

航空機による微小重力実験 物理現象シミュレーション技術検証のための 一方向凝固実験

宇宙開発事業団

清水盛生, 木村秀夫, 楠瀬智宏

(財) 宇宙環境利用推進センター

石倉精三, 井村貞治, 大山 勝

㈱三菱総合研究所

中村裕彦, 龍井信一, 石川正道

1. はじめに

宇宙開発事業団では、共通実験技術の一環として宇宙の微小重力環境下での流体の挙動や、材料の凝固過程をシミュレートするソフトウェア（以下、物理現象シミュレーションソフトウェア）の開発を行っている。この物理現象シミュレーションソフトウェアは宇宙実験を計画する際、事前に実験条件、必要時間等を推定するためのツールとして使用されることが想定されており、開発段階でそのソフトウェアとしての信頼性、予測精度、適用限界等の評価を行っておく必要がある。

評価においては実際の微小重力環境下で観察される現象との比較が極めて有効である。しかしながら、通常報告されている微小重力実験特に材料製造実験は、高品質材料を微小重力環境下で取得することに焦点がおかれしており、シミュレーションで厳密に再現可能な初期条件、境界条件等の保持にはあまり考慮が払われていないのが現状である。初期条件、境界条件等にあいまいさの残る実験データをシミュレーション結果と比較してもこの両者の差異が何に起因するかを特定することが極めて困難である。例えば、この原因として、以下のことが考えられる。

- ① 実験系と計算系の幾何学的差異
- ② 初期条件、境界条件の差異
- ③ シミュレーションソフトウェア自体の数値計算上の誤差等

ソフトウェアとしての信頼性、予測精度、適用限界等を明確化するためには、シミュレーションで模擬可能な幾何学的条件、初期条件、境界条件等を実験的に再現することにより、シミュレーション結果との比較に耐えるデータを取得する必要がある。

したがって、可能な限りシミュレーションで模擬可能な幾何学的条件、初期条件、境界条件を実現可能な微小重力実験装置を設計・製作し、シミュレーション結果の比較・検証を目的として微小重力環境下における一方向凝固実験を実施した。

2. 実験

2. 1 比較対象ソフトウェア

本実験で比較・検証の対象とするソフトウェアは、対流-凝固複合過程解析プログラムである。これは矩形2次元空間を計算対象とするもので、宗像らのアルゴリズム¹⁾に基づいて作成された。最初、系の温度を均一に保っておき、所定時間後に一端を冷却し、その後の固液界面の進行する様子をシミュレートするものである。

しかしながら、この条件を実験的に達成するためには、冷却端境界を初期温度から実験温度まで瞬時に冷却する必要があり、実験的には極めて困難である。よって、模擬対象とする計算系の条件を図2. 1のように設定する。

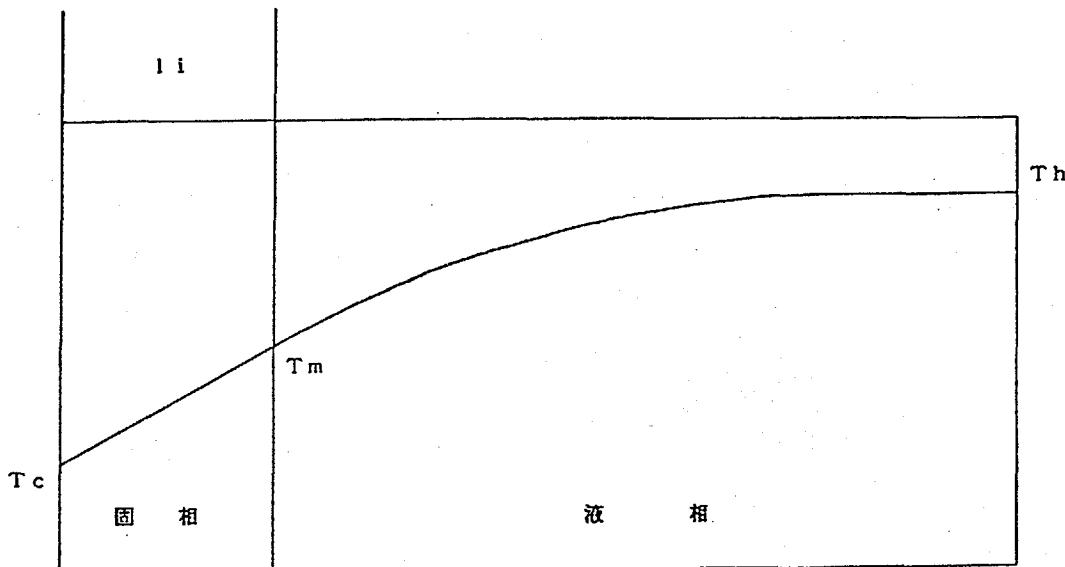


図2. 1 模擬対象とする計算系

すなわち、初期条件として厚みXの固相の存在を仮定し、固相及び液相中の温度分布はノイマン解（液相が無限大の長さを持つと仮定した場合の解析解）で与えられるとする。

この条件についても厳密には冷却履歴が異なるため、シミュレーションの厳密な模擬是不可能であるが、加熱端／冷却端温度が模擬できることから、固液界面温度がほぼ融点と同一であるとみなせる物質を用いれば、シミュレーションで模擬可能な計算条件にかなり近い実験条件を実現可能である。

2. 2 実験試料

本航空機実験のモデル物質としては、サクシノニトリルを用いた。サクシノニトリルは、様々な研究者により、地上及び微小重力環境における金属・合金系の凝固実験のモデル物質として用いられており⁽²⁻⁶⁾以下のような優れた特徴を有する。

- (1) 融点が 57. 2 °Cであり、融解・凝固実験を行いやすい。
- (2) 固相、液相ともに光学的に透明であり、結晶の凝固及び残液の挙動の同時観察が可能である。
- (3) シミュレーション計算に必要な各種物性データが揃っている。
- (4) 多くの研究者による実験例があり、その凝固挙動に関する理解が深まっている。
- (5) 界面でのカイネティックス効果の大小を表すジャクソンファクターが小さく（約 2. 3）、シミュレーションでは現在模擬現することができない界面過冷却効果を無視することができる。

2. 3 実験装置

シミュレーションとの比較・検証用データ取得を目的とした実験装置の全体図を図 2. 2 に示す。本装置は特に熱的条件の模擬に留意して設計・製作された。

装置は大別すると、(1) セル部、(2) 温度制御部、(3) 観察部よりなる。

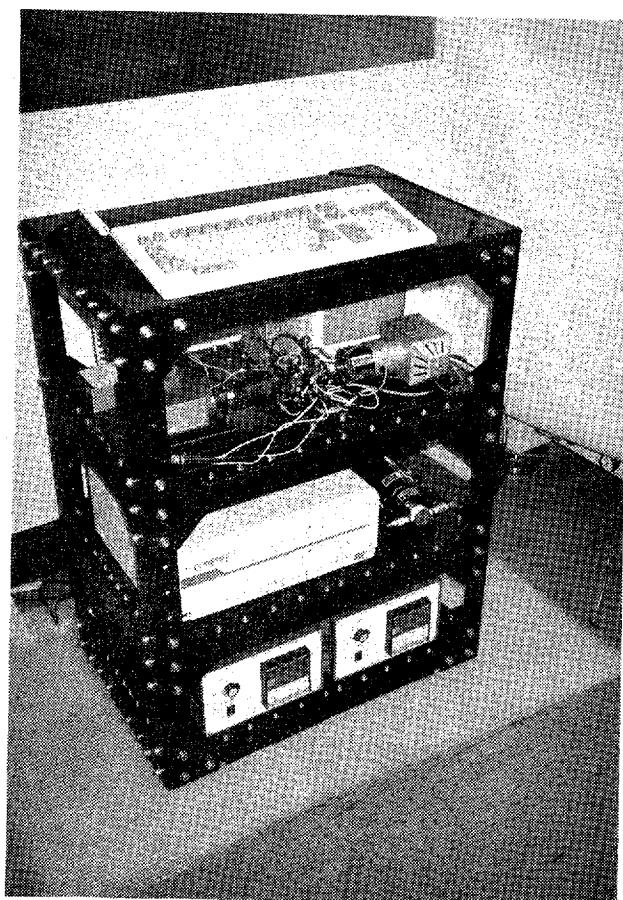


図 2. 2 実験装置の全体図

(1) セル部

図2、3にセル部の断面図を示す。試料は縦13mm、横13mm、厚さ2mmの矩形二次元セル（アクリル製）に封入され、上下端は銅ブロックと接触している。この銅ブロックの温度を上下させることにより、加熱・冷却端の温度コントロールを行う。セル周囲との熱のやりとりを可能な限りおさえるため、セル周辺の空気をサブヒーターで設定温度±1°C程度に制御する機構を有している。

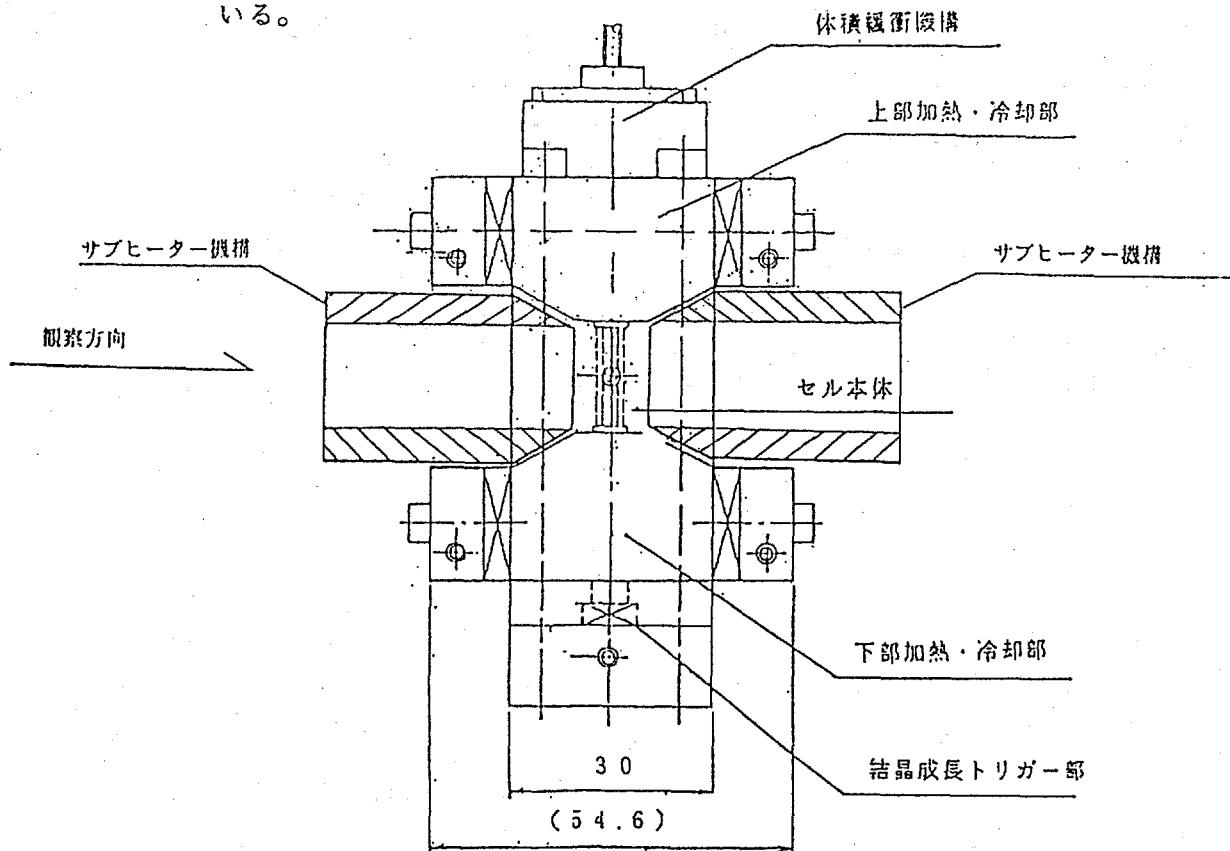


図2.3 セル部断面図

(2) 温度制御部

図2.4に温度制御部のブロックダイアグラムを示す。

温度計測は、三本の小型サーミスタにより行われる。上部及び下部加熱・冷却部の温度は、それぞれブロック内部に設置されたサーミスタのデータを用いて独立にP.I.D連続制御される。この目的のため、二系統のペルチェ素子用温度制御ユニットが用いられる。温度精度は±0.01°Cである。なお設定温度の変更は、RS-232Cインターフェイスを介して、パーソナルコンピューターにより行われる。残りの一本はセル本体中、上下端の中間部横にセットされ、セル中の温度分布のリファレンスとして使用される。これら計測温度データは、パーソナルコンピュータ内のRAMディスクに取り込まれ、実験後に温度プロファイル確認用に使用される。

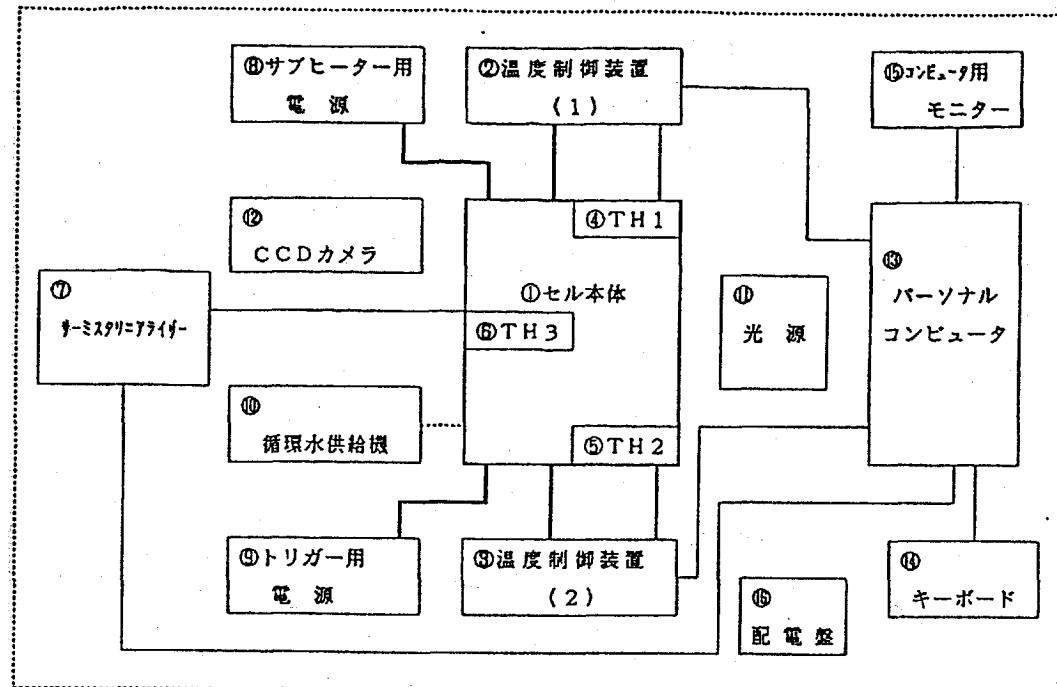


図2.4 温度制御部ブロックダイアグラム

(3) 観察部

高解像度モノクロCCDビデオカメラシステムを用いて、実体観察を行う。観察画像は航空機搭載のビデオレコーダーに時間データ（秒単位）及びZ軸方向（上下方向）加速度データ（ $1/100\text{ g}$ 単位）とともに記録される。記録された画像データは、経過時間信号を導入することにより、高精度でもって成長速度解析が可能となる。図2.5に観察系の配置を示す。

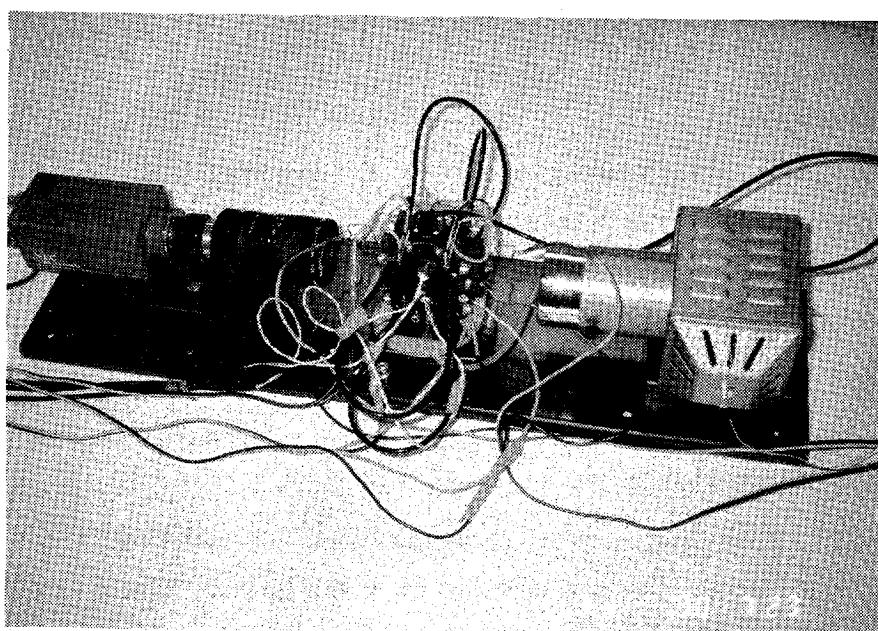


図2.5 観察系配置

2. 4 実験条件

表2. 1の4実験条件に対し各2回、計8回の微小重力実験を実施した。

表2. 1 実験条件

| 実験番号 | セル上端温度 | セル下端温度 | 環境温度 |
|------|--------|--------|------|
| #1-1 | 60℃ | 43℃ | 60℃ |
| #1-2 | 60℃ | 45℃ | 60℃ |
| #1-3 | 60℃ | 47℃ | 60℃ |
| #1-4 | 60℃ | 49℃ | 60℃ |
| #2-1 | 60℃ | 47℃ | 60℃ |
| #2-2 | 60℃ | 43℃ | 60℃ |
| #2-3 | 60℃ | 45℃ | 60℃ |
| #2-4 | 60℃ | 49℃ | 60℃ |

3. 実験結果

図3. 1に冷却端温度47°Cにおける微小重力実験結果を示す。この実験においては微小重力達成時の30秒前に冷却を開始し、同時に核形成トリガー機構をONにした。冷却開始後20秒後に冷却端下部から核が発生し（図3. 1（a））一旦生じた核は急速に横方向に広がる。微小重力達成時には、固液界面形状は図3. 1（b）のようにはぼ平坦になる。

これは多結晶集合体で、微小重力期間中安定に一方向凝固・成長する。微小重力終了直前には、図3. 1（c）まで成長する。微小重力終了後、約1分後の固液界面の様子を図3. 1（d）に示す。結晶の個々のサイズが増大し、結晶間のスペーシングが増大している。

なお、通常飛行時から微小重力への移行期（最大2.3g）においては液中に若干の対流が確認された。この対流は最も速い時点では約1mm/sであるが、微小重力(<0.1g)になる前に消失する。

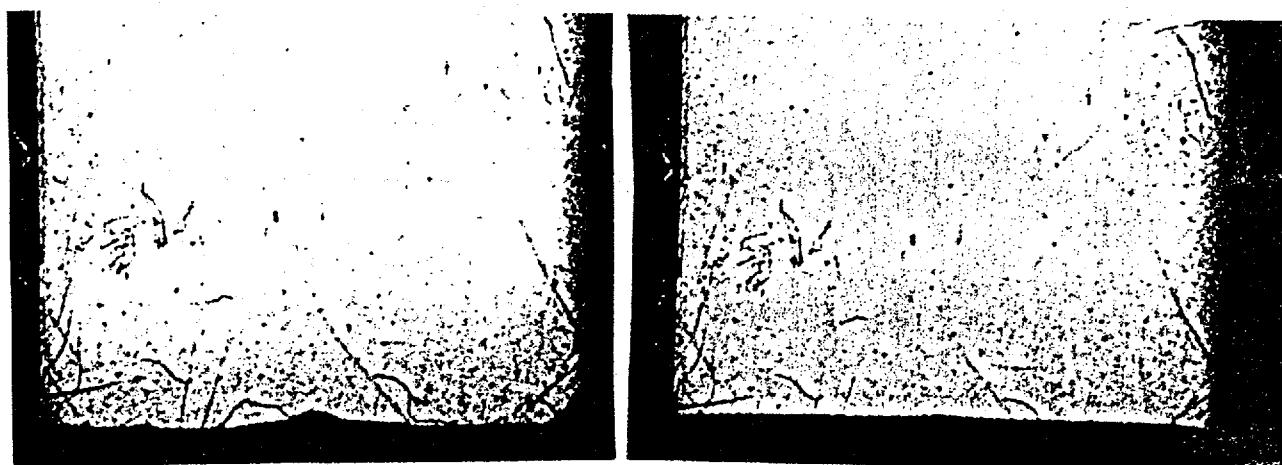


図3. 1 (a)

図3. 1 (b)

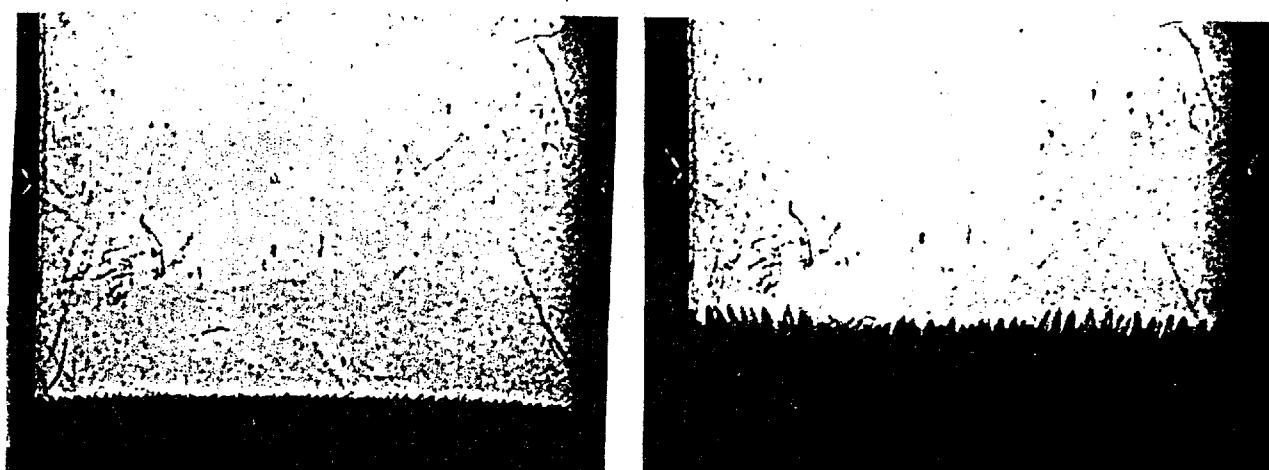


図3. 1 (c)

図3. 1 (d)

図3. 1 冷却端温度47°Cにおける微小重力実験結果

図3. 2に、この条件における実験温度プロファイルを示す。Aは上部加熱端温度、Bがセル中央部温度、Cは下部冷却端温度である。温度計測は、微小重力達成の90秒前から実施した。温度制御装置の若干のオーバーシュートにより、下部冷却端の温度は微小重力実験中設定温度よりも低い温度になる。設定温度との最大温度差は0.9°Cであった。

また、微小重力実験前の等温保持時間が短かったため（等温保持時間約4分）、液中温度が完全に等温条件に達していないことも見て取れる。セル中央部と上下の等温ブロックとの温度差から推定すると、液中の温度勾配は平均約1.3°C/cm程度である。

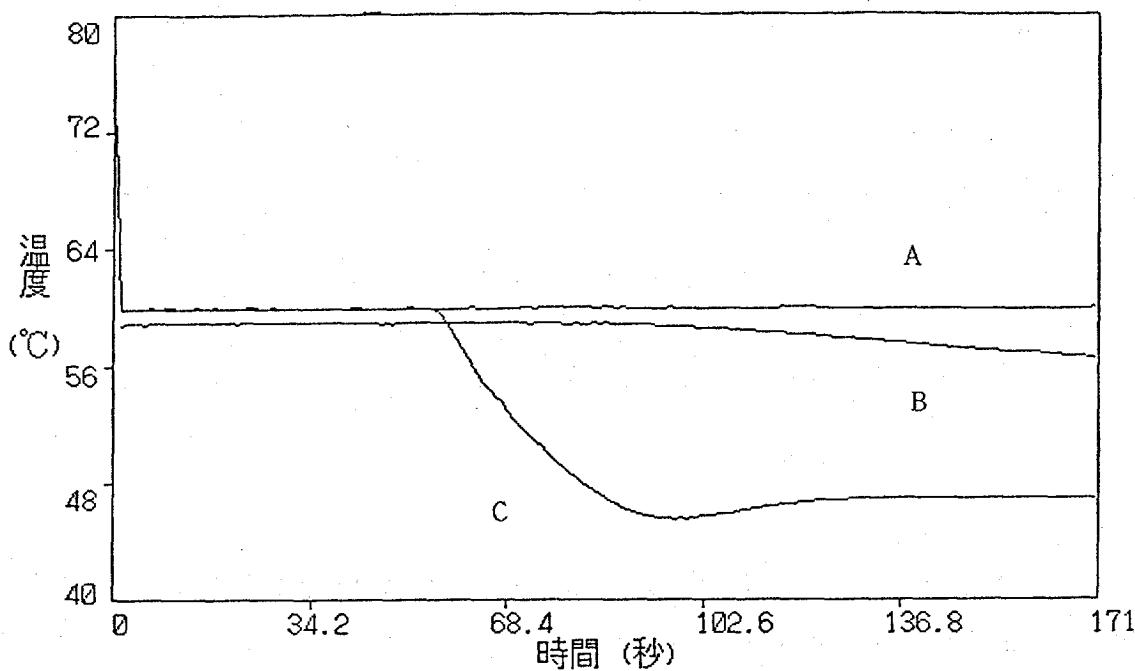


図3. 2 冷却端温度47°Cにおける温度プロフィール

図3. 3は、取得した画像データをもとに、凝固距離(l)を時間(\sqrt{t})の関数としてプロットしたものである。成長距離の測定は、取得したビデオ信号に、1/100秒単位のタイマー信号をスーパーインポーズした解析用ビデオを製作した後、画像処理装置を用いて行った。距離分解能は32μmである。測定点はセルの中央部(図の○印)とセルの左端と中央部の中間点(図の◇印)を採用した。

なおこの図には凝固過程解析プログラム(対流-凝固複合過程解析プログラムのサブセット)を用いて計算したシミュレーション結果もプロットされている(図の■印)。この値は、加熱端温度60°C、冷却端温度47°C、初期凝固距離0.73mm(実測値)として、図2. 1の形式に基づいて計算したものである。実験値とシミュレーションの間には最大1割程度の誤差がある。

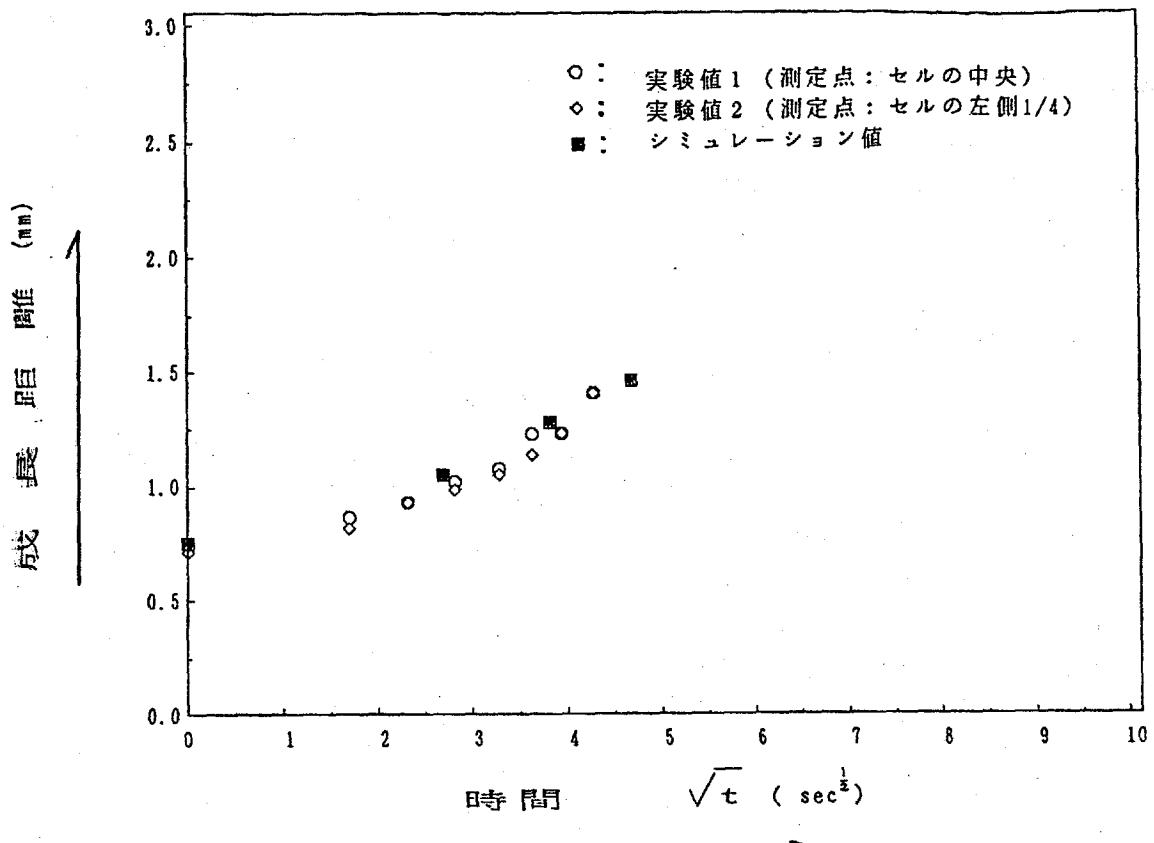


図3. 成長距離の時間依存性

4. 考察

4. 1 熱輸送量の評価

一方向凝固過程において、凝固速度を決定するのは①固液界面付近の固体中の温度勾配に起因する熱輸送、②固液界面における放出潜熱の輸送さらに、③固液界面付近の液中の温度勾配に起因する熱輸送である。

今回の実験系においては(a)側壁を断熱壁と見なすことが出来ること、(b)微小重力実験中は固液界面がほぼフラットであること、(c)微小重力実験中は対流が完全に消失すること等から、熱輸送を固液界面に垂直な方向のみに限定した一次元的な取扱い近似することが可能である。また、熱量保存則より、ある時点での固体中の温度勾配を場所に依らず一定であるとみなすことも可能である。この仮定の下で、①、②、③項の大きさの評価を実施することにより、冷却端温度の不安定性、液中温度の初期不均一性の影響を推定することにする。

なおオーダー評価にあたっては、問題を単純化するため、固液界面の温度は融点(57.2°C)であるとした。

(1) 固体中の熱輸送

固体中の温度勾配はほぼ一定と見なせるので、単位時間当たりの熱輸送量は以下の式で与えられる。

$$Q_s = \lambda_s (T_m - T_c) / X \quad (4. 1)$$

ここで Q_s は単位時間単位断面積あたりの熱輸送量、 λ_s は固体の熱伝導率、 T_m は試料の融点、 T_c は冷却端温度、 X は凝固距離である。

微小重力実験中の凝固距離は冷却端から、0. 73 mm～1. 49 mm の範囲であり、サクシノニトリルの熱伝導率は 13. 478 ($J/m \cdot s \cdot K$) であるから Q_s は 1.88×10^5 ($J/m^2 \cdot sec.$) 9.23×10^4 ($J/m^2 \cdot sec.$) である。例えば凝固距離 1 mm のときは 1.37×10^5 ($J/m^2 \cdot sec.$) となる。

(2) 凝固潜熱量

ある時点における単位時間、単位表面積あたりの発生潜熱量 (Q_c) は、以下の式で与えられる。

$$Q_c = v \cdot L \quad (4. 2)$$

ここで v は成長速度、 L は単位体積当たりの凝固潜熱である。

サクシノニトリルの凝固潜熱は 4.725×10^7 (J/m^3) である。サクシノニトリルの凝固速度は微小重力達成時が最大であり、約 2.60×10^{-5} ($m/sec.$) であり、微小重力終了時が 1.78×10^{-5} ($m/sec.$) で最小である。よってこの場合の単位時間あたりの潜熱放出量はそれぞれ 1.23×10^3 ($J/m^2 \cdot sec.$)、 8.41×10^2 ($J/m^2 \cdot sec.$) となり、 Q_s の 1% 以下であると推定できる。

(3) 界面近傍液体中の熱輸送量

液体中の温度勾配は場所や時間の関数として変化する。このうち凝固速度に影響を与えるのは、固液界面近傍における温度勾配である。

$$Q_1 = \lambda_1 (\partial T_1 / \partial x_1) \quad (4. 3)$$

ここで Q_1 は固液界面近傍の液中の単位時間単位断面積当たりの熱輸送量、 $(\partial T_1 / \partial x_1)$ は固液界面近傍の液中の温度勾配、 λ_1 は液体の熱伝導率である。熱量保存則より、固体中の熱輸送量から固液界面での潜熱を引いたものが Q_1 となるので液体中の熱輸送量はおよそ $0.99 Q_s$ 程度であることがわかる。

またサクシノニトリル液体の熱伝導率は 13.373 ($J/m \cdot sec \cdot K$) であるので、固液界面付近の液体の温度勾配はほぼ固体中の温度勾配に等しいことがわかる（約 9.7%）。

以上、微小重力実験時においては凝固潜熱放出の影響は全体の熱輸送量の 1% 程度であり、固体中の温度勾配と固液界面近傍の液体の温度勾配はほぼ等しい値をとるものと

推定できる。

4. 2 液中温度初期不均一性の影響

3 項で述べたように、凝固前の等温保持の段階で、上下の加熱・冷却ブロックとセル中央部の間に温度差が生じた。この大きさはおよそ $1.3^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ である。

前節で述べたように微小重力実験時の固体中の温度勾配と、固液界面近傍の液体中の温度勾配はほぼ等しいと見なせるので、この時の界面近傍液体中の温度勾配はおよそ $6.8^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ から $13.7^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ の範囲である。初期温度勾配はこれらの値の 2 % 以下であることから、少なくとも微小重力実験中は深刻な影響は与えていないと考えられる。

4. 3 冷却端温度オーバーシュートの影響

3 項で述べたように、冷却時のオーバーシュートにより冷却端温度は最大 0.9°C 設定値より低くなる。4. 1 節より凝固潜熱量がある程度無視可能なので、この温度不安定性が凝固速度に与える影響の最大値は融点との温度差の比、すなわち温度勾配の比として以下で与えられる。

$$(T_m - T_r) / (T_m - T_c) \quad (4.4)$$

ここで T_r は測定された最低温度である。今回の場合最低温度は 46.1°C であるので、この値は 1.088 となる。すなわち最大約 9 % 温度勾配が大きくなることになる。実際の温度プロフィールは常に最大値を保ってはいないので、温度勾配の差（すなわち成長速度の差とほぼ等しい）はこれよりも小さい値をとる。よって冷却端温度変動の影響は、今回の微小重力実験時に関する限り深刻なものではないと考えられる。

以上の考察より、温度環境の不均一性・不安定性が凝固に与える影響は、本実験系においては最大 10 % 程度であることが推定された。この範囲内で実験結果とシミュレーション結果はよく一致していると言える。

5. まとめ

物理現象シミュレーションソフトウェアの再現精度の評価を行い、今後のソフトウェア開発に反映させるため、サクシノニトリルをモデル物質として微小重力環境下における融液からの一方向凝固実験を行った。

初期温度分布の不均一性（約 $1.3^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ ）や冷却端温度の設定温度を越えたオーバーシュート (0.9°C) にもかかわらず、微小重力実験中は対流が停止し、多結晶の集合体よりなる凝固界面は、全体として一様に成長した。

凝固距離を計測し、対流項のないサブプログラムによるシミュレーション結果と比較したところ、若干の差異が認められた。凝固速度に及ぼす温度の不均一性や不安定性の効果を評価することにより、最大10%程度の誤差を生じうることが推定できる。この範囲内で実験とシミュレーションは比較的よく一致しているといえる。

今後は、温度環境制御を高精度化することはもちろんであるが、加えてより重力変動に敏感、かつ凝固速度が充分に速いモデル物質の使用により、残留重力の効果を充分加味した実験を行い、シミュレーションソフトウェアの能力評価のためのデータを取得することにしている。

謝辞

機械技術研究所の宗像研究員には基本ソフトウェアを提供していただいた。また東京大学西永教授をはじめとする物理現象シミュレーション検討委員会の方々には有益なご助言ご討論をいただいた。ここに感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 宗像鉄雄、棚沢一郎；凝固を伴う密度差・表面張力共存自然対流の研究：日本機械学会論文集（B編）52巻474号（昭和61-2）
- 2) M.E. Glicksman and S.-C. Huang: Convective heat transfer during dendritic growth. ESA SP-142, (1979) 309-312
- 3) M.A. Eshelman et al.: Cellular spacing-1. Steady-state growth. *Acta Metall.*, 36, (1988) 1165-1174
- 4) S.-C. Huang and M.E. Glicksmann: Fundamentals of dendritic solidification
1. Steady-state tip growth. *Acta Metall.*, 29, (1981) 701-715.
- 5) H. Tao et al.: Diffusion-convection effects on constrained dendritic growth in dilute alloys. *Acta Astronautica*, 17, (1988) 997-1002
- 6) J.A. Sekhar and R. Trivedi: Development of solidification microstructures in the presence of fibers or channels of finite width. *Materials Sci. Eng.*, A114, (1989) 133-146