

マランゴニ対流観察実験

東 久雄¹⁾、吉原正一¹⁾
川崎和憲²⁾、宇高 勉²⁾、新倉 治²⁾
安田桂子³⁾、小西貴明⁴⁾

¹⁾ 航空宇宙技術研究所、²⁾ 日産自動車株式会社 宇宙航空事業部
³⁾ 宇宙開発事業団、⁴⁾ (財) 宇宙環境利用推進センター

Observation of Marangoni Convection

Hisao AZUMA¹⁾, Sho-ichi YOSHIHARA¹⁾
Kazunori KAWASAKI²⁾, Tsutomu UDAKA²⁾, Osamu NIIKURA²⁾
Keiko YASUDA³⁾, Takaharu KONISHI⁴⁾

¹⁾ National Aerospace Laboratory
²⁾ Nissan Motor Co., LTD. Aerospace Division
³⁾ National Space Development Agency of Japan
⁴⁾ Japan Space Utilization Promotion Center

ABSTRACT

In microgravity, the familiar convection due to specific gravity difference disappears and the convection due to surface tension distribution (Marangoni Convection) takes place. In the field of material processing, this flow disturbs the uniform crystal growth and ends in a random distribution of concentration. The importance of developing methods of in-situ observation of Marangoni flow has been recognized, and this is the main objective of this study.

In the sounding rocket TR-IA, we have developed the method of two-dimensional observation inside a liquid bridge. But in chaos flow, three-dimensional observation from multiple directions becomes necessary. Moreover, tracers in a liquid column barely goes in the proximity of the free surface, and this leads to the necessity of developing a method of measuring surface flow. As the surface tension is determined by the temperature of free surface, the way of non-touch measurement of surface temperature is also in demand.

In this study, we have carried out the following in-situ observation technique;

- i) Three dimensional observation using two independent CCD cameras.
- ii) Observation using high speed rate camera.
- iii) Measurement of temperature of the liquid column using infrared camera.
- iv) Observation of photochromism driven by ultra-violet ray or pulse laser.

We have obtained the following results;

- i) The contacted two liquids exchange the heat very slowly.
- ii) The mere contact of the two silicone-oil balls didn't cause the formation of a liquid bridge. The placing of a needle was needed.
- iii) The temperature inside the liquid bridge (if formed) is normalized quickly.
- iv) In case of water and ethyl alcohol contact, the quick averaging of the temperature due to Marangoni convection takes place. The study of the observed vibration of the whole liquid column is undergoing.
- v) The visualization of the surface flow by photochromism due to the ultraviolet-ray absorption, needs a further study.
- vi) The visualization of the flow by photochromism driven by pulse laser is already in the good level for utilization.

1. 緒言

微小重力下では、地上で観察される比重差による対流が消滅し、自由表面の温度分布による表面張力差あるいは濃度分布に起因するマランゴニ対流がクローズアップされてくる。このマランゴニ対流は微小重力下における均一な結晶成長を妨げることから、その性質を明らかにする基礎研究のためのその場観察技術の開発が求められている。特に、自由表面近傍にはトレーサ粒子が分布しないことから、表面ごく近傍での流れ場の観察技術の開発も必要である。

本実験では、温度差又は濃度差を有する上下2液滴を形成・接触させ、マランゴニ対流を誘起し、以下のその場観察技術の開発・検証を行うことを目的としている。

- (1) 2台のCCDカメラによる三次元観察
- (2) 高速カメラによる観察
- (3) 赤外線カメラによる温度測定
- (4) 紫外光又はパルスレーザによるフォトクロミズムの観察

2. 実験方法

微小重力下において、上下ディスク各々にリザーバから温度又は濃度の異なる試料を抽出することにより液滴を形成する。この2つの液滴を接触させることによりマランゴニ対流を誘起させる。実験条件を表1に示す。

以下に、本実験で用いる各観察法を概説する。

表1 実験条件

Table 1 Experimental Parameters

実験条件	温度差	濃度差	試料粘度	細線
1	○	—	50cSt	—
2	○	—	20cSt	—
3	—	—	20cSt	—
4	○	—	20cSt	○
5	—	○	1cSt	—
6	○	—	10cSt	○
7	○	—	10cSt	—

2. 1 各観察法概説

2. 1. 1 CCDカメラによる3次元観察

液滴（液柱）内部の流れは、平均粒径約30 μ mのアルミ粉末をトレーサーとして用い、互いに150°をなす2方向からの観察を行う。

2. 1. 2 高速ビデオカメラによる観察

液滴接触・融合時の表面形状・振動を高速ビデオカメラにより観察を行う。取得画像はまず高速カメラ本体のRAMに記録し、水平飛行中に航空機支援系のビデオにダビングを行う。RAM容量の制約から、120コマ/秒の場合は8.4秒、240コマ/秒の場合には4.2秒間のみ画像の記録が可能である。本実験では120コマ/秒で観察を行う。

2. 1. 3 赤外線カメラ

液滴（液柱）温度を赤外線カメラにより測定を行う。カメラヘッドの冷却にはアルゴンガスが必要であるが、航空機運用上の規定により、100kgf/cm²以上の圧力容器は使用不可能であるので、規定限度内の圧力で充填を行い使用する。

2. 1. 4 紫外光吸収フォトクロミック法

光学観察による測定が困難な液滴（液柱）表面の流れを測定するために、紫外光吸収フォトクロミック法を用いる。これは、試料中にあらかじめ紫外光吸収物質（フォトクロミクス）を溶解しておき、紫外光を照射することによりフォトクロミクスの励起・着色による模様を付け、その動きを観察することにより液滴（液柱）表面の流れを測定するものである。

2. 1. 5 パルスレーザによるフォトクロミック法

前項の紫外光吸収フォトクロミック法と同様に、試料にフォトクロミクスをあらかじめ溶解しておく。パルスレーザを照射することにより液滴（液柱）内部にフォトクロミクスの励起・着色による模様を付け、その動きを観察する。

2. 2 観察系配置

本実験における各観察機器の配置図を図1に示す。

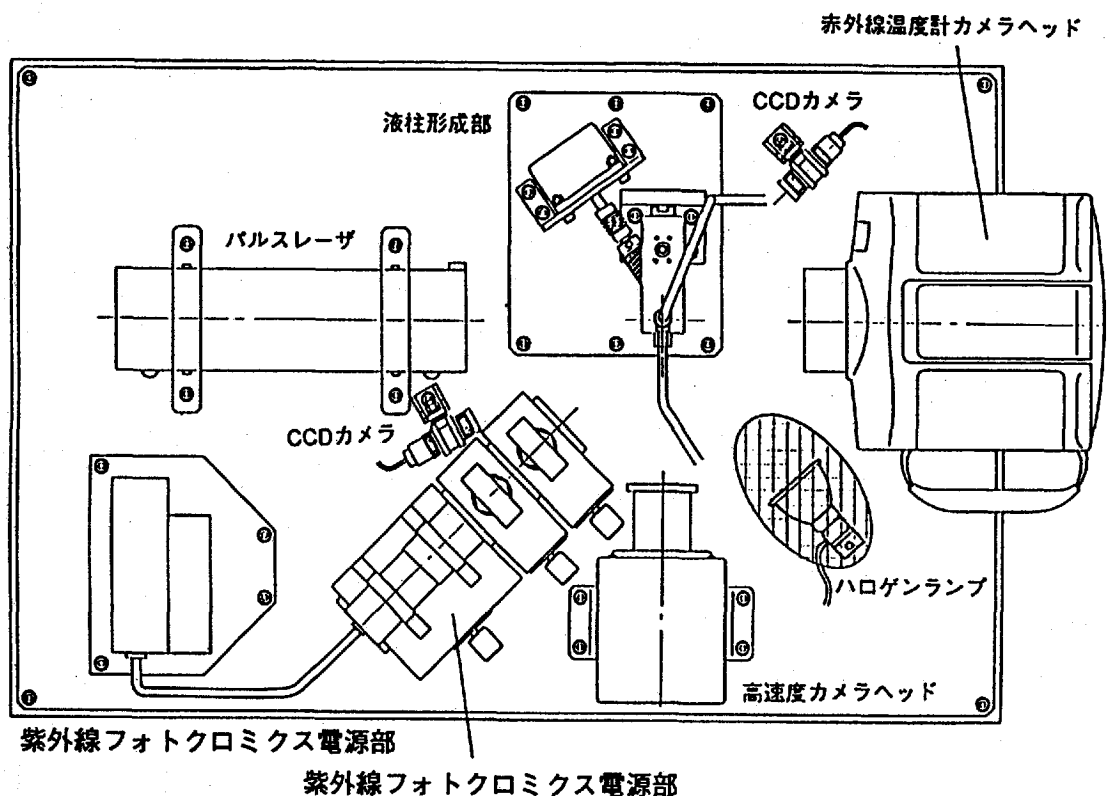


図1 観察系配置図（上面より見る）

Fig.1 Arrangement of observation units (upper view)

3. 実験結果と検討

実験は、i) 温度の異なるシリコンオイル液滴、ii) 水球とエタノール球を接触させ、その時の液滴の形状変化、振動、流れ（表面及び内部）、温度の均一化過程等の観察を行うこと、また同時にそれらの観察技術の開発試験（特にレーザ及び紫外線による発色法）を行うことを目的とし、概ね達成された。

しかし、現象について定性的議論は可能であるが、定量的議論にはまだ至っていない。これは、i) 定量的データを得ることが困難であったこと、ii) 未だ解析及びコンピュータによるシミュレーションが不十分であるためである。

従って、ここでは実験結果を定性的にまとめ、今後の解析等への基礎的現象を与えるにとどめる。

以下にそれぞれの典型的な実験例を示して、特徴的な現象を記述する。

3. 1 温度の異なるシリコン液滴が接触、合体融合しない場合

図2に、接触した温度の異なるシリコン液滴の実験結果の一例を示す。各写真は1秒毎の時間的経過を示す。シリコン液の中に入れたアルミ粉の動きから、流れの様子を知ることが出来る。二つの温度の異なったシリコン液滴が接触することにより、熱の交換が起こり、上の球（高温 37.0°C ）の頂点は温度が下がり、下の球（低温 30.5°C ）の頂点は温度が上がる。これにより球表面温度の不均一が生じ、マランゴニ流が発生する。図に見るとおり、高温球においては、頂点から球中心に向かって一筋の流れが生じ、一方、低温球においては、底部から頂点に向かう表面流（マランゴニ流）が生じている。レーザフォトリソグラフィ法により発生した紫色の流れが観察されるが、視角の関係で、明確に何処とは言えないが、流れが広がっていく様子が分かる。この時の両球の温度変化の様子を赤外線温度計で計測したものを図3に示す。時間的経過は図2に対応している。この結果、表面温度の変化が10秒間では（赤外線温度計の温度設定範囲が広いこともあり）殆ど認められない。このことは熱交換は極めてゆっくり行われていることを示している。しかし熱伝導のみの場合と比較すれば速いものと考えられる。また、図4に接触時の高速カメラによる観察画像を示す。

3. 2 温度の異なるシリコン液滴が接触、合体融合した場合

図5に高温のシリコン液滴（ 38.3°C ）と低温のシリコン液滴（ 29.5°C ）が接触、合体融合した場合の1秒毎のビデオ画像を示す。アルミ粉、レーザフォトリソグラフィによる変色があるが、流れは明確でない。しかし、図6の温度変化を見ると、融合してからおよそ6秒後には、表面温度が両液滴の平均温度である 34°C 程度にはほぼ均一化していることが分かる。これは温度差マランゴニ流による熱の移動に起因する極めて速い混合であると考えられる。しかし、内部の温度については均一化されているかどうかは不明である。図7は高速ビデオによる合体過程の1/120秒毎の写真である。これより、i) この液柱の振動モードが両ディスクの中間面で対称であること、ii) 振動数がおおよそ 10Hz であることが分かる。

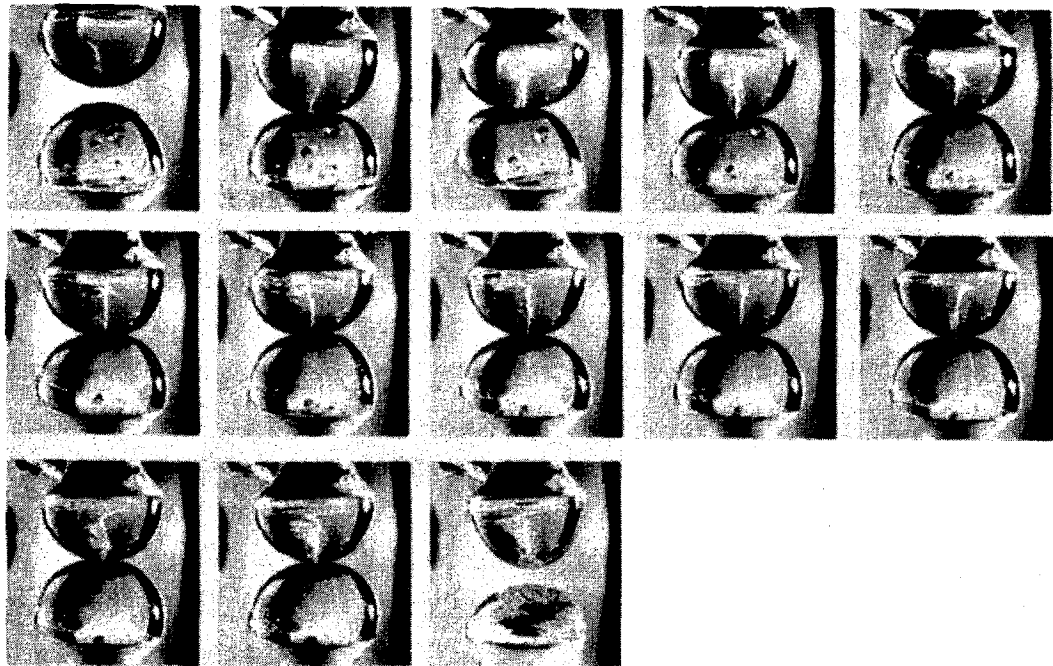


図2 温度の異なるシリコンオイル液滴の接触及び合体融合しない時の
液内部の流れの様子 (1秒毎)

Fig.2 Flow inside liquid balls when they contact with different temperature
(every 1 second)

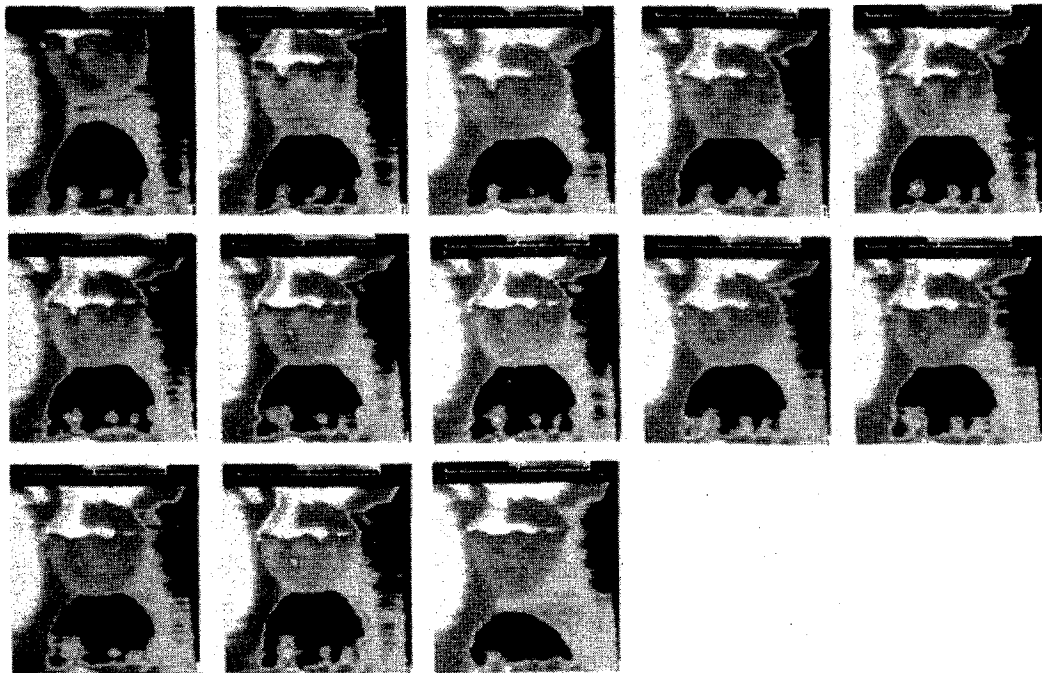


図3 温度の異なるシリコンオイル液滴の表面温度分布の時間変化 (1秒毎)

Fig.3 Transition of surface temperature when two liquid balls contact with different
temperature (every 1 second)

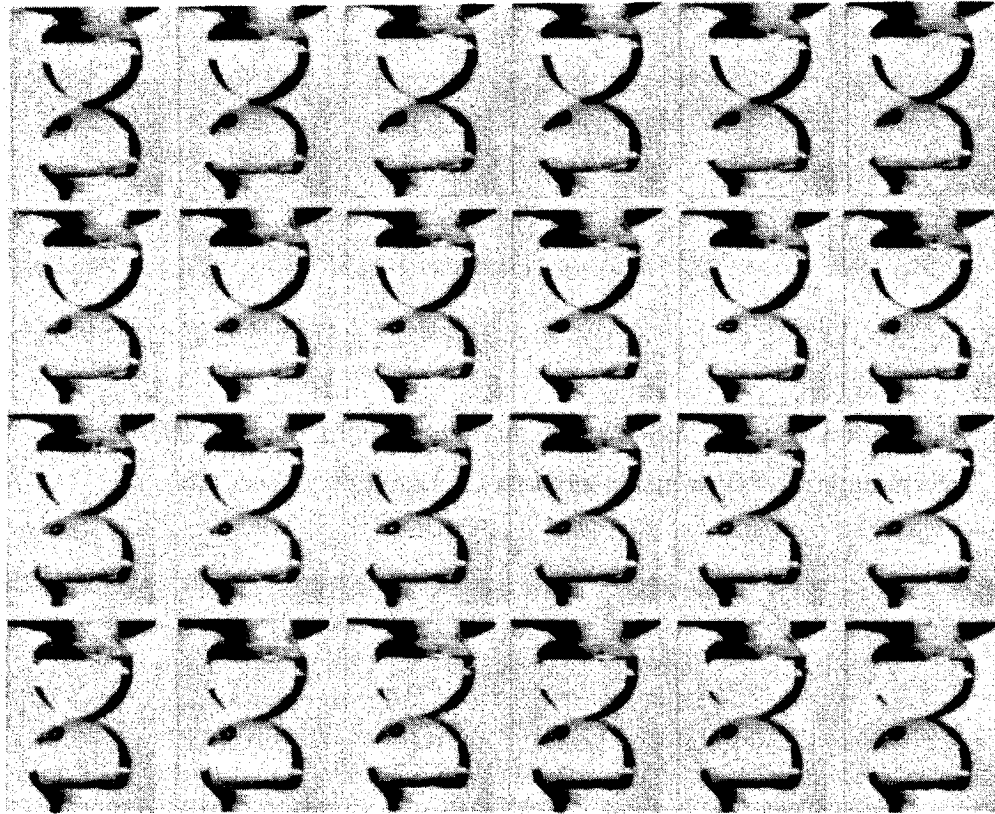


図4 温度の異なるシリコン液滴の高速ビデオカメラによる観測結果
(1/120秒毎)

Fig.4 Observation during contacting of two balls with different temperature
(High speed camera ; every 1/120 second)

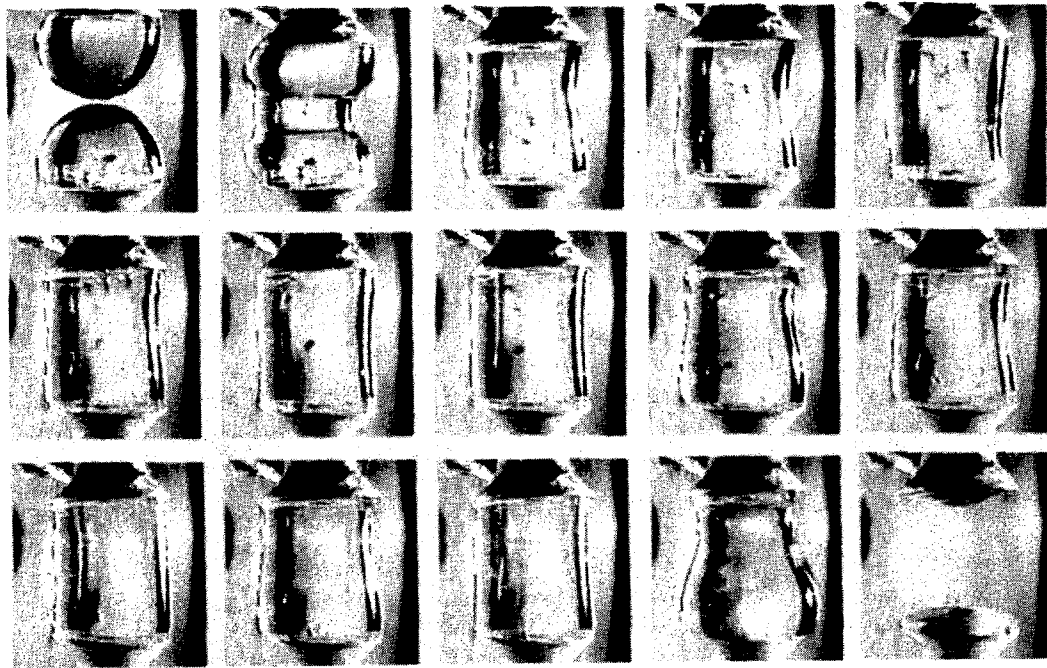


図5 温度の異なるシリコンオイルの液柱形成及び液柱内部の流れの様子
(1秒毎)

Fig.5 Formation of liquid bridge by contacting two liquid balls with different
temperature and flow inside the liquid bridge (every 1second)

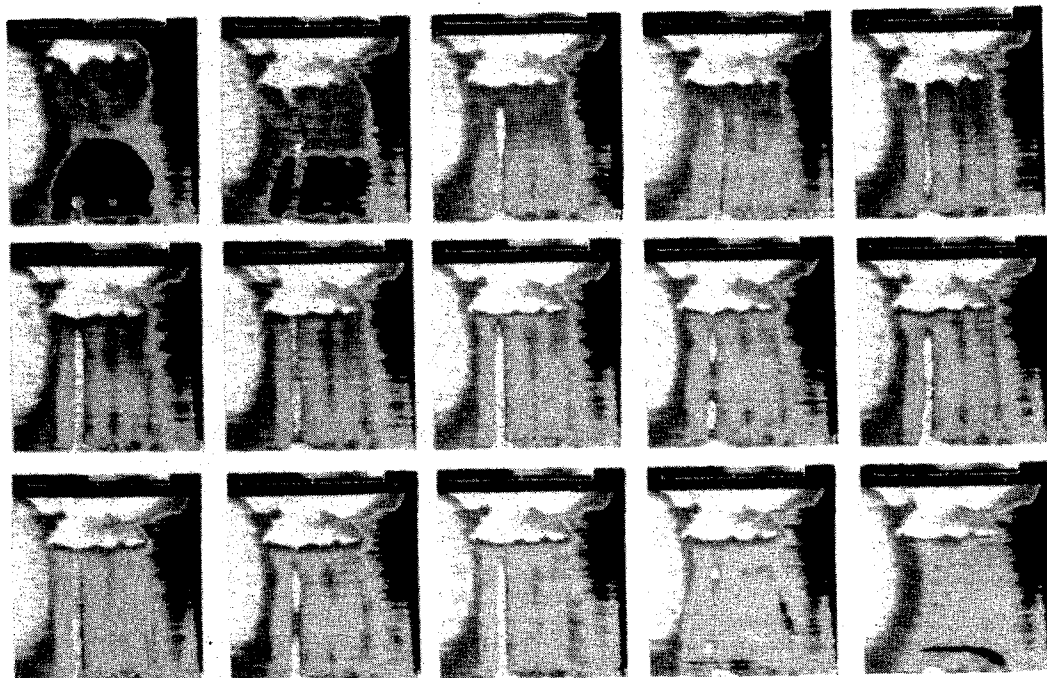


図6 温度の異なるシリコンオイル液柱形成及びその後の液柱表面温度
分布の時間変化 (1秒毎)

Fig.6 Formation of liquid bridge by contacting two liquid balls with different
temperature and transition of surface temperature (every 1 second)

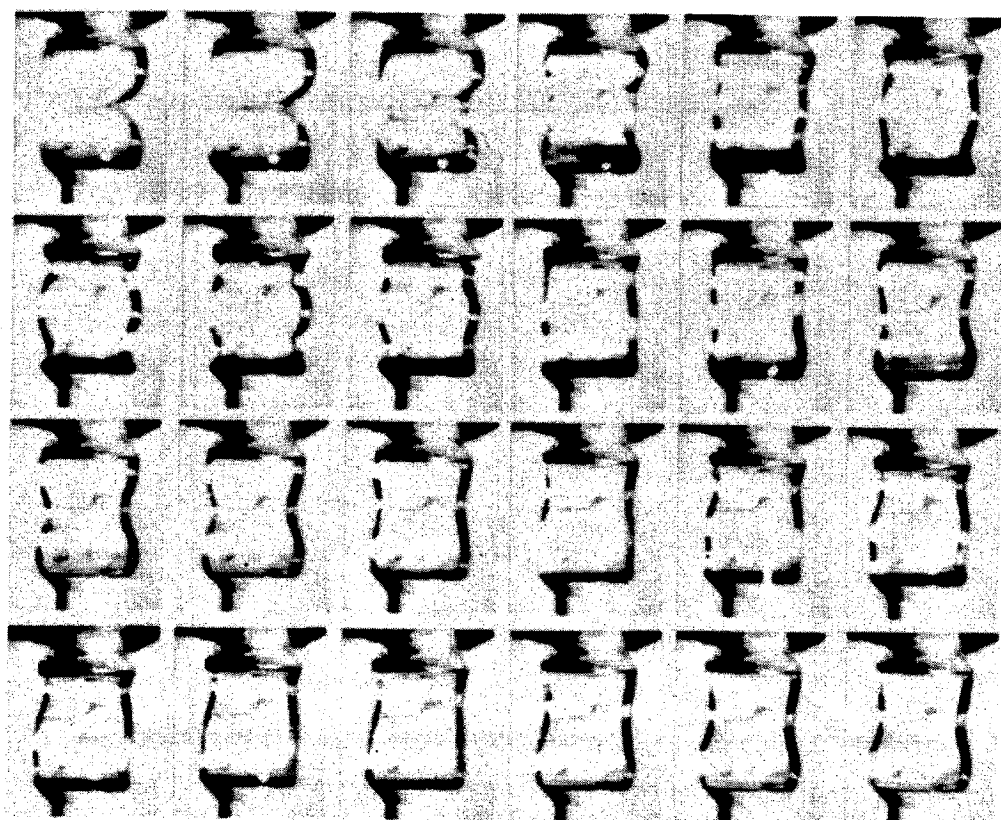


図7 温度の異なるシリコンオイル液滴の接触、合体時の高速ビデオカメラによる観測結果 (1/120秒毎)

Fig.7 Observation of liquid bridge formation by contacting two liquid balls with different temperature (High speed camera ; every 1/120 second)

図8は温度差が無い場合の二つのシリコン液滴（温度26.9℃）が接触、合体した場合と、温度差が8.8℃ある場合（各々38.6℃、29.8℃）についての振幅と振動数の変化を、合体を開始してからの時間経過に従い表わしたものである。

- (1)合体後0.7~0.8秒で振動は減衰し、振幅、振動数とも時間経過と共に減少している。
- (2)温度差のある場合（両方のシリコン液滴がより高温なので合体した液柱は温度差の無い場合と比べて7℃程高温）が温度差の無い場合と比べて、振幅はほぼ同じであるが、振動数が高い。これは、温度差のあるシリコン液滴が合体する際に引き起こす温度差マランゴニ流によるものと考えられる。

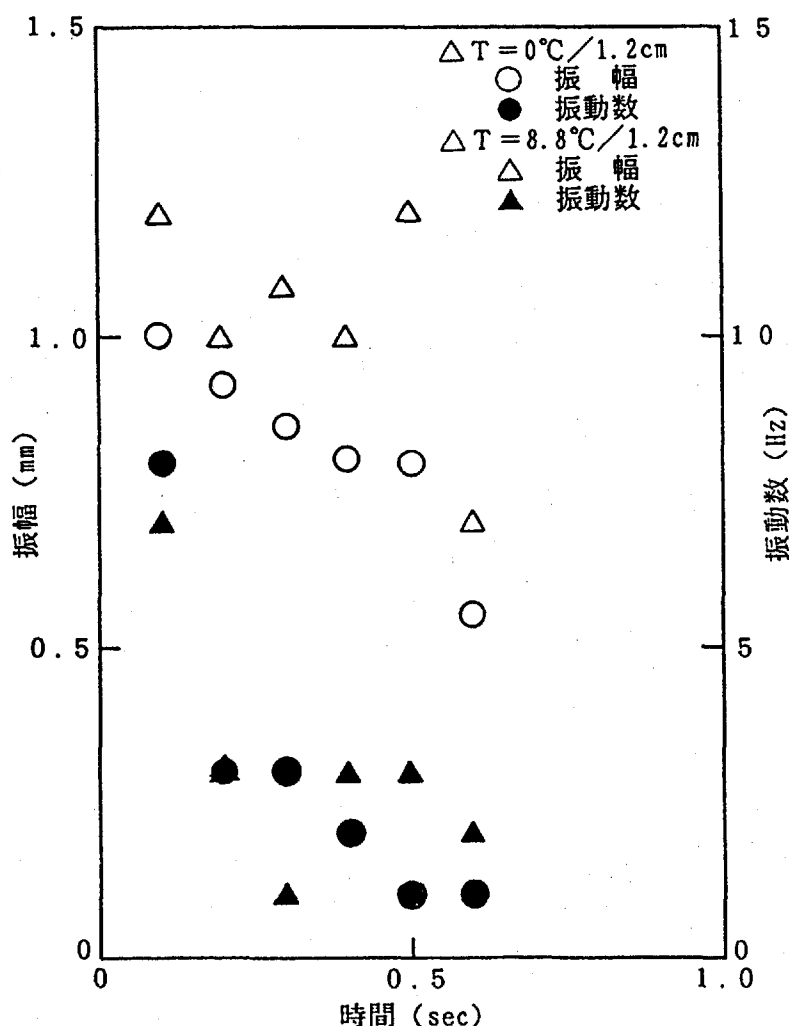


図8 温度の異なるシリコンオイル液滴の温度差による振動数及び振幅の変化
 Fig.8 Transition of frequency and amplitude of liquid balls contacted with different temperature

3. 3 水球とエタノール球が接触、合体融合した場合

試料としては水とエタノールを用い、水にはフクロミクスが溶解しないためアルミ粉末のみをトレーサとし、エタノールにはフクロミクス及びアルミ粉末をトレーサとして混入した。実験中は、i) CCDカメラによる液柱内のトレーサの動きの観察、ii) 高速度TVカメラによる二つの液滴が合体し液柱になる形状変化の観察及びiii) 赤外線温度計による液柱表面の熱画像を取得し、その温度変化を観察した。

水とエタノールの液滴を合体させ液柱を形成させる事は、先のシリコンオイル同士の液滴を合体させる場合と異なり、全ての実験において液滴同士が接触した瞬間に合体を開始している(図9)。合体の数秒後、液柱形状の変化が無くなって、液柱内部での激しい振動流が継続するのが観察された。これは、水とエタノールの反応に起因するものと考えられる。

液滴形成の最初は表面張力の大きな水の方から表面張力の小さなエタノールの方に液体が移動し、水液滴があったディスク上には円錐状の形状で、エタノール液滴があったディスク状には大きな液滴が形成された。合体を開始した液体はディスク間で振動($\sim 3.5\text{Hz}$)しながら徐々に安定した液柱になるのが観測された。何故このような大きな変形の振動が起きるのかは現在検討中である。液柱形成は速く、液柱内部の流れも速い(図10)ことが分かる。

水とエタノールは異なる温度に設定しており、赤外線温度計による観測からその混合の様子が推測できるが、乱れが発生している様である。合体直後において、液柱表面温度が水(高温)の温度より上昇しているのも観察される。これも、水とエタノールとの反応に関係があるものと思われる(図11)。

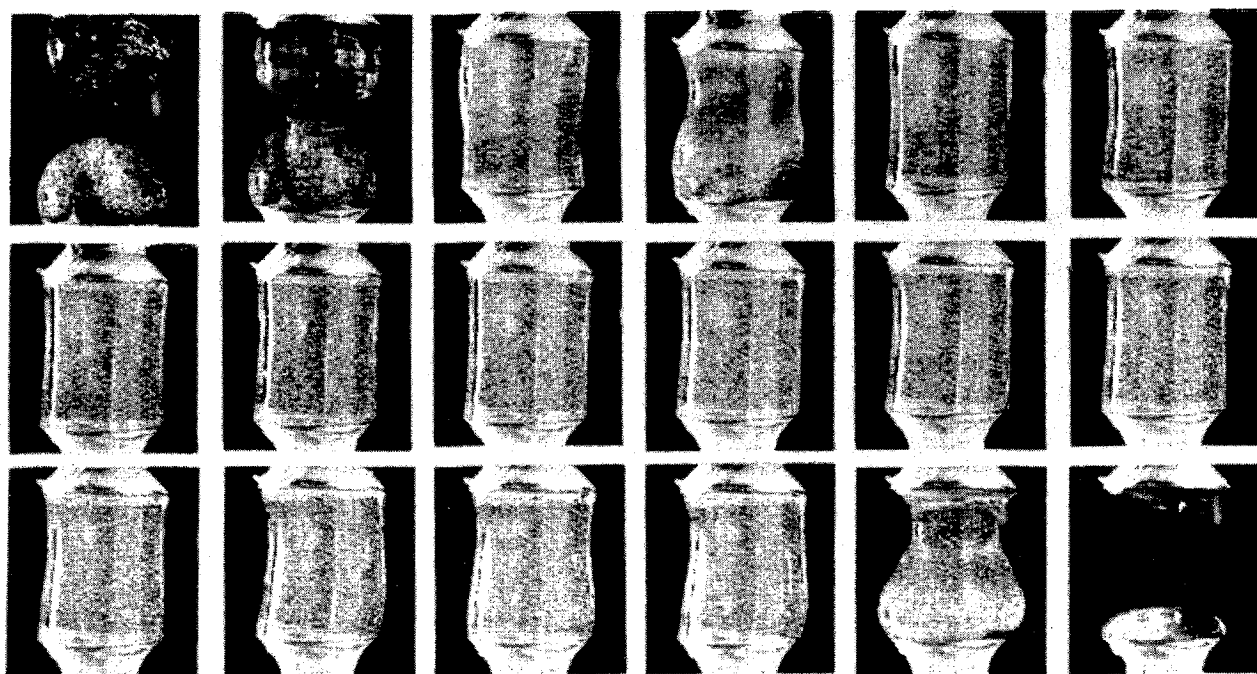


図9 温度の異なる水とエタノールの液柱形成及び流れの様子(1秒毎)

Fig.9 Formation of liquid bridge by contacting two liquid balls (water and ethanol) with different temperature and flow inside the liquid bridge (every 1 second)

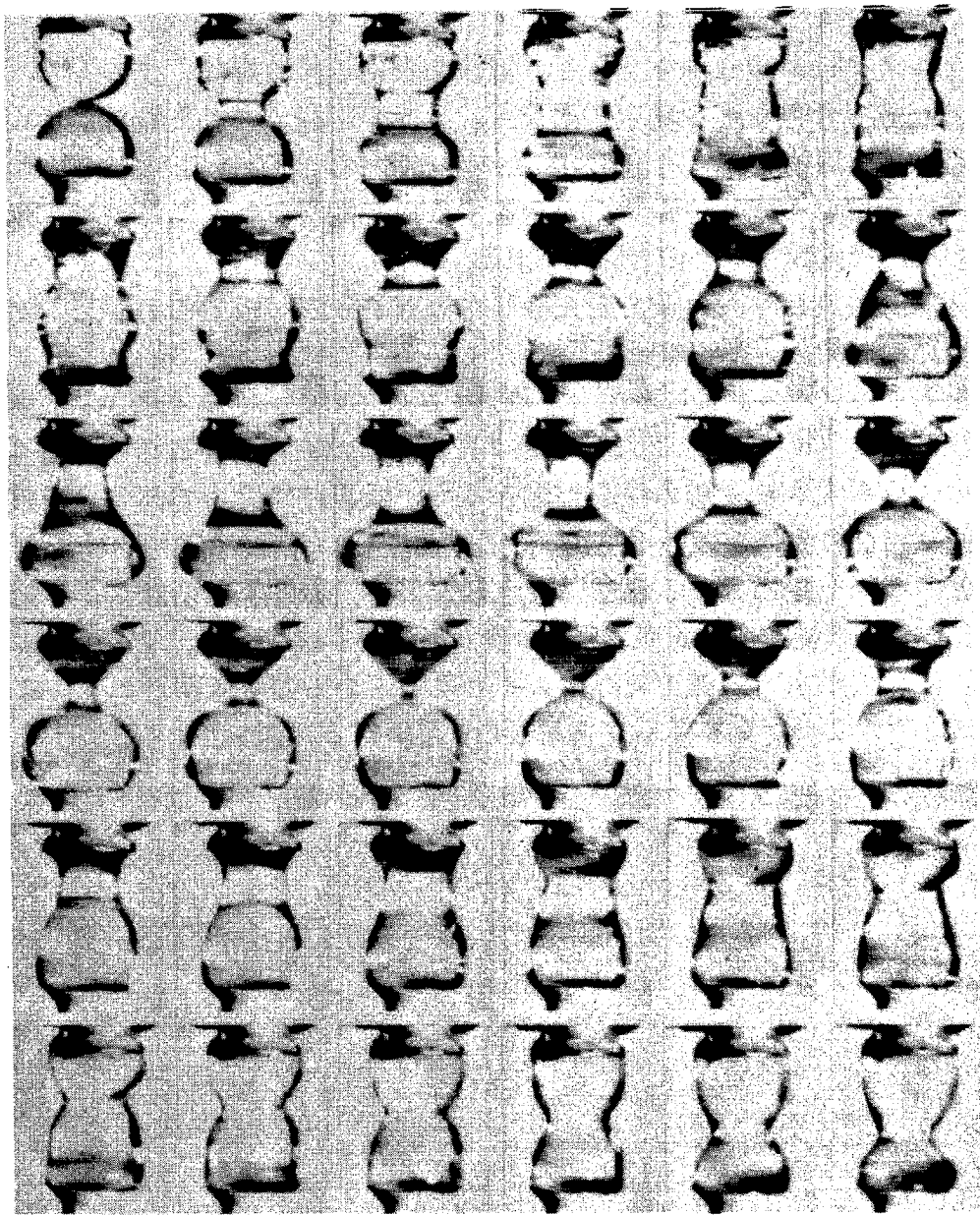


図10 温度の異なる水とエタノールの液滴の接触、合体融合時の高速ビデオカメラによる観測結果 (1/120秒毎)

Fig.10 Observation during formation of liquid bridge by contacting two liquid balls (water and ethanol) with different temperature (High speed camera ; every 1/120 second)

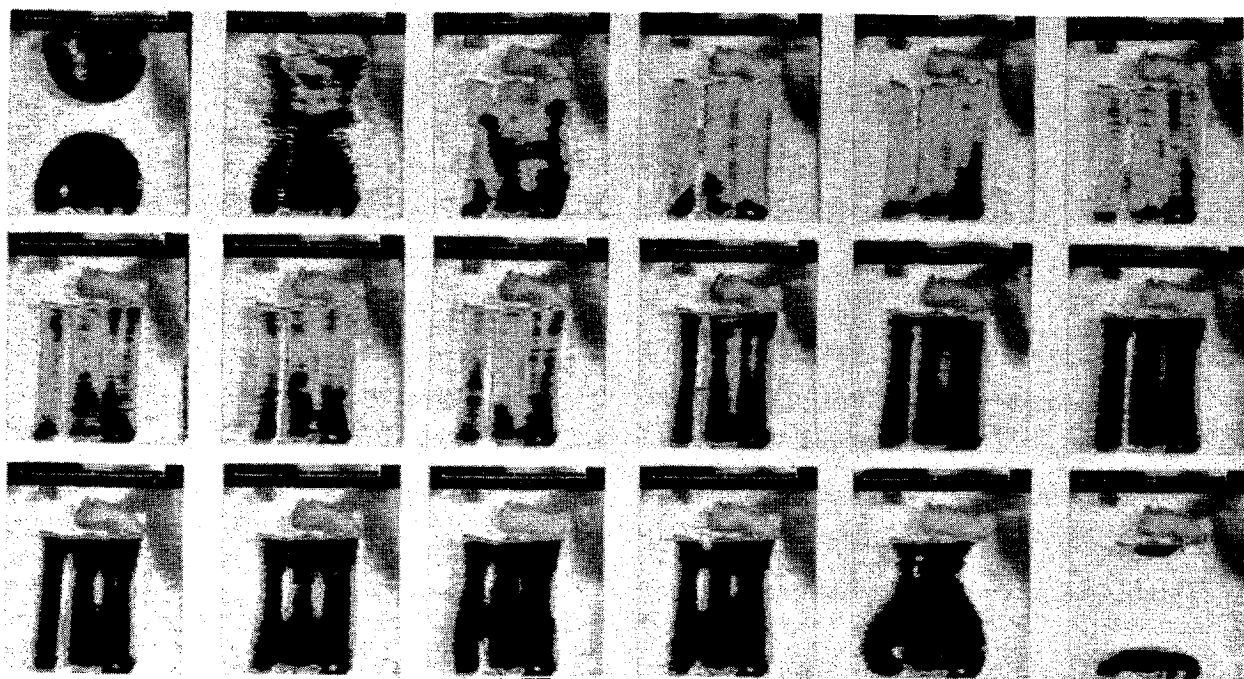


図11 温度の異なる水とエタノールの液柱形成時及びその後の液柱表面温度分布の時間変化 (1秒毎)

Fig.11 Formation of liquid bridge by contacting two liquid balls (water and ethanol) with different temperature and transition of surface temperature (every 1 second)

4. 結言

本実験では、微小重力下における温度差及び濃度差マランゴニ対流の観察技術の開発・検証を行った。実験結果から、以下のようにまとめることが出来る。

- (1)接触したシリコン球はマランゴニ流を伴いつつ、独特のゆっくりしたエネルギー交換を行う。
- (2)シリコン球は接触しても、殆どの場合（温度差の有無に関わらず）融合しない。このため、融合させるために一方の液滴に針をしこみ、両球の間に道をつくった。一度だけ針無しでも融合した。
- (3)融合したシリコン球はマランゴニ流により急速な温度の均一化を行う。
- (4)水、エタノールの融合は激しい振動を伴い、急速に両液体の均一化が行われる。濃度差マランゴニ流によるものと思われるが、振動現象は現在不明である。
- (5)紫外線フォトクロミック法は表面流れ観察法として可能性が高いが、技術的改良の余地があることが分かった。
- (6)レーザによるフォトクロミック法は現段階でも充分活用可能である。

謝辞

本実験を行うにあたり、多大な支援を賜ったダイヤモンドエアサービスの方々に深く御礼申し上げます。