

無重力下での材料製造過程におけるマランゴニ対流の研究

PI:塩冶震太郎 (石川島播磨重工業)

CI:桑原啓一 (石川島播磨重工業)

:内田博幸 (石川島播磨重工業)

:落合淳一 (石川島播磨重工業)

:秋吉亮 (石川島播磨重工業)

:小原明子 (石川島播磨重工業)

1. 要旨

宇宙での微小重量状態を利用した材料製造において、融液の表面に温度差が存在するため表面張力差に起因した対流（マランゴニ対流）が発生して、凝固成長する結晶の性質に大きな影響を与える可能性がある。この流れの解明を目的として、一方向性の結晶成長過程（アンプル内に結晶を封入し軸方向に結晶成長させるブリッジマン法）を模擬した系で流動可視化実験を行った。実験結果を別に行う数値シミュレーションと融合すれば、マランゴニ対流およびそれによる熱伝達、物質伝達の予測が可能となる。さらに流れ、熱伝達、物質伝達と結晶成長の関係を明らかにすれば、それらを制御することにより良質の結晶を得ることが期待できる。

実験は、微小重量状態で融液がアンプルの壁面と接触せず自由表面が円柱面に一樣な幅で成長結晶側に生じる場合をモデル化した。その中で発生する流れを可視化するために透明なパラフィン液を使用した。微小重量状態でパラフィンを融解後、温度差を持つ自由表面を形成し、液柱内のトレーサの動きをテレビカメラで撮影した。実験の目的は要約すれば、（１）自由表面を持つ液柱の形成、（２）流れの可視化、（３）マランゴニ対流および結晶成長を模擬した凝固現象の観察であり、これらをシリーズ化して実施した。

得られた主な結果を以下に述べる。

（１）宇宙の微小重量状態を利用して直径25mm、長さ24mmの液柱の低温側に長さ6.5mmの自由表面を形成し、実験中継続して安定に保持することができた。

（２）実験ではビデオに液柱の可視化画像（液柱形状、液柱内のトレーサ）を記録することができた。但し、画像の鮮明さは不十分であった。

（３）自由表面上の温度差の形成、微小重量下での浮力対流抑制という条件が満たされたにも拘らず、マランゴニ対流が発生しなかった。試料を回収し成分分析や地上実験を行った結果、界面活性剤が外部から試験液体に混入して自由表面が汚染されたことによりマランゴニ対流が発生しなかった可能性が非常に高いことがわかった。

（４）無対流下での凝固現象においては凝固界面が平坦に進行し、融解現象においては未融解部が液体中に浮遊し地上よりも融解が遅くなることが確認された。

今回、マランゴニ対流が発生せずその観察ができなかったのも、主目的の一つが残ったことになる。そこで、汚れの混入防止対策および撮影機器と光学系の性能向上を図り、宇宙での再実験が是非とも必要である。

1. 序論

1. 1 実験の背景、意義

宇宙での材料製造実験においては、微小重量環境であるため、密度差による自然対流が起こらず、均一で高品質な凝固組織の成長が期待されている。ところが加熱冷却を伴う結晶成長過程においては熔融材料の自由表面に温度分布が生じることは避けられず、表面張力の大きさに分布ができる。これが駆動力となり、対流が発生し（マランゴニ対流と呼ぶ）、結晶成長の過程に重要な影響を与えることが推察される。

1. 2 実験の目的

宇宙の微小重量環境において、結晶成長過程（ブリッジマン法等）を模擬した液柱モデルを用い発生するマランゴニ対流の挙動を観察し、材料製造への影響の解明を目的として、この実験を実施した。

1. 3 ブリッジマン結晶成長法のモデル化

ここで対象とするブリッジマン法は、一次元温度分布による結晶成長法で、電気炉中に設置したアンフル入りの半導体試料を加熱して融液にすると同時に、種子結晶側から冷却し、融液を凝固させ結晶を成長させる。一次元温度分布の状態を保ちつつ炉を結晶成長速度に合わせてゆっくり移動させて結晶を作る⁽¹⁾。これを流体挙動の観点からみると、アンフルと融液は濡れが悪く充填時にアンフルと融液間に隙間をとる様に設計されているので、表面張力支配となる微小重量下では、気相はアンフル内壁に沿い形成され融液は内壁から離れて凝集しようとする。そのため、自由液面上の温度分布による表面張力差が生じ、低温の結晶成長面方向に向かってマランゴニ効果による流れが発生すると考えられる。（図 1. 3 - 1 参照）

2. 実験試料と方法

上述のようにブリッジマン法においてアンフル内材料が熔融し自由表面が円柱面に一様な幅で生じる場合をモデル化する。実験では、流れを可視化するために透明なパラフィン液（ n -エイコサン、 $C_{20}H_{42}$ 、融点 $36.9^{\circ}C$ ）を使用する。固体の試料を軌道上において一端を加熱、他端を冷却することにより、液体円柱内に温度勾配を与える。熔融後カバーのガラス管を一定長さ引き抜いて冷却側に自由表面を形成し、マランゴニ対流を発生させる。この流れは予め試料内に混入したトレーサ（アルミ微片）の動きをスリット光で可視化して、ビデオ画像に記録される。（図 2 - 1 参照）全体の流れと自由表面上の流れを同時に観察するために、2本のファイバースコープを用いて可視化断面を正面と斜め（正面より 50° 傾いた方向）の2方向から撮影する。図 2 - 2 に装置の外観写真とその内部にセットされた装置の主要部の写真を示す。実験搭乗員は、外観写真に示すハンドルを15回転することによりガラスカバーを移動させ自由表面を形成する。

実験は3回行ない、自由表面上の温度勾配を変えて流れのデータを取得する。3番目の実験においては、凝固状態を観察する。（図 2 - 3 参照）

実験条件：液柱寸法 ：直径 2 5 m m、長さ 2 5 m m
自由表面長さ ：6 . 5 m m
実験 1 の温度差：1 0 K
実験 2 の温度差：5 K
実験 3 の温度差：1 5 K（凝固実験）

3. 実験結果

3. 1 地上予備研究

地上予備研究は大きく分けると、1) 実験内容の検討（装置、方法）、2) 実験準備（試料）、3) 短時間微小重力実験（現象の確認、装置の機能確認）、4) 地上研究（基礎実験、地上参照、数値解析）に分けられる。特に、短時間微小重力実験は、宇宙実験に特徴的なもので、これを行わないと予期せぬことが起こって失敗する可能性が高い。ここでは、M-18 のために行った地上予備研究のなかで特に関連したものについて述べる。

3. 1. 1 実験内容の検討

（1）実験試料の選定

実験試料は以下に示す条件を満足しなければならない。

- A) 流れの可視化のために透明である。
- B) 長時間の保存でも変質しない。
- C) トレーサを沈降させないため試料を凝固させたまま保存する。そのため、常温付近に融点がある。
- D) マランゴニ対流を発生させるために表面張力温度係数が大きい。

種々の液体を検討した結果、パラフィンの一種である n-エイコサン（融点 36.9℃）を選定した。n-エイコサンの物性値を表 3. 1. 1-1 に示す。

（2）トレーサの選定

当初、流れの可視化と温度の可視化の両方を同時に行うために、トレーサとしてコレステリック液晶を検討した。トレーサと実験試料との適合性（可視化機能、変質の有無）については、実験により確認した。最終的に、FMPT で使用するマランゴニ対流実験装置（MCU）に対する適合性を見るため、1988 年 10 月に EM を用いて可視化実験を行った。ここで、地上装置と大きく差があるのは撮影系（CCD カメラとファイバースコープ）、ガラスカバーへの導電性コーティングおよび光源の明るさであった。その結果、EM を用いた可視化実験で液晶による温度の可視化はできず且つ流れのトレーサとしても見にくい。流れの可視化に関しては、アルミ微片の方が良く見えるということが判明した。これは主に撮影系の影響である。そのため、温度の可視化についてはあきらめ、アルミ微片を用いて流れのみを可視化することとした。このことについては、後述する航空機実験においても確認されている。

（3）実験装置の検討

この実験は、装置に試料、トレーサをセットした後に 1 年程度の待ち時間があることになっていた。そのため凝固状態で保存することにしたので、トレーサを沈降させ

ないために試料を凝固状態でセル内に充填させる必要がある。そこで以下に示す項目について検討した。

A) 充填時に気泡を混入させない。(気泡はマランゴニ効果で動き自由表面で発生するマランゴニ対流と干渉して現象が複雑になる。)

B) 試料内にトレーサを均一分散させる。(流れ全体の流れの可視化を行う。)

C) 実験開始前に試料を融解するが、その時の試料の体膨張分を吸収する。

D) 実験開始前に試料を融解するが、その時の試料の体膨張分を吸収する。

E) 微小重力下において濡れ性により液体が流出することを防止する。

E) に対しては、液体が接触する部分の端面に撥水性コーティングを行い、濡れを悪くすることで対応した。A)、B)、C)、D)の対策については次節で述べるので省略する。

3. 1. 2 実験準備(試料の充填)

1990年8月に、マランゴニ対流実験装置(MCU)に試料、トレーサの充填作業を行った。

充填は、次の手順で行った。

(1) MCUを模擬したガラスセル中で試料とトレーサを融解させて後、下部を冷却して凝固させる。この作業を図3. 1. 2-1に示すように減圧下(数mmHg)で行うことにより脱気して融解時の気泡の発生を防ぐ。また、融解→凝固を3mmの厚さ毎に行うことによりトレーサの均一分散を図ることが出来る。こうして作製された試料はMCUでセル内に熱電対があるので中心軸にの穴が貫通している。

(2) 凝固させた試料をMCUを分解して、セル中にセットした。(図3. 1. 2-2(a)参照)これに冷却ブロックを取り付けて、融解時の膨張吸収用のレザーバー(濡れによる流出防止のために内壁をテフロンコーティングしてある)中に固体試料を入れる(図3. 1. 2-2(b)参照)。この状態で減圧し、加熱してレザーバ中の試料を溶かし、セル中の隙間を充填した。気泡を抜いた後、全体を凝固させた。

(1)、(2)のステップを踏むことにより3. 1. 1(3)のA)、B)、C)、D)の対策を行うことが出来た。また、この作業は汚れを防ぐためクラス10万以下のクリーンルームで行われた。

3. 1. 3 短時間微小重力実験

宇宙実験を成功させるためには、事前準備がきわめて重要であり、特に宇宙空間に近い $\mu-g$ で行われる予備実験は実験の成否を握るといっても過言ではない。そこで、実験手段として航空機実験を用いて以下の課題を採りあげた。

A) 液柱の形成

FMP Tでは、冷却面側に自由液面を持つ液柱を形成し、この内部の流れを可視化する。この様な液柱を地上で作ることは出来ないので、機内において液柱形成の可否、濡れ性の影響および加速度に対する安定性を調べる。

B) 可視化技術

この実験は、温度、加速度以外は全て可視化画像より読み取ることになっている。そのため、可視化画像に影響する因子(照明光量、トレーサの反射性、ファイバー伝

送性、入射光のカバーガラスによる反射等)について検討する。

図3. 1. 3-1に実験装置の概略図、図3. 1. 3-2に主要部を示す。FMPTとはほぼ同様の装置、実験方法であるが液柱の形成をステップングモーターでボールねじを回転させてガラスカバーを移動することで行うところが宇宙実験と異なる。図3. 1. 3-1に示す様に液柱の上端側をヒータで加熱し、下端側をファンで冷却して液柱内に温度勾配を発生させる。これらの温度と雰囲気温度を熱電対により測定する。柱内流れは、スリット光により可視化断面を作り、混入したトレーサの反射光をテレビカメラで接写し記録する。撮影方向の斜め前方から光を入射させ、断面両端の全反射を防止した。これらの装置、制御機器、測定機器をラックに組み込み、航空機に搭載した。

通常の重力状態では、カバー内に液を封じて漏れを防ぎ、低重力状態になった時点でカバーを移動(0.5~1秒)して自由液面を形成する。温度差マランゴニ対流実験では、装置は高温面を上、低温面を下にして取り付け、実験前の浮力対流を防止した。低重力飛行中は液柱をそのまま保ち、通常飛行に復帰する前にカバーを閉じ、液を内封する。

(1) 液柱の安定性及び形状

図3. 1. 3-3に低重量状態で形成された自由液面を持つ液柱の可視化写真(液体: シリコン油 $1000\text{mm}^2/\text{s}$ 、自由液面長さ 8mm)を示す。実験的には、加速度が 0.1G を越えなければ、液柱は保持された。

液柱の加速度に対する安定限界を調べると、表面張力効果のみを考慮した近似解析では 0.005G 以下となる。しかし、実際は円板の抵抗などがあるため破断し難く、実験値を外挿すると 0.1G 以下となっており、この結果と一致する⁽²⁾。この結果をFMPTの実験条件(液体: n-ヘキサ、自由液面長さ 7.5mm)に適用すると、 0.1G 以下となる。これはシャトル内では満足されるので液柱は破断しない。また、ガラスカバー端面を濡れ難くすることにより、メニスカスを小さく押さえることができることも確認された。

(2) 可視化技術

トレーサとしてアルミ微片と液晶を用いて流れと温度の可視化を合わせて行った結果、直接撮影した画像では流れと温度を同時に知ることができた。それに比較して、ファイバーによる画像は直接撮影した画像(図3. 1. 3-3)よりも鮮明さで劣りかつ液晶の発色を確認できなかった。この結果と地上実験結果(3. 1. 1(2)参照)から、FMPTにおいては、トレーサはアルミ微片を用い、地上実験でスリット幅の最適値の選定とナイフエッジによる乱反射の防止を行い、より鮮明な画像が得られるように工夫した。

3. 2 軌道上実験

3. 2. 1 実験経過

軌道上2日目に実験を行ったが、自由表面の形成が遅れ実験1のみが実施できなかった。そのため再実験を要求し、軌道上6日目に実施された。これにより予定した実験内容をすべて実施した。

なお軌道上2日目の各実験を実験1-1、1-2、1-3、軌道上6日目の各実験を実験2-1、2-2、2-3としてこれ以降表す。

3. 2. 2 可視化画像の観察結果

ビデオ画像を観察した結果を表3. 2. 2-1, 2に示す。実験時間(GMT:グリニッジ標準時間およびMET:打ち上げ後経過時間)も併せて示した。

最初に流れについては、可視化画像の観察からはトレーサの動きが見られないことから発生していない可能性が高いと考えられる。

まず軌道上2日目の実験において実験1-1の最初に融解が終了したことが確認できた。しかし、自由表面は完全に形成されておらず(自由表面の形成はガラス管の端面の黒いテフロンコーティングが画面に現れることによって確認できる、図3. 2. 2-1参照、可視化写真の左側は、斜め方向からの観察写真、右側は正面からの観察写真を示している。)最終的には実験1-2の途中でPOCCからの指示により形成された。図3. 2. 2-2にガラス管が移動し自由表面が形成されていく様子を連続写真で示す。その間試料温度測定用熱電対の近くにあった気泡は自由表面形成までほとんど動かなかった。実験1-2において自由表面が形成された後、自由液面は安定して保持されていた。しかし、自由表面は平坦な形状期待していたが、凹んでおりメニスカスを形成していた。

実験1-3において冷却ブロックを凝固点以下に下げて実験を行ったが、画像で凝固を確認したときは凝固層はかなり厚くなっていた(図3. 2. 2-3参照)。最初の凝固速度はかなり速くそれ以降は非常に遅かった。正面からの画像では凝固界面は平坦に見えるが、側面からの画像ではスリット光の反射により確認できなかった。(図3. 2. 2-4参照)また凝固が進行するとともに自由表面の湾曲が激しくなることも観察された。

次に軌道上6日目の実験において最初にガラス管を解放したまま融解現象を観察した。図3. 2. 2-5に試料が凝固した状態の写真を示す。凝固試料が加熱ブロック、ガラス管および冷却ブロックと接触しているため周囲から融解が始まった。その時に試料内の空洞があり、そこに溶けた液体が流れ込むのが観察された。その空洞は凝固により体積収縮したために形成された。周囲からの融解が進行すると凝固部分が液体中に浮遊した形となりその後ゆっくりと回転した。(図3. 3. 2-6参照)回転の駆動力については検討中である。融解中に自由表面が形成され、融解終了後もほぼ2日目の状態と同じように安定して保持された。融解の終了は実験2-1の半ばぐらいまでずれこんでおり、2日目の実験よりも長く掛かっている。これはガラス管を解放しているので加熱面積が減少したためである。

当初は実験2-1のみを実施する予定であったが搭乗者の作業時間の都合で実験2-3の途中まで実施された。現象としては2日目の実験と同様のものを観察することができた。図3. 2. 2-7にこれまで述べた実験の実際のシーケンスを示す。

最後に可視化画像の質について述べる。図3. 2. 2-1~6に示すように自由表面の外形、ガラスカバー、熱電対、気泡、トレーサ、スリット光入射位置などが見えている。しかし、トレーサは集合したようにぼやけて見えており一つ一つを見分けることはできなかった。これでは、流れの詳細な解析は非常に難しい。

さらに、ファイバーのセットの問題であるが最も重要な自由表面の一部（冷却ブロック側）が欠けていた。

また、可視化写真からわかるようにガラスカバー端面に濡れによる液体の流出防止対策としてテフロンコーティングを行ったために2 mmの幅で見えなくなっている。それに加えて、ガラスカバーの厚みが2.5 mmあってファイバーが自由表面を斜めからみているため、正面の場合に自由表面のガラスカバーの近傍3 mmが見えなくなっている。これは、試料回収（1993年2月）後のフライトモデルを用いて試料の代わりに透明なアクリル棒（中心に目盛りをつけた）を入れて撮影した写真と比較して算出したものである。両者をトータルすると正面からは約5 mm見えない部分があることがわかる。

3. 2. 3 観察結果の検討

観察結果をまとめると以下のようになる。

（1）6.5 mmの長さの自由表面を持つ液柱が形成され実験中（再実験を含めると約3時間）安定して保持された。

（2）液柱の形状およびトレースを観察することができたが、鮮明さが不満足であるとともに観察することの出来ない部分があった。

（3）可視化画像を観察したところではマランゴニ対流は発生していなかった。そのため画像処理を行ったところ、トレースの集合パターンに変化が見られず発生していないことが確認された。さらに、液体中に温度勾配があるにも関わらず気泡が動いておらず、マランゴニ対流は発生していなかったと考えられる。この原因については、考察で詳しく検討する。

（4）微小重力下の流れのない状態で凝固現象を観察することが出来た。凝固面は平坦で1次元的に進行しており（図3. 2. 3-1参照）、熱伝導支配を仮定した近似解析と比較的一致している。

（5）今後の宇宙実験において相変化蓄熱や材料製造で必ず問題となる融解現象を観察することが出来、微小重力下では未融解部が液柱に浮遊するために地上よりも融解が遅くなるという結果が得られた。

3. 2. 4 温度測定結果

図3. 2. 4-1に温度測定点の4点（冷却ブロック、ガラス管、加熱ブロック、流体）の位置を示す。実験においては、冷却ブロック温度でペルチェ素子を、ガラス管温度でガラス管ヒータを、加熱ブロック温度で加熱ヒータをそれぞれ独立して制御している。またガラス管熱電対は2日目の融解時には液体部分にあるが、自由表面形成時には加熱ブロックの上に来ている。

図3. 2. 4-2、3に2日目、6日目の実験における4点の温度の時間変化を示す。まず温度制御についてみると冷却ブロック、ガラス管は実験中ずっと図2に示す設定温度に保持されていたが加熱ブロックは2日目の融解が終了して実験2-1に入ってから間もなく設定温度を超え実験終了時まで数度高い状態で推移した。6日目の実験においても融解に入ってからすぐ設定温度を超え実験終了時までそのまま推移した。なお、温度が設定温度を超えたときはヒータは切れた状態となっている。流体温度も融解終了後ゆっくりと上昇し最終的には加熱ブロック温度を超えてその状態が実験終

2日目、6日目の実験において温度変化が異なっているのは融解が終了して最初の実験に入り自由表面を形成したところまでである。

図 3. 2. 5-1 に NASA の SAM S 実験の加速度データの例を示す。X, Y, Z 軸とも $\pm 1 \text{ m G}$ の加速度で推移し、時々数 m G の加速度が数分続くことがあった。この値は 3. 1. 4 での述べた最小加速度よりも値より低く、予測通り自由表面は安定して保持された。

	凝固実験（露出部分凝固）	40分
	全体凝固したまま放置	
1992. 9. 18	マランゴニ対流実験第2回目	
	融解（大気中に一部露出）	30分
	自由表面形成（大気中に一部露出）	80分
	凝固実験（露出部分凝固）	40分
	全体凝固したまま放置	
1992. 9. 20	シャトル帰還	

実験終了時の状態で30℃以下で保存
 （シャトルからの取り外し、日本への移送が行われた。）

1993. 2. 8～9 装置からの試料取り出し
 装置との接触部分を加熱融解して取り出した

1993. 2. 10以降 冷蔵庫で低湿度状態（温度、湿度不明）
 観察のため数回取り出した

試料の分析は、赤外線透過法で行った。その主要な結果（波長特性）を図3. 3. 2-1）に示す。変質、汚れのない試料と回収試料を比較すると以下のことがわかる。

A) 試料の変質は起こっていない。

B) 異物が混入していたとしても、0. 1%以上ということはない。

これらの結果については、マランゴニ対流未発生の考察で議論する。

4. 考察

4. 1 マランゴニ対流の未発生の原因

原因としては自由表面上の温度差の未形成、加速度による浮力対流との干渉による流れの抑制、試料の汚れまたは変質による界面汚染などが考えられる。

4. 1. 1 自由表面上の温度差

テストセクション部の熱モデル（流れが発生せず微小重量下であることから熱伝導支配とした）を作成して実験時のヒータ入力（IHI字事部より入手した）より、温度測定データを用いて自由表面上の温度差を計算した。但し温度データとしては、加熱ブロックと冷却ブロックを用いた。ガラスカバー温度は、熱電対を表面に接着したために実際の温度を測定していない可能性が高いと判断し除外した。その結果、図4. 1. 1-1（等温線）に示すように自由表面上に最初の想定よりも高い温度差（5K→13K）が生じていることが判明した。

4. 1. 2 浮力対流

浮力対流は体積力であるので、自由表面のみでマランゴニ力と釣り合い全体の流れが停止することはない。そのため原因とはなり得ないが、マランゴニ対流への影響を

見るために加速度データ（ 1 mm G ）を用いた浮力対流のみの数値計算を行った。その結果、予想されるマランゴニ効果による流速の $1/1000$ 程度でマランゴニ対流が発生していたとしても影響がないことがわかった。

4. 1. 3 試料の問題

3. 3. 6の結果から明らかなようにフライト試料の変質は発生していない。また地上に於てセルを横置きにして重力の影響を抑えて微小重量状態を模擬した実験（図4. 3. 2-1参照）を行ない、宇宙実験に使用した同じロットの試料でマランゴニ対流の発生を確認しており、宇宙実験使用した試料自身の物性に問題のないことがわかった。さらに回収したフライト試料を用いて流動発生の確認試験を行った結果、マランゴニ対流は発生しなかった。

以上の結果から、赤外透過光法では分析できない微量の異物の混入により界面が汚染されたという可能性のみが残ったことになる。そこで、実際に異物を微量混入したことによりマランゴニ対流が停止するかを確認した。異物としてグリースを自由表面から混入した結果、10秒以内に流れが停止した。そのため、異物の特定、混入経路と時期について調べたが不明である。そのため、異物の混入がマランゴニ対流未発生の原因であると完全には結論つけられない。

4. 2 液柱内の温度分布

4. 1. 1で行った数値解析を用いて液柱内の温度分布の推定を行った。温度分布の一般的傾向としては、図4. 2. 1-1をみると以下のようにになっている。

（1）軸方向では、ガラスカバー端面から加熱ブロックに向かって数mmの位置が一番温度が高い。

（2）径方向では、ガラスカバー（ヒーター部分）が最も温度が高くなっている。

実験シーケンスに対応した軸方向の温度分布を図4. 2-1に示す。いずれの場合も計画よりも温度差が大きくなっていることがわかる。これは、ガラスカバーの熱電対がガラスカバーとの密着が悪く実際よりも低めの温度を示したために必要以上の電圧がヒーターに印加されたことに起因している。

また、図4. 2-2に凝固実験時の温度分布（等温線）を示す。この時点では凝固は、停止しており、融点から凝固厚さを推定すると3. 5mm程度で実験結果と対応している。

4. 3 ブリッジマン法におけるマランゴニ対流の推定

実験において流動データが得られなかったので数値シミュレーション及び地上実験により可能な範囲で流動データを得るため実験を行った。

4. 3. 1 数値シミュレーション

ここでは、図4. 3. 1-1に示す円筒形セル内のマランゴニ対流を解析する。左右の境界を温度一定の高温壁および低温壁とし、上部の境界を断熱された自由表面と高温面とする。流れの駆動力としては表面張力差のみを考え、浮力は考慮していない。自由表面の形状は重力がゼロの漸近解として平面を与えている。

基礎方程式として、軸対称円筒座標系非圧縮定常流れの対する連続の式、運動方程

式およびエネルギー式を用いる。基礎方程式とマランゴニ対流の境界条件を有限要素法によって離散化し、ニュートンラプソン法によって非線形方程式の解を求めた。

図4. 3. 1-2にマランゴニ数6000の時の温度分布とフローパターンを示す。このとき自由表面の両端で温度勾配が急激になっていることがわかる。図4. 3. 1-3にフローティングゾーン法と自由液面上の速度分布を比較したものを示す（マランゴニ数1000）。ブリッジマン法では速度分布が加熱面と冷却面近傍で2つのピークを持っていることが特徴であり、高温面、低温面の伝熱は大部分がここで行われている。

図4. 3. 1-4に流動に対するマランゴニ数の影響を自由表面の最大流速で調べた結果を示す。フローティングゾーン法とブリッジマン法の両者を示したが、両者に大きな差はなく図中に示したような式で近似できる。⁽³⁾

4. 3. 2 地上実験

従来、地上実験では微小重力を模擬するために矩形セルにおいて両端の垂直壁の上端近傍のみを加熱、冷却していたが冷却壁近傍では浮力対流の影響が大きくなる。そのためここでは、図4. 3. 2-1に示すような水平置ききの薄板セルを用いることで、より微小重力を模擬することをねらった。ここではまず、フローティング法を模擬した系でマランゴニ対流の流動実験を行った。

最初に4. 1. 3で述べたようにフライト試料でのマランゴニ対流発生の確認試験を行った。その実験において宇宙実験と同じロットの試料を用いて流動が発生した場合の可視化写真を図4. 3. 2-2に示す。最初、加熱面近傍でしかマランゴニ対流が発生していなかったが（図4. 3. 2-2（a）参照）、表面の液体を吸い取ると流動が広がった。このことは、表面が空気中のチリのようなものにも敏感で実験上注意が必要であることを示している。また、自由表面の最大流速として得られたデータを計算結果と比較したものを図4. 3. 2-1に示す。結果は一点だけであるが、計算結果を外挿した直線に乗っている。これから実験を進め、計算結果との詳細な比較を行う予定である。

4. 4. 4 実験技術

実験技術の側面からの成果はまとめると以下になる。

ビデオ画像の観察結果から自由表面がガラス管の移動により形成され実験中は安定して保持されたことが確認できた。さらに、トレーサがほぼ均一に分散していることが確認されるとともに実験の阻害要因となる大きな気泡も観察されなかった。これは、地上における試料とトレーサの充填作業（試料中にトレーサを均一分散させ凝固した状態で充填する）が成功し、融解時の自由表面保持のためのガラス管端面、冷却ブロック外周面およびリザーバ内部のテフロンコーティングにより濡れによる液体流出が防止できたことを示している。

実験シーケンス（融解、温度差を変えた3種類の実験）は温度を除いてはうまく進行した。そして凝固現象の観察を意図した実験も凝固が進行していることは確認された。さらに追加実験において、最初の融解状態を撮影したので、凝固とあわせて融解の観察も行なうことができた。

また、実験として完璧だった訳ではなく改善すべき点はある。以下にそれを列挙する。

- (1) 可視化画像の画質の改良－光学／撮影系（特にCCDカメラ）の改良
- (2) 画像の範囲－全範囲が見えること
- (3) 温度制御の方法－熱電対の位置を変えて自由表面の温度差が設定通り制御できること
- (4) 汚染防止対策
- (5) 装置の操作性の向上－温度差条件の追加

5. 結論

ふわっと'92で結晶成長におけるマランゴニ対流の解明を目的として宇宙実験を実施した。得られた主な結果を以下に述べる。

(1) 宇宙の微小重量状態を利用して直径25mm、長さ24mmの液柱の低温側に長さ6.5mmの自由表面を形成し、実験中継続して安定に保持することができた。

(2) 実験ではビデオに液柱の可視化画像（液柱形状、液柱内のトレーサ）を記録することができた。但し、画像の鮮明さは不十分であった。

(3) 自由表面上の温度差の形成、微小重量下での浮力対流抑制という条件が満たされたにも拘らず、マランゴニ対流が発生しなかった。試料を回収し成分分析や地上実験を行った結果、界面活性剤が外部から試験液体に混入して自由表面が汚染されたことによりマランゴニ対流が発生しなかった可能性が非常に高いことがわかった。

(4) 無対流下での凝固現象においては凝固界面が平坦に進行し、融解現象においては未融解部が液体中に浮遊し地上よりも融解が遅くなることが確認された。

今回、マランゴニ対流が発生せずその観察ができなかったのも、主目的の一つが残ったことになる。そこで、汚れの混入防止対策および撮影機器と光学系の性能向上を図り、宇宙での再実験が是非とも必要である。

謝辞

本宇宙実験はシャトル搭乗員、宇宙開発事業団、IHI宇宙開発事業部および米国航空宇宙局の協力で実施された。ここに記して、謝意を表する。

引用文献

- (1) 末宗・木下, 材料科学, Vol.20 No.6 (1983), 212.
- (2) Vega, J.M. & Perales, J.M., ESA SP-191 (1983), 247.
- (3) 小原・ほか2名, 宇宙利用シンポジウム講演集, Vol.10(1993)

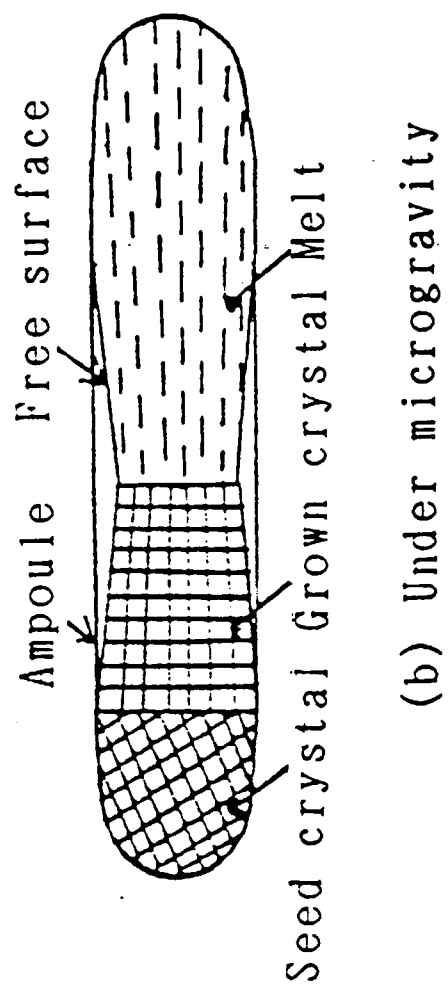
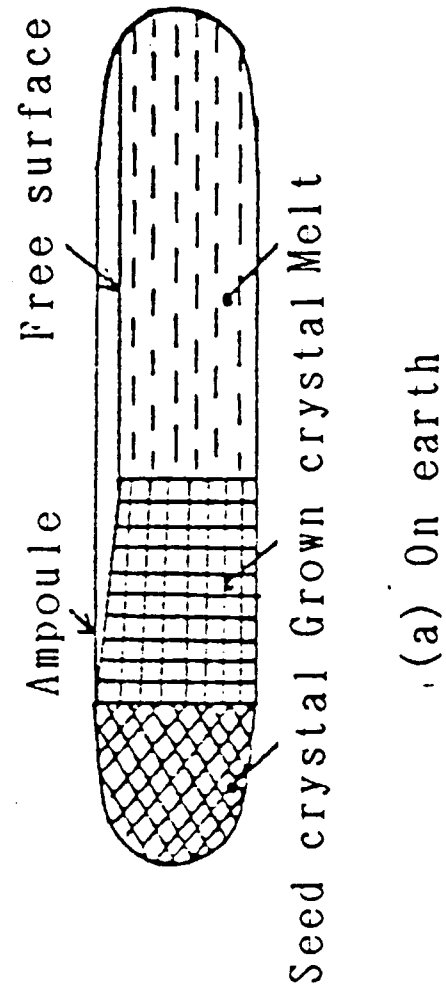


図 1.3-1 ブリッジマン結晶成長法のモデル化

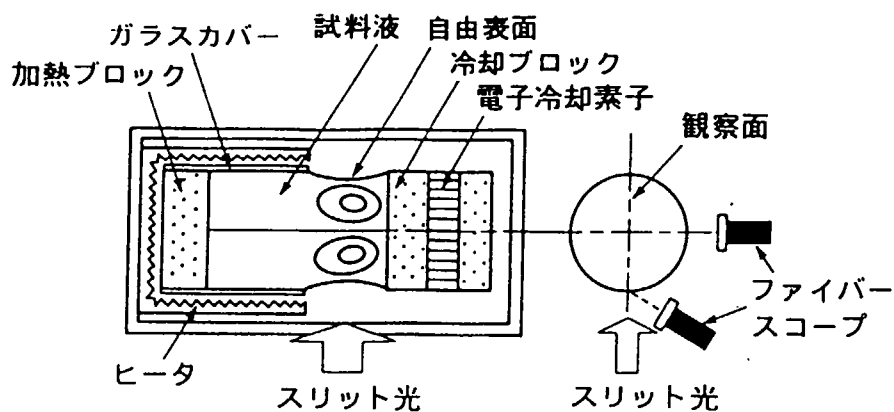


図 2 - 1 マランゴニ対流実験装置

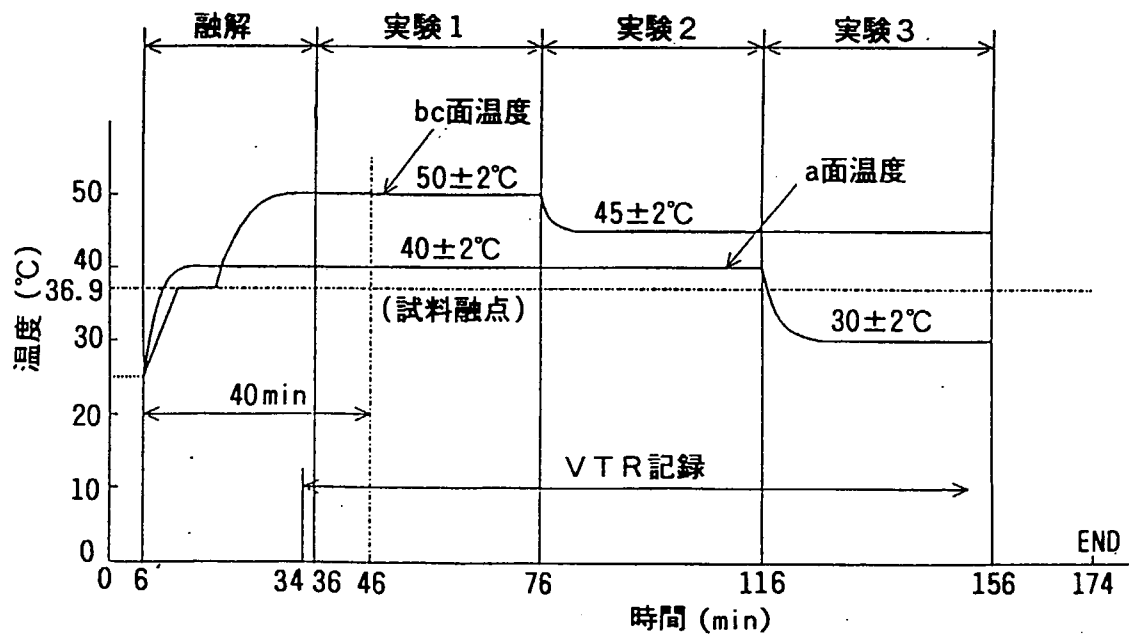
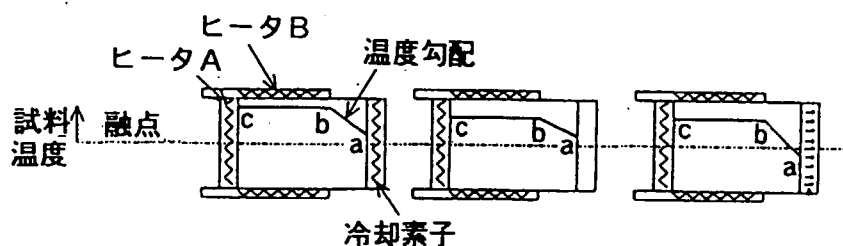
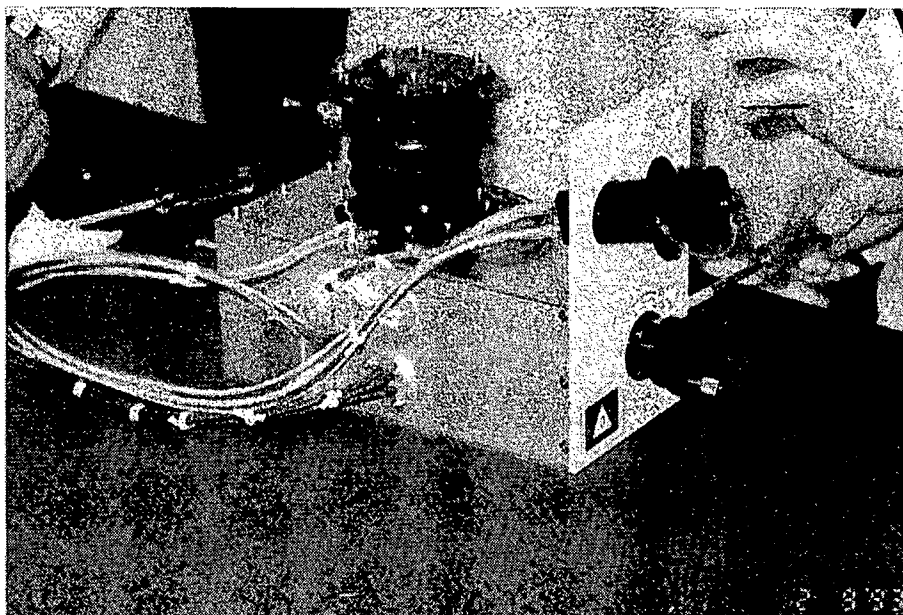
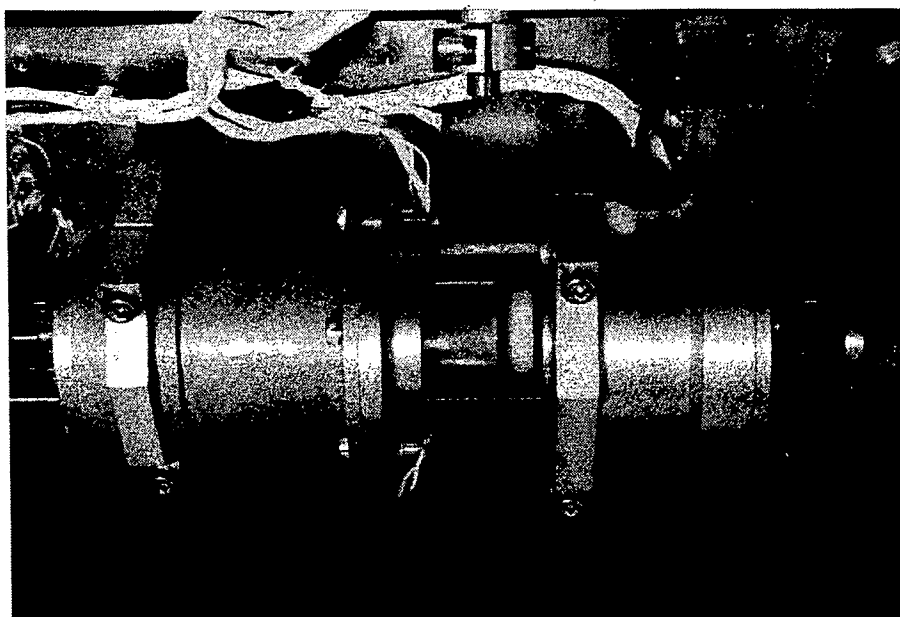


図 2 - 3 マランゴニ対流実験シーケンス



(a) 外 観

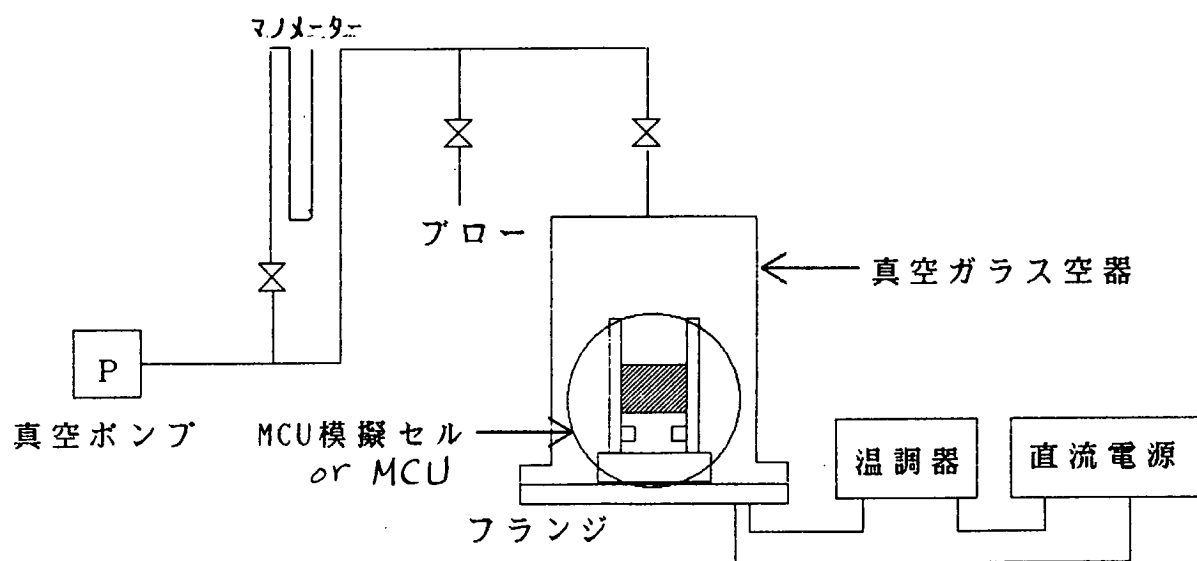


(b) 主 要 部

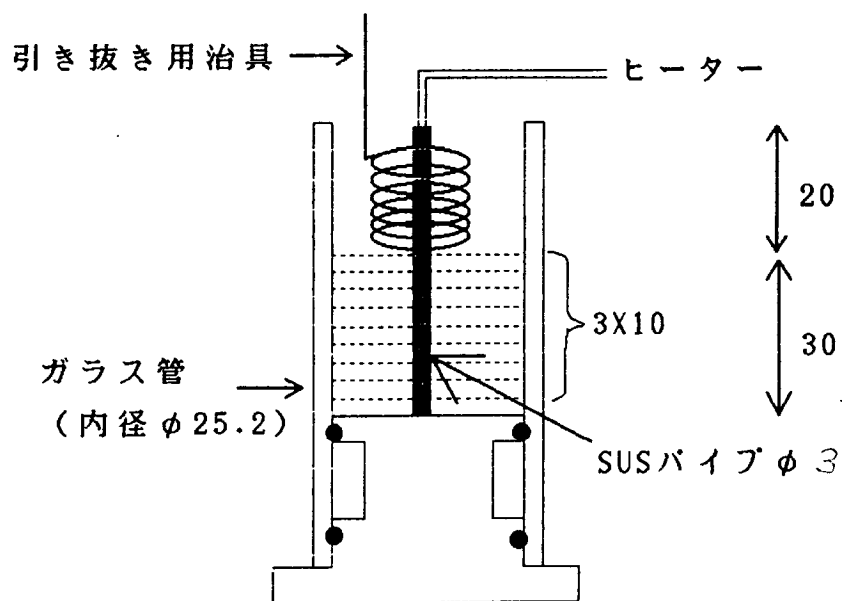
図 2 - 2 マランゴニ対流実験装置写真

表 3.1.1-1 n-エーイコサンの物性値 (40℃)

化学式	: C ₂₀ H ₄₂
発火点	: 190 ℃
引火点	: 232 ℃
融点	: 36.9 ℃
比熱	: 2.22 kJ/kg℃
潜熱	: 249 kJ/kg
密度	: 776 kg/m ³
熱伝導率	: 0.152 W/m℃
動粘性係数	: 5.27x10 ⁻⁵ m ² /s
温度伝導率	: 8.82x10 ⁻⁸ m ² /s
表面張力	: 27.2x10 ⁻³ N/m
表面張力温度依存係数	: 8.0x10 ⁻⁵ N/m℃
プラントル数	: 41.8

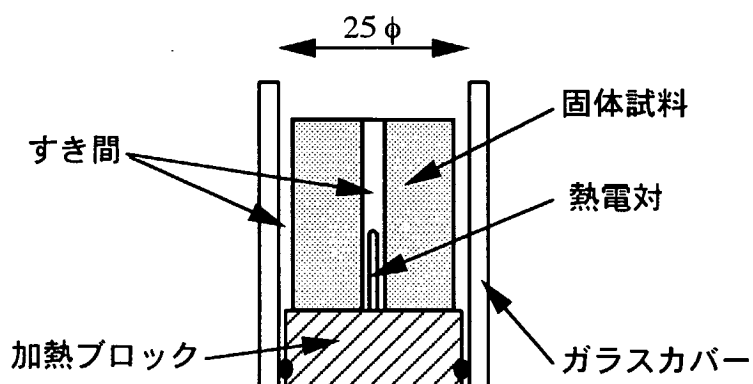


(a) 真空充填装置全体図

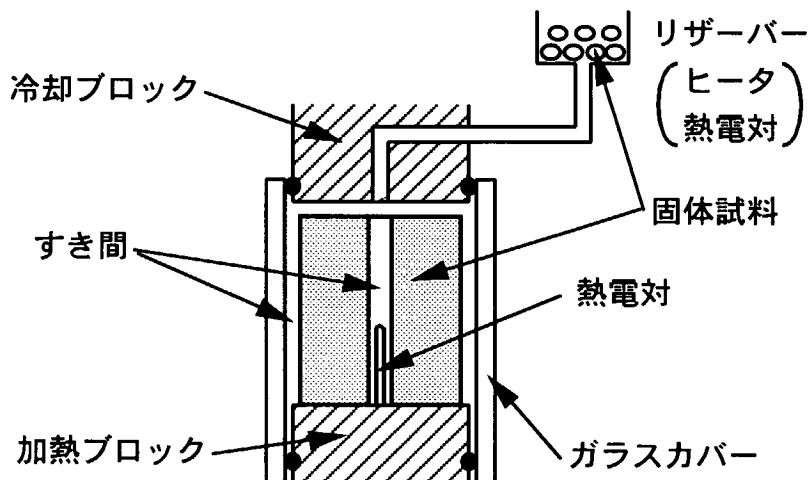


(b) M C U 模 擬 セ ル

図 3.1.2-1 トレーサを均一に分散させた固体試料の作成方法



(a) MCU装置に固体試料を入れた状態



(b) MCU装置を組み立てた状態

図 3.1.2-2 MCUへの試料充填方法

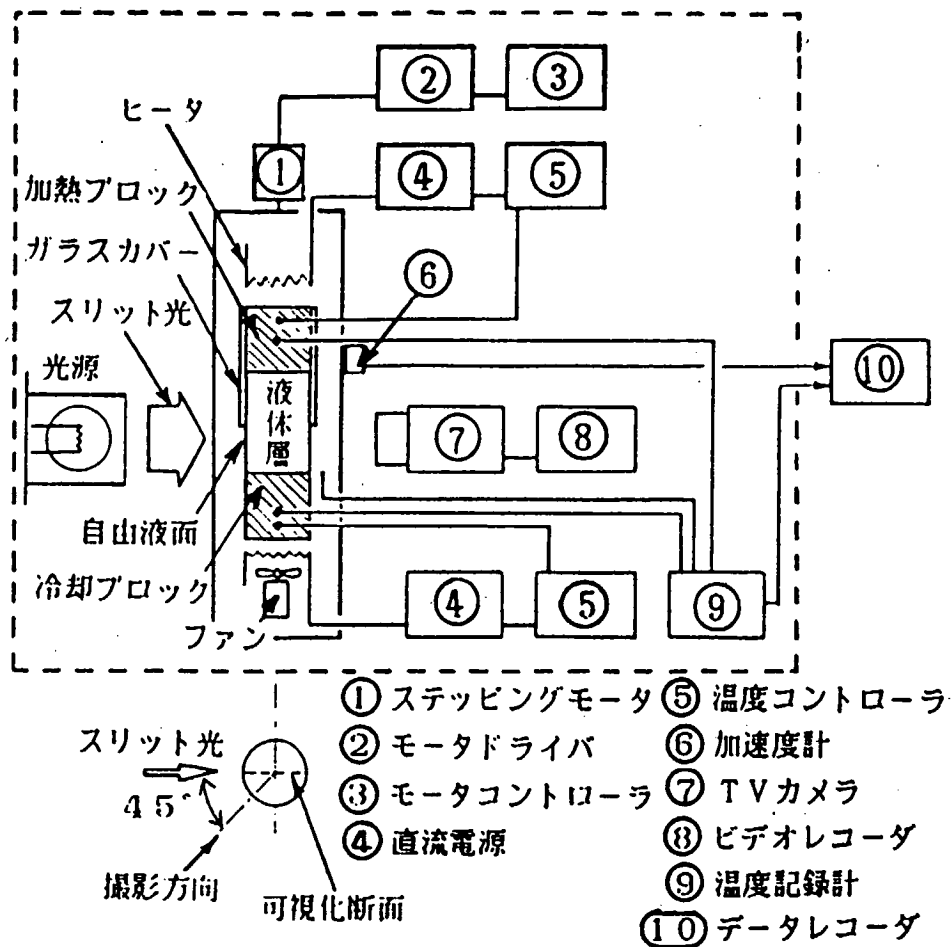


図 3.1.3-1 マランゴニ対流航空機実験系統図

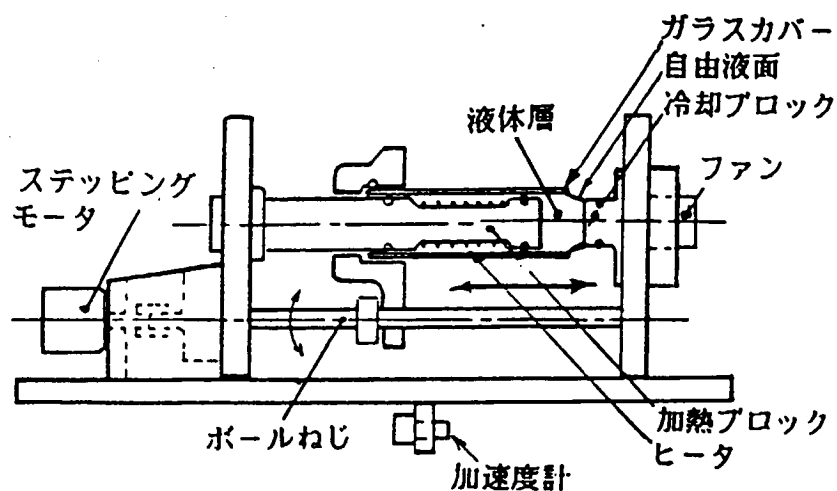


図 3.1.3-2 マランゴニ対流航空機実験主要部

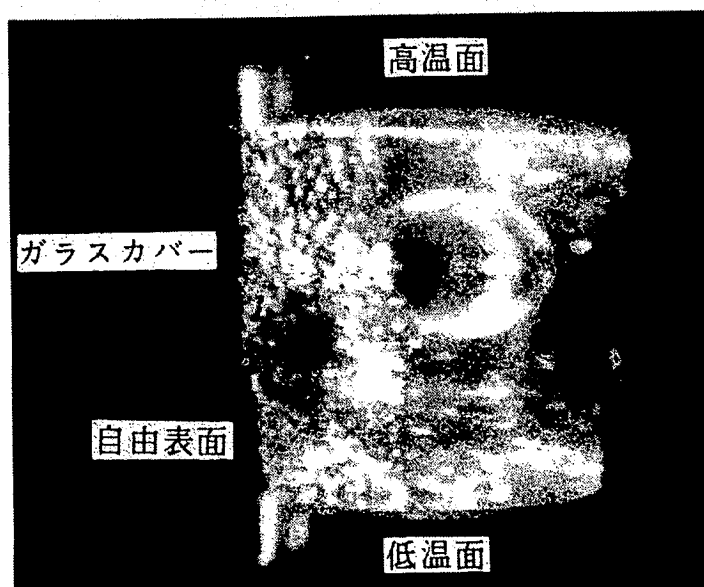
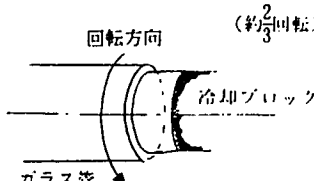
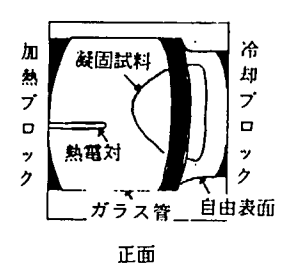


図 3.1.3-3 航空機実験で形成された液柱の可視化写真

表 3.2.2-1 ビデオ画像の観察結果 その1 (軌道上 2 日目の実験)

実験	MET	GMT	映像	実験操作	観察結果
1-1	1 13:28	258 3:51		実験スタート	<p>融解終了、自由表面は画面の範囲では見えない トレーサー、気泡の動き無し</p>
	1 14:05	258 4:28	スタート	カメラ視野調整	
1-2	1 14:38	258 5:01		追加ハンド操作	<p>自由表面形成 気泡が自由表面側へ移動</p>
	1 14:46	258 5:09	f		
	1 14:51	258 5:14	f		
1-3	1 15:18	258 5:41			<p>凝固開始と考えられる。</p> <p>約1/3が薄く 白くなる</p> <p>最初は境界の白い線が太くなりながら成長 その後は、後の薄い白い部分が大きくなり 成長</p> <p>自由表面の約$\frac{2}{3}$が凝固</p> <p>自由表面の全面凝固 (注) 自由表面形成後、気泡が正面画像 において徐々に下に移動</p>
	1 15:20:23	258 5:43:23			
	1 15:21:30	258 5:44:30			
	1 15:29	258 5:52			
	1 15:52	258 6:21			
	1 15:58	258 6:	終了		
				実験終了	

表 3.2.2-2 ビデオ画像の観察結果 その2 (軌道上 6 日目の実験)

実験	MEET	GMT	映像	実験操作	観察結果
融解	5 14:09	262 4:32	スタート	実験スタート	融解開始 ガラス管周囲及び加熱ブロック側
	5 14:10	262 4:33			空洞が融解して気泡が見える
	5 14:12	262 4:35			気泡が抜けて凝固試料が壁と接触せず、液体中に浮かんだ状態になる 但し、熱電対は凝固試料に差し込まれたままである
	5 14:18	262 4:41			凝固試料が液体中で回転した (約 $\frac{2}{3}$ 回転)
	5 14:19:30 f	262 4:42:30 f			
	5 14:22:30	262 4:45:00			
	5 14:32	262 4:55:00			凝固試料が液体中に完全に浮遊している 
2-1	5 14:39 5 14:58	262 5:02 262 5:21			融解終了と考えられる
2-2	5 15:19	262 5:42			
2-3	5 15:59 5 16:13 5 16:20	262 6:22 262 6:36 262 6:43	終了	実験終了	実験-3とほぼ同じ凝固現象が発生した

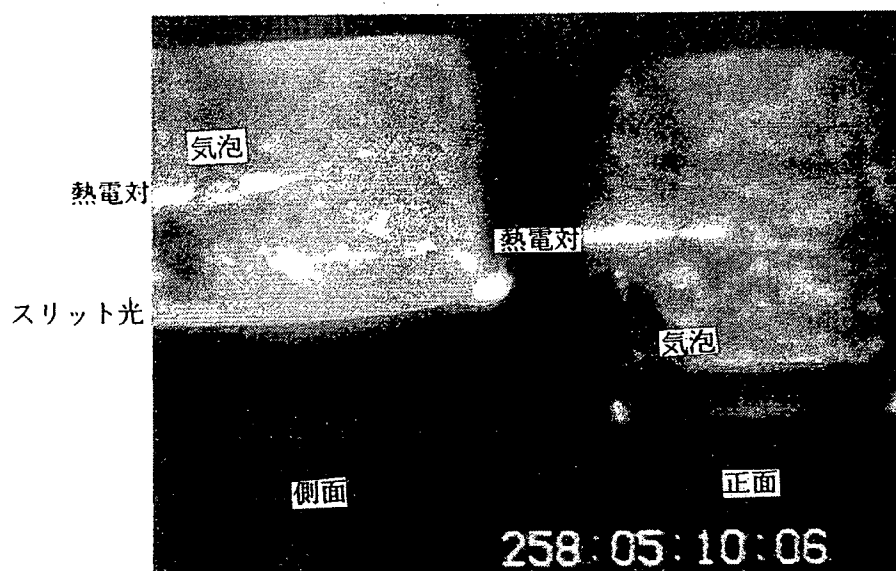


図 3.2.2-1 可視化画像 その1 (自由表面未形成)

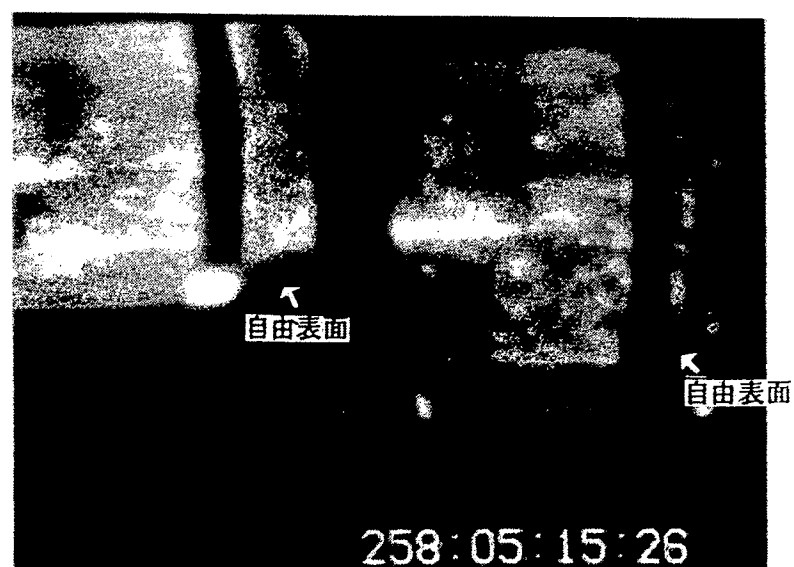
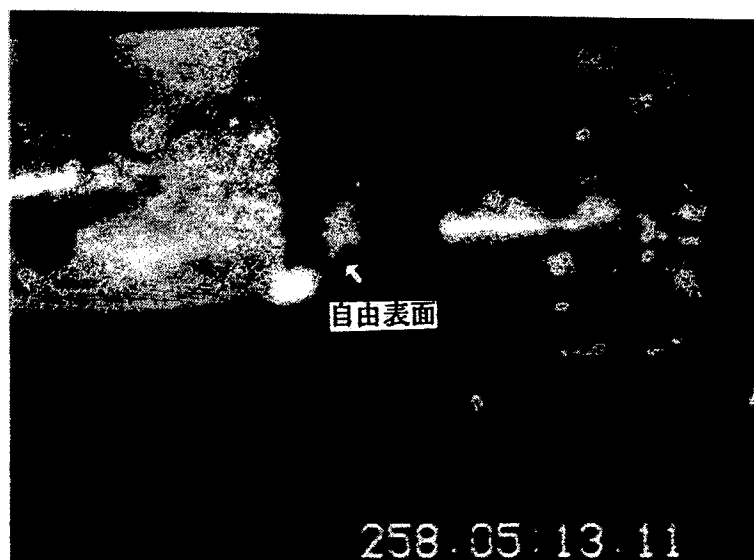
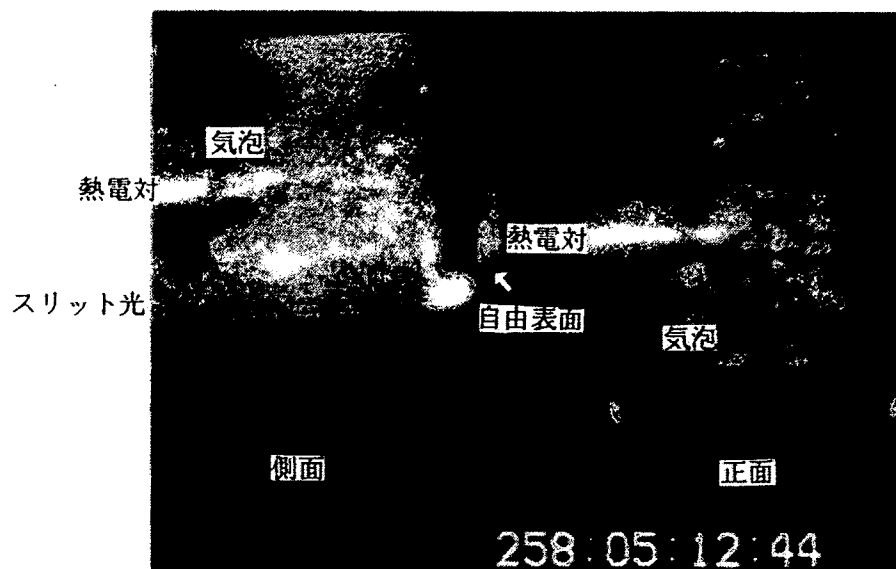


図 3.2.2-2 可視化画像 その2 (自由表面の形成過程)

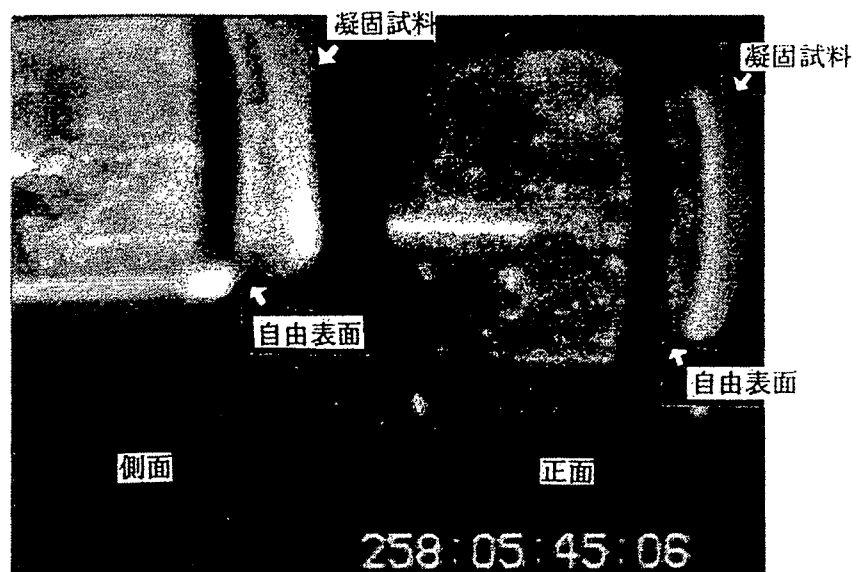


図 3.2.2-3 可視化画像 その3 (凝固過程 その1)

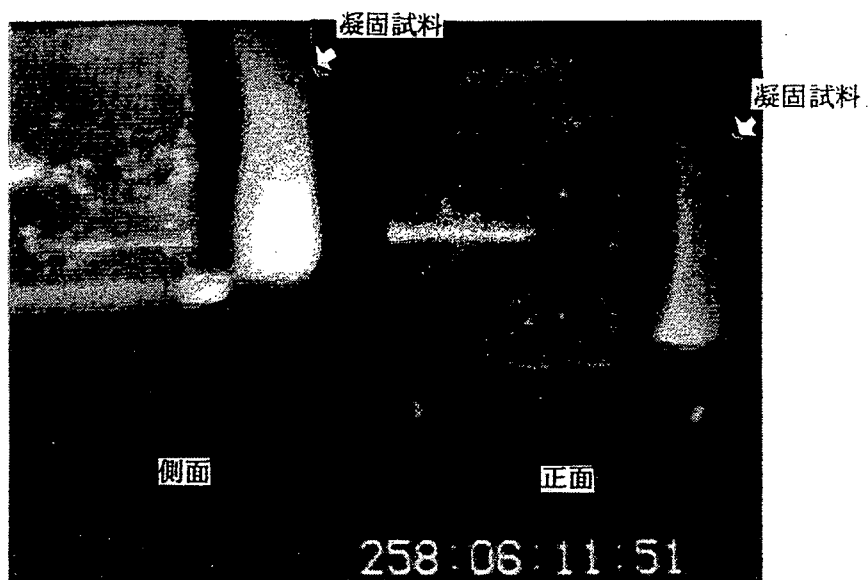


図 3.2.2-4 可視化画像 その4 (凝固過程 その2)

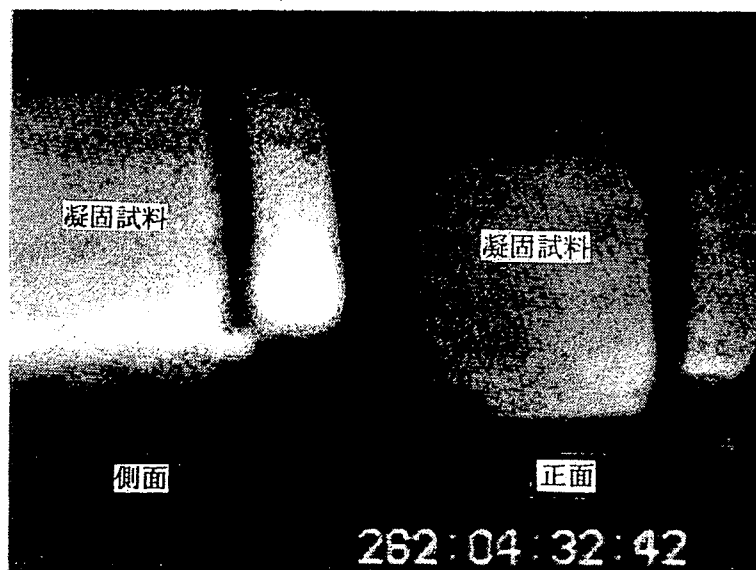


図 3.2.2-5 可視化画像 その5 (完全凝固状態)

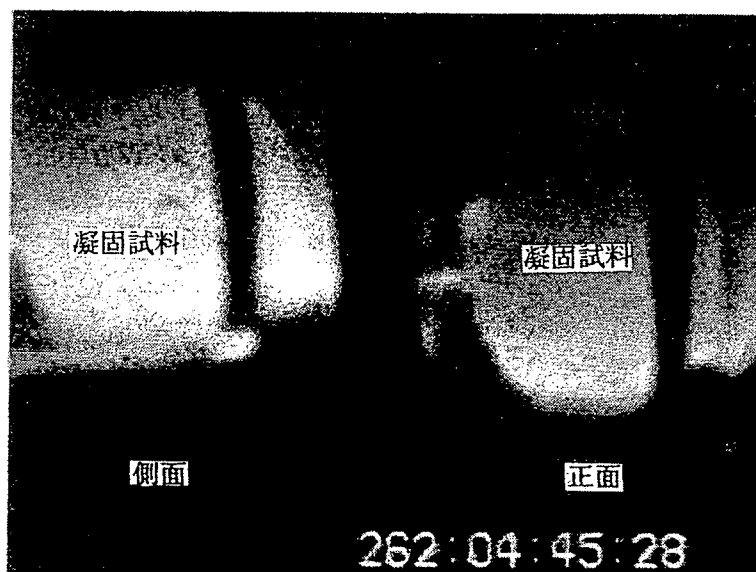


図 3.2.2-6 可視化画像 その6 (融解過程)

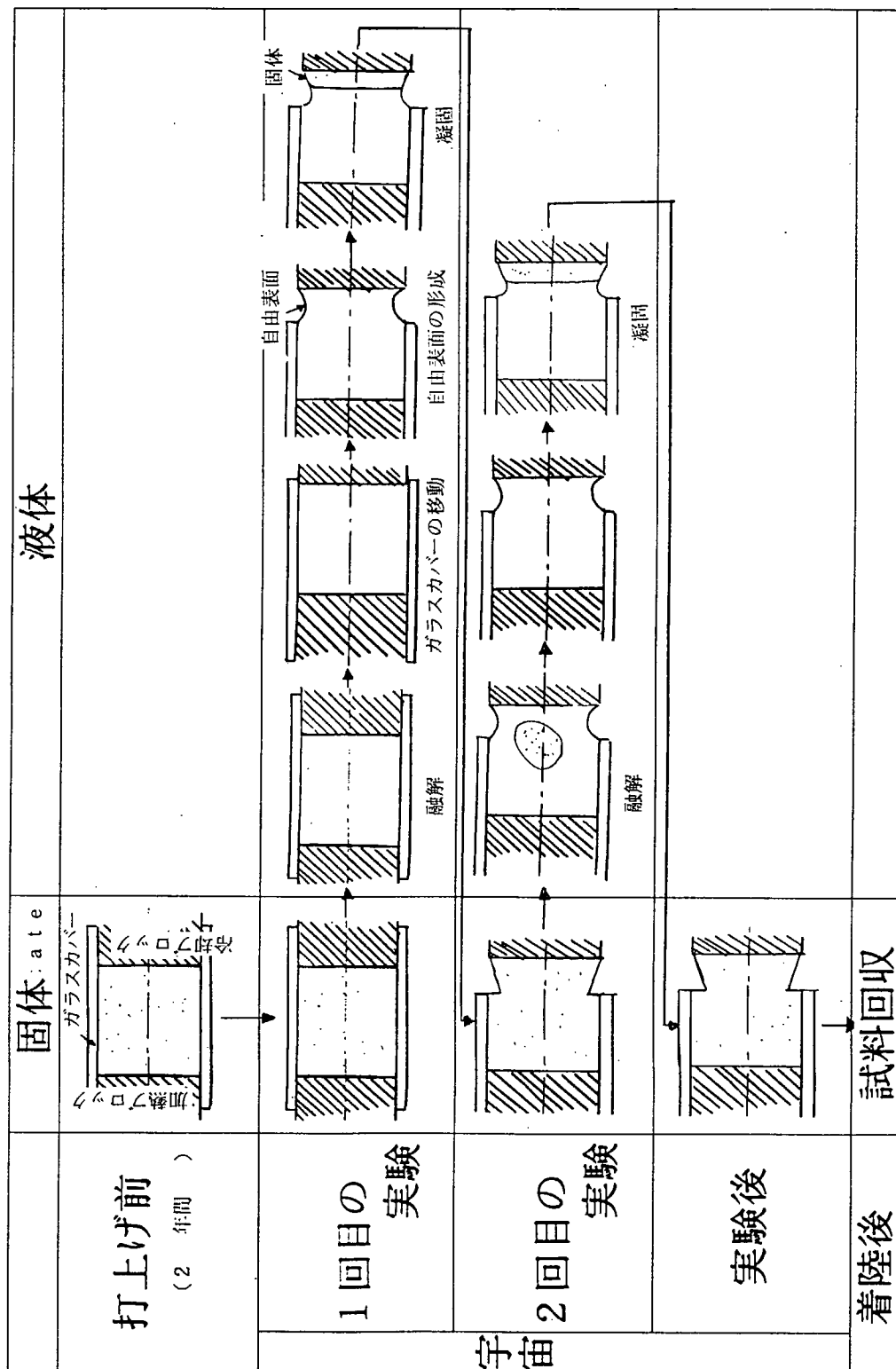


図 3.2.2-7 軌道上実験の実際のシーケンス

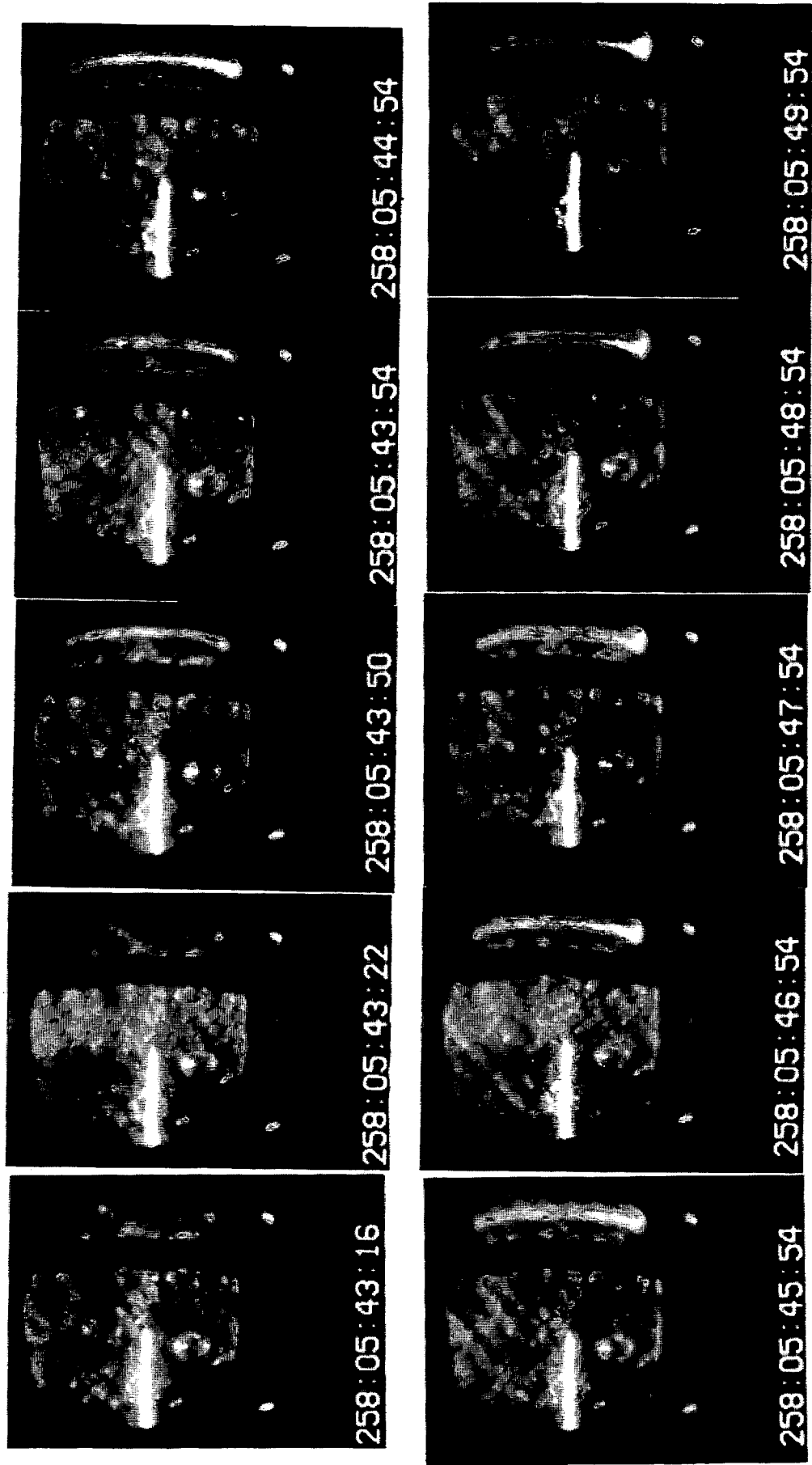
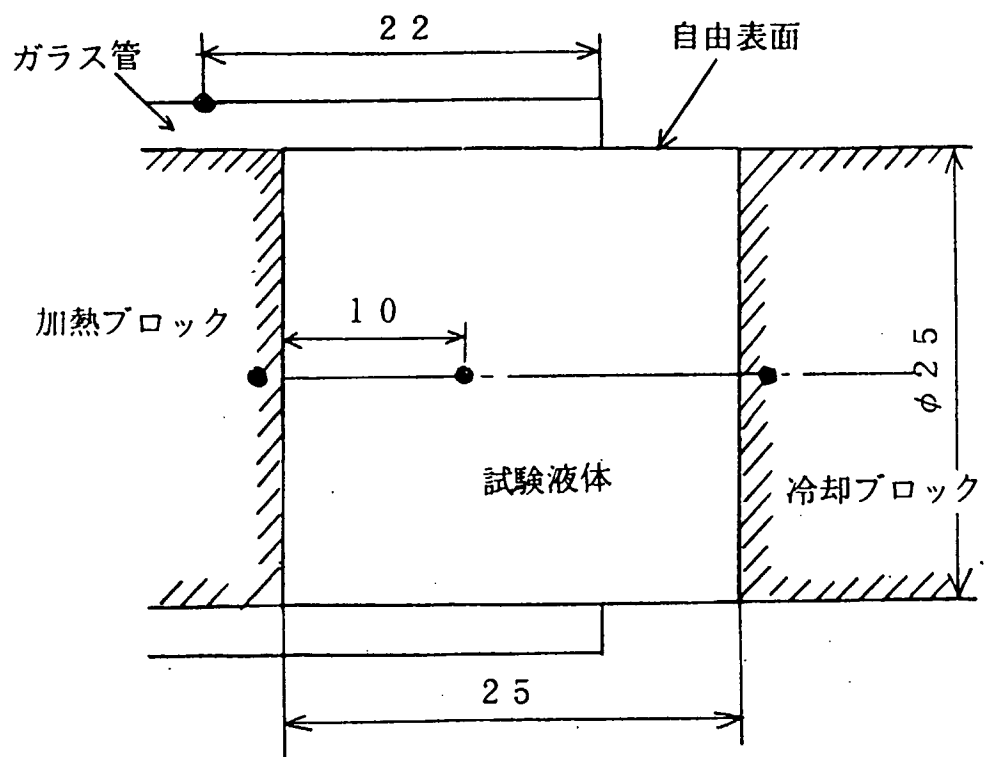


図 3. 2. 3 - 1 可視化画像 その 7 (凝固過程の連続写真 - 正面画像)



● 熱電対

図 3.2.4-1 温度測定位置

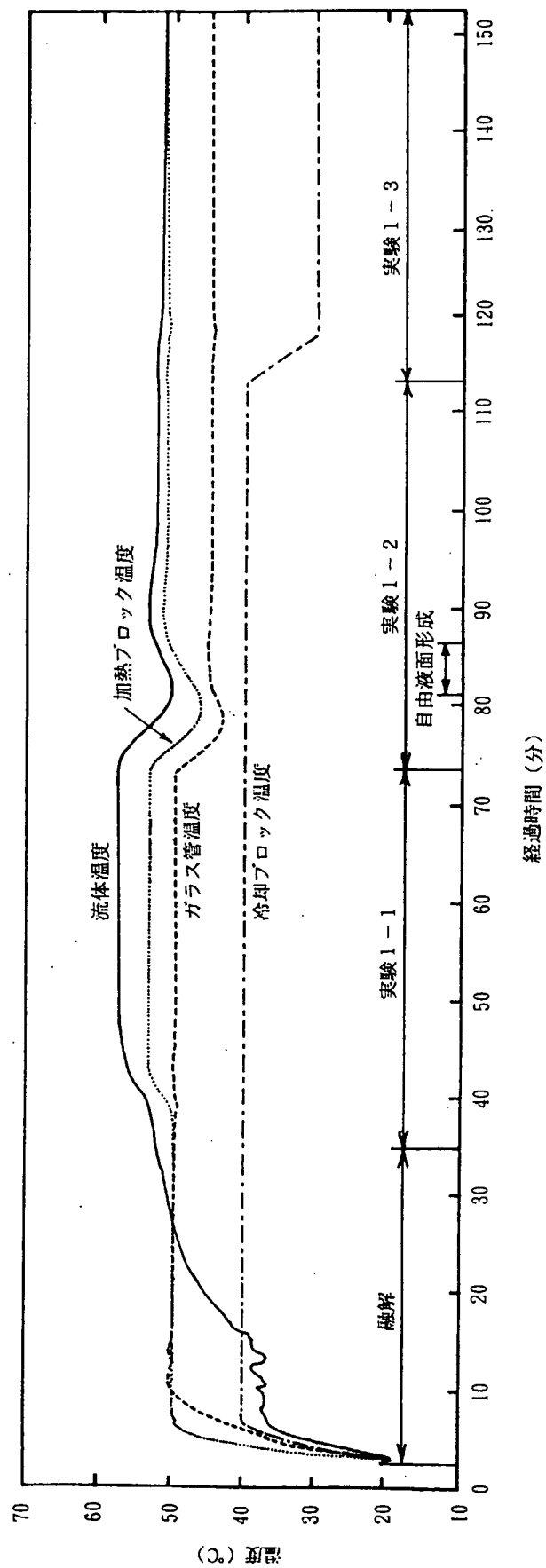


図 3.2.4-2 温度測定結果 その 1 (軌道上 2 日目の実験)

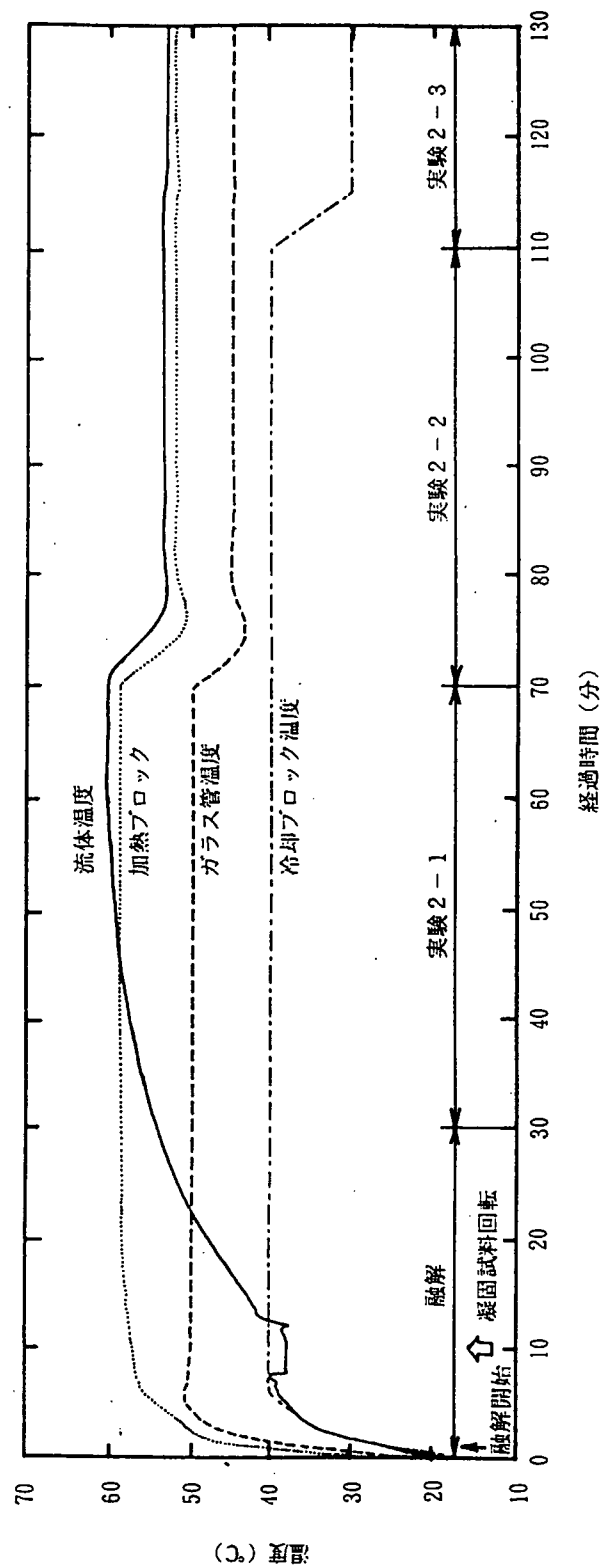


図 3.2.4-3 温度測定結果 その 2 (軌道上 6 日目の実験)

SAMS SPACE ACCELERATION MEASUREMENT

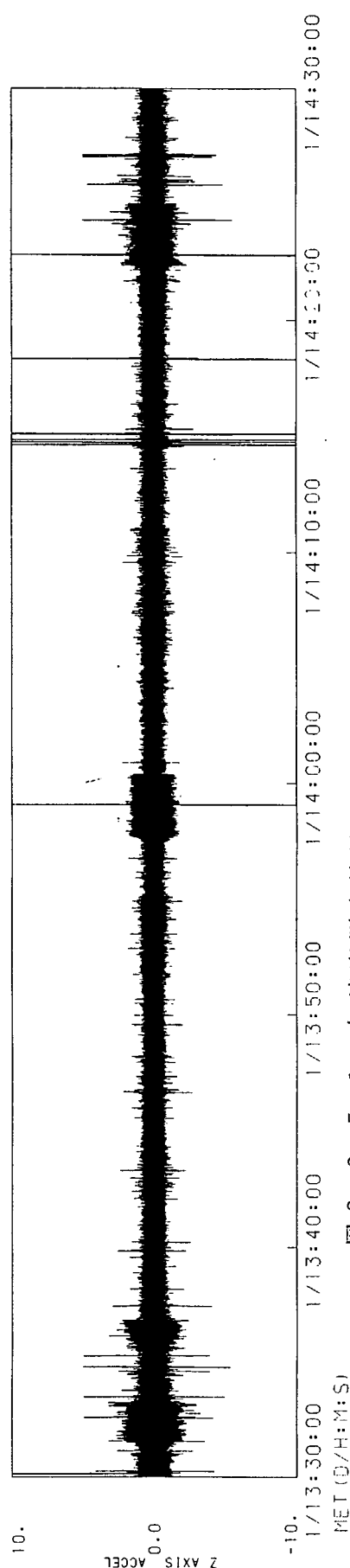
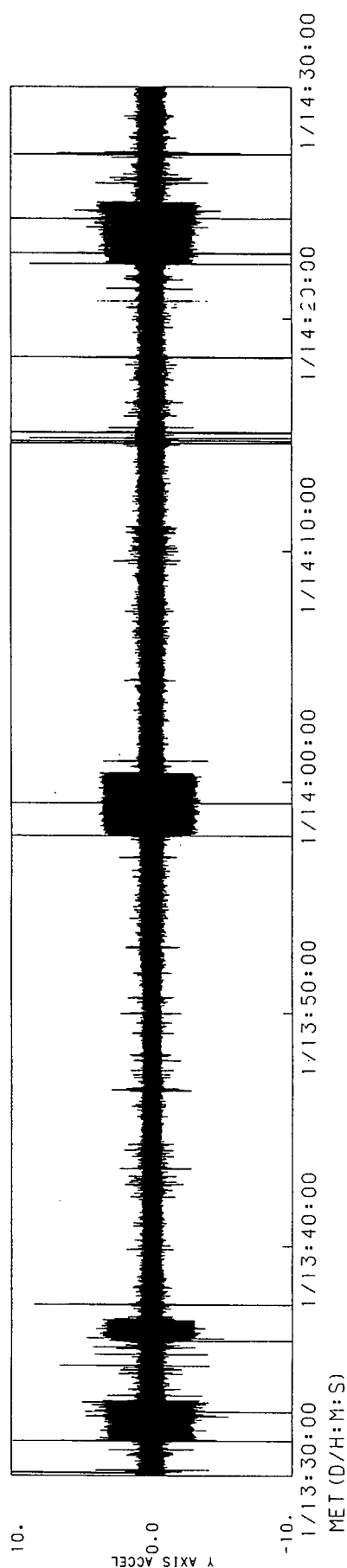
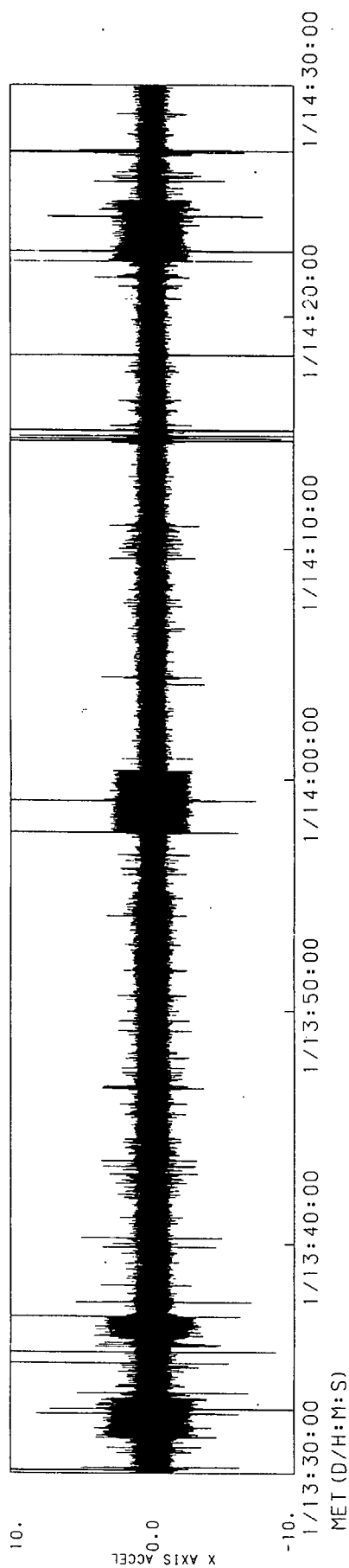
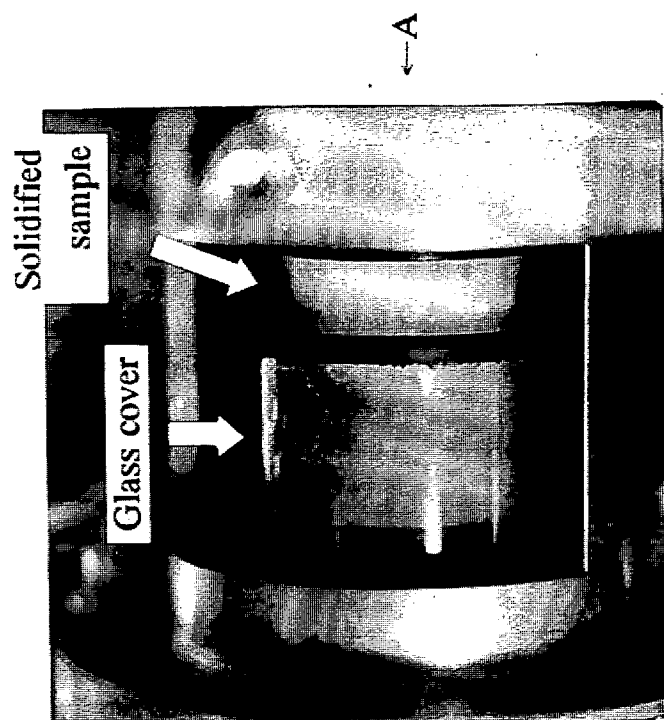
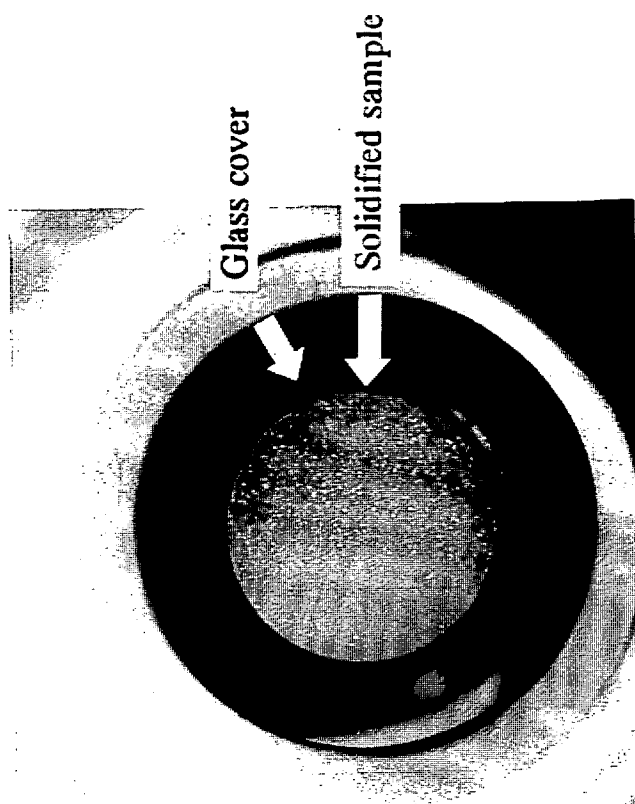


図 3.2.5-1 加速度測定結果の例 (軌道上 2 日目の実験)

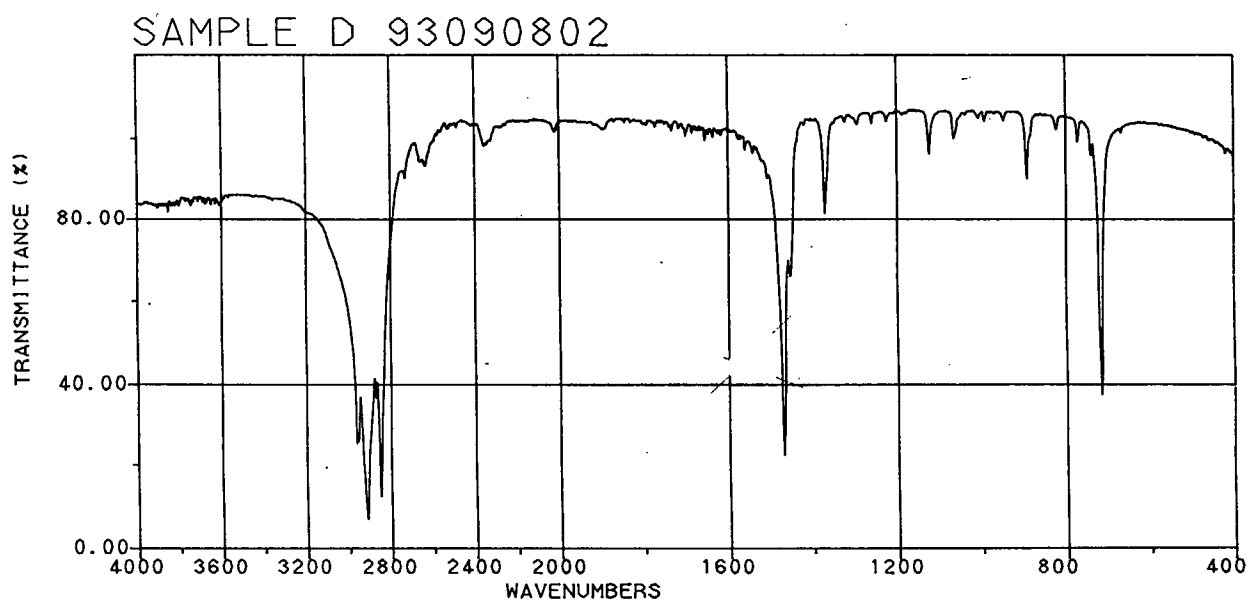


(a) 全体の試料の形状

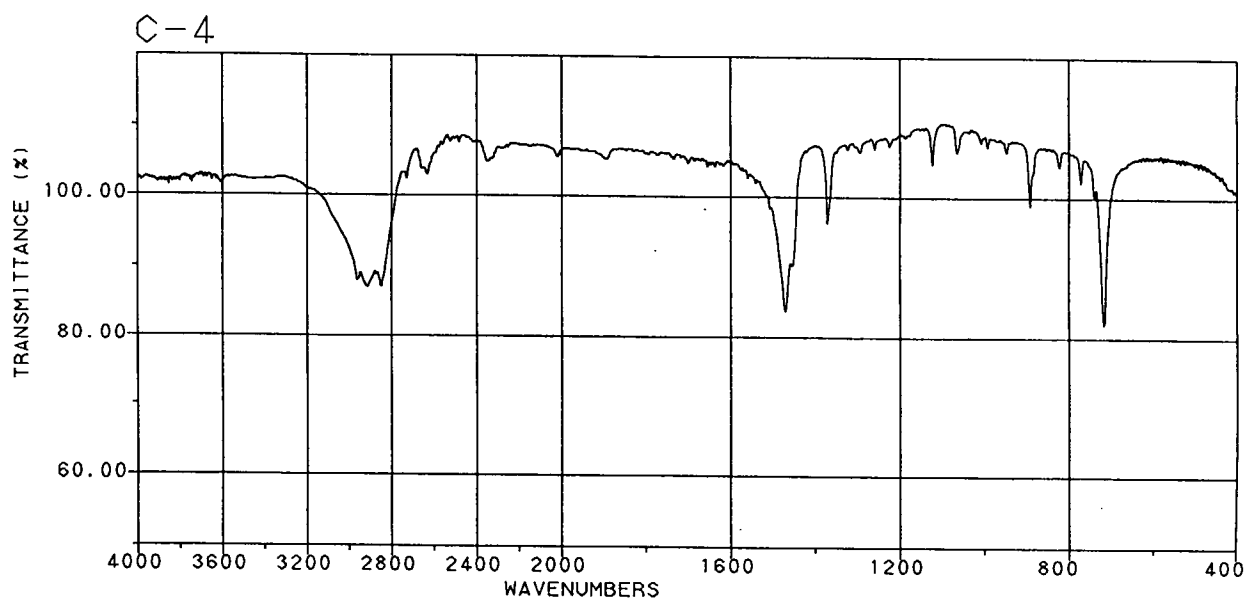


(b) 冷却ブロック側の試料の断面 (A 方向)

図 3.3.3-1 回収された試料の写真



(a) 変質のない試料 (対照試料)



(b) フライト試料

図 3.3.3-1 試料の赤外透過法による成分分析結果

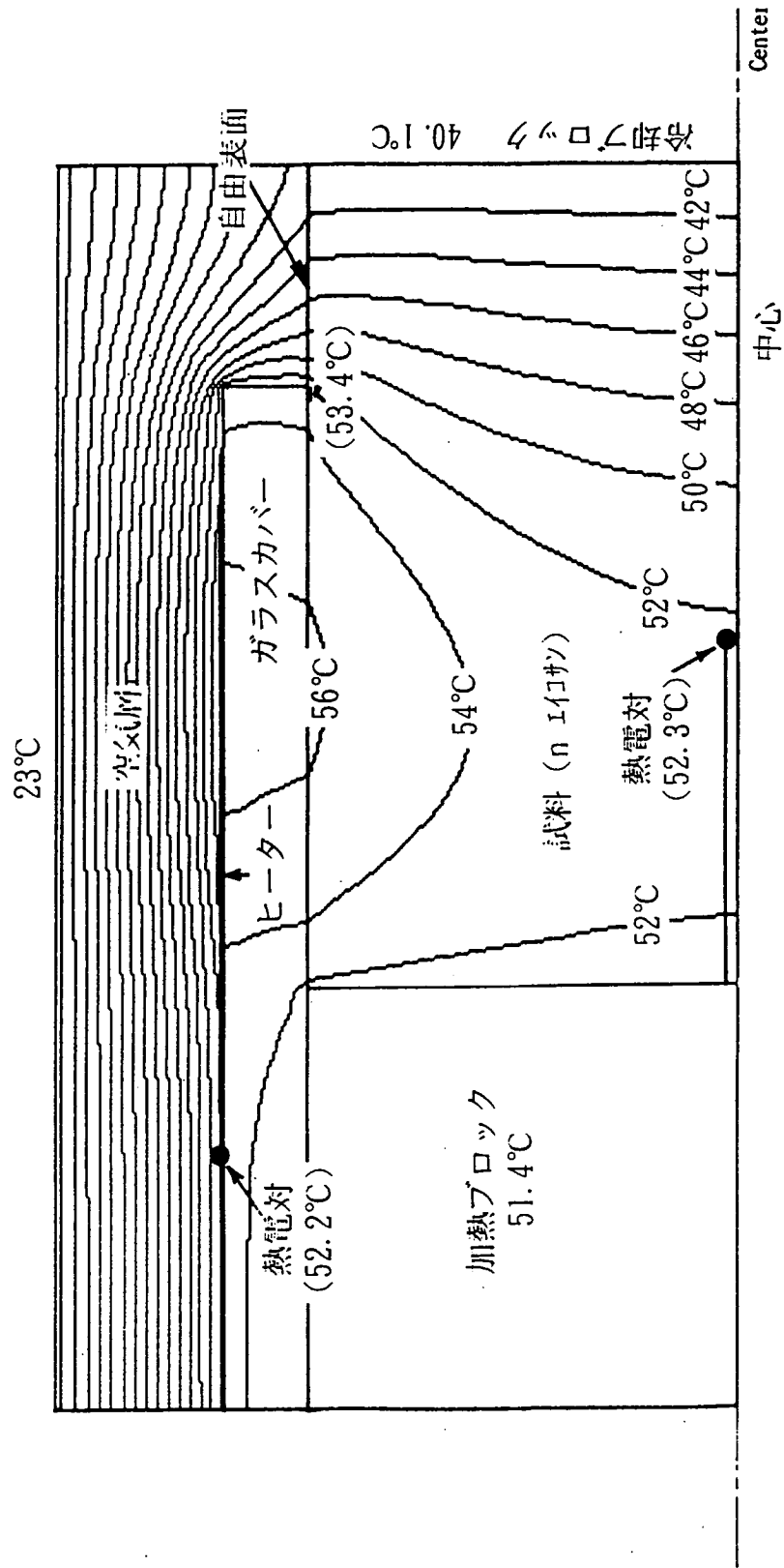
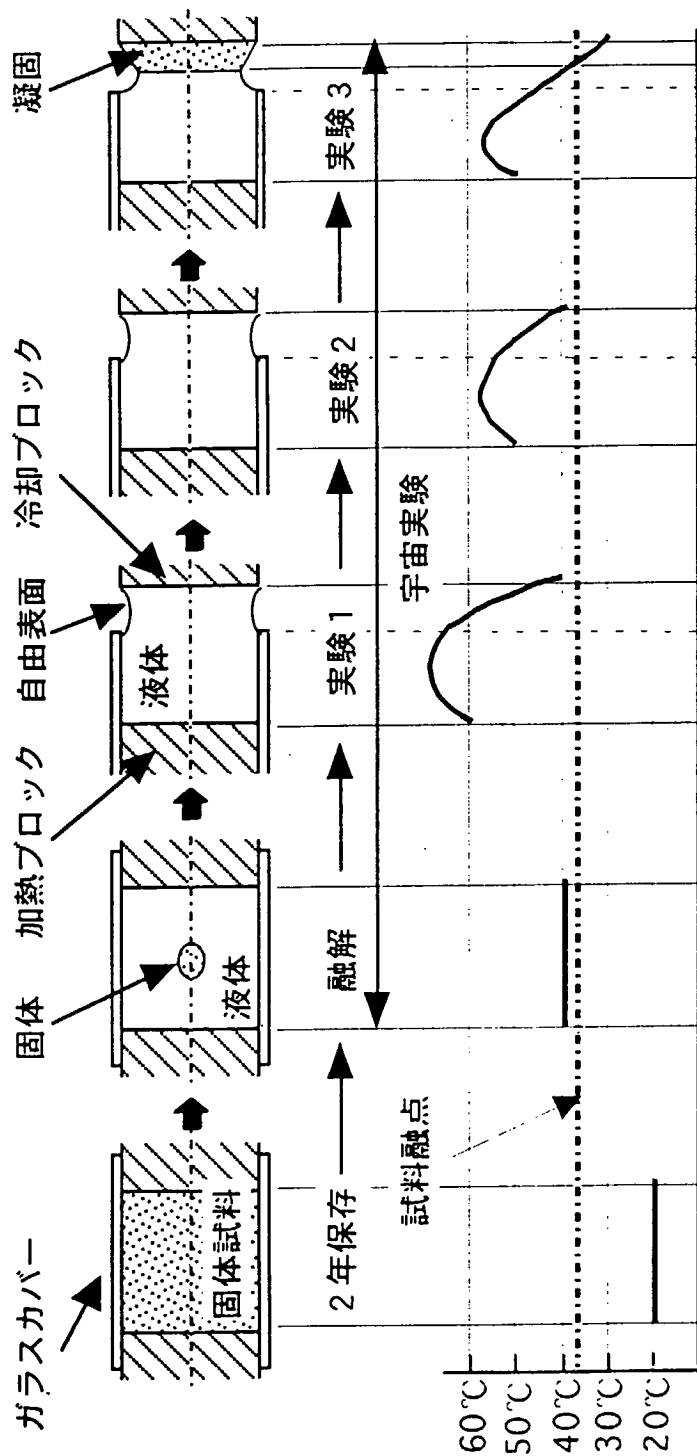


図 4.1.1.1-1 装置内の温度分布の推定結果（等温線）



液柱表面の温度分布

図4.2-1 液柱内の軸方向の温度分布の推定結果

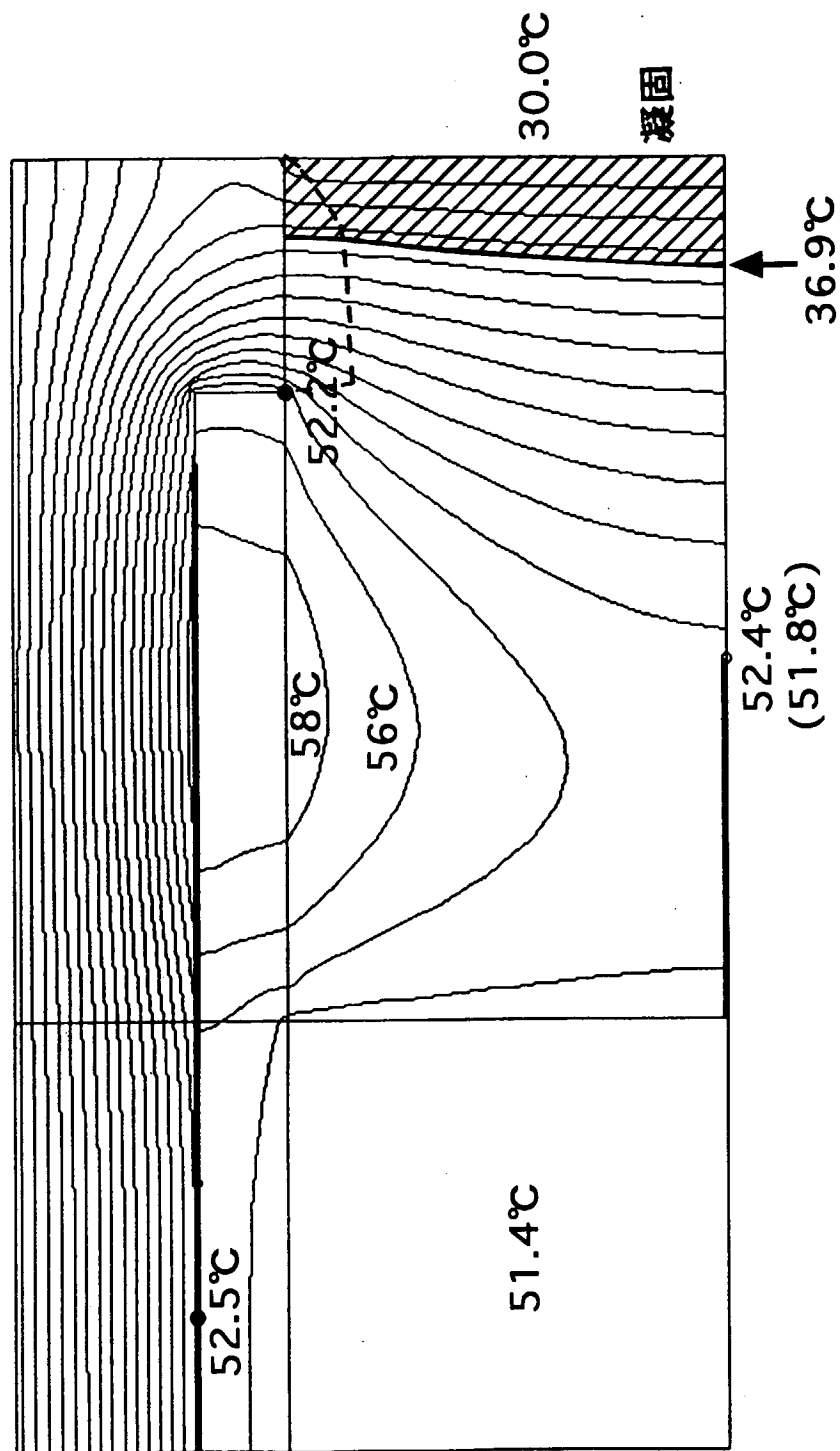


図 4. 2 - 2 凝固時の温度分布の推定結果 (等温線)

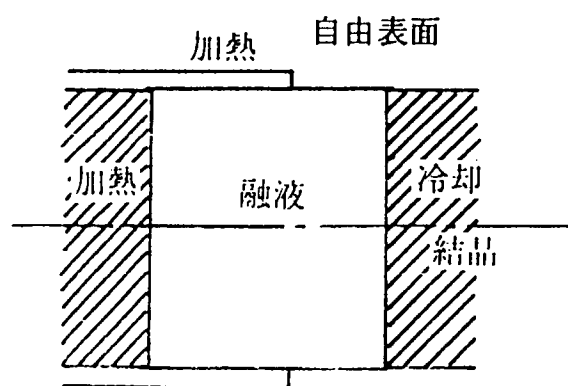


図 4.3.1-1 シミュレーションで用いたモデル

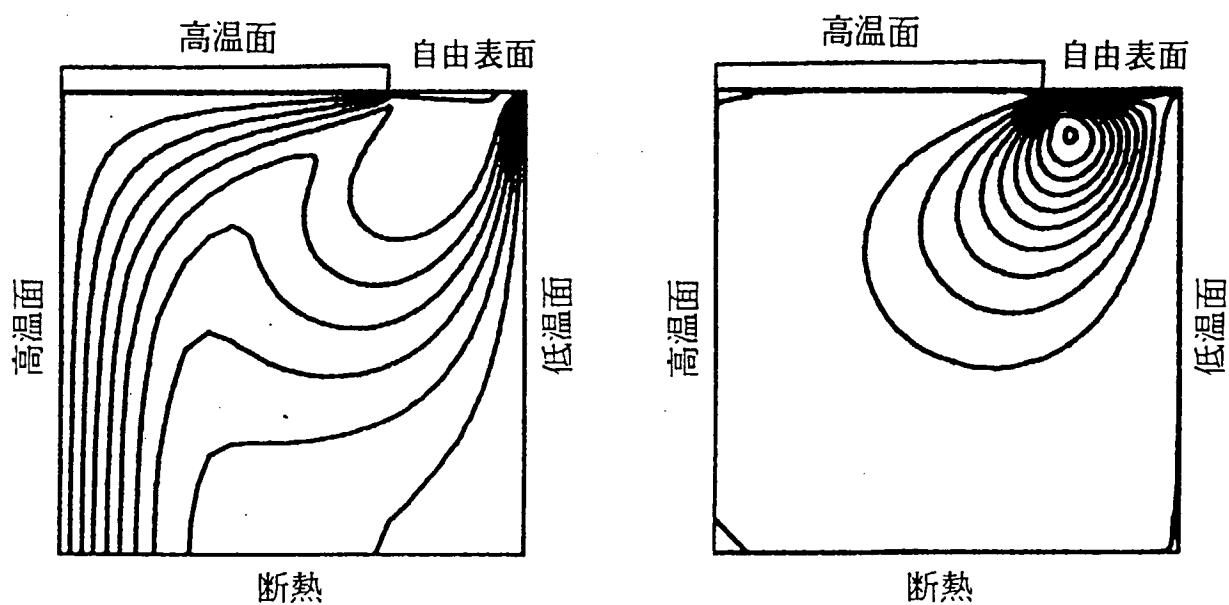


図 4.3.1-2 計算結果 その 1 (等温線と流線)

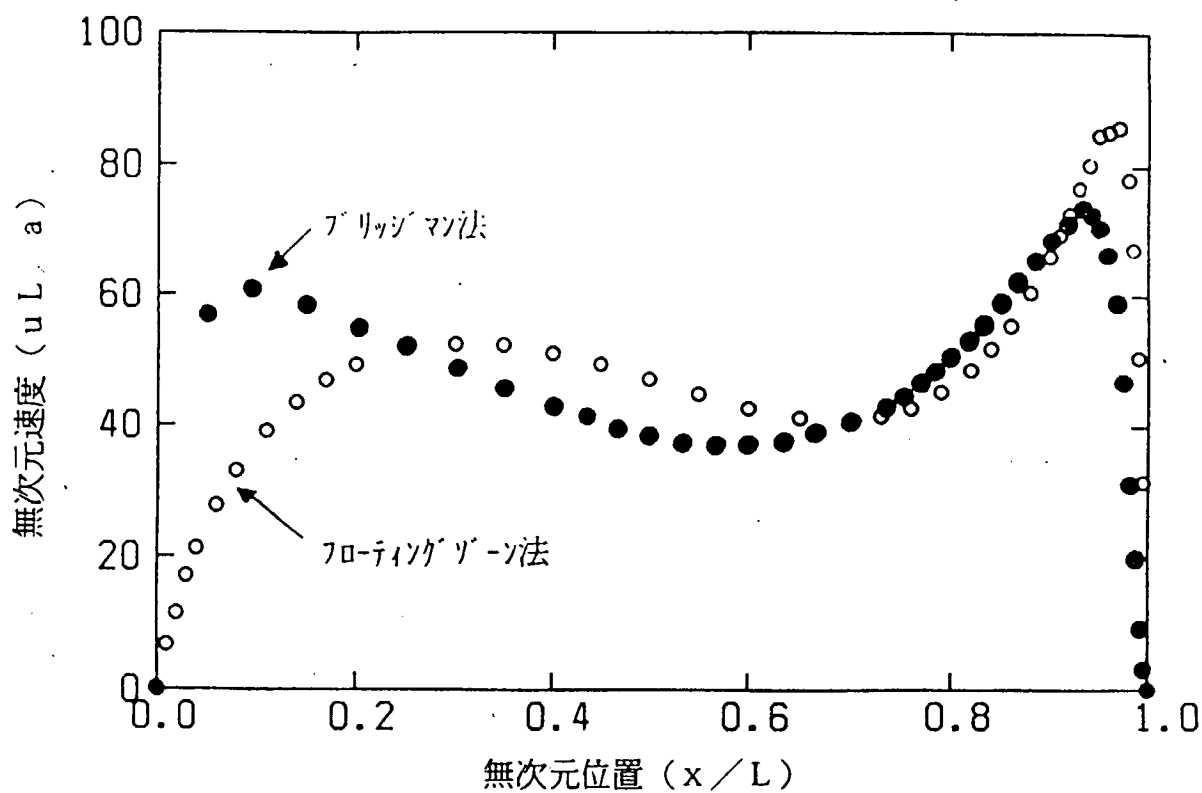


図 4.3.1-3 計算結果 その 2 (自由表面上の速度分布)

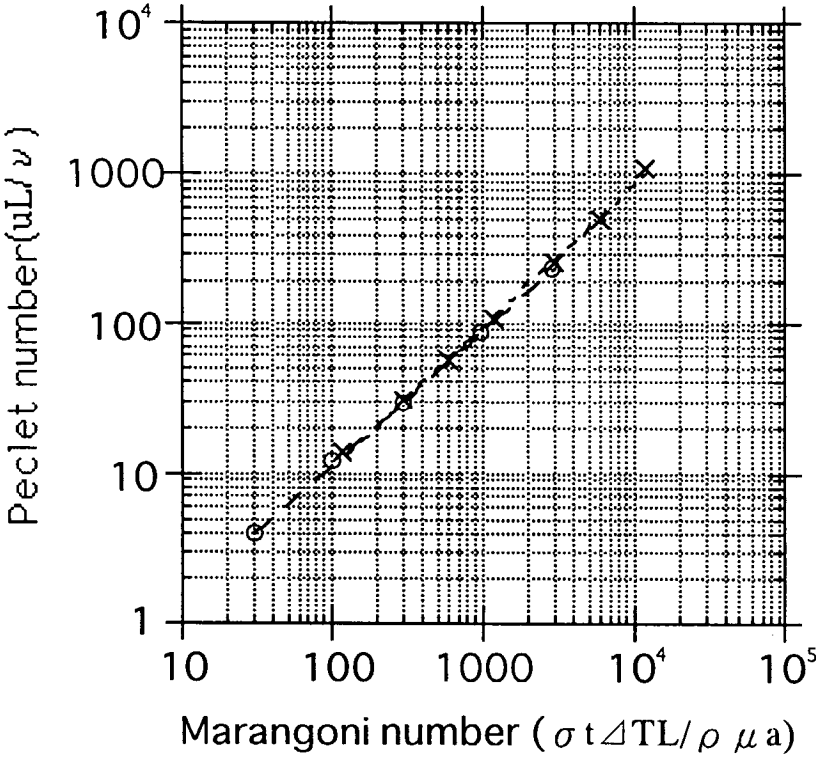
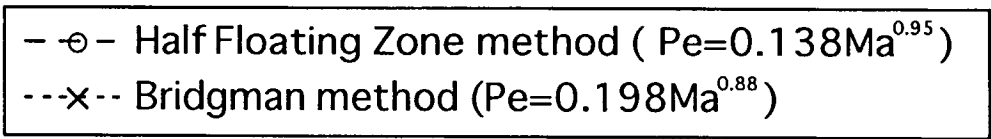


図 4 . 3 . 1 - 4 計算結果 その 3 (自由表面上の最大流速の変化)

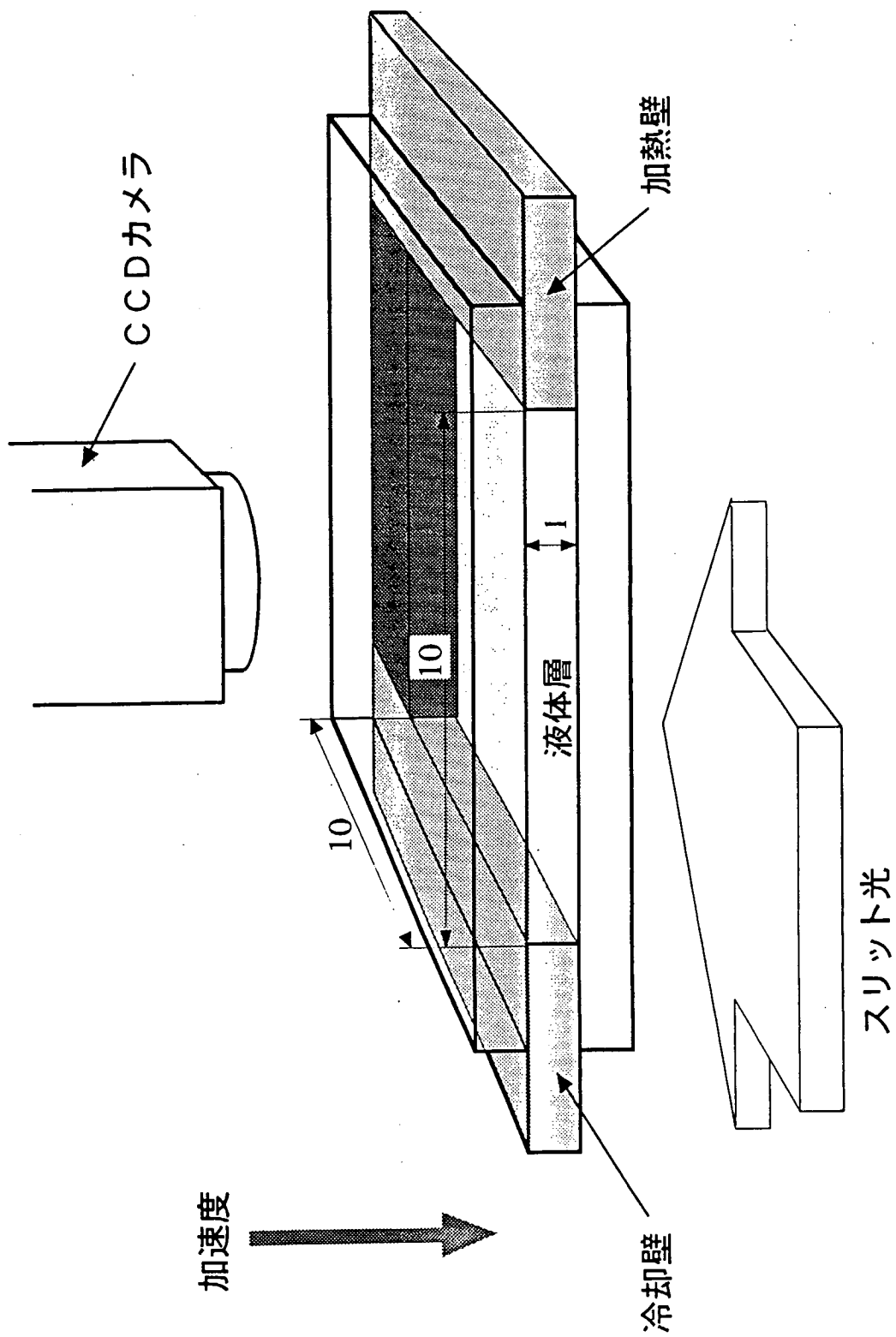
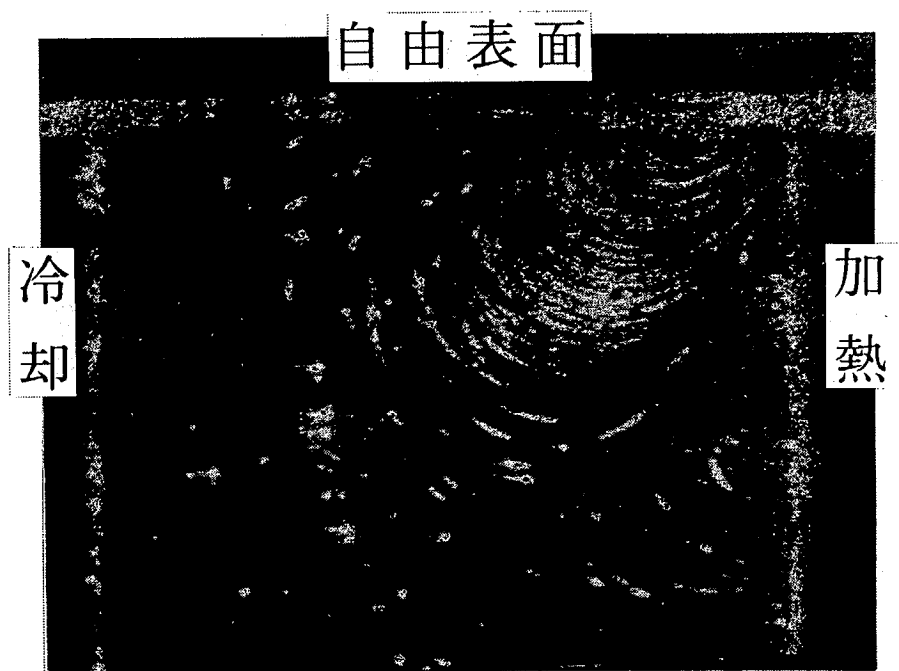
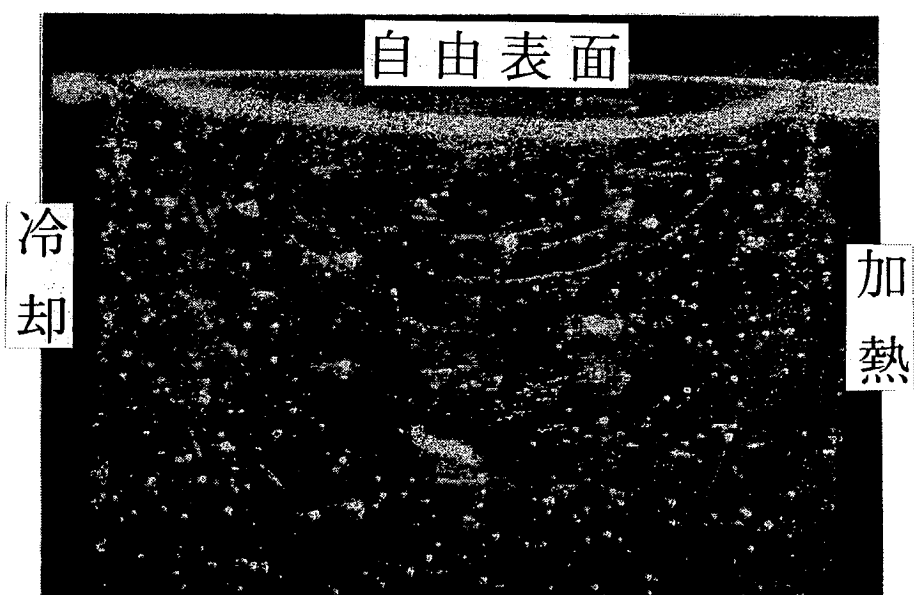


図 4.3.2-1 地上における微小流動模擬実験セルの概要



(a) 一部で流動発生



(b) 全体で流動発生

図 4 . 3 . 2 - 2 地上実験結果 その 1 (可視化写真)

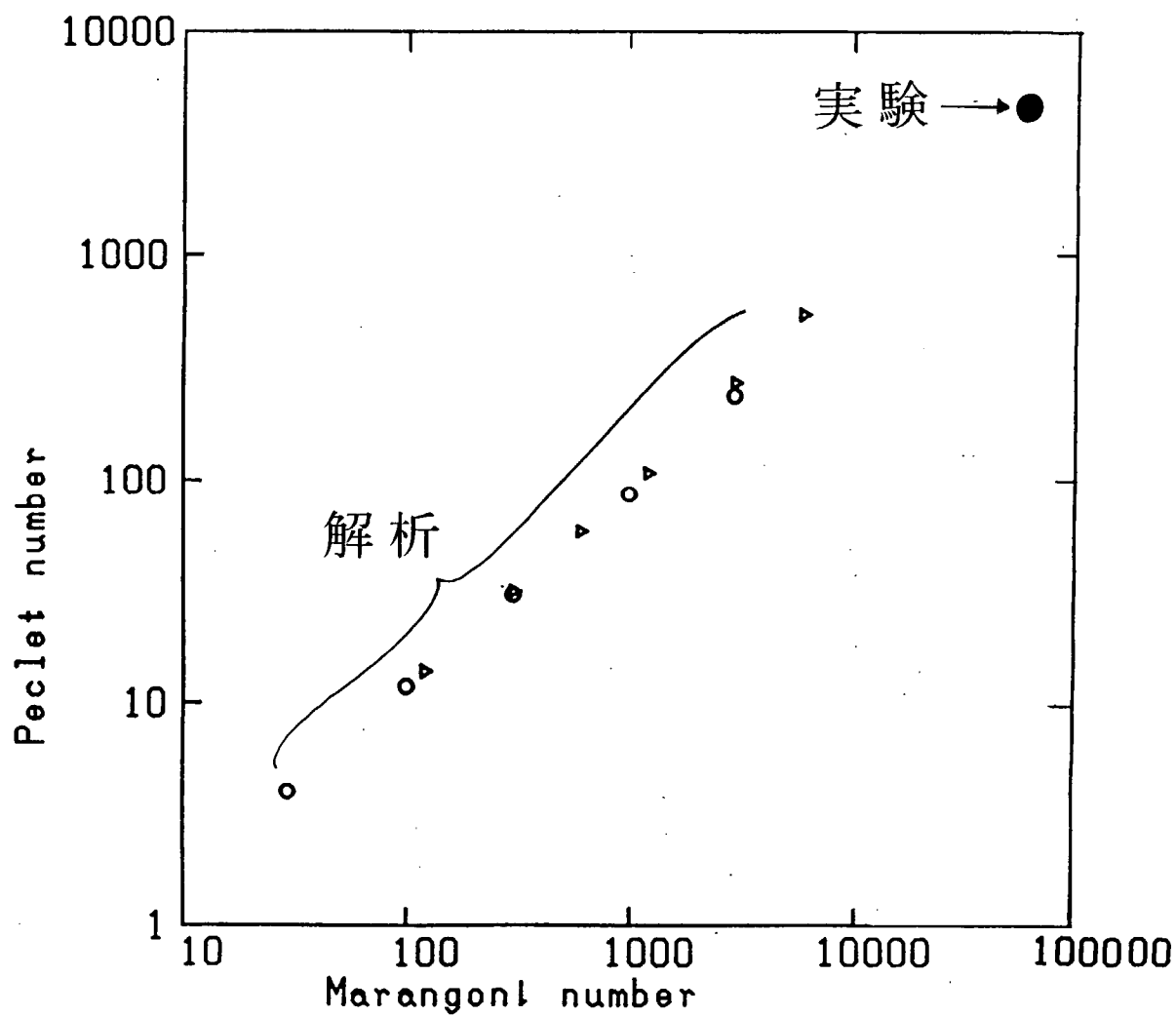


図 4.3.2-3 地上実験結果 その2 (自由表面の最大流速)