

# Konvektionsinstabilitäten und raumzeitliche Strukturbildung in Zweischicht-Systemen

Von der Fakultät für Mathematik, Naturwissenschaften und Informatik  
der Brandenburgischen Technischen Universität Cottbus

zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Naturwissenschaften  
(Dr. rer. nat.)

genehmigte Dissertation

vorgelegt von

Diplom-Physiker

**DOMNIC MERKT**

geboren am 03.06.1970 in Tuttlingen

Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. Michael Bestehorn

Gutachter: Prof. Dr.-Ing. Christoph Egbers

Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. Rudolf Friedrich

Tag der mündlichen Prüfung: 22. August 2005



**Zusammenfassung (deutsch):**

In dieser Arbeit wird das Verhalten zweier nichtmischbarer überlagerter Fluide (Gase und/oder Flüssigkeiten) untersucht, welche durch horizontale Platten vertikal beschränkt sind. Die betrachteten Effekte beschränken sich im Wesentlichen auf den Einfluss von Gravitations- und Oberflächenspannungseffekten. Dabei werden neben analytischen hauptsächlich numerische Untersuchungen über das Instabilitätsverhalten der Grenzfläche und die resultierende Strukturbildung durchgeführt. Ausgangspunkt sind die inkompressiblen Navier-Stokes-Gleichungen, die Wärmeleitgleichungen und die Kontinuitätsgleichungen beider Fluidschichten. Die Komplexität dieser Gleichungen erfordert bestimmte Näherungen und deshalb werden zwei Grenzfälle untersucht. Als erste Näherung wird eine undeformierbare Grenzfläche angesetzt. In dieser Näherung wird zum einen die, nur in Mehrschichtsystemen auftretende, Antikonvektion untersucht. Neben analytischen Resultaten in vertikal unendlich ausgedehnten Systemen, werden zum ersten Mal 3D-Simulationen der vollen nichtlinearen Gleichungen gezeigt. Zum anderen wird ein einfaches einseitiges Modell zur Konvektion unter Verdampfung abgeleitet, welches eine Erweiterung des „Pearson“-Modells darstellt, und die resultierende Strukturbildung gezeigt. Eine deformierbare Grenzfläche bei ausschließlicher Untersuchung von langwelligen Instabilitäten führt zur zweiten Näherung: die Schmiermittelnäherung. Nach der Herleitung der Evolutionsgleichung der Grenzfläche werden ihre grundlegenden Eigenschaften diskutiert. Die numerische Integration zeigt die typische Tropfen/Loch-Bildung dieser Systeme.

**Abstract (English):**

This work deals with two-layer systems of immiscible fluids (gas and/or liquid) bounded by horizontal plates. We consider mainly the effects of gravitation and surface-tension and focus on numerical investigations of interface instabilities and pattern formation. Starting with the incompressible Navier-Stokes equations, energy equation and continuity equation for both layers two approximations are investigated. The first approximation deals with an undeformable interface. Here we investigate anticonvection which occurs only in multi-layer systems. Beside analytical results in vertically infinitely extended systems 3D-simulations of the fully nonlinear equations are shown for the very first time. Furthermore we derive a one-sided model for convection incorporating evaporation at the interface. This model is an extension of the well-known ‘Pearson’-model and we show the resulting patterns under evaporation. The second approximation deals with deformable interfaces in thin layers. This so-called lubrication approximation allows exclusively long-wave instabilities. Here we derive an evolution equation for the interface and discuss its general properties. Finally, numerical investigations reveal the typical drop/hole structures.



an meine Schwester

*The rain kept on falling  
and darkened the sky  
the dawn was to come with the sunrise  
revealing the shadows  
that passed through the mist*

Candlemass: Epicus Doomicus Metallicus





# Inhaltsverzeichnis

Kurzzusammenfassung (abstract) . . . . .	3
<b>1 Einleitung</b>	<b>11</b>
1.1 Bénard-Konvektion . . . . .	13
1.1.1 Zur Konvektion in Zweischicht-Systemen . . . . .	16
1.1.2 Zur Verdampfung . . . . .	16
1.1.3 Zu dünnen Filmen . . . . .	18
1.1.3.1 Zu dünnen Zweischicht-Filmen . . . . .	20
1.2 Untersuchungen in dieser Arbeit . . . . .	21
<b>2 Systembeschreibung</b>	<b>25</b>
2.1 Rayleigh-Bénard-Instabilität . . . . .	26
2.2 Bénard-Marangoni-Instabilität . . . . .	27
2.3 RT- und Marangoni-Instabilitäten in Langwellennäherung . . . . .	28
<b>3 Hydrodynamische Grundgleichungen</b>	<b>29</b>
3.1 Lineare Stabilitätsanalyse . . . . .	32
<b>4 Kurzwellige Konvektionsinstabilitäten</b>	<b>33</b>
4.1 Stationärer Zustand und Störungen . . . . .	33

4.2	Dimensionslose Gleichungen . . . . .	35
4.3	Allgemeine Aussagen und einführendes Beispiel . . . . .	38
4.4	Ein spezielles System: Antikonvektion . . . . .	41
4.4.1	Mechanismus . . . . .	42
4.4.2	Lineare Stabilitätsanalyse . . . . .	43
4.4.3	Nichtlineare Musterbildung . . . . .	46
4.4.3.1	Einfluss des stationären Temperaturprofils . . . . .	47
<b>5</b>	<b>Verdampfung und Konvektion</b>	<b>53</b>
5.1	Modell 1: Einbeziehung des Massenflusses . . . . .	54
5.1.1	Stationäres Temperaturprofil . . . . .	57
5.1.2	Numerische Resultate . . . . .	60
5.1.2.1	Lineare Stabilität . . . . .	61
5.1.2.2	Nichtlineare 2D-Integration . . . . .	65
5.2	Modell 2: Ohne Massenfluss . . . . .	68
5.3	Modell 3: Einseitiges Modell . . . . .	70
5.4	Linearer Vergleich der drei Modelle . . . . .	71
5.5	Nichtlineare 3D-Ergebnisse: Modell 3 . . . . .	73
5.6	Vergleich von Experimenten und Modell 3 . . . . .	76
<b>6</b>	<b>Langwellennäherung</b>	<b>77</b>
6.1	Evolutionsgleichung in Schmiermittelnäherung . . . . .	77
6.1.1	Mobilitäten . . . . .	82
6.1.2	Oberflächenspannung und Gravitation . . . . .	83
6.1.3	Thermokapillarität . . . . .	83



---

6.1.4	Trennungsdrücke . . . . .	86
6.2	Lineare Stabilität . . . . .	86
6.3	Nichtlineares Langzeitverhalten . . . . .	88
6.3.1	Lyapunov-Formulierung . . . . .	88
6.3.2	Maxwellkonstruktion und die Folgen . . . . .	90
6.3.3	Numerische Integration . . . . .	93
6.3.3.1	Rayleigh-Taylor-Instabilität . . . . .	93
6.3.3.2	Marangoni-Instabilität . . . . .	96
6.3.3.3	Metastabile Zeitentwicklung . . . . .	99
6.4	Einschicht-Näherungen . . . . .	101
6.4.1	Einfluss der lateralen Systemlänge . . . . .	105
6.5	Ausblick . . . . .	108
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>111</b>
<b>A</b>	<b>Welander-System: Marginale Wurzeln</b>	<b>117</b>
<b>B</b>	<b>Meanflow</b>	<b>123</b>
B.1	Herleitung und Gleichung . . . . .	123
B.2	Einfluss der „Vorticity“ $f$ . . . . .	126
<b>C</b>	<b>Hamaker-Konstanten</b>	<b>135</b>
<b>D</b>	<b>Numerische Verfahren</b>	<b>139</b>
D.1	2D-Integration . . . . .	139
D.2	3D-Integration . . . . .	139
D.3	ADI-Methode . . . . .	141

D.3.1	Stabilität der verwendeten ADI-Methode . . . . .	142
<b>E</b>	<b>Nomenklatur</b>	<b>145</b>
E.1	Symbolverzeichnis . . . . .	145
E.2	Materialparameter . . . . .	148
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>151</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>165</b>
	<b>Lebenslauf</b>	<b>167</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

In dieser Arbeit wird das Verhalten von zwei nichtmischbaren überlagerten Fluidschichten unter Wirkung von verschiedenen Kräften in zwei Approximationen untersucht. Der Versuch besteht in einem kleinen Stück mehr Verständnis der Komplexität hydrodynamischer Systeme.

Nichtlineare Gleichungen treten in der klassischen Physik (Mechanik, Elektrodynamik, klassische statistische Physik, Kontinuumsmechanik ...) schon bei sehr einfacher Modellierung auf und ihre „natürliche“ Erscheinungsform kann daher der klassischen Physik zugeschrieben werden. Selbstverständlich treten nichtlineare Effekte auch in quantenmechanischen Systemen auf, aber beim momentanen Stand der Forschung überwiegen die Schlussfolgerungen und Erkenntnisse aus klassischen Systemen. Solche nichtlinearen Systeme stellen auch heute noch eine Herausforderung an die moderne Physik dar und sind im Allgemeinen nicht mit mathematischen oder numerischen Standardverfahren behandelbare Probleme. Aufgrund dieser Schwierigkeiten, oder vielleicht auch gerade deshalb, sind Nichtlinearitäten nicht nur in klassischen dissipativen Systemen (Hydrodynamik, Kontinuumsmechanik) der Knackpunkt (und der Schlüssel?) zum Verständnis der Mechanismen in der Natur. So zeigen z.B. neuere Untersuchungen von BLASONE & AL. [19], dass Dissipation in klassischen Systemen zu einer Quantisierung führen kann (resultierende Nullpunktsenergie bei zwei klassischen harmonischen, gedämpften und getriebenen Oszillatoren).

Die Hydrodynamik [15] ist ein Paradebeispiel für solche nichtlinearen dissipativen Systeme und wird in dieser Arbeit unter bestimmten Näherungen untersucht. Zum einen zeigt die Natur selbst eine Reichhaltigkeit an hydrodynamischen Phänomenen (Turbulenzen in Stromschnellen, Abperlen von Tropfen an der Fensterscheibe usw.) und experimentelle Umsetzungen sind neben reiner Grundlagenforschung auch von immensem industriellen und volkswirtschaftlichen Interesse. Zum anderen haben die, oftmals als Erstes aus den hydrodynamischen Grundgleichungen abgeleiteten, Modellgleichungen (z.B. Swift-Hohenberg-, Ginzburg-Landau- [8] und Kuramoto-Shivashinsky-Gleichungen) eine allgemeine übergeordnete Struktur [16], die auch in völlig fremden Gebieten Anwendung findet: Nichtlineare Optik, Fellstrukturierung bei Tieren, soziologische Systeme, Supraleitung etc. (siehe CROSS und HOHENBERG [37] und HAKEN [51, 52]). Nicht zuletzt ist die natürliche Schönheit und Eleganz von Fluidmustern und Strömungen immer noch ein bestechender Anblick; so z.B. Wolkenformationen, Rauchschwaden, Wasserfälle etc. Ein schöner Überblick visualisierter Fluidströmungen ist bei VAN DYKE [133] zu finden. Eine gute Übersicht zur Theorie der Struktur- und Musterbildung in (nicht nur hydrodynamischen) Systemen fernab vom thermischen Gleichgewicht stellen CROSS und HOHENBERG [37] und MANNEVILLE [75] vor.

In neuerer Zeit rücken immer mehr Flüssigkeitsstrukturen mit einer Systemabmessung kleiner als  $100\text{ nm}$  in den Vordergrund. Diese Mikrofluide zeigen extrem ungewöhnliche Eigenschaften auf, d.h. sie verhalten sich entgegen unseren Alltagserfahrungen. Neben Wechselwirkungen zwischen Wand und Fluid spielt hier auch die freie Weglänge der Fluidpartikel eine entscheidende Rolle. So zeigen z.B. Fluide in geometrischen Abmessungen kleiner als ihre freie Weglänge (sog. Knudson-Fluide) völlig neue Eigenschaften. Solche Mikrofluide können benutzt werden, um mikroskopische Ventile und Pumpen ohne bewegliche mechanische Teile zu konstruieren [36]. In Zukunft wird dieses Themengebiet, welches hier nicht explizit behandelt wird, obwohl die in Kapitel 6 verwendete Schmiermittelnäherung eine Beschreibung in gewissem Umfang darstellt, sicherlich noch erstaunliche Effekte und Anwendungen aufzeigen.

## 1.1 Bénard-Konvektion

Als um 1900 BÉNARD [5, 6] die ersten systematischen Konvektionsexperimente eines von unten geheizten Waltranfilms vorstellte und faszinierende Bilder hexagonaler Strukturen an der freien Oberfläche veröffentlichte, führte dies zu einer intensiven Beschäftigung mit Konvektionsinstabilitäten in der Hydrodynamik. Schon 1916 stellte LORD RAYLEIGH [72] in Form einer Störungstheorie die theoretische Grundlage für auftriebsinduzierte Konvektion vor, die unter Gravitation immer vorhanden ist. Auftriebskräfte wurden, trotz quantitativer Differenzen, 40 Jahre als Erklärung der Bénard-Experimente herangezogen. Es konnte erst 1956 von BLOCK [20] gezeigt werden, dass für nicht zu dicke Flüssigkeitsschichten (so wie im Bénard-Experiment) ein lateraler Gradient der Oberflächenspannung für die Konvektionsinstabilitäten verantwortlich ist. Dieser Effekt kann durch eine Temperatur- oder Konzentrationsabhängigkeit der Oberflächenspannung zustanden kommen und ist nach MARANGONI [76] als Marangoni-Effekt bekannt (MARANGONI betrachtete nur den Einfluss von Konzentrationsgradienten). 1958 leitete PEARSON [102] einen analytischen Ausdruck für die kritische (thermokapillare) Marangoni-Zahl ab und NIELD [92] fasste 1964 schließlich Auftrieb und Marangoni-Effekt zusammen und zeigte die direkten analytischen Resultate für Kurzwellenlösungen auf.

Als ein wesentlicher Unterschied dieser beiden Instabilitätsmechanismen ist das subkritische Verhalten der oberflächenlokalisierten Marangoni-Instabilität im Gegensatz zur superkritischen Rayleigh-Instabilität zu nennen. Dies konnte durch schwach nichtlineare Untersuchungen von SCANLON und SEGAL [118] theoretisch nachgewiesen und von CLOOT und LEBON [33], sowie BESTEHORN und PÉREZ-GARCIA [18] untermauert werden. Aber auch die Experimente von KOSCHMIEDER und BIGGERSTAFF [62] sowie von SCHATZ & AL. [119] haben eindeutig eine subkritische Bifurkation beim Marangoni-Effekt gezeigt.

Obwohl die auftriebsinduzierte Rayleigh-Bénard-Konvektion schon seit RAYLEIGH grundlegend verstanden ist, erfährt sie gerade heutzutage eine Renaissance. Für industrielle Anwendungen sei z.B. das Aushärten von Gussformen

erwähnt. Um einen möglichst homogenen Guss zu erhalten, ist während des Aushärtens eine konvektive Bewegung in der Schmelze unerwünscht. Theoretische Untersuchungen zur Unterdrückung von Bénard-Rollen bei sehr großen Temperaturgradienten wurden 2003 von OR und SPEYER [95] vorgestellt. Auf der anderen Seite sind experimentelle Resultate durch zusätzliche äußere Kräfte, und damit einem zusätzlichen Kontrollparameter, zu nennen. Die Experimente von DANIELS & AL. [38] im Jahr 2000 zur geneigten Rayleigh-Bénard-Instabilität (Neigungswinkel als zweiter Kontrollparameter) haben ein extrem reichhaltiges Bifurkationsspektrum offenbart (Longitudinale und transversale Wellen, subharmonische und Busse-Oszillationen, Undulationschaos [32] und „kriechende“ Rollen). Insbesondere diente DANIELS und BODENSCHATZ [39] das Undulationschaos im geneigten Rayleigh-Bénard-System zur experimentellen Überprüfung der (nicht auf die Fluid Dynamik beschränkten) Theorie zur Defektturbulenz von GIL & AL. [49]. Damit fällt der Rayleigh-Bénard-Konvektion wieder einmal die Rolle eines Standardbeispiels zu. ROGERS & AL. [115] haben 2000 als Erste quantitative Experimente eines vertikal oszillierenden Rayleigh-Bénard-Systems gezeigt. D.h. das Zusammenwirken von geometrieinduzierter (selektierte Wellenzahl hängt von der Schichtdicke ab) und dispersionsinduzierter Musterbildung (selektierte Wellenzahl hängt von der Anregungsfrequenz ab), was die Experimente (und damit auch die Theorie) zur Charakterisierung von Mustern in Nichtgleichgewichtssystemen erneut auf die Hydrodynamik konzentriert.

Bei nicht zu dicken Fluidschichten mit freier Oberfläche dominiert der Marangoni-Effekt über den Auftriebseffekt [11, 92] (natürlicherweise auch unter Null-g-Bedingungen). Da es sich beim Marangoni-Effekt um einen Grenzflächeneffekt handelt, muss eine solche vorhanden sein (oder zumindest eine freie Oberfläche wie in Einschicht-Systemen). Die erste Berechnung der kritischen Marangoni-Zahl (Schwelle der Instabilität) geht auf PEARSON [102] im Jahr 1958 zurück. Seine Ergebnisse werden in Kapitel 5 kurz vorgestellt und auf Konvektion unter Verdampfung erweitert. Neuere numerische Resultate zur Marangoni-Instabilität sind bei BESTEHORN [9, 10] und für Fluide mit kleiner Prandtl-Zahl (Gase und Flüssigmetalle) und mäßigem Aspektverhältnis bei BOECK [21] zu finden. Eine Überblick zu Instabilitäten

verursacht durch Grenzflächeneffekte (auch Marangoni-Effekt) ist im Buch von NEPOMNYASHCHY & AL. [90] zu finden. Vom industriellen Standpunkt ist der Marangoni-Effekt eine eher störende Erscheinung, da z.B. für die Herstellung perfekter Silikonkristalle Konvektion unerwünscht ist. Deshalb wird hier hauptsächlich nach Kontrollmechanismen zur Unterdrückung des Marangoni-Effekts gesucht (siehe OR & AL. [94]).

Wirken mehrere Destabilisierungsmechanismen gleichzeitig, dann können die Bifurkationsspektren und die entstehenden Muster sehr komplexe Gestalt annehmen. Das Zusammenwirken von Auftriebskräften und Thermokapillarität wurde ausführlich von PARMENTIER & AL. [101] untersucht. Instabilitätsblasen dieser Systeme bei ausschließlicher Heizung von oben wurden von REDNIKOV & AL. [111] gefunden. Die numerische Integration der hydrodynamischen Grundgleichungen (MERKT [80] und BOECK & AL. [22]) lieferte verschiedenste oszillatorische Muster in diesen Instabilitätsblasen.

SCRIVEN und STERNLING [121] deckten im Jahr 1964 neben Instabilitäten mit kleiner Wellenlänge die Möglichkeit von langwelligen Instabilitäten begleitet von Oberflächendeformationen auf. Diese Instabilitäten werden im Wesentlichen durch die Oberflächenspannung und die Gravitation verursacht (und nicht wie bei kurzwelligen Instabilitäten durch die Temperaturabhängigkeit der Oberflächenspannung, bzw. die Änderung der Dichte mit der Temperatur). Diese von GOUSSIS und KELLY [50] als „S-Mode“-Instabilität klassifizierte Instabilität („P-Mode“ für Instabilitäten mit großer Wellenzahl) ist in den letzten zehn Jahren immer stärker in den Fokus der Aufmerksamkeit gerückt. Dies ist zum einen mit der breiten industriellen Anwendungspalette als auch der einfachen mathematischen und numerischen Handhabung solcher Dünnschichtgleichungen zu erklären. Die Entwicklung der in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen zu langwelligen Instabilitäten (Kapitel 6) wird im Unterkapitel 1.1.3 vorgestellt.

Nach diesem allgemeinen Überblick folgt in den nächsten Unterkapiteln ein kurzer Abriss über die Fragestellung der vorliegenden Arbeit.

### 1.1.1 Zur Konvektion in Zweischicht-Systemen

Von Seiten der Grundlagenforschung ist die Reichhaltigkeit der Instabilitätsmechanismen und das Zusammenwirken verschiedener Effekte sowohl an der Grenzfläche als auch im Volumen der Fluide als wichtigstes Argument für die Untersuchung von Zweischicht-Systemen zu nennen. In der industriellen Anwendung von Zweischicht-Systemen sind Simulationen zur Parameterrealisierung in der Kristallzüchtung hervorzuheben. Solche Simulationen mit Marangoni-Effekt sind z.B. bei LIU und ROUX [71] zu finden.

Als Überblick zu Zweischicht-Systemen ist das Buch von SIMANOVSKII und NEPOMNYASHCHY [125] zu empfehlen, welches lineare und schwach nicht-lineare Untersuchungen vorstellt. Lineare Stabilitätsanalysen wurden von REICHENBACH und LINDE [112] durchgeführt. Zur Aufdeckung der Strukturen sind neben schwach nichtlinearen Analysen jedoch auch dreidimensionale Betrachtungen notwendig. Dies erfordert die Integration der hydrodynamischen Grundgleichungen. 3D-Simulationen von Zweischicht-Systemen stellen aber auch heute noch eine Herausforderung an die Numerik dar und sind Teil dieser Arbeit. BOECK & AL. [23] zeigten mithilfe von 3D-Simulationen die Vielfältigkeit der Konvektionsmuster in solchen Systemen unter ausschließlicher Verwendung des (anomalen) Marangoni-Effektes.

Die Schwierigkeiten der numerischen Simulation von Vielschichtsystemen liegt nicht zuletzt an den Grenzflächenbedingungen. Als zukunftsweisende Möglichkeit bietet sich hier die Phasenfeldbeschreibung an (siehe ANDERSON & AL. [1]). Dabei werden die Grenzflächenbedingungen in die Navier-Stokes-Gleichungen gezogen und eine zusätzliche Gleichung für den Phasenfeldparameter (z.B. die Dichte) aufgestellt. Ein Vergleich des Phasenfeldmodells mit dem klassischen Modell („scharfe“ Grenzfläche) ist bei BORCIA & AL. [25] zu finden, ist jedoch nicht Gegenstand dieser Arbeit.

### 1.1.2 Zur Verdampfung

Phasenübergänge, wie die in dieser Arbeit untersuchte Verdampfung, können zu einem neuen (und extremen) dynamischen Verhalten führen und sind von



Natur aus als Zweischicht-Systeme zu behandeln. Beispielsweise haben die Untersuchungen von PROSPERETTI & PLESSET [110] gezeigt, dass die durch Verdampfung verursachten Instabilitäten in Abhängigkeit vom stationären Zustand so stark sein können, dass sogar Flüssigkeitstropfen in den Flüssigkeitsdampf katapultiert werden können. Gegenstand hier ist der Einfluss der Verdampfung auf die Konvektion. Dabei wird eine nicht zu starke Verdampfungsrate angenommen. PALMER [100] untersuchte den Marangoni-Effekt als Destabilisierungsmechanismus unter Verdampfung. Dabei wird nur starke Verdampfung betrachtet und Dampfdruckstoßeffekte erzeugen einen tangentialen Temperaturgradienten, was dann zur Instabilität führt. Als weitere wichtige Veröffentlichung zur Verdampfung ist das Paper von BURELBACH & AL. [29] zu nennen (samt Referenzen). Sie untersuchten die lineare Stabilität und die schwach nichtlineare Evolution bei verschiedenen Destabilisierungseffekten (Dampfdruckstoß, Reißen des Flüssigkeitsfilms, Marangoni-Effekt, Massenfluss und Nichtgleichgewichtsthermodynamik). Als ihr wesentliches Ergebnis wird in dieser Arbeit die Möglichkeit der Entkopplung von Flüssigkeits- und Dampfschicht verwendet, um mit einem einseitigen Modell arbeiten zu können.

Lineare und schwach nichtlineare Untersuchungen in neuerer Zeit zur konvektiven Verdampfung sind von OZEN und NARAYANAN [98, 99] durchgeführt worden. Ihre Ergebnisse können als Spezialfall der Untersuchung unter Verwendung eines Phasenfeldmodells von BORCIA und BESTEHORN [26] verstanden werden. In beiden Fällen wurde im Gegensatz zu dieser Arbeit ein stationärer Zustand ohne Verdampfung angenommen. Unsere Resultate können daher nur bedingt mit obiger Arbeit verglichen werden, da hier der stationäre Zustand mit Verdampfung betrachtet wird. Aber die mathematische Vorgehensweise und der Lösungsweg sind sehr ähnlich.

Die Bedeutung der Konvektion unter Verdampfung in Anwendungen wird offensichtlich, wenn der Einfluss der Verdampfung (neben der Konvektion selbst) zum Abtransport von Wärme betrachtet wird. Die Wärmeleitgleichung mit Verdampfung hat die Form

$$\rho c \dot{T} = \nabla (\lambda \nabla T + J L). \quad (1.1)$$

Der Zusatzterm durch Verdampfung (letzter Summand:  $JL$ ) ermöglicht eine um Größenordnungen stärkere Temperaturänderung als der Diffusionsterm allein. Als Anwendungen dieses Prinzips seien Wärmetauscher in Computern oder in der Raumfahrt erwähnt. In der Natur tritt konvektive Verdampfung bei der Austrocknung von Flussbetten oder bei „trockenen Augen“ auf. Darüber hinaus ist die Verdampfung (als Phasenübergang 1. Art) von allgemeinem physikalischen Interesse. Bis heute sind Verdampfungseffekte in realen komplexen Systemen auf phänomenologische Ansätze angewiesen, da unter anderem molekulardynamische Simulationen durch beschränkte Rechnerkapazitäten eine limitierte Aussagekraft haben (siehe z.B. YI & AL. [143]).

### 1.1.3 Zu dünnen Filmen

In dünnen Fluidfilmen können Instabilitäten mit großen Wellenlängen, begleitet von Oberflächendehformationen, in den Vordergrund treten. Dabei werden nicht mehr die typischen hexagonalen oder Rollenmuster der Rayleigh-Bénard-Konvektion gebildet, sondern Tropfenstrukturen, welche typischerweise ein „Coarsening“ für große Zeiten zeigen. Der theoretische Hintergrund liegt in einer enormen Vereinfachung der hydrodynamischen Grundgleichungen durch die Schmiermittelnäherung auf eine einzige (zweidimensionale) Gleichung der zeitlichen Entwicklung der freien Oberfläche. Diese Gleichung besitzt in vielen Fällen einen Relaxationscharakter, was zu einer zeitlichen Energieminimierung des Systems führt. Der im Weiteren verwendete Terminus „dünne Filme“ bezieht sich *nicht* auf die absolute Filmdicke, sondern auf ein Verhältnis von vertikaler zu lateraler Längenskala  $\ll 1$ . Im Allgemeinen sind Filme mit Schichtdicken  $h < 1\text{ mm}$  als dünne Filme zu betrachten.

Die Vielfalt der Realisierungen und Anwendungen solcher dünnen Filme ist fast unerschöpflich. Mit Lavaströmen und Schaumdynamik, Tränenfilm der Augen und dünnen Flüssigkeitsfilmen auf der menschlichen Lunge, Strukturzeugung in der Halbleiterindustrie und als Korrosionsschutz von Oberflächen seien nur einige ausgewählte Anwendungen genannt. Vom theoretischen Standpunkt aus liegt das Hauptinteresse an der extrem vereinfachten ma-

thematischen Formulierung des Problems. So sind alle wesentlichen Aspekte in Langwellennäherung in der Evolutionsgleichung der Grenz- oder freien Oberfläche enthalten.

Als Pionier theoretischer Untersuchungen, abgeleitet aus hydrodynamischen Grundprinzipien, gilt REYNOLDS [114], der 1886 eine Erklärung für Ölfilme als Schmiermittel beim Transport schwerer Lasten lieferte. Dabei wurde ein Ölfilm zwischen festen Rändern betrachtet. Im Folgenden werden nur Fluide mit einer freien Oberfläche (oder einer Grenzfläche zwischen zwei Fluiden) betrachtet. Eine Evolutionsgleichung in Langwellennäherung (Schmiermittelnäherung) für geneigte Fluidfilme wurde 1966 von BENNEY [7] abgeleitet. Neuere numerische Simulationen (und Vergleiche mit Experimenten) sind bei KONDIC und DIEZ [59] zu finden. Der Marangoni-Effekt an einem von unten geheizten Film wurde erstmals von BURELBACH & AL. [29] betrachtet. Effektive molekulare Wechselwirkungen bei ultradünnen Filmen ( $h < 100 \text{ nm}$ ) wurden von RUCKENSTEIN und JAIN [116] eingeführt. Die Unterscheidung von Instabilitätslösungen und Nukleationslösungen sowie deren Auswirkung auf das „Aufreißen“ des Filmes am Substrat wurde von THIELE & AL. [131] eingeführt und untersucht. Die Evolutionsgleichung für geneigte und horizontal geheizte Filme wurde von ORON und ROSENAU [97] abgeleitet und volle nichtlineare Simulationen (in 3D) mit stabilisierenden van-der-Waals Molekularkräften sind bei BESTEHORN & AL. [14] zu finden (siehe auch THIELE und KNOBLOCH [127]). Neben der Visualisierung der Tropfen-Loch-Strukturen konnte dort auch eine quantitative Bestimmung des „Coarsening“-Verhaltens im nichtlinearen Langzeitlimit durchgeführt werden. Es zeigte sich ein einziger, allgemein gültiger Skalierungskoeffizient für Systeme mit Gravitation, Marangoni-Effekt und van-der-Waals-Kräften. Das von PISMEN und POMEAU [105] abgeleitete „Diffuse Grenzflächenmodell“ zur Vermeidung des hydrodynamischen Kontaktwinkelproblems wurde eingehend von NEUFFER [91] untersucht und numerische Resultate sind bei BESTEHORN und NEUFFER [17] zu finden. Die Experimente von REITER [113] 1992 zur spinodalen Entnetzung in extrem dünnen Polymerschichten fallen in etwa mit der Intensivierung der Forschung auf dem Gebiet der Langwelleninstabilitäten zusammen, da strukturierte Oberflächen für mo-

derne Anwendungen mehr und mehr an Bedeutung gewinnen. Einen guten theoretischen Übersichtsartikel zu Einschicht-Systemen liefern ORON & AL. [96]. Offene Fragen und Problemstellung werden von THIELE [128] diskutiert. Sehr weitreichende Literaturangaben und Untersuchungen zu verschiedensten Systemen sind in der Habilitationsschrift von THIELE [129] zu finden. Als „provokativste“ Schlussfolgerung aus Dünnfilmmodellen neuester Zeit kann wohl die Veröffentlichung von SCHWARTZ & AL. [120] angesehen werden. Dabei wird die Teilung (und Bewegung) eines Tropfens untersucht, wenn im Tropfen oder am Substrat oberflächenaktive Substanzen (surfactants) erzeugt werden können. SCHWARTZ & AL. schlagen diesen Mechanismus, basierend auf einer Dünnfilmgleichung, für die biologische Zellteilung vor.

### 1.1.3.1 Zu dünnen Zweischicht-Filmen

Die Erweiterung einschichtiger Systeme auf mehrere überlagerte nichtmischbare Fluidschichten liegt in der Natur der Sache. Dabei kann unterschieden werden zwischen „nach oben offenen“ und geschlossenen Systemen. Nach oben offene Zweischicht-Systeme werden beschrieben durch eine Grenzflächengleichung (zwischen zwei Fluiden) und der freien Oberflächengleichung des oberen Fluids. Dabei ist die erste, ins Auge stechende Frage, welche Grenzfläche instabil wird. Die experimentellen Untersuchungen erstrecken sich im Wesentlichen auf ultradünne Filme ohne äußere Kräfte, d.h. ausschließliche Berücksichtigung von effektiven intermolekularen Kräften ohne Marangoni-Effekt und Gravitation (siehe Referenzen in [129]). Die allgemeine Form zweier gekoppelter Gleichungen (Grenzfläche und Oberfläche) in Langwellennäherung wurde von POTOTSKY & AL. [108, 109] abgeleitet.

Geschlossene Systeme sind Gegenstand dieser Arbeit. Dabei kann in Langwellennäherung die zeitliche Entwicklung des Systems durch eine einzige Gleichung beschrieben werden. Diese Gleichung wurde 2005 von MERKT & AL. [83] in einer allgemeinen Form abgeleitet, was die Untersuchung beliebiger Kräfte in der entsprechenden Näherung erlaubt. Ausschließliche Berücksichtigung der Gravitation kann zu einer Rayleigh-Taylor-Instabilität

(RT) führen. Diese wurde von YIANTSIOS und HIGGINS [140, 141] intensiv untersucht. Allerdings muss bemerkt werden, dass ausgehend von einem Zweischicht-System letztendlich nur ein effektives (reduziertes) Einschicht-System betrachtet wurde. Theoretische Untersuchungen in zweischichtigen dünnen Filmen mit Marangoni-Effekt gehen auf SMITH [126] im Jahre 1966 zurück. Er leitete als erster die kritische Marangoni-Zahl für große Wellenlängen ab. Erste schwach nichtlineare Untersuchungen mit Marangoni-Effekt führten KLIAKHANDLER & AL. [58] durch. Eine allgemeine Übersicht zu linearen und schwach nichtlinearen Rechnungen in Zweischicht-Systemen kann im Buch von SIMANOVSKII und NEPOMNYASHCHY [125] gefunden werden (sowohl zu langwelligen als auch Konvektionsinstabilitäten).

## 1.2 Untersuchungen in dieser Arbeit

Das breite Spektrum von Bifurkationen und Instabilitätsmechanismen und die Vielfalt der raumzeitlichen Strukturen in Mehrschicht-Systemen lässt das wissenschaftliche Interesse ständig wachsen. Dies liegt zum einen an der fundamentalen Bedeutung der untersuchten Gleichungen in der Hydrodynamik (Navier-Stokes-Gleichung, Wärmeleitgleichung) und ihrer Anwendungen. Zum anderen werden solche Systeme weltweit experimentell untersucht, was für die Nachhaltigkeit theoretischer Arbeiten von essentieller Bedeutung ist.

In dieser Arbeit werden neben analytischen hauptsächlich numerische Untersuchungen an Zweischicht-Systemen durchgeführt. Eine vollständige Untersuchung von Zweischicht-Systemen ist aufgrund des breiten Bifurkationsspektrum und der Komplexität der hydrodynamischen Grundgleichungen, nicht nur im Rahmen dieser Arbeit, nicht möglich. Deshalb soll anhand einiger spezieller exemplarischer Kräfte und Näherungen die Vielfalt der Instabilitätsmechanismen und die bunte Palette der raumzeitlichen Strukturbildung demonstriert werden. Es werden im Wesentlichen Gravitationseinflüsse (Volumenkräfte) und Effekte der Oberflächenspannung (Grenzflächenkräfte) untersucht.

In Kapitel 2 wird das für diese Arbeit zugrundegelegte System vorgestellt und die hier betrachteten Instabilitätsmechanismen, die zur Musterbildung führen, in anschaulicher Weise eingeführt.

Kapitel 3 stellt die zur Modellierung verwendeten Gleichungen vor (Navier-Stokes-, Kontinuitäts- und Wärmeleitgleichung).

In Kapitel 4 werden die in den folgenden zwei Kapiteln verwendeten Näherungen vorgestellt und sehr kurz allgemeine Eigenschaften von Zweischicht-Systemen diskutiert. Anschließend werden die Ergebnisse eines speziellen, auf den ersten Blick widersprüchlichen, Instabilitätsmechanismus vorgestellt. Es handelt sich um eine auftriebsinduzierte Instabilität bei Heizung von oben: Antikonvektion. Neben linearen Untersuchungen wird durch volle nicht-lineare 3D-Simulationen die typische Musterbildung in antikonvektiven Systemen aufgedeckt.

In Kapitel 5 wird der Einfluss von Verdampfung (Phasenübergang) auf Konvektionserscheinungen untersucht. Dazu werden drei aus den hydrodynamischen Grundgleichungen abgeleitete Modelle vorgestellt. Der Vergleich der linearen Ergebnisse dieser 3 Modelle zeigt, dass das einfachste Modell 3 (erweitertes „Pearson“-Modell [102]) zur Beschreibung der Konvektionsexperimente unter Verdampfung von MANCINI und MAZA [74] ausreichend ist. Es wird mit Hilfe numerischer Integration dieses Modells der Übergang Hexagone - Quadrate - zeitabhängige Muster in Abhängigkeit vom Kontrollparameter demonstriert.

In Kapitel 6 werden die hydrodynamischen Grundgleichungen für dünne Zweischicht-Systeme in Langwellennäherung systematisch auf eine einzige Evolutionsgleichung der Grenzfläche reduziert. Diese Gleichung ist für beliebige Volumen- und Grenzflächenkräfte gültig (in entsprechender Ordnung der Langwellennäherung) und ihre allgemeinen Eigenschaften werden kurz diskutiert. Es werden destabilisierende Volumenkräfte (Gravitation) und tangential Grenzflächenkräfte (Marangoni-Effekt) untersucht. Dabei zeigt sich ein deutlich differenzierteres Zeitverhalten als in Einschicht-Systemen. Die Formulierung der Gleichung durch ein Lyapunov-Funktional erlaubt neben einer Vorhersage des stationären Endzustandes (für  $t \rightarrow \infty$ ) die Untersuchung auf Metastabilität. Am Ende dieses Kapitels wird noch ein Vergleich mit den hinreichend bekannten Einschicht-Gleichungen gezogen.

Abschließend werden in der Zusammenfassung (Kapitel 7) die neu gefundenen Ergebnisse herausgehoben und nochmals kurz diskutiert.

In den Anhängen sind ausführlichere Rechnungen, ein kurzer Überblick über die numerischen Verfahren und die verwendeten Materialparameter aufgeführt.





## Kapitel 2

# Systembeschreibung

Alle in dieser Arbeit betrachteten Systeme besitzen die Anordnung aus Abb. 2.1. Die Modelle der einzelnen Kapitel gehen dann durch Vernachlässigungen und Vereinfachungen aus dieser Konfiguration hervor. Unter dem Begriff Fluid kann im Folgenden sowohl eine Flüssigkeit als auch ein Gas verstanden werden, da beide durch identische Gleichungen (aber unterschiedliche Materialparameter) beschrieben werden können. Es werden nur Instabilitäten nichtmischbarer Fluide untersucht.

Das Zweischicht-System ist oben und unten durch feste Platten begrenzt. Die Platten werden als ideal wärmeleitend angenommen und können geheizt oder gekühlt werden, was zu einem vertikalen Temperaturprofil in beiden Fluiden führt. Weiterhin wirkt die Gravitationskraft in  $z$ -Richtung.

Die Grenzfläche der Fluide wird idealisiert als scharfe Grenzfläche angesehen. An der Grenzfläche findet die mechanische und thermische Kopplung der beiden Fluide statt und sie ist somit neben Auftriebskräften entscheidend für das Auftreten von Instabilitäten. Ein Massenfluss an der Fluid/Fluid-Grenzfläche wird nur in Kapitel 5 (Verdampfung) berücksichtigt.

Die nächsten Unterkapitel demonstrieren die in dieser Arbeit untersuchten Effekte zur Musterbildung (entsprechend der verwendeten Näherungen). Dabei wird immer ein von unten geheiztes System betrachtet. Die Erweiterung auf von oben geheizte Systeme und die Einbeziehung der oberen Fluidschicht

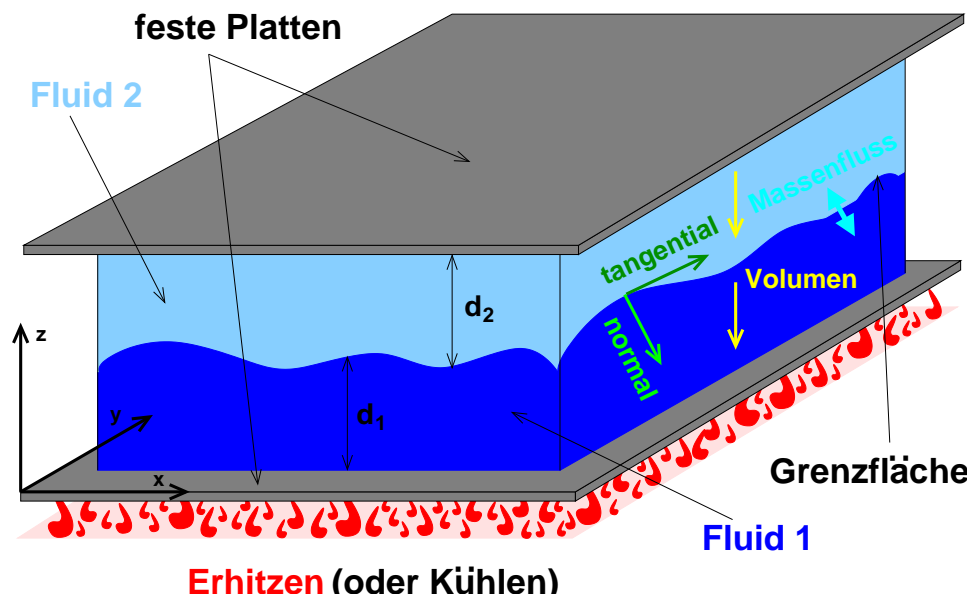


Abbildung 2.1: *Prinzipieller Aufbau des Systems: Zwei nichtmischbare Fluide sind durch feste Ränder in  $z$ -Richtung begrenzt und können Volumenkräften (z.B. Gravitation), Grenzflächenkräften (z.B. tangential: Marangoni-Effekt, normal: Oberflächenspannung) und Phasenumwandlungen (z.B. Verdampfung) unterworfen werden.*

als aktives Medium verläuft analog zu den unten stehenden Veranschaulichungen.

## 2.1 Rayleigh-Bénard-Instabilität

Der wohl bekannteste Instabilitätsmechanismus in der Hydrodynamik ist die durch Auftriebskräfte verursachte Konvektion, wenn ein vertikaler Temperaturgradient anliegt. Betrachtet man in Abb.2.2 ein Fluidpartikel im Volumen, das eine höhere Temperatur als seine Umgebung hat, dann ist es somit leichter als die Umgebung und erfährt eine Auftriebskraft. Da das System von unten geheizt wird, erfährt das Fluidpartikel eine immer stärkere Beschleunigung je weiter es sich zur Grenzfläche bewegt. Gleichzeitig wird

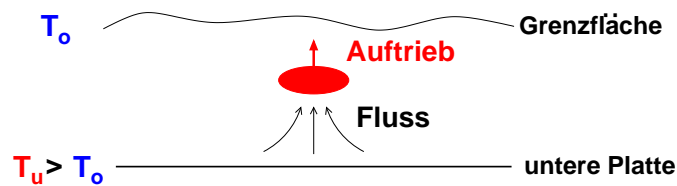


Abbildung 2.2: *Instabilität durch Auftrieb. Konvektion wird verursacht durch Volumeneffekt.*

warmes Fluid von unten „nachgezogen“ und somit kann die ursprüngliche Temperaturstörung verstärkt werden.

## 2.2 Bénard-Marangoni-Instabilität

Eine Abhängigkeit der Oberflächenspannung von der Temperatur führt zur Bénard-Marangoni-Konvektion. Es handelt sich also um einen reinen Oberflächeneffekt. Im Normalfall nimmt die Oberflächenspannung mit steigender Temperatur ab.

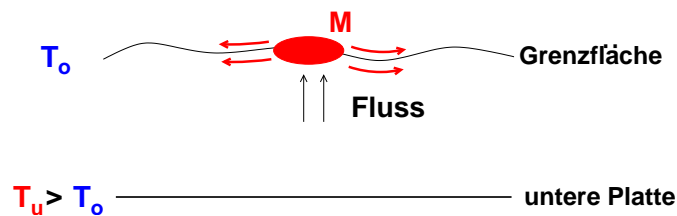


Abbildung 2.3: *Marangoni-Effekt. Konvektion wird verursacht durch Temperaturschwankungen an der Grenzfläche.*

Wird wie in Abb.2.3 die Oberfläche an einer Stelle wärmer als die (horizontale) Umgebung, dann führt dies zu einem tangentialen Materialfluss weg von der Störung. Aufgrund der Massenerhaltung wird aus dem Volumen warmes Fluid nach oben transportiert und die ursprüngliche positive Temperaturstörung an der Oberfläche kann verstärkt werden.

### 2.3 RT- und Marangoni-Instabilitäten in Langwellennäherung

Die Rayleigh-Taylor-Instabilität (RT) ist eine rein durch die Dichten der beiden Fluide verursachte Instabilität. Wird ein dichtes, und damit schweres, Fluid über ein weniger dichtes Fluid geschichtet, so sind allein aufgrund dieser Dichteunterschiede die beiden Fluide bestrebt ihre Positionen zu vertauschen (z.B. Essig auf Öl), falls die stabilisierende Oberflächenspannung vernachlässigbar klein ist.

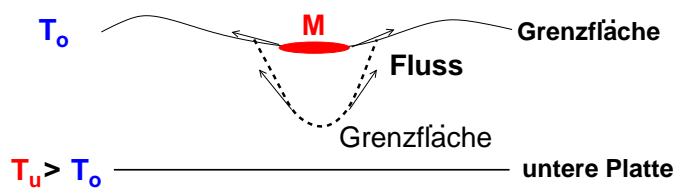


Abbildung 2.4: *Marangoni-Instabilität in dünnen Fluidfilmen. Es ist darauf zu achten, dass die Dicke des Films sehr viel kleiner ist als die laterale Ausdehnung der Deformation. D.h. die Richtung der tangentialen Kraftpfeile verlaufen nahezu horizontal.*

Langwellige Instabilitäten werden nur in Kapitel 6 in Schmiermittelnäherung betrachtet. Da dabei die konvektiven, nichtlinearen Terme in den hydrodynamischen Grundgleichungen vernachlässigt werden, kann die Marangoni-Instabilität nicht mehr wie im vorherigen Unterkapitel diskutiert werden. Ist die Oberfläche an einer Stelle erniedrigt (Abb. 2.4) so führt dies in Langwellennäherung zu einer Temperaturerhöhung an dieser Stelle. Damit erfährt aufgrund der Temperaturabhängigkeit der Oberflächenspannung das Fluid eine tangentielle Kraft in Richtung der ungestörten Oberfläche und folglich nimmt die Deformation der Oberfläche zu.

## Kapitel 3

# Hydrodynamische Grundgleichungen

Ein hydrodynamisches System kann durch die Navier-Stokes Gleichungen, die Wärmeleitgleichung (bzw. Energiegleichung) und die Kontinuitätsgleichung beschrieben werden, wobei noch zusätzlich Randbedingungen benötigt werden [35, 67]. Alle drei Gleichungen folgen aus physikalischen Erhaltungsgrößen. Die Navier-Stokes-Gleichungen drücken die Impulserhaltung aus, die Wärmeleitgleichung lässt sich aus der Energieerhaltung (bzw. Entropieerhaltung oder -vergrößerung) ableiten und die Kontinuitätsgleichung beschreibt die Erhaltung der Masse. Im Folgenden werden nur inkompressible Flüssigkeiten betrachtet, welche auch äußeren Kräften ausgesetzt sein können (z.B. Gravitationsbeschleunigung  $g$ ).

$V_{ki} = V_{ki}(\vec{r}, t)$  beschreibt die  $i$ .te Geschwindigkeitskomponente ( $i = 1, 2, 3 = x, y, z$ ),  $T_k = T_k(\vec{r}, t)$  ist die Temperatur,  $P_k = P_k(\vec{r}, t)$  der hydrostatische Druck und  $\rho_k = \rho_k(\vec{r}, t)$  die Dichte im Fluid  $k$ . Diese Größen hängen vom Ort  $\vec{r} = (x, y, z)$  und von der Zeit  $t$  ab. Alle anderen Größen werden orts- und zeitunabhängig angenommen. Die Navier-Stokes-, Temperatur- und Kontinuitätsgleichungen im Zweischicht-System mit den Schichtdicken  $d_1$  und  $d_2$  haben dann die Form (vgl. Abb. 2.1):

Unteres Fluid ( $0 < z < d_1$ ):

$$\varrho_1 (\partial_t V_{1i} + V_{1j} \partial_j V_{1i}) = -\partial_i P_1 + \mu_1 \partial_{jj}^2 V_{1i} - \delta_{iz} \varrho_1 g \quad (3.1a)$$

$$\partial_t T_1 + V_{1j} \partial_j T_1 = \kappa_1 \partial_{jj}^2 T_1 \quad (3.1b)$$

$$\partial_j V_{1j} = 0. \quad (3.1c)$$

Oberes Fluid ( $d_1 < z < d_2$ ):

$$\varrho_2 (\partial_t V_{2i} + V_{2j} \partial_j V_{2i}) = -\partial_i P_2 + \mu_2 \partial_{jj}^2 V_{2i} - \delta_{iz} \varrho_2 g \quad (3.1d)$$

$$\partial_t T_2 + V_{2j} \partial_j T_2 = \kappa_2 \partial_{jj}^2 T_2 \quad (3.1e)$$

$$\partial_j V_{2j} = 0, \quad (3.1f)$$

wobei über doppelt auftretende Indizes  $j$  summiert wird.  $i$  und  $j$  laufen von 1 bis 3 und  $(1, 2, 3) \hat{=} (x, y, z)$ .  $\mu_k$  ist die dynamische Viskosität und  $\kappa_k$  der Wärmediffusionskoeffizient, welcher berechnet werden kann durch  $\kappa_k = \frac{\lambda_k}{\varrho_k \cdot c_k}$  ( $\varrho_k$  ist hier eine Referenzdichte und wird zur Berechnung von  $\kappa_k$  als orts- und zeitunabhängig betrachtet). Dabei ist  $\lambda_k$  die Wärmeleitfähigkeit und  $c_k$  die spezifische Wärme (jeweils in Fluid  $k = 1, 2$ ). Es sei erwähnt, dass in den Wärmeleitgleichungen (3.1b) und (3.1e) die Wärmeerzeugung durch Reibung ( $\propto (\partial_j V_i + \partial_i V_j)^2$ ) vernachlässigt wurde.

Die Gleichungen (3.1) müssen noch durch (für diese Arbeit) relevante Rand- und Anschlussbedingungen ergänzt werden. Der unterer Rand ( $z = 0$ ) ist ideal wärmeleitend und die Fluidpartikel haften aufgrund der Reibung an der Platte („no-slip“-Bedingung):

$$V_{1x} = V_{1y} = 0, \quad V_{1z} = 0, \quad \partial_z V_{1z} = 0, \quad T_1 = T_u = \text{const.} \quad (3.2a)$$

und analoge Bedingungen am oberen Rand ( $z = d_1 + d_2$ ):

$$V_{2x} = V_{2y} = 0, \quad V_{2z} = 0, \quad \partial_z V_{2z} = 0, \quad T_2 = T_o = \text{const.} \quad (3.2b)$$

Die Anschlussbedingungen an der Grenzfläche ( $z = d_1$ ) ergeben sich zu (vgl.

[35]):

$$V_{1_j} t_{i_j} = V_{2_j} t_{i_j} \quad i = x, y \quad (3.3a)$$

$$J = \varrho_1 V_{1_j} n_j = \varrho_2 V_{2_j} n_j \quad (3.3b)$$

$$\partial_t h + V_{k_x} \partial_x h + V_{k_y} \partial_y h = V_{k_z} \quad (3.3c)$$

$$J (V_{2_i} - V_{1_i}) - \left( \underline{\mathbf{T}}_{2_{ij}} - \underline{\mathbf{T}}_{1_{ij}} \right) n_j = \partial_{s_i} \sigma + \sigma (\partial_{s_j} n_j) n_i \quad (3.3d)$$

$$T_1 = T_2 \quad (3.3e)$$

$$JL + \frac{J}{2} (V_2^2 - V_1^2) - (\lambda_2 \partial_j T_2 - \lambda_1 \partial_j T_1) n_j = 0. \quad (3.3f)$$

Die Gleichheit der tangentialen Grenzflächengeschwindigkeiten wird mit Gleichung (3.3a) ausgedrückt („no-slip“-Bedingung). Gleichung (3.3b) beschreibt die Massenerhaltung an der Grenzfläche bei einem Massenfluss  $J$  in Normalenrichtung für einkomponentige Fluide. Gleichung (3.3c) gibt die  $z$ -Komponente der Grenzflächengeschwindigkeit  $\vec{V}_{k_z}$  in Abhängigkeit von der zeitlichen Änderung der Grenzflächenposition  $h(x, y, t) = z$  und den lateralen Geschwindigkeiten  $(V_{k_x}, V_{k_y})$  an (kinematische Bedingung). Die Impulserhaltung liefert (3.3d) mit der Oberflächenspannung  $\sigma$ . An der Grenzfläche soll der Temperaturübergang von einem Fluid in das andere kontinuierlich erfolgen, d.h. die Temperaturen der zwei Medien müssen an der Grenzfläche gleich sein. Daraus folgt Gleichung (3.3e). (3.3f) ist die Anschlussbedingung der Energie mit der latenten Wärme  $L$ , die zur Phasenumwandlung benötigt wird. Der zweite Term beschreibt die Umwandlung von kinetischer Energie in Wärme an der Grenzfläche. Der dritte Term gibt den Wärmefluss wieder.

$\vec{n} = \frac{1}{(1+(\partial_x h)^2+(\partial_y h)^2)^{1/2}}(-\partial_x h, -\partial_y h, 1)$ ,  $\vec{t}_x = \frac{1}{(1+(\partial_x h)^2)^{1/2}}(1, 0, \partial_x h)$  und  $\vec{t}_y = \frac{1}{(1+(\partial_y h)^2)^{1/2}}(0, 1, \partial_y h)$  sind der Normalen- und die beiden Tangentenvektoren der Grenzfläche.  $\partial_{\vec{s}} = (\partial_x, \partial_y, 0)$  ist der Nablaoperator der Bogenfläche (Die mittlere Krümmung ist damit  $H = -\frac{1}{2}(\partial_{s_j} n_j)$  [28]).  $\underline{\mathbf{T}}_{k_{ij}} = \underline{\mathbf{P}}_{k_{ij}} - P_k \delta_{ij}$  ist der Spannungstensor und  $\underline{\mathbf{P}}_{k_{ij}}$  der Viskositätstensor, der in einem inkompressiblen Newtonschen Fluid durch  $\underline{\mathbf{P}}_{k_{ij}} = \mu_k (\partial_j V_{k_i} + \partial_i V_{k_j})$  gegeben ist [65, 67]. Die drei Komponenten der Impulserhaltung an der Grenzfläche (3.3d) können durch Projektionen auf den Normalenvektor  $\vec{n}$  und auf die Tangentialvektoren  $\vec{t}_x$ ,  $\vec{t}_y$  erhalten werden. In der Normalkomponente taucht der Dampfdruckstoß oder vapoir-recoil-Effekt (erster Term in (3.3d))

auf, der die unterschiedlichen Normalgeschwindigkeiten aufgrund der Phasenumwandlung an der Grenzfläche berücksichtigt.

Die Grenzflächenbedingungen für die Impulserhaltung (3.3d) werden in Kapitel 6 unter Vernachlässigung des Massenflusses  $J$  in der Form

$$\text{normal:} \quad (\partial_{s_i} \sigma + \sigma(\partial_{s_j} n_j) n_i) n_i = \mathcal{N} \quad (3.4a)$$

$$\text{tangential:} \quad (\partial_{s_i} \sigma + \sigma(\partial_{s_j} n_j) n_i) t_{x_i} = \mathcal{T}_x \quad (3.4b)$$

$$(\partial_{s_i} \sigma + \sigma(\partial_{s_j} n_j) n_i) t_{y_i} = \mathcal{T}_y \quad (3.4c)$$

verwendet, wobei  $\mathcal{N}$  und  $\vec{\mathcal{T}} = (\mathcal{T}_x, \mathcal{T}_y)$  die auftretenden Normal- und Tangentialkräfte darstellen, welche noch durch zusätzliche Effekte erweitert werden können.

### 3.1 Lineare Stabilitätsanalyse

Jedes im Folgenden betrachtete System wird einer linearen Stabilitätsanalyse unterzogen. Die dimensionslosen Gleichungen werden also auf ihr Verhalten bezüglich kleiner Störungen des stationären Zustandes untersucht. Der Standardansatz ist eine Entwicklung nach ebenen Wellen

$$\vec{X}(x, y, z, t) = \vec{\mathcal{X}}(z) \exp(ik_x x + ik_y y + \chi t). \quad (3.5)$$

$\vec{X}(x, y, z, t)$  ist ein Vektor, der alle sich zeitlich entwickelnde Feldvektoren beinhaltet.  $k_x$  und  $k_y$  sind die Wellenzahlen in  $x$  bzw.  $y$ -Richtung. Dieser Ansatz wird in die linearisierten Gleichungen eingesetzt und führt im Allgemeinen (in Kapitel 4 und 5) auf ein generalisiertes Eigenwertproblem ( $\chi$  ist der Eigenwert und  $\vec{\mathcal{X}}(z)$  der Eigenvektor)

$$\chi \underline{\mathbf{A}} \vec{\mathcal{X}} = \underline{\mathbf{B}} \vec{\mathcal{X}} \quad (3.6)$$

mit den passenden Rand- und Grenzflächenbedingungen, welches numerisch mit Standardroutinen (LAPACK) gelöst werden kann. Sind alle Eigenwerte (oder Wachstumsraten)  $\Re(\chi) < 0$  ist das System stabil, ansonsten instabil. Die Matrizen  $\underline{\mathbf{A}}$  und  $\underline{\mathbf{B}}$  beinhalten die Materialparameter, Kontrollparameter und den Wellenvektor  $\vec{k} = (k_x, k_y)$ . In Kapitel 6 reduziert sich das Eigenwertproblem (3.6) auf eine einzige Gleichung, welche rein analytisch untersucht werden kann.



# Kapitel 4

## Kurzwellige Konvektionsinstabilitäten

Im folgenden Kapitel werden Zweischicht-Systeme mit einer nichtdeformierbaren Grenzfläche unter einem äußeren Temperaturgradienten betrachtet. Des Weiteren werden alle Materialgrößen bis auf die Dichte in den Krafttermen der Navier-Stokes-Gleichungen als temperaturunabhängig angenommen und ein Massenfluss ( $J$ ) an der Grenzfläche wird vernachlässigt. Nach der Herleitung der Evolutionsgleichungen für die gestörten dimensionslosen Feldvariablen, wird ein Quecksilber-Wasser-System auf seine antikonvektive Instabilität untersucht.

### 4.1 Stationärer Zustand und Störungen

Wird das System einer äußeren vertikalen Temperaturdifferenz  $\Delta T = T_u - T_o$  unterworfen, so sind beide Fluide im stationären Zustand in Ruhe und die Wärmeleitung findet allein durch thermische Diffusion statt. Der stationäre Temperaturverlauf kann dann mit den stationären Wärmeleitgleichungen (aus (3.1b) und (3.1e)), den Rand- und den Anschlussbedingungen ((3.2),

(3.3e) und (3.3f)) für eine undeformierbare Grenzfläche berechnet werden zu

$$T_1(z) = T_u - \frac{\Delta T_1}{d_1} z \quad \text{und} \quad (4.1a)$$

$$T_2(z) = T_u - \Delta T_1 - \frac{\Delta T_2}{d_2} (z - d_1). \quad (4.1b)$$

Es ergeben sich lineare Funktionen in  $z$  mit einem Sprung der ersten Ableitung in  $z$  an der Grenzfläche. Die Temperaturdifferenzen  $\Delta T_1$  und  $\Delta T_2$  sind die im unteren bzw. oberen Fluid abfallenden Temperaturdifferenzen ( $\Delta T_1 = T_u - T_I$ ,  $\Delta T_2 = T_I - T_o$ ,  $\Delta T = \Delta T_1 + \Delta T_2$  und die Grenzflächentemperatur  $T_I$ ).

Werden alle Materialgrößen bis auf die Dichte im Kraftterm als unabhängig von der Temperatur betrachtet (Oberbeck-Boussinesq-Näherung [27]), so ergibt eine lineare Entwicklung der Dichten (nur in den Krafttermen):

$$\varrho_1(\vec{r}, t) = \varrho_{10} (1 - \alpha_1 (T(\vec{r}, t) - T_u)) \quad (4.2a)$$

$$\varrho_2(\vec{r}, t) = \varrho_{20} (1 - \alpha_2 (T(\vec{r}, t) - T_I)). \quad (4.2b)$$

$\varrho_{10}$  und  $\varrho_{20}$  sind Referenzdichten und  $\alpha_1$  und  $\alpha_2$  sind die thermischen Expansionskoeffizienten in Fluid 1 bzw. Fluid 2.  $T_I$  ist die stationäre Grenzflächentemperatur. Werden die entwickelten Dichten (4.2) in die Kraftterme der stationären Impulsgleichungen (3.1a) und (3.1d) eingesetzt, so können die stationären quadratischen Druckprofile berechnet werden (siehe [35] und ungestörter Anteil in Gleichungen (4.3c) und (4.3f))

Damit können  $V_{k_i}(\vec{r}, t)$ ,  $T_k(\vec{r}, t)$  und  $P_k(\vec{r}, t)$  als eine Summe aus stationärer Lösung und einer Störung beschrieben werden.

$$V_{1_i}(\vec{r}, t) = 0 + u_{1_i}(\vec{r}, t) \quad (4.3a)$$

$$T_1(\vec{r}, t) = T_u - \frac{\Delta T_1}{d_1} \cdot z + \theta_1(\vec{r}, t) \quad (4.3b)$$

$$P_1(\vec{r}, t) = p_{1_{const}} - \varrho_{10} g \left( z + \frac{1}{2} \alpha_1 \frac{\Delta T_1}{d_1} z^2 \right) + p_1(\vec{r}, t) \quad (4.3c)$$

$$V_{2_i}(\vec{r}, t) = 0 + u_{2_i}(\vec{r}, t) \quad (4.3d)$$

$$T_2(\vec{r}, t) = T_u - \Delta T_1 - \frac{\Delta T_2}{d_2} (z - d_1) + \theta_2(\vec{r}, t) \quad (4.3e)$$

$$P_2(\vec{r}, t) = p_{2_{const}} - \varrho_{20} g \left( z + \alpha_2 \frac{\Delta T_2}{d_2} \left( \frac{1}{2} z^2 - d_1 z \right) \right) + p_2(\vec{r}, t) \quad (4.3f)$$

$u_{k_i}(\vec{r}, t)$ ,  $\theta_k(\vec{r}, t)$  und  $p_k(\vec{r}, t)$  sind die Störungen der Geschwindigkeiten, der Temperaturen und der hydrostatischen Drücke.  $p_{1_{const}}$  und  $p_{2_{const}}$  sind Integrationskonstanten, welchen im Weiteren keine Bedeutung zufällt.

## 4.2 Dimensionslose Gleichungen

Die Gleichungen der Störungen (4.3) werden zur einfacheren theoretischen Behandlung auf dimensionslose Größen skaliert:

$$\text{Länge: } x_i \rightarrow d_1 \tilde{x}_i \quad (4.4a)$$

$$\text{Geschwindigkeit: } u_{k_i} \rightarrow \kappa_1/d_1 \tilde{u}_{k_i} \quad (4.4b)$$

$$\text{Zeit: } t \rightarrow d_1^2/\kappa_1 \tilde{t} \quad (4.4c)$$

$$\text{Temperatur: } \theta_k \rightarrow \Delta T \tilde{\theta}_k \quad (4.4d)$$

$$\text{Druck: } p_k \rightarrow (\nu_1 \kappa_1 \rho_{k_0})/d_1^2 \tilde{p}_k. \quad (4.4e)$$

Das liefert die dimensionslosen Gleichungen für die gestörten Größen durch Einsetzen von (4.3) unter Verwendung von (4.2) (in dimensionsloser Form) in (3.1) (die Tilden sind wieder weggelassen)

$$\partial_t u_{1_i} + u_{1_j} \partial_{x_j} u_{1_i} + Pr \partial_{x_i} p_1 = Pr R \delta_{iz} \theta_1 + Pr \partial_{x_{jj}} u_{1_i} \quad (4.5a)$$

$$\partial_t \theta_1 + u_{1_j} \partial_{x_j} \theta_1 = \beta_1 u_{1_z} + \partial_{x_{jj}} \theta_1 \quad (4.5b)$$

$$\partial_{x_j} u_{1_j} = 0 \quad (4.5c)$$

$$\partial_t u_{2_i} + u_{2_j} \partial_{x_j} u_{2_i} + Pr \partial_{x_i} p_2 = Pr R \alpha \delta_{iz} \theta_2 + Pr \nu \partial_{x_{jj}} u_{2_i} \quad (4.5d)$$

$$\partial_t \theta_2 + u_{2_j} \partial_{x_j} \theta_2 = \beta_2 u_{2_z} + \kappa \partial_{x_{jj}} \theta_2 \quad (4.5e)$$

$$\partial_{x_j} u_{2_j} = 0. \quad (4.5f)$$

Als dimensionslose Parameter ergeben sich die Verhältnisse der Materialparameter:  $\alpha = \alpha_2/\alpha_1$  ist das Verhältnis der thermischen Expansionskoeffizienten,  $\nu = \nu_2/\nu_1$  das Verhältnis der kinematischen Viskositäten ( $\nu_k = \mu_k/\rho_k$ ),  $\kappa = \kappa_2/\kappa_1$  das Verhältnis der thermischen Diffusivitäten. In den Anschlussbedingungen der Grenzfläche tauchen später noch die Verhältnisse der Dichten  $\varrho = \varrho_2/\varrho_1$ , der Wärmeleitfähigkeiten  $\lambda = \lambda_2/\lambda_1$  und der

Dicken  $d = d_2/d_1$  auf.

$$\beta_1 = \lambda/(d + \lambda) \quad \text{und} \quad \beta_2 = 1/(d + \lambda) \quad (4.6)$$

sind dimensionslose Temperaturgradienten in Fluid 1 und Fluid 2. Sie werden unter Verwendung der Grenzflächengleichungen (4.11e), (4.11f) und den Temperaturrandbedingungen (4.10a), (4.10b) hergeleitet und sind unabhängig von der Richtung der Heizung immer positiv. Das stationäre, lineare, dimensionslose Temperaturprofil ergibt sich dann zu

$$\tilde{T}_1(z) = \tilde{T}_u - \beta_1 \tilde{z} \quad (4.7a)$$

$$\tilde{T}_2(z) = \tilde{T}_u - (\beta_1 - \beta_2) - \beta_2 \tilde{z}. \quad (4.7b)$$

Weiterhin ist

$$Pr = \frac{\nu_1}{\kappa_1} = Pr_1 \quad \text{die Prandtl-Zahl} \quad (4.8)$$

$$\text{und } R = \frac{\alpha_1 g \Delta T}{\nu_1 \kappa_1} d_1^3 \quad \text{die Rayleigh-Zahl.} \quad (4.9)$$

Die Rayleigh-Zahl ist ein Kontrollparameter des Systems.

Die Randbedingungen (3.2) der gestörten Gleichungen ergeben sich zu:

Unterer Rand ( $z = 0$ ):

$$u_{1x} = u_{1y} = 0, \quad u_{1z} = 0, \quad \frac{\partial}{\partial z} u_{1z} = 0, \quad \theta_1 = 0. \quad (4.10a)$$

Oberer Rand ( $z = 1 + d_2$ ):

$$u_{2x} = u_{2y} = 0, \quad u_{2z} = 0, \quad \frac{\partial}{\partial z} u_{2z} = 0, \quad \theta_2 = 0. \quad (4.10b)$$

Wird eine lineare Abhängigkeit der Oberflächenspannung von der Temperatur angenommen, dann skalieren die Anschlussbedingungen der gestörten

Feldgrößen an der undeformierbaren Grenzfläche (3.3) zu:

$$u_{1_z} = u_{2_z} = 0 \quad (4.11a)$$

$$u_{1_x} = u_{2_x}, \quad u_{1_y} = u_{2_y} \quad (4.11b)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} u_{1_x} - \rho\nu \frac{\partial}{\partial z} u_{2_x} = -M \frac{\partial}{\partial x} \theta_I \quad (4.11c)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} u_{1_y} - \rho\nu \frac{\partial}{\partial z} u_{2_y} = -M \frac{\partial}{\partial y} \theta_I \quad (4.11d)$$

$$\theta_1 = \theta_2 \quad (4.11e)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} \theta_1 = \lambda \frac{\partial}{\partial z} \theta_2. \quad (4.11f)$$

Zusammen mit den Gleichung (4.5) und den Randbedingungen (4.10) erhält man ein geschlossenes System.

$M$  ist die dimensionslose Marangoni-Zahl, die in dieser Skalierung die Form

$$M = \frac{-\gamma \Delta T}{\rho_1 \nu_1 \kappa_1} d_1 \quad (4.12)$$

hat. Dabei ist  $\gamma = \frac{\partial \sigma}{\partial T} < 0$  die Änderung der Oberflächenspannung mit der Temperatur. Diese ist in allen hier untersuchten Fällen kleiner als Null. Dies bedeutet, dass für  $M > 0$  das System von unten und für  $M < 0$  von oben geheizt wird. Werden sowohl Oberflächenspannungseffekte als auch Gravitationseffekte betrachtet, so ist zur Unterscheidung der Stärke der einzelnen Effekte die Bond-Zahl

$$Bo = \frac{R}{M} = -\frac{\alpha_1 \rho_1 g}{\gamma} d_1^2 \quad (4.13)$$

eine wichtige Größe. Dabei bedeutet eine große Bond-Zahl ( $Bo > 1$ ) ein Überwiegen auftriebsinduzierter Instabilitäten (mit Kontrollparameter  $R$ ). Entsprechend ist für  $Bo < 1$  der Marangoni-Effekt (mit Kontrollparameter  $M$ ) dominierend.

Der Kontrollparameter des Systems wird definiert als

$$\varepsilon = \frac{M - M_c}{M_c} = \frac{R - R_c}{R_c} \quad (4.14)$$

mit der kritischen Marangoni-Zahl  $M_c$  bzw. Rayleigh-Zahl  $R_c$  an der Schwelle. Das Aspektverhältnis

$$\Gamma = \frac{\text{laterale Länge}}{\text{vertikale Längeneinheit}} = \frac{L_x}{d_1} \quad (4.15)$$

gibt das Verhältnis der lateralen zur vertikalen Längeneinheit wieder und es werden im Folgenden nicht zu kleine Aspektverhältnisse betrachtet.

Bei der Durchführung der linearen Stabilitätsanalyse können durch zweimalige Anwendung der Rotation auf die Navier-Stokes-Gleichungen und mithilfe der Kontinuitätsgleichungen die Drücke und die horizontalen Geschwindigkeitskomponenten ( $u_x$ ,  $u_y$ ) eliminiert werden [31, 35, 106]. Der Eigenvektor  $\vec{\mathcal{X}}(z)$  in (3.5) und (3.6) baut sich somit nur aus der vertikalen Geschwindigkeitskomponente ( $u_z$ ) und der Temperatur ( $\theta$ ) auf.

### 4.3 Allgemeine Aussagen und einführendes Beispiel

Das Verhalten am Übergang vom wärmeleitenden Zustand in den konvektiven Zustand kann im Allgemeinen schon durch 4 Zeitskalen abgeschätzt werden.

$$\tau_{\nu_1} = \frac{d_c^2}{\nu_1}, \quad \tau_{\kappa_1} = \frac{d_c^2}{\kappa_1}, \quad \tau_{\nu_2} = \frac{d_c^2}{\nu_2}, \quad \text{und} \quad \tau_{\kappa_2} = \frac{d_c^2}{\kappa_2} \quad (4.16)$$

sind die viskose und thermische Zeitskala von Fluid 1 bzw. Fluid 2, bezogen auf eine vertikale Längenskala  $d_c$ . Diese Zeitskalen haben für verschiedene Fluide und Schichtdicken eine andere Rangordnung und erweitern im Vergleich zu einschichtigen Fluidsystemen das Spektrum der möglichen Bifurkationsszenarien erheblich [82]. Z.B. kann eine reine Marangoni-Instabilität durch „günstiges“ Zusammenwirken dieser Zeitskalen oszillatorisch werden [34, 35]. Diese Abschätzungen erlauben nur qualitative Aussagen, deshalb ist immer eine lineare Stabilitätsanalyse für das genauere Verständnis des Instabilitätsmechanismus nötig.

Es sind auch direkte Übergänge vom wärmeleitenden in einen chaotischen Zustand möglich, was für den Kodimension-2-Punkt in einem Methyl-Oktan-System von COLINET & AL. [34] unter Verwendung von Amplitudengleichungen untersucht wurde. Diese Form des Übergangs ins Chaos wurde zuerst von ARNEODO & AL. [2] vorgeschlagen. Die direkte Simulation an der Schwelle des Kodimension-2-Punktes hat gezeigt, dass der resultierende chaotische Attraktorraum maximal 12-dimensional ist [82].

Als einführendes Beispiel zur Veranschaulichung von Zweischicht-Systemen mit Gravitation und Marangoni-Effekt wird das Öl-Öl-System (Parametersatz 1 in Anhang E.2) mit einem Schichtdickenverhältnis  $d = 2.3$  und einer realen unteren Schichtdicke  $d_1 = 0.918 \text{ mm}$  (d.h.  $d_2 = 2.142 \text{ mm}$  und  $Bo = 0.339$ ) verwendet. Aufgrund der kleinen Bond-Zahl  $Bo$  dominiert der Marangoni-Effekt.

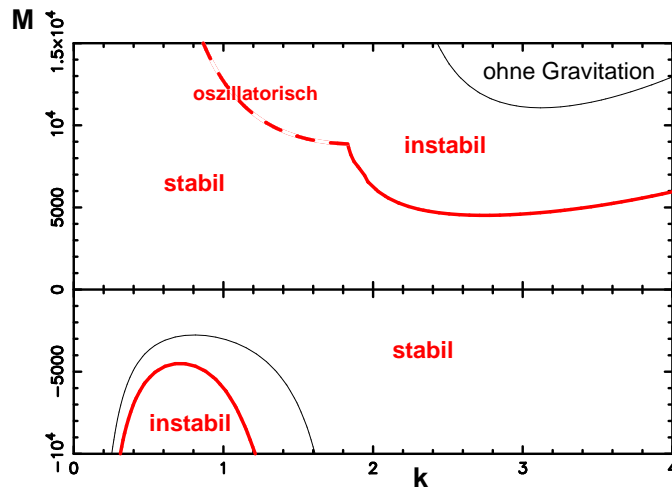


Abbildung 4.1: Marginale Linien in  $M$ - $k$ -Darstellung. Rote Linien für  $Bo = 0.339$ , oszillatorische Instabilität bei gestrichelter Linie. Dünne schwarze Linien ohne Gravitation ( $Bo = 0$ ).

Abb. 4.1 zeigt die Ergebnisse der linearen Stabilitätsanalyse. Es sind die marginalen Linien (Wachstumsrate  $\chi = 0$ ) mit Gravitation ( $R = Bo \cdot M$ , rote Linien) und ohne Gravitation (schwarze Linien) eingezeichnet. Aus Darstellungsgründen sind große Absolutwerte der Marangoni-Zahl nicht gezeigt ( $|M| > 1.5 \cdot 10^4$ ). Es zeigt sich, dass ohne Gravitation (schwarze Linie) bei starker Heizung von unten ( $M > 0$ ) ein langwelliger oszillatorischer Zweig existiert. Des Weiteren tritt bei starker Heizung von oben ( $M < 0$ ) ein kurzwelliger oszillatorischer Zweig auf. Dies sind typische Eigenschaften von Zweischicht-Systemen. Im hier untersuchten Öl-Öl-System ist die Instabilität an der Schwelle unabhängig von der Richtung der Heizung immer monoton. Dies ist in Übereinstimmung mit den Abschätzungen aus [35] (mit  $\kappa > 1$  und  $d^2/\kappa > 1$ ). Wird die Gravitation „eingeschaltet“ (rote Linien), so wird bei

Heizung von unten die Schwelle zu kleineren Marangoni-Zahlen verschoben. Bei Heizung von oben wird der Absolutwert der kritischen Marangoni-Zahl größer.

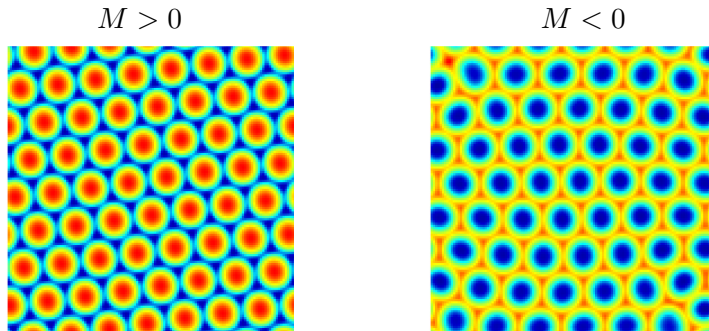


Abbildung 4.2: Konturplot der Temperaturstörungen an der Grenzfläche für  $\varepsilon = 0.3$  und  $\Delta t = 0.05$  bei  $t = 50$ . Stationäre hexagonale Muster bilden sich sowohl für  $M > 0$  ( $\Gamma \approx 18$ ) als auch für  $M < 0$  ( $\Gamma \approx 70$ ) aus.

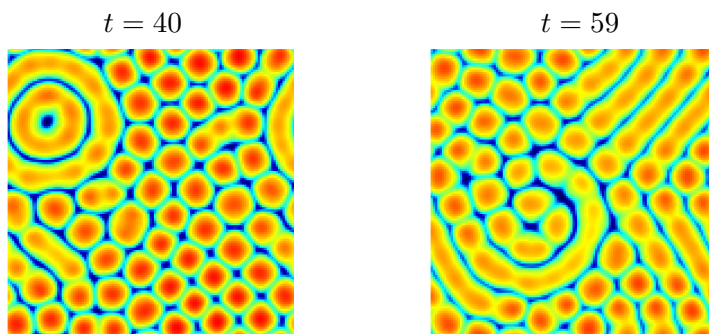


Abbildung 4.3: Konturplot der Temperaturstörungen an der Grenzfläche für  $\varepsilon = 2$  ( $M \approx 13560$ ) und  $\Delta t = 0.001$  mit Heizung von unten ( $M > 0$ ,  $\Gamma \approx 18$ ).

Abb. 4.2 zeigt die stationären Muster der Temperaturstörung an der Grenzfläche, die aus den 3D-Integrationen der vollen nichtlinearen Gleichungen resultieren. Für  $M > 0$  (linkes Bild,  $M_c \approx 4520$ ) wird warmes Fluid von unten im Zentrum der Hexagone zur Grenzfläche transportiert („up“ oder „l“-Hexagone). Für  $M < 0$  (rechtes Bild,  $M_c \approx -4500$ ) wird warmes Fluid am Rand der Hexagone von oben zur Grenzfläche transportiert. („down“



oder „g“-Hexagone).

Wird von unten geheizt ( $M > 0$ ), dann treten bei einer entsprechend großen Marangoni-Zahl (und damit einer großen Rayleigh-Zahl  $R$ ) der Auftrieb und der langwellige oszillatorische Zweig (siehe Abb. 4.1) als weitere destabilisierende Effekte zu Tage. Schon eine Vergrößerung des Kontrollparameters bei Heizung von unten auf  $\varepsilon = 2$  führt zu einem merklichen Einfluss dieser beiden Effekte auf die Musterbildung. Abb. 4.3 zeigt zwei Schnappschüsse der Zeitentwicklung. Es wird kein stationärer Endzustand erreicht und ein Wechselspiel zwischen Hexagonen (Quadraten) und Spiralen ist beobachtbar.

Experimente zu obigen Simulationen in Zweischicht-Systemen mit nichtdeformierbarer Grenzfläche sind bei TOKARUK & AL. [132] zu finden. Der Einfluss des Schichtdickenverhältnisses und die schwach nichtlineare Evolution wurden von ENGEL und SWIFT [43] untersucht. Dreidimensionale Simulationen für andere Fluidkonfigurationen (Silikonöl (10cS)- Ethylenglykol-Systeme), welche einen anomalen Marangoni-Effekt zeigen, sind von BOECK & AL. [23] durchgeführt worden und es konnten verschiedenste Muster bei unterschiedlichen Marangoni-Zahlen gefunden werden (alternierende, schiefe, defektbestimmte und oszillierende Rollen, Hexagone, Chaos).

## 4.4 Ein spezielles System: Antikonvektion

Werden Zweischicht-Systeme großer Dicke (d.h. die Temperaturabhängigkeit der Oberflächenspannung verliert an Bedeutung,  $M = 0$ ) von oben erhitzt, so würde man intuitiv keine Instabilität erwarten, da jede Störung durch den Auftrieb wieder gedämpft wird (vgl. mit Unterkapitel 2.1). Es wird im Folgenden gezeigt, dass das System dennoch instabil werden kann. Dieser Instabilitätsmechanismus lässt sich nicht mehr allein durch Auftriebskräfte erklären, sondern neben der thermischen Expansion ( $\alpha_k$ ) muss auch noch der Einfluss der thermischen Leitfähigkeiten (damit auch die thermischen Diffusivitäten) und der viskosen Kopplung der beiden Fluide an der Grenzfläche (durch  $\rho\nu$  in (4.11c) und (4.11d)) berücksichtigt werden. Dies führt zu

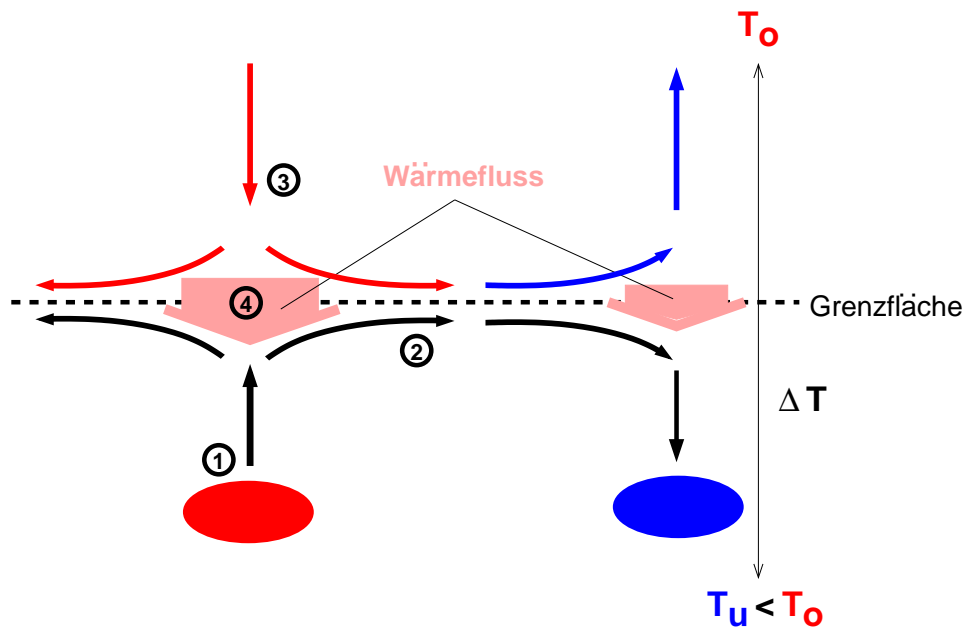


Abbildung 4.4: Mechanismus der Antikonvektion vom Typ I bei Erhitzen von oben.

einem grundlegend anderen Verstärkungsmechanismus als bei der „normalen“ Rayleigh-Bénard-Konvektion. WELANDER [138] untersuchte 1964 als erster diesen paradoxen Instabilitätsmechanismus und prägte den Namen „anticonvection“.

#### 4.4.1 Mechanismus

Je nach Materialparametern können zwei Typen der Antikonvektion unterschieden werden. Die wesentlichen Parameter sind die thermischen Expansionskoeffizienten  $\alpha_k$  und die thermischen Diffusivitäten  $\kappa_k$ . Sind die Verhältnisse der Parameter  $\alpha < 1$  und  $\kappa < 1$  (siehe Seite 35), dann liegt Antikonvektion vom Typ I vor (nach [87] oder divergente Antikonvektion nach [54]), bzw. für  $\alpha > 1$  und  $\kappa > 1$  Antikonvektion des Typs II (oder konvergente Antikonvektion). Um eine anschauliche Vorstellung des Instabilitätsmechanismus vom Typ I zu bekommen, betrachte man eine positive Temperaturfluktuation in Fluid 1 (unteres Fluid) in der Nähe der Grenzflä-

che (Abb. 4.4). Durch Auftriebskräfte bewegt sich das Fluidelement vertikal in Richtung der Grenzfläche (Punkt 1). Im Volumen von Fluid 1 würde diese Vertikalbewegung gedämpft werden, aber da die Fluktuation nahe der Grenzfläche ist, kann das Fluidelement bis an die Grenzfläche gelangen und es resultiert aufgrund der Kontinuität ein Fluss tangential zur Grenzfläche. Die viskose Kopplung der beiden Fluidschichten an der Grenzfläche induziert damit auch eine tangentielle Bewegung im Fluid 2 (Punkt 2). Das wiederum erzwingt einen Transport von warmen Fluid 2 zur Grenzfläche (Punkt 3). Die thermische Kopplung der beiden Fluide bedingt einen Wärmefluss von Fluid 2 zu Fluid 1 (Punkt 4) und die große thermische Diffusivität in Fluid 1 bewirkt einen Transport von Wärme zur ursprünglichen Fluktuation und kann diese verstärken. Eine analoge Argumentation kann auch für eine negative Fluktuation gefunden werden. Bei der Antikonvektion vom Typ I dient also das obere Fluid als Wärmereservoir.

Aufgrund des Zusammenwirkens verschiedenster Effekte bei der Antikonvektion, zeigt sich nicht in jedem System Antikonvektion. Als einziges bekanntes „natürliches“ System, welches antikonvektiv instabil werden kann, ist bisher das Quecksilber-Wasser-System gefunden worden [48]. Es wurde aber von INGEL [54] gezeigt, dass die Änderung des Salzgehaltes von Wasser, durch Variation der Feuchte der angrenzenden Luft, zu Antikonvektion führen kann. Darüber hinaus haben NEPOMNYASHCHY und SIMANOVSKII [87, 89] die Möglichkeit der Antikonvektion für jede Fluidkombination gezeigt, wenn Wärmesenken oder -quellen an der Grenzfläche vorhanden sind (z.B. Verdampfung, chemische Reaktionen, Lasereinstrahlung auf laseraktive Grenzflächenzusätze).

#### 4.4.2 Lineare Stabilitätsanalyse

Die lineare Stabilitätsanalyse vertikal begrenzter Systeme muss numerisch durchgeführt werden (siehe (3.6)). Werden als Fluide Quecksilber und Wasser (Parametersatz 2 in Anhang E.2) verwendet, so kann die Stabilitätsanalyse einen Aufschluss über die Abhängigkeit der kritischen Rayleigh-Zahl vom Verhältnis des thermischen Expansionskoeffizienten  $\alpha$  geben (dabei werden

alle Wellenzahlen  $k$  numerisch durchlaufen). Abb.4.5 zeigt die marginale

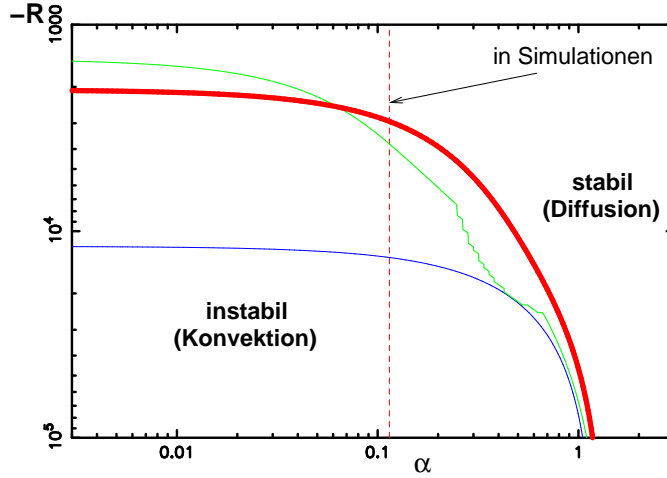


Abbildung 4.5: Marginale Linien in  $R$ - $\alpha$ -Darstellung für verschiedene Verhältnisse der Schichtdicken  $d$ . Rot:  $d = 1$ . Grün:  $d = 1.5$ . Blau:  $d = 0.4$ . Für die nichtlinearen Untersuchungen wird  $\alpha = 0.1144$  verwendet (rote gestrichelte Linie).

Linie (Wachstumsrate  $\chi = 0$ ) im  $R$ - $\alpha$  Diagramm für  $d = 1$  (rote Linie). Geht das Verhältnis der thermischen Expansionskoeffizienten  $\alpha$  gegen Null, so geht die kritische Rayleigh-Zahl  $R_c$  in einen Sättigungsbereich über. Für Werte von  $\alpha > 1$  verschiebt sich die Schwelle ins Unendliche und es tritt keine antikonvektive Instabilität auf. Die linearen Stabilitätsdiagramme für andere Schichtdicken sind in grün ( $d = 1.5$ ) und blau ( $d = 0.4$ ) eingezeichnet und ergeben ähnliche Verläufe. Für ein kleines Verhältnis der thermischen Expansionskoeffizienten  $\alpha$  wird der Sättigungsbereich für  $d > 1$  (grüne Linie) bei kleineren Absolutbeträgen der Rayleigh-Zahl erreicht. Eine simple Abschätzung veranschaulicht dieses Verhalten: Für kleines  $\alpha$  werden die Gleichungen von Fluid 2 unabhängig von der Rayleigh-Zahl  $R$  (Vernachlässigung des „ $\alpha$ -Terms“ in (4.5d)). Rückskalierung von (4.7) liefert den dimensionsbehafteten linearen Temperaturverlauf in Fluid 1

$$T_1(z) = T_u - \frac{\beta_1}{\Delta T} d_1 z. \quad (4.17)$$

Verwendung der gleichen unteren Fluidschichtdicke  $d_1$  und Berücksichtigung der Verkleinerung von  $\beta_1$  bei Vergrößerung der oberen Schichtdicke  $d_2$  (siehe (4.6)), zeigt, dass  $\Delta T$  kleiner werden muss, um den gleichen dimensionsbehafteten Temperaturgradienten in (4.17) zu erhalten. Da das Schichtdickenverhältnis in keiner weiteren Gleichung auftaucht, folgt, dass der Absolutbetrag der Rayleigh-Zahl mit zunehmendem  $d$  kleiner wird.

Für die nichtlinearen 3D-Simulationen wird  $\alpha = 0.1144$  verwendet. Die bekannte Anomalie des Wassers bei  $4^\circ\text{C}$  schlägt sich in einem Vorzeichenwechsel des thermischen Expansionskoeffizienten  $\alpha_2$  nieder. Es ist deshalb eine gerechtfertigte Annahme,  $\alpha_2$  als stark monoton steigende Funktion der Temperatur anzusetzen. Das heißt, Experimente bei Temperaturen  $T < 20^\circ\text{C}$  verringern das Verhältnis  $\alpha = \alpha_2/\alpha_1$  wesentlich. Es wird deshalb im Weiteren immer  $\alpha = 0.1144$  als Verhältnis der thermischen Expansionskoeffizienten verwendet (rote gestrichelte Linie in Abb. 4.5). Alle weiteren Materialparameter haben eine schwächere Temperaturabhängigkeit und werden im Folgenden idealisiert bei  $T = 20^\circ\text{C}$  angesetzt (vgl. auch mit [48]). Es sei weiterhin bemerkt, dass Simulationen für betragsmäßig kleine Rayleigh-Zahlen stabiler sind.

Werden die festen Ränder ins Unendliche verschoben ( $z \pm \infty$ ), so kann ein analytischer Ausdruck für die marginale Rayleigh-Zahl gefunden werden (d.h. Wachstumsrate  $\chi = 0$ , Gleichung (A.9) im Anhang A)

$$R_c \propto -k^4. \quad (4.18)$$

Die analytische Herleitung dieser Proportionalität samt Proportionalitätsfaktor ist aufgrund der aufwändigen Rechnung in den Anhang A verschoben. Im Folgenden werden vertikal unendlich ausgedehnte Systeme als Welander-Systeme bezeichnet. Abb. 4.6 zeigt das  $R$ - $k$  Stabilitätsdiagramm für das vertikal beschränkte System (rote dicke Linie) und für das entsprechende Welander-System (rote dünne Linie, siehe Gleichung (4.18)) mit  $d = 1$ . Das System wird instabil bei Erreichen des kritischen Punktes. Die kritische Rayleigh-Zahl und die Wellenzahl ergeben sich numerisch zu  $R_c = -2946$  und  $k_c = 1.338$ . Erstaunlicherweise kann jede instabile  $k$ -Mode durch entsprechend starke Heizung wieder stabilisiert werden. Des Weiteren zeigt sich,

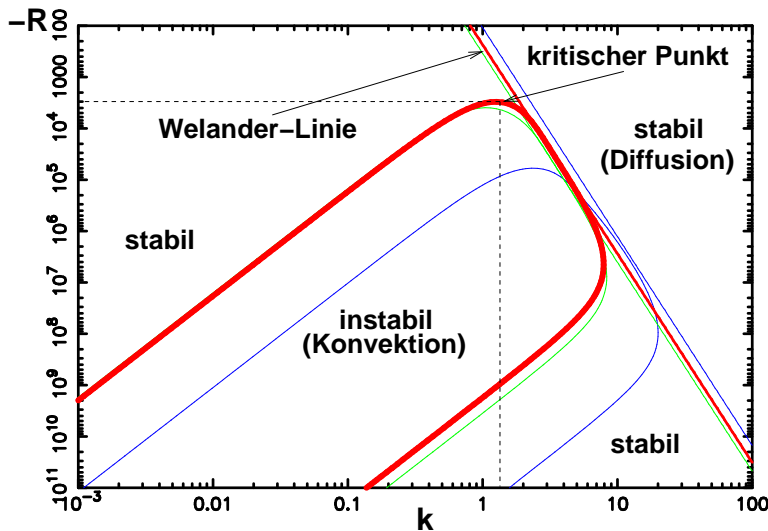


Abbildung 4.6: *Marginale Linien in  $R$ - $k$ -Darstellung für den vertikal beschränkten (dicke rote Linie) und den Welander Fall (dünne rote Linie) für  $d = 1$ . Zusätzlich sind die marginalen Linien für  $d = 1.5$  (grün) und  $d = 0.4$  (blau) eingezeichnet.*

dass für  $k > 6$  keine Mode mehr instabil werden kann. Ein Vergleich mit der Welander-Linie zeigt, dass dieses Abknicken der marginalen Linie (sowohl für große als auch kleine  $k$ ) durch Randeffekte zustande kommen muss.

Für  $d = 1.5$  und  $d = 0.4$  sind die marginalen Linien des vertikal beschränkten und des Welander-Systems in grün bzw. blau eingezeichnet. Es kann numerisch gezeigt werden, dass das hier verwendete Quecksilber-Wasser-System für  $d \approx 1$  den kleinsten Absolutbetrag der kritischen Rayleigh-Zahl  $R_c$  besitzt. Selbstverständlich gilt diese Aussage nicht bei Verwendung anderer Materialparameter.

#### 4.4.3 Nichtlineare Musterbildung

Als erste 3D Simulation soll die Musterbildung nahe der Schwelle untersucht werden. Dazu wird das linear untersuchte Quecksilber-Wasser-System mit  $d = 1$  unter Verwendung einer lateralen Auflösung von  $128 \times 128$  und

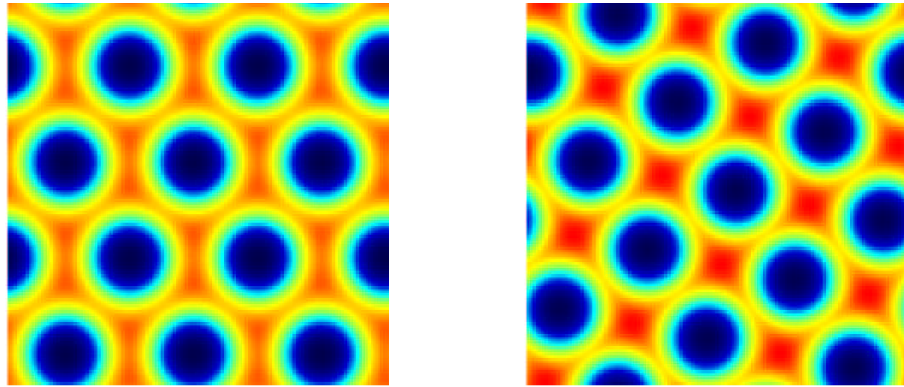


Abbildung 4.7: *Konturplot der Temperaturstörungen an der Grenzfläche für  $\varepsilon = 0.15$  (links,  $t = 15000$ ) und  $\varepsilon = 0.4$  (rechts,  $t = 2000$ ). Die Zeitdiskretisierung ist jeweils  $\Delta t = 0.1$ .*

einer vertikalen Diskretisierung von 20 Stützstellen pro Flüssigkeitsschicht numerisch integriert. Die numerische Methode ist im Anhang D.2 erläutert.

Abb. 4.7 zeigt das Feld der Temperaturstörungen an der Grenzfläche für  $\varepsilon = 0.15$  und  $\varepsilon = 0.4$ . Der stationäre Endzustand ist erreicht und das Aspektverhältnis beträgt  $\Gamma = 18.8$  (d.h. vier kritische Moden). Nahe an der Schwelle manifestieren sich hexagonale Muster (linkes Bild). Bei Vergrößerung des Kontrollparameters  $\varepsilon$  findet ein Übergang zu Quadraten als bevorzugtes Muster statt.

#### 4.4.3.1 Einfluss des stationären Temperaturprofils

Es soll als Abschluss der Untersuchungen zur Antikonvektion der Einfluss des Verhältnisses der Wärmeleitfähigkeiten  $\lambda$  auf den Musterbildungsprozess untersucht werden. Es wurde von NEPOMNYASHCHY & AL. [87, 89] gezeigt, dass jedes System eine antikonvektive Instabilität aufzeigen kann, falls Wärmequellen oder -senken an der Grenzfläche vorliegen (siehe oben). Diese Wärmequellen ändern das lineare, stationäre Temperaturprofil und damit den in den einzelnen Fluidschichten abfallenden Temperaturgradienten. Als erste Näherung werden deshalb keine Wärmequellen an der Grenzfläche verwendet, sondern das stationäre Temperaturprofil allein durch das

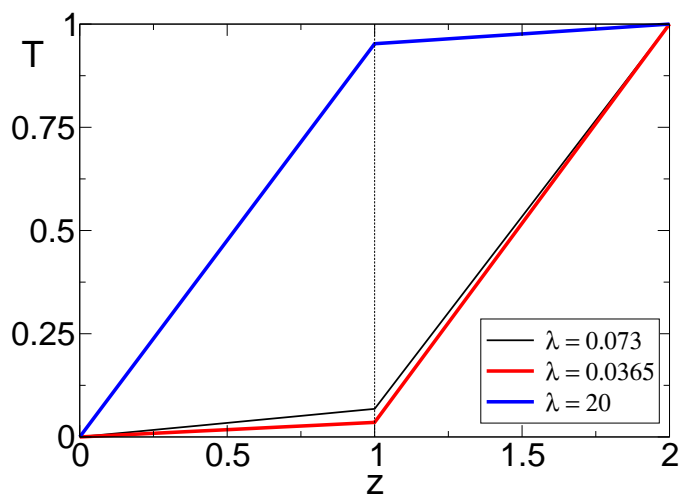


Abbildung 4.8: Lineare stationäre Temperaturprofile für  $\lambda = 0.0365$  (rot),  $\lambda = 20$  (blau) und für das reale Verhältnis des Quecksilber-Wasser-Systems  $\lambda = 0.073$  (schwarz). Die Grenzfläche ist bei  $z = 1$  und das Schichtdickenverhältnis beträgt  $d = 1$ .

Verhältnis der Wärmeleitfähigkeiten manipuliert (siehe Gleichungen (4.6)). Selbstverständlich entspricht dies keinem realen System, aber es soll hier nur das unterschiedliche Konvektionsverhalten aufgedeckt werden.

Abb. 4.8 zeigt das stationäre lineare Temperaturprofil für verschiedene Verhältnisse von  $\lambda$ . Es ist deutlich erkennbar, dass für  $\lambda > 1$  der Temperaturgradient im unteren Fluid größer als im oberen ist. Die Situation  $\lambda = 0.0365$  (rot) kann damit als Wärmesenke,  $\lambda = 20$  (blau) als Wärmequelle an der Grenzfläche interpretiert werden.

Abb. 4.9 zeigt die marginalen Linien im  $R$ - $k$ -Diagramm für verschiedene  $\lambda$ 's (vgl. mit Abb. 4.6). Es zeigt sich, dass für  $\lambda = 0.0365$  (rot) und  $\lambda = 20$  (blau) die Instabilitätsbereiche nahezu identisch sind. Zusätzlich ist noch die  $\lambda_{krit}$ -Linie eingezeichnet. Diese gibt den Verlauf der kritischen Rayleigh- und Wellenzahl in Abhängigkeit vom Verhältnis der Wärmeleitfähigkeiten  $\lambda$  an. Der kleinste Absolutbetrag der kritischen Rayleigh-Zahl wird bei dieser Parameterwahl für  $\lambda \approx 1$  erreicht. Eine Vergrößerung von  $\lambda$  führt zu kleineren kritischen Wellenzahlen  $k_c$  und größeren Absolutbeträgen der kritischen



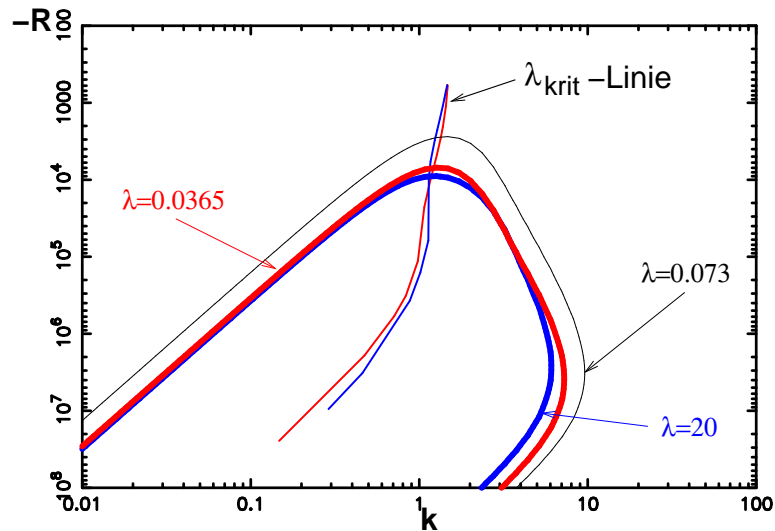


Abbildung 4.9: Marginale Linien in  $R$ - $k$ -Darstellung für  $d = 1$ .  $\lambda = 0.0365$  (rot),  $\lambda = 20$  (blau) und dem realen Verhältnis des Quecksilber-Wasser-Systems  $\lambda = 0.073$  (schwarz). Siehe Text für  $\lambda_{krit}$ -Linie.

Rayleigh-Zahlen  $R_c$  (blauer Ast der  $\lambda_{krit}$ -Linie). Eine Erniedrigung liefert den roten Ast. Für  $\lambda \ll 1$  oder  $\lambda \gg 1$  bleibt das System im wärmeleitenden Zustand.

Die Integration der vollen nichtlinearen Gleichungen liefert sowohl für  $\lambda = 0.0365$  als auch für  $\lambda = 20$  (mit  $\varepsilon = 0.3$ ) einen konvektiven, stationären Endzustand. Abb. 4.10 zeigt die 3D Temperaturverteilung in diesem Endzustand. Die dicken Pfeile geben die Richtung der vertikalen Geschwindigkeitskomponente an. Dabei ist die Korrelation der Temperatur- und vertikalen Geschwindigkeitsstörung in beiden Fällen gleich. Für  $\lambda = 0.0365$  ergeben sich Quadrate an der Grenzfläche. Die Temperaturstörungen sind im oberen Fluid um circa einen Faktor 10 größer als im unteren, wohingegen die vertikalen Geschwindigkeitsstörungen im oberen Fluid nur ein Zehntel des unteren betragen. Für  $\lambda = 20$  resultieren im stationären Endzustand Hexagone und die Temperaturstörungen sowie die vertikalen Geschwindigkeitsstörungen bewegen sich hier für beide Fluidschichten in der gleichen Größenordnung. Die Größenordnung der vertikalen Geschwindigkeitsstör-

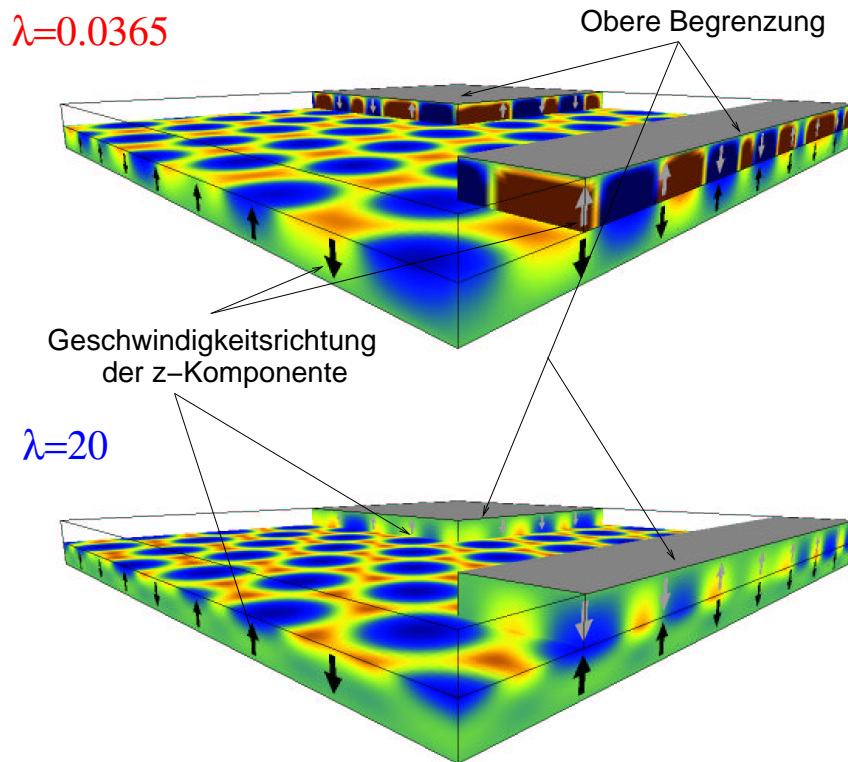


Abbildung 4.10: 3D-Plot des stationären Temperaturfeldes für  $\lambda = 0.0365$  ( $t = 7000$ ) und  $\lambda = 20$  ( $t = 11000$ ) mit einer Auflösung von  $128 \times 128 \times 20 \times 20$  und  $\varepsilon = 0.3$ .

ungen ist mit der geringen Konvektionsgeschwindigkeit des oberen Fluids für den Fall  $\lambda = 0.0365$  vergleichbar. Da es sich in beiden Fällen um Antikonvektion vom Typ 1 handelt, d.h. die obere Schicht dient als Wärmereservoir, ist schon anhand der linearen Resultate (Abb. 4.8) ersichtlich, dass der konvektive Transport unterschiedlich verlaufen muss. So wird mit Wärmesenken an der Grenzfläche ( $\lambda = 0.0365$ ) eine niedrige Konvektionsgeschwindigkeit im oberen Fluid erwartet, da das Wärmereservoir (oberes Fluid) durch seinen großen Temperaturgradienten sehr leicht Wärme „bereitstellen“ kann. Analog folgt eine hohe Konvektionsgeschwindigkeit im unteren Fluid. Wärmequellen ( $\lambda = 20$ ) erzeugen einen kleineren Temperaturgradienten im Wärmereservoir, was höhere Konvektionsgeschwindigkeiten zum

Wärmetransport im oberen Fluid nach sich zieht. Die nichtlinearen Ergebnisse zeigen jedoch, dass die Größenordnung der Konvektionsgeschwindigkeiten im oberen Fluid in beiden Fällen gleich ist und für  $\lambda = 0.0365$  (Wärmesenke) eine um den Faktor 10 größere Konvektionsgeschwindigkeit im unteren Fluid resultiert. Da diese hohen Geschwindigkeiten leicht zu ungeordnetem Konvektionsverhalten führen können (Übergang zur Turbulenz) und damit stationäre Muster schwerer beobachtbar sind, werden Wärmequellen für eine erste experimentelle Realisierung der Antikonvektion des Typs 1 vorgeschlagen. Das Auftreten von schwach turbulenten Mustern relativ nahe der Schwelle mit Wärmesenken an der Grenzfläche (z.B. Verdampfung) stimmt auch mit den Resultaten des folgenden Kapitels 5 überein.



## Kapitel 5

# Verdampfung und Konvektion

Angeregt durch Experimente von MANCINI und MAZA [74] werden im folgenden Kapitel drei Modelle zur Konvektion einer verdampfenden Flüssigkeit abgeleitet [35, 84]. Das obere Fluid wird dabei immer als Dampf des unteren Fluids betrachtet.

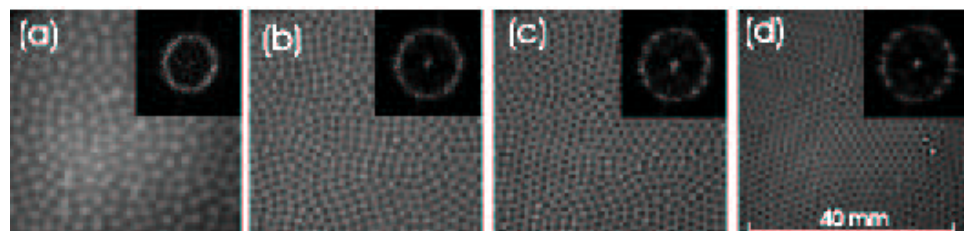


Abbildung 5.1: *Zeitserie eines Verdampfungsexperimentes mit Silikonöl (d.h. durch Verdampfung nimmt die mittlere Ölschichtdicke im Zeitverlauf ab) [74]. (a)  $d = 0.8$  mm (zeitabhängiges “turbulentes” Muster),  $d = 0.6$  mm (Quadrate),  $d = 0.5$  mm (Quadrat-Hexagon Bereich),  $d = 0.4$  mm (Hexagone). Im Bildausschnitt rechts oben sind die akkumulierten Leistungsspektren gezeigt. Mit freundlicher Genehmigung von H. MANCINI und D. MAZA.*

In den für diese Arbeit ausschlaggebenden Experimenten wurde ein han-

delsübliches, leicht flüchtiges, bei Raumtemperatur verdampfendes Silikonöl ( $Pr = 10$ ) in einer  $100\text{ mm}^2$  Schale ohne äußeren Temperaturgradienten vollständig verdampft. Während des gesamten Experiments wurden von Zeit zu Zeit Schnappschüsse der Temperaturverteilung an der Oberfläche aufgenommen. Die beobachteten Konvektionsmuster im Zeitverlauf mit abnehmender Öldicke (Abb. 5.1) zeigen zu Beginn ein turbulentes Verhalten. Diese geht zuerst in stationäre quadratische und schließlich zu hexagonalen Muster über. Der Zeitverlauf ist in guter qualitativer Übereinstimmung mit den numerischen 3D Rechnungen des einseitigen Modells 3 dieses Kapitels.

In diesen Experimenten wurde des Weiteren gezeigt, dass die Deformation der Grenzfläche nicht die primäre Ursache der Konvektionsinstabilitäten ist. Es wird deshalb im Folgenden wieder von einer nichtdeformierbaren Grenzfläche und damit einer kurzwelligen Instabilität ausgegangen. Es werden drei Modellierungen vorgestellt. Ausgehend von Modell 1 wird durch sukzessive Vereinfachung (über Modell 2) das einseitige Modell 3 (erweitertes „Pearson“-System) abgeleitet. In den Untersuchungen aller drei Modelle wird ein konstanter kleiner stationärer Massenfluss vorausgesetzt, der als experimentell zu bestimmender Parameter eingeht. Dieser erlaubt dann eine Behandlung des Systems als quasistationäres Problem. In Modell 1 wird eine phänomenologische Gleichung für den Massenfluss verwendet und sowohl die Flüssigkeits- als auch die Dampfschicht in die Berechnungen miteinbezogen. Wird nur die Energie zur Phasenumwandlung (latente Wärme) als Verdampfungseffekt betrachtet und der Massenfluss vernachlässigt, resultiert Modell 2. Die zusätzliche Vernachlässigung der Dampfschicht führt letztendlich zu Modell 3.

## 5.1 Modell 1: Einbeziehung des Massenflusses

Wird ein Massenfluss (oder Verdampfungsrate) an der Grenzfläche explizit berücksichtigt, so wird eine Nichtgleichgewichtsrelation für diesen Massenfluss benötigt. Dieser wird phänomenologisch in der irreversiblen Thermo-

dynamik [40] durch

$$J = K(T) (\hat{\mu}_1(P_S(T)) - \hat{\mu}_2(P_S(T))) \quad (5.1)$$

angesetzt mit  $P_S(T)$  als Sättigungdampfdruck bei der Temperatur  $T$ . Dabei sind  $\hat{\mu}_k$  die chemischen Potentiale der Flüssigkeit und des Dampfes, und  $K(T)$  ( $[kg\ s/m^4]$ ) ist eine experimentell zu bestimmende temperaturabhängige Funktion. Findet keine Verdampfung statt, ist das System im thermischen Gleichgewicht mit  $\hat{\mu}_1 = \hat{\mu}_2$ . Linearisierung um das thermodynamische Gleichgewicht liefert [35]

$$J = K(T) \left( \frac{P_S(T) - P_2}{\rho_2} - \frac{P_S(T) - P_1}{\rho_1} \right), \quad (5.2)$$

wobei  $P_1$  und  $P_2$  die Drücke in der Flüssigkeit und im Gas an der Grenzfläche sind.

Diese Relation spiegelt die phänomenologische ad hoc eingeführte Hertz-Knudson-Relation [57] wider

$$J = \beta \sqrt{\frac{\mathcal{M}}{2\pi\mathcal{R}_M T}} (P_S(T) - P_2) \quad (5.3)$$

und erlaubt eine grobe Abschätzung des Koeffizienten  $K(T)$  in (5.2) zu

$$K(T) = \beta \rho_2 \sqrt{\frac{\mathcal{M}}{2\pi\mathcal{R}_M T}} \quad \text{mit} \quad \rho_2/\rho_1 \ll 1, \quad (5.4)$$

der neben der universellen Gaskonstanten  $\mathcal{R}_M$  und der molaren Masse  $\mathcal{M}$  auch einen experimentell zu bestimmenden Anpassungskoeffizient  $\beta$  ( $0 < \beta < 1$ ) enthält [41, 57], was uns eine gewisse Freiheit in der Wahl von  $K(T)$  lässt.

Im Weiteren wird für (5.2) die Bezeichnung Hertz-Knudson-Relation verwendet und  $K(T)$  als temperaturunabhängig bei der stationären Grenzflächentemperatur  $T_I^0$  angenommen ( $K(T) = K(T_I^0)$ ). Keine Verdampfung liegt vor für  $K \rightarrow 0$ . Für  $K \rightarrow \infty$  (aber mit endlichem Massenfluss) ist das System im thermodynamischen Gleichgewicht ( $|\hat{\mu}_1 - \hat{\mu}_2| \ll 1$ ).

Der Massenfluss  $J$  wird durch die Transformation

$$J \rightarrow \rho_1 \nu_1 / d_1 \tilde{J} \quad (5.5)$$

auf dimensionslose Form gebracht und im Folgenden werden nur dimensionslose Größen betrachtet (Skalierung der Feldgrößen analog zu (4.4) und Tilden wieder weglassen, wenn es eindeutig ist).

Die Anschlussbedingungen an der Grenzfläche (3.3) reduzieren sich für eine nichtdeformierbare Grenzfläche auf die dimensionslose Form

$$Pr \tilde{J} = V_{1z} = \rho V_{2z} \quad (5.6a)$$

$$V_{1x,y} = V_{2x,y} \quad (5.6b)$$

$$(\partial_z^2 - \Delta_2)V_{1z} - \rho\nu(\partial_z^2 - \Delta_2)V_{2z} = M\Delta_2 T \quad (5.6c)$$

$$T_1 = T_2 \quad (5.6d)$$

$$\underbrace{\tilde{U} \frac{1}{2} \tilde{J}^3 Pr^2 \left( \frac{1}{\rho^2} - 1 \right) + \tilde{L} \tilde{J} + \partial_z T_1}_Q = \lambda \partial_z T_2 \quad (5.6e)$$

mit der gleichen Definition der Marangoni-Zahl wie in (4.12) und  $\tilde{U} = \frac{\rho_1 \nu_1 \kappa_1^2}{\lambda_1 d_1^2 \Delta T}$  was im Folgenden vernachlässigt wird. D.h. die Umwandlung von kinetischer Energie in Wärme wird nicht berücksichtigt. Es sei bemerkt, dass an dieses System keine äußere Temperaturdifferenz angelegt werden muss (aber kann). Die Definition von  $\Delta T$  in  $\tilde{U}$  und der Marangoni-Zahl  $M$  wird im Folgenden klar.

Die Hertz-Knudson-Relation transformiert sich dann auf

$$\tilde{J} = \tilde{K} (p_S(T) - p_2 + p_1). \quad (5.7a)$$

Unter Verwendung der normalen Impulsgrenzflächenbedingung (bei Vernachlässigung von Dampfdruckstoßeffecten (vapor-recoil))

$$\rho p_2 - p_1 + Pr \tilde{J}^2 / \rho = 0 \quad (5.7b)$$

und einer Entwicklung des Sättigungsdrucks bis zur ersten Ordnung mithilfe der Clausius-Claperyon-Gleichung [68] (dimensionsbehaftet:  $\partial P_S / \partial T = \rho_1 \rho_2 L / ((\rho_1 - \rho_2) T)$ )

$$p_S(T) = p_S(T_I^0) + \frac{\lambda_1 d_1^2 (\Delta T)^2}{\nu_1^2 \kappa_1 (\rho_1 - \rho_2) T_I^0} \tilde{L} (T - T_I^0) \quad (5.7c)$$



liefert schließlich für (5.7a)

$$\tilde{J} = \tilde{K} \left( p_S(T_I^0) + \tilde{C}\tilde{L}(T - T_I^0) - p_2 + Pr \tilde{J}^2/\rho \right). \quad (5.8)$$

Dabei ist in den Gleichungen (5.7) berücksichtigt, dass die Dichte in der Flüssigkeit um ca. drei Größenordnungen größer als die Dampfdichte ( $\rho \approx 10^{-3}$ ) ist, und die entsprechenden Terme sind vernachlässigt. Der Sättigungsdampfdruck wurde mit der Dichte des Dampfes ( $\rho_2$ ) skaliert.

Als zusätzliche dimensionslose Parameter ergeben sich dann

$$\tilde{L} = \frac{\rho_1 \nu_1}{\lambda_1 \Delta T} L \quad (5.9a)$$

$$\tilde{K} = \frac{\kappa_1}{\rho_1 d_1} K(T_I^0) = \frac{\gamma \Delta T}{\rho_1^2 \nu_1} K(T_I^0) \frac{1}{M} \quad (5.9b)$$

$$\tilde{C} = \frac{\lambda_1 d_1^2 (\Delta T)^2}{\nu_1^2 \kappa_1 (\rho_1 - \rho_2) T_I^0} = \frac{\lambda_1 \rho_1^2 \kappa_1}{\gamma^2 (\rho_1 - \rho_2) T_I^0} M^2 \quad (5.9c)$$

$$\tilde{J} = \frac{d_1}{\rho_1 \nu_1} J = \frac{\kappa_1}{\gamma \Delta T} J M. \quad (5.9d)$$

In diesen vier Parametern (5.9) ist die reale Schichtdicke  $d_1$  durch die Marangoni-Zahl  $M$  eliminiert. Damit ist die Marangoni-Zahl wieder der Kontrollparameter, der aber hier nur die reale Schichtdicke  $d_1$  des unteren Fluids festlegt (und nicht die Temperaturdifferenz). Die Tilden dieser dimensionslosen Größen werden beibehalten, um spätere Verwechslungen mit den realen Größen zu vermeiden.

### 5.1.1 Stationäres Temperaturprofil

Im stationären Zustand findet nun auch ein Massenfluss an der Grenzfläche statt. Das bedeutet, dass im Referenzzustand eine konstante  $z$ -Komponente der Geschwindigkeit in der Flüssigkeit ( $V_1^0$ ) als auch im Gas ( $V_2^0$ ) zu nehmen ist [85]. Damit folgt für die stationären dimensionslosen Temperaturgleichungen aus (3.1)

$$V_1^0 \partial_z T_1 = \partial_z^2 T_1 \quad (5.10a)$$

$$V_2^0 \partial_z T_2 = \kappa \partial_z^2 T_2 \quad (5.10b)$$

und es resultieren im Gegensatz zum vorherigen Kapitel nichtlineare dimensionslose stationäre Temperaturprofile in  $z$ -Richtung:

$$T_1^0(z) = \frac{\lambda V_2^0 (T_u - T_o) - Q^0 \kappa (1 - \exp(V_2^0 d / \kappa))}{N} \exp(V_1^0 z) + \frac{T_u \exp(V_1^0) (V_1^0 \kappa - V_1^0 \kappa \exp(V_2^0 d / \kappa) - V_2^0 \lambda) + T_o \lambda V_2^0}{N} + \frac{Q^0 \kappa (1 - \exp(V_2^0 d / \kappa))}{N} \quad (5.11a)$$

$$T_2^0(z) = \frac{\kappa V_1^0 \exp(V_1^0) (T_u - T_o) + Q^0 \kappa (1 - \exp(V_1^0))}{N} \times \exp(V_2^0 / \kappa (z - 1)) - \frac{T_u V_1^0 \kappa \exp(V_1^0) \exp(V_2^0 d / \kappa)}{N} + \frac{T_o (\lambda V_2^0 + \kappa V_1^0 \exp(V_1^0) - \lambda V_2^0 \exp(V_1^0))}{N} - \frac{Q^0 \kappa \exp(V_2^0 d / \kappa) (1 - \exp(V_1^0))}{N} \quad (5.11b)$$

mit

$$N = \lambda V_2^0 (1 - \exp(V_1^0)) + \kappa V_1^0 \exp(V_1^0) (1 - \exp(V_2^0 d / \kappa))$$

und  $Q^0$  als  $Q$  aus (5.6e) für den stationären Zustand. Die Grenzwertbildung  $V_1^0 \rightarrow 0$  und  $V_2^0 \rightarrow 0$  mit  $Q^0 = 0$  ergibt wieder die linearen Temperaturprofile aus (4.7). In analoger Weise können auch die stationären Druckprofile berechnet werden.

In Abb. 5.2 ist das stationäre Temperaturprofil für Wasser (Parametersatz 3 in Anhang E.2) mit einer unteren Schichtdicke von  $d_1 = 5 \text{ mm}$  und einer von außen angelegten Temperaturdifferenz dargestellt. Die stationären vertikalen Geschwindigkeiten sind durch die Grenzflächenbedingung (5.6a) in  $J$  ausgedrückt. Für  $Q^0$  wurde nur der Term der latenten Wärme mitgenommen (siehe (5.6e)), da diese für kleine stationäre Massenflüsse die bestimmende Größe ist. Es können somit vier Fälle unterschieden werden:

- a) Ohne Verdampfung:  $Q^0 = \tilde{J} = 0$  (blau in Abb. 5.2). Das ergibt die gleiche Situation wie im vorherigen Kapitel.

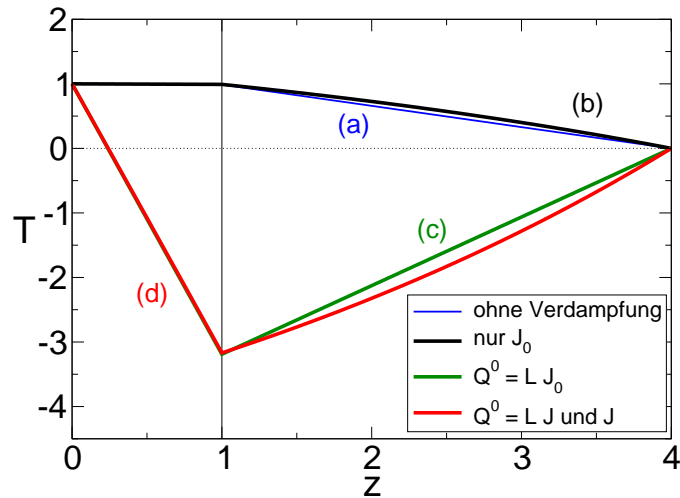


Abbildung 5.2: Dimensionslose stationäre Temperaturprofile für  $d = 3$  mit Massenfluss und Verdampfung (rot), mit Massenfluss ohne Verdampfung ( $J_0 \neq 0$ , schwarz), ohne Massenfluss mit latenter Wärme (grün) und ohne Verdampfung und Massenfluss (blau, vgl. vorheriges Kapitel).

- b) Ohne latente Wärme  $Q^0 = 0$ , aber mit Massenfluss  $\tilde{J} \neq 0$  (schwarz). Dies führt für nicht zu starke Massenflüsse zu einem leicht nichtlinearen Temperaturprofil in  $z$ -Richtung. Wird kein zusätzlicher äußerer Temperaturgradient angelegt, ist das Temperaturprofil konstant in  $z$ .
- c) Mit latenter Wärme  $Q^0 \neq 0$ , aber ohne Massenfluss in Gleichungen (5.10) (grün). Deutlich sichtbar ist die Temperatursenke an der Grenzfläche. Der Temperaturverlauf ist linear. Dies wird in Modell 2 und 3 verwendet.
- d) Mit latenter Wärme und Massenfluss (rot). Der nichtlineare Verlauf ist deutlich in der Gasphase zu sehen. Dies ist das stationäre Temperaturprofil für Modell 1.

Die Punkte c) und d) zeigen, dass ohne äußeren Temperaturgradienten die latente Wärme allein einen Temperaturgradient in der Flüssigkeit verursacht und somit die Möglichkeit einer konvektiven Instabilität erlaubt.

### 5.1.2 Numerische Resultate

Aus Gründen der Übersicht wird auf den Einfluss der Gravitation verzichtet. Die erhaltenen Ergebnisse sind dann nur auf nicht zu große Schichtdicken anwendbar. D.h. die dynamische Bond Zahl  $Bo = \frac{R}{M}$  muss kleiner als 1 sein. Alle weiteren Rechnungen dieses Unterkapitels werden in zwei Dimensionen durchgeführt. Die Definition der skalaren (gestörten) Stromfunktion [67]

$$\begin{pmatrix} u_{k_x} \\ u_{k_z} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\partial_z \Psi \\ \partial_x \Psi \end{pmatrix} \quad (5.12)$$

garantiert die Divergenzfreiheit der Geschwindigkeiten. Der Massenfluss wird wieder in eine Summe aus stationärem und gestörtem Fluss zerlegt

$$J = \tilde{J}_0 + j.$$

Damit werden die Fluidgleichungen für die Störungen vereinfacht zu

$$\partial_t \Delta \Psi_1 + \frac{\partial \Psi_1}{\partial x} \frac{\partial \Delta \Psi_1}{\partial z} - \frac{\partial \Psi_1}{\partial z} \frac{\partial \Delta \Psi_1}{\partial x} + Pr \tilde{J}_0 (\partial_x^2 \partial_z + \partial_z^3) \Psi_1 = Pr \Delta^2 \Psi_1 \quad (5.13a)$$

$$\partial_t \theta_1 + \frac{\partial \Psi_1}{\partial x} \frac{\partial \theta_1}{\partial z} - \frac{\partial \Psi_1}{\partial z} \frac{\partial \theta_1}{\partial x} + Pr \tilde{J}_0 \partial_z \theta_1 + \partial_x \Psi_1 \partial_z T_1^0 = \Delta \theta_1 \quad (5.13b)$$

$$\partial_t \Delta \Psi_2 + \frac{\partial \Psi_2}{\partial x} \frac{\partial \Delta \Psi_2}{\partial z} - \frac{\partial \Psi_2}{\partial z} \frac{\partial \Delta \Psi_2}{\partial x} + \frac{Pr}{\rho} \tilde{J}_0 (\partial_x^2 \partial_z + \partial_z^3) \Psi_2 = \nu Pr \Delta^2 \Psi_2 \quad (5.13c)$$

$$\partial_t \theta_2 + \frac{\partial \Psi_2}{\partial x} \frac{\partial \theta_2}{\partial z} - \frac{\partial \Psi_2}{\partial z} \frac{\partial \theta_2}{\partial x} + \frac{Pr}{\rho} \tilde{J}_0 \partial_z \theta_2 + \partial_x \Psi_2 \partial_z T_2^0 = \kappa \Delta \theta_2. \quad (5.13d)$$

Die zwei letzten Summanden auf der linken Seite aller vier Gleichungen kommen durch den stationären Massenfluss zustande und stellen somit die Erweiterung der bekannten Evolutionsgleichungen [11, 80] der Fluidvolumina für Konvektion durch Verdampfung dar [81]. Die Randbedingungen werden transformiert auf

$$\text{unten } (z = 0) : \quad \Psi_1 = 0, \quad \theta_1 = 0, \quad \partial_z \Psi_1 = 0 \quad (5.13e)$$

$$\text{oben } (z = 1 + d) : \quad \Psi_2 = 0, \quad \theta_2 = 0, \quad \partial_z \Psi_2 = 0 \quad (5.13f)$$

und die Anschlussbedingungen an der Grenzfläche ergeben sich zu

$$Pr j = \partial_x \Psi_1 = \rho \partial_x \Psi_2 \quad (5.13g)$$

$$\partial_z \Psi_1 = \partial_z \Psi_2 \quad (5.13h)$$

$$(\partial_z^2 - \partial_x^2) \Psi_1 - \rho \nu (\partial_z^2 - \partial_x^2) \Psi_2 = M \partial_x \theta \quad (5.13i)$$

$$\theta_1 = \theta_2 \quad (5.13j)$$

$$\tilde{L} j + \partial_z \theta_1 = \lambda \partial_z \theta_2 \quad (5.13k)$$

$$\tilde{K} \left( \tilde{C} \tilde{L} \theta - p_2 + Pr(2\tilde{J}_0 + j)j/\rho \right) = j, \quad (5.13l)$$

wobei der Sättigungsdruck  $p_S(T_I)$  nicht mehr auftaucht.

### 5.1.2.1 Lineare Stabilität

In der gestörten Hertz-Knudson-Relation (5.13l) ist noch der gestörte Druck  $p_2$  des oberen Fluids an der Grenzfläche enthalten. Dieser muss numerisch aus den Geschwindigkeitsfeldern berechnet werden. Durch Divergenzbildung der ursprünglichen zweidimensionalen Navier-Stokes-Gleichungen in der Gasphase erhält man eine Poissongleichung für den Druck. Diese wird numerisch gelöst.

Im Folgenden wird nur der Fall ohne äußere Temperaturdifferenz betrachtet (d.h.  $T_u = T_0 = T_e$ ). Die latente Wärme  $L$  ist damit allein für einen Temperaturabfall oder -anstieg an der Grenzfläche verantwortlich und erzeugt eine Temperaturdifferenz in beiden Fluidschichten. Im unteren Fluid ergibt sich die real messbare Temperaturdifferenz zu

$$(\Delta T)_1 = \frac{-L \rho_2 \kappa_2 \left( \exp \frac{J_0(2+d)d_1}{\rho_2 \kappa_2} - \exp \frac{J_0 d_1}{\rho_2 \kappa_2} \right)}{N_1} \left( \exp \frac{J_0 d_1}{\rho_1 \kappa_1} - 1 \right) \quad (5.14)$$

$$\text{mit } N_1 = \lambda_1 \kappa \rho \left( \exp \frac{J_0(\rho \kappa + 2 + d)d_1}{\rho_2 \kappa_2} - \exp \frac{J_0(1 + \rho \kappa)d_1}{\rho_2 \kappa_2} \right) + \lambda_2 \left( \exp \frac{J_0(1 + \rho \kappa)d_1}{\rho_2 \kappa_2} - \exp \frac{J_0 d_1}{\rho_2 \kappa_2} \right),$$

was das dimensionsbehaftete Gegenstück zur dimensionslosen Form  $(\Delta T)_1 = T_1^0(1) - T_1^0(0)$  mit  $T_u = T_o$  aus (5.11a) ist.  $(\Delta T)_1$  hängt also von der latenten Wärme  $L$  und dem stationären Massenfluss  $J_0$  ab.

Werden nun die Gleichungen des Systems (5.13) auf  $(\Delta T)_1$  skaliert, so muss nur  $\Delta T$  durch  $(\Delta T)_1$  ersetzt werden. Die vier zusätzlichen Parameter der Verdampfung (siehe (5.9)) können in Abhängigkeit der Marangoni-Zahl angegeben werden, um die untere Schichtdicke  $d_1$  aus ihnen zu eliminieren.

Dies ergibt bei Vorgabe von

$$\tilde{J}_0 = \frac{d_1}{\rho_1 \nu_1} J_0 \quad \text{und} \quad M = \frac{\gamma (\Delta T)_1 d_1}{\rho_1 \nu_1 \kappa_1} \quad (5.15)$$

drei Koeffizienten

$$A_K = \frac{\gamma}{\rho_1 \lambda_1} K(T_I) L, \quad (5.16a)$$

$$A_C = \frac{\lambda_1 \rho_1^2 \kappa_1}{\gamma^2 (\rho_1 - \rho_2) T_I^0}, \quad (5.16b)$$

$$A_J = \frac{\lambda_1 \kappa_1}{\gamma \rho_1 \nu_1} \frac{J_0}{L}, \quad (5.16c)$$

aus denen sich die restlichen drei verbleibenden Parameter aus (5.9) zu

$$\tilde{L} = \frac{\tilde{J}_0}{A_J M}, \quad \tilde{K} = \frac{A_K}{\tilde{L} M}, \quad \tilde{C} = A_C M^2 \quad (5.17)$$

berechnen lassen.

Als Letztes bleibt die Bestimmungsgleichung für den dimensionslosen stationären Massenfluss  $\tilde{J}_0$ , da dieser eine Funktion der Schichtdicke  $d_1$  oder der Marangoni-Zahl  $M$  ist. Dazu wird  $\tilde{L}$  durch (5.17) ausgedrückt und mit der Forderung  $T_1^0(1) - T_1^0(0) = 1$  (aus (5.11a)) folgt dann (unter Verwendung der Grenzflächenbedingung (5.6a))

$$1 + \frac{Pr A_J M}{\tilde{J}_0} \left( \frac{\lambda \exp\left(\frac{Pr \tilde{J}_0}{\rho \kappa}\right)}{\kappa \rho \left( \exp\left(\frac{Pr \tilde{J}_0}{\rho \kappa}\right) - \exp\left(\frac{Pr(1+d)\tilde{J}_0}{\rho \kappa}\right) \right)} + \frac{\exp(Pr \tilde{J}_0)}{1 - \exp(Pr \tilde{J}_0)} \right) = 0. \quad (5.18)$$

Bei gegebener Marangoni-Zahl kann aus dieser transzendenten Gleichung der Massenfluss  $\tilde{J}_0$  numerisch berechnet werden.

Die Marangoni-Zahl ist wie im vorherigen Kapitel der Kontrollparameter, aber die Temperaturdifferenz ist eine intrinsische Größe des Systems. D.h.

bei der kritischen Marangoni-Zahl  $M_c$  wird aus (5.18)  $\tilde{J}_0$  berechnet. Es folgt dann aus (5.15) die kritische Dicke des unteren Fluids

$$d_{1c} = \rho_1 \nu_1 \frac{\tilde{J}_0}{J_0}. \quad (5.19)$$

Entsprechend kann die messbare stationäre Temperaturdifferenz mit (5.18) berechnet werden. Selbstverständlich kann  $(\Delta T)_1$  auch mit Gleichung (5.14) bestimmt werden, und daraus resultiert dann die kritische untere Schichtdicke.

Unter Annahme eines realistischen Massenflusses ergibt die lineare Stabilitätsanalyse die kritische Marangoni-Zahl (und die kritische Dicke der unteren Schicht). Abb. 5.3 zeigt für das Wassersystem aus Anhang E.2 (Parametersatz 3) die realisierte Dicke  $d_1$  in  $mm$  bei gegebenem Massenfluss  $J_0$  in Abhängigkeit der Marangoni-Zahl  $M$  (linkes Bild). Es sei nochmals explizit bemerkt, dass das linke Bild *kein* Stabilitätsdiagramm, sondern einfach den Zusammenhang von  $M$  und  $d_1$  bei gegebenem Massenfluss darstellt. Offensichtlich bewirkt eine größere Schichtdicke  $d_1$  eine Vergrößerung

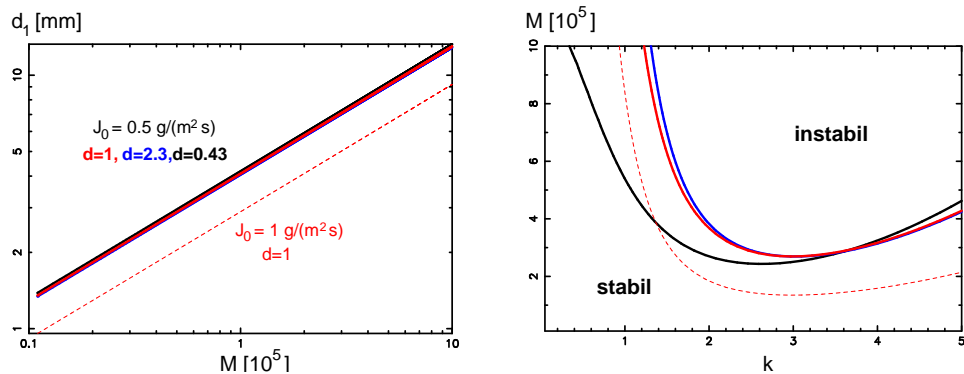


Abbildung 5.3: Wasser: Durch die Vorgabe eines realen stationären Massenflusses  $J_0$  ist die reale untere Schichtdicke  $d_1$  eindeutig durch  $M$  bestimmt (linkes Bild). Marginale Linien im Stabilitätsdiagramm  $M$ - $k$  für verschiedene Schichtdickenverhältnisse  $d$  und Massenflüsse (rechtes Bild).

der Marangoni-Zahl  $M_c$  (linkes Bild). Aufgrund Gleichung (5.18) ist dieser Zusammenhang nichtlinear und weitgehend unabhängig vom Schichtdickenverhältnis  $d = d_2/d_1$  (blaue und schwarze Linie). Wird ein größerer

Massenfluss vorgegeben, so resultiert eine kleinere Schichtdicke bei gleicher Marangoni-Zahl. Das rechte Bild zeigt das lineare Stabilitätsdiagramm in  $M$ - $k$ -Darstellung. Hier zeigt sich, dass das Schichtdickenverhältnis  $d$  sowohl die kritische Marangoni-Zahl  $M_c$  (und damit auch das reale  $d_1$ ) als auch die kritische Wellenzahl  $k_c$  beeinflusst. Eine größere stationäre Verdampfungsrate  $J_0$  erniedrigt  $M_c$  und  $k_c$ . Abb. 5.4 zeigt dieselbe Rechnung für

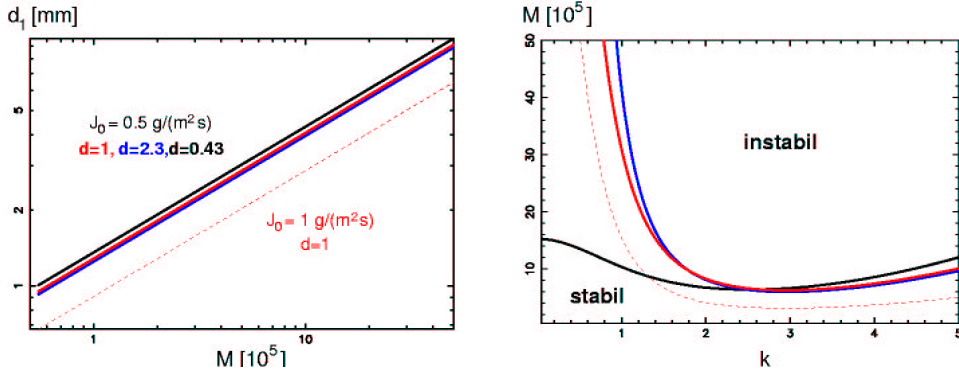


Abbildung 5.4: Dieselbe Darstellung wie in Abb. 5.3 für Ethanol.

ein Ethanolssystem (Parametersatz 4) und die Interpretation der Resultate ändert sich im Vergleich zum Wassersystem nicht.

Für den Vergleich mit den nächsten beiden Modellen wird noch die effektive Biot-Zahl  $Bi_{eff}^{(1)}$  des Modells 1 definiert. Es hat sich numerisch gezeigt, dass der Temperaturterm in der Massenflussgleichung (5.13l) den wesentlichen Beitrag liefert, so dass  $j \approx \tilde{K}\tilde{C}\tilde{L}\theta$ . Damit kann dann eine effektive Biot-Zahl definiert werden

$$Bi_{eff}^{(Ver)} = \tilde{K}\tilde{C}\tilde{L}^2, \quad (5.20)$$

die Werte in der Größenordnung  $Bi_{eff}^{(Ver)} \approx 10^4$  für die hier untersuchten Wasser- und Ethanolssysteme hat (siehe Bildunterschriften im nächsten Unterkapitel). Dass es sich dabei um eine Biot-Zahl handelt, wird ersichtlich, wenn der Term  $\partial_z \theta_2$  in der Grenzflächenbedingung für den Wärmefluss (5.13k) vernachlässigt wird, und sich die Grenzflächenbedingung somit auf die bekannte Randbedingung der Einschichtnäherung reduziert:

$$\partial_z \theta_1 \approx -Bi_{eff}^{(Ver)} \theta_1 \quad (5.21)$$



## 5.1.2.2 Nichtlineare 2D-Integration

Die Ergebnisse der vollen nichtlinearen Integration des 2D-Systems (5.13) werden hier anhand der im letzten Abschnitt erhaltenen linearen Resultate exemplarisch gezeigt. Dabei wird eine Auflösung von 128 Gitterpunkten in lateraler Richtung verwendet. Der vertikale Stützstellenabstand wird so gewählt, dass die Gitterabstände in der Flüssigkeit und im Gas gleich sind (aber mindestens 20 Punkte pro Schicht). Für die verwendete Numerik sei auf die Referenzen im Anhang D.1 verwiesen.

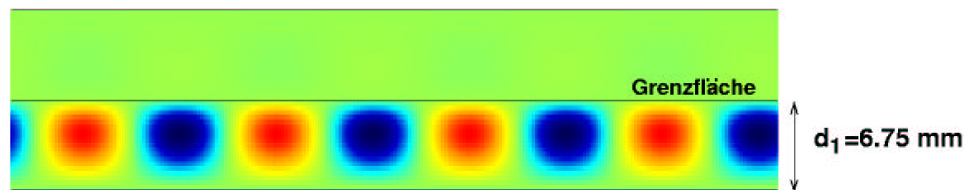


Abbildung 5.5: Stationäres Temperaturfeld nach  $t = 100$  für Wasser mit  $\varepsilon = 0.01$ ,  $\Delta t = 0.01$ ,  $J = 0.5 \text{ g}/(\text{m}^2 \text{ s})$ ,  $d = 1$  ( $Bi_{eff}^{(Ver)} = 1.7 \cdot 10^4$ ) und einem Aspektverhältnis von  $\Gamma = 8.4$  (vgl. dicke rote Linie der linearen Stabilitätsanalyse in Abb. 5.3).

Abb. 5.5 zeigt das stationäre Temperaturfeld eines Wasser-Wasserdampf-Systems, das sich nahe der Schwelle einstellt ( $\varepsilon = 0.01$ ). Die nichtlineare Entwicklung wird von der linearen kritischen Wellenzahl  $k_c$  bestimmt. Konvektion findet in der Flüssigkeit statt. Die Simulationen für andere Schichtdickenverhältnisse geben keine neuen Aufschlüsse und liefern ähnliche Konvektionsbilder wie Abb. 5.5.

Wird nun der Kontrollparameter vergrößert ( $\varepsilon = 1$ ), so bestimmt die lineare Mode nur den Beginn der Entwicklung (Abb. 5.6 bis  $t \approx 0.3$ ). Nachdem sich die Konvektionsrollen mit der linearen Wellenlänge ausgebildet haben, wird im weiteren Zeitverlauf eine größere Wellenlänge in der nichtlinearen Domäne selektiert, die schließlich auch den stationären Endzustand bestimmt.

Für Ethanol ergibt sich eine um einen Faktor 20 größere Konstante  $A_K$  (siehe Gleichung (5.16): Wasser:  $A_K \approx 0.06$ , Ethanol:  $A_K \approx 1.22$ ). Die

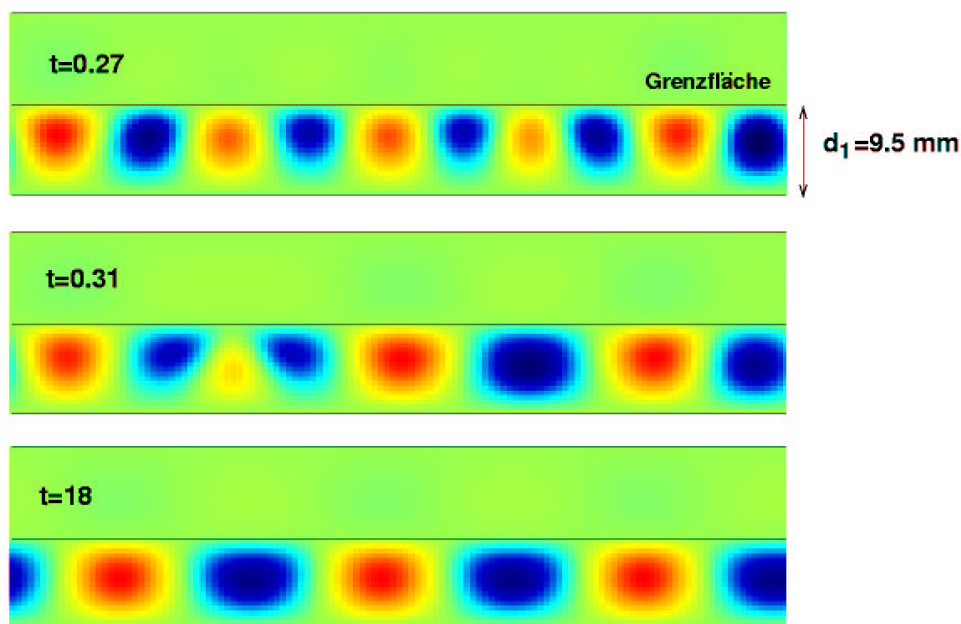


Abbildung 5.6: Temperaturfeld für Wasser mit  $\varepsilon = 1$ ,  $\Delta t = 10^{-5}$  ( $Bi_{eff}^{(Ver)} = 1.7 \cdot 10^4$ ) und einem Aspektverhältnis  $\Gamma = 8.4$ .

anderen Verdampfungsparameter haben die gleiche Größenordnung wie im Wassersystem. Das hat empfindliche Folgen für die nichtlineare Zeitentwicklung. Abb. 5.7 zeigt die Entwicklung für ein Ethanolssystem nahe der Schwelle ( $\varepsilon = 0.01$ ). Die nichtlineare Selektion einer größeren Wellenlänge ist deutlich sichtbar und bestimmt den stationären Endzustand ( $t = 22$ ). Numerische Testläufe mit kleineren, unrealistischen  $A_k$  haben ein deutlich größeres  $\varepsilon$  erfordert, um diese nichtlineare Modenselektion zu erhalten. Das bedeutet, dass die Hertz-Knudson-Relation wesentlich das Konvektionsverhalten am Übergang beeinflussen kann.

Ein zur Diskussion stehender Punkt ist, ob die Kontinuität der Temperaturen über die Grenzfläche hinweg (Grenzflächenbedingung in (3.3e)) mit Verdampfung noch gültig ist. Erste Messungen im Jahr 1990 von SHANKAR und DESHPANDE [122] zeigten die Möglichkeit eines „Temperatursprungs“ an der Grenzfläche. FANG und WARD [45] haben quantitativ in Verdampfungsexperimenten mit entgasten Kohlenwasserstoffen (Methan, Octan, Methyl-

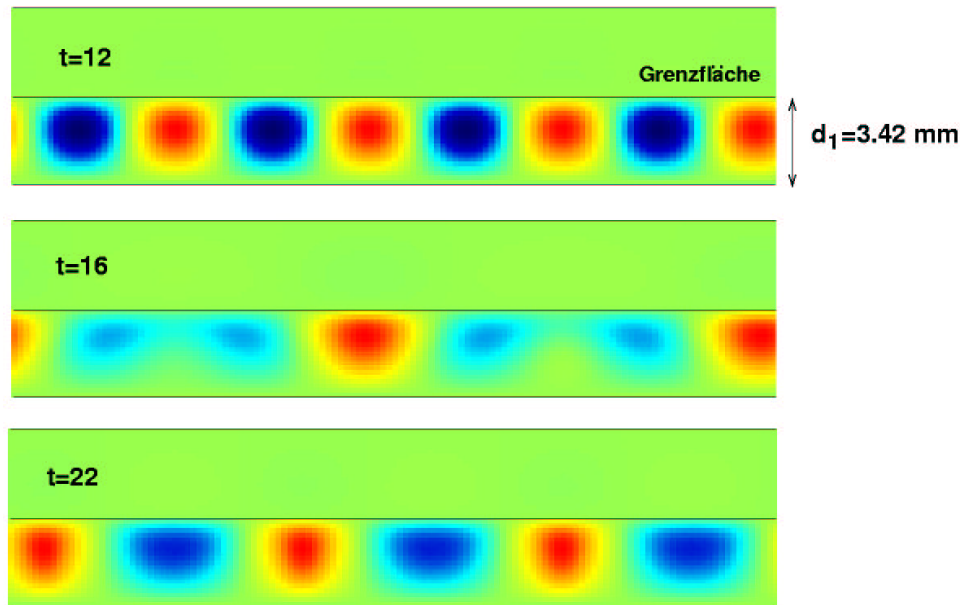


Abbildung 5.7: Temperaturfeld für Ethanol mit  $\varepsilon = 0.01$ ,  $\Delta t = 10^{-5}$ ,  $d = 1$   $J = 0.5 \text{ g}/(\text{m}^2 \text{ s})$  ( $Bi_{eff}^{(Ver)} = 3.7 \cdot 10^4$ ) und einem Aspektverhältnis  $\Gamma = 8.5$ .

cyclohexan) gezeigt, dass der Temperaturgradient an der Grenzfläche extrem groß werden kann. Der maximal mit einem Thermoelement gemessene Temperaturgradient betrug  $280 \text{ K}/\text{mm}$  in einem Methylcyclohexansystem (gemessen wurden  $7 \text{ K}$  auf  $25 \mu\text{m}$ ). Eine Erklärung dieses „Temperatursprungs“ wurde im Rahmen einer Theorie von quantenstatistischen Übergangswahrscheinlichkeiten gegeben [44, 136, 137]. Aus obigen Simulationen lassen sich die Temperaturdifferenzen zwischen Flüssigkeit und Dampf wieder auf dimensionsbehaftete Größen zurückrechnen. Der Temperaturgradient an der Grenzfläche ist im Allgemeinen extrem groß. Eine Simulation des Wassersystems mit  $d = 0.5$ ,  $J = 1 \text{ g}/(\text{m}^2 \text{ s})$  und  $\varepsilon = 0.5$  mit extrem hoher vertikaler Auflösung ( $(\Delta z)_1 = (\Delta z)_2 = 35 \mu\text{m}$ ) ergab einen maximalen „Temperatursprung“ von  $2.7 \text{ K}$  auf  $70 \mu\text{m}$  während der nichtlinearen Entwicklung. Dieser „Temperatursprung“ liegt in der Größenordnung des von WARD und FANG gemessenen. Damit bleibt die Frage, ob nichtklassische Effekte bei der Verdampfung berücksichtigt werden müssen, weiterhin ungeklärt. Allgemeiner theoretische Untersuchungen von MARGERIT & AL. [77] unter Einbeziehung

irreversibler Thermodynamik und Deformationen der Grenzfläche haben gezeigt, dass auch hier die Vereinfachung auf ein „Pearson“-Modell (entspricht dem folgenden Modell 3) unter realistischen Annahmen möglich ist und damit „Temperatursprünge“ an der Grenzfläche nur unter extrem starker Verdampfung in Erscheinung treten.

## 5.2 Modell 2: Ohne Massenfluss

3D-Simulationen der Gleichungen (4.5) mit den dimensionslosen Grenzflächenbedingungen (3.3) erweisen sich auch beim heutigen Stand der Rechenleistung als äußerst diffizil. Deshalb sollen weitere Vereinfachungen, die aber noch die wesentlichen Effekte der Verdampfung enthalten, auf das Modell 3 führen. Das hier diskutierte Modell 2 dient lediglich als Bindeglied.

Als weitere Vereinfachung wird der Materialtransport beim Phasenübergang vernachlässigt. D.h. der Massenfluss  $J_0$  ist klein, was bei nicht zu starker Verdampfung der Fall ist. Unter dieser Annahme behalten die stationären Temperaturprofile ihren Verlauf im Wesentlichen bei, sind aber linear (siehe Abb. 5.2). Aufgrund der Vernachlässigung des Massenflusses wird im Folgenden für  $J$  der Terminus Verdampfungsrate gewählt. Die Verdampfungsrate wird nur im Term mit der latenten Wärme berücksichtigt (in (5.6e)). Weiterhin sei  $J$  nur von der momentanen Grenzflächentemperatur  $T_i$  abhängig und damit erhalten die Grenzflächenbedingungen (5.6) die einfachere Form

$$V_{1z} = V_{2z} = 0 \quad (5.22a)$$

$$V_{1x} = V_{2x}, \quad V_{1y} = V_{2y} \quad (5.22b)$$

$$\rho_1 \nu_1 \partial_z V_{x1} - \rho_2 \nu_2 \partial_z V_{x2} = \partial_x \sigma(T_I) \quad (5.22c)$$

$$\rho_1 \nu_1 \partial_z V_{y1} - \rho_2 \nu_2 \partial_z V_{y2} = \partial_y \sigma(T_I) \quad (5.22d)$$

$$T_1 = T_2 \quad (5.22e)$$

$$\lambda_1 \partial_z T_1 = \lambda_2 \partial_z T_2 + J(T_I) \cdot L. \quad (5.22f)$$

Mithilfe der Randbedingungen (3.2a), (3.2b) und der Grenzflächenbedingungen (5.22e), (5.22f) kann das stationäre (lineare) Temperaturprofil berechnet

werden zu

$$T_1(z) = T_e - \frac{z}{\lambda_1(1 + \lambda/d)} J(T_I) \cdot L \quad (5.23a)$$

$$T_2(z) = T_e - \frac{d_1 + d_2}{\lambda_1(d + \lambda)} J(T_I) \cdot L + \frac{z}{\lambda_1(d + \lambda)} J(T_I) \cdot L, \quad (5.23b)$$

dabei liegt kein äußerer Temperaturgradient an ( $T_u = T_o = T_e$ ). Diese linearen Profile folgen auch direkt durch Grenzwertbildung  $V_1 \rightarrow$  und  $V_2 \rightarrow 0$  in (5.11) ( $Q^0 = J(T_I) \cdot L$  und Rückskalierung der dimensionslosen Größen) Damit ergibt sich die Temperatur an der Grenzfläche zu

$$T_I = T_e - \frac{d_1}{(1 + \lambda/d)\lambda_1} J(T_I) \cdot L. \quad (5.24)$$

Ausgehend vom stationären Zustand kann die Verdampfungsrate  $J(T_{I_0} + \Theta)$  in eine Taylorreihe um die stationäre Grenzflächentemperatur  $T_{I_0}$  bis zur ersten Ordnung entwickelt werden

$$J(T_{I_0} + \Theta) \approx J_0(T_{I_0}) + \left. \frac{\partial J}{\partial T} \right|_{T_{I_0}} \Theta. \quad (5.25)$$

$\Theta$  ist die dimensionsbehaftete Störung der stationären Temperatur  $T_{I_0}$  an der Grenzfläche.

Skalierung auf dimensionslose Größen liefert nach einer kleinen Rechnung die Marangoni-Zahl

$$M = \underbrace{\frac{-L J_0 d_1}{\lambda_1(1 + \lambda/d)}}_{(\Delta T)_1} \cdot \frac{\gamma d_1}{\rho_1 \kappa_1 \nu_1}. \quad (5.26)$$

Der erste Term im Produkt von (5.26) entspricht dabei der linearisierten Temperaturdifferenz  $(\Delta T)_1$  von Modell 1.

Die dimensionslose Form der Grenzflächenbedingung (5.22f) für die Störungen liefert

$$\partial_z \theta_1 = \lambda \partial_z \theta_2 - Bi_{eff}^{(2)} \theta_1 \quad (5.27)$$

mit

$$Bi_{eff}^{(2)} = \frac{\partial J}{\partial T} \frac{d_1}{\lambda_1} L. \quad (5.28)$$

Damit beschreiben die Gleichungen (4.5) ( $R = 0$ ) zusammen mit den Randbedingungen (4.10) und den Grenzflächenbedingungen (5.22), bzw. (5.27), das System vollständig.

### 5.3 Modell 3: Einseitiges Modell

Wird nun zusätzlich die Dampfschicht als passiv angenommen und damit die Dynamik allein der Flüssigkeit zugeschrieben, so reduzieren sich die Gleichungen im Volumen ((4.5), tiefergestellte Indizes 1 für Fluid 1 werden jetzt weggelassen) auf

$$\partial_t u_i + u_j \partial_j u_i = -Pr \partial_i p + Pr \partial_{jj} u_i \quad (5.29a)$$

$$\partial_t \theta + u_j \partial_j \theta = u_z + \partial_{jj} \theta \quad (5.29b)$$

$$\partial_j u_j = 0. \quad (5.29c)$$

Die Randbedingungen am unteren Rand ( $z = 0$ ) sind

$$u_x = u_y = 0, \quad u_z = 0, \quad \partial_z u_z = 0, \quad \theta = 0, \quad (5.29d)$$

und die Bedingungen an der freien Oberfläche reduzieren sich auf

$$\partial_z u_x = -M \partial_x \theta, \quad \partial_z u_y = -M \partial_y \theta, \quad u_z = 0 \quad (5.29e)$$

$$\partial_z \theta = - \underbrace{\left( Bi + \frac{\partial J}{\partial T} \frac{d_1}{\lambda_1} L \right)}_{Bi_{eff}} \theta \quad (5.29f)$$

mit der Definition der Marangoni-Zahl aus (5.26). Der Wärmefluss aus der Flüssigkeit ins Gas kann näherungsweise durch eine Biot-Zahl  $Bi (< 1)$  beschrieben werden [106, 142]. Die effektive Biot-Zahl  $Bi_{eff}$  (verursacht durch Verdampfung) des Modells 3 kann aber um viele Größenordnungen größer werden als 1, so dass der exakte Zahlenwert von  $Bi$  keine Rolle spielt.

Damit ist Modell 3 identisch mit dem von PEARSON untersuchten System und es kann ein analytischer Ausdruck für die marginale Marangoni-Zahl  $M_m$  in Abhängigkeit von  $k$  und der Biot-Zahl  $Bi_{eff}$  gefunden werden [61, 102]

$$M_m = 8 \frac{k(k \cosh k + Bi_{eff} \sinh k)(k - \sinh k \cosh k)}{k^3 \cosh k - \sinh^3 k}. \quad (5.30)$$

## 5.4 Linearer Vergleich der drei Modelle

Die lineare Analyse dient zum Vergleich der drei Modelle. Der experimentell zu bestimmende Anpassungskoeffizient  $\beta$  für  $K(T)$  in Modell 1 (siehe (5.4)) erlaubt die Untersuchung des Grenzfalles  $\beta \rightarrow 0$ . Dies führt dann zu einem Störungsmassenfluss  $j = 0$  (aus (5.131)) und es resultieren die kritische Marangoni-Zahl  $M_c \approx 80$  und die kritische Wellenzahl  $k_c \approx 2$ , falls die Dampfschicht zu vernachlässigen ist. Dies ist im Wassersystem der Fall (für das Ethanolssystem erhält man eine leicht größere Marangoni-Zahl ( $M_c \approx 105$ )).

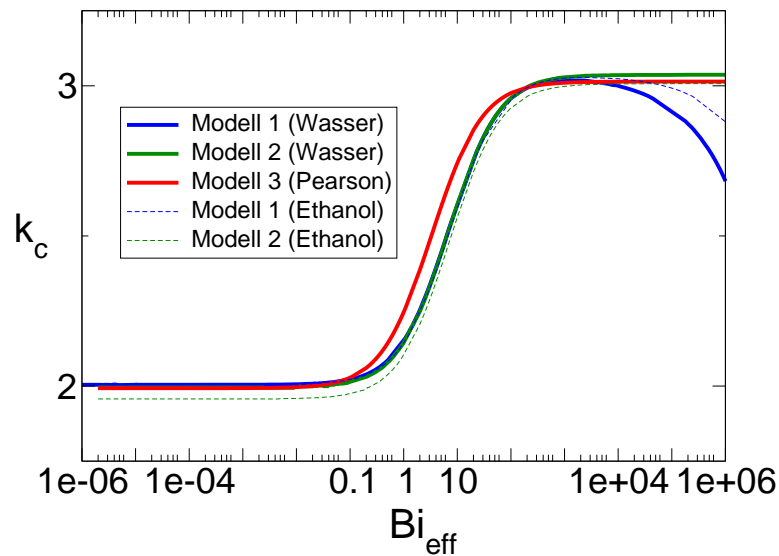


Abbildung 5.8: Kritische Wellenzahl  $k_c$  über der effektiven Biot-Zahl  $Bi_{eff}$  für ein Wasser-Wasserdampf- und ein Ethanol-Ethanol-Dampf-System mit  $d = 1$ . Der Anpassungskoeffizient von Modell 1 variiert zwischen  $8 \cdot 10^{-12} \leq \beta \leq 8$  (für Ethanol:  $2 \cdot 10^{-12} \leq \beta \leq 2$ ).

Wird der Anpassungskoeffizient  $\beta$  vergrößert (d.h. eine Störung der Verdampfungsrate zugelassen), so folgt daraus eine proportionale Vergrößerung der effektiven Biot-Zahl

$$Bi_{eff}^{(Ver)} = \beta \tilde{K} \tilde{C} \tilde{L}^2 \quad (5.31)$$

mit  $\tilde{K} = \tilde{K} \beta$  (vgl. (5.20)). Einsetzen dieser effektiven Biot-Zahl in die Mo-

delle 2 und 3 erlaubt dann einen direkten Vergleich aller Modelle. Für Modell 3 wird der „Pearson“ Ausdruck (5.30) verwendet. Modell 2 wird numerisch gelöst (mit der Biot-Zahl aus (5.31)).

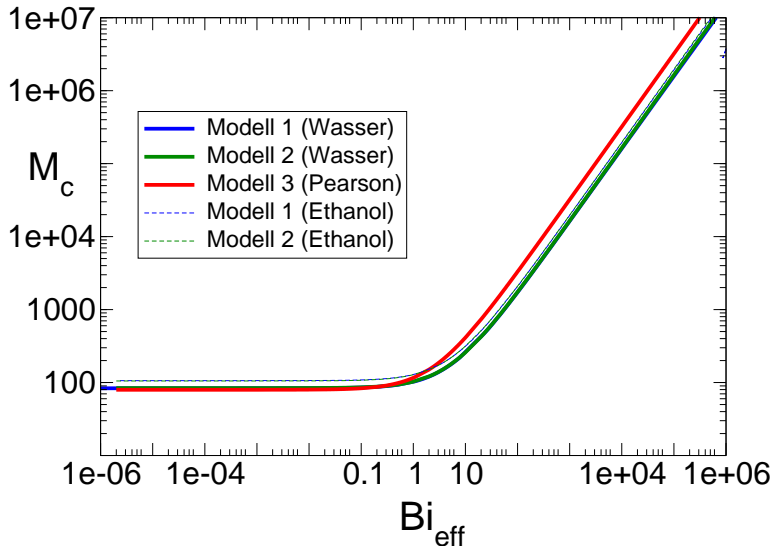


Abbildung 5.9: Kritische Marangoni-Zahl  $M_c$  über der effektiven Biot-Zahl  $Bi_{eff}$  für die gleichen Parameter wie in vorheriger Abbildung 5.8.

Abb. 5.8 zeigt den Verlauf der kritischen Wellenzahl  $k_c$  über der aus dem Modell 1 erhaltenen Biot-Zahl  $Bi_{eff}^{(Ver)}$ . Entsprechend sind in Abb. 5.9 die kritischen Marangoni-Zahlen  $M_c$  über  $Bi_{eff}^{(Ver)}$  aufgetragen.

Im „Pearsonbild“ erfolgt für große Biot-Zahlen eine Sättigung bei  $k_c \approx 3$ . Dies spiegelt sich auch in den Modellen 1 und 2 wider. Der Übergang zu kleineren  $k_c$  für große Biot-Zahlen in Modell 1 ist im unphysikalischen Bereich  $\beta \geq 1$  und muss daher nicht weiter betrachtet werden. Der gleiche Verlauf der kritischen Marangoni-Zahl in Abhängigkeit der Biot-Zahl für alle 3 Modelle ist offensichtlich (Abb. 5.9). Die extrem gute Übereinstimmung von Modell 1,2 und 3 für moderate Biot-Zahlen zeigt, dass der Haupteffekt der Verdampfung durch die Temperatursenke an der Grenzfläche (verursacht durch die latente Wärme) gegeben ist. Alle Aussagen bleiben auch gültig bei Änderung des Schichtdickenverhältnisses  $d$  oder des stationären Massenflusses  $J_0$ . Dies wurde mit mehreren Testläufen numerisch gezeigt. Die kleinen



Abweichungen zu Modell 3 reflektieren somit den minimalen „aktiven“ Beitrag der Dampfschicht und rechtfertigen die Verwendung des Modells 3.

### 5.5 Nichtlineare 3D-Ergebnisse: Modell 3

Die volle nichtlineare Integration von (5.29) in 3D erfolgt nach der im Anhang D.2 beschriebenen Methode. Zuerst soll der Übergang von Hexagonen zu Quadraten und schließlich zu einer zeitabhängigen schwach turbulenten Struktur gezeigt werden, wenn der Kontrollparameter  $M$  vergrößert wird.

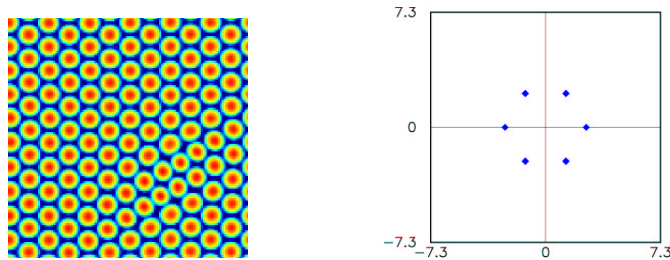


Abbildung 5.10: *Konturplot der Temperaturstörungen an der Oberfläche (links) und Leistungsspektrum (rechts) mit  $Pr = 6$ ,  $Bi_{eff} = 5$ ,  $\Delta t = 0.05$ ,  $\varepsilon = 0.2$  nach  $t = 500$ . Ausbildung von hexagonalen Mustern.*

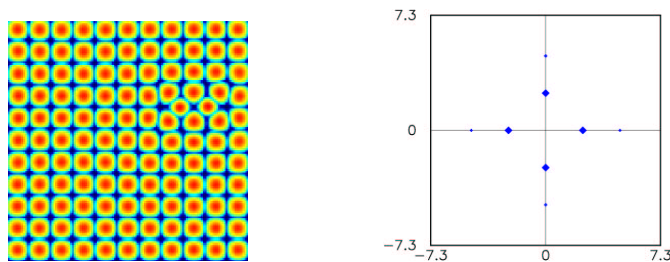


Abbildung 5.11: *Konturplot der Temperaturstörungen an der Oberfläche (links) und Leistungsspektrum (rechts) mit  $Pr = 6$ ,  $Bi_{eff} = 5$ ,  $\Delta t = 0.005$ ,  $\varepsilon = 0.7$  nach  $t = 1000$ . Ausbildung von quadratischen Mustern.*

Es wird ein System mit  $Pr = 6$  und der Biot-Zahl  $Bi_{eff} = 5$  verwendet. Drei Simulationen mit einer Auflösung von  $128 \times 128 \times 20$  und einem

Aspektverhältnis  $\Gamma \approx 29$  (d.h. laterale Ausdehnung entspricht 12 kritischen Moden) bei unterschiedlichem Kontrollparameter  $\varepsilon$  werden durchgeführt. Abb. 5.10 (links) zeigt den stationären Endzustand für  $\varepsilon = 0.2$ . Es sind klar Hexagone zu erkennen. Rechts unten ist noch ein Hepta-Penta-Defekt sichtbar. Wird nun der Kontrollparameter erhöht ( $\varepsilon = 0.7$ ) so entstehen quadratische Strukturen als stationäre Lösung (Abb. 5.11). Für  $\varepsilon = 3$  wird

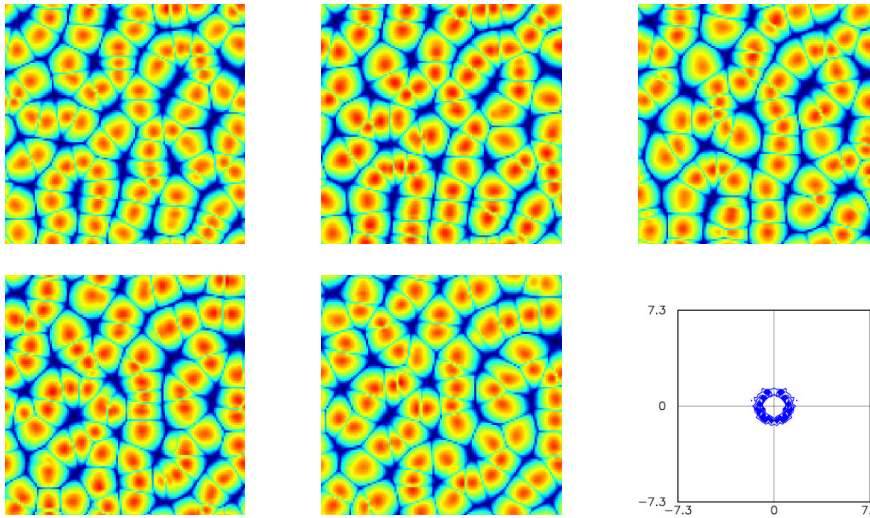


Abbildung 5.12: *Zeitserie von Konturplots der Temperaturstörungen an der Oberfläche mit Abstand  $t = 1$  und akkumuliertes Leistungsspektrum (letztes Bild) mit  $Pr = 6$ ,  $Bi_{eff} = 5$ ,  $\Delta t = 0.001$ ,  $\varepsilon = 3$  nach  $t = 100$ . Ausbildung von zeitabhängigen Mustern.*

das Muster zeitabhängig (Abb. 5.12). Es zeigen sich großskaligere Strukturen bei Vergrößerung des Kontrollparameters  $\varepsilon$ . Diese Strukturen sind aber von kleineren oszillierenden Strukturen überlagert. Das zeitlich gemittelte Leistungsspektrum (letztes Bild in Abb. 5.12) zeigt eine Verteilung der Wellenvektoren auf einem Kreisring. Das Maximum dieses Kreisrings liegt bei kleineren Wellenzahlen als die lineare Wellenzahl  $k_c$ .

Experimentelle Untersuchungen zur Marangoni-Konvektion ohne Verdampfung von ECKERT & AL. [42] und KOSCHMIEDER [60] haben gezeigt, dass eine Vergrößerung des Kontrollparameters zu kleineren Wellenlängen führt. Dies wurde auch theoretisch von BESTEHORN [12] gezeigt. Die hier nicht

systematisch durchgeführten Untersuchungen für größere Biot-Zahl zeigen, dass sich bei weiterer Vergrößerung des Kontrollparameters wieder eine größere resultierende Wellenlänge ergibt (z.B. in Abb. 5.12). Eine genauere Analyse ist bei MERKT und BESTEHORN [84] zu finden.

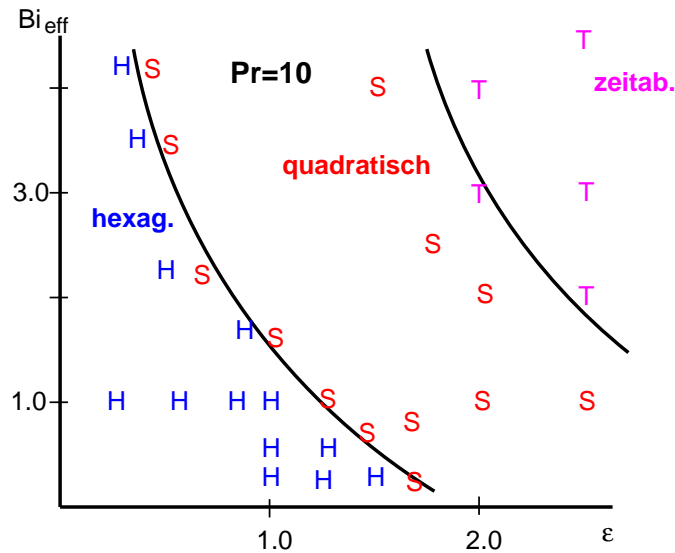


Abbildung 5.13:  $\varepsilon - Bi_{eff}$ -Diagramm:  $H$  bedeutet hexagonale,  $S$  quadratische und  $T$  zeitabhängige Muster.

Um ein Vergleich mit den Experimenten von MANCINI und MAZA [74] zu erhalten, wird nun  $Pr = 10$  verwendet, was der Prandtl-Zahl ihres verwendeten Silikonöls entspricht. In Abb. 5.13 ist das bevorzugte Muster in Abhängigkeit von der Biot-Zahl  $Bi_{eff}$  und  $\varepsilon$  dargestellt. Es findet immer ein Übergang von Hexagonen zu Quadraten und schließlich zu einer schwach turbulenten zeitabhängigen Struktur bei Vergrößerung des Kontrollparameters  $\varepsilon$  statt. Solche Übergänge von Hexagonen zu Quadraten sind in der Bénard-Marangoni-Konvektion ohne Verdampfung theoretisch von BESTEHORN [12] und experimentell von ECKERT & AL. [42] gefunden worden. Neu ist die Verschiebung des Übergangs zu kleineren  $\varepsilon$  bei größerer Biot-Zahl und das Auftreten ungeordneter zeitabhängiger Strukturen bei moderaten  $\varepsilon$ .

## 5.6 Vergleich von Experimenten und Modell 3

Die experimentellen Untersuchungen von SAYLOR & AL. [117] dienen zur Bestimmung statistischer Eigenschaften der Oberflächentemperatur von verdampfendem Wasser in Abhängigkeit der Verdampfungsrate. Dabei wurden Messungen mit reinem (deionisiert) und mit verunreinigtem (oberflächenaktive Substanzen, d.h. Tenside) Wasser durchgeführt. Die Infrarotmessungen der Oberflächentemperatur für reines, schwach verdampfendes Wasser zeigen die gleiche Struktur wie die Simulationen im zeitabhängigen Bereich in Abb. 5.12. Die gewählte Prandtl-Zahl ( $Pr = 6$ ) gibt die Größenordnung der Prandtl-Zahl von Wasser wieder.

Im Zeitverlauf der Experimente von MAZA und MANCINI [74] zeigt sich ein Übergang von zeitabhängigen Mustern zu Quadraten und schließlich zu Hexagonen (siehe Abb. 5.1). Unsere Marangoni-Zahl  $M$  ist direkt proportional zum Quadrat der Flüssigkeitsdicke (siehe Definition der Marangoni-Zahl in (5.26)). Da die Experimente bis zur vollständigen Verdampfung des Öls durchgeführt wurden, nimmt die Dicke im Experiment also kontinuierlich ab. Die relativ langsame Verdampfung (Dauer des Experiments ca. 2 Stunden) erlaubt die Definition einer quasistationären Marangoni-Zahl. Diese quasistationäre Marangoni-Zahl wird auf einer großen Zeitskala kleiner (Schichtdicke nimmt ab) und daher wird der Weg von großem  $\varepsilon$  zu  $\varepsilon = 0$  bei konstanter Biot-Zahl  $Bi_{eff}$  in Abb. 5.13 genommen. Der entsprechende Übergang zeitabhängige-quadratische-hexagonale Muster ist sowohl im Experiment (Abb. 5.1) als auch theoretisch (Abb. 5.12, 5.11, 5.10) beobachtbar.

# Kapitel 6

## Langwellennäherung

In den vorherigen Kapiteln wurden Zweischicht-Systeme mit nichtdeformierbarer Grenzfläche betrachtet. Dies führte zu Instabilitäten mit relativ kleinen Wellenlängen ( $\Lambda \approx h_0 = d_1$ ). Werden die Schichtdicken  $d_k$  jedoch sehr dünn, so treten lateral ausgedehnte Strukturen auf, die im Wesentlichen durch die Deformation der Grenzfläche bestimmt werden [135]. In diesem Kapitel werden diese Deformationen der Grenzfläche im langwelligen Bereich betrachtet ( $\Lambda \gg h_0$ ). Durch die Langwellennäherung (auch Schmiermittelnäherung oder Lubricationapproximation) kann das System auf eine einzige Evolutionsgleichung der Grenzfläche reduziert werden.

Die Herleitung wird für ein 2D-System  $(x, z)$  durchgeführt. Die Erweiterung auf 3D erfolgt weitgehend analog und wird hier formal durch Übergang von partiellen Ableitungen nach  $x$  zu 2D Nablaoperatoren  $\nabla_2 = (\partial_x, \partial_y)$  erreicht. Diese Näherung in 3D gibt das physikalische Verhalten der untersuchten Fluide und die Effekte dieses Kapitels korrekt wieder.

### 6.1 Evolutionsgleichung in Schmiermittelnäherung

Werden sehr dünne Flüssigkeitsfilme oder schwachdeformierte, langwellige Strukturen untersucht, dann ist die laterale Längenskala sehr viel größer als

die vertikale. Folglich kann ein Kleinheitsparameter definiert werden

$$\epsilon = \frac{2\pi h_0}{\Lambda} \ll 1, \quad (6.1)$$

der das Verhältnis einer vertikalen Längenskala  $h_0$  zur lateralen Wellenlänge  $\Lambda$  beschreibt. Für Zweischicht-Fluidfilme ist  $h_0$  die mittlere Höhe der Grenzfläche, die aufgrund der Massenerhaltung konstant ist

$$h_0 = \frac{1}{L_x L_y} \iint dx dy h(x, y, t) = \text{const.} \quad (6.2)$$

Wegen der unterschiedlichen Längenskalen in vertikaler und horizontaler Richtung wird eine dem Problem angepasste Skalierung gewählt. Die horizontalen und vertikalen Längen- bzw. Geschwindigkeitskomponenten werden jetzt unterschiedlich skaliert (vgl. mit Skalierung der *gestörten* Größen bei kurzwelligen Instabilitäten (4.4)):

$$\text{vertikale Länge:} \quad z \rightarrow h_0 \tilde{z} \quad (6.3a)$$

$$\text{horizontale Längen:} \quad x, y \rightarrow \frac{h_0}{\epsilon} \tilde{x}, \tilde{y} \quad (6.3b)$$

$$\text{vertikale Geschwindigkeitskomponente:} \quad V_{k_z} \rightarrow u_0 \epsilon \tilde{u}_{z_k} \quad (6.3c)$$

$$\text{horizontale Geschwindigkeitskomponenten:} \quad V_{k_x, k_y} \rightarrow u_0 \tilde{u}_{x_k, y_k} \quad (6.3d)$$

$$\text{Zeit:} \quad t \rightarrow \frac{h_0}{u_0 \epsilon} \tilde{t} \quad (6.3e)$$

$$\text{Drücke:} \quad P_k \rightarrow \frac{\mu_1 u_0}{h_0 \epsilon} \tilde{P}_k \quad (6.3f)$$

$$\text{Volumenkräfte:} \quad \Phi_k \rightarrow \frac{\mu_1 u_0}{h_0 \epsilon} \tilde{\Phi}_k \quad (6.3g)$$

$$\text{normale Grenzflächenkräfte:} \quad \mathcal{N} \rightarrow \frac{\mu_1 u_0}{h_0} \tilde{\mathcal{N}} \quad (6.3h)$$

$$\text{tangente Grenzflächenkräfte:} \quad \mathcal{T} \rightarrow \frac{\mu_1 u_0}{h_0} \tilde{\mathcal{T}} \quad (6.3i)$$

$u_0$  ist eine horizontale Referenzgeschwindigkeit im unteren Fluid 1 und  $\Phi_k$  sind die Potentiale der Volumenkräfte (z.B. Gravitation, d.h. der letzte Term in (3.1a) bzw. (3.1d) wird durch  $-\partial_i \Phi_k$  ersetzt).  $\mathcal{N}$  und  $\mathcal{T}$  sind entsprechend (3.4) aufzufassen.

Ausgangspunkt sind wieder die Navier-Stokes- und Kontinuitätsgleichungen beider Fluide (3.1) mit den Rand- und Grenzflächenbedingungen ((3.2) und

(3.3)). Die gesuchten skalierten Größen werden als Entwicklung im Kleinheitsparameter  $\epsilon$  dargestellt (Tilden sind wieder weggelassen)

$$u_{x_k} = u_{x_k}^{(0)} + \epsilon u_{x_k}^{(1)} + \epsilon^2 u_{x_k}^{(2)} + \dots \quad (6.4a)$$

$$u_{z_k} = u_{z_k}^{(0)} + \epsilon u_{z_k}^{(1)} + \epsilon^2 u_{z_k}^{(2)} + \dots \quad (6.4b)$$

$$P_k = P_k^{(0)} + \epsilon P_k^{(1)} + \epsilon^2 P_k^{(2)} + \dots \quad (6.4c)$$

Substitution der skalierten Größen in die jetzt zweidimensionalen NS-Gleichungen (3.1) und Verwendung der Entwicklungen der Feldgrößen (6.4) bis zur nullten Ordnung (obere Indizes (0) wieder weggelassen) liefert

$$Re \epsilon (\partial_t u_{x_1} + u_{j_1} \partial_j u_{x_1}) = -\partial_x (P_1 + \Phi_1) + (\epsilon^2 \partial_x^2 + \partial_z^2) u_{x_1} \quad (6.5a)$$

$$Re \epsilon^3 (\partial_t u_{z_1} + u_{j_1} \partial_j u_{z_1}) = -\partial_z (P_1 + \Phi_1) + \epsilon^2 (\epsilon^2 \partial_x^2 + \partial_z^2) u_{z_1} \quad (6.5b)$$

$$\partial_x u_{x_1} + \partial_z u_{z_1} = 0 \quad (6.5c)$$

$$Re \epsilon \rho (\partial_t u_{x_2} + u_{j_2} \partial_j u_{x_2}) = -\partial_x (P_2 + \Phi_2) + \mu (\epsilon^2 \partial_x^2 + \partial_z^2) u_{x_2} \quad (6.5d)$$

$$Re \epsilon^3 \rho (\partial_t u_{z_2} + u_{j_2} \partial_j u_{z_2}) = -\partial_z (P_2 + \Phi_2) + \epsilon^2 \mu (\epsilon^2 \partial_x^2 + \partial_z^2) u_{z_2} \quad (6.5e)$$

$$\partial_x u_{x_2} + \partial_z u_{z_2} = 0 \quad (6.5f)$$

mit der Reynolds-Zahl  $Re = u_0 h_0 \rho_1 / \mu_1$ ,  $\rho = \rho_2 / \rho_1$  und  $\mu = \mu_2 / \mu_1$ .

Damit gilt dann in nullter Ordnung in  $\epsilon$

$$\partial_z^2 u_{1_x} = \partial_x P_1 + \partial_x \Phi_1 \quad (6.6a)$$

$$\partial_z P_1 + \partial_z \Phi_1 = 0 \quad (6.6b)$$

$$\partial_x u_{1_x} + \partial_z u_{1_z} = 0 \quad (6.6c)$$

$$\mu \partial_z^2 u_{2_x} = \partial_x P_2 + \partial_x \Phi_2 \quad (6.6d)$$

$$\partial_z P_2 + \partial_z \Phi_2 = 0 \quad (6.6e)$$

$$\partial_x u_{2_x} + \partial_z u_{2_z} = 0 \quad (6.6f)$$

mit dem Verhältnis der dynamischen Viskositäten  $\mu = \mu_2 / \mu_1$ .

Die skalierten Randbedingungen (aus (3.2)) ergeben sich analog in nullter

Ordnung  $\epsilon$  zu

$$\text{unten } (z = 0): \quad u_{x_1} = 0, \quad u_{z_1} = 0 \quad (6.7a)$$

$$\text{oben } (z = d): \quad u_{x_2} = 0, \quad u_{z_2} = 0 \quad (6.7b)$$

und die Grenzflächenbedingungen (3.3) (mit der Schreibweise aus (3.4)) resultieren zu

$$\tilde{P}_1 - \tilde{P}_2 = \mathcal{N} + \Phi \quad (6.8a)$$

$$\partial_z u_{x_1} - \mu \partial_z u_{x_2} = \mathcal{T} \quad (6.8b)$$

$$\partial_t h + u_{x_k} \partial_x h = u_{z_k} \quad (6.8c)$$

$$u_{x_1} = u_{x_2} \quad (6.8d)$$

$$u_{z_1} = u_{z_2} \quad (6.8e)$$

mit  $\tilde{P}_k = P_k + \Phi_k$  und  $\Phi = \Phi_1 - \Phi_2$ .

Aus Gleichung (6.6a), bzw. (6.6d), kann nun mit der Randbedingung (6.7a), bzw. (6.7b), und den Grenzflächenbedingungen (6.8b) und (6.8d) unter Beachtung, dass die  $\tilde{P}_k$  keine  $z$ -Abhängigkeit haben ((6.6b) bzw. (6.6e)), ein in  $z$  quadratisches Geschwindigkeitsprofil für  $u_{x_1}$ , bzw.  $u_{x_2}$ , berechnet werden

$$u_{x_1} = \frac{1}{2} \partial_x \tilde{P}_1 z^2 + A z \quad (6.9a)$$

$$u_{x_2} = \frac{1}{2\mu} \partial_x (\tilde{P}_1 - \mathcal{N} - \Phi) (z^2 - d^2) + B (z - d) \quad (6.9b)$$

mit

$$A = -h \partial_x (\mathcal{N} + \Phi) + \mathcal{T} + \mu B$$

$$B = \frac{1}{2\mu ((\mu - 1)h + d)} \times \\ \times \partial_x \left( \tilde{P}_1 - (\mathcal{N} + \Phi) \right) (h^2 - d^2) - \partial_x \left( \tilde{P}_1 - 2(\mathcal{N} + \Phi) \right) \mu h^2 - 2\mu \mathcal{T}.$$

Integration der Kontinuitätsgleichungen (6.6c) und (6.6f) liefert die  $z$ -Komponenten der Geschwindigkeiten, welche eingesetzt in (6.8c) und Ver-



wendung der Kettenregel

$$\partial_t h + \partial_x \int_0^h dz u_{x_1} = 0 \quad (6.10a)$$

$$\partial_t h - \partial_x \int_h^d dz u_{x_2} = 0 \quad (6.10b)$$

ergeben. Vergleich von (6.8c) mit (6.10) unter Berücksichtigung der Grenzflächenbedingungen (6.8e) und (6.8d) liefert dann eine Bestimmungsgleichung für den Druckgradient  $\partial_x \tilde{P}_1$  ( $\partial_x \tilde{P}_2$  ist schon durch (6.8a) substituiert worden)

$$\partial_x \left( \int_0^h u_{x_1}(\partial_x \tilde{P}_1, h, z) dz + \int_h^d u_{x_2}(\partial_x \tilde{P}_1, h, z) dz \right) = 0. \quad (6.11)$$

(6.11) liefert eine Integrationskonstante, welche hier o.B.d.A. null gesetzt wird, da keine laterale Symmetriebrechung (z.B. geneigtes System) betrachtet wird. Auflösen des Integrationsarguments nach  $\partial_x \tilde{P}_1$ , Einsetzen dieses Druckgradienten in die quadratischen Geschwindigkeitsprofile (6.9) und anschließende Integration von (6.10a) führt zur druckunabhängigen Evolutionsgleichung der Grenzfläche

$$\partial_t h(x, t) = \partial_x (Q_1(h) \partial_x (\mathcal{N} + \Phi) + Q_2(h) \mathcal{T}). \quad (6.12)$$

Zur Herleitung siehe auch MERKT & AL. [83] und BADRATINOVA [3]. Die Mobilitäten ergeben sich zu

$$Q_1(h) = \frac{1}{3} \frac{h^3 (d-h)^3 (d+h(\mu-1))}{(d-h)^4 + h\mu(h^3(\mu-2) + 4dh^2 - 6d^2h + 4d^3)} \quad (6.13a)$$

$$Q_2(h) = \frac{1}{2} \frac{h^2 (d-h)^2 (h^2(\mu-1) - d(d-2h))}{(d-h)^4 + h\mu(h^3(\mu-2) + 4dh^2 - 6d^2h + 4d^3)}. \quad (6.13b)$$

Die Verallgemeinerung auf drei Dimensionen erfolgt hier formal durch Substitution von  $\partial_x$  mit dem zweidimensionalen Nablaoperator  $\nabla_2 = (\partial_x, \partial_y)$ .

$$\partial_t h(x, y, t) = \nabla_2 \left( Q_1(h) \nabla_2 (\mathcal{N} + \Phi) + Q_2(h) \vec{\mathcal{T}} \right). \quad (6.14)$$

Gleichung (6.14) ist nur unter Vernachlässigung einer zusätzlichen zeitunabhängigen Meanflowgleichung gültig. Diese Näherung wird im Folgenden

als gültig betrachtet und die Herleitung der exakten Gleichungen, samt einer Abschätzung der Gültigkeit von (6.14), sind im Anhang B zu finden. Es kann numerisch gezeigt werden, dass der Meanflow nur das „Coarsening“ im nichtlinearen Regime beschleunigt und damit alle folgenden Resultate, bis auf Teile in Unterkapitel 6.3.1, auch unter Verwendung des Meanflows gültig bleiben.

### 6.1.1 Mobilitäten

Die Mobilitäten in einem Zweischicht-System sind im Vergleich zu Einschicht-Systemen zusätzlich Funktionen von  $\mu$  und  $d$ . Dadurch wird die Evolution des Systems durch eine fluidspezifische Größe, das Verhältnis der Viskositäten  $\mu$ , bestimmt.

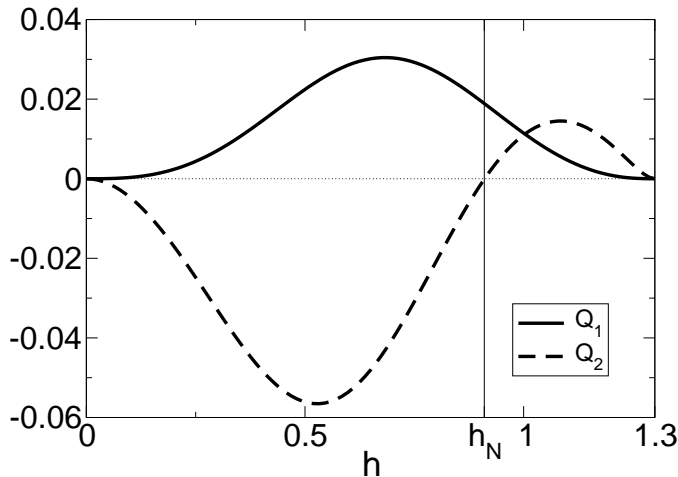


Abbildung 6.1: Mobilitäten  $Q_1(h)$  und  $Q_2(h)$  mit  $d = 1.3$  und  $\mu = 0.1826$ .

Aus Gleichung (6.13a) ergibt sich, dass die Mobilität  $Q_1(h)$  im Intervall  $0 < h < d$  immer positiv und Null für  $h = 0$  und  $h = d$  ist. Das Maximum muss numerisch gefunden werden. Im Gegensatz dazu hat die Mobilität  $Q_2(h)$  einen Nulldurchgang bei

$$h_N = \frac{d}{\sqrt{\mu} + 1}, \quad (6.15)$$

der einen wesentlichen Einfluss auf die Langzeitentwicklung des Systems

hat. Für  $h = 0$  oder  $h = d$  ist  $Q_2(h) = 0$ . Abb. 6.1 zeigt den Verlauf der Mobilitäten für den gedrehten Parametersatz 1 aus Anhang E.2 mit einer Systemdicke  $d = 1.3$ .

Wird als oberes Fluid ein Gas betrachtet (z.B. Luft über Wasser), d.h.  $\mu \rightarrow 0$ , dann folgen als Grenzwerte die Mobilitäten von Einsicht-Systemen. Aus (6.13) ergibt sich durch die Grenzwertbildung  $\mu \rightarrow 0$  (oder  $d \rightarrow \infty$ )

$$Q_1(h)_{lim} = \frac{1}{3}h^3 \quad \text{und} \quad Q_2(h)_{lim} = -\frac{1}{2}h^2. \quad (6.16)$$

Mit den entsprechenden Grenzwerten für den Druck, Normal- und Tangentialkräfte resultiert die intensiv untersuchte Dünnschichtgleichung für Einsicht-Systeme [96].

### 6.1.2 Oberflächenspannung und Gravitation

Die Oberflächenspannung ergibt in nullter Näherung die Normalkomponente

$$\mathcal{N} = -\frac{1}{C}\nabla^2 h \quad (6.17)$$

und wirkt immer stabilisierend. Dabei ist die Kapillaritäts-Zahl gegeben durch  $C = \mu_1 u_0 / (\epsilon^3 \sigma)$ .

Die Gravitation wirkt als Volumenkraft und ergibt in nullter Ordnung  $\epsilon$

$$\Phi_G = (1 - \rho)G h. \quad (6.18)$$

Die Gravitations-Zahl  $G = \rho_1 g h_0^2 / (\mu_1 u_0)$  skaliert mit dem Quadrat der mittleren dimensionsbehafteten Grenzflächenhöhe  $h_0$ . Für  $\rho > 1$  destabilisiert die Gravitation die flache ebene Grenzfläche und es resultiert eine Rayleigh-Taylor-Instabilität (RT).

### 6.1.3 Thermokapillarität

Soll eine Temperaturabhängigkeit der Oberflächenspannung ( $\sigma = \sigma(T)$ ) berücksichtigt werden, dann muss die Schmiermittelnäherung auch auf die Wärmeleitgleichungen (3.1b) und (3.1e) erstreckt werden.

Die Skalierung der Temperaturfelder erfolgt in Langwellennäherung mit

$$\theta_k = \frac{T_k - T_o}{T_u - T_o}. \quad (6.19)$$

Wie die Geschwindigkeits- und Druckfelder in (6.4) können auch die Temperaturfelder als Entwicklungen nach dem Kleinheitsparameter  $\epsilon$  dargestellt werden.

$$\theta_k = \theta_k^{(0)} + \epsilon \theta_k^{(1)} + \epsilon^2 \theta_k^{(2)} + \dots \quad (6.20)$$

Eingesetzt in die skalierten Wärmeleitgleichungen (3.1b) und (3.1e) folgt

$$\partial_z^2 \theta_1 = 0 \quad (6.21a)$$

$$\partial_z^2 \theta_2 = 0 \quad (6.21b)$$

in nullter Ordnung in  $\epsilon$  für  $\theta_k^{(0)}$  (obere Indizes wieder weggelassen). Entsprechend ergibt sich für die Randbedingungen

$$\text{unten } (z = 0) : \quad \theta_1 = 1 \quad (6.22a)$$

$$\text{oben } (z = d) : \quad \theta_2 = 0 \quad (6.22b)$$

und die Anschlussbedingungen an der Grenzfläche unter Vernachlässigung eines Massenflusses

$$\theta_1 = \theta_2 \quad (6.23a)$$

$$\partial_z \theta_1 = \lambda \partial_z \theta_2. \quad (6.23b)$$

Mit den Gleichungen (6.21)-(6.23) können die linearen Temperaturfelder  $\theta_k = \theta_k(z)$  berechnet werden zu

$$\theta_1(z) = \frac{\lambda(h-z) + (d-h)}{(\lambda-1)h+d} \quad \text{und} \quad \theta_2(z) = \frac{d-z}{(\lambda-1)h+d}. \quad (6.24)$$

Die Projektion der Impulsbedingung an der Grenzfläche (3.3d) auf die Tangentialrichtung (die Tangentialvektoren in 3D) ergibt für die rechte Seite

$$\partial_x \sigma t_{x_j} \stackrel{\text{lub.}}{=} \partial_x \sigma(\theta) = \partial_\theta \sigma(\theta) \cdot \partial_h \theta(h) \cdot \partial_x h$$

(oder

$$\partial_{s_j} \sigma \begin{pmatrix} t_{x_j} \\ t_{y_j} \end{pmatrix} \stackrel{\text{lub.}}{=} \nabla_2 \sigma(\theta) = \partial_\theta \sigma(\theta) \cdot \partial_h \theta(h) \cdot \nabla_2 h$$

für den dreidimensionalen Fall). Eine lineare Temperaturabhängigkeit der Oberflächenspannung liefert schließlich mit (6.24) für die Tangentialkraft in (6.14)

$$\mathcal{T} = M \frac{\lambda d}{((\lambda - 1)h + d)^2} \partial_x h, \quad (6.25a)$$

bzw.

$$\vec{\mathcal{T}} = M \frac{\lambda d}{((\lambda - 1)h + d)^2} \nabla_2 h \quad (6.25b)$$

in 3D.

Die Marangoni-Zahl in Langwellennäherung ist somit definiert als

$$M = (-\gamma \Delta T \epsilon) / (\mu_1 u_0). \quad (6.26)$$

**Grenzwerte:** Der Grenzwert von (6.25b) für Einschicht-Systeme ergibt sich durch Substitution von  $\lambda = Bi(d-1)$  und anschließender Grenzwertbildung  $d \rightarrow \infty$  zu

$$\vec{\mathcal{T}}_{lim} = M \frac{Bi}{(Bi h + 1)^2} \nabla_2 h \quad (6.27)$$

mit  $Bi \ll 1$  als konduktive Biot-Zahl.

Am Ende des Kapitels wird noch die „Zweischicht-Biot-Zahl“  $Bi_2$  betrachtet [134, 135], die die Wärmeleitgleichung des Fluids 2 (und damit den Temperaturgradienten) explizit berücksichtigt und durch Substitution von

$$\lambda = \frac{1 - Bi_2(d-1)}{1 + Bi_2} \quad \left( \implies Bi_2 = \frac{1 - \lambda}{\lambda + d - 1} \right) \quad (6.28)$$

und der Grenzwertbildung  $d \rightarrow 1$  aus (6.25b) zu

$$\vec{\mathcal{T}}_{lim} = M \frac{1 + Bi_2}{((h-1)Bi_2 - 1)^2} \nabla_2 h \quad (6.29)$$

führt.

### 6.1.4 Trennungsdrücke

Im Allgemeinen zeigen dünne Filme, beschrieben durch Evolutionsgleichungen der Form (6.14), ein Aufreißen der Grenzfläche am unteren oder oberen Rand (Kontaktwinkelproblem der Hydrodynamik). Es wurde von KRISHNAMOORTHY & AL. [63] gezeigt, dass dieses Aufreißen bei Instabilitäten durch den Marangoni-Effekt auch bei den vollen hydrodynamischen Grundgleichungen (3.1) auftritt, und es sich damit nicht um einen Nebeneffekt der verwendeten Langwellennäherung handelt. Numerische Untersuchungen der Dynamik des Reißens wurden von BOOS und THESS [24] in Langwellennäherung durchgeführt und zeigten einen kaskadenförmigen Verlauf des Aufreißens.

Dieser Effekt ist nicht Gegenstand dieser Arbeit. Um in den Simulationen dennoch das Aufreißen der Fluidfilme zu vermeiden, werden „Substrat - Fluid 1 - Fluid 2“ und „Fluid 1 - Fluid 2 - Substrat“ Wechselwirkungen in Form von kurzreichweitigen abstoßenden London-van-der-Waals-Kräften eingebaut [139]. Die einfachste Modellierung zur Filmstabilisierung erfolgt dann mit den Trennungsdrücken

$$\mathcal{N}_{D_1} = - \left. \frac{H_1}{z^3} \right|_{z=h} \quad (6.30a)$$

$$\text{und } \mathcal{N}_{D_2} = - \left. \frac{H_1}{(d-z)^3} \right|_{z=h}. \quad (6.30b)$$

$H_1$  und  $H_2$  sind dimensionslose positive Hamaker-Konstanten, die im Folgenden als klein angesetzt werden ( $H_1, H_2 \ll 1$ ), um einen starken Einfluss auf die lineare Stabilität zu vermeiden. Ein sehr kurzer Abriss zur Berechnung von Hamaker-Konstanten ist im Anhang C zu finden. Eine gute Übersicht zu Trennungsdrücken stellt ISRAELACHVILI [55, 56] vor.

## 6.2 Lineare Stabilität

Eine lineare Stabilitätsanalyse kann für die Evolutionsgleichung (6.14) mit den Kräften aus den Unterkapiteln 6.1.2, 6.1.3 und 6.1.4 analytisch durchgeführt werden. Der Ansatz (3.5) (mit dem stationären Zustand  $h(x, y, t) =$

$h_0 = 1$ ) liefert die lineare Wachstumsrate

$$\begin{aligned} \chi = & -Q_1(1) k^2 \left( \frac{1}{C} k^2 + (1 - \rho)G + 3H_1 + \frac{3H_2}{(d-1)^4} \right) \\ & - Q_2(1) k^2 \frac{\lambda d M}{(\lambda - 1 + d)^2} \end{aligned} \quad (6.31)$$

mit  $k^2 = k_x^2 + k_y^2$ . Die Wellenzahl der maximalen Wachstumsrate  $k_{max}$  und die Cut-off-Wellenzahl  $k_{cut}$  (vgl. Abb. 6.2) folgen aus (6.31) zu

$$k_{max} = \frac{1}{\sqrt{2}} k_{cut} \quad (6.32a)$$

$$k_{cut} = \sqrt{C \left( (1 - \rho)G + 3H_1 + \frac{3H_2}{(d-1)^4} + \frac{Q_2(1)\lambda d M}{Q_1(1)(\lambda - 1 + d)^2} \right)}. \quad (6.32b)$$

Es ist ersichtlich, dass die Oberflächenspannung immer stabilisierend wirkt und für große Wellenzahlen immer überwiegt. Allein die „Diffusionsterme“ (hier Gravitation, Marangoni-Effekt und Trennungsdrücke) sind für Instabilitäten verantwortlich und stellen die Kontrollparameter des Systems dar.

In isothermen Systemen ( $M = 0$ ) folgt direkt, dass das System instabil wird, falls das Verhältnis der Dichten  $\rho$  größer 1 ist. Dies ist die Rayleigh-Taylor-Instabilität (RT). Sie wurde in Langwellennäherung in einem vereinfachten Zweischicht-Modell von YIANTSIOS und HIGGINS [140, 141] untersucht.

In geheizten Systemen ( $M \neq 0$ ) ergibt sich die kritische Marangoni-Zahl ( $\chi = 0$ ) aus (6.31) zu

$$M_c = \frac{2(\lambda - 1 + d)^2(d-1)(\mu + d - 1)}{-3\lambda d(\mu - (d-1)^2)} \left( (1 - \rho)G + 3H_1 + \frac{3H_2}{(d-1)^4} \right). \quad (6.33)$$

Dies ist in Übereinstimmung mit [88, 125]. Entscheidend ist, dass das Verhältnis der Viskositäten über das Stabilitätsverhalten mitbestimmt. Je nach Wahl der Parameter muss die Marangoni-Zahl vergrößert oder verkleinert werden, um im instabilen Regime zu bleiben

$$M > M_c \quad \text{für} \quad \mu < (d-1)^2 \quad (6.34a)$$

$$M < M_c \quad \text{für} \quad \mu > (d-1)^2. \quad (6.34b)$$

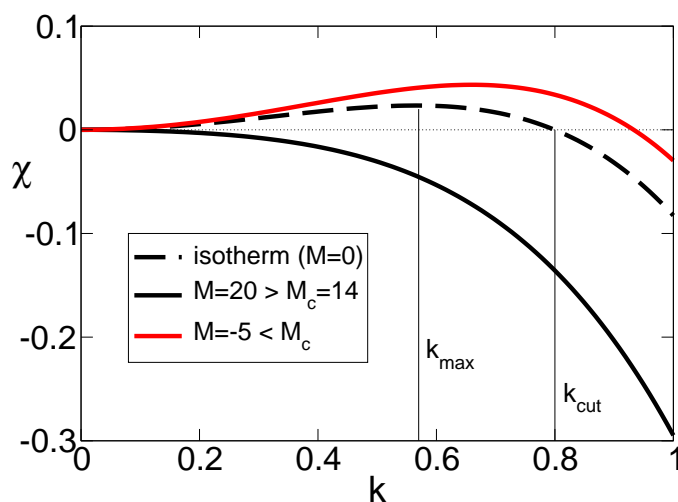


Abbildung 6.2: Wachstumsraten  $\chi$  in Abhängigkeit von der Wellenzahl  $k$  für ein isotherm RT instabiles System mit  $\mu = 0.1826$ ,  $\rho = 1.826$ ,  $\lambda = 0.598$ ,  $d = 1.3$ ,  $G = 20$ ,  $C = 1/20$  und  $H_1 = H_2 = 0.01$ .

Abb. 6.2 zeigt die Wachstumsraten für ein isothermes RT instabiles System ( $M = 0$ , gestrichelte Linie). Die kritische Marangoni-Zahl ist  $M_c = 14$ . Um im instabilen Bereich zu bleiben, muss  $M < M_c$  sein, was sehr vereinfacht als Heizung von oben betrachtet werden kann. Dies entspricht der roten Linie mit  $M = -5$ . Eine entsprechend starke Heizung von unten mit  $M = 20$  stabilisiert das System (schwarze Linie). Weiter unten wird jedoch gezeigt, dass es sich um einen metastabilen Zustand handelt.

## 6.3 Nichtlineares Langzeitverhalten

### 6.3.1 Lyapunov-Formulierung

Wenn nur Gravitation, abstoßende (aber auch anziehende) van der Waals-Kräfte und der lineare Marangoni-Effekt berücksichtigt werden, dann kann die Evolutionsgleichung der Grenzfläche (6.14) durch ein Energiefunktional



$E$  ausgedrückt werden:

$$\partial_t h = \nabla_2 \left( Q_1(h) \nabla_2 \frac{\delta E}{\delta h} \right). \quad (6.35)$$

Das Energiefunktional ist dann analytisch gegeben durch

$$E[h] = \iint dx dy \left( \frac{1}{2} C^{-1} (\nabla_2 h)^2 + V(h) \right) \quad (6.36)$$

mit der freien Energiedichte

$$V(h) = \frac{1}{2} (1 - \rho) G h^2 + \frac{H_1}{2} h^{-2} + \frac{H_2}{2} (d - h)^{-2} + V_{th}(h) \quad (6.37)$$

und der freien thermischen Energiedichte

$$\begin{aligned} V_{th}(h) = & \frac{3M}{2d\lambda(\mu - \lambda)^2} \left[ \lambda^2 (\mu - 1) (h(\mu - 1) + d) \ln (h(\mu - 1) + d) \right. \\ & - \lambda^2 (\mu - \lambda)^2 h \ln (h) + (\mu - \lambda)^2 (d - h) \ln (d - h) \\ & + (\lambda^4 h - 2\lambda^3 \mu h + \lambda^2 \mu (2h - d) + 2\lambda \mu (d - h) - \mu^2 (d - h)) \cdot \\ & \left. \cdot \ln (h(\lambda - 1) + d) \right]. \end{aligned} \quad (6.38)$$

Da die Mobilität  $Q_1(h)$ , wie oben erläutert, eine nichtnegative Funktion im Bereich  $0 \leq h \leq d$  ist, kann gezeigt werden, dass die Energie  $E$  eine monoton abnehmende Funktion in der Zeit ist. Hierzu wird die totale Zeitableitung von (6.36) mithilfe der Variationsableitung berechnet:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} E &= \iint dx dy \frac{\delta E}{\delta h} \frac{\partial h}{\partial t} \stackrel{(6.35)}{=} \iint dx dy \frac{\delta E}{\delta h} \nabla_2 \left( Q_1 \nabla_2 \frac{\delta E}{\delta h} \right) \\ &= \iint dx dy \nabla_2 \left( \frac{\delta E}{\delta h} Q_1 \right) \nabla_2 \frac{\delta E}{\delta h} + \left( \frac{\delta E}{\delta h} Q_1 \right) \nabla_2^2 \frac{\delta E}{\delta h} \\ &\quad - \iint dx dy Q_1 \left( \nabla_2 \frac{\delta E}{\delta h} \right) \left( \nabla_2 \frac{\delta E}{\delta h} \right) \\ &= - \iint dx dy Q_1 \left( \nabla_2 \frac{\delta E}{\delta h} \right)^2 \leq 0 \quad \text{q.e.d.} \end{aligned} \quad (6.39)$$

Im vorletzten Schritt wurde die erste Greensche Identität [28] verwendet unter der Bedingung, dass die Normalkomponente von  $Q_1 \nabla_2 (\delta E / \delta h)$  am Rand verschwindet (dies ist immer erfüllt, wenn  $h$  eine Erhaltungsgröße ist und periodische Randbedingungen verwendet werden).

An dieser Stelle muss ausdrücklich darauf hingewiesen werden, dass die Evolutionsgleichung (6.14) in 3D eine Näherung darstellt und obige Aussagen ausschließlich für 2D-Systeme mathematisch exakt sind. Nur die Vernachlässigung der zeitunabhängigen Meanflowgleichung (siehe Anhang B) erlaubt die Formulierung der Gleichung in der Form (6.35). Damit ist es unmöglich zu beweisen, dass die Energie im exakten 3D-System eine monoton fallende Funktion in der Zeit ist. Dennoch haben alle numerischen Rechnungen gezeigt, dass der Energieausdruck (6.36) auch unter Berücksichtigung des Meanflows monoton fällt.

Die folgenden Ergebnisse des Unterkapitels 6.3.2 (Maxwellkonstruktion) bleiben auch mit Meanflow gültig, da die Evolutionsgleichung mit und ohne Meanflow die gleichen stationären Endzustände ergibt (siehe auch Anhang B) und alle relevanten Aussagen der Maxwellkonstruktion aus dem Grenzfall  $t \rightarrow \infty$  gewonnen werden.

### 6.3.2 Maxwellkonstruktion und die Folgen

Da die Energie zeitlich minimiert wird, kann aus der freien Energiedichte (6.37) die Struktur der stationären Lösung für  $t \rightarrow \infty$  abgeleitet werden.

Zur Illustration werden große Hamaker-Konstanten  $H_1 = H_2 = 1$  verwendet. Das betrachtete RT-System ist linear instabil. Die freie Energiedichte  $V(h)$  hat zwei Wendepunkte (Abb. 6.3). Damit lässt sich eine Doppeltangente konstruieren, deren Funktionswerte immer kleiner oder gleich  $V(h)$  sind. Aufgrund der Massenerhaltung beider Fluide ist  $h$  eine Erhaltungsgröße im Sinne

$$\int_{L_x} \int_{L_y} dx dy h = 1.$$

Das bedeutet, wenn die global ebene Grenzfläche an einer Stelle erniedrigt wird, muss eine Erhöhung an anderer Stelle stattfinden. Die freie Energiedichte (6.39) wird somit minimiert, wenn die Höhen  $h_1$  und  $h_2$  realisiert

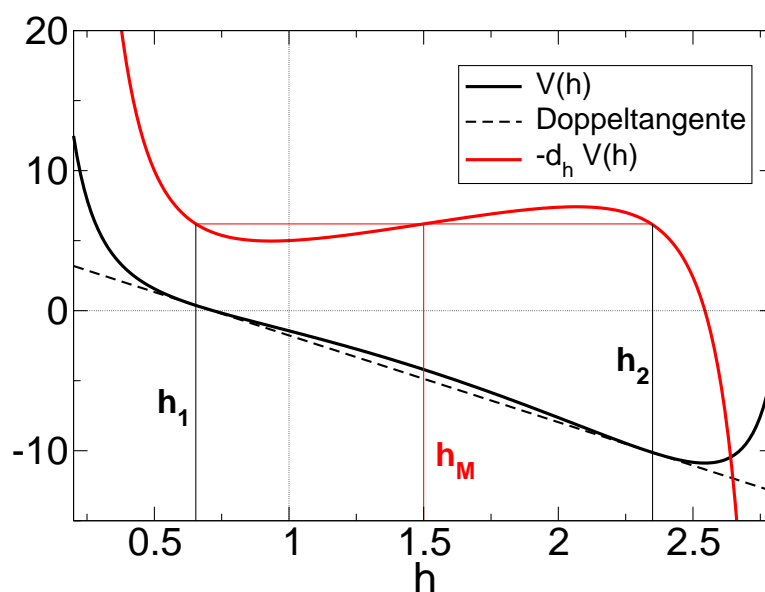


Abbildung 6.3: Freie Energiedichte  $V(h)$  und ihre Doppeltangente für ein RT-System. Die entsprechende Maxwellkonstruktion für  $-d_h V(h)$  ist rot. Parameter:  $d = 3$ ,  $\rho = 1.826$ ,  $\mu = 0.1826$ ,  $M = 0$ ,  $G = 5$ ,  $H_1 = H_2 = 1$ .

werden (Abb. 6.3). Die Bedingungen für diese beiden Höhen sind

$$d_h V(h_1) = d_h V(h_2) \quad (6.40a)$$

$$\int_{h_1}^{h_2} dh d_h V(h) = (h_2 - h_1) d_h V(h_1). \quad (6.40b)$$

Die Aussagen (6.40) sind mathematisch äquivalent zu einer Maxwellkonstruktion in  $-d_h V(h)$ - $h$  Darstellung [103]. Der Maxwellpunkt  $h_M$  zeigt dann die zu erwartende Struktur an. Für  $h_M < 1$  Löcher, für  $h_M > 1$  Tropfen und für  $h_M = 1$  eine Labyrinthstruktur.

In Abb. 6.3 wird also eine Tropfenlösung erwartet.

Zwei Bemerkungen:

- 1.) Für ein stabiles RT-System ist die Ableitung von  $-V(h)$  nach  $h$  eine streng monoton fallende Funktion in  $h$ . D.h. es ist keine Maxwellkonstruktion möglich.

- 2.) Die Massenerhaltung, und damit die Erhaltung von  $h$ , führt zu einem Variationsproblem mit Nebenbedingung. Der Lagrangeparameter gibt dann die Steigung der Doppeltangente und wird als chemisches Potenzial interpretiert.

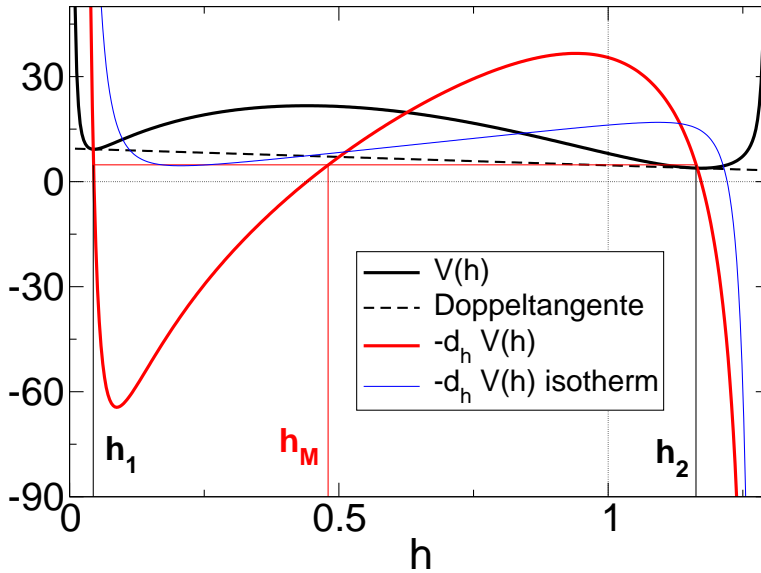


Abbildung 6.4: Freie Energiedichte  $V(h)$  und ihre Doppeltangente für geheiztes RT-System. Die entsprechende Maxwellkonstruktion für  $-d_h V(h)$  ist rot. Parameter:  $d = 1.3$ ,  $\rho = 1.826$ ,  $\mu = 0.1826$ ,  $M = 60$ ,  $\lambda = 0.598$ ,  $G = 20$ ,  $H_1 = H_2 = 0.01$ . Die blaue Linie ist die Maxwellkonstruktion für das isotherme System ( $M = 0$ ).

Die gleiche Analyse kann nun für ein System mit Thermokapillarität durchgeführt werden. Das betrachtete System ist im isothermen Fall Rayleigh-Taylor instabil. Die lineare kritische Marangoni-Zahl ist  $M_c = 14$ . Wird das System von unten geheizt mit  $M > M_c$  ist es linear stabil nach (6.34). Es ist in diesem Fall dennoch eine Maxwellkonstruktion möglich. Abb. 6.4 zeigt die freie Energiedichte und die zugehörige Maxwellkonstruktion (blau für das isotherme System). Da die mittlere Schichtdicke ( $h_0 = 1$ ) rechts des Maximums von  $-d_h V(h)$  und oberhalb der Maxwelllinie ( $V(h_m)$ ) liegt, ist das System linear stabil, aber gegenüber genügend starken Anregungen instabil. Solche metastabilen Zustände eröffnen neue Musterbildungsphänomene in der

Zeitentwicklung, welche auch im Unterkapitel 6.3.3.3 kurz gezeigt werden.

### 6.3.3 Numerische Integration

Die nichtlineare Evolutionsgleichung wird mit einem ADI-Verfahren (Alternating Discretization Integration) unter Verwendung periodischer Randbedingungen in lateraler Richtung numerisch gelöst (siehe Anhang D.3).

Aus den Simulationsdaten lässt sich zu jedem Zeitpunkt die mittlere Wellenzahl  $\langle k \rangle$  bestimmen. Die verwendete Definition der mittleren Wellenzahl ist

$$\langle k \rangle(t) = \frac{\int \int dk_x dk_y \sqrt{k^2} \hat{h}^2(\vec{k}, t)}{\int \int dk_x dk_y \hat{h}^2(\vec{k}, t)}, \quad (6.41)$$

mit  $\hat{h}(\vec{k}, t) = \hat{h}(k_x, k_y, t)$  als Fouriertransformierte von  $h(x, y, t)$ . Im Langzeitverhalten zeigen Gleichungen der Form (6.14) ein Skalierungsverhalten der mittleren Wellenzahl  $\langle k \rangle$ , das durch

$$\langle k \rangle = Ct^{-\tilde{\beta}} \quad (6.42)$$

beschrieben werden kann. Aus den folgenden Simulationen wird dieser Langzeitskalierungskoeffizient  $\tilde{\beta}$  extrahiert.

#### 6.3.3.1 Rayleigh-Taylor-Instabilität

Ein System, das nur der Gravitation und abstoßenden Trennungsdrücken unterliegt, ist instabil für  $\rho > 1$ , falls die einzelnen Schichten dick genug sind, so dass die abstoßenden London-van-der-Waals Kräfte nur für Filmdicken in der Nähe der unteren oder oberen Begrenzung „spürbar“ sind.

Zur Illustration wird ein Öl-Öl-System (HT 70 auf Silikonöl 5cS) verwendet. Die Materialparameter dieses Systems sind durch Kehrwertbildung des Parametersatzes 1 aus Anhang E.2 gegeben. Für eine Systemdicke  $d = 3$  folgt aus der Maxwellkonstruktion (vgl. Abb. 6.3) eine Tropfenlösung im Langzeitlimites. Die ebene Grenzfläche ( $h(x, y, t) = 1$ ) wird mit kleinen zufälligen

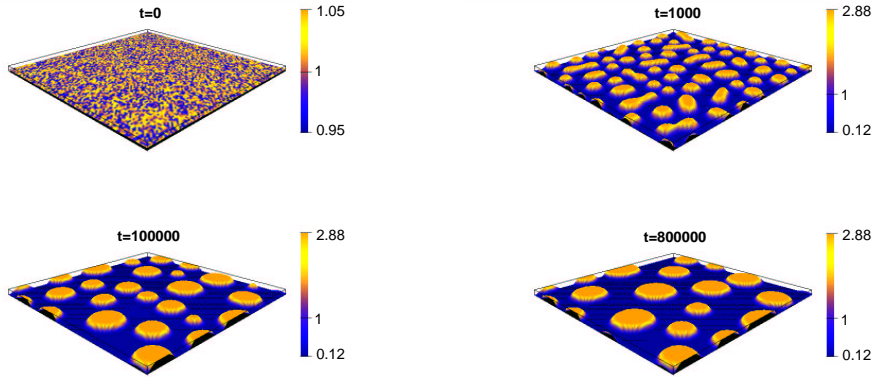


Abbildung 6.5: *Zeitentwicklung einer Rayleigh-Taylor-Instabilität für die Systemdicke  $d = 3$ . Hamaker-Konstanten  $H_1 = H_2 = 0.01$  und horizontale Systemlänge  $L_x = L_y = 200$  mit einer Auflösung von  $\Delta x = \Delta y = 2$ .*

Störungen überlagert ( $\Delta h = 0.05$ ) und Abb.6.5 zeigt den resultierenden Zeitverlauf. Die Anfangsstörungen bilden bis  $t = 1000$  eine Tropfenstruktur aus, die nahe an die obere und untere Platte hinreicht. Der weitere Zeitverlauf zeigt ein Zusammenwachsen der Tropfen, bis sich schließlich die stationäre Lösung als einzelner großer Tropfen manifestiert (nicht gezeigt).

Dieses typische „Langzeitcoarsening“ zeigt sich auch bei Auftragung der mittleren Wellenzahl  $\langle k \rangle$  (6.41) über der Zeit. Aus Abb.6.6 (schwarze Linie) kann dann der Skalierungskoeffizient  $\tilde{\beta} = 0.14$  bestimmt werden (für Zeiten  $t > 200$ ). Weiterhin zeigt sich ein schwacher Peak bei  $t \approx 150$ . Dieser Peak kann als Übergang vom linearen in den stark nichtlinearen Bereich interpretiert werden. Bei Zeiten  $t$  links des Peaks ist die Grenzflächendeformation in der Größenordnung  $\Delta h = 0.05$ . Die horizontale (schwarze) Linie gibt die Wellenzahl der schnellstwachsenden linearen Mode  $k_{max}$  wieder. Das System entwickelt sich also bis  $t \approx 100$  linear. Rechts des Peaks werden die Deformationen sehr groß und bleiben allein durch die abstoßenden van-der-Waals-Kräfte beschränkt (kein Aufreißen der Grenzfläche). Im nichtlinearen Bereich findet das bekannte „Coarsening“ statt. Abb. 6.6 zeigt auch den Zeitverlauf der Energie  $E$  (6.36), der wie erwartet (siehe (6.39)) eine monoton fallende Funktion ist.

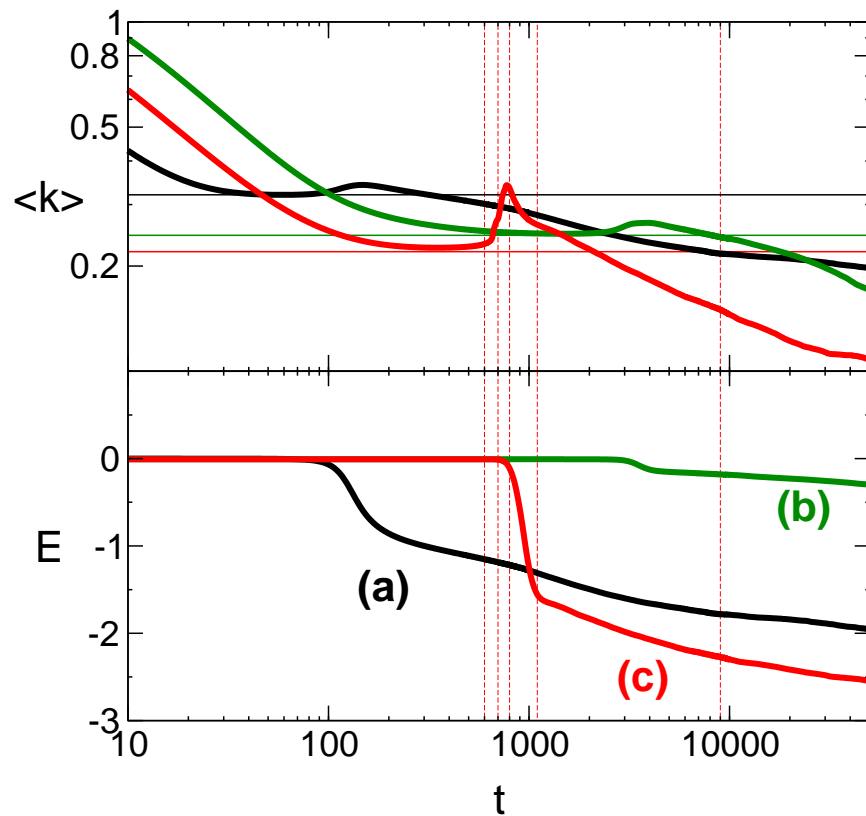


Abbildung 6.6: Zeitverlauf der mittleren Wellenzahl  $\langle k \rangle$  und der Energie  $E$ . Dabei wurde über jeweils 10 Runs mit verschiedenen Anfangsbedingungen gemittelt. Horizontale dünne Linien sind die Wellenzahlen der schnellstwachsenden linearen Moden. (a) schwarz: RT-Instabilität mit Parametern aus Abb. 6.5. (b) grün: Marangoni-Instabilität aus Abb. 6.7. (c) rot: Marangoni-Instabilität mit Parametern aus Abb. 6.8, wobei die vertikalen Linien den Zeitpunkten der gezeigten Bildern entsprechen.

Die dargestellten Zeitverläufe stellen *nicht* exakt die Ergebnisse der Simulation aus Abb. 6.5 dar, sondern sind gemittelt über 10 Simulationen mit unterschiedlichen willkürlichen kleinen Anfangsstörungen. Dennoch zeigt jede einzelne Simulation das gleiche Verhalten mit kleineren Unregelmäßigkeiten (welche durch die Mittelung geglättet werden). Einzig durch Änderung der Systemdicke  $d$  können jetzt Loch- oder Labyrinthstrukturen erzeugt werden. Simulationen in Loch- und Labyrinthdomänen sind in [83] zu finden und zeigen das gleiche Langzeitskalierungsverhalten der mittleren Wellenzahl ( $\tilde{\beta} = 0.14$ ).

### 6.3.3.2 Marangoni-Instabilität

Wie schon bei der linearen Stabilitätsanalyse gezeigt, kann der Marangoni-Effekt sowohl stabilisierend als auch destabilisierend wirken. Zur Illustration wird dasselbe System mit zwei verschiedenen Systemdicken  $d$  betrachtet ( $d = 2$  und  $d = 4$ ). Dazu wird jetzt der Parametersatz 1 aus Anhang E.2 verwendet ( $\rho < 1$  und damit sind RT-Instabilitäten unterdrückt). Für  $d = 2$  ergibt die Maxwellkonstruktion eine stationäre Tropfenlösung ( $t \rightarrow \infty$ ), für  $d = 4$  eine Lochlösung.

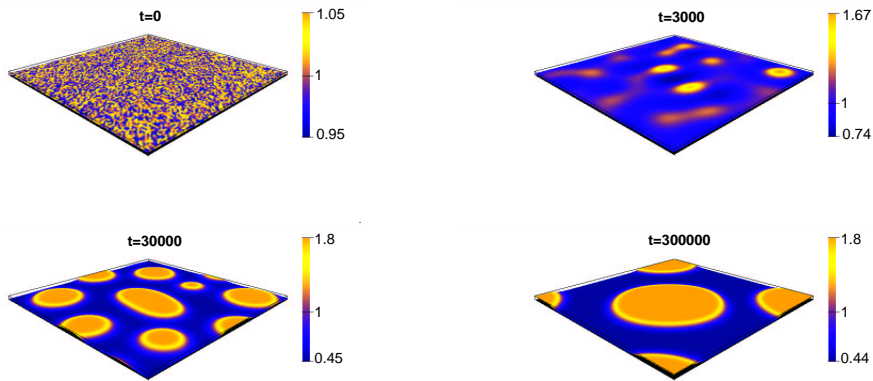


Abbildung 6.7: Zeitentwicklung eines instabilen Marangoni-Systems mit  $d = 2$  und  $M = -10$ . Hamaker-Konstanten  $H_1 = 0.01$ ,  $H_2 = 0.05$  und horizontale Systemlänge  $L_x = L_y = 100$  mit einer Auflösung von  $\Delta x = \Delta y = 1$ .



Abb. 6.7 zeigt die volle nichtlineare Zeitentwicklung des Parametersatzes 1 (Anhang E.2) mit einer Systemdicke  $d = 2$ . Die kritische Marangoni-Zahl ist  $M_c \approx -5$  (aus (6.33)) und es muss die Heizung von oben verstärkt werden, um in den instabilen Bereich zu kommen. Es wurde  $M = -10$  verwendet. Zu Beginn bilden sich im linearen Regime Tropfenstrukturen aus ( $t \leq 3000$ ). Diese Strukturen gehen dann direkt in das nichtlineare Regime über und zeigen das übliche „Coarsening“-Verhalten für  $t \rightarrow \infty$ . Das Zeitverhalten der mittleren Wellenzahl  $\langle k \rangle$  und der Energie  $E$  ist wieder in Abb. 6.6 dargestellt (grüne Linien (b)) und es resultiert die gleiche Interpretation wie bei der vorherigen RT-Simulation. Der Skalierungskoeffizient ergibt sich zu  $\tilde{\beta} = 0.16$ . Wird nun die Schichtdicke auf  $d = 4$  vergrößert, so ergibt sich die kritische

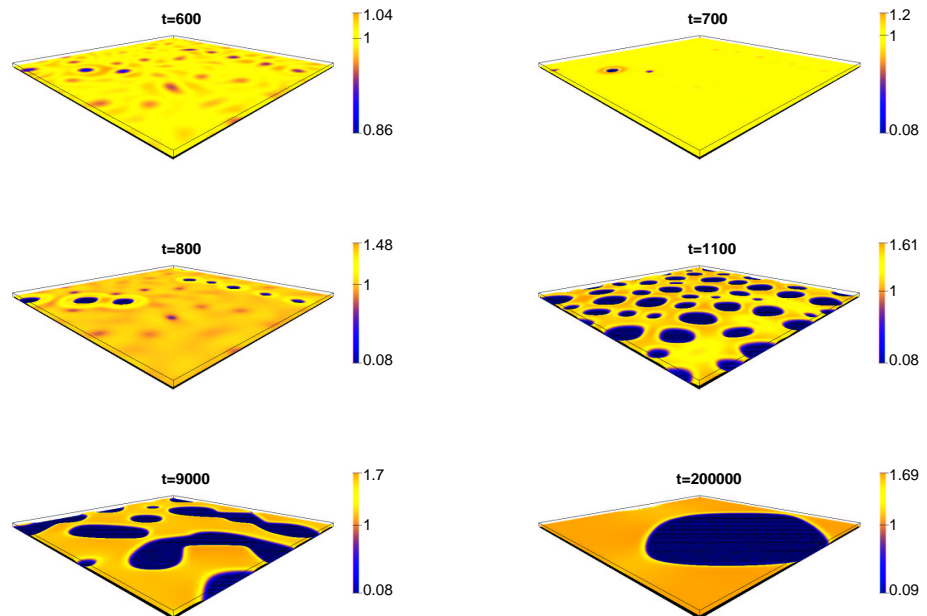


Abbildung 6.8: Zeitentwicklung eines instabilen Marangoni-Systems mit  $d = 4$  und  $M = 70$ . Hamaker-Konstanten  $H_1 = 0.05$ ,  $H_2 = 0.01$  und horizontale Systemlänge  $L_x = L_y = 200$  mit einer Auflösung von  $\Delta x = \Delta y = 1$ .

Marangoni-Zahl zu  $M_c = 38$ . Um im instabilen Bereich zu bleiben, muss  $M > M_c$  sein. In Abb. 6.8 ist die volle nichtlineare Zeitentwicklung dieses Systems mit  $M = 70$  dargestellt. Zu Beginn entwickeln sich wieder Strukturen

mit der schnellstwachsenden linearen Wellenzahl  $k_{max}$  ( $t < 600$ ) (siehe auch rote horizontale Linien in Abb. 6.6). Im Gegensatz zu der vorherigen Simulationen erfolgt jetzt der Übergang vom linearen ( $t < 600$ ) zum nichtlinearen Bereich nicht glatt. Es entwickelt sich zuerst ein einzelnes (nichtlineares) Loch ( $t = 700$ ) gefolgt von „nachwachsenden“ Löchern ( $700 < t < 1100$ ). Erst danach setzt das typische „Coarsening“ ein ( $t > 1100$ ).

Das abrupte Anwachsen einzelner Löcher beim Übergang vom linearen zum nichtlinearen Bereich schlägt sich auch in der mittleren Wellenzahl  $\langle k \rangle$  nieder. Ihr Zeitverlauf ist als rote Linie in Abb. 6.6 geplottet. Die vertikalen dünnen roten Linien repräsentieren die gezeigten Schnappschüsse der Simulation. Auch hier spiegelt der Peak den Übergang vom linearen zum nichtlinearen Bereich wider. Für die getroffene Wahl der Materialparameter ist der Peak aber sehr viel deutlicher ausgeprägt als bei den vorherigen Simulationen, was direkt mit dem nichtglatten Lochwachstum korreliert ist. (Der Peak für die gezeigte Simulation liegt bei  $t = 700$ . Die Mittelung über 10 Runs ergibt, wie dargestellt, eine Verschiebung des Peaks um  $\Delta t = 100$  in  $t$ -Richtung). Zur anschaulichen Erklärung dieses abrupten Lochwachstums kann die für die Instabilität wesentliche Mobilität  $Q_2(h)$  herangezogen werden. Der Nulldurchgang bei den gewählten Parametern ergibt sich aus (6.15) zu  $h_N \approx 1.2$ . D.h. für Grenzflächenhöhen  $h > h_N$  wirkt auch der Marangoni-Effekt stabilisierend. Da die Maxwellkonstruktion eine Lochstruktur vorhersagt, ist eine Verteilung mit der Grenzflächenhöhe  $h > 1$  im Gesamtvolumen prozentual größer als mit  $h < 1$ . Ein glattes gleichmäßiges Lochwachstum würde zu einem stärkeren Anwachsen des „oberen Plateaus“ ( $h > 1$ ) führen. Deshalb wachsen nur einzelne Löcher, die durch die zufälligen Anfangsbedingungen schon stärker deformiert sind.

Schließlich kann noch der Skalierungskoeffizient für  $t > 1000$  zu  $\tilde{\beta} = 0.27$  bestimmt werden. Die Skalierungskoeffizienten bei der Marangoni-Instabilität hängen also von der verwendeten Schichtdicke  $d$  ab.

### 6.3.3.3 Metastabile Zeitentwicklung

Die lineare Stabilitätsanalyse in Unterkapitel 6.2 hat die Möglichkeit der Stabilisierung eines Rayleigh-Taylor instabilen Systems durch entsprechend starke Heizung von unten gezeigt. Die Maxwellkonstruktion in Unterkapitel 6.3.2 führte aber zu einem metastabilen Zustand. Im Folgenden wird eine Simulation des metastabilen Systems mit starker Anregung gezeigt und die Strukturbildung im Rahmen des Energiefunktionals kurz diskutiert. Dazu wird das obige RT instabile System mit einer Systemdicke  $d = 1.3$  verwendet (vgl. Unterkapitel 6.3.3.1 und Maxwellkonstruktion in Abb. 6.4). Eine lineare Stabilitätsanalyse zeigt (6.31), dass das System stabilisiert werden kann durch Heizen von unten ( $M_c = 13.8$ , in Simulation  $M = 20$ ). Das Energiefunktional liefert jedoch einen metastabilen Zustand.

Abb. 6.9 zeigt die Evolution bei starker Anregung eines Kreisrings ( $h(r) \propto r^4$  und einer maximalen Deformation von  $h = 0.3 \pm 0.05$  im Zentrum des Kreises (siehe  $t = 0$ )). Zu Beginn der Simulation ist die untere Schichtdicke im Kreiszentrum gering, was in diesem Parameterbereich aus der Maxwellkonstruktion zu Tropfen als bevorzugtes Muster führt. Am Rand des Anregungskreises wird die untere Schichtdicke jedoch größer und eine Maxwellkonstruktion liefert dann zuerst einen Labyrinthbereich und schließlich einen Lochbereich (vgl. die bei  $t = 10$  eingezeichneten Kreise). Damit können für metastabile Systeme zumindest zeitweise Tropfen-, Loch- und Labyrinthmode gleichzeitig angeregt werden. Im Zeitverlauf verschwinden die Loch- und Labyrinthbereiche (von  $t = 100$  bis  $t = 2000$ ) und die Tropfen zeigen das übliche „Coarsening“-Verhalten in der Zeit. Für  $t \rightarrow \infty$  verschwindet auch dieser Tropfenbereich und als Endzustand resultiert schließlich ein einzelnes Loch (nicht gezeigt), was mit der Vorhersage aus der Maxwellkonstruktion übereinstimmt.

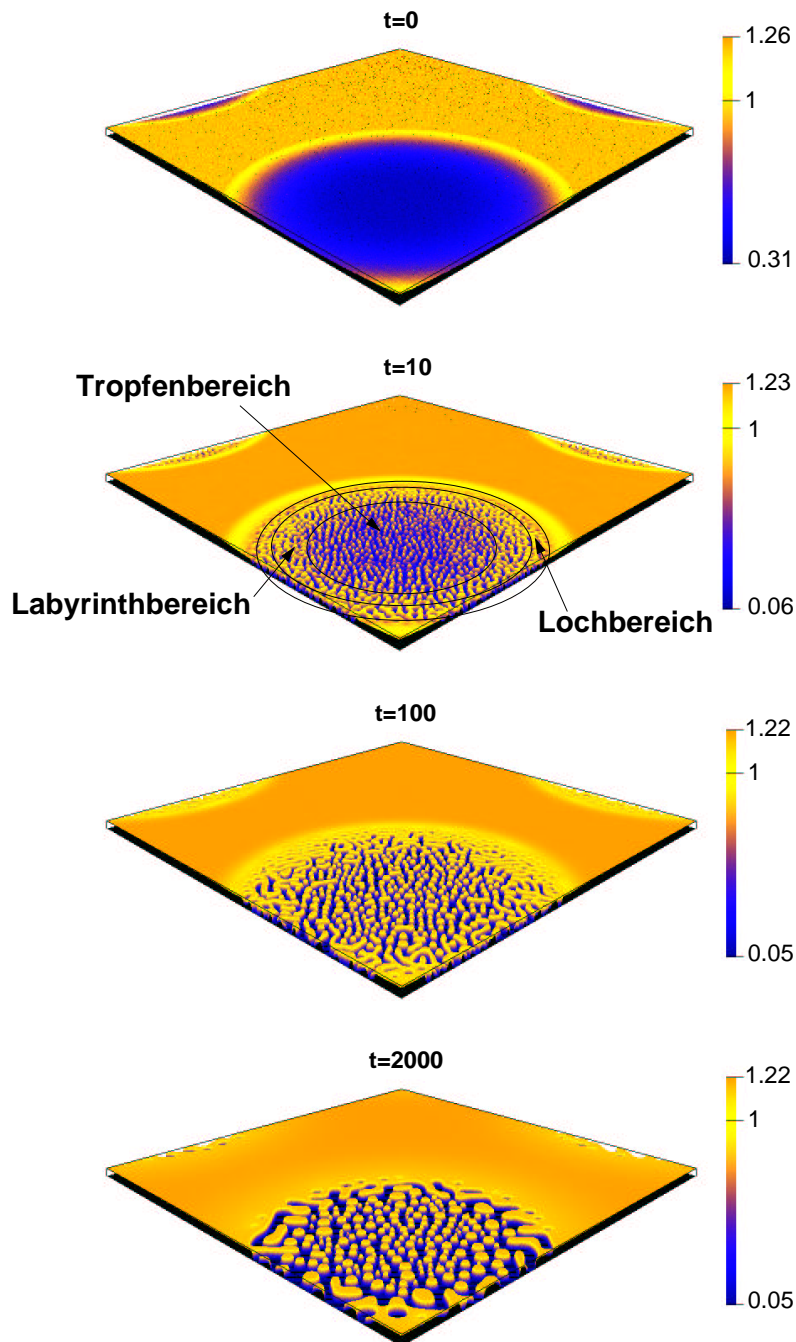


Abbildung 6.9: Zeitentwicklung eines metastabilen  $RT$ -Systems mit  $d = 1.3$  und  $M = 20$  ( $G = 20$ ,  $C = 1/20$ ). Hamaker-Konstanten  $H_1 = H_2 = 0.01$  und horizontale Systemlänge  $L_x = L_y = 400$  mit einer Auflösung von  $\Delta x = \Delta y = 0.5$ .

## 6.4 Einschicht-Näherungen

In der Literatur wird häufig mit erweiterten Einschicht-Modellen gearbeitet, um Eigenschaften der passiven (aber eventuell einflussnehmenden) Gas-schicht in gewissem Umfang Rechnung zu tragen. Ein Vergleich mit der hier abgeleiteten Zweischicht-Evolutionsgleichung (6.14) soll die Unterschiede gegenüber Einschicht-Modellen aufdecken, welche aus der Zweischicht-Gleichung durch oben kurz diskutierte Grenzwertbildung hervorgehen. Hierzu werden die Resultate der Experimente von BURGESS & AL. [30] eines Luft-Silikonöl-Systems herangezogen (Daten im Parametersatz 5).

BURGESS ET. AL [30] haben 2001 experimentell gezeigt, dass eine Stabilisierung durch „Heizen von unten“ möglich ist. In ihren Experimenten wurde ein durch horizontale Platten beschränktes Silikonöl-Luft-System so präpariert, dass das Silikonöl über der Luft „an der Decke“ hängt. Ohne Heizung ist dieses System RT-instabil und das Öl „fließt“ nach unten. Durch Anlegen eines entsprechend starken Temperaturgradienten war es ihnen jedoch möglich das System für eine Woche stabil zu halten. Die Schwierigkeiten des Experiments lagen in der Präparation des Silikonöls über der Luft, da laut BURGESS & AL. große Amplituden angeregt wurden und damit die „metastabile“ Schwelle überschritten wurde. Jedoch werden die folgenden Rechnungen zeigen, dass keine Metastabilität vorliegt. Zur theoretischen Behandlung wurde eine erweiterte Einschicht-Evolutionsgleichung in Langwellennäherung betrachtet [135], welche durch Grenzwertbildung aus dem hier untersuchten System (siehe [83] und Seite 85) folgt. Lineare und schwach nichtlineare Untersuchungen werden durch dieses vereinfachte Modell korrekt wiedergegeben, aber die volle nichtlineare Rechnung zeigt natürlich Unterschiede (vgl. mit Abb. 6.10).

Schließlich haben BURGESS & AL. mithilfe einer linearen Stabilitätsanalyse Abweichungen vom theoretischen kritischen Temperaturgradienten bis zu 30% gemessen, was auf „Pinning“ (Kohäsionskräfte) an den lateralen Rändern zurückgeführt und näher von BECERRIL & AL. [4] untersucht wurde.

Die Evolutionsgleichung kann in allen betrachteten Näherungen durch ein

Energiefunktional dargestellt werden (siehe (6.35))

$$\partial_t h = \nabla_2 \left( Q_1(h) \nabla_2 \frac{\delta \mathcal{E}}{\delta h} \right), \quad (6.43)$$

da alle Systeme nur mit Gravitation, Marangoni-Effekt und stabilisierenden van-der-Waals Kräften (bei der vollen nichtlinearen Integration) untersucht werden. Die Unterschiede der einzelnen Fälle liegen in der Wahl der Mobilitäten  $Q_1(h)$  und  $Q_2(h)$  (siehe (6.16)). Des Weiteren wird die freie Energie  $\mathcal{E}$  (und damit auch die freie Energiedichte  $V(h)$ ) in den genäherten Modellen durch die entsprechenden Grenzwerte der Normal-, Tangential- und Volumenkräfte gebildet (vgl. mit (6.27) und (6.29)). Damit resultiert dann:

(A) Einschichtiges Modell mit „herkömmlicher“ Biot-Zahl  $Bi$  [96]:

$$Q_1 = \frac{1}{3}h^3 \quad (Q_2 = -\frac{1}{2}h^2) \quad (6.44a)$$

$$\mathcal{E} = E_1 = \iint dx dy \left( \frac{1}{2}C^{-1}(\nabla_2 h)^2 + V_1(h) \right) \quad (6.44b)$$

$$V_1(h) = \frac{1}{2}G h^2 + \frac{H_1}{2}h^{-2} - \frac{3}{2}M Bi h(\ln(h) - \ln(1 + Bi h)) \quad (6.44c)$$

(B) „Burgess“-System: Einschichtiges Modell mit erweiterter Biot-Zahl  $Bi_2$  (siehe Unterkapitel 6.1.3 und Ref. [135]):

$$Q_1 = \frac{1}{3}h^3 \quad (Q_2 = -\frac{1}{2}h^2) \quad (6.45a)$$

$$\mathcal{E} = E_2 = \iint dx dy \left( \frac{1}{2}C^{-1}(\nabla_2 h)^2 + V_2(h) \right) \quad (6.45b)$$

$$V_2(h) = \frac{1}{2}G h^2 + \frac{H_1}{2}h^{-2} - \frac{3h}{2(1 + Bi_2)}M^B (\ln(Bi_2(1 - h) + 1) - \ln(h)) \quad (6.45c)$$

(C) Volles Zweischicht-System mit  $\mathcal{E}$  und  $V(h)$  aus (6.36). Dabei wird die tangentielle Referenzgeschwindigkeit durch  $u_0 = \epsilon \kappa_1 / h_0$  in (6.3) und im Folgenden ersetzt.

Um mit den Modellen (A) und (B) das Experiment von BURGESS & AL. zu beschreiben, muss die Silikonölschicht mit negativer Gravitations-Zahl betrachtet werden. Direkte Vergleiche mit unserem Modell (C) werden dann durch die Konfiguration „Luft auf Silikonöl“ mit negativer Gravitations-Zahl möglich. Die Mobilitäten der drei Konfigurationen (mit Parameterwerten aus Parametersatz 5 im Anhang E.2) sind in Abb. 6.10 dargestellt und zeigen, dass diese nur im stark nichtlinearen Bereich divergieren (d.h. wenn sich das Öl in der Nähe der gegenüberliegenden Platte befindet).

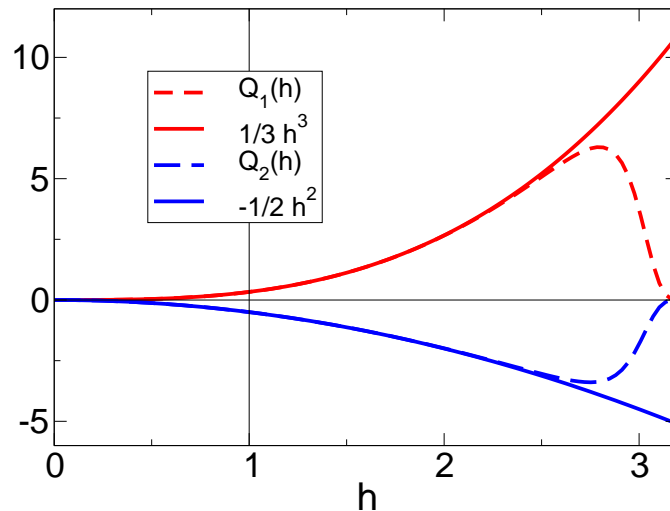


Abbildung 6.10: Mobilitäten für Luft auf Silikonöl mit  $d = 3.2$  und  $\mu = 9.55 \cdot 10^{-5}$ . Der Nulldurchgang der Mobilität  $Q_2$  ist bei  $h_N \approx d$ .

Die Berechnung des kritischen Temperaturgradienten mit den Werten aus Parametersatz 5 (ohne Trennungsdrücke) und einer realen Silikonöldicke von  $d_2 = 0.125 \text{ mm}$  bzw. Luftschichtdicke  $d_1 = 0.275 \text{ mm}$  liefert für die einzelnen Modelle:

$$(A) \quad \Delta T = 101.67 \text{ K} \quad (Bi = 0.38)$$

$$(B) \quad \Delta T = 14.96 \text{ K} \quad (Bi_2 = 0.35, M_c^B = -0.43)$$

$$(C) \quad \Delta T = 14.94 \text{ K} \quad (M_c = -6.025)$$

Die Biot-Zahlen wurden mit den Formeln auf Seite 85 bestimmt. Der geses-

sene Wert für diese Konfiguration beträgt  $\Delta T = 9.7 K$  [30]. Damit scheidet das herkömmliche Einschicht-System (A) zur Modellierung definitiv aus. Die beiden anderen Modelle ergeben in etwa die gleiche Temperaturdifferenz und zeigen eine Abweichung vom experimentellen Wert um ca. 30 %.

Die Möglichkeit der Energiefunktionalformulierung erlaubt wieder eine Aussage über das Langzeitverhalten. Abb. 6.11 zeigt  $-dV/dh$  in Abhängigkeit

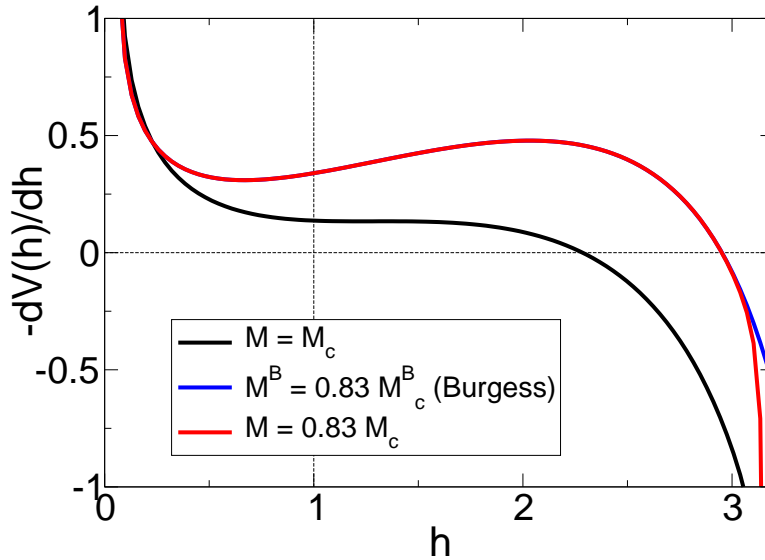


Abbildung 6.11:  $-dV(h)/dh$  als Funktion von  $h$ . Mit Parametersatz 5,  $G = -0.88$ ,  $C = 0.4$  und  $H_1 = H_2 = 0.0001$ . Zweischicht-System mit  $M = M_c$  (schwarz) und  $M = 0.83 M_c$  (rot). Einschicht-System mit  $M^B = 0.83 M_c^B$  (blau).

von  $h$ . Das Zweischicht-System für  $M = M_c$  zeigt, dass keine Maxwellkonstruktion möglich ist und damit das System stabil bleibt (schwarze Linie). Wird nun die Marangoni-Zahl um 17% (rot Linie) verringert, ist das System instabil und es folgt aus der Maxwellkonstruktion (nicht eingezeichnet) eine finale, stationäre Tropfenlösung (d.h. Öltropfen). Für das erweiterte Einschicht-, „Burgess“-System ist, wie schon bei den Mobilitäten, ersichtlich, dass nur in der Nähe von  $d$  eine Abweichung vom Zweischicht-System vorhanden ist. Somit kann zusammenfassend gesagt werden, dass das von BURGESS & AL. verwendete Einschicht-Modell (B) lineare Betrachtungen



und Folgerungen aus der Lyapunovdarstellung korrekt wieder gibt.

### 6.4.1 Einfluss der lateralen Systemlänge

Die Messungen wurden in lateral begrenzten Systemen durchgeführt, so dass sich im isothermen Fall in der Evolution zwei Öltropfen aus dem linearen Regime ablösten (siehe Abb. 3 in [30]). D.h. die laterale Systemlänge wurde so gewählt, dass sie zweimal der instabilsten linearen Mode  $k_{max}$  entspricht, und somit ein Einfluss auf die Stabilität im nichtisothermen Fall nicht auszuschließen ist. Deshalb soll die volle nichtlineare Zeitentwicklung mit unserem Zweischicht-System gezeigt werden, um einen einfachen Erklärungsansatz für das Absinken der gemessenen Stabilitätsschwelle ( $\Delta T_{exp} \approx 0.7 \cdot \Delta T_{theor}$ ) zu liefern. Dazu muss zuerst das Verhalten der linearen Wachstumsrate untersucht werden.

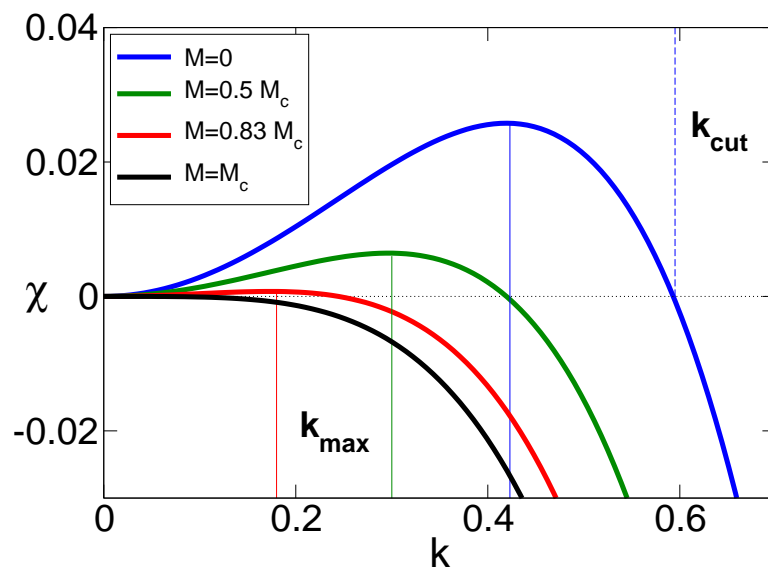


Abbildung 6.12: Wachstumsraten  $\chi(k)$  für den isothermen Fall (blau),  $M = 0.5 M_c$  (grün),  $M = 0.83 M_c$  (rot) und  $M = M_c$  (schwarz).  $C = 0.4$ ,  $G = -0.88$  und  $H_1 = H_2 = 0$ .

Abb. 6.12 zeigt, dass eine Vergrößerung des Betrags von  $M$  ( $\propto \Delta T$ ) eine Verkleinerung der linear schnellstwachsenden Wellenzahl  $k_{max}$  und der Cut-

off-Wellenzahl  $k_{cut}$  ( $= \sqrt{2}k_{max}$ ) bewirkt (siehe Gleichungen (6.32)). Damit ist offensichtlich, dass in einem lateral begrenzten System nahe, aber über der Schwelle (z.B.  $M = 0.83 M_c$ ) keine Instabilität zu Tage tritt, da die instabilen großen Wellenlängen nicht im begrenzten lateralen Bereich angeregt werden können.

Um den intuitiv klaren Sachverhalt, dass ein kleinerer  $k_{max}$  (bzw.  $k_{cut}$ ) Wert bei kleiner lateraler Ausdehnung nicht zur Instabilität führt, zu zeigen, werden volle nichtlineare Integrationen von (6.14) mit verschiedenen lateralen Systemlängen und Marangoni-Zahlen vorgestellt.

Abb. 6.13 zeigt die Zeitentwicklung der maximalen ( $h_{max}$ ) und der minimalen ( $h_{min}$ ) Höhe verschiedener numerischer Durchläufe. Es wurden jeweils drei Runs mit unterschiedlicher lateraler Systemlänge für eine Marangoni-Zahl durchgeführt ( $M = 0$ ,  $M = 0.5 M_c$  und  $M = 0.83 M_c$ ). Es zeigt sich, dass eine Verringerung der lateralen Systemabmessung immer zu einem späteren Übergang vom linearen zum nichtlinearen Bereich führt (vgl. Verlauf von dünnen ( $L = 40$ ), gestrichelten ( $L = 20$ ) und dicken ( $L = 10$ ) Linien).

Des Weiteren bewirkt eine betragsmäßig zunehmende Marangoni-Zahl  $M$  (von blau über grün nach rot) einen zeitlich verzögerten Übergang in den nichtlinearen Bereich („critical slowing down“). Schließlich wird für eine laterale Ausdehnung  $L \leq 10$  das linear instabile System mit  $M = 0.83 M_c$  nicht mehr destabilisiert (rote dicke Linie), da die Cut-off-Wellenlänge größer als die Systemlänge ist.

Die dargestellten Schnappschüsse der Simulationen sind durch die Buchstaben im obigen Bild angedeutet. Die Bilder (a) und (b) zeigen jeweils einen Konturplot der Grenzfläche für große Systemlängen ( $L_x = L_y = 40$ ) am Beginn des voll nichtlinearen Bereichs (helle Bereiche entsprechen dabei Öltropfen). Dabei ist deutlich erkennbar, dass im isothermen Fall (a)  $M = 0$  ( $t = 60$ , dünne blaue Linie mit  $L_x = L_y = 40$ ) sich deutlich mehr Tropfen ausgebildet als für  $M = 0.83 M_c$  (b) ( $t = 2000$ , dünne rote Linie mit  $L_x = L_y = 40$ ). Eine Verkleinerung der lateralen Systemlänge ( $L_x = L_y = 10$ ) führt zu keiner Destabilisierung der Grenzfläche im Fall

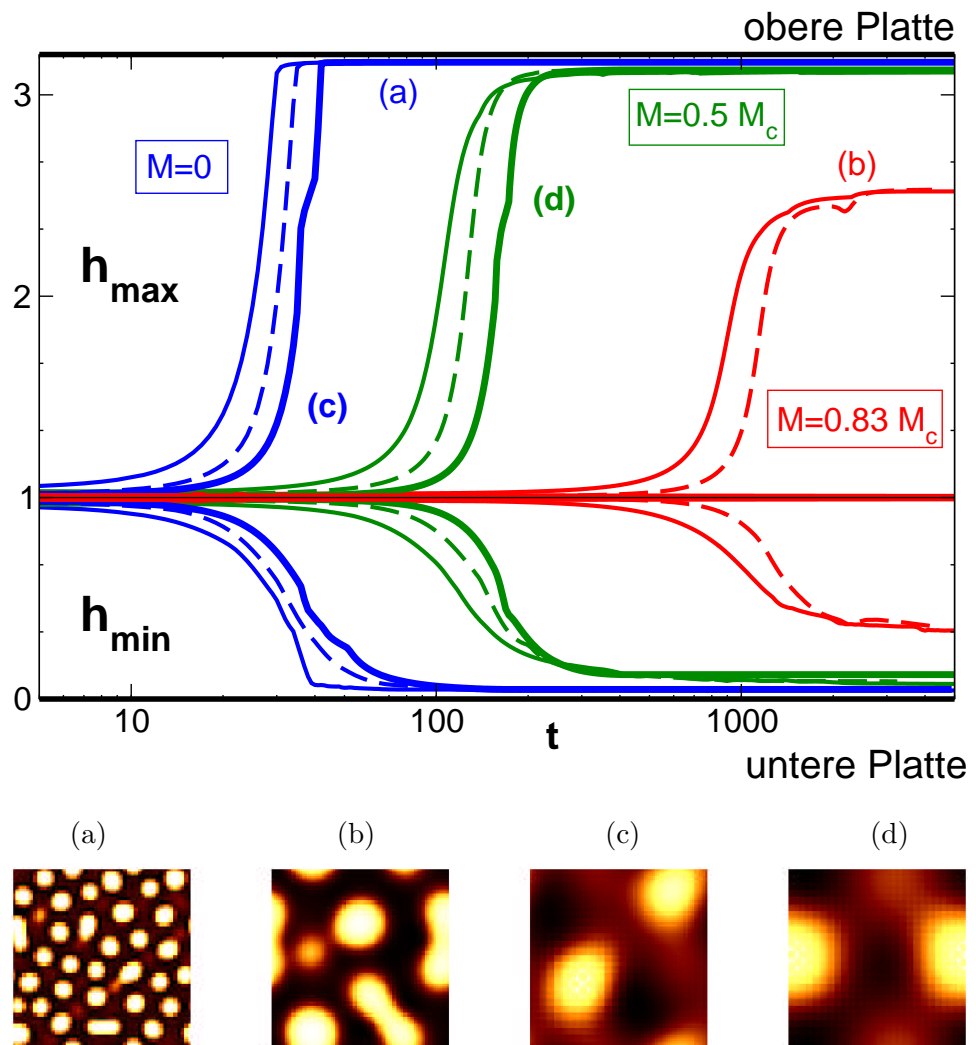


Abbildung 6.13: Maximale und minimale Höhe über der Zeit. Es sind jeweils drei Runs für  $M = 0$  (blau),  $M = 0.5 M_c$  (grün) und  $M = 0.83 M_c$  (rot) bei unterschiedlichen Systemlängen gezeigt ( $L_x = L_y = 40$  (dünne Linien),  $L_x = L_y = 20$  (gestrichelte Linien) und  $L_x = L_y = 10$  (dicke Linien)). Die Schnappschüsse der Simulationen sind an den Punkten (a), (b), (c) und (d) aufgenommen (siehe Text).

$M = 0.83 M_c$ . Die Schnappschüsse (c) und (d) zeigen die Strukturen beim Übergang vom linearen zum nichtlinearen Regime im isothermen Fall (c)  $M = 0$  (bei  $t = 36$ , dicke blaue Linie mit  $L_x = L_y = 10$ ) und für (d)  $M = 0.5 M_c$  (bei  $t = 160$ , dicke grüne Linie mit  $L_x = L_y = 10$ ). Für  $M = 0.5 M_c$  (grüne Linien) wird schon im linearen Bereich nur ein Tropfen angeregt. Eine Vergrößerung des Absolutbetrags (z.B. auf  $M = 0.83 M_c$ ) erlaubt dann keine Strukturbildung mehr.

„Pinning“-Effekte sind von BURGESS & AL. zur Erklärung des Absenkens der Schwelle herangezogen worden. Obige Untersuchung lässt jedoch vermuten, dass das „Pinning“ nicht der wesentliche Effekt der Stabilisierung ist. Die in dieser Arbeit verwendete Numerik (ADI-Verfahren) kann ohne größeren Aufwand auch für lateral beschränkte Systeme implementiert werden. Dies ermöglicht dann eine genauere Untersuchung des „Pinnings“ in zukünftigen Arbeiten.

## 6.5 Ausblick

Die Evolutionsgleichung der Grenzfläche (6.14) wurde in einer sehr allgemeinen Form abgeleitet und ermöglicht die Untersuchung von beliebigen Kräften in der entsprechenden Ordnung der Näherung. Die Untersuchungen in dieser Arbeit beschränkten sich auf Gravitationskräfte, abstoßende London-van-der-Waals Kräfte und den linearen Marangoni-Effekt. Als Beispiel anderer Kräfte sind elektrohydrodynamische Effekte zu nennen, welche mit dieser Gleichung von MERKT & AL. [83] untersucht wurden. Eine vertikal angelegte Spannung  $U$  führt dann bei dielektrischen Fluiden zu einer resultierenden Grenzflächenkraft. Es zeigt sich, dass der elektrohydrodynamische Spannungstensor [66] (in SI-Einheiten) in 0.ter Ordnung in  $\epsilon$  nur eine Normalkomponente besitzt

$$\mathcal{N}_{el} = \frac{1}{2} \frac{\epsilon(\epsilon - 1)\tilde{U}^2}{(\epsilon h + (d - h))^2} \quad (6.46)$$

mit dem Verhältnis der Permittivitätszahlen  $\epsilon = \epsilon_2/\epsilon_1$ , der skalierten Spannung  $\tilde{U} = U(\mu_1 u_0 h_0 / (\epsilon_0 \epsilon_1 \epsilon))^{(-1/2)}$  und der elektrischen Feldkonstanten  $\epsilon_0$ .

Die Rechnungen unter Verwendung von (6.46) wurden qualitativ mit den Experimenten von LIN & AL. [69, 70] verglichen. In ihren Experimenten dienten die oberen und unteren Begrenzungsplatten als Elektroden, und es wurde das raumzeitliche Verhalten zweier dünner, dielektrischer, nichtmischbarer Polymerfilme (PMMA-PDMS) bei Anlegen einer vertikalen Spannung untersucht. Es bilden sich dabei im Laufe der Zeit säulenartige Strukturen aus. Die theoretische Behandlung der Strukturbildung mit der linear schnellstwachsenden Wellenzahl  $k_{max}$  stellte sich als eine sehr gute Beschreibung der Experimente heraus (siehe z.B. ONUKI [93]).

Simulationen der hier abgeleiteten Gleichung zeigten, dass die Tropfenevolution (die hier den säulenartigen Strukturen entspricht) mit dem Experiment qualitativ übereinstimmt (Abb. 20 in [83] und Abb. 4 in [70]). Weiterhin konnte numerisch gezeigt werden, dass der Langzeitskalierungskoeffizient  $\tilde{\beta} = 0.04$  extrem klein ist und damit die lineare Wellenzahl der schnellstwachsenden Mode auch im nichtlinearen Bereich ihre Gültigkeit behält, was die oben erwähnte lineare Beschreibung rechtfertigt.

Mit elektrohydrodynamischen Konfigurationen dünner Filme wurde schon 1976 von MAJUMDAR und O'NEILL [73] eine Methode zur Messung der Oberflächenspannung aus der angelegten Spannung  $U$  vorgeschlagen. Dieses kleine Beispiel soll an dieser Stelle nicht näher erläutert werden und nur die zukünftigen Einsatzmöglichkeiten der Zweischicht-Dünnschichtgleichung (mit elektrischen, aber auch magnetischen Kräften) in industriellen Anwendungen illustrieren.

Weitere interessante Aspekte zur kontrollierten Strukturbildung in dünnen Filmen (als anwendungsorientierte Forschung) sind durch Verwendung hydrophober und hydrophiler Substrate gegeben. Messungen der Dynamik von ZHANG & AL. [144] eines Fluids zwischen einer hydrophoben und hydrophilen lateralen Platte (Janus interface) haben die Besonderheit von Wasser aufgezeigt. Nur (destilliertes) Wasser zeigte enorme Fluktuationen über die gesamte vertikale Ausdehnung des Systems in der Zeit. Andere polare (und unpolare) Fluide verhalten sich „ruhig“.

Als Abschluss seien die Stabilitätsuntersuchungen und Verfahren zur Er-

zeugung von kontrollierbaren hydrophilen Mikrokanälen von GAU & AL. [47] erwähnt. Ein hydrophobes Substrat wird mit hydrophilen Mikrostreifen bedampft. Damit können dann kontrollierte Fluidmuster auf den hydrophilen Streifen erzeugt werden. Es bilden sich flüssige Mikrokanäle aus, welche je nach Volumen des aufgetragenen Fluids einen Verbindungspunkt haben (Auftragung von viel Fluid) oder Einzelkanäle ausbilden (Auftragung von wenig Fluid). Je nach Fluidwahl können dann verschiedene Arten von Mikrochips (z.B. durch Polymerisation von Elektrolyten) oder Mikroreaktoren (kontrolliertes Aufbringen zweier flüssiger Reaktanten) erzeugt werden. Solche Verfahren sind schon patentiert.

# Kapitel 7

## Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden die beiden Näherungen „nichtdeformierbare Grenzfläche“ und „langwellige Strukturen“ in Zweischicht-Systemen untersucht. Dabei wurden neben analytischen Untersuchungen hauptsächlich numerische Berechnungen durchgeführt. Es wurde ein Einblick in die Vielfalt der Instabilitätsmechanismen, Zeitentwicklungen und der Musterbildung in Zweischicht-Systemen gegeben.

In Kapitel 3 wurden die in dieser Arbeit verwendeten Grundgleichung (Navier-Stokes-, Kontinuitäts- und Wärmeleitgleichungen) samt Grenzflächenbedingungen eingeführt und die auftretenden Terme erläutert.

Kapitel 4 stellte die Gleichungen für beide Fluidschichten und die Grenzflächenbedingungen für eine undeformierbare Grenzfläche in Boussinesq-Näherung vor (im Wesentlichen wurde dies auch in Kapitel 5 verwendet). Die Untersuchungen erstreckten sich auf den eher unbekanntem Instabilitätsmechanismus Antikonvektion, welcher durch ein komplexes Zusammenspiel von Volumen- und Grenzflächenkräften zustande kommt. Dieser Instabilitätsmechanismus tritt nur in Zweischicht-Systemen mit Gravitation auf. Das System muss von oben geheizt werden. Es wurde die zu diesem Themengebiet erstmals von WELANDER [138] durchgeführte analytische Rechnung für unendlich vertikal ausgedehnte Systeme reproduziert und erweitert. Es konnte dabei ein analytischer Ausdruck für die kritische Rayleigh-Zahl in

Abhängigkeit der Materialparameter und der Wellenzahl gefunden werden ( $R_c \propto k^4$ ). Der Vergleich mit dem vertikal begrenzten System wurde numerisch durchgeführt und zeigte klar den Einfluss der vertikalen Begrenzungen. Lineare Untersuchungen deckten in vertikal begrenzten Systemen die Stabilisierung jeder Wellenzahl bei entsprechend starker Heizung auf. Dieses Verhalten ist offensichtlich das erstaunlichste Ergebnis für auftriebsinduzierte Konvektion. Abschließend wurden zum ersten Mal 3D-Simulationen zur Antikonvektion vorgestellt und es konnte ein Übergang Hexagone-Quadrate bei Vergrößerung des Kontrollparameters festgestellt werden. Die Untersuchungen wurden an einem Quecksilber-Wasser-System durchgeführt, da dies das einzig bekannte antikonvektive System ist. Jedoch kann durch Wärmesenken oder -quellen in jedem Zweischicht-System eine antikonvektive Instabilität auftreten. Numerische Experimente zeigten die zu erwartenden Konvektionsstrukturen mit Wärmesenken oder -quellen an der Grenzfläche. Experimente zur Antikonvektion bleiben als zukünftige Herausforderung.

Verdampfung als Paradebeispiel eines Phasenübergangs 1.Ordnung wurde in Kapitel 5 untersucht. Dabei wurde wie im vorherigen Kapitel eine undeformierbare Grenzfläche vorausgesetzt, was für nicht zu starke Verdampfung gültig ist. Beginnend mit Modell 1, welches noch eine explizite Gleichung für den Massenfluss an der Grenzfläche enthält, wurde durch sukzessive Vereinfachung (Modell 2) schließlich das einseitige Modell 3 erhalten, welches dem 1958 von PEARSON [102] vorgestellten Modell mit großer Biot-Zahl entspricht (Marangoni-Konvektion bei Heizung von unten mit freier Oberfläche). Die physikalische Natur der großen Biot-Zahl liegt in der Verdampfung. Es wurde allein durch die latente Wärme, ohne Anlegen eines äußeren Temperaturgradienten, ein Temperaturgradient sowohl in der Flüssigkeits- als auch der Dampfschicht erzeugt. Bei nicht zu dicken Flüssigkeitsschichten ist der Marangoni-Effekt der wesentliche Instabilitätsmechanismus, der Gravitationseffekt wurde vernachlässigt. Alle drei Modelle wurden einem linearen Vergleich unterzogen und es zeigte sich eine exzellente Übereinstimmung. Für das Modell 3 konnte durch numerische Integration der vollen nichtlinearen Gleichungen gezeigt werden, dass durch große Biot-Zahlen ein Übergang hexagonale-quadratische-zeitabhängige Muster bei Vergrößerung



des Kontrollparameters  $\varepsilon$  beobachtbar ist. Die Verschiebung dieser Übergänge zu kleineren  $\varepsilon$  wird allein durch die große Biot-Zahl, und damit durch Verdampfung, verursacht. Darüber hinaus konnte aus der nichtlinearen Integration eine mittlere Wellenlänge bestimmt werden. Es hat sich gezeigt, dass bei Vergrößerung des Kontrollparameters zuerst ein Anwachsen und bei noch größerem  $\varepsilon$  ein Absinken der mittleren Wellenzahl stattfindet. Dieser Effekt tritt nur bei großer Biot-Zahl zu Tage. Die gefundenen Muster der Temperaturverteilung an der Grenzfläche im zeitabhängigen Bereich stimmen erstaunlich gut mit den Messungen von SAYLOR & AL. [117] überein. Eine qualitative Koinzidenz des Übergangs zeitabhängig-Quadrat-Hexagone bei Erniedrigung des Kontrollparameters mit den Experimenten von MANCINI und MAZA [74] ist offensichtlich. Quantitative Auswertungen stehen aber noch aus.

Für sehr dünne Zweischicht-Systeme spielen Deformationen der Grenzfläche die entscheidende Rolle. In Kapitel 6 wurde die Evolutionsgleichung der Grenzfläche in Schmiermittelnäherung nullter Ordnung aus den Grundgleichungen abgeleitet. Die sehr allgemeine Form dieser Gleichung erlaubt die Verwendung beliebiger Volumen- und Grenzflächenkräfte in der entsprechenden Ordnung. Es zeigte sich, dass die Mobilitäten  $Q_1$  (für Volumen- und normale Grenzflächenkräfte) und  $Q_2$  (für tangentielle Grenzflächenkräfte) komplizierte Funktionen in  $h$  sind. Darüber hinaus sind beide Mobilitäten Funktionen eines Materialparameters des Systems, dem Verhältnis der Viskositäten  $\mu$ , und *keine* monotonen Funktionen der Grenzflächenposition  $h$ .  $Q_1$  und  $Q_2$  gehen an den vertikalen Begrenzungen gegen Null. Während  $Q_1$  eine nichtnegative Funktion in  $h$  ist, besitzt  $Q_2$  einen Nulldurchgang, welcher einen entscheidenden Einfluss auf die Evolution des Systems hat: Tangentielle Grenzflächenkräfte, wie der verwendete Marangoni-Effekt, können sowohl stabilisierend als auch destabilisierend wirken allein durch Änderung der totalen Systemdicke  $d$  oder des Verhältnisses der Viskositäten  $\mu$ . In dieser Arbeit wurde im Wesentlichen der destabilisierende Einfluss von Gravitationskräften und des Marangoni-Effekts untersucht. Abstoßende London-van-der-Waals-Kräfte hinderten die Grenzfläche lediglich am Aufreißen in der Nähe der oberen oder unteren horizontalen Begrenzungsplatte.

Es konnte gezeigt werden, dass für diese Kräfte eine analytische Formulierung durch ein Lyapunovfunktional möglich ist. Diese Energieformulierung zeigt, dass das System monoton für  $t \rightarrow \infty$  in sein Energieminimum läuft und ein stationärer Endzustand erreicht wird. Weiterhin erlaubt die Lyapunovformulierung eine Maxwellkonstruktion, was Aussagen über die stationären Zustände für  $t \rightarrow \infty$  ermöglicht. So kann vorhergesagt werden, ob ein Loch, Tropfen oder Front als Endzustand resultiert. Diese analytischen Aussagen sind voll und ganz durch numerische Integration der Evolutionsgleichung bestätigt worden. Schließlich können mit dieser Energiefunktionalformulierung metastabile Zustände aufgedeckt werden. Es wurden zum ersten Mal volle 3D-Simulationen eines Zweischicht-Systems in Schmiermittelnäherung vorgestellt. Es zeigte sich, dass ein linearer Kurzzeitbereich und ein nichtlinearer Langzeitbereich klar unterschieden werden kann. An diesem Übergang konnte bei bestimmter Parameterwahl ein abruptes Anwachsen einzelner linearer Strukturen (Löcher) beobachtet werden. Dieses Verhalten ist direkt mit dem nichtmonotonen Verlauf der Mobilitäten korreliert. Diese Simulationen ermöglichten darüber hinaus die Extraktion des Langzeitskalierungskoeffizienten  $\tilde{\beta}$  der mittleren Wellenzahl. Es zeigte sich, dass dieser Skalierungskoeffizient bei tangentialen Grenzflächenkräften (Marangoni-Effekt) allein durch Änderung der Systemdicke (und damit des Verhältnisses der Schichtdicken) geändert werden kann. Im Gegensatz dazu stehen die hier verwendeten normalen Grenzflächenkräfte (Gravitation), welche keinen Einfluss auf das Skalierungsverhalten gezeigt haben. Ist eines der beiden Fluide ein Gas (d.h. kleine dynamische Viskosität), so folgen durch passende Grenzwertbildung die hinlänglich untersuchten Einschicht-Gleichungen. Dies wurde anhand des experimentell von BURGESS & AL. [30] untersuchten Systems demonstriert. Volle 3D-Simulationen mit kleiner lateraler Systemlänge lieferten schließlich einen Erklärungsansatz für das Absinken der Stabilitätsschwelle in diesen Experimenten.

Vom anwendungsbezogenen Blickpunkt ist diese allgemeine Evolutionsgleichung der Grenzfläche sicherlich das wichtigste Ergebnis dieser Arbeit. So werden in der Halbleitertechnik, Biomedizin und Mikroelektronik dünne Flüssigkeitsfilme zur Manipulation von gewünschten Oberflächenstrukturen

verwendet. Da das hier abgeleitete Zweischicht-System durch die vertikalen Begrenzungen einen in jedem Raumpunkt physikalisch wohldefinierten Zustand hat, ist es offensichtlich, dass es das geeignetere System für nichtlineare Vergleiche mit experimentellen Untersuchungen ist als die entsprechende Einschicht-Evolutionsgleichung. Obwohl die hier abgeleitete Zweischicht-Gleichung wesentlich komplexere Mobilitätsfunktionen hat, können dennoch alle mathematischen Standardverfahren (Lineare Stabilitätsanalyse, Maxwellkonstruktion) mit nur leicht größerem Aufwand durchgeführt werden. Als Aufgaben für die Zukunft bleibt die Untersuchung anderer Kräfte (elektrische und magnetische Kräfte, heterogene Substrate, etc.) und ein tieferer Einblick auf die im Anhang ausführlich diskutierte „Vorticityfunktion“, da diese offensichtlich zu einer, wenn auch nicht grundlegend, anderen Zeitdynamik (aber nicht zu einem anderen stationären Endzustand) führt.

Für die Numerik der gesamten Arbeit wurde ausschließlich freie kostenlos erhältliche Software unter Linux verwendet: Das lineare Algebra Packet LAPACK, die FFT von Fftw und die compaq extended math library (kostenlos, falls eine ALPHA Workstation gekauft wird), die Grafikpakete PGPLOT, XmGrace und OpenGL. Die Standard C++ compiler (gnu g++ und compaq cxx) sind ebenfalls frei erhältlich. Alle numerischen Rechnungen wurden auf ALPHA-Workstations durchgeführt, aber jedes Programm läuft auch auf handelsüblichen PC's. Sämtliche Ergebnisse können also jederzeit (und prinzipiell von jedermann) ohne Kostenaufwand für Spezialsoftware und High-end Computern reproduziert werden.



## Anhang A

# Welander-System: Marginale Wurzeln

Unter der Annahme einer monotonen Instabilität kann das lineare Problem der Antikonvektion an der Schwelle ( $\chi = 0$ ) allein durch die Eigenfunktionen der vertikalen Geschwindigkeiten dargestellt werden (siehe z.B. CHANDRASEKHAR [31] für die Rayleigh-Bénard-Konvektion in Einschicht-Systemen). Die Temperatur wird eliminiert und das generalisierte Eigenwertproblem aus (3.6) für die Eigenfunktionen  $\mathcal{X}_m$  reduziert sich auf die Eigenfunktionen der vertikalen Geschwindigkeitskomponenten  $\varphi_m$ :

$$(\partial_z^2 - k^2)^3 \varphi_1 = -R_c \beta_1 k^2 \varphi_1 \quad (\text{A.1a})$$

$$(\partial_z^2 - k^2)^3 \varphi_2 = -R_c \beta_1 k^2 c_4 \varphi_2. \quad (\text{A.1b})$$

Die Anschlussbedingungen an der Grenzfläche haben dann die Form

$$\varphi_1 = 0 \quad (\text{A.2a})$$

$$\varphi_2 = 0 \quad (\text{A.2b})$$

$$\partial_z \varphi_1 = \partial_z \varphi_2 \quad (\text{A.2c})$$

$$\partial_z^2 \varphi_1 = c_1 \partial_z^2 \varphi_2 \quad (\text{A.2d})$$

$$(\partial_z^2 - k^2)^2 \varphi_1 = c_2 (\partial_z^2 - k^2)^2 \varphi_2 \quad (\text{A.2e})$$

$$\partial_z (\partial_z^2 - k^2)^2 \varphi_1 = c_3 \partial_z (\partial_z^2 - k^2)^2 \varphi_2 \quad (\text{A.2f})$$

mit den Abkürzungen

$$c_1 = \rho\nu, \quad c_2 = \frac{\nu}{\alpha}, \quad c_3 = \frac{\nu\lambda}{\alpha}, \quad c_4 = \left(\frac{\alpha}{\nu\kappa\lambda}\right)^{1/3}. \quad (\text{A.3})$$

Die Randbedingungen für unendlich vertikal ausgedehnte Fluide ( $z \rightarrow \mp\infty$  mit der Grenzfläche an der Stelle  $z = 0$ ) sind

$$\varphi_1 = 0 \quad (\text{für } z \rightarrow -\infty) \quad \text{und} \quad \varphi_2 = 0 \quad (\text{für } z \rightarrow \infty). \quad (\text{A.4})$$

Mit dem Ansatz  $\varphi_m \propto \exp(rz)$  können die dritten Wurzeln der beiden Gleichungen (A.1) analytisch berechnet werden. Da nur eine Heizung von oben betrachtet wird, ist  $R_c < 0$  und damit sind die Koeffizienten auf der rechten Seite immer positiv. Somit ergeben die 6 Wurzeln

$$r_{1,2m} = \pm \underbrace{\sqrt{k^2 + G_m}}_{s_{1m}} \quad (\text{A.5a})$$

$$r_{3,4m} = \pm \frac{1}{2} \underbrace{\sqrt{\sqrt{Z_m^2 + 3G_m^2} + Z_m}}_{s_{2m}} \mp i \frac{1}{2} \underbrace{\sqrt{\sqrt{Z_m^2 + 3G_m^2} - Z_m}}_{s_{3m}} \quad (\text{A.5b})$$

$$r_{5,6m} = \pm \frac{1}{2} \sqrt{\sqrt{Z_m^2 + 3G_m^2} + Z_m} \pm i \frac{1}{2} \sqrt{\sqrt{Z_m^2 + 3G_m^2} - Z_m} \quad (\text{A.5c})$$

mit  $m = 1, 2$  (Fluid 1,2),  $Z_m = 2k^2 + G_m$ ,  $G_1 = \sqrt[3]{-R_c\beta_1 k^2}$  und  $G_2 = c_4 \sqrt[3]{-R_c\beta_1 k^2}$  für das untere Fluid 1, respektive das obere Fluid 2.

In Abb. A.1 sind die Wurzeln in der Gaußschen Ebene gezeigt, wenn  $G_m > 2k^2$  ist, was im Folgenden gelten soll. Für vertikal unendlich ausgedehnte Fluide kann jetzt ein analytischer Ausdruck für die marginale Rayleigh-Zahl  $R_c$  berechnet werden [86]. Es wird die Grenzfläche an die Stelle  $z = 0$  verschoben und ein Modenansatz gewählt. Da die Moden im Unendlichen ( $z \rightarrow \mp\infty$ ) abklingen sollen (siehe (A.4)), müssen nur drei Wurzeln pro Fluid mitgenommen werden

$$\varphi_m = C_{1m} e^{(-1)^{m+1} r_{1m} z} + C_{2m} e^{(-1)^{m+1} r_{3m} z} + C_{3m} e^{(-1)^{m+1} r_{5m} z}. \quad (\text{A.6})$$

Diesen Ansatz eingesetzt in die 6 Grenzflächenbedingungen (A.2) liefert ein lineares, homogenes, algebraisches Gleichungssystem für die Amplituden  $C$ , das nur nichttriviale Lösungen hat, wenn die Determinante der resultierenden Matrix Null ist.

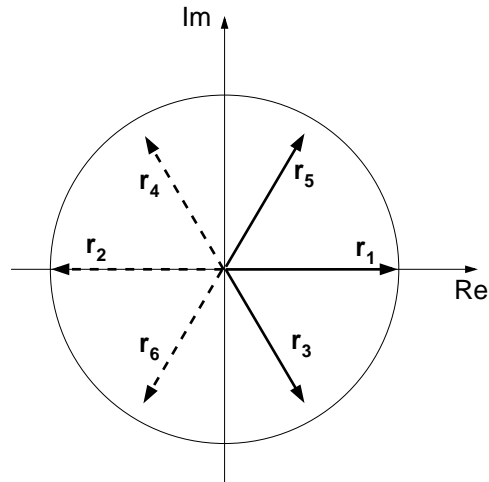


Abbildung A.1: Wurzeln für  $G_m > 2k^2$ . Für vertikal unendlich ausgedehnte Schichten werden nur die drei Wurzeln mit  $\Re > 0$  (durchgezogene Linien) für Fluid 1, bzw.  $\Re < 0$  (gestrichelte Linien) für Fluid 2 mitgenommen.

Die etwas aufwändige Rechnung liefert dann eine, schon von WELANDER [138] abgeleitete, Gleichung einer Fläche 2.Ordnung im  $c_1, c_2, c_3$ -Raum (Raum aufgespannt von den Materialparameterfunktionen aus (A.3)). Diese Gleichung kann aber auch als quadratische Form der Real- und Imaginärteile der entsprechenden Wurzeln interpretiert werden

$$\vec{U}^T \underline{\mathbf{H}} \vec{U} = 0 \quad \text{mit} \quad \underline{\mathbf{H}} = \begin{pmatrix} \underline{\mathbf{H}}_1 & \underline{\mathbf{H}}_3 \\ \underline{\mathbf{H}}_3^T & \underline{\mathbf{H}}_2 \end{pmatrix} \quad (\text{A.7})$$

als symmetrische Matrix, die nur von den Materialparametern abhängt, und  $\vec{U} = (s_{11}, s_{21}, s_{31}, s_{12}, s_{22}, s_{32})^T$ . Dabei haben die Untermatrizen die Form

$$\underline{\mathbf{H}}_1 = \begin{pmatrix} 0 & -h_1 & -\sqrt{3}h_1 \\ -h_1 & 2h_1 & 0 \\ -\sqrt{3}h_1 & 0 & 2h_1 \end{pmatrix}, \quad \underline{\mathbf{H}}_2 = \frac{h_4}{h_1} \cdot \underline{\mathbf{H}}_1,$$

$$\underline{\mathbf{H}}_3 = \frac{3}{2} \begin{pmatrix} \left( h_2 - h_3 - \frac{4}{81} \frac{h_1 h_4}{h_3} \right) & \left( h_3 - h_2 - \frac{8}{81} \frac{h_1 h_4}{h_3} \right) & -\sqrt{3}(h_2 + h_3) \\ \left( \frac{4}{81} \frac{h_1 h_4}{h_3} - h_2 - 2h_3 \right) & \left( h_2 + 2h_3 - \frac{8}{81} \frac{h_1 h_4}{h_3} \right) & \sqrt{3}(h_2 - 2h_3) \\ \sqrt{3} \left( -h_2 - \frac{4}{81} \frac{h_1 h_4}{h_3} \right) & \sqrt{3} \left( h_2 - \frac{8}{81} \frac{h_1 h_4}{h_3} \right) & 3h_2 \end{pmatrix}$$

mit den Abkürzungen  $h_1 = \frac{9}{2}c_4^2c_1c_2$ ,  $h_2 = c_4^3c_2c_3 + c_1$ ,  $h_3 = c_4c_2$  und  $h_4 = \frac{9}{2}c_4c_3$ .

Es können jetzt die Produkte der Real- und Imaginärteile der Wurzeln entwickelt werden. Insgesamt sind in der quadratischen Form (A.7) 17 Produkte der Real- und Imaginärteile der Wurzeln zu berücksichtigen. Es sollen exemplarisch nur 2 Entwicklungen explizit gezeigt werden (mit  $\mathcal{G} = G_1 \cdot k^{3/2} = \sqrt[3]{-R_c\beta_1}$ ):

$$\begin{aligned}
 s_{1_1}s_{2_1} &= \frac{1}{2}\mathcal{G}k^{2/3} + \frac{1}{2}k^2 + \frac{3}{16\mathcal{G}}k^{10/3} + O(k^{14/3}) \\
 \vdots & \quad \vdots & \quad \vdots & \quad \vdots & \quad \vdots \\
 s_{1_1}s_{3_2} &= \frac{\sqrt{3c_4}}{2}\mathcal{G}k^{2/3} + \frac{\sqrt{3}(c_4-1)}{4\sqrt{c_4}}k^2 - \frac{\sqrt{3}(c_4+2)}{16\sqrt{c_4}\mathcal{G}}k^{10/3} + O(k^{14/3}) \\
 \vdots & \quad \vdots & \quad \vdots & \quad \vdots & \quad \vdots
 \end{aligned} \tag{A.8}$$

Es sei bemerkt, dass die Koeffizienten der  $k^2$ -Terme alle unabhängig von  $\mathcal{G}$  und damit unabhängig von  $R_c$  sind. Die Koeffizienten der  $k^{10/3}$ -Terme zeigen immer eine  $1/\mathcal{G}$  Abhängigkeit und die Koeffizienten der  $k^{2/3}$ -Terme sind proportional zu  $\mathcal{G}$ . In Abb. A.2 sind die original und die entwickelten

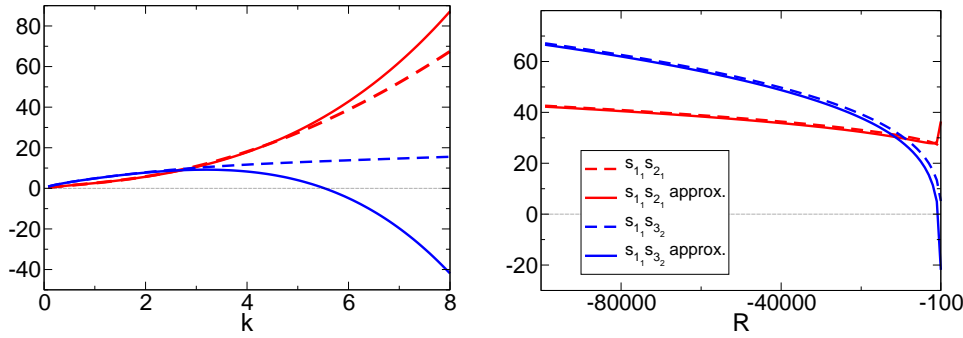


Abbildung A.2: Fehlerbetrachtung der Entwicklung der Produkte der Wurzeln. Links: in Abhängigkeit von  $k$  für  $R = -1000$ . Rechts: in Abhängigkeit von  $R$  für  $k = 5$ . Die hier untersuchten Systeme haben immer ein kleineres  $k$  und einen größeren Absolutwert  $|R|$ .

Produkte (aus (A.8)) für verschiedene  $k$ - und  $R$ -Werte geplottet (mit dem



Quecksilber-Wasser-System aus Anhang E.2, Parametersatz 2 und  $d = 1$ ). Es ist ersichtlich, dass für große Absolutwerte von  $R$  und kleine Wellenzahlen  $k$  (was hier immer erfüllt ist) die Entwicklung eine nahezu perfekte Übereinstimmung mit den Produkten selbst hat. Dies gilt auch für alle anderen entwickelten Produkte.

Werden die Entwicklungen (A.8) in die quadratische Form (A.7) eingesetzt und  $\mathcal{G}$  rücks substituiert, dann resultiert nach einer kleinen, feinen Rechnung letztendlich die marginale Rayleigh-Zahl

$$R_c = - \left( \frac{A_2 \pm \sqrt{A_2^2 - 4A_1A_3}}{2A_1\beta_1^{1/3}} \right)^3 \cdot k^4 \quad (\text{A.9})$$

mit den nur von Materialparametern abhängigen Größen

$$\begin{aligned} A_1 &= 4c_4^2 \left[ c_2c_3c_4^3 - 4c_1c_3c_4^2 - 3(c_1c_2 + c_3)c_4^{3/2} - 4c_2c_4 + c_1 \right] \\ A_2 &= 4c_4 \left[ c_2c_3c_4^4 + c_3(c_2 - c_1)c_4^3 + 3c_1c_2c_4^{5/2} + 2(c_2 + c_1c_3)c_4^2 + 3c_3c_4^{3/2} + \right. \\ &\quad \left. (c_1 - c_2)c_4 + c_1 \right] \\ A_3 &= c_2c_3c_4^5 + 2c_3(c_1 + 2c_2)c_4^4 + 9c_1c_2c_4^{7/2} + (c_2c_3 - c_2 + 2c_1c_3)c_4^3 + \\ &\quad (c_1 - c_1c_3 + 2c_2)c_4^2 + 9c_3c_4^{3/2} + 2(c_2 + 2c_1)c_4 + c_1. \end{aligned}$$

Ein weiteres, eher akademisches Resultat liefert eine Hauptachsentransformation der quadratischen Form (A.7) mit Rücksubstitution der Materialparameter (A.3) auf

$$\frac{6}{5}\nu^2\rho^2\kappa^2 \left( \frac{\alpha}{\nu\lambda\kappa} \right)^{4/3} \left( (1 + \sqrt{5}) \cdot \tilde{s}_{1_1}^2 + (1 - \sqrt{5}) \cdot \tilde{s}_{2_1}^2 + 2\tilde{s}_{3_1}^2 \right) = (\rho\kappa\alpha - 1)^2 \cdot \tilde{s}_{1_2}^2,$$

d.h. im Allgemeinen sind zwei Eigenwerte negativ, zwei positiv und zwei Null. Dies entspricht einem einschaligen Hyperboloid im resultierenden transformierten  $(\tilde{s}_{1_1}, \tilde{s}_{2_1}, \tilde{s}_{3_1}, \tilde{s}_{1_2})$ -Raum, welches für den Fall  $\rho = 1/(\alpha\kappa)$  zu einem Kegel entartet.



# Anhang B

## Meanflow

### B.1 Herleitung und Gleichung

Die Herleitung der Evolutionsgleichung (6.12) in 3D erfolgt analog bis zur Gleichung (6.11). Diese hat in 3D die Form

$$\operatorname{div}_2 \vec{S} = \partial_x S_x + \partial_y S_y = 0 \quad (\text{B.1})$$

mit der zweidimensionalen Divergenz  $\operatorname{div}_2 = (\partial_x, \partial_y, 0)$  und dem Gesamtfluss  $\vec{S}$ ,

$$S_x = \underbrace{\int_0^h dz u_{x1}}_{S_{1x}} + \underbrace{\int_h^d dz u_{x2}}_{S_{2x}} \quad \text{und} \quad S_y = \underbrace{\int_0^h dz u_{y1}}_{S_{1y}} + \underbrace{\int_h^d dz u_{y2}}_{S_{2y}}. \quad (\text{B.2})$$

$u_{y_k}$  sind die  $y$ -Komponenten der Geschwindigkeiten. Die Divergenzfreiheit des Gesamtflusses (B.1) ist die mathematische Formulierung der Massenerhaltung *und* der vertikalen Beschränkung ( $0 \leq h \leq d$ ) des Systems. Es sei bemerkt, dass die weitreichend untersuchten Einsicht-Systeme keine vertikale Beschränkung zeigen (mathematisch kann der Fall  $h \rightarrow \infty$  eintreten) und damit kein Meanflow resultiert. Zum qualitativen Verständnis kann die Relation (B.1) ohne symmetriebrechende Effekte (z.B. geneigtes System) als

$$\vec{S}_1 + \vec{S}_2 = \vec{V} \quad (\text{B.3})$$

dargestellt werden, mit dem Gesamtfluss  $\vec{S}_1 = (S_{1x}, S_{1y})$  des unteren Fluids, dem Gesamtfluss  $\vec{S}_2 = (S_{2x}, S_{2y})$  des oberen Fluids und einem Vektor  $\vec{V} =$

$\text{rot}(f\vec{e}_z)$  (siehe unten). Im 2D-Fall ( $S_y = 0$ ) zeigt sich, dass  $\vec{V} = 0$  und damit der Fluss im unteren Fluid durch den entsprechenden entgegengesetzten Fluss im oberen Fluid kompensiert wird. Im 3D-Fall ist aber im Allgemeinen der Gesamtfluss des oberen Fluids  $\vec{S}_2$  nicht gleich dem negativen des Gesamtflusses des unteren Fluids  $\vec{S}_1$ . Im Extremfall kann ein Fluss im unteren Fluid in  $x$ -Richtung auch allein durch einen Fluss im oberen Fluid in  $y$ -Richtung kompensiert werden, was durch den zusätzlichen Vektor  $\vec{V}$  (Rotationsfeld) bedingt ist und damit zu einem modifizierten dynamischen Verhalten führt.

Zur quantitativen Untersuchung werden die Geschwindigkeiten durch (6.9) substituiert ( $u_{y_k}$  ergeben sich durch Substitution von  $\partial_x \rightarrow \partial_y$  und  $T_x \rightarrow T_y$ ) und die Integrationen in (B.2) durchgeführt. Es resultiert

$$\nabla_2 \left[ A(h) \left( \nabla_2 \tilde{P}_1 - F_1(h) \nabla_2 (\mathcal{N} + \Phi) - F_2(h) \vec{T} \right) \right] = 0 \quad (\text{B.4})$$

mit

$$A(h) = -\frac{(d-h)^4 + h\mu(h^3(\mu-2) + 4dh^2 - 6d^2h + 4d^3)}{12\mu(h(\mu-1) + d)} \quad (\text{B.5a})$$

$$F_1(h) = 3\frac{h^2(d-h)^2 + 4Q_1(h)(h(\mu-1) + d)}{h^2(4d^2 + \mu h^2 - (d+h)^2)} \quad (\text{B.5b})$$

$$F_2(h) = 6\frac{h^2(d-h) + 2Q_2(h)(h(\mu-1) + d)}{h^2(4d^2 + \mu h^2 - (d+h)^2)}. \quad (\text{B.5c})$$

Im Zweidimensionalen konnte (B.4) (siehe auch (6.11)) einmal in  $x$ -Richtung integriert werden und es folgte  $S_x = 0$  (oder  $S_x = \text{const.}$ , falls das System z.B. geneigt ist). In 3D kann  $\tilde{P}_1$  (bzw.  $\nabla_2 \tilde{P}_1$ ) nur numerisch aus (B.4) erhalten werden. (B.4) ist aber identisch zu (siehe (B.3))

$$\frac{1}{A(h)} \text{rot}(f\vec{e}_z) = \nabla_2 \tilde{P}_1 - F_1(h) \nabla_2 (\mathcal{N} + \Phi) - F_2(h) \vec{T} \quad (\text{B.6})$$

mit  $\text{rot}(f\vec{e}_z) = (\partial_y f, -\partial_x f, 0)$  und  $f$  als „Vorticityfunktion“. Wird (B.6) nach  $\nabla_2 \tilde{P}_1$  aufgelöst und  $\nabla_2 \tilde{P}_1$  im 3D-Analogon der tangentialen Geschwindigkeiten substituiert (6.9), so resultiert, entsprechend der Vorgehensweise in Kapitel 6, die Evolutionsgleichung (B.7a). Nochmalige Anwendung der

Rotation auf (B.6) liefert die Bestimmungsgleichung für  $f$  (B.7b).

$$\partial_t h = \nabla_2 \left[ Q_1 \nabla_2 (\mathcal{N} + \Phi) + Q_2 \vec{T} \right] + \nabla_2 [Q_3 \text{rot}(f \vec{e}_z)] \quad (\text{B.7a})$$

$$-\frac{1}{A} \Delta_2 f = \partial_h \frac{1}{A} \text{rot}(h \vec{e}_z) \text{rot}(f \vec{e}_z) + \partial_h Q_3 \text{rot}(h \vec{e}_z) \nabla_2 (\mathcal{N} + \Phi) \\ + \partial_h F_2 \text{rot}(h \vec{e}_z) \vec{T} + F_2 \text{rot}(\vec{T}) \vec{e}_z \quad (\text{B.7b})$$

mit der Schreibweise  $\text{rot}(\vec{T}) = \text{rot}(\mathcal{T}_x, \mathcal{T}_y, 0)$  und der dritten Mobilität

$$Q_3(h) = F_1(h) - 1 \quad \text{und} \quad \partial_h Q_3(h) = \partial_h F_1(h). \quad (\text{B.8})$$

Zusätzliche „Vorticity“-Felder sind bei kurzwelligen Konvektionsinstabilitäten nahe der Schwelle bekannt und bewirken eine Symmetriebrechung in Form einer zeitlichen Rotation von Rollen oder Spiralenbildung bei kleinen Prandtl-Zahlen (d.h. Gasen) [13, 104, 123, 124]. In Langwellennäherung ist die zusätzliche Meanflowgleichung *nicht* durch die Prandtl-Zahl verursacht (siehe Näherungsverfahren von (6.5) zu (6.6)). Dies und die Zeitunabhängigkeit der zusätzlichen Meanflowgleichung (DGL *ohne* Ableitungen nach der Zeit) führt nur zu lokalen Flüssen und hat keine globalen Auswirkungen wie z.B. einer Rotation des gesamten Systems.

Es sei bemerkt, dass der „Kontinuitäts“-charakter von  $\partial_t h$  erhalten bleibt, da Gleichung (B.7b) prinzipiell nach  $f$  aufgelöst werden kann (wenn auch nicht analytisch) und somit die Evolution des Systems allein durch (B.7a) beschrieben wird.

Wird der Grenzwert von (B.7) für Einschicht-Systeme gebildet (d.h.  $\mu \rightarrow 0$  oder  $d \rightarrow \infty$ ), dann streben  $1/A \rightarrow 0$  und  $\partial_h(1/A) \rightarrow 0$ , d.h. der Rotationsanteil verschwindet, und Gleichung (B.6) spiegelt lediglich die herkömmliche Druckbedingung für Einschicht-Systeme [96] wider ( $\lim_{\mu \rightarrow 0} F_1 = \lim_{d \rightarrow \infty} F_1 = 1$  und  $\lim_{\mu \rightarrow 0} F_2 = \lim_{d \rightarrow \infty} F_2 = 0$ ). Es wird unten gezeigt, dass auch für sehr dünne obere Schichtdicken oder für sehr große Verhältnisse der Viskositäten  $\mu = \mu_2/\mu_1$  der Einfluss dieses Rotationsfeldes wieder klein wird. Der Meanflow wird somit nur für moderate  $\mu$  und  $d$  wichtig.

Werden  $\mathcal{N}$ ,  $\Phi$  und  $\vec{T}$  durch die in dieser Arbeit verwendeten Kräfte ersetzt,

dann vereinfacht sich (B.7b) zu

$$\begin{aligned} \frac{1}{A} \Delta_2 f + \partial_h \frac{1}{A} \operatorname{rot}(h \vec{e}_z) \operatorname{rot}(f \vec{e}_z) &= \frac{1}{C} \partial_h Q_3 \operatorname{rot}(h \vec{e}_z) \cdot \nabla_2(\Delta_2 h) \\ &= \frac{1}{C} \partial_h Q_3 [\nabla_2(\Delta_2 h) \times \nabla_2 h]_z. \end{aligned} \quad (\text{B.9})$$

## B.2 Einfluss der „Vorticity“ $f$

Neben der Grenzflächenfunktion  $h$  bestimmen die Mobilität  $Q_3(h)$  und die Funktion  $1/A(h)$  die „Vorticityfunktion“  $f$ . Im Intervall  $h \in ]0, d[$  gilt für diese:

- (1)  $Q_3(h)$  ist eine nichtpositive monoton fallende Funktion in  $h$  mit  $Q_3(0) = 0$  und  $Q_3(d) = -1$ .
- (2)  $\partial_h Q_3(h)$  ist eine nichtpositive Funktion mit  $\partial_h Q_3(h) = 0$  für  $h \rightarrow 0$  oder  $h \rightarrow d$ .
- (3)  $1/A(h)$  ist eine negative monoton steigende (fallende) Funktion in  $h$  für  $\mu > 1$  ( $\mu < 1$ ). An den Intervallgrenzen gilt  $1/A(0) = -12\mu/d^3$  und  $1/A(d) = -12/d^3$ .  $1/A(h)$  besitzt einen Wendepunkt.

Unter Berücksichtigung der Punkte (1)-(3) ist die „Wirkungsrichtung“ des Meanflows durch die verwendeten Fluidparameter festgelegt und die geometrische Form der Grenzflächendeformation bestimmt im Wesentlichen den Einfluss von  $f$  auf die Zeitentwicklung. Die Grenzwertbildung  $\mu \rightarrow 0$ ,  $\mu \rightarrow \infty$  oder  $d \rightarrow \infty$  liefert  $\partial_h Q_3(h) = 0$  und zeigt, dass dann die „Vorticityfunktion“  $f$  keinen Einfluss auf die Evolution des Systems hat (siehe (B.7a)).

Wirken überhaupt keine Kräfte, dann ist die rechte Seite von (B.9) null und aus physikalischen Gründen muss dann  $f = 0$  sein. Bei „Einschalten“ der Kräfte zeigt (B.9), dass allein die Oberflächenspannung für das Auftreten des Rotationsanteils verantwortlich ist. Unter Verwendung von ebenen Polarkoordinaten  $(r, \phi)$  liefert eine zentralsymmetrische Grenzflächendeformation ( $h = h(r)$ ), dass die rechte Seite von Gleichung (B.9) null ist und damit folgt, dass auch  $f = 0$  sein muss.

Im Folgenden soll die Auswirkung einer Brechung der Radialsymmetrie untersucht werden. Dazu wird einer radialsymmetrischen Grenzflächendeformation eine Winkelabhängigkeit auferlegt

$$h = h(r, \phi) = h(r) \cos(a\phi) \approx h(r) \left(1 - \frac{1}{2}a\phi^2\right). \quad (\text{B.10})$$

Als Ansatz für die „Vorticity“ wird

$$f = b \cdot \phi^2 + c \cdot r \quad (\text{B.11})$$

gewählt. Das Quadrat von  $\phi$  wird benötigt, um aus (B.9) bei radialsymmetrischem Grenzflächenverlauf  $b = 0$  zu erhalten. Einsetzen von (B.10) und (B.11) in (B.9) liefert in ebenen Polarkoordinaten

$$\frac{1}{A} \left( \frac{c}{r} + 2 \frac{b}{r^2} \right) + \partial_h \frac{1}{A} \left( c \partial_r h - ab \frac{2}{r^2} h(r) \phi^2 \right) = \frac{1}{C} \partial_h Q_3 \text{rot}(h \vec{e}_z) \nabla_2 \Delta_2 h \quad (\text{B.12})$$

mit

$$\text{rot}(h \vec{e}_z) \nabla_2 \Delta_2 h = \frac{1}{r} (\partial_\phi h \partial_r \Delta_2 h - \partial_r h \partial_\phi \Delta_2 h)$$

und dem Laplaceoperator  $\Delta_2$  in ebenen Polarkoordinaten (siehe [28]). Um eine analytische Untersuchung durchführen zu können, wird die „Vorticityfunktion“ als reine Radial- oder Winkelfunktion betrachtet. Das heißt, es werden zwei Fälle unterschieden und es ergibt sich jeweils aus (B.12):

I.) Reine Winkelstörung:  $f = b \cdot \phi^2$  ( $c = 0$ )

$$b = \frac{\partial_h Q_3(h)}{C \left( \frac{2}{A} - \partial_h \frac{1}{A} 2ah(r) \phi^2 \right)} r^2 \text{rot}(h \vec{e}_z) \nabla_2 \Delta_2 h \quad (\text{B.13a})$$

II.) Reine Radialstörung:  $f = c \cdot r$  ( $b = 0$ )

$$c = \frac{\partial_h Q_3(h)}{C \left( \frac{1}{A} + \partial_h \frac{1}{A} r \partial_r h \right)} r \text{rot}(h \vec{e}_z) \nabla_2 \Delta_2 h \quad (\text{B.13b})$$

Die Evolutionsgleichung für  $h$  (Gleichung (B.7a)) kann dann in der Form

$$\text{I.)} \quad \partial_t h = H_0 + \underbrace{\partial_h Q_3 b \phi \frac{2}{r} \partial_r h}_{ST_I} \quad (\text{B.14a})$$

$$\text{II.)} \quad \partial_t h = H_0 - \underbrace{\partial_h Q_3 c \frac{1}{r} \partial_\phi h}_{ST_{II}} \quad (\text{B.14b})$$

dargestellt werden.  $H_0$  gibt den „rot( $f\vec{e}_z$ )-freien“ Teil der Evolutionsgleichung wieder. Bei ausschließlicher Berücksichtigung der Oberflächenspannung ergibt sich

$$H_0 = -\frac{1}{C}Q_1\Delta_2^2h - \frac{1}{C}\partial_h Q_1\nabla_2h\nabla_2\Delta_2h. \quad (\text{B.15})$$

Als quantitatives Beispiel wird ein modifiziertes Gaußsches Zentralfeld für die Grenzflächendeformation verwendet

$$h(r) = \frac{1}{2} \cdot e^{-r^2/30} \cdot \left(\frac{1}{4}r\right)^4. \quad (\text{B.16})$$

Der  $r^4$ -Faktor dient zur Vermeidung von Singularitäten bei  $r = 0$  in den Ableitungen von  $h = h(r, \phi)$ . Damit folgt dann für die untersuchte Funktion

$$h = \frac{1}{2} \cdot e^{-r^2/30} \cdot \left(\frac{1}{4}r\right)^4 \left(1 - \frac{1}{2}a\phi^2\right). \quad (\text{B.17})$$

Abb. B.1 zeigt  $\partial_t h$  für die drei Fälle ( $f = 0$ ,  $f = b \cdot \phi^2$  und  $f = c \cdot r$ ) bei verschiedenen  $d$  und  $\mu$ . Wie oben gezeigt, kann der Rotationsanteil vernachlässigt werden für  $\mu \rightarrow 0$  oder  $d \rightarrow \infty$ . Durch Vertauschen der beiden Fluide und entsprechende Modifikation der Kräfte folgt, dass der Rotationsanteil auch für  $\mu \rightarrow \infty$  oder  $d \rightarrow 1$  vernachlässigbar wird. Für den Fall

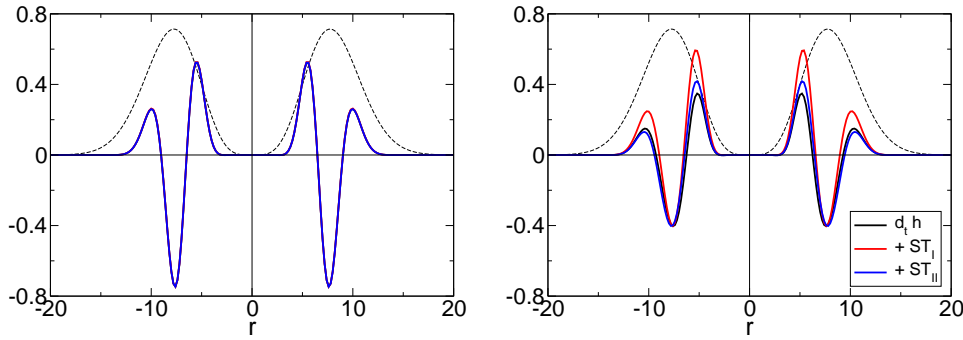


Abbildung B.1:  $h(r)$  (gestrichelte Linie) und resultierendes  $\partial_t h$  für  $f = 0$  (schwarz),  $f = b \cdot \phi^2$  (rot) und  $f = c \cdot r$  (blau) mit  $\phi = 1$  und  $a = 0.5$ . Links:  $d = 10$ ,  $\mu = 0.1$ , und  $C = 6 \cdot 10^{-3}$ . Rechts:  $d = 2$ ,  $\mu = 1.1$ , und  $C = 3 \cdot 10^{-3}$ .

nicht zu kleiner oberer Schichtdicken und einem kleinen Verhältnis  $\mu$  (linkes Bild), zeigt sich, dass das Rotationsfeld keinen Beitrag zur Evolution des



Systems liefert (Kurven liegen übereinander). Werden nun  $\mu$  vergrößert und  $d$  verkleinert, so nimmt  $\text{rot}(f\vec{e}_z)$  einen merklichen Einfluss auf die Evolutionsgleichung. Aber wie im rechten Bild von Abb. B.1 ersichtlich, wirkt  $f$  in die gleiche Richtung wie die Oberflächenspannung selbst ( $H_0$ -Term). Weiterhin können zusätzliche Kräfte (Gravitation, Marangoni-Effekt) einen um Größenordnungen stärkeren Beitrag liefern, was auch hier eine Vernachlässigung von  $f$  rechtfertigen kann. Schließlich hat sich für alle in dieser Arbeit untersuchten Zweischicht-Systeme numerisch gezeigt, dass das Rotationsfeld nur einen Einfluss auf das Langzeitverhalten hat. Im Wesentlichen wird das „Coarsening“ beschleunigt, aber die Größenordnung aller in dieser Arbeit erhaltenen Skalierungskoeffizienten  $\tilde{\beta}$  bleibt erhalten. Das soll anhand einer Simulation gezeigt werden, bei der  $\mu$  und  $d$  in einem Bereich liegen, so dass die „Vorticity“ in der Evolutionsgleichung „sichtbar“ wird. Es wird  $\mu = 0.8$  und  $d = 1.6$  gewählt, was einen ähnlichen Verlauf wie im rechten Bild von Abb. B.1 ergibt.

Offensichtlich ist es bei Berücksichtigung von  $f$  nicht mehr möglich ein Energiefunktional (6.36) zu definieren. Es ist jedoch bekannt, dass das „Coarsening“ über Energieplateaus von statten geht [130]. Dabei verschwindet von Plateau zu Plateau eine Struktur (Tropfen, Loch) und auf dem Plateau bildet sich ein quasistationärer Zustand aus, in dem der Oberflächenspannungsterm die Strukturen radialsymmetrisch formt. Im Folgenden wird dieser Prozess Symmetrisierung genannt. Da  $f$  eine Symmetrisierung bewirkt, ist das Energiefunktional zumindest auf den Energieplateaus definiert. Somit kann der Einfluss der „Vorticity“ auch im zeitlichen Energieverlauf untersucht werden. Dies soll im Folgenden durch numerische Simulationen bestätigt werden.

Abb. B.2 zeigt den Verlauf der mittleren Wellenzahl  $\langle k \rangle$  (definiert in (6.41)) und der Energie  $E$  in der Zeit. Die dicken Linien sind über 30 Runs (mit verschiedenen Anfangsbedingungen) gemittelte Funktionen. Da sich aufgrund der kleinen Systemlänge ( $L_x = L_y = 25$ ) nur vier Löcher am Beginn der nichtlinearen Entwicklung bilden, ergibt die Mittelung von  $\langle k \rangle$  keine glatte Funktion, aber es ist das schnellere „Coarsening“ bei Berücksichtigung von  $f$  sichtbar (bei  $100 < t < 2000$ ). Dieses schnellere „Coarsening“ spiegelt sich auch im Energieverlauf wider. Ein einzelner Run mit gleichen Anfangs-

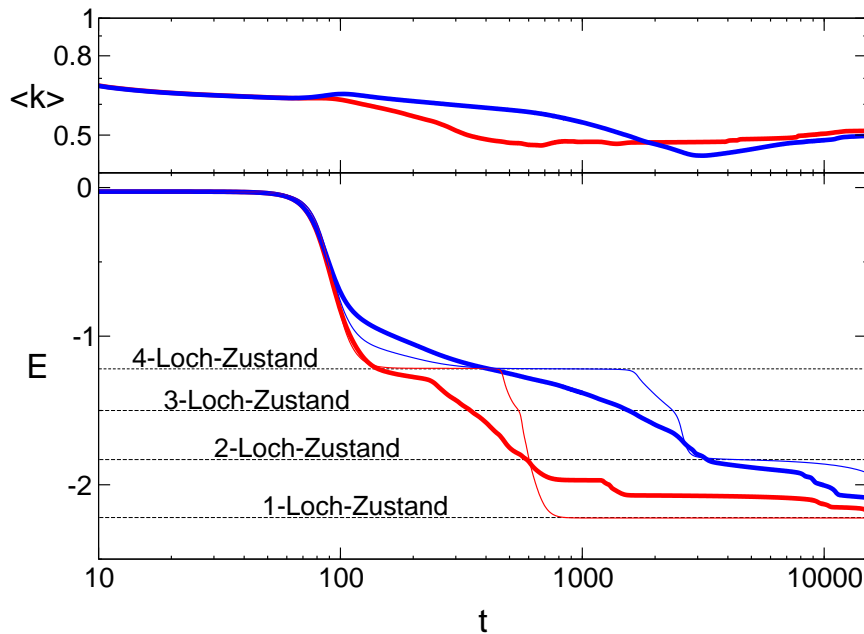


Abbildung B.2:  $\langle k \rangle$  und  $E$  versus der Zeit für RT instabiles System mit (rot) und ohne (blau) „Vorticityfunktion“  $f$ .  $\mu = 0.8$ ,  $d = 1.6$ ,  $\rho = 1.8282$ ,  $C = 1/20$ ,  $G = 20$ ,  $H_1 = H_2 = 0.01$ ,  $L_x = L_y = 25$ ,  $\Delta t = 0.1$  und einer Auflösung von  $\Delta x = \Delta y = 0.5$ . Dicke Linien repräsentieren Mittelungen über 30 Runs. Dünne Linien sind Einzelruns.

bedingungen zeigt sowohl mit (dünne rote Linie) als auch ohne  $f$  (dünne blaue Linie) ein Verweilen auf quasistationären Energieplateaus („ $k$ -Loch-Zustände“). Die einzelnen Plateaus entsprechen dabei Zuständen mit 4, 3, 2 Löchern oder einem Loch, welche bei den Einzelruns immer exakt erreicht werden. Durch die Mittelung sind diese Zustände nur noch zu erahnen.

Die Konturplots der Grenzfläche der zwei Simulationen mit und ohne  $f$  bei gleichen Anfangsbedingungen sind in Abb. B.3 gezeigt. Der Übergang vom „4-Loch-Zustand“ in den „2-Loch-Zustand“ erfolgt sowohl mit als auch ohne  $f$  durch das Zusammenwachsen von zwei Löchern (a) und anschließendem Verschmelzen eines dritten Lochs (nicht gezeigt). Ohne  $f$  werden durch die Oberflächenspannung die verbleibenden Löcher symmetrisiert.

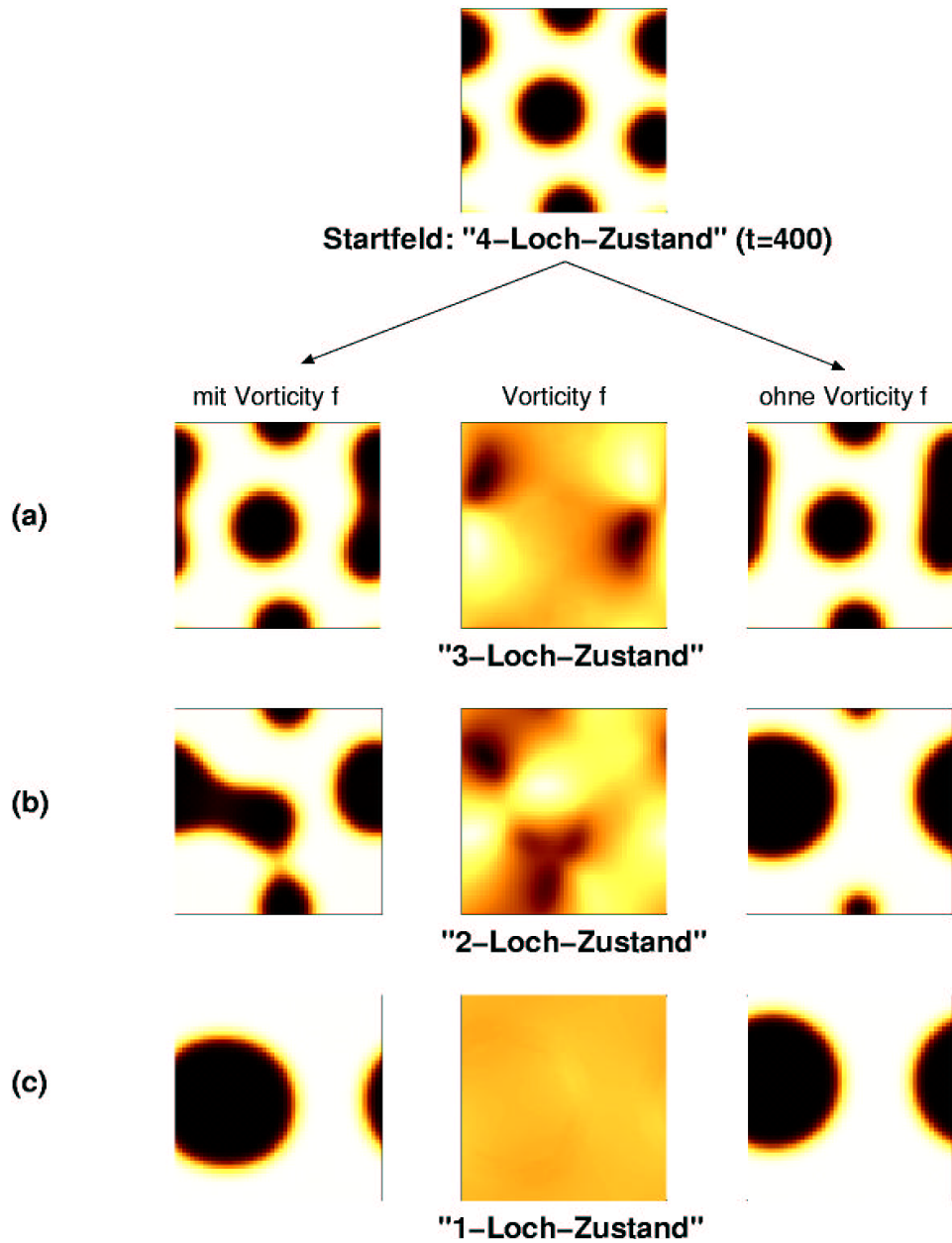


Abbildung B.3: Gegenüberstellung der Grenzflächenkonturplots beim „Coarsening“ mit und ohne „Vorticity“  $f$ . Die Konturplots der Grenzfläche sind zwischen  $0 < h < 1.6$ , das Feld  $f$  ist immer im Bereich  $-0.27 < f < 0.27$  dargestellt. Die Zustände können auch in Abb. B.2 abgelesen werden.

Dann verschwindet das verbleibende kleine Loch bei gleichzeitiger Vergrößerung des großen Loches (von (b) nach (c)). Der Einfluss von  $f$  wird hier deutlich, da die „Vorticity“ so stark ist, dass diese Symmetrisierung nicht im „2-Loch-Zustand“ stattfindet, sondern ein direkter Übergang durch weiteres Verschmelzen in den stationären „1-Loch-Endzustand“ stattfindet (erst hier wird die Struktur dann symmetrisiert). Die Konturplots der „Vorticityfunktion“  $f$  zeigen, dass die Wirkung von  $f$  (bzw.  $\text{rot}(f\vec{e}_z)$ ) an den symmetriestörten Positionen (Eindellungen) am Stärksten ist.

Als Abschluss der Meanflowbetrachtung soll anhand einer Simulation noch kurz die geänderte Dynamik im nichtlinearen Bereich und nochmals das schnellere „Coarsening“-Verhalten gezeigt werden.

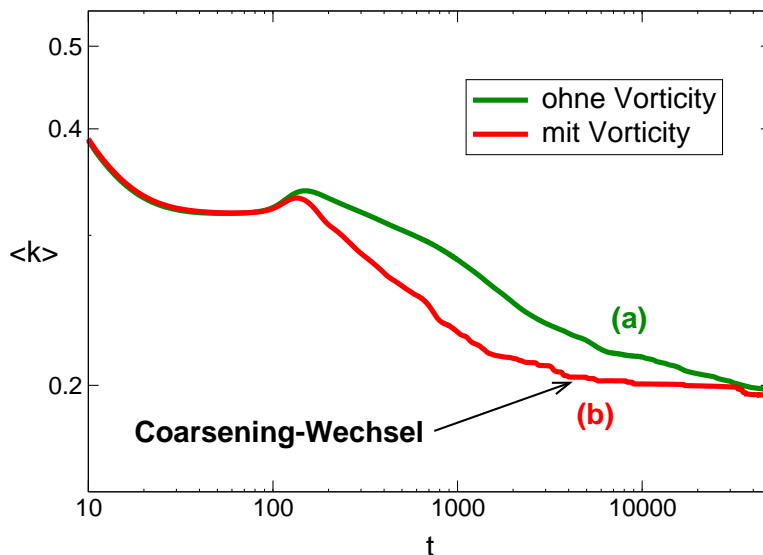


Abbildung B.4:  $\langle k \rangle$  in Abhängigkeit der Zeit für RT instabiles System mit Parametern aus Parametersatz 1 (Mittelung über jeweils 10 Runs),  $d = 3$ ,  $H_1 = H_2 = 0.01$ ,  $\Delta t = 0.1$ ,  $L_x = L_y = 100$  und einer Auflösung von  $\Delta x = \Delta y = 1.33$ . (a) ohne Meanflow (grün). (b) unter Berücksichtigung des Meanflows (rot).

Dazu wird die RT-Simulation aus Unterkapitel 6.3.3.1 der Simulation unter Berücksichtigung des „Vorticity“-Feldes  $f$  gegenübergestellt, um das schnellere „Coarsening“-Verhalten zu demonstrieren (mit einer kleineren System-

länge  $L_x = L_y = 75$ ).

Abb. B.4 zeigt die mittlere Wellenzahl  $\langle k \rangle$  in Abhängigkeit von der Zeit  $t$  (vgl. mit Abb. 6.6 (schwarze Linie) auf Seite 95). Dabei wurde jeweils über 10 Runs gemittelt. Ein schnelleres „Coarsening“-Verhalten mit „Vorticity“  $f$  ist im Bereich  $100 < t < 1000$  (rote Kurve) deutlich sichtbar. Es ist noch der Punkt des „Coarsening“-Wechsels angedeutet, was dem Übergang vom „Translationscoarsening“ zum „Volumentransfercoarsening“ entspricht (siehe auch [83]). Im Translationsbereich findet das „Coarsening“ durch Zusammenwachsen zweier Tropfen zu einem größeren Tropfen statt ( $t < 1000$ ). Im Volumentransferbereich wird ein Tropfen kleiner und kleiner bis er schließlich ganz verschwunden ist ( $t > 1000$ ). Sein freiwerdendes Volumen wird auf die anderen verbleibenden Tropfen verteilt. Offensichtlich erfolgt das „Coarsening“ im Translationsbereich durch unsymmetrische Strukturkonfigurationen, was eine Beschleunigung durch die dann auftretende und einflussnehmende „Vorticity“  $f$  erklärt. Im Volumentransferbereich bleiben die Strukturen mehr oder weniger symmetrisch und damit wird der Einfluss der „Vorticity“ vernachlässigbar („Coarsening“ ist in etwa gleich). Es sei erwähnt, dass dies erste Ergebnisse sind und obige Aussage über den Einfluss der „Vorticity“  $f$  auf die zwei „Coarseningmoden“ in zukünftigen Untersuchungen sowohl analytisch als auch numerisch noch genauer zu prüfen ist.



## Anhang C

# Hamaker-Konstanten

Es soll hier die prinzipielle Vorgehensweise demonstriert werden, um die van-der-Waals Wechselwirkung zwischen Grenzfläche und Substrat in sehr dünnen Fluidschichten ( $\lesssim 500 \text{ nm}$ ) zu berechnen.

Die quantenmechanische Berechnung der van-der-Waals Wechselwirkungsenergie zweier unpolarer Moleküle in einem Medium mit der frequenzabhängigen Permittivität  $\varepsilon_r^{(1)}$  und einem Abstand  $h$  liefert [78, 79]

$$U(h) = \frac{-3\hbar}{\pi h^6} \int_0^\infty d\omega \frac{\alpha_1(i\omega)\alpha_2(i\omega)}{\left(\varepsilon_r^{(1)}(i\omega)\right)^2}, \quad (\text{C.1})$$

wobei  $\alpha$  die Polarisierbarkeit des entsprechenden Moleküls,  $\omega$  die Frequenz und  $\hbar$  das Plancksche Wirkungsquantum beschreiben. Die resultierende Kraft ist dann

$$F(h) = \frac{\partial}{\partial h} U = \frac{18\hbar}{\pi h^7} \int_0^\infty d\omega \frac{\alpha_1(i\omega)\alpha_2(i\omega)}{\left(\varepsilon_r^{(1)}(i\omega)\right)^2}. \quad (\text{C.2})$$

Dabei werden nur nichtretardierte Kräfte berücksichtigt, was für Schichtdicken  $h \gtrsim 100 \text{ nm}$  eine gültige Näherung ist und in diesem Themengebiet im Allgemeinen auch für  $h < 100 \text{ nm}$  verwendet wird [107].

Die elektronische mikroskopische Struktur eines (unpolaren) Moleküls erlaubt eine Polarisierung durch zufällige Fluktuationen der Ladungsverteilung im Molekül selbst. Solche Fluktuationen in Fluid 2 führen zu einer

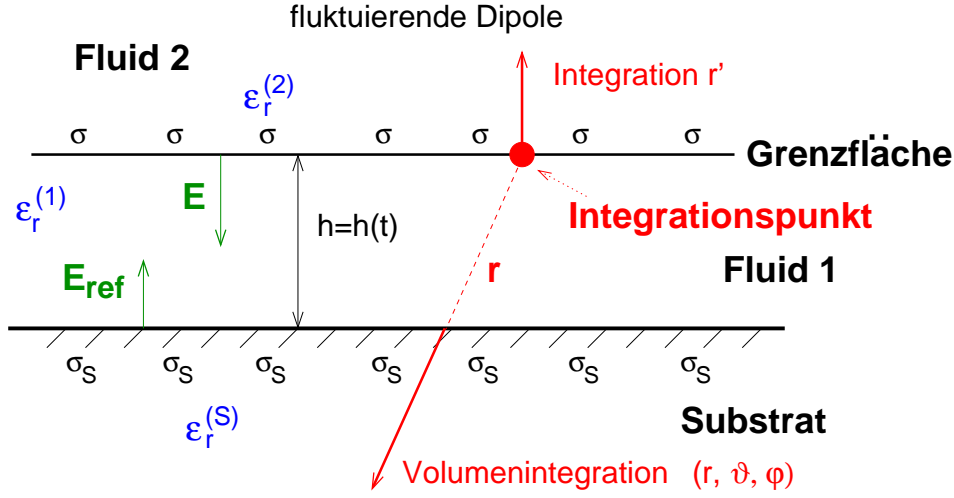


Abbildung C.1: Elektrische Felder und Skizze zur Integration zur Bestimmung der Kraft pro Einheitsfläche (und damit der Hamaker-Konstanten) in Abhängigkeit von  $h$ .

Oberflächenladung  $\sigma$  an der Grenzfläche (siehe Abb. C.1), was ein vertikales elektrisches Feld

$$E = \frac{\sigma}{2\epsilon_0\epsilon_r^{(1)}} \quad (C.3)$$

in Fluid 1 erzeugt. Dabei ist  $\epsilon_0$  die elektrische Feldkonstante und  $\epsilon_r^{(1)}$  die Permittivitätszahl von Fluid 1. Damit kann mithilfe der Spiegelladungsmethode das am Substrat reflektierte Feld zu

$$E_{ref} = \frac{\epsilon_r^{(S)} - \epsilon_r^{(1)}}{\epsilon_r^{(S)} + \epsilon_r^{(1)}} E \quad (C.4)$$

berechnet werden. Die Ladungsdichte  $\sigma$  führt zu einer Oberflächenladungsdichte  $\sigma_S$  am Substrat, was einer Polarisation des Substrats

$$P_S = \sigma_S \quad \text{mit (C.3) und (C.4)} \quad = \quad 2\epsilon_0\epsilon_r^{(1)} \frac{\epsilon_r^{(S)} - \epsilon_r^{(1)}}{\epsilon_r^{(S)} + \epsilon_r^{(1)}} E \quad (C.5)$$

entspricht. Die durch das Feld  $E$  verursachte Polarisation lässt sich auch durch

$$P_S = N_S \alpha_S E \quad (C.6)$$



ausdrücken, wobei  $N_S$  die Anzahl der Moleküle pro Volumeneinheit und  $\alpha_S$  die Polarisierbarkeit des Substrats beschreiben. Mit (C.5) und (C.6) folgt dann

$$N_S \alpha_S = 2\varepsilon_0 \varepsilon_r^{(1)} \frac{\varepsilon_r^{(S)} - \varepsilon_r^{(1)}}{\varepsilon_r^{(S)} + \varepsilon_r^{(1)}}. \quad (\text{C.7a})$$

In Analogie erhält man über die Polarisierbarkeit des Fluids 2

$$N_2 \alpha_2 = 2\varepsilon_0 \varepsilon_r^{(1)} \frac{\varepsilon_r^{(2)} - \varepsilon_r^{(1)}}{\varepsilon_r^{(2)} + \varepsilon_r^{(1)}} \quad (\text{C.7b})$$

mit der Anzahl der Moleküle pro Volumeneinheit  $N_2$  und der Polarisierbarkeit  $\alpha_2$  des Fluids 2.

Die resultierende Kraft pro Einheitsfläche kann nun aus (C.2) unter der Additivitätsannahme (d.h. keine Mehrfachreflexionen) berechnet werden zu

$$\begin{aligned} f(h) &= N_S N_2 \int_{r'=h}^{\infty} dr' \left( \int dV \cos(\vartheta) F \right) \\ &= N_S N_2 \int_{r'=h}^{\infty} dr' \left( \int_{\vartheta=0}^{\pi/2} \int_{r=r'/\cos\vartheta}^{\infty} \int_{\varphi=0}^{2\pi} dr d\vartheta d\varphi r^2 \sin\vartheta \cos\vartheta F(r) \right) \\ &= \frac{\hbar}{2h^3} \int_0^{\infty} d\omega \frac{N_S \alpha_S(i\omega)}{\varepsilon_r^{(1)}} \cdot \frac{N_2 \alpha_2(i\omega)}{\varepsilon_r^{(1)}}, \end{aligned} \quad (\text{C.8})$$

wobei  $N_2$  und  $N_S$  zur Umrechnung auf „Kraft pro Fläche“ benutzt wurden. Aus Symmetriegründen ist klar, dass nur Kräfte senkrecht zur Grenzfläche eine Rolle spielen, was sich im  $\cos(\vartheta)$ -Term unter dem Volumenintegral widerspiegelt. Die Integration in Kugelkoordinaten beginnt erst ab der Substratoberfläche, was die untere Integrationsgrenze der  $r$ -Integration bestimmt ( $r = r'/\cos(\vartheta)$ ). Die äußere Integration über  $r'$  summiert alle senkrecht über dem Integrationspunkt (vgl. rote Linien in Abb. C.1) liegenden Moleküle von Fluid 2 (vgl. [55, 56]).

Im Allgemeinen wird die Oberflächenkraft in der Form

$$f(h) = \frac{H}{6\pi h^3} \quad (\text{C.9})$$

verwendet. Mit (C.7) folgt dann die Definition der Hamaker-Konstanten

$$H = \frac{3\hbar}{4\pi} \int_0^\infty d\omega \underbrace{\frac{\varepsilon_r^{(2)} - \varepsilon_r^{(1)}}{\varepsilon_r^{(2)} + \varepsilon_r^{(1)}}}_{R^{(2)}} \cdot \underbrace{\frac{\varepsilon_r^{(S)} - \varepsilon_r^{(1)}}{\varepsilon_r^{(S)} + \varepsilon_r^{(1)}}}_{R^{(S)}} \quad (\text{C.10})$$

mit frequenzabhängigen Brechungsindizes und den Reflexionskoeffizienten  $R^{(S)}$  am Substrat und  $R^{(2)}$  an Fluid 2.

Die dimensionsbehafteten Hamaker-Konstanten  $H_{1,2}$  ergeben sich dann mit (6.3) aus den dimensionslosen Hamaker-Konstanten  $\tilde{H}_{1,2}$  (siehe Unterkapitel 6.1.4) zu

$$H_{1,2} = 6\pi\mu_1 u_0 h_0^2 \tilde{H}_{1,2} \quad (\text{Einheit: [J]}). \quad (\text{C.11})$$

# Anhang D

## Numerische Verfahren

### D.1 2D-Integration

2D-Simulationen werden nur für kurzweilige Instabilitäten in Kapitel 5 zur Verdampfung durchgeführt (siehe Gleichungen (5.13)). Dieses Verfahren wird in [80] ausführlich besprochen. Eine Stabilitätsanalyse kann in der Habilitationsschrift von BESTEHORN [11] gefunden werden.

### D.2 3D-Integration

Mit einem Einschritt-Euler-Vorwärts-Verfahren der Zeitintegration lassen sich die 3D-Gleichungen für die Geschwindigkeiten  $\vec{u}(t)$  in der Form

$$\left(\frac{1}{\Delta t} + \underline{\mathbf{L}}\right) \vec{u}(t + \Delta t) + \nabla p(t + \Delta t) = \frac{\vec{u}(t)}{\Delta t} + \vec{N}(\vec{u}(t)) \quad (\text{D.1})$$

darstellen.  $\underline{\mathbf{L}}$  ist ein linearer Operator, der zur Zeit  $t + \Delta t$  angewandt wird.  $N(\vec{u}(t))$  sind die Nichtlinearitäten, welche zum alten Zeitpunkt  $t$  berechnet werden. Da die Divergenzfreiheit zum neuen Zeitpunkt  $t + \Delta t$  gewährleistet sein soll, kann durch Divergenzbildung der Gleichungen (D.1) eine Bedingung für den Druck bestimmt werden, so dass folgendes Gleichungssystem

zu lösen ist:

$$\left( \frac{1}{\Delta t} + \underline{\mathbf{L}} \right) \vec{u}(t + \Delta t) + \nabla p(t + \Delta t) = \frac{\vec{u}(t)}{\Delta t} + \vec{N}(\vec{u}(t)) \quad (\text{D.2})$$

$$\nabla \nabla p(t + \Delta t) = \nabla \left( \frac{\vec{u}(t)}{\Delta t} \right) + \nabla \vec{N}(\vec{u}(t)) \quad (\text{D.3})$$

$\nabla \underline{\mathbf{L}} \vec{u}(t + \Delta t)$  fällt wegen der Divergenzfreiheit wieder raus.

Unter Einbeziehung des Temperaturfeldes (analog wie (D.1) ohne Druck) und durch eine Fast-Fourier-Transformation (FFT) in  $x$ - und  $y$ -Richtung erhält man ein Gleichungssystem für jeweils Fluid 1 und 2 (aus (4.5)):

$$\begin{pmatrix} X_x & 0 & 0 & P_x & 0 \\ 0 & Y_y & 0 & P_y & 0 \\ 0 & 0 & Z_z & P_z & T_z \\ 0 & 0 & 0 & P_p & T_p \\ 0 & 0 & Z_\theta & 0 & T_\theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_x(t + \Delta t) \\ u_y(t + \Delta t) \\ u_z(t + \Delta t) \\ p(t + \Delta t) \\ \theta(t + \Delta t) \end{pmatrix} = \frac{1}{\Delta t} \begin{pmatrix} u_x(t) \\ u_y(t) \\ u_z(t) \\ \nabla \vec{u}(t) \\ \theta(t) \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} N_x(t) \\ N_y(t) \\ N_z(t) \\ N_p(t) \\ N_\theta(t) \end{pmatrix}$$

Mit ( $k = 1, 2$  für Fluid 1 bzw. Fluid 2)

$$X_x = \frac{1}{\Delta t} - (\delta_{1k}(1 - \nu) + \nu) Pr(-k_x^2 - k_y^2 + \partial_{zz}), \quad P_x = Pr \, 2\pi i \, k_x,$$

$$Y_y = \frac{1}{\Delta t} - (\delta_{1k}(1 - \nu) + \nu) Pr(-k_x^2 - k_y^2 + \partial_{zz}), \quad P_y = Pr \, 2\pi i \, k_y,$$

$$Z_z = \frac{1}{\Delta t} - (\delta_{1k}(1 - \nu) + \nu) Pr(-k_x^2 - k_y^2 + \partial_{zz}), \quad P_z = Pr \partial_z,$$

$$T_z = -Pr \, R (\delta_{1k}(1 - \alpha) + \alpha),$$

$$P_p = Pr \partial_z \partial_z, \quad T_p = -Pr \, R (\delta_{1k}(1 - \alpha) + \alpha) \partial_z,$$

$$Z_\theta = -\beta_k, \quad T_\theta = \frac{1}{\Delta t} - (\delta_{1k}(1 - \kappa) + \kappa) (-k_x^2 - k_y^2 + \partial_{zz}),$$

$$N_x = -u_{k_j} \partial_j u_{k_x}, \quad N_x = -u_{k_j} \partial_j u_{k_y}, \quad N_z = -u_{k_j} \partial_j u_{k_z},$$

$$N_p = \nabla \vec{N}_{\vec{u}}, \quad N_\theta = -u_{k_j} \partial_j \theta_k.$$

Es ist darauf zu achten, dass für die Druckgleichung (D.3) die 2. Ableitung nach  $z$  numerisch *nicht* durch  $\partial_{zz}$ , sondern durch zweimalige Anwendung von

$\partial_z$  zu berechnen ist, um die „numerische“ Divergenzfreiheit zu garantieren. Die Rand- und Grenzflächenbedingungen für den Druck werden ebenfalls durch die Forderung nach Divergenzfreiheit des Geschwindigkeitsfeldes am Rand bzw. an der Grenzfläche erhalten. Die Diskretisierung in  $z$ -Richtung erfolgt in dieser Arbeit ausschließlich durch zentrale Differenzen.

### D.3 ADI-Methode

Die Integration der Höhengleichung in Kapitel 6 erfolgt mit einem ADI-Verfahren. Der Vorteil dieses Verfahrens gegenüber einer FFT liegt in der freien Wahl der lateralen Randbedingungen. Es werden in dieser Arbeit nur periodische laterale Randbedingungen betrachtet, aber zukünftige anwendungsorientierte Entwicklungen erfordern selbstverständlich eine genaue Geometrieangepassung.

Die Evolutionsgleichung der Grenzfläche (6.14) kann auf die Form

$$\partial_t h = (L_{xx} + L_{yy}) h + (L_{xx} + L_{yy})^2 h + N \quad (\text{D.4})$$

gebracht werden mit  $h = h(x, y, t)$  und dem Laplaceoperator  $L_{xx} + L_{yy}$ . Der nichtlineare Teil  $N$  ist eine Funktion von  $h(x, y, t)$  und der räumlichen Differentialoperatoren  $(\nabla, \Delta \dots)$ . (D.4) stellt damit eine Erweiterung des Standardverfahrens [46] durch einen quadratischen Laplace-Term dar.

Die räumlichen Ableitungen werden sowohl in einen expliziten als auch impliziten Teil aufgespalten.

$$\begin{aligned} h^{t+1} - h^t &= \frac{\Delta t}{2} (L_{xx} + L_{yy}) h^{t+1} + \frac{\Delta t}{2} (L_{xx} + L_{yy}) h^t + \Delta t N \\ &\quad + \frac{\Delta t}{2} (L_{xx}^2 + L_{yy}^2) h^{t+1} + \frac{\Delta t}{2} (L_{xx}^2 + L_{yy}^2) h^t \\ &\quad + \Delta t 2 L_{xx} L_{yy} \end{aligned} \quad (\text{D.5})$$

Die Integration wird in 2 Teilschritten durchgeführt:

$$\left(1 - \frac{\Delta t}{2} L_{xx} - \frac{\Delta t}{2} L_{xx}^2\right) h^* = \left(1 + \frac{\Delta t}{2} L_{yy} + \frac{\Delta t}{2} L_{yy}^2\right) h^t + \frac{\Delta t}{2} N_M^t \quad (\text{D.6a})$$

$$\left(1 - \frac{\Delta t}{2} L_{yy} - \frac{\Delta t}{2} L_{yy}^2\right) h^{t+1} = \left(1 + \frac{\Delta t}{2} L_{xx} + \frac{\Delta t}{2} L_{xx}^2\right) h^* + \frac{\Delta t}{2} N_M^* \quad (\text{D.6b})$$

$h^*$  ist ein Hilfsfeld bei  $\Delta t/2$  und wird mit (D.6a) berechnet. Die implizite Integration verläuft nur in  $x$ -Richtung. Im zweiten Teilschritt (D.6b) wird nur implizit in  $y$ -Richtung integriert. Die modifizierte Nichtlinearität

$$N_M = N + 2 L_{xx} L_{yy} \quad (\text{D.7})$$

ergibt sich durch Multiplikation von (D.6b) mit  $(1 - \frac{\Delta t}{2} L_{xx} - \frac{\Delta t}{2} L_{xx}^2)$ , Multiplikation von (D.6a) mit  $(1 + \frac{\Delta t}{2} L_{xx} + \frac{\Delta t}{2} L_{xx}^2)$  und Entwicklung der Ausgangsgleichung (D.5) bis zur Ordnung  $O((\frac{\Delta t}{2})^2)$ .

Die Genauigkeit des hier verwendeten ADI-Verfahrens geht bis zur Ordnung  $O((\Delta t)^2, (\Delta x)^2, (\Delta y)^2)$ .

### D.3.1 Stabilität der verwendeten ADI-Methode

Es soll hier nur die Stabilität der Evolutionsgleichung der Schichtdicke (D.5) untersucht werden, da das 3D-Verfahren (aus Abschnitt D.2) ein Standardverfahren ist und Stabilitätsabschätzungen in [46, 53] zu finden sind.

Die Stabilitätsabschätzung erfolgt mit einer Neumannschen Stabilitätsanalyse, welche aufgrund der Nichtlinearitäten natürlich nur notwendige, aber keine hinreichende, Stabilitätsbedingungen liefert. Die nichtlinearen Terme werden als „eingefroren“ oder vernachlässigbar klein betrachtet.

Die Fehler der  $x$  bzw.  $y$ -Diskretisierung (im ersten und zweiten Halbschritt in (D.6)) sind dann definiert als

$$\zeta_m = h_m^e - h_m \quad \text{und} \quad \zeta_n = h_n^e - h_n, \quad (\text{D.8})$$

wobei  $h_{m,n}^e$  den exakten Funktionswert an der Stützstelle  $m, n$  widerspiegelt, d.h. wenn die Integration mit „unendlicher“ Genauigkeit durchgeführt werden könnte.

Sowohl  $h_{m,n}^e$  als auch  $h_{m,n}$  unterliegen dem gleichen Diskretisierungsalgorithmus. Werden die modifizierten Nichtlinearitäten als konstant angesehen, so kann  $\zeta_m$  als Fourierreihe dargestellt werden, d.h.

$$\zeta_m = \sum_{k_x=0}^{IX-1} g_{k_x} e^{i\xi_{k_x} m} \quad \text{bzw.} \quad \zeta_n = \sum_{k_y=0}^{IY-1} g_{k_y} e^{i\xi_{k_y} n} \quad (\text{D.9})$$

mit  $IX$  und  $IY$  als Anzahl der Stützstellen in  $x$ - respektive  $y$ -Richtung.

Für das homogene (lineare) System genügt die Untersuchung einer Fourierkomponenten in der Summe der Fehler, d.h.

$$\zeta_m = g_{(x)} e^{i\xi_x m} \quad \text{bzw.} \quad \zeta_n = g_{(y)} e^{i\xi_y n}. \quad (\text{D.10})$$

Im Folgenden soll nur die Ableitung für den ersten Halbschritt demonstriert werden, da für den 2.Halbschritt alles analog erfolgt.

Start mit  $\zeta_m^0$  liefert für den nächsten Zeitschritt  $\zeta_m^1$  und damit ist

$$\zeta_m^t = g_{(x)}^t e^{i\xi_x m} \quad (\text{D.11})$$

Um den Fehler klein zu halten, muss die Amplitudenfunktion  $g_{(x)}^t \leq 1$  sein.

Gleichungen (D.6) werden mit zentralen finiten Differenzen bis zur Ordnung  $O(\Delta x^2)$  bzw.  $O(\Delta y^2)$  diskretisiert, d.h.

$$L_{xx} h_{m,n} = \frac{h_{m+1,n} - 2h_{m,n} + h_{m-1,n}}{(\Delta x)^2} \quad (\text{D.12a})$$

$$L_{xx}^2 h_{m,n} = \frac{h_{m+2,n} - 4h_{m+1,n} + 6h_{m,n} - 4h_{m-1,n} + h_{m-2,n}}{(\Delta x)^4} \quad (\text{D.12b})$$

und entsprechend für  $L_{yy}$  und  $L_{yy}^2$ . Damit folgt die Evolutionsgleichung der Fehler

$$\left(1 - \frac{\Delta t}{2} L_{xx} - \frac{\Delta t}{2} L_{xx}^2\right) \zeta_m^* = \left(1 + \frac{\Delta t}{2} L_{yy} + \frac{\Delta t}{2} L_{yy}^2\right) \zeta_n^t + \frac{\Delta t}{2} N_m^t. \quad (\text{D.13})$$

Die diskretisierten Ableitungen (mit (D.12)) der Fehler lassen sich schreiben als

$$L_{xx} \zeta_m^t = g_{(x)}^t e^{i\xi_x m} \frac{2(\cos \xi_x - 1)}{(\Delta x)^2} \quad (\text{D.14a})$$

$$L_{xx}^2 \zeta_m^t = g_{(x)}^t e^{i\xi_x m} \frac{4(\cos \xi_x - 1)^2}{(\Delta x)^4} \quad (\text{D.14b})$$

und entsprechend für  $L_{yy}$  und  $L_{yy}^2$ . Eingesetzt in (D.13) führt dies auf eine Bestimmungsgleichung für die Amplitudenfunktion  $g_{(x)}$

$$g_{(x)} = \frac{1 + A_y + \frac{2}{(\Delta x)^2} A_y^2}{1 - A_x - \frac{2}{(\Delta x)^2} A_x^2} \quad (\text{D.15})$$

mit

$$A_x = \frac{\Delta t}{(\Delta x)^2}(\cos \xi_x - 1) \quad \text{und} \quad A_y = \frac{\Delta t}{(\Delta y)^2}(\cos \xi_y - 1). \quad (\text{D.16})$$

Werden nun beide Halbschritte zusammengefasst, so folgt mit  $\Delta y = \Delta x$  für die gesamte Amplitudenfunktion

$$g = g(x)g(y) = \frac{1 + A_y + \frac{2}{(\Delta x)^2}A_y^2}{1 - A_x - \frac{2}{(\Delta x)^2}A_x^2} \cdot \frac{1 + A_x + \frac{2}{(\Delta x)^2}A_x^2}{1 - A_y - \frac{2}{(\Delta x)^2}A_y^2}. \quad (\text{D.17})$$

Die totale Amplitudenfunktion ist  $g = g(\xi_x, \xi_y, \Delta x, \Delta t)$  und sollte für alle Funktionswerte kleiner als 1 sein.

Aus (D.16) ist ersichtlich, dass

$$A_x < 0 \quad \text{und der minimalste Wert} \quad (\text{D.18a})$$

$$A_{x_{min}} = -2 \frac{\Delta t}{(\Delta x)^2} \quad (\text{D.18b})$$

ist. Um zu garantieren, dass  $g$  in (D.17) immer kleiner als 1 ist, muss

$$A_x \left( 1 + \frac{2}{(\Delta x)^2} A_x \right) < 0 \quad (\text{D.19})$$

sein, was mit (D.18a)

$$A_x > -\frac{(\Delta x)^2}{2} \quad (\text{D.20})$$

liefert. Verwendung des minimalsten Wertes  $A_{x_{min}}$  (D.18b) liefert dann das Stabilitätskriterium

$$\Delta t < \frac{(\Delta x)^4}{4}. \quad (\text{D.21})$$

In Langwellennäherung können große räumliche Diskretisierungen verwendet werden, so dass sich für  $\Delta x = 2$  ein  $\Delta t < 4$  ergibt. Damit ist dieses Verfahren expliziten Verfahren überlegen.



# Anhang E

## Nomenklatur

### E.1 Symbolverzeichnis

Allgemeine relevante Bezeichnungen:

- $i$  : als tiefgestellter Index ( $x_1, x_2, x_3 \hat{=} x, y, z$ )
- $k$  : 1, 2 : als tiefgestellter Index (Fluid 1, Fluid 2)
- $\partial_i$  :  $\frac{\partial}{\partial x_i}$
- $\partial_{ii}$  :  $\frac{\partial^2}{\partial x_i^2}$
- $\partial_{jj}$  :  $\frac{\partial^2}{\partial x_1^2} + \frac{\partial^2}{\partial x_2^2} + \frac{\partial^2}{\partial x_3^2}$
- $\delta_{mn}$  : Kroneckersymbol
- $\vec{r}$  : Ortsvektor ( $\vec{r} = (x, y, z)$ )

Bezeichnungen fluidspezifischer Größen (Kapitel 3 und folgende):

- $V_{ki}$  : i.te dimensionsbehaftete Geschwindigkeitskomponente in Fluid  $k$  ( $[\frac{m}{s}]$ )
- $T_k$  : dimensionsbehaftete Temperatur in Fluid  $k$  ( $[K]$ )
- $P_k$  : dimensionsbehafteter Druck in Fluid  $k$  ( $[Pa] = [\frac{kg}{m \cdot s^2}]$ )
- $T_u$  : konstante Temperatur am unteren Rand ( $[K]$ )
- $T_o$  : konstante Temperatur am oberen Rand ( $[K]$ )
- $T_I$  : Grenzflächentemperatur ( $[K]$ )
- $\Delta T$  : äußere Temperaturdifferenz ( $\Delta T = T_u - T_o$   $[K]$ )

- $u_{i_k}$  : i.te dimensionslose Geschwindigkeitskomponente in Fluid  $k$   
 $\theta_k$  : dimensionslose Temperatur in Fluid  $k$   
 $p_k$  : dimensionsloser Druck in Fluid  $k$   
 $d_k$  : Dicke von Fluidschicht  $k$  ( $[m]$ )  
 $\varrho_k$  : Dichte in Fluid  $k$  ( $[\frac{kg}{m^3}]$ )  
 $\mu_k$  : dynamische Viskosität in Fluid  $k$  ( $[\frac{kg}{m \cdot s}]$ )  
 $\nu_k$  : kinematische Viskosität in Fluid  $k$  ( $[\frac{m^2}{s}]$ )  
 $\lambda_k$  : Wärmeleitfähigkeit in Fluid  $k$  ( $[\frac{W}{m \cdot K}] = [\frac{m \cdot kg}{s^3 \cdot K}]$ )  
 $\kappa_k$  : Wärmediffusionskoeffizient (oder Wärmediffusivität) in Fluid  $k$  ( $[\frac{m^2}{s}]$ )  
 $\alpha_k$  : thermischer Expansionskoeffizient in Fluid  $k$  ( $[\frac{1}{K}]$ )  
 $g$  : Gravitationsbeschleunigung ( $g = 9.81 \frac{m}{s^2}$ )  
 $\sigma$  : Oberflächenspannung ( $[\frac{N}{m}] = [\frac{kg}{s^2}]$ )  
 $\gamma$  : Änderung der Oberflächenspannung mit der Temperatur  
 $\partial\sigma/\partial T$  ( $[\frac{N}{m \cdot K}] = [\frac{kg}{s^2 \cdot K}]$ )  
 $L$  : latente Wärme ( $[\frac{J}{kg}]$ )  
 $J$  : Massenfluss oder Verdampfungsrate an der Grenzfläche ( $[\frac{kg}{m^2 \cdot s}]$ )  
 $\underline{\mathbf{T}}_{k_{ij}}$  : Spannungstensor des Fluids  $k$ ,  $ij$ -Komponente ( $[\frac{kg}{m \cdot s^2}]$ )  
 $\underline{\mathbf{P}}_{k_{ij}}$  : Viskositäts- oder Reibungstensor des Fluids  $k$ ,  
 $ij$ -Komponente ( $[\frac{kg}{m \cdot s^2}]$ )

Kurzwelleninstabilitäten (Kapitel 4):

- $Pr$  : Prandtl-Zahl ( $Pr = \frac{\nu_1}{\kappa_1} = Pr_1$ )  
 $Pr_k$  : Prandtl-Zahl in Fluid  $k$  ( $Pr_k = \frac{\nu_k}{\kappa_k}$ )  
 $R$  : Rayleigh-Zahl ( $R = \frac{\alpha_1 g \Delta T}{\nu_1 \kappa_1} d_1^3$ )  
 $M$  : Marangoni-Zahl (je nach System andere Definition)  
 $\beta_k$  : dimensionsloser Temperaturgradient in Fluid  $k$  ( $\beta_k \hat{=} \frac{\Delta T_k}{d_k}$ )  
 $\chi$  : lineare dimensionslose Wachstumsrate  
 $\varepsilon$  : Abweichung von Schwelle  
 $\Gamma$  : Aspektverhältnis (laterale Ausdehnung zu vertikaler Ausdehnung)  
 $Bo$  : Bond-Zahl ( $Bo = \frac{R}{M}$ )

Verdampfung (Kapitel 5):

$j$	: dimensionsloser gestörter Massenfluss
$K(T)$	: phänomenologischer Koeffizient in Hertz-Knudson-Gleichung ( $[\frac{kg\ s}{m^4}]$ )
$\beta$	: experimentell zu bestimmender Anpassungskoeffizient
$\mathcal{R}_M$	: universelle oder molare Gaskonstante ( $8.3145 \frac{J}{mol\ K} = 8.3145 \frac{m^2\ kg}{s^2\ mol\ K}$ )
$\mathcal{M}$	: molare Masse ( $[\frac{kg}{mol}]$ )
$\mathcal{R}$	: Gaskonstante ( $[\frac{J}{kg\ K}] = [\frac{m^2}{s^2\ K}]$ )
$P_S(T)$	: Sättigungsdampfdruck an der Grenzfläche
$\Psi_k$	: dimensionslose gestörte Stromfunktion in Fluid $k$
$Bi_{eff}^{(Ver)}$	: effektive Biot-Zahl von Modell 1
$Bi_{eff}^{(2)}$	: effektive Biot-Zahl von Modell 2
$Bi$	: herkömmliche Biot-Zahl (siehe PLATTEN und LEGROS [106])
$Bi_{eff}$	: effektive Biot-Zahl von Modell 3
$\Theta$	: dimensionsbehaftete Temperaturstörung der Grenzfläche ( $[K]$ )

Langwellennäherung (Kapitel 6):

$\epsilon$	: Kleinheitsparameter
$h$	: dimensionslose Grenzfläche (mit $h = h(x, y, t)$ )
$\mathcal{N}$	: dimensionslose Normalkraft in nullter Ordnung $\epsilon$
$\vec{T}$	: dimensionsloser Tangentialkraftvektor in nullter Ordnung $\epsilon$
$\Phi$	: dimensionsloses Volumenkraftpotenzial in nullter Ordnung $\epsilon$
$Re$	: Reynolds-Zahl ( $Re = u_0 h_0 \rho_1 / \mu_1$ )
$G$	: dimensionslose Gravitations-Zahl ( $G = \rho_1 g h_0^2 / (\mu_1 u_0)$ )
$C$	: dimensionslose Kapillaritäts-Zahl ( $C = \mu_1 u_0 / (\epsilon^3 \sigma)$ )
$E$	: Energiefunktional
$V$	: freie Energiedichte
$\tilde{\beta}$	: Langzeitskalierungskoeffizient

## E.2 Materialparameter

Die Relativwerte in der letzten Spalte sind immer das Verhältnis der Parameter des oberen Fluids zum unteren Fluid (Fluid 2/Fluid 1).

Parameter:

$\rho$ ... Dichte,  $\nu$ ... kinematische Viskosität,  $\mu$ ... dynamische Viskosität,  $\kappa$ ... Wärmediffusionskoeffizient,  $\alpha$ ... thermischer Expansionskoeffizient,  $\lambda$ ... Wärmeleitfähigkeit und  $Pr$ ... Prandtl-Zahl.

**Parametersatz 1 : Öl (HT70) - Öl (Silikonöl)** (Daten aus [43])

	Fluid 1	Fluid 2	$Fl_2/Fl_1$
	HT 70	Silikonöl 5cS	Relativ
$\rho \left[ \frac{kg}{m^3} \right]$	$1.68 \cdot 10^3$	$9.2 \cdot 10^2$	0.5476
$\nu \left[ \frac{m^2}{s} \right]$	$5.0 \cdot 10^{-7}$	$5.0 \cdot 10^{-6}$	10
$\mu \left[ \frac{kg}{m \cdot s} \right]$	$8.4 \cdot 10^{-4}$	$4.6 \cdot 10^{-3}$	5.476
$\kappa \left[ \frac{m^2}{s} \right]$	$4.33 \cdot 10^{-8}$	$7.998 \cdot 10^{-8}$	1.847
$\alpha \left[ \frac{1}{K} \right]$	$1.1 \cdot 10^{-3}$	$1.05 \cdot 10^{-3}$	0.9545
$\lambda \left[ \frac{W}{m \cdot K} \right]$	$7 \cdot 10^{-2}$	$1.17 \cdot 10^{-1}$	1.671
$Pr_k$	11.544	62.513	

$$\gamma = -4.5 \cdot 10^{-5} \frac{N}{m \cdot K}$$

In Kapitel 4:

$$d_1 + d_2 = 0.00306 \text{ m } (d = 2.3) \Rightarrow d_1 = 0.000918 \text{ m } \Rightarrow Bo = R/M = 0.339$$

Achtung: In Langwellennäherung (Kapitel 6) wird auch das vertauschte System benutzt (Fluid 1: Silikonöl, Fluid 2: HT 70), d.h. es sind die Kehrwerte der letzten Spalte zu nehmen.

**Parametersatz 2 : Quecksilber - Wasser** (Daten aus [64] (bei 20°C))

	Fluid 1	Fluid 2	$Fl_2/Fl_1$
	Quecksilber	Wasser	Relativ
$\rho \left[\frac{kg}{m^3}\right]$	$1.3546 \cdot 10^4$	$9.982 \cdot 10^2$	0.0737
$\nu \left[\frac{m^2}{s}\right]$	$1.15 \cdot 10^{-7}$	$1 \cdot 10^{-6}$	8.696
$\kappa \left[\frac{m^2}{s}\right]$	$4.35 \cdot 10^{-6}$	$1.43 \cdot 10^{-7}$	0.0328
$\alpha \left[\frac{1}{K}\right]$	$1.81 \cdot 10^{-4}$	$2.07 \cdot 10^{-4}$	1.144
$\lambda \left[\frac{W}{m K}\right]$	8.2	$5.98 \cdot 10^{-1}$	0.0729
$Pr_k$	0.026	7.0	

Es wird  $\alpha = 0.1144$  in den Simulationen verwendet, d.h. Experimente müssen bei Temperaturen unter 20°C durchgeführt werden.

**Parametersatz 3 : Wasser - Wasserdampf** (Daten aus [29, 35, 64])

	Fluid 1	Fluid 2	$Fl_2/Fl_1$
	Wasser	Wasserdampf	Relativ
$\rho \left[\frac{kg}{m^3}\right]$	$9.6 \cdot 10^2$	$6 \cdot 10^{-1}$	0.000625
$\nu \left[\frac{m^2}{s}\right]$	$3 \cdot 10^{-7}$	$2.1 \cdot 10^{-5}$	70
$\kappa \left[\frac{m^2}{s}\right]$	$1.7 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-5}$	117.65
$\alpha \left[\frac{1}{K}\right]$	$2.07 \cdot 10^{-4}$	$3.66 \cdot 10^{-3}$	17.68
$\lambda \left[\frac{W}{m K}\right]$	$6.8 \cdot 10^{-1}$	$2.4 \cdot 10^{-2}$	0.0353
$Pr_k$	1.76	1.05	

Änderung der Oberflächenspannung mit der Temperatur:  $\gamma = -1.8 \cdot 10^{-4} \frac{N}{m K}$

Gaskonstante:  $\mathcal{R} = \mathcal{R}_M / \mathcal{M} = 4.61 \cdot 10^2 \frac{J}{kg K}$

Phänomenologischer Hertz-Knudsen-Koeffizient:  $K(T = 373K) = 6 \cdot 10^{-5} \frac{kg s}{m^4}$

mit einem experimentellen Anpassungskoeffizient von  $\beta = 0.1$  (aus Gleichung (5.4))

Massenfluss:  $J = 0.0005 \frac{kg}{m^2 s}$

Latente Wärme:  $L = 2.3 \cdot 10^6 \frac{J}{kg}$

Siedetemperatur und Temperatur bei stationärem Sättigungsdruck:  $T_I^0 = 373 K$

**Parametersatz 4 : Ethanol - Ethanoldampf** (Daten aus [29, 64])

	Fluid 1	Fluid 2	$Fl_2/Fl_1$
	Ethanol	Ethanoldampf	Relativ
$\rho \left[ \frac{kg}{m^3} \right]$	$7.9 \cdot 10^2$	1.6	0.00203
$\nu \left[ \frac{m^2}{s} \right]$	$5 \cdot 10^{-7}$	$6.2 \cdot 10^{-5}$	124
$\kappa \left[ \frac{m^2}{s} \right]$	$8.8 \cdot 10^{-8}$	$7 \cdot 10^{-6}$	79.55
$\alpha \left[ \frac{1}{K} \right]$	$1.1 \cdot 10^{-3}$	$3.66 \cdot 10^{-3}$	3.327
$\lambda \left[ \frac{W}{m K} \right]$	$1.7 \cdot 10^{-1}$	$1.7 \cdot 10^{-2}$	0.1
$Pr_k$	5.68	8.86	

Änderung der Oberflächenspannung mit der Temperatur:  $\gamma = -9 \cdot 10^{-4} \frac{N}{m K}$

Gaskonstante:  $\mathcal{R} = \mathcal{R}_M / \mathcal{M} = 1.8 \cdot 10^2 \frac{J}{kg K}$

Phänomenologischer Hertz-Knudsen-Koeffizient:  $K(T = 352K) \approx 7 \cdot K(T = 373)_{Wasser}$  bei  $\beta = 0.1$  (aus Gleichung (5.4))

Massenfluss:  $J = 0.0005 \frac{kg}{m^2 s}$

Latente Wärme:  $L = 8.8 \cdot 10^5 \frac{J}{kg}$

Siedetemperatur und Temperatur bei stationärem Sättigungsdruck:  $T_I^0 = 352 K$

**Parametersatz 5 : Silikonöl - Luft** (Daten aus [30] bei 20° C)

	Fluid 1	Fluid 2	$Fl_2/Fl_1$
	Silikonöl 200cS	Luft	Relativ
$\rho \left[ \frac{kg}{m^3} \right]$	$9.69 \cdot 10^2$	1.18	0.0012
$\nu \left[ \frac{m^2}{s} \right]$	$2 \cdot 10^{-4}$	$1.568 \cdot 10^{-5}$	0.0784
$\mu \left[ \frac{kg}{m s} \right]$	$1.936 \cdot 10^{-1}$	$1.85 \cdot 10^{-5}$	$9.56 \cdot 10^{-5}$
$\kappa \left[ \frac{m^2}{s} \right]$	$1.088 \cdot 10^{-7}$	$2.235 \cdot 10^{-5}$	204.08
$\alpha \left[ \frac{1}{K} \right]$	$9.6 \cdot 10^{-4}$	$3.39 \cdot 10^{-3}$	3.53
$\lambda \left[ \frac{W}{m K} \right]$	$1.55 \cdot 10^{-1}$	$2.65 \cdot 10^{-2}$	0.171

Oberflächenspannung :  $\sigma = 2.1 \cdot 10^{-2} \frac{N}{m}$

Änderung der Oberflächenspannung mit der Temperatur:  $\gamma = -6.8 \cdot 10^{-5} \frac{N}{m K}$

Bemerkung: Untersuchungen dieses Systems werden ausschließlich bei negativer Gravitation durchgeführt ( $g = -9.81 \frac{m}{s^2}$ )

# Literaturverzeichnis

- [1] ANDERSON, D.M., MCFADDEN, G.B. UND WHEELER, A.A.: *Diffuse-Interface methods in fluid mechanics*. Ann. Rev. Fluid Mech., **30**:139, 1998.
- [2] ARNEODO, A., COULLET, P. UND TRESSER, C.: *A possible new mechanism for the onset of turbulence*. Phys. Lett. A, **81**:197, 1981.
- [3] BADRATINOVA, L.G.: Нелинейные уравнения длинных волн в задаче о термокапиллярной конвекции в двухслойной жидкости (*Nichtlineare Langwellengleichungen thermokapillarer Konvektion in zwei überlagerten Flüssigkeitsschichten*). Inst. Gifrodinamiki, So Akad. Nauk SSSR, Novosibirsk, **69**:3, 1985.
- [4] BECERRIL, R., VAN HOOK, S.J. UND SWIFT, J.B.: *The influence of interface profile on the onset of long-wavelength Marangoni convection*. Phys. Fluids, **10**:3230, 1998.
- [5] BÉNARD, H.: *Les tourbillons cellulaires dans une nappe liquide*. Rev. Gen. Sci. Pur. Appl., **11**:1261, 1900.
- [6] BÉNARD, H.: *Ann. Chim. Phys.*, **23**:62, 1901.
- [7] BENNEY, D.J.: *Long waves on liquid films*. J. Math. Phys., **45**():150, 1966.
- [8] BESTEHORN, M.: *Verallgemeinerte Ginzburg-Landau-Gleichungen für die Musterbildung bei Konvektions-Instabilitäten*. Doktorarbeit, Universität Stuttgart, 1988.

- 
- [9] BESTEHORN, M.: *Phase and amplitude instabilities for Bénard-Marangoni convection in fluid layers with large aspect ratio*. Phys. Rev. E, **48**:3622, 1993.
- [10] BESTEHORN, M.: *Pattern selection in Bénard-Marangoni convection*. Int. J. Bifurcat. Chaos, **4**:1085, 1994.
- [11] BESTEHORN, M.: *Strukturbildung durch Selbstorganisation in Flüssigkeiten und chemischen Systemen*. Habilitationsschrift, Universität Stuttgart, 1994. Bd.48, Verlag Harry Deutsch.
- [12] BESTEHORN, M.: *Square Patterns in Bénard-Marangoni convection*. Phys. Rev. Lett, **76**:46, 1996.
- [13] BESTEHORN, M.: *private Mitteilung*, 2003.
- [14] BESTEHORN, M., POTOTSKY, A. UND THIELE, U.: *3D Large scale Marangoni convection in liquid films*. J. Eur. Phys. B, **33**:457, 2003.
- [15] BESTEHORN, M. UND COLINET, P.: *Bénard-Marangoni convection of a binary mixture as an example of an oscillatory bifurcation under strong symmetry-breaking effects*. Physica D, **145**(1-2):84, 2000.
- [16] BESTEHORN, M. UND FRIEDRICH, R.: *Rotationally invariant order parameter equations for natural patterns of nonequilibrium systems*. Phys. Rev. E, **59**:2642, 1999.
- [17] BESTEHORN, M., UND NEUFFER, K.: *Surface patterns of laterally extended thin liquid films in three dimensions*. Phys. Rev. Lett., **87**:046101, 2001.
- [18] BESTEHORN, M. UND PÉREZ GARCIA, C.: *Coexistence of patterns with different symmetries in Bénard-Marangoni convection*. Europhys. Lett, **4**:1365, 1987.
- [19] BLASONE, M., JIZBA, P. UND VITIELLO, G.: *Dissipation and quantization*. Phys. Lett. A, **287**:205, 2001.
- [20] BLOCK, M.J.: *Surface tension as the cause of Bénard cells and surface deformation in a liquid film*. Nature, **178**:650, 1956.



- [21] BOECK, T.: *Bénard-Marangoni convection at low Prandtl numbers - Results of direct numerical simulations*. Doktorarbeit, Universität Ilmenau, 2002.
- [22] BOECK, T., JURGK, M. UND BAHR, U.: *Oscillatory Rayleigh-Marangoni convection in a layer heated from above: Numerical simulations with an undeformable free surface*. Phys. Rev E, **67**:027303, 2003.
- [23] BOECK, T., NEPOMNYASHCHY, A., SIMANOVSKII, I., GOLOVIN, A., BRAVERMAN, L. UND TRESS, A.: *Three-dimensional convection in a two-layer system with anomalous thermocapillary effect*. Phys. Fluids, **14**:3899, 2002.
- [24] BOOS, W. UND TRESS, A.: *Cascade of structures in long-wavelength Marangoni instability*. Phys. Fluids, **11**:1484, 1999.
- [25] BORCIA, R., MERKT, D. UND BESTEHORN, M.: *A phase-field description of surface-tension-driven instability*. Int. J. Bifurcat. Chaos, **14**:4105, 2004.
- [26] BORCIA, R. UND BESTEHORN, M.: *Phase-field simulations for evaporation with convection in liquid-vapor systems*. Eur. Phys. J. B, **44**:101, 2005.
- [27] BOUSSINESQ, J.: *Theorie Analytique de la Chaleur*. Gauthier Villars, 1903.
- [28] BRONSTEIN, I.N., SEMENDJAJEW, K.A., MUSIOL, G. UND MÜHLIG, H.: *Taschenbuch der Mathematik*. Verlag Harri Deutsch, Frankfurt a. Main, 2000.
- [29] BURELBACH, J.P., BANKOFF, S.H. UND DAVIS, S.H.: *Nonlinear stability of evaporating/condensing liquid films*. J. Fluid Mech., **195**:463, 1988.
- [30] BURGESS, J.M., JUEL, A., MCCORMICK, W.D., SWIFT, J.B. UND SWINNEY, H.L.: *Suppression of Dripping from a Ceiling*. Phys. Rev. Lett., **86**(7):1203, 2001.

- [31] CHANDRASEKHAR, S.: *Hydrodynamic and Hydromagnetic Stability*. Oxford University Press, London, 1961.
- [32] CLEVER, R.M. UND BUSSE, F.H.: *Instabilities of longitudinal convection rolls in an inclined layer*. J. Fluid Mech., **81**:107, 1977.
- [33] CLOOT, A. UND LEBON, G.: *A nonlinear stability analysis of the Bénard-Marangoni problem*. J. Fluid Mech., **145**:447, 1984.
- [34] COLINET, P., GEORIS, PH., LEGROS, J.C. UND LEBON, G.: *Spatially quasiperiodic convection and temporal chaos in two-layer thermocapillary instabilities*. Phys. Rev. E, **54**:514, 1996.
- [35] COLINET, P., LEGROS, J.C. UND VELARDE, M.G.: *Nonlinear Dynamics of Surface-Tension-Driven Instabilities*. Willey-VCH, Berlin, 2001.
- [36] COLIN, S.: *Verrückte Fluide*. Spektrum der Wissenschaft, Seite 46, 2004.
- [37] CROSS, M.C. UND HOHENBERG, P.C.: *Pattern formation outside of equilibrium*. Rev. Mod. Phys., **65**:851, 1993.
- [38] DANIELS K.E., PLAPP, B.B. UND BODENSCHATZ, E.: *Pattern formation in inclined layer convection*. Phys. Rev. Lett., **84**:5320, 2000.
- [39] DANIELS K.E. UND BODENSCHATZ, E.: *Defect turbulence in inclined layer convection*. Phys. Rev. Lett., **88**:034501, 2002.
- [40] DE GROOT, S.R. UND MAZUR, P.: *Non-Equilibrium Thermodynamics*. Dover Publications, Inc., Mineola N.Y., 1984.
- [41] DONDLINGER, M., MARGERIT, J. UND DAUBY, P.C.: *Weakly nonlinear study of Marangoni instabilities in an evaporating liquid layer*. J. Coll. Int. Sci., **15**:283, 2005.
- [42] ECKERT, K., BESTEHORN, M. UND TRESS, A.: *Square cells in surface-tension-driven Bénard convection: experiment and theory*. J. Fluid Mech., **356**:155, 1998.

- [43] ENGEL, A. UND SWIFT, J.B.: *Planform selection in two-layer Bénard-Marangoni convection*. Phys. Rev. E, **62**:6540, 2000.
- [44] FANG, G. UND WARD, C.A.: *Examination of the statistical rate theory expression for liquid evaporation rates*. Phys. Rev. E, **59**:441, 1999.
- [45] FANG, G. UND WARD, C.A.: *Temperature measured close to the interface of an evaporating liquid*. Phys. Rev. E, **59**:417, 1999.
- [46] FLETCHER, C.A.J.: *Computational Techniques for Fluid Dynamics, Vol.I,II*. Springer, Berlin, 1988.
- [47] GAU, H., HERMINGHAUS, S., LENZ, P. UND LIPOWSKY, R.: *Liquid morphologies on structured surfaces: From microchannels to microchips*. Science, **283**:46, 1999.
- [48] GERSHUNI, G.Z. UND ZHUKHOVITSKII, E.M.: *Instability of a system of horizontal layers of immiscible fluids heated from above*. Izvestiya Akademii Nauk SSSR, Mekhanika Zhidkosti i Gaza, **6**:28, 1980.
- [49] GIL, L., LEGA, J. UND MEUNIER, J.L.: *Statistical properties of defect-mediated turbulence*. Phys. Rev. A, **41**:1138, 1990.
- [50] GOUSSIS, D.A. UND KELLY, R.E.: *Surface wave and thermocapillary instabilities in a liquid film flow*. J. Fluid Mech., **223**:25, 1991.
- [51] HAKEN, H.: *Synergetics: An Introduction*. Springer, Berlin, 1983.
- [52] HAKEN, H.: *Advanced Synergetics*. Springer, Berlin, 1987.
- [53] HIRSCH, C.: *Numerical Computation of Internal and External Flows, I,II*. Wiley & Sons Ltd., Great Britain, 1991.
- [54] INGEL, L.KH.: *Anticonvection*. Phys. Uspekhi, **40**(7):741, 1997.
- [55] ISRAELACHVILI, J.N.: *The calculation of Van Der Waals Dispersion Forces between Macroscopic Bodies*. Proc. R. Soc. Lond. A., **331**:39, 1972.
- [56] ISRAELACHVILI, J.N.: *Intermolecular and surface forces*. Academic Press, London, 1992.

- [57] JONES, F.E.: *Evaporation of water*. Lewis publishers, Inc., Michigan, 1992.
- [58] KLIAKHANDLER, I.L., NEPOMNYASHCHY, A.A., SIMANOVSKII, I.B. UND ZAKS, M.A.: *Nonlinear Marangoni waves in multilayer systems*. Phys. Rev. E, **58**:5765, 1998.
- [59] KONDIC, L. UND DIEZ, J.: *Instabilities in the flow of thin films on heterogeneous surfaces*. Phys. Fluids, **16**:3341, 2004.
- [60] KOSCHMIEDER, E.L.: *The wavelength of supercritical surface-tension-driven Bénard convection*. Eur. J. Mech. B, **10**:233, 1991.
- [61] KOSCHMIEDER, E.L.: *Bénard cells and Taylor vortices*. Cambridge University Press, 1993.
- [62] KOSCHMIEDER, E.L. UND BIGGERSTAFF, M.I.: *Onset of surface-tension driven Bénard convection*. J. Fluid Mech., **167**:49, 1986.
- [63] KRISHNAMOORTHY, S., RAMASWAMY, B. UND JOO, S.W.: *Spontaneous rupture of thin liquid films due to thermocapillarity: A full-scale direct numerical simulation*. Phys. Fluids, **7**:2291, 1995.
- [64] KUCHLING, H.: *Taschenbuch der Physik*. Carl Hanser Verlag München Wien, Leipzig, 1996.
- [65] LAI, W.M., RUBIN, D. UND KREMPPL, E.: *Introduction to continuum mechanics*. Pergamon Press, Oxford, 1993.
- [66] LANDAU, L.D. UND LIFSCHITZ, E.M.: *Lehrbuch der theoretischen Physik VIII, Elektrodynamik der Kontinua*. Akademie Verlag GmbH, Berlin, 1990.
- [67] LANDAU, L.D. UND LIFSCHITZ, E.M.: *Lehrbuch der theoretischen Physik IV, Hydrodynamik*. Akademie Verlag GmbH, Berlin, 1991.
- [68] LANDAU, L.D. UND LIFSCHITZ, E.M.: *Lehrbuch der theoretischen Physik V, Statistische Physik*. Akademie Verlag GmbH, Berlin, 1991.

- [69] LIN, Z., KERLE, T., BAKER, S.M., HOAGLAND, D.A., SCHÄFFER, E., STEINER, U. UND RUSSELL, T.P.: *Electric field induced instabilities at liquid/liquid interfaces*. J. Chem. Phys., **114**:2377, 2001.
- [70] LIN, Z., KERLE, T., RUSSELL, T.P., SCHÄFFER E., UND STEINER, U.: *Structure Formation at the Interface of Liquid/Liquid Bilayer in Electric Field*. Macromolecules, **35**:3971, 2002.
- [71] LIU, Q.S. UND ROUX, B.: *Thermocapillary convection in two-layer systems*. Int. J. Heat Mass Transfer, **41**:1499, 1998.
- [72] LORD RAYLEIGH: *On convection currents in a horizontal layer of fluid when the higher temperature is on the under side*. Phil. Mag., **32**:529, 1916.
- [73] MAJUMDAR, S.R. UND O'NEILL, M.E.: *Vertical boundary effects on the electrohydrostatic instability of a fluid interface*. J. Inst. Maths Applics, **17**:343, 1976.
- [74] MANCINI, H. UND MAZA, D.: *Pattern formation without heating in an evaporative convection experiment*. Europhys. Lett., **66**(6):1, 2004.
- [75] MANNEVILLE, P.: *Dissipative structures and weak turbulence*. Academic Press Inc., San Diego, 1990.
- [76] MARANGONI, C.: *Über die Ausbreitung der Tropfen einer Flüssigkeit auf der Oberfläche einer anderen*. Annalen der Physik und Chemie, Band **CXLIII**(7):337, 1871.
- [77] MARGERIT, J., LEBON, G., COLINET P, IORIO, C UND LEGROS, J.C.: *Interfacial nonequilibrium and Bénard-Marangoni instability of a liquid-vapour system*. Phys. Rev. E, **68**:041601, 2003.
- [78] McLACHLAN, A.D.: *Proc. R. Soc. Lond. A*, **274**:80, 1963.
- [79] McLACHLAN, A.D.: *Retarded dispersion forces between molecules*. Proc. R. Soc. Lond. A, **271**:387, 1963.

- [80] MERKT, D.: *Oszillatorische Instabilität räumlich periodischer Strukturen bei der Rayleigh-Marangoni-Konvektion*. Diplomarbeit, Universität Stuttgart, 1998.
- [81] MERKT, D.: *unveröffentlicht*, 2002.
- [82] MERKT, D.: *Spatiotemporal dynamics at the Codimension-2 point*. Vortrag, ICOPAC Meeting Brussels, 2003.
- [83] MERKT, D., POTOTSKY, A., BESTEHORN M. UND THIELE, U.: *Long-wave evolution of bounded two-layer films with free liquid-liquid interface: Short- and long-time evolution*. Phys. Fluids, **17**:064104, 2005.
- [84] MERKT, D. UND BESTEHORN, M.: *Bénard-Marangoni convection in a strongly evaporating fluid*. Physica D, **185**:196, 2003.
- [85] MERKT, D. UND BESTEHORN, M.: *Numerical simulation of strongly nonlinear convective states: Bénard-Marangoni convection in an evaporating fluid*. CIMEX Final Report, Seite 126, 2003.
- [86] MERKT, D. UND BESTEHORN, M.: *Anticonvection in two-layer fluid systems*. eingereicht bei Phys. Rev. E, , 2005.
- [87] NEPOMNYASHCHY, A.A., SIMANOVSKII, I.B. UND BRAVERMAN, L.M.: *Anticonvection in systems with heat release on the interface*. Phys. Fluids, **12**(5):1129, 2000.
- [88] NEPOMNYASHCHY, A.A. UND SIMANOVSKII, I.B.: *Long-wave thermocapillary convection in layers with deformable interface*. Appl. Math. Mech, **54**:593, 1990.
- [89] NEPOMNYASHCHY, A.A. UND SIMANOVSKII, I.B.: *Nonlinear investigation of anti-convection and Rayleigh-Benard convection in systems with heat release at the interface*. Eur. J. Mech. B - Fluids, **20**:75, 2001.
- [90] NEPOMNYASHCHY, A.A., VELARDE, M.G. UND COLINET, P.: *Interfacial phenomena and convection*. Chapman and Hall, Boca Raton, 2002.

- [91] NEUFFER, K.: *Das Diffuse Grenzflächenmodell*. Doktorarbeit, Universität Cottbus, 2004.
- [92] NIELD, D.A.: *Surface tension and buoyancy effects in cellular convection*. J. Fluid Mech., **19**:341, 1964.
- [93] ONUKI, A.: *Interface instability induced by an electric field in fluids*. Physica A, **217**:38, 1995.
- [94] OR, A.C., KELLY, R.E., CORTELEZZI, L. UND SPEYER, J.L.: *Control of long-wavelength Marangoni-Bénard convection*. J. Fluid Mech., **387**:321, 1999.
- [95] OR, A.C. UND SPEYER, J.L.: *Active suppression of finite-amplitude Rayleigh-Bénard convection*. J. Fluid Mech., **483**:111, 2003.
- [96] ORON, A., DAVIS, S.H. UND BANKHOFF, S.G.: *Long-scale evolution of thin liquid films*. Rev. Mod. Phys, **69**:931, 1997.
- [97] ORON, A. UND ROSENAU, P.: *Long-scale evolution of thin liquid films*. J. Physique II France, **2**:131, 1992.
- [98] OZEN, O. UND NARAYANAN, R.: *The physics of evaporative and convective instabilities in bilayer systems: Linear theory*. Phys. Fluids, **16**:4644, 2004.
- [99] OZEN, O. UND NARAYANAN, R.: *The physics of evaporative instability in bilayer systems: Weak nonlinear theory*. Phys. Fluids, **16**:4653, 2004.
- [100] PALMER, H.J.: *The hydrodynamic stability of rapidly evaporating liquids at reduced pressures*. J Fluid Mech., **75**:487, 1976.
- [101] PARMENTIER, P.M., REGNIER, V.C., LEBON, G. UND LEGROS, J.C.: *Nonlinear analysis of coupled gravitational and thermoconvection in thin fluid layers*. Phys. Rev. E, **54**:411, 1996.
- [102] PEARSON, J.R.A.: *On convection cells induced by surface tension*. J. Fluid Mech., **4**:489, 1958.

- [103] PENROSE, O. UND FIFE, P.C.: *Thermodynamically consistent models of phase-field type for the kinetics of phase transformation*. Physica D, **43**:44, 1990.
- [104] PISMEN, L.M.: *Inertial effects in long-scale thermal convection*. Phys. Lett. A, **116**:241, 1986.
- [105] PISMEN, L.M. UND POMEAU, Y.: *Disjoining potential and spreading of thin liquid layers in the diffuse-interface model coupled to hydrodynamics*. Phys. Rev. E, **62**:2480, 2000.
- [106] PLATTEN, J.K. UND LEGROS, J.C.: *Convection in liquids*. Springer, Berlin, 1984.
- [107] POTOTSKY, A.: *private Mitteilung*, 2004.
- [108] POTOTSKY, A., BESTEHORN, M., MERKT, D. UND THIELE, U.: *Alternative pathways of dewetting for a thin two-layer film*. Phys. Rev. E, **70**:025201, 2004.
- [109] POTOTSKY, A., BESTEHORN, M., MERKT, D. UND THIELE, U.: *Morphology changes in the evolution of liquid two-layer films*. J. Chem. Phys., **122**:224711, 2005.
- [110] PROSPERETTI, A. UND PLESSET, M.S.: *The stability of an evaporating liquid surface*. Phys. Fluids, **27**:1590, 1984.
- [111] REDNIKOV, A.YE., COLINET, P., VELARDE, M.G. UND LEGROS, J.C.: *Rayleigh-Marangoni oscillatory instability in a horizontal liquid layer heated from above: coupling and mode-mixing of internal and surface dilational waves*. J. Fluid Mech., **405**:57, 2000.
- [112] REICHENBACH, J. UND LINDE, H.: *Linear perturbation analysis of surface-tension-driven convection at a plane interface (Marangoni instability)*. J. Coll. Int. Sci., **84**:433, 1981.
- [113] REITER, G.: *Dewetting of thin polymer films*. Phys. Rev. Lett., **68**:75, 1992.



- [114] REYNOLDS, O.: *On the theory of lubrication and its application to Mr. Beauchamp Tower's experiments, including an experimental determination of the viscosity of olive oil.* Phil. Trans. R. Soc. London, **117**:157, 1886.
- [115] ROGERS, J.L., SCHATZ, M.F., BOUGIE, J.L. UND SWIFT, J.B.: *Rayleigh-Bénard convection in a vertically oscillated fluid layer.* Phys. Rev. Lett., **84**:87, 2000.
- [116] RUCKENSTEIN, E. UND JAIN, R.K.: *Spontaneous rupture of thin liquid films.* J. Chem. Soc. Faraday Trans. II, **70**:132, 1974.
- [117] SAYLOR, J.R., SMITH, G.B. UND FLACK, K.A.: *An experimental investigation of the surface temperature field during evaporative convection.* Phys. Fluids, **13**:428, 2001.
- [118] SCANLON, J.W. UND SEGAL, L.A.: *Finite amplitude cellular convection induced by surface tension.* J. Fluid Mech., **30**:149, 1967.
- [119] SCHATZ, M.F., VANHOOK, S.J., MCCORMICK, W.D., SWIFT, J.B. UND SWINNEY H.L.: *Onset of surface-tension-driven Bénard convection.* Phys. Rev. Lett., **75**:1938, 1995.
- [120] SCHWARTZ, L.W., ROY, R.V., ELEY, R.R. UND PRINCEN, H.M.: *Surfactant-driven motion and splitting of droplets on a substrate.* J. Engng. Math., **50**:157, 2004.
- [121] SCRIVEN, L.E. UND STERNLING, C.V.: *On cellular convection driven by surface tension gradients.* J. Fluid Mech., **19**:321, 1964.
- [122] SHANKAR, P.N. UND DESHPANDE, M.D.: *On the temperature distribution in liquid-vapor phase change between plane liquid surfaces.* Phys. Fluids A, **2**:1030, 1990.
- [123] SHTILMAN, L. UND SIVASHINSKY, G.: *Hexagonal structure of large-scale Marangoni convection.* Physica D, **52**:477, 1991.
- [124] SIGGIA, E.D. UND ZIPPELIUS, A.: *Pattern selection in Rayleigh-Bénard convection near threshold.* Phys. Rev. Lett., **47**:853, 1981.

- [125] SIMANOVSKII, I.B. UND NEPOMNYASHCHY, A.A.: *Convective instabilities in systems with interface*. Gordon and Breach, Amsterdam, 1993.
- [126] SMITH, K.A.: *On convection instability induced by surface-tension gradients*. J. Fluid Mech., **24**:401, 1966.
- [127] THIELE, U. UND KNOBLOCH, E.: *Thin liquid films on a slightly inclined heated plate*. Physica D, **190**(3-4):213, 2004.
- [128] THIELE, U.: *Open questions and promising new fields in dewetting*. Eur. Phys. J. E, **12**:409, 2003.
- [129] THIELE, U.: *Structure formation in thin liquid films*. Habilitationsschrift, Universität Cottbus, 2004.
- [130] THIELE, U., BRUSCH, L., BESTEHORN, M. UND BÄR, M.: *Modelling thin-film dewetting on structured substrates and templates: Bifurcation analysis and numerical simulations*. Eur. Phys. J. E, **11**:255, 2003.
- [131] THIELE, U., NEUFFER, K., POMEAU, Y. UND VELARDE, M.G.: *On the importance of nucleation solutions for the rupture of thin liquid films*. Colloids and Surfaces A: Physiochem. Eng. Aspects, **206**:135, 2002.
- [132] TOKARUK, W.A., MOLTENO, T.C.A. UND MORRIS, S.W.: *Bénard-Marangoni convection in two-layered systems*. Phys. Rev. Lett., **84**:3590, 2000.
- [133] VAN DYKE, M.: *An Album of Fluid Motion*. The Parabolic Press, Stanford, 1982.
- [134] VANHOOK, S.J., SCHATZ, M.F., MCCORMICK, W.D., SWIFT, J.B. UND SWINNEY, H.L.: *Long-wavelength instability in surface-tension-driven Bénard convection*. Phys. Rev. Lett., **75**:4397, 1995.
- [135] VANHOOK, S.J., SCHATZ, M.F., SWIFT, J.B., MCCORMICK, W.D. UND SWINNEY, H.L.: *Long-wavelength surface-tension driven Bénard convection: experiment and theory*. J. Fluid Mech., **345**:45, 1997.

- [136] WARD, C.A. UND FANG, G.: *Expression for predicting liquid evaporation flux: Statistical rate theory approach*. Phys. Rev. E, **59**:429, 1999.
- [137] WARD, C.A. UND STANGA, D.: *Interfacial conditions during evaporation or condensation of water*. Phys. Rev. E, **64**:051509, 2001.
- [138] WELANDER, P.: *Convective instability in a two-layer fluid heated uniformly from above*. Tellus, **16**:349, 1964.
- [139] WILLIAMS, M.B. UND DAVIS, S.H.: *Nonlinear theory of film rupture*. J. Coll. Int. Sci., **90**:220, 1982.
- [140] YIANTSIOS, S.G. UND HIGGINS, B.G.: *Rayleigh-Taylor instability in thin viscous films*. Phys. Fluids A, **1**:1484, 1989.
- [141] YIANTSIOS, S.G. UND HIGGINS, B.G.: *Rupture of thin films: Nonlinear stability analysis*. J. Coll. Int. Sci., **147**(9):341, 1991.
- [142] YIH, C.S.: *Fluid mechanics: A concise introduction to the theory, corrected version*. West River Press, Ann Arbor MI, 1977.
- [143] YI, P., POULIKAKOS, D., WALTHER, J. UND YADIGAROGLU, G.: *Molecular dynamics simulation of vaporization of an ultra-thin liquid argon layer on a surface*. Int. J. Heat Mass Transfer, **45**:2087, 2002.
- [144] ZHANG, X., ZHU, Y. UND GARNICK, S.: *Hydrophobicity at a Janus interface*. Science, **295**:663, 2002.



# Danksagung

Mein Dank geht

- an Prof. Dr. Michael Bestehorn, der durch herausragende fachliche Betreuung, freie Forschungsentscheidungen, freundschaftliche Verbundenheit und nicht zuletzt menschliches Verständnis zu einem nicht so schnell wiederzufindenden Chef geworden ist.
- an meine weiteren Gutachter Prof. Dr. C. Egbers und Prof. Dr. R. Friedrich.
- an alle Mitarbeiter der theoretischen Physik in Cottbus. Besonders möchte ich mich bei Katrin Gregor für ihre „Wellenlänge“ und Freundschaft bedanken.
- an den fachlichen Rat, die tagungsbegleitende Unterstützung und die Freundschaft meiner Kollegen der BTU: Rodica und Ion Borcia, Florenta Costache, Mihaela Enculesu, Falk Günther, Andreas Krebs, Andrey Pototsky, Götz Seibold und Sergeij Varlamov.
- an meine Freunde. Im Besonderen an Joachim Schmalzried und Jochen Habermaier. Zwei aus frühesten Tagen, denen auch in 50 Jahren noch egal ist was ich tue, aber es dennoch unterstützen.
- an das entgegengebrachte Desinteresse, Unvermögen oder Unverständnis einiger weniger Mitmenschen, wodurch meine getroffenen Entscheidungen immer bestätigt wurden.
- an das Zelig in Cottbus, welches meistens, und nicht nur durch Bier, neuen Auftrieb in Forschung, Lehre und Leben gebracht hat.
- an LINUX, der Schutz gegen den kommerziellen Ausverkauf der Forschung.
- an meine mir sehr verbundenen Eltern

und an all jene, die an meinem Leben positiv Teil haben.



# Lebenslauf

Name : Domic Merkt

1970 : am 3. Juni in Tuttlingen geboren

1989 : Abitur

ab 1989 : Lehre als Tischler

1991 : Gesellenprüfung zum Tischler

ab 1991 : Physikstudium an der Universität Stuttgart

1998 : Diplom der Universität Stuttgart

Thema Diplomarbeit : Oszillatorische Instabilität räumlich periodischer Strukturen bei der Bénard-Marangoni-Konvektion

bis 2000 : Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut Nonlinear de Nice (CNRS)

Thema : Lagrangian dynamics in isotropic turbulence

ab 2000 : Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Theoretische Physik II an der BTU-Cottbus. (davon zeitweise integriert in Projekte der European Space Agency (Kapitel 5))

Sechsmonatige Unterbrechung aufgrund Stipendium am Microgravity Research Center MRC in Brüssel (Netzwerk der EU, ICOPAC)