

ガラスの溶融・凝固実験

Solidification of Glass under Microgravity

| | |
|---------------------|----------------------|
| 中村富久 ⁽¹⁾ | 鮫島浩人 ⁽¹⁾ |
| Tomihisa NAKAMURA | Hiroto SAMEJIMA |
| 早川惇二 ⁽²⁾ | 牧原正記 |
| Junji HAYAKAWA | Masaki MAKIHARA |
| 町田恒雄 ⁽³⁾ | 田中清志 ⁽³⁾ |
| Tuneo MACHIDA | Kiyoshi TANAKA |
| 横田孝夫 ⁽³⁾ | 石川佳寿子 ⁽³⁾ |
| Takao YOKOTA | Kazuko ISHIKAWA |
| 高須誠一 ⁽⁴⁾ | |
| Seiichi TAKASU | |

- (1) 宇宙開発事業団
National Space Development Agency of Japan
- (2) 大阪工業技術試験所
Government Industrial Research Institute, Osaka
- (3) 日本電気株式会社
NEC Corporation
- (4) ニチデン機械株式会社
NICHIDEN Machinery Limited

ABSTRACT

The experiment of melt and solidification of glass using High Temperature Furnace (HTF) under microgravity environment is planned by NASDA as a part of TR-IA sounding rocket missions.

This experiment using MU-300 aircraft in October 1991 was carried out as the preliminary study of HTF mission.

The purpose of this experiment is to understand melting condition of glass materials under microgravity environment and to establish how to support a glass material on the cylinder and how to measure the temperature using photodiode.

This paper describes the result of melting and solidifying condition of glass materials, as well as observing undercooling phenomena using CCD camera and measuring the temperature and luminosity using thermocouple and photodiode.

1. 緒言

宇宙ステーション時代における宇宙環境利用技術基盤整備の一貫として開発された小型ロケットTR-IA 2号機(平成4年夏季打上予定)において、高温加熱装置HTF(High Temperature Furnace)を用いてガラス材料の溶融・凝固実験を計画している。

本稿では、この高温加熱装置の要素試作試験として1991年10月に実施した、航空機による微小重力実験の結果について述べる。本実験は、本装置の加熱源であるイメージ炉を用いて、微小重力環境下における試料の溶融状態を把握し、ロケット搭載に向けて最適な試料支持方式及び非接触温度計測技術を確立することを目的として実施した。

2. 実験方法

2. 1 実験項目及び内容

イメージ炉の焦点に試料をセットし、微小重力環境下において熔融する。実験の対象となる材料は高融点ガラス (SiO_2 、 Li_2O 系) である。試料の支持は、支持棒との接触を極力少なくしたポイント支持とした。また、計測・観察系として、熱電対による温度計測、フォトセンサによる明るさの測定、さらに熔融状態及び冷却時の過冷却現象の観察を CCD カメラにより実施した。

実験に当たっては、以下の項目を検討した。

(1) 支持棒形状 (図 1 参照)

支持棒の直径を $\phi 3.6$ 、 $\phi 4$ 、 $\phi 5$ 、 $\phi 6\text{mm}$ と変化させることにより、試料 (熔融時寸法 10mm) との接触面積の違いによる熔融状態の変化及び試料への温度影響を比較し、最小支持棒形状を選定する。

(2) 熱電対位置 (図 1 参照)

支持棒との接触面から試料内 0.5mm 、 2.5mm 、 4.5mm 、 7.5mm の位置に熱電対を取付け、それらの位置の違いにより試料内の温度差を測定する。また、熱電対により熔融時の試料の位置保持が可能かどうかを検討する。

(3) 過冷却現象の把握 (図 1 参照)

予備加熱時及び本加熱時の電圧と加熱時間を調節することにより、 $\mu\text{G} 20$ 秒間で過冷却状態から結晶化への状態変化の現象 (過冷却現象) が観察可能かを確認する。

(4) フォトセンサの温度較正 (図 1 参照)

フォトセンサをイメージ炉上部に設置し、ランプ消灯後の試料の明るさ強度を測定する。同時に 7.5mm の位置の熱電対により表面近くの温度を計測し、フォトセンサ出力と比較することにより、非接触温度計測の可能性を検討する。

(5) 試料の濡れ性評価 (図 1 参照)

試料と接触する部分の支持棒の形状を傾斜にした場合と接触面が粗い場合とに変えて、熔融時の試料形状に影響するかを評価する。

(6) 試料組成の検討 (図 1 参照)

試料の組成を変化させ、過冷却現象観察の可能性を検討する。

2. 2 実験試料の仕様

(1) 実験項目 (1)~(5) に使用した試料組成

$$\text{Li}_2\text{O}:\text{SiO}_2:\text{CoO} = 1:1:0.01 \quad (\text{モル比})$$

(2) 実験項目 (6) に使用した試料組成

$$\textcircled{1} \text{Li}_2\text{O}:\text{SiO}_2:\text{CoO} = 1:1:0.05 \quad (\text{モル比})$$

$$\textcircled{2} \text{Li}_2\text{O}:\text{SiO}_2:\text{CoO} = 1:0.9:5\text{Wt}\%$$

$$\textcircled{3} \text{Li}_2\text{O}:\text{SiO}_2:\text{CoO} = 1:0.8:5\text{Wt}\%$$

(1)、(2) とともに粉末を一度電気炉により加熱熔融し、ガラス化したものを使用した。

2. 3 実験条件

実験条件を図 1 に示す。実験はすべて常温・常圧で実施した。

| | | 実験項目1：加熱列シフト、支持棒形状 | | | | | | | | | 実験項目2：熱電対位置 | | | | | | | | | | |
|---------------|-----------|--------------------|---|---|---|---|---|---|---|---|-------------|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | 直径D | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | 9 | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | 9 | |
| 支持形状 | | 3.6 | ○ | | ○ | | | | | | | ○ | ○ | ○ | ○ | | | | | | |
| | | 4 | | | | | | | | | | | | | | | | | | ○ | |
| | | 5 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 6 | | ○ | | | | | | | | | | | | ○ | ○ | | ○ | | ○ |
| | | 9 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| センサ種類 | R型-φ0.3mm | ○ | ○ | ○ | | | | | | | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | |
| | なし | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| センサ位置 (mm) | 0.5 | | | ○ | | | | | | | ○ | | | | | | | | | ○ | |
| | 2.5 | ○ | ○ | | | | | | | | | ○ | | | | | | | ○ | | |
| | 4.5 | | | | | | | | | | | | ○ | | | | ○ | | | | |
| | 7.5 | | | | | | | | | | | | | ○ | ○ | | | | | | |
| 加熱パターン (図4参照) | A1 | ○ | | ○ | | | | | | | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | |
| | A2 | | | | | | | | | | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | |
| | B1 | | ○ | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | B2 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |

| | | 実験項目3：70℃比較正、過冷却 | | | | | | | | | 実験項目4：過冷却 | | | | | | | | | | |
|---------------|-----------|------------------|---|---|---|---|---|---|---|---|-----------|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | 直径D | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | 9 | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | 9 | |
| 支持形状 | | 3.6 | ○ | | | | | | | | | ○ | | | | ○ | | | | ○ | |
| | | 4 | | ○ | | | ○ | ○ | ○ | | ○ | | ○ | | ○ | ○ | ○ | ○ | | | |
| | | 5 | | | ○ | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 6 | | | | ○ | | | | | | | | ○ | | | | | | | ○ |
| | | 9 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| センサ種類 | R型-φ0.3mm | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | |
| | なし | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| センサ位置 (mm) | 0.5 | | | | | | | | | ○ | | | | | | | | | | ○ | |
| | 2.5 | | | | | | | | ○ | | | | | | | | | | | | |
| | 4.5 | | | | | | | ○ | | | ○ | ○ | ○ | | | | | | ○ | | |
| | 7.5 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | | | | | | | | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | | | |
| 加熱パターン (図4参照) | A1 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | A2 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | |
| | B1 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | B2 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |

| | | 実験項目5：濡れ性 | | | | | | | | | 実験項目6：予備日 | | | | | | | | | | |
|---------------|-----------|-----------|----|---|---|---|---|---|---|---|-----------|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | 直径D | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | 9 | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | 9 | |
| 支持形状 | | 3.6 | | | | | | ○ | ○ | ○ | | ○ | | | ○ | ○ | | | | | |
| | | 4 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 5 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 6 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 9 | ① | ① | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 支持形状 | 傾斜 | D | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 6 | 30 | | | | ③ | ④ | | | | | | | | | | | ○ | ○ | ○ |
| | | | 45 | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 60 | | | ② | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 粗い接触面 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | 6 | | | | | | | | ⑤ | | | | | | | | | | | |
| センサ種類 | R型-φ0.3mm | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | | ○ | ○ | ○ | ○ | | ○ | ○ | ○ | |
| | なし | | | | | | | | | | | ○ | | | | | | | ○ | ○ | ○ |
| センサ位置 (mm) | 0.5 | ○ | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | 2.5 | | | ○ | ○ | ○ | | | | | | | | | | | | | | | |
| | 4.5 | | ○ | | | | | ○ | ○ | ○ | ○ | | ○ | ○ | | | | | | | |
| | 7.5 | | | | | | | | | | | | | | | ○ | ○ | | | | |
| 加熱パターン (図4参照) | A1 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | | | | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| | A2 | | | | | | | | | | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| | B1 | | | | | | | ○ | ○ | ○ | | | | | | | | | | | |
| | B2 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |

図1 実験条件

Fig. 1 Experiment conditions

2. 4 実験装置の構成

本実験装置の試料支持部の概観を図2に示す。また、計測ブロック図を図3に示す。

実験装置は加熱部、電源部、計測系、観察記録系に分けられる。加熱部（イメージ炉）は、反射鏡、ハロゲンランプ及び試料部から成っており、試料をイメージ炉の下側から交換できる構造になっている。電源部では、電子負荷装置によりDC0V～20Vまでの電圧を任意に設定できるようになっており、その制御電圧がランプに供給される。計測系では、試料内に取り付けた熱電対により試料温度を測定するとともに、イメージ炉上部に設置したフォトセンサにより試料の明るさを計測できる。また、観察記録系については、熔融時及び冷却時の試料の状態をそれぞれ1台のCCDカメラで観察し、ビデオレコーダに記録されるようになっている。

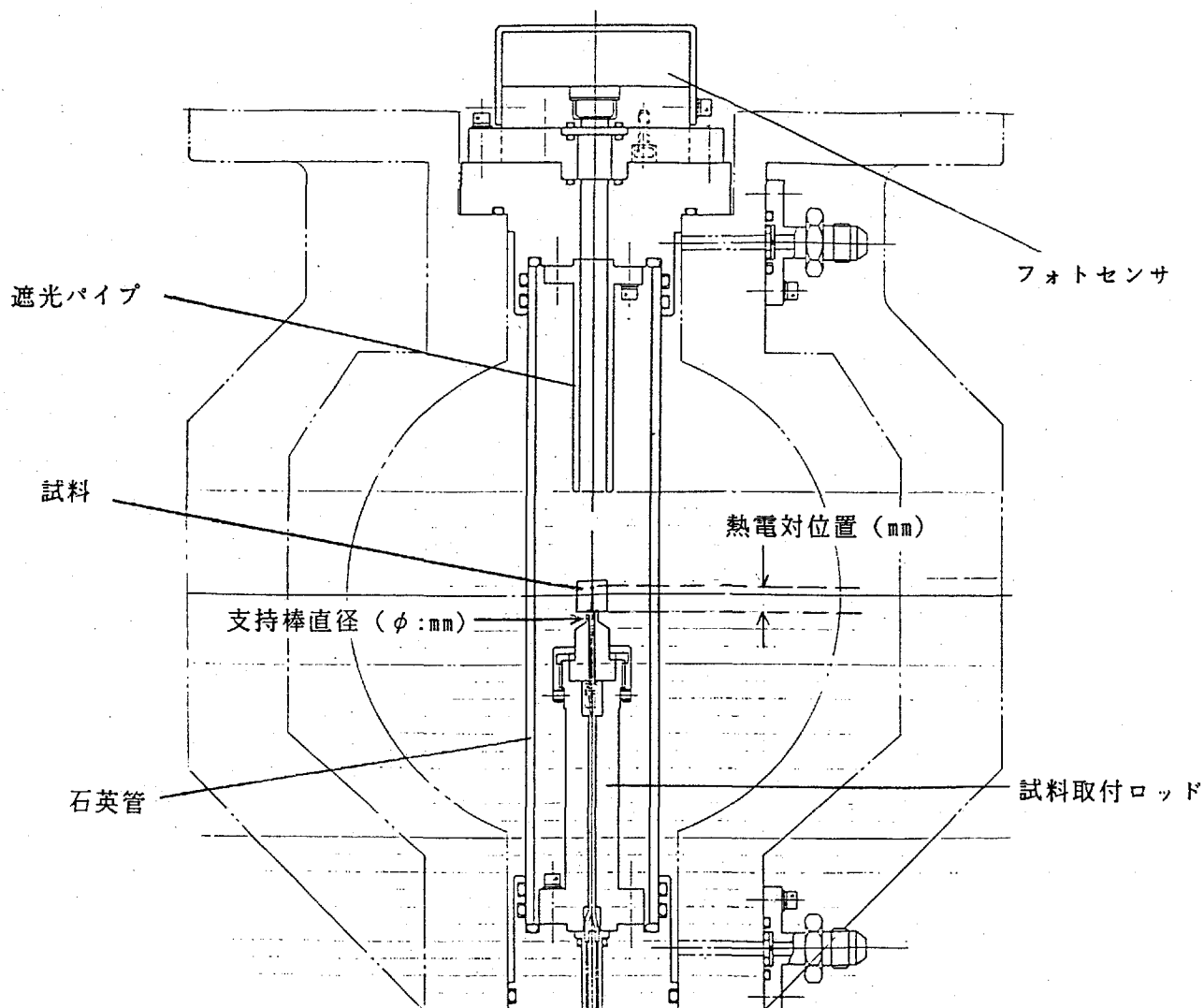


図2 試料支持部の構成図

Fig. 2 Sample support schematic drawing

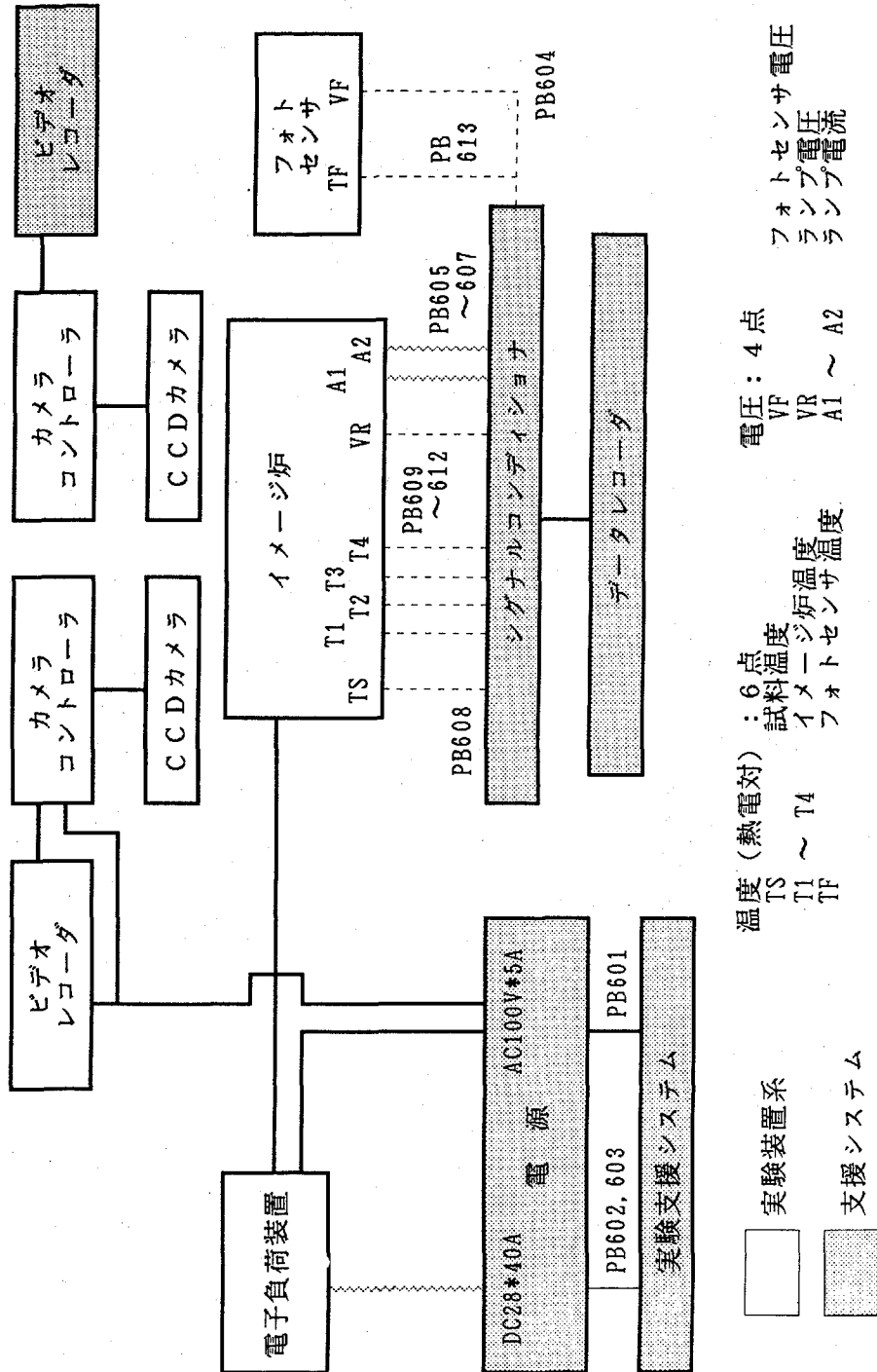
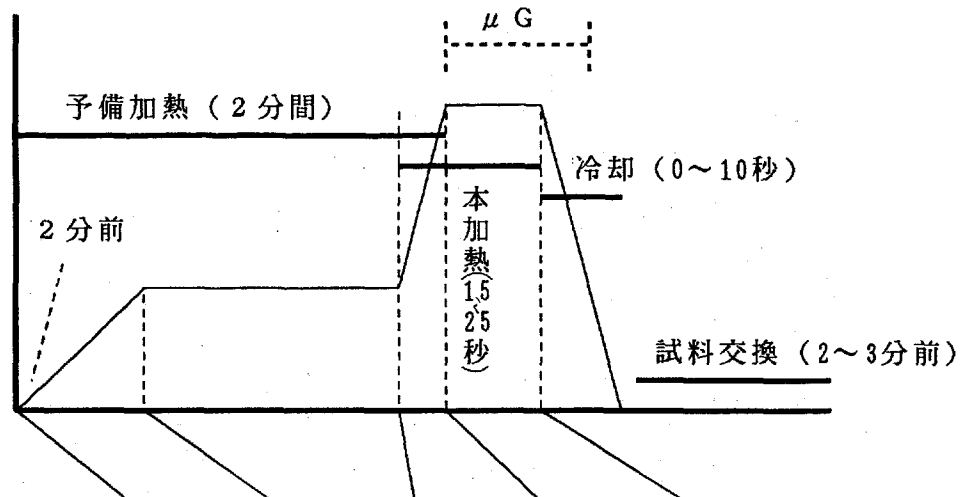


図3 計測ブロック図
 Fig. 3 Block diagram of measuring System

2. 5 実験方法

ランプ電圧及び加熱時間を調整して、試料を溶融・凝固させる。試料は1パラボリックフライトごとに交換する。また、電圧及び時間の設定については実験内容に応じて、図4に示す加熱パターンから適するものを選択する。基本的には予備加熱後本加熱を行う手順をとる。



| | | | | | | | |
|----|----------|------------|------------|-------------|------------|------------|--------------|
| A1 | 時間 電圧 | -2:00 0 | -1:50 9 | -0:05 19 | 0:00 | +0:20 0 | (分:秒) (V) |
| A2 | 時間 電圧 | -2:00 0 | -1:50 9 | -0:05 19 | 0:00 | +0:10 0 | |
| B1 | 時間 電圧 | -2:00 0 | -1:50 9 | | 0:00 19 | +0:20 0 | |
| B2 | 時間 電圧 | -2:00 0 | -1:50 9 | | 0:00 19 | +0:10 0 | |

図4 加熱パターン
Fig. 4 Heat input pattern

注) ↑ 電圧を上げる
↓ 電圧を下げる

2. 6 実験計測データ

| 測定項目 | 測定部位 | 点数 | センサ仕様 | 測定範囲 |
|----------|---------|----|---------|------------|
| ランプ電圧 | ハロゲンランプ | 1 | | 0V~20V |
| ランプ電流 | ハロゲンランプ | 2 | | 0A~20A |
| 試料明るさ | イメージ炉上部 | 1 | フォトセンサ | 0A~0.5mA |
| 試料温度 | 試料内部 | 1 | 熱電対 (R) | 0°C~1600°C |
| イメージ炉温度 | | 4 | 熱電対 (K) | 0°C~1000°C |
| フォトセンサ温度 | | 1 | 熱電対 (K) | 0°C~1000°C |

3 実験結果及び考察

3. 1 支持棒形状 (実験項目 2. 1 (1) の評価)

溶融した試料はいずれも μG 中で支持棒または熱電対に接触しながら球になっており、支持棒の直径の小さいものほどガラスの真球度がよかった。また、支持棒の直径の小さいものほど全体的に溶融している傾向が見られた。

図 5 に支持棒直径と試料温度の関係を示す。温度に関しては熱電対が同じ位置の場合、支持棒の直径が小さくなるほど温度は高くなる。これは、支持棒との接触面積が小さいほど熱伝導が小さく、支持棒に影響を受ける温度が小さいことを示している。したがって、支持棒の直径を小さくするほど試料自身の温度を正確に測定できる。

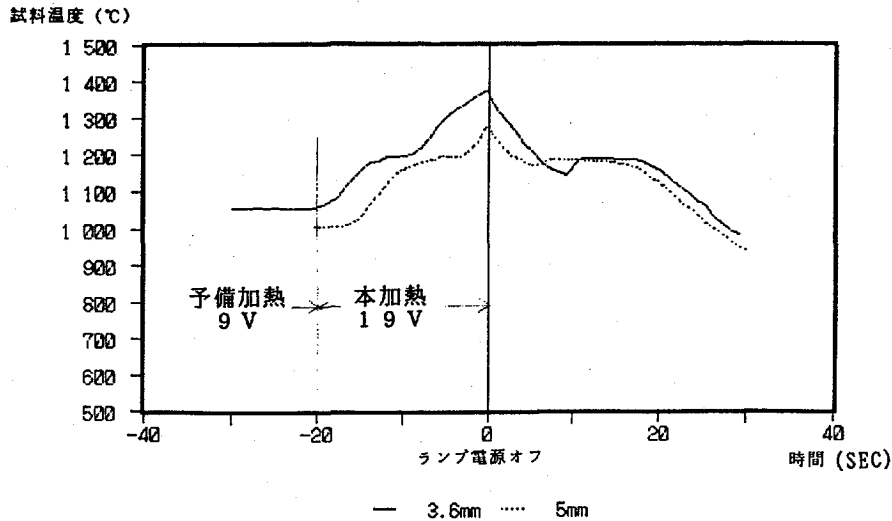


図 5 支持棒直径と試料温度の関係
Fig. 5 Relation between diameter of support cylinder and sample temperature

3. 2 熱電対位置 (実験項目 2. 1 (2) の評価)

(1) 試料内の温度差については、図 6 にランプ OFF 時の試料温度比較を示す。支持棒直径はいずれも $\phi 3.6\text{mm}$ である。これより、試料表面 > 中心 > 根元の順で温度が低くなっていく傾向が見られる。

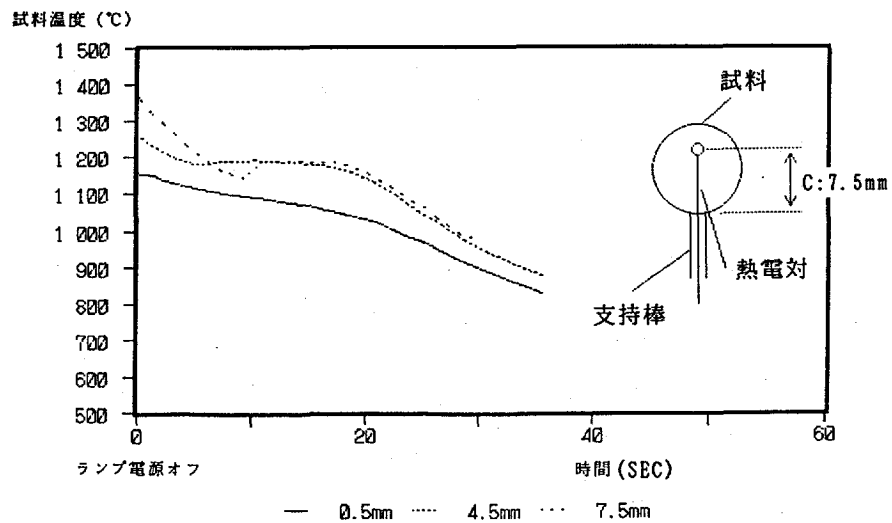


図 6 熱電対位置と試料温度の関係
Fig. 6 Relation between location of thermocouple and sample temperature

(2) 熱電対の位置にかかわらず、試料溶融形状に対する熱電対の影響はなく、しっかりと試料を保持していた。熱電対位置が0.5mmの保持では航空機のG変化により試料のゆらぎが大きく、また、7.5mmの試料では μ G後の1.8Gにより熱電対の先端が露出してしまう問題があったが、これらは航空機特有の事象と考えられる。

3. 3 過冷却現象の把握 (実験項目2. 1 (3) の評価)

ランプ消灯後、溶融した試料は急冷され過冷却液体となるが、ある時点で表面が結晶化しはじめる。このとき、試料ではその体積収縮に伴って発熱がおり、エネルギーを放出する。この一連の現象をCCDカメラ、フォトセンサ及び熱電対により確認した。

CCDカメラで観察した過冷却現象の一連の様子を図7に示す。また、この時のフォトセンサ出力を図8に、試料の温度変化を図9に示す。これより、フォトセンサでは、約0 mA ~ 0.3 mAの範囲において過冷却現象が計測され、温度としては約1140°C ~ 1170°Cの範囲に計測できた。

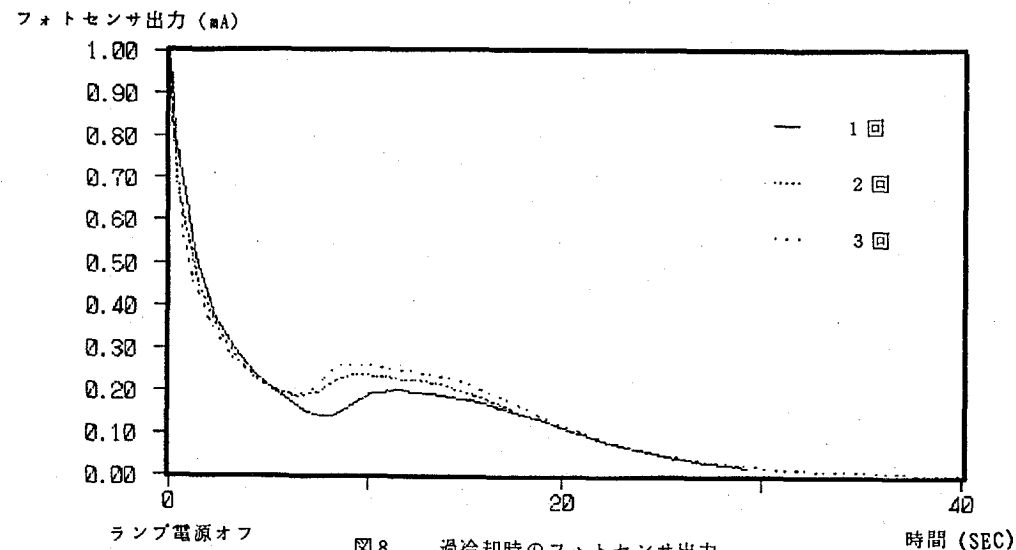


図8 過冷却時のフォトセンサ出力
Fig. 8 Photodiode output at undercooling

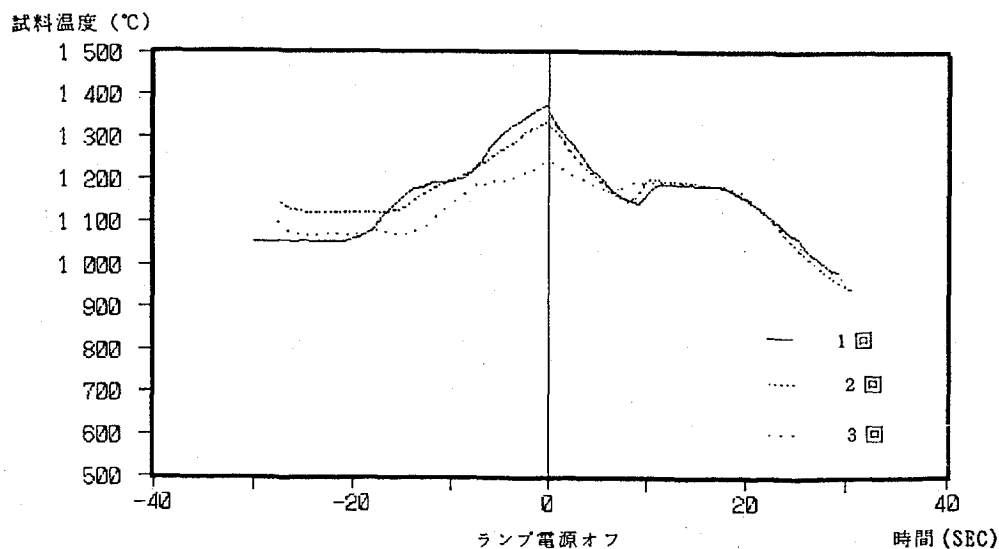


図9 過冷却時の試料温度
Fig. 9 Sample temperature at undercooling

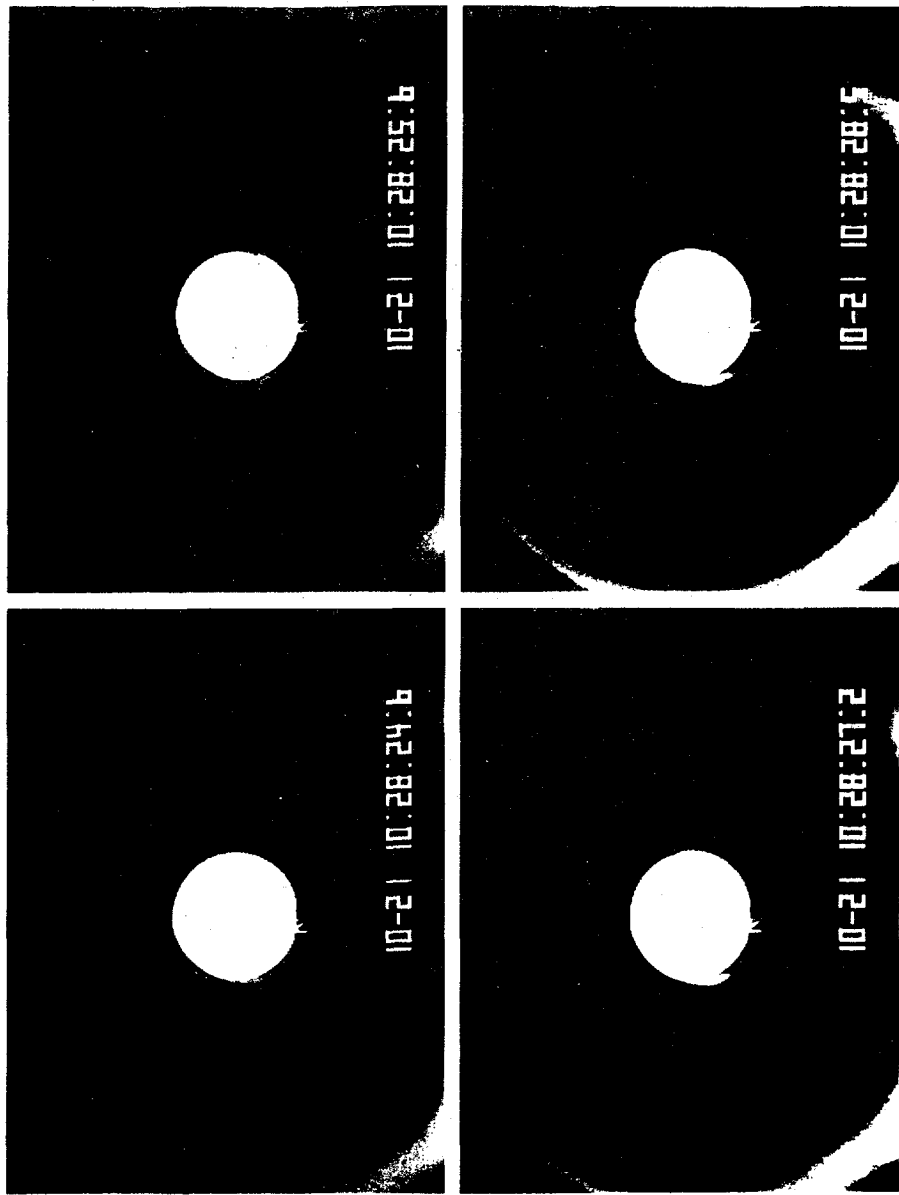


図7 過冷却現象
Fig. 7 Undercooling phenomena

3. 4 フォトセンサによる温度較正（実験項目2. 1（4）の評価）

試料温度とフォトセンサ出力の関係を得た。熱電対位置7. 5 mmで測定した試料温度とフォトセンサ出力との比較を図10に示す。

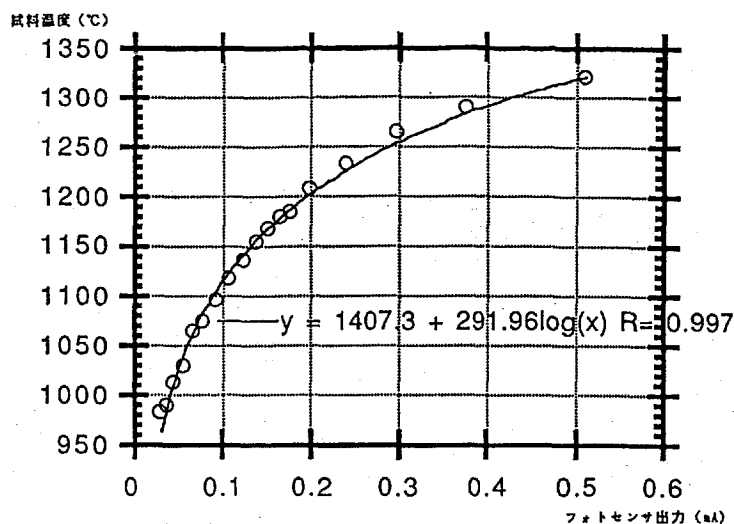


図10 試料温度とフォトセンサ出力の関係
Fig. 10 Relation between sample temperature and photodiode output

3. 5 試料の濡れ性評価（実験項目2. 1（5）の評価）

支持棒の形状を図1の実験5に示すように5種類準備し、試料との濡れ性を評価した。試料と同等の直径（φ9mm）の支持棒では、熔融した試料はドーム状を形成していた。また、直径がφ6mmで先端に傾斜をつけた支持棒では、傾斜角が大きくなるほど真球度がよくなる傾向がみられた。同じ径で接触部の表面を粗くした支持棒の場合でも熔融した試料は球形を形成していた。

以上、いずれも試料内に熱電対を取り付けたタイプであるが、熱電対を取り付けず無機系接着により固定したタイプでは熔融した試料が浮遊してしまった例もある。

これより、2. 1（1）～（4）の実験において使用した支持棒との濡れ性と2. 1（5）の実験の結果とを比較して、接触面積を少なくしたほうが、材料との濡れの影響が少なくなり、また、試料の位置及び形状の制御性がよくなることがわかった。

3. 6 試料組成（実験項目2. 1（6）の評価）

試料組成において、2. 2（2）②～③ではシリカ（SiO₂）のモル比を減らし、熔融特性・冷却特性・過冷却現象・濡れ性等を比較したところ、以下の2点を除いて違いはみられなかった。

- (1) この試料では、熱電対を取り付けていないので温度等の定量的な解析はできないが、熱力学的に不安定な状態の物質であるので、結晶化の現象は比較的よく観察できた。
- (2) 試料の硬度という面でシリカの比が減るともろくなる傾向にあるため、ロケットの振動環境に耐えられない恐れがある。

4. 結言

航空機による微小重力環境下において、イメージ炉によるガラス材料の溶融・凝固実験を行い、実験目的とした試料支持方法、温度計測、過冷却現象観察のためのフィルター選定等の貴重なデータが取得できた。

本実験の結果より、今後のTR-I A小型ロケット2号機の設計へ反映すべき点を以下に示す。

① 試料形状

寸法が $\phi 9\text{ mm} \times 9\text{ mm}$ の円柱形とする。

② 支持部形状

支持棒は $\phi 10\text{ mm} \times 14.5\text{ mm}$ の円柱形とし、接触面積を少なくしたほうが材料との濡れの影響が少なくなるため、先端を $\phi 3.6\text{ mm}$ に細くし、この部分が試料と接触する（ポイント支持）構造とする。また、支持棒の材質は石英とする。

さらに、支持棒の中心に 0.3 mm のR型熱電対を通し、先端の 7.5 mm を試料に挿入する。試料と支持棒は接着あるいは融着により取り付ける。（地上実験により決定する。）

③ 試料加熱温度

熱電対温度が 1370°C に上昇した時点でイメージ炉の加熱源をOFFする。

④ 温度計測レンジ

レンジ設定範囲を以下に示す。

| | | |
|------|---------|---|
| レンジ1 | 過冷却現象計測 | $900^\circ\text{C} \sim 1400^\circ\text{C}$ |
| | | (下限) (上限) |

| | | |
|------|--------|---|
| レンジ2 | マクロ計測用 | $100^\circ\text{C} \sim 1500^\circ\text{C}$ |
|------|--------|---|

⑤ フォトセンサ出力計測範囲： $0.0\text{ mA} \sim 0.4\text{ mA}$

⑥ 過冷却現象観察用フィルターの選定：5%

謝辞

MU-300を利用し、6フライトにわたり48項目の実験を効率よく実施でき、TR-I A HTF 2号機改修のための貴重な設計データを取得することができた。本実験を実施するに当たり、ダイヤモンドエアサービスの皆様方に多大な御協力を戴いたことに感謝致します。