

氷の結晶成長における形態不安定化—ISS「きぼう」実験—

北海道大学 古川義純、学習院大学 横山悦郎、JAXA 吉崎泉、依田眞一、田中哲夫、
JSF 島岡太郎、JAMSS 曾根武彦、IHI エアロスペース 友部俊之

Morphological Instability during Ice Crystal Growth—ISS-KIBO Experiments

Yoshinori Furukawa¹, Etsuro Yokoyama², Izumi Yoshizaki³, Taro Shimaoka⁴, Takehiko Sone⁵, and
Toshiyuki Tomobe⁶

¹Hokkaido University, ²Gakushuin University, ³JAXA, ⁴JSF, ⁵JAMSS, ⁶IHI Aerospace

E-mail: frkw@lowtem.hokudai.ac.jp (Y. Furukawa)

Abstract: Microgravity experiments on the morphological instability and pattern formation of ice crystals growing in supercooled bulk heavy water were carried out in the Japanese Experiment Module “KIBO” in the period from December 2008 to March 2009. Totally 134 experiments were successfully repeated in the space and the processes of ice crystal growth were recorded using the interference microscopes with crossed optical axes. Ice crystal growth was observed as a function of supercooling between 0.01K and 2K. The results of this space experiments are introduced very briefly in this report.

1. はじめに

国際宇宙ステーション「きぼう」における結晶成長に関する実験計画のうち、最初の実験として「氷の結晶成長における形態不安定化」実験が2008年12月から3ヶ月間実施された。過冷却度の関数として、結晶のパターン発展の様子が干渉顕微鏡で観察され、動画データとして地上に転送された。データは現在さまざまな視点から解析中であるが、現在までに得られた成果についての概要を述べる。

2. 装置開発と実験運用

本実験に使用する供試体は、“Ice Crystal Cell”と呼ばれるもので、結晶成長装置と観察のための干渉顕微鏡が組み込まれ、溶液結晶化観察装置 (SCOF) に取り付け可能である。供試体に充填する実験試料として、重水 (D₂O) が使われた。氷結晶成長装置は、成長セル (26mm φ × 24mm 厚) と核生成セル (6mm φ × 0.5mm 厚) で構成され、両者は外径約1mmのガラス毛细管で結合されている。両方のセルをペルチエ素子によりそれぞれ独立に温度制御す

ることで、結晶成長を自由に開始したり終了したりすることができる。この装置の特徴は、可動部分がなく温度の制御のみで結晶成長実験が可能なこと、結晶を完全に融解すれば、繰り返し何度でも結晶成長実験を行うことができる。

3. 実験結果

「きぼう」での氷結晶成長の実験は、2008年12月初めから開始され、3月上旬までの約3ヶ月間にわたり実施された。宇宙飛行士の活動による重力変動を避けるために、就寝時間帯(日本時間で午前3時ごろから午後2時ごろまで)を利用して、さまざまな過冷却温度条件で実験を実施した。実験終了までの総実験回数は134回に達し、打上前の準備段階で予定されていた110回を大幅に超過した。氷結晶成長に対する過冷却温度条件は、0.01Kから2Kの範囲で設定され、温度の測定精度は±0.01°C程度である。融点近傍での実験であるため、絶対温度の決定が非常に重要である。このため、「きぼう」に搭載されているSCOFに装置を設置した状態で、結晶の成長と融解の臨界温度を精密に観察することで、温度センサーのキャリブレーションも実施された。その結果、絶対温度で±0.05°Cの精度が保障されている。

「きぼう」で取得された実験画像(動画)は、地上にデジタルデータとして転送される。我々の実験では、実験データの予備解析の段階で、画像データに時間記録の記載が無いことや、ISSから地上への転送時に動画の重複や飛びが不規則に存在することが明らかになった。我々はこの問題を解消するために多大の労力と時間を浪費することとなった。特に、複数の観察系で独立に得られた動画や別系統で転送された温度データの間相対的な時間軸を一致させることが困難であり、データ処理に大きな問題が生じた。しかしながら、実験終了後にこの問題に対する解決策を見出すことに成功し、データの解析が可

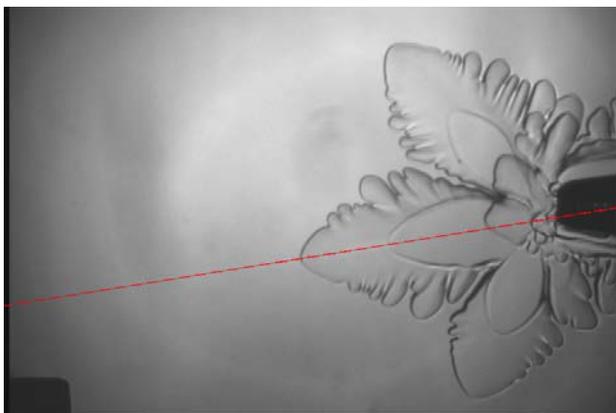


Fig. 1 「きぼう」で得られた氷結晶のスナップショット。画面サイズは、6.4mm × 4.8mm。

能となった。これは、「きぼう」に搭載された画像取得装置である IPU の仕様の問題があることが判明し、現在では改善されている。しかしそれでも、今後「きぼう」において画像を実験データとして使う場合には、独自に時間マーカを設定できるような工夫をする必要がある。

Fig. 1 は、本実験で得られた典型的な樹枝状結晶を示す。成長開始時の過冷却度の設定は 0.3K である。氷の結晶構造のもつ六方対称を反映して、樹枝状結晶は本来 6 本の主枝を持つが、ガラス毛细管の先端での結晶を生成するため、3 本の主枝だけが成長可能である。この実験装置を使った地上参照実験で得られた樹枝状結晶では、対流効果のために樹枝状結晶の長さが成長の方位によって大きく異なることが確認されている。すなわち対流の効果により、非対称性が極端に大きいパターンが生成された。これに対し、宇宙実験で得られた結晶のパターンでは、それぞれの主枝の形は非常に同一性が高く、対称性が著しく改善されている。しかし、それでもなお詳細に見ると 1 本 1 本の枝は少しずつ異なっている。すなわち、対流の効果が消失したことで、結晶成長セルの形や枝の配置、さらにはセルを作る材料の熱伝導率などに伴うわずかな熱流のゆらぎが結晶外形に反映されたと考えられる。また、地上実験のみでは、氷結晶成長に対する成長速度の定量的な測定に対しても、極めて大きな誤差を生じることになり、宇宙実験により著しく改善された。

氷結晶の a 軸方向と c 軸方向の成長速度の測定結果は、成長の開始直後は定常状態より成長速度が大きいことが明らかになった。これは、ガラス毛细管が Cold-finger としての役割を果たしているため、結晶のサイズが大きいとガラス管による排熱が卓越するためと考えられる。このため、成長速度は成長界面がガラス管からある程度はなれて、定常的な成長速度が実現している領域で行う必要がある。Fig. 2 は、a 軸方向成長速度の過冷却温度依存性を示す。この結果は、成長速度が過冷却度の 2.52 乗に比例することを示している、地上実験で行った H₂O のデータと一致する。

また、過冷却度が極めて小さい場合は、地上実験

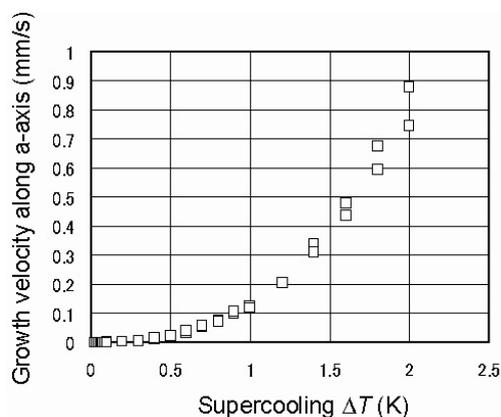


Fig. 2 氷結晶の a 軸方向成長速度の過冷却温度依存性。

と異なり、円盤の縁の面は氷結晶の c 軸に平行な面（すなわち、円筒の側面）ではなく、c 軸方向に曲率を持つ界面となっていることが明らかになった。この結晶は、結晶成長セルに結晶が出現してから、数時間を経過した時に観察され、結晶成長セル内はかなり平衡に近い環境にあったと推定される。氷単結晶内に作成した融液で満たされた負結晶の形を観察した実験結果では、氷結晶の融点近傍での平衡形が c 軸方向の潰れた回転楕円体であるとの報告もあるので、この形状は平衡形の一部を反映したものである可能性もある。今後、詳細な温度履歴と温度分布の解析をあわせて行うことで、より詳細が明らかになるであろう。

一方、結晶の成長に伴って放出される潜熱は、結晶の温度を上昇させるだけではなく、結晶周囲に熱拡散場を発生させ、温度分布が生じる。地上実験では、これが熱対流の原因となり拡散場の発達を妨げるが、微小重力環境ではこの過程が高感度で観察できる。氷結晶周囲に観察された干渉縞は、拡散場によって生じた温度分布に伴う屈折率の三次元空間での変化を示している。Fig. 3a は、成長する樹枝状氷結晶を横方向から観察したスナップショットである。干渉縞が結晶周囲で明らかにシフトしているのが観察される。この干渉縞画像をもとに結晶の周囲の干渉縞位相分布状態を擬似カラーで示したものが Fig.3b である。この解析結果を見ると、位相シフト量が結晶の周りに極めてよい対称性を保ちながら分布しているのが明らかである。すなわち、結晶成長に伴う潜熱は、結晶から周囲の融液相側に拡散することで、結晶の成長を駆動している。

以上のように、「きぼう」で観察された氷結晶成長の特徴は、地上実験で得られている結果とはかなり異なる特徴を持つことが明らかになってきた。今後さらに詳しい解析を実施することで、氷結晶の形態不安定機構がさらに解明されることが期待される。

参考文献

- 1) 古川義純、他：日本マイクロ重力応用学会誌、27(2010)印刷中。

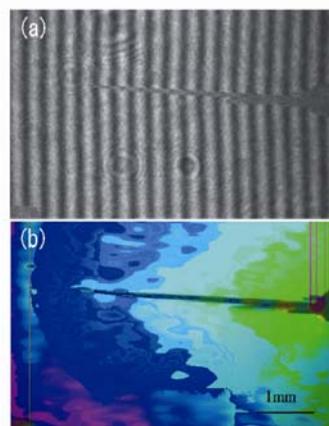


Fig. 3 (a) 樹枝状結晶の周囲の過冷却水中で観察された干渉縞。(b) 干渉縞の位相シフト量の空間分布。結晶周囲に発達する温度場を反映している。