes am Thermoelement. Bei Minimalausschlägen befindet sich ein warmes Aufstromgebiet am Thermoelement. Die Amplituden der Temperaturschwankung zeigen eine deutliche, zeitliche Modulation. Aufgrund dieser Charakteristika wird der Zustand als amplitudenmodulierter Wanderwellenzustand ("modulated traveling wave", MTW) bezeichnet. Die Bewegungsrichtung ist in allen drei Abbildungen von links nach rechts. Aus weiteren Experimenten ergibt sich, daß mit derselben Wahrscheinlichkeit auch MTW beobachtet werden, die in entgegengesetzter Richtung wandern. Die Zufälligkeit des Auftretens ist ein Maß für die Symmetrie der Meßzelle.

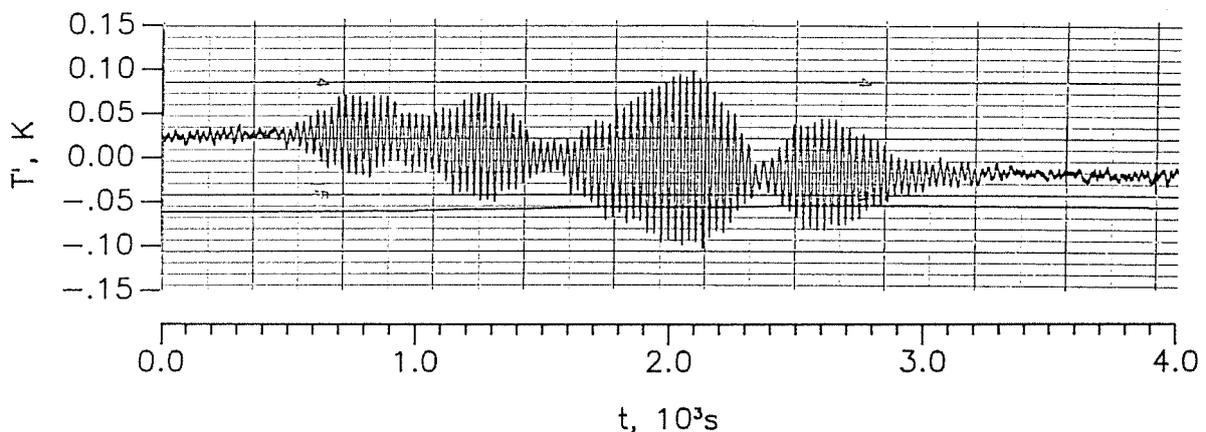


Abb. 4.2: Lokale Temperaturschwankung T' am Thermoelement mit Anfachung und Wegdämpfung des MTW-Zustandes in einer Mischung mit $C = 15 \text{ wt } \%$ bei $T = 4,8 \text{ }^\circ\text{C}$.

Bei dem in Abb. 4.2 dokumentierten Versuch wird, ausgehend von einem knapp unterkritischen, stabilen Wärmeleitungszustand, die Temperaturdifferenz ΔT innerhalb von 20 Minuten kontinuierlich erhöht. Dadurch setzt an der linken Zellseite schwache, zeitabhängige Konvektion ein. Das Muster wandert in die Zelle, während am Rand ständig neue Konvektionsrollen entstehen. Die am Thermoelement registrierten Schwankungen T' besitzen Amplituden bis maximal $T'_m = 0,1 \text{ K}$ und eine Periodendauer von $\tau = 28 \text{ s}$. Dieser Effekt ist sehr schwach, gemessen an der gesamten Temperaturdifferenz $\Delta T = 25,5 \text{ K}$. Etwa zur Zeit $t = 10^3 \text{ s}$ wird die Temperaturänderung wieder zurückgenommen. Als Folge davon stellt sich der ursprüngliche Wärmeleitungszustand in der gesamten Zelle ein und die Störung wird weggedämpft.

Abb. 4.3 zeigt einen Ausschnitt aus dem Temperatursignal zu einem Versuch, bei dem die Temperaturdifferenz innerhalb von 30 Minuten aus dem knapp unterkritischen Bereich um 0,08 K erhöht wird. Über viele Stunden wandert ein schwaches ($T'_m \cong 0,05$ K bei $\Delta T = 25,6$ K) Konvektionsmuster mit einer Periodendauer von $\tau = 28 \pm 0,2$ s durch die Zelle. Durch wiederholte kleine Korrekturen von ΔT um einige hundertstel Grad läßt sich dieser Zustand beliebig lange aufrechterhalten. Ändert man die Randtemperaturen nicht mehr, so nimmt die Maximalamplitude der Temperaturschwankung mit der Zeit zu (vgl. Abb. 4.3). Dies bedeutet, daß der Zustand amplitudenmodulierter Wanderwellen nur transient existiert.

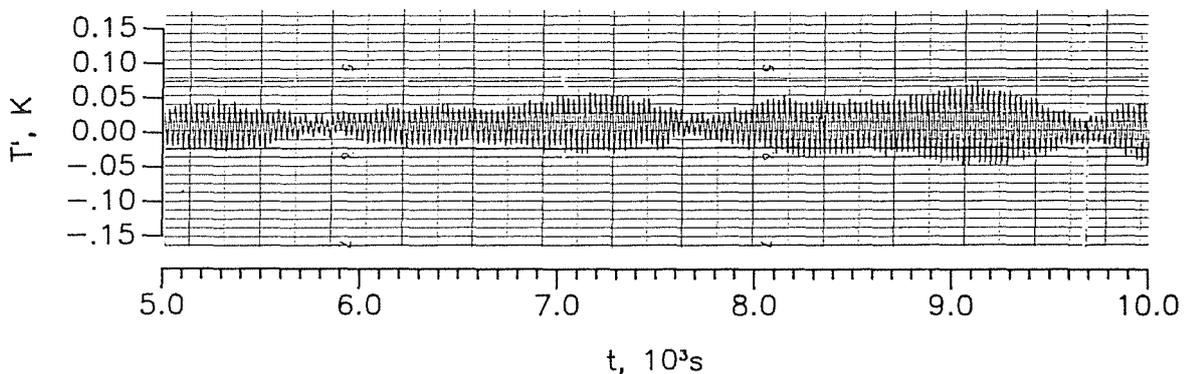
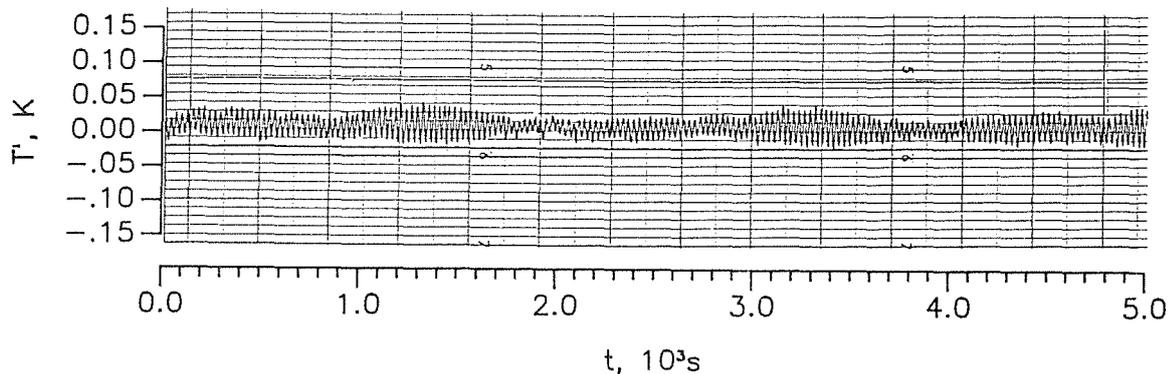


Abb. 4.3: Lokale Temperaturschwankung T' am Thermoelement im transienten MTW-Zustand für $C = 15$ wt% bei $\bar{T} = 4,8$ °C.

Eine Änderung der Temperaturdifferenz um 0,17 K in 30 Minuten bei $\Delta T \approx 11,5$ K ergibt ein zeitliches Verhalten wie in Abb. 4.4 gezeigt. Die Amplituden der anfänglich schwachen MTW ($t \leq 10^3$ s) nehmen etwa 20 Minuten nach Ende der Temperaturänderung deutlich zu ($t \approx 1,5 \cdot 10^3$ s) und erreichen nach $t \approx 2 \cdot 10^3$ s

Werte für T'_m von $\pm 0,5$ K. Dieser Zustand ist selbst durch sofortige Reduzierung von ΔT auf den Startwert nicht mehr wegzudämpfen. Die Amplituden der MTW haben einen kritischen Schwellwert überschritten und nichtlineare Vorgänge bestimmen das weitere Zeitverhalten (siehe Kap. 4.3.3).

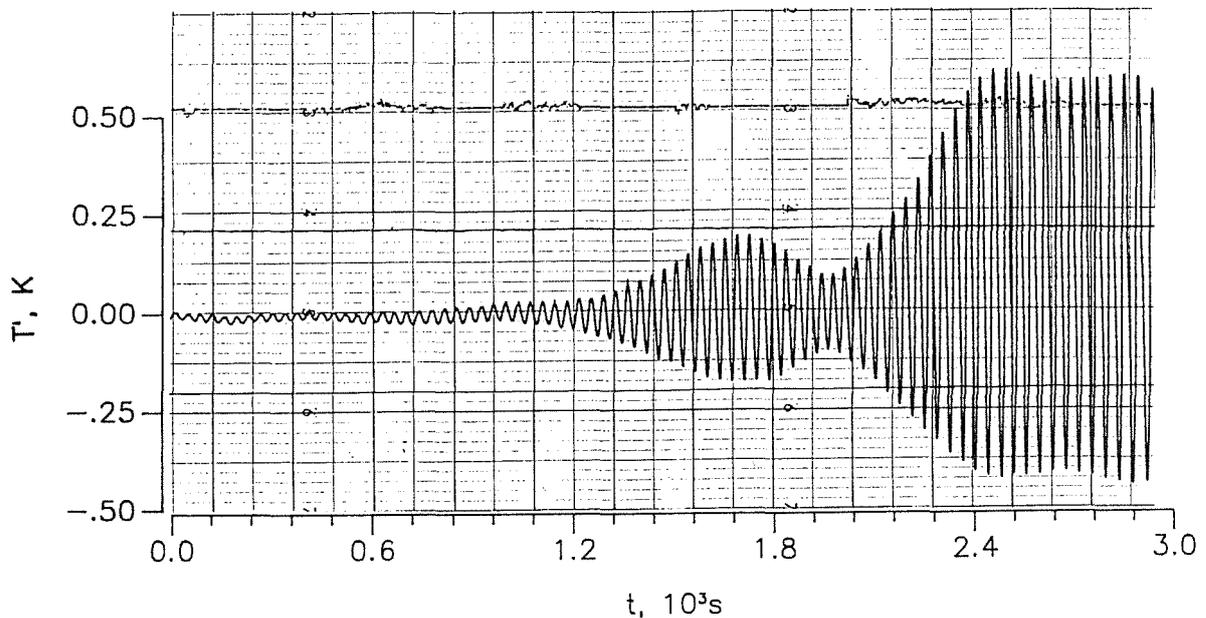


Abb. 4.4: Lokale Temperaturschwankung T' am Thermoelement beim Übergang des transienten MTW-Zustandes in den instabilen TW-Zustand für $C = 15$ wt % bei $T = 10,0$ °C.

Um einen optischen Eindruck von der Strömungsform zu vermitteln, zeigt Abb. 4.5 Differentialinterferometeraufnahmen von vier MTW-Zuständen. Alle Aufnahmen zeigen einen 4,3 cm breiten Ausschnitt aus der Zellmitte zu verschiedenen Zeiten. In Abb. 4.5a sind die Linien gleicher horizontaler Dichteunterschiede nur sehr schwach gegenüber den vertikalen Linien im reinen Wärmeleitungs-zustand ausgelenkt. Sie entsprechen dem Zustand zum Zeitpunkt $t = 210$ s in Abb. 4.4. Die Abbn. 4.5b und 4.5c zeigen eine zunehmende Liniendichte und -auslenkung. Sie entsprechen den Temperatursignalen in Abb. 4.4 zu Zeiten $t = 1210$ s und $t = 1910$ s. Die Abb. 4.5d zur Zeit $t = 2230$ s schließlich zeigt bereits ein intensives, voll ausgeprägtes, gleichmäßiges Rollenmuster. Den zugehörigen qualitativen Stromlinienverlauf zeigt die Abb. 4.5e.

Diese Aufnahmen liefern nur jeweils eine Momentaufnahme des Konvektionsmusters, das sich in horizontaler Richtung durch die Zelle bewegt. In Abb. 4.6 sind 14 Aufnahmen des gleichen Zellausschnitts im Zeitintervall $1700 \leq t \leq 1830$ s in Abständen von jeweils 10 s abgebildet. Man erkennt das Wandern des Musters von links nach rechts. Die Periodendauer beträgt $\tau = 37$ s. Von links schieben sich

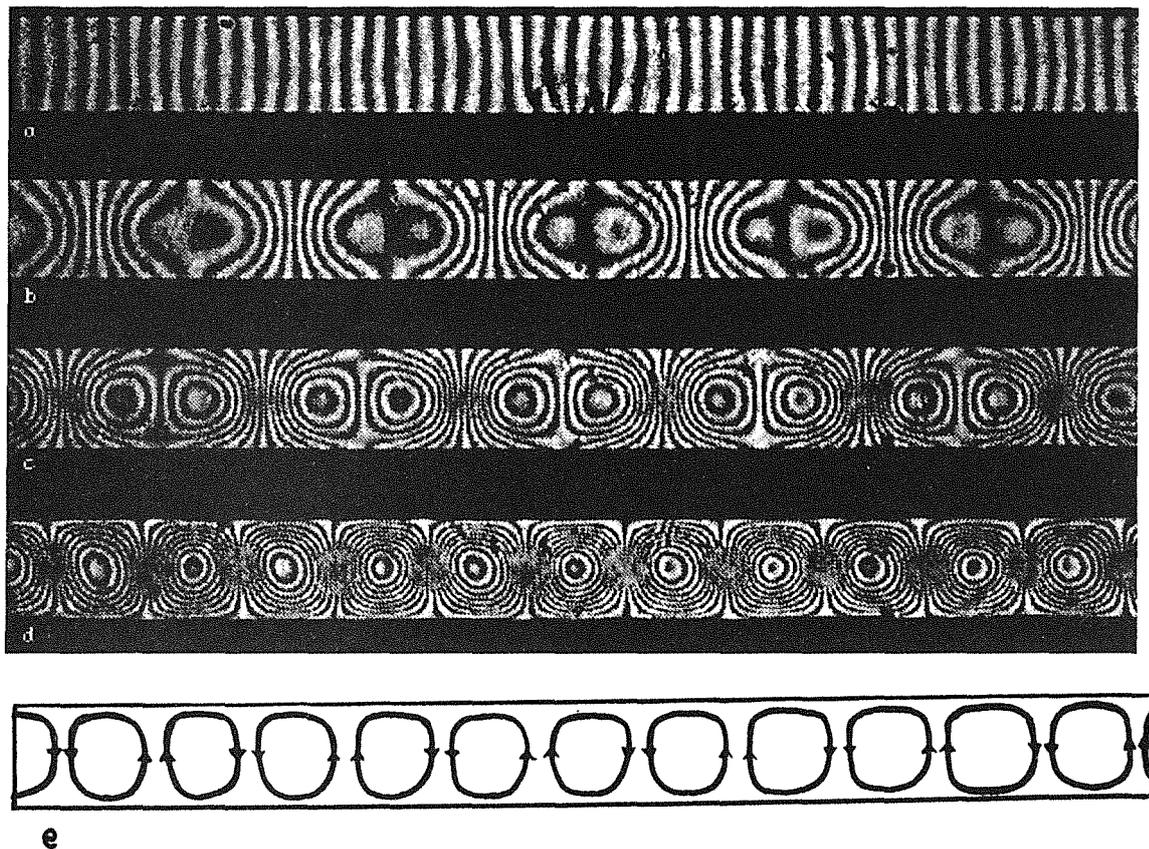


Abb. 4.5: Differentialinterferometeraufnahmen des transienten MTW-Zustandes zu verschiedenen Zeiten (bzgl. Abb. 4.4): a) $t = 210$ s, b) $t = 1210$ s, c) $t = 1910$ s, d) $t = 2230$ s und e) zugehörige Stromlinien.

ständig neue Konvektionsrollen ins Bild, während sie rechts wieder verschwinden. Die Modulation der Intensität des Dichtegradienten ist ebenfalls deutlich zu erkennen. So zeigt die geringere Liniendichte in den ersten Interferogrammen auf der rechten Seite bzw. in den letzten Interferogrammen auf der linken Seite die zunehmenden bzw. abnehmenden Dichtegradienten an. Diese Erscheinung entspricht den zeitlich anwachsenden und abfallenden Thermoelementsignalen, die in Abb. 4.4 gezeigt sind.

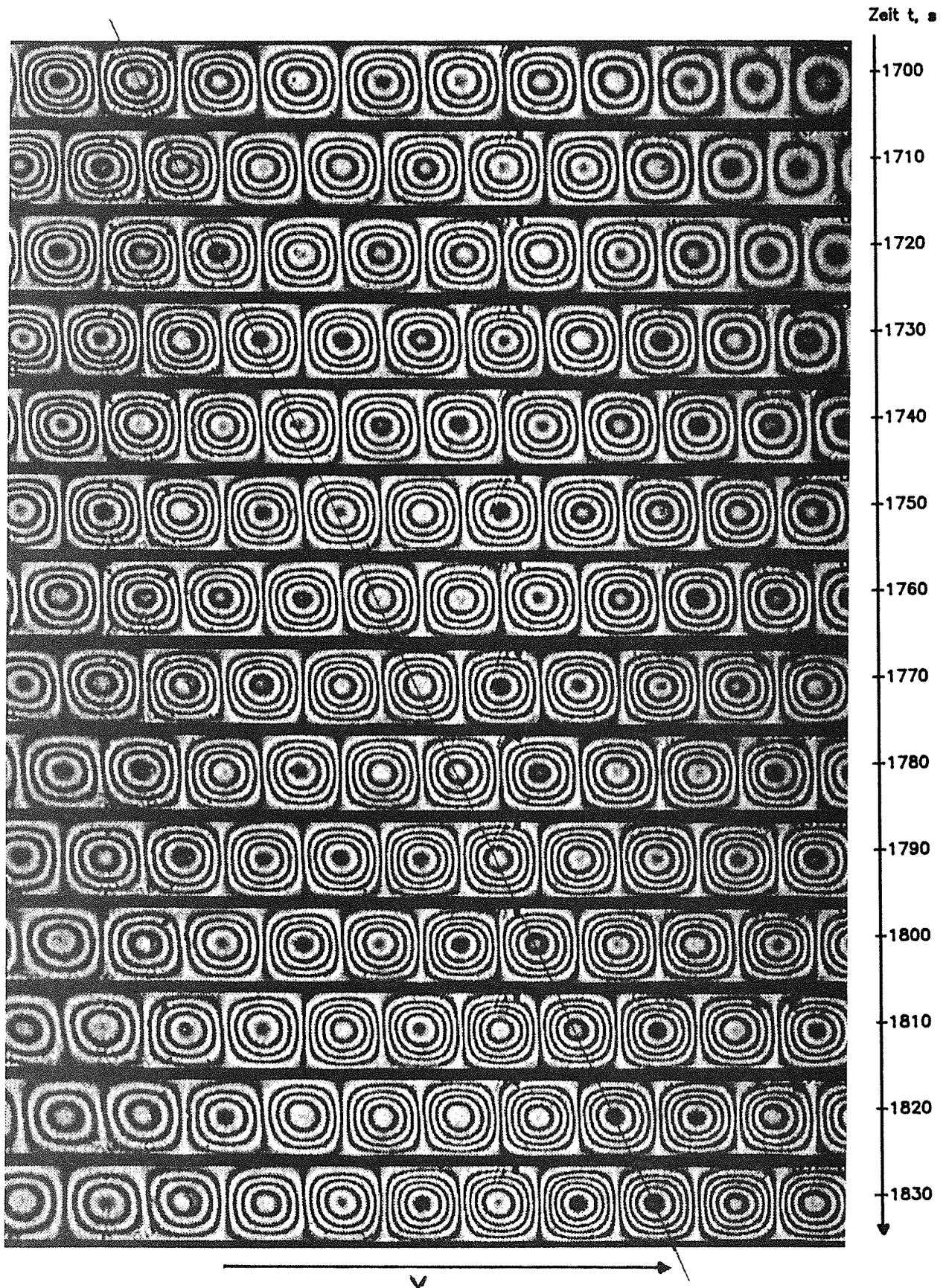


Abb. 4.6: Differentialinterferometeraufnahmen der in Abb. 4.4 dargestellten, nach rechts laufenden MTW im zeitlichen Abstand von jeweils $\Delta t = 10$ s.

4.3.3 Transiente Wanderwellenzustände (TW) und Störfrenten

Überschreitet die Amplitude der Temperaturschwankung einen bestimmten Schwellwert, so wächst sie exponentiell an. Es entsteht an einem Ende der Zelle oder an beiden Enden gleichzeitig eine Zone starker Konvektion. Im restlichen Bereich der Zelle führt die damit verbundene Absenkung von ΔT unter ΔT_c zum Übergang in den Wärmeleitungszustand. Das Ergebnis ist eine Störfrent. Die Übergangszone zwischen dem Wärmeleitungszustand und dem Konvektionszustand bewegt sich von der Seite her mit der Geschwindigkeit v_{Front} durch die Zelle. Die Konvektionsrollen laufen dabei entgegengesetzt zur Bewegungsrichtung der Übergangszone zwischen Wärmeleitung und Konvektion auf den Rand zu. Es handelt sich dabei um einen transienten Wanderwellenzustand (TW) mit einer Periodendauer τ_{trans} .

Die Abb. 4.7 und 4.8 zeigen anhand von lokalen Temperaturschwankungen am Thermoelement und von Differentialinterferometeraufnahmen das Durchwandern einer Störfrent von rechts nach links. Im zugehörigen Experiment wird über der Mischung mit $C = 8 \text{ wt } \% \text{ Äthanol}$ zur Zeit $t = 0$ die Temperaturdifferenz innerhalb von 2 Minuten von $6,88 \text{ K}$ auf $6,98 \text{ K}$ erhöht.

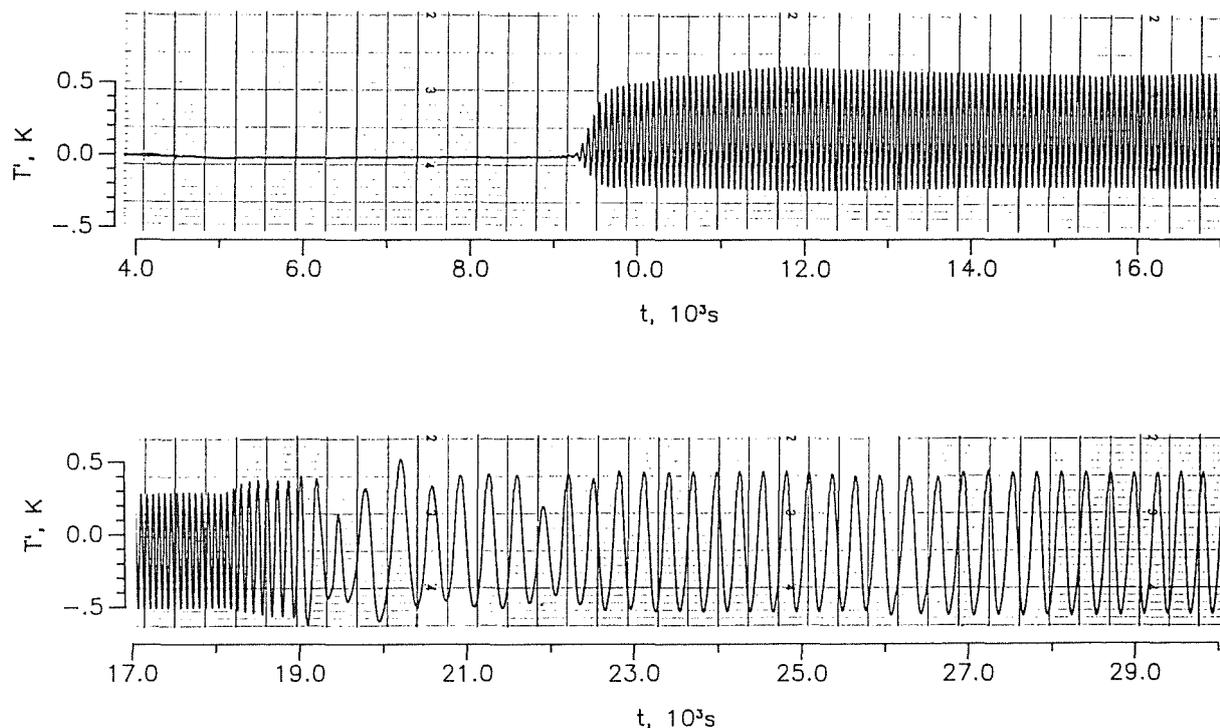


Abb. 4.7: Lokale Temperaturschwankung T' beim Einsetzen der Konvektion während des Durchlaufens der Störfrent ($t \geq 9 \cdot 10^3 \text{ s}$) und Übergang in den stabilen TW-Zustand ($t \geq 21 \cdot 10^3 \text{ s}$).

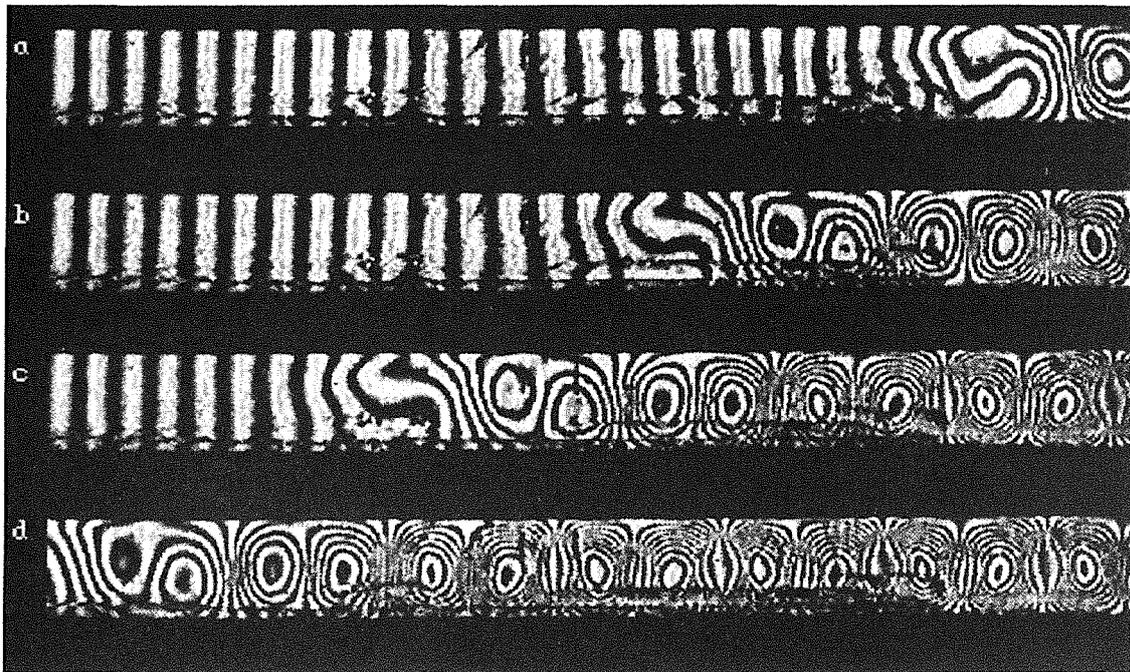


Abb. 4.8: Differentialinterferometeraufnahmen von Ausbreiten des transienten TW-Zustandes in den Wärmeleitungsbereich zu Zeiten a) $t = 5880$ s, b) $t = 6540$ s, c) $t = 7200$ s, d) $t = 8100$ s nach Änderung von ΔT .

Das Thermoelement in der Flüssigkeitsschicht registriert zuerst einige MTW-Zustände mit geringer Amplitude, von denen der letzte zur Zeit $t \approx 4 \cdot 10^3$ s das Thermoelement passiert (vgl. Abb. 4.7). Anschließend herrscht der Wärmeleitungszustand in der Zellmitte, bis zur Zeit $t \approx 9 \cdot 10^3$ s die Störfront das Thermoelement erreicht. Die Amplituden der Temperaturschwankung wachsen exponentiell an und zeigen bis $t \approx 18 \cdot 10^3$ s eine strenge Periodizität mit einer Periodendauer $\tau_{\text{trans}} \approx 71$ s. Während dieser Zeit befindet sich das Thermoelement im Gebiet der transienten, nach rechts laufenden Wanderwellen. Die Temperaturschwankungen liegen mit etwa 1 K bei etwa 15 % der gesamten anliegenden Temperaturdifferenz. Erreicht die Störfront nach der Zeit $t \approx 16,2 \cdot 10^3$ s den linken Rand, nehmen die Temperaturschwankungen noch zusätzlich um ca. 25 % zu. Zudem wird die Periodendauer länger und für $t \geq 22 \cdot 10^3$ s stellt sich ein stabiler Wanderwellenzustand ein, wie er in Kap. 4.3.4 im Detail beschrieben ist.

Die Differentialinterferometeraufnahmen mit horizontaler Strahlentrennung in Abb. 4.8 veranschaulichen das Vorbeiwandern der Störfront. Die Aufnahmen b, c und d zeigen die Störfront in einem festen Bereich der Meßkammer 660 s, 1320 s und 2220 s nach der Aufnahme von a. Die Geschwindigkeit der Störfront ergibt sich aus diesen Aufnahmen zu $v_{\text{Front}} \approx 12 \cdot 10^{-6}$ m/s. Der Zustand links von der Störfront, charakterisiert durch das vertikale Streifenmuster, entspricht dem

Wärmeleitungszustand, während hinter der Störfront intensive Konvektion sichtbar wird.

Durch geeignete Wahl der Temperaturänderung über ΔT_c ist es auch möglich, gleichzeitig an beiden Zellenden Störfronten anzufachen. Ein Beispiel zeigt die Abb. 4.9. In einer 15 wt %igen Mischung bei $\bar{T} = 5^\circ\text{C}$ wird ΔT innerhalb von 10 Minuten von 25,69 K auf 25,78 K geändert. Nach etwa $12,6 \cdot 10^3$ s erreichen zwei Störfronten nahezu gleichzeitig mit fast gleichen Geschwindigkeiten $v_{\text{Front}} = (24 \pm 2) \cdot 10^{-6}$ m/s die Zellmitte. Die Aufnahmen b, c und d in Abb. 4.9 zeigen das

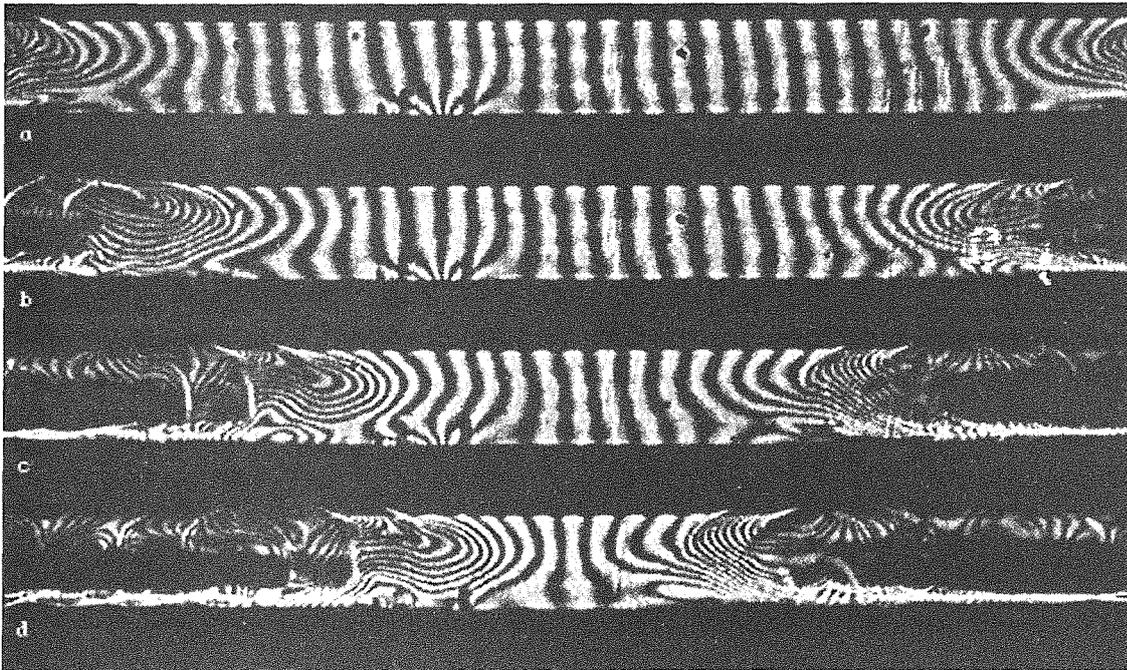


Abb. 4.9: Differentialinterferometeraufnahmen zweier aufeinander zu laufender Störfronten im zeitlichen Abstand von b) $t = 180$ s, c) $t = 360$ s, d) $t = 513$ s nach Bild a).

Zellzentrum 180 s, 360 s und 513 s nach der Aufnahme a. Die schlechte optische Qualität im Bereich der intensiven Konvektion wird durch Beugungseffekte aufgrund der großen Temperaturgradienten verursacht. Mit der Anpassung des Differentialinterferometers an den Wärmeleitungszustand ist deshalb eine Auflösung des TW-Bereichs nicht möglich. Nach dem Treffen der beiden Fronten erfolgt ein Übergang in stationäre Konvektion. In Experimenten mit höheren Mittentemperaturen setzt sich die geringfügig schnellere oder intensivere Störfront durch und es erfolgt ein Übergang in einen stabilen TW-Zustand.

4.3.4 Nichtlineare, stabile Wanderwellenzustände (TW)

In den Experimenten mit 8 bzw. 15 wt % Äthanol-Wasser-Mischungen bei $\bar{T} = 20\text{ °C}$ bzw. 10 °C geht der transiente Wanderwellenzustand (vgl. Kap. 4.3.3) nach einigen Stunden in einen stabilen Wanderwellenzustand (TW-Zustand) über. In diesem permanenten Zustand wandert das gesamte Konvektionsmuster mit deutlich verlangsamter Geschwindigkeit in horizontaler Richtung durch die Zelle.

Bei weiterer quasistationärer Erhöhung der Temperaturdifferenz nimmt die Periodendauer τ des stabilen TW-Zustandes kontinuierlich zu, bis schließlich die Bewegung zum Stillstand kommt ($\tau \rightarrow \infty$). Es stellt sich ein stationärer Konvektionszustand ein. Verringert man ΔT , so setzt der TW-Zustand erst bei einer deutlich kleineren Temperaturdifferenz ein, im Vergleich zu derjenigen, die den Übergang zur stationären Konvektion markiert. Es liegt hier ein ausgeprägter Hystereseeffekt vor.

Selbst bei Absenkung von ΔT unter den kritischen Wert für den Konvektionsbeginn ΔT_c wandert das Muster mit zunehmender Geschwindigkeit durch die Zelle. Gleichzeitig nimmt die Amplitude der Temperaturschwankung ab. Das bedeutet, daß auch der Übergang vom Wärmeleitungszustand in den Konvektionszustand durch eine Hysterese gekennzeichnet ist.

Der Existenzbereich des stabilen TW-Zustandes mit den Übergängen in die Zustände der Wärmeleitung und der stationären Konvektion ist in den Abbn. 4.10 und 4.11 dargestellt. Aufgetragen ist jeweils die gemessene Periodendauer τ über der mit Ra_{CO} normierten Rayleigh-Zahl $r = Ra/Ra_{CO}$. Dabei besitzt Ra_{CO} den Wert 1707,8, der sich im Falle einer reinen Flüssigkeit als kritischer Wert ergibt. Die Meßpunkte in Abb. 4.10 erhält man in einer Mischung mit 8 wt % Äthanol bei $\bar{T} = 20\text{ °C}$, die in Abb. 4.11 bei 15 wt % Äthanol und $\bar{T} = 10\text{ °C}$. Die graphisch angedeuteten kritischen Rayleigh-Zahlen für die Übergänge zwischen den Zuständen sind in Tab. 4.1 explizit angegeben.

Qualitativ zeigen beide Mischungen ein vergleichbares Stabilitätsverhalten. Quantitativ unterscheiden sie sich hauptsächlich in den Periodendauern und in der Bereichsgrenze für den Übergang in den Wärmeleitungszustand.

Die Abb. 4.12 zeigt die maximalen Amplituden der Temperaturschwankungen

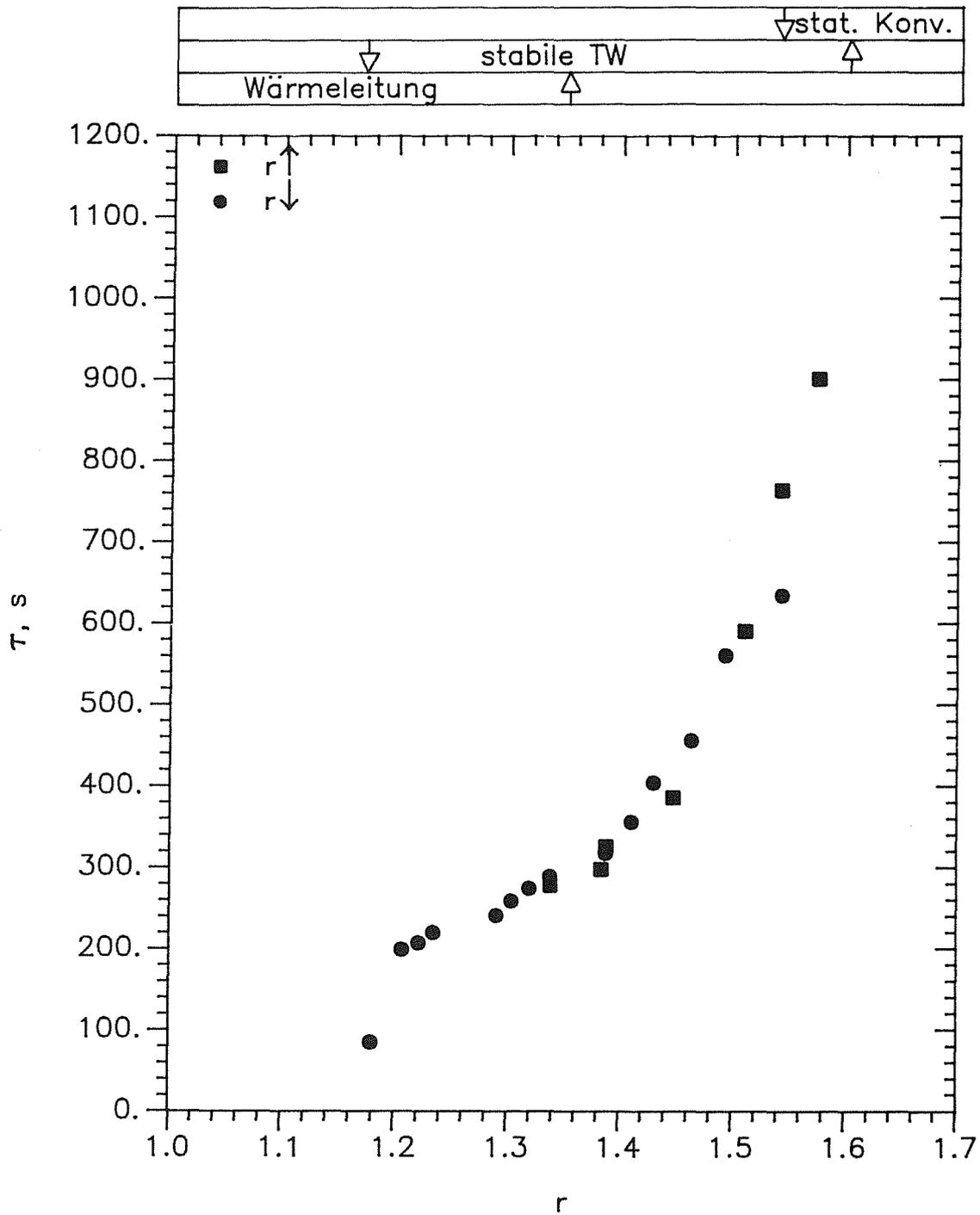


Abb. 4.10: Periodendauern τ des stabilen TW-Zustandes als Funktion der normierten Rayleigh-Zahl r für $C = 8$ wt % bei $T = 20$ °C.

T'_m am Thermoelement in der Fluidschicht als Funktion von r für die Mischung mit $C = 15$ wt % bei $\bar{T} = 10$ °C.

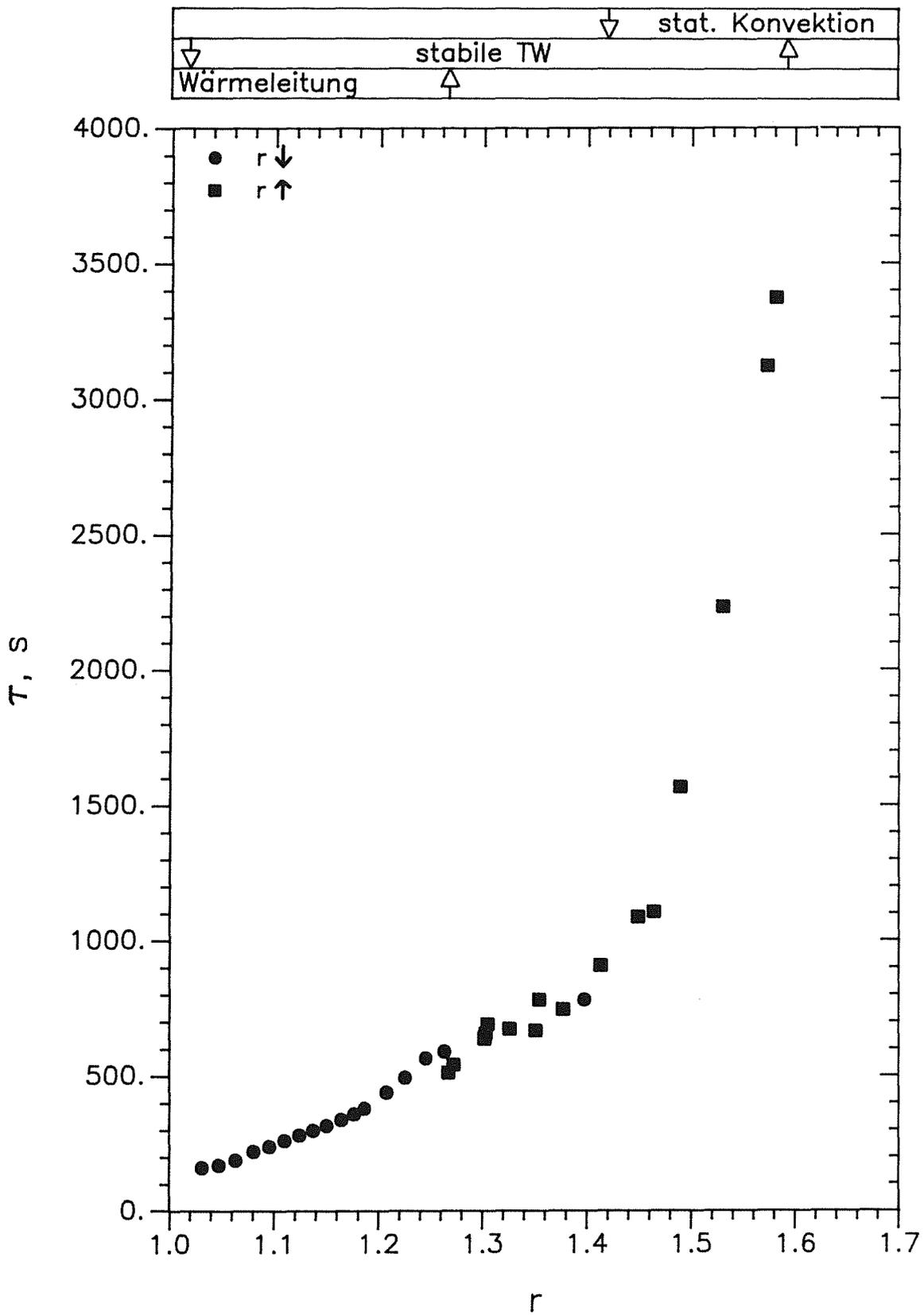


Abb. 4.11: Periodendauern τ des stabilen TW-Zustandes als Funktion der normierten Rayleigh-Zahl r für $C = 15 \text{ wt } \%$ bei $\bar{T} = 10^\circ\text{C}$.

	Übergang	$C_o = 8 \text{ wt } \%$ $\bar{T} = 20 \text{ }^\circ\text{C}$	$C_o = 15 \text{ wt } \%$ $\bar{T} = 10 \text{ }^\circ\text{C}$
$r \uparrow$	Wärmeleitung \rightarrow TW	1,35	1,27
	TW \rightarrow stationäre Konvektion	1,60	1,59
$r \downarrow$	Stationäre Konvektion \rightarrow TW	1,54	1,42
	TW \rightarrow Wärmeleitung	1,17	1,02

Tab. 4.1: Übersicht der kritischen Rayleigh-Zahlen r für die Übergänge zwischen den physikalischen Zuständen.

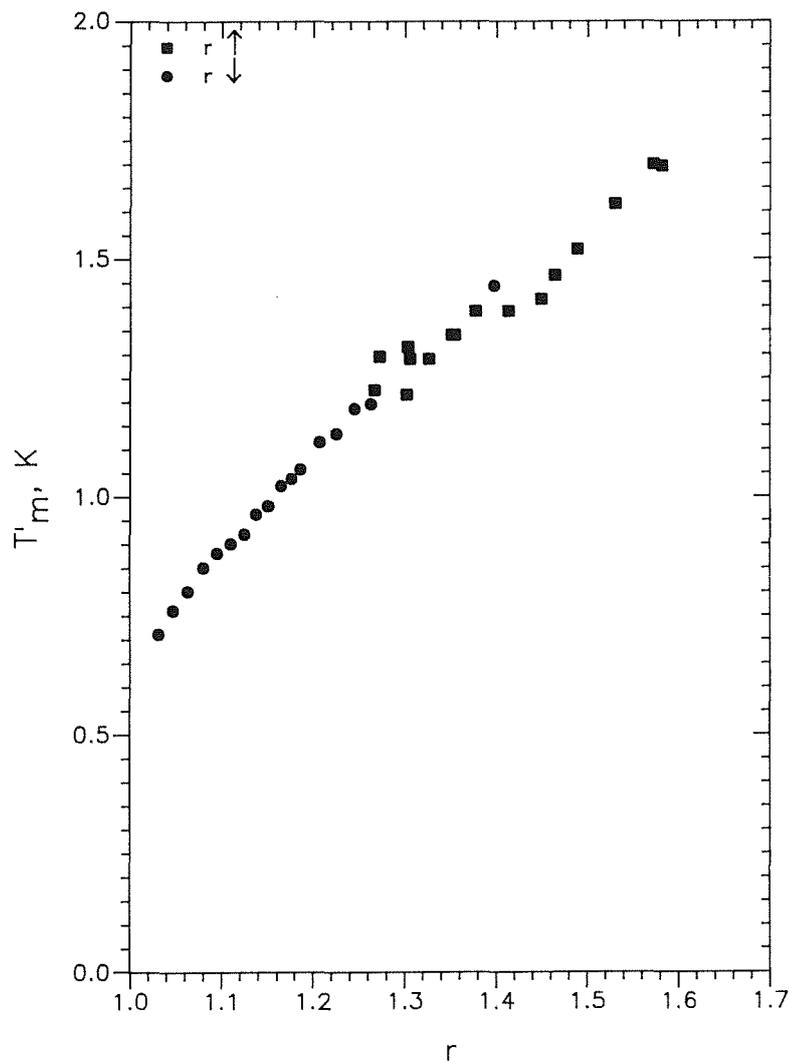


Abb. 4.12: Maximalamplitude der Temperaturschwankung T'_m als Funktion der normierten Rayleigh-Zahl r des stabilen TW-Zustandes für $C = 15 \text{ wt } \%$ bei $\bar{T} = 10 \text{ }^\circ\text{C}$.

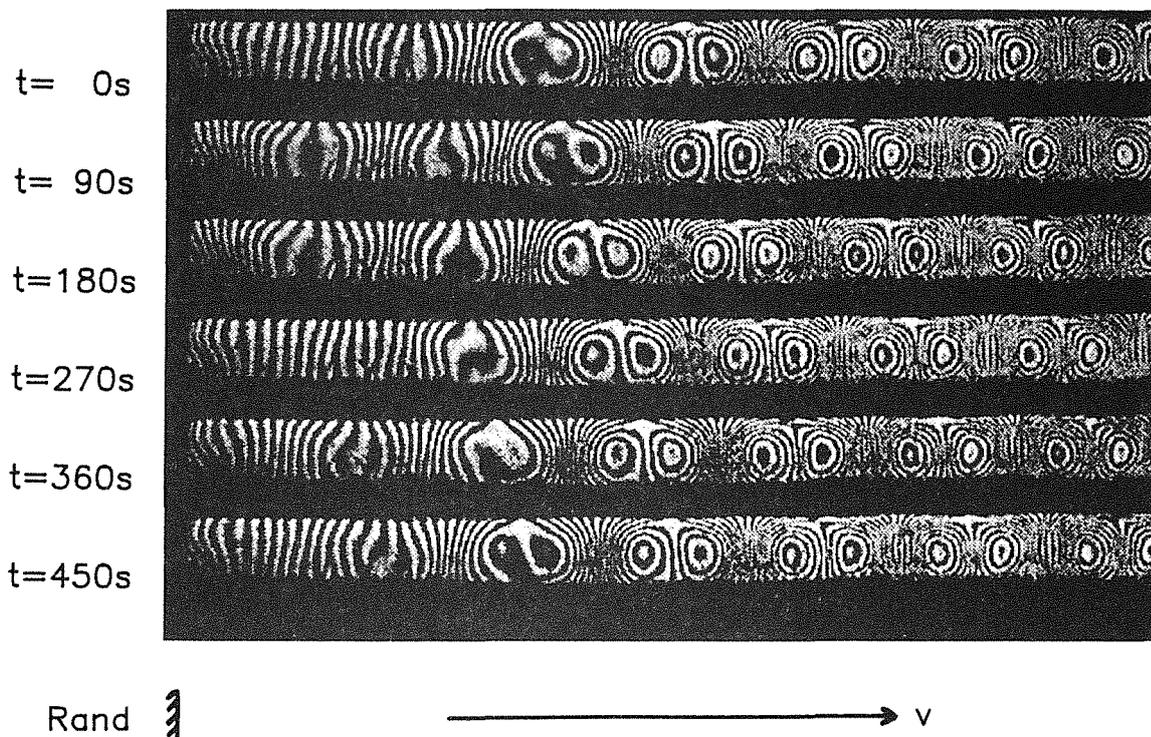


Abb. 4.13: Differentialinterferometeraufnahmen eines vom Rand weg laufenden TW-Zustandes mit zeitlichem Abstand von $\Delta t = 90$ s.

Die Abbildung 4.13 zeigt Differentialinterferometeraufnahmen des linken Endes der Meßkammer, in dem die TW entstehen. Die Aufnahmen sind in Zeitabständen von jeweils $\Delta t = 90$ s gemacht. Die angelegte Temperaturdifferenz beträgt $\Delta T = 7,00$ K, entsprechend einer Periodendauer von $\tau = 315$ s. Man erkennt, daß sich das Linienmuster in einem Bereich $l < h$ vom linken Rand weg kaum ändert. Die Linien sind nur schwach gegenüber dem Wärmeleitungs-zustand ausgelenkt. Innerhalb eines Übergangsbereiches $h \leq l \leq 10 h$ nimmt die Liniendichte im Interferogramm kontinuierlich zu, bis sie für $l \geq 10 h$ ihren Endwert erreicht hat. Gleichzeitig wächst auch die Wandergeschwindigkeit der Rollen in diesem Bereich von Null auf den Endwert an.

Die Abbildung 4.14 zeigt Aufnahmen des gleichen Meßkammerausschnittes in Zeitabständen von $\Delta t = 60$ s zwischen den einzelnen Bildern bei $\Delta T = 6,93$ K. Hier verschwinden die Konvektionsrollen am linken Rand. Eine Änderung der Liniendichte und der Geschwindigkeit der auf den Rand zulaufenden Rollen läßt sich nicht erkennen. Lediglich die Wellenlänge nimmt um weniger als 10% im Randbereich ab.

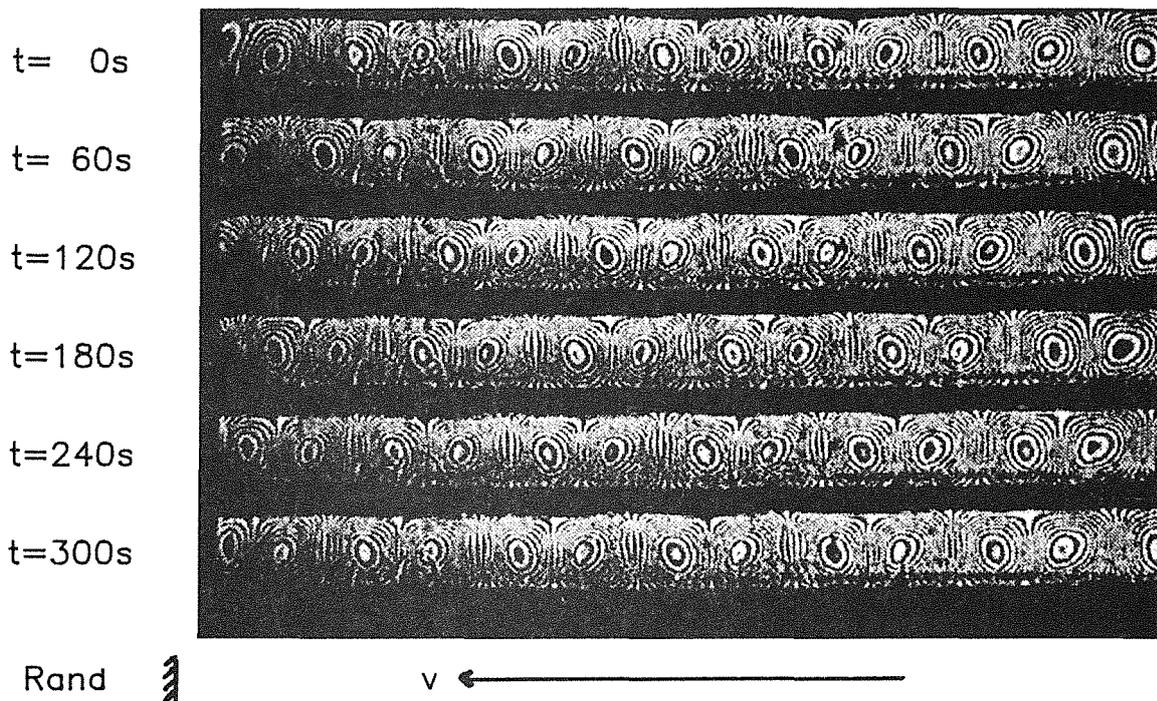
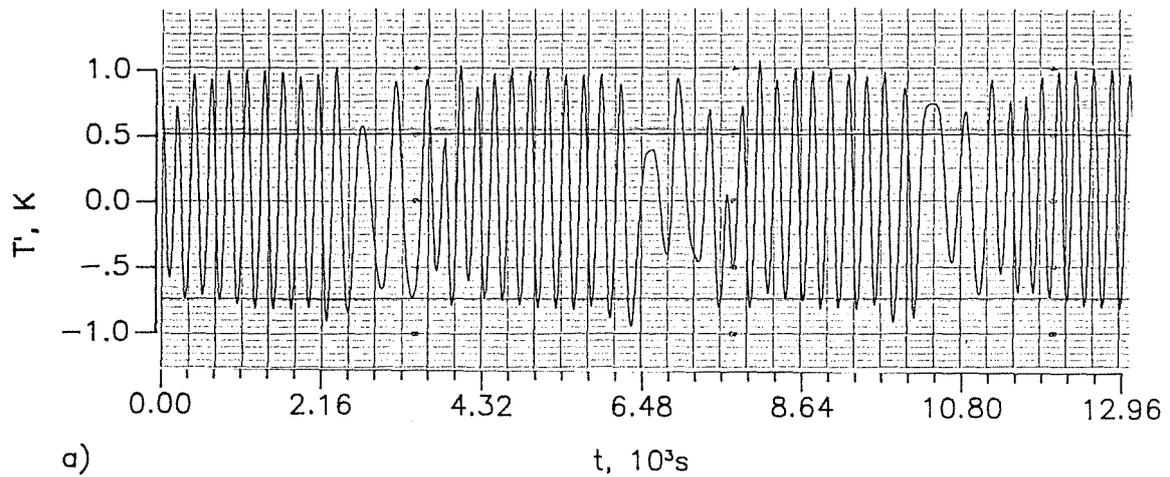
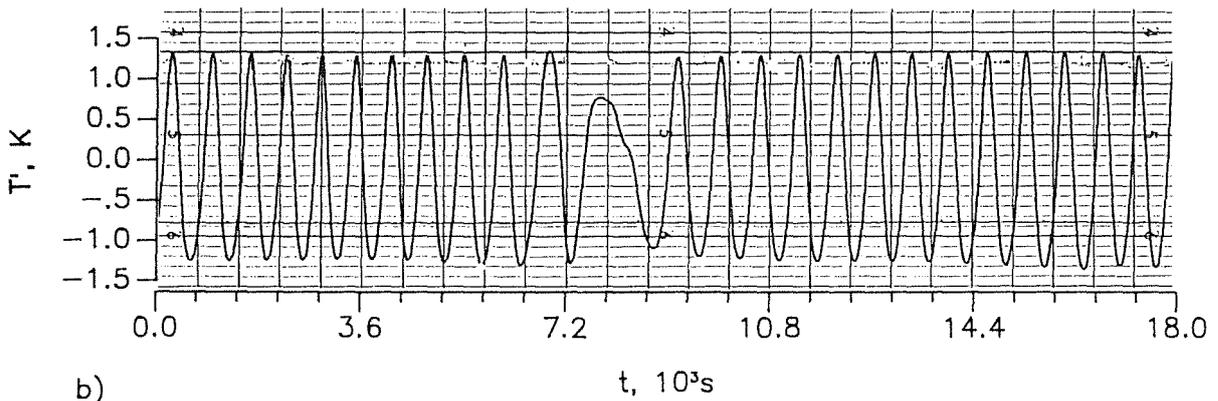


Abb. 4.14: Differentialinterferometeraufnahmen eines auf den Rand zu laufenden TW-Zustandes mit zeitlichem Abstand von $\Delta t = 60$ s.

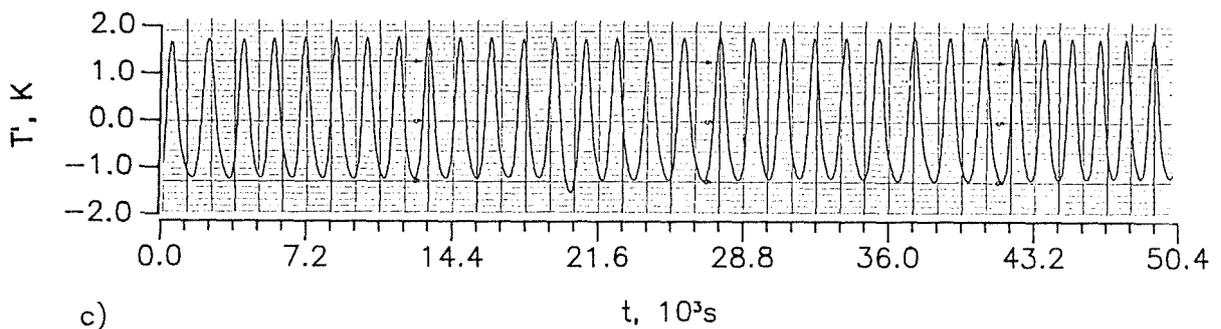
Der Zustand der stabilen Wanderwellen existiert für die 15 %ige Äthanol-Wasser-Mischung bei $\bar{T} = 10$ °C in einem Rayleigh-Zahl-Intervall von $1,02 \leq r \leq 1,59$ (vgl. Abb. 4.11). Die Abbn. 4.15a-c zeigen die lokalen Temperaturschwankungen T' bei a) $r = 1,10$, $\tau = 240$ s; b) $r = 1,30$, $\tau = 654$ s und c) $r = 1,49$, $\tau = 1550$ s. In den Abbn. 4.16a-c sind jeweils die zugehörigen Differentialinterferometeraufnahmen in Zeitabständen Δt von 60 s, 240 s bzw. 360 s abgebildet. In allen drei Fällen wandert das Muster von links nach rechts. Aus der Abb. 4.16 erkennt man, daß mit zunehmendem Wert von r die Liniendichte zunimmt. Die Verzerrung des Strömungsbildes in Abb. 4.16c wird durch Bewegungseffekte bei großen Temperaturdifferenzen verursacht (vgl. Kap. 4.2.2). Je kleiner r wird, umso unregelmäßiger wird das Rollenmuster. In Abb. 4.16a zeigen die Differentialinterferometeraufnahmen leichte Unsymmetrien. Außerdem schwanken die Wellenlängen um bis zu 10 %. Dieses Verhalten bestätigen auch die Temperaturschriebe in Abb. 4.15. Je größer r wird, umso gleichmäßiger ist das Thermoelementsignal sowohl in der Amplitude als auch in der Periodendauer. Im mittleren Teil des Existenzbereichs der stabilen Wanderwellen treten vereinzelt Konvektionsrollenpaare mit längerer Wellenlänge auf. Ein Beispiel für das Vorbeiwandern einer solchen Fehlstelle liefert die Abb. 4.15b. Die Wandergeschwindigkeit des gesamten Musters bleibt dabei unverändert.



a)



b)



c)

Abb. 4.15: Lokales Temperatursignal T' von stabilen TW-Zuständen für $C = 15$ wt % bei a) $r = 1,10$, $\tau = 240$ s; b) $r = 1,30$, $\tau = 654$ s; c) $r = 1,49$, $\tau = 1550$ s.

Je näher man an die untere Stabilitätsgrenze des TW-Zustandes kommt, umso schneller wandert das Muster. Gleichzeitig treten lokal unterschiedliche Wellenlängen auf. Die Abb. 4.15a zeigt, daß bei $r = 1,10$ nach etwa 9 gleich langen Periodendauern die Schwankungen unregelmäßiger und länger werden. Nach wie vor bewegt sich das Muster jedoch mit konstanter Geschwindigkeit durch die Zelle.

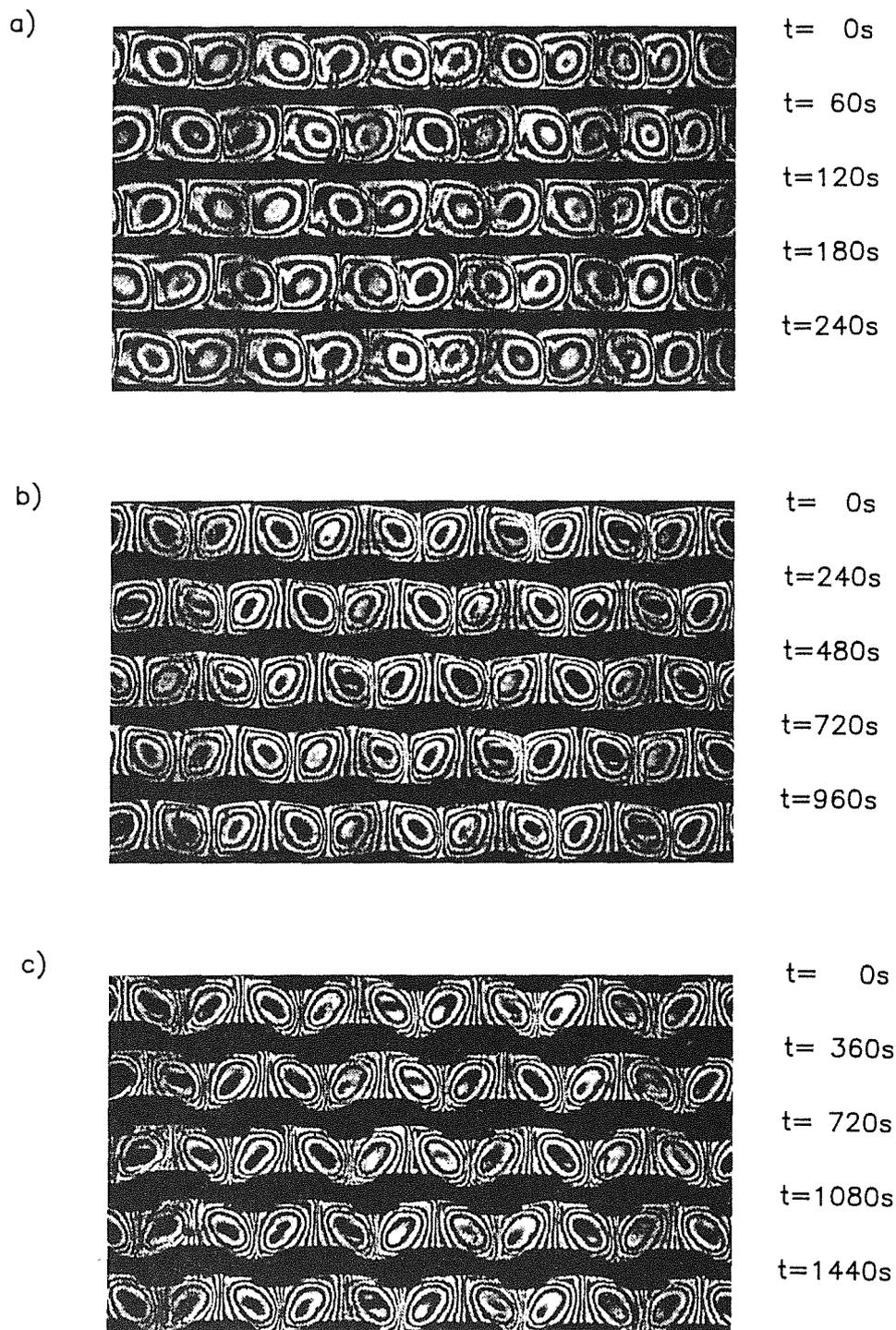


Abb. 4.16: Differentialinterferometeraufnahmen der in Abb. 4.15 dargestellten Zustände in Zeitabständen von a) $\Delta t = 60$ s, b) $\Delta t = 240$ s, c) $\Delta t = 360$ s.

Bei weiterer quasistationärer Erniedrigung von ΔT geht der stabile TW-Zustand bei $r = 1,02$ in den Wärmeleitungszustand über. Die Zeitgeschichte für den Übergang in den Wärmeleitungszustand ist in den Abb. 4.17 und 4.18 verdeutlicht. Die Differentialinterferometeraufnahmen in Abb. 4.17 zeigen einen Meßkammerausschnitt in Zeitabständen von $\Delta t = 20$ s. Man sieht, wie sich der Konvektionsbereich kontinuierlich nach links zurückzieht und vom stabilen Wärmeleitungszustand abgelöst wird. Der Übergangsbereich bewegt sich mit ca. $0,09$ mm/s nach links, die Periodendauer der letzten detektierbaren Wanderwellen, die ebenfalls nach links wandern, liegt bei $68,1$ s. Die Länge des Übergangsbereichs beträgt 2-3 Wellenlängen.

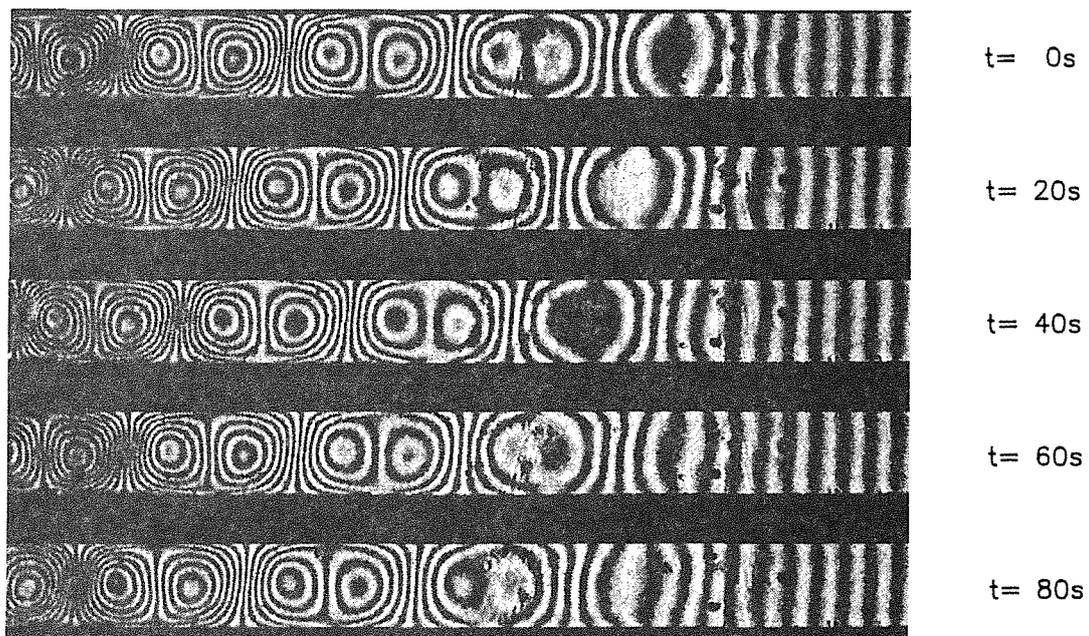


Abb. 4.17: Differentialinterferometeraufnahmen vom Übergang des TW-Zustandes in den Wärmeleitungszustand in Zeitabständen von $\Delta t = 20$ s.

Die Abb. 4.18 zeigt das zugehörige Temperatursignal. Zur Zeit $t = 0$ erfolgt eine Reduzierung von ΔT um $0,04$ K innerhalb von 1200 s. Zur Zeit $t \approx 7200$ s detektiert das Thermoelement die letzten periodischen Signale vor dem Übergang in den Wärmeleitungszustand. Die Periodendauer der letzten Konvektionsrollen liegt bei $\tau = 67,9$ s und entspricht dem aus der Abb. 4.17 gewonnenen Wert. Der Temperaturschrieb verdeutlicht, daß τ nach Unterschreiten der Stabilitätsgrenze des TW-Bereichs kontinuierlich zunimmt. Das Muster wandert immer schneller durch die Zelle. Schließlich nimmt jedoch die Amplitude der Temperaturschwankung T' stark ab und der Strömungszustand verschwindet bei einer endlichen Periodendauer. Es erfolgt ein Rücksprung in den Wärmeleitungszustand. Dies bedeutet,

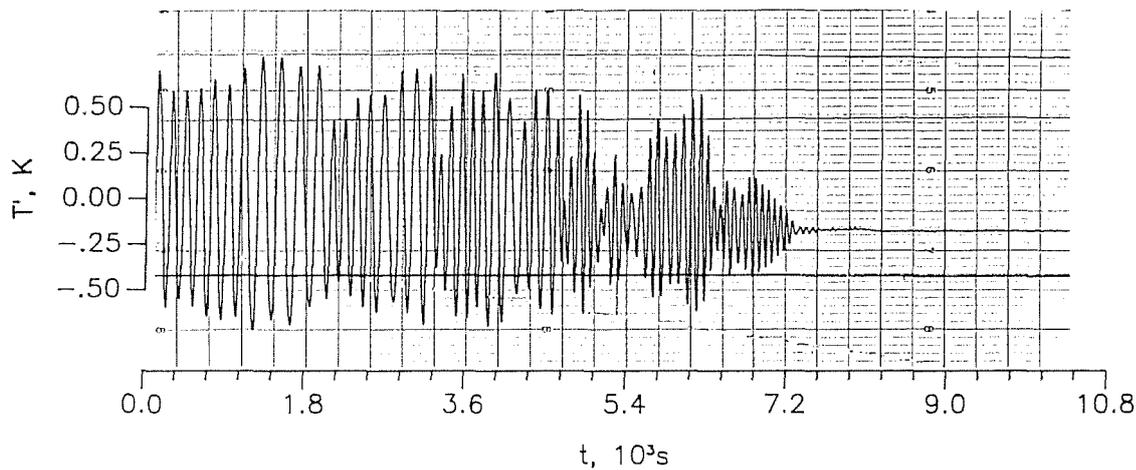


Abb. 4.18: Lokale Temperaturschwankung T' am Thermoelement beim Übergang in den Wärmeleitungszustand.

daß beim Übergang vom Wärmeleitungszustand in den TW-Zustand eine Hysterese auftritt.

Wie aus den Abbn. 4.9 und 4.10 ersichtlich ist, tritt auch beim Übergang des stabilen TW-Zustandes in den Zustand der stationären Konvektion eine Hysterese auf. Erhöht man quasistationär die Temperaturdifferenz über der Flüssigkeitsschicht über einen kritischen Wert ΔT_{C_2} , wird die Periodendauer des stabilen TW-Zustandes kontinuierlich länger, bis das Muster zum Stehen kommt. Bei Erniedrigung von ΔT bleibt der stationäre Strömungszustand noch bei Werten $\Delta T < \Delta T_{C_2}$ stabil, bis sich das Konvektionsmuster schließlich langsam in Bewegung setzt. Die Bewegungsrichtung ist zufällig, die Periodendauer entspricht dem bei Erhöhung von ΔT gefundenen Wert.

Die Rayleigh-Zahlen, bei denen in beiden Mischungen die Übergänge stattfinden, sind in Tab. 4.1 angegeben. Für die Mischung mit $C = 8\%$ Äthanol zeigen die Abbn. 4.19 und 4.20 das Verschwinden des zeitabhängigen Strömungszustandes sowie dessen Einsetzen anhand des lokalen Thermoelementsignals T' . Nach der Erhöhung der Temperaturdifferenz um $0,18\text{ K}$ zur Zeit $t = 0$ (Abb. 4.19) wird τ immer länger und geht bei $t \approx 23 \cdot 10^3\text{ s}$ gegen unendlich. In Abb. 4.20 wird ΔT bei $t = 0$ um $0,3\text{ K}$ erniedrigt. Nach der Zeit $t \approx 10^4\text{ s}$ deutet sich die Bewegung des Musters an und erreicht für $t > 2,4 \cdot 10^4\text{ s}$ den stabilen TW-Zustand mit konstanter Periodendauer.

Die Experimente in diesem Parameterbereich erfordern bei Periodendauern von vielen Minuten lange Meßzeiten. So braucht eine Konvektionsrolle über einen

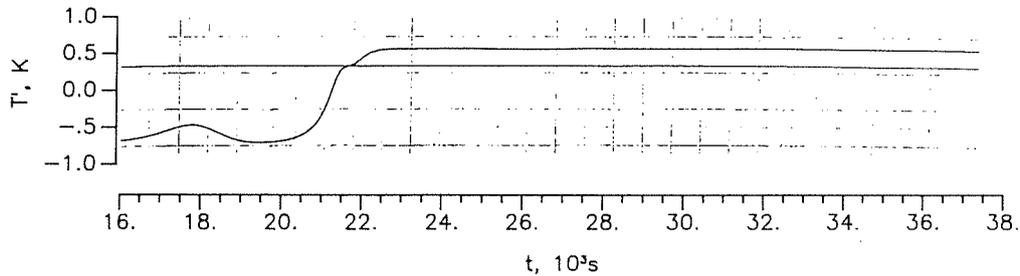
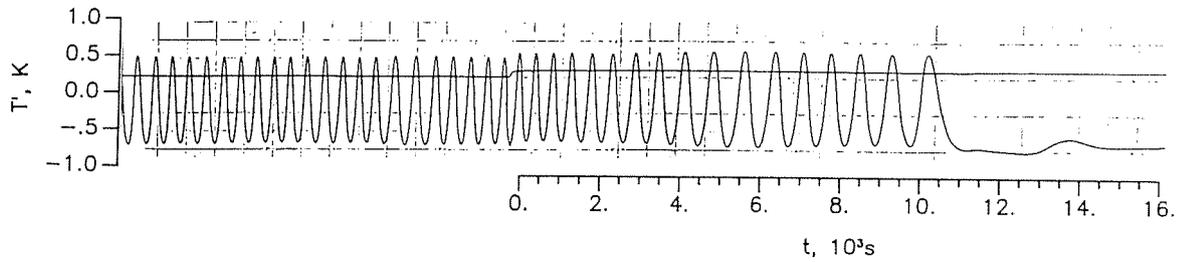


Abb. 4.19: Temperatursignal T' beim Übergang des TW-Zustandes in den Zustand stationärer Konvektion nach Änderung von ΔT zur Zeit $t = 0$.

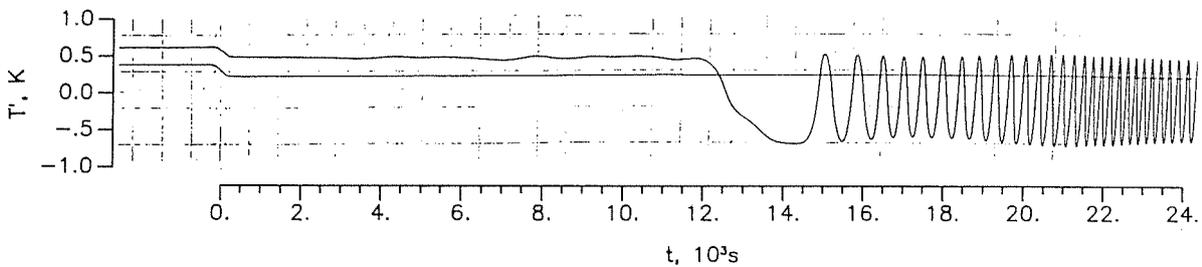


Abb. 4.20: Temperatursignal T' beim Einsetzen des TW-Zustandes aus dem Zustand stationärer Konvektion nach Änderung von ΔT zur Zeit $t = 0$.

Tag, um durch die gesamte Zelle zu wandern. Dies bedeutet, daß über viele Tage die Temperaturvorgaben der horizontalen Berandungen besonders exakt konstant bleiben müssen und keine Störungen aus der Umgebung auftreten dürfen.

4.3.5 Stationäre Konvektionszustände

Die Experimente mit einer Flüssigkeitsmischung bestehend aus 15 wt% Äthanol und Wasser bei $\bar{T} = 10 \text{ °C}$ zeigen, daß im Rayleigh-Zahl-Bereich $1,02 \leq r \leq 1,59$ ein stabiler Wanderwellenzustand möglich ist. Erniedrigt man bei den Messungen die mittlere Fluidtemperatur \bar{T} , so wird der Bereich, in dem stabile TW auftreten können, immer kleiner. Gleichzeitig wird das Konvektionsmuster unregelmäßiger.

Es treten vermehrt Konvektionsrollen mit unterschiedlichen Wellenlängen und Amplituden auf. Für $\bar{T} \cong 5 \text{ °C}$ existiert der Bereich der stabilen Wanderwellen nicht mehr.

Erhöht man im Experiment, das bei einer mittleren Temperatur von $\bar{T} = 5 \text{ °C}$ durchgeführt wird, die Temperaturdifferenz über der Fluidschicht über den kritischen Wert für das Einsetzen der Konvektion, so tritt bei $r = 1,89$ zuerst der transiente MTW-Zustand auf (vgl. Kap. 4.3.2). Anschließend folgt ein Übergangsbereich, in dem sich der transiente Wanderwellenzustand in der gesamten Meßkammer ausbreitet (vgl. Kap. 4.3.3). Hat sich im ganzen Meßvolumen eine gleichmäßige Konvektionsstruktur ausgebildet, kommt das Muster zum Stehen.

4.4 Diskussion der Meßergebnisse ohne Eis

4.4.1 Entstehungsmechanismus der Wanderwellen

Bei einer Flüssigkeitsmischung mit negativer Thermodiffusion, wie sie in den Experimenten verwendet wird, existiert ein vertikales Konzentrationsprofil in der Fluidschicht, das den Wärmeleitungszustand stabilisiert. Überschreitet die von außen angelegte Temperaturdifferenz ΔT über der Flüssigkeitsschicht einen kritischen Wert ΔT_c , so beginnt sich eine schwache Konvektionsströmung auszubilden. Wenn der Einfluß der endlichen Zellgeometrie vernachlässigt werden kann, erfolgt der Beginn der Konvektion gleichzeitig im gesamten Meßvolumen.

In den Aufstromgebieten steigt warmes, leichtes Fluid nach oben und in den Abstromgebieten sinkt kaltes, schweres Fluid nach unten. Wegen der räumlichen Periodizität der Strömungsstruktur in horizontaler Richtung kann das zugehörige Temperaturprofil in Form einer Temperaturwelle mit Wellenlänge λ beschrieben werden (vgl. Kap. 4.2.3).

Entscheidend für das Auftreten eines zeitabhängigen Konvektionsbeginns sind jetzt die unterschiedlichen Zeitskalen für Wärme- und Massentransport in der Flüssigkeitsschicht. Die Temperaturwelle bildet sich relativ schnell mit der thermischen Diffusionszeit $\tau_k = h^2/\kappa$ aus. Der Stofftransport aufgrund der molekularen Diffusion verläuft wesentlich langsamer mit der molekularen Diffusionszeit $\tau_D = h^2/D_m$ als charakteristischem Zeitmaßstab.

Steigt etwa ein warmes Fluidelement mit einer bestimmten Anfangstemperatur und -konzentration im Aufstrom nach oben, so gleicht sich seine Temperatur während der Bewegung weitgehend der Umgebungstemperatur an. Es findet jedoch kaum ein Konzentrationsausgleich statt. Dadurch baut sich ein Konzentrationsgradient zwischen dem Fluidelement und seiner Umgebung auf.

Beschreibt man die gesamte, horizontale Konzentrationsverteilung in Analogie zur Temperaturverteilung ebenfalls als Welle, so resultiert daraus eine Phasenverschiebung ψ_{TC} zwischen der Temperatur- und der Konzentrationswelle. Dies ist die Ursache für eine Wanderbewegung des gesamten Konvektionsmusters in horizontaler Richtung.

Das Auftreten der Phasenverschiebung zwischen Temperatur- und Konzentrationswellen beim Wanderwellenzustand finden Linz et al. (1988) auch bei ihren theoretischen Überlegungen. Sie lösen das Problem mit Hilfe eines 8-Moden Galerkin-Verfahrens. Dabei wird Haftbedingung und Undurchlässigkeit an den horizontalen Berandungen angenommen und damit die Kopplung von Temperatur- und Konzentrationsgradient ermöglicht. Als Ergebnis finden sie Phasenunterschiede zwischen den Feldern von Temperatur (T'), Konzentration (C') und Vertikalgeschwindigkeit (W') im TW-Zustand. So läuft die Temperaturwelle der Geschwindigkeitswelle nach (ψ_{WT}), während die Konzentrationswelle dieser vorausseilt (ψ_{WC}).

Die Abb. 4.21 zeigt qualitativ die räumliche Lage der drei Wellen mit ihren relativen Phasenverschiebungen zu einem festen Zeitpunkt.

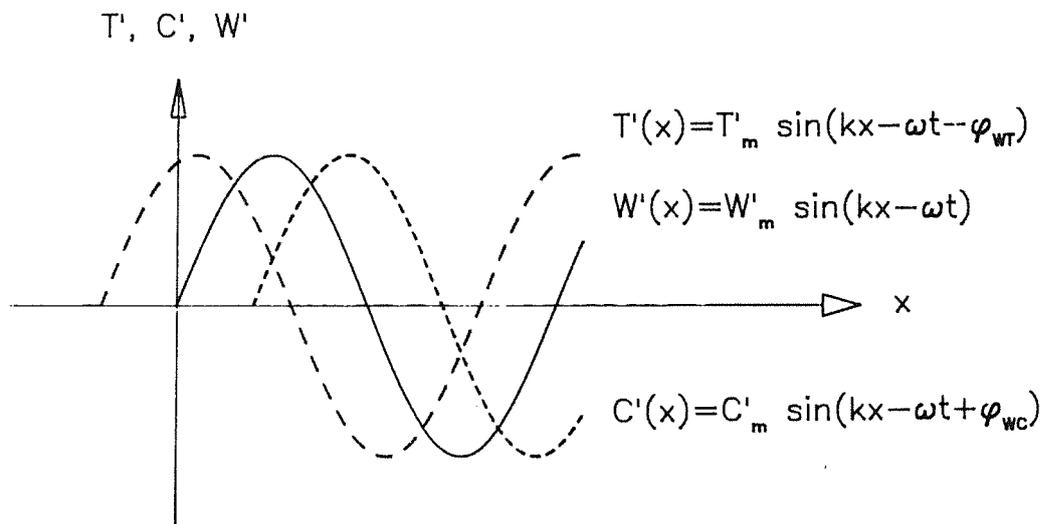


Abb. 4,21: Phasenverschiebung zwischen den Wellen für Temperatur (T'), Vertikalgeschwindigkeit (W') und Konzentration (C') im Wanderwellenzustand.

4.4.2 Lineare, amplitudenmodulierte Wanderwellenzustände (MTW)

4.4.2.1 Entstehungsmechanismus

In den Experimenten treten als erste zeitabhängige Strömungsformen lineare, amplitudenmodulierte Wanderwellen (MTW) auf. Ihre Struktur wird wesentlich von der endlichen Geometrie der Zelle und den nicht perfekt wärmeleitenden, horizontalen Kupferberandungen beeinflusst.

Die Teflonberandung an der Stirnseite der Meßzelle hat mit $\lambda = 0,25 \text{ W/mK}$ eine geringere Wärmeleitfähigkeit als die Flüssigkeit ($\lambda_F = 0,50 \text{ W/mK}$). Allgemein gilt, daß Ränder mit verminderter Wärmeleitfähigkeit die kritische Rayleigh-Zahl herabsetzen (Frick, Clever (1980)). Liegt also über der gesamten Zelllänge die Temperaturdifferenz ΔT an, so wird der Wärmeleitungszustand zuerst am schlechter wärmeleitenden Rand instabil. In diesem Endbereich bildet sich ein schwacher Konvektionszustand aus. Aufgrund der in Kapitel 4.4.1 beschriebenen Phasenverschiebung zwischen Temperatur- und Konzentrationswelle wandern die Konvektionsrollen mit konstanter Geschwindigkeit in das benachbarte Wärmeleitungsgebiet.

Durch die Anfachung der Konvektion wird gleichzeitig lokal der Wärmeübergang besser. Wegen der nicht perfekt wärmeleitenden Kupferberandung der

Zelle wird in der Folge ein leichter Abfall in der anliegenden Temperaturdifferenz beobachtet. Diese kann sogar wieder unter den kritischen Wert für das Einsetzen der Konvektion absinken. Damit nimmt die Amplitude der Temperaturschwankung T' wieder ab. Der vertikale Wärmetransport durch die Fluidschicht verschlechtert sich. So kann sich wieder der überkritische Temperaturgradient aufbauen, der für das Einsetzen der Konvektion im Endbereich verantwortlich ist. Die Konvektion wird erneut angefacht.

Das Ergebnis ist ein Konvektionsmuster, das in die Meßkammer hineinwandert. Dabei besitzen die Temperaturschwankungen der einzelnen Konvektionsrollen unterschiedliche Amplituden, hervorgerufen durch räumlich und zeitlich leicht unterschiedliche Temperaturdifferenzen über der Fluidschicht. Ein typisches Beispiel für die Amplitudenmodulation des MTW-Zustandes zeigt das Temperatursignal in Abb. 4.3.

Die Durchmischung der Flüssigkeit während der Konvektion baut den stabilisierenden Konzentrationsgradienten des Wärmeleitungszustandes immer weiter ab. Damit sinkt der kritische Wert ΔT_c für das Einsetzen der Konvektion ab. Bei gleichbleibender Temperaturdifferenz $\Delta T > \Delta T_c$ liegt somit eine zunehmend höhere, überkritische Temperaturdifferenz über der Flüssigkeitsschicht an. Die Folge ist eine Zunahme der Maximalamplituden der Temperaturschwankungen mit der Zeit (vgl. Abb. 4.3).

Dieser MTW-Zustand existiert so lange, bis die Amplitude der Temperaturschwankung einen bestimmten Schwellwert überschreitet. Ein Wegdämpfen der Konvektion ist jetzt nicht mehr möglich (vgl. Abb. 4.4). Es erfolgt der Übergang in einen transienten Übergangszustand.

Die Zeit, die bis zum Erreichen der Schwellamplitude vergeht, ist abhängig von der anfänglichen Temperaturstörung in ΔT beim Einsetzen der Konvektion. Bei knapp überkritischen Werten von ΔT findet nur eine sehr schwache Durchmischung der Flüssigkeit im MTW-Zustand statt. Damit wird das stabilisierende Konzentrationsprofil auch nur sehr langsam abgebaut. Je kleiner also die ΔT -Änderung zu Beginn ausfällt, um so länger existiert der transiente MTW-Zustand.

4.4.2.2 Vergleich mit der Theorie

Da bei den amplitudenmodulierten Wanderwellen die Konvektion sehr schwach ist, liegt es nahe, den Vergleich mit den Aussagen der linearen Störungstheorie (Kap. 2) zu suchen. In Tab. 4.2 sind für 8 und 15 %ige Äthanol-Wasser-Mischung bei 5 °C, 10 °C bzw. 20 °C die kritischen Rayleigh-Zahlen und die mit τ_K dimensionslos gemachten Periodendauern τ eingetragen. Gegenübergestellt sind jeweils die experimentell ermittelten Werte, die Ergebnisse aus den Näherungslösungen (Gl. (2.48) und Gl. (2.49)) sowie die mit SUPORE numerisch berechneten Werte.

Äthanolkonzentration C Temperatur \bar{T}		8 wt %	15 wt %	
		20 °C	10 °C	5 °C
$Ra_{c,osc}$	Experiment	2306	2166	3320
	Näherungslösung	2550	2669	2985
	SUPORE	2601	2673	2940
τ/τ_K	Experiment	0,507	0,401	0,362
	Näherungslösung	0,432	0,381	0,352
	SUPORE	0,442	0,399	0,376

Tab. 4.2.: Vergleich der kritischen Rayleigh-Zahlen und der dimensionslosen Periodendauern τ/τ_K von Theorie und Experiment

Es fällt auf, daß die Näherungslösung und die mit dem Programm SUPORE berechneten Werte gut übereinstimmen. Die Unterschiede liegen darin begründet, daß für die Näherungslösung ein lineares, stationäres Konzentrationsprofil im Wärmeleitungszustand angenommen wird und wegen der Voraussetzung $Le \ll 1$ der Einfluß der Lewis-Zahl vernachlässigbar ist.

Die Unterschiede in den kritischen Rayleigh-Zahlen und die Periodendauern zwischen den Rechnungen und den Experimenten lassen sich durch folgende Einflüsse erklären: Eine wichtige Fehlerquelle ist die Unsicherheit bei der Bestimmung von Ψ . Der Sorét-Koeffizient läßt sich nur schwer experimentell bestimmen und Unterschiede in S_0 bis zu einem Faktor 2 sind keine Seltenheit (vgl. Kolodner et al. (1988c)). Häufig wird Ψ deshalb indirekt aus der kritischen

Rayleigh-Zahl für den Konvektionsbeginn über die Gln. (2.48) und (2.49) bestimmt (vgl. z.B. Walden et al. (1985)). Dabei wird die Gültigkeit der linearen Näherung (vgl. Kap. 2.7) vorausgesetzt und der Einfluß der endlichen Abmessungen der verwendeten Meßzellen vernachlässigt. Verwendet man etwa bei 8 %iger Mischung und $\bar{T} = 20\text{ °C}$ den Wert $\Psi = -0,27$ anstelle von $\Psi = -0,35$, so stimmen $Ra_{c,osc}$ und τ von Experiment und Näherung besser als auf 2 % überein.

Die unterschiedlichen Werte von Ra und τ in Experiment und Rechnung sind auch auf den Einfluß der Stirnseiten der Zelle zurückzuführen. Im Experiment zeigt sich, daß immer zuerst am Rand die Instabilität ausgelöst wird. In einer unendlich ausgedehnten Schicht läge damit auch $Ra_{c,osc}$ höher. Dies ist ein Grund dafür, daß in den Experimenten bei $\bar{T} = 10\text{ °C}$ und $\bar{T} = 20\text{ °C}$ die gemessenen Werte $Ra_{c,osc}$ niedriger liegen als die berechneten, während gleichzeitig die gemessenen τ -Werte größer sind.

Bei den Experimenten bei $\bar{T} = 5\text{ °C}$ spielen Nichtlinearitäten in der vertikalen Dichteverteilung eine entscheidende Rolle (vgl. Kap. 7.1.3). Allgemein gilt (Veronis (1963), Musman (1968), Antar (1987)), daß dies zu einem vertikalen Dichteprofil in der Flüssigkeit führt, das das System stabilisiert. Deshalb liegen die kritischen Rayleigh-Zahlen $Ra_{c,osc}$ im Experiment höher als von der linearen Theorie unter Annahme der Boussinesq-Approximation vorhergesagt.

4.4.3 Transiente Wanderwellen und Störfront

Ursache für die Ausbildung der Störfront ist die Tatsache, daß die Amplitude der Temperaturstörung im Endbereich der Zelle einen bestimmten Schwellwert überschreitet. Es bildet sich ein Bereich starker Konvektion aus. Damit hat der Randbereich keinen entscheidenden Einfluß auf den Strömungszustand in der Flüssigkeit mehr. Dagegen wird jetzt die Übergangszone zwischen Wärmeleitung und Konvektion wichtig.

In dieser Übergangszone existieren relativ große horizontale Temperaturgradienten, die einen horizontalen Wärmeaustausch bedingen. Dieser Übergangsbereich stellt einen quasi-freien seitlichen Rand für den Konvektionszustand dar. Der Wärmeleitungsbereich ist wegen der Wirkung des Sorét-Effektes stabilisiert. Deshalb gelingt ein Vordringen der gesamten Übergangszone in den Wärmeleitungsbereich nur langsam. Gleichzeitig läuft das Konvektionsmuster

von der Übergangszone weg und als TW mit konstanter Geschwindigkeit durch die Meßkammer.

Zur Verdeutlichung der Vorgänge im Kopf der Störfrent dienen die Differentialinterferometeraufnahmen in Abb. 4.22. Sie zeigen eine von links mit der

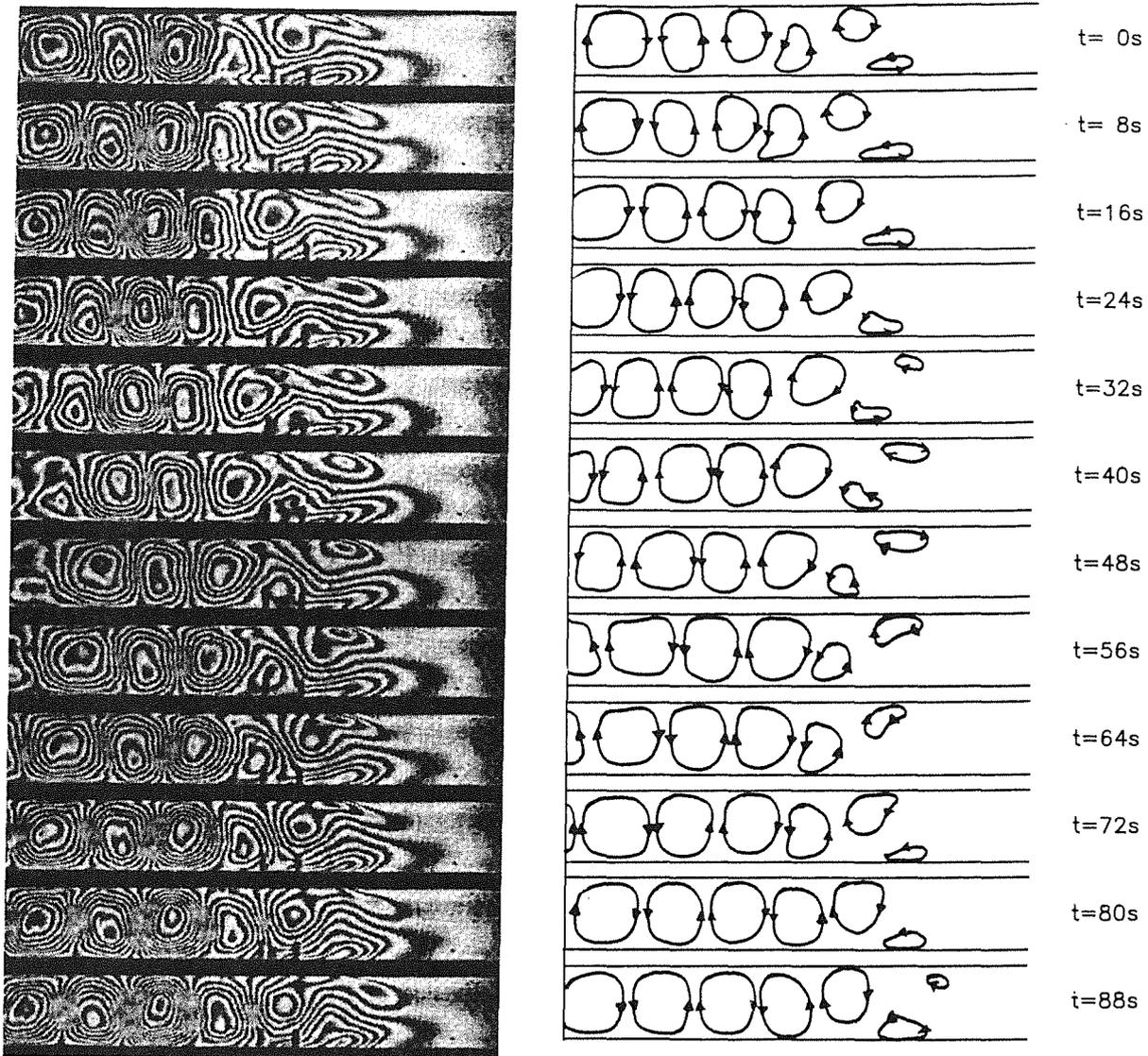


Abb. 4.22: Differentialinterferometeraufnahmen und zugehöriges, qualitatives Stromlinienbild der nach rechts laufenden Störfrent und den nach links wandernden, transienten TW in Zeitabständen von $\Delta t = 8$ s.

Geschwindigkeit $v_{\text{Front}} \approx 10^{-5}$ m/s kommende Störfrent mit regelmäßigen, nach rechts laufenden TW. In der 15 wt %igen Äthanol-Wasser-Mischung bei $\bar{T} = 10$ °C beträgt die Periodendauer $\tau_{\text{trans}} \approx 86$ s. Die Aufnahmen liegen jeweils 8 s

auseinander und dokumentieren etwas mehr als eine Periode der TW. Im rechten Teil von Abb. 4.22 sind die qualitativen Strömungskonfigurationen eingezeichnet, wie sie sich aus der Interpretation von Differentialinterferogrammen nach Bühler (1979) ergeben. Man erkennt, daß abwechselnd im unteren bzw. oberen Teil der Zelle Konvektionsrollen in der Übergangszone zwischen Konvektion und Wärmeleitung angefacht werden. Sie nehmen an Größe zu, bis sie die gesamte Zellhöhe ausfüllen. Durch Scherströmung wird im Übergangsbereich zum Wärmeleitungszustand immer mehr ruhendes Fluid in die Konvektionsbewegung einbezogen und die nächste, gegensinnig drehende Konvektionsrolle erzeugt. Dieser Mechanismus breitet sich mit der Geschwindigkeit v_{Front} langsam in den stabilen Wärmeleitungszustand hinein aus, während die erzeugten Rollenpaare von der Störfront weglaufen.

Solange im Übergangsbereich zwischen Wärmeleitungs- und Konvektionszustand ein quasi-freier Rand existiert, ist die Periodendauer der transienten Wanderwellen konstant. Erreicht die Störfront das gegenüberliegende Ende der Meßkammer, kommt es zu einer Erhöhung der Reibung der Konvektionsrollen an der festen Berandung. Außerdem existiert kein angrenzender Wärmeleitungszustand mehr, der ruhendes Fluid für die Erzeugung von Rollenpaaren zur Verfügung stellt. Die Folge ist eine Verlängerung der Periodendauer, wie sie etwa in Abb. 4.7 im Zeitintervall $18 \cdot 10^3 \text{ s} < t < 21 \cdot 10^3 \text{ s}$ beobachtet wird.

4.4.4 Nichtlineare, stabile Wanderwellen (TW)

Im Anschluß an den transienten Übergangsbereich, der durch das Auftreten einer Störfront charakterisiert ist (vgl. Kap. 4.3.3), geht das System in einen stabilen, nichtlinearen Wanderwellenzustand über. Bei konstant gehaltener Temperaturdifferenz ΔT existiert er beliebig lang. Die Ursache für die Ausbildung des stabilen TW-Zustandes ist das in Kap. 4.4.1 beschriebene Auftreten einer Phasenverschiebung zwischen der Temperatur- und der Konzentrationswelle. Es handelt sich dabei um einen Effekt, der im gesamten Meßvolumen auftritt und nicht etwa durch die endliche Zellgeometrie bedingt ist.

Den Einfluß der festen Berandungen an den Stirnseiten des Meßvolumens auf den TW-Zustand zeigen die Abbn. 4.13 und 4.14. Aus der Abb. 4.13 erkennt man, daß sich das Konvektionsmuster in Laufrichtung der TW nach eine Lauflänge von $l \leq 10 \text{ h}$ voll ausgebildet hat und mit konstanter Geschwindigkeit in die Meßkammer wandert. Am entgegengesetzten Ende des Meßvolumens verschwinden die

TW. Die Interferogramme lassen keine Änderung der Liniendichte erkennen. Nur die Wellenlänge der Konvektionsrollen nimmt zum Rand hin um etwa 10 % ab.

Diese Ergebnisse stimmen gut mit theoretischen Aussagen überein: Cross (1986b, 1988) untersucht das Reflektionsverhalten von langsamen TW an seitlichen Rändern. Bei der Überlagerung von rechts- und linkslaufenden Wanderwellen in langen Meßkammern ergibt sich fast in der gesamten Zelle ein TW-Zustand mit ausgezeichneter Wanderrichtung. Nur in den Endbereichen führt die Überlagerung der Wellen zu teilweiser Auslöschung bis hin zu stehendem Muster direkt am Rand. An der Seite, an der die TW entstehen, ist die Wanderwelle etwa nach einer Lauflänge von $l \approx 10 h$ voll ausgeprägt, während der Randeinfluß des gegenüberliegenden Endes typischerweise $5 h$ in die Zelle hineinreicht. Dieses Verhalten wird im Experiment bestätigt (vgl. Abbn. 4.13 und 4.14).

Diese experimentell gefundenen Ergebnisse stimmen ebenfalls gut mit den theoretischen Aussagen von Deane et al. (1988) überein. Zweidimensionale Rechnungen in Zellen mit großem Längen- zu Höhenverhältnis sagen die Entstehung von Rollen in einer Zone am Rand vorher, die fast in Ruhe ist. Von ihr aus wandern die Konvektionsrollen durch die Zelle zur gegenüberliegenden Berandung, an der sie reflektiert werden und in einer kleinen Randzone stehende Wellen bilden können.

Für die Abschätzung der typischen Zeitskala des TW-Zustandes liefern weder thermische noch molekulare Diffusionszeiten die richtige Größenordnung. Deshalb wird hier eine physikalische Modellvorstellung entwickelt, die auf Arbeiten von Rhines, Young (1983) und Shraiman (1987) basiert. Für die Fluidbewegung innerhalb einer Konvektionsrolle ist die Umlaufzeit $\tau_U = h/U$ entscheidend. Hierin sind U die mittlere Strömungsgeschwindigkeit und h die Zellhöhe als charakteristischer Längenmaßstab. Für den molekularen Stofftransport ist dagegen die molekulare Diffusionszeit $\tau_D = h^2/D_m$ typisch. Aus beiden Zeitmaßstäben, die sich um Größenordnungen unterscheiden, läßt sich als Kennzahl die Peclet-Zahl

$$Pe = \frac{\tau_D}{\tau_U} = \frac{h U}{D_m} \quad (4.3)$$

bilden, wobei gilt: $Pe \gg 1$. Dies bedeutet, daß der konvektive Stofftransport viel schneller abläuft als der diffusive.

Rhines, Young (1983) und Shraiman (1987) finden, daß sich im Berührungsbereich zweier benachbarter Konvektionsrollen eine Art Grenzschicht ausbildet. Die Dicke der Grenzschicht δ läßt sich aus der Transportgleichung (Gl. (2.4d)) abschätzen. Vernachlässigt man den Einfluß des Temperaturgradienten auf den molekularen Stoffaustausch zwischen den benachbarten Konvektionsrollen, so wird der Stofftransport in der Grenzschicht beschrieben durch die Gleichung

$$\frac{\partial C}{\partial t} + U \frac{\partial C}{\partial z} = D_m \nabla^2 C \quad (4.4)$$

Nimmt man an, daß sich am Rande der Grenzschicht der konvektive und diffusive Stofftransport die Waage halten, ergibt sich folgende Abhängigkeit der normierten Grenzschichtdicke δ/h von der Péclet-Zahl:

$$\frac{\delta}{h} \sim Pe^{-1/2} \quad (4.5)$$

Die Zeitskala für die Vermischung innerhalb der Grenzschicht ergibt sich aus der Lösung von Gl. (4.4). Rhines und Young (1983) erhalten eine charakteristische Zeitabhängigkeit der Konzentration der Form

$$C(t) \sim \exp \left[-\frac{t}{\tau_D} - \left(\frac{t}{\tau_{mix}} \right)^3 \right] \quad (4.6)$$

Dabei ist Vermischungszeit τ_{mix} gegeben durch

$$\tau_{mix} = Pe^{1/3} \tau_U = Pe^{-2/3} \tau_D \quad (4.7)$$

Für die vorherrschenden großen Peclet-Zahlen wird also das Zeitverhalten des durch die Beziehung (4.6) beschriebenen Stofftransports fast ausschließlich von der Zeit τ_{mix} bestimmt.

Wie bereits bemerkt, ist es gerade der horizontale Konzentrationsgradient an den Rollengrenzen, der in binären Mischungen für die Wanderbewegung verantwortlich ist. Deshalb wird τ_{mix} als relevanter Zeitmaßstab für die Periodendauer der Wanderwellen vorgeschlagen.

Die im Experiment mit Tracern bestimmte typische Umlaufzeit in einer Konvektionsrolle liegt bei den hier verwendeten Flüssigkeitsmischungen bei $\tau_U \approx 10^2$ s.

Die mit der Schichthöhe h gebildete molekulare Diffusionszeit liegt bei $\tau_D \approx 1,5 \cdot 10^4$ s, die Péclet-Zahl bei 150. Damit ergibt sich als Zeitmaßstab $\tau_{\text{mix}} \approx 8,9$ Minuten. Dies entspricht der Größenordnung der im Experiment detektierten Periodendauern der stabilen TW-Zustände (vgl. Abb. 4.11).

Die Periodendauer τ des stabilen TW-Zustandes nimmt bei Erhöhung der treibenden Temperaturdifferenz zu (vgl. Abbn. 4.10 und 4.11). Dieses Verhalten wird auch von Walden et al. (1985), Surko et al. (1986), Kolodner et al. (1988b) und Steinberg, Moses (1987) experimentell beobachtet. Theoretisch finden Knobloch (1985, 1986a) und Knobloch et al. (1986) bei Erhöhung der Rayleigh-Zahl einen monotonen Abfall der Wandergeschwindigkeit auf den Wert Null. Grundlage ihrer Überlegungen ist ein zweidimensionales Modell mit nicht verschwindendem Massenstrom an den horizontalen Berandungen, sowie Translations- und Reflektionssymmetrie bezüglich der horizontalen Richtung. Keiner der Autoren gibt eine Erklärung für die Abhängigkeit der Periodendauer τ von der Rayleigh-Zahl. Hier wird folgende Interpretation gegeben:

Auf der Basis der Überlegungen von Linz et al. (1988) ist die Ursache für eine Bewegung des Rollenmusters die relative Phasenverschiebung von Temperatur-, Konzentrations- und Geschwindigkeitsfeld. Die Phasenverschiebungen sind direkt beim Einsetzen der Konvektion am größten. Je weiter man die Rayleigh-Zahl erhöht, umso geringer werden die Phasenunterschiede. Gleichzeitig nimmt die Amplitude der Konzentrationswelle ab. Die langsamere Wanderbewegung des Konvektionsmusters erlaubt einen zunehmenden Konzentrationsausgleich in horizontaler Richtung. Dadurch reduzieren sich auch die treibenden, horizontalen Gradienten an den Rändern der Konvektionsrollen, die die Wanderbewegung verursachen. Grenzfall ist der Übergang in die stationäre Konvektion. Dort oszillieren das Temperatur- und das Geschwindigkeitsfeld exakt in Phase. Die Konzentrationsunterschiede in horizontaler Richtung sind wegen der guten Durchmischung der Flüssigkeit nur noch sehr gering.

Bei Reduzierung der Rayleigh-Zahl unter den kritischen Wert für den Beginn der Konvektion werden die Phasenunterschiede immer größer, das Muster wandert schneller, bis schließlich der Sprung in den Wärmeleitungszustand stattfindet.

Zur quantitativen Einordnung der Meßergebnisse in Abb. 4.10 sei ein Vergleich mit Experimenten von Walden et al. (1985) angefügt: Beide Experimente werden mit 8 % Äthanol-Wasser-Mischung bei $\bar{T} = 20$ °C durchgeführt. In beiden Ex-

perimenten tritt Hysterese bei den Übergängen vom Wärmeleitung in den TW-Zustand und vom TW-Zustand in den Zustand der stationären Konvektion auf. Die Meßkammer von Walden et al. ist 49 mm lang, 23 mm breit und 5,2 mm hoch. Damit ist sie deutlich kürzer und höher als die hier verwendete Meßkammer. Dies führt aufgrund der Randeinflüsse zu einer höheren kritischen Rayleigh-Zahl $r_c = 1,48$. Die Randvorgabe des Wärmestromes anstelle konstanter Temperatur liefert unterschiedliche Transienten beim Einsetzen der Konvektion (vgl. Villers, Platten (1984)). Der TW-Zustand existiert im Bereich $1,17 < r < 1,44$. Die Ursache dafür ist die dreidimensionale Strömungsstruktur bei Walden et al. Die Konvektionsrollen laufen von einer Ecke quer durch die Zelle zur gegenüberliegenden Ecke und nicht parallel zu den seitlichen Berandungen.

Die Periodendauern des TW-Zustandes in den Experimenten von Walden et al. (1985) und in diesen Experimenten sind vergleichbar. Bei Walden et al. liegen sie im Rayleigh-Zahl-Intervall $1,2 \leq r \leq 1,44$ zwischen 1000 s und 4000 s. In diesem Experiment werden im Rayleigh-Zahl-Bereich $1,2 \leq r \leq 1,54$ Periodendauern von $240 \text{ s} \leq \tau \leq 900 \text{ s}$ gemessen. Um die Periodendauern der beiden unterschiedlich hohen Meßkammern vergleichen zu können, werden sich mit den entsprechenden thermischen Diffusionszeiten τ_k der beiden Meßvolumina skaliert. Die so normierten Periodendauern liegen bei Walden et al. im Bereich $4,6 \geq \tau/\tau_k \geq 18,3$ und in diesem Experiment im Intervall $3,4 \geq \tau/\tau_k \geq 12,7$. Diese grobe Abschätzung in einem Bereich, in dem Nichtlinearitäten eine entscheidende Rolle spielen, führt zu einer guten Übereinstimmung der normierten Periodendauern in beiden Meßkammern. Daraus ist zu schließen, daß Periodendauern, die in Experimenten mit unterschiedlichen Flüssigkeitshöhen gemessen werden, bei entsprechender Skalierung mit den thermischen Diffusionszeiten τ_k vergleichbar sind.

Die Abb. 4.15a-c zeigen die lokalen Temperaturschwankungen T' für stabile TW-Zustände bei verschiedenen Rayleigh-Zahlen. Dabei fällt auf, daß die Temperatursignale T' mit abnehmender Rayleigh-Zahl unregelmäßiger werden. Je größer jedoch der Wert der Rayleigh-Zahl wird, um so gleichmäßiger wird das Temperatursignal.

Die Erklärung für dieses Meßergebnis ist in den Phasenverschiebungen von Temperatur-, Konvektions- und Geschwindigkeitsschleife zu suchen. Je größer die Rayleigh-Zahl r wird, umso kleiner werden die Phasenunterschiede und umso langsamer bewegt sich das Muster. Damit bleibt bei Periodendauern von vielen Minuten für die Strömung ausreichend Zeit, ein gleichmäßiges und regelmäßi-

ges Konvektionsmuster auszubilden. Wird r kleiner, nehmen die Phasenunterschiede zu. Gleichzeitig bedeutet dies ein immer schnelleres Wandern des Musters durch die Zelle. Entsteht aufgrund lokal unterschiedlicher Gradienten ein etwas kürzeres oder längeres Konvektionsrollenpaar, bleibt während der Wanderung durch die Zelle zu wenig Zeit, die Wellenlänge anzupassen. Bei $r = 1,10$ benötigt eine Konvektionsrolle lediglich 2,1 Stunden, um durch die gesamte Meßkammer zu laufen. Die molekulare Diffusionszeit τ_D , gebildet mit der Zelhöhe h , ist jedoch fast dreimal so lange. Damit ist naheliegend, daß sich Temperaturfluktuationen im Zeitmaßstab der thermischen Diffusionszeit τ_K zwar wegdämpfen, nicht jedoch Konzentrationsschwankungen.

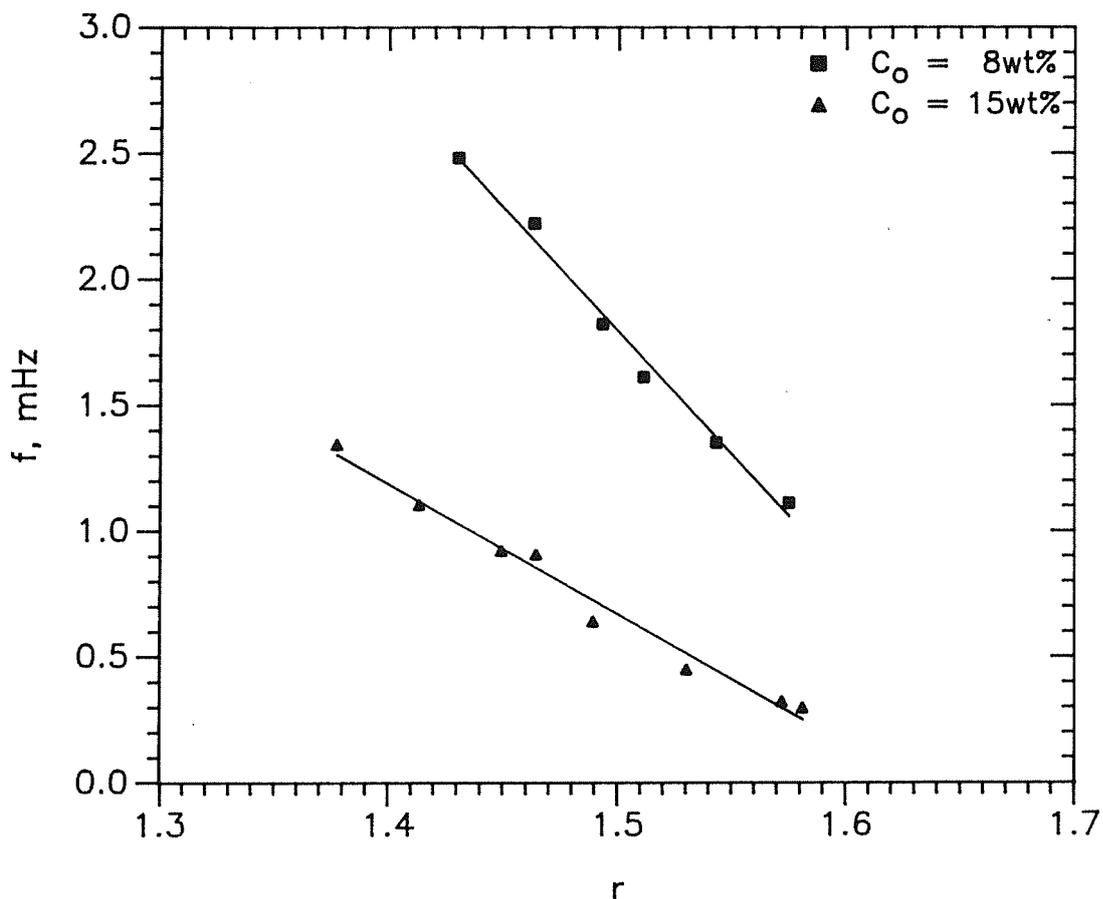


Abb. 4.23: Abhängigkeit der TW-Frequenz f von der Rayleigh-Zahl r nahe dem Übergang in stationäre Konvektion.

Erhöht man die Rayleigh-Zahl, so wird die Periodendauer τ immer länger. Die Abb. 4.23 zeigt die Frequenz $f = 1/\tau$ der Wanderwellen als Funktion der normierten Rayleigh-Zahl r für den Übergangsbereich zur stationären Konvektion. Man findet ein lineares Verhalten der Form $f(r) = a - br$ für beide Mischungen. Für $C = 8\%$ ergibt sich $a = 16,49$, $b = 9,8$, für $C = 15\%$ erhält man $a = 8,44$ und

$b = 5,19$. In den Experimenten erfolgt nach dem quasistationärem Erhöhen von r über den jeweils letzten eingetragenen Meßpunkt hinaus ein transienter Übergang in den stationären Zustand (vgl. Abb. 4.19). Dieser Sprung ist nicht auf äußere Störungen zurückzuführen, sondern systeminhärent. Hystereseverhalten und linearer Zusammenhang von f und r werden auch von Moses, Steinberg (1986) experimentell für $\Psi \approx -0,1$ bestätigt. In theoretische Arbeiten von Knobloch (1986b), Knobloch et al. (1986) und Deane et al. (1987) wird dies ebenfalls vorhergesagt.

4.4.5 Verzweigungsdiagramm

Aufgrund der experimentellen Beobachtungen in der Mischung mit 15 % Äthanol in Wasser bei $\bar{T} = 10^\circ\text{C}$ wird ein Verzweigungsdiagramm vorgeschlagen, wie es die Abb. 4.24 zeigt. Aufgetragen sind qualitativ die maximalen Amplituden der Temperaturstörungen der stabilen Zustände als Funktion der bezogenen Rayleigh-Zahl r .

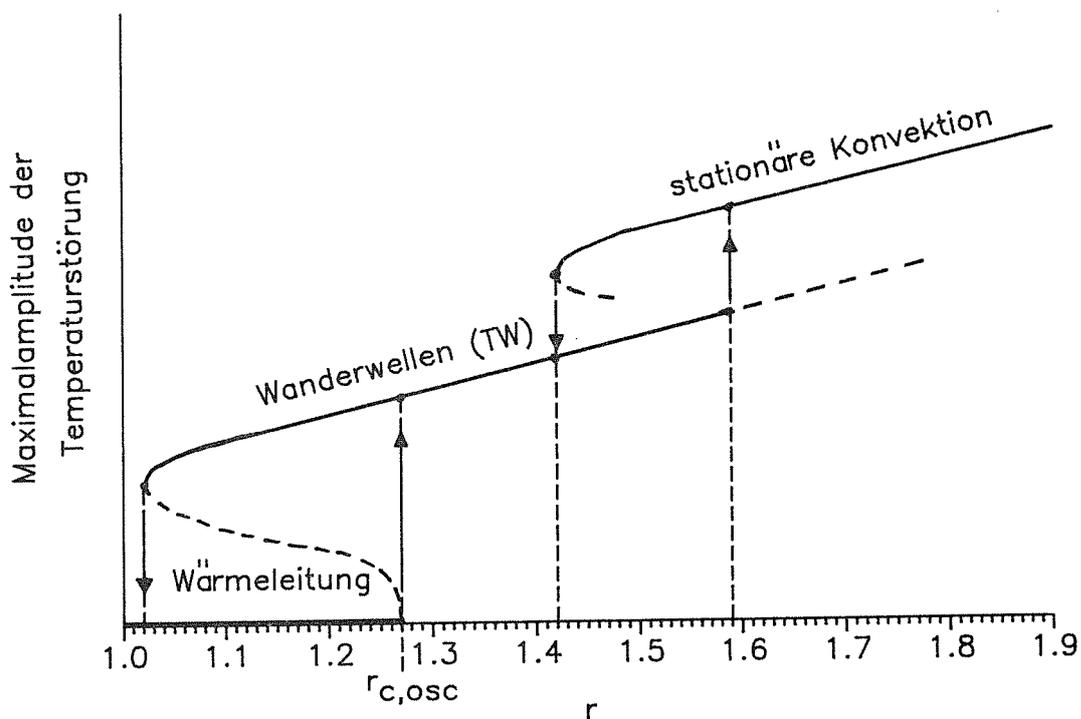


Abb. 4.24: Verzweigungsdiagramm für 15 wt %ige Äthanol-Wasser-Mischung bei $T = 10^\circ\text{C}$.

Im Wärmeleitungszustand existieren a priori keine Störungen. Die Zustände der stabilen Wanderwellen und der stationären Konvektion können durch eine Temperaturwelle der Form $T'(x,t) = T'_m \sin(kx - \omega t)$ beschrieben werden (vgl. Kap. 4.2.3), wobei die maximale Amplitude der Temperaturstörung durch den Wert T'_m gegeben ist.

Der Übergang des Wärmeleitungszustandes in den Zustand der stabilen, nichtlinearen Wanderwellen zeigt eine deutliche Hysterese. Bei quasistationärer Erhöhung der Rayleigh-Zahl erfolgt bei $r_{c,osc} = 1,27$ der Übergang in den TW-Zustand. Erniedrigt man den Wert von r , bleibt der TW-Zustand bis zu $r = 1,02$ erhalten. Erst hier erfolgt der Rücksprung in den Wärmeleitungsgrundzustand. Dies bedeutet, daß die periodische TW-Lösung im Hopfpunkt $r_{c,osc}$ unterkritisch aus der Wärmeleitlösung abzweigt. Nach Hopf (1942) existiert an dieser Stelle ein konjugiert komplexes Eigenwertpaar mit verschwindendem Realteil. Nach genau dieser Lösung wird bei der numerischen Lösung (vgl. Kap. 3) gesucht, da dort als Nebenbedingung $\omega_r \equiv 0$ gilt. Die Abzweigung ist unterkritisch, weil wegen des auftretenden Hystereseeffektes auch für $r < r_{c,osc}$ noch stabile, periodische Wanderwellen existieren. Die untere Stabilitätsgrenze des TW-Zustandes ($r = 1,02$) wird als Umkehrpunkt ("turning point") bezeichnet (vgl. Shirer (1987)).

Auch der Übergang des stabilen Wanderwellenzustandes in den Zustand der stationären Konvektion ist durch eine Hysterese gekennzeichnet. Bei $r = 1,59$ reicht eine kleine Störung aus, um das sehr langsam wandernde Konvektionsmuster zum Stehen zu bringen. Bei Reduzierung der Rayleigh-Zahl im Zustand der stationären Konvektion bedarf es eines deutlich niedrigeren Wertes für r , um eine Wanderbewegung des Rollenmusters auszulösen. Der Übergang erfolgt erst bei $r = 1,42$. Die kritische Rayleigh-Zahl für die stationäre Lösung, die mit der linearen Theorie ermittelt werden kann, liegt bei weit größeren Werten von r . Um den Anschluß der Stabilitätskurve der stationären Konvektion an diese kritische Rayleigh-Zahl herzustellen, muß bei $r = 1,42$ ebenfalls ein Umkehrpunkt existieren.

4.4.6 Stationäre Konvektionszustände

In den Experimenten mit einer 15%igen Äthanol-Wasser-Mischung wird unterhalb einer Mittentemperatur von $\bar{T} = 5^\circ\text{C}$ kein stabiler Wanderwellenzustand gefunden (vgl. Kap. 4.3.5). Als Ursache für die Unterdrückung eines stabilen TW-Zustandes werden nichtlineare Effekte vermutet. Erniedrigt man die Experimen-

tiertemperatur, so wird die Abhängigkeit der Dichte von der Temperatur zunehmend nichtlinear (vgl. Kap. 7.1.3). Damit spielen nicht-Boussinesqsche Eigenschaften eine Rolle. Dadurch wird der Aufbau einer gleichmäßigen Phasenverschiebung zwischen der Temperatur- und Konzentrationsverteilung in der gesamten Meßkammer verhindert. Eine einheitliche Wanderbewegung des Konvektionsmusters ist nicht mehr möglich und der stationäre Konvektionszustand wird bevorzugt.

4.5 Meßergebnisse in Flüssigkeitsmischungen unter der Wirkung dünner Eisschichten

4.5.1 Lineare, amplitudenmodulierte Wanderwellenzustände (MTW)

In diesen Experimenten wird das Einsetzen der Konvektion in einer 15 wt%igen Äthanol-Wasser-Mischung in Abhängigkeit von verschiedenen Eisdicken an der oberen Berandung der Meßkammer untersucht.

Ausgehend vom Wärmeleitungszustand wird die Temperatur T_o der oberen Berandung quasistationär unter den Schmelzpunkt abgesenkt und so eine homogene, ebene Eisschicht im oberen Teil der Zelle erzeugt. Anschließend wird T_u in Stufen von $0,4\text{ °C}$ innerhalb von 30 Minuten erhöht. Zwischen den einzelnen Temperaturänderungen liegen immer einige Stunden Wartezeit, um wieder thermisches Gleichgewicht im Meßvolumen herzustellen. Bei Überschreiten von ΔT_c in der Flüssigkeitsschicht beginnt dort zeitabhängige Konvektion in Form von MTWs. Die Temperatur des oberen Randes wird dabei im Bereich $T_s = -7,6\text{ °C} > T_o > -16,65\text{ °C}$ variiert. Die Eisdicke im Wärmeleitungszustand kurz vor Konvektionsbeginn liegt zwischen $0 < h_s < 0,87\text{ mm}$.

Die Abb. 4.25 zeigt das Temperatursignal eines typischen MTW-Zustandes unter einer Eisschicht. Bis zur Zeit $t = 0$ liegt der stabile Wärmeleitungszustand in der Flüssigkeitsschicht vor. Die Eisdicke im oberen Teil der Zelle beträgt für dieses Beispiel $h_s = 0,11 \pm 0,02\text{ mm}$. Zur Zeit $t = 0$ wird innerhalb von 30 Minuten die Temperatur des unteren Randes von $T_u = 16,49\text{ °C}$ auf $16,97\text{ °C}$ erhöht. Die Temperaturdifferenz über der gesamten Zelle steigt dabei von $\Delta T = 25,58\text{ °C}$ auf $\Delta T = 26,02\text{ °C}$ an. Nach 30 Minuten erreicht bereits die erste periodische Temperaturstörung das Thermoelement in der Zellmitte und der erste schwache MTW-Zustand wird detektiert. In Abb. 4.25 sind noch weitere MTW mit zunehmenden Maximalamplituden zu erkennen. Die Periodendauer τ beträgt $29,3\text{ s}$.

Einen optischen Eindruck vom Strömungszustand liefern die fünf Differentialinterferogramme in Abb. 4.26. Sie zeigen einen festen Zellausschnitt im Zeitabstand von jeweils $\Delta t = 5\text{ s}$. Die Dicke der Eisschicht beträgt $h_s = 0,30 \pm 0,02\text{ mm}$; die Randtemperaturen liegen bei $T_u = 19,20\text{ }^\circ\text{C}$ und $T_o = -10,38\text{ }^\circ\text{C}$. Die Periodendauer, die sich sowohl aus der Auswertung des zugehörigen Thermoelementsignals als auch aus der mit dem Differentialinterferometer sichtbar gemachten Bewegung des Musters nach rechts ergibt, liegt bei $\tau = 26,3\text{ s}$.

Die Liniendichte ist im linken Teil der Abb. 4.26 größer als im rechten Teil. Dies deutet darauf hin, daß sich ein MTW-Zustand mit zunehmender Amplitude von links her in den Bildausschnitt schiebt.

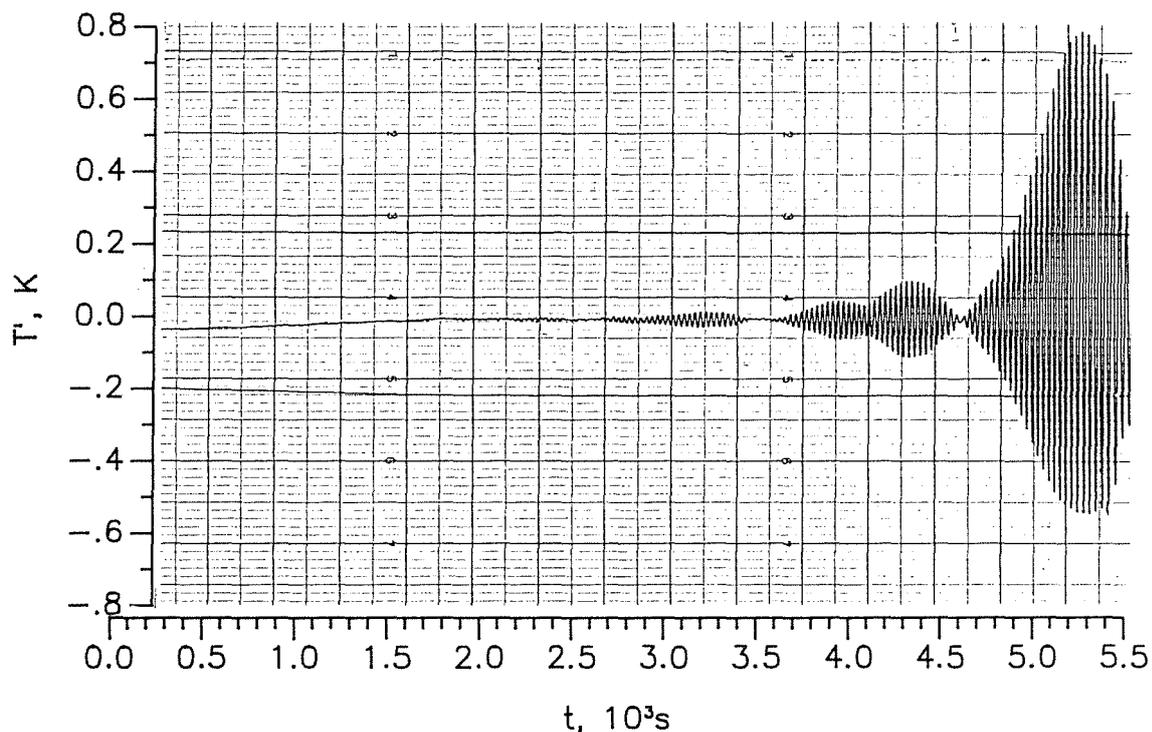


Abb. 4.25: Lokale Temperaturschwankung T' am Thermoelement in der Flüssigkeit beim Einsetzen der MTW als Funktion der Zeit t unter einer Eisschicht von 0,11 mm Dicke.

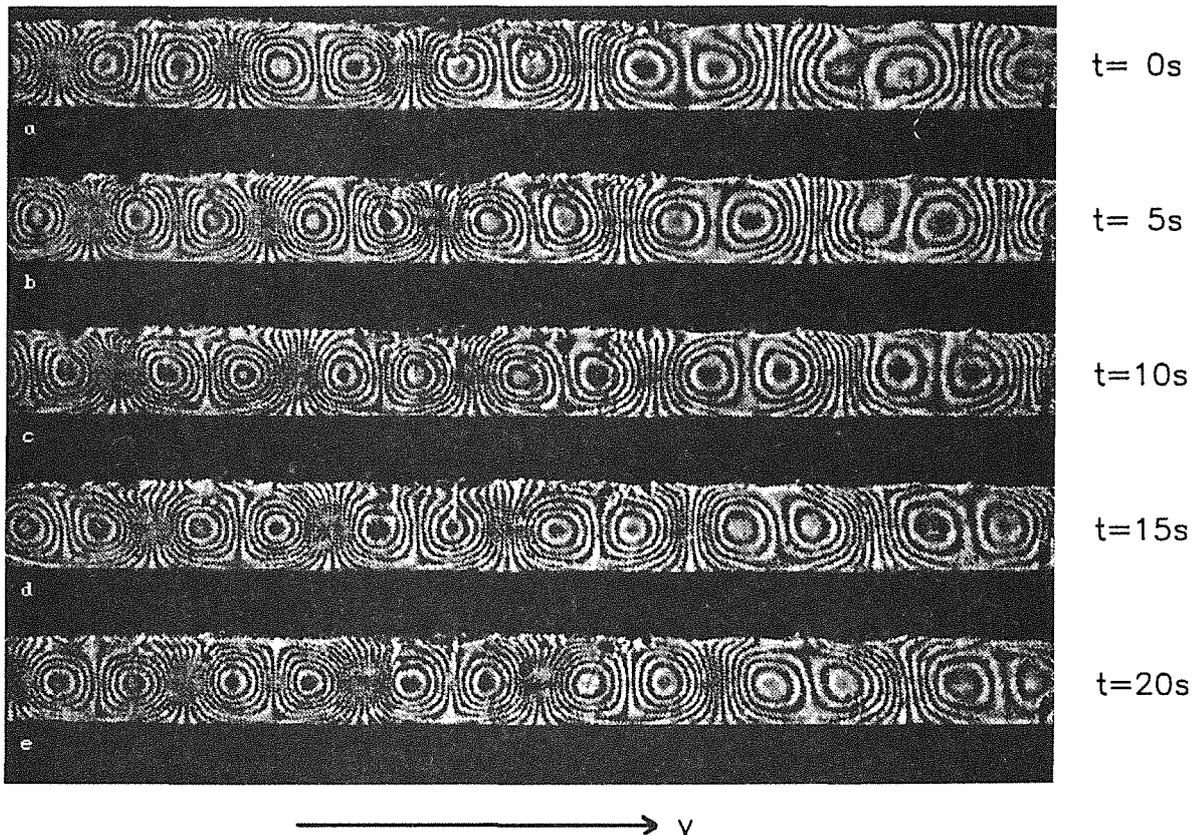


Abb. 4.26: Differentialinterferometeraufnahmen eines MTW-Zustandes bei $h_5 = 0,30 \text{ mm}$ und $\Delta T = 29,53 \text{ K}$ im zeitlichen Abstand von $\Delta t = 5 \text{ s}$.

In einer Reihe von Experimenten wird der zeitabhängige Konvektionsbeginn bei verschiedenen Eisdicken h_5 untersucht. Dazu werden für unterschiedliche Eisdicken die kritischen Temperaturdifferenzen für das Einsetzen der Konvektion und die Periodendauern τ des MTW-Zustandes gemessen. Graphisch aufgetragen werden schließlich die mit Gl. (2.29a) berechnete kritische oszillatorische Rayleigh-Zahl $Ra_{c,osc,exp}$ und die gemessene Periodendauer τ_{exp} als Funktion der Biot-Zahl B . Die Bestimmung der Größen $Ra_{c,osc,exp}$ und B erfolgt mittels eines Computerprogrammes aus den Meßgrößen T_u , T_o und h_5 in folgender Weise:

Neben den Meßwerten T_u , T_o , h_5 und τ_{exp} werden die gesamte Zellhöhe h , die Anfangskonzentration C_o und die konstanten Stoffdaten S_o , λ und c_p vorgegeben. Daraus werden die Flüssigkeitshöhe $h_L = h - h_5$ und die mittlere Konzentration $\bar{C} = C_o \cdot h / h_L$ berechnet. Dabei wird vorausgesetzt, daß reines Wasser ausfriert und daß der Äthanolanteil in der Flüssigkeit mit dicker werdender Eisschicht anwächst. Da die Äthanolkonzentration an der Grenzfläche und die Schmelztemperatur über den Sorét-Koeffizienten gekoppelt sind, werden beide iterativ bestimmt. Dazu wird die Konzentration an der Grenzfläche gemäß Gl.

(2.21) und die zugehörige Schmelztemperatur T_S aus der Gleichung für die Schmelzkurve (siehe Kap. 7.1.3) berechnet. Abbruchkriterium dieses Iterationsprozesses ist eine Änderung der Schmelztemperatur von weniger als $0,001\text{ }^\circ\text{C}$.

Vorgegeben werden außerdem die temperaturabhängigen Stoffdaten $\rho(T)$ und $\alpha(T)$ in der Flüssigkeit, sowie die temperaturabhängige Wärmeleitfähigkeit $\lambda^{(s)}(T)$ des Eises. Diese Stoffdaten werden bei der mittleren Temperatur der Flüssigkeit $\bar{T}_L = (T_U + T_S)/2$ bzw. des Eises $\bar{T}^{(s)} = (T_S + T_O)/2$ berechnet. Die Biot-Zahl B berechnet sich nach Gl. (2.29c).

Die Kurvenverläufe $Ra_{c,osc,exp}(B)$ und $\tau_{exp}(B)$ sind in Abb. 4.27 und Abb. 4.28 wiedergegeben. Die Symbole ■ kennzeichnen die Meßpunkte bei den verschiedenen Eisdicken. Gestrichelt ist eine Regressionskurve 3. Ordnung durch die Meßpunkte eingezeichnet. Man erkennt, daß sowohl $Ra_{c,osc,exp}$ als auch τ_{exp} mit zunehmender Eisdicke abnehmen.

4.5.2 Stationäre Konvektionszustände

Unter der Wirkung einer ebenen Eisschicht im oberen Teil der Meßkammer bildet sich kein stabiler, nichtlinearer TW-Zustand aus. Überschreitet die Amplitude der Temperaturstörung im Bereich der Zellenden den Schwellwert, kommt es sofort zur Ausbildung einer dreidimensionalen Strömung in der Flüssigkeit in Form von Polygonzellen. Die Phasengrenzfläche zeigt einen deutlichen Abdruck von den 3-4 in der Zelltiefe gestaffelten Reihen von Polygonzellen mit mittigem Aufstrom. Dieses dreidimensionale Polygonmuster ist stationär. Lediglich am Übergangsbereich zum Wärmeleitungsgebiet erfolgt durch Scherströmung ständig die Bildung neuer dreidimensionaler Zellen bis die gesamte Meßkammer damit gefüllt ist.

Einen qualitativen Eindruck von der Grenzflächenstruktur liefert die Abb. 4.29. Beide Bilder zeigen einen Ausschnitt aus der Meßzelle mit drei in der Tiefe gestaffelten Polygonreihen. Der Blick ist schräg von unten auf die Grenzfläche gerichtet. Die Vergrößerung ist 5,3- bzw. 8,8-fach. In Abb. 4.29a ist die Eisschicht nicht geschlossen. Lediglich in den Bereichen kalten Abstromes sind Eistränder bis maximal $0,1\text{ mm}$ Höhe ausgebildet. Dazwischen erkennt man die obere Kupferberandung der Zelle. In Abb. 4.29b beträgt die Eisdicke $h_5 = 0,45 \pm 0,11\text{ mm}$. Bei der auf die vorderste Polygonreihe fokussierten Aufnahme erkennt man deutlich die tiefen Abdrücke eines hexagonalen Strömungsmusters in der Eisschicht. Bei-

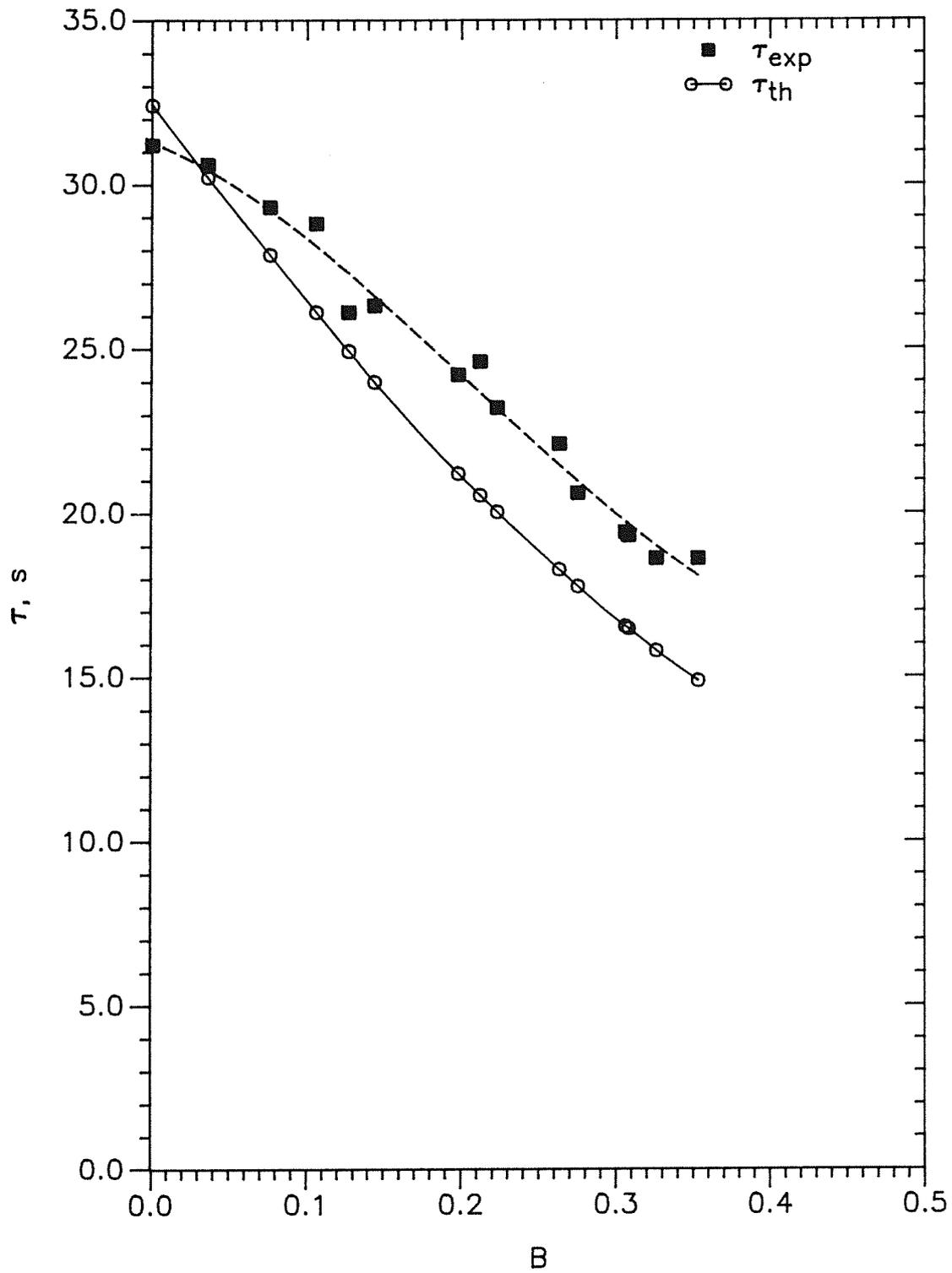


Abb. 4.27: Berechnete (\circ) und gemessene (\blacksquare) Periodendauer τ des MTW-Zustandes als Funktion der Biot-Zahl B .

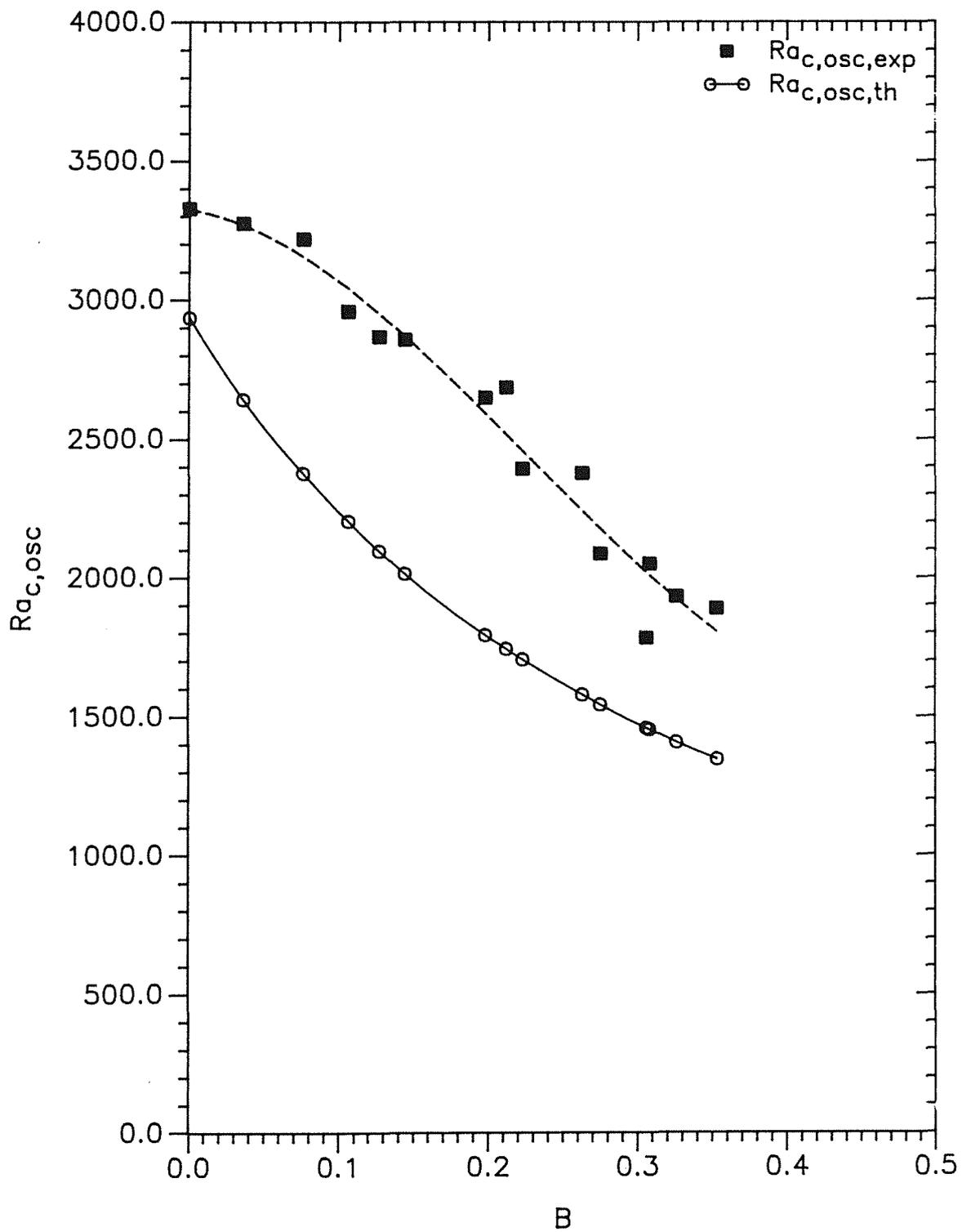
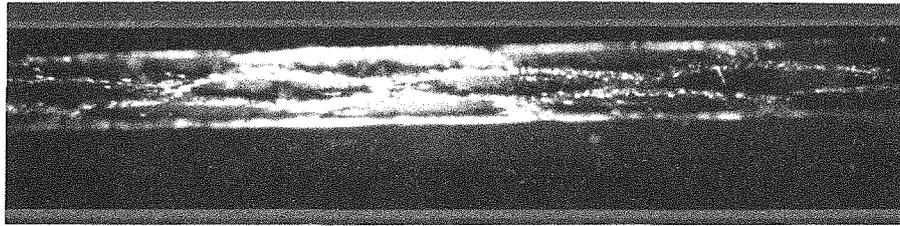


Abb. 4.28: Berechnete (\circ) und aus Experimenten ermittelte (\bullet), kritische oszillatorische Rayleigh-Zahl $Ra_{c,osc}$ als Funktion der Biot-Zahl B .

a)



b)

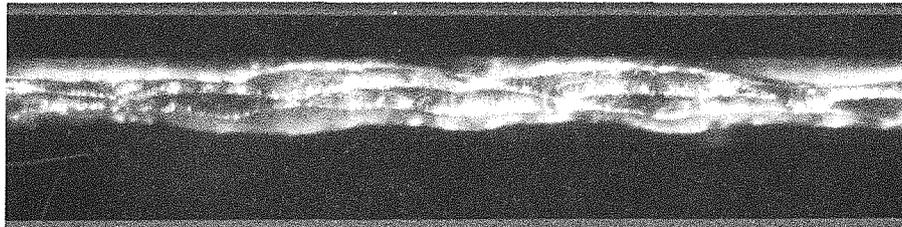


Abb. 4.29: Mikroskopaufnahmen der Phasengrenzfläche mit Blickwinkel schräg von unten bei Eisdicken von a) $h_s = 0-0,1$ mm; b) $h_s = 0,34-0,56$ mm.

de Muster sind, abgesehen von lokalen Verschiebungen aufgrund der seitlichen Zellberandungen, stationär.

4.6 Diskussion der Meßergebnisse mit Eisschicht

4.6.1 Lineare, amplitudenmodulierte Wanderwellenzustände (MTW)

Die aus den Messungen gewonnenen Kurvenverläufe $Ra_{c,osc,exp}(B)$ und $\tau_{exp}(B)$, die in den Abbn. 4.27 und 4.28 wiedergegeben sind, zeigen eine Abnahme der kritischen Rayleigh-Zahlen und Periodendauern mit zunehmender Biot-Zahl B . Dies ist auf den Einfluß des schlechter thermisch leitenden und deformierbaren, oberen Randes zurückzuführen (vgl. Kap. 3.3.3). Die Reduzierung der kritischen Rayleigh-Zahl für das Einsetzen der Konvektion unter einer Eisschicht wird bereits in einkomponentigen Flüssigkeiten beobachtet (vgl. Dietsche (1984)).

Ähnlich wie im Falle ohne Eisschicht liegt es nahe, für die kritischen Werte von Rayleigh-Zahl und Periodendauer einen quantitativen Vergleich mit den Ergebnissen der linearen Theorie zu suchen. Dabei ist die Abhängigkeit von der Biot-Zahl zu berücksichtigen.

Mittels des Computerprogrammes SUPORE werden kritische Rayleigh-Zahlen und Frequenzen für die 15 % Äthanol-Wasser-Mischung unter einer Eisschicht

ermittelt. Aus den Stoffdaten (vgl. Kap. 7.1) ergeben sich folgende Kennzahlen: $C_o = 0,15$, $Pr = 30,0$, $Sc = 8900$, $Ste = 24,7$, $R_S = 173,4$, $S = -0,019$, $m = -14,4$. Die Dicke der Eisschicht wird mit der Biot-Zahl B erfaßt.

Um einen direkten Vergleich der Werte für die kritische Rayleigh-Zahl für den Beginn der oszillatorischen Konvektion und die Periodendauer τ aus Rechnung und Messung zu erhalten, werden die Rechenergebnisse umskaliert. Bei den Rechnungen erstreckt sich die Flüssigkeitsschicht unabhängig von der Dicke der Eisschicht über das Einheitsintervall $[0,1]$. Im Experiment dagegen ist die gesamte Zellhöhe h fest vorgegeben, während die Höhe der Flüssigkeitsschicht h_L variiert. Deshalb werden die numerischen Ergebnisse auf die Höhe h_L umgerechnet. Da im Wärmeleitungsgrundzustand $B = h_S/h_L$ gilt, ergibt sich als Skalierung für die Flüssigkeitshöhe

$$h_L = h / (1 + B) . \quad (4.8)$$

Die mit der tatsächlichen Flüssigkeitshöhe h_L gebildete kritische Rayleigh-Zahl $Ra_{c,osc,th}$ ergibt sich dann aus der numerisch bestimmten Rayleigh-Zahl $Ra_{c,osc}$ gemäß

$$Ra_{c,osc,th} = Ra_{c,osc} / (1 + B)^3 . \quad (4.9)$$

Die dimensionslose Frequenz ω_c aus der Rechnungen wird mit den thermischen Diffusionszeit

$$\tau_k = \frac{h^2}{\kappa} \quad (4.10)$$

skaliert und schließlich ähnlich der kritischen Rayleigh-Zahl auf die tatsächliche Flüssigkeitshöhe bezogen. Man erhält aus den Rechnungen dann als Periodendauer

$$\tau_{th} = \frac{2\pi}{\omega_c} \cdot \frac{h^2}{\kappa} \cdot \frac{1}{(1 + B)^2} . \quad (4.11)$$

Die beiden Kurven $Ra_{c,osc,th}(B)$ und $\tau_{th}(B)$ sind zum besseren Vergleich mit den experimentellen Werten in den Abb. 4.27 und 4.28 eingezeichnet.

Aus Abb. 4.27 erkennt man, daß die gemessenen Periodendauern, abgesehen vom Wert bei $B = 0$, durchweg länger sind, als nach den Rechnungen zu erwarten ist. Eine Eisschicht an der oberen Berandung der Flüssigkeitsschicht besitzt eine

größere Rauigkeit (typisch 0,02 mm) als die polierte Kupferberandung, die ohne Eis die Fluidschicht nach oben begrenzt. Dadurch wird der Einfluß der Wandreibung vergrößert. Die Konvektionsrollen wandern langsamer und mit längeren Periodendauern durch die Zelle. In der Abb. 4.27 erkennt man die Auswirkung des verstärkten Reibungseinflusses auf τ_{exp} für dünne Eisschichten. Für kleine Werte von B nimmt die gemessene Periodendauer deutlich langsamer mit zunehmender Eisdicke ab, als in der Theorie vorhergesagt.

Bei den instationären Vorgängen ist zusätzlich der Einfluß der Schmelzwärme zu berücksichtigen (vgl. Kap. 3.3.4). Im Bereich des warmen Aufstromes findet in geringem Maße lokal ein Abschmelzen der Eisschicht statt, während im Bereich des kalten Abstromes lokal die Eisschicht anwächst. Diese mikroskopisch kleine, horizontale Inhomogenität der Eisschicht bewegt sich simultan mit den Konvektionsrollen des MTW-Zustandes mit. Dadurch verzögert sich die Ausbreitung der Rollen durch die Meßkammer zusätzlich und führt so zu größeren Periodendauern.

Die aus den Meßwerten berechneten kritischen Werte der oszillatorischen Rayleigh-Zahlen liegen generell höher als die theoretisch gewonnenen Werte (Abb. 4.28). Hauptursache dafür ist die bei diesem mittleren Temperaturniveau und dieser Konzentration nicht mehr lineare, vertikale Dichteverteilung des Grundzustandes. Hinzu kommt der Einfluß der endlichen Abmessung der Meßkammer. So erhöhen seitliche Berandungen generell die kritische Rayleigh-Zahl für den Konvektionseinsatz (vgl. Frick, Clever (1982)). Die Diskrepanz zwischen $Ra_{c,osc,exp}$ und $Ra_{c,osc,th}$ wird mit steigendem B kleiner. Das Verhalten wird dadurch bedingt, daß das Verhältnis von Zellhöhe zu Zelltiefe kleiner wird. Dadurch reduziert sich der relative Seitenwandeinfluß auf die kritische, experimentell ermittelte Rayleigh-Zahl.

Insgesamt läßt sich sagen, daß die theoretischen und experimentellen Ergebnisse gut übereinstimmen. Die Diskrepanzen zwischen Theorie und Experiment sind hauptsächlich auf zwei Ursachen zurückzuführen: Es bleibt der Einfluß endlicher, horizontaler Abmessungen der Meßzelle im verwendeten Bénard-Modell unberücksichtigt, und die Boussinesq-Approximation ist nicht mehr gerechtfertigt.

4.6.2 Stationäre Konvektionszustände

Unter der Wirkung einer Eisschicht im oberen Teil der Meßkammer stellt sich als stabiler Endzustand ein stationärer Konvektionszustand ein. Er ist gekennzeichnet durch eine dreidimensionale Polygonstruktur, wie sie sich auch im Falle der Konvektion einer einkomponentigen Flüssigkeit unter der Wirkung einer Eisschicht einstellt (vgl. Dietsche (1984), Davis et al. (1984) und Dietsche, Müller (1985)). Sowohl Experimente als auch schwach nichtlineare Störungsrechnungen liefern eine Polygonstruktur als erste Konvektionsinstabilität. Ursache dafür ist, daß eine deformierbare Phasengrenzfläche die gleiche Wirkung auf die Flüssigkeit ausübt, wie die nicht-Boussinesqsche Eigenschaft des Fluids. Hat sich die Konvektionsstruktur in der Mischung der Eisschicht aufgeprägt, ist der vergleichsweise schwache Sorét-Effekt nicht mehr in der Lage, eine Wanderung des Konvektionsmusters auszulösen. Das Muster bleibt stationär. Außerdem existiert aufgrund der Polygonstruktur keine Vorzugsrichtung parallel zur seitlichen Berandung mehr, wie im Falle von Konvektionsrollen.

5. Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird das Strömungsverhalten in einer binären Flüssigkeitsmischung untersucht, die von unten beheizt und von oben gekühlt wird. Dabei wird der Einfluß der Thermodiffusion im Fluid berücksichtigt. Die Thermodiffusion (oder Sorét-Effekt) bewirkt, daß die von außen angelegte Temperaturdifferenz in der Flüssigkeitsschicht eine Konzentrationsverteilung induziert. Ist die Thermodiffusion negativ, so stabilisiert dieses Konzentrationsprofil den Wärmeleitungszustand. Der Übergang in den Konvektionszustand erfolgt erst bei einer höheren, kritischen Temperaturdifferenz.

Wegen der um Größenordnungen unterschiedlichen Zeitskalen für thermische und molekulare Diffusion in der Flüssigkeit ist ein Übergang des Wärmeleitungsgrundzustandes in einen zeitabhängigen Konvektionszustand möglich. Diese Konvektionsinstabilität wird in einer Bénard-Schicht mit zwei ebenen, perfekt wärmeleitenden Berandungen und unter dem Einfluß einer nicht ideal wärmeleitenden, oberen Berandung untersucht.

Die Experimente werden in Äthanol-Wasser-Mischungen mit 8 bzw. 15 Gewichtsprozent Alkohol durchgeführt.

Für den Fall ebener, perfekt wärmeleitender horizontaler Berandungen zeigt sich, daß nach Überschreiten eines kritischen Wertes für die Temperaturdifferenz ein periodischer Wanderwellenzustand auftritt. Das gesamte Konvektionsmuster wandert dabei mit konstanter Geschwindigkeit in horizontale Richtung durch die Meßkammer. Die lokalen Temperaturschwankungen sind zusätzlich amplitudenmoduliert.

Zur theoretischen Beschreibung dieses Vorganges wird das physikalische Problem im Rahmen einer linearen Stabilitätsanalyse untersucht. Die numerischen Ergebnisse stimmen in den Stabilitätsgrenzen und in der Wandergeschwindigkeit gut mit den experimentellen Werten überein. Der so charakterisierte Zustand wird deshalb als linearer, amplitudenmodulierter Wanderwellenzustand (MTW) bezeichnet.

Überschreitet die Amplitude der Temperaturstörung einen bestimmten Schwellwert, so treten weitere transiente und stabile Zustände auf. Diese lassen sich im Rahmen der linearen Theorie nicht mehr beschreiben und werden daher als

nichtlinear bezeichnet. Wenn nicht-Boussinesqsche Eigenschaften in der Flüssigkeit vernachlässigbar sind, folgt dem linearen Wanderwellenzustand eine Störfront mit einem weiteren transienten Wanderwellenzustand. Die Intensität der Konvektion ist deutlich höher und die Periodendauer länger. Der Grund für das Auftreten dieses Übergangsbereichs im Experiment liegt darin, daß zuerst im Randbereich der Meßkammer ein kritischer Schwellwert für das Anfachen der nichtlinearen Konvektion überschritten wird. Dieses Konvektionsgebiet breitet sich anschließend durch die gesamte Meßkammer aus. In der Literatur findet man keine vergleichbaren Meßergebnisse. Außerdem fehlen bislang theoretische Überlegungen, die etwa die charakteristischen Zeitskalen dieses Phänomens beschreiben könnten.

Abgelöst wird dieser Übergangszustand von einem stabilen Wanderwellenzustand (TW). Dieser ist in einem ganzen Rayleigh-Zahl-Bereich stabil. Die Übergänge des Wärmeleitungszustandes in den TW-Zustand und des TW-Zustandes in den Zustand der stationären Konvektion sind durch Hystereseeffekte gekennzeichnet. Die Wandergeschwindigkeit nimmt mit Erhöhung der Rayleigh-Zahl ab, bis das Muster schließlich zum Stillstand kommt.

Auch andere Wissenschaftler (vgl. Kap. 4.4.4) finden ein qualitativ ähnliches Verhalten. Es fehlen bislang jedoch Theorien, die die Periodendauer des nichtlinearen Wanderwellenzustandes quantitativ beschreiben. Deshalb wird in dieser Arbeit die Periodendauer auf der Basis der relevanten Zeitskalen für den konvektiven und molekularen Stofftransport in einer Konvektionsrolle abgeschätzt. Die so berechnete Periodendauer liefert eine gute, quantitative Abschätzung für die im Experiment gemessenen Periodendauern.

Eine nicht perfekt wärmeleitende obere Berandung der Flüssigkeitsschicht wird in den Experimenten durch teilweises Ausfrieren des Fluids im oberen Teil der Meßkammer realisiert. Auch unter dem Einfluß dieser Eisschicht treten beim Übergang des Wärmeleitungszustandes in den Konvektionszustand lineare, amplitudenmodulierte Wanderwellen (MTW) auf. Mit zunehmender Eisdicke nehmen die kritischen Werte für die Rayleigh-Zahl und die Periodendauer ab.

Die lineare Theorie, die in dieser Arbeit entwickelt wird, berücksichtigt den Einfluß einer deformierbaren, nicht perfekt wärmeleitenden Berandung der Flüssigkeitsschicht auf die kritische Rayleigh-Zahl. Vergleicht man die theoretisch und experimentell gefundenen Werte für die kritischen Rayleigh-Zahlen und

Periodendauern bei verschiedenen Eisdicken, so stellt man eine gute, quantitative Übereinstimmung fest.

Überschreitet die Amplitude der Temperaturschwankung einen bestimmten Schwellwert, so bildet sich unter der Eisschicht eine dreidimensionale Polygonstruktur im Fluid aus. Da dieser Konvektionsform eine Vorzugsrichtung fehlt, bleibt das Muster stationär.

6. Literaturverzeichnis

G. Ahlers, D.S. Cannell, R. Heinrichs; 1987:

Convection in a binary mixture; Nuclear Physics B (Proc. Suppl.) 2, 77-86.

G. Ahlers, M. Lücke; 1987:

Some properties of an eight-mode Lorenz model for convection in binary fluids; Phys. Rev. A35, 470-473.

G. Ahlers, I. Rehberg; 1986:

Convection in a Binary Mixture Heated from Below; Phys. Rev. Lett. 56, 1373-1376.

B.N. Antar; 1987:

Penetrative double-diffusive convection; Phys. Fluids 30, 322-330.

T.B. Benjamin, J.E. Feir; 1967:

The disintegration of wave trains on deep water, Part 1. Theory; J. Fluid Mech. 27, 417-430

D. Bensimon, P. Kolodner, C.M. Surko, H. Williams, V. Croquette; preprint:

Competing and coexisting dynamical states of traveling-wave convection in an annulus.

H.R. Brand, P.C. Hohenberg, V. Steinberg; 1984:

Codimension-2 Bifurcation for Convection in Binary Fluid Mixtures; Phys. Rev. A30, 2548-2561

H.R. Brand, P.S. Lomdahl, A.C. Newell; 1986:

Benjamin-Feir Turbulence in Convective Binary Fluid Mixtures; Physica 23D, 345-361.

H.R. Brand, V. Steinberg; 1984:

Analog of the Benjamin-Feir instability near the onset of convection in binary fluid mixtures, Phys. Rev. A29, 2303-2304.

K. Bühler; 1979:

Zellularkonvektion in rotierenden Behältern; Fortschritt-Berichte der VDI-Zeitschriften, Reihe 7, Nr. 54.

- K. Bühler, K.R. Kirchartz, J. Srulijes; 1978:
Anwendung der Differentialinterferometrie bei thermischen Konvektionsströmungen, *in*: Applied Fluid Mechanics; H. Oertel jr., S. 54-69.
- D.R. Caldwell; 1970:
Nonlinear Effects in a Rayleigh-Bénard Experiment; J. Fluid Mech. 42, 161-175.
- D.R. Caldwell; 1973:
Measurement of Negative Thermal Diffusion Coefficients by Observing the Onset of Thermohaline Convection; J. Phys. Chem. 77, 2004-2008.
- D.R. Caldwell; 1974:
Experimental studies on the onset of thermohaline convection; J. Fluid Mech. 64, 347-367.
- D.R. Caldwell; 1975:
Sorét-Coefficient of 1N Lithium Jodide; J. Phys. Chem. 79, 1882-1884.
- D.R. Caldwell; 1976:
Thermosolutal convection in a solution with large negative Sorét coefficient; J. Fluid Mech. 74, 129-142.
- D.P. Chock, Chin-Hsiu Li; 1975:
Direct Integration Method applied to Sorét-Driven Instability; Phys. Fluids 18, 1401-1406.
- P. Couillet, C. Elphick, L. Gil, J. Lega; 1987a:
Topological Defects in Wave Patterns; Phys. Rev. Lett. 59, 884-887.
- P. Couillet, C. Elphick; 1987b:
Topological Defects Dynamics and Melnikovs Theory; Phys. Lett. A121, 233-236.
- P. Couillet, C. Elphick; D. Repaux; 1987c:
Nature of Spatial Chaos; Phys. Rev. Lett. 58, 431-434.
- P. Couillet, J. Lega; 1988:
Defect-Mediated Turbulence in Wave Patterns; Europhys. Lett. 7, 511-516.
- P. Couillet, L. Gil, J. Lega; 1989:
Defect-Mediated Turbulence; Phys. Rev. Lett. 62, 1619-1622.

M.C. Cross; 1986a:

An eight-mode Lorenz-Model of traveling waves in a binary fluid convection; Phys. Lett. A119, 21-24.

M.C. Cross; 1986b:

Traveling and Standing Waves in Binary-Fluid Convection in Finite Geometries; Phys. Rev. Lett. 57, 2935-2938.

M.C. Cross; 1988:

Structure of Nonlinear Traveling-Wave States in Finite Geometries; Phys. Rev. A38, 3593-3600.

M.C. Cross, K. Kim; 1988a:

Linear Instability and the Codimension-2 Region in Binary Fluid Convection Between Rigid Impermeable Boundaries; Phys. Rev. A37, 3909-3920.

M.C. Cross, K. Kim; 1988b:

Existence of a Codimension-2 Point at the Threshold of Binary-Fluid Convection Between Rigid, Impermeable Boundaries; Phys. Rev. A38, 529-530.

D'ans, Lax; 1967:

Taschenbuch für Chemiker und Physiker, Springer Verlag, Band 1, 3. Auflage.

S.H. Davis, U. Müller, C. Dietsche; 1984:

Pattern selection in single-component systems coupling Bénard convection and solidification; J. Fluid Mech. 144, 133-151.

A.E. Deane, E. Knobloch, J. Toomre; 1987:

Traveling Waves and Chaos in the Thermosolutal Convection; Phys. Rev. A36, 2862-2869.

A.E. Deane, E. Knobloch, J. Toomre; 1988:

Traveling waves in large-aspect-ratio thermosolutal convection; Phys. Rev. A37, 1817-1820 und Erratum: Phys. Rev. A38, 1661 (1988).

M.L. DeCoppet; 1892:

Sur la température du maximum de densité des mélanges d'alcool et d'eau; Compt. rendus 115, 652-653.

S.R. DeGroot; 1945:

L'effect Soret, diffusion thermique dans les phases condensées; North-Holland Publishing Company, Amsterdam.

S.R. DeGroot, P. Mazur; 1969:

Non-Equilibrium Thermodynamics; North-Holland Publishing Company, Amsterdam-London, 2nd Reprint.

C. Dietsche; 1984:

Einfluß der Bénard-Konvektion auf Gefrierflächen; KfK-Bericht 3724

C. Dietsche, U. Müller; 1985:

Influence of Bénard convection on solid-liquid interfaces; J.Fluid Mech. 161, 249-268.

J. Fineberg, E. Moses, V. Steinberg; 1988a:

Spatially and Temporally Modulated Traveling-Wave Pattern in Convecting Binary Mixtures; Phys. Rev. Lett. 61, 838-841.

J. Fineberg, E. Moses, V. Steinberg; 1988b:

Nonlinear Pattern and Wave-Number Selection in Convecting Binary Mixtures; Phys. Rev. A38, 4939-4942.

J. Fineberg, E. Moses, V. Steinberg; 1989:

Reply to: P. Kolodner (1989); Phys. Rev. Lett. 64, 579.

H. Frick, R.M. Clever; 1980:

Einfluß der Seitenwände auf das Einsetzen der Konvektion in einer horizontalen Flüssigkeitsschicht; ZAMP 31, 502-513.

H. Frick, R.M. Clever; 1982:

The influence of side walls on finite-amplitude convection in a layer heated from below; J. Fluid Mech. 114, 467-480.

H. Gao, R.P. Behringer; 1986:

Convective instabilities of a normal liquid ^3He - ^4He mixture; Phys. Rev. A34, 697-700.

H. Gao, R.P. Behringer; 1987:

Onset of time dependence at the secondary instability of a convecting binary mixture: Implications for wave-number selection; Phys. Rev. A35, 3993-3996.

L. Gil; J. Lega; 1988:

Defects in Waves; in: Propagation in Systems Far from Equilibrium; ed.: J.F. Wesfreid et al., Springer Verlag, Berlin, S. 164-175.

T. Grauer, H. Haken; 1988:

Generalized Ginzberg-Landau Equations Applied to Instabilities in Systems Coupling Convection and Solidification; in: Physicochemical Hydrodynamics, Interfacial Phenomena, ed.: M.G. Velarde, NATO ASI Series, Vol. 174, Plenum Press, New York, S. 571-582.

R. Heinrichs, G. Ahlers, D.S. Cannell; 1987:

Traveling waves and spatial variations in the convection of a binary mixture; Phys. Rev. A35, 2761-2764.

E. Hopf; 1942:

Abzweigung einer periodischen Lösung von einer stationären Lösung eines Differentialsystems; Akad. d. Wiss., Leipzig, Berichte Math.-Phys. Kl. 94.

D.T.J. Hurle; 1983:

The Effect of Sorét Diffusion on the Morphological Stability of a Binary Crystal; J. Crystal Growth 61, 463-672.

D.T.J. Hurle, E. Jakeman; 1969:

Significance of the Sorét-Effect in the Rayleigh-Jeffreys' Problem; Phys. Fluids 12, 2704-2705.

D.T. Hurle, E. Jakeman; 1971:

Sorét-driven thermosolutal convection; J. Fluid Mech. 47, 667-687.

D.T.J. Hurle, E. Jakeman; 1973a:

Thermal Oscillations in Convecting Fluids; Phys. Fluids 16, 2056-2059.

D.T.J. Hurle, E. Jakeman; 1973b:

Natural oscillations in heated fluid layers; Phys. Lett. 43A, 127-129.

K.-R. Kirchartz; 1980:

Zeitabhängige Zellularkonvektion in horizontalen und geneigten Behältern; Dissertation an der Universität Karlsruhe.

E. Knobloch; 1985:

Doubly Diffusive Waves; in: Double Diffusive Motions; Proc. of the Joint ASCE-

ASME Mechanics Conference, Albuquerque, New Mexico, 1985, ed.: N.E. Bixler, E.A. Spiegel, (ASME, New York, 1985) FED 24, S. 17-22.

E. Knobloch; 1986a:

On the Degenerate Hopf-Bifurcation with $O(2)$ Symmetry; *Contemp. Math.* 56, 193-201.

E. Knobloch, 1986b:

Oscillatory Convection in Binary Mixtures; *Phys. Rev.* A34, 1538-1549.

E. Knobloch, D.R. Moore; 1988:

Linear stability of experimental Sorét convection; *Phys. Rev.* A37, 860-870.

E. Knobloch, A.E. Deane, J. Toomre, D.R. Moore; 1986:

Doubly diffusive waves; *Contemp. Math.* 56, 203-216.

P. Kolodner, 1989:

Comment on "Spatially and Temporally Modulated Traveling-Wave Pattern in Convecting Binary Mixtures"; *Phys. Rev. Lett.* 63, 578.

P. Kolodner, C.M. Surko; 1988:

Weakly Nonlinear Traveling-Wave Convection; *Phys. Rev. Lett.* 61, 842-845.

P. Kolodner, A. Passner, C.M. Surko, R.W. Walden; 1986:

Onset of oscillatory convection in a binary fluid mixture; *Phys. Rev. Lett.* 56, 2621-2624.

P. Kolodner, A. Passner, H.L. Williams, C.M. Surko; 1987a:

The transition to finite-amplitude traveling-wave convection in binary fluid mixtures; *Nuclear Physics B (Proc. Suppl.)* 2, 97-108.

P. Kolodner, C.M. Surko, A. Passner; H.L. Williams; 1987b:

Pulses of oscillatory convection; *Phys. Rev.* A36, 2499-2502.

P. Kolodner, C.M. Surko, H.L. Williams, A. Passner; 1988a:

Two-Frequency States at the Onset of Convection in Binary Fluid Mixtures; *in: Propagation in Systems Far from Equilibrium*; ed.: J.E. Wesfreid, H.R. Brand, P. Manneville, A. Albinet, N. Boccara; Springer Verlag, Berlin, S. 282-291.

P. Kolodner, D. Bensimon, C.M. Surko; 1988b:

Traveling-wave convection in an annulus; *Phys. Rev. Lett.* 60, 1723-1726.

P. Kolodner, H. Williams, C. Moe; 1988c:

Optical measurement of the Sorét coefficient of ethanol/water solutions; *J. Chem. Phys.* 88, 6512-6524.

J.C. Legros, J.K. Platten; 1977:

Two-Component Bénard Problem with Poiseuille Flow; *J. Non-Equilibrium Thermodynamics* 2, 211-232.

J.C. Legros, J.K. Platten, P.G. Poty; 1972:

Stability of a Two-Component Fluid Layer Heated from Below; *Phys. Fluids* 15, 1383-1390.

O. Lhost, D. Villers, J.K. Platten; 1987:

Computer aided measurements of stationary and oscillatory velocities in free convection; *in*: Proc. of an Int. Specialists Meeting on The Use of Computers in Laser Velocimetry; ed.: H.J. Pfeiffer, B. Jaeggy,; ISL-R 105/87, S. 31-1 bis 31-9.

O. Lhost, J.K. Platten; 1988:

Transitions Between Steady States, Traveling Waves, and Modulated Traveling Waves in the System Water-Isopropanol Heated from Below; *Phys. Rev.* A38, 3147-3150.

O. Lhost, J.K. Platten; 1989:

Experimental study of the transition from nonlinear traveling waves to steady overturning convection in binary mixtures; *Phys. Rev.* A40 (preprint).

S.J. Linz, M. Lücke; 1987:

Convection in binary mixtures: A Galerkin model with impermeable boundary conditions; *Phys. Rev.* A35, 3997-4000 und Erratum: *Phys. Rev.* A38, 2486 (1988).

S.J. Linz, M. Lücke; 1988:

A Galerkin approximation for convection in binary mixtures with realistic concentration boundary conditions; *in*: Propagation in Systems far from Equilibrium; ed.: J.E. Wesfreid, H.R. Brand, P. Manneville, G. Abbinet, N. Boccara; Springer Verlag, Berlin; S. 292-304.

S.J. Linz, M. Lücke, H.W. Müller, J. Niederländer; 1988:

Convection in Binary Fluid Mixtures: Traveling Waves and Lateral Currents; *Phys. Rev.* A38, 5727-5741.

M. Lücke, 1988:

Convection in Binary Mixtures: Propagating and Standing Patterns; in: Lecture Notes in Physics, Bd. 319; ed. L. Garrido; Far from Equilibrium Phase Transitions; Proc. of Xth Sitges Conf. on Statistical Mechanics, Spain, 1988; Springer Verlag, Berlin, S. 195-215.

E. Moses, V. Steinberg, 1986:

Flow patterns and nonlinear behavior of traveling waves in a convective binary fluid; Phys. Rev. A34, 693-696 und Erratum: Phys. Rev. A35, 1444-1445 (1987).

E. Moses, V. Steinberg; 1988:

Mass transfer in propagating patterns of convection; Phys. Rev. Lett. 60, 2030-2033.

E. Moses, J. Fineberg, V. Steinberg; 1987:

Multistability and confined traveling-wave patterns in a convecting binary mixture; Phys. Rev. A35, 2757-2760.

S. Musman; 1968:

Penetrative convection; J. Fluid Mech. 31, 343-360.

J.B. Ott, J.R. Goates, B.A. Waite; 1979:

(Solid + liquid) phase equilibria and solid-hydrate formation in water + methyl, + ethyl, + isopropyl, and + tertiary butyl alcohols; J. Chem. Thermodynamics 11, 739-746.

S.U. Pickering; 1893:

A study of the properties of some strong solutions; J. of the Chemical Society, Transactions, Vol. LXIII, 998-1027.

J.K. Platten; 1971:

Le problème de Bénard dans les Mélanges: cas de surface libres; Bull. Classe Sci. Acad. Roy. Belg. 57, 669-683.

J.K. Platten, G. Chavepeyer; 1972a:

Oscillations in a water-ethanol liquid layer heated from below; Phys. Lett. 40A, 287-288.

J.K. Platten, G. Chavepeyer; 1972b:

Sorét Driven Instability; Phys. Fluids 15, 1555-1557.

- J.K. Platten, J.C. Legros; 1984:
Convection in Liquids; Springer Verlag, Berlin.
- J.K. Platten, D. Villers, O. Lhost; 1986:
LDV Study of Some Free Convection Problems at Extremely Slow Velocities: Sorét Driven Convection and Marangoni Convection; in: Laser Anemometry in Fluid Mechanic III, Selected Papers from the 3rd Int. Symp. on Application of Laser Anemometry to Fluid Mechanics, July 1986 in Lisbon; ed.: Adrian, Asanumo, Durao, Durst, Whitelaw.
- I. Rehberg, G. Ahlers; 1985:
Experimental observations of a codimension-two bifurcation in a binary fluid mixture; Phys. Rev. Lett. 55, 500-503.
- I. Rehberg, G. Ahlers; 1986:
Codimension-Two Bifurcation in a convection experiment; Contemp. Math. 56, 277-282.
- I. Rehberg, S. Rasenat, J. Fineberg, M. de la Torre Juarez, V. Steinberg; 1988:
Temporal Modulation of Traveling Waves; Phys. Rev. Lett. 61, 2449-2452.
- P.B. Rhines, W.R. Young; 1983:
How rapidly is a passive scalar mixed within closed streamlines? J. Fluid Mech. 133. 133-145.
- F. Rosenberger; 1979:
Fundamentals of Crystal Growth I; Springer Verlag, Berlin
- R.S. Schechter, I. Prigogine, J.R. Hamm; 1972:
Thermal Diffusion and Convective Stability; Phys. Fluids 15, 379-386.
- W. Schöpf, W. Zimmermann; 1989:
Multicritical Behaviour in Binary Fluid Convection; Europhys. Lett. 8, 41-46.
- M.R. Scott, H.A. Watts; 1979:
Subroutine SUPORE; Applied Mathematics Division 2623, Sandia Laboratories, P.O. Box 5800, Albuquerque, NM.
- H.N. Shirer; 1987:
Nonlinear Hydrodynamics Modelling: A Mathematical Introduction; Lecture Notes in Physics 271; Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York.

B.I. Shraiman; 1987:

Diffusive transport in a Rayleigh-Bénard convection cell; Phys. Rev. A36, 261-267.

M. Ch. Sorét; 1879:

Une dissolution saline primitivement homogène, Arch. Sci. Phys. nat., Geneve, Vol. 2, 48-61.

V. Steinberg, E. Moses; 1987:

Experiments on convection in binary mixtures; in: Patterns, Defects and Microstructures in Nonequilibrium Systems; Proc. NATO Advanced Research Workshop; ed.: D. Walgraef, NATO ASI Series E, Martinus Nijhoff Publishers; Dordrecht, Boston; S. 309-335.

V. Steinberg, E. Moses, J. Fineberg; 1987:

Spatio-temporal complexity at the onset of convection in a binary fluid; Nuclear Physics B (Proc. Suppl.) 2, 109-124.

M.J. Story, J.C.R. Turner; 1969:

Flow-Cell Studies of Thermal Diffusion in Liquids; Trans. Faraday Soc. 65, 349-354.

T.S. Sullivan, G. Ahlers; 1988a:

Hopf Bifurcation to Convection near the Codimension-Two-Point in a ^3He - ^4He Mixture; Phys. Rev. Lett 61, 78-81.

T.S. Sullivan, G. Ahlers; 1988b:

Nonperiodic Time Dependence at the Onset of Convection in a Binary Liquid Mixture; Phys. Rev. A38, 3143-3146.

C.M. Surko, P. Kolodner, A. Passner, R.W. Walden; 1986:

Finite-amplitude traveling-wave convection in binary fluid mixtures; Physica 23D, 220-229.

C.M. Surko, P. Kolodner; 1987:

Oscillatory traveling-wave convection in a finite container; Phys. Rev. Lett. 58, 2055-2058.

L.J. Tichacek, W.S. Kmak, H.G. Drickamer; 1956:

Thermal Diffusion in Liquids; The Effect of Non-Ideality and Association; J. Physical Chem. 60, 660-665.

W.D. Turner, D.C. Ellrod, I.I. Siman-Tov; 1983:
HEATING5 - An IBM 360 heat conduction program; Computer Science Division
Union Carbide Corp.; Nuclear Division, Oak Ridge, Tennessee 37830.

M.G. Velarde, R.S. Schechter; 1971:
Thermal diffusion and convective instability (III): A critical survey of Sorét
coefficient measurements; Chem. Phys. Lett. 12, 312-315.

Verein Deutscher Ingenieure; 1963:
VDI-Wärmeatlas; VDI-Verlag Düsseldorf, Kap. Dc16, Ea3, Ea4.

G. Veronis; 1963:
Penetrative convection; Astrophys. J. 137, 641-663.

G. Veronis; 1965:
On finite amplitude instability in thermohaline convection; J. Marine Res. 23, 1-
17.

D. Villers, J.K. Platten; 1984:
Heating curves in the two-component Bénard problem; J. Non-Equilibrium
Thermodyn. 9, 131-146.

R. Vogelsang, C. Hoheisel, G.V. Paolini, G. Cicotti; 1987:
Sorét Coefficient of Isotopic Lennard-Jones Mixtures and the Ar-Kr System as
Determined by Equilibrium Molecular-Dynamics Calculations; Phys. Rev. A36,
3964-3974.

R. Vogelsang, C. Hoheisel; 1988:
Thermal Transport Coefficients Including Sorét Coefficient for Various Liquid
Lennard-Jones Mixtures; Phys. Rev. A38, 6296-6303.

R.W. Walden, P. Kolodner, A. Passner, C.M. Surko; 1985:
Traveling waves and chaos in convection in binary fluid mixtures; Phys. Rev. Lett
55, 496-499.

H.A. Watts, M.R. Scott, M.E. Lord; 1983:
Solving Complex Valued Differential Systems; Appl. Math. and Computation 12,
381-394.

B.J.A. Zielinska, H.R. Brand; 1987:
Exact solution of the linear-stability problem for the onset of convection in

binary fluid mixtures; Phys. Rev. A35, 4349-4353 und Erratum: Phys. Rev. A37, 1786 (1988).

G. Zimmermann, U. Müller, S.H. Davis; 1986:

Bénard convection in a partly solidified two-component system; KfK-Bericht 4122.

7. Anhang

7.1 Stoffdaten

7.1.1 Stoffdaten für Äthanol-Wasser-Mischungen

Stoffparameter	Abk.	Einheit	Wert bei		
			8 wt %	15 wt %	
			20 °C	10 °C	5 °C
Dichte	ρ	kg/m ³	985	978	979,2
Spez. Wärme	c_p	10 ³ Ws/kgK	4,22	4,35	4,35
Wärmeleitfähigkeit	λ	W/mK	0,546	0,48	0,48
kin. Viskosität	ν	10 ⁻⁶ m ² /s	1,41	3,35	3,34
Temperaturleitfähigkeit	κ	10 ⁻⁷ m ² /s	1,31	1,06	1,13
molek. Diffusivität	D_m	10 ⁻¹⁰ m ² /s	9,6	4,5	3,25
therm.Expansionskoeffizient	α	10 ⁻⁴ /K	2,13	2,38	1,88
konz. Expansionskoeffizient	α'	1	0,16	0,11	0,10
Sorét-Koeffizient	S_o	10 ⁻³ /K	-7,6	-6,2	-6,8

7.1.2 Kennzahlen für Äthanol-Wasser-Mischungen

Kennzahl	Abk.	Wert bei		
		8 wt %	15 wt %	
		20 °C	10 °C	5 °C
Prandtl-Zahl	Pr	10,7	31,6	29,6
Schmidt-Zahl	Sc	1470	7430	1030
Lewis-Zahl	Le	7,3·10 ⁻³	4,3·10 ⁻³	2,9·10 ⁻³
Separationskoeffizient	Ψ	-0,35	-0,36	-0,43

7.1.3 Temperatur- bzw. konzentrationsabhängige Stoffdaten für die feste und flüssige Phase

Darstellung in Form von Regressionspolynomen

$$y(x, z = \text{const}) = a + bx + cx^2 + dx^3 + \dots$$

berechnet aus Stoffdaten aus der entsprechenden Literatur.

physik. Größe	Variable		Konstante	Koeffizienten				Literatur-zitat
	y	x		z	a	b	c	
$\rho, \text{kg/m}^3$	$T, ^\circ\text{C}$	$C_0 = 0,15$	980,0	-0,144	$-3,7 \cdot 10^{-3}$	$-5 \cdot 10^{-5}$	D'ans, Lax (1967)	
$\rho, \text{kg/m}^3$	$C, \text{wt \%}$	$T = 5 ^\circ\text{C}$	999,6	-1,848	$4,44 \cdot 10^{-2}$	$-7,76 \cdot 10^{-4}$	D'ans, Lax (1967)	
$S_0, 10^{-3}/\text{K}$	$T, ^\circ\text{C}$	$C_0 = 0,1475$	-7,62	0,191	$-5,5 \cdot 10^{-3}$	$7,6 \cdot 10^{-5}$	Tab. I Kolodner	
Ψ	$T, ^\circ\text{C}$	$C_0 = 0,1475$	-0,5288	$2,18 \cdot 10^{-2}$	$-5,24 \cdot 10^{-4}$	$5,37 \cdot 10^{-6}$	Fig. 8 et al.	
$D_m, 10^{-10} \text{m}^2/\text{s}$	$T, ^\circ\text{C}$	$C_0 = 0,1475$	2,0	0,25	-	-	Fig. 7 (1988c)	
$\lambda(s), \text{W/mK}$	$T, ^\circ\text{C}$	$C_0 = 0,0$	2,216	$-1,05 \cdot 10^{-2}$	$1,67 \cdot 10^{-5}$	$-6,4 \cdot 10^{-8}$	VDI-Wärmeatlas	
$T_s, ^\circ\text{C}$	$C, \text{wt \%}$	-	$-3,82 \cdot 10^{-2}$	-0,3967	$-3,27 \cdot 10^{-3}$	$-2,28 \cdot 10^{-4}$	Pickering (1893)	

7.1.4 Schmelzdiagramm

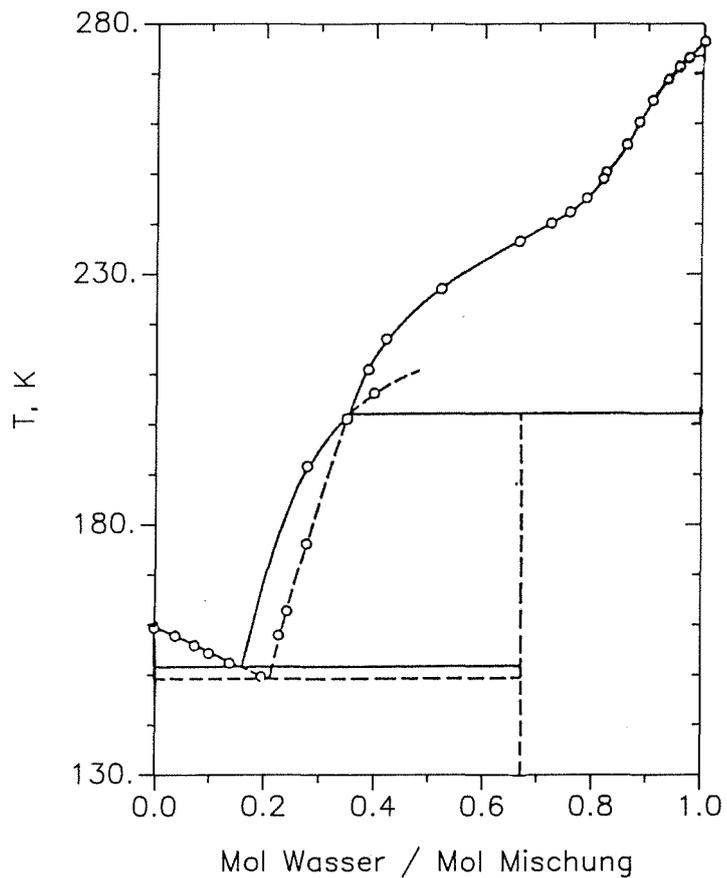


Abb. 7.1: Schmelzdiagramm für Wasser-Äthanol-Mischung

7.1.5 Weitere Stoffparameter

Schmelzwärme	von Wasser	$Q \approx 334 \text{ kJ/kg}$
	von Äthanol	$Q \approx 108 \text{ kJ/kg}$
Wärmeleitfähigkeit	von Kristallglas	$\lambda \approx 1,1 \text{ W/mK}$
	von Teflon	$\lambda \approx 0,25 \text{ W/mK}$
	von Durmetall	$\lambda \approx 0,81 \text{ W/mK}$
	von Kupfer	$\lambda \approx 384 \text{ W/mK}$
	von Wasser (20 °C)	$\lambda \approx 0,60 \text{ W/mK}$
	von Äthanol (20 °C)	$\lambda \approx 0,167 \text{ W/mK}$

7.2 Anschlußrechnung an Literatur für $S \rightarrow S^*$

Die Genauigkeit des Computerprogrammes wird an der Grenze des Stabilitätsbereiches des zeitabhängigen Konvektionszustandes, also für $S \rightarrow S^*$, untersucht. Für die Kennzahlen $Pr = 10$, $Sc = 200$, $Le = 0,05$, $C_o = 0,01$, $R_S = 84,25$ ergibt sich die in Abb. 7.2 dargestellte S -Abhängigkeit von $k_{C,osc}$.

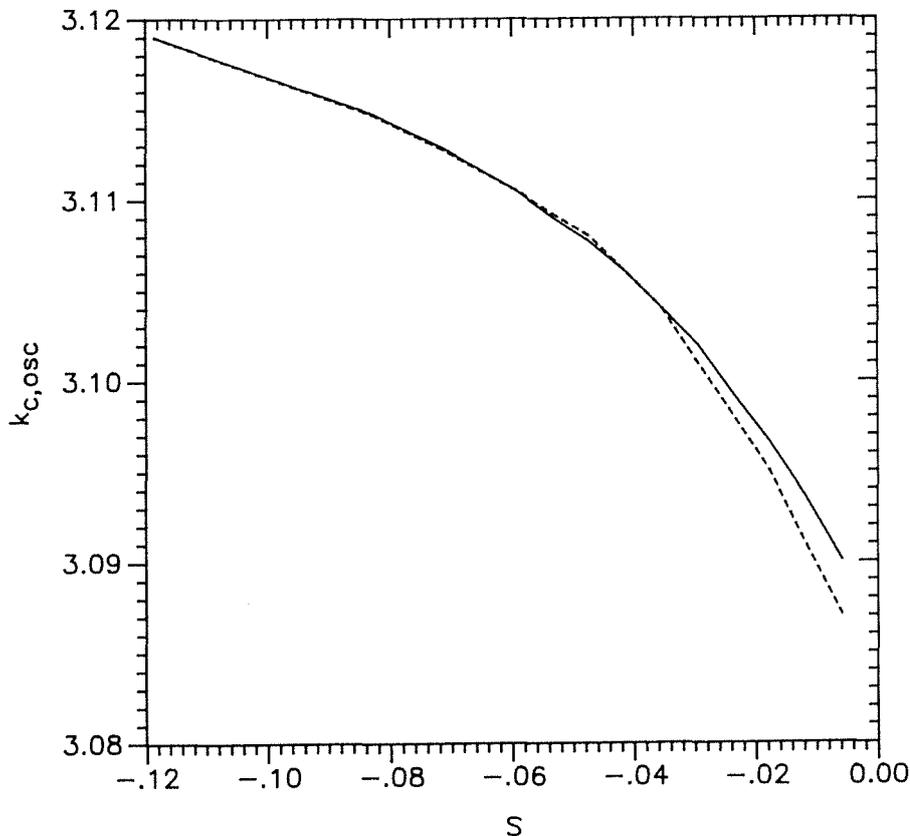


Abb. 7.2: Kritische ozillatorische Wellenzahl $k_{C,osc}$ in der Nähe der Stabilitätsgrenze für $Pr = 10$, $Le = 0,05$. Vergleich eigener Rechnungen (—) mit Ergebnissen von Cross und Kim (1988a), Fig. 2 (----).

Zum Vergleich ist die aus Fig. 2 der Arbeit von Cross und Kim (1988a) übernommene Kurve für $Pr = 10$, $Sc = 200$, $Le = 0,05$ eingezeichnet. Die Umrechnung von Ψ und S erfolgt gemäß Gl. (2.46). In beiden Fällen zeigt sich der Abfall der kritischen Wellenzahl bei Annäherung an den Kodimension-2-Punkt.

7.3 Einfluß der Zellberandungen auf das Temperaturprofil im Wärmeleitungszustand

Bei den Experimenten ist es wichtig, möglichst isotherme, horizontale Berandungen vorzugeben. Nur so ist gewährleistet, daß überall im Meßvolumen lokal die gleiche Rayleigh-Zahl vorherrscht, was besonders beim Einsetzen der schwachen,

linearen Wanderwellenzustände wichtig ist. Noch stärker beeinflussen horizontale Temperaturgradienten in den Berandungen das Verhalten bei endlicher Eisdicke. Selbst kleine, lokal unterschiedliche Temperaturdifferenzen im Wärmeleitungszustand führen zu Variationen in der Eisdicke und damit zu großen Differenzen in der Rayleigh-Zahl für die Flüssigkeitsschicht ($Ra \sim h_L^3$).

Da Wärmeströme von der unteren zur oberen Berandung nicht nur über die Fluidschicht, sondern auch über die Zellbegrenzungen fließen, gilt es, die Fenster und Stege geeignet zu dimensionieren. Ziel ist dabei eine möglichst gute Temperaturhomogenität der oberen und unteren Kupferberandung im Bereich des Meßvolumens sowie ein möglichst lineares Temperaturprofil an der Innenseite der Glasfenster im Wärmeleitungszustand. Die Optimierung geschieht mit Hilfe des Wärmeleitungs-Rechenprogrammes HEATING 5 von Turner et al. (1983).

7.3.1 Optimierung der Seitenfenster

Die vertikale Temperaturverteilung an der Innenseite der Kristallglasfenster wird für verschiedene Glasdicken berechnet. Die Wärmeleitfähigkeit λ beträgt dabei für Kupfer 384 W/mK, für Glas 1,1 W/mK und für die Flüssigkeit (Wasser) 0,6 W/mK. In Abb. 7.3 ist für 2 mm, 5 mm und 10 mm dicke Glasfenster die mit ΔT normierte Abweichung der lokalen Temperatur T_{SF} an der Fensterinnenseite vom linearen Temperaturprofil T_{lin} im Zellzentrum aufgetragen.

Die Rechnungen liefern die geringsten Abweichungen für die im Experiment eingesetzten Kristallglasfenster mit 10 mm Dicke. Die Rechnungen zeigen weiterhin, daß bereits 1 mm im Innern der 20 mm breiten Fluidschicht die Abweichungen auf unter die Hälfte des Randwertes gesunken sind. Die gegenüber der Flüssigkeit bessere Wärmeleitfähigkeit des Randes wirkt sich nur in einem schmalen Randbereich aus und führt im Falle einer dünnen Eisschicht zu einer etwas größeren Eisdicke direkt am Fenster.

7.3.2 Optimierung der Randtemperaturvorgabe

Um eine möglichst gleichmäßige Randtemperaturverteilung über die gesamte Zelllänge l zu erzielen, ist die Auslegung der Stirnseiten der Zelle von besonderer Wichtigkeit. In Wärmeleitungsrechnungen mit HEATING 5 hat sich folgende Konstruktion als optimal herausgestellt: Das symmetrische, 200 mm lange Meß-

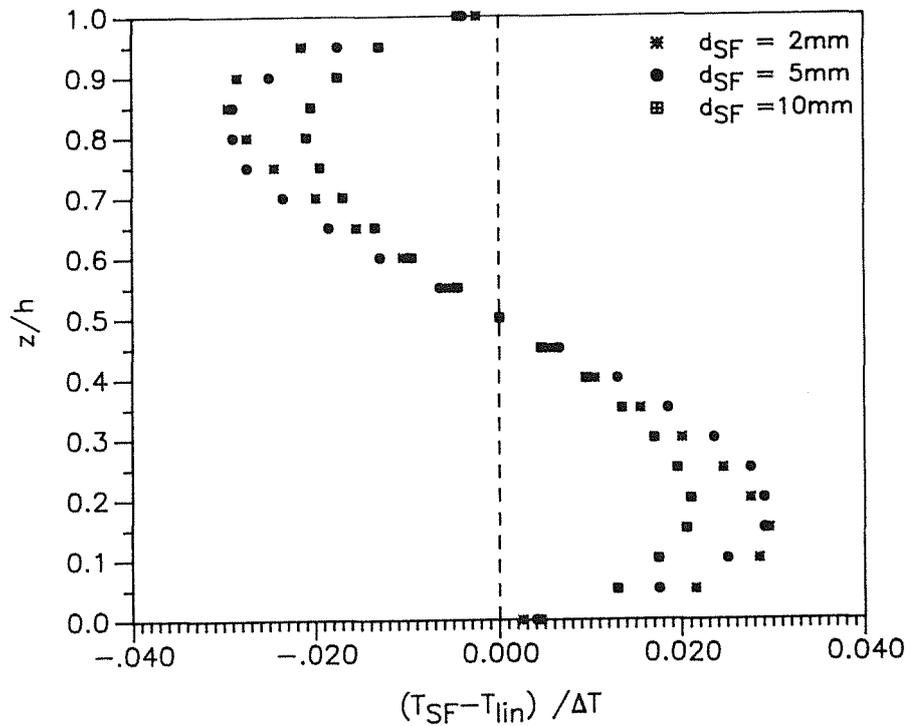


Abb. 7.3: Relative Abweichung der Temperatur an der Innenseite der Seitenfenster T_{SF} vom linearen Temperaturprofil L_{lin} über die Zellhöhe.

volumen wird rechts und links von 5 mm langen Teflonblöcken begrenzt. Daran schließt sich ein 45 mm langer Vorraum an, der ebenfalls mit der Flüssigkeitsmischung gefüllt wird. Den endgültigen Abschluß bildet eine 13 mm lange Klebeschicht aus Durmetall, gefolgt von einem 12 mm langen Kupfersteg, unterbrochen von einer 1 mm dicken Durmetall-Schicht zur thermischen Isolation. Der Aufbau ist in Abb.7.4 skizziert.

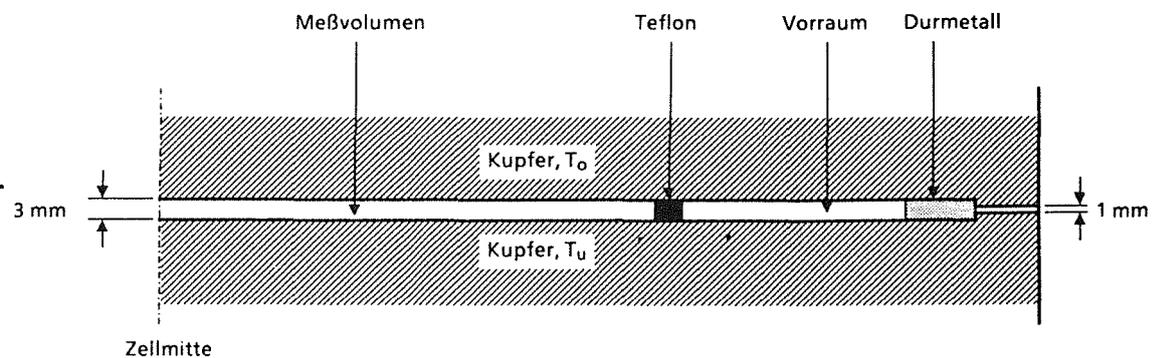


Abb. 7.4: Längsschnitt einer Hälfte der Meßzelle.

Die Abweichung der Randtemperatur $T_R(x/l)$ vom Wert im Zellzentrum $T_R(x/l = 0,5)$, normiert mit der vertikalen Temperaturdifferenz ΔT , ist in Abb. 7.5 für das gesamte Meßvolumen $0 \leq x/l \leq 1$ dargestellt (\bullet). Die größten Inhomogeni-

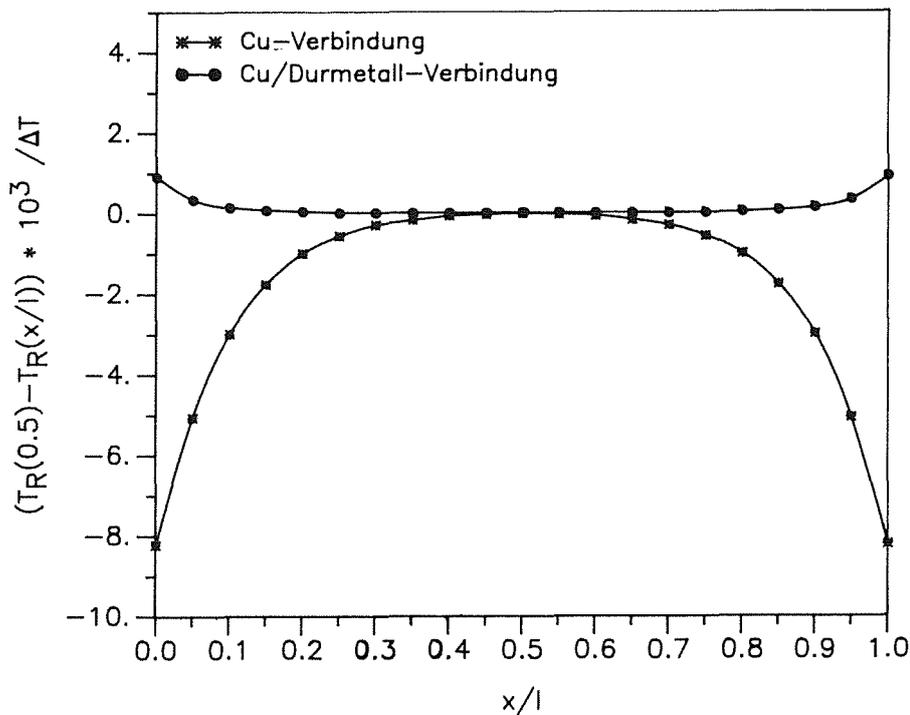


Abb. 7.5: Relative, horizontale Temperaturdifferenzen der Kupferberandung für zwei Stegvariationen.

täten finden man erwartungsgemäß am Rand. Sie liegen unter 0,1 %. Wird die Durmetallisolation komplett weggelassen und als Zellabschluß ein 12 mm langer, durchgehender Kupfersteg angenommen (*), so liegen die maximalen Abweichungen am Rande bei ca. 0,8 % und reichen weiter ins Meßvolumen hinein. Der Vorzeichenwechsel kommt durch die gegenüber der Fluidschicht bessere bzw. schlechtere thermische Leitfähigkeit des Randbereichs zustande.

7.4 Auswahl der Äthanolkonzentration

Für die Experimente wird eine Mischung aus 8 bzw. 15 Gewichtsprozenten Äthanol in Wasser verwendet. In Abb. 7.6 sind die Schmelztemperaturen (nach Pickering (1893)) sowie die Temperatur bei der maximalen Dichte (nach DeCoppet (1892)) aufgetragen.

Man erkennt, daß für Äthanol-Konzentrationen größer als 14 Gewichtsprozent die Temperatur bei der maximalen Dichte unterhalb der Schmelztemperatur liegt und deshalb die Dichteanomalie aus der flüssigen Phase verschwindet.

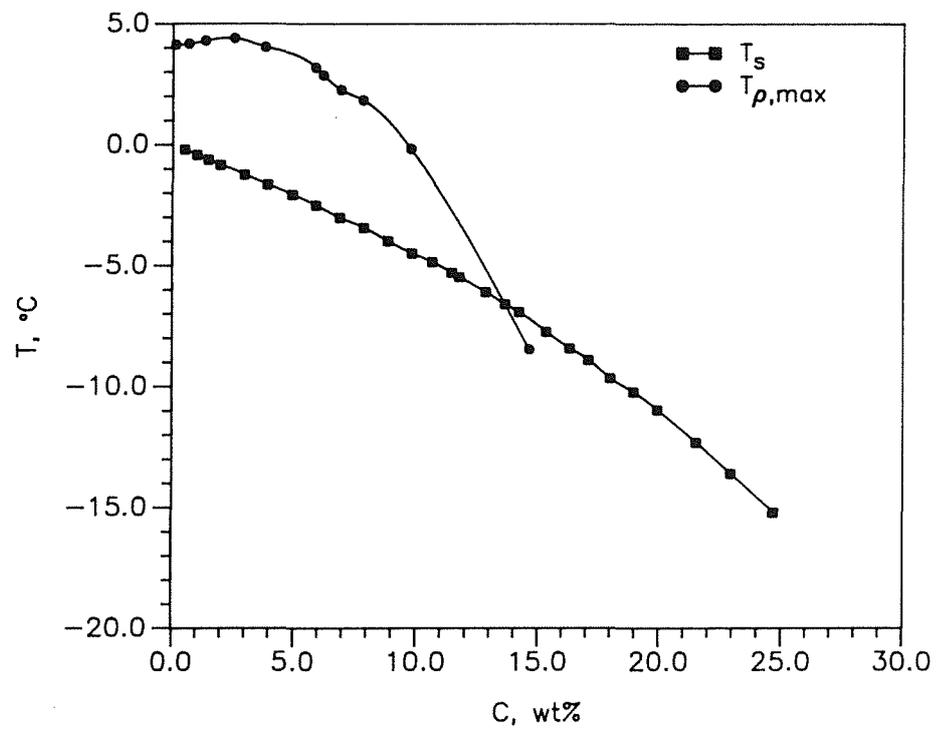


Abb. 7.6: Abhängigkeit der Schmelztemperatur T_s und der Temperatur $T_{\rho,max}$ bei der maximalen Dichte von der Äthanolkonzentration C .

Verzeichnis der Formelzeichen

Das Verzeichnis enthält nur die häufig gebrauchten Formelzeichen. Symbole, die nur an einer Stelle vorkommen, sind aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht mit aufgeführt. Vektoren sind durch Fettdruck gekennzeichnet.

1. Lateinische Buchstaben

A	Grundfläche eines Konvektionsrollenpaares
B	Biot-Zahl
b	Breite der Meßzelle
C	Flüssigkeitskonzentration
C_0	Anfangskonzentration der Mischung
C_S	Konzentration an der Grenzfläche
$C_{1,2}$	Konzentration der Komponenten 1,2
c_p	spezifische Wärme
D_m	molekulare Diffusionskonstante
d	Dicke
e	Einheitsvektor in z-Richtung
f	Frequenz
g	Gravitationsvektor
h	Höhe der Bénard-Schicht bzw. Meßzelle
h_L	Höhe der Fluidschicht im Wärmeleitungsfall
h_S	Höhe der Eisschicht im Wärmeleitungsfall
j	Massenstrom
k	Wellenzahl
k	Wellenzahlvektor
L	Schmelzwärme der Überschußkomponente
Le	Lewis-Zahl
l	Länge der Meßzelle
(m)m'	(dimensionslose) Steigung der Schmelzkurve
MTW	amplitudenmodulierte Wanderwelle ("modulated traveling wave")
n	normierter Vektor, senkrecht zur Phasengrenzfläche
Pe	Péclet-Zahl
Pr	Prandtl-Zahl
p	Druck
R	universelle Gaskonstante
Ra	Rayleigh-Zahl

R_S	Expansionsverhältnis
r	normierte Rayleigh-Zahl
S	Sorét-Zahl
S_o	Sorét-Koeffizient
S^*	Kodimension-Zwei-Verzweigungspunkt
Sc	Schmidt-Zahl
Ste	Stefan-Zahl
T	Temperatur
T_o, T_u	Temperatur des oberen, unteren Randes
T_S, T_{S1}	Schmelztemperatur der Mischung, der Überschußkomponente
\bar{T}	mittlere Fluidtemperatur
T'	lokale Temperaturschwankung
T'_m	Maximalwert der lokalen Temperaturschwankung
ΔT	Temperaturdifferenz
t	Zeit
$\mathbf{t}_1, \mathbf{t}_2$	normierte Vektoren, tangential zur Phasengrenzfläche
TW	Wanderwelle ("traveling wave")
U	Umlaufgeschwindigkeit
$\mathbf{v} = (u, v, w)$	Geschwindigkeitsvektor
x, y, z	globales Koordinatensystem

2. Griechische Buchstaben

α, α'	Expansionskoeffizient aufgrund von Temperatur- bzw. Konzentrationsänderung
δ	Dicke der Grenzschicht
ε	Entwicklungsparameter in der Störungsrechnung
η	Position der Phasengrenzfläche
κ	Temperaturleitfähigkeit
λ	Wärmeleitfähigkeit
ν	kinematische Viskosität
ρ_o	mittlere Fluiddichte
τ	Periodendauer
ϕ, ϕ'	physikalische Variable
Ψ	Separationskoeffizient
ω	dimensionslose Kreisfrequenz

3. Indizes

c	kritisch
co	kritischer Wert für S, $\Psi = 0$
D	molekular
eff	effektiv
exp	experimentell
F	Flüssigkeit
i	Imaginärteil
L	flüssige Phase
lin	linear
mix	Vermischung
o	oben
osc	oszillatorisch
r	Realteil
s	Wert am Schmelzpunkt
stat	stationär
(s)	feste Phase
th	theoretisch
trans	transient
U	Umlauf
u	unten
κ	thermisch
1,2	Komponente 1, 2
'	Störgröße
*	normierte Stoffkonstanten

4. Differentialoperatoren

$\frac{\partial}{\partial x}, \frac{\partial}{\partial y}, \frac{\partial}{\partial z}, \frac{\partial}{\partial t}$ partielle Ableitung in die Koordinatenrichtungen
bzw. nach t

$\nabla = \left(\frac{\partial}{\partial x}, \frac{\partial}{\partial y}, \frac{\partial}{\partial z} \right)$ Gradienten-Operator

$\nabla^2 = \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right)$ Laplace-Operator

$D = \frac{d}{dz}$ totales Differential in z-Richtung