

# **Resonanz von Oberflächenwellen mit thermokapillaren Instabilitäten in einem Meniskus**

Inaugural-Dissertation  
zur  
Erlangung des Doktorgades  
der Naturwissenschaften  
der Justus-Liebig-Universität Gießen

vorgelegt  
von  
Christian Bach  
aus  
Usingen

I. Physikalisches Institut  
der Justus-Liebig-Universität Gießen  
2000

# Inhaltsverzeichnis

## Vorwort zur elektronischen Version

<b>1. Einleitung</b>	<b>3</b>
<b>2. Grundlagen</b>	<b>6</b>
2.1 Der "return-flow"	6
2.2 Hydrodynamische Kennzahlen	7
2.3 Bifurkationen	8
2.4 Hydrothermale Wellen	9
2.5 Oberflächenwellen	11
2.6 Mehrfachrollenstrukturen in dünnen Flüssigkeitsschichten	11
2.7 Oszillatorische Mehrfachrollen	12
2.8 Form der freien Oberfläche	13
2.9 Schwerewellen	20
2.10 Kapillarwellen	21
2.11 Oszillationen der freien Oberfläche	22
<b>3. Experimenteller Aufbau</b>	<b>29</b>
3.1 Die Küvette	29
3.2 Lichtzeigermessungen	34
3.3 Stroboskopische Shadowgraph-Apparatur	35
3.4 Thermoelementmessungen	38
3.5 Strömungsvisualisierung mit Tracerteilchen	45
<b>4. Oberflächenoszillationen</b>	<b>46</b>
4.1 Ergebnisse aus der Shadowgraph-Untersuchung	48
4.2 Ergebnisse aus der Thermoelement-Untersuchung	52
4.3 Einfluß der Küvettegeometrie	56
4.4 Einfluß der Temperaturdifferenz	59

<i>INHALTSVERZEICHNIS</i>	2
4.5 Einfluß der Unterfüllung	65
4.6 Oberflächenoszillationen im Czochralski-Aufbau	74
4.7 Zusammenfassung	78
<b>5. Instabilitäten im Meniskus</b>	80
5.1 Temperaturverteilung nahe der Thermoden	81
5.2 Untersuchung mit Hochgeschwindigkeitskamera	94
5.3 Stromlinienaufnahmen	99
5.4 Temperaturoszillationen	107
5.5 Einfluß der Temperaturdifferenz	110
5.6 Einfluß der Unterfüllung	131
5.7 Wellen im Meniskusbereich	142
5.8 Numerische Simulation der Strömung im Meniskus	144
5.9 Zusammenfassung	149
<b>6. Wechselwirkung mit einem Flüssigkeitsfilm auf der kalten Thermode</b>	153
<b>7. Resonante Anregung der Oberflächenoszillation</b>	162
<b>8. Zusammenfassung</b>	177
<b>9. Literaturverzeichnis</b>	181

**Dank**

# 1. Einleitung

Benetzt eine Flüssigkeit eine Festkörperoberfläche, so daß sich ein Kontaktwinkel ungleich  $90^\circ$  oder  $0^\circ$  ergibt, kommt es aufgrund kapillarer Kräfte zu einer Krümmung der Flüssigkeitsoberfläche und damit zur Ausbildung eines Meniskus.

Die durch einen solchen Meniskus hervorgerufenen Effekte können dominierende Einflüsse auf verschiedene Prozesse besitzen.

Als Beispiel für makroskopische Prozesse sei die Wichtigkeit von Wassermenisken bei der Erosion von Felsgestein [Israelachvili85] genannt.

Die Untersuchungen zu Reibungserscheinungen an einem Punktkontakt in der Raster-Kraft-Mikroskopie [Bach95] zeigen, wie wichtig Flüssigkeitsmenisken im Mikroskopischen sein können.

Bei der Züchtung von Kristallen nach Czochralski oder im offenen Boot kommt es zu Menisken am Kontakt zwischen dem erstarrten Kristall und der Schmelze oder beim Kontakt zwischen Schmelze und Tiegelwand. Bekannt ist die Wichtigkeit des Meniskus für die Kontrolle des Durchmessers des Kristalls beim Czochralski- und beim *Floating-Zone*-Schmelzverfahren [Bardsley74, Hurle77] und bei der Korrosion der Tiegelwände [Stanek70, Hrma70].

SCHWABE [Schwabe81] vermutet das Auftreten von Instabilitäten in der Strömung durch den Meniskus an der heißen Tiegelwand bei Kristallzüchtungsverfahren. Ist der Meniskusbereich thermische Grenzschicht, ist die aufgrund des Temperaturgradienten an der freien Oberfläche der Schmelze entstehende thermokapillare Konvektion besonders stark. Die der Meniskusform folgende schnelle Oberflächenströmung und der von der Konvektion hervorgerufene Rückstrom gleiten im Meniskusbereich an engem Raum gegeneinander. Dadurch entstehen große Scherkräfte.

Auch bei vielen Experimenten zu thermokapillar getriebenen Strömungen treten Menisken auf. In den Experimenten wird z. B. durch Benutzung einer nach oben offenen Küvette, die mit einer Experimentierflüssigkeit gefüllt wird, eine freie Flüssigkeitsoberfläche erzeugt. An dieser wird ein Temperaturgradient angelegt, indem eine Seitenwand geheizt, die gegenüberliegende gekühlt wird. Diese Temperaturdifferenz führt zu einer thermokapillar getriebenen Konvektion in der

Küvette. Ähnliche Experimente lassen sich mit ringspaltförmigen Aufbauten oder mit Aufbauten in Anlehnung an das *Floating-Zone*-Schmelzverfahren durchführen.

Bisher wurde der Einfluß von Meniskusbildungen in diesen Experimenten nicht systematisch untersucht. Zumeist versucht man die Bildung eines Meniskus durch geeignete Experimentbedingungen zu unterdrücken um definierte experimentelle Bedingungen zu erreichen.

Ein solches meniskusfreies Arbeiten ist nicht bei allen Experimenten gewährleistet. Zum Beispiel verwendeten BRAUNSFURTH und HOMSÝ [Braunsfurth96] eine mit Aceton gefüllte rechteckige Küvette, bei der sich Menisken am Interface zwischen Fluid und Seitenwänden bildeten. BRAUNSFURTH und HOMSÝ behaupten, im Bereich des Meniskus an der heißen Wand die zeitabhängige Strömung einer Konvektionsrolle geringer Ausdehnung beobachtet zu haben.

Aufgrund des niedrigen Dampfdrucks von Aceton ist jedoch nicht auszuschließen, daß die beobachtete Konvektionsrolle durch Verdunstungseffekte im Meniskusbereich entsteht; es sich also nicht um eine hydrodynamische Instabilität, angetrieben durch den angelegten Temperaturgradienten handelt.

Ein solcher Effekt wurde von KAYSER und BERG [Kayser71] beobachtet. Sie fanden in einem Meniskus an der Grenzschicht zwischen einer polaren und unpolaren Flüssigkeit die Bildung einer Konvektionsrolle aufgrund von Lösungseffekten.

Die vorliegende Arbeit wurde angeregt durch eine Beobachtung von METZGER [Metzger86] in einer ähnlichen Küvette. Im Gegensatz zu dem oben erwähnten, wurde Ethanol als Fluid verwendet. Der Benetzungswinkel an den Seitenwänden - und damit die Form und Ausbildung eines Meniskus - konnte kontrolliert werden. Bei bestimmten angelegten Temperaturdifferenzen konnten Oberflächenwellen mit extrem großer Auslenkung der Flüssigkeitsoberfläche beobachtet werden. Da diese nur auftraten, wenn durch leichtes Absenken der Flüssigkeit ein Meniskus an den Seitenwänden hervorgerufen wurde, liegt die Vermutung nahe, daß dieser Meniskus für die Entstehung mit entscheidend ist.

Ziel dieser Arbeit ist die Aufklärung des Mechanismus, der zur Entstehung dieser Oberflächenwellen großer Amplitude führt.

Dazu werden in Kapitel 4 die auftretenden Oberflächenoszillationen analysiert. In Kapitel 5 werden dann hydrodynamische Instabilitäten im Meniskus vor der kalten Wand betrachtet. Die

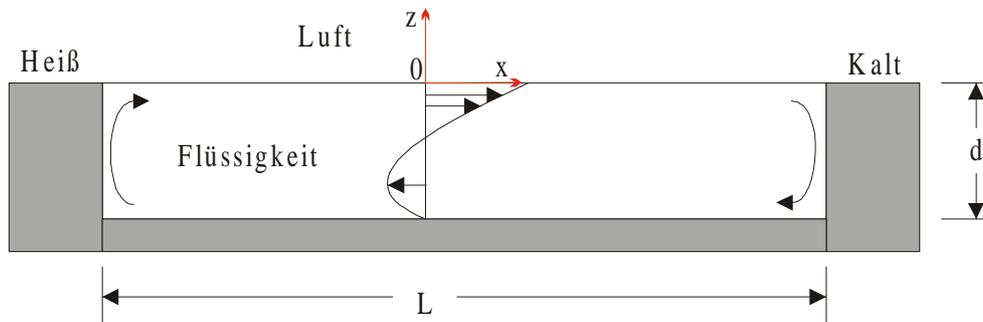
detailreichen Ergebnisse der Experimente erlauben in Kapitel 7 eine Synthese mit einer Aussage über den Anregungsmechanismus.

Die Oberflächenoszillationen werden so zu einem Indikator für die hydrodynamischen Instabilitäten im Meniskus, einem Phänomen, das in dieser Arbeit erstmals ausführliche untersucht wird.

## 2. Grundlagen

### 2.1 Der "return-flow"

Es sei eine rechteckige Kuvette mit endlicher Ausdehnung  $L$  und kleiner Schichtdicke  $d$  betrachtet. Eine Seitenwand (Thermode) der Kuvette werde erwärmt, die andere gekühlt, so daß ein Temperaturgradient an einer eingefüllten Flüssigkeit anliegt. Der Temperaturgradient bewirkt einen Gradienten der Oberflächenspannung  $d\sigma/dT$  - der sogenannte Marangonieffekt [Levich69] - und so eine antreibende Kraft an der Oberfläche, die die Flüssigkeit von der heißen Seite zur kalten Seite zieht ( $d\sigma/dT < 0$ ), die thermokapillare Konvektion.



**Abb. 2.1** Durch Marangonieffekt angetriebene "return-flow"-Strömung in endlicher Rechteckgeometrie.

Aus Kontinuitätsgründen bildet sich ein Rückstrom am Boden der Kuvette aus, den SEN und DAVIS [Sen82] beschrieben und dessen Stabilität SMITH und DAVIS [Smith83] analysiert haben. Es bildet sich eine *return-flow* genannte Strömung. Diese Grundströmung der Kuvette ist eine Überlagerung eines linearen Couette-Profiles und eines parabolischen Poiseuille-Profiles. Das Couette-Profil wird durch Scherkräfte des Marangonieffekts an der Oberfläche gebildet, das Poiseuille-Profil durch den sich durch die Kontinuitätsbedingungen bestimmten Druckgradienten.

Auftriebskräfte tragen ebenfalls zur Strömung bei und treiben sie mit dem gleichen Drehsinn an. Der Anteil der Auftriebströmung hängt von der Dicke  $d$  der Flüssigkeitsschicht ab. Für kleine Schichtdicken  $d$  dominiert die Marangonikonvektion.

Randbedingungen und Entdimensionalisierung der beschriebenen Geometrie finden sich in [Schneider95].

## 2.2 Hydrodynamische Kennzahlen

Die Strömung in einer solchen Küvette wird durch mehrere entdimensionalisierte Kennzahlen beschrieben:

*Die Marangonizahl*

$$\text{Ma} = - \frac{d\sigma}{dT} \frac{1}{\eta\chi} \cdot a \cdot \Delta T$$

mit

$\sigma$  der Oberflächenspannung,

$\eta$  der dynamischen Viskosität und

$\chi$  der thermischen Diffusivität.

Die Marangonizahl ist ein Maß für die Stärke der thermokapillaren Konvektion. Dabei ist  $a$  die charakteristische Länge für die Strömung, im Falle der Küvette die Schichtdicke  $d$ . Bei der obigen Notation handelt es sich um eine Definition der Marangonizahl, die vor allem bei experimentellen Arbeiten verwendet wird und sich auf die angelegte Temperaturdifferenz  $\Delta T$  bezieht. Aufgrund von Effekten der thermischen Randschicht an den Thermoden unterscheidet sich der angelegte Temperaturgradient  $\Delta T/L$  von dem über den größten Bereich der Oberfläche auftretenden Temperaturgradienten  $dT/dx$ . Bezieht man sich auf diesen Temperaturgradienten erhält man:

$$\text{Ma} = - \frac{d\sigma}{dT} \frac{1}{\eta\chi} \cdot d \cdot L \cdot \frac{dT}{dx}$$

*Die Rayleighzahl*

$$\text{Ra} = \frac{d\rho}{dT} \frac{g}{\nu\chi} \cdot d^2 \cdot L \cdot \Delta T$$

mit

$\rho$  der Dichte der Flüssigkeit,

$\nu$  der kinematischen Viskosität,

$\chi$  der thermischen Diffusivität und

$$g = 9,81 \text{ m/s}^2.$$

Die Rayleighzahl charakterisiert den Einfluß der Auftriebskonvektion.

*Die Prandtlzahl*

$$\text{Pr} = \frac{\nu}{\chi}$$

gibt die Stärke viskoser Kräfte im System wieder.

*Die Kapillaritätszahl*

$$\text{Ca} = \sqrt{\frac{2\sigma}{\rho g}}$$

wird auch kapillare Längenskala genannt. Sie gibt die Stärke kapillarer Kräfte bei Verformungen der freien Oberfläche an.

*Das Seitenverhältnis*

$$A = \frac{L}{d}$$

mit

L der Ausdehnung der Küvette zwischen beiden Thermoden und

d der Dicke der Flüssigkeitsschicht in der Küvette.

## 2.3 Bifurkationen

Die Bildung hydrodynamischer Instabilitäten läßt sich meist als Bifurkation im Phasenraum beschreiben. Stabile Strömungen besitzen im Phasenraum einen Attraktor in Form eines

Fixpunkts bei stationärer Strömung oder eines Grenzzyklus bei periodischer Strömung.

Wird der kritische Parameter des Systems - Marangoni- und Reynoldszahl, auf experimenteller Seite die angelegte Temperaturdifferenz - erhöht, kann es zur Instabilität des Attraktors gegen Störungen kommen. Dabei tritt eine Verzweigung in mehrere Lösungen des hydrodynamischen Systems auf (Bifurkation). Das System nimmt dabei meist nur eine Lösung ein.

In hydrodynamischen Systemen wird meist eine HOPF-Bifurkation beim Übergang von stationärer zu periodischer Strömung beobachtet. Kennzeichnend für diese Bifurkation ist das wurzelförmige Anwachsen der Oszillationsamplitude bei Erhöhung des kritischen Parameters:

$$A = A_0 \sqrt{\frac{Re - Re^{krit.}}{Re^{krit.}}}$$

bzw.

$$A = B_0 \sqrt{\Delta T - \Delta T_{krit.}}$$

bei annähernd konstanter Frequenz [Berge84].

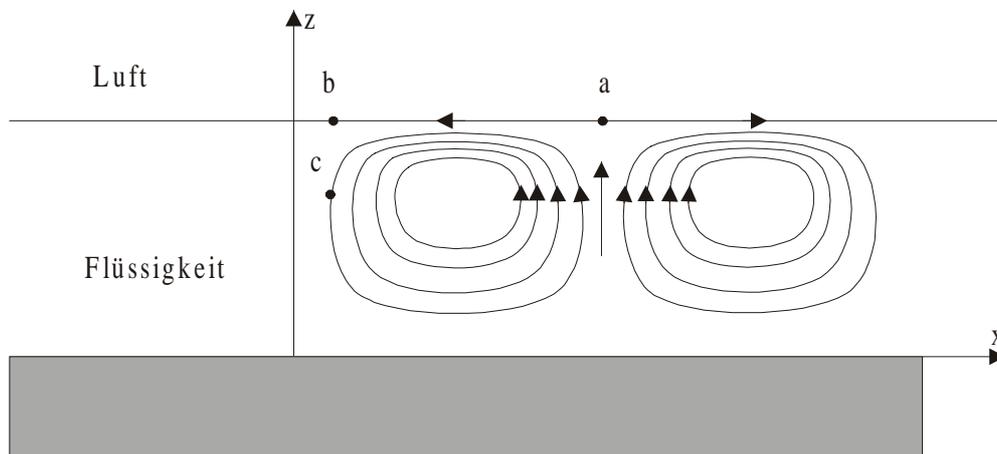
## 2.4 Hydrothermale Wellen

SMITH und DAVIS [Smith83, Smith86, Davis87] haben auf theoretischer Basis eine zeitabhängige Instabilität im "return-flow" untersucht, die sie hydrothermale Welle nennen. Es sei zunächst eine Flüssigkeit geringer Viskosität, also kleiner Prandtlzahl betrachtet. Die Hauptstromrichtung sei entlang der x-Achse. Weiterhin gehe man von einer zufällig entstandenen Störung in Form einer Linie auf der Flüssigkeitsoberfläche mit relativ zur Umgebung höherer Temperatur entlang der x-Achse aus. Aufgrund thermokapillarer Kräfte strömt Flüssigkeit von dieser heißen Linie weg und aus Kontinuitätsgründen von unten nach. Aufgrund des Temperaturprofils hat die von unten nachströmende Flüssigkeit eine geringere Temperatur und Geschwindigkeit und kühlt so die heiße Linie. Da die nachströmende Flüssigkeit eine geringere Geschwindigkeit als die Umgebung besitzt, wandert die Störung entgegen der Hauptströmung in negativer x-Richtung wobei der Temperaturunterschied weiter abnimmt, bis die heiße Linie verschwindet.

Aufgrund der Trägheit der Strömung transportiert der Aufstrom weiterhin kältere Flüssigkeit an die Oberfläche. Es entsteht eine Störung in Form einer kalten Linie, so daß sich der

Mechanismus umkehrt. Aufgrund thermokapillarer Kräfte wird wärmere Flüssigkeit zur kalten Linie gezogen. Dabei entsteht ein abwärts gerichteter Strom, der für ein Verschwinden der kalten Linie sorgt. Auch hier bleibt der abwärts gerichtete Strom auch nach dem Verschwinden der kalten Linie bestehen und erzeugt so erneut eine heiße Linie. So entsteht eine in  $y$ -Richtung laufende thermische Welle.

Für große Prandtlzahlen (wie sie für das in dieser Arbeit verwendete Ethanol,  $Pr \sim 17$ , gelten), also große Viskosität, kann die beschriebene Instabilität nicht entstehen, da keine Phasenverschiebung zwischen dem Auftreten der Störung und dem Auftreten des auf- oder abwärtsgerichteten Stroms existiert.



**Abb. 2.2** Die dem "return-flow" überlagerten Stromlinien einer hydrothermalen Welle für große Prandtlzahlen. Die Hauptstromrichtung ist entlang der  $x$ -Achse in positiver Richtung.

Anstelle einer Störung parallel zur  $x$ -Achse wird nun eine heiße Linie parallel zur  $y$ -Achse betrachtet (Abb. 2.2, Punkt a). Ähnlich wie beim Mechanismus für kleine Prandtlzahlen kommt es zu einer aufwärts gerichteten Strömung, die die heiße Linie kühlt. Da aber am Punkt b eine relativ niedrigere Temperatur herrscht, kommt es dort zu einer Abwärtsströmung, in die wärmere Flüssigkeit hineinströmt. Dadurch wird der Punkt c unterhalb der Oberfläche stark erwärmt, der wiederum Punkt b durch diffusive Wärmeleitung heizt. Mit zeitlicher Verzögerung ergibt sich so eine neue heiße Linie am Punkt b. Es entsteht eine thermische Welle, die in negativer  $x$ -Richtung wandert.

Für endliche Prandtlzahlen treten beide Mechanismen auf, so daß sich die hydrothermale Welle schräg zur Hauptstromrichtung bewegt. Für  $Pr \sim 17$  ergibt sich ein Winkel von etwa  $20^\circ$ .

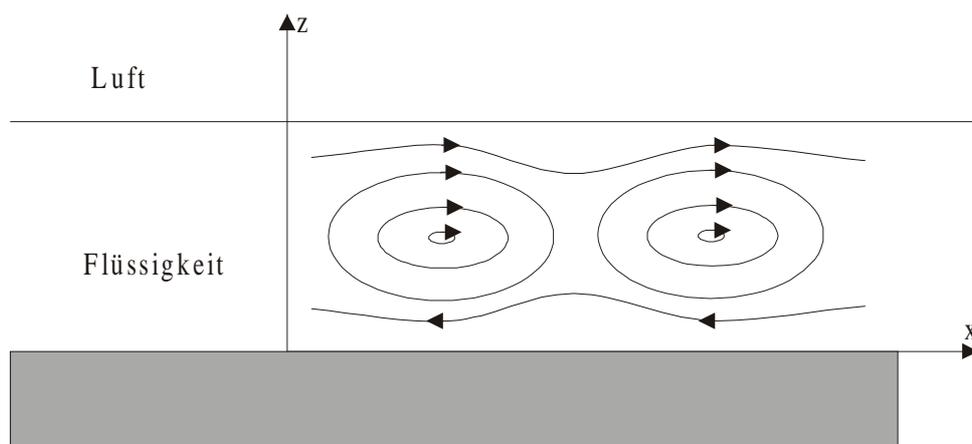
Die kritische Wellenlänge der hydrothermalen Welle entspricht etwa  $2,5d$  [Schwabe92, Kuhlmann96, Riley96].

## 2.5 Oberflächenwellen

Bei Kapillaritätszahlen  $Ca$  ungleich Null, ergibt sich aufgrund der Deformierbarkeit der Oberfläche eine weitere zeitabhängige Instabilität, die Oberflächenwelle [Smith83a]. Der Mechanismus ähnelt dem der hydrothermalen Welle, doch ergeben sich aufgrund der höheren Oberflächenenergie größere Wellenlängen. Die Oberflächenwellen können getrennt oder gekoppelt mit hydrothermalen Wellen auftreten [Schneider95].

## 2.6 Mehrfachrollenstruktur in dünnen Flüssigkeitsschichten

Im Gegensatz zu der linearen Stabilitätsanalyse von SMITH und DAVIS wurde in verschiedenen Experimenten in einer Küvette mit einem Seitenverhältnis  $A \gg 1$  und großen Prandtlzahlen [Riley96, Schwabe92, Metzger94, Villers92, Ezersky93] das Auftreten von stationären Mehrfachrollenstrukturen beobachtet. Es handelt sich dabei um ortsfeste und in  $y$ -Richtung gleichförmige Konvektionsrollen mit einer Ausbreitungsrichtung entlang der  $x$ -Achse (Abb. 2.3). Der Rotationssinn der Konvektionsrollen entspricht dem Rotationssinn des "return-flow". Die Wellenlänge der Konvektionsrolle hängt hauptsächlich von der Schichtdicke  $d$  ab, nimmt jedoch mit  $\Delta T$  zu [Schneider99].



**Abb. 2.3** Stromlinien der Mehrfachrollenstruktur.

Die Wirbelstärke der Konvektionsrollen nimmt mit zunehmendem Abstand von der heißen Wand ab [Riley96]. Aus den Arbeiten von RILEY und METZGER geht eine kritische Wellenlänge

der Konvektionsrollen von etwa  $\lambda = 1,5 d \dots 2,5 d$  hervor.

Die Mehrfachrollenstruktur wurde auch in numerischen Arbeiten [Villers92, Laure90, Ben-Hadid90, Cramer94] gefunden und läßt sich durch Scherkräfte innerhalb des "return-flow" erklären.

## 2.7 Oszillatorische Mehrfachrollen

Wird der Temperaturgradient an der freien Oberfläche weiter erhöht, treten bei der Mehrfachrollenstruktur Temperaturoszillationen auf [Schwabe92, Villers92, Riley96, Metzger94, Ezersky93, Daviaud93, Ezersky93a]. In Bezug auf das Strömungsfeld erkennt man die Zeitabhängigkeit der Strömung in einer Oszillation der Stromstärke der Konvektionsrollen. Dabei bewegt sich das Wirbelzentrum periodisch in x-Richtung, wobei sich benachbarte Wirbelzentren bei gleicher y-Koordinate gegenphasig verhalten.

Die Natur dieser zeitabhängigen Instabilität ist für große Prandtl-Zahlen annähernd zweidimensional und wird auch in numerischen, zweidimensionalen Arbeiten gefunden [z.B. Peltier93]. Laut PELTIER und BIRINGEN ist die Zeitabhängigkeit mit einem periodisch auftretenden kalten Flecks in der Nähe der heißen Wand verbunden. Dessen Auftreten ist mit einem konvektiven Wärmetransport von der kalten Wand und damit - im Gegensatz zu hydrothermalen Wellen - an eine endliche Geometrie gebunden.

Es muß jedoch darauf hingewiesen werden, daß die beschriebene Zeitabhängigkeit des Strömungsfeldes auch durch die Überlagerung der stationären Mehrfachrollen und einer hydrothermalen Welle ähnlicher Wellenlänge entstehen kann. Wegen  $\lambda_{htw} \sim 2,5 d$  und  $\lambda_{mrs} \sim 1,5 \dots 2,5$  und der fast zweidimensionalen Struktur der hydrothermalen Welle für große Prandtlzahlen ist die Unterscheidung zwischen oszillierenden Konvektionsrollen und der Überlagerung einer hydrothermalen Welle und einer stationären Konvektionsrolle schwierig. KUHLMANN [Kuhlmann96] weist außerdem darauf hin, daß das kritischste Seitenverhältnis für eine oszillatorische Mehrfachrollenstruktur bei  $A \sim 2,5$  liegt und damit der kritischen Wellenlänge der hydrothermalen Welle entspricht.

Insgesamt ist es ungeklärt, ob der unter anderem von RILEY [Riley96] gemachte Unterschied zwischen einer Mischform aus stationärer Mehrfachrollenstruktur mit hydrothermalen Wellen und oszillatorischen Mehrfachrollen überhaupt existiert.

In diesem Zusammenhang ist die Beobachtung von GARCIMARTIN *et. al.* [Garcimartin97]

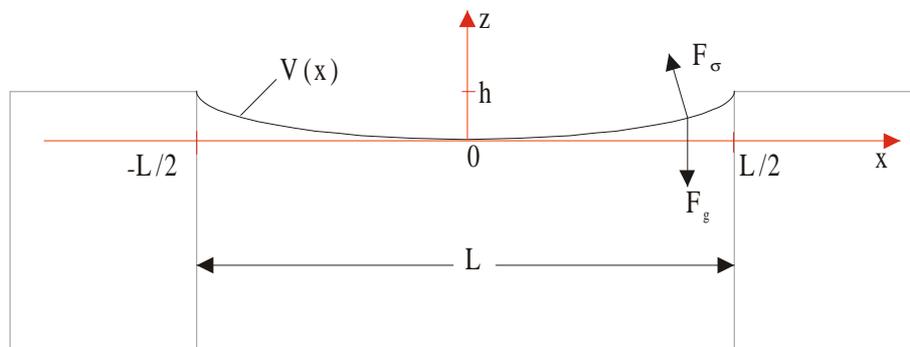
interessant. Sie fanden in einer Küvette bei Prandtlzahlen von 10, 15 und 20 eine Oszillation der Konvektionsrolle an der heißen Wand. Sie beschreiben, wie die oszillierende Rolle an der Oberfläche einen *heißen Punkt* absetzt, der eine laufende Welle entstehen läßt. Die so von der Konvektionsrolle erzeugte thermische Welle breitet sich senkrecht zum Temperaturgradienten von der heißen zur kalten Wand aus. Die Oszillationsfrequenz entspricht dabei der Umlaufperiode der Konvektionsrolle. Als Erklärung für die Oszillation vermuten GARCIMARTIN *et. al.* eine Instabilität der vertikalen thermischen Grenzschicht an der heißen Wand.

Inwieweit die beobachteten oszillatorischen Mehrfachrollen diesem Mechanismus entsprechen, ist unklar. Ebenso ist es nicht eindeutig, ob es sich bei den von SCHWABE *et. al.* [Schwabe92] beobachteten *short wavelength instabilities* tatsächlich um hydrothermale Wellen handelt.

Häufig ist unklar, ob es sich in den zitierten Publikationen um hydrothermale Wellen oder um oszillatorische Mehrfachrollenstrukturen handelt. Aufgrund der großen Ähnlichkeit werden im Zweifelsfall in dieser Arbeit beide Strukturen unter dem Begriff thermische Welle zusammengefaßt.

## 2.8 Form der freien Oberfläche

Betrachtet wird die Oberfläche einer Küvette mit einer Ausdehnung zwischen beiden Heizern von  $L$  und einer unendlichen Ausdehnung in  $y$ -Richtung. In diesem Fall kann die Oberfläche zweidimensional betrachtet werden. Der Nullpunkt des Koordinatensystems liege in der Mitte zwischen beiden Heizern und an der tiefsten Stelle der Oberfläche.



**Abb. 2.4** Koordinatensystem der betrachteten Oberfläche

Aufgrund der Einflüsse von Schwerkraft und Oberflächenenergie bildet sich eine Oberfläche wie in Abb. 2.4 gezeigt.

Die Form der freien Oberfläche wird aus dem Gleichgewicht von Oberflächenspannung und Gewichtskraft bestimmt:

$$F_{\sigma} + F_G = \text{const.}$$

Es sei

$L$  die Spaltbreite der Küvette (Küvettenlänge),

$h$  die Unterfüllung der Küvette,

$V$  die Form der Oberfläche und

$\vec{n}$  der Normalenvektor auf der Oberfläche.

Die Oberflächenspannung ergibt sich zu

$$\vec{F}_{\sigma} = \sigma \frac{d^2 V(x)}{dx^2} \cdot \vec{n} \cdot dx \cdot dy$$

$$F_{\sigma} = \frac{d^2 V(x)}{dx^2} \cdot \frac{\sigma}{\sqrt{\left(\frac{d^2 V(x)}{dx^2}\right)^2 + 1}} \cdot dx \cdot dy$$

Die Gewichtskraft lautet:

$$\vec{F}_G = -\rho g V(x) \cdot dx \cdot dy$$

Man erhält so die Differentialgleichung

$$\frac{d^2 V(x)}{dx^2} \frac{\sigma}{\sqrt{\left(\frac{d^2 V(x)}{dx^2}\right)^2 + 1}} \cdot dx \cdot dy - \rho g V(x) \cdot dx \cdot dy = \text{const.}$$

$$\frac{d^2V(x)}{dx^2} \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{dV(x)}{dx}\right)^2 + 1}} - \frac{\rho g}{\sigma} V(x) = \text{const.} \quad (1)$$

Für kleine Oberflächenkrümmungen, also für geringe Unterfüllungen der Küvette kann der Winkel zwischen  $F_{\square}$  und  $F_G$  als klein angenommen werden, also  $\sqrt{\left(\frac{d^2V(x)}{dx^2}\right)^2 + 1} \approx 1$ :

$$\frac{d^2V(x)}{dx^2} - \frac{\rho g}{\sigma} V(x) = \text{const.}$$

$$\frac{d^2V(x)}{dx^2} - \frac{2}{Ca^2} V(x) = \text{const.} \quad (2)$$

mit anderen Worten ( $P_{\text{schwere}} = \rho g V(x)$ ,  $P_{\text{kapillar}} = -\sigma \frac{d^2V(x)}{dx^2}$ ):

$$P_{\text{schwere}} + P_{\text{kapillar}} = \text{const.}$$

Wie in Abb. 2.4 gezeigt, soll die Funktion  $V$  symmetrisch um die  $z$ -Achse sein. Ferner gelten folgende Randbedingungen:

$$\frac{d^2V(0)}{dx^2} = 0$$

$$V(0) = 0$$

$$V\left(\frac{L}{2}\right) = V\left(-\frac{L}{2}\right) = h$$

Diese Differentialgleichung kann mit zwei symmetrisch zum 0-Punkt überlagerten Exponentialfunktionen gelöst werden:

$$V(x) = a \cdot (e^{bx} + e^{-bx}) + c = 2a \cdot \cosh(bx) + c.$$

Diese Funktion erfüllt sofort die Symmetriebedingung  $V(x)=V(-x)$  und  $\frac{d^2V(0)}{dx^2} = 0$ .

Mit

$$\frac{d^2V(x)}{dx^2} = 2ab \cdot \cosh bx$$

ergibt sich

$$\frac{d^2V(x)}{dx^2} = b^2V(x) - c$$

Mit (2) folgt

$$b^2 \cdot V(x) - \frac{2}{Ca^2} V(x) - c = \text{const.}$$

Dies kann nur dann für alle  $x$  erfüllt sein, wenn

$$b = \frac{\sqrt{2}}{Ca}. \quad (3)$$

Mit  $V(0)=0$  ergibt sich

$$V(0) = 2a \cdot \cosh(0) + c$$

$$V(0) = 2a + c$$

$$c = -2a. \quad (4)$$

Aus  $V\left(\frac{L}{2}\right) = h$  und (4) folgt

$$V\left(\frac{L}{2}\right) = 2a \cdot \cosh\left(\frac{bL}{2}\right) - 2a = h$$

$$2a \cdot \left( \cosh\left(\frac{bL}{2}\right) - 1 \right) = h$$

$$a = \frac{1}{2} \frac{h}{\cosh\left(\frac{bL}{2}\right) - 1}$$

Damit ergibt sich aus (3) und (4)

$$c = - \frac{h}{\cosh\left(\frac{bL}{2}\right) - 1} \quad (6)$$

Es folgt ((3),(5),(6)):

$$V(x) = \frac{h}{\cosh\left(\frac{L}{\sqrt{2}Ca}\right) - 1} \left( \cosh\left(\frac{\sqrt{2}}{Ca} x\right) - 1 \right) \quad (7)$$

Der Winkel zwischen Thermode und freier Oberfläche  $\varphi$  entspricht:

$$\varphi = \operatorname{atan} \frac{d}{dx} V\left(\frac{L}{2}\right),$$

wobei

$$\frac{d}{dx} V\left(\frac{L}{2}\right) = \sqrt{2} \frac{h}{Ca}$$

eine lineare Funktion der Unterfüllung  $h$  ist.

Es sei

$$U(x) = e^{bx} + e^{-bx},$$

also

$$V(x) = aU(x) + c.$$

Zur Betrachtung des Einflusses des Wurzelterms in der ursprünglichen Differentialgleichung sei nun eine Funktion

$$V_2(x) = a_2 U(x) + c_2$$

betrachtet, die näherungsweise Gleichung (1) genüge.

Setzt man diese in (1) ein, so erhält man

$$a_2 \frac{\frac{d^2 U(x)}{dx^2}}{\sqrt{\left(\frac{dV_2(x)}{dx}\right)^2 + 1}} - \frac{\sqrt{2}}{Ca} V_2(x) = \text{const.}$$

Setzt man nun

$$a_2 = a \cdot \sqrt{\left(\frac{dV(x)}{dx}\right)^2 + 1}$$

erhält man als Näherung die gleiche Lösung wie für (2), jedoch mit anderem Vorfaktor

$$a_2 = \frac{1}{2} \frac{h}{\cosh\left(\frac{L}{\sqrt{2}Ca}\right) - 1} \cdot \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{dV(x)}{dx}\right)^2 + 1}} \quad (8)$$

Das bedeutet insbesondere, daß die Steigung um den Faktor  $\sqrt{\left(\frac{dV(x)}{dx}\right)^2 + 1}$  größer wird.

Dieser Faktor kann als Störung, die näherungsweise linear von h abhängt betrachtet werden.

Damit kann Gleichung (8) durch

$$a_2 = \frac{1}{2} \frac{h}{\cosh\left(\frac{L}{\sqrt{2}Ca}\right) - 1} \left( 1 + \sqrt{\left(\frac{dV(h_0)}{dx}\right)^2 + 1} \right) \frac{h}{h_0}$$

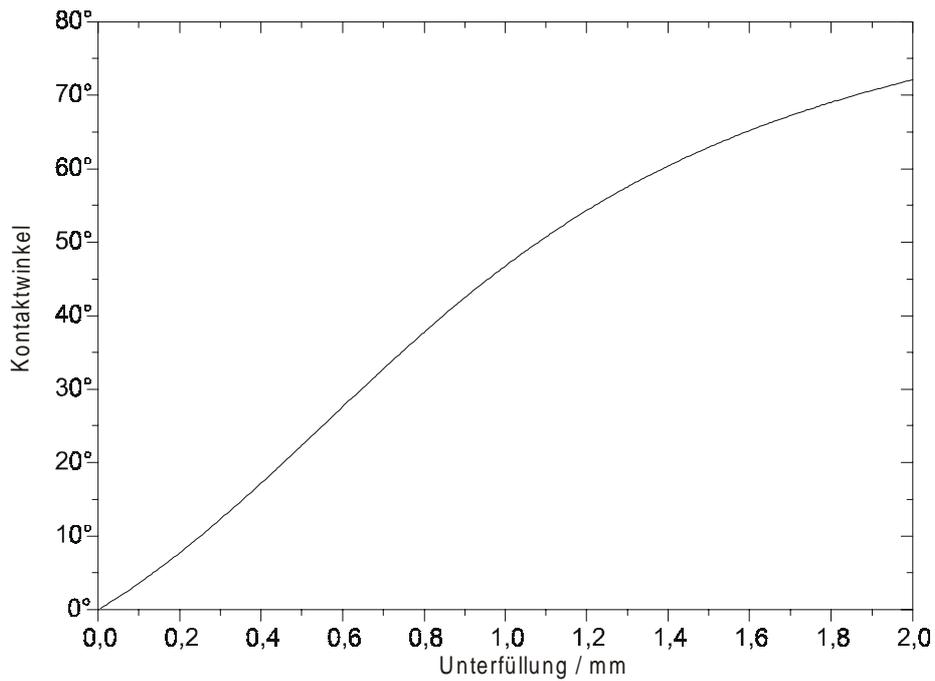
genähert werden.

Der Kontaktwinkel zwischen freier Oberfläche und Thermode beträgt bei typischer Unterfüllung ungefähr  $45^\circ$ , also  $V'(l) \sim 1$ . Daher wird  $h_0$  so gewählt, daß  $V'(l) = 1$ :

$$h_0 = \frac{Ca}{\sqrt{2}}$$

Damit ergibt sich die Steigung an der Kontaktstelle zwischen freier Oberfläche und Thermode zu

$$\frac{d}{dx} V_2\left(\frac{L}{2}\right) = h \cdot (1 + Ca \cdot h) \cdot \frac{\sqrt{2}}{Ca}.$$



**Abb. 2.5** *Abhängigkeit des Kontaktwinkels an der Kontaktstelle zwischen freier Oberfläche und Thermode für Ethanol bei einer Temperatur von 20 °C.*

## 2.9 Schwerewellen

Bei Schwerewellen handelt es sich um transversale Wellen auf der Oberfläche von Flüssigkeiten, die nur durch den Schweredruck

$$P_{\text{schwere}} = \rho g \Delta z$$

mit

$\rho$  der Dichte der Flüssigkeit und

$\Delta z$  der Amplitude der Welle

und nicht durch Kapillarkräfte angetrieben wird ( $\sigma = 0$ ).

Ist  $c$  die Phasengeschwindigkeit der Schwerewelle und  $v$  die Geschwindigkeit eines betrachteten kleinen Flüssigkeitsvolumens, so muß die kinetische Energie des Flüssigkeitsvolumens im Wellental um dessen potentielle Energie größer sein als beim Wellenberg:

$$\frac{1}{2} m \cdot (c + v)^2 = 2mg \cdot \Delta z + \frac{1}{2} m \cdot (c - v)^2$$

Damit ergibt sich

$$v = \frac{g \cdot \Delta z}{c}$$

Mit  $\omega = v/h$  ergibt sich die Frequenz der Schwerewelle zu

$$\omega = \frac{g}{c}$$

und damit die Phasengeschwindigkeit und Frequenz zu

$$c = \sqrt{\frac{g\lambda}{2\pi}}, \quad v = \frac{1}{\lambda} \sqrt{\frac{g\lambda}{2\pi}}$$

## 2.10 Kapillarwellen

Betrachtet man  $\sigma > 0$ , vernachlässigt aber den Schweredruck, erhält man die Kapillarwelle. Sie wird durch den Kapillardruck

$$P_{\text{kap.}} = \frac{\sigma}{r} \approx \sigma y''$$

angetrieben wird. Geht man von einer sinusförmigen Welle kleiner Amplitude aus, ergibt sich der Kapillardruck zu

$$P_{\text{kap.}} = \frac{\sigma 4\pi^2}{\lambda^2} \Delta z \quad [\text{z.B. Gerthsen98}].$$

Äquivalent zur Schwerewelle erhält man Phasengeschwindigkeit und Frequenz

$$c_{\text{kap.}} = \sqrt{\frac{2\pi \cdot \sigma}{\rho \cdot \lambda}},$$

$$v = \frac{1}{\lambda} \sqrt{\frac{2\pi}{\rho \lambda}}.$$

Allgemein tritt ein Mischzustand von Kapillarwelle und Schwerewelle, die kapillare Schwerewelle auf. Der Übergangsbereich liegt bei

$$c_{\text{kap.}} = c_{\text{schwere.}}$$

Dies ist für

$$\lambda = 2\pi \sqrt{\frac{\sigma}{\rho \cdot g}} = \frac{2\pi}{\sqrt{2}} \text{Ca} = 10,8 \text{ mm (für Ethanol bei } 20^\circ \text{C)}$$

und damit für die ungefähre Größenordnung der Geometrie der in dieser Arbeit verwendeten Küvette der Fall.

Wie später in der Arbeit gezeigt liegen die Wellenlängen der beobachteten Wellen vorwiegend zwischen 15 mm und 80 mm, d. h. der Einfluß des Schwerdrucks ist größer als der des Kapillardrucks und die Wellen können weitgehend als Schwerewellen beschrieben werden.

## 2.11 Oszillationen der freien Oberfläche

In endlichen Geometrien, z. B. bei der in dieser Arbeit verwendeten rechteckigen K vette, treten die beschriebenen Schwerewellen als stehende Wellen durch Reflexion an den Seitenw nden auf. Betrachtet man die Wellengleichung linear, k nnen die so entstehenden Schwingungen weitgehend wie Membranschwingungen behandelt werden. Die Oberfl chenschwingungen unterscheiden sich von einer rechteckig eingespannten Membran durch die Randbedingungen.

Wichtigste Randbedingung ist der Erhalt des Fl ssigkeitsvolumens. Das Integral  ber die Auslenkung der freien Oberfl che mu  Null sein. Der Nullpunkt des Koordinatensystems ist die K vettenmitte.  $L$  sei die Ausdehnung der K vette in  $x$ -Richtung und  $B$  die Ausdehnung in  $y$ -Richtung. Unter der Voraussetzung kleiner Amplituden gen gen die folgenden beiden zweidimensionalen L sungen den Randbedingungen und der Wellengleichung:

$$z = a \cdot \cos\left(\left(x + \frac{L}{2}\right) \frac{n \cdot \pi}{L}\right) \cdot \sin \varpi t, \quad n = 1, 2, 3, \dots$$

und

$$z = a \cdot \cos\left(\left(y + \frac{B}{2}\right) \frac{m \cdot \pi}{B}\right) \cdot \sin \varpi t, \quad m = 1, 2, 3, \dots$$

Zus tzlich zu den beiden zweidimensionalen L sungen existiert eine dreidimensionale L sung:

$$z = a \cdot \cos\left(\left(x + \frac{L}{2}\right) \frac{k \cdot \pi}{2L}\right) \cdot \cos\left(\left(y + \frac{B}{2}\right) \frac{l \cdot \pi}{2B}\right) \cdot \sin \varpi t, \quad k, l = 1, 2, 3, \dots \quad [\text{Verma62}].$$

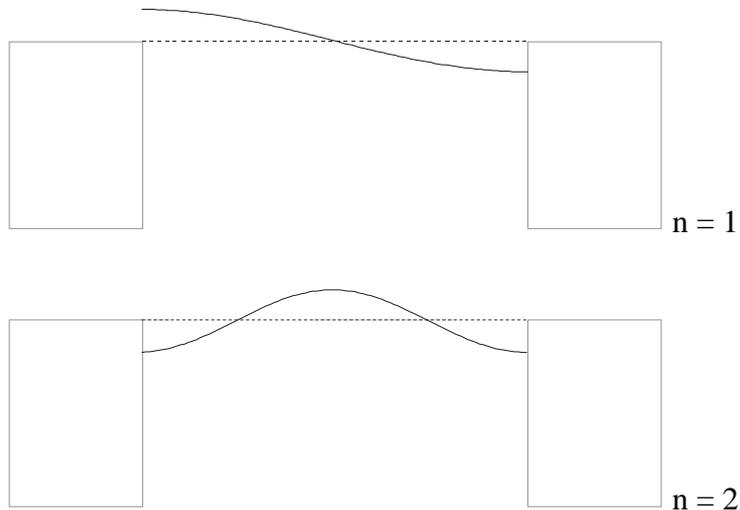
Damit ergeben sich die Wellenl ngen zu

$$\lambda_n = 2 L/n,$$

$$\lambda_m = 2 B/m \text{ und}$$

$$\lambda_{k,l} = \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{k}{4L}\right)^2 + \left(\frac{l}{4B}\right)^2}}.$$

Abb. 2.6. skizziert die ersten beiden Moden der eindimensionalen Lösung zum Zeitpunkt  $t=\omega/4$ . Man erkennt, daß das Volumen unter der Kurve konstant ist; die Schwingungsbäuche liegen an den Rändern der Küvette.



**Abb. 2.6** Mode  $n=1$  und  $n=2$  der eindimensionalen Lösung.

Nach den Überlegungen zur Frequenz einer Schwerewelle ergeben sich die Frequenzen der Lösungen zu

$$v_n = \sqrt{\frac{n \cdot g}{\pi \cdot L}},$$

$$v_m = \sqrt{\frac{m \cdot g}{\pi \cdot B}} \text{ und}$$

$$v_{k,1} = \sqrt[4]{\left(\frac{g}{2\pi}\right)^2 \frac{1}{\left(\frac{k}{4L}\right)^2 + \left(\frac{1}{4B}\right)^2}}$$

Allgemein existieren unendlich viele Lösungen mit gleicher Wellenlänge, da der Winkel zwischen  $x$ -Achse und Ausbreitungsrichtung der stehenden Welle beliebig gewählt werden kann. Nichtlineare Untersuchungen zeigen jedoch, daß nur wenige Lösungen stabilen stehenden Wellen entsprechen.

BRYANT und STIASSNIE [Bryant95] finden folgende drei Lösungen:

$$y = a \cdot \cos\left(k \cdot \left(x + \frac{L}{2}\right)\right) \cdot \cos \omega t \pm a \cdot \sin\left(k \cdot \left(y + \frac{B}{2}\right)\right) \cdot \cos \omega t$$

mit

$$\omega = \sqrt{\frac{g}{k}} \left(1 - 0,30077 \cdot k^2 \cdot a^2\right),$$

$$y = a \cdot \cos\left(k \cdot \left(x + \frac{L}{2}\right)\right) \cdot \cos \omega t \pm a \cdot \cos\left(k \cdot \left(y + \frac{B}{2}\right)\right) \cdot \sin \omega t$$

mit

$$\omega = \sqrt{\frac{g}{k}} \left(1 - 0,07423 \cdot k^2 \cdot a^2\right)$$

und

$$y = a \cdot \cos\left(k \cdot \left(x + \frac{L}{2}\right)\right) \cdot \cos \omega t \pm a \cdot \cos\left(k \cdot \left(y + \frac{B}{2}\right)\right) \cdot \cos \omega t \quad (9)$$

$$\pm 0,25960 \cdot \left( a \cdot \cos\left(4k \cdot \left(x + \frac{L}{2}\right)\right) \cdot \cos 2\omega t \pm a \cdot \cos\left(4k \cdot \left(y + \frac{L}{2}\right)\right) \cdot \cos 2\omega t \right)$$

mit

$$\omega = \sqrt{\frac{g}{k}} \left(1 - 0,29907 \cdot k^2 \cdot a^2\right).$$

Man erkennt, daß diese Lösungen für kleine Amplituden  $a$  sich als Linearkombination der oben angegebenen Lösungen bei linearer Betrachtung darstellen lassen. Die Kopplung der Grundschwingung und der dritten Oberschwingung bei Lösung (9) entsteht durch eine parametrische Resonanz. Sie tritt bei der dritten, statt der ersten Oberschwingung auf, da die Frequenz der stehenden Welle von der Wurzel der Modenzahl abhängt. Ganzzahlige Verhältnisse von Oberschwingungen und Grundschwingungen ergeben sich daher nur, wenn die

Modenzahl eine Quadratzahl ist. In einem Experiment sollte man daher eher die dritte und die achte als andere Oberschwingungen beobachten.

Für die stehenden Wellen in einer Küvette mit geringer Unterfüllung, wie sie in dieser Arbeit verwendet wird, muß beachtet werden, daß die Flüssigkeitsoberfläche an den Rändern der Küvette festgelegt ist:

$$z\left(x = \pm \frac{L}{2}\right) = z\left(y = \pm \frac{B}{2}\right) = 0.$$

Da die Schwingungsbäuche der oben beschriebenen stehenden Wellen bei  $x = \pm L/2$  und  $y = \pm B/2$  liegen, existiert ein Übergangsbereich nahe der Küvettenwände, in der die z-Auslenkung der Welle aufgrund von Kapillarkräften auf Null zurückgeht.

In diesem Bereich muß (bei kleinen Amplituden)

$$P_{\text{kap.}} + P_{\text{schwere}} = 0$$

und damit

$$\frac{d^2}{dx^2} u(x) + \frac{2}{Ca^2} u(x) = 0 \quad (\text{vgl. Gl. (2)}) \quad \text{mit} \quad z = u(x) \sin \omega t$$

gelten. Gleichzeitig muß der Bereich der Wellengleichung genügen. Anders als in Kap. 2.7 muß daher eine periodische Funktion zur Lösung angesetzt werden:

$$u(x) = a' \cdot \sin\left(\frac{\sqrt{2}}{Ca} \cdot (x - L)\right).$$

Damit erhält man die charakteristische Wellenlänge des Bereiches als

$$\lambda_{\text{kap.}} = \pi\sqrt{2} \cdot Ca = 2\pi\sqrt{\frac{\sigma}{\rho g}},$$

also genau die Wellenlänge, bei der Kapillarwellen in Schwerewellen übergehen.

Damit die Gesamtfunktion weiterhin der Wellengleichung und den Randbedingungen genügt,

muß der Übergangspunkt zwischen beiden Lösungen stetig differenzierbar sein. Man erhält:

$$z = \left\{ \begin{array}{l} a \cdot \cos \left( \left( x + \frac{L'}{2} \right) \frac{n \cdot \pi}{L'} \right) \cdot \sin \omega t \quad \text{für } |x| \leq \frac{L'}{2}, \quad n = 1, 2, 3, \dots \\ a \cdot \sin \left( \left( x - \frac{L'}{2} \right) \frac{2\pi}{\lambda_{\text{kap.}}} \right) \cdot \sin \omega t \quad \text{für } |x| > \frac{L'}{2} \end{array} \right.$$

$$z = \left\{ \begin{array}{l} a \cdot \cos \left( \left( y + \frac{B'}{2} \right) \frac{m \cdot \pi}{B'} \right) \cdot \sin \omega t \quad \text{für } |y| \leq \frac{B'}{2}, \quad m = 1, 2, 3, \dots \\ a \cdot \sin \left( \left( y - \frac{B'}{2} \right) \frac{2\pi}{\lambda_{\text{kap.}}} \right) \cdot \sin \omega t \quad \text{für } |y| > \frac{B'}{2} \end{array} \right.$$

und

$$z = \left\{ \begin{array}{l} a \cdot \cos \left( \left( x + \frac{L'}{2} \right) \frac{k \cdot \pi}{2L'} \right) \cdot \cos \left( \left( y + \frac{B'}{2} \right) \frac{l \cdot \pi}{2B'} \right) \cdot \sin \omega t \quad \text{für } |x| \leq \frac{L'}{2}, |y| \leq \frac{B'}{2}, \quad k, l = 1, 2, 3, \dots \\ a \cdot \sin \left( \left( x + \frac{L'}{2} \right) \frac{2\pi}{\lambda_{\text{kap.}}} \right) \cdot \cos \left( \left( y + \frac{B'}{2} \right) \frac{l \cdot \pi}{2B'} \right) \cdot \sin \omega t \quad \text{für } |x| > \frac{L'}{2}, |y| \leq \frac{B'}{2}, \quad l = 1, 2, 3, \dots \\ a \cdot \cos \left( \left( x + \frac{L'}{2} \right) \frac{k \cdot \pi}{2L'} \right) \cdot \sin \left( \left( y + \frac{B'}{2} \right) \frac{2\pi}{\lambda_{\text{kap.}}} \right) \cdot \sin \omega t \quad \text{für } |x| \leq \frac{L'}{2}, |y| > \frac{B'}{2}, \quad k = 1, 2, 3, \dots \\ a \cdot \sin \left( \left( x + \frac{L'}{2} \right) \frac{2\pi}{\lambda_{\text{kap.}}} \right) \cdot \sin \left( \left( y + \frac{B'}{2} \right) \frac{2\pi}{\lambda_{\text{kap.}}} \right) \cdot \sin \omega t \quad \text{für } |x| > \frac{L'}{2}, |y| > \frac{B'}{2} \end{array} \right.$$

mit

$$L' = L - \frac{\lambda_{\text{kap.}}}{2}$$

$$B' = B - \frac{\lambda_{\text{kap.}}}{2}.$$

Der Übergangsbereich verkürzt also die effektive Ausdehnung der Küvette um  $\frac{1}{2} \lambda_{\text{kap.}}$ .

Entsprechend ergeben sich die Wellenlängen und Frequenzen zu:

$$\lambda_n = 2 L'/n, \quad (10)$$

$$\lambda_m = 2 B'/m \text{ und} \quad (11)$$

$$\lambda_{k,1} = \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{k}{4L'}\right)^2 + \left(\frac{1}{4B'}\right)^2}}. \quad (12)$$

Nach den Überlegungen zur Frequenz einer Schwerewelle ergeben sich die Frequenzen der Lösungen zu

$$v_n = \sqrt{\frac{n \cdot g}{\pi \cdot L'}},$$

$$v_m = \sqrt{\frac{m \cdot g}{\pi \cdot B'}} \text{ und}$$

$$v_{k,1} = \sqrt[4]{\left(\frac{g}{2\pi}\right)^2 \frac{1}{\left(\frac{k}{4L'}\right)^2 + \left(\frac{1}{4B'}\right)^2}}$$

Für eine exakte Bestimmung von kapillaren Oberflächenwellen in einer rechteckigen Küvette mit festgelegten Rändern muß die Laplacegleichung für das Geschwindigkeitspotential  $\Psi$  mit Störung  $u$  gelöst werden [Weidman87]:

$$\nabla^2 \Psi = 0$$

mit

$$\frac{\partial}{\partial t} \Psi - \frac{\sigma}{\rho} \cdot \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} u + \frac{\partial^2}{\partial y^2} u \right) + g \cdot u = 0 \quad \text{für } x = 0$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \Psi = \frac{\partial}{\partial t} u \quad \text{für } z = 0$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \Psi = 0 \quad \text{für } z = -d$$

$$\frac{\partial}{\partial x} \Psi = 0 \quad \text{für } x = \pm L/2$$

$$\frac{\partial}{\partial y} \Psi = 0 \quad \text{für } y = \pm B/2.$$

Da sich laut WEIDMAN und NORRIS keine separierten Lösungen finden lassen, ist eine analytische Lösung schwierig. Es existieren verschiedene Näherungslösungen und Überlegungen vor allem zu kapillaren Schwerewellen in langen Kanälen, bei denen die letzte Randbedingung entfällt [Scott78, Benjamin79, Heckerman79, Benjamin80, Shen83, Graham-Eagle83, Benjamin85].

Bezüglich der oben gemachten Näherung ist folgender Punkt aus der Arbeit von WEIDMAN und NORRIS interessant. Sie setzen die Störung (Festlegung der Oberfläche nur in einer Dimension:  $u(\pm B/2) = 0$ ) als

$$u(x,y,t) = a \cdot f(y) \cdot \sin(kx - \omega t)$$

an. Zusammen mit einer Näherung des Geschwindigkeitspotentials

$$\Psi = -i\omega \cdot f(y) \cdot \frac{\cosh(k \cdot (z + d))}{k} \cdot \sinh(k \cdot d) \cdot e^{i(kx - \omega t)}$$

erhalten sie (unter Vernachlässigung des Einflusses des Kontaktwinkels) für  $f(y)$  die Lösung

$$f(y) = \frac{\cosh\left(y \cdot \frac{\sqrt{2}}{Ca}\right) - \cosh\left(\frac{B\sqrt{2}}{2 \cdot Ca}\right)}{1 - \cosh\left(\frac{B\sqrt{2}}{2 \cdot Ca}\right)}.$$

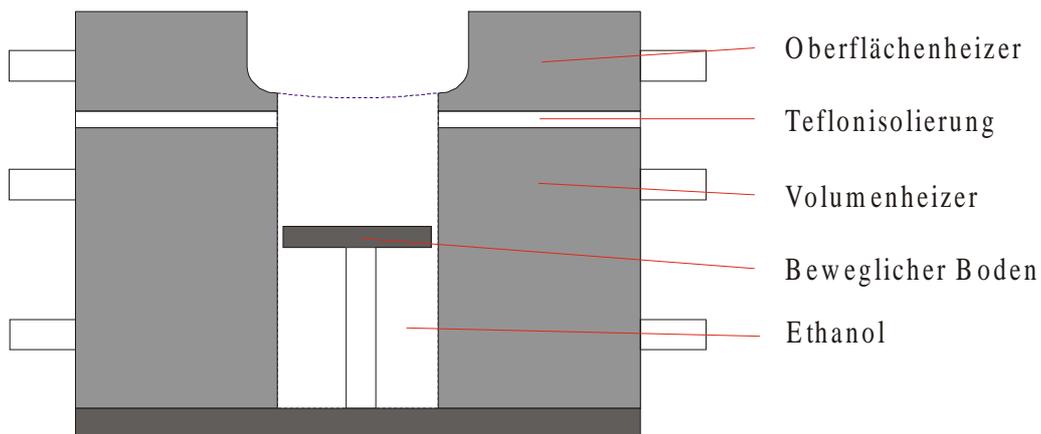
Diese Gleichung entspricht  $1 - V/h$  mit  $V$  aus Gleichung (7).  $f(y)$  beschreibt also nichts anderes als die Form der freien Oberfläche bei einer statischen Über- oder Unterfüllung, die der Amplitude  $a$  der Oberflächenwelle entspricht.

Diese Lösung kann auch als Näherung für die Form der Oberfläche senkrecht zur Ausbreitungsrichtung einer stehenden Welle in der rechteckigen Küvette verwendet werden.

## 3. Experimentaufbau

### 3.1 Die Küvette

Der Aufbau einer offenen Küvette mit rechteckiger Geometrie ist bereits in [Metzger86, Metzger94] beschrieben worden. Bei dieser Küvette sind zwei Seiten als Thermoden ausgelegt, die anderen beiden dienen als Beobachtungsfenster. Wird eine Temperaturdifferenz zwischen den beiden Thermoden angelegt und die Küvette mit einer Flüssigkeit gefüllt, so daß sich an der oberen Öffnung der Küvette eine freie Oberfläche bildet, kann der Aufbau als Modell für eine Halbzone beim Kristallziehen im offenen Boot oder als Modell für das Kristallziehen in Czochralski-Tiegel dienen.



**Abb. 3.1** Skizze der Küvette mit rechteckiger Geometrie.

 Photographie auf CD.

Die Thermoden der Küvette bestehen aus zwei getrennten Teilen: Die Oberflächenheizer und die Volumenheizer. Die Oberflächenheizer sind einen Millimeter stark und bestimmen vorwiegend die Temperaturverteilung an der Oberfläche der Experimentierflüssigkeit. Sie sind durch eine ebenfalls einen Millimeter starke Teflonplatte von den Volumenheizern thermisch isoliert. Die Volumenheizer decken den Rest der Thermoden ab und bestimmen vorwiegend die Temperaturverteilung im Volumen der Experimentierflüssigkeit. Sowohl die Oberflächen- als auch die Volumenheizer sind aus Kupfer mit innenliegender Heizspirale gefertigt und werden mit Wasserthermostaten auf konstanter Temperatur gehalten. In Oberflächen- und Volumenheizer sind in einer Bohrung Thermowiderstände (PT100) so eingebaut, daß sie sich

nahe an der Experimentierflüssigkeit befindet und die Temperatur der eigentlichen Thermode messen. Die Breite der Thermoden beträgt 40 mm.

<b>Abmessungen der Küvette</b>	
Küvettenlänge (= Spaltbreite) L	20 mm (16 mm; 12 mm)
Küvettenbreite B	41 mm (35 mm)
Schichtdicke d	20 mm
Seitenverhältnis $A = L/d$	1 (0,8; 0,6)

**Abb. 3.2** Abmessungen der verwendeten Küvette.

Die beiden Seitenteile sind aus 2 mm starkem Quarzglas gefertigt und erlauben so optische Beobachtungen senkrecht zur Hauptstromrichtung. Sie sind so eingebaut, daß sich eine Spaltbreite (=Küvettenlänge) der Küvette von  $L=20$  mm ergibt. Im Gegensatz zum Original von METZGER sind sie mit *Gomastit* eingeklebt. Dies erlaubt gegenüber der Silikondichtung eine bessere Passung an den Stoßkanten und bietet durch das Fehlen eines Befestigungsrahmen ein besseres Blickfeld.

Der Boden der Küvette ist beweglich eingebaut und kann auf Schichtdicken der Experimentierflüssigkeit von 0 mm bis 40 mm eingestellt werden. Sofern nicht besonders erwähnt, war der Boden auf eine Schichtdicke von  $d=20$  mm eingestellt, so daß sich ein Seitenverhältnis von  $A = 1$  ergibt.

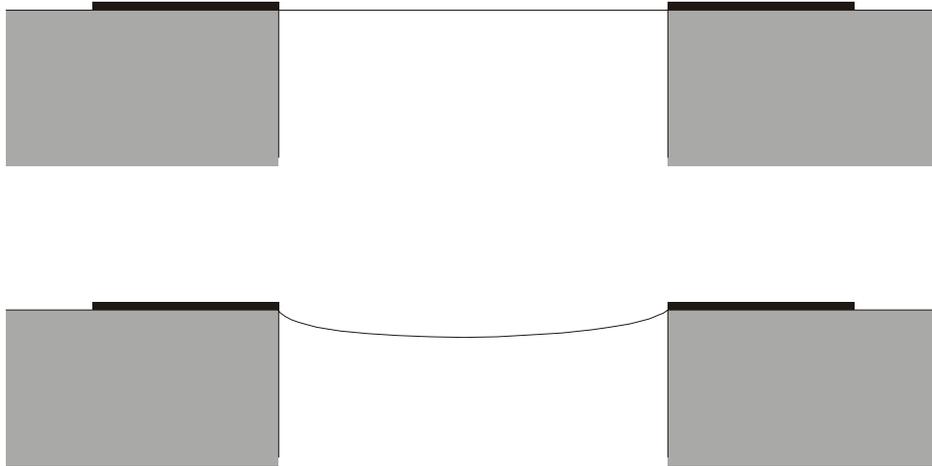
Als Experimentierflüssigkeit wurde Ethanol ( $C_2H_5OH$ ) eingesetzt. Die niedrige Oberflächenspannung führt zu guter Löslichkeit vieler oberflächenaktiver Stoffe. Aufgrund der niedrigen Oberflächenspannung reichern sich Verunreinigungen nicht an der Oberfläche an. Ethanol ist stark hygroskopisch und wird dadurch schnell durch Wasser verunreinigt.

Stoffdaten Ethanol		0 °C	20 °C	30 °C	40 °C
Dichte $\rho$	$\frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	806	789,4	781,0	772,4
$\frac{d\rho}{dT}$	$\frac{\text{kg}}{\text{m}^3\text{K}}$	0,83	0,84	0,86	
Oberflächenspannung $\sigma$	$\frac{\text{N}}{\text{m}}$	0,0245	0,02275	0,0219	0,0210
$\frac{d\sigma}{dT}$	$\frac{\text{N}}{\text{mK}}$		0,0009	0,0009	0,0009
spez. Wärme $c_p$	$\frac{\text{kJ}}{\text{kg} \cdot \text{K}}$	2,2	2,414	2,5	2,6
Wärmeleitfähigkeit $\lambda$	$\frac{\text{J}}{\text{m} \cdot \text{s} \cdot \text{K}}$	0,172	0,166	0,162	0,159
therm. Diffusivität $\alpha$	$0^{-8} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	9,7	8,7	8,3	7,9
dyn. Viskosität $\eta$	$0^3 \frac{\text{kg}}{\text{m} \cdot \text{s}}$	1,773	1,20	1,003	0,834
kin. Viskosität $\nu$	$0^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	2,2	1,52	1,28	1,08
Prandtlzahl $Pr$		23	17	15	14

**Abb. 3.3** Stoffdaten von Ethanol [Metzger86]

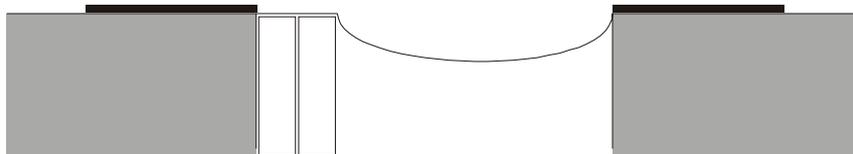
Als Benetzungssperre wurde Teflon auf die Oberseite von Thermoden und Quarzfenster aufgetragen. Dabei wurden die Kanten zwischen den nicht zu benetzenden Oberseiten und den zu benetzenden Seiten so geschliffen, daß eine scharfe Kante entsteht, wobei die eine Seite unbehandelt, die andere mit Benetzungssperre versehen ist. Da so die unbehandelten Seiten vollständig, die mit Teflon beschichteten Oberseiten jedoch nicht vom Ethanol benetzt werden,

wird die Flüssigkeitsoberfläche an diesen Kanten *gepinnt*, d.h. es befindet sich exakt bis zu der entsprechenden Kante Ethanol.



**Abb. 3.4** Festlegung ("pinning") der freien Oberfläche an der Kontaktlinie der Thermode bei exakter Füllung und bei Unterfüllung der Küvette. Schwarz eingezeichnet ist die auf der Oberseite der Thermoden angebrachte Benetzungssperre.

Dies gilt ebenfalls dann, wenn die Küvette nicht exakt mit Ethanol befüllt ist, sondern leicht unterfüllt ist. Bei Unterfüllung bildet sich an den Seitenwänden und an den Thermoden ein Meniskus, der bis zur Kante reicht. Durch das *pinning* der Flüssigkeitsoberfläche ist die Form dieses Meniskus nur von den Stoffdaten und der Unterfüllung abhängig und kann reproduziert werden. Es kann also ein definierter Benetzungswinkel zwischen freier Oberfläche und der Grenze der Thermode eingestellt und reproduziert werden.



**Abb. 3.5** Reduktion der Spaltbreite durch Einsetzen von Kupferplatten.

Um die Länge und Breite der Küvette zu verändern kann der Innenraum der Küvette durch Kupfer- bzw. Acrylglas- und Teflonplatten eingeschränkt werden. Dabei werden Kupferplatten

mit einer Stärke von 4 mm an der heißen Thermode eingesetzt um die Spaltbreite von 20 mm auf 16 mm und 12 mm zu reduzieren. Die Kupferplatten sind nicht teflonbeschichtet und werden überflutet. Die Flüssigkeitsform ist dann an der heißen Thermode nicht klar definiert. Die Form der Flüssigkeitsoberfläche an der heißen Seite ist jedoch für die meisten Messungen in dieser Arbeit nicht von Bedeutung.

Die Acrylglas- und Teflonplatten werden eingesetzt um die Breite der Küvette zu verringern. Dabei wird Acrylglas auf der Seite verwendet, durch die optische Untersuchungen durchgeführt werden sollen. Es sind Küvettenbreiten von  $B=41$  mm bis  $B=29$  mm in Schritten von 3 mm möglich.

Die Verdunstungsraten für Ethanol bei der eingesetzten Küvette schwanken in Abhängigkeit der angelegten Temperaturdifferenz und mittleren Temperatur zwischen ca. 1 ml/h bis über 6 ml/h. Um die sehr langen Meßzeiten von typischerweise einer Stunde, die in dieser Arbeit für Thermoelementmessungen benötigt wurden, zu erreichen, ist es notwendig, kontinuierlich verdunstetes Ethanol zu ersetzen. Dazu wird Ethanol aus einer Spritze, deren Kolben mit einer Mikrometerschraube angetrieben wird, zunächst in den Raum unterhalb des Küvettenbodens gefüllt. Dabei dringt bereits thermalisiertes Ethanol zwischen Boden und den Küvettenwänden in das eigentliche Küvettenvolumen ein.

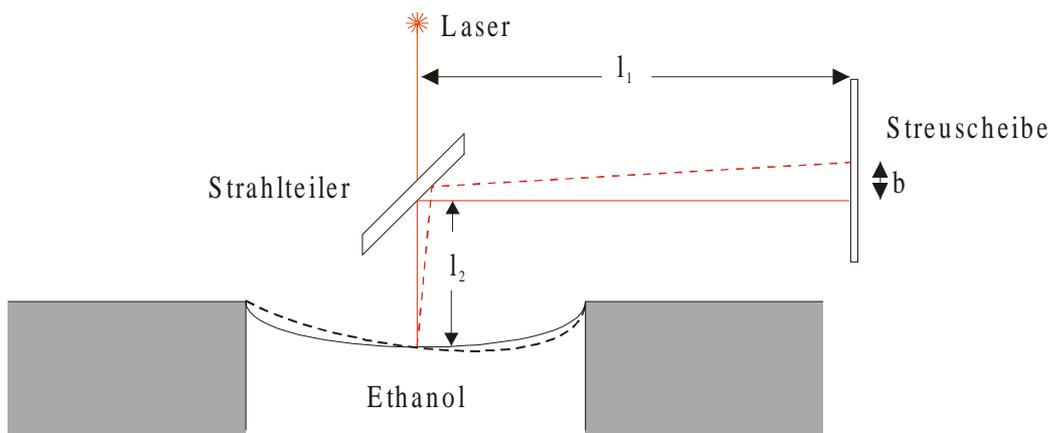
Die Kontrolle des Flüssigkeitsfüllstandes der Küvette erfolgt auf zwei Arten:

1. Eine Metallspitze wird mit einer Mikrometerschraube auf die Oberfläche herabgesenkt bis sie die Oberfläche berührt und sich ein sichtbarer Meniskus bildet. Dazu wird zunächst die Küvette exakt gefüllt. Die exakte Füllung wird dadurch überprüft, daß keine Verzerrungen in der Reflexion eines Gitters durch die Flüssigkeitsoberfläche beobachtet werden. Der Ablesewert der Mikrometerschraube dient dann als Nullpunkt für weitere Messungen. Die Genauigkeit dieser Messung liegt bei etwa 10  $\mu\text{m}$ .
2. Die Flüssigkeitsoberfläche wird durch die Küvette mit einem geringen Winkel von unten durch eine stark vergrößernde Videokamera beobachtet. Die durch Laserlicht beleuchteten Tracerteilchen in der Experimentierflüssigkeit spiegeln sich durch Totalreflexion an der Flüssigkeitsoberfläche. Die Spiegelebene wird mit Markierungen auf dem Videoschirm verglichen. Die Markierungen wurden vorher mit Methode 1 gewonnen. Die Genauigkeit dieser Meßmethode liegt bei 50  $\mu\text{m}$  bis 100  $\mu\text{m}$ , erlaubt aber eine aktive Kontrolle des Füllstandes der Küvette.

Im Laufe der Experimente stellte sich heraus, daß es günstiger ist, Oberflächenheizer und Volumenheizer auf die gleiche Temperatur einzustellen. In diesem Fall werden keine Temperaturoszillationen in der Hauptrolle der thermokapillaren Konvektion beobachtet [Metzger86]. Um in diesem Fall Artefakte durch die isolierende Teflonschicht zwischen Oberflächenheizer und Volumenheizer auszuschließen, wurde später diese Isolationsschicht entfernt und beide Heizer mit dem selben Thermostaten betrieben.

### 3.2 Lichtzeigermessungen

Mit einem Lichtzeigeraufbau kann die Amplitude einer Oberflächenoszillation absolut bestimmt werden. Dazu wird eine Laserstrahl auf einen Knotenpunkt der oszillierenden Flüssigkeitsoberfläche gesetzt. Der reflektierte Strahl wird mit einem Strahlteiler aus dem Strahlengang reflektiert und mit einer Streuscheibe aufgefangen. Das auf dem Schirm entstehende Bild und ein Maßstab auf dem Schirm wird von einer Videokamera aufgenommen.



**Abb. 3.6** Messung von Oberflächenoszillationen mit Lichtzeigermethode.

 Photographie auf CD.

Unter der Annahme, daß nahe an einem Knotenpunkt gemessen wird, an dem die Auslenkung der Flüssigkeitsoberfläche deutlich kleiner ist als die Veränderung der Steigung  $s$  der Flüssigkeitsoberfläche, ergibt sich die Steigung zu:

$$s = \frac{b}{2 \cdot l}$$

mit  $l = l_1 + l_2 = 451$  mm der Weg des reflektierten Strahls von der Flüssigkeitsoberfläche bis zum

Schirm und  $b$  der Auslenkung des reflektierten Strahls aus der Ruhelage auf dem Beobachtungsschirm.

Geht man für die Grundschiwingung der Oberfläche in Richtung des Temperaturgradienten von einem sinusförmigen Verlauf

$$z = \frac{A}{2} \cos\left(\left(x - \frac{L}{2}\right) \cdot \frac{\pi}{L}\right) \quad (\text{vgl. Kap. 2.10})$$

mit  $A$  der Amplitude der Oberflächenschwingung,  $L = 20$  mm der Spaltbreite der Küvette und  $x$  der Position in Richtung des Temperaturgradienten aus, also

$$\frac{d}{dx} z = -\frac{A \pi}{2 L} \sin\left(\left(x - \frac{L}{2}\right) \cdot \frac{\pi}{L}\right),$$

so ergibt sich unter der Annahme einer Knotenlinie bei

$$x = L/2 = 10 \text{ mm}$$

die Amplitude der Oberflächenschwingung als

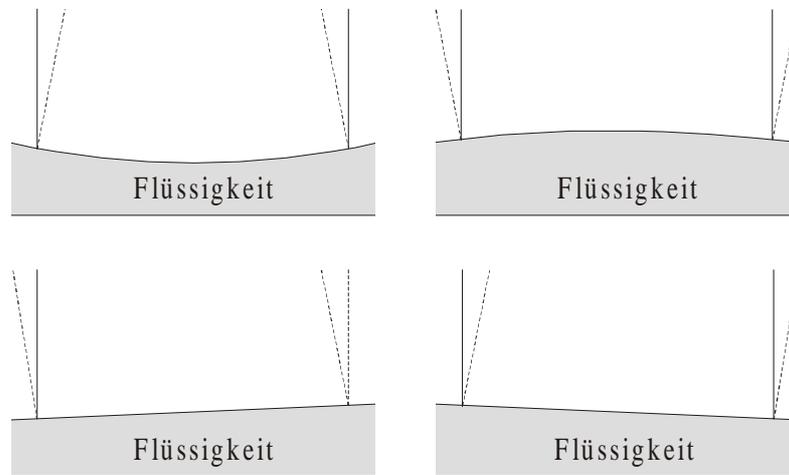
$$A = -\frac{2 \cdot L}{\pi} \frac{d}{dx} z$$

und damit zu

$$A = -\frac{L \cdot b}{\pi \cdot l}.$$

### 3.3 Stroboskopische Shadowgraph-Apparatur

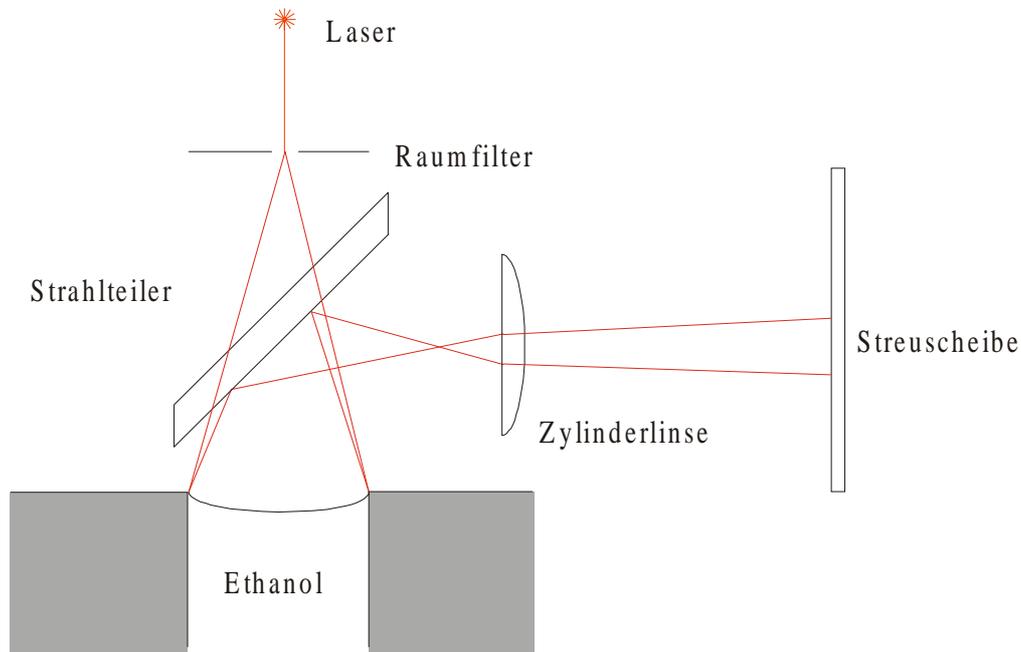
Bei der Shadowgraphmethode wird die Oberfläche der Experimentierflüssigkeit durch flächig reflektiertes Licht abgebildet. Betrachtet man planparallel auf eine Oberfläche einfallendes Licht, so wird dessen reflektierter Anteil je nachdem ob die Oberfläche konkav oder konvex geformt ist, gebündelt oder zerstreut. Betrachtet man das reflektierte Licht auf einem Schirm oder durch eine Streuscheibe, so erscheinen die Bereiche konkaver Oberflächenkrümmung heller, solche mit konvexer Krümmung dunkler. Ist die Oberfläche zwar eben, wird aber gegenüber der Nullage gekippt, wird die Abbildung entsprechend auf dem Schirm versetzt dargestellt.



**Abb. 3.7** Fokussierung/Defokussierung bei Krümmung der Oberfläche und Versetzung der Abbildung bei vorhandener Oberflächensteigung.

Während der Experimente war die Flüssigkeitsoberfläche nicht eben, sondern durch die Unterfüllung mit Meniskusbildung konkav gekrümmt, so daß sich eine starke Fokussierung des einfallenden Lichts ergibt. Gleichzeitig wird die Abbildung stark verzerrt. Dabei kann die Krümmung in grober Näherung als Überlagerung einer sphärischen und einer zylindrischen Krümmung angesehen werden. Um die Abbildung zu entzerren wird nicht wie üblich mit parallel einfallendem Licht gearbeitet. Statt dessen wird ein Laserstrahl an einem Raumfilter defokussiert. Dieser wird in einer Entfernung plaziert, bei der das von der Oberfläche reflektierte Licht senkrecht zur Hauptstromrichtung der Küvette weitgehend parallel ist. Entlang der Hauptstromrichtung ist die Oberfläche stärker gekrümmt, so daß in dieser Richtung weiterhin eine starke Bündelung auftritt. Diese wird mit einer Zylinderlinse im Strahlengang des reflektierten Lichts kompensiert. Insgesamt erhält man so ein ausreichend verzerrungsfreies Bild.

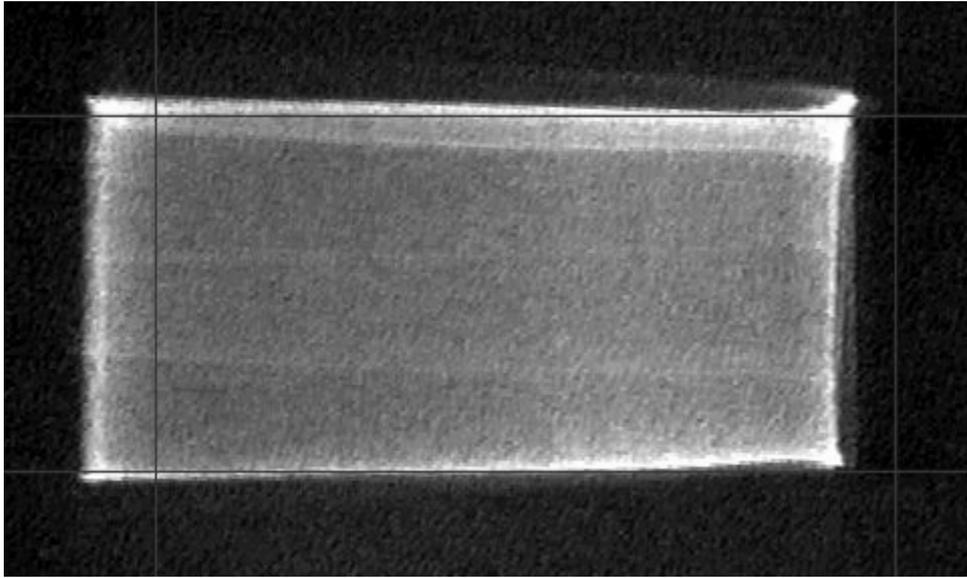
Durch mehrfache Reflexion im Strahlteiler, der zur Auslenkung des reflektierten Lichtes dient, bilden sich "Geisterbilder". Wird die Oberfläche nicht oder nur wenig ausgelenkt, sind die Geisterbilder und das Originalbild weitgehend deckungsgleich. Bei größeren Störungen der Oberfläche macht sich der Unterschied zwischen den Bildern stärker bemerkbar. Insbesondere bei Auslenkungen entlang der Hauptstromrichtung in der Küvette wird der Effekt dadurch verstärkt, daß Geisterbild und Originalbild unterschiedlich auf die Zylinderlinse fallen und damit deutlich unterschiedlich auf die Streuscheibe projiziert werden.



**Abb. 3.8** Aufbau der Shadowgraph-Apparatur.

 Photographie auf CD.

Die im Experiment auftretenden Oberflächenschwingungen sind mit zwischen 5 Hz und 9 Hz (Hauptfrequenz 7 Hz) liegenden Frequenzen zu schnell um sie direkt mit einer aufgezeichneten Videosequenz zu analysieren. Kommerzielle Videosysteme arbeiten mit 25 Bildern pro Sekunde, so daß eine Oberflächenschwingung in 3-4 Bilder aufgelöst wird. Versuche zeigten, daß die Beleuchtungsstärke der Shadowgraph-Apparatur nicht für den Einsatz einer naß-chemischen Hochgeschwindigkeitskamera ausreichend ist. Um die nötige Zeitauflösung zu erreichen wurde der Shadowgraph in einem stroboskopischen Mode betrieben. Dazu wird ein Halbleiterlaser mit einer Leistung von 30 mW verwendet, der bei einer einstellbaren Frequenz Impulse von etwa 1 ms Dauer abstrahlt. Die Pulsfrequenz des Lasers wurde auf die Hauptfrequenz der Oberflächenoszillation eingestellt, so daß ein fast stehendes Bild erzeugt wurde und die Oszillation in Zeitlupe dargestellt wurde. Dabei wird das Bild der Streuscheibe mit einer Videokamera aufgenommen und anschließend digitalisiert. Die durch das stroboskopische Verfahren entstehenden Dunkelphasen werden am Rechner entfernt.



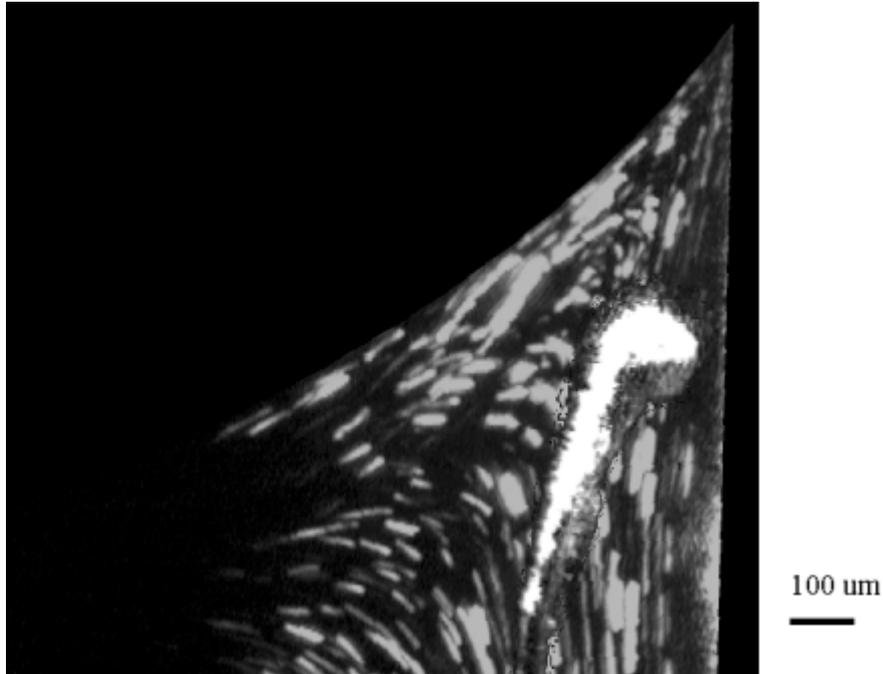
**Abb. 3.8** *Mit dem stroboskopischen Mode der Shadowgraph-Apparatur aufgenommene Flüssigkeitsoberfläche. Die Flüssigkeitsoberfläche wurde durch eine kurze externe Anregung zur Schwingung der Mode  $m=1$  angeregt. Man erkennt die Versetzung der Abbildung in horizontaler Richtung, die dem Auftreten einer Oszillation entlang der  $y$ -Achse der Küvette entspricht. Damit korrespondierend hellt sich durch die fokussierende Wirkung der bei der Oszillation jeweils leicht unterfüllten Küvettenhälfte die linke oder rechte Bildhälfte auf. Die Optik der Shadowgraph-Apparatur gleicht eine sphärische Oberflächenkrümmung aus. Da die Flüssigkeitsoberfläche die Form eines *cosinus-hyperbolicus* hat, erscheinen die Begrenzungen der Oberfläche durch die fokussierende Wirkung der großen Oberflächenkrümmung in diesem Bereich hell hervorgehoben. Als rote Linien eingezeichnet ist die Lage der Ränder, wenn sich die Oberfläche in Ruhe befindet.*

 Videofilm auf CD.

### 3.4 Thermoelementmessungen

Im Laufe der Experimente stellte sich heraus, daß Temperaturoszillationen im Bereich des Meniskus der Experimentierflüssigkeit an der kalten Thermode von großem Interesse sind. Der Querschnitt des Meßvolumens ist dabei kleiner als 1 mm. Die Größe der oszillierenden Strukturen liegen bei ca. 150  $\mu\text{m}$  bis unter 20  $\mu\text{m}$  und bei Frequenzen zwischen 5 Hz und 21 Hz.

Zur Messung der Temperaturoszillationen wurde ein ungemanteltes NiCr/Ni-Thermoelement verwendet, dessen Drähte jeweils 50  $\mu\text{m}$  und dessen Schweißpunkt 180  $\mu\text{m}$  groß sind.



**Abb. 3.9** Etwa 1,1 mm breiter und 1,0 mm hoher Ausschnitt des Meniskusbereichs an der kalten Thermode. Mit der Flüssigkeit bewegen sich Schwebeteilchen, die durch einen Lichtschnitt nahe der kalten Wand beleuchtet werden und durch ihre Spuren die Stromlinien sichtbar machen. Das Thermoelement ist zwischen einem auftretenden Wirbel im Meniskus und der kalten Wand platziert, so daß es empfindlich für zeitabhängige Strömung des Wirbels und für entlang der kalten Wand wandernde Temperaturschlieren ist.

Als Meßverstärker dient derselbe Verstärker wie er schon in [Hintz99] verwendet wurde. Dabei wurde einer der eingebauten Tiefpässe entfernt.

Im Verstärker befindet sich ein Tiefpaß mit einer Grenzfrequenz von 12 Hz. Dieser dient zur Reduktion von eingestreuten Signalen mit einer Frequenz von 50 Hz vor der Signalverstärkung. Gleichzeitig wird die Amplitude höherfrequenter Nutzsignale reduziert. Dadurch, daß die Verstärkung des Signals bei 50 Hz kleiner ist als bei niedrigeren Frequenzen *erhöht* diese Maßnahme das Verhältnis zwischen Nutzsignal und dem durch die Einstreuung bei 50 Hz erzeugtem Rauschen. Die Nachweisgrenze für Temperaturoszillationen wird entsprechend erniedrigt, obwohl die absolute Signalamplitude sinkt.

Trotzdem liegt die Amplitude der Einstreuung bei 50 Hz gut 50-fach über der Amplitude der Nutzsignale (sie entsteht vorwiegend dadurch, daß das Thermoelement nicht gemantelt und damit auf einigen Zentimeter Länge nicht gegen Einstrahlungen geschirmt ist). Um die Nutzsignale von der Einstreuung zu trennen, muß die Einstreuung durch digitale Fourierfilterung entfernt werden. Dazu ist eine Abtastrate etwas über der doppelten Frequenz der Einstreuung notwendig.

Aufgenommen wurden die Meßsignale mit einer 12 bit Analog-Digital-Wandlerkarte (ADC) die mit einer Abtastrate von 1613 Hz arbeitet. Dabei wurden 16 aufeinanderfolgende Meßwerte summiert, so daß sich eine effektive Abtastrate von 100,8 Hz ergibt.

Um fehlerhafte Signale im Fourierspektrum zu unterdrücken, die durch Fremdsignale mit einer Frequenz oberhalb der halben Abtastrate entstehen (Aliasing), wurde ein weiterer passiver Tiefpaß direkt vor dem Eingang des ADC eingebaut. Idealerweise soll dieser Filter *alle* Signale jenseits der halben Abtastrate unterdrücken. In den meisten Anwendungen wird die Grenzfrequenz des Filters auf die Hälfte oder ein Viertel der Abtastrate gesetzt. Da dabei Signale bei dieser Grenzfrequenz nur um den Faktor 1,4 bzw. 2,2 reduziert werden ist dies für empfindliche Messungen ungenügend. Die Grenzfrequenz sollte deutlich niedriger liegen; gewählt wurde ein Filter mit einer Grenzfrequenz von 2,5 Hz (1/40 der Abtastrate), der Signale bei der halben Grenzfrequenz um den Faktor 20 reduziert.

Ein Nutzsignal mit einer Frequenz von 20 Hz wird entsprechend mit dem Faktor 1/8 verstärkt. Ein bei 20 Hz liegendes Aliassignal, das eine reale Frequenz von 80 Hz hat, wird um den Faktor 1/32 verstärkt. Das Verhältnis zwischen realen Signalen und Aliassignalen bei 20 Hz liegt also bei 1:4. Damit ist eine Trennung zwischen realen und Aliassignalen möglich.

Auch durch diesen Filter werden die Amplituden der Nutzsignale verringert. Da der größte Beitrag zum Rauschen nicht durch den ADC sondern durch Rauschen der zu messenden Temperaturoszillation und durch Rauschen des Thermoelementverstärkers entsteht, bleibt das Signal-zu-Rausch-Verhältnis nahezu unverändert. Das heißt, es wird die absolute Signalstärke verringert - bei 20 Hz ist das Signal ohne Filter etwa acht mal größer als mit Filter -, die Nachweisgrenze für Signale bleibt aber gleich.

Sind aus einer Messung alle Nutzsignale identifiziert, kann der Tiefpaß entfernt werden, so daß die Amplitude von hochfrequenten Nutzsignalen größer und damit besser meßbar ist. Im Laufe der Arbeit wurde daher sowohl mit als auch - wenn die Frequenzlage von realen und Aliassignalen bekannt war - ohne Tiefpaß gearbeitet.

Der Temperaturbereich von 1,2 K wurde auf 65536 Werte aufgeteilt was eine rechnerische Auflösung von 18  $\mu\text{K}/\text{bit}$  entspricht. Die anschließenden Fouriertransformationen geschahen mit *Origin 4.1* mit einem *Welch*-Fenster nach Abzug des Mittelwertes von den Daten. Durch diesen Mittelwertabzug entstehen am Anfang und am Ende des Datensatzes relativ zur Länge des Datensatzes (typischerweise ca. 300.000 Werte) nur kleine Sprünge. Diese werden durch das Welch-Fenster weiter vermindert. In der Praxis treten keine Aliasingeffekte auf.

Um eine weitere Verbesserung des Signal zu Rausch-Verhältnisses zu erreichen wurden für die Fourieranalysen Meßzeiten von typischerweise einer Stunde verwendet. Das heißt, es wird eine Rauschreduktion über 362.880 Werte durchgeführt. Dabei wurde das Rauschen bei 5 Hz auf etwa 3,5 bit, bei 8 Hz auf etwa 1 bit und bei 20 Hz auf 0,1 bit (ohne Tiefpaß etwa 1 bit) reduziert. Es ergibt sich für das Meßsystem eine rechnerische Amplitudendynamik von 1:20.000 bis 1:600.000 und ein meßbarer Frequenzbereich von  $3 \cdot 10^{-3}$  Hz bis 50 Hz. Ohne Mittelung durch die Fourieranalyse weist das Meßsignal ein Rauschen von etwa 1.200 Bit auf, d.h. mit der Meßanordnung ist es möglich, Signale mit einem Signal zu Rausch-Verhältnis von weniger als 1:1.000 zu messen. Rechnerisch ergibt sich eine Auflösung des Meßsystems von etwa 0,3  $\mu\text{K}$ , in der Praxis lassen sich Signale von etwa 1  $\mu\text{K}$  nachweisen.

Mit dem Umrechnungsfaktor zwischen Temperatur und Spannung des Thermoelementes von 41  $\mu\text{V}/\text{K}$  können mit den Frequenzgängen aus Abb. 3.10 die ADC-Werte in Amplituden der Temperaturoszillationen umgerechnet werden.

Diese Umrechnung ist aus zwei Gründen nicht aussagekräftig:

- Die Temperaturoszillationen treten in der Flüssigkeit als *Schliere* auf, die örtlich begrenzt ist. Dabei entsteht die gemessene Temperaturoszillation durch ein räumliches Wandern dieser Temperaturschliere. Der bei dieser Bewegung vom Thermoelement erfaßte Temperaturgradient ist dabei von der exakten Position des Thermoelementes abhängig.

Insbesondere aufgrund der geringen Ausdehnung der oszillierenden Strömungsstruktur in dieser Arbeit, ist eine Reproduzierbarkeit der Position des Thermoelementes nicht gewährleistet (siehe auch Abb. 3.9).

- Es sei eine gaußförmige Schliere betrachtet:

$$T = T_0 + \Delta T \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{1}{2} \frac{x^2}{\sigma^2}}$$

mit einer Amplitude von  $\Delta T$  und einer Breite von  $\sigma$ . Das Thermoelement befinde sich an einer Position  $x_0 \approx \frac{\sigma}{2} > 0$ , so daß der Temperaturgradient  $\left. \frac{dT}{dx} \right|_{x_0} < 0$  ist (und für die angenommene Verteilung stärker als linear mit zunehmendem  $x$  sinkt).

Aufgrund seiner Ausdehnung (eindimensionale Betrachtung; das Thermoelement wird als würfelförmig angesehen) mittelt das Thermoelement über einen Bereich  $D$  und mißt

$$T_{tc} = \frac{1}{D^3} \int_{x_0}^{x_0+D} \int_{y_0}^{y_0+D} \int_{z_0}^{z_0+D} T dx dy dz = T_0 + \frac{\Delta T}{D} \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \int_{x_0}^{x_0+D} e^{-\frac{1}{2} \frac{x^2}{\sigma^2}} dx$$

Verändert die Schliere ihre Position um  $\Delta x$ , so mißt das Thermoelement eine Temperaturdifferenz von

$$\Delta T_{tc} = \frac{1}{D} \int_{x_0}^{x_0+D} T dx - \frac{1}{D} \int_{x_0+\Delta x}^{x_0+\Delta x+D} T dx$$

Ist die Ausdehnung der Schliere kleiner als die Ausdehnung des Thermoelementes  $\Delta x < D$ , so ergibt sich

$$\Delta T_{tc} = \frac{1}{D} \int_{x_0}^{x_0+\Delta x+D} T dx < \frac{2}{D} \int_{x_0}^{x_0+D} T dx$$

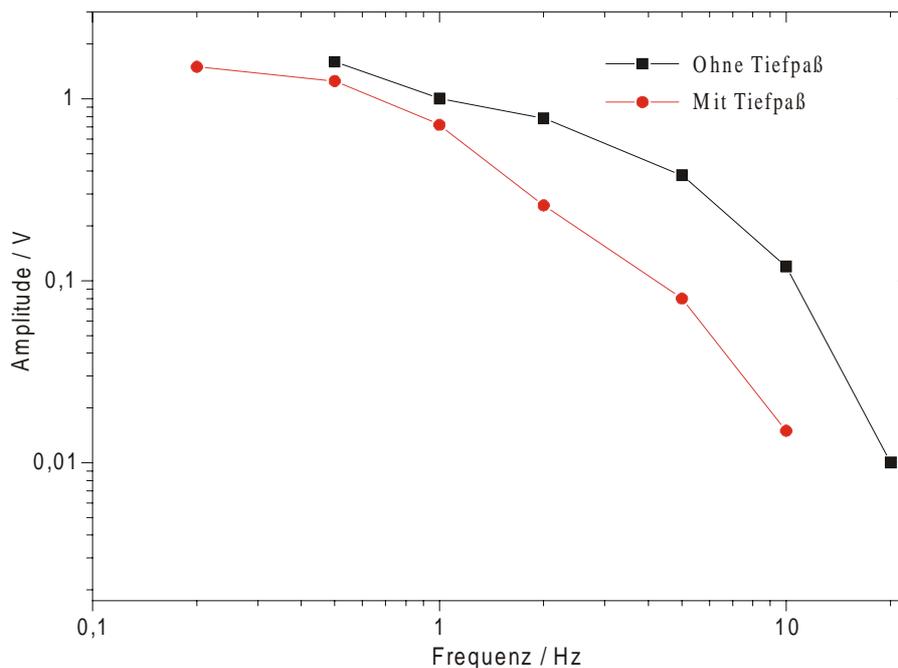
Es entsteht also eine weitere Signaldämpfung durch die Mittelung des Gradienten entlang der  $x$ -Achse des Thermoelementes. Diese ist um so größer, je kleiner die Bewegung der Schliere relativ zur Ausdehnung des Thermoelementes ist.

Die Verstärkung des Thermoelementes liegt in der Größenordnung von

$$\alpha = \frac{1}{2} \left( \frac{\Delta x + D}{D} - 1 \right)$$

Die größte in dieser Arbeit betrachtete oszillierende Konvektionsstruktur hat eine Ausdehnung von etwa 140  $\mu\text{m}$  und oszilliert mit etwa 1,7% ihrer Ausdehnung (vgl. Kap. 5.2 und Kap. 5.5), so daß sich  $\alpha \sim 6 \cdot 10^{-3}$  ergibt. Für die kleinste beobachtete Konvektionsrolle ergibt sich  $\alpha \sim 9 \cdot 10^{-4}$ .

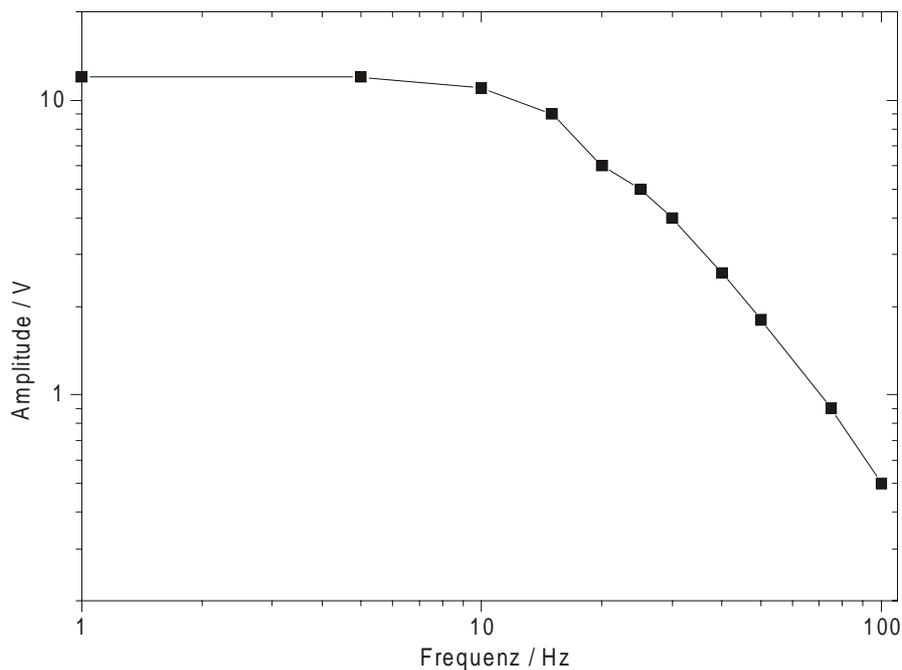
Bei der Präsentation der Daten wurde daher auf eine Kalibrierung verzichtet. Angegeben werden die gemessenen ADC-Werte als willkürliche, lineare Einheit.



**Abb. 3.10** Frequenzgang des Thermoelementes mit Thermoelementverstärker. Die schwarze Linie zeigt das Verhalten ohne eingebauten Tiefpaß bei 2,5 Hz, die rote Linie bei aktivem Tiefpaß.

Ein weiteres Problem ist der begrenzte Frequenzgang des Thermoelementes. Abb. 3.10 zeigt den Frequenzgang bei Bestrahlung des Thermoelementes mit 30 mW rotem Laserlicht (Grenzfrequenz des Lasers: 2 kHz). Man erkennt die deutliche Tiefpaßeigenschaft des

Thermoelementes. Die Grenzfrequenz liegt bei ca. 0,5 Hz bis 1 Hz; bei 20 Hz ist das Signal des Thermoelementes ca. 100 mal kleiner als bei 1 Hz. Der Vergleich mit dem Frequenzgang des Thermoelementverstärkers (bei inaktivem 2,5 Hz-Tiefpaß) in Abb. 3.11 zeigt, daß dies eine Eigenschaft des Thermoelementes und nicht des Verstärkers ist. Die Grenzfrequenz entspricht nicht den Berechnungen von [Benkert77], die eine etwa um den Faktor 10 höhere Grenzfrequenz bei ca. 10 Hz bei der Ankopplung eines Thermoelementes an ein Wasserbad voraussagen.



**Abb. 3.11** Frequenzgang des Thermoelementverstärkers ohne Thermoelement, das heißt bei Anlegen einer definierten Spannung anstelle des Thermoelementes an den Eingang des Verstärkers.

Die folgende Rechnung zeigt die Größenordnung der Dämpfung des Meßsystems in der Praxis:

Für die mittlere gemessene Konvektionsrolle wird eine Signalamplitude von etwa 1,4 bit (ca. 25  $\mu\text{K}$ ) bei etwa 8 Hz gemessen. Nach dem Frequenzgang (ohne Tiefpaß) ergibt sich ein Verstärkungsfaktor von ca. 1/6, nach den Überlegungen zum Einfluß der Größe des Thermoelementes ein zusätzlicher Faktor von  $2 \cdot 10^{-3}$ . Damit ergibt sich ein Meßwert für die Temperaturoszillation von ca. 82 mK (vgl. Kap. 5.5, Abb. 5.38).

### 3.5 Strömungsvisualisierung mit Tracerteilchen

Für Beobachtungen der Strömung im Meniskus an der kalten Thermode wurde mit einer stark vergrößernden Optik mit einer Videokamera in einem Bereich von etwa 1 mm x 1 mm nahe an der Grenze zwischen Thermode und Flüssigkeitsoberfläche die Bewegung von Schwebeteilchen in der Experimentierflüssigkeit beobachtet. Verwendet wurde dazu Schleifpulver aus Aluminiumoxid ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) mit einem Durchmesser von 3  $\mu\text{m}$ . Diese Schwebeteilchen haben mit 4  $\text{g}/\text{cm}^3$  eine wesentlich höhere Dichte als Ethanol. Ihre Sinkgeschwindigkeit und Abweichung von den Stromlinien ist durch ihren geringen Radius für die durchgeführten Experimente niedrig.

Beleuchtet wurden die Tracer in der Mittelebene der Küvette mit einem HeNe-Laser mit einer Ausgangsleistung von 5 mW. Der verwendete Laser hat einen Strahldurchmesser von ca. 1 mm. Dadurch entsteht ein Beobachtungsvolumen von einer Breite von ca. 1 mm nahe an der kalten Thermode und auf der Mittelebene der Küvette oder bei anderen Experimenten 5 mm vom Sichtfenster entfernt. Die Tiefe des beleuchteten Volumens entspricht ebenfalls ca. 1 mm; durch die geringe Tiefenschärfe der Kamera wird eine Schicht mit einer Tiefe von ca. 100  $\mu\text{m}$  beobachtet.

## 4. Oberflächenoszillationen

METZGER [Metzger86] beobachtete in derselben Küvette, wie sie in dieser Arbeit verwendet wird, starke Oberflächenoszillationen, wenn er die Küvette nicht exakt füllte, sondern die Flüssigkeitsoberfläche leicht absenkte und dadurch einen Meniskus an den Seitenwänden hervorrief. Diese Instabilität tritt zum Beispiel für eine Temperaturdifferenz von 52,5 K zwischen den Oberflächenheizern und 10,0 K zwischen den Volumenheizern oder für eine Temperaturdifferenz von ebenfalls 52,5 K zwischen den Oberflächenheizern und 20,0 K zwischen den Volumenheizern auf. Dabei wurde die Instabilität als Oberflächenwelle mit einer Wellenlänge von ca. 4 mm charakterisiert.

*Abb. 4.1*  Video der Oberflächenoszillation auf CD.

METZGER weist bereits auf den Einfluß des Füllstandes auf das Auftreten der Instabilität hin. Danach tritt die Instabilität zunächst bei exakt gefüllter Küvette nicht auf, bis beim Absenken ein gewisser Füllstand erreicht ist. Wird die Flüssigkeitsoberfläche weiter abgesenkt, verschwindet die Instabilität wieder. Bei einem erneuten Ansteigen des Füllstandes erscheint die Instabilität wieder, um bei weiterem Ansteigen des Füllstandes erneut zu verschwinden.

In diesem Kapitel wird die Instabilität zunächst mit Hilfe von Shadowgraph- und von Thermoelementmessungen charakterisiert. Dabei wird gezeigt, daß es sich nicht um eine laufende Welle mit etwa 4 mm Wellenlänge handelt, sondern um mehrere stehende Wellen, die der Beschreibung aus Kap. 2.11 entsprechen.

Durch Veränderung der Küvettegeometrie und damit der Ausdehnung der oszillierenden Oberfläche werden die einzelnen auftretenden Schwingungsmoden identifiziert.

Anschließend wird untersucht, wie das Auftreten der beobachteten Oberflächenoszillationen von der an die Küvette angelegten Temperaturdifferenz und von der Form des Meniskus abhängt. Dabei zeigt sich das Auftreten einer kritischen Temperaturdifferenz, unterhalb der die jeweilige Oszillationsmode nicht auftritt. Bezüglich der Meniskusform wird ein minimaler und maximaler Winkel gefunden, außerhalb derer die jeweilige Mode ebenfalls nicht auftritt. Damit wird gezeigt, daß sowohl die angelegte Temperaturdifferenz als auch die Meniskusform ausschlaggebende Parameter für das Auftreten der Oszillationen sind.

Wichtig ist dabei der Unterschied dieser kritischen Parameter zwischen den Oszillationsmoden. Dieser läßt den Schluß zu, daß für die Oszillationsmoden mehrere Anregungen vorhanden sind.

Durch unabhängiges Verstellen der Meniskusform an der heißen und an der kalten Wand wird gezeigt, daß die Meniskusform an der kalten Wand ausschlaggebend für das Auftreten der Oszillationen ist. Dies gibt einen Hinweis auf den Ort der Anregung.

Das Auftreten einer Oberflächenoszillation konnte in dieser Arbeit zunächst für eine Temperaturdifferenz zwischen den Oberflächenheizern von 52,5 K und Das Auftreten einer Oberflächenoszillation konnte in dieser Arbeit zunächst für eine Temperaturdifferenz zwischen den Oberflächenheizern von 52,5 K und einer Temperaturdifferenz von 20,0 K zwischen den Volumenheizern reproduziert werden. Dabei tritt die selbe Abhängigkeit vom Füllstand der Küvette auf wie von METZGER beschrieben.

Nach Auftreten der Oberflächenoszillationen wurden die verwendeten Thermostate für einen kurzen Zeitraum abgeschaltet. Obwohl die Temperaturdifferenz dabei innerhalb von 20 s auf 45 K abfiel, blieb die Oberflächenoszillation erhalten. Es kann also ausgeschlossen werden, daß die Oberflächenoszillationen durch Vibrationen der Thermostate erzeugt werden.

In einem weiteren Experiment wurde die Oberfläche beobachtet, während die Temperaturdifferenz sowohl zwischen den Oberflächenheizern als auch den Volumenheizern  $\Delta T=0$  K betrug (die Thermostate liefen jedoch). Unabhängig vom Füllstand in der Küvette treten dabei keine Oberflächenoszillationen auf.

Die Aufrechterhaltung der Oberflächenoszillation trotz schneller Verringerung der Temperaturdifferenz zeigt schon, daß der Parameterbereich, in dem dieser Effekt auftritt nicht so scharf ist, wie METZGER vermutet hat. Bei Untersuchungen mit einer Temperaturdifferenz zwischen den Volumenheizern von 10,0 K, 30,0 K, und 52,5 K bei einer Temperaturdifferenz von stets 52,5 K zwischen den Oberflächenheizern wird keine Veränderung der Oberflächenoszillation beobachtet. Dabei ist besonders interessant, daß die Oberflächenoszillation auch auftritt, wenn die Temperaturdifferenz der Volumenheizer genauso groß wie die der Oberflächenheizer ist. Nach METZGER [Metzger86] treten für diesen Fall keine Zeitabhängigkeiten des Hauptstroms der Küvette auf. Man kann daher den Schluß ziehen, daß die Oberflächenoszillation nicht durch Zeitabhängigkeiten im Hauptstrom der Küvette angetrieben werden.

Messungen bei gleicher Temperaturdifferenz zwischen Volumenheizer und Oberflächenheizer haben zwei Vorteile:

- Es treten keine störenden Zeitabhängigkeiten im Hauptstrom der Küvette auf.
- Die isolierende Teflonschicht zwischen Oberflächenheizer und Volumenheizer kann entfernt und beide Heizer mit einem Thermostaten gespeist werden, d. h. die Trennung in Oberflächen- und Volumenheizer kann aufgegeben werden. Dies stellt sicher, daß keine Artefakte durch den Einfluß der schlechten thermischen Anbindung von Fluid an die Thermode entlang der Teflonisolation entstehen. Eine Veränderung der Oberflächenoszillation nach Entfernen der Isolationsschicht wurde nicht beobachtet. Es kann also ausgeschlossen werden, daß es sich bei den Oberflächenoszillationen um einen Artefakt im Zusammenhang mit der Teflonisolierung handelt.

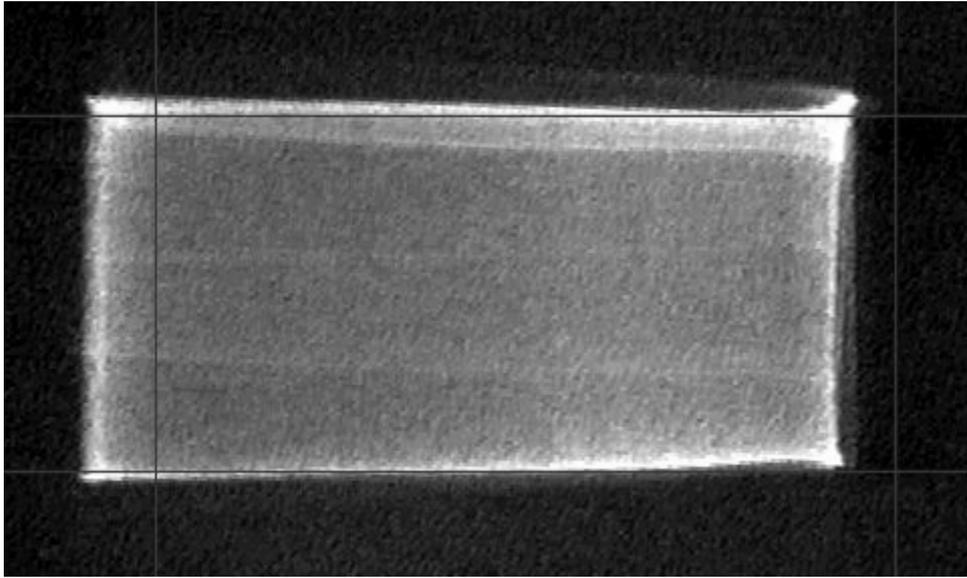
Im weiteren Verlauf wurden aus beiden Gründen alle Experimente mit entfernter Isolationsschicht durchgeführt.

## 4.1 Ergebnisse aus der Shadowgraph-Untersuchung

Abb. 4.2 zeigt die shadowgraphische Abbildung der Grundschiwingung der Flüssigkeitsoberfläche. Dazu wurde die Oberfläche extern durch einen leichten Schlag gegen die Küvette angeregt. Das Ergebnis ist eine abklingende Schwingung.

Bei der Grundschiwingung der Oberfläche handelt es sich um eine Schwingung in y-Richtung, also senkrecht zur Hauptstromrichtung, mit einer Wellenlänge, die der doppelten Breite der Küvette (41 mm) entspricht. Die Knotenlinie liegt dabei in der Küvettenmitte entlang der x-Richtung; zwei Bäuche liegen jeweils an den Seitenwänden.

In der Shadowgraph-Abbildung zeigt sich die Grundschiwingung in der Form, daß das Abbild der Oberfläche in y-Richtung versetzt wird. Dabei zeigt der obere Teil die Begrenzungslinie an der kalten Thermode und der untere Teil die heiße Thermode. Die linke Seite entspricht der vorderen Stirnwand, die rechte der hinteren. Diese Versetzung entspricht der Verkippung der Oberfläche in y-Richtung.



**Abb. 4.2** Mode  $m = 1$  der Oberflächenschwingung nach externer Anregung (siehe Text).

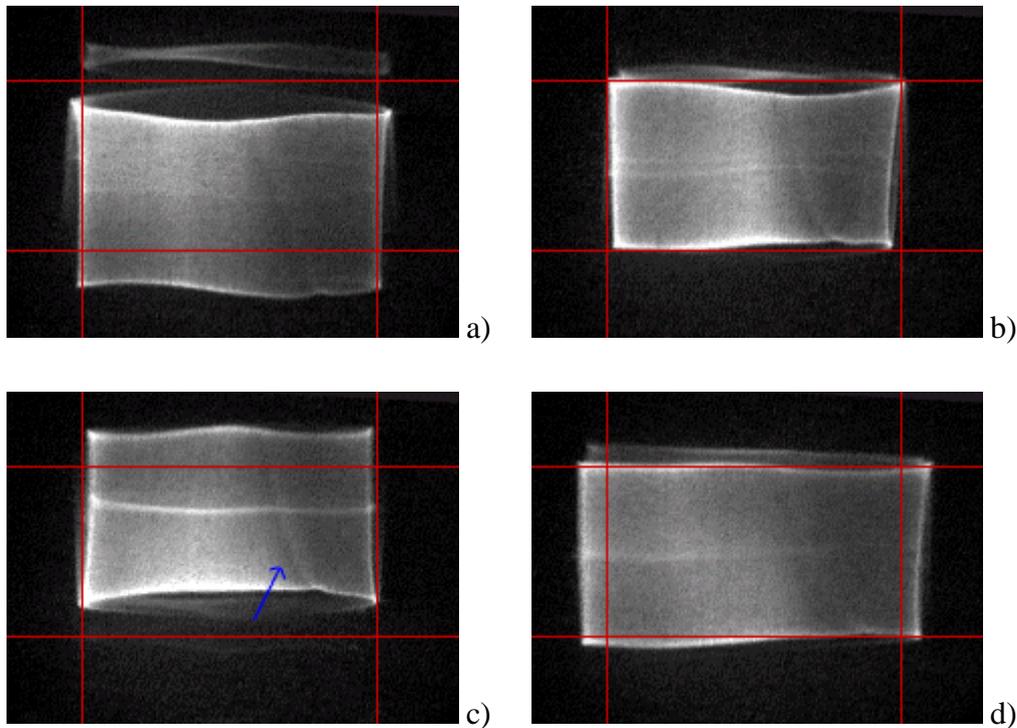
 Video auf CD.

Da das Shadowgraph-Bild vorwiegend die Winkelveränderungen an den Seiten- und Stirnwänden der Küvette zeigt, bedeutet eine Versetzung des in Abb. 4.2 dargestellten Bildes nach links, daß die Küvette auf der linken Seite etwas mehr gefüllt, die Oberfläche also nach rechts geneigt ist. Gleichzeitig sieht man dann eine Zunahme der Höhe der Abbildung. Auch diese zeigt, daß dieser Bereich der Küvette etwas mehr gefüllt ist. Durch die defokussierende Wirkung erscheint der linke Bereich der Abbildung etwas dunkler. Auf der rechten Seite der Abbildung findet man das Gegenteil: Die Abbildung der Seitenwand ist nach links versetzt, die Höhe der Abbildung wird kleiner und die Helligkeit nimmt zu. Demnach ist die Oberfläche konkav geformt, also etwas geringer gefüllt.

Abb. 4.3 zeigt die Shadowgraph-Abbildung der Oberflächenoszillation bei einer Temperaturdifferenz von 31,5 K bei einer Küvettenunterfüllung bei der die Oszillation nahe am Maximum der Amplitude ist.

Dem eigentlichen Bild ist ein "Geisterbild" überlagert. Es entsteht durch eine sekundäre Reflexion am verwendeten Strahlteiler. Das "Geisterbild" ist dabei das Bild, das sich während des Ablaufs des Videos vom Rest der Abbildung abtrennt und dort stark in der Höhe verzerrt

erscheint. Die bei manchen Bildern sichtbaren Wellen mit geringer Wellenlänge entstehen durch äußere Störungen, insbesondere Störungen durch Schwingungen des Gebäudes.



**Abb. 4.3** Shadowgraph-Abbildung der Oberflächenoszillation. Die Bilder zeigen die Oberfläche zu unterschiedlichen Phasen (a:  $0^\circ$ , b:  $90^\circ$ , c:  $180^\circ$  und d:  $270^\circ$ ) bei der Oberflächen-schwingung.

$\Delta T = 31,0 \text{ K}$ ,  $h \sim 1,5 \text{ mm}$ ,  $T_M = 20 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $L = 20 \text{ mm}$ ,  $B = 41 \text{ mm}$ .

 Video auf CD.

Im rechten Bereich der Abbildung erkennt man eine feine Linie, die etwa 5 mm von der rechten Stirnwand an der heißen Seitenwand beginnt (dort sieht man eine deutliche Verformung der Oberfläche) und zu einer Stelle etwa 8 mm von der rechten Stirnwand an der kalten Seitenwand läuft (siehe blau eingezeichneter Pfeil). Hierbei handelt es sich um den Abstrom einer dreidimensionalen Strömung, die im Hauptstrom zu finden ist. Wahrscheinlich handelt es sich hierbei um eine *dreidimensionale stationäre Instabilität* (3DSI) [Benz00]. Aufnahmen mit Lichtschnitt haben gezeigt, daß dazu ein Aufstrom entsprechend auf der linken Seite der Küvette existiert, der aber im Shadowgraph-Bild nicht zu sehen ist.

Bezüglich der Oszillation der Oberfläche findet man drei Moden. Am auffälligsten ist eine Schwingung in x-Richtung, also entlang der Hauptstromrichtung. Zu erkennen ist sie an der

deutlichen vertikalen Versetzung der Abbildung. Es handelt sich bei dieser Mode um die Mode mit der größten Wellenlänge für eine Schwingung in x-Richtung ( $n = 1$ ). Die Knotenlinie liegt entlang der Mittelachse in y-Richtung, zwei Bäuche liegen jeweils an den Seitenwänden der Küvette. Die Spaltbreite der Küvette (20 mm) entspricht der halben Wellenlänge, so daß sich rechnerisch eine Oszillationsfrequenz von 6,24 Hz ergibt; um den Übergangsbereich an den Seitenwänden ( $\lambda_{\text{kap.}}/2$ ) verkürzt ergeben sich 7,3 Hz (vgl. Kap. 2.11).

Weiterhin erkennt man eine periodische Vergrößerung der Abbildung in der Horizontalen. In der gleichen Periode wird die Abbildung im Mittelbereich vertikal größer und kleiner, die Ränder verhalten sich vertikal genau umgekehrt. Es handelt sich dabei um die Abbildung der Mode  $m = 2$ , einer Schwingung in y-Richtung mit einer Wellenlänge von etwa 40 mm; die halbe Wellenlänge entspricht also der halben Breite der Küvette. Es entstehen zwei Knotenlinien jeweils bei  $1/4$  und  $3/4$  der Breite der Küvette senkrecht auf der y-Achse stehend. Bäuche der Schwingung bilden sich an den beiden Stirnwänden und in der Mitte der Küvette. Die Schwingung hat ungefähr die gleiche Wellenlänge wie Mode  $n = 1$ , ist aber um  $90^\circ$  in der Phase verschoben. Rechnerisch ergibt sich eine Oszillationsfrequenz von 6,24 Hz bzw. 6,7 Hz.

Etwas schwieriger zu erkennen ist die dritte Mode. In der Abbildung erkennt man sinusartige Verformungen der Ober- und Unterkante. Sie haben offensichtlich keine festen Phasenbeziehung zu den oben genannten Moden und sind an Ober- und Unterkante leicht phasenversetzt. Dabei ist wechselseitig die Verformung an der Oberseite stärker als an der Unterseite und umgekehrt. Betrachtet man die Verbindungslinie zwischen den Bäuchen an der Ober- und an der Unterkante, so bilden diese annähernd einen rechten Winkel zur Diagonalen zwischen zwei Ecken der Küvette.

Diese Erscheinung läßt sich durch das Auftreten von zwei phasengleichen Schwingungen der Mode  $k=1, l=1$  entlang der Küvettendiagonalen erklären. Die Knotenlinie der ersten Schwingung steht dabei stets senkrecht auf der ersten Diagonalen und verläuft durch die Mitte der Küvette. Für die Knotenlinie der zweiten Schwingung gilt das gleiche, jedoch steht sie senkrecht auf der entgegengesetzten Diagonalen. Die halbe Wellenlänge entspricht also der Länge der Diagonalen der Küvette (45,6 mm). Rechnerisch ergibt sich unter der Annahme einer Schwerewelle eine Oszillationsfrequenz von 4,14 Hz; um  $\lambda_{\text{kap.}}/2$  verkürzt 4,4 Hz. Damit handelt es sich um die Mode mit der längsten möglichen Wellenlänge für eine Schwingung entlang der Diagonalen. Gleichzeitig handelt es sich um die langwelligste stabile Schwingungsmode der Flüssigkeitsoberfläche.

Dieser Schwingung dürfte noch die Mode  $k=3, l=3$  überlagert sein. Sie hat ebenfalls zwei

Kontenlinien in der Mitte der Küvette senkrecht auf beiden Diagonalen stehend. Zusätzlich befinden sich je zwei Knotenlinien an den Ecken der Küvette. Sie stehen ebenfalls senkrecht auf den Diagonalen. Die halbe Wellenlänge ergibt sich entsprechend aus einem Viertel der Länge der Diagonalen, also 11,4 mm; die Oszillationsfrequenz zu 8,3 Hz. Abzüglich des kapillaren Übergangsbereichs ergeben sich 8,8 Hz. Das Auftreten dieser Mode entspricht den Erwartungen von BRYANT und STIASSNIE (vgl Kap. 2.11).

Die Betrachtung der selektierten Oberflächenschwingungen zeigt ein deutlich unterschiedliches Bild zur nicht-selektiven Anregung der Oberflächenschwingungen:

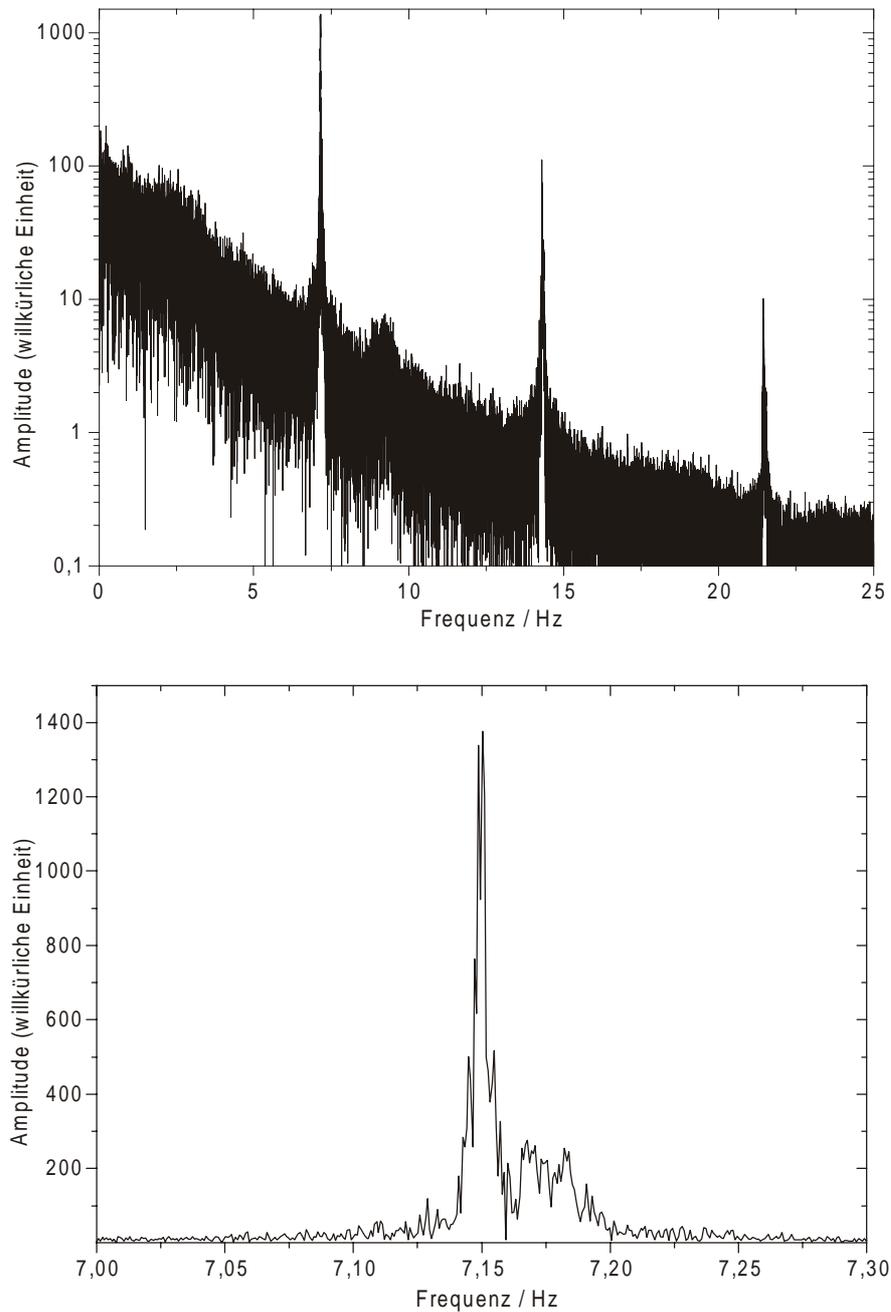
Bei der nicht-selektiven Anregung wird lediglich die Grundschiwingung der Oberfläche in y-Richtung, Mode  $m = 1$ , beobachtet. Diese Schwingung wird beim Auftreten der Oberflächenoszillationen nicht gefunden. Statt dessen werden die Grundschiwingung in x-Richtung (Mode  $n = 1$ ), die Grundschiwingung entlang der Diagonalen (Mode  $k=1, l=1$ ) und die erste Oberschiwingung in y-Richtung (Mode  $m = 2$ ) angeregt. Dies ist insbesondere interessant, weil die erste Oberschiwingung und vor allem die Grundschiwingung entlang der Diagonalen aufgrund ihrer Form stärker gedämpft sind als die Grundschiwingung in y-Richtung. Dies läßt die Vermutung zu, daß die Moden  $n=1$  und  $m=2$  selektiv und durch dieselbe Quelle angeregt werden.

**Abb. 4.4**  Video der Oberflächenoszillation auf CD.

Diese Beschreibung der Oberflächenoszillation widerspricht der von METZGER [Metzger86]. Er beschreibt sie als Oberflächenwellen mit einer Wellenlänge um 4 mm. Abb. 4.4 zeigt ein von Metzger aufgenommenes Videobild, auf dem die Oberflächenoszillation zu sehen ist. Dabei handelt es sich um einen Lichtschnitt entlang der Hauptstromrichtung der Küvette ungefähr in der Mitte der Küvette. Die eingebrachten Schwebeteilchen bewegen sich entlang der Hauptstromrichtung und gleichzeitig vertikal mit der Schwingung der Experimentierflüssigkeit aufgrund des sich in der Mitte der Küvette gebildeten Bauchs der Mode  $m=2$ . So entsteht der Eindruck einer laufenden Welle mit geringer Wellenlänge.

## 4.2 Ergebnisse aus den Thermoelement-Untersuchungen

Zur genauen Vermessung der Frequenz der Oberflächenoszillation wurden Messungen mit einem Thermoelement durchgeführt. Das Thermoelement wurde nahe der kalten Thermode im Meniskus nahe der Oberfläche plziert. Dabei befindet es sich in y-Richtung gesehen in der Mitte der Küvette zwischen beiden Seitenwänden. Die Temperaturdifferenz betrug  $\Delta T=45,5$  K.



**Abb. 4.5** *Fourierspektrum der Oberflächenoszillation bei einer Unterfüllung von 1,5 mm.*

$\Delta T=45,5$  K,  $T_M=20$  °C,  $L=20$  mm,  $B=41$  mm,  $h=1,5$  mm.

 Ausschnitt 9 Hz, 14 Hz und 21 Hz auf CD.

 Datensatz auf CD.

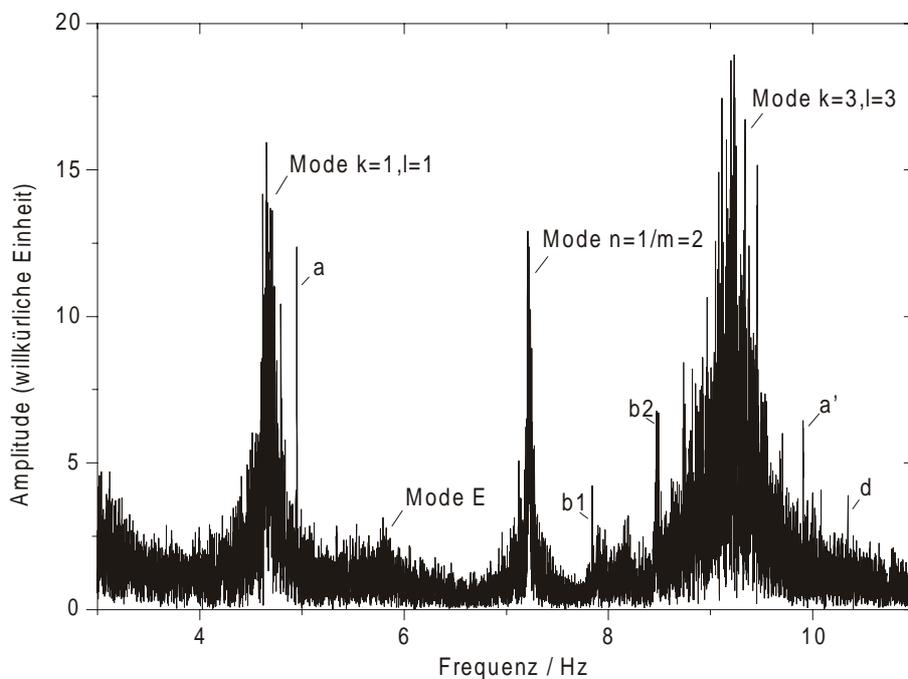
Abb. 4.5 zeigt eine Messung bei einer Unterfüllung von  $h=1,5$  mm, also einem Kontaktwinkel zwischen Stirnwand und Oberfläche von  $60^\circ$ . Die Messung zeigt Mode  $n=1$  bis zur zweiten

Oberfrequenz. Dabei liegt das Verhältnis von Signal zu Rauschanteil für die Grundfrequenz bei 75/1 und bei immer noch 12/1 für die zweite Oberfrequenz. Es ergibt sich eine Frequenz von  $\nu_{n=1}=7,15$  Hz bei einer Halbwertsbreite von 0,07 Hz. Die Frequenz liegt etwas unter der errechneten Frequenz von 7,3 Hz.

Aufgrund der Dispersion von Schwerewellen muß zwischen Oberfrequenz und Oberschwingung einer Oszillation unterschieden werden. Mode  $n=2$  und Mode  $n=3$  der Oberflächenschwingung in  $x$ -Richtung haben eine rechnerische Frequenz von 8,83 Hz und 10,82 Hz. Bei den Signalen bei 14,30 Hz und 21,45 Hz handelt es sich also nicht um höhere Schwingungsmoden sondern um die erste und zweite Oberfrequenz der Grundschwingung.

Neben dieser Frequenz findet man eine weitere Schwingung, die bei einer Frequenz von 7,18 Hz gegenüber der Hauptfrequenz etwas zu höheren Frequenzen verschoben ist und etwa 1/7 der Amplitude besitzt. Es handelt sich dabei um das Signal der Mode  $m=2$ .

Ein Signal bei ca. 4 Hz bis 5 Hz von Mode  $k=1, l=1$  ist aufgrund des starken Rauschuntergrundes in Abb. 4.5 nicht zu erkennen. Bei 9,3 Hz findet man ein Signal, das etwa doppelt so groß wie der Rauschanteil ist. Dieses wird von Mode  $k=3, l=3$  erzeugt.



**Abb. 4.6** Fourierspektrum der Oberflächenoszillation bei einer Unterfüllung von 1,5 mm.

$\Delta T=25,0$  K,  $T_M=20$  °C,  $L=20$  mm,  $B=41$  mm,  $h=1,5$  mm.

 Datensatz auf CD.

Bei einer geringeren Temperaturdifferenz verringert sich das Signal der Mode  $n=1$  deutlich (Abb. 4.6). Bei  $\Delta T=25,0$  K kann man die Temperatursignale der Moden  $k=1,l=1$  und  $k=3,l=3$  erkennen. Die gemessenen Frequenzen liegen bei  $\nu_{k=1,l=1}=4,68$  Hz und  $\nu_{k=3,l=3}=9,22$  Hz bei einer Halbwertsbreite von 0,17 Hz und 0,62 Hz.

Mode  $m=2$  ist von Mode  $n=1$  nicht zu trennen. Die gemessene Frequenz liegt bei  $\nu_{n=1/m=2}=7,22$  Hz bei einer Halbwertsbreite von 0,08 Hz. Die gegenüber dem Signal bei  $\Delta T=45,5$  K auftretende Frequenzverschiebung um 0,07 Hz kann durch die Zunahme der Oberflächenspannung zu niedrigeren Temperaturen hin erklärt werden.

Das Spektrum zeigt noch ein weiteres schwaches Signale, das wahrscheinlich auf Oberflächenoszillationen zurückzuführen sind: Mode E bei  $\nu_E=5,79$  Hz. Wahrscheinlich handelt es sich hierbei um eine Schwingung  $45^\circ$  zur x-Achse, also Mode  $k=2,l=1$ .

Oszillationsmode	Oszillationsfrequenz/Hz
n=1	7,22
m=2	7,22
k=1,l=1	4,68
k=2,l=2	9,22
k=2,l=1	5,79

**Abb. 4.7** Bei einer Küvettengeometrie von  $L = 20$  mm und  $B = 41$  mm gefundene Oszillationsmoden der Oberfläche und die dabei auftretenden Oszillationsfrequenzen.

$\Delta T=25,0$  K,  $T_M=20$  °C,  $L=20$  mm,  $B=41$  mm,  $h\sim 1,5$  mm.

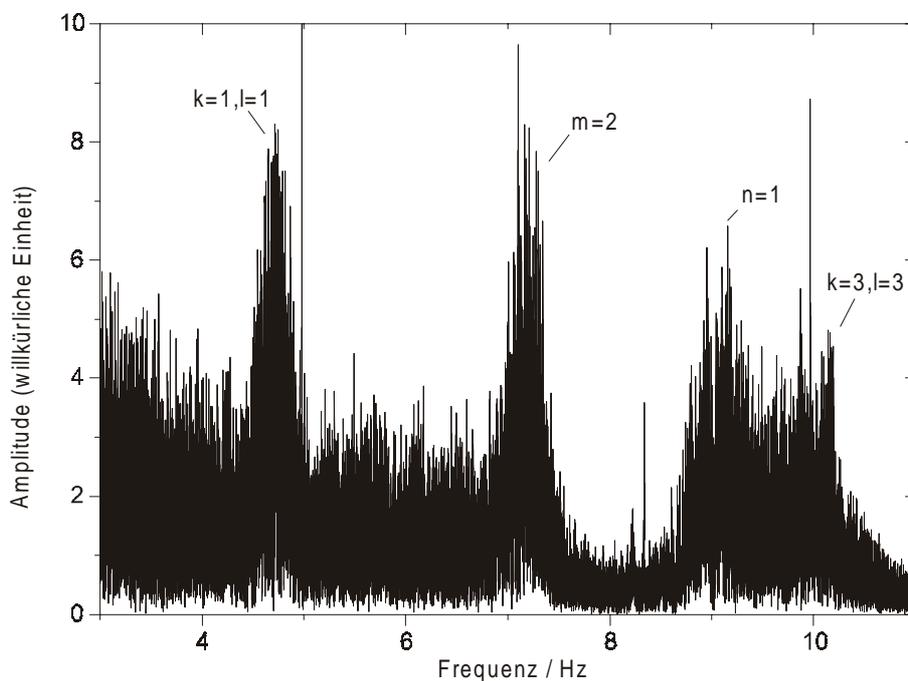
Bei den sehr scharfen Signalen a, a', b<sub>1</sub>, b<sub>2</sub> und d (und den in Abb. 4.6 nicht dargestellten Signalen c<sub>1</sub>, c<sub>2</sub>, c<sub>3</sub> und d') handelt es sich um keine Oberflächenoszillationen sondern um zeitabhängige thermokapillare Strukturen im Meniskus (siehe Kap. 5).

Interessant ist, daß sich bei der Verringerung der Temperaturdifferenz das Amplitudenverhältnis zwischen der Mode  $n=1/m=2$  und den Moden  $k=1,l=1/k=3,l=3$  deutlich verändert. Bei  $\Delta T=45,5$  K war das Signal der Mode  $n=1/m=2$  260 mal größer als das von Mode  $k=1,l=1$ . Bei  $\Delta T=25,0$  K beträgt die Amplitude der Mode  $n=1/m=2$  nur ca. 70% der Amplitude von Mode  $k=1,l=1$ . Diese unterschiedliche Temperaturabhängigkeit der Modenpaare läßt den Schluß zu,

daß die Oberfläche durch mindestens zwei verschiedene Ursachen angeregt wird.

### 4.3 Einfluß der Küvettengeometrie

Wie beschrieben, läßt sich die Küvettenlänge  $L$  und die Breite  $B$  der Küvette durch das Einlegen von Kupfer- bzw. Teflon- und Acrylglasplatten verändern. Diese Veränderung kann voneinander unabhängig vorgenommen werden, so daß eine genaue Identifikation der auftretenden Schwingungsmoden der Flüssigkeitsoberfläche möglich ist:



**Abb. 4.7** Fourierspektrum der Oberflächenoszillation bei Verringerung der Küvettenlänge.

$\Delta T=42,5$  K,  $T_M=20$  °C,  $L=12$  mm,  $B=41$  mm,  $h=1,5$  mm.

 Spektrum mit  $B=35$  mm auf CD.

 Datensatz auf CD.

Die beobachteten Schwingungsmoden sollten sich bei Veränderung der Küvettengeometrie in folgender Weise ändern:

- Eine Schwingungsmode mit Ausbreitung in  $x$  ändert sich charakteristisch bei einer Variation der Küvettenlänge  $L$ , nicht jedoch bei Variation der Breite  $B$ ,
- eine Schwingungsmode mit Ausbreitung in  $y$  ändert sich charakteristisch bei einer

Variation der Breite  $B$ , nicht jedoch bei Variation der Länge  $L$ ,

- eine Schwingungsmode entlang der Diagonalen ändert sich anteilig sowohl bei Variation der Länge als auch der Breite und
- die Veränderungen der Oberflächendimension sollte keinen Einfluß auf Signale haben, die nicht durch Oberflächenschwingungen entstehen.

Abb. 4.7 zeigt beispielhaft die Veränderung der Oberflächenoszillationen bei einer Verschiebung der Küvettenlänge von 20 mm auf 12 mm:

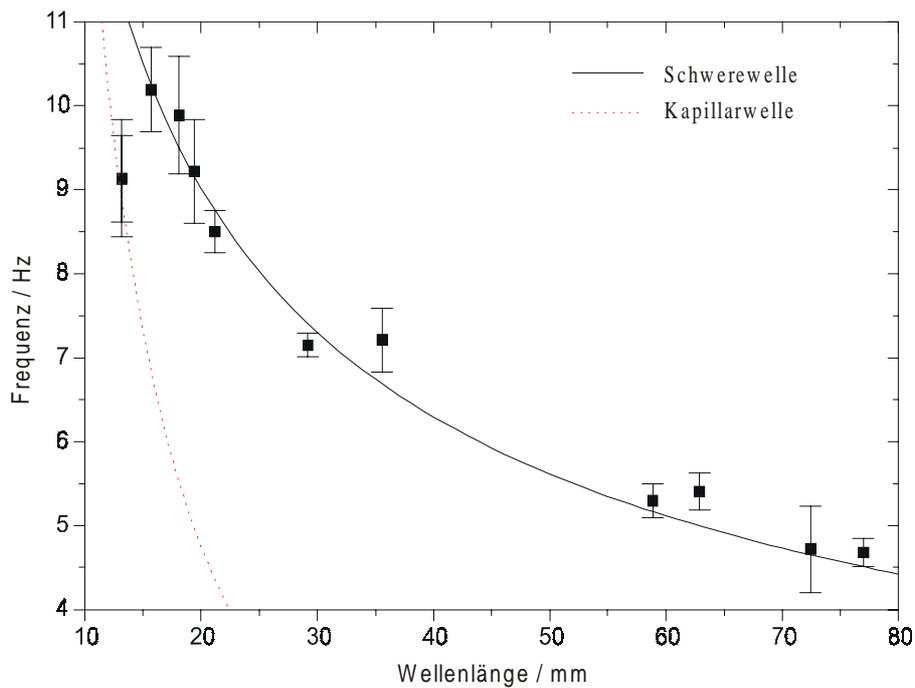
Das Signal der Mode  $n=1$  wird deutlich von 7,15 Hz nach 9,14 Hz verschoben. Dies ist zu erwarten, da es sich um eine Schwingung in  $x$ -Richtung handelt. Im Gegensatz dazu ist Mode  $m=2$  als Schwingung in  $y$ -Richtung unverändert. Die beiden Schwingungen entlang der Diagonalen - Mode  $k=1, l=1$  und  $k=3, l=3$  - sind nicht so stark verschoben wie Mode  $n=1$ . Mode  $k=1, l=1$  wird von 4,68 Hz nach 4,75 Hz verschoben; Mode  $k=3, l=3$  von 9,22 Hz nach 9,89 Hz.

Mit der so erstellten Zuordnung von Signalen im Fourierspektrum des Thermoelementsignals zu Moden der Oberflächenoszillation kann auch die zugehörige Wellenlänge der Schwingungsmode bestimmt werden.

Abb. 4.8 zeigt die so entstehende Dispersionsrelation für die beobachteten Oszillationen der Flüssigkeitsoberfläche. Die Wellenlänge wurde aus Küvettengeometrie und Modenzahl anhand Gleichung (10-12) bestimmt. Aufgrund der Nähe der Wellenlänge der ersten beiden Meßpunkte zur kapillaren Wellenlänge (10,8 mm), entsprechen beide Frequenzen eher einer Kapillarwelle. Die anderen bestimmten Frequenzen stimmen gut mit einer Schwerewelle überein. Insgesamt verifiziert der Vergleich die vorgenommenen Zuordnungen zwischen Schwingungsmoden und Signal im Fourierspektrum, d. h. die Zuordnung ist zur gefundenen Dispersionsrelation konsistent.

Dabei konnte jedoch - vor allem wegen der geringen Signalamplitude gegenüber dem Rauschen - keine eindeutige Zuordnung der Schwingungsmoden  $E$  gemacht werden. Von ihrem Erscheinungsbild im Fourierspektrum ähnelt sie jedoch den beobachteten Oberflächenoszillationen, so daß es sich wahrscheinlich ebenfalls um eine Oberflächenoszillation handelt.

Die Wellenlängen wurden aufgrund obiger Dispersionsrelation zu 46,9 mm bestimmt. Dies entspricht der Moden  $k=2, l=1$ , also einer Schwingung mit einem Ausbreitungswinkel von  $45^\circ$  zur x-Achse.



**Abb. 4.8** Dispersion der beobachteten Oberflächenoszillationen. Die schwarz eingezeichnete Linie bezeichnet die Frequenz einer reinen Schwerewelle; rot gestrichelt die Frequenz einer reinen Kapillarwelle. Die Wellenlänge der Oszillation wurde nach den Gleichungen (10), (11) und (12) aus Kap. 2.11 (Korrektur der Wellenlänge durch kapillaren Übergangsbereich) und der Küvettegeometrie bestimmt, die Frequenzen wurden mittels Thermoelement gemessen.

 Datensatz auf CD.

Bei der Veränderung der Küvettendimension können noch zwei weitere wichtige Beobachtungen gemacht werden:

- Ein genauer Vergleich der Signalamplituden zwischen den einzelnen Messungen ist wegen der nicht exakten Reproduzierbarkeit der Position des verwendeten Thermoelementes nicht möglich. Dennoch zeigt sich für Mode  $n=1$  eine Abhängigkeit

der Oszillationsamplitude von der gemessenen Frequenz. Bei einer Reduktion der Spaltbreite auf  $L=12$  mm sinkt die Amplitude des Signals auf  $1/450$  (bei einer Frequenz von  $9,14$  Hz gegenüber der ursprünglichen Frequenz von  $7,15$  Hz). Dabei bleibt die Signalamplitude der Mode  $m=2$  unverändert. Diese verringert sich erst, wenn durch Verringerung der Küvettenbreite  $B$  die Wellenlänge von Mode  $m=2$  verkleinert wird. Dies ist ein Hinweis darauf, daß beide Moden voneinander unabhängig sind. Beide werden jedoch bevorzugt bei einer Frequenz von etwa  $7$  Hz erzeugt.

- Die im Spektrum auftretenden sehr scharfen Frequenzen (a-d) korrelieren nicht mit entsprechenden Geometrieänderungen. Wie später gezeigt, korreliert ihre Frequenzverschiebung mit der angelegten Temperaturdifferenz. Es handelt sich demnach nicht um Temperatursignale, die von (langwellige) Oszillationen der Flüssigkeitsoberfläche herrühren.

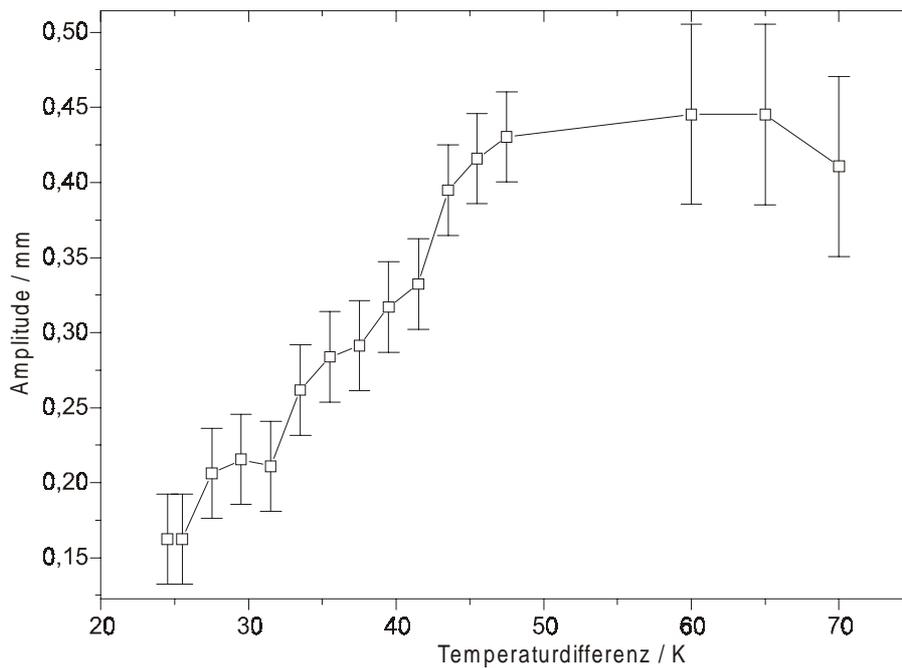
Weiterhin wurde stichprobenartig der Einfluß der Schichtdicke in der Küvette durch Veränderung der Position des Küvettenbodens untersucht. Bei den Experimenten mit Seitenverhältnissen von  $A=1,0$ ,  $A=0,5$  und  $A=0,25$  wurde kein Einfluß auf die Oberflächenoszillationen beobachtet. Dies stimmt mit der Beobachtung überein, daß die Temperaturdifferenz zwischen den Volumenheizern - die ebenfalls wie das Seitenverhältnis stark die Form und Ausprägung des Hauptwirbels bestimmt [Metzger86] - keinen beobachtbaren Einfluß hat.

## 4.4 Einfluß der Temperaturdifferenz

Abb. 4.9 zeigt die Abhängigkeit der Amplitude der Oberflächenoszillation der Mode  $n=1$  von der angelegten Temperaturdifferenz. Die Daten wurden mit Hilfe der Lichtzeigermethode gewonnen. Bei den Angaben handelt es sich stets um die maximale Amplitude, die bei der Veränderung der Unterfüllung  $h$  und damit des Kontaktwinkels gemessen wurde.

Die Amplitude nimmt zunächst weitgehend linear bis  $\Delta T=45$  K zu. Danach flacht die Kurve ab und sinkt bei der stichprobenartigen Messung bei einer Temperaturdifferenz von  $70$  K sogar. Bei dieser Temperatur befindet sich die heiße Thermode auf einer Temperatur von  $65$  °C, da die kalte Thermode nicht unter  $-5$  °C abgekühlt werden kann. Bei dieser Temperatur kommt es bereits zu Siedeerscheinungen. Ab einer Temperaturdifferenz von  $50$  K entspricht aus dem gleichen Grund die mittlere Temperatur zwischen beiden Thermoden nicht mehr der Umgebungstemperatur von ca.  $20$  °C.

Unterhalb von einer Temperaturdifferenz von 24,5 K ist die Oberflächenoszillation nicht mehr vom Rauschen des Meßsystems zu unterscheiden. Zwar ist die Nachweisgröße des Lichtzeigersystems für Oberflächenoszillationen mit ca. 10  $\mu\text{m}$  einen Faktor 10 kleiner als das Signal bei 24,5 K (160  $\mu\text{m}$ ), doch wird die Flüssigkeitsoberfläche durch verschiedene mechanische Störungen stets zu Schwingungen in der Größenordnung von etwa 150  $\mu\text{m}$  angeregt. Es ist daher nicht möglich, einen Einsatzpunkt der Oberflächenoszillation direkt zu messen.



**Abb. 4.9** Abhängigkeit der Oszillationsamplitude der Mode  $n=1$  der Flüssigkeitsoberfläche von der Temperaturdifferenz zwischen beiden Thermoden. Aufgetragen ist die jeweils maximale Amplitude, die bei festgehaltenem  $\Delta T$  bei Veränderung der Meniskusform auftritt. Dies ist für  $h \sim 1,5$  mm der Fall.

$T_M = 20,0$  °C,  $L = 20$  mm,  $B = 41$  mm.

 Datensatz auf CD.

Eine lineare Regression der aufgenommenen Kurve bis zu einer Temperaturdifferenz von 47,5 K ergibt einen Einsatzpunkt von

$$\Delta T_{\text{krit.}} = 11,4 \pm 2,1 \text{ K.}$$

Geht man davon aus, daß die Oberflächenoszillation eine Reaktion auf die Zeitabhängigkeit

einer hydrodynamischen Instabilität ist, sollte die Kurve in der Nähe des Einsatzpunktes einer der Form einer HOPF-Bifurkation ähneln:

$$A = \text{const.} \cdot \sqrt{\Delta T - \Delta T_{\text{krit.}}}$$

Bei genauerer Betrachtung erkennt man, daß sich die Meßkurve wahrscheinlich aus drei wurzelfunktionsförmigen Abschnitten zusammensetzt: von 24,5 K bis 32 K, von 32 K bis 42 K und von 42 K bis 65 K. Die Abweichungen von einer Geraden liegen knapp innerhalb des Meßfehlers und sind nicht zwingend. Im Gesamtbild ist die Wurzelform aber wahrscheinlich.

Eine Anpassung des Bereichs bis 32 K ergibt einen Einsatzpunkt von

$$\Delta T_{\text{crit}} = 15,2 \pm 1,8 \text{ K.}$$

Zur Messung der anderen Moden ist die Lichtzeigermethode zu unempfindlich. Statt dessen muß, wie bereits oben beschrieben, mit einem Thermoelement gemessen werden. Vergleicht man die Amplitude der Temperatursignale von Mode  $n=1$  bei  $\Delta T=25,0$  K und  $\Delta T=45,0$  K mit der Amplitude der Oberflächenoszillation, die mit der Lichtzeigermessung gewonnen wurden, kann man eine annähernde Kalibrierung zwischen Temperatursignal und Oszillationsamplitude durchführen. Dabei ergibt sich ein Umrechnungsfaktor von:

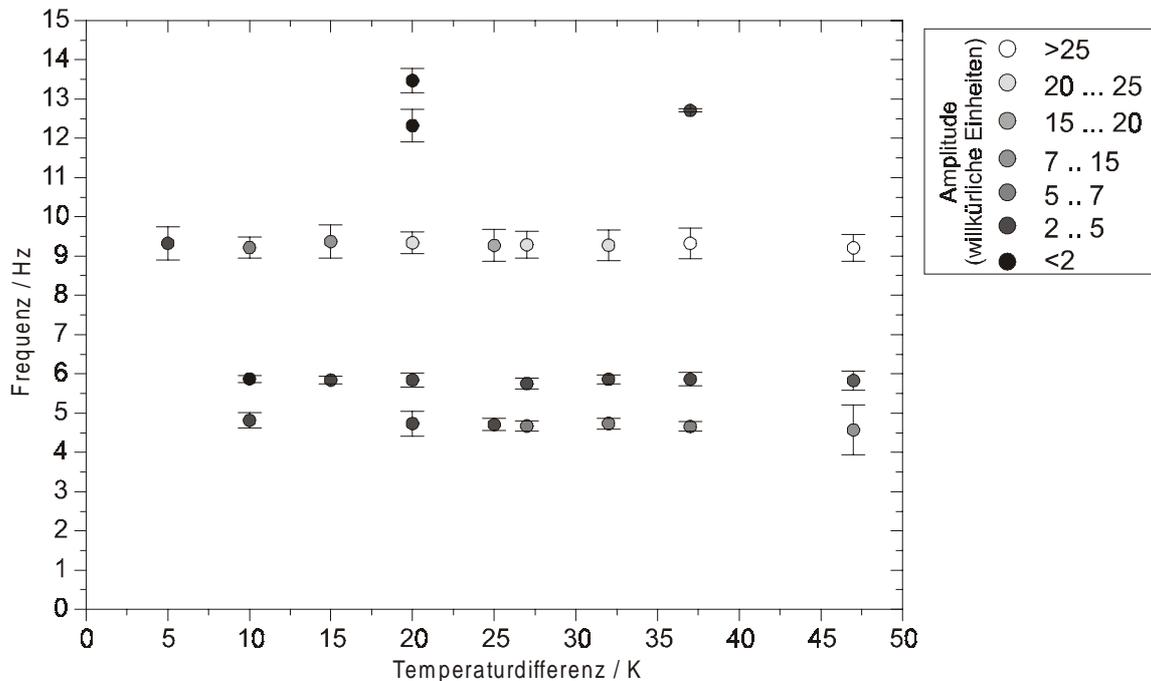
$$a = 0,0011 \pm 0,0007 \text{ mm/ADC-Wert.}$$

Damit ergeben sich für die Moden  $m=2$ ,  $k=1, l=1$  und  $k=3, l=3$  bei  $\Delta T=25,0$  K jeweils eine Amplitude von ungefähr  $0,010 \pm 0,005$  mm. Die Amplitude von Mode E beträgt etwa  $0,003 \pm 0,002$  mm. Im Gegensatz zur Messung des Reflexionswinkels entstehen dadurch keine absoluten Meßwerte.

Der Vergleich zwischen verschiedenen Messungen ist nur schwer möglich, da die Amplitude des Signals mit der exakten Position des Thermoelementes sich stark verändert. Solche Messungen sind stets nur qualitativ. Im weiteren Verlauf der Arbeit wird daher auf eine Kalibrierung der Thermoelementsignale verzichtet.

Um das sehr starke Signal der Oszillationsmode  $n=1$  zu unterdrücken, wurde die Spaltbreite von  $L=20$  mm auf  $L=12$  mm reduziert. Die Breite der Küvette bleibt bei  $B=41$  mm. Bei dieser

Küvettenlänge beträgt die Amplitude der Mode  $n=1$  nur  $1/450$  der ursprünglichen Amplitude. Das Signal der Mode  $m=2$  wird unterdrückt, wenn das Thermoelement in der Nähe der Knotenlinie ( $y=10\text{ mm}$ ) positioniert wird.



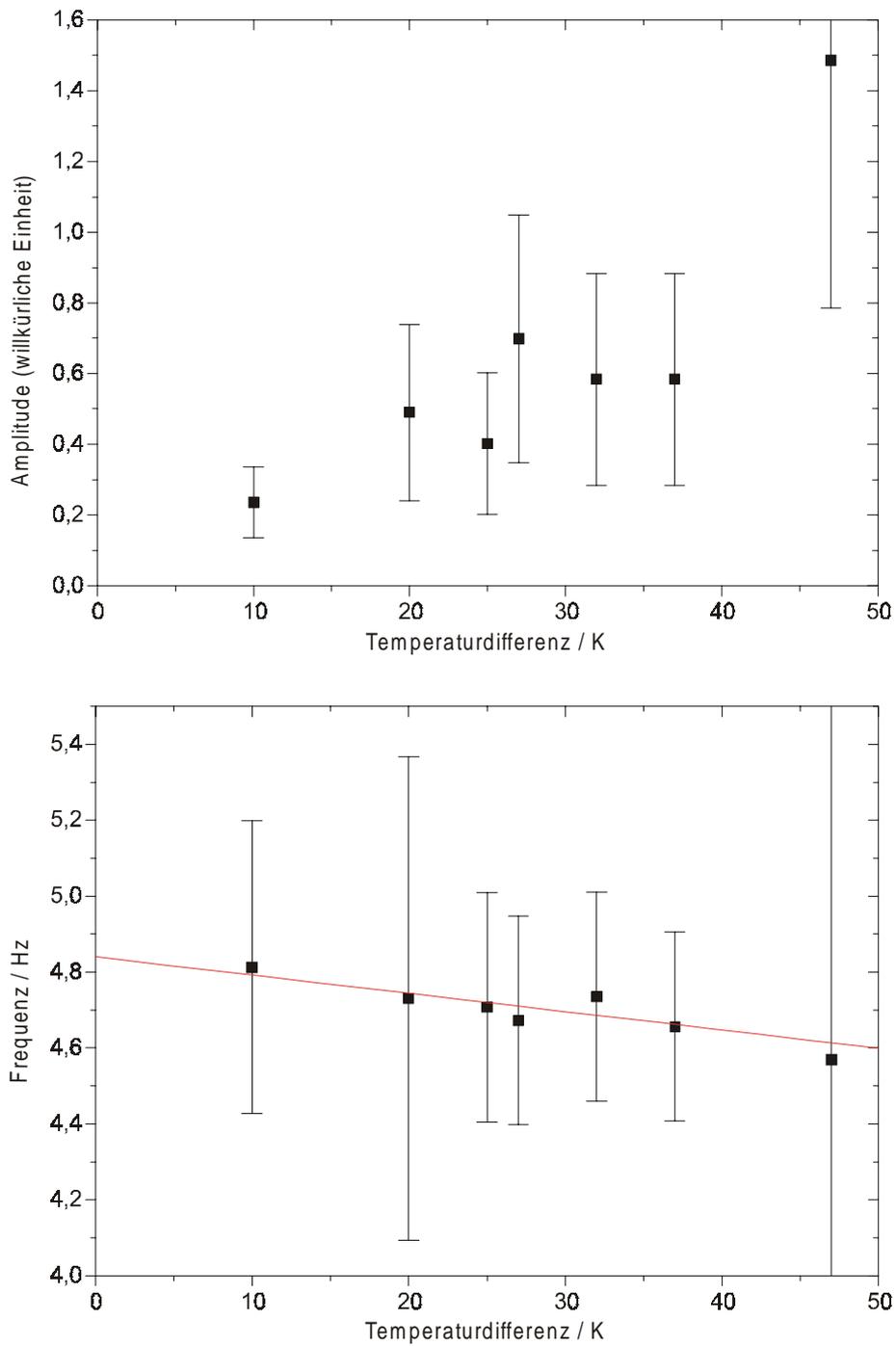
**Abb. 4.10** Frequenz und Amplitude der Temperatursignale der Oberflächenoszillationen. Die Küvettengeometrie ist  $L=12\text{ mm}$  und  $B=41\text{ mm}$ . Dadurch wird Mode  $n=1$  unterdrückt. Das Signal der Mode  $m=2$  wird durch Messung nahe an der Knotenlinie unterdrückt.

$T_M=20\text{ °C}$ ,  $L=12\text{ mm}$ ,  $B=41\text{ mm}$ ,  $h=1,5\text{ mm}$

 Einzelsignale auf CD.

 Datensatz auf CD.

Allgemein zeigt sich für alle Moden ein Ansteigen der Signalamplitude mit der angelegten Temperaturdifferenz (Abb. 4.10). Abb. 4.11 zeigt den Kurvenverlauf beispielhaft an der Oszillationsmode  $k=1, l=1$ . Die Bestimmung eines Einsatzpunktes aus den Daten ist nicht möglich.



**Abb. 4.11** Amplitude und Frequenz des Temperatursignals der Mode  $k=1, l=1$ .

Mode  $k=1, l=1$ ,  $k=3, l=3$  und  $E$  auf CD.

Datensatz auf CD.

Lineare Extrapolationen ergeben rechnerisch folgende Einsatzpunkte:

$$\Delta T_{\text{krit.}}^{k=1,l=1} = -3,3 \text{ K}$$

$$\Delta T_{\text{krit.}}^{k=3,l=3} = -0,5 \text{ K}$$

$$\Delta T_{\text{krit.}}^E = -6,5 \text{ K}$$

Im Rahmen der Meßungenauigkeit liegen die Einsatzpunkte also nahe bei Null. Die Tatsache, daß sich rechnerisch ein Einsatzpunkt bei einer negativen Temperaturdifferenz ergibt, zeigt, daß alle drei Moden einen starken Rauschanteil besitzen. Dieser ist auf indifferente Anregung der Oberflächenoszillationen durch äußere Einflüsse - mechanische Vibrationen anderer Apparaturen und Gebäudeschwingungen - zurückzuführen.

Extrapoliert man die Amplitudenwerte unter Annahme einer Wurzelfunktion, erhält man Einsatzpunkte bei höheren Temperaturen:

$$\Delta T_{\text{krit.}}^{k=1,l=1} = 17 \text{ K}$$

$$\Delta T_{\text{krit.}}^{k=3,l=3} = 4 \text{ K}$$

$$\Delta T_{\text{krit.}}^E = 10 \text{ K}$$

Aufgrund der bereits genannten Probleme ist die Annahme einer Wurzelfunktion nicht zwingend; die Einsatzpunkte sind nicht signifikant.

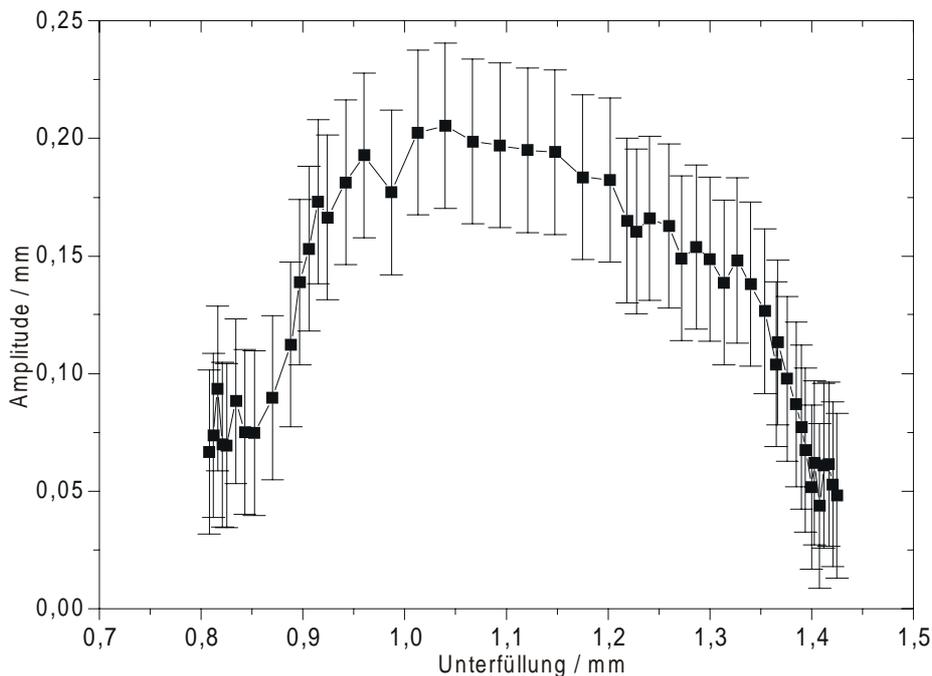
Die Annahme einer mit der angelegten Temperaturdifferenz steigenden Amplitude ist ebenfalls nicht zwingend. Auch bei einer Oberflächenoszillation, die nur von Außen angeregt wird - und deren Amplitude der Oszillation daher nicht von der Temperaturdifferenz abhängt - ergibt sich eine steigende Signalamplitude bei Vergrößerung der Temperaturdifferenz. Dies ergibt sich aus dem zu größeren Temperaturdifferenzen stärker werdenden Temperaturgradienten in der Nähe der Oberfläche. Dieser führt auch bei gleichbleibender Bewegung der Oberfläche zu einem größeren Temperaturunterschied, der vom Thermoelement gemessen wird.

Insbesondere Mode E zeigt ein großes Signal bei niedrigen Temperaturdifferenzen und nur eine geringe Steigerung der Signalamplitude mit zunehmender Temperaturdifferenz. Daraus ergibt sich auch der am weitesten im Negativen liegende rechnerische Einsatzpunkt.

Geht man davon aus, daß diese Mode den geringsten Amplitudenzuwachs in der Oberflächenoszillation hat, sie also den relativ größten Anteil an externen Anregungen hat, ergibt sich für die Moden  $k=1, l=1$  und  $k=3, l=3$  immer noch ein Nettozuwachs der Oszillationsamplitude, der nicht durch die Zunahme des Temperaturgradienten am Thermoelement entsteht. Entsprechend ergibt sich rechnerisch ein näher an Null liegender Einsatzpunkt.

Die Frequenz der Oberflächenoszillationen fällt um 0,2 Hz bis 0,5 Hz auf 50 K angelegter Temperaturdifferenz. Dies stimmt mit den Erwartungen überein (Verringerung der Oberflächenspannung bei zunehmender Temperatur) und stützt damit die Vermutung, daß es sich bei den gemessenen Signalen um Temperaturoszillationen handelt, die durch Oberflächenoszillationen hervorgerufen werden.

## 4.5 Einfluß der Unterfüllung



**Abb. 4.12** Abhängigkeit der Oszillationsamplitude von Mode  $n=1$  (plus Mode  $m=2$ ) von der Unterfüllung.

$\Delta T=27,5$  K,  $T_M=20$  °C,  $L=20$  mm,  $B=41$  mm.

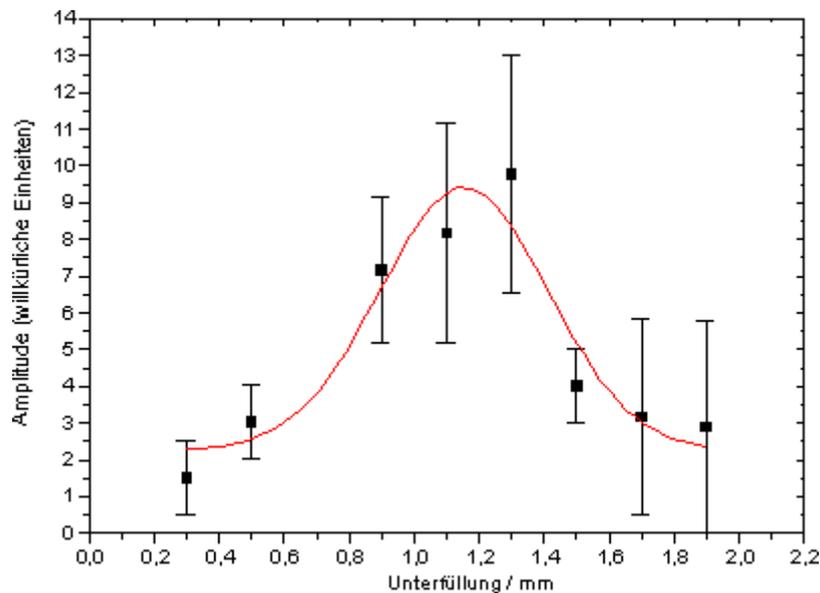
☞  $\Delta T=24,5$  K und  $\Delta T=45,5$  K auf CD.

☞ Datensatz auf CD.

In Abb. 4.12 wird gezeigt, wie sich die Amplitude der Oberflächenszillation verändert, wenn die Küvette zunehmend unterfüllt wird und damit ein immer stärkerer Meniskus geformt wird.

Gemessen wurde dabei mit der Lichtzeigermethode, die vorwiegend die Summe der Amplituden von Mode  $n=1$  und  $m=2$  zeigt. Das Untergrundrauschen des Signals entspricht einer Amplitude von etwa 0,04 mm bis 0,06 mm. Kleinere Amplituden können daher nicht gemessen werden. Die Unterfüllung kann einen systematischen Fehler von 0,2 mm aufweisen; der relative Fehler beträgt weniger als 0,01 mm.

Bei einer Temperaturdifferenz von 27,5 K erkennt man das Auftreten der Oberflächenszillation bei Unterfüllungen zwischen  $h \sim 0,85$  mm und  $h \sim 1,4$  mm. Das Maximum der Amplitude liegt bei  $h \sim 1,0..1,1$  mm und erreicht einen Wert von etwa 0,2 mm. Dabei fällt auf, daß die Kurve deutlich asymmetrisch ist, d. h. die Amplitude steigt bei zunehmender Unterfüllung zunächst stärker an, als sie nach dem Maximum wieder abfällt.



**Abb. 4.13** Abhängigkeit der Oszillationsamplitude der Mode  $n=1$  (plus Mode  $m=2$ ) von der Unterfüllung.

$\Delta T = 25,0$  K,  $T_M = 20$  °C,  $L = 20$  mm,  $B = 41$  mm.

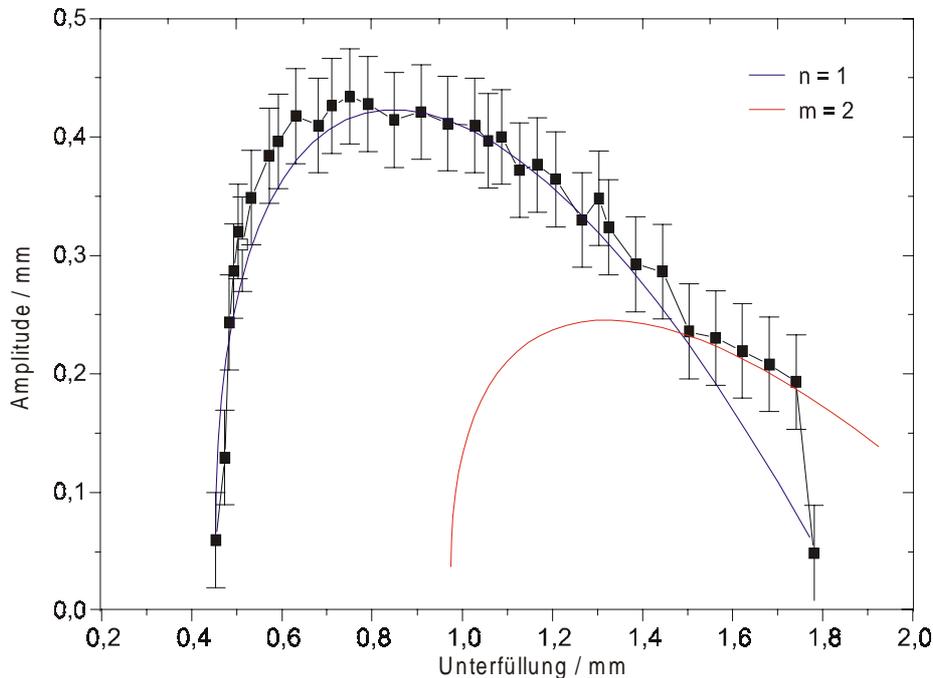
 Datensatz auf CD.

Um den Bereich, bei dem die Oberflächenszillation auftritt besser bestimmen zu können, wurde die Oberflächenszillation auch mit Thermoelementmessungen bestimmt. Abb. 4.13 zeigt das Temperatursignal des Thermoelementes in Abhängigkeit der Unterfüllung bei einer angelegten

Temperaturdifferenz von  $\Delta T=25,0$  K, also nahe an der Nachweisgrenze für die Lichtzeigermethode. Der Fehler für die Messung der Unterfüllung liegt bei 0,05 mm. Auch bei dieser Messung kann ein systematischer Fehler von bis zu 0,2 mm vorliegen, der jedoch bei allen Thermoelementmessungen gleich ist. Ein Vergleich der Messungen mit Thermoelementen ist daher möglich. Beim Vergleich zwischen Lichtzeigermessungen und Thermoelementmessungen kann eine, dem systematischen Fehler entsprechende Verschiebung vorhanden sein.

Bei dieser Messung läßt sich die Oberflächenoszillation über den gesamten Meßbereich nachweisen. Dies rührt von der externen Anregung der Oberfläche her. Zieht man diesen Untergrund vom Signal ab und paßt eine gaußförmige Kurve in die Meßpunkte ein, so ergibt sich, daß die Oszillation bei Unterfüllungen zwischen  $h=0,6\pm 0,1$  mm und  $h=1,6\pm 0,1$  mm auftritt.

Die Tendenz zu größeren Amplituden bei zunehmender Unterfüllung entsteht durch die geringere Distanz zwischen Oberfläche und Thermoelement. Nahe der Oberfläche ist der Temperaturgradient höher, so daß die Empfindlichkeit des Thermoelementes zunimmt.



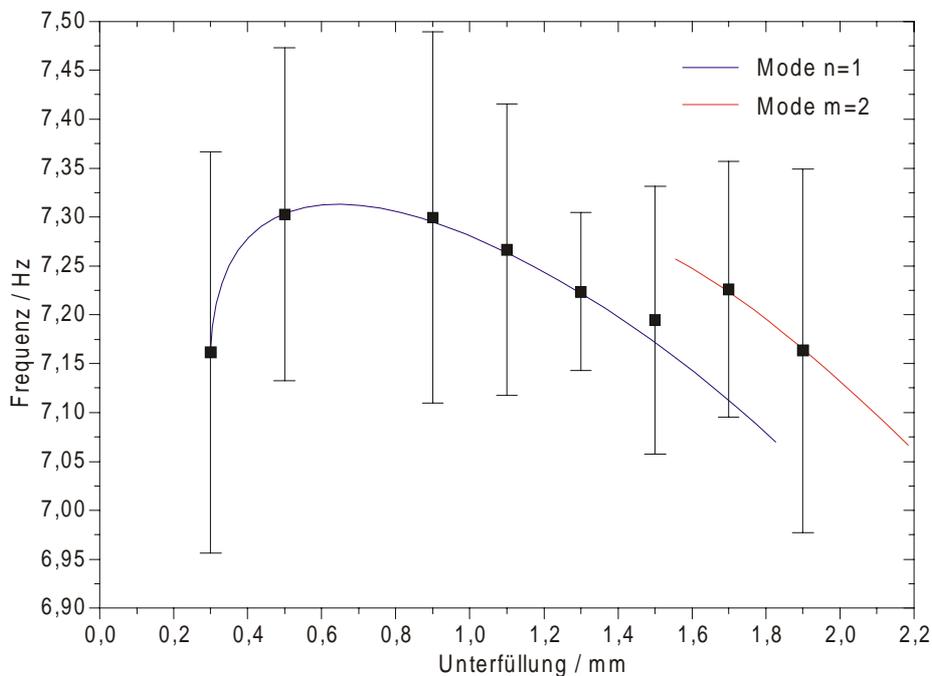
**Abb. 4.14** Abhängigkeit der Oszillationsamplitude der Mode  $n=1$  (plus Mode  $m=2$ ) von der Unterfüllung.

$\Delta T=45,5$  K,  $T_M=20$  °C,  $B=20$  mm,  $L=41$  mm.

☞  $\Delta T=24,5$  K und  $\Delta T=27,5$  K auf CD.

☞ Datensatz auf CD.

Bei einer angelegten Temperaturdifferenz von 45,5 K (Abb. 4.14) tritt die Oszillation in einem Bereich von  $h=0,41$  mm bis  $h=1,8$  mm auf. Auffällig ist die Abflachung des Amplitudenabfalls bei  $h=1,5$  mm. Diese Abflachung entsteht dadurch, daß das Signal des Lichtzeigers der Summe aus dem Signal der Mode  $n=1$  und  $m=2$  entspricht, die Messung also aus einer Überlagerung der Kurven für beide Moden besteht. Verschiebt man den Signalverlauf im Bereich  $h=0,4\dots 1,5$  mm bei Anpassung der Amplitude um  $\Delta h=0,4$  mm, so paßt der Kurvenverlauf gut zu dem gebildeten "Plateau". Mode  $m=2$  tritt also erst bei etwa 0,4 mm größerer Unterfüllung gegenüber Mode  $n=1$  auf.



**Abb. 4.15** Frequenz der Oberflächenoszillation (Mode  $n=1$  und  $m=2$ ) gegenüber der Unterfüllung  $h$ .

$\Delta T=25,0$  K,  $T_M=20$  °C,  $L=20$  mm,  $B=41$  mm.

Die Fehlerbalken geben die Halbwertsbreite des Signals an.

 Datensatz auf CD.

Dieses Ergebnis entspricht der Frequenzmessung der Oberflächenoszillation. Dazu wurden Thermoelementmessungen bei einer Temperaturdifferenz von  $\Delta T=25,0$  K (Abb. 4.14) verwendet. Aufgrund der geringen Schärfe der Signale ist dabei eine Trennung zwischen den Mode  $n=1$  und  $m=2$  nicht direkt möglich.

Die Messung zeigt ab einer Unterfüllung von  $h \sim 0,5$  mm ein Sinken der Oszillationsfrequenz. Die Frequenzabnahme wird mit zunehmender Unterfüllung größer. Dieses Ergebnis läßt sich gut mit der Vergrößerung der Oberfläche bei zunehmender Unterfüllung und der damit zunehmenden Wellenlänge einer passenden Oberflächenschwingung erklären.

Überraschend ist das deutliche Ansteigen der Frequenz im Bereich  $h = 0,3..0,5$  mm. Der immer größer werdende Meniskus verhindert beim Absenken der Oberfläche immer stärker die Ausbildung von Schwingungsbäuchen nahe den Wänden. Dabei wird die Oberflächenschwingung stärker gedämpft und die Schwingungsbäuche müssen weiter von der Wand wegwandern; die Wellenlänge sinkt und die Oszillationsfrequenz steigt.

Ab einer Unterfüllung von  $h = 1,5$  mm steigt die gemessene Frequenz zunächst an, um anschließend wieder zu sinken. Es handelt sich um den stärker werdenden Einfluß der Mode  $m=2$ . Verschiebt man auch in dieser Messung die Kurve um  $\Delta h = 0,4$  mm, so paßt sie gut auf die entsprechenden Meßpunkte von Mode  $m=2$ . Die bei der Verschiebung um 0,4 mm auftretende Frequenzverschiebung entspricht mit etwa 0,05 Hz gut auf die Differenz  $\nu_{m=2} - \nu_{n=1}$ .

Bei Unterfüllung der Küvette tritt bei der betrachteten Temperaturdifferenz von  $\Delta T = 45,5$  K demnach zunächst Mode  $n=1$  auf und erreicht das Amplitudenmaximum bei einer Unterfüllung von  $h = 1,3$  mm. Erst später tritt Mode  $m=2$  auf. Bei einer Unterfüllung von  $h \sim 1,5$  mm findet man beide Moden (siehe Abb. 4.16); das Amplitudenmaximum für Mode  $m=2$  wird bei  $h = 1,7$  mm erreicht.

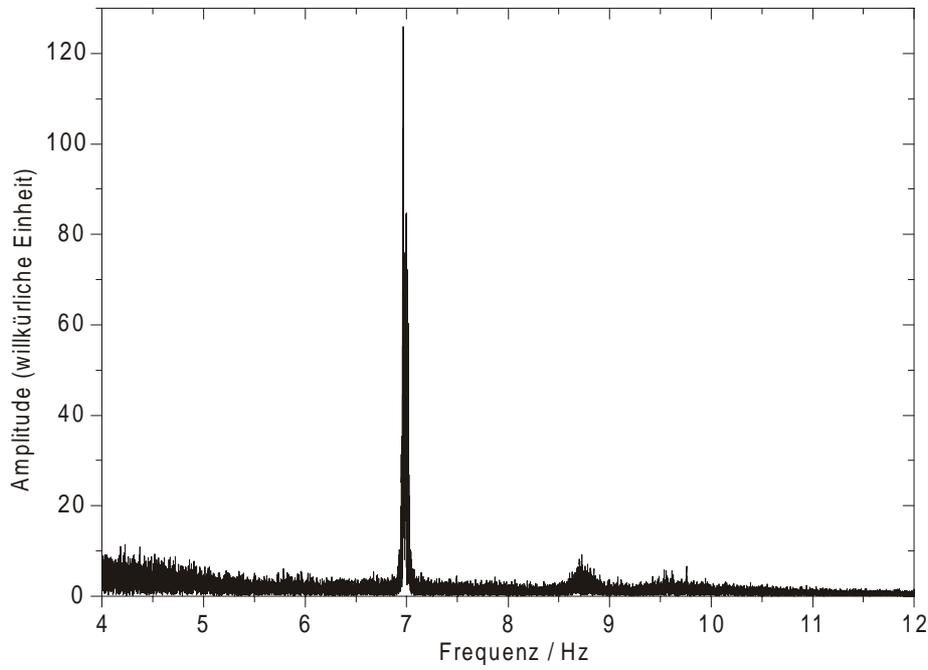
Auch bei Unterdrückung der Mode  $n=1$  durch Reduktion der Spaltbreite auf  $L = 12$  mm wird bei einer Unterfüllung von  $h = 1,7$  mm und einer Temperaturdifferenz von  $\Delta T = 45,0$  K ein sehr kräftiges Signal bei einer Frequenz von 7 Hz gemessen (Abb. 4.16). Hierbei handelt es sich um das Signal der Mode  $m=2$ .

Dieser Unterschied der Moden  $n=1$  und  $m=2$  ist in folgender Hinsicht interessant:

Mode  $m=2$  hat eine etwas höhere Frequenz als Mode  $n=1$ . Beide treten daher unter ähnlichen Bedingungen auf, jedoch bei unterschiedlichen Unterfüllungen. Dieser Unterschied korrespondiert mit den unterschiedlichen Frequenzen, d. h. beide Moden treten bei gleicher Resonanzfrequenz und nicht bei gleicher Unterfüllung auf.

Daraus kann man schließen, daß neben der Form (Auftreten von Menisken) der Oberfläche auch die Resonanzfrequenz der Oberfläche von ausschlaggebender Bedeutung für das Auftreten der

Oberflächenszillationen ist, die Anregung der Oberflächenschwingungen also an feste Frequenzen gebunden ist.



**Abb. 4.16** *Fourierspektrum des Temperatursignals bei einer Unterfüllung von 1,7 mm. Das von der Oszillationsmode  $m=2$  herrührende Signal bei 7 Hz hat ein Verhältnis von Amplitude zu Rauschen von 80.*

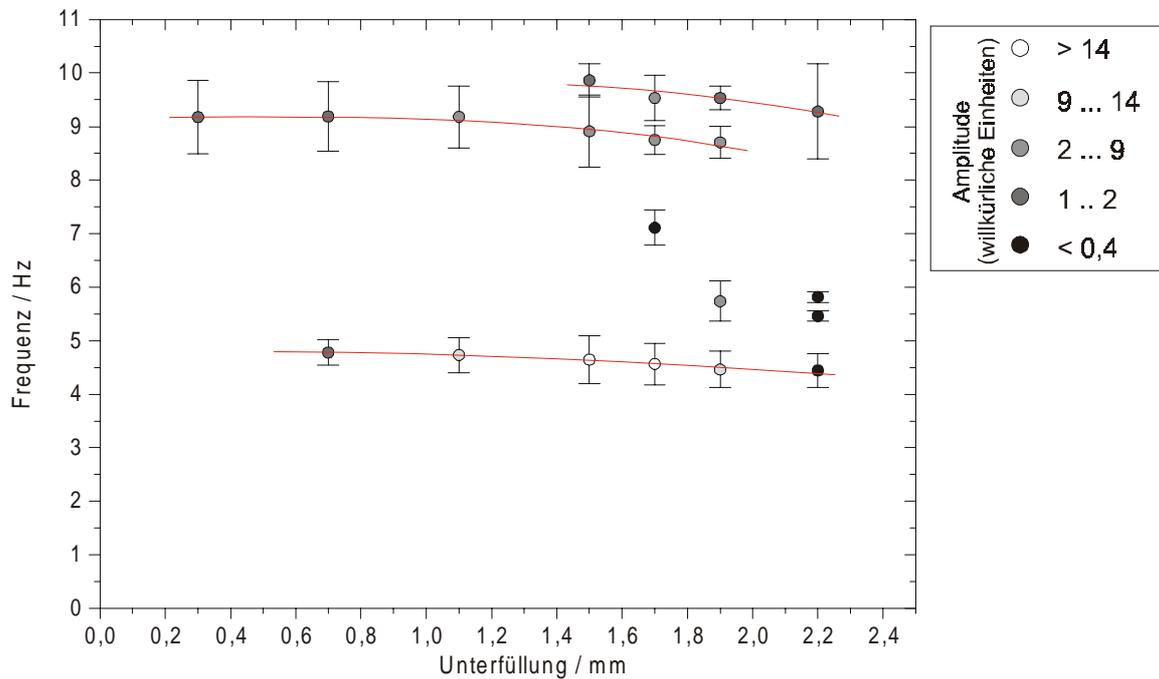
$\Delta T=45,0$  K,  $T_M=20,0$  °C,  $L=12$  mm,  $B=41$  mm,  $h=1,7$  mm.

 Datensatz auf CD.

Die Verringerung der Küvettendimension auf  $L=12$  mm und  $B=41$  mm erlaubt zusätzlich die Beobachtung der Moden  $k=1,l=1$  und  $k=3,l=3$  mit Thermoelementmessungen. Für alle Messungen geben die Fehlerbalken die Halbwertsbreite der Signale im Fourierspektrum an. Die Meßfehler für Amplitude und Unterfüllung gleichen den bereits beschrieben.

Alle Moden zeigen ein Sinken der Oszillationsfrequenz bei zunehmender Unterfüllung und treten nur in einem jeweils bestimmten aber von Mode zu Mode verschiedenen Bereich bezüglich der Unterfüllung auf.

Die zu einer Frequenz von etwa  $\nu_{n=1}=9$  Hz verschobene Mode  $n=1$  tritt bei  $h=1,0\pm 0,2\dots 2,0\pm 0,2$  mm auf, also erst bei weiterer Unterfüllung gegenüber der ursprünglichen Küvettengeometrie.



**Abb. 4.17** Frequenz- und Amplitudenentwicklung bei Veränderung der Unterfüllung. Mode  $n=1$  ist durch Reduktion der Spaltbreite auf  $L=12,0$  mm zu einer Frequenz von 9 Hz verschoben und in der Amplitude bedämpft. Das Signal der Mode  $m=2$  wird durch Positionierung des Thermoelementes nahe der Knotenlinie unterdrückt.

$\Delta T=25,0$  K,  $T_M=20,0$  °C,  $L=12,0$  mm,  $B=41,0$  mm.

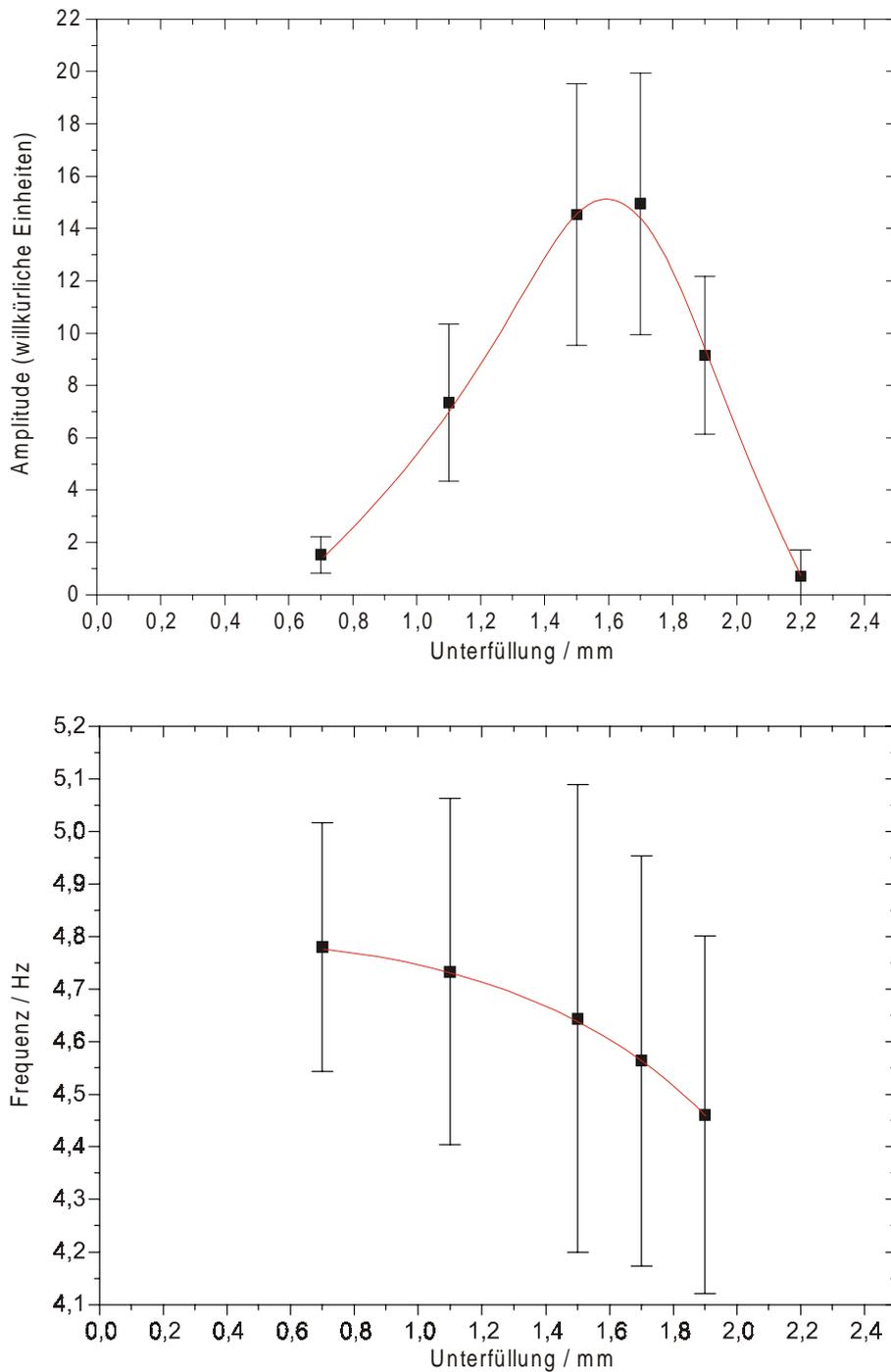
 Einzelsignale auf CD.

 Datensatz auf CD.

Die Daten für Mode  $k=3, l=3$  sind aufgrund des großen Amplitudenfehlers nicht eindeutig. Entweder tritt sie zwischen  $h \sim 1,5$  mm und  $h \sim 1,9$  mm auf mit einem Amplitudenmaximum bei  $h \sim 1,7$  mm, oder das Amplitudenmaximum liegt bei einer Unterfüllung, die nicht mehr eingestellt werden kann.

Mode  $k=1, l=1$  zeigt ein ausgeprägtes Maximum bei  $h \sim 1,6 \pm 0,1$  mm. Die Amplitude ist dabei etwa 5 mal größer als die Maximalamplitude der Mode  $n=1$ . Die Oberflächenszillation tritt zwischen  $h=0,9 \pm 0,2$  mm und  $h=2,0 \pm 0,2$  mm auf.

Eine Analyse der Mode E ist aufgrund der geringen Anzahl der Datenpunkte nicht möglich. Das Amplitudenmaximum scheint bei  $h \sim 1,9$  mm zu liegen.



**Abb. 4.18** Amplitude und Frequenz der Oszillationsmode  $k=1, l=1$  in Abhängigkeit der Unterfüllung.

$\Delta T=25,0$  K,  $T_M=20,0$  °C,  $L=12,0$  mm,  $B=41,0$  mm.

 Datensatz auf CD.

Das Seitenverhältnis der Küvette (bei der ursprünglichen Geometrie von  $L=20,0$  mm) ist  $A=1$ , d. h. die Schichtdicke der Experimentierflüssigkeit beträgt ebenfalls  $d=20$  mm. Die hier untersuchten Unterfüllungen machen also mit  $h=0,1..2,0$  mm lediglich  $1/200..1/10$  der Schichtdicke aus. Außerdem hatten Experimente bei verschiedenen Schichtdicken keinen Einfluß auf das Auftreten der Oberflächenoszillationen gezeigt. Es ist daher vernünftig, anzunehmen, daß nicht die Veränderung der Schichtdicke sondern die Veränderung der Form der freien Oberfläche - das Ausbilden von Menisken an den Seitenwänden - der entscheidende Faktor für das Auftreten der Oszillationen ist.

Um zu klären, von welcher Seitenwand das Auftreten der Oszillationen abhängt, wurde folgendes Experiment verwendet:

Die Küvette wurde zunächst vollständig waagrecht ausgerichtet und eine Temperaturdifferenz von  $\Delta T=45,5$  K angelegt. Durch Verdampfen der Experimentierflüssigkeit wird der Flüssigkeitsspiegel während des Experimentes kontinuierlich abgesenkt.

Nach dem Auftreten der Oberflächenoszillationen wird die Küvette um die  $y$ -Achse in Richtung der kalten Thermode gekippt. Dadurch befindet sich die kalte Seitenlinie unter der Seitenlinie an der warmen Thermode, d. h. der Kontaktwinkel zwischen kalter Thermode und freier Oberfläche ist größer (er entspricht mehr der flachen Füllung) als an der warmen Thermode. Gleichzeitig wird der Kontaktwinkel an der warmen Thermode durch die Verkippung kleiner (entsprechend stärkerer Unterfüllung). Während der Verkippung in Richtung der kalten Thermode wird also die Oberfläche nahe der kalten Thermode so verändert als sei die Küvette weniger stark unterfüllt während gleichzeitig die Oberfläche an der warmen Thermode die gleiche Form wie bei stärkerer Unterfüllung erhält.

Die Küvette wird so lange verkippt, bis die Oberflächenoszillationen verschwinden. Anschließend wird die Flüssigkeitsoberfläche durch Verdunstung weiter abgesenkt. Nach einer Weile tritt die Oberflächenoszillation erneut auf; bei weiterem Absenken verschwindet sie erneut.

Bei dem Experiment wird also zunächst der Kontaktwinkel an der kalten Thermode verringert, bis die Oberflächenoszillation auftritt und danach wieder vergrößert, bis sie wieder verschwindet. Bei einer erneuten Verkleinerung des Kontaktwinkels tritt auch die Oszillation wieder auf. Im Gegensatz dazu wird der Kontaktwinkel an der warmen Thermode dabei stets verkleinert.

Wiederholt man das Experiment, verkippt aber in Richtung der warmen Thermode wird während des Experimentes der Kontaktwinkel an der kalten Thermode stets verkleinert. Der Kontaktwinkel an der warmen Thermode wird solange verkleinert, bis die Oberflächenoszillation auftritt und anschließend wieder vergrößert bis die Oberflächenoszillation wieder verschwindet (dabei wird aber der Kontaktwinkel an der kalten Thermode weiter verkleinert). Beim weiteren Absenken des Flüssigkeitsspiegels, also dem erneuten Verkleinern des Kontaktwinkels an der warmen Thermode tritt die Oberflächenoszillation nicht auf.

Das Ergebnis beider Experimente ist, daß das Auftreten der Oberflächenoszillation von der Meniskusform an der kalten Thermode, nicht aber von der Meniskusform an der warmen Thermode abhängt.

## 4.6 Oberflächenoszillationen im Czochralski-Aufbau

HINTZ [Hintz99] berichtet von der Beobachtung sehr ähnlichen Oberflächenoszillationen, die im weiteren beschrieben werden. Der von ihm verwendete Aufbau ist ein Ringspalt mit großer Ähnlichkeit zu den bei der Kristallzüchtung im Czochralski-Verfahren eingesetzten.

In einem zylinderförmigen Tiegel aus Saphir (die Transparenz erlaubt optische Beobachtung) befindet sich Silikonöl AK0.65. Der Durchmesser des Tiegels beträgt 40 mm. Der Tiegel ist oben offen, so daß sich eine freie Oberfläche mit einer Flüssigkeit-Gas-Grenzschicht bildet; ein angebrachter Deckel verhindert die Verdunstung von Silikonöl.

Der Tiegel wird in einem Wasserbad geheizt, so daß die Wände warme Thermoden bilden. Als kalte Thermode wird von oben ein gekühlter Kupferstab mit verschiedenen Durchmessern (der *Kristall-Dummy*) auf die Oberfläche des Silikonöls abgesenkt.

Wichtig für den Vergleich mit dem Aufbau in dieser Arbeit ist:

- Der Kontaktwinkel zwischen Flüssigkeitsoberfläche und Wand ist der natürliche Benetzungswinkel. Es existieren keine Benetzungssperren.
- Je nachdem, wie weit die kalte Thermode nach dem Kontakt mit dem Fluid wieder nach oben gezogen wird, können unterschiedliche Menisken an der kalten Thermode hergestellt werden. Die Strecke  $h$ , um die der Kristalldummy nach oben gezogen wird, entspricht dem Einfluß der Unterfüllung der in dieser Arbeit verwendeten Küvette.

HINTZ charakterisiert die Oberflächenoszillationen als radialsymmetrische stehende Oberflächenwellen, deren halbe Wellenlänge ungefähr dem Abstand zwischen Kristall-Dummy und Gefäßwand entspricht und die eine Amplitude von bis zu 1 mm erreichen. Es handelt sich dabei um die Grundschwingung einer solchen rotationssymmetrischen Geometrie.

Das Auftreten dieser *Resonanten Oberflächenschwingung* (ROS) ist ebenfalls von  $h$  abhängig. HINTZ findet ein Einsetzen der Oszillationen bei  $h \sim 1,5$  mm. Das Amplitudenmaximum wird bei  $h \sim 1,65$  mm erreicht. Danach sinkt die Amplitude wieder bis  $h \sim 2,1 \dots 2,2$  mm.

Da sich im Experiment der Meniskus an der warmen Seitenwand nicht ändert, konnte HINTZ nachweisen, daß das Auftreten der ROS von der Meniskusform am Kristall-Dummy abhängt.

Durch den Austausch des Kristalldummies konnten Messungen der ROS bei verschiedenen Wellenlängen (16 mm, 13 mm und 11 mm) vorgenommen werden. Dabei zeigt sich keine Abhängigkeit der Oszillationsamplitude von der Wellenlänge, trotz deutlich unterschiedlicher Resonanzfrequenz der Schwingung. So ergibt sich für die größte beobachtete Wellenlänge eine Resonanzfrequenz von etwa 7 Hz, für die niedrigste jedoch etwa 8,5 Hz.

Bezüglich der Oszillationsfrequenz zeigt sich - wie aus den Untersuchungen in dieser Arbeit zu erwarten - ein Sinken der Frequenz mit zunehmendem  $h$ . Bei Einsatz eines Kristalldummies, der eine Wellenlänge von 16 mm erzeugt, verändert sich in einem Bereich, in dem  $h$  um  $\Delta h = 0,5$  mm verändert wird, die Frequenz der ROS um etwa 0,2 Hz. Dies entspricht den bereits in dieser Arbeit berichteten Erfahrungen. Ganz anders verhält sich die Oberflächenoszillation bei einer Wellenlänge von etwa 11 mm: Im gleichen Bereich sinkt die Oszillationsfrequenz von über 8,5 Hz auf fast 7 Hz und erreicht damit den gleichen Wert wie bei Einsatz des kleinsten Kristalldummies.

Bei dem Experiment traten innerhalb  $h \sim 1,5 \dots 1,8$  mm nur jeweils eine Oszillationsfrequenz, die der oben beschriebenen Schwingung zugeordnet werden kann auf. Jenseits dieser Unterfüllung werden auch andere Frequenzen gemessen. Insbesondere bei stark überhöhtem Meniskus bei dem sich unterhalb des Kristall-Dummies eine Einschnürung bildet, findet HINTZ eine Schwingung, deren halbe Wellenlänge gleich der doppelten Gefäßdimension - also mehr als das Doppelte der sonst beobachteten Wellenlänge - ist. Diese Schwingung entspricht einer ebenen stehenden Welle, deren Wellenfront senkrecht zu einer festen Azimutalrichtung steht. Diese Beobachtung ist insofern interessant, als daß hier der Kontaktwinkel zwischen Flüssigkeitsoberfläche und Kristall-Dummy negativ ist.

Die von HINTZ beobachteten ROS entsprechen in zwei wichtigen Punkten den Beobachtungen dieser Arbeit:

- Das Auftreten ist von der Meniskusform an der kalten Thermode abhängig. Dabei sind die notwendigen Kontaktwinkel ähnlich.
- In Teilen entspricht das Frequenzverhalten der ROS den gewonnenen Erfahrungen. Die ROS läßt sich ebenfalls als stehende Schwerewelle beschreiben und zeigt eine entsprechende Dispersion.

Gleichzeitig finden sich klare Unterschiede in der Ausprägung der Schwingungen:

- Die bereits weiter oben angesprochene starke Frequenzverschiebung bei niedrigen Wellenlängen wird in der rechteckigen Küvette nicht beobachtet, obwohl ähnliche Wellenlängen beobachtet wurden. Dieses Phänomen ist nicht mit dem Zuwachs der freien Oberfläche zu erklären.
- In der Czochralski-Geometrie treten weniger Schwingungsmoden auf als in der Küvette. Bis zu einer kritischen Unterfüllung tritt stets nur eine einzelne scharfe Frequenz auf. Dies ist verständlich, da durch die Rotationssymmetrie des Gefäßes existieren weniger mögliche Oszillationsmoden für die freie Oberfläche existieren.
- Die Amplitude der ROS ist offensichtlich unabhängig von der Resonanzfrequenz der Oberfläche. Dies steht im deutlichen Widerspruch zur Küvette, an der die Amplitude stellenweise sehr scharf mit der Frequenz der auftretenden Oberflächenoszillation zusammenhängt.
- Für das Auftreten der ROS wird kein Einsatzzpunkt bezüglich der angelegten Temperaturdifferenz beobachtet. Dagegen wird für die Küvette der Einsatzzpunkt für die Oberflächenoszillationen bei  $\Delta T_{\text{krit.}}^{n=1} \sim 14 \text{ K}$  gefunden. Dieser Unterschied ist sehr wichtig, da bei allen konvektiven Instabilitäten ein Einsatzzpunkt beobachtet wird, das heißt die Existenz eines Einsatzzpunktes ist entscheidend für die Frage, ob es sich bei der ROS um einen Effekt einer konvektiven Instabilität handelt. Die Aussage, daß kein Einsatzzpunkt beobachtet wird, muß jedoch relativiert werden. Auf der einen Seite wurde das Auftreten der Schwingung dadurch bestimmt, daß Reflexe auf der Oberfläche beobachtet wurden. Diese Methode ist sehr empfindlich, aber es liegen keine quantitativen Hinweise über die Amplitudenentwicklung vor. Wie bereits erwähnt, wird

die Flüssigkeitsoberfläche stets durch externe Störungen etwas zur Schwingung angeregt, so daß ein gewisser Untergrund unabhängig vom tatsächlichen Auftreten der ROS existiert. Damit ist eine präzise Bestimmung eines Einsatzpunktes fraglich. Andererseits gibt HINTZ an einer anderen Stelle an, daß die Temperaturdifferenz, ab der die ROS beobachtet werden kann von der mittleren Temperatur abhängt und erst jenseits von  $\Delta T = 4 \text{ K}$  beobachtbar sei.

Die Oberflächenoszillationen in der rechteckigen Küvette und die ROS im Saphir-Tiegel zeigen also starke phänomenologische Ähnlichkeit. Diese resultiert vor allem daher, daß es sich um oszillierende Flüssigkeitsoberflächen ähnlicher Dimension handelt. Gleichzeitig zeigen sich aber deutliche Unterschiede bei der Frage, unter welchen Parametern die Oszillationen auftreten. Es ist daher wahrscheinlich, daß der zugrundeliegende Anregungsmechanismus in beiden Experimenten unterschiedlicher Natur ist.

Interessant ist noch die von HINTZ gewonnene Dispersionsrelation der ROS

$$\frac{\lambda}{2} \approx 1,1 \cdot (R_{\text{Tiegel}} - R_{\text{Kristall}}),$$

wobei er  $\lambda$  aus der gemessenen Frequenz unter der Annahme einer Schwerewelle berechnet.

Wichtig ist dabei, daß

$$\frac{\lambda}{2} \approx 1,0 \cdot (R_{\text{Tiegel}} - R_{\text{Kristall}})$$

die Grundschiwingung einer freien Oberfläche ohne Randerscheinungen ist. HINTZ beobachtet also Wellenlängen, die einem *größeren* Gefäß entsprechen. Dies läßt sich dadurch erklären, daß die Flüssigkeitsoberfläche durch die Meniskusbildung länger ist, als die Gefäßdimension.

Die Beobachtung widerspricht den Überlegungen aus Kap. 2.11, nach denen eine kürzere Wellenlänge zu erwarten ist. Der Unterschied besteht darin, daß - wie weiter oben beschrieben - die Flüssigkeitsform an den Thermoden nicht durch eine Benetzungssperre festgelegt ist, d. h. die Dreiphasenlinie ist nicht "gepinnt". Der in Kap. 2.11 beschriebene kapillare Übergangsbereich existiert daher nicht.

Ein ähnlicher Effekt tritt wahrscheinlich auch bei der rechteckigen Küvette auf. Bei einer Unterfüllung von  $h \sim 1,8 \text{ mm}$  überschreitet der Kontaktwinkel den natürlichen Benetzungswinkel

und die Flüssigkeitsoberfläche löst sich von der Kontaktlinie, so daß sich die Flüssigkeitsoberfläche frei bewegen kann. Durch den so fehlenden Übergangsbereich vergrößert sich die Wellenlänge um etwa  $\lambda_{\text{kap}}/2$ , so daß bei einer geringen Änderung der Unterfüllung  $h$  die Resonanzfrequenz deutlich verschoben wird.

## 4.7 Zusammenfassung

Die von METZGER beobachteten Oberflächenoszillationen konnten bei leichter Unterfüllung der Küvette - also bei Bildung eines Meniskus an den Küvettenwänden - reproduziert werden.

Im Gegensatz zur Beschreibung von METZGER handelt es sich dabei um stehende Schwerewellen, die dem in Kap. 2.11 entwickelten Modell entsprechen. Die auftretenden Frequenzen liegen zwischen 4,5 Hz und 9 Hz.

Durch Variation der Küvettengeometrie konnten folgende Schwingungsmoden der Flüssigkeitsoberfläche identifiziert werden:

- $n=1$  - Grundschiwingung entlang der x-Achse,
- $m=2$  - erste Oberschiwingung entlang der y-Achse,
- $k=1, l=1$  - Grundschiwingung entlang der Küvettendiagonalen und
- $k=3, l=3$  - zweite Oberschiwingung entlang der Diagonalen.

Wahrscheinlich tritt auf:

- $k=2, l=1$  - Grundschiwingung mit Ausbreitungsrichtung  $45^\circ$  zur x-Achse und

Nicht beobachtet wurden:

- $m=1$  - Grundschiwingung entlang y-Achse und
- $k=2, l=2$  - erste Oberschiwingung entlang der Küvettendiagonalen.

Bei Variation der angelegten Temperaturdifferenz zeigen alle Oszillationsmoden einen bifurkationsartigen Amplitudenverlauf mit wurzelförmigen Abschnitten. Die Einsatzzpunkte

liegen unterhalb von  $\Delta T_{\text{krit.}} \sim 5 \text{ K}$ ; die Oszillationsamplituden liegen bei ca.  $10 \mu\text{m}$ .

Die Moden  $n=1$  und  $m=2$  besitzen eine annähernd gleiche Frequenz von ca.  $7 \text{ Hz}$ . Ihr Einsatzpunkt liegt mit  $\Delta T_{\text{krit.}}^{n=1/m=2} \sim 15 \text{ K}$  deutlich über dem Einsatzpunkt der restlichen Moden. Mode  $n=1$  erreicht eine Oszillationsamplitude von über  $0,4 \text{ mm}$  (zwischen Minimal- und Maximalwert der Auslenkung der Flüssigkeitsoberfläche).

Es konnte gezeigt werden, daß das Auftreten der Oberflächenoszillation von der Form der freien Flüssigkeitsoberfläche an der kalten Thermode abhängt.

Mit zunehmender Meniskusbildung entsteht zunächst die Oberflächenoszillation und erreicht ein Amplitudenmaximum. Bei weiter vergrößertem Meniskus geht die Amplitude erneut - stellenweise bis auf Null - zurück.

Durch verstärkte Randeffekte steigt dabei zunächst die Oszillationsfrequenz und sinkt dann bei zunehmendem Meniskus durch die Vergrößerung der schwingenden Oberfläche.

Die Amplitudenentwicklung der einzelnen Oszillationsmoden korreliert nicht untereinander. Eine Ausnahme bilden die frequenzähnlichen Moden  $n=1$  und  $m=2$ . Wird durch Geometrieänderung der Küvette diese Ähnlichkeit aufgehoben, bricht die Korrelation zusammen. Es zeigt sich eine starke Abhängigkeit der Amplitude von der Resonanzfrequenz.

Insgesamt kann vorläufig geschlossen werden, daß in diesem Experiment mehrere Anregungen für die Oberflächenoszillationen vorhanden sind. Betrachtet man die Amplitudenentwicklung bei zunehmendem  $\Delta T$ , so kann der Verlauf als wurzelförmig interpretiert werden. Ein solcher Verlauf wäre typisch für die bei hydrodynamischen Instabilitäten auftretenden Bifurkationen. Hydrodynamische Instabilitäten kommen also als mögliche Anregung der Oberflächenoszillationen in Betracht.

## 5. Instabilitäten im Meniskus

In diesem Kapitel werden ausführlich die erstmals in dieser Arbeit gefundenen hydrodynamischen Instabilitäten im Meniskusbereich an einer kalten Thermode diskutiert.

Dazu wird zunächst auf die thermischen Gegebenheiten im Meniskus als Grundlage der Überlegungen eingegangen. Dabei wird gezeigt, daß in den sehr kleinen Meniskusbereich ein relativ großer Energieeintrag erfolgt, der lokal dissipiert wird. Die Folge ist eine hohe Instabilität des Bereichs, der dadurch für die Bildung von Konvektionsstrukturen prädestiniert ist.

Um eine Vorhersage über die auftretenden Instabilitäten zu erhalten werden bekannte Beschreibungen aus anderen Arbeiten für die Gegebenheiten im Meniskus extrapoliert; Voraussagen über die wichtigsten Parameter (kritischer Temperaturgradient, Oszillationsfrequenzen) werden erstellt.

In den Kapiteln 5.2 und 5.3 werden Konvektionsstrukturen im Meniskus optisch nachgewiesen. Gleichzeitig wird ein Modell für die Entstehung der Strukturen erarbeitet.

Im weiteren Verlauf werden die auftretenden Instabilitäten systematisch charakterisiert. Es werden die Parameter kritische Temperaturdifferenz, Frequenzverhalten, Amplituden der Temperaturoszillation sowohl in der Flüssigkeit als auch an der Flüssigkeitsoberfläche und die Amplitude der dadurch ausgelösten Oberflächendeformationen gewonnen.

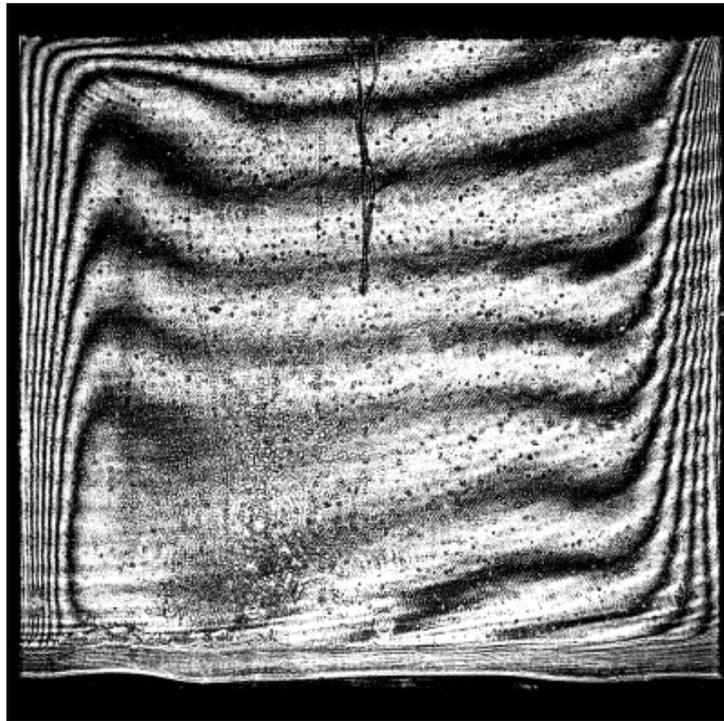
Die Betrachtung des Einflusses der Temperaturdifferenz (Kap. 5.5) zeigt ein für hydrodynamische Instabilitäten typisches Verhalten. Die auftretenden Strukturen werden mit bekannten Instabilitäten verglichen und in Anlehnung an diese beschrieben.

In Kapitel 5.6 wird der Einfluß der Meniskusform auf die Konvektionsstrukturen untersucht. Es wird eine gute Übereinstimmung mit dem in Kapitel 5.2 entworfenen Modell gefunden.

Kapitel 5.7 zeigt eine ähnliche Instabilität aus einer anderen Arbeit, Kap. 5.8 vergleicht die Ergebnisse mit einer numerischen Simulation.

## 5.1 Temperaturverteilung nahe der Thermode

Wie in Kap. 4.5 gezeigt, hängt das Auftreten der Oberflächenoszillationen mit der Form der freien Oberfläche an der kalten Thermode zusammen. Es ist deshalb sinnvoll, die thermischen Gegebenheiten in der Küvette, insbesondere im Meniskusbereich an der kalten Wand, näher zu betrachten.



**Abb. 5.1** Interferometrisch ermittelte Isothermen in der Küvette. Die heiße Seite der Küvette liegt links, die kalte rechts. Der Abstand zwischen den Isothermen beträgt etwa 0,08 K.

$\Delta T=1$  K,  $T_M=30$  °C,  $L=20$  mm,  $B=20$  mm,  $d=20$  mm. Nach [Dürr91].

Die folgenden Beschreibungen beziehen sich dabei auf Daten, die DÜRR [Dürr91] unter Anwendung holographischer Interferometrie an einer Küvette gewonnen hat, deren Geometrie sehr ähnlich zu der in dieser Arbeit verwendeten Küvette ist. Als Experimentierflüssigkeit wurde ebenfalls Ethanol eingesetzt.

Abb. 5.1 zeigt die Temperaturverteilung bei exakt gefüllter Küvette bei einer angelegten Temperaturdifferenz zwischen beiden Heizern von  $\Delta T=1,0$  K. Alle im weiteren Verlauf

gezeigten Temperaturverteilungen beziehen sich auf diese Temperaturdifferenz. Trotz des geringen  $\Delta T$  zeigen die Bilder qualitativ das Gleiche wie bei höheren Temperaturdifferenzen, lassen sich aber aufgrund der geringeren Isothermendichte leichter interpretieren.

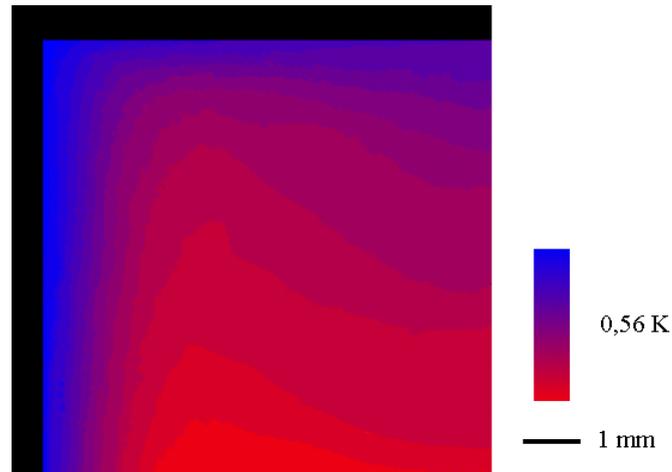
Man erkennt im Bild zwei verschiedene Bereiche: Einen Bereich mit weitgehend horizontalem Temperaturgradienten vor den beiden Thermoden und einen weiten Bereich in der Mitte der Küvette, in dem die Temperatur weitgehend vertikal geschichtet ist. Dies erklärt sich durch die Strömung der Experimentierflüssigkeit in der Küvette.

Im mittleren Bereich herrscht eine starke horizontale Strömung vor. Hier wird vorwiegend konvektiv Wärme von der heißen Wand in Richtung der kalten Wand transportiert.

In der Nähe der beiden Thermoden verläuft die Strömung weitgehend vertikal. Während die Strömung an der Wand entlangläuft gibt sie Wärme an die Wand ab bzw. nimmt Wärme auf. Dieser Wärmeaustausch erfolgt weitgehend diffusiv und es bildet sich ein horizontaler Temperaturgradient. Dieser Bereich entspricht der thermischen Grenzschicht.

Im Übergangsbereich zwischen horizontalen und vertikalen Isothermen erkennt man eine *Ausbeulung* der Isothermen (nahe der heißen Wand nach oben, nahe der kalten Wand nach unten), das heißt man findet ein lokales Temperaturminimum bzw. -maximum. In diesem Bereich herrscht noch konvektiver Wärmetransport vor. Die Strömung verläuft jedoch bereits vertikal, so daß kalte Flüssigkeit nahe der heißen Wand nach oben gedrückt wird bzw. warme Flüssigkeit nahe der kalten Wand nach unten. Dieser Effekt tritt vor allem im Flüssigkeitsvolumen auf. In der Nähe der freien Oberfläche und damit im interessanten Meniskusbereich werden lokale Temperaturmaxima nicht gefunden.

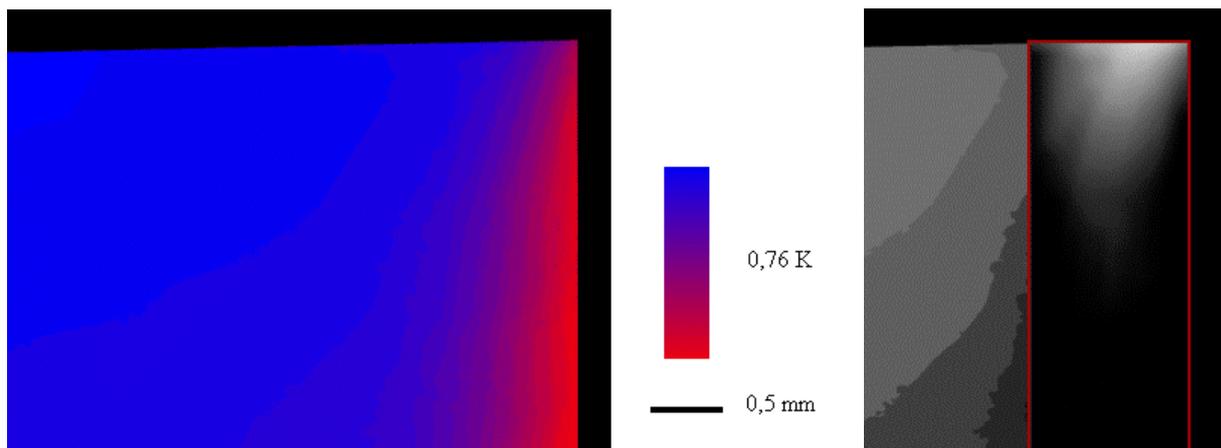
Sehr nahe an der freien Oberfläche erkennt man, daß sich die Isothermen entgegen der Stromrichtung zurückbiegen, das heißt daß die Oberflächentemperatur etwas geringer ist als die Temperatur etwa 0,1 mm tiefer. Diese Temperaturdifferenz entsteht wahrscheinlich durch Kühlung der Oberfläche infolge Verdunstung oder durch Ankopplung an die etwa 10 K kältere Umgebungsluft.



**Abb. 5.2** Temperaturverteilung nahe der heißen Wand.

$\Delta T=1$  K,  $T_M=30$  °C,  $L=20$  mm,  $B=20$  mm,  $d=20$  mm. Nach [Dürr91].

Abb. 5.2 zeigt die Temperaturverteilung im Kontaktbereich zwischen freier Oberfläche und heißer Thermode. Von unten kommende Flüssigkeit wird beim Aufsteigen durch Diffusion erwärmt. An der Oberfläche wird die Flüssigkeit stark horizontal beschleunigt; die Wärme wird nahe der freien Oberfläche konvektiv in horizontaler Richtung transportiert. Da dieser Transport erheblich schneller ist, als der diffusive Wärmetransport wird das Temperaturfeld in der Nähe der Oberfläche auseinandergezogen.



**Abb. 5.3** Temperaturverlauf nahe der kalten Wand.

$\Delta T=1$  K,  $T_M=30$  °C,  $L=20$  mm,  $B=20$  mm,  $d=20$  mm. Nach [Dürr91].

Ein ganz anderes Verhalten zeigt sich in der Nähe der kalten Thermode (Abb. 5.3). Hier strömt heiße Flüssigkeit in der Nähe der freien Oberfläche horizontal gegen die kalte Thermode bevor

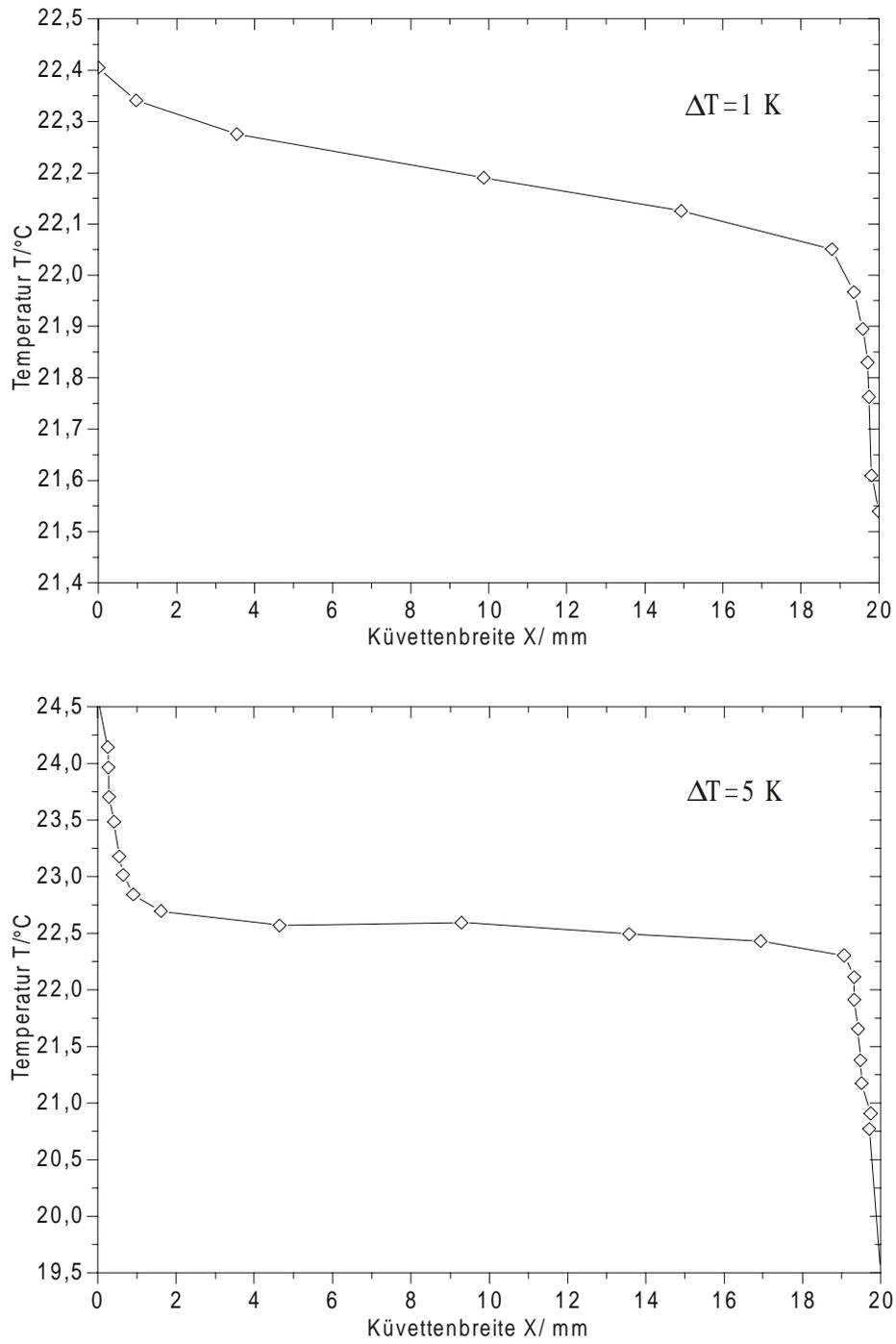
sie umgelenkt wird und vertikal nach unten fließt. In diesem Bereich dominiert also weiterhin der konvektive Wärmetransport, das heißt die kalte thermische Grenzschicht wird in der Nähe der Oberfläche zusammengedrückt.

Dadurch entsteht neben dem horizontalen Temperaturgradienten eine vertikale Schichtung: Die herangeströmte und noch heiße Flüssigkeit befindet sich über der bereits abgetauchten und durch die kalten Thermode abgekühlten Flüssigkeit. In Abb. 5.3 wurde im rot eingezeichneten Bereich ein linearer Temperaturgradient (ca. 0,5 K/mm) in horizontaler Richtung von der Temperaturverteilung abgezogen, so daß man den Temperaturgradienten in vertikaler Richtung erkennt.

Abb. 5.4 zeigt die Temperatur nahe an der Flüssigkeitsoberfläche für  $\Delta T=1$  K und  $\Delta T=5$  K. Die Temperatur sinkt zunächst nahe an der heißen Wand linear und relativ stark. Dies ist die thermische Grenzschicht an der heißen Wand. Daran schließt sich ein Gebiet mit einem nur schwachen Temperaturabfall an, in dem konvektiver Wärmetransport vorherrscht. In der thermischen Grenzschicht nahe der kalten Wand sinkt die Temperatur stark und linear.

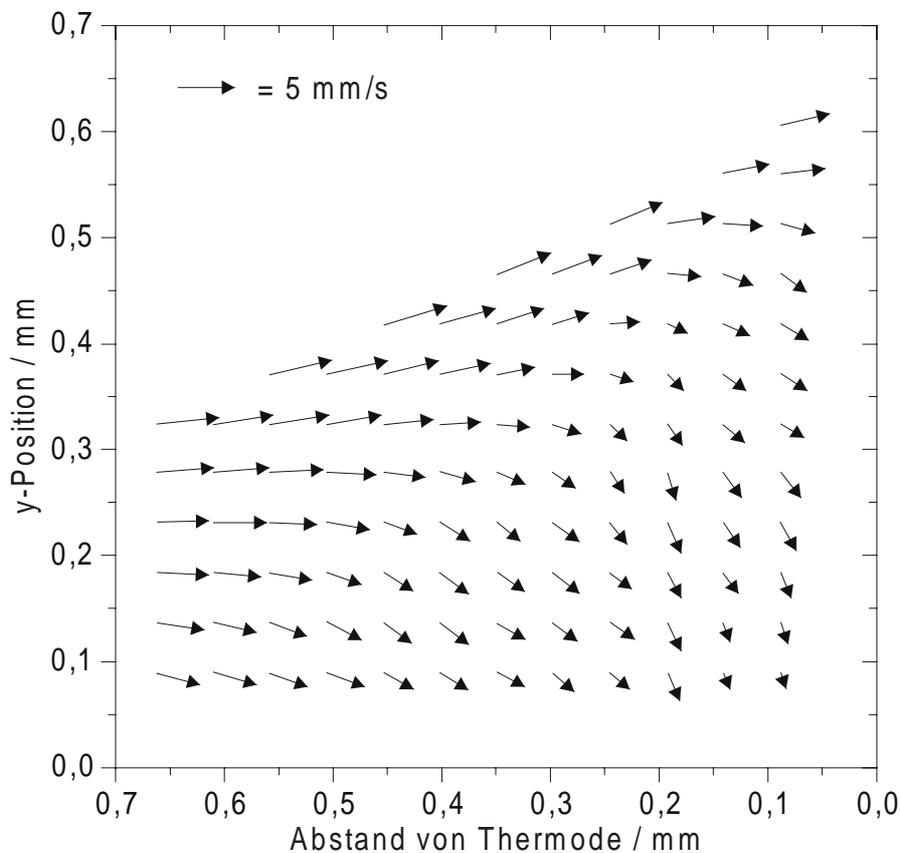
Wichtig ist dabei, daß die größten Temperaturgradienten in beiden Grenzschichten zu finden sind. Schon bei  $\Delta T=1$  K fallen 50% der Temperaturdifferenz in der Grenzschichten an der kalten Thermode und 10% in der Grenzschicht an der warmen Thermode ab. Bei steigender Temperaturdifferenz nimmt dieser Effekt weiter zu. So entfallen bei  $\Delta T=5$  K 55% auf die Grenzschicht an der kalten Wand und 30% auf die Grenzschicht an der warmen Wand; bei  $\Delta T=10$  K sind es 70% und 20%.

Die aus der Messung von DÜRR gewonnene Beschreibung des Bereichs an der kalten Wand ähnelt den Ergebnissen der numerischen Arbeit von CANRIGHT [Canright94]. Neben der Ausbildung einer thermischen Grenzschicht findet CANRIGHT das Zusammendrücken der Isothermen nahe der Oberfläche. Der Temperaturgradient an der Oberfläche steigt mit abnehmendem Abstand von der kalten Wand; die Geschwindigkeit an der Oberfläche erreicht ein Maximum an einem Punkt kurz vor der kalten Wand.



**Abb. 5.4** Temperaturprofile an der freien Oberfläche.  
 $L=20 \text{ mm}$ ,  $B=20 \text{ mm}$ ,  $d=20 \text{ mm}$ . Nach [Dürr91].

Nahe der kalten Wand befindet sich also ein Bereich mit großen thermokapillaren Kräften die auf die Flüssigkeitsoberfläche wirken. Im Gegensatz zur heißen Wand sind diese direkt auf die kalte Wand gerichtet und haben trotz höherem Temperaturgradienten einen geringeren Anteil am Antrieb der globalen Konvektion in der Küvette. Statt dessen muß die eingebrachte Energie weitgehend lokal - durch viskose Kräfte bei der Umlenkung der Stromrichtung und bei Wechselwirkungen mit der Wand - dissipiert werden. Das Gebiet muß als instabil angesehen werden und ist prädestiniert für die Ausbildung von Konvektionsstrukturen.

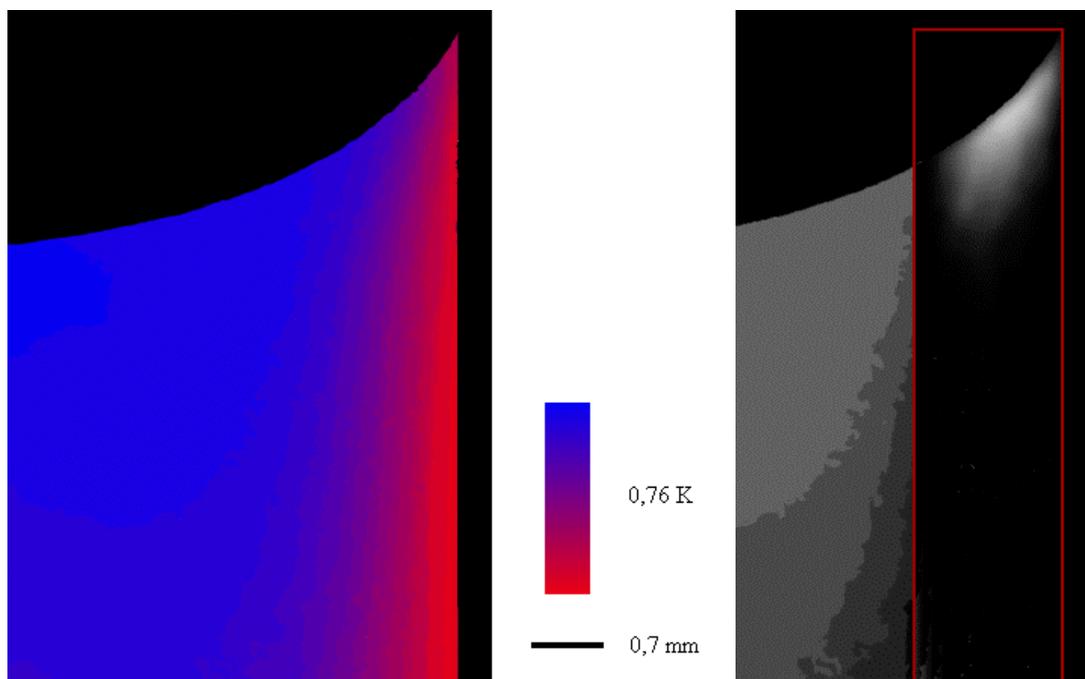


**Abb. 5.5** Strömungsfeld nahe der kalten Thermode. Das Temperaturfeld wurde durch Particle-Image-Velocimetry (PIV) [Raffel98, Benz00] aus Videobildern von Tracerspuren (vgl. Kap. 5.3) gewonnen. Die freie Oberfläche verläuft wenig oberhalb der obersten eingezeichneten Geschwindigkeitspfeile.

$\Delta T = 45,5 \text{ K}$ ,  $T_M = 20 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $L = 12 \text{ mm}$ ,  $B = 41 \text{ mm}$ ,  $h = 1,1 \text{ mm}$ .

Abb. 5.5 zeigt ein aus Tracerbildern gewonnenes Strömungsfeld nahe der kalten Thermode (Anm.: Der auf den Videobildern in Kap. 5.3 zu sehende Wirbel wird durch das PIV-System nicht aufgelöst und ist daher im Strömungsfeld nicht zu erkennen). Man erkennt, wie die

Strömung zunächst der Oberflächenform folgt und dann vertikal nach unten abgelenkt wird. Durch viskose Wechselwirkung mit der Thermode wird dabei die Strömungsgeschwindigkeit verringert. Dabei folgt die Strömung um so länger der Oberflächenform, je näher sie sich an der Oberfläche befindet. Gut zu sehen ist, daß die größten Geschwindigkeiten an der freien Oberfläche erreicht werden; etwa 5 mm/s. Man erkennt ebenfalls, daß aufgrund des starken thermokapillaren Antriebs trotz Wandwechselwirkung die oberflächennahe Strömung wesentlich weniger abgebremst wird als tieferliegende Strömungsanteile. Für die Strömung nahe der freien Oberfläche wird keine oder eine nur sehr geringe Geschwindigkeitsabnahme gemessen.



**Abb. 5.6** Temperaturverteilung bei Meniskusbildung an der kalten Wand.  
 $\Delta T=1$  K,  $T_M=30$  °C,  $L=20$  mm,  $B=20$  mm,  $d=20$  mm. Nach [Dürr91].

Abb. 5.6 zeigt das Temperaturfeld nahe der kalten Thermode wenn durch Unterfüllung der Küvette ein Meniskus hervorgerufen wird. In der rechten Abbildung wurde wieder im rot gezeichneten Bereich ein linearer horizontaler Temperaturgradient (ca. 0,5 K/mm) vom Temperaturfeld abgezogen.

Beim Vergleich mit Abb. 5.4 zeigen sich keine gravierenden Unterschiede. Die Stauchung der thermischen Grenzschicht ist nahe der Oberfläche nicht so stark wie bei exakt gefüllter Küvette. Bei Einströmen der Flüssigkeit in den Meniskusbereich erweitert sich der Strömungsquerschnitt. Entsprechend ist nach der Kontinuitätsgleichung eine geringere Strömungsgeschwindigkeit und

damit ein gegenüber der flachen Geometrie größerer Einfluß von Diffusion zu erwarten. Entsprechend der vergrößerten Grenzschicht ist die Oberflächentemperatur im Bereich vor dem Meniskus um etwa 0,1 K ( $=1/10 \Delta T$ ) niedriger als bei flacher Geometrie.

Modellrechnungen von SHETSOVA für einen Flüssigkeitszylinder ohne Gravitationseinfluß zeigen ebenfalls eine Verringerung des Temperaturgradienten an der freien Oberfläche bei leichter Unterfüllung [Kuhlmann96].

Betrachtet man einen vertikalen Temperaturschnitt nahe der kalten Wand, findet man ein lokales Temperaturmaximum knapp unterhalb der Flüssigkeitsoberfläche in der Nähe der obersten Spitze des Meniskus. Das heißt, in der obersten Spitze des Meniskus ist es kälter als in den Flüssigkeitsschichten darunter. Dies kann darauf hindeuten, daß dort nur geringe Strömungsgeschwindigkeiten herrschen. Wahrscheinlicher ist jedoch die Kühlung dieses Gebietes durch die Flüssigkeit/Gas-Grenzfläche.

Aus den Rechnungen von SHEVTSOVA kann man erkennen, daß im Fall der Unterfüllung eines Flüssigkeitszylinders die Stromlinien nicht so weit in die Ecken vordringen. Die Strömungsgeschwindigkeit im Kontaktbereich zwischen freier Oberfläche und Thermode sinkt.

Die Ausbildung des Meniskus wirkt sich also nicht stark auf die Temperaturverteilung in der Küvette aus. Allerdings verändert sich die Geometrie der freien Oberfläche und die Geometrie des betrachteten Flüssigkeitsvolumens insbesondere im Kontaktbereich zwischen kalter Thermode und freier Oberfläche.

In Abb. 5.5 kann man gut erkennen, daß sich ein räumlich separiertes Gebiet im Meniskus ausbildet, das eine keilförmige Struktur hat. Es wird an seinen Seiten durch drei unterschiedliche Effekte begrenzt:

- Zur rechten Seite wird es durch die kalte Wand begrenzt.
- Nach oben und zur linken Seite wird es durch die Einschnürung des Meniskus begrenzt. Hinzu kommt das lokale Temperaturmaximum vor dem Meniskus.
- Nach unten wird es durch den Übergang zwischen im Meniskus vorhandener (relativ) warmer Flüssigkeit zu (relativ) kalter Flüssigkeit in der thermischen Grenzschicht begrenzt.

Es handelt sich beim Meniskusbereich um ein räumlich und thermisch vom Restvolumen separiertes Gebiet in dem ein starker thermokapillarer Antrieb existiert. Die Gegebenheiten ähneln dabei der Konvektion in einer dünnen Schicht mit einer Länge von etwa 1,2 mm und einer Schichtdicke von etwa 0,6 mm. Wie oben erklärt findet man in diesem Bereich einen größeren Temperaturgradienten an der freien Oberfläche als im gesamten restlichen Bereich, der die Strömung im Restvolumen antreibt.

Zu dünnen Schichten wurden unter anderem von MÖLLER [Möller86], SCHNEIDER [Schneider95] und METZGER [Metzger94] Untersuchungen vorgenommen aus denen sich Einsatzpunkte und kritische Frequenzen oszillatorischer Marangonikonvektion bei einer Schichtdicke von  $d=0,6$  mm extrapolieren lassen.

Die Messungen von METZGER wurden in der gleichen Küvette, die in dieser Arbeit verwendet wurde, durchgeführt. Anstelle eines Seitenverhältnisses von  $A=1$  wurde der Boden so eingestellt, daß dünne Flüssigkeitsschichten bis  $d=1,5$  mm entstehen. Werte für  $d=0,6$  mm wurden aus diesen Daten geschätzt. Die Daten von MÖLLER SCHNEIDER wurden in einem Ringspalt mit einer Spaltbreite von 40 mm bei Schichtdicken bis minimal  $d=1,0$  mm aufgenommen. Experimentierflüssigkeit war in allen Fällen Ethanol.

	$Ma_{krit.}$		$\nu_{krit.}$	
	Hydrothermal- welle	Oberflächen- welle	Hydrothermal- welle	Oberflächen- welle
METZGER	8534±2500 (*)		1,5±0,5 Hz (*)	
MÖLLER	16396±2000	24258±2000 (*)	1,67±0,1 Hz	7,1±0,5 Hz (*)
SCHNEIDER	420	1000 (*)	3,4±1 Hz (*)	3 Hz (*)

**Abb. 5.7** Einsatzpunkte  $Ma_{krit.}$  und kritische Frequenzen  $\nu_{krit.}$  für oszillatorische Marangonikonvektion bei dünnen Schichten mit  $d=0,6$  mm. Die mit (\*) gekennzeichneten Werte sind aus den präsentierten Datensätzen extrapoliert.

Bei allen Experimenten tritt zunächst die Mehrfachrollenstruktur auf. Bei Überschreitung einer kritischen Marangonizahl findet ein Übergang zu einer oszillatorischen Marangonikonvektion

statt. MÖLLER und SCHNEIDER unterscheiden dabei zwischen hydrothermalen Welle und Oberflächenwellen.

METZGER und MÖLLER haben bei der Angabe der Marangonizahl eine Definition verwendet, in der die an den Thermoden angelegte Temperaturdifferenz  $\Delta T$  ausschlaggebend ist (vgl. Kap 2.1):

$$\text{Ma} = -\frac{d\sigma}{dT} \frac{1}{\eta\chi} \cdot d \cdot \Delta T.$$

SCHNEIDER benutzte als Definition

$$\text{Ma} = -\frac{d\sigma}{dT} \frac{1}{\eta\chi} \cdot \frac{d^2}{L} \cdot \Delta T$$

die zu wesentlich kleineren Marangonizahlen bei gleicher angelegter Temperaturdifferenz führt.

	$\text{Ma}_{\text{krit}}^{\text{korrigiert}}$		$\nu_{\text{krit.}}$	
	Hydrothermal- welle	Oberflächen- welle	Hydrothermal- welle	Oberflächen- welle
METZGER	853±250 (*)		1,5±0,5 Hz (*)	
MÖLLER	1639±200	2425±200 (*)	1,67±0,1 Hz	7,1±0,5 Hz (*)
SCHNEIDER	420	1000 (*)	3,4±1 Hz (*)	3 Hz (*)

**Abb. 5.8** Einsatzpunkte  $\text{Ma}_{\text{krit.}}$  und kritische Frequenzen  $\nu_{\text{krit.}}$  für oszillatorische Marangonikonvektion bei dünnen Schichten nach Korrektur aufgrund der Temperaturverteilung lt. DÜRR. Die mit (\*) gekennzeichneten Werte sind aus den präsentierten Datensätzen extrapoliert.

$d=0,6 \text{ mm}$

Wie bereits weiter oben gezeigt, trägt aber nur ein Teil der Temperaturdifferenz tatsächlich zum Antrieb bei. Es erscheint daher realistischer, die Definition der Marangonizahl, die sich am tatsächlichen (mittleren) Temperaturgradienten im Mittelbereich der Küvette orientiert, zu

verwenden:

$$\text{Ma} = - \frac{d\sigma}{dT} \frac{1}{\eta\chi} \cdot d \cdot L \cdot \frac{dT}{dx}.$$

Verwendet man diese Definition, so muß man - zusammen mit den Daten von DÜRR - davon ausgehen, daß bei den Experimenten von METZGER und MÖLLER der Temperaturgradient um etwa den Faktor 10 überschätzt wurde. Dies läuft darauf hinaus, daß Marangonzahlen, die zum Vergleich mit der Meniskusregion verwendet werden können, etwa einem Zehntel der angegebenen Marangonzahlen entsprechen.

PREISSER [Preisser83] und VELTEN [Velten88] haben jeweils Experimente an  $\text{NaNO}_3$ -Floating-Zones durchgeführt. Durch die geringen Dimensionen (Zonenradius minimal 2 mm, Zonenlänge minimal 1,2 mm) können auch diese zum Vergleich mit der Meniskusregion verwendet werden. Dabei ist insbesondere eine bessere Einschätzung der kritischen Frequenz zu erwarten. Im Gegensatz zu Küvette und Ringspalt wird bei den Experimenten mit Floating-Zones nicht die Schichtdicke  $d$  sondern die Zonenlänge  $L$  variiert. Daher liegt bei kleinen Dimensionen das Seitenverhältnis von Küvette und Ringspalt unter 1, wie es den Gegebenheiten im Meniskusbereich entspricht ( $A \sim 0,25..0,5$ ). Bei einer Floating-Zone erreicht man dies nur für relativ große Dimensionen; ansonsten ist  $A > 1$ . Für den Vergleich mit der Meniskusregion wird daher ein Mittel aus Schichtdicke und Länge des Meniskus verwendet ( $L=0,9$  mm).

	$\text{Ma}_{\text{krit}}$	$\nu_{\text{c}}$
PREISSER	$6500 \pm 1000$ (*)	5 Hz (*)
VELTEN	$1165 \pm 500$ (*)	$6,4 \pm 0,5$ Hz (*)

**Abb. 5.9** Einsatzpunkt  $\text{Ma}_{\text{krit}}$  und kritischen Frequenzen  $\nu_{\text{krit}}$  für  $\text{NaNO}_3$ -Floating-Zones. Die mit (\*) gekennzeichneten Werte sind aus den präsentierten Datensätzen extrapoliert.  
 $L=0,9$  mm

Für die Floating-Zones wird nicht zwischen hydrothormaler Welle und Oberflächenwelle unterschieden; es handelt sich bei den kritischen Marangonzahlen um Werte für das Einsetzen von Temperaturoszillationen; wahrscheinlich von hydrothermalen Wellen.

Geht man von einer wie oben beschriebenen Temperaturverteilung in der Küvette aus, so kann man den Temperaturgradienten im Meniskusbereich angeben als:

$$\frac{dT}{dx} \approx c_{\text{korrektur}} \frac{\Delta T}{l},$$

mit  $l$  der Ausdehnung in  $x$ -Richtung des separierten Gebiets,  $\Delta T$  der angelegten Temperaturdifferenz und  $c_{\text{korrektur}}$  einem Korrekturfaktor, der angibt, welcher Bruchteil der angelegten Temperaturdifferenz in der thermischen Grenzschicht abfällt. Nach den obigen Überlegungen beträgt er

$$c_{\text{korrektur}}^{5 \text{ K}} = 0,55 \text{ für } \Delta T = 5 \text{ K und}$$

$$c_{\text{korrektur}}^{10 \text{ K}} = 0,7 \text{ für } \Delta T = 10 \text{ K.}$$

Abb. 5.10 zeigt die in Temperaturdifferenzen umgerechneten Einsatzpunkte.

	$\Delta T_{\text{krit.}}$		$\nu_{\text{krit.}}$	
	Hydrothermal- welle	Oberflächen- welle	Hydrothermal- welle	Oberflächen- welle
METZGER	3±1 K (*)		1,5±0,5 Hz (*)	
MÖLLER	5,7±0,7 K	8,5±0,7 K (*)	1,67±0,1 Hz	7,1±0,5 Hz (*)
SCHNEIDER	1,5 K	3,5±1 K (*)	3,4±1 Hz (*)	3 Hz
PREISSER	18±3 K (*)		5 Hz (*)	
VELTEN	4,1±1,7 K (*)		6,4±0,5 Hz (*)	

**Abb. 5.10** Einsatzpunkte  $\Delta T_{\text{krit.}}$  und kritische Frequenzen  $\nu_{\text{krit.}}$  für oszillatorische Marangonikonvektion bei dünnen Schichten nach Korrektur aufgrund der Temperaturverteilung lt. DÜRR. Die mit (\*) gekennzeichneten Werte sind aus den präsentierten Datensätzen extrapoliert.

$d=0,6 \text{ mm}$

Die Daten präsentieren sich sowohl in Einsatzpunkt als auch in Frequenz uneinheitlich. Insbesondere fällt der von PREISSER gemessene Wert für eine  $\text{NaNO}_3$ -Zone heraus. Betrachtet

man die restlichen Werte, wird man das Einsetzen von Oszillationen in Form von thermischen Wellen zwischen  $\Delta T=1,5$  K und  $\Delta T=6$  K erwarten. Bei weiter erhöhtem Temperaturgradienten sind ab ca.  $\Delta T=4$  K auch Oberflächenwellen zu erwarten.

Bei der erwarteten Frequenz ergeben sich naturgemäß deutliche Unterschiede zwischen den Experimenten an dünnen Schichten und an Floating-Zones. Da es sich bei den Werten um die kritischen Frequenzen handelt - also die Frequenzen, die beim Eintreten von Oszillationen gemessen wurden - orientieren sich diese bei Floating-Zones an der Spaltbreite. Daher erscheinen die Frequenzen aus den Floating-Zone-Experimenten, die näher bei  $A=1$  liegen, zuverlässiger. Das heißt, für thermische Wellen wird eine kritische Frequenz von um  $\nu_{\text{krit.}} \sim 5$  Hz erwartet. Die Experimente an dünnen Schichten zeigen, daß die kritischen Frequenzen von Oberflächenwellen etwa zwei- bis viermal so groß sind, also  $\nu_{\text{krit.}} \sim 10$  Hz bis  $\nu_{\text{krit.}} \sim 20$  Hz zu erwarten sind.

Interessant ist noch die Abschätzung, inwieweit im Meniskusgebiet thermische Konvektion eine Rolle spielt. Allgemein ist für derart kleine Gebiete für Ethanol ein dominierender Effekt der Thermokapillarität zu erwarten. Die Rayleighzahl berechnet sich dabei zu:

$$Ra = \frac{d\rho}{dT} \frac{g}{\nu\chi} \cdot d^2 \cdot \Delta T$$

$$Ra=340.$$

Das Verhältnis von Marangonizahl und Rayleighzahl beträgt

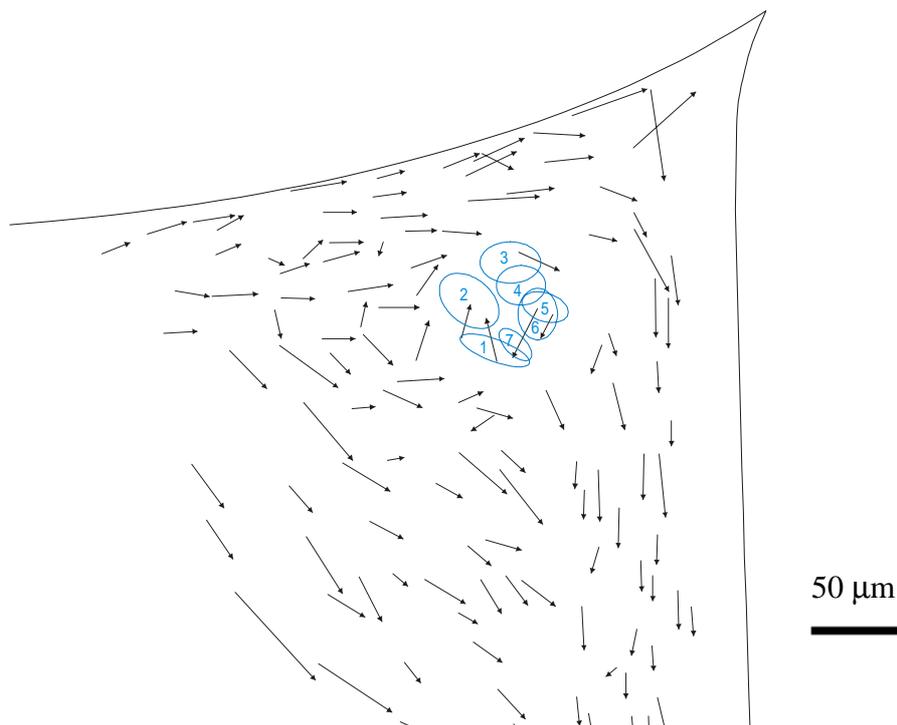
$$\frac{Ma}{Ra} \approx 5.$$

Das Gebiet unterliegt also vorwiegend thermokapillarem Regime, wobei Auftreibkräfte jedoch nicht zu vernachlässigen sind. Wie oben gezeigt, wird der Meniskusbereich nach unten durch einen Temperaturgradienten begrenzt. Insbesondere da hier niedrigere Strömungsgeschwindigkeiten zu erwarten sind, wird wahrscheinlich thermischer Auftrieb eine Rolle bei einer Separation des Gebietes spielen.

Beim Vergleich mit Experimenten an dünnen Schichten müssen zwei wichtige Unterschiede zum separierten Meniskusbereich beachtet werden. Im Gegensatz zur dünnen Schicht besitzt der Meniskusbereich eine stark gekrümmte Oberfläche. Dies bedeutet nicht nur, daß sich

Interaktionen zwischen thermokapillarer Strömung und Oberflächendeformation unterscheiden. Es bedeutet auch, daß die Höhe der Flüssigkeitsschicht stark vom Ort abhängig ist, daß also die Radien von sich bildenden Konvektionsrollen und damit die charakteristischen Wellenlängen von Instabilitäten innerhalb des Meniskusbereichs deutlich unterschiedlich sind. Es ist daher mit einer größeren Vielfalt auftretender Temperaturoszillationen, also mit einem breiten Frequenzspektrum zu rechnen. Der andere Unterschied besteht darin, daß der Bereich nicht, wie in Experimenten zu dünnen Schichten durch feste Seitenwände, sondern durch relativ weiche Grenzbedingungen ("flüssige Seitenwand") begrenzt ist. Dadurch ist ein größerer Parameterraum der Instabilitäten möglich, was zu einer Destabilisierung der Strömung führen sollte (die stabilisierende Wirkung der Seitenwände durch Modenselektion entfällt). Die Strömung sollte besser mit den Erwartungen für eine unendlich ausgedehnte dünne Schicht übereinstimmen.

## 5.2 Untersuchung mit Hochgeschwindigkeitskamera



**Abb. 5.11** Strömungsfeld im Meniskusbereich.

$\Delta T = 45,5 \text{ K}$ ,  $T_M = 20,0 \text{ °C}$ ,  $L = 20 \text{ mm}$ ,  $B = 41 \text{ mm}$ ,  $h \sim 0,7 \text{ mm}$ .

Um die Vermutung, daß sich im Meniskusbereich ein eigenständiges Strömungsgebiet und damit wenigstens eine Konvektionsrolle separiert, wurde der Meniskusbereich mit Lichtschnitt und

einer Hochgeschwindigkeitskamera, die mit 16 mm Filmmaterial arbeitet, beobachtet. Dabei konnte aufgrund der begrenzten Belichtung des Gebiets eine Bildrate von 100 Hz erreicht werden. Fordert man eine Abbildung von ca. 10 Bildern pro Schwingung, so beträgt diese Bildrate das 1,4-fache der für eine 7 Hz-Schwingung benötigten.

Gearbeitet wurde bei einer angelegten Temperaturdifferenz von  $\Delta T = 45,5$  K mit kontinuierlich sinkendem Flüssigkeitsspiegel, also kontinuierlich zunehmender Unterfüllung  $h$ . Die Filmaufnahmen wurden durchgeführt, nachdem die Oberflächenoszillation eingesetzt hat.

Zusammen mit der oszillierenden Oberfläche bewegen sich auch die Tracer im Bereich nahe der Oberfläche während der Oberflächenschwingung auf und ab, was die Erfassung des Strömungsbildes erschwert. Je weiter Tracerteilchen von der Oberfläche entfernt sind, desto weniger unterliegen sie dieser Bewegung. Die einzelnen Bilder des aufgenommenen Films wurden daher zunächst auf Papier übertragen und die beschriebene Zusatzbewegung entzerrt. Dadurch zeigt jedes Bild die Tracerbewegung (weitgehend) ohne Überlagerung durch die Oberflächenschwingung, und es kann die Bewegung einzelner Tracer verfolgt werden.

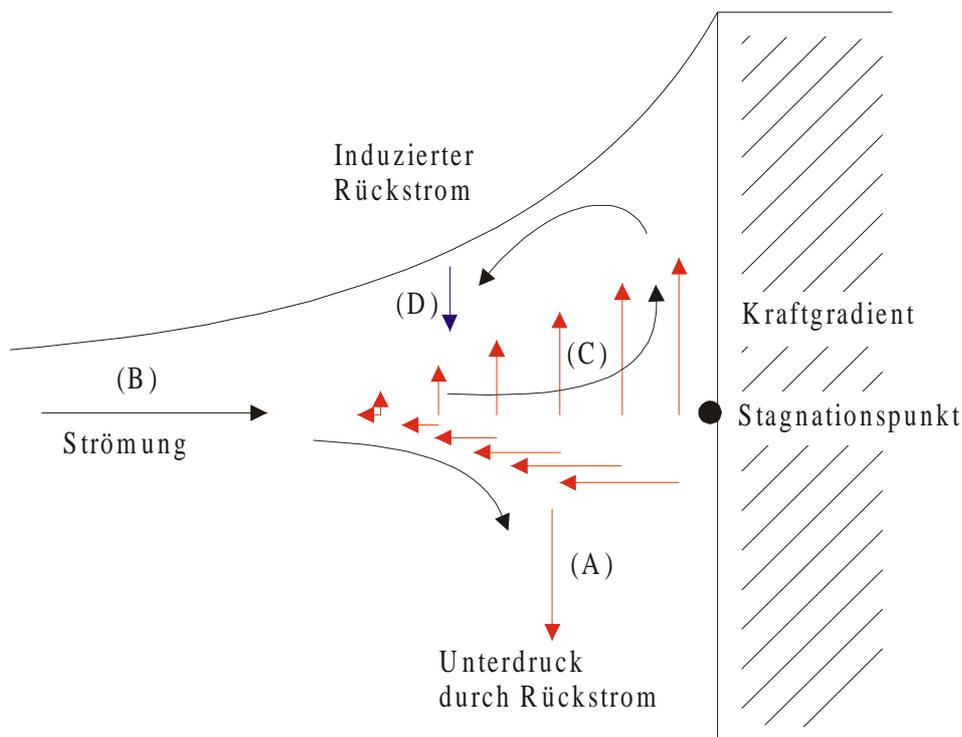
Abb. 5.11. zeigt das so gewonnene Strömungsfeld des Meniskusbereichs an der kalten Wand bei einer Unterfüllung von  $h \sim 0,7$  mm. Man erkennt die von der heißen Seite heranströmende Flüssigkeit. Der größte Teil der Flüssigkeit, der relativ weit von der Oberfläche entfernt ist, wird abgelenkt und fließt nach unten ab. Dieser Teil gehört noch zur Hauptströmung in der Küvette.

Flüssigkeit nahe der Oberfläche folgt dieser weiter. Man erkennt, daß sie durch den starken Temperaturgradienten nahe der kalten Wand weiter beschleunigt wird. Dieser Teil der Flüssigkeit wird erst nahe der kalten Wand abgelenkt, um nach unten abzufließen. Wie zu erwarten ist die Stromgeschwindigkeit nahe der kalten Wand durch Wechselwirkung mit der Wand geringer als weiter von der Wand entfernt.

Im Bereich zwischen diesen Teilen des Stroms bildet sich ein Gebiet geringerer Strömungsgeschwindigkeiten in dem auch dem Hauptstrom entgegengesetzte Tracerbewegungen gefunden werden. Offensichtlich hat sich hier ein Wirbelzentrum separiert.

Zusätzlich ist in Abb. 5.11 die Bewegung eines Tracers eingezeichnet, der über 7 Bilder verfolgt werden konnte und der offensichtlich nahe dem Wirbelzentrum um dieses kreist. Die Auszählung ergibt dabei eine Umlaufzeit von  $\tau = 80 \pm 20$  ms, also eine Umlauffrequenz von etwa

$\nu=12\pm 3$  Hz. Dabei ist zu beachten, daß sich der Tracer nahe am Wirbelzentrum befindet, also eine hohe Umlauffrequenz besitzt.



**Abb. 5.12** Im Meniskus auftretende Druckgradienten.

Das Strömungsfeld in Abb. 5.5 zeigt keine gegeneinander gleitenden Flüssigkeitsschichten, so daß - im Gegensatz zur heißen Thermode - nicht mit großen Scherkräften im Meniskusbereich an der kalten Thermode zu rechnen ist. Ein HELMHOLZscher Mechanismus, wie ihn SCHNEIDER [Schneider95] für die stationäre Mehrfachrollenstruktur vermutet, ist daher unwahrscheinlich. Für unendlich ausgedehnte dünne Flüssigkeitsschichten treten bei linearer Stabilitätsanalyse [Parmentier93] keine Mehrfachrollenstrukturen auf. Der offensichtlich benötigte Einfluß von Seitenwänden ist bei dem gefundenen Wirbel jedoch nicht in dieser Form vorhanden. Es bietet sich daher ein anderer Separationsmechanismus an.

Abb. 5.12 zeigt zunächst die wichtigsten Kräfte (Druckgradienten) im Meniskusbereich unter der Annahme, daß weder Auftrieb noch Thermokapillarität existierten. Wichtig ist zunächst der

Unterdruck (A), der durch den *return-flow* in der Küvette erzeugt wird. Er beschleunigt die horizontal anströmende Flüssigkeit (B) nach unten und lenkt sie dadurch in den Rückstrom.

Gleichzeitig erweitert sich die Dimension des Flüssigkeitsvolumens durch die Form des Meniskus. Aus Kontinuitätsgründen entsteht ein Beschleunigungsfeld (C), das die Flüssigkeit sowohl nach oben ablenkt als auch horizontal abbremst. Da die Meniskusform überlinear (annähernd exponentiell) verläuft, ist dieses Beschleunigungsfeld nicht konstant sondern nimmt (über)linear mit abnehmender Distanz von der kalten Wand zu.

Die stärkste Strömungsgeschwindigkeit entsteht direkt an der kalten Wand, sofern Wandwechselwirkungen vernachlässigt werden. Durch viskose Bremskräfte in Wandnähe wird der Punkt höchster vertikaler Geschwindigkeit etwas von der Wand entfernt sein; dies ist aber für den Mechanismus irrelevant.

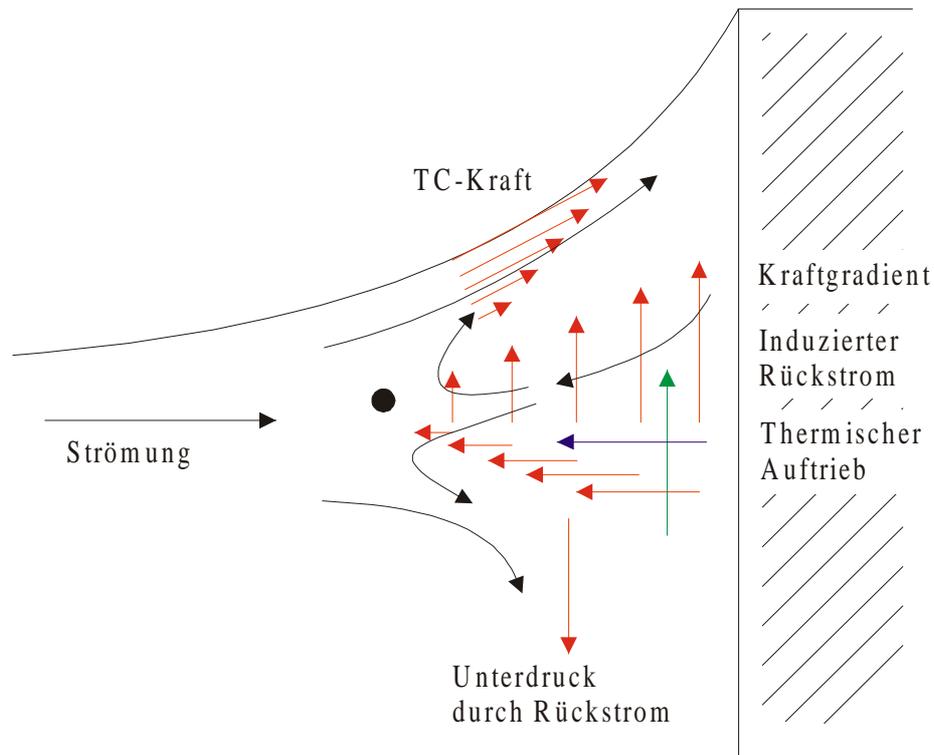
Da das Flüssigkeitsvolumen konstant ist, muß diese nach oben gerichtete Strömung durch einen vertikal nach unten gerichteten Rückstrom (D) weiter von der Wand entfernt kompensiert werden. Auf diese Weise separiert sich im Bereich des Meniskus ein Wirbel, dessen Drehsinn dem *return-flow* entgegengerichtet ist.

Anders stellt sich die Situation dar, wenn im Meniskusbereich zusätzlich eine thermokapillare Antrieb herrscht (Abb. 5.13). Die Flüssigkeit wird an der Oberfläche durch thermokapillare Kräfte des vorhandenen Temperaturgradienten tangential zur Oberfläche beschleunigt. Diese Beschleunigung hat also sowohl eine vertikal nach oben als auch eine horizontal auf die kalte Wand gerichtete Komponente. Auch tieferliegende Flüssigkeitsschichten werden durch viskose Kräfte entlang der Oberfläche beschleunigt, wobei diese Beschleunigung mit zunehmendem Abstand von der Oberfläche geringer wird.

Gleichzeitig wirkt weiterhin der Unterdruck durch den *return-flow* und beschleunigt Flüssigkeit vertikal nach unten. Ab einem gewissen Abstand von der Oberfläche wird dieser Effekt die vertikale Kraftkomponente der Marangonikraft übersteigen, das heißt die Flüssigkeitsströmung teilt sich: Nahe der Oberfläche folgt sie deren Form und wird weiter beschleunigt, entfernt von der Oberfläche wird sie nach unten abgelenkt und speist den Rückstrom der Küvette.

Wie oben bereits festgestellt muß aber durch den Diffusoreffekt des Meniskus die Flüssigkeit im Meniskusbereich effektiv in horizontaler Richtung *langsamer* werden. Um diese Bedingung trotz zunehmender Horizontalgeschwindigkeit entlang der Oberfläche zu erfüllen, muß dieser Strom durch einen Rückstrom von der kalten Wand kompensiert werden. Dies könnte z. B. durch einen

verstärkten Rückstrom am Küvettenboden passieren, so daß der Marangonieffekt im Meniskusbereich zusätzlich die Hauptströmung in der Küvette antreiben würde. In diesem Fall käme es zu keiner Separation einer Konvektionsrolle im Meniskus.



**Abb. 5.13** Entstehung der Konvektionsrolle im Meniskus.

Vermutlich spielen auch Auftriebskräfte bei der Separation eine Rolle. Wie im vorangegangenen Kapitel gezeigt, existiert nahe der kalten Wand ein vertikaler Temperaturgradient, in dem stabil warme über kalter Flüssigkeit geschichtet ist. Fließt nun Flüssigkeit, die mit relativ hoher Geschwindigkeit der Oberfläche gefolgt ist, entlang der kalten Wand nach unten, ist sie noch relativ warm. Trifft sie auf die kälteren Flüssigkeitsschichten, bilden sich thermische Auftriebskräfte. Diese sind um so stärker, je größer die thermokalillare Konvektion im Meniskus ist, da sich mit zunehmender Stromgeschwindigkeit die abtauchende Flüssigkeit weniger abkühlt.

Gleichzeitig existiert durch die thermische Grenzschicht ein horizontaler Temperaturgradient. Energetisch günstig ist für die Flüssigkeit ein Weg, der senkrecht zum effektiven Temperaturgradienten schräg nach unten und von der Wand weg führt. Diese Strömung dient zur Kompensation der beschleunigten Strömung entlang der Oberfläche.

Im weiteren Verlauf trifft der Rückstrom auf die ursprüngliche horizontale Strömung. Dabei bildet sich ein sehr labiler Stagnationspunkt, bei dem relativ kalte Flüssigkeit auf heiße Flüssigkeit trifft (etwa in dieser Gegend liegt auch der *heiße Finger*, ein lokales Temperaturmaximum). Dieser Bereich sollte eine Quelle thermischer Störungen sein und ist im Strömungsfeld gut zu erkennen.

Für diese Strömung gilt das gleiche wie für die ursprünglich horizontale Strömung, auf die sie nun trifft. Durch Unterdruck des Rückstroms des Hauptwirbels und durch thermischen Abtrieb wird ein Teil der Flüssigkeit nach unten abgelenkt um sich dem Hauptwirbel anzuschließen. Der Teil, der näher an der Oberfläche folgenden Flüssigkeit liegt, wird nach oben beschleunigt und schließt den Wirbel im Meniskus.

Die Bildung des Wirbels ist demnach auch davon abhängig, ob der vertikale Temperaturgradient den Rückstrom oberhalb oder unterhalb der ursprünglichen horizontalen Strömung leitet. Entsprechend bildet sich der Stagnationspunkt dort, wo die gekrümmt verlaufenden Isothermen der thermischen Grenzschicht auf die noch weitgehend von der Oberflächenform unbeeinflusste Hauptströmung treffen. Dieser Punkt entfernt sich mit zunehmender Unterfüllung von der kalten Wand. Bei exakt gefüllter Küvette kann es daher zu keinem separierten Wirbel kommen; mit zunehmender Unterfüllung wird die Konvektionsrolle größer und liegt in der Größenordnung des Meniskusbereichs.

### 5.3 Stromlinienaufnahmen

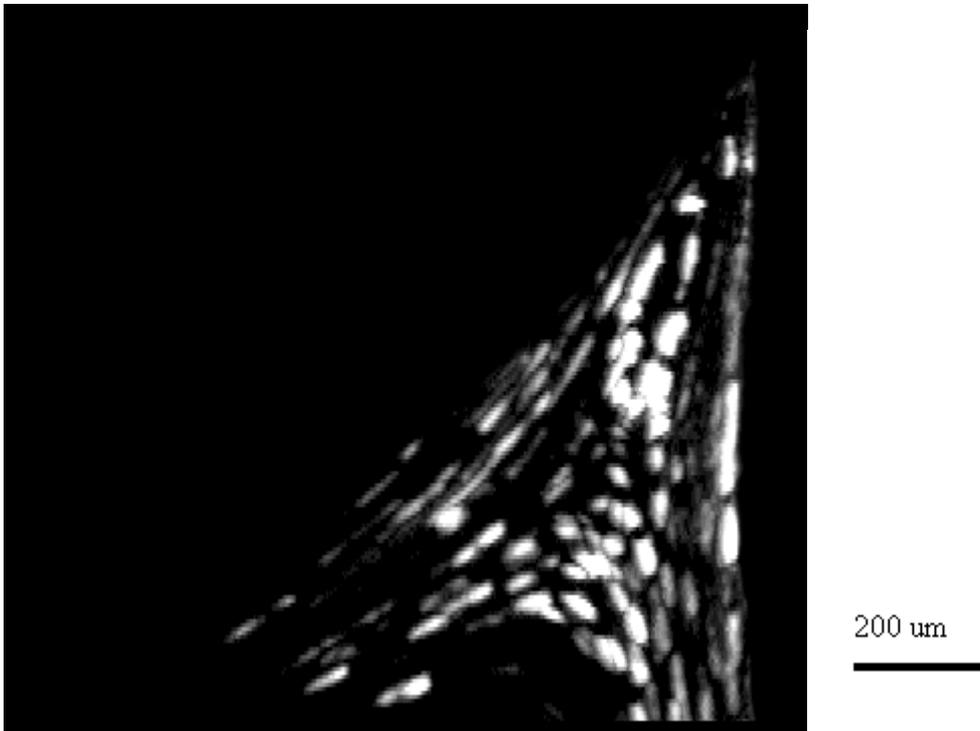
Im letzten Kapitel wurde die Existenz eines im Meniskusbereich separierten Wirbels während Oberflächenoszillationen auftreten gezeigt. Bei der Betrachtung des Einflusses der Küvettegeometrie zeigte sich, daß die Oberflächenoszillationen stark bedämpft werden können, wenn die Küvettegeometrie verändert wird.

Da bei der Geometrieänderung der Meniskusbereich nur unwesentlich verändert wird, kann man annehmen, daß auch der separierte Wirbel sich wenig verändert und unabhängig von der Oberflächenoszillation auftritt. Der Meniskusbereich wurde daher mit einer Videokamera (25 Bilder/s) in einem Lichtschnittaufbau bei kontinuierlich zunehmender Unterfüllung beobachtet. Die angelegte Temperaturdifferenz betrug dabei  $\Delta T=45,5$  K.

**Abb. 5.14**  Video des Meniskusbereich auf CD.

Im Videofilm (Abb. 5.14) kann man den separierten Wirbel gut erkennen. Es handelt sich dabei

also um einen Effekt, der nicht durch die Oberflächenoszillation erzeugt wird, sondern von ihr unabhängig auftritt.



**Abb. 5.15** Stromlinienbild des Meniskusbereichs an der kalten Thermode.

$\Delta T=45,5 \text{ mm}$ ,  $T_M=20 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $L=12 \text{ mm}$ ,  $B=41 \text{ mm}$ ,  $h=1,8 \text{ mm}$ ,  $\tau=0,4 \text{ s}$ .

Abb. 5.15 zeigt ein Stromlinienbild, das durch Überlagerung aufeinanderfolgender Videobilder über einen Zeitraum von  $\tau=0,4 \text{ s}$  gewonnen wurde. Die Unterfüllung der Küvette beträgt dabei  $h\sim 1,8 \text{ mm}$ . Man erkennt, daß der Wirbel langgestreckt ist und sich ungefähr in der Mitte zwischen Oberfläche und kalter Wand bildet. Der Rückstrom folgt wie erwartet ungefähr einer Isothermen.

Entgegen den ursprünglichen Erwartungen füllt die Konvektionsrolle nicht den ganzen Meniskusbereich aus. Während der Meniskus eine ungefähre vertikale Ausdehnung von  $1,2 \text{ mm}$  und eine ungefähre horizontale Ausdehnung von  $0,9 \text{ mm}$  hat, mißt man eine Ausdehnung der Konvektionsrolle von  $400\pm 100 \text{ }\mu\text{m} \times 150\pm 50 \text{ }\mu\text{m}$ . Interessanterweise entspricht das Verhältnis der Wellenlänge der Konvektionsrolle zu ihrer Höhe mit  $\lambda/d\sim 2,5$  einer hydrothermalen Welle [Riley96, Kuhlmann96].

Im vorgestellten Modell wird davon ausgegangen, daß der Stagnationspunkt sich an einem Ort bildet, an dem die Teilungslinie zwischen Strömungen, die direkt in den Rückstrom des Hauptwirbels geraten und Strömungen, die der Oberfläche folgen auf eine passende Isotherme, die den Rückstrom trägt, treffen. Dazu sind zwei Faktoren notwendig:

- Für die Existenz einer passenden Isotherme muß der Stagnationspunkt innerhalb der thermischen Grenzschicht liegen und
- zur Trennung der beiden Strömungsgebiete muß eine gewisse Oberflächenkrümmung überschritten werden, also die Oberflächensteigung um ein gewisses Maß größer sein als an dem Punkt an dem die Strömung in die thermische Grenzschicht eintritt.

Da thermische Grenzschicht und Meniskus etwa die gleiche Dimension haben, muß die Ausdehnung der Konvektionsrolle deutlich kleiner als die des Meniskus sein.

Abb. 5.16 zeigt ein Tracerteilchen, dessen Bewegung um das Wirbelzentrum über eine Umlaufperiode verfolgt wurde. Dadurch kann die Umlaufzeit des Tracerteilchens zu

$$\tau_a = 0,24 \pm 0,04 \text{ s}$$

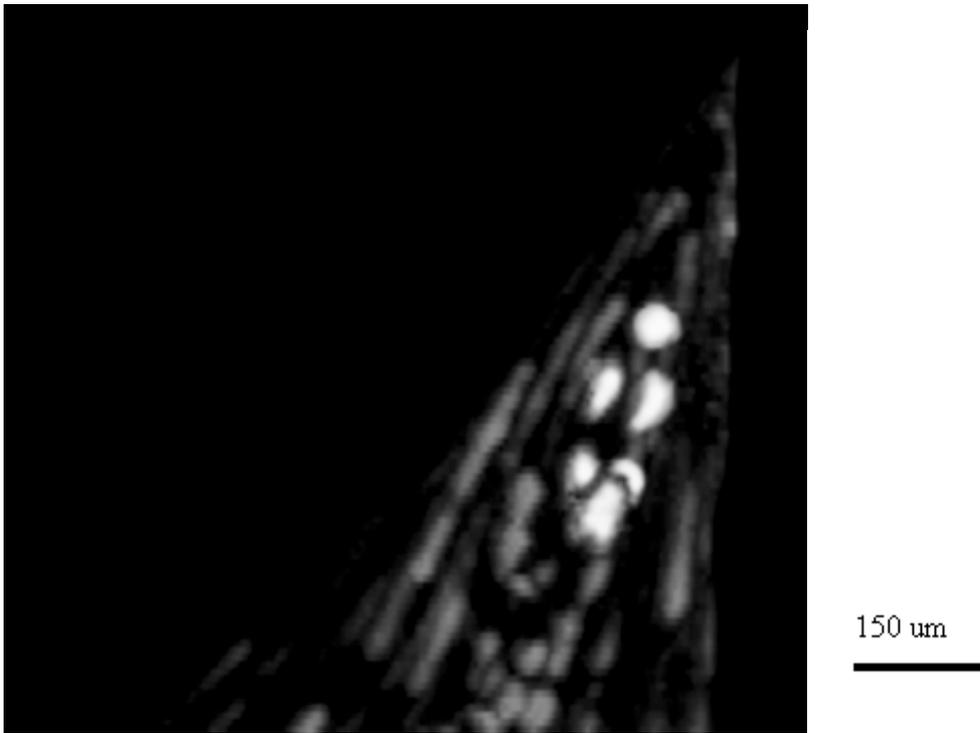
und damit die Umlauffrequenz zu

$$\nu_a = 4,17 \pm 0,8 \text{ Hz}$$

bestimmt werden.

Dabei ist zu beachten, daß die Umlaufzeiten von Tracerteilchen in Konvektionsrollen über den Radius nicht konstant sind; die Rolle sich also nicht wie ein starrer Körper dreht. Vielmehr ist die Umlaufperiode für kleine Radien - wie zum Beispiel für den mit der Hochgeschwindigkeitskamera beobachteten Tracer - geringer als für große Radien.

Die so beobachtete Umlauffrequenz paßt - bedenkt man, daß es sich bei den vorhergesagten Werten um extrapolierte Werte handelt - gut zu den erwarteten Frequenzen von Temperaturosillationen. Die Tatsache, daß die vorhergesagten Werte sich auf einen etwas größeren Wirbel beziehen, erklärt, daß die gemessene Umlauffrequenz sich im oberen Bereich der vorhergesagten Frequenzen befindet.



**Abb. 5.16** Stromlinienbild des Meniskusbereichs an der kalten Thermode.

$$\Delta T = 45,5 \text{ mm}, T_M = 20 \text{ °C}, L = 12 \text{ mm}, B = 41 \text{ mm}, h = 1,8 \text{ mm}, \tau = 0,4 \text{ s.}$$

In Abb. 5.17 ist ein vergrößerter Ausschnitt des Meniskus sehr nahe an der Grenze zwischen freier Oberfläche und kalter Wand zu sehen. Man erkennt hier eine weitere separierte Konvektionsrolle. Sie ist wesentlich kleiner als der erste separierte Wirbel und hat eine Ausdehnung von etwa  $65 \pm 5 \text{ µm} \times 35 \pm 5 \text{ µm}$ .

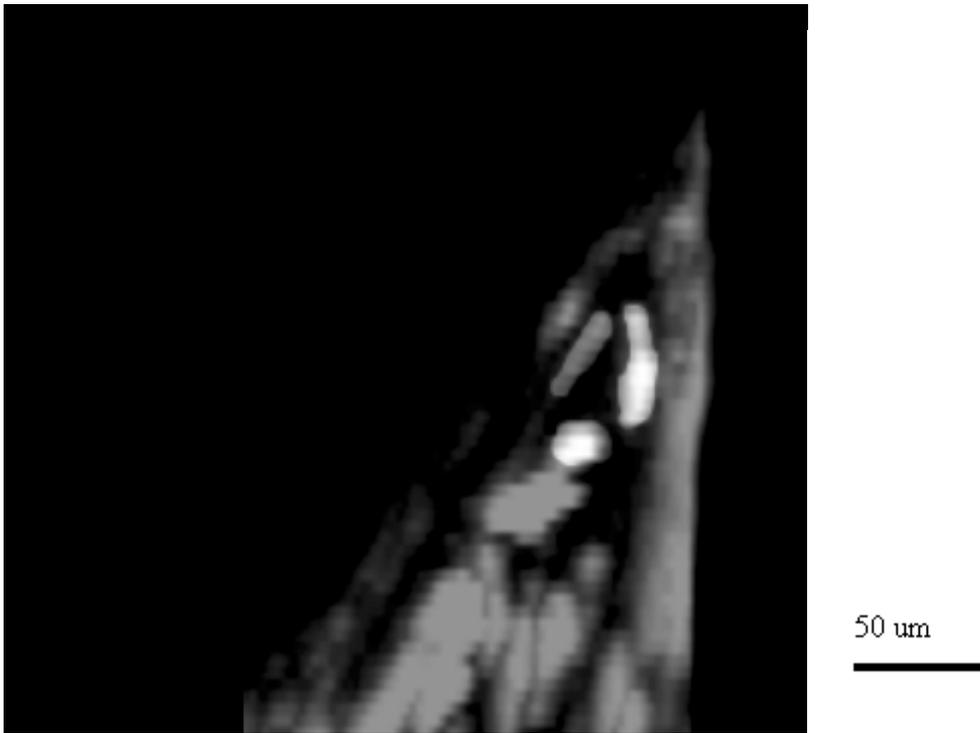
Auch hier wurde ein Tracerteilchen während eines Umlaufs verfolgt und damit eine Umlaufperiode von

$$\tau_b = 0,12 \pm 0,04 \text{ s}$$

und eine Umlauffrequenz von

$$\nu_b = 8,3 \pm 2,0 \text{ Hz}$$

bestimmt.



**Abb. 5.17** Stromlinienbild des Meniskusbereichs an der kalten Thermode.

$\Delta T = 45,5 \text{ mm}$ ,  $T_M = 20 \text{ °C}$ ,  $L = 12 \text{ mm}$ ,  $B = 41 \text{ mm}$ ,  $h = 1,8 \text{ mm}$ ,  $\tau = 0,4 \text{ s}$ .

Die Bildung einer zweiten und weiterer Konvektionsrollen ist in Experimenten zu dünnen Flüssigkeitsschichten zu beobachten [Metzger86, Schwabe92, Riley96].

Die Entstehung weiterer Konvektionsrollen im Meniskusbereich ist zusätzlich aus einem anderen Grund plausibel. Laut Kap. 2.8 wird die Meniskusform nahe der kalten Wand durch eine Exponentialfunktion angenähert:

$$V = a \cdot e^{b \cdot x + c} + d.$$

Der entscheidende Faktor für die Separation eines Wirbels ist die Aufweitung des Flüssigkeitsbereichs - also die Steigung der Oberfläche - bezüglich der bisherigen Strömung.

Betrachtet man den Abstand einer beliebigen Strömung entlang einer Geraden von der Oberfläche

$$\Delta = a \cdot e^{b \cdot x + c} + d - e \cdot x$$

so ist klar, daß die Steigung der Oberfläche relativ zur betrachteten Geraden

$$\frac{d}{dx} \Delta = a \cdot b \cdot e^{b \cdot x + c} + e$$

qualitativ die gleichen Eigenschaften hat, wie die ursprüngliche Meniskusform. Einer solchen Oberflächenform folgt nicht nur die Oberflächenströmung des Hauptwirbels, sondern auch die Oberflächenströmung des ersten separierten Wirbels. Damit lassen sich alle Überlegungen des letzten Kapitels bezüglich Meniskusform und Strömung des Hauptwirbels auf den ersten separierten Wirbel übertragen.

Die Lage eines sich bildenden Stagnationspunktes nach dem sich ein Wirbel separiert ist der Punkt, an dem eine gewisse vertikale Auslenkung der Strömung relativ zur bisherigen Hauptstromrichtung überschritten wird. Setzt man dabei die "bisherige Hauptstromrichtung" gleich der Tangenten der Oberfläche am Stagnationspunkt  $x_1$  vor dem betrachteten Wirbel, so ergibt sich der Abstand zwischen zwei Stagnationspunkten  $x_1$  und  $x_2$  aus

$$\frac{V(x_1)}{V(x_2)} = \text{const.}$$

oder die Lage der Stagnationspunkte aus

$$\frac{V(x)}{V(x_0)} = n \cdot \text{const.}, n \in \mathbb{N}$$

$$\frac{e^{b \cdot x + c}}{e^{b \cdot x_0 + c}} = n \cdot \text{const.}$$

$$e^{b \cdot (x - x_0)} = n \cdot \text{const.}$$

$$x = \frac{\ln n}{b} + \frac{\ln const.}{b} + x_0$$

$$x = \frac{\ln n}{b} + C. \quad (13)$$

Es wird entlang der x-Achse eine logarithmische Verteilung der Stagnationspunkte erwartet.

Wichtig ist dabei, daß die betrachtete Strömung am Punkt  $x_0$  *nicht* waagrecht verläuft, also nicht den Mittelpunkt der Küvette darstellt. Beim Punkt  $x_0$  handelt es sich um den Punkt entlang der x-Achse an dem zum ersten Mal ein thermisch und räumlich von der Küvette separierter Bereich entsteht in dem alle Bedingungen für den im letzten Kapitel beschriebenen Mechanismus erfüllt sind. Dabei ist - sofern die Überlegungen des letzten Kapitels zutreffen - die Existenz eines vertikalen Temperaturgradienten notwendig. Ein Wirbel kann sich also erst innerhalb der thermischen Grenzschicht bilden.

Die Geschwindigkeit nahe der kalten Wand und nahe der Oberfläche kann für eine angelegte Temperaturdifferenz von  $\Delta T=40$  K zu etwa  $v_x=4,7$  mm/s extrapoliert werden [Metzger86]. Daraus kann man die Ausdehnung der thermischen Grenzschicht zu

$$d_{th} = \frac{L}{\sqrt{v_x \cdot \frac{L}{\chi}}} \approx 0,61 \text{ mm}$$

schätzen. Dieser Abstand von der kalten Wand wird im weiteren für  $x_0$  verwendet.

Der Stagnationspunkt der ersten separierten Rolle liegt entlang der x-Achse etwa 0,244 mm von der kalten Wand entfernt. Damit ergeben sich die in Abb. 5.18 angegebenen Daten für die Lage von Stagnationspunkten.

Bei dieser Abschätzung ergibt sich für den Stagnationspunkt der Konvektionsrolle b ein Wandabstand von 0,109 mm. Dieser Wert stimmt gut mit dem gemessenen Abstand von 0,09 mm überein. Auch die gemessene horizontale Ausdehnung des zweiten Wirbels von 50  $\mu$ m stimmt gut mit der berechneten Lage einer etwaigen dritten Konvektionsrolle überein.

Konvektionsrolle	n	Abstand von der kalten Wand/mm
	0	0,61
a	1	0,244
b	2	0,109
c	3	0,061
d	4	0,042

**Abb. 5.18** Abstände der Stagnationspunkte von der kalten Wand. Die Strömung am Punkt  $n=0$  ist dabei die zugrundeliegende Hauptströmung. Dazu wurde als Abstand von der kalten Wand die Ausdehnung der thermischen Grenzschicht verwendet. Der Wert für  $n=1$  wurde im Videobild vermessen, die restlichen Werte aus diesen Daten nach (13) extrapoliert.

Aufgrund dieser Daten lassen sich die Umlaufperioden und Umlauffrequenzen der Konvektionsrollen berechnen, unter der Annahme, daß aufgrund der linearen Temperaturverteilung innerhalb der thermischen Grenzschicht die Umlaufperiode proportional zu Ausdehnung der Konvektionsrolle ist.

Konvektionsrolle	n	$\tau/s$	$\nu/Hz$
a	1	0,240	4,17
b	2	0,123	8,11
c	3	0,075	13,33

**Abb. 5.19** Abschätzung der Umlaufperioden und -frequenzen für separierte Konvektionsrollen. Grundlage für die Abschätzung der Daten für die Konvektionsrollen b und c sind die gemessenen Daten der Konvektionsrolle a.

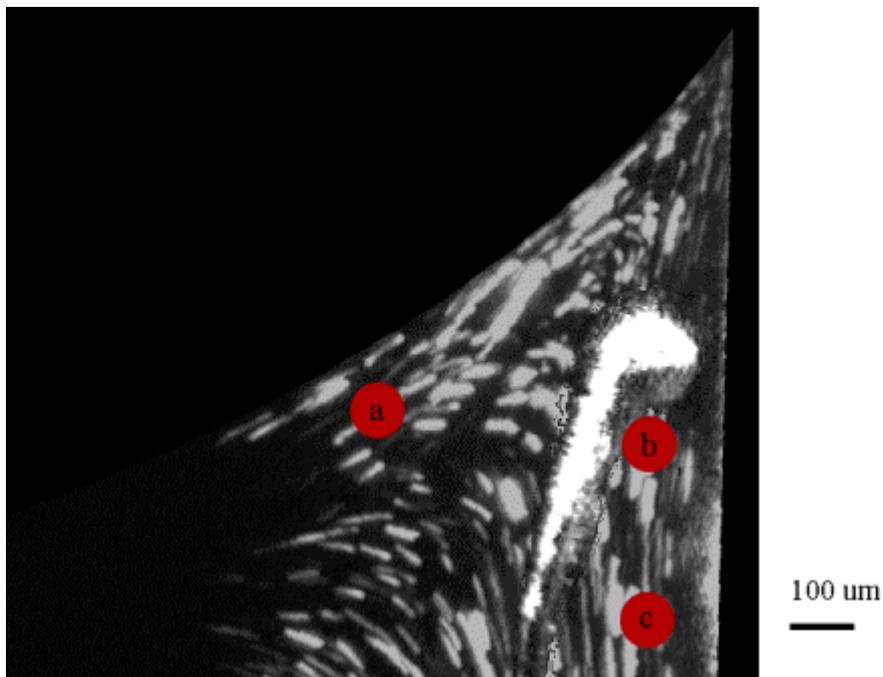
Bei der Ausdehnung der Konvektionsrolle muß beachtet werden, daß sich die Lage der Stagnationspunkte auf die x-Achse bezieht, die große Halbachse der Konvektionsrollen jedoch annähernd tangential zur Oberfläche liegt. Damit ergibt sich die Umlaufperiode für die Konvektionsrolle n zu:

$$\tau_n = \alpha \cdot (x_{n+1} - x_n) \cdot \frac{d}{dx} V(x_n).$$

Verwendet man die gemessenen Umlaufzeiten des ersten separierter Wirbels, so ergibt sich ein Proportionalitätsfaktor von  $\alpha=1,55$ . Die berechneten Umlaufperioden und -frequenzen sind in Abb. 5.19 dargestellt. Auch hier stimmt die berechnete Umlauffrequenz von 8,11 Hz gut mit dem gemessenen Wert von  $\nu_b=8,3\pm 2,0$  Hz der zweiten separierten Konvektionsrolle überein.

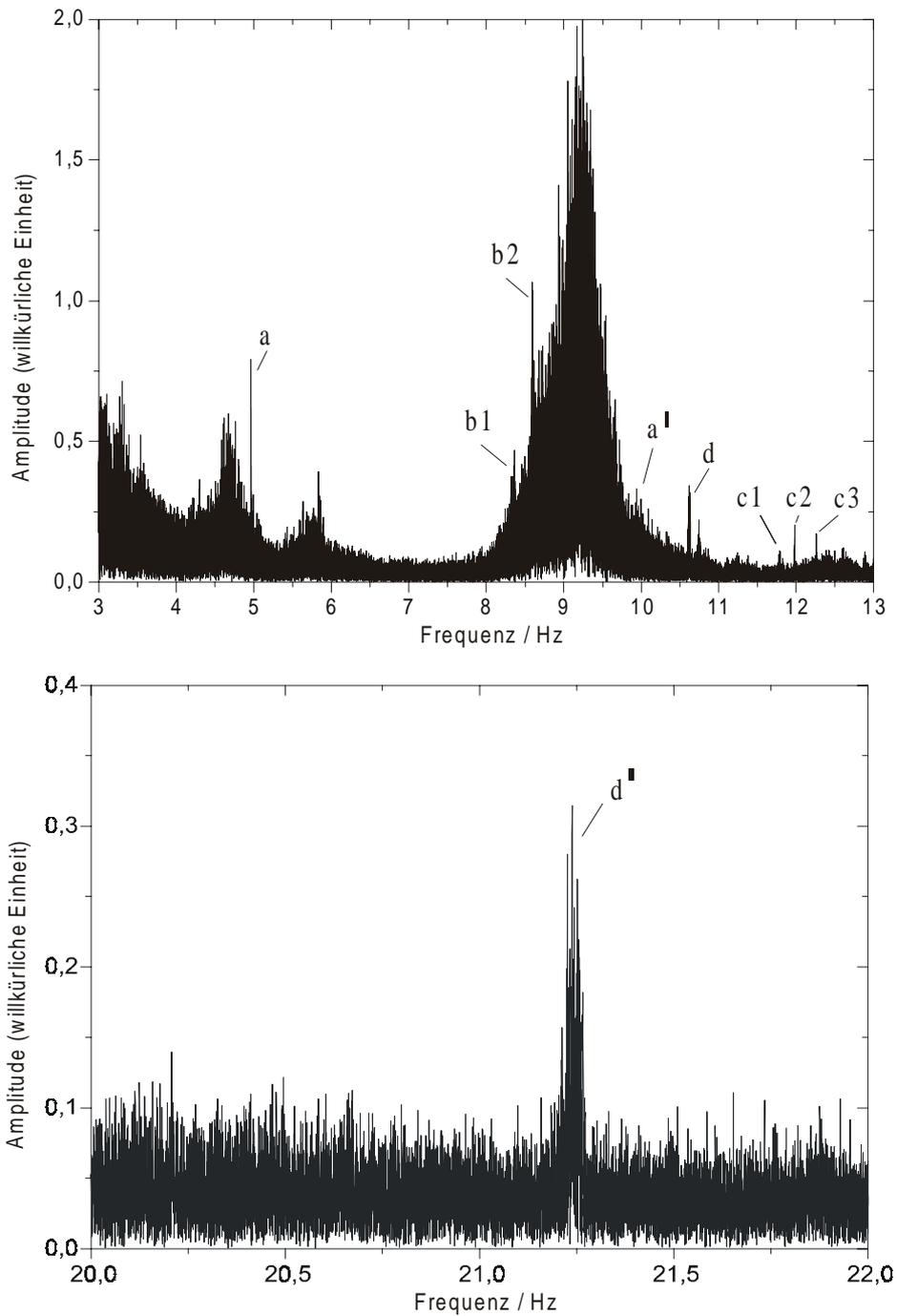
## 5.4 Temperaturoszillationen

Zur Untersuchung von oszillatorischer Konvektion im Meniskusbereich wurde ein Thermoelement im Meniskus nahe der ersten separierten Konvektionsrolle an der kalten Wand plaziert.



**Abb. 5.20** Position des Thermoelementes im Meniskus. Das Thermoelement ist zwischen Konvektionsrolle a und der kalten Wand plaziert, so daß es empfindlich für zeitabhängige Strömung des Wirbels und für entlang der kalten Wand wandernde Temperaturschlieren ist.

In y-Richtung befindet sich das Thermoelement etwa 10 mm von der Mitte der Küvette entfernt. Wie bereits beschrieben ist es an dieser Stelle unempfindlich gegenüber Oberflächenschwingungen in y-Richtung (Mode  $m=2$ ). Zur Dämpfung der restlichen Oberflächenschwingungen wurde eine Spaltbreite von  $L=12$  mm ( $B=41$  mm) gewählt.



**Abb. 5.21** *Fourierspektrum der Temperaturoszillationen im Meniskusbereich*

$\Delta T = 25,0 \text{ K}$ ,  $T_M = 20 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $L = 12 \text{ mm}$ ,  $B = 41 \text{ mm}$ ,  $h = 1,5 \text{ mm}$ .

Die Meßzeit beträgt für alle dargestellten Spektren ca. 1 h.

 Einzelsignale auf CD.

 Datensatz auf CD.

Neben den bereits beschriebenen Temperatursignalen der Oberflächenschwingungen beobachtet man weitere Temperatursignale, die im Verhältnis zu den Signalen der Oberflächenschwingung

sehr scharf in der Frequenz bestimmt sind (Abb. 5.21).

Experimente zum Einfluß der Küvettengeometrie zeigten keinen Einfluß der Spaltbreite  $L$  und Küvettenbreite  $B$  auf die Frequenz dieser Signale. Ein Einfluß auf die Signalamplitude ist nicht signifikant erkennbar. Es handelt sich bei den in Abb. 5.21 bezeichneten Signalen also nicht um Temperaturoszillationen, die auf Eigenschwingungen der Flüssigkeitsoberfläche zurückzuführen sind.

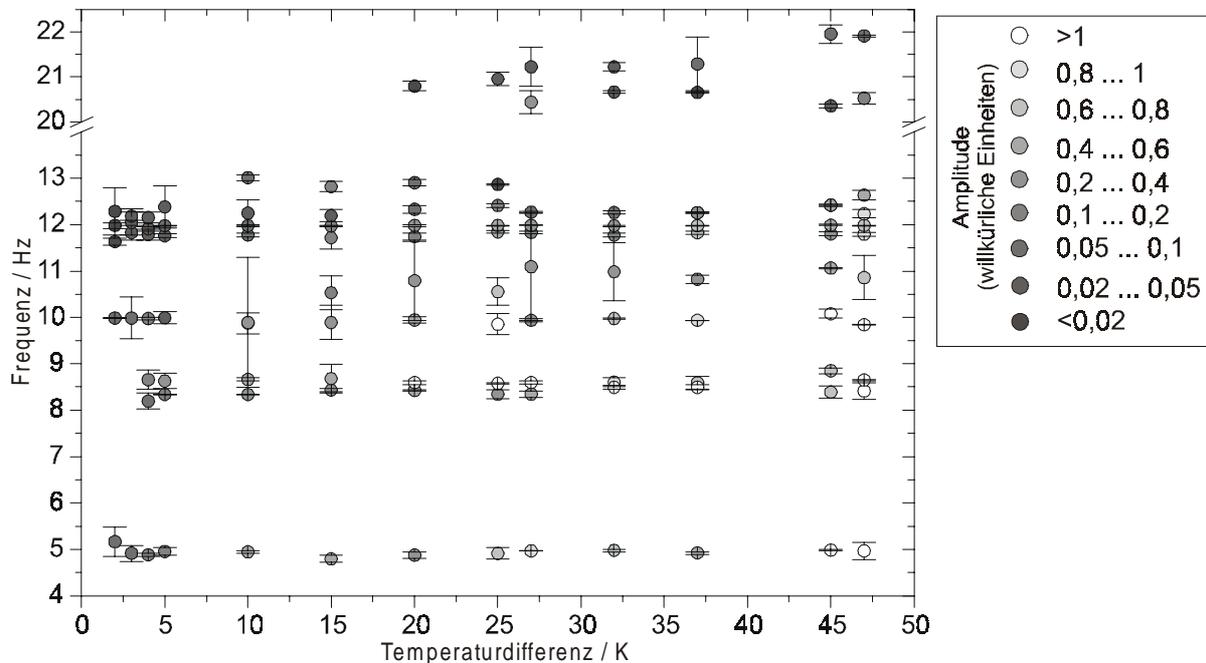
Zur Lokalisierung der Temperaturoszillationen wurden das Thermoelement an drei weiteren Orten positioniert:

1. Im Hauptstrom kurz vor dem Meniskus, also knapp unterhalb der Flüssigkeitsoberfläche jedoch so weit von der kalten Thermode entfernt, daß es sich nicht mehr in der ersten separierten Konvektionsrolle im Meniskus befindet (Punkt a in Abb. 5.20),
2. nahe der kalten Thermode, jedoch unterhalb des Wirbelbereichs im Meniskus (Punkt b in Abb. 5.20) und
3. nahe der kalten Thermode, jedoch deutlich unterhalb des Wirbelbereichs im Meniskus (Punkt c in Abb. 5.20).

Im ersten Fall wurden die Temperaturoszillationen von Abb. 5.21 nicht gemessen, an den Positionen b und c wurden die gleichen Temperaturoszillationen wie im Meniskus gemessen, jedoch mit abnehmender Amplitude.

Dies entspricht dem Verhalten einer Temperaturoszillation, die vom Meniskusbereich ausgeht und dann konvektiv durch den Hauptstrom entlang der kalten Wand nach unten transportiert und dabei durch die kalte Thermode gedämpft wird. Eine Temperaturoszillation, die vom Hauptwirbel in der Küvette ausgeht, wäre deutlich in Punkt a gemessen worden.

## 5.5 Einfluß der Temperaturdifferenz

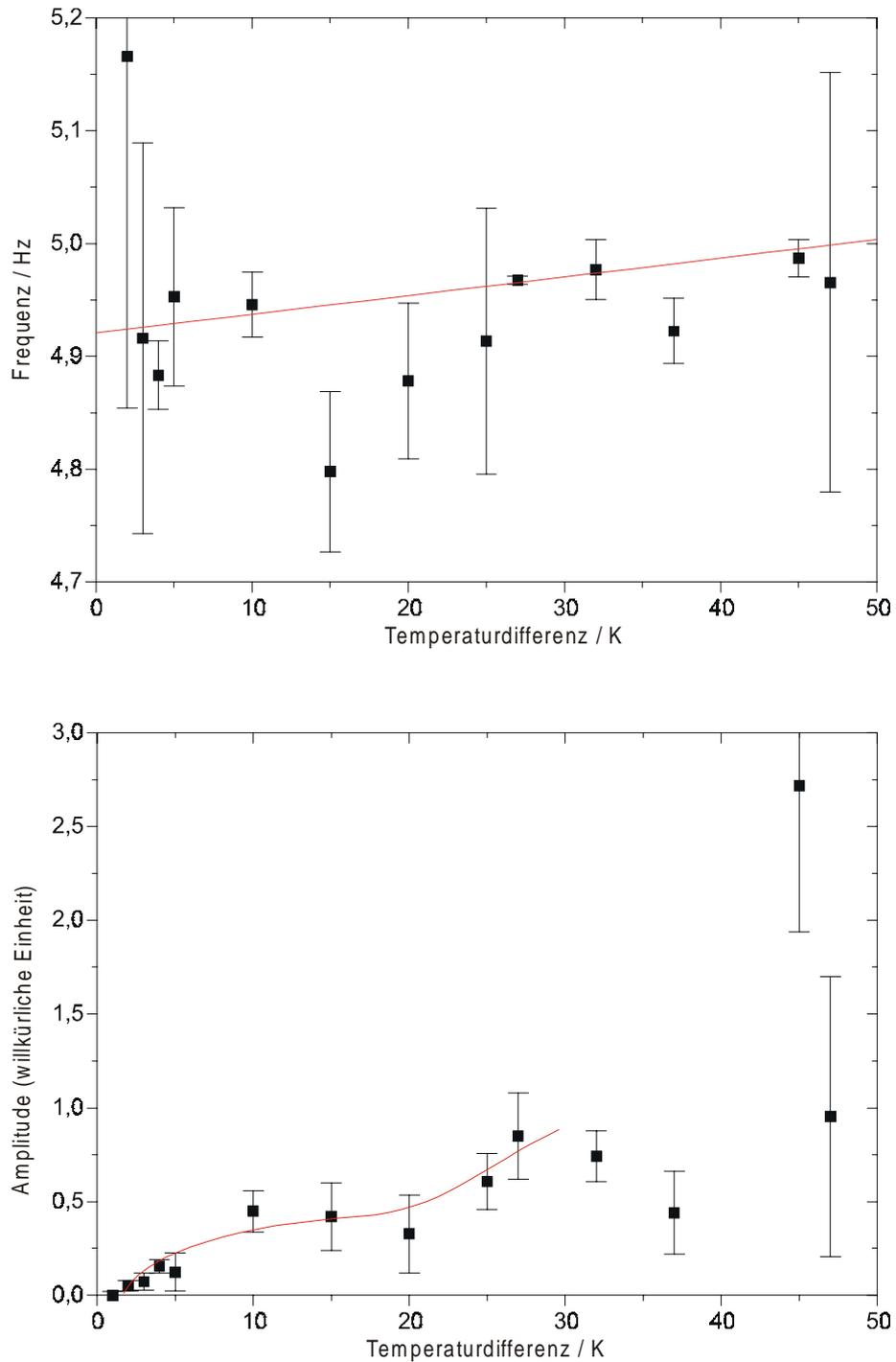


**Abb. 5.22** Abhängigkeit der Temperaturoszillationen im Meniskus von der angelegten Temperaturdifferenz.

$L=12\text{ mm}$ ,  $B=41\text{ mm}$ ,  $h=1,5\text{ mm}$ ,  $T_M=20\text{ }^\circ\text{C}$

Abb. 5.22 zeigt die Abhängigkeit der Signalfrequenzen und -amplituden von der angelegten Temperaturdifferenz. Die Fehlerbalken geben die Halbwertsbreite der Signale an. Der Rauschanteil liegt bei typischerweise 1/4 bis 1/2 der Signalamplitude. Es muß jedoch beachtet werden, daß die Messungen mit jeweils leicht unterschiedlicher Thermoelementposition durchgeführt wurden. Dadurch kann ein Amplitudenfehler von über 100% entstehen.

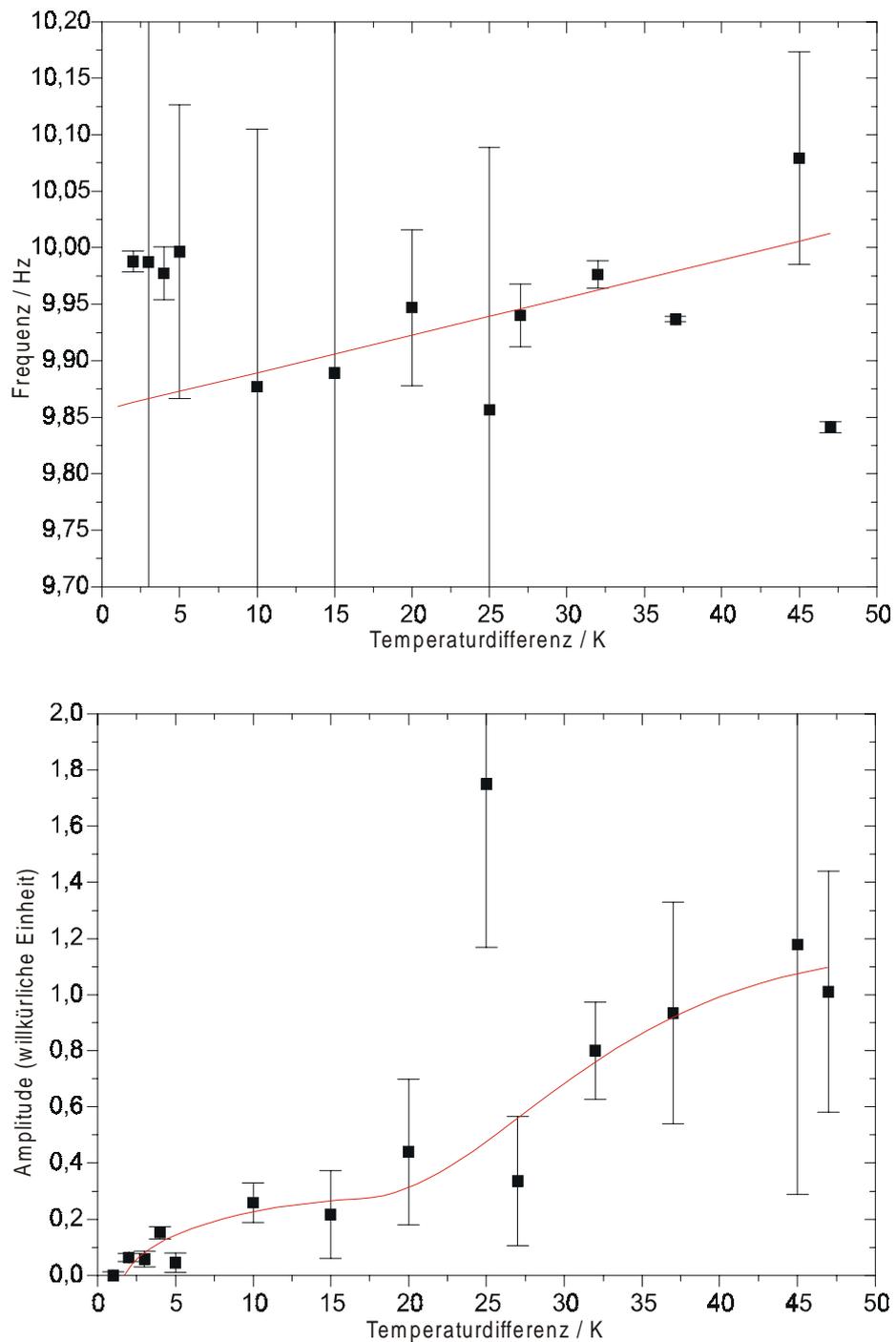
Das Signal a hat eine mittlere Frequenz von 4,94 Hz. Diese steigt linear geringfügig mit der angelegten Temperaturdifferenz um 0,0017 Hz/K. Der Amplitudenverlauf ist s-förmig, wobei der untere Bereich gut einer Wurzelfunktion entspricht. Dieses Verhalten ist bifurkationsartig und typisch für konvektive Instabilitäten. Der durch Anpassen einer Wurzelfunktion bestimmte Einsatzpunkt der Oszillation liegt bei  $\Delta T_{\text{krit.}}^a=1,51\pm 0,4\text{ K}$ ;  $\nu_{\text{krit.}}^a=4,92\pm 0,05\text{ Hz}$ .



**Abb. 5.23** Frequenz- und Amplitudenverlauf des Signals *a* bei Variation der angelegten Temperaturdifferenz  $\Delta T$ .

$T_M=20\text{ }^\circ\text{C}$ ,  $h=1,5\text{ mm}$ ,  $L=12\text{ mm}$ ,  $B=41\text{ mm}$ .

 Datensatz auf CD.



**Abb. 5.24** Frequenz- und Amplitudenverlauf des Signals  $a'$  bei Variation der angelegten Temperaturdifferenz  $\Delta T$ .

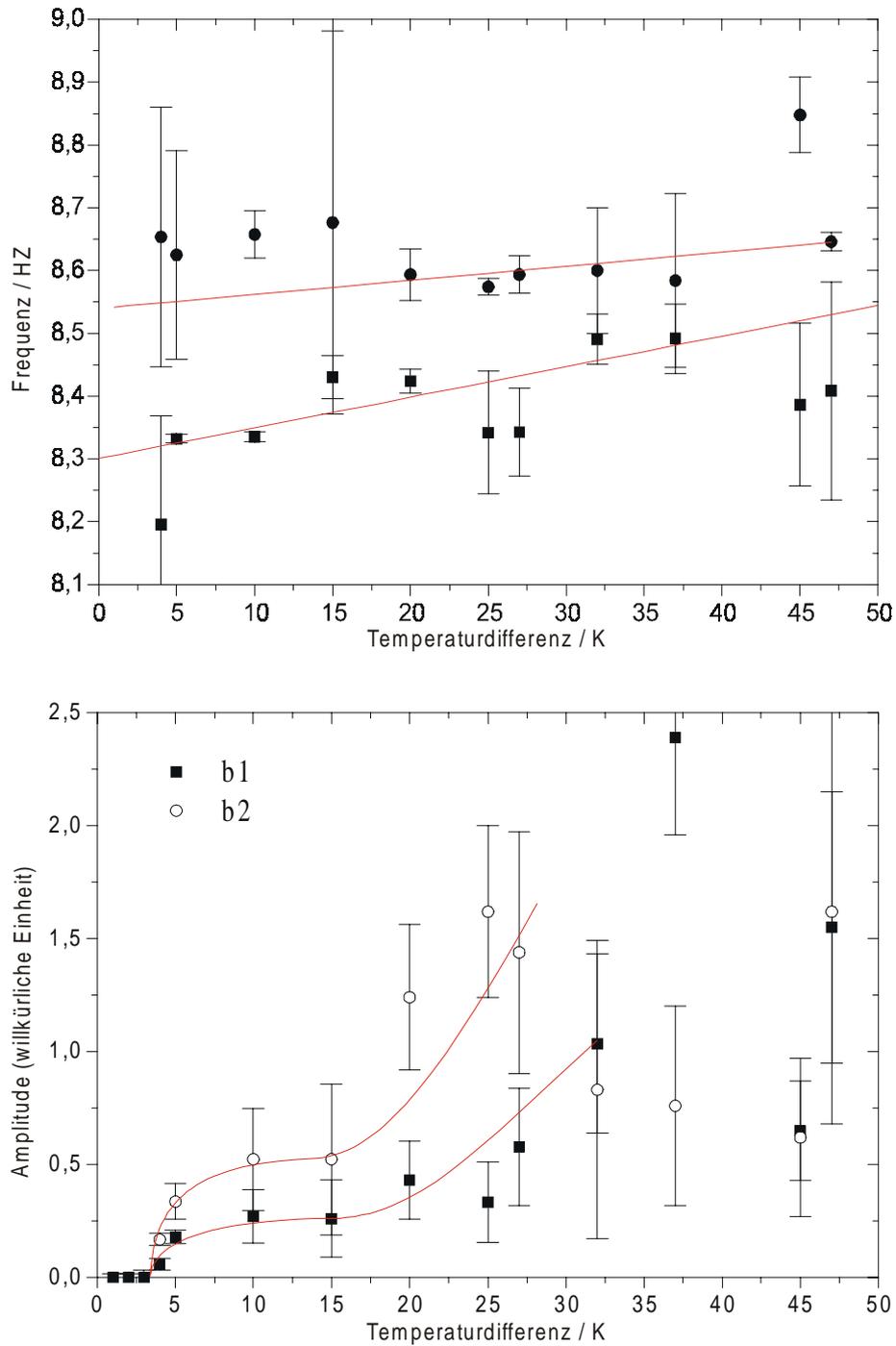
$T_M=20\text{ }^\circ\text{C}$ ,  $h=1,5\text{ mm}$ ,  $L=12\text{ mm}$ ,  $B=41\text{ mm}$ .

 Datensatz auf CD.

Signal a' zeigt erst ab  $\Delta T=10$  K einen Anstieg der Frequenz mit der angelegten Temperaturdifferenz. Der Mittelwert der Frequenz liegt bei 9,9 Hz, der Anstieg beträgt 0,003 Hz/K. Insgesamt ist ein Anstieg der Frequenz über den gesamten Bereich nicht signifikant. Der Amplitudenverlauf entspricht weitgehend dem des Signals a, die Signalamplitude ist ungefähr halb so groß. Der Einsatzpunkt der Oszillation liegt bei  $\Delta T_{\text{krit.}}^{\text{a}'}=1,36\pm 0,4$  K;  $\nu_{\text{krit.}}^{\text{a}'}=9,88\pm 0,1$  Hz.

Signal b weist eine deutliche Duplettstruktur auf und spaltet sich in die Signale  $b_1$  bei 8,4 Hz und  $b_2$  bei 8,6 Hz auf. Die mittlere Frequenz von Signal  $b_1$  liegt bei 8,38 Hz; die Frequenz steigt linear mit der angelegten Temperaturdifferenz um 0,0049 Hz/K. Die mittlere Frequenz von Signal  $b_2$  liegt um 0,26 Hz höher bei 8,64 Hz. Der Frequenzanstieg bei zunehmender Temperaturdifferenz ist nur etwa halb so groß wie bei  $b_1$  und beträgt 0,0022 Hz/K. Der Amplitudenverlauf beider Signale ist ebenfalls s-förmig mit Wurzelfunktionscharakter im Bereich unterhalb von  $\Delta T=15$  K; in diesem Bereich ist das Amplitudenverhältnis  $b_1/b_2=2/1$ . Die Einsatzpunkte ergeben sich zu  $\Delta T_{\text{krit.}}^{\text{b}_1}=3,39\pm 0,7$  K und  $\Delta T_{\text{krit.}}^{\text{b}_2}=3,35\pm 0,4$  K; die kritischen Frequenzen sind  $\nu_{\text{krit.}}^{\text{b}_1}=8,32\pm 0,1$  Hz und  $\nu_{\text{krit.}}^{\text{b}_2}=8,55\pm 0,1$  Hz.

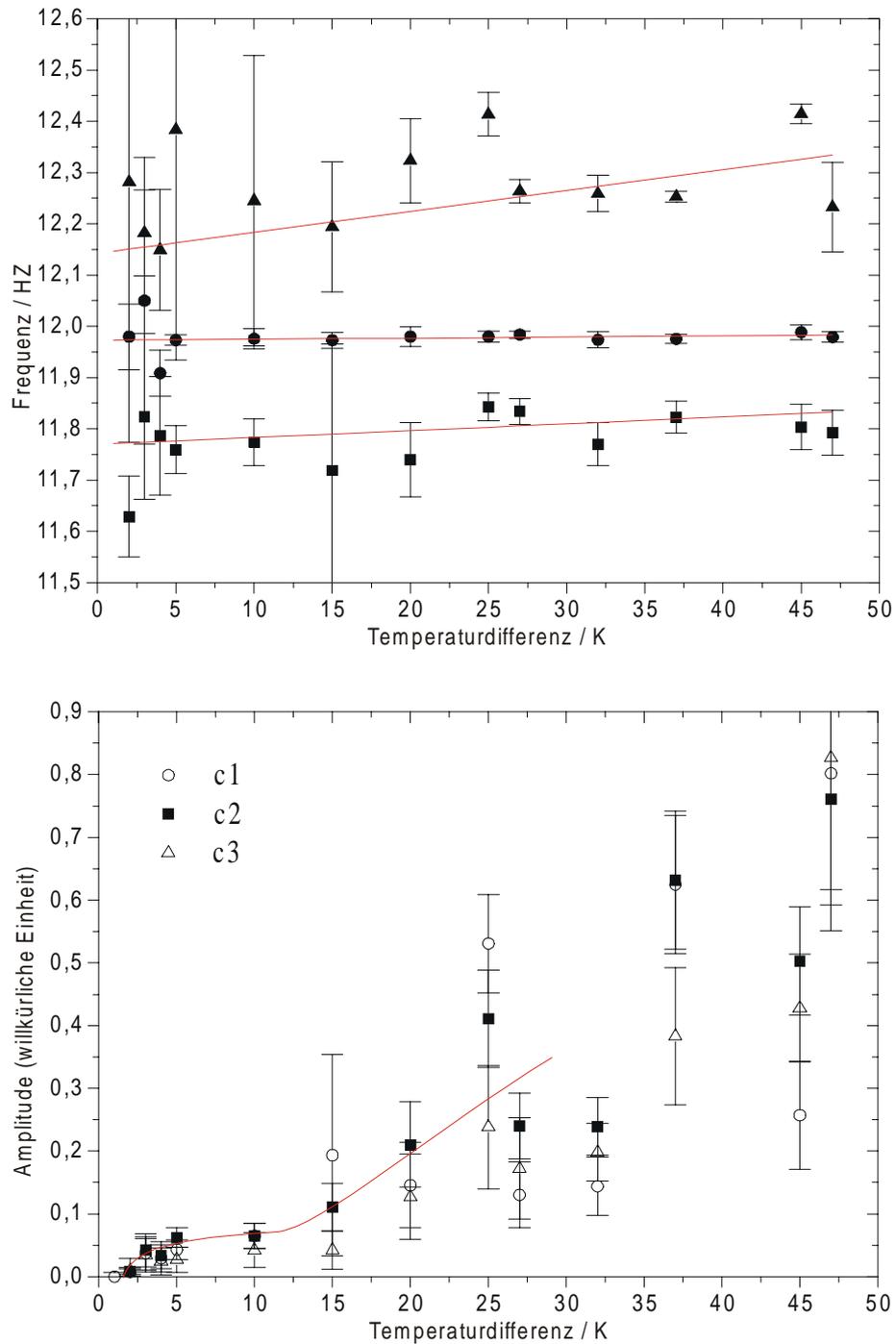
Bei Signal c zeigt sich eine ausgeprägte Tripletstruktur, das heißt das Signal kann in drei Frequenzen  $c_1$  bei 11,8 Hz,  $c_2$  bei 12,0 Hz und  $c_3$  bei 12,3 Hz aufgelöst werden. Alle drei Signalfrequenzen steigen linear mit der angelegten Temperaturdifferenz. Während die Frequenz von  $c_1$  um 0,0013 Hz/K und die Frequenz von  $c_3$  um 0,0041 Hz/K steigt, verändert sich die Frequenz von  $c_2$  nur um 0,022 mHz/K. Die mittleren Frequenzen liegen bei  $\nu_{\text{M}}^{\text{c}_1}=11,78$  Hz,  $\nu_{\text{M}}^{\text{c}_2}=11,98$  Hz und  $\nu_{\text{M}}^{\text{c}_3}=12,28$  Hz. Die aus der jeweiligen Regressionsgeraden ermittelten kritischen Frequenzen sind  $\nu_{\text{krit.}}^{\text{c}_1}=11,78\pm 0,1$  Hz,  $\nu_{\text{krit.}}^{\text{c}_2}=11,97\pm 0,1$  Hz und  $\nu_{\text{krit.}}^{\text{c}_3}=12,14\pm 0,1$  Hz. Der Amplitudenverlauf entspricht bei allen drei Signalen einer ähnlichen S-Kurve mit ausgeprägtem Wurzelverlauf unterhalb von  $\Delta T=10$  K. Die Einsatzpunkte sind  $\Delta T_{\text{krit.}}^{\text{c}_1}=1,89\pm 0,6$  K,  $\Delta T_{\text{krit.}}^{\text{c}_2}=1,95\pm 0,7$  K und  $\Delta T_{\text{krit.}}^{\text{c}_3}=1,90\pm 0,7$  K.



**Abb. 5.25** Frequenz- und Amplitudenverlauf der Signale  $b_1$  und  $b_2$  bei Variation der angelegten Temperaturdifferenz  $\Delta T$ .

$T_M = 20^\circ\text{C}$ ,  $h = 1,5\text{ mm}$ ,  $L = 12\text{ mm}$ ,  $B = 41\text{ mm}$ .

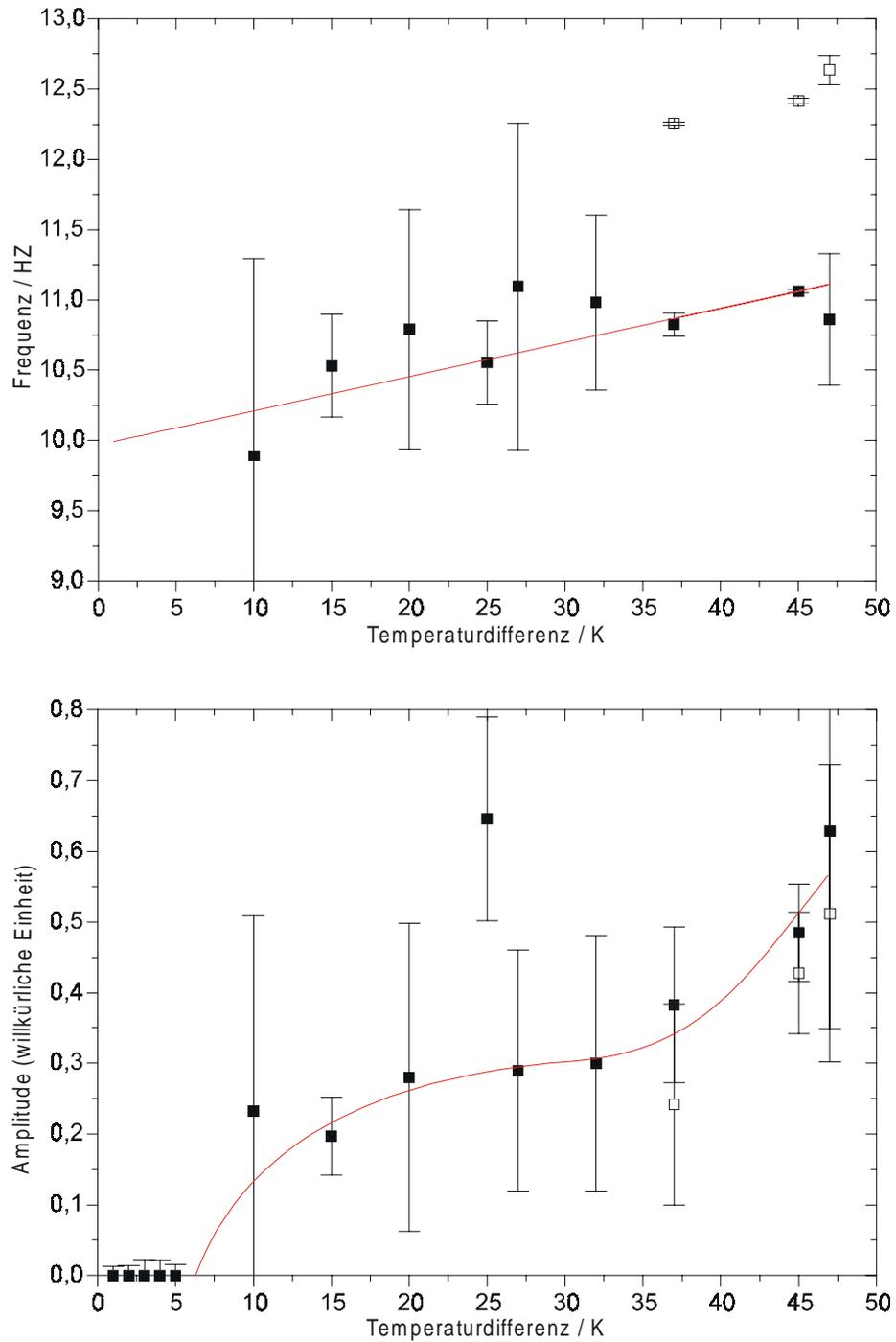
 Datensatz auf CD.



**Abb. 5.26** Frequenz- und Amplitudenverlauf der Signale  $c_1$  bis  $c_3$  bei Variation der angelegten Temperaturdifferenz  $\Delta T$ .

$T_M = 20^\circ\text{C}$ ,  $h = 1,5\text{ mm}$ ,  $L = 12\text{ mm}$ ,  $B = 41\text{ mm}$ .

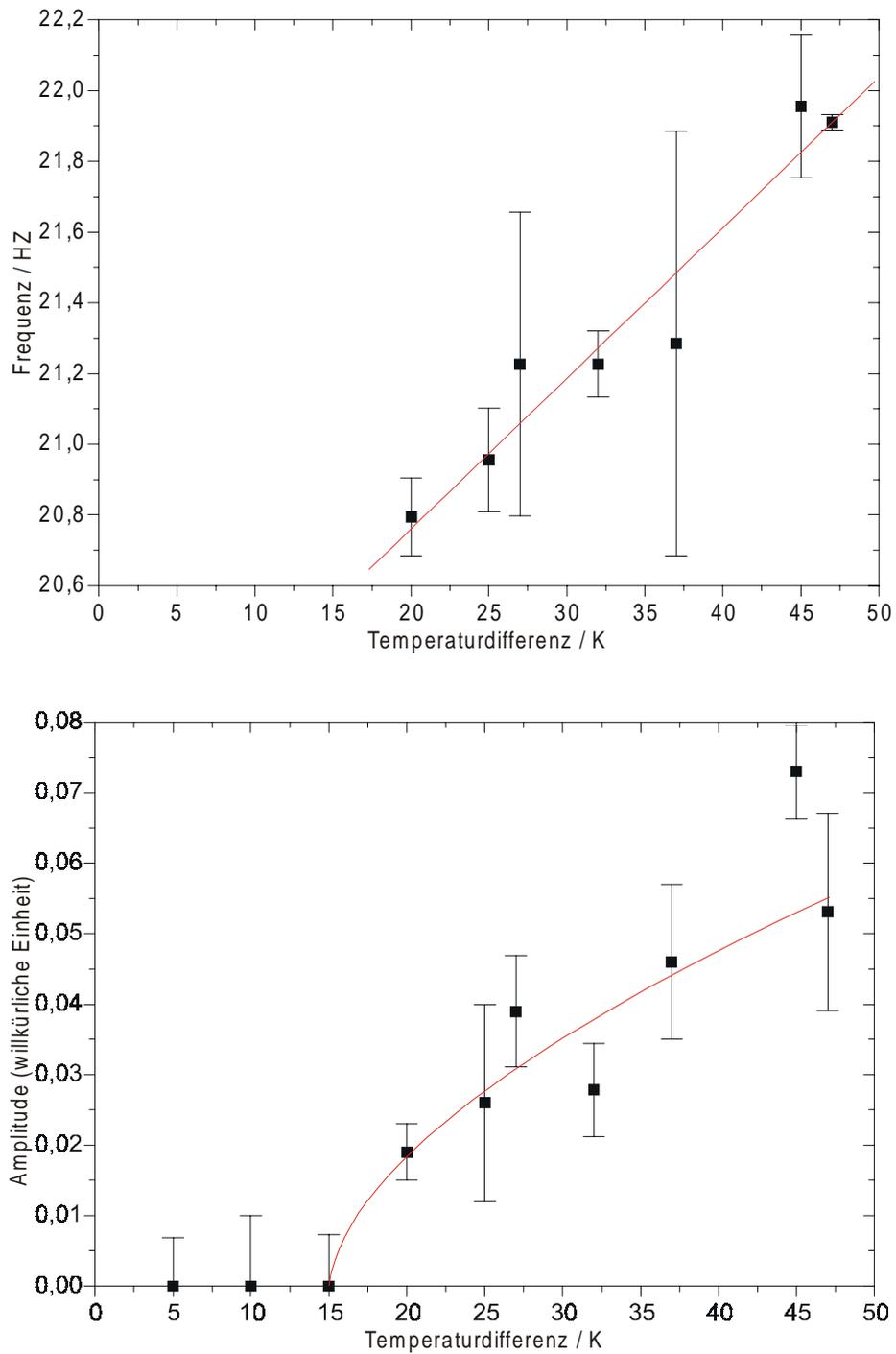
 Datensatz auf CD.



**Abb. 5.27** Frequenz- und Amplitudenverlauf des Signals  $d$  bei Variation der angelegten Temperaturdifferenz  $\Delta T$ .

$T_M=20\text{ }^\circ\text{C}$ ,  $h=1,5\text{ mm}$ ,  $L=12\text{ mm}$ ,  $B=41\text{ mm}$ .

 Datensatz auf CD.



**Abb. 5.28** Frequenz- und Amplitudenverlauf des Signals  $d'$  bei Variation der angelegten Temperaturdifferenz  $\Delta T$ .

$T_M = 20\text{ }^\circ\text{C}$ ,  $h = 1,5\text{ mm}$ ,  $L = 12\text{ mm}$ ,  $B = 41\text{ mm}$ .

 Datensatz auf CD.

Die Abhängigkeit des Signals d (10-11 Hz) entspricht nicht dem der bisher beschriebenen Signalen. Das Signal zeigt - wie Signal a - eine singuläre Frequenz. Diese steigt ebenfalls weitgehend linear mit der angelegten Temperaturdifferenz; die Steigung beträgt jedoch mit 0,024 Hz/K das fünf- bis zehnfache der Frequenzveränderung der Signale a, b und c. Das Amplitudensignal zeigt wie die bisherigen Signale eine s-Form mit guter Anpassung an eine Wurzelfunktion im unteren Bereich. Der Einsatzpunkt liegt mit  $\Delta T_{\text{krit.}}^d = 7,02 \pm 2$  K deutlich über dem der Signale a, b und c. Auch der Wendepunkt der S-Kurve liegt mit  $\Delta T = 30 \dots 35$  K bei einer deutlich höheren Temperaturdifferenz. Die kritische Frequenz wurde zu  $\nu_{\text{krit.}}^d = 10,14 \pm 0,05$  Hz bestimmt.

Signal d' verhält sich ähnlich wie Signal d. Es zeigt eine singuläre Frequenz die deutlich mit der angelegten Temperaturdifferenz linear um 0,043 Hz/K steigt - etwa die doppelte Steigung von Signal d. Der Amplitudenverlauf zeigt einen wurzelförmigen Verlauf. Durch Anpassung einer Wurzelfunktion wurde der Einsatzpunkt zu  $\Delta T_{\text{krit.}}^{d'} = 15,7 \pm 1,8$  K bestimmt. Die Kritische Frequenz ist  $\nu_{\text{krit.}}^{d'} = 20,58 \pm 0,1$  Hz.

Konvektionsrolle	Signalfrequenz/Hz	Umlauffrequenz/Hz	
a	4,92	4,17	4,17
b	8,32	8,3	8,11
c	11,97	-	13,33

**Abb. 5.29** Vergleich der gemessenen Frequenzen der Temperaturoszillationen mit den Umlaufzeiten der Konvektionsrollen im Meniskus. Die erste Spalte der Umlauffrequenzen gibt den durch die Videoaufnahme ermittelten Wert, die zweite die nach Abb. 5.19 erwarteten Werte an.

In Abb. 5.30 werden die Frequenzen der Signale a, b und c den Umlauffrequenzen der beobachteten Konvektionsrollen im Meniskusbereich gegenübergestellt. Die Signale a und b befinden sich in guter Übereinstimmung mit den durch Videoaufnahmen ermittelten Umlaufzeiten der Konvektionsrollen a und b. Die Umlauffrequenz von Signal c stimmt gut mit der Erwartung für die Konvektionsrolle c überein.

Der Vergleich mit den aus anderen Experimenten extrapolierten Einsatzpunkten (Abb. 5.30) für hydrothermale Wellen zeigt, daß die gemessenen Signale bei einer etwas niedrigeren

Temperaturdifferenz als erwartet einsetzen. Allerdings stimmt der Einsatzpunkt von Signal a sehr gut mit der theoretischen Analyse von SMITH und DAVIS [Smith83] überein.

	$\Delta T_{\text{krit.}}$	
	thermische Welle	Oberflächenwelle
METZGER	3±1 K (*)	
MÖLLER	5,7±0,7 K	8,5±0,7 K (*)
SCHNEIDER	1,25 K	3,5±1 K (*)
PREISSER	18±3 K (*)	
VELTEN	4,1±1,7 K (*)	
SMITH und DAVIS (theoretisch)	1,25 K	
Signal a	1,36±0,4 K	
Signal b	3,35±0,4 K	
Signal c	1,90±0,7 K	

**Abb. 5.30** Kritische Temperaturdifferenzen thermischer Wellen, Oberflächenwellen und der gemessenen Temperaturdifferenzen.

Zusammengefaßt gibt es vier Argumente, die bei der Klärung des Ursprungs der Temperaturoszillationen a, b und c wichtig sind:

- Alle drei Signale zeigen einen qualitativ ähnlichen Frequenz- und Amplitudenverlauf. Es ist daher wahrscheinlich, daß sie durch die gleiche Art von Instabilität erzeugt werden.
- Alle drei Signale lassen sich der Umlauffrequenz einer beobachteten Konvektionsrolle zuordnen. Dieses Verhalten entspricht der Beschreibung einer thermischen Welle.
- Signal a hat den niedrigsten Einsatzpunkt aller gemessenen Signale. Dieser widerspricht nicht dem von bisherigen Experimenten erwarteten Einsatzpunkt für thermischen Wellen.

Nach diesen Experimenten und der theoretischen Betrachtung durch SMITH und DAVIS sind hydrothermale Wellen als zeitabhängige Instabilität bei der niedrigsten kritischen Temperaturdifferenz zu erwarten.

- Die Beobachtungen von HINTZ [Hintz99] (vergleiche Kapitel 5.6) zeigen im Meniskusbereich eine Erscheinung, die als thermische Welle gedeutet werden kann. Deren Ausbreitungsfrequenz liegt in der Größenordnung von Signal a.

Aus diesen Argumenten erscheint es sinnvoll, die Signale a, b und c als Temperaturoszillationen zu betrachten, die von thermischen Wellen, die sich im Meniskusbereich ausbreiten, ausgehen. Unklar ist, ob es sich dabei um hydrothermale Wellen oder um eine oszillatorische Rollenstruktur handelt.

Der Vergleich zwischen Signal a und a' zeigt eine gute Übereinstimmung beider Einsatzpunkte

$$\Delta T_{\text{krit.}}^a \sim \Delta T_{\text{krit.}}^{a'}$$

und

$$\nu_M^{a'} = 2.000405 \nu_{\text{crit.}}^a,$$

das heißt die Frequenz des Signals a' entspricht sehr genau der doppelte Frequenz von Signal a. Daraus kann geschlossen werden, daß es sich bei Signal a' um die erste Harmonische von Signal a handelt.

Auch der Amplitudenverlauf beider Signale stimmt gut überein. Das Amplitudenverhältnis

$$A^{a'}/A^a = 0,625$$

ist für eine Harmonische relativ groß. Es könnte sich daher auch um eine höhere Oszillationsmode der mit der ersten separierten Konvektionsrolle korrespondierenden thermischen Welle handeln.

Die Entwicklung von Signal d bei steigender Temperaturdifferenz unterscheidet sich deutlich von der bisher betrachteter Signale. Zunächst fällt auf, daß es sich um ein Signal mit nur einer relativ scharf begrenzten Frequenz handelt, während bei den Signalen b und c eine

Signalaufspaltung entsteht. Diese Singulettstruktur findet man nur bei Signal a, das deshalb als Vergleich dienen soll. Bis auf den Absolutwert der Frequenz gelten qualitativ alle Resultate auch für den Vergleich mit den Signalen a und b.

Frequenz und Einsatzpunkt von Signal d liegen deutlich über denen von Signal a:

$$\nu_{\text{krit. d}}/\nu_{\text{krit. a}} = 2,05$$

$$\Delta T_{\text{krit. d}}/\Delta T_{\text{krit. a}} = 4,65.$$

Vor allem unterscheidet sich der Frequenzverlauf. Zwar steigen die Frequenzen beider Signale annähernd linear mit der angelegten Temperaturdifferenz, jedoch beträgt die Frequenzsteigerung bei Signal d etwa das 14-fache von Signal a. Signal d wird also offensichtlich von einem andern Typ von Instabilität erzeugt als die Signale a, b und c.

In Experimenten zu dünnen Schichten [Schneider89] treten neben hydrothermalen Wellen und oszillatorischen Mehrfachrollen Oberflächenwellen auf. Kennzeichnend für diese Instabilität sind bei geringen Flüssigkeitshöhen gegenüber thermischen Wellen höhere kritische Marangonzahlen und geringere charakteristische Wellenlängen bei gleichzeitig höheren kritischen Frequenzen. Dies entspricht der theoretischen Analyse von SMITH und DAVIS [Smith83a].

SCHNEIDER findet für dünne Schichten von Ethanol, daß bei einer Flüssigkeitshöhe von  $d=2$  mm die Frequenz der Oberflächenwelle um  $0,15$  Hz/K steigt, während die Frequenz der thermischen Welle sich nur schwach ( $<0,001$  Hz/K bei  $h=1,2$  mm) mit der angelegten Temperaturdifferenz verändert. Dies stimmt gut mit den Beobachtungen für Signal d bzw. a überein.

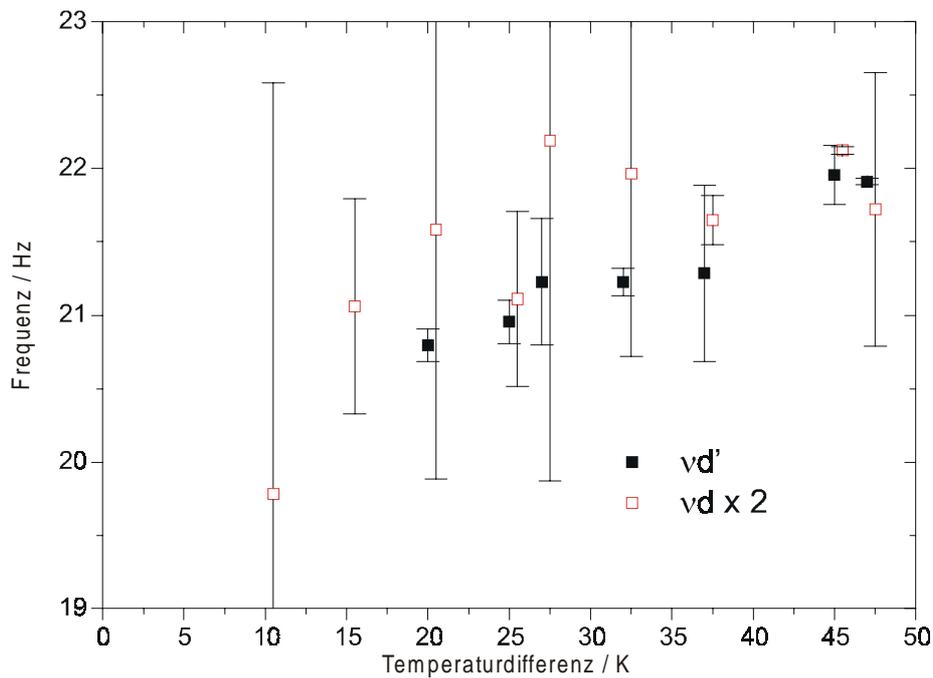
Wahrscheinlich wird Signal d also von Temperaturoszillationen, die von Oberflächenwellen ausgehen, erzeugt.

Die Frequenz von Signal d' entspricht gut der doppelten Frequenz von Signal d (Abb. 5.32). Die Übereinstimmung ist jedoch nicht so exakt wie bei den Signalen a und a'. Ebenso stimmen die kritischen Temperaturdifferenzen nicht überein.

Der Einsatzpunkt von Signal d' liegt bei einer gegenüber d etwa doppelten Temperaturdifferenz:

$$\Delta T_{\text{krit.}}^{d'} / \Delta T_{\text{krit.}}^d = 2,2.$$

Es handelt sich also bei Signal d' um eine von einer höheren Mode der Oberflächenwelle erzeugte Temperaturoszillation und nicht um die erste Harmonische des Signals d.



**Abb. 5.31** Vergleich der Temperaturveränderung von  $v_d$  und  $v_{d'}$ . Die ausgefüllten Rechtecke zeigen  $v_{d'}$ , die offenen die doppelte Frequenz von d.

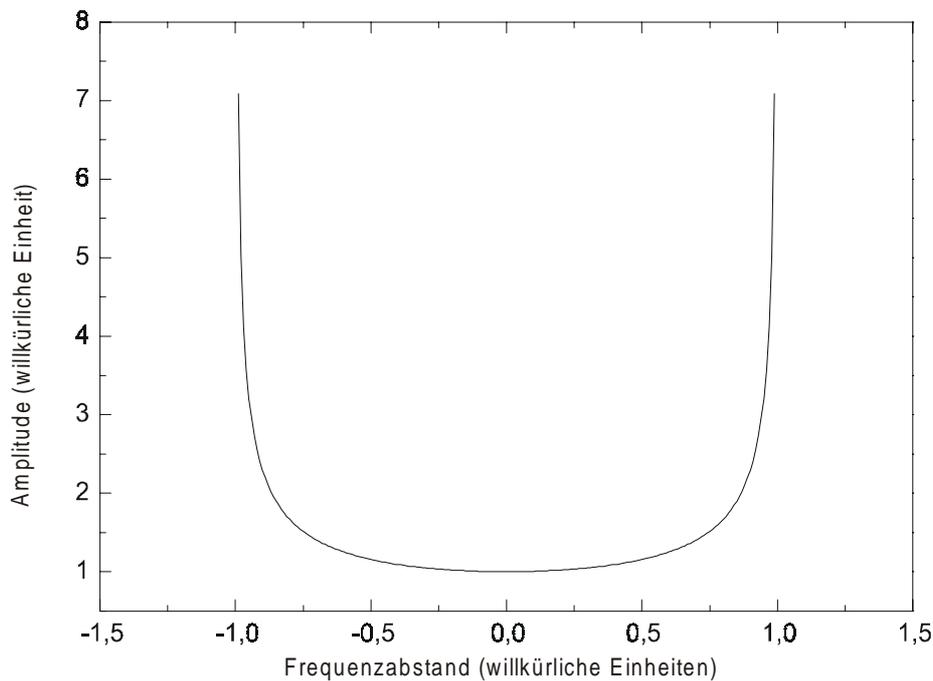
$T_M = 20\text{ °C}$ ,  $h = 1,5\text{ mm}$ ,  $L = 12\text{ mm}$ ,  $B = 41\text{ mm}$ .

 Datensatz auf CD.

Es bleibt die Frage zu klären, wie es zu der Aufspaltung der Signale der thermischen Wellen in mehrere Frequenzen kommt.

Beim Auftreten einer thermischen Welle oszilliert die Ausdehnung der betreffenden Konvektionsrolle. Die Frequenz der Temperaturoszillation ist an die Umlauffrequenz der Konvektionsrolle gekoppelt. Dabei stimmen Temperaturoszillation und Oszillation des Durchmessers der Konvektionsrolle ungefähr mit der Umlaufzeit überein.

In einem System mehrerer Rollen erzwingt eine Oszillation des Durchmessers einer Konvektionsrolle die entsprechende gegenphasige Oszillation weiterer Konvektionsrollen. Dabei wächst periodisch eine Rolle auf Kosten der benachbarten Konvektionsrolle und umgekehrt. In einem System mit stark unterschiedlichen Ausdehnungen und damit stark unterschiedlichen Umlauf- und Oszillationsfrequenzen, wie es im Meniskusbereich gegeben ist, führt dies zu einer Modulation der Oszillationsfrequenz einer Konvektionsrolle durch eine benachbarte Rolle.



**Abb. 5.32** Plot der Funktion  $t(\Delta r) \sim \frac{1}{\sqrt{1 - \Delta r^2}}$

Während der Oszillation der Konvektionsrolle a variiert deren Ausdehnung  $r_a$  um  $\Delta r_a(t) \sim \sin \omega_a t$  (mit  $r_a = r_a^0 + a \cdot \sin \omega_a t$ ,  $\Delta r_a(t) = r_a(t) - r_a(0)$ ). Dies bewirkt eine etwa gleich große Variation der Ausdehnung der Konvektionsrolle b ( $\Delta r_b = \Delta r_a$ ) und damit der Umlaufperiode  $\tau_b$  ( $\tau_b \sim r_b$ ):

$$\Delta \tau_b \sim \Delta r_b = \Delta r_a = a \cdot \sin \omega_a t$$

$$\tau_b(t) = \tau_b(0) + \Delta \tau_b(t) = \tau_b(0) + a \cdot \sin \omega_a t.$$

Betrachtet man, während welchen Zeitraums die Konvektionsrolle einen bestimmten Radius hat,

erhält man

$$t(r) \sim \frac{d}{dr} a \sin \Delta r$$

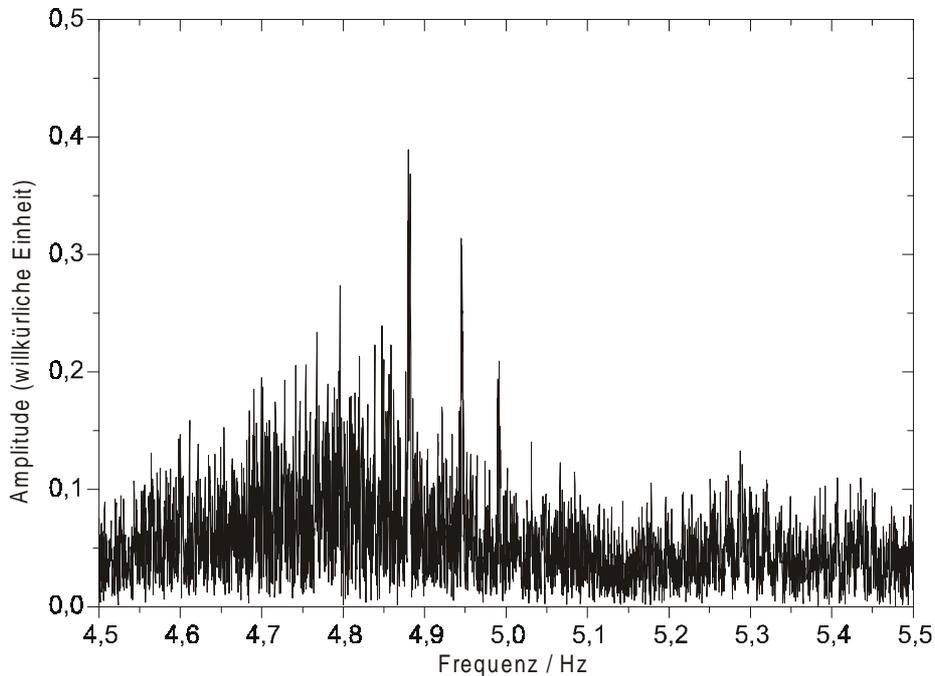
und damit

$$t(\Delta r) \sim \frac{1}{\sqrt{1 - \Delta r^2}}.$$

Aus  $\psi \sim r$  ergibt sich auch für die Amplitude einer Frequenz im Fourierspektrum

$$A(\Delta \psi) \sim t(\Delta r).$$

Diese Funktion wird von der gaußförmigen Verteilung der Oszillationsfrequenz überlagert. Qualitativ erhält man so durch eine Oszillation des Durchmessers einer Konvektionsrolle die Aufspaltung der Oszillationsfrequenz der benachbarten Konvektionsrolle in zwei Frequenzen.



**Abb. 5.33** Tripletstruktur des Signals *a*.

$\Delta T = 10,0 \text{ K}$ ,  $T_M = 20 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $h = 1,5 \text{ mm}$ ,  $L = 12 \text{ mm}$ ,  $B = 41 \text{ mm}$ .

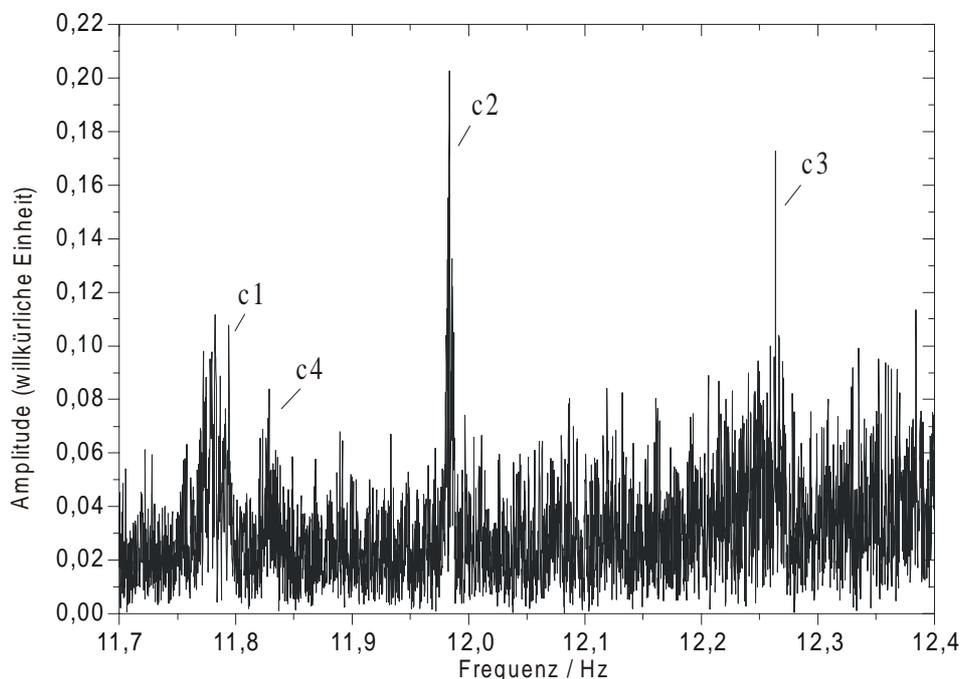
 Datensatz auf CD.

Existieren zwei oszillierende Konvektionsrollen können sie sich im Einfluß auf die dritte Konvektionsrolle verstärken oder abschwächen. Entsprechend wird das Signal der dritten

Konvektionsrolle weiter aufgespalten.

Dabei ist nicht nur ein Einfluß der größeren auf die kleinere Konvektionsrolle zu erwarten, sondern auch umgekehrt. Das heißt auch das Signal der Konvektionsrolle a sollte eine Tripletstruktur zeigen.

In der Tat findet man bei Signal a (Abb. 5.33) und Signal b ebenfalls eine Dreifachstruktur. Wie zu erwarten ist diese schwächer ausgeprägt als bei Signal c.



**Abb. 5.34** *Quadruplettstruktur des Signals c.*

$\Delta T = 27,5 \text{ K}$ ,  $T_M = 20 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $h = 1,5 \text{ mm}$ ,  $L = 12 \text{ mm}$ ,  $B = 41 \text{ mm}$ .

 Datensatz auf CD.

Bei höherer Auflösung des Signaltripletts c zeigt sich eine Aufspaltung in vier Signale. Diese Aufspaltung entsteht, da die sich gegenseitig beeinflussenden Konvektionsrollen unterschiedliche Radien besitzen. Es besteht also ein Unterschied, ob der Radius der ersten Rolle maximal ist, während der Radius der zweiten Rolle minimal ist oder umgekehrt. Wegen der meist geringen Ausprägung der Vierfachstruktur wird nur die Dreifachaufspaltung systematisch betrachtet.

Mit  $\Delta v \sim 1/\Delta \tau$  und  $\Delta \tau \sim \Delta r$  kann man die Oszillationsamplitude des Konvektionsrollenradius

berechnen:

$$\frac{\Delta r_a}{r_a} = \frac{\Delta \tau_{a \rightarrow b}}{\tau_a}$$

mit

$$\Delta \tau_{a \rightarrow b} = \tau_{b1} - \tau_{b2}.$$

Damit ergeben sich die in Abb. 5.35 dargestellten Amplituden der Oszillation des Radius.

Konvektionsrolle	Amplitude
a	1,73±0,3%
b	1,62±0,3%
c	3,2%

**Abb. 5.35** Amplitude der Oszillation des Radius der Konvektionsrollen.

Interessant ist, daß Konvektionsrolle a und b gut zusammenpassen, aber die Amplitude für Konvektionsrolle c prozentual gut doppelt so groß wie die von a und b ist. Dies läßt sich erklären, wenn man beachtet, daß im Gegensatz zu benachbarten Konvektionsrollen die kalte Wand nicht verschoben werden kann. Daher muß sich das Wirbelzentrum von c von der kalten Wand entfernen, wenn sich der Rollenradius vergrößert. Zieht man dies in Betracht, muß von der halben Amplitude für Konvektionsrolle c ausgegangen werden (Abb. 5.36).

Konvektionsrolle	Amplitude
a	1,73±0,3%
b	1,62±0,3%
c	1,6%

**Abb. 5.36** Amplitude der Oszillation des Radius der Konvektionsrollen.

Neben der Variation des Rollendurchmessers existiert eine weitere gegenseitige Beeinflussung der Konvektionsrollen, die zu weiteren Signalen im Fourierspektrum führt. Die von thermischen Wellen hervorgerufenen Temperaturoszillationen an der freien Oberfläche führen zu einer Veränderung des Temperaturgradienten der benachbarten Konvektionsrolle. Da die Amplitude der zeitabhängigen Strömung mit dem angelegten Temperaturgradienten steigt, entsteht so eine

Modulation der Amplitude einer thermischen Welle durch eine andere:

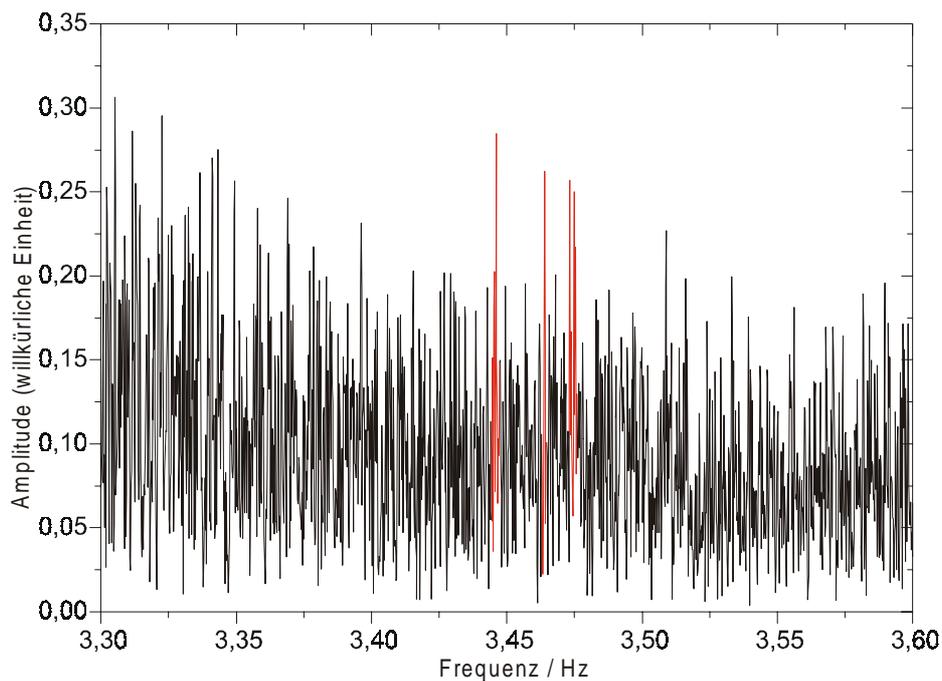
$$A_{TW}^b = c \cdot A_{TW}^a \cdot \cos \omega_{TW}^a \cdot t. \quad (14)$$

Das heißt, die Temperaturoszillation läßt sich beschreiben als:

$$T_{TW}^b = c' \cdot \cos(\omega_{TW}^b \cdot t) \cdot \cos(\omega_{TW}^a \cdot t)$$

$$T_{TW}^b = 1/2 c' \cdot \cos((\omega_{TW}^b - \omega_{TW}^a) \cdot t) + 1/2 c' \cdot \cos((\omega_{TW}^b + \omega_{TW}^a) \cdot t).$$

Dies entspricht der Umkehrung einer Schwebung. Dabei entstehen zwei weitere Temperaturoszillationen mit den Frequenzen  $\nu_a + \nu_b$  und  $\nu_a - \nu_b$ .



**Abb. 5.37** Fouriertransformierte des Temperatursignals bei 3,4 Hz.

$\Delta T = 15,0 \text{ K}$ ,  $T_M = 20 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $h = 1,5 \text{ mm}$ ,  $L = 12 \text{ mm}$   $B = 41 \text{ mm}$ .

 Datensatz auf CD.

Nachgewiesen werden konnten das Signal  $\nu_b - \nu_a = 3,4 \text{ Hz}$  bzw.  $\nu_c - \nu_b = 3,5 \text{ Hz}$  (Abb. 5.37) und die Signale  $\nu_b + \nu_a = 13,3 \text{ Hz}$  und  $\nu_b + \nu_c = 20,3 \text{ Hz}$  (beide Abb. 5.22).

Nicht gefunden wurden die Signale  $\nu_c + \nu_a = 16,9$  Hz und  $\nu_c - \nu_a = 7,1$  Hz, also die gegenseitige Beeinflussung der ersten Konvektionsrolle und der dritten Konvektionsrolle.

Die Amplitude der thermischen Welle c muß aus dem Thermoelementsignal gemessen werden. Bei einer gemessenen Amplitude bei  $\Delta T = 25$  K von etwa  $4,6 \mu\text{K}$  ergibt sich nach den Korrekturen laut Kap. 3.4 eine reale Amplitude der Temperaturoszillation am Thermoelement von ca. 73 mK. Vergleicht man diesen Wert mit der Oszillationsamplitude am Thermoelement der thermischen Welle b von ca. 80 mK, kann man erwarten, daß auch die Oszillationsamplitude an der Oberfläche in der Größenordnung von 0,5 K liegt.

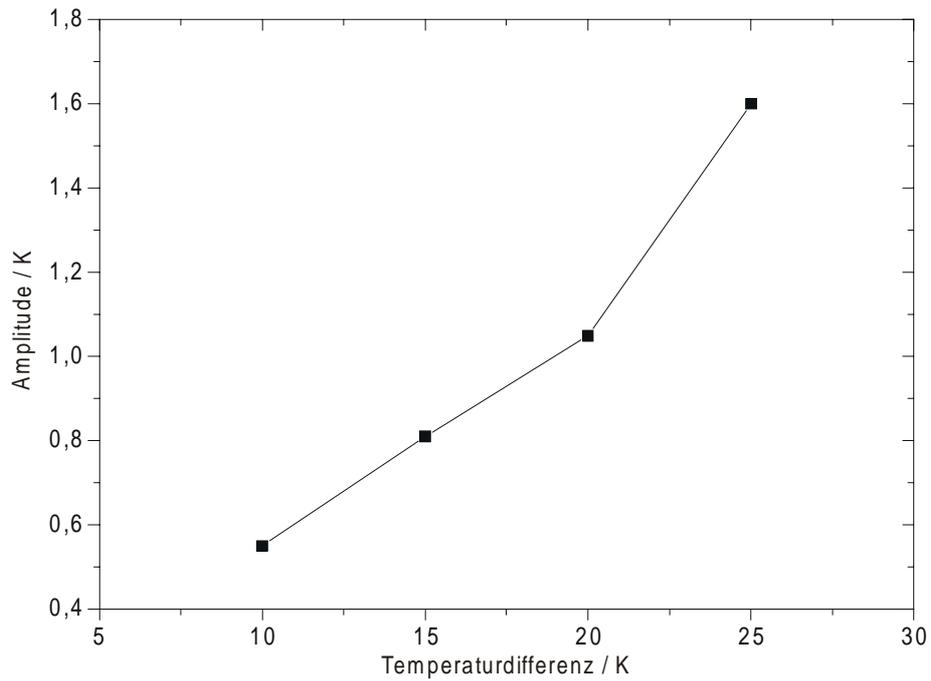
Zur Berechnung der Temperaturoszillationen am Thermoelement für die Oberflächenwelle d' muß die räumliche Ausdehnung der Struktur geschätzt werden.

Geht man von der gleichen Größenordnung wie bei der thermischen Welle a aus, erhält man eine Amplitude von ca. 80 mK, bei kleineren Strukturen ergibt sich eine entsprechend größere Amplitude. Durch Vergleich mit den thermischen Wellen ergibt sich eine Amplitude der Temperaturoszillation an der Oberfläche von 0,5 K. Da es sich bei der Oberflächenwelle um eine oberflächennahe Instabilität handelt, ist dieser Wert als untere Abschätzung zu sehen.

Wie aus (14) abzulesen ist, gibt das Verhältnis der Schwebenamplitude zur Amplitude der modulierten Konvektionsrolle an, um welchen Faktor die erste Konvektionsrolle den Temperaturgradienten der zweiten Konvektionsrolle verändert. Da der Temperaturgradient im Meniskusbereich bekannt ist, kann so die Oszillationsamplitude des Temperaturgradienten an einer Konvektionsrolle bestimmt werden. Geht man davon aus, daß die Temperaturvariation sich ungefähr so weit ausdehnt wie die eigentliche Konvektionsrolle, kann die Amplitude der Temperaturoszillation an der freien Oberfläche bestimmt werden.

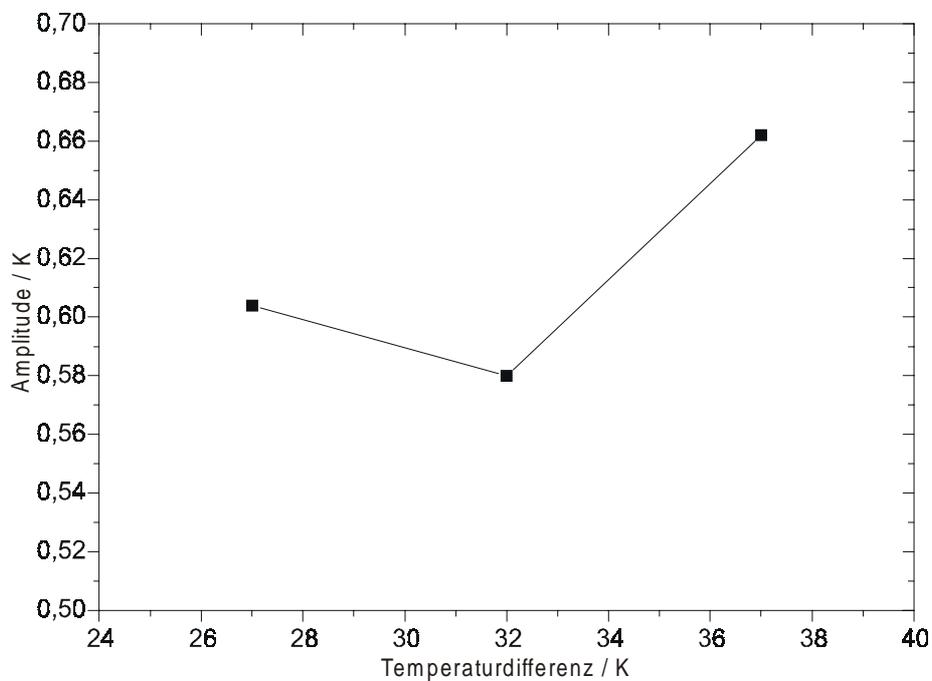
Geht man davon aus, daß die durch eine kurzzeitige Temperaturerhöhung verringerte Oberflächenenergie vorwiegend durch Vergrößerung der freien Oberfläche ausgeglichen wird, kann man die Amplitude der von Temperaturoszillationen ausgehenden Oberflächen-deformationen grob schätzen.

Dazu seien die Maximal- und Minimalwerte  $T_{\min}$  und  $T_{\max}$  der Temperatur an der freien Oberfläche während einer Oszillationsperiode betrachtet.



**Abb. 5.39** Amplitude der Temperaturoszillation der thermischen Welle *a* an der Oberfläche  
 $T_M=20\text{ }^\circ\text{C}$ ,  $h=1,5\text{ mm}$ ,  $L=12\text{ mm}$ ,  $B=41\text{ mm}$ .

 Datensatz auf CD.



**Abb. 5.38** Amplitude der Temperaturoszillation der thermischen Welle *b* an der Oberfläche  
 $T_M=20\text{ }^\circ\text{C}$ ,  $h=1,5\text{ mm}$ ,  $L=12\text{ mm}$ ,  $B=41\text{ mm}$ .

 Datensatz auf CD.

Die korrespondierende Oberfläche sei bei  $T_{\min}$  eine flache Oberfläche:

$$A_{\min} = \Delta x \cdot \Delta y$$

mit  $\Delta x$  und  $\Delta y$  der räumlichen Ausdehnung der Konvektionsrolle.

Bei  $T_{\max}$  werde diese Oberfläche dreieckförmig vergrößert:

$$A_{\max} = \sqrt{\Delta x^2 + \Delta z^2} \cdot \Delta y$$

mit  $\Delta z$  der Auslenkung der freien Oberfläche in z-Richtung.

Wegen

$$\sigma(T_{\min}) \cdot A_{\min} = \sigma(T_{\max}) \cdot A_{\max}$$

findet man

$$\sqrt{\frac{\sigma(T_{\min})^2}{\sigma(T_{\max})^2} - 1} = 2 \cdot \frac{\Delta z}{\Delta x}$$

Die potentielle Energie

$$\rho \cdot g \cdot \Delta z \cdot \Delta y \cdot \frac{1}{2} \Delta z$$

ist für  $\Delta z = 5 \mu\text{m}$  etwa 1000 mal kleiner als die Differenz der Oberflächenenergien

$$\Delta x \cdot \Delta y \cdot \Delta T \cdot \frac{d\sigma}{dx}$$

und kann vernachlässigt werden.

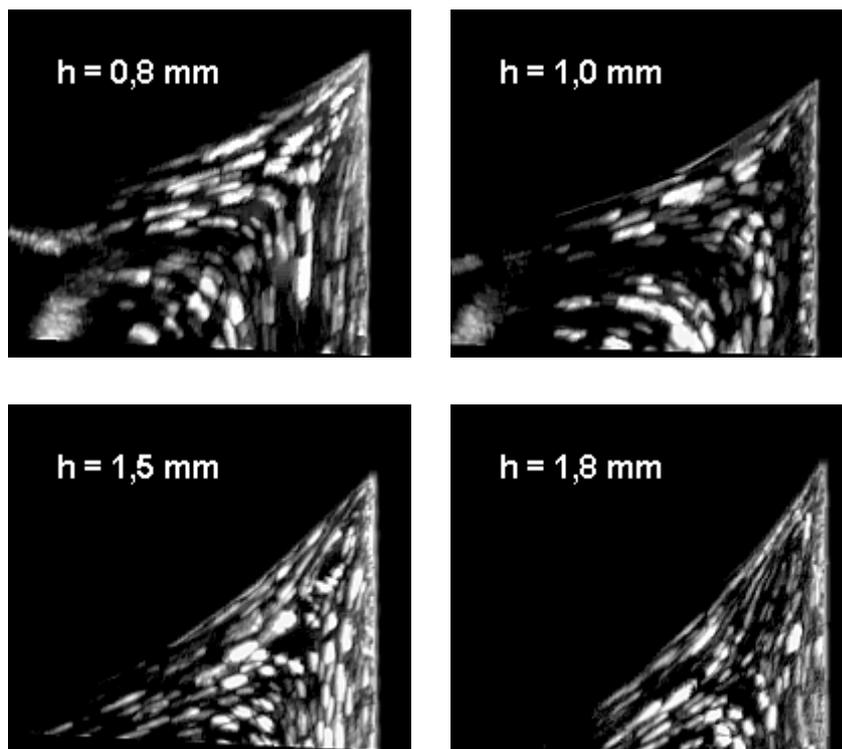
Damit ergibt sich für die thermische Welle a  $\Delta z_a \sim 5 \mu\text{m}$  und für die thermale Welle b  $\Delta z_b \sim 1,4 \mu\text{m}$ .

Laut den oben gemachten Schätzungen für die Temperaturamplitude an der freien Oberfläche

liegt die Oberflächendeformation der thermischen Welle  $c$  bei  $\Delta z \sim 0,7 \mu\text{m}$ , für die Oberflächenwelle  $d'$  ergeben sich  $\Delta z \sim 3 \mu\text{m}$ . Der letzte Wert ist eine grobe Schätzung und muß als untere Grenze angesehen werden.

SCHNEIDER [Schneider95] gibt für die Amplitude der hydrothermalen Welle  $2-8 \mu\text{m}$  an. Dies stimmt gut mit den in dieser Arbeit bestimmten Werten überein. Die Amplitude der Oberflächenwelle wurde von SCHNEIDER zu  $5-15 \mu\text{m}$  bestimmt. Dieser Wert liegt über der oben abgeschätzten Oszillationsamplitude. Die von SCHNEIDER gemessenen Temperaturoszillationen am Thermoelement liegen bei etwa  $200 \text{ mK}$  und damit unter den in dieser Arbeit bestimmten Werten. Man kann daher erwarten, daß die Amplitude über der Schätzung von  $3 \mu\text{m}$  liegt.

## 5.6 Einfluß der Unterfüllung



**Abb. 5.40** Stromlinienaufnahmen des Meniskusbereichs bei verschiedenen Unterfüllungen.

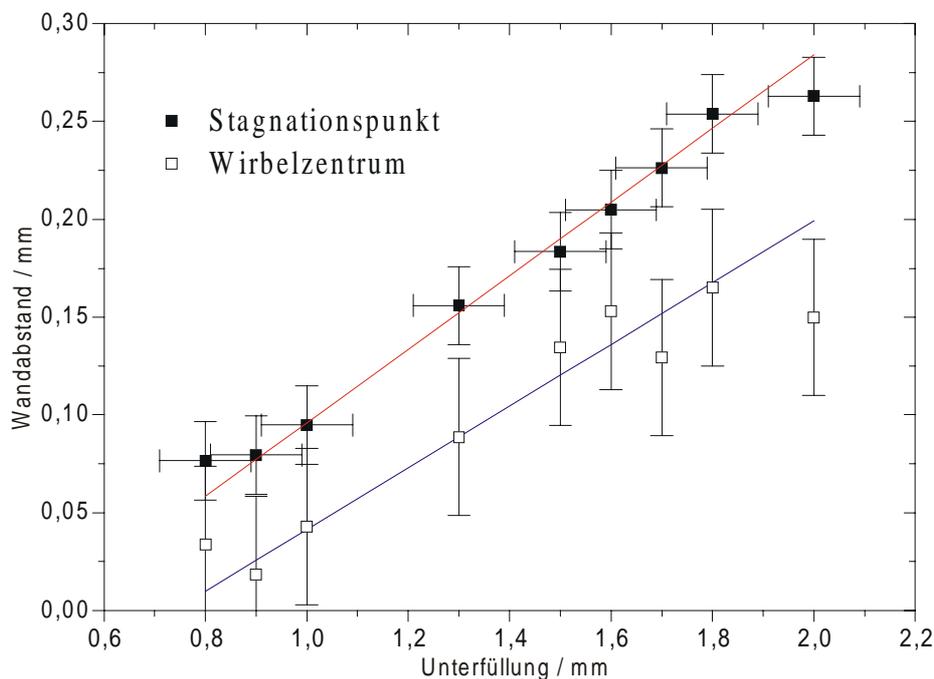
$\Delta T = 45,5 \text{ K}$ ,  $T_M = 20 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $L = 12 \text{ mm}$ ,  $B = 41 \text{ mm}$ ,  $h = 1,8$ .

 Video des Meniskusbereich auf CD.

Nach den Überlegungen aus Kap. 5.3 separiert sich die erste Konvektionsrolle an einem Stagnationspunkt der durch eine gewisse Krümmung der freien Oberfläche gekennzeichnet ist.

Aus Gleichung (7) erkennt man, daß sich dieser Punkt mit zunehmender Unterfüllung von der kalten Thermode entfernt.

Abb. 5.40 zeigt Aufnahmen aus dem Meniskusbereich bei zunehmender Unterfüllung. Bei geringer Unterfüllung ist die Konvektionsrolle  $a$  klein und nur schwer zu erkennen. Mit zunehmender Unterfüllung vergrößert sich die Ausdehnung der Konvektionsrolle und ab  $h \sim 1,5$  mm ist die Konvektionsrolle gut zu erkennen.



**Abb. 5.41** Entwicklung der Ausdehnung der Konvektionsrolle  $a$  bei zunehmender Unterfüllung  $h$ . Die rote Kurve mit ausgefüllten Symbolen gibt den Abstand des Stagnationspunktes vor der Konvektionsrolle von der kalten Wand, die blaue Kurve mit den offenen Symbolen die Lage des Wirbelzentrums an.

$\Delta T = 45,5$  K,  $T_M = 20$  °C,  $L = 12$  mm,  $B = 41$  mm,  $h = 1,8$  mm.

 Datensatz auf CD.

In Abb. 5.41 ist der Abstand entlang der x-Achse des Wirbelzentrums von der kalten Thermode gegenüber der Unterfüllung  $h$  aufgetragen. Wie erwartet nimmt der Abstand nahezu linear mit  $h$  zu. Das gleiche gilt für den Stagnationspunkt vor der Konvektionsrolle an der sich die Rolle separiert. Ab  $h \sim 1,8$  mm entfernen sich weder Stagnationspunkt noch Wirbelzentrum weiter von der Wand. Ab diesem Wert übersteigt der Kontaktwinkel zwischen Oberfläche und Thermode den natürlichen Benetzungswinkel, so daß die Flüssigkeitsoberfläche von der Thermodenkante

abreißt. Dadurch ändert sich bei weiterer Vergrößerung der Unterfüllung die Oberflächenform und damit die Lage und Ausdehnung der Konvektionsrolle nicht mehr.

Wegen

$$Ma = -\frac{d\sigma}{dT} \frac{1}{\eta\chi} \cdot d \cdot a \cdot \frac{dT}{dx}$$

mit

a der Ausdehnung des separierten Meniskusgebiets in x

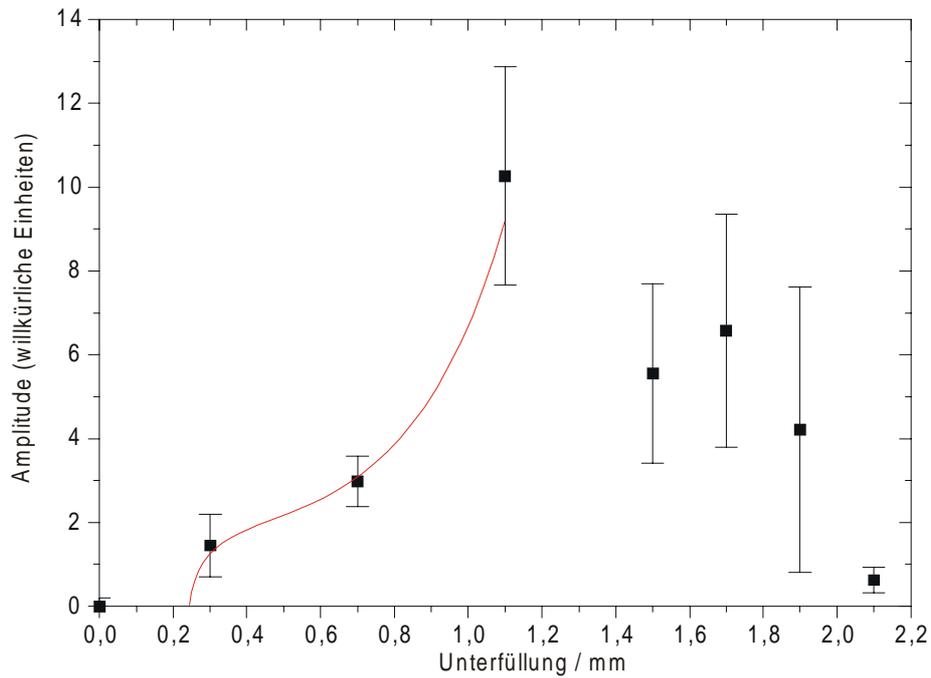
d der Ausdehnung des separierten Meniskusgebiets in z

bedeutet die Vergrößerung des durch den Meniskus separierten Bereichs einen Anstieg der Marangonizahl dieses Gebiets.

Aus diesem Grund zeigt die Signalamplitude der Temperaturosillationen mit zunehmender Unterfüllung einen Verlauf, der dem Verhalten bei steigender angelegter Temperaturdifferenz  $\Delta T$  ähnelt. Nach Einsetzen der Temperaturosillation verläuft die Signalamplitude annähernd wurzelförmig mit der Unterfüllung. Bei den meisten Signalen steigt sie bei einer Unterfüllung von etwa  $h=1,0$  mm bis  $h=1,5$  mm erneut an und bildet so eine S-Kurve.

Sofern bestimmbar, liegen die Einsatzpunkte zwischen  $h_{\text{krit.}}=0,1$  und  $h_{\text{krit.}}=0,25$  mm. Dies entspricht einer Marangonizahl von  $Ma_{\text{krit.}} \sim 200$  bis  $Ma_{\text{krit.}} \sim 400$  (nach Extrapolation der Meniskusdimension). Dies entspricht gut den in Kap. 5.5 bestimmten Einsatzpunkten  $Ma_{\text{krit.}}^a=190$ ,  $Ma_{\text{krit.}}^b=470$  und  $Ma_{\text{krit.}}^c=270$ .

Auch die Lage des zweiten Anstiegs der S-Kurve stimmt mit Kap. 5.5 überein. Für die thermischen Wellen a und b liegt der Anstieg bei  $h \sim 1$  mm bis  $h \sim 1,5$  mm also bei  $Ma \sim 2400$  bis  $Ma \sim 3500$ . Dies entspricht einer umgerechneten Temperaturdifferenz von  $\Delta T \sim 17$  K bis  $\Delta T \sim 25$  K in den Abb. 5.23 bis 5.27. Für Signal c ergibt sich  $h \sim 0,8 \dots 1,0$  mm ( $Ma \sim 1900 \dots 2400$ ) und für Signal d ist  $h \sim 2,0$  mm ( $Ma \sim 4700$ ). Dies entspricht  $\Delta T \sim 14 \dots 17$  K und  $\Delta T \sim 35$  K.

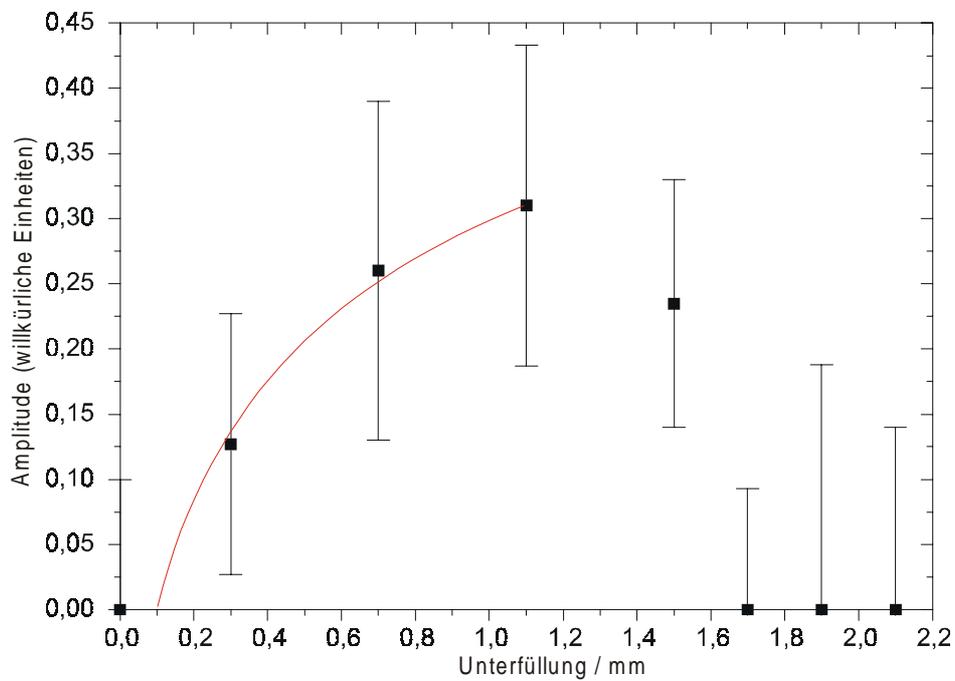


**Abb. 5.42** Amplitudenverlauf des Signals *a* bei zunehmender Unterfüllung *h*.

$\Delta T=25,0$  K,  $T_M=20$  °C,  $L=12$  mm,  $B=41$  mm.

☞ Signale *a'*, *b* und *c* auf CD.

☞ Datensatz auf CD.



**Abb. 5.43** Amplitudenverlauf des Signals *d'* bei zunehmender Unterfüllung *h*.

$\Delta T=25,0$  K,  $T_M=20$  °C,  $L=12$  mm,  $B=41$  mm.

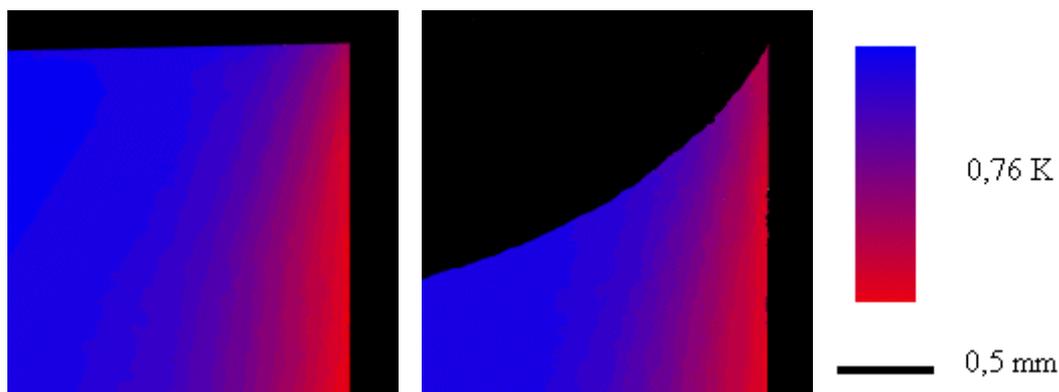
☞ Signal *d* auf CD.

☞ Datensatz auf CD.

Signal	Einsatzpunkt $h_{\text{krit.}}$
a	$0,18 \pm 0,1$ mm
a'	$0,22 \pm 0,1$ mm
b	-
c	$0,26 \pm 0,1$ mm
d	-
d'	$0,127 \pm 0,1$ mm

**Abb. 5.44** Einsatzpunkte der Temperaturoszillation.

$\Delta T = 25,0$  K,  $T_M = 20$  °C,  $L = 12$  mm,  $B = 41$  mm.



**Abb. 5.45** Vergleich der thermischen Grenzschicht an der Oberfläche bei flach gefüllter Küvette und bei Ausbildung eines Meniskus.

$\Delta T = 1$  K,  $T_M = 30$  °C. Nach [Dürr91].

Bei Absenkung des Flüssigkeitsspiegels in der Küvette wird das im Meniskus eingeschlossene Flüssigkeitsvolumen immer stärker vom Wärmetransport der Hauptkonvektion in der Küvette abgekoppelt. Dies geschieht indem die von der warmen Thermode kommende warme Flüssigkeit im Meniskusbereich immer weniger der Oberfläche folgt und vermehrt in das Flüssigkeitsvolumen abtaucht. Dabei verringert sich der konvektive Wärmetransport in den Meniskusbereich. Der so zunehmende Einfluß des diffusiven Wärmetransports zur kalten Thermode vergrößert die thermische Grenzschicht und läßt den Meniskusbereich abkühlen.

Anders ausgedrückt ist nach der Kontinuitätsgleichung  $A_{\text{Anstrom}} \cdot v_{\text{Anstrom}} = A_{\text{Meniskus}} \cdot v_{\text{Meniskus}}$  die

Strömungsgeschwindigkeit im Meniskusbereich  $v_{\text{Meniskus}}$  geringer als die der anströmenden Flüssigkeit  $v_{\text{Anstrom}}$ .

Wegen

$$d_{\text{th}} = \frac{L}{\sqrt{v_{\text{Meniskus}} \cdot \frac{L}{\chi}}},$$

$$A_{\text{Meniskus}} \sim h + \text{const.}$$

und

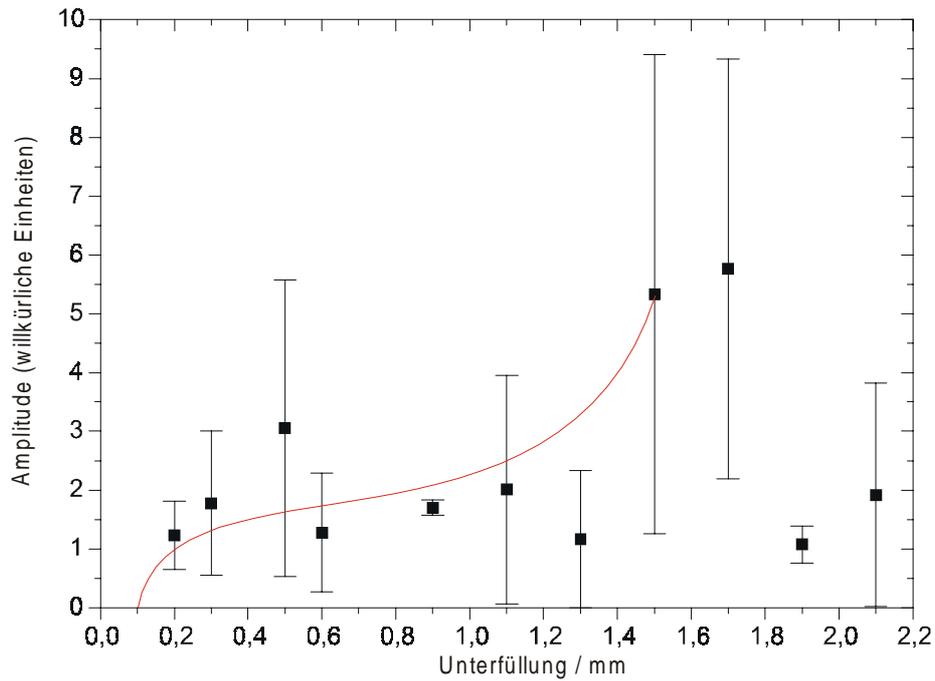
$$A_{\text{Anstrom}} = \text{const.}$$

dehnt sich die thermische Grenzschicht wurzelförmig mit der Unterfüllung  $h$  aus.

Abb. 5.45 zeigt die Veränderung der thermischen Grenzschicht bei Erzeugung eines Meniskus. Insbesondere sehr nahe an der Flüssigkeitsoberfläche erkennt man eine Verschiebung der Isothermen von der kalten Thermode weg (im Bild nach links) und damit eine Verringerung des Temperaturgradienten.

Gleichzeitig wird mit Ausbildung des Meniskus die freie Oberfläche der Flüssigkeit vergrößert und damit der Temperaturgradienten entlang der freien Oberfläche verringert. Nahe der kalten Thermode verläuft dieser Effekt ab einem Kontaktwinkel von ungefähr  $45^\circ$  (ca. 1 mm Unterfüllung) näherungsweise linear. Zusammen mit der Ausweitung der thermischen Grenzschicht nimmt der Temperaturgradient im Meniskusbereich bei steigender Unterfüllung der Küvette überlinear ab. Dieser Effekt ist von der Kühlung der vergrößerten Oberfläche durch Verdampfung überlagert.

Durch den kleiner werdenden Temperaturgradienten im Meniskusbereich sinkt die Amplitude der Temperatursignale bei zunehmender Unterfüllung und es bildet sich ein Amplitudenmaximum bei einer gewissen Unterfüllung. Je stärker ein Signal ist, desto später macht sich die Abnahme des Temperaturgradienten bemerkbar, das heißt erst bei um so größeren Unterfüllungen sinkt die Signalamplitude erneut. Bei geringen Amplituden liegt das Maximum bei kleineren Unterfüllungen als bei großen Amplituden.

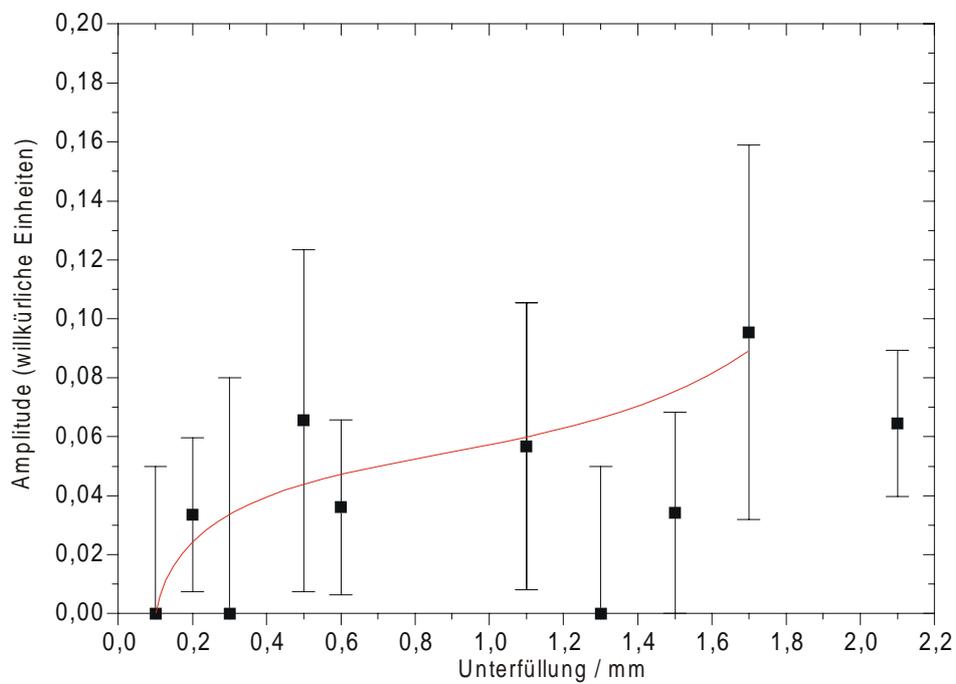


**Abb. 5.46** Amplitudenverlauf des Signals *a* bei zunehmender Unterfüllung *h*.

$\Delta T=45,0$  K,  $T_M=20$  °C,  $L=12$  mm,  $B=41$  mm.

☞ Signale *a'*, *b* und *c* auf CD.

☞ Datensatz auf CD.



**Abb. 5.47** Amplitudenverlauf des Signals *d'* bei zunehmender Unterfüllung *h*.

$\Delta T=45,0$  K,  $T_M=20$  °C,  $L=12$  mm,  $B=41$  mm.

☞ Signal *d* auf CD.

☞ Datensatz auf CD.

Bei einer angelegten Temperaturdifferenz von  $\Delta T=45,0$  K (Abb. 5.46 und Abb. 5.47) zeigt sich ein gegenüber  $\Delta T=25,0$  K qualitativ unverändertes Bild. Wie zu erwarten, steigt die Signalamplitude gegenüber  $\Delta T=25$  K an. Die Lage des Amplitudenmaximums verschiebt sich entsprechend zu größeren Unterfüllungen. Die Einsatzpunkte der Signale liegen zwischen  $h_{\text{krit.}} \sim 0,1$  mm und  $h_{\text{krit.}} \sim 0,15$  mm. Dies entspricht kritischen Marangonzahlen zwischen  $Ma_{\text{krit.}}=360$  und  $Ma_{\text{krit.}}=540$ . In Anbetracht des großen Fehlers bei der Bestimmung der Einsatzpunkte stimmen diese gut mit den bei  $\Delta T=25$  K und in Kap. 5.5 bestimmten Werten überein.

Signal	Einsatzpunkt $h_{\text{krit.}}$
a	$0,12 \pm 0,1$ mm
a'	$0,13 \pm 0,1$ mm
b	-
c	$0,15 \pm 0,1$ mm
d	$0,10 \pm 0,1$ mm
d'	-

**Abb. 5.48** Einsatzpunkte der Temperaturoszillation.

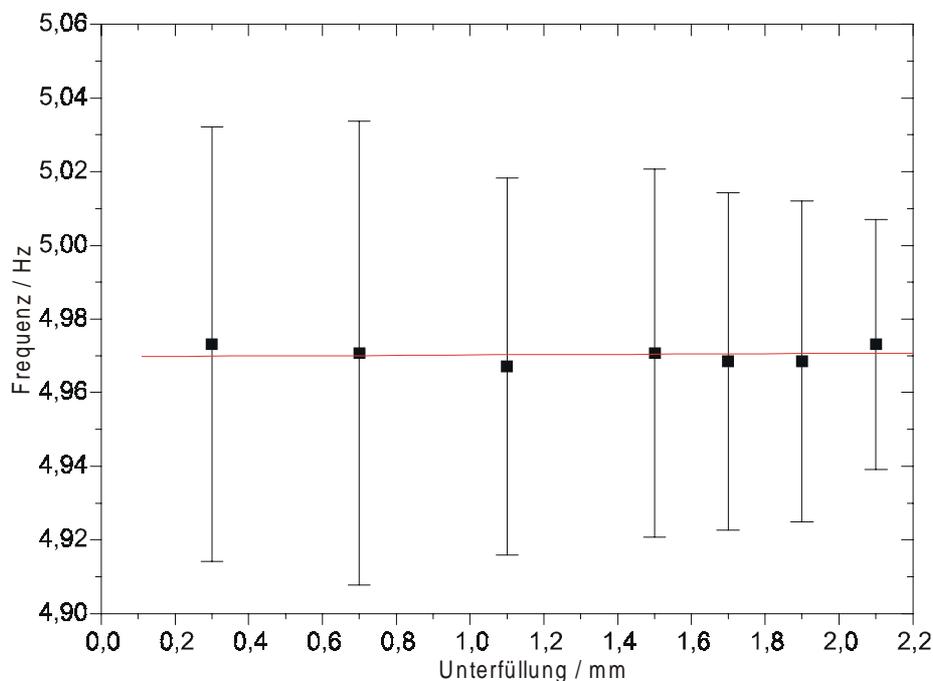
$$\Delta T=45,0 \text{ K}, T_M=20 \text{ }^\circ\text{C}, L=12 \text{ mm}, B=41 \text{ mm}.$$

Bei Veränderung der Unterfüllung wird die Signalfrequenz der thermischen Welle durch zwei konkurrierende Effekte beeinflusst:

- Wird beim Absenken des Flüssigkeitsspiegels der Radius der Konvektionsrolle vergrößert, bewirkt dies ein Ansteigen des Umfangs. Gleichzeitig wird die an die Konvektionsrolle angreifende Temperaturdifferenz erhöht, so daß die Strömungsgeschwindigkeit in der Rolle steigt. Beide Effekte sind linear mit dem Radius der Konvektionsrolle verknüpft, so daß ein geringer Einfluß auf die Umlauffrequenz der Konvektionsrolle zu erwarten ist. Befindet sich die Konvektionsrolle nahe der kalten Wand, so kann sie sich nur entlang der freien Oberfläche ungehindert ausdehnen. Mit zunehmendem Radius wird sie in ihrer Ausdehnung senkrecht zur Oberfläche von der

kalten Wand begrenzt. Damit kann der Umfang nicht im gleichen Maß wie der Temperaturgradient anwachsen; die Umlauffrequenz steigt. Dieser Effekt ist um so stärker, je näher die Konvektionsrolle sich an der kalten Wand befindet.

- Auf der anderen Seite sinkt mit zunehmender Unterfüllung der Temperaturgradient. Da die Umlauffrequenz der Konvektionsrolle linear mit dem angelegten Temperaturgradienten steigt, bedeutet dies ein Sinken der Umlauffrequenz mit zunehmender Unterfüllung. Auch dieser Effekt ist um so größer, je näher die Konvektionsrolle sich an der kalten Wand befindet.



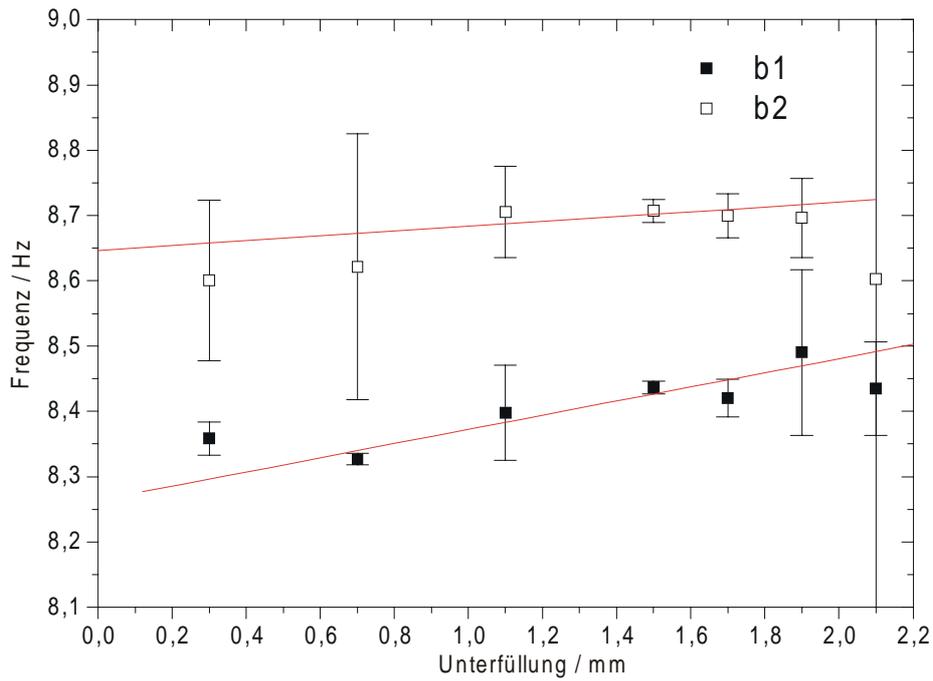
**Abb. 5.49** Einfluß der Unterfüllung  $h$  auf die Frequenz der thermischen Welle  $a$ .

$\Delta T = 25,0 \text{ K}$ ,  $T_M = 20 \text{ °C}$ ,  $L = 12 \text{ mm}$ ,  $B = 41 \text{ mm}$ .

 Signal  $a'$  auf CD.

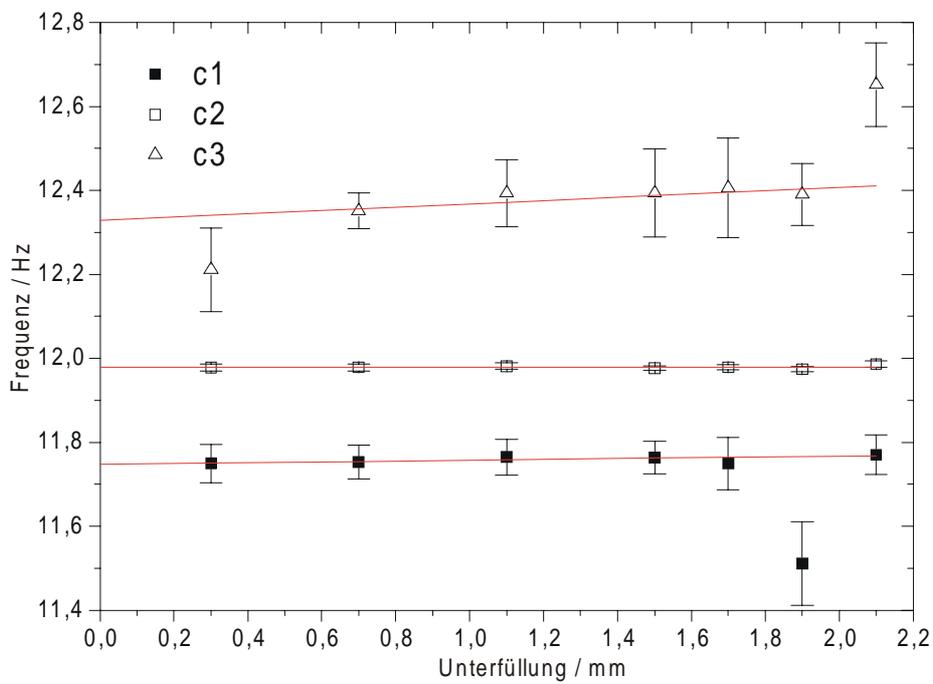
 Datensatz auf CD.

Die erste separierte Konvektionsrolle hat nur wenig Kontakt mit der kalten Wand, so daß deren Einfluß klein ist. Entsprechend verändern sich die Signalfrequenz  $\nu_a$  nur wenig.



**Abb. 5.50** Einfluß der Unterfüllung  $h$  auf die Frequenz der thermischen Welle  $b$ ,  $\nu_b^1$  und  $\nu_b^2$ .  
 $\Delta T=25,0$  K,  $T_M=20$  °C,  $L=12$  mm,  $B=41$  mm.

Datensatz auf CD.

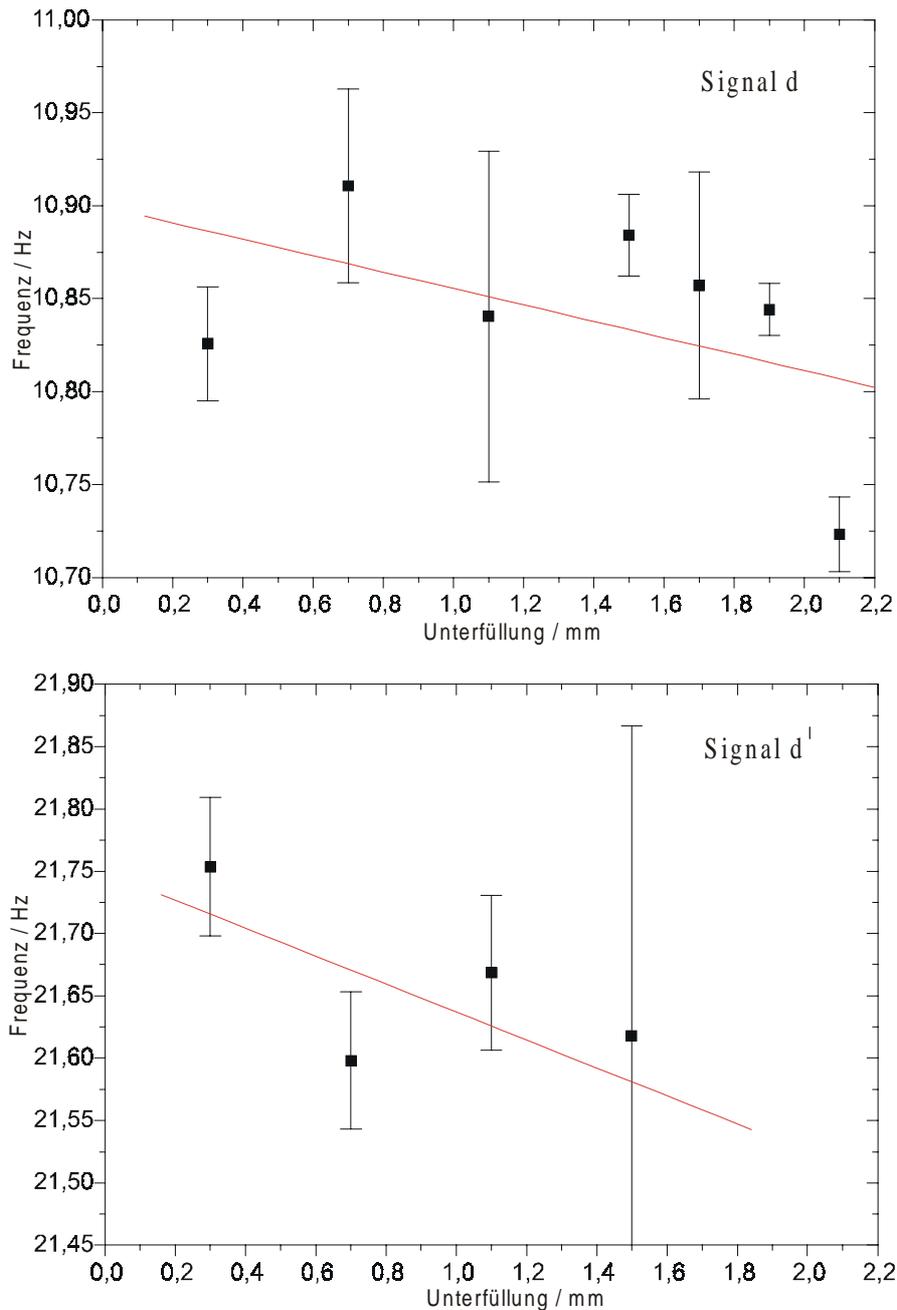


**Abb. 5.51** Einfluß der Unterfüllung  $h$  auf die Frequenz der thermischen Welle  $c$ ,  $\nu_c^1$  bis  $\nu_c^3$ .  
 $\Delta T=25,0$  K,  $T_M=20$  °C,  $L=12$  mm,  $B=41$  mm.

Datensatz auf CD.

Bei der thermischen Welle b (2. Konvektionsrolle) ist der Einfluß der kalten Wand stärker. Im Gegensatz zu Signal a steigt der Mittelwert von  $v_b^1$  und  $v_b^2$  deutlich.

Auch der Mittelwert von  $v_c^1 \cdot v_c^3$  steigt, jedoch etwas geringer als bei Signal b. Wahrscheinlich gewinnt die kalte Wand gegenüber Signal b nur noch wenig Einfluß, gleichzeitig nimmt der Temperaturgradient stärker ab.



**Abb. 5.52** Einfluß der Unterfüllung auf die Frequenz der Oberflächenwelle.

$\Delta T = 25,0 \text{ K}$ ,  $T_M = 20 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $L = 12 \text{ mm}$ ,  $B = 41 \text{ mm}$ .

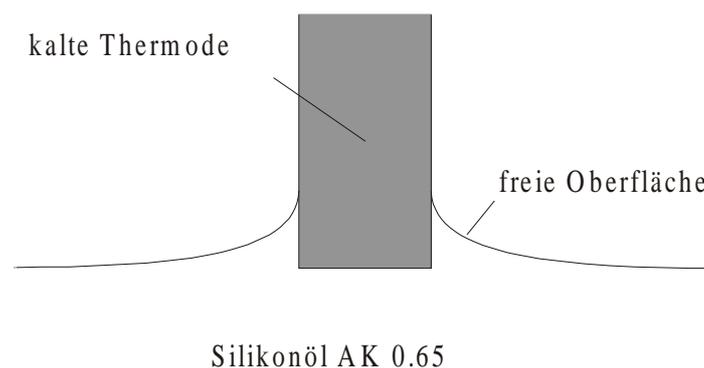
 Datensatz auf CD.

Bei den Signalen b und c fällt auf, daß die Frequenzaufspaltung mit zunehmender Unterfüllung abnimmt. In Kap. 5.5 wurde beschrieben, daß Temperaturoszillationen zu einer Oszillation der Ausdehnung der Konvektionsrolle führen. Dies beeinflusst wiederum die Ausdehnung einer benachbarten Konvektionsrolle. Mit zunehmender Unterfüllung wächst der Radius der Konvektionsrolle und Temperaturoszillationen führen zu einer, im Verhältnis zum Radius der Rolle, geringeren Veränderung. Auch der relative Einfluß auf die Nachbarrolle sinkt und die Frequenzaufspaltung verringert sich.

Die Oberflächenwellen (Signale d und d') sind nicht sensitiv auf eine Beeinflussung durch die kalte Thermode. Mit zunehmender Unterfüllung nehmen die Frequenzen  $\nu_d$  und  $\nu_{d'}$  entsprechend dem kleiner werdenden Temperaturgradienten ab.

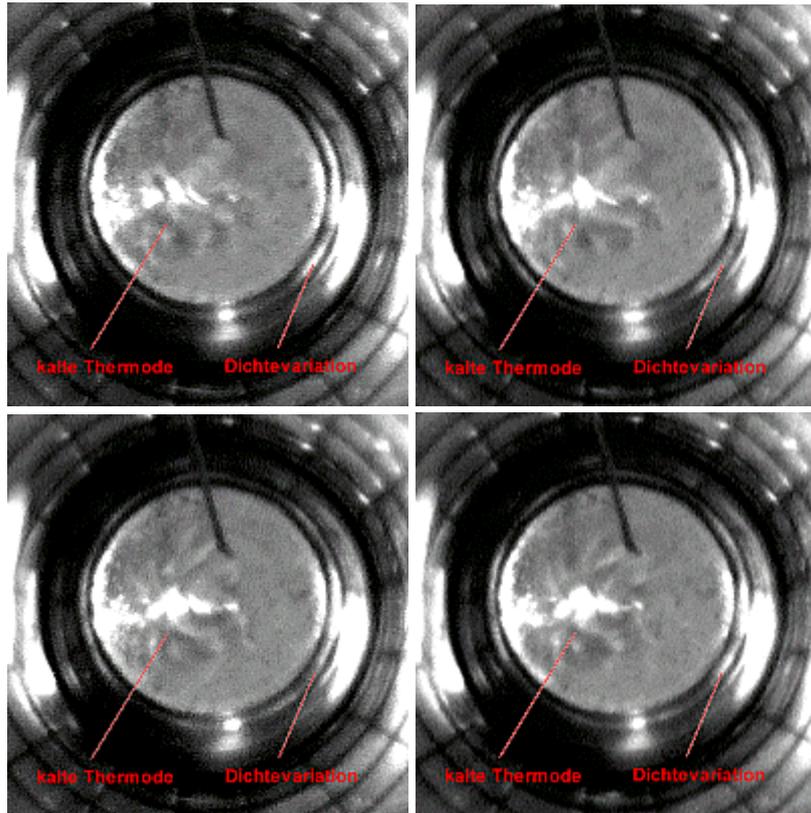
## 5.7 Wellen im Meniskusbereich

Bei der für diese Arbeit verwendeten Küvette ist nur die Beobachtung durch die transparenten Seitenwände und von oben auf die freie Oberfläche möglich. HINTZ [Hintz99] war es dagegen möglich, im Aufbau in Czochralski-Geometrie den Meniskusbereich an der kalten Thermode von unten durch den Gefäßboden zu untersuchen. Bei Einstellung einer Meniskusform, die er "Modellmeniskus" nennt (Abb. 5.53) beobachtete er Schlieren im Meniskusbereich, die auf eine Variation der Dichte im Meniskus oder auf eine Oberflächendeformation im Meniskusbereich deuten.



**Abb. 5.53** Meniskusform beim Auftreten der hydrothermalen Welle im Czochralski-Aufbau. Die kalte Thermode befindet sich auf gleicher Höhe wie die Experimentierflüssigkeit. Sie wird benetzt, so daß sich ein Meniskus bildet. Diese Konfiguration hat - abgesehen von der Zylindergeometrie im Czochralski-Aufbau - große Ähnlichkeit mit der Meniskusbildung in der Küvette.

Die Schlieren laufen azimuthal um die kreisförmige innere und kalte Thermode. Die Umlaufrichtung ist dabei zufällig und nicht vorhersagbar. Radial besitzen sie eine Ausdehnung von der Größenordnung der Meniskusausdehnung (ca. 1 mm). Die Wellenlänge beträgt  $\lambda=3,5\pm 0,5$  mm. Durch Auszählen der Videobilder wurde eine Frequenz von  $\nu=3,19\pm 0,04$  Hz und damit eine Ausbreitungsgeschwindigkeit von  $1,1\pm 0,15$  mm/s bestimmt.



**Abb. 5.54** Aufnahme der Schlieren im Meniskusbereich. In der Mitte befindet sich die kreisförmige kalte Thermode. Um sie herum beobachtet man laufende Temperaturschlieren oder Oberflächendeformationen. Die radialen und azimuthalen Linien stammen von einer Meßscheibe, die sich über dem Experiment befinden. Die starken Reflexe stammen von der Beleuchtung. Die Aufnahmen wurden mit einer kalten Thermode mit einem Durchmesser von  $R_K=4$  mm (Tiegelradius  $R_{Tiegel}=20$  mm). Die kalte Thermode wurde nicht rotiert. Der Film wird in der halben Aufnahmegeschwindigkeit abgespielt.

Bildfrequenz=25 Hz,  $\Delta T=25,0$  K,  $T_M=25^\circ$  C.

 Video auf CD.

Laut HINTZ handelt es sich bei der Schlierenbewegung um eine hydrothermale Welle. Vergleicht

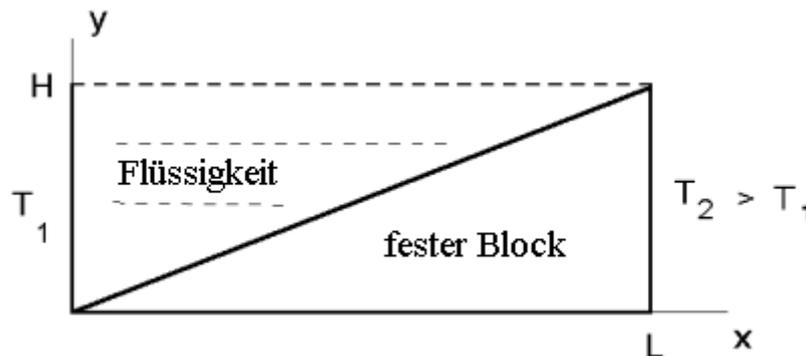
man die gefundenen Eigenschaften mit den Messungen von RILEY [Riley96] für eine hydrothermale Welle in einer Schichtdicke von  $d=0,75$  mm ( $\lambda=1,95$  mm,  $\nu=0,98$  Hz,  $c=1,91$  mm/s), erhält man eine befriedigende Übereinstimmung bei Wellenlänge und Ausbreitungsgeschwindigkeit.

Deutliche Unterschiede zeigen sich bei der Frequenz und vor allem beim Ausbreitungswinkel. Laut SMITH und DAVIS [Smith83] sollte dieser bei ca.  $20^\circ$  liegen; dieser Wert wurde von RILEY bestätigt. Die Welle im Videobild scheint sich im Gegensatz dazu in einem Winkel von  $90^\circ$  zum Temperaturgradienten fortzupflanzen. Dies ist verständlich, da der Meniskusbereich in radialer Richtung stark eingeschränkt ist.

Möglich ist aber auch, daß es sich um eine oszillierende Konvektionsrolle handelt. Die Ausbreitungsrichtung stimmt mit den Beobachtungen von GARCIMARTIN [Garcimartin97] überein.

## 5.8 Numerische Simulation der Strömung im Meniskus

CHERNATINSKY hat in einem vereinfachten Modell die Strömung in einem Meniskus numerisch untersucht.



**Abb. 5.55** Geometrie der numerischen Simulation.

Nach [Chernatinsky99].

Ausgegangen wird dabei von einem zweidimensionalen Flüssigkeitskeil, wie er in Abb. 5.55 gezeigt wird. Dabei werden folgende Annahmen über den Flüssigkeitskeil gemacht:

- Entlang des Bodens ergibt sich eine lineare Temperaturverteilung,

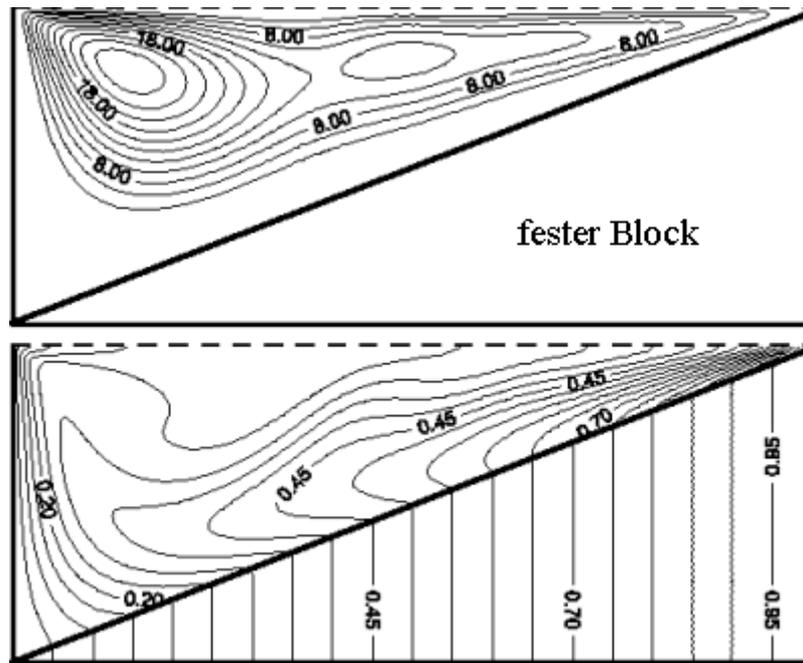
- die Oberfläche der Flüssigkeit ist adiabatisch,
- die Oberflächenspannung ist eine lineare Funktion der Temperatur und
- die Oberfläche ist nicht deformierbar.

Die Parameter des Keils sind an den Meniskus der in dieser Arbeit verwendeten Küvette angepaßt. Die Basislänge des Keils ist  $L=1$  mm, das Seitenverhältnis  $A=L/H$  ist 2,5 (dies entspricht einem Kontaktwinkel von  $67,5^\circ$ ) und es wurde mit einer Prandtlzahl von  $Pr=17$  gerechnet. Diese Konfiguration beschreibt jedoch nur bedingt die Verhältnisse im Meniskus. Problematisch sind vor allem:

- die lineare Oberflächenform entspricht nicht der exponentiell verlaufenden Oberfläche im Meniskusbereich. Dies wirkt sich auf die Ausdehnung von Wirbeln aus.
- Der Flüssigkeitskeil ist zur warmen Seite hin hart begrenzt. Eine Ausweitung eines Wirbels über diese Grenze hinaus ist nicht möglich.
- Die Undeformierbarkeit der freien Oberfläche läßt keine Oberflächenwellen zu.
- Die Zweidimensionalität des Modells läßt keine schräg zur Hauptstromrichtung laufenden hydrothermalen Wellen zu.

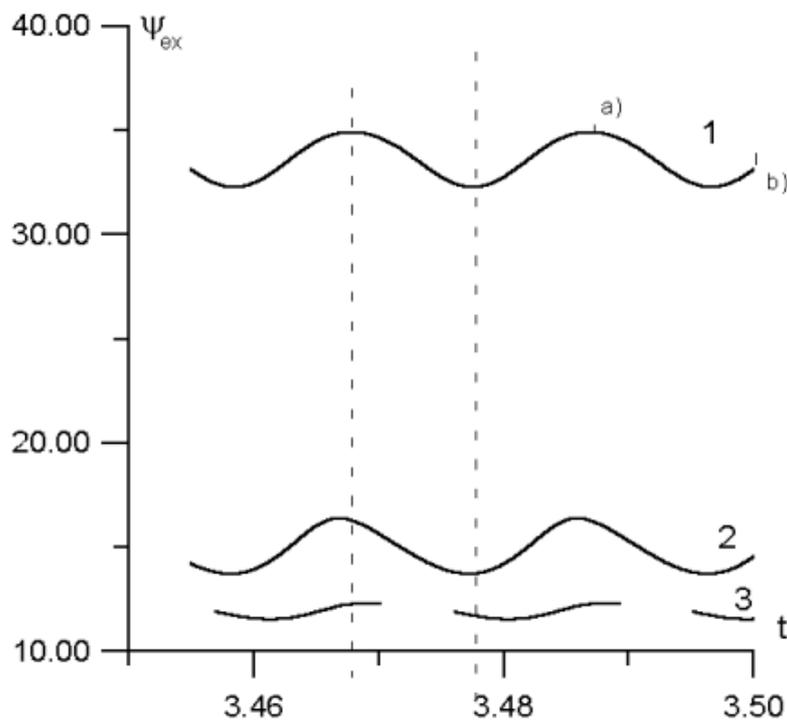
Kurz vor dem Übergang zwischen stationärer und zeitabhängiger Strömung werden bei  $Ma=20000$  zwei Konvektionsrollen beobachtet (Abb. 5.56). Das Bild der Stromlinien läßt die Existenz eines dritten Wirbels erwarten, der aufgrund der geringen Auflösung der Simulation von  $200 \times 200$  Punkten nicht aufgelöst wird.

Ab einer kritischen Marangonizahl von  $Ma=26200$  setzt eine zeitabhängige Strömung ein. Dabei werden drei Wirbelzentren beobachtet (Abb. 5.60). Abb. 5.57 zeigt die Wirbelstärke der drei Wirbel in Abhängigkeit der Zeit; Abb. 5.58 die Oszillation des Maximalwertes der Strömungsgeschwindigkeit. In Abb. 5.59 erkennt man, daß die vertikale Position der Wirbelzentren sich in Phase verändert, während sich horizontal der größte Wirbel (1) gegenphasig zu den beiden kleineren Wirbeln (2 und 3) bewegt. Eine Phasendifferenz zwischen den beiden kleineren Wirbeln wird nicht beobachtet. Die Simulation beobachtet also eine zeitabhängige Strömung, die vom ersten Wirbel ausgeht.



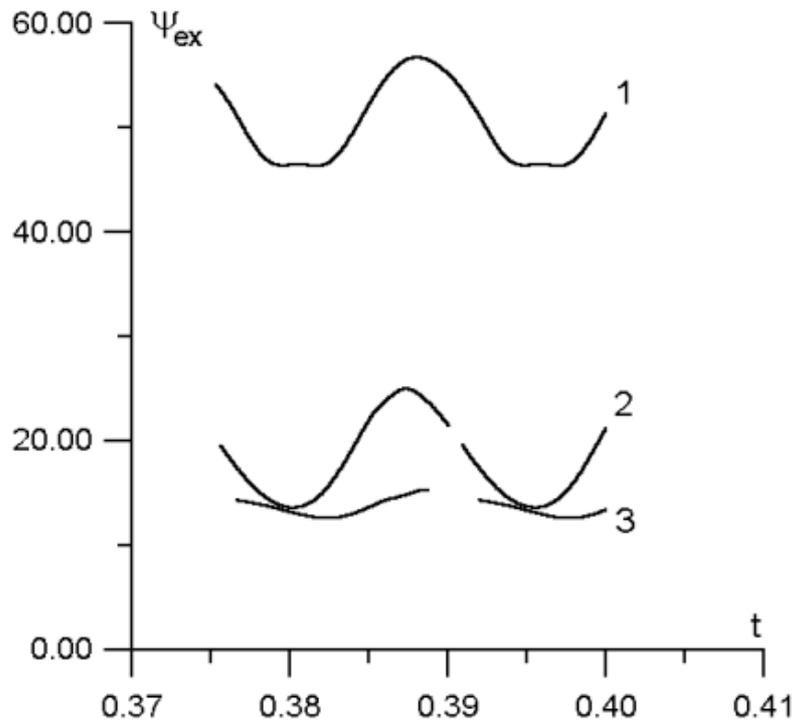
**Abb. 5.56** Stromlinien und Isothermen bei stationärer Strömung etwas unterhalb der kritischen Temperaturdifferenz.

$Ma=20.000$ ,  $Pr=17$ ,  $L=1$  mm,  $A=2.5$ . Nach [Chernatinsky99].

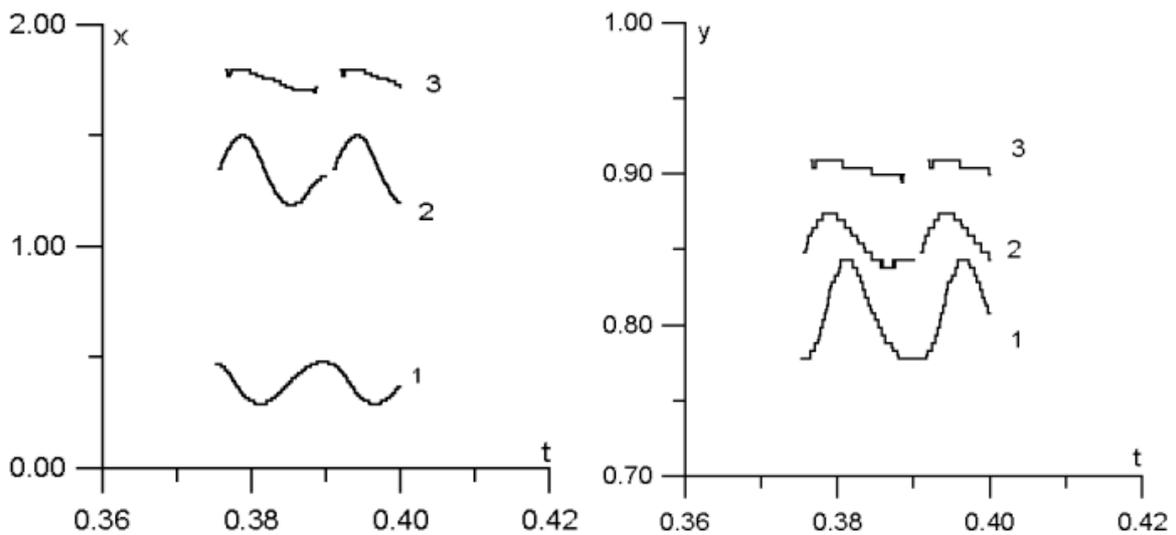


**Abb. 5.57** Wirbelstärke der Konvektionsrollen bei zeitabhängiger Strömung.

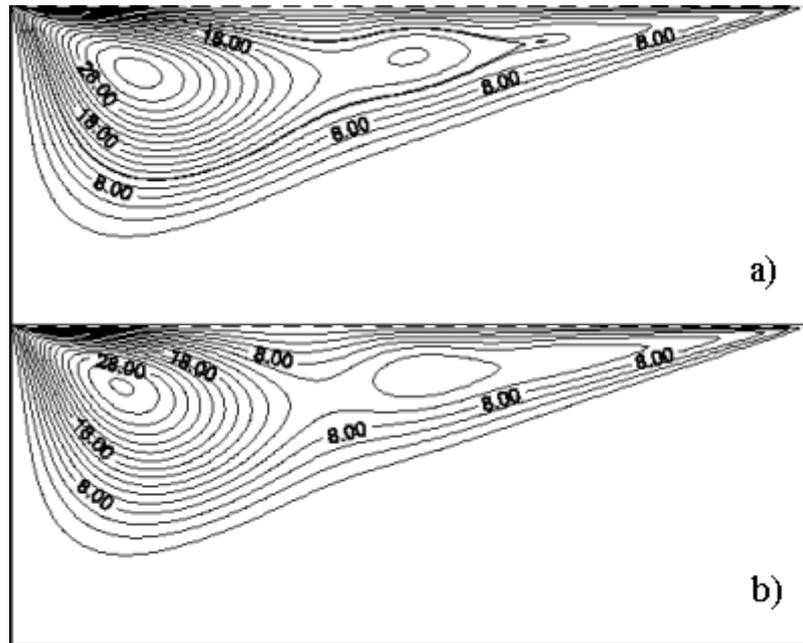
$Ma=26.500$ ,  $Pr=17$ ,  $L=1$  mm,  $A=2.5$ . Nach [Chernatinsky99].



**Abb. 5.58** Maximalwerte der Stromfunktion bei zeitabhängiger Strömung.  
 $Ma=26.500$ ,  $Pr=17$ ,  $L=1$  mm,  $A=2.5$ . Nach [Chernatinsky99].



**Abb. 5.59** Lage der Wirbelzentren bei zeitabhängiger Strömung.  
 $Ma=26.500$ ,  $Pr=17$ ,  $L=1$  mm,  $A=2.5$ . Nach [Chernatinsky99].



**Abb. 5.60** Stromfunktionen zu den Zeitpunkten a) und b) aus Abb. 5.57 bei zeitabhängiger Strömung.

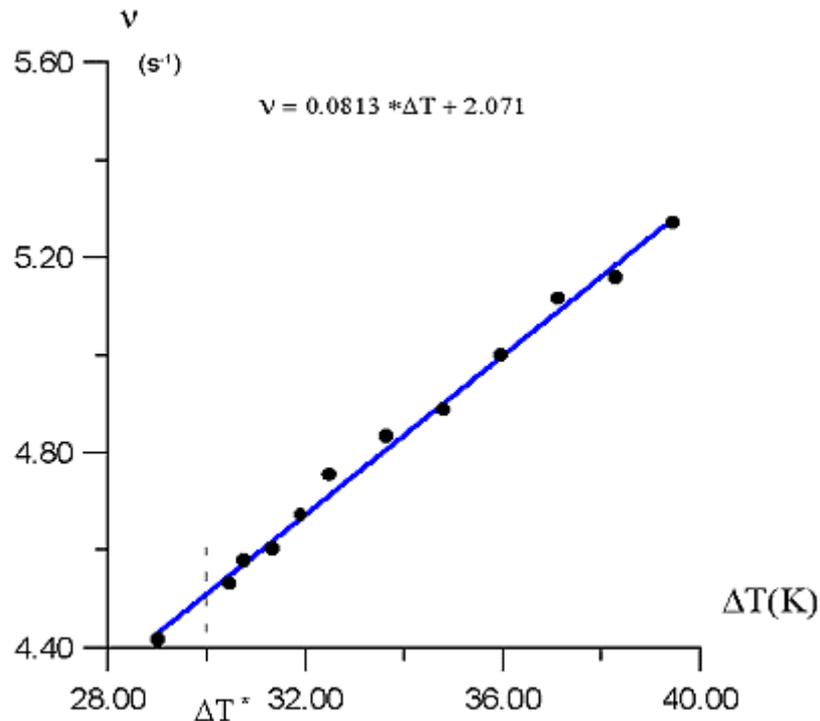
$Ma=26.500$ ,  $Pr=17$ ,  $L=1\text{ mm}$ ,  $A=2.5$ . Nach [Chernatinsky99].

Die Simulation stimmt in drei wichtigen Punkten mit den Beobachtungen in der Küvette überein:

Es treten drei Wirbel (Konvektionsrollen) mit unterschiedlichen Radien auf. Die Radien korrespondieren mit dem Abstand zwischen kalter Wand und freier Oberfläche.

Als erste zeitabhängige Strömung tritt eine Oszillation auf, die mit dem größten Wirbel im Flüssigkeitskeil korrespondiert. Wahrscheinlich durch die Einschränkungen der zweidimensionalen Simulation liegt die kritische Marangonzahl mit  $Ma_{krit.}=26200$  jedoch weit über dem an der Küvette bestimmten Wert von  $Ma_{krit.}=460$ .

Die in der Simulation bestimmte Oszillationsfrequenz stimmt gut mit dem an der Küvette gemessenen Wert überein. Allerdings ist die Frequenzabhängigkeit von der angelegten Temperaturdifferenz mit  $0,0813\text{ Hz/K}$  deutlich größer als bei der Küvette. Dabei muß berücksichtigt werden, daß der Wirbel in seiner Geometrie in der Simulation hart begrenzt ist und sich nicht so frei wie im Meniskusbereich ausdehnen kann.



**Abb. 5.61** Abhängigkeit der Oszillationsfrequenz von der Temperaturdifferenz im Meniskusbereich.

$Pr=17$ ,  $L=1$  mm,  $A=2.5$ . Nach [Shernatinsky99].

Die Amplitude der Temperaturoszillation zeigt nahe der kritischen Temperaturdifferenz einen wurzelförmigen Verlauf, wie er für die Signale in der Küvette gefunden wurde.

## 5.9 Zusammenfassung

An der kalten Thermode bildet sich eine thermische Grenzschicht. Mit  $d \sim 0,6$  mm liegt die Ausdehnung der thermischen Grenzschicht in der gleichen Größenordnung wie die Ausdehnung eines Meniskusbereichs an der kalten Thermode, der durch Absenkung der freien Oberfläche um 1 mm bis 2 mm hervorgerufen wird.

Durch diese thermische Grenzschicht entsteht an der freien Oberfläche ein linearer Temperaturgradient, der etwa 10 mal größer ist als der Temperaturgradient im mittleren Bereich der freien Flüssigkeitsoberfläche der Küvette.

Da aufgrund der Geometrie des Meniskusbereichs die so eingebrachte Energie nur zu einem geringen Teil zum Antrieb der Hauptströmung genutzt werden kann, können sich lokale

dissipative Strukturen im Meniskusbereich bilden.

Gefunden werden drei Konvektionsrollen mit Ausdehnungen zwischen 30  $\mu\text{m}$  und 400  $\mu\text{m}$ .

Die Lage und Ausdehnung der Konvektionsrollen wird durch die Krümmung der freien Oberfläche bestimmt. Durch die näherungsweise exponentielle Form der Flüssigkeitsoberfläche im Meniskusbereich ergibt sich eine logarithmische Verteilung der Konvektionsrollen entlang der x-Achse. Mit sinkendem Flüssigkeitsspiegel und dadurch größer werdender Krümmung der Flüssigkeitsoberfläche entfernen sich die Wirbelzentren von der kalten Wand; gleichzeitig vergrößert sich ihre Ausdehnung entlang der x-Achse.

Bei Überschreitung einer kritischen Marangonizahl  $Ma_{\text{krit.}}$  des separierten Strömungsbereichs oszillieren die gefundenen Konvektionsrollen.  $Ma_{\text{krit.}}$  stimmt sehr gut mit den Berechnungen von SMITH und DAVIS überein; die kritischen angelegten Temperaturdifferenzen sind für alle drei Konvektionsrollen unterschiedlich und liegen bei wenigen K.

Wird die angelegte Temperaturdifferenz weiter erhöht zeigt sich ein bifurkationstypischer Amplitudenverlauf mit wurzelförmigen Abschnitten.

Die Oszillationsamplituden der Rollendurchmessers liegen bei ca. 1,6% des Rollendurchmessers und betragen zwischen 0,7  $\mu\text{m}$  und 6  $\mu\text{m}$ . Die Temperaturoszillationen an der freien Oberfläche besitzen Amplituden von 0,6 K und 1,6 K. Die dadurch verursachten Deformationen der freien Oberfläche liegen in der Größenordnung der Oszillation des Rollendurchmessers.

Mit zunehmender Unterfüllung der Küvette dehnen sich die Konvektionsrollen entlang der x-Achse aus. Dabei steigt die Marangonizahl des separierten Gebietes, so daß - wie bei der Erhöhung der angelegten Temperaturdifferenz - ein bifurkationstypischer Anstieg der Oszillationsamplitude beobachtet wird.

Aufgrund der Temperaturverteilung im Meniskus sinkt bei zunehmender Unterfüllung gleichzeitig der Temperaturgradient an der freien Oberfläche der Flüssigkeit. Dadurch kommt es mit zunehmender Unterfüllung erneut zu einem Sinken der Oszillationsamplitude.

Ab  $\Delta T \sim 7$  K wird das Einsetzen von Oberflächenwellen beobachtet. Bei weiterer Erhöhung der angelegten Temperaturdifferenz zeigt sich auch hier eine bifurkationstypische Zunahme der Amplitude der zugehörigen Temperaturoszillation in der Flüssigkeit. Mit zunehmender Unterfüllung sinkt die Oszillationsfrequenz, was auf eine Zunahme der Wellenlänge und damit

der Marangonzahl hinweist. Entsprechend zeigt die Amplitude der Temperaturoszillation in Abhängigkeit der Unterfüllung ein ähnliches Verhalten wie bei den Konvektionsrollen.

Unklar ist die genaue Natur der von den Konvektionsrollen ausgehenden Temperaturoszillationen. Wellenlänge, Frequenz und Einsatzpunkte entsprechen gut den Erwartungen für thermische Wellen, die in dünnen Flüssigkeitsschichten auftreten.

Im Gegensatz zur unendlich ausgedehnten dünnen Flüssigkeitsschicht, die von SMITH und DAVIS betrachtet wurde, variiert im Meniskus die Schichtdicke des separierten Flüssigkeitsvolumens entlang der  $x$ -Achse. Nach dem von SMITH und DAVIS beschriebenen Mechanismus müßte die Wellenlänge einer hydrothermalen Welle im Meniskus vom Ort abhängig sein. Entsprechend sollte ein breiter Frequenzbereich mit exponentiell fallender Amplitudenverteilung entlang der Frequenz entstehen. Eine solche Verteilung wäre nicht von Signalrauschen zu unterscheiden.

Auf der anderen Seite treten oszillatorische Mehrfachrollenstrukturen unter ähnlichen Parametern auf. Wegen der Übereinstimmung der Umlauffrequenz der Konvektionsrollen mit der Frequenz der Temperaturoszillationen erscheint die Beschreibung als oszillierende Konvektionsrollen sinnvoll. Diese Beschreibung stimmt mit den Ergebnissen der zweidimensionalen numerischen Simulation überein.

Es muß jedoch darauf hingewiesen werden, daß durch die Zweidimensionalität der Simulation keine hydrothermale Wellen zu erwarten sind. Die bisherigen Überlegungen bezüglich des Mechanismus, der oszillierende Mehrfachrollen zugrundeliegt, gehen von einer Instabilität der heißen Grenzschicht aus. Dieser Mechanismus ist an eine endliche Geometrie und das periodische Auftreten eines kalten Bereichs nahe der heißen Wand gebunden. Diese Voraussetzungen sind im Meniskusbereich nicht erfüllt.

Daher werden zwei weitere Mechanismen vorgeschlagen:

Betrachtet man die Überlagerung einer hydrothermalen Welle ortsabhängiger Wellenlänge mit Konvektionsrollen, so stimmen die Wellenlänge jeweils am Ort der Konvektionsrolle überein. Durch die Überlagerung beider Strömungsstrukturen wird die hydrothermale Welle an diesem Ort verstärkt, so daß ein zur Umlauffrequenz der Konvektionsrolle passendes Maximum der Amplitude der Temperaturoszillation gemessen wird.

Für den zweiten Mechanismus sei die Strömung einer einzelnen Konvektionsrolle betrachtet.

Das Strömungsprofil und insbesondere das Temperaturprofil entspricht weitgehend dem *return-flow*. Es sollte daher möglich sein, den Mechanismus für die Entstehung einer hydrothermalen Welle auf die Strömung einer einzelnen Konvektionsrolle zu übertragen.

Eine entstehende hydrothermale Welle ist dann auf die Ausdehnung der Konvektionsrolle beschränkt und hat die gleiche Wellenlänge wie die Konvektionsrolle. Als Ergebnis der Überlagerung von hydrothormaler Welle und Konvektionsrolle entsteht eine oszillierende Konvektionsrolle. Die Bewegung einer Konvektionsrolle erscheint "wellenähnlich". Diese Beschreibung paßt gut zu den Beobachtungen von RILEY [Riley96] an oszillierenden Mehrfachrollen.

HINTZ beobachtete in einer rotationssymmetrischen Anordnung eine thermische Welle im Meniskusbereich an der kalten Thermode.

Eine numerische Simulation von CHERNATINSKY für einen Flüssigkeitskeil zeigt gute Übereinstimmung mit den Beobachtungen in der in dieser Arbeit verwendeten Küvette.

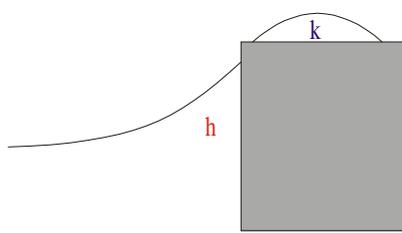
## 6. Wechselwirkung mit einem Flüssigkeitsfilm auf der kalten Thermode

Die an der kalten Thermode angebrachte Benetzungssperre verhindert im allgemeinen nur für eine kurze Zeit die Überschwemmung der Thermode. Vor allem bei größeren  $\Delta T$  und geringen Unterfüllungen  $h$  durchbricht die gegen die Kante strömende Flüssigkeit die Sperre und bildet einen Flüssigkeitsfilm auf der Thermode.

Zwar treten die Oberflächenoszillationen auch auf, wenn die Thermode nicht benetzt ist, doch ist auch bei intakter Benetzungssperre nicht auszuschließen, daß ein Bereich von weniger als 0,2 mm an der Kontaktlinie zwischen Flüssigkeitsoberfläche und Thermode durch Flüssigkeit benetzt ist. Auch durch Kondensation kann sich ein dünner Flüssigkeitsfilm aus einer Mischung aus Ethanol und Wasser aus der Umgebungsluft auf der Thermode bilden. Es muß daher untersucht werden, ob eine Wechselwirkung zwischen einem solchen Flüssigkeitsfilm und der Experimentierflüssigkeit in der Küvette die beobachteten Oberflächenoszillationen erzeugt.

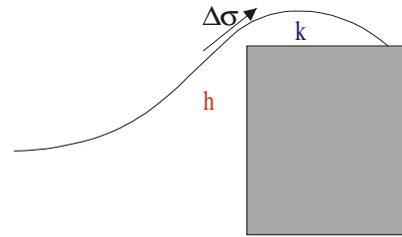
HINTZ [Hintz99] vermutet, daß ein solcher Kondensatfilm die von ihm beobachtete ROS in seinem Experiment mit Czochralski-Geometrie verursacht. Dabei geht er von folgendem Mechanismus aus:

An der kalten Thermode kondensiert Flüssigkeit. Diese wird durch die Thermode abgekühlt und hat daher eine geringere Temperatur als die Flüssigkeit im Gefäß. Kommt es zu einem Kontakt zwischen Flüssigkeit im Gefäß und Flüssigkeitsfilm, wird aufgrund der Oberflächenspannungsdifferenz Flüssigkeit aus dem Gefäß in den Kondensatfilm gezogen. Gleichzeitig fließt aus Kontinuitätsgründen etwas Flüssigkeit aus den tiefer liegenden Schichten des Kondensatfilms in das Gefäß zurück. Durch die in den Kondensatfilm strömende Flüssigkeit wird die Oberflächenform nahe der Kante verformt; die Oberfläche wird nach oben gezogen. Dabei wird die Oberfläche zu einer Schwingung angeregt, die  $180^\circ$  später dafür sorgt, daß die Oberfläche nach unten gezogen wird. Der Kontakt zwischen Kondensatfilm und Gefäßflüssigkeit reißt wieder ab und das während des Kontakts erwärmte Flüssigkeitsvolumen wird erneut durch die Thermode abgekühlt. Bei  $360^\circ$  bezüglich der Oberflächenschwingung bewegt sich die Oberfläche nahe der Thermode wieder nach oben und ein Kontakt zwischen den beiden Flüssigkeiten wird wieder hergestellt. Auf diese Weise wird der Flüssigkeitskontakt als Anregung der Oberflächenschwingung immer in Phase mit der Oberflächenschwingung ausgelöst.



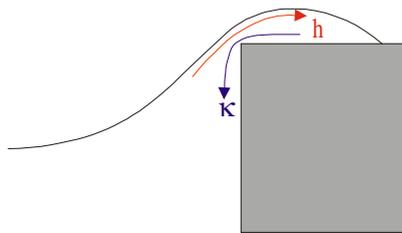
a)

Gefäßflüssigkeit und Kondensatfilm sind voneinander getrennt.



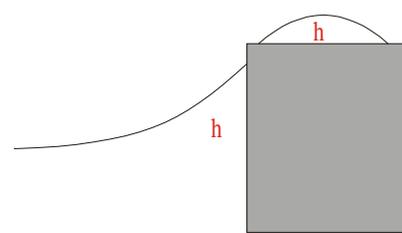
b)

Beim Kontakt der Flüssigkeitsvolumina erzeugt die Differenz der Oberflächenspannungen eine Kraft, die die Flüssigkeitsoberfläche nach oben zieht und so eine Oberflächenschwingung anregt.



c)

Gleichzeitig wird dadurch warme Flüssigkeit in den Kondensatfilm gezogen. Der Temperaturunterschied zwischen Gefäßflüssigkeit und Kondensatfilm wird abgebaut.



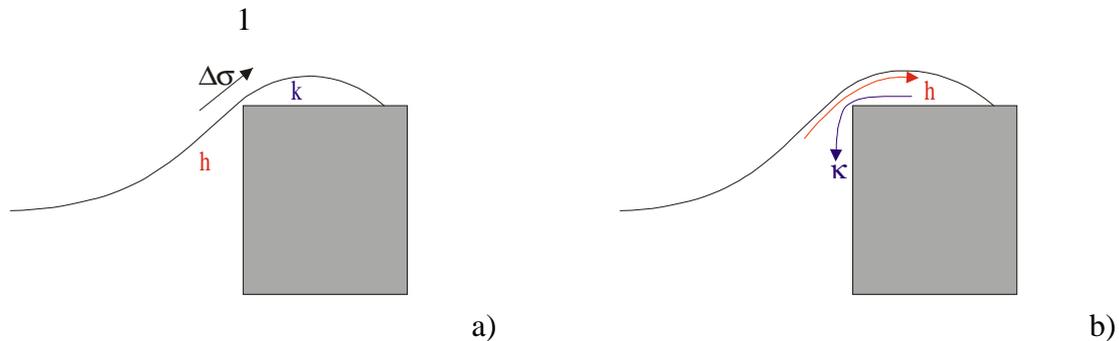
d)

Die angeregte Oberflächenschwingung zieht die Gefäßflüssigkeit wieder nach unten. Dadurch reißt der Kontakt zwischen beiden Flüssigkeiten ab und der Kondensatfilm kühlt sich ab.

**Abb. 6.1** Veranschaulichung des Kontakts zwischen Flüssigkeit in der Küvette und Kondensatfilm.

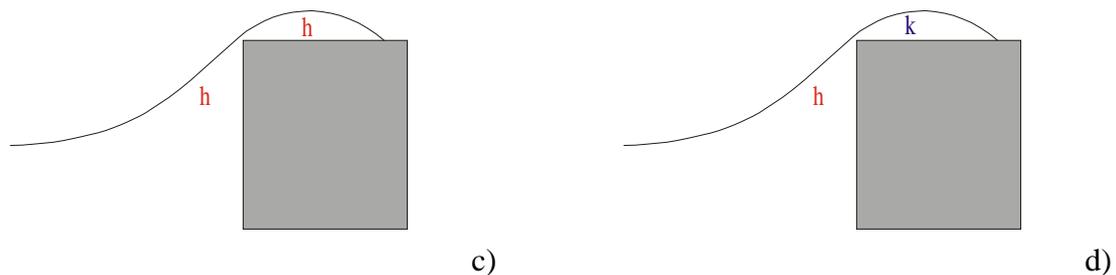
Dabei stellt sich die Frage, ob ein Kontaktabriß für die Anregung notwendig ist. Auch ein Kontaktbereich mit zu- oder abnehmender Dicke, z. B. an einer Kante, führt zu einer mehr oder weniger starken thermischen Kopplung zwischen Flüssigkeit im Gefäß und Kondensatfilm. Entsprechend dieser Kopplung wird der Kondensatfilm desto kälter werden je geringer der Kontakt zwischen Gefäß und Film ist. Dadurch wird vermehrt Flüssigkeit nach oben gezogen. Der Kontaktbereich vergrößert sich. Dabei erwärmt sich der Kondensatfilm und der Kontaktbereich wird wieder verkleinert. Ein solches Hochziehen der Oberfläche kann eine Oberflächenschwingung auslösen. Wird durch diese die Oberfläche an der Thermode erneut nach unten gezogen, bewirkt die zunehmende Temperaturdifferenz zwischen Gefäßflüssigkeit und Kondensatfilm eine entgegengesetzte Kraft, die die Oberfläche nach oben zieht. Je weiter die

Oberfläche nach oben gezogen wird, desto stärker erwärmt sich der Kondensatfilm und die aus der Differenz der Oberflächenspannungen resultierende Kraft wird geringer.



Durch die Temperaturdifferenz zwischen Volumenflüssigkeit und Kondensatfilm entsteht eine thermokapillare Kraft. Diese zieht die Oberfläche nach oben und vergrößert den Kontaktbereich zwischen beiden Flüssigkeitsvolumina.

Gleichzeitig wird dadurch warme Flüssigkeit in den Kondensatfilm gezogen. Der Temperaturunterschied zwischen Gefäßflüssigkeit und Kondensatfilm wird abgebaut.



Der Kondensatfilm erwärmt sich dabei, so daß die Temperaturdifferenz abgebaut wird. Damit verbunden ist eine Verkleinerung des Kontaktbereichs.

Der Flüssigkeitsaustausch ist beim kleineren Kontaktbereich geringer, so daß sich der Kondensatfilm erneut abkühlt.

**Abb. 6.2** Kondensatfilm, der über eine Flüssigkeitsbrücke mit der Volumenflüssigkeit verbunden ist

Unter der Voraussetzung, daß keine Phasenverschiebung zwischen der Veränderung des Kontaktbereichs und der Abkühlung bzw. Erwärmung des Kondensatfilms existiert (unendlich kleines Kondensatvolumen), ist der beschriebene Effekt nicht in der Lage die bei einer Oberflächenschwingung auftretende Auslenkung der Oberfläche zu verstärken und es stellt sich ein Gleichgewichtszustand ein. Erfolgt die Abkühlung bzw. Erwärmung des Kondensatfilms der Auslenkung der Oberfläche um  $90^\circ$  phasenverschoben bedeutet dies, daß die Oberflächenspannungsdifferenz noch erhalten bleibt, während die Oberfläche verformt wird. Umgekehrt vergrößert sich bei einer Abwärtsbewegung der Oberfläche die Differenz der Oberflächenspannungen erst, wenn die Oberflächenschwingung bereits ihren unteren

Umkehrpunkt erreicht hat. Stimmen die Zeitkonstanten der Oberflächenschwingung und der thermischen Trägheit des Kondensatfilms überein, kann es so zu einer Anregung einer Oberflächenschwingung kommen.

Da die thermische Trägheit des Kondensatfilms vom Kondensatvolumen und der benetzten Oberfläche der Thermode abhängt, ist das Auftreten eines solchen Effekts an die exakten Parameter des Kondensatfilms gebunden und unwahrscheinlich. Existiert ein vollständiger Kontaktabriß, tritt die auftretende Oberflächenspannungsdifferenz nur auf, wenn die Oberfläche nach oben ausgelenkt ist. Die auftretende Kraft ist bezüglich der Oberflächenschwingung asymmetrisch und nichtlinear und ist unabhängig von der Thermalisierungszeit des Kondensatfilms in der Lage, eine Oberflächenoszillation zu verstärken.

Der beschriebene Mechanismus hat folgende Eigenschaften:

- Mit zunehmender angelegter Temperaturdifferenz  $\Delta T$  vergrößert sich der Unterschied zwischen den Oberflächenspannungen im Gefäß und im Kondensatfilm. Entsprechend steigt die auf die Oberfläche ausgeübte Kraft und damit die Amplitude einer Oberflächenschwingung linear mit  $\Delta T$ . Eine kritische Temperaturdifferenz  $\Delta T_{\text{krit.}} > 0$  unterhalb der keine Oberflächenschwingung einsetzt existiert nicht.
- Die Oberflächenschwingung kann nur existieren, wenn eine Meniskusform vorhanden ist, die sowohl einen Kontakt als auch eine Trennung zwischen Gefäßflüssigkeit und Kondensatfilm ermöglicht. Dies ist in einem Bereich zwischen einer kritischen Unterfüllung  $h_{\text{krit.}}$  und einer maximalen Unterfüllung  $h_{\text{max.}}$  gegeben. Die Differenz zwischen beiden Werten entspricht der Amplitude  $A_{\text{ss}}$  der Oberflächenschwingung; der Mittelwert der Unterfüllung  $h_{\text{Abriß}}$ , bei der der Kontakt zwischen beiden Flüssigkeiten abreißt:

$$h_{\text{krit.}} = h_{\text{abriß}} - A_{\text{ss}}/2$$

und

$$h_{\text{max.}} = h_{\text{abriß}} + A_{\text{ss}}/2.$$

- Mit zunehmender mittlerer Temperatur sinkt  $d\sigma/dT$  und damit die Amplitude der Oberflächenschwingung. Diese Änderung ist jedoch klein gegenüber  $d\sigma/dT$ , so daß die Änderung der Amplitude kleiner ausfallen dürfte, als von HINTZ [Hintz99] erwartet.

- Je schneller bei einem Kontakt beider Flüssigkeiten der Kondensatfilm erwärmt wird, desto kürzer bleibt die Oberflächenspannungsdifferenz erhalten. Je größer die thermische Trägheit des Kondensatfilms, desto größer ist die Amplitude einer angeregten Oberflächenschwingung. Wie schnell sich der Kondensatfilm erwärmt hängt vom Volumen des Kondensatfilms ab. Umgekehrt ist die Oberflächenspannungsdifferenz abhängig von der Temperatur des Kondensatfilms im Moment des Kontakts und damit von der Stärke der Abkühlung des Kondensatfilms während beide Flüssigkeiten nicht verbunden sind. Je länger die Thermalisierungszeit des Kondensatfilms ist, desto kleiner ist die Amplitude der Oberflächenschwingung. Die Zeit, die zur Abkühlung des Kondensatfilms benötigt wird, hängt von der Filmstärke ab. Beide Effekte lassen erwarten, daß die Oszillationsamplitude sowohl vom Volumen des Kondensatfilms als auch von der durch ihn benetzten Fläche abhängig ist.

Der beschriebene Mechanismus scheint gut geeignet, um die bei HINTZ auftretende ROS zu erklären. Die sich aus dem Mechanismus ergebenden Erwartungen stimmen gut mit den Beobachtungen überein:

- HINTZ beobachtet ein Ansteigen der Amplitude der ROS mit zunehmender Temperaturdifferenz  $\Delta T$ , jedoch keine kritische Temperaturdifferenz.
- Es existiert eine kritische Meniskusform unterhalb der keine ROS auftritt.
- Die Schwingungsamplitude ist von der Kondensationsrate und damit vom Volumen der kondensierten Flüssigkeit abhängig. Entgegen der Erwartung nimmt die Schwingungsamplitude mit steigender Kondensationsrate ab.

Geht man davon aus, daß auch im Fall einer intakten Benetzungssperre des Experiments dieser Arbeit ein nur wenig ausgedehnter oder dünner Flüssigkeitsfilm auf der kalten Thermode existiert, ist der beschriebene Mechanismus auch auf die in dieser Arbeit verwendete Küvette übertragbar. Vergleicht man die aus dem Mechanismus abgeleiteten Effekte mit den Messungen an der Küvette, ergeben sich Widersprüche.

Nach dem oben beschriebenen Mechanismus existiert kein kritisches  $\Delta T$ . Die in dieser Arbeit untersuchten Oberflächenschwingungen treten erst ab einer kritischen angelegten Temperaturdifferenz auf (Kap. 4.4).

Ist die Benetzungssperre an der kalten Thermode überflutet, kommt es bei einer Unterfüllung von  $h \sim 1,8..2,0$  mm (das entspricht einem Kontaktwinkel von etwa  $70^\circ$ ) zu einem Abriß von der Kante der Thermode und damit zu einem Abriß der Kommunikation mit dem Kondensatfilm. Bei einer maximalen Oszillationsamplitude von 0,4 mm Spitze-Spitze ist mit einer kritischen Unterfüllung von  $h_{\text{krit.}} = 1,6..1,8$  mm und einer maximalen Unterfüllung von  $h_{\text{max.}} = 2,0..2,2$  mm zu rechnen. Beobachtet wurden die Oberflächenoszillationen bereits ab einer Unterfüllung von  $h \sim 1$  mm. Der Bereich, in dem die Oberflächenoszillationen auftreten ist deutlich größer als die Amplitude der Oberflächenschwingung (vgl. Kap. 4.5).

Der beschriebene Mechanismus löst eine Schwingung aus, deren Knotenlinie parallel zur Thermode, in  $y$ -Richtung, verläuft; Mode  $n=1$ . In der Küvette wurden auch Oberflächenoszillationen in  $x$ -Richtung (Mode  $m=2$ ) und entlang der Diagonalen (Mode  $k=1, l=1$  und  $k=3, l=3$ ) beobachtet. Die Auslösung solcher Oszillationen durch den beschriebenen Mechanismus ist möglich, da diese Schwingungen an beliebiger Position bezüglich der  $y$ -Achse eine periodische Veränderung der Meniskusform ergeben. Zwischen verschiedenen  $y$ -Positionen unterscheiden sich jedoch Amplitude und Phase. Gleiches gilt für die Grundschiwingung  $m=1$  der Flüssigkeitsoberfläche in der Küvette, die jedoch nicht beobachtet wurde. Das Amplitudenverhältnis zwischen Mode  $n=1$  und Mode  $m=2$  beträgt ungefähr 7:1, zwischen Mode  $n=1$  und den Moden  $k=1, l=1$  und  $k=3, l=3$  ungefähr 100:1. Der Antrieb der Oszillation würde also fast ausschließlich die Mode  $n=1$  auslösen und ist immer phasenrichtig zu dieser Mode. In keinem Fall tritt die Differenz der Oberflächenspannungen phasenverschoben zur Mode  $n=1$  auf, wie es zur Anregung einer weiteren, überlagerten Schwingung nötig ist. Der beschriebene Mechanismus ist nicht in der Lage, mehrere überlagerte Schwingungsmoden anzutreiben. Wie in Kapitel 4.5 gezeigt, ist Mode  $m=2$  nicht durch parametrische Resonanz mit der Mode  $n=1$  erzeugt sondern tritt unabhängig von ihr auf.

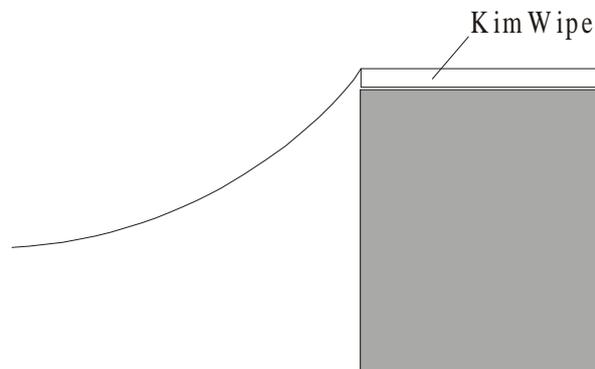
Die Oberflächenoszillation wurde sowohl bei intakter als auch bei durchbrochener Benetzungssperre beobachtet. Eine Veränderung der Schwingungsamplitude wurde dabei nicht gemessen, das heißt die Schwingungsamplitude ist unabhängig von Volumen und Ausdehnung des Kondensatfilms. Aus dem beschriebenen Mechanismus ergibt sich eine Abhängigkeit.

Bei Veränderung der Küvettegeometrie (Kap. 4.3) und bei der Untersuchung des Einflusses der Unterfüllung (Kap. 4.5) wurde eine deutliche Abhängigkeit der Oszillationsamplitude von der Resonanzfrequenz der Oberfläche beobachtet. Im Widerspruch dazu wird aus dem beschriebenen Mechanismus eine Unabhängigkeit der Schwingungsamplitude von der Resonanzfrequenz erwartet. Eine Abhängigkeit der Schwingungsamplitude von der Resonanzfrequenz der Oberfläche wird erwartet, wenn es zu keinem Abriß des Kontakts zum Kondensatfilm kommt. In

diesem Fall ist jedoch eine starke Abhängigkeit vom Flüssigkeitsvolumen im Kondensatfilm zu erwarten.

Die Amplitudenentwicklung der Oberflächenoszillationen  $k=1, l=1$  und  $k=3, l=3$  bei Erhöhung der angelegten Temperaturdifferenz entsprechen nicht den Moden  $n=1$  und  $m=2$ . Dies legt die Vermutung nahe, daß mindestens zwei unterschiedliche Ursachen für die Oszillationen verantwortlich sind.

Um zu untersuchen, ob ein, auch bei intakter Benetzungssperre eventuell vorhandener, sehr dünner Kondensatfilm einen Einfluß auf die Oberflächenoszillation hat, wurde mit einem feinporigen Tuch beim Auftreten der Oberflächenoszillation der nicht benetzte Bereich der kalten Thermode abgewischt. Dabei wird ein vorhandener Kondensatfilm für wenige Sekunden entfernt. Eine Veränderung der Oszillationsamplitude wird dabei nicht beachtet, das heißt es wird kein Einfluß eines Kondensatfilms auf die Oberflächenschwingung beobachtet. Dabei konnte jedoch ein Bereich von etwa 0,1...0,2 mm direkt an der Kante der Thermode nicht abgewischt werden. Ein Einfluß eines Kondensatfilms in diesem Bereich ist nicht auszuschließen, aber unwahrscheinlich.



**Abb. 6.3** Im Bereich des Kondensatfilms angebrachtes KimWipe-Papier

HINTZ beschreibt ein Experiment, in dem die Oberflächenoszillation dadurch unterdrückt wird, daß die kalte Thermode im Bereich der Kondensatbildung mit saugfähigem Papier (*KimWipe*-Papier) umwickelt wird. Er führt dies darauf zurück, daß die Bildung eines Kondensatfilms unterdrückt wird. An der Küvette wurde deshalb ein ähnliches Experiment durchgeführt, in dem *KimWipe*-Papier in unterschiedlicher Anzahl der Lagen und damit unterschiedlicher Stärke im Bereich des Kondensatfilms auf der Thermode angebracht wurde.

Dabei kommt es zu einer starken Überflutung der Thermode. Obwohl der Flüssigkeitsaustausch durch das Papier stark beeinflusst wird, tritt die Oberflächenschwingung auf. Je nach Stärke der aufgetragenen *KimWipe*-Lagen  $d_{\text{Papier}}$  verändert sich die kritische Unterfüllung  $h_{\text{krit.}}$ . Bezieht man die Unterfüllung  $h_{\text{Papier}}$  auf die Oberkante der Papierlage, tritt die Oberflächenoszillation bei der Unterfüllung  $h_{\text{krit.}}^{\text{Papier}}$  auf, die ungefähr um  $d_{\text{Papier}}$  größer ist als  $h_{\text{krit.}}$ :

$$h_{\text{krit.}}^{\text{Papier}} \sim h_{\text{krit.}} + d_{\text{Papier}}.$$

Die maximale Unterfüllung  $h_{\text{max.}}^{\text{Papier}}$ , bei der die Oszillation auftritt bleibt unverändert. Durch genügende Lagen des Papiers ist es möglich die kritische Unterfüllung soweit zu vergrößern, daß  $h_{\text{krit.}}^{\text{Papier}} > h_{\text{max.}}^{\text{Papier}}$  ist und die Oberflächenoszillation vollständig unterdrückt wird. Bei genauer Beobachtung des Meniskusbereichs erkennt man, daß die Oberflächenoszillation dann auftritt, wenn das im Meniskus eingeschlossene Volumen weitgehend Kontakt zur eigentlichen Thermode hat. Eine mögliche Erklärung ist, daß das Papier als thermischer Isolator dient und die thermische Ankopplung zwischen oberflächennaher Flüssigkeit in der Küvette und der Thermode verhindert. Wird die Oberfläche abgesenkt, verbessert sich diese Ankopplung und der Temperaturgradient an der Flüssigkeitsoberfläche steigt.

In diesem Kapitel wurde das von HINTZ vorgeschlagene Modell zur Anregung von Oberflächenoszillationen aufgegriffen. Das entwickelte Modell geht von einer phasenrichtigen Vereinigung der Volumenflüssigkeit der Küvette und einem Kondensatfilm auf der Oberfläche einer Thermode aus. Die dabei auftretenden Differenzen der Oberflächenspannungen regen die Oberflächenoszillation an.

Die Aussagen des Modells passen gut auf die von HINTZ beobachtete ROS.

Das Verhalten der in dieser Arbeit beobachteten Oberflächenoszillationen widerspricht dem Modell jedoch in folgenden Punkten:

- Die hohe Modenzahl der Oberflächenoszillationen kann im beschriebenen Mechanismus nicht auftreten,
- die beobachtete Abhängigkeit der Oszillationsamplitude von der Resonanzfrequenz der Oberfläche tritt im Modell nicht auf,
- das Modell macht falsche Voraussagen über die kritischen Kontaktwinkel des Meniskus und

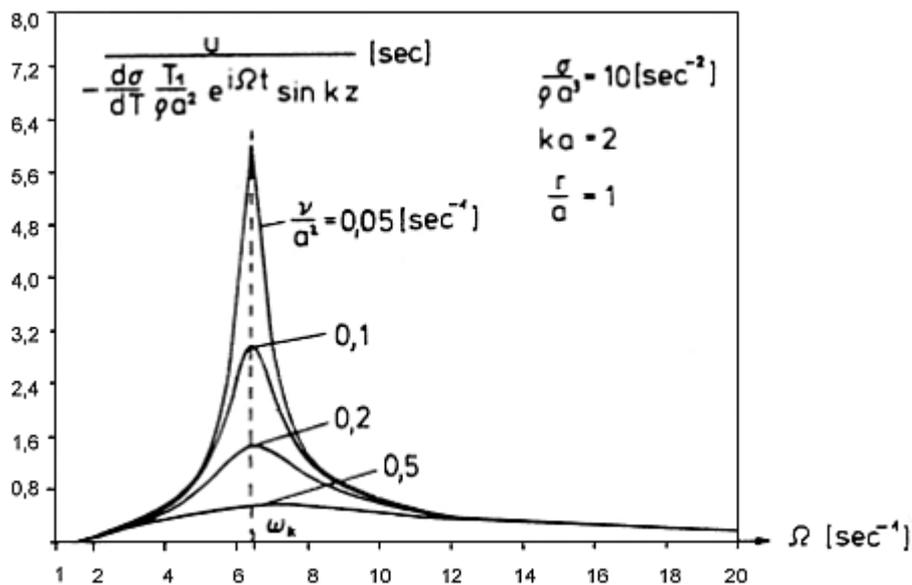
- nach den Modellvorstellungen tritt die beobachtete kritische Temperaturdifferenz nicht auf.

Versuche mit saugfähigem Papier gaben keinen zwingenden Hinweis auf die Existenz eines für den beschriebenen Mechanismus notwendigen Kondensatfilms.

## 7. Resonante Anregung der Oberflächenoszillation

Im folgenden Kapitel wird gezeigt, daß die Ursache der beobachteten Oberflächenoszillationen eine resonatorische Anregung durch die ebenfalls beobachteten hydrodynamischen Instabilitäten im Meniskusbereich an der kalten Thermode ist. Dazu werden die Daten aus Kapitel 4 und Kapitel 5 miteinander verglichen und in Beziehung gesetzt. Dabei zeigt sich ein für Resonanzeffekte typischer Zusammenhang.

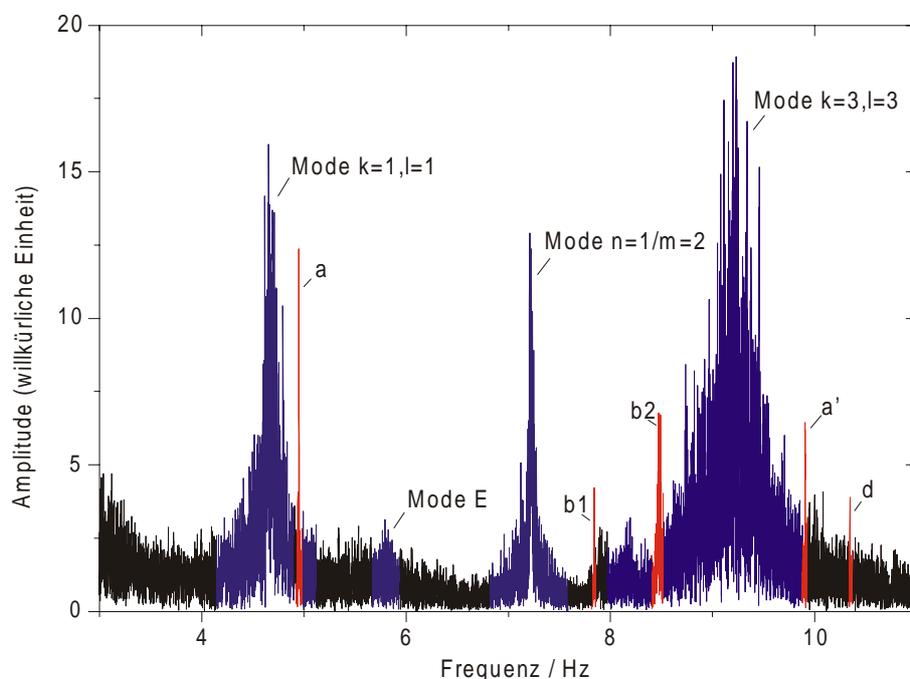
In Kap. 4.5 wurde gezeigt, daß die Form des Meniskus an der kalten Wand neben der angelegten Temperaturdifferenz der entscheidende Faktor für das Auftreten der beobachteten Oberflächenoszillationen ist.



**Abb. 7.1** Verstärkungsfunktion bei der resonanten Anregung der Oberfläche eines Flüssigkeitszylinders durch oszillatorische Konvektion. Die Kurve zeigt das Bild einer klassischen dynamischen Erregung, bei der die Resonanzfrequenz mit zunehmender Dämpfung steigt. Entsprechend ist die Asymmetrie der Kurve so, daß bei Erregungsfrequenzen oberhalb der Resonanzfrequenz die Amplitude größer als bei Erregungsfrequenzen unterhalb der Resonanzfrequenz ist.  
Nach [Bauer84].

Unter der Voraussetzung, daß die Resonanzfrequenz der freien Oberfläche mit der Oszillationsfrequenz eines durch Marangonikonvektion hervorgerufenen Temperaturfeldes entspricht, kann es zu einer resonanten Anregung der Oberfläche kommen [Bauer84]. Abbildung 7.1 zeigt eine dafür typische Resonanzkurve.

Die Frequenz der im Meniskusbereich durch zeitabhängige Instabilitäten auftretenden Temperaturoszillationen liegen - im Gegensatz zu bisher beobachteten Instabilitäten im Volumen der Küvette [Metzger86, Metzger94]- in der Größenordnung der Resonanzfrequenz der Oberflächenoszillationen. Es ist daher zu untersuchen, ob die zeitabhängige Strömung im Meniskus eine Ursache der Oberflächenoszillationen darstellt.



**Abb. 7.2** *Fourierspektrum der Temperatursignale im Meniskus, überlagert von Oberflächenoszillationen. Oberflächenoszillationen sind blau eingezeichnet, hydrodynamische Instabilitäten rot.*

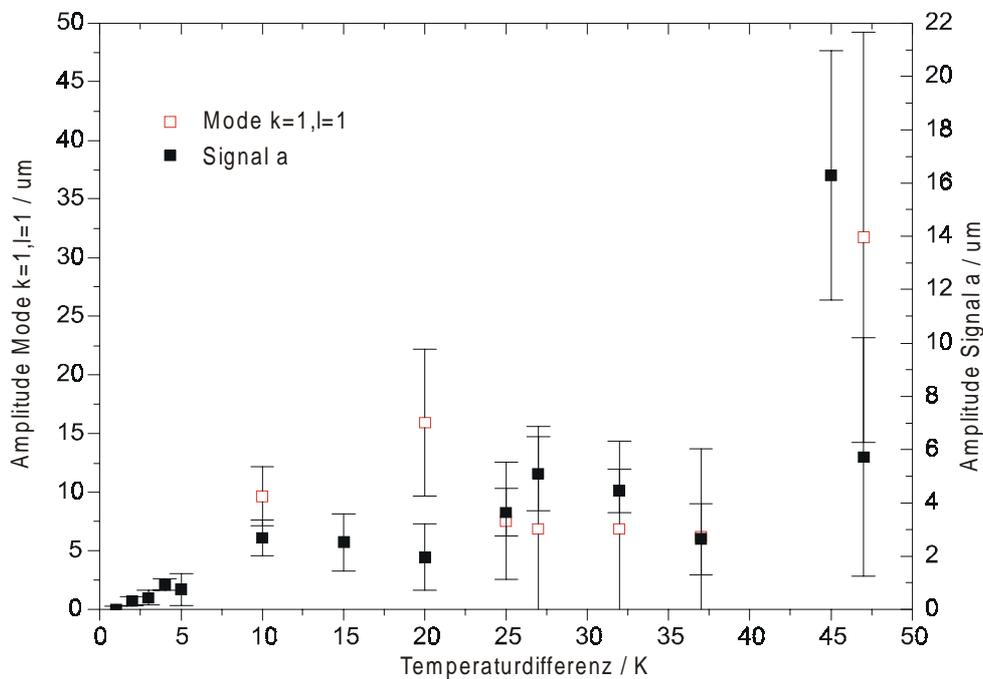
$\Delta T = 25 \text{ K}$ ,  $T_M = 20 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $h = 1,5 \text{ mm}$ ,  $L = 20 \text{ mm}$ ,  $B = 41 \text{ mm}$ .

 Datensatz auf CD.

Betrachtet man das schon in Kapitel 4.2 gezeigte Spektrum der Temperatursignale im Meniskus, fällt auf, daß die thermische Welle a (Signal a) und die Oberflächenoszillation  $k=1, l=1$  einen nur geringen Frequenzabstand von  $\Delta \nu = 0,2 \text{ Hz}$  zueinander besitzen. Die Halbwertsbreite der Mode  $k=1, l=1$  beträgt ungefähr  $0,2\text{-}0,3 \text{ Hz}$ , d. h. Signal a liegt innerhalb der doppelten Halbwertsbreite

und damit innerhalb des Signals der Mode  $k=1, l=1$ .

Abb. 7.3 vergleicht die Veränderung der Amplitude der Oberflächenoszillation und der durch die thermischen Welle  $a$  hervorgerufene Deformation der freien Oberfläche bei steigender Temperaturdifferenz. Die Amplitude der Oberflächenoszillation wurde nach den Überlegungen in Kap. 4.4 kalibriert, die Amplitude der Deformation der freien Oberfläche durch die thermischen Welle  $a$  durch Vergleich der Signalamplitude von Signal  $a$  mit den in Kap. 5.5 bestimmten Werten. Die Kalibrierung soll lediglich einen Anhaltspunkt für die Größenordnung der Amplituden geben. Der Fehler bei der Bestimmung der Kalibrierwerte liegt bei über 100%.



**Abb. 7.3** Vergleich des Amplitudenverlaufs des Signals der Oberflächenoszillation Mode  $k=1, l=1$  und des Temperatursignals der thermischen Welle  $a$  bei Veränderung der angelegten Temperaturdifferenz  $T$ .

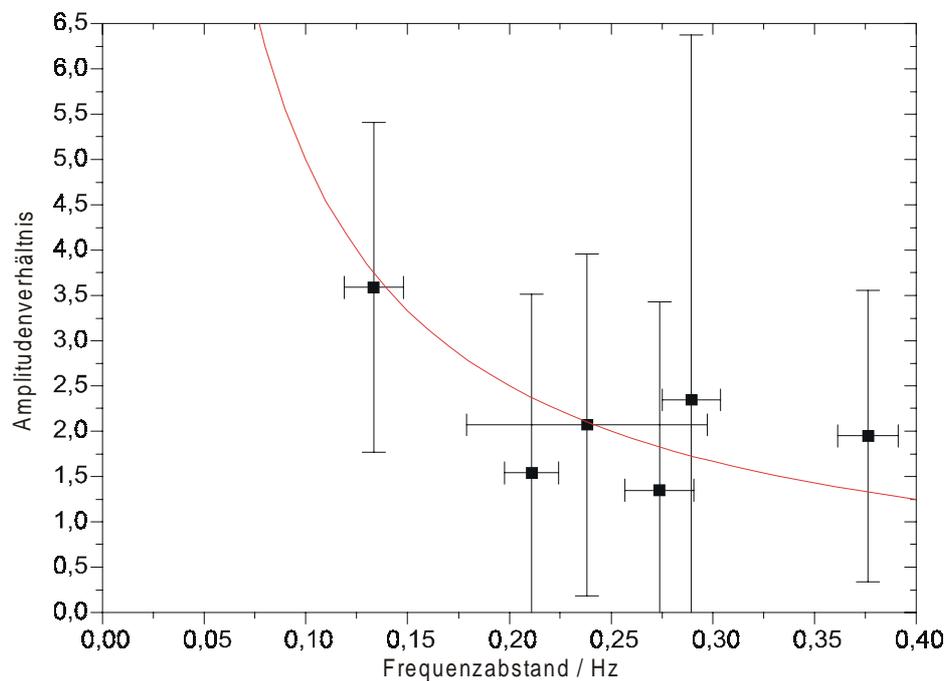
$T_M=20\text{ }^\circ\text{C}$ ,  $h=1,5\text{ mm}$ ,  $L=12\text{ mm}$ ,  $B=41\text{ mm}$ .

 Datensatz auf CD.

Die Amplitude der Oberflächenoszillation ist etwa doppelt so groß wie die Deformation der freien Oberfläche durch Temperaturoszillationen. Die Übereinstimmung des Amplitudenverlaufs ist innerhalb des Meßfehlers gut. Auffällig ist dabei, daß im Bereich unterhalb von  $\Delta T=30\text{ K}$  Mode  $k=1, l=1$  relativ zu Signal  $a$  größer ist als bei höheren Temperaturdifferenzen. Beachtet man die mit zunehmender Temperaturdifferenz sinkende Frequenz von Mode  $k=1, l=1$  (die

Frequenz von Signal a steigt gering mit der Temperaturdifferenz), so kommt der zunehmende Frequenzabstand als Erklärung in Frage.

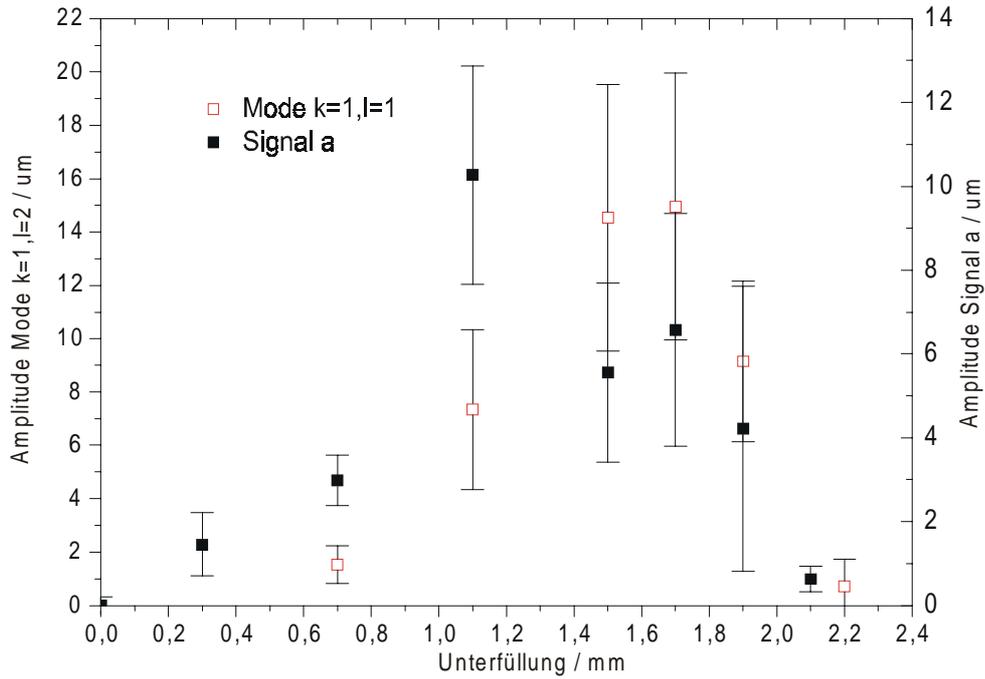
In Abb. 7.4 werden die relativen Amplituden von Mode  $k=1, l=1$  und der durch die thermische Welle a hervorgerufene Deformation der freien Oberfläche mit dem Frequenzabstand beider Signale verglichen. Dabei erhält man eine für Resonanzanregungen typische Abnahme der relativen Amplitude mit zunehmendem Frequenzabstand.



**Abb. 7.4** Verhältnis der Amplituden von Mode  $k=1, l=1$  und der durch die thermischen Welle a hervorgerufene Deformation der freien Oberfläche  $A_{k=1, l=1}/A_a$  aufgetragen gegen den Frequenzabstand  $\Delta\nu = \nu_a - \nu_{k=1, l=1}$ . Die durchgezogene Linie ist der Graph einer angepaßten Resonanzfunktion.

$T_M=20\text{ °C}$ ,  $h=1,5\text{ mm}$ ,  $L=12\text{ mm}$ ,  $B=41\text{ mm}$ .

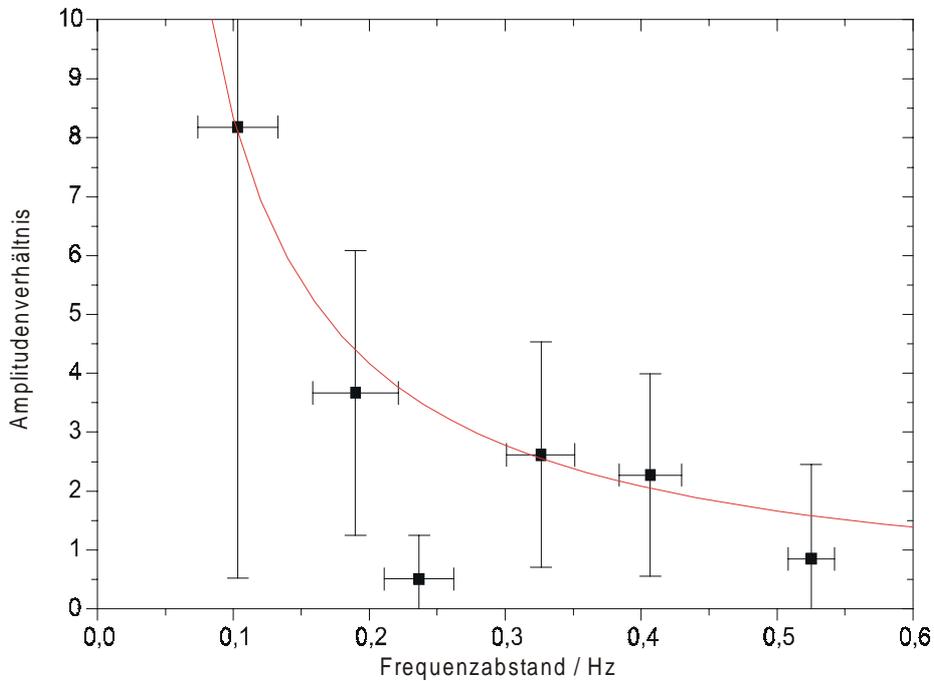
Auch in Abhängigkeit von der Unterfüllung h der Küvette stimmt der Amplitudenverlauf der Oberflächenoszillation und der von der thermischen Welle a hervorgerufenen Deformation der freien Oberfläche gut überein (Abb. 7.5). Abb. 7.6 zeigt die daraus gewonnene Zuordnung von Amplitudenverhältnis und Frequenzabstand. Trotz des wahrscheinlich großen systematischen Fehlers durch die Kalibrierung ist die Übereinstimmung der gewonnenen Kurve mit einer Resonanzkurve sehr gut.



**Abb. 7.5** Amplitudenverlauf von Mode  $k=1, l=1$  und thermischer Welle  $a$  in Abhängigkeit der Unterfüllung  $h$ .

$\Delta T=25$  K,  $T_M=20$  °C,  $L=12$  mm,  $B=41$  mm.

Datensatz auf CD.



**Abb. 7.6** Verhältnis der Amplituden von Mode  $k=1, l=1$  und der thermischen Welle  $a$   $A_{k=1, l=1}/A_a$  aufgetragen gegen den Frequenzabstand  $\Delta \nu = \nu_a - \nu_{k=1, l=1}$ . Als durchgezogene rote Linie ist eine angepaßte Resonanzkurve eingezeichnet.

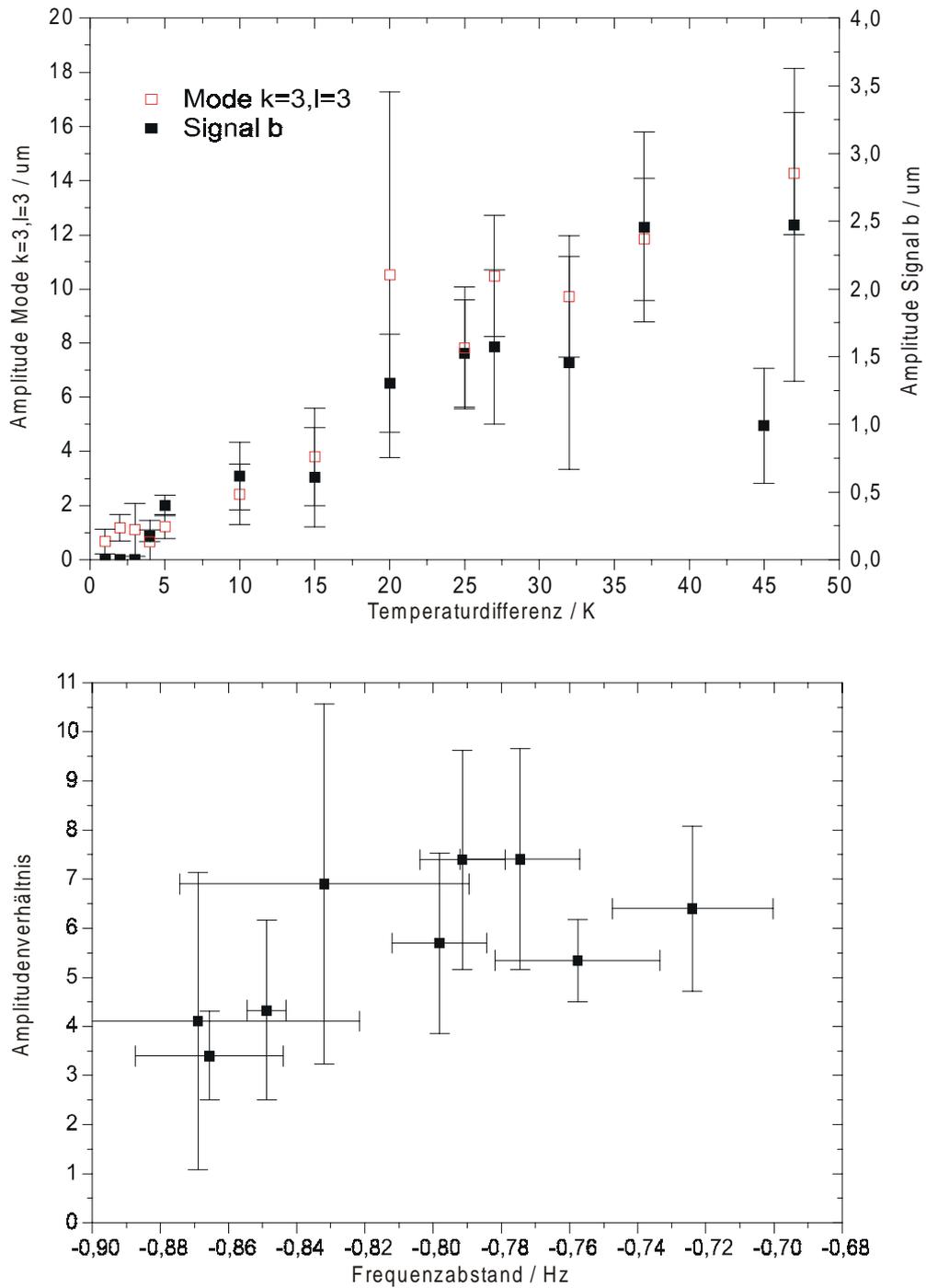
$\Delta T=25$  K,  $T_M=20$  °C,  $L=12$  mm,  $B=41$  mm.

Die Amplituden der Oberflächenszillation Mode  $k=1, l=1$  und die durch die thermischen Welle a hervorgerufene Temperaturosillation im Meniskusbereich korrelieren sowohl bezüglich der angelegten Temperaturdifferenz  $\Delta T$  als auch der Unterfüllung  $h$ . Das Verhältnis aus Oszillationsamplitude der freien Oberfläche und der Temperaturosillation von thermischen Welle verhält sich typisch für eine resonante Anregung. Die Amplitude der Oberflächenszillation liegt bei ca.  $10 \mu\text{m}$ . Die Deformation der freien Oberfläche durch die hydrothermale Welle a erreicht etwa  $5 \mu\text{m}$ . In Anbetracht des geringen Frequenzabstandes von etwa  $0,2 \text{ Hz}$  (4%) ist das gemessene Amplitudenverhältnis zwischen 1 und 8 realistisch für einen Resonanzfall. Es kann also davon ausgegangen werden, daß die von der thermische Welle verursachten Deformationen der freien Oberfläche die Oberflächenszillation durch Resonanz anregen.

Die Frequenz der thermischen Welle b liegt  $0,8 \text{ Hz}$  von dem Signal der Mode  $k=3, l=3$  entfernt. Bei einer Halbwertsbreite der Mode  $k=3, l=3$  von  $0,8 \text{ Hz}$  liegt Signal b innerhalb der doppelten Halbwertsbreite. Abb. 7.7 vergleicht die Amplitude beider Signale bei steigender Temperaturdifferenz; Abb. 7.8 bei steigender Unterfüllung.

In beiden Fällen zeigt sich eine gute Übereinstimmung. Besonders ist die sehr gute Übereinstimmung in der Nähe des Einsatzpunktes unterhalb  $\Delta T=15 \text{ K}$  zu beachten (das Auftreten von Mode  $k=3, l=3$  unterhalb von  $\Delta T=4 \text{ K}$  läßt sich durch externe Rauschanregung erklären). Für Mode  $k=3, l=3$  wurde ein Einsatzpunkt von  $\Delta T_{\text{krit.}}^{k=3, l=3}=4 \text{ K}$ , für Signal b von  $\Delta T_{\text{krit.}}^b=3,4 \text{ K}$  bestimmt (Kap. 4.4 und Kap. 5.5).

Wie bereits bei Mode  $k=1, l=1$  findet sich ein für Resonanzeffekte typischer Kurvenverlauf mit Abnahme des Amplitudenverhältnis  $A_{k=3, l=3}/A_b$  mit zunehmendem Frequenzabstand  $\nu_b - \nu_{k=3, l=3}$ . Im Gegensatz zu Mode  $k=1, l=1$  ist die Frequenz der thermischen Welle b niedriger als die Frequenz der Oberflächenszillation. Da die Frequenz der Oberflächenszillation mit zunehmender Temperaturdifferenz und Unterfüllung sinkt, sinkt dabei ebenfalls der Frequenzabstand. Bei Mode  $k=1, l=1$  lag der umgekehrte Fall vor: Der Frequenzabstand wurde mit zunehmender Temperaturdifferenz oder Unterfüllung vergrößert. Entsprechend findet man bei Mode  $k=3, l=3$  in Abb. 7.7 bei höheren Temperaturdifferenzen relativ größere Amplituden der Oberflächenszillation als bei niedrigem  $\Delta T$ . Das heißt, sowohl bei Mode  $k=1, l=1$  als auch bei Mode  $k=3, l=3$  nimmt trotz bezüglich  $\Delta T$  gegenläufigem Frequenzabstand das Amplitudenverhältnis mit dem Frequenzabstand ab. Das Amplitudenverhältnis korreliert mit dem Frequenzabstand, nicht mit der angelegten Temperaturdifferenz. Dies zeigt, daß es sich dabei nicht um einen indirekten Effekt der Temperaturdifferenz oder Unterfüllung sondern um den direkten Einfluß des Frequenzabstandes handelt.

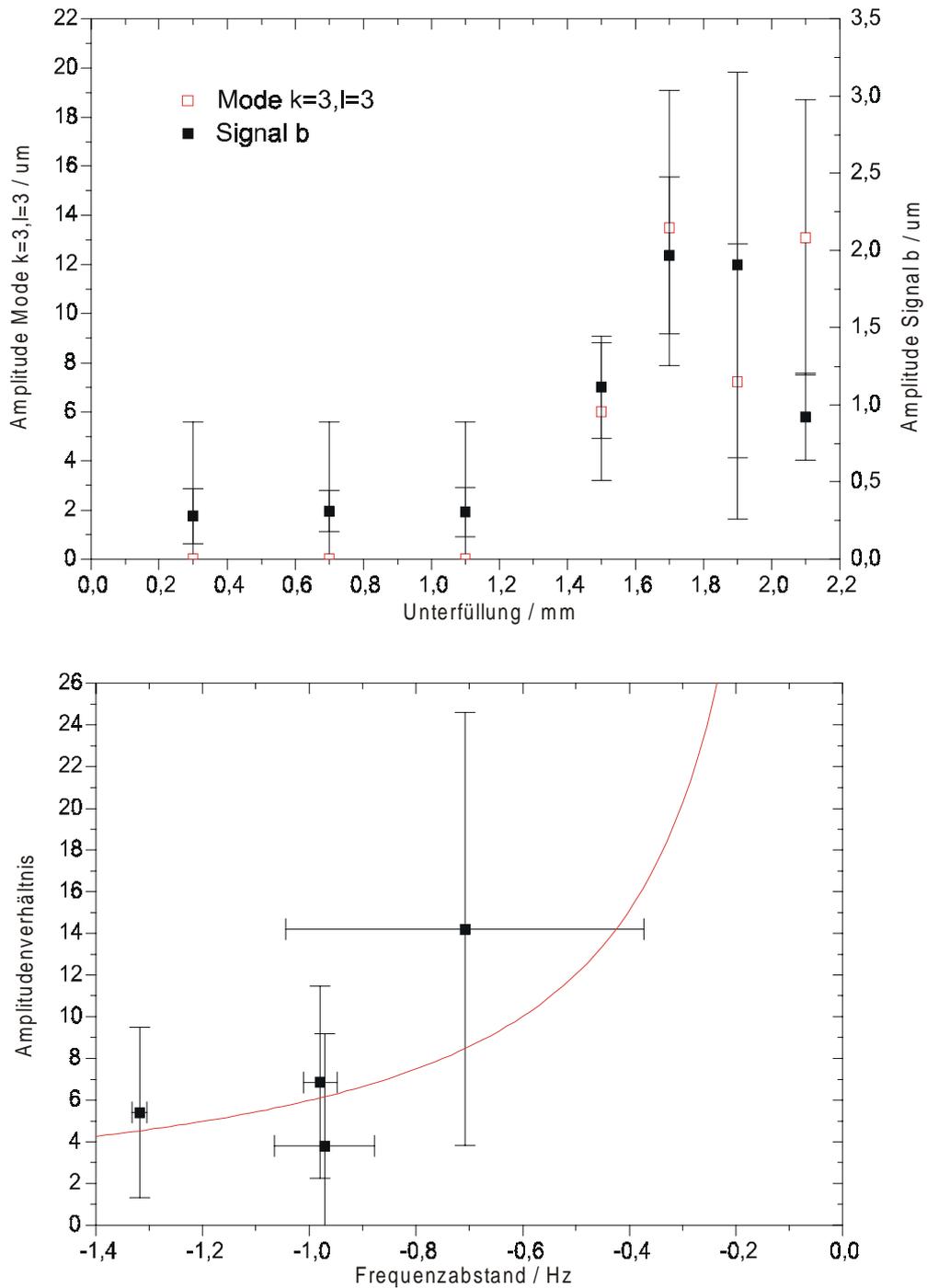


**Abb. 7.7** Vergleich des Amplitudenverlaufs des Signals der Oberflächenoszillation Mode  $k=3, l=3$  und der thermischen Welle  $b$  (Signal  $b_1+b_2$ ) bei Veränderung der angelegten Temperaturdifferenz  $\Delta T$ .

$T_M=20\text{ }^\circ\text{C}$ ,  $h=1,5\text{ mm}$ ,  $L=12\text{ mm}$ ,  $B=41\text{ mm}$ .

 Signal  $b_2$  auf CD.

 Datensatz auf CD.

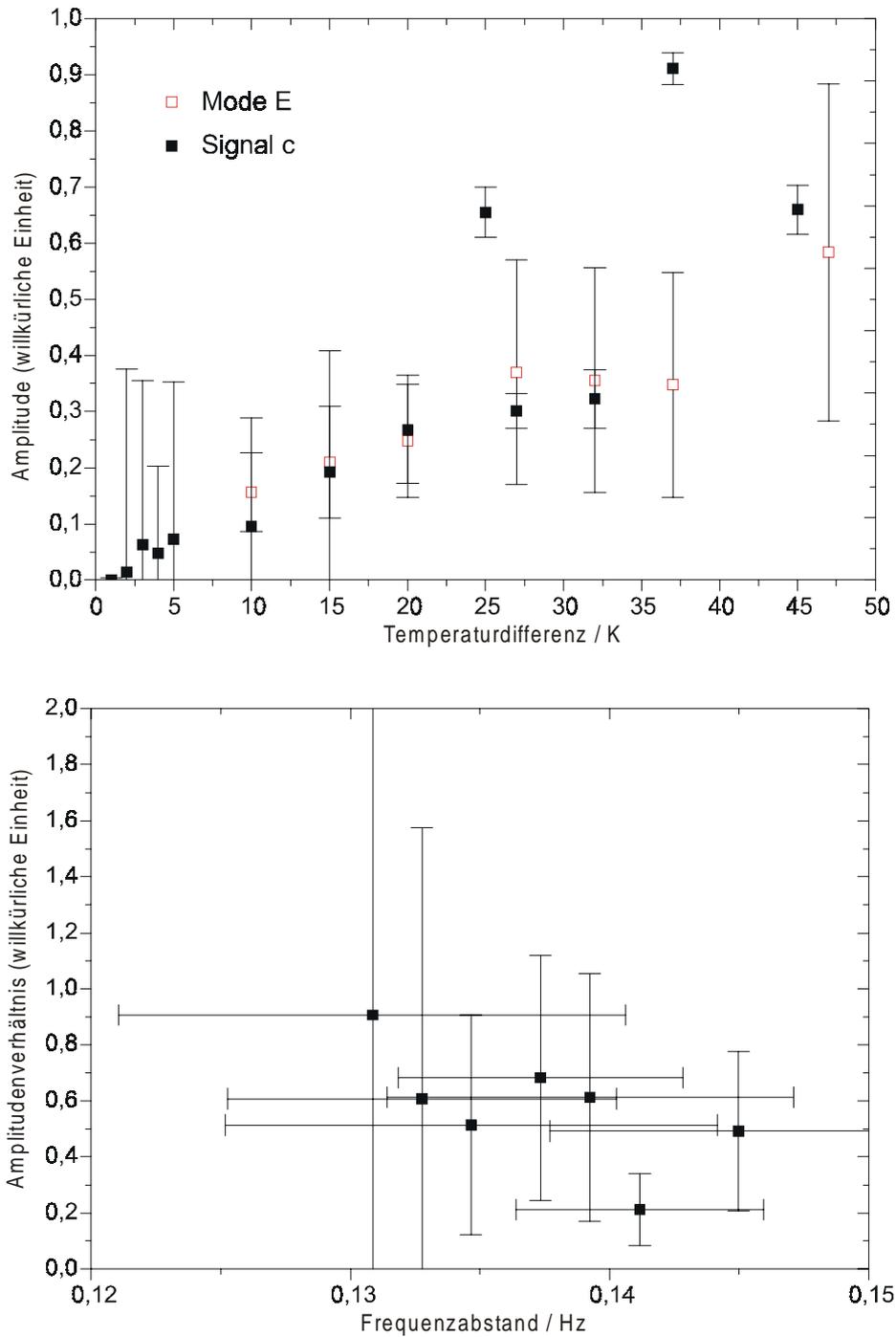


**Abb. 7.8** Amplitudenverlauf von Mode  $k=3, l=3$  und der thermischen Welle  $b$  (Signal  $b_1+b_2$ ) in Abhängigkeit der Unterfüllung  $h$ . Eine angepasste Resonanzkurve ist als rot durchgezogene Linie eingezeichnet.

$T_M=20\text{ }^\circ\text{C}$ ,  $h=1,5\text{ mm}$ ,  $L=12\text{ mm}$ ,  $B=41\text{ mm}$ .

 Signal  $b_2$  auf CD.

 Datensatz auf CD.



**Abb. 7.9** Vergleich des Amplitudenverlaufs des Signals der Oberflächenoszillation Mode E und dem Temperatursignal der hydrothermalen Welle c (Summe der Signal  $c_1$ ,  $c_2$  und  $c_3$ ) bei Veränderung der angelegten Temperaturdifferenz  $\Delta T$ . Die Signalamplituden sind gegenseitig normiert.

$T_M = 20\text{ }^\circ\text{C}$ ,  $h = 1,5\text{ mm}$ ,  $L = 12\text{ mm}$ ,  $B = 41\text{ mm}$ .

 Datensatz auf CD.

Die Amplitude von Mode  $k=3, l=3$  wird ebenfalls auf  $10 \mu\text{m}$  geschätzt; die Amplitude der Oberflächendeformation durch die thermische Welle  $b$  liegt bei ca.  $1,4 \mu\text{m}$  und erreicht bis zu  $3 \mu\text{m}$ . Das Verhältnis der Amplituden der Oberflächenoszillation und der durch die thermischen Welle  $b$  hervorgerufenen Deformationen der freien Oberfläche zwischen 3 bis 14 ist größer als bei Mode  $k=1, l=1$ /thermische Welle  $a$ , liegt aber in der gleichen Größenordnung. Der Unterschied liegt innerhalb des Fehlers von etwa 100% für die Kalibrierung. Das Amplitudenverhältnis ist für einen Resonanzfall plausibel, so daß davon ausgegangen werden kann, daß die von der hydrothermale Welle  $b$  hervorgerufenen Oberflächendeformationen die Oberflächenoszillation  $k=3, l=3$  resonatorisch anregt.

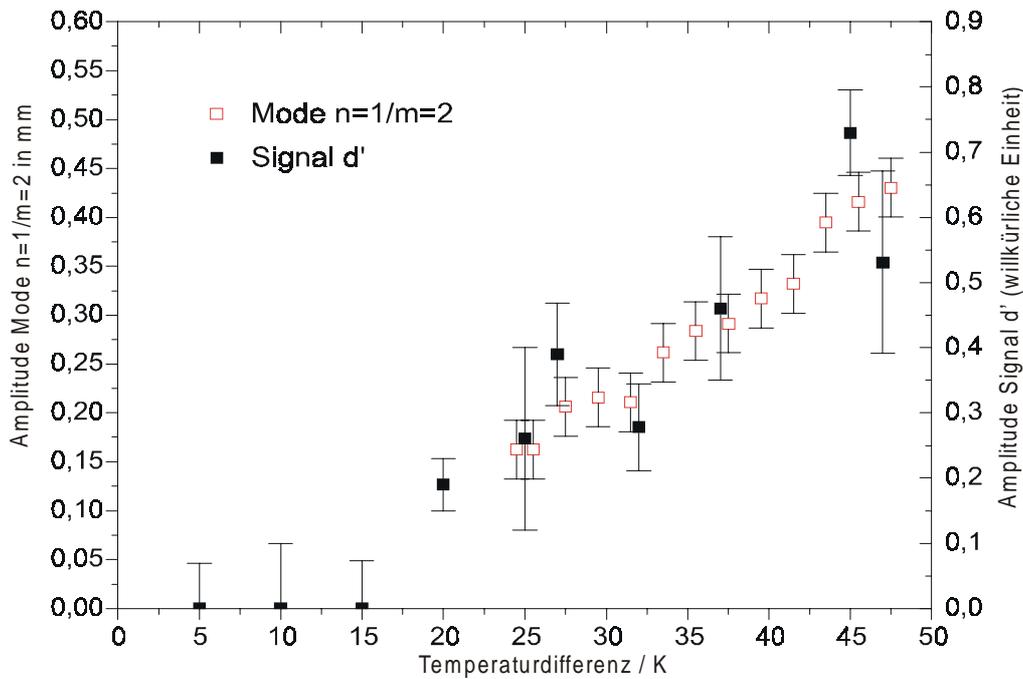
Betrachtet man Mode E, findet sich kein passendes Temperatursignal in geringem Abstand. Die Frequenz des Temperatursignals der thermischen Welle  $c$  entspricht aber ungefähr der doppelten Frequenz von Mode E. Der Frequenzabstand von Mode E zur halben Frequenz von Signal  $c$  beträgt  $0,5 \cdot \nu_c - \nu_E \sim 0,14 \text{ Hz}$ . Die Halbwertsbreite von Mode E beträgt ca.  $0,2 \text{ Hz}$ , d. h.  $0,5 \nu_c$  liegt innerhalb der doppelten Halbwertsbreite von Mode E.

Abb. 7.9 vergleicht beide Signale in Abhängigkeit von  $\Delta T$ . Eine Kalibrierung für die Deformation der freien Oberfläche durch die thermische Welle  $c$  ist nicht möglich. Es wurden daher in beiden Graphen willkürliche lineare Einheiten verwendet. Die Übereinstimmung ist gut. Trotz der geringen Variation des Frequenzabstandes von  $0,015 \text{ Hz}$  beobachtet man ein Abfallen des Amplitudenverhältnisses  $A_E/A_c$  mit zunehmendem Frequenzabstand  $\nu_c - \nu_E$ . Die Amplitude der Oberflächenoszillation Mode E ist mit ca.  $3 \mu\text{m}$  deutlich geringer als bei den Moden  $k=1, l=1$  und Mode  $k=3, l=3$ . Wahrscheinlich regen auch in diesem Fall die Oberflächendeformationen der thermischen Welle die Oberflächenoszillation an.

Wenn die thermische Welle  $c$  eine Oberflächenoszillation mit der halben Frequenz anregt, stellt sich die Frage, weshalb keine Oberflächenoszillation mit der gleichen Frequenz wie Signal  $c$  beobachtet wird. Diese sollte leichter durch Signal  $c$  angeregt werden, als Mode E. Wie bereits in Kap. 2.9 gezeigt, führt die Dispersion der Oberflächenoszillation dazu, daß die erste Oberschwingung von Mode E nicht bei der doppelten Frequenz, sondern etwas niedriger liegt. Damit ist eine direkte Anregung der Oberschwingung von Mode E durch die thermische Welle  $c$  ausgeschlossen. Die Anregung der Oberflächenoszillation durch eine harmonische Frequenz ist durch das nichtlineare Verhalten der Oberflächenoszillation möglich.

Auch für die Oszillationsmoden  $n=1$  und  $m=2$  findet man kein Signal im Frequenzspektrum, das einen genügend geringen Frequenzabstand hat, um als Anregungin Frage zu kommen. Die Frequenz der Moden  $n=1$  und  $m=2$  stimmen weitgehend überein und sind bei den meisten

Messungen nicht voneinander zu trennen. Bei den folgenden Überlegungen ist daher immer die Summe beider Amplituden  $A_{n=1/m=2} = A_{n=1} + A_{m=2}$  betrachtet. Die Frequenz der Oberflächenwelle  $d'$  besitzt mit großer Genauigkeit die dreifache Frequenz von Mode  $n=1/m=2$ . Für gewisse Temperaturdifferenzen und Unterfüllungen ist  $1/3\nu_{d'}$  exakt gleich  $\nu_{n=1/m=2}$ .

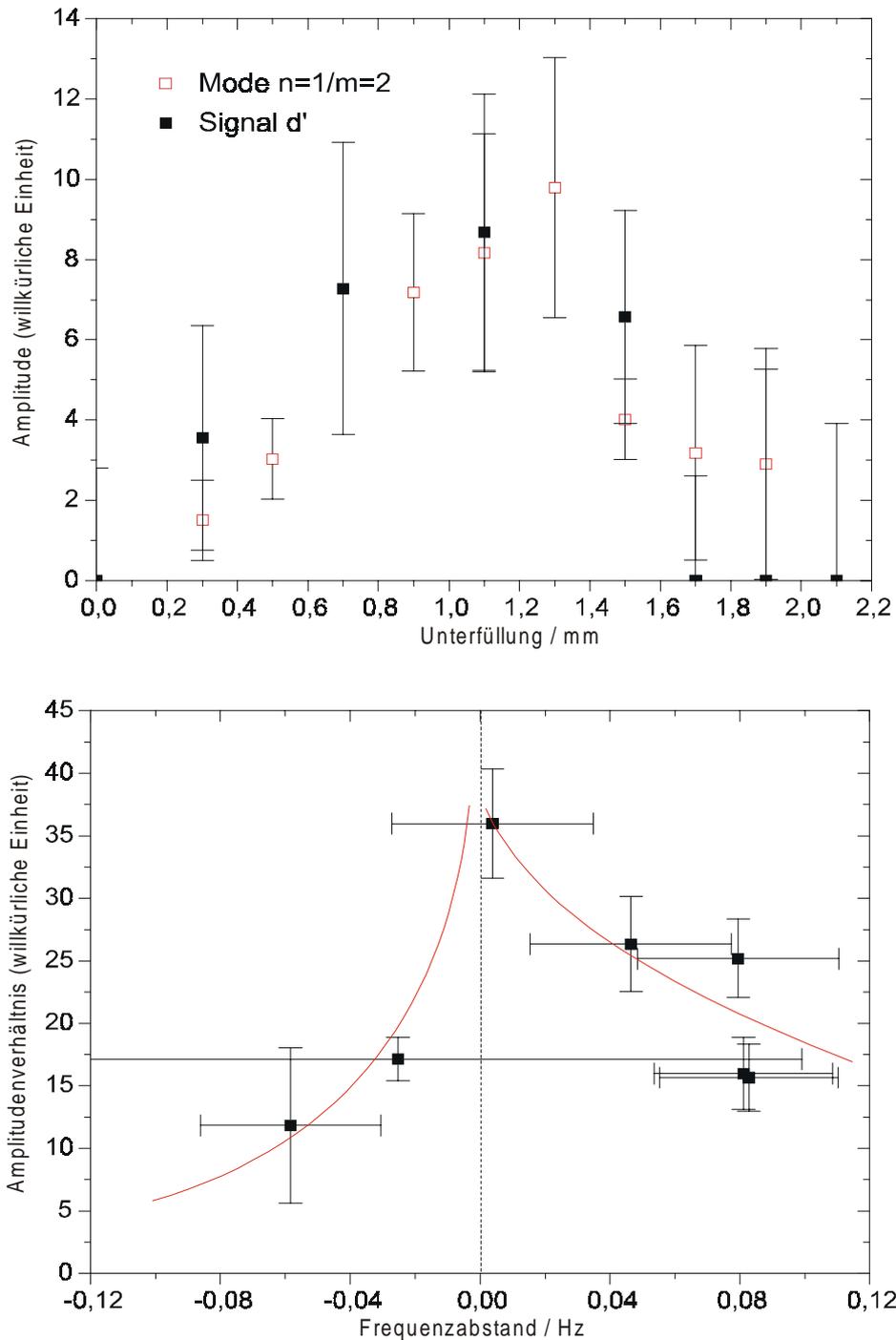


**Abb. 7.10** Vergleich des Amplitudenverlaufs des Signals der Oberflächenoszillationen Mode  $n=1/m=2$  und dem Temperatursignal der Oberflächenwelle  $d'$  (Signal  $d'$ ) bei Veränderung der angelegten Temperaturdifferenz  $\Delta T$ . Die Signalamplitude der Mode  $n=1/m=2$  wurde durch Lichtzeigermessung gewonnen, bei Signal  $d'$  wurde eine Thermoelementmessung eingesetzt. Die Amplitude  $A_{d'}$  wurde an  $A_{n=1/m=2}$  angepaßt.  $T_M=20\text{ °C}$ ,  $h\sim 1,5\text{ mm}$ ,  $L=12\text{ mm}$   $B=41\text{ mm}$ .

 Datensatz auf CD.

In Abb. 7.10 sind der Amplitudenverlauf der Mode  $n=1/m=2$  und der Oberflächenwelle  $d'$  gegen die angelegte Temperaturdifferenz  $\Delta T$  aufgetragen. Eine Kalibrierung der Oberflächen deformationen durch die Oberflächenwelle  $d'$  ist nicht möglich. Es wurden daher in Abb. 7.10 und in den folgenden Abbildungen willkürliche lineare Einheiten verwendet.

Die Übereinstimmung des Verlaufs beider Signale ist sehr gut. Auch die Einsatzpunkte stimmen sehr gut überein: Für Mode  $n=1/m=2$  wurde ein Einsatzpunkt von  $\Delta T_{\text{krit.}}^A = 15,2 \pm 3,8\text{ K}$  bestimmt; für Signal  $d'$  ergibt sich  $\Delta T_{\text{krit.}}^{d'} = 15,7 \pm 1,8\text{ K}$  (vgl. Kap. 4.4 und Kap. 5.5).

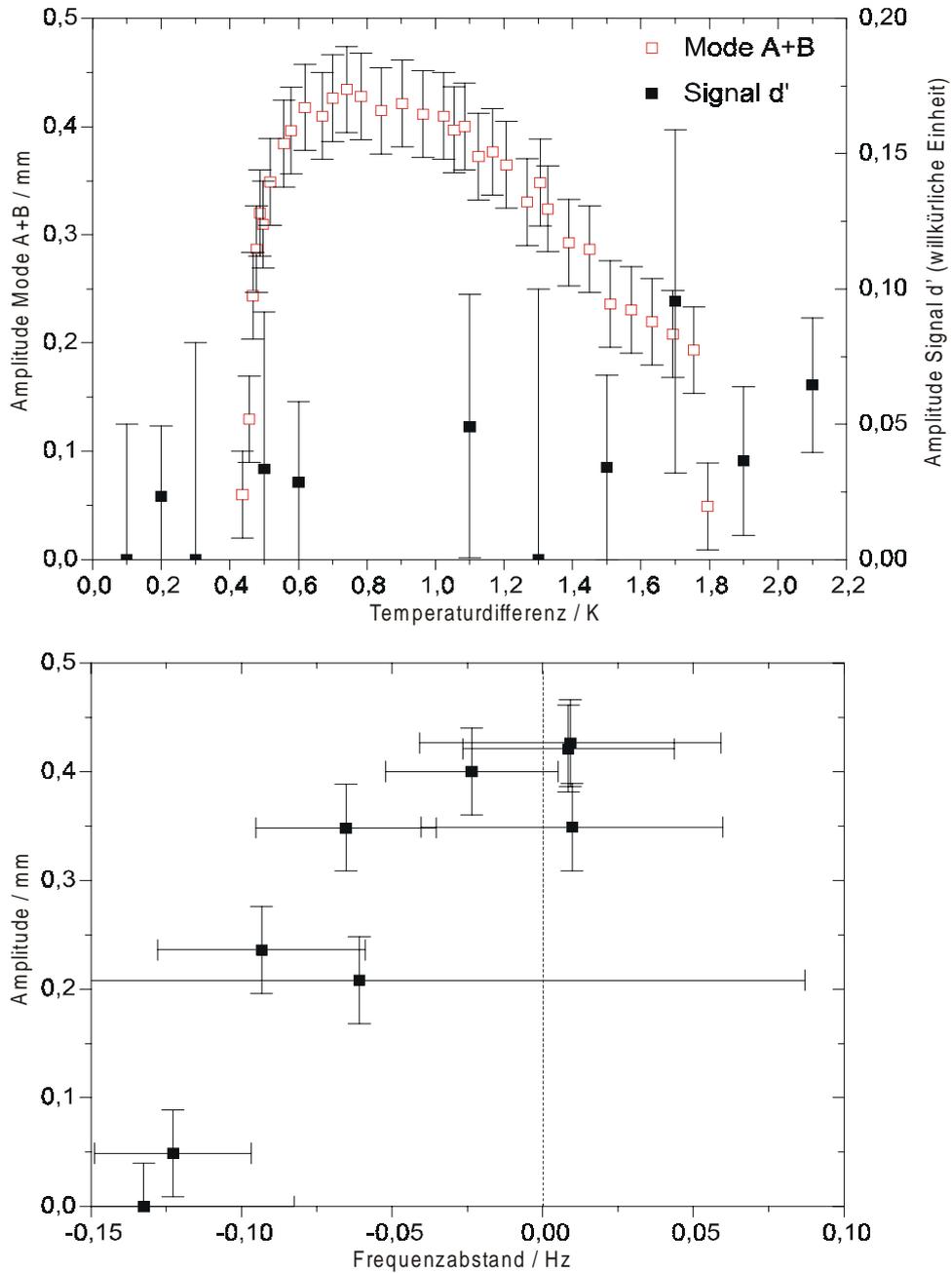


**Abb. 7.11** Amplitudenverlauf der Moden  $n=1/m=2$  und der Oberflächenwelle  $d'$  (Signal  $d'$ ) in Abhängigkeit der Unterfüllung  $h$ . Beide Amplituden wurden über Thermoelementmessungen bestimmt. Die Signalamplituden sind gegenseitig normiert.

$\Delta T=25$  K,  $T_M=20$  °C,  $h=1,5$  mm,  $L=12$  mm,  $B=41$  mm.

 Lichtzeigermessung auf CD.

 Datensatz auf CD.



**Abb. 7.12** Amplitudenverlauf der Mode  $n=1/m=2$  und der Oberflächenwelle  $d'$  (Signal  $d'$ ) in Abhängigkeit der Unterfüllung  $h$ . Die Amplitude der Mode  $n=1/m=2$  wurde mit Lichtzeigermessung, die Amplitude des Signals  $d'$  mit Thermoelementmessung bestimmt. In der rechten Graphik wurde die Amplitude der Moden  $n=1/m=2$  statt des Amplitudenverhältnisses  $A_{n=1/m=2}/A_{d'}$  gegenüber dem Frequenzabstand  $\Delta v/3v_{d'} - v_{n=1/m=2}$  aufgetragen, da  $A_{d'}$  als weitgehend konstant angenommen werden kann, die Meßwerte aber einen großen Fehler aufweisen.

$\Delta T=45,0$  K,  $T_M=20$  °C,  $L=12$ ,  $B=41$ .

Frequenzverlauf (auch Kap. 4.5) und Amplitudenverhältnis auf CD.

Datensatz auf CD.

Auch bei Veränderung der Unterfüllung stimmen die Amplituden der Mode  $n=1/m=2$  sehr gut mit Signal  $d'$  überein. Das Amplitudenverhältnis  $A_{n=1/m=2}/A_{d'}$  zwischen den Moden  $n=1/m=2$  und Signal  $d'$  zeigt einen für Resonanzeffekte typischen Abfall mit zunehmendem Abstand der Frequenzen von Signal  $d'$  und den Moden  $n=1/m=2$   $\Delta\nu=1/3\nu_{d'}-\nu_{n=1/m=2}$ . Wichtig ist, daß die Abnahme des Amplitudenverhältnisses sowohl für  $\Delta\nu>0$  als auch für  $\Delta\nu<0$  beobachtet wird.

Bei einer angelegten Temperaturdifferenz von  $\Delta T=45,0$  K hat die Signalamplitude  $d'$  gegenüber  $\Delta T=25,0$  K einen flacheren Verlauf bezüglich der Unterfüllung  $h$ . Nach Einsetzen von Signal  $d'$  bei  $h=0,4 \dots 0,5$  mm kann die Amplitude weitgehend als konstant angesehen werden. Die Moden  $n=1/m=2$  zeigen im Gegensatz dazu eine deutliche Abhängigkeit von der Unterfüllung bei einem stark asymmetrischen Verlauf.

Dieser Verlauf stimmt gut mit dem Frequenzverlauf der Moden  $n=1/m=2$  überein (vgl. Kap. 4.5). Trägt man die Signalamplitude  $A_{n=1/m=2}$  gegen den Frequenzabstand  $1/3\nu_{d'}-\nu_{n=1/m=2}$  auf, findet man mit zunehmendem Frequenzabstand einen deutlichen Abfall der Amplitude. Da die Amplitude der Oberflächenwelle  $d'$  im betrachteten Bereich nahezu konstant ist, erhält man das qualitativ gleiche Ergebnis - jedoch aufgrund des großen Meßfehlers für  $A_{d'}$  mit größerem Fehler -, wenn man  $A_{n=1/m=2}/A_{d'}$  gegen  $1/3\nu_{d'}-\nu_{A/B}$  aufträgt.

Die Amplitude der Mode  $n=1$  ist bei  $\Delta T=25,0$  K mit  $A_{n=1}=0,16\pm 0,03$  mm gut 15x größer als  $A_{k=1,l=1}$  oder  $A_{k=3,l=3}$ . Die von Oberflächenwellen erzeugten Deformationen der freien Oberfläche liegen über denen von hydrothermalen Wellen. Erwartet werden 5-15  $\mu\text{m}$ . Hinzu kommt, daß die Frequenz der Oberflächenszillation und der Oberflächenwelle beim Erreichen der Maximalamplitude exakt übereinstimmen.

Trotz des 3:1-Verhältnisses beider Frequenzen kann davon ausgegangen werden, daß die von der Oberflächenwelle  $d'$  hervorgerufenen Deformationen der Flüssigkeitsoberfläche durch einen Resonanzeffekt die Oberflächenszillationen mit den Moden  $n=1$  und  $m=2$  erzeugt. Auch hier ist aufgrund des nichtlinearen Verhaltens der Oberflächenszillationen eine solche Anregung durch eine Harmonische möglich.

Beim Vergleich der Oberflächenszillationen und der hydrodynamischen Instabilitäten kann also jeder Oberflächenszillation eine spezifische Instabilität im Meniskus zugeordnet werden:

hydrodynamische Instabilität	Mode der Oberflächenszillation	Frequenzverhältnis
thermische Welle der Konvektionsrolle a	$k=1, l=1$	1:1
thermische Welle der Konvektionsrolle b	$k=3, l=3$	1:1
thermische Welle der Konvektionsrolle c	$k=2, l=1$ (Mode E)	2:1
Oberflächenwelle	$n=1$ und $m=2$	3:1

Für jedes zugeordnete Paar findet sich sowohl bei der Variation der angelegten Temperaturdifferenz  $\Delta T$  als auch der Unterfüllung  $h$  eine für Resonanzeffekte typische Abhängigkeit der Oberflächenszillation von der Amplitude der hydrodynamischen Instabilität und des Frequenzabstandes.

Soweit für die hydrodynamischen Instabilitäten absolute Werte der Oberflächenauslenkungen vorliegen, ergeben sich für Resonanzsysteme gut passende Amplitudenverhältnisse. In allen Fällen sind auch die geschätzten Amplituden für Resonanzeffekte plausibel.

Aufgrund der nichtlinearen Eigenschaften der Oberflächenszillationen finden sich dabei Anregungen mit den Frequenzverhältnissen 1:1, 2:1 und 3:1.

## 8. Zusammenfassung

Es wurde die Strömung einer Flüssigkeit (Ethanol) mit freier Oberfläche in einer rechteckigen Küvette mit Seitenverhältnis  $A=1$  betrachtet. Entlang der  $x$ -Achse dieser Küvette wird eine Temperaturdifferenz angelegt, so daß es zu thermokapillaren Strömungsstrukturen in der Flüssigkeit kommt.

Sofern diese Küvette nicht vollständig gefüllt ist, bildet sich an den Thermoden ein Meniskus, dessen Ausdehnung in der gleichen Größenordnung wie eine thermischen Grenzschicht an den Thermoden ist.

In dieser Arbeit wurden erstmals hydrodynamische Instabilitäten in der Meniskusregion an der kalten Thermode (kalte Wand) beobachtet. Sie wurden systematisch charakterisiert bezüglich:

- Wellenlänge,
- Frequenz bei zeitabhängiger Strömung,
- Oszillationsamplitude der räumlichen Ausdehnung und
- Amplitude der Temperaturoszillation.

Das System wurde durch Anlehnung an die bekannten hydrodynamischen Strukturen der Konvektionsrolle, der hydrothermalen Welle und der Oberflächenwelle beschrieben.

Bei Unterfüllungen zwischen einigen  $100\ \mu\text{m}$  und  $1,8\ \text{mm}$  (das entspricht einem Kontaktwinkel zwischen Seitenwand und Flüssigkeitsoberfläche von etwa  $45^\circ$ ) werden drei korotierende Konvektionsrollen mit Ausdehnungen zwischen  $30\ \mu\text{m}$  und  $400\ \mu\text{m}$  beobachtet, die bereits bei angelegten Temperaturdifferenzen unterhalb  $\Delta T=1\ \text{K}$  auftreten.

Darüber hinaus wurde ein Modell für den Separationsmechanismus der Konvektionsrollen im Meniskusbereich gewonnen. Das Modell macht sehr gute Voraussagen über Lage und Ausdehnung der Konvektionsrollen und Frequenz ihrer Oszillation. Zusammen mit den bisherigen Beschreibungen der hydrothermalen Welle und der Oberflächenwelle erklärt das Modell die Veränderung der Oszillationsamplitude in Abhängigkeit der Meniskusform und den an die Flüssigkeitsoberfläche angelegten Temperaturgradienten.

Dabei wurde gezeigt, daß ein für hydrodynamische Instabilitäten typischer Einsatzpunkt der oszillatorischen Strömung bezüglich des Temperaturgradienten an der Flüssigkeitsoberfläche existiert. Diese kritische Temperaturdifferenz ist von der Meniskusform abhängig, so daß sowohl

eine untere als auch eine obere Grenze für den Kontaktwinkel existiert, außerhalb derer für die beobachteten Instabilitäten keine Zeitabhängigkeiten auftreten.

Die Temperaturoszillationen konnten den beobachteten Konvektionsrollen zugeordnet werden. Frequenzverhalten und kritische Temperaturdifferenzen entsprechen dem Auftreten hydrothormaler Wellen. Daneben wurden zwei weitere Instabilitäten gemessen, deren Einsatzpunkte und Frequenzverhalten dem Auftreten von Oberflächenwellen entspricht.

Angeregt wurden die Untersuchungen durch das Auftreten von Oszillationen der freien Flüssigkeitsoberfläche mit Oszillationsamplituden von bis zu 0,4 mm, die erstmals von METZGER [Metzger86] beobachtet wurden.

Die Oberflächenoszillationen wurden systematisch beschrieben.

Dazu wurde erstmals eine analytische Näherungslösung für stehende Schwerewellen in einem rechteckigen Flüssigkeitsbehälter mit *edge constraints* (Festlegung der Begrenzungslinien am Übergang zwischen Behälterwand und freier Flüssigkeitsoberfläche) gewonnen. Diese Näherungslösung stimmt sehr gut mit den im Experiment beobachteten Oberflächenoszillationen überein.

Die Oberflächenoszillationen wurden untersucht bezüglich:

- Schwingungsmode,
- Wellenlänge,
- Frequenz und
- Amplitude

bei Variation der angelegten Temperaturdifferenz und der Meniskusform. Insbesondere wurde gezeigt, daß auch für das Auftreten der Oberflächenoszillationen ein Einsatzpunkt bezüglich der angelegten Temperaturdifferenz und sowohl eine untere als auch eine obere Limitierung bezüglich des Kontaktwinkels zwischen Oberfläche und kalter Thermode existiert.

Durch Vergleich mit den Meßergebnissen zu den hydrodynamischen Instabilitäten im kalten Meniskus, konnte gezeigt werden, daß die Oberflächenoszillationen von diesen durch einen Resonanzmechanismus angeregt werden. Dadurch läßt sich die große Amplitude der Oberflächenoszillationen erklären.

Es kommen mehrere Faktoren zusammen, die das Auftreten der Oberflächenoszillationen ermöglicht:

Die Begrenzung der Oberfläche in der rechteckigen Küvette bewirkt durch Reflexion die Ausbildung von stehenden Wellen, in denen in einem räumlich begrenzten Gebiet Energie gespeichert und so durch Resonanz eine hohe Oszillationsamplitude erreicht werden kann. Bei einer unbegrenzten Flüssigkeitsoberfläche wird eingebrachte Energie von der ausgelösten Welle vom Entstehungsort wegtransportiert; Resonanzeffekte treten nicht auf.

Bei den bisherigen Experimenten in einer Küvetten [z.B. Metzger86, Metzger94] oder im Ringspalt [z.B. Schneider99] besitzen die hydrodynamischen Instabilitäten (Instabilitäten des Hauptstroms des Gefäßes) eine Frequenz von wenigen zehntel-Hertz, während die Oszillationsfrequenz der Oberfläche bei einigen Hz liegt, so daß hier solche Resonanzen nicht auftreten.

Bei den Experimenten in dieser Arbeit wurden hydrodynamische Instabilitäten in einem sehr kleinen Meniskusgebiet an eine Oberfläche mit etwa 10x größerer Längenausdehnung gekoppelt. Dadurch liegt die Frequenz sowohl der hydrodynamischen Instabilitäten als auch der Oberflächenoszillationen in der gleichen Größenordnung von einigen Hz.

Die rechteckige Form der Oberfläche zeigt aufgrund der geringen Symmetrie (z.B. im Gegensatz zu der Oberfläche eines Ringspalts, einer kreisförmigen Oberfläche aber auch einer quadratischen Oberfläche) eine hohe Zahl der möglichen Schwingungsmoden und damit ein breites Spektrum der anregbaren Frequenzen.

Durch die Form des Meniskus besitzen alle auftretenden Konvektionsrollen deutlich unterschiedliche Durchmesser (im Gegensatz zu Konvektionsrollen in den meisten Experimenten zur thermokapillaren Konvektion). Da sowohl thermische Wellen als auch Oberflächenwellen auftreten, bildet sich im Meniskus ebenfalls ein breites Spektrum an Temperaturoszillationen mit unterschiedlichen Frequenzen.

Wellen auf Flüssigkeitsoberflächen zeigen starke nichtlineare Effekte. Dadurch ist die Anregung einer Oberflächenoszillation nicht nur mit der Grundfrequenz der Oszillation sondern auch mit einer harmonischen Frequenz möglich. Im Experiment wird sowohl die Anregung mit der doppelten als auch mit der dreifachen Frequenz der Oberflächenoszillation nachgewiesen. Aus dem gleichen Grund zeigen alle Oberflächenoszillationen im der Fouriertransformierten ein relativ breites Spektrum. Dies führt dazu, daß die anregenden hydrodynamischen Instabilitäten

und die angeregten Oberflächenoszillationen einen relativ großen Frequenzabstand besitzen können.

Im beschriebenen Experiment wurde also auf die bisherigen Vereinfachung meniskusfreier Kontaktlinien zwischen freier Flüssigkeitsoberfläche und Begrenzungswand verzichtet. Durch das Zulassen der Menisken tritt eine hohe Anzahl hydrodynamischer Instabilitäten auf. Gleichzeitig bildet die schwingungsfähige Flüssigkeitsoberfläche ebenfalls ein komplexes System mit großer Modenzahl. Durch die Wechselwirkung beider Systeme ist das Auftreten von Resonanzeffekten sehr wahrscheinlich. Die in dieser Arbeit verwendete Geometrie eignet sich daher besonders für die Beobachtung der Resonanzen. Bei geschickter Parameterwahl sollte die Kopplung hydrodynamischer Instabilitäten und freier Flüssigkeitsoberfläche auch in anderen Systemen beobachtet werden können.

## 9. Literaturverzeichnis

- Bach95 Christian Bach; *Untersuchungen zum Einfluß von Adsorbaten in der Reibungsmikroskopie*, Diplomarbeit, Universität Gießen (1995)
- Bardsely74 W. Bardsley, F. C. Frank, G. W. Green and D. T. J. Hurle; *The Meniscus in Czochralski Growth*, Journal of Crystal Growth **23** 341-344 (1974)
- Bauer84 H. F. Bauer; *Free Liquid Surface Response Induced by Fluctuations of Thermal Marangoni Convection*, AIAA Journal, Vol. 22 No. 3 421-428 (1984)
- Ben-Hadid90 H. Ben-Hadid and B. Roux; *Melt motion in differential heated horizontal cavities; motion due to buoyancy and thermocapillarity*, Journal of Fluid Mechanics **221** 77-103 (1990)
- Benjamin79 T. B. Benjamin and J. C. Scott; *Gravity-capillary waves with edge constraints*, J. Fluid Mech. **92** 241 (1979)
- Benjamin80 T. B. Benjamin; *Theoretical problems posed by gravity-capillary waves with edge constraints*, Trends in Applications of Pure Mathematics to Mechanics III (Hrsg. H. Zorski) 40-58 London: Pitman (1980)
- Benkert77 Jürgen Benkert; *Untersuchungen von Temperaturfluktuationen in flüssigem Natrium zur Ermittlung charakteristischer Strömungsparameter und Thermolementübertragungsfunktionen*, Dissertation, Universität Hannover (1977)
- Benz00 Simon Benz; *Die Dreidimensionale Stationäre Instabilität in dynamischen thermokapillaren Schichten*, Dissertation, Universität Gießen (2000)
- Benjamin85 T. Booke Benjamin and J. Graham-Eagle; *Long Gravity-Capillary Waves with Edge Constraints*, JMA Journal of Applied Mathematics **35**, 91-114 (1985)
- Berge84 P. Berge, Y. Pomeau and C. Vidal; *Order within Chaos*, Wiley & Sons (1984)

- Braunfurth96 M. G. Braunfurth and G. M. Homsy; *Combined thermocapillary-bouyancy convection in a cavity. Part II. An experimental study*, Phys Fluids **9** (9), May 1997
- Bryant95 Peter Bryant and Michael Stiasnie; *Water waves in a deep square basin*, J. Fluid Mech., vol 302, pp 65-90 (1995)
- Canright94 D. Canright, *Thermocapillary flow near a cold wall*, Phys. Fluids **6** (4) 1415-1424 (April 1994)
- Chernatinsky99 V. Chernatinsky, private Mitteilung, Universität Perm (1999)
- Cramer94 A. Cramer, Dissertation, Universität Gießen (1994)
- Daviaud93 F. Daviaud and J. M. Vince; *Travelling waves in a fluid layer subjected to a horizontal temperature gradient*, Physical Review **E 48**, 4432-4436 (1993)
- Davis87 Stephen. H. Davis, *Thermocapillary instabilities*, Ann. Review of Fluid Mech. **19** 403-435 (1987)
- Dürr91 Holger Dürr; *Holografische Interferometrie an Marangoni-Konvektion*, Diplomarbeit, Universtität Gießen (1991)
- Ezersky93 A. B. Ezersky, A. Carcimartin, J. Burguete, H. L. Mancini and C. Perez-Carcia; *Hydrothermal waves in Marangoni-convection in a cylindrical container*, Physical Review E, **47** 1226-1131 (1993)
- Ezersky93a A. B. Ezersky, A. Carcimartin, H. L. Mancini and C. Perez-Garcia; *Spatio-temporal structure of hydrothermal waves in Marangoni-convection*, Physical Review **E 48** 4414-4422 (1993)
- Garcimartin97 Angel Garcimartin, Natalie Mukolobwiesz and François Daviaud; *Origin of waves in surface-tension-driven convection*, Physical Review E Volume 56, Number 2, 1699-1705 (1997)
- Gerthsen89 C. Gerthsen, H. O. Kneser, H. Vogel; *Physik: ein Lehrbuch zum Gebrauch neben Vorlesungen*, 16. Auflage, Springer Heidelberg (1989)

- Graham-Eagle83 James Graham-Eagle; *A new method for calculating eigenvalues with applications to gravity-capillary waves with edge constraints*, Math. Proc. Comb. Phil. Soc. **94** 553 (1983)
- Heckerman79 D. Heckerman, S. Garret, G. A. Williams and P. Weidman; *Surface tension restoring forces on gravity waves in narrow channels*, Phys. Fluids **22** 2270 (1979)
- Hintz99 Peter Hintz; *Konvektion im Czochralski-Tiegel*, Dissertation, Universität Gießen (1999)
- Hrma70 P. Hrma; *Dissolution of a solid body governed by surface free convection*; Chemical Engineering Science, Vol. 25, pp. 1679-1688 (1970)
- Hurle77 D. T. J. Hurle; *Control of Diameter in Czochralski and related Crystal Growth Techniques*, Journal of Crystal Growth **42** 473-482 (1977)
- Israelachvili85 J. N. Israelachvili; *"Intermolecular and Surface Forces"*, Academic Press London (1985)
- Kayser71 William V. Kayser and John C. Berg; *Spontaneous Convection in the Vicinity of Liquid Menisci*, Ind. Eng. Cgen. Fundam., Vol. 10, No. 3 (1971)
- Kuhlmann96 Hendrik C. Kuhlmann; *Thermokapillare Konvektion in Modellsystemen der Kristallzucht*, Habilitationsschrift, Universität Bremen (1996)
- Levich69 V. G. Levich and V. S. Krylow, Annual Review of Fluid Mechanics, **1** 293-316 (1969)
- Laure90 P. Laure, B. Roux and H. Ben-Hadid; *Nonlinear study of the flow in a long rectangular cavity subjected to thermocapillary effect*, Physics of Fluids **A2** 516-524 (1990)
- Metzger86 Joachim Metzger; *Experimente zur Kopplung von Auftriebs- und thermokapillarer Konvektion*, Diplomarbeit, Universität Gießen (1986)

- Metzger94            Joachim Metzger; *Raumzeitliche Strukturen reiner und mit Schwerkraft gekoppelter thermokapillarer Konvektion*, Dissertation, Universität Gießen (1994)
- Möller86            Uwe Möller; *Stationäre und oszillatorische thermokapillare Konvektion in dünnen Flüssigkeitsschichten*, Diplomarbeit, Universität Gießen (1986)
- Parmentier93        P. M. Parmentier, V. C. Regnier and G. Lebon; *International Journal of Heat and Mass Transfer* **36** 2417-2427 (1993)
- Peltier93            L. J. Peltier and S. Biringen; *Time-dependant thermocapillary convections in a rectangular cavity. Numerical results for a moderate Prandtl number fluid*, *J. Fluid Mech.* **257** 339 (1993)
- Preisser83          F. Preisser, D. Schwabe und A. Scharmann; *Steady and oscillatory thermocapillary convection in liquid columns with free cylindrical surface*, *J. Fluid Mech.* **126** 545 (1983)
- Raffel98            Markur Raffel, Christian E. Willert and Jürgen Kompenhans; *Particle Image Velocimetry: A Practical Guide*. Srpinger-Verlag, Berlin, Heidelberg (1998)
- Riley96             Robert J. Riley; *An investigation of the stability and control of a combined thermocapillary-buoyancy driven flow*; Dissertation, Goergia Institute of Technology (1996)
- Schwabe81          Dietrich Schwabe; *Marangonikonvektion in Schmelzen*, Habilitationsschrift Universität Gießen (1981)
- Schwabe92          Dietrich Schwabe, Uwe Möller, Jürgen Schneider and Arthur Scharmann; *Instabilities of shallow dynamic thermocapillary liquid layers*, *Phys. Fluids A* **4** (11) (1992)
- Schneider89        Jürgen Schneider; *Optische Studien zur Oberflächendeformation durch oszillatorische thermokapillare Konvektion*, Diplomarbeit, Universität Gießen (1989)

- Schneider95      Jürgen Schneider; *Strukturen thermokapillarer Konvektion in einem Ringspalt*, Dissertation, Universität Gießen (1995)
- Schneider99      J. Schneider, A. Cramer, S. Benz, D. Schwabe, A. Scharmann; *Stationary two- and three-dimensional buoyant-thermocapillary convection in an annulus heated from the sidewalls*, Adv. Space Res. **24** 1367 (1999)
- Scott78            J. C. Scott and T. B. Benjamin; *Waves in narrow channels; faster capillary waves*; Nature **276** 803 (1978)
- Sen82              A. K. Sen und S. H. Davis; *Steady thermocapillary flows in two-dimensional slots*, Journal of Fluid Mechanics **121** 163-186 (1982)
- Shen83             M. C. Shen; *Nonlinear capillary waves under gravity width edge constraints in a channel*, Phys Fluids **26** 1417 (1983)
- Smith83            Marc K. Smith and Stephen H. Davis; *Instabilities of dynamic thermocapillary liquid layers. Part 1. Convective instabilities*, J. Fluid Mech., Vol 132, pp 119-144 (1983)
- Smith83a          Marc K. Smith and Stephen H. Davis; *Instabilities of dynamic thermocapillary liquid layers. Part 2. Surface-wave instabilities*, J. Fluid Mech., Vol 132, pp 145-162 (1983)
- Smith86            Marc K. Smith; *Instability mechanisms in dynamic thermocapillary liquid layers*, Phys. Fluids **29**, 3182 (1986)
- Stanek70          V. Stanek and J. Szekely; *The effect of surface driven flows on the dissolution of a partially immersed solid in a liquid - analysis*, Chemical Engineering Science, Vol. 25, pp. 699-715 (1970)
- Velten88          Roger Velten; *Strukturen der instationären thermokapillaren Konvektion in zylindrischen Schmelzzonen*, Dissertation, Universität Gießen (1988)
- Verma62            G. R. Verma and J. B. Keller; *Three dimensional standing surface waves of finite amplitude*, Phys Fluids **5** 52-56 (1962)

- Villers92            D. Villers and J. K. Platten; *Coupled bouyancy and Marangoni convection in actenoe; experiments and comparison width numerical simulations*, J. Fluid. Mech. **234** 487-510 (1992)
- Weidman87           Patrick D. Weidman and J. Adam Norris; *Capillary Gravity Waves width fixed Contact Lines: An approximate Analysis*, PCH PhysicoChemical Hydrodynamics, Vol. 9. No 1/2. pp 393-402 (1987)

# Danksagung

An erster Stelle will ich Prof. Dr. Dr. h. c. mult. Arthur Scharmann und Prof. Dr. Meyer für die Möglichkeit danken, diese Arbeit an ihrem Institut durchführen zu können.

Mein besonderer Dank gilt Prof. Dr. Dietrich Schwabe für viele Diskussionen und Ideen, mit denen er sich maßgeblich an der Entstehung dieser Arbeit beteiligt hat. Durch seinen Unglauben hat er nicht zuletzt zum Detailreichtum beigetragen. Außerdem möchte ich ihn für die Möglichkeit danken, an Teilen des außerordentlich interessanten Experiments MAGIA mitzuarbeiten.

Herrn Chernatinsky von der Pädagogischen Universität Perm möchte ich für die numerische Simulation zu dieser Arbeit danken; der Universität der Bundeswehr, München danke ich für die Bereitstellung der Hochgeschwindigkeitskamera.

Norbert Kurmann und der feinmechanischen Werkstatt danke ich für die Anfertigung einiger Teile für das Experiment.

Claudius Hummel danke ich für das Durchsehen der Arbeit.

Nicht zuletzt danke ich Joachim Metzger, der - obwohl er schon seit einiger Zeit nicht mehr an der Universität arbeitete - mich in die Handhabung der von ihm aufgebauten Küvette eingewiesen hat.