

1. 実験テーマ

気泡表面における氷核形成の”その場”観察

In-situ observation of ice crystal nucleation at bubble surfaces

2. アブストラクト

(英文(250 ワード程度)、和文併記)

Heterogeneous nucleation is dominant under gravity condition. The heterogeneous nucleation could start at dusts or fine crystal particles. So far investigation has been conducted for solid particles. However bubbles in liquid should also be responsible for the heterogeneous nucleation. However no such work about the effects of bubble on nucleation have not been done because of the movement of bubbles due to the density difference between bubbles, liquids and crystals. In microgravity this movement of bubbles in water could be suppressed and the detail observation at the interface will be possible. We will study the crystallization of water. Simple optical in-situ observation system to see the start of crystallization at the bubble surfaces will be used. To make variety of bubble size, we have three different methods. Before the flight, one of these methods will be chosen based on laboratory experiments. The temperature will be controlled using a thermo-module for a very thin crystallization cells, so that temperature reaches large supercooling regimes in a short time after the start of microgravity. If possible, we want to see some other effects like effect of latent heat due to crystallization of ice on the Marangoni flow, which again would lead to new crystallization in the style of a avalanche.

結晶の核形成は均質核形成と不均質核形成の二つに分けられる。よく知られているのは、埃や微結晶を中心に発生する不均質核形成である。これまで不均質核形成の研究は固体粒子による不均質環境での研究が中心だった。一方、液中に含まれる気泡もこの不均質核形成の原因となるが、詳しい研究は行われていない。その理由は、気泡と結晶・液体の間に密度差があり動いてしまうためにその核形成を詳しく観察するのが難しいからである。微小重力下においては、この問題は解決され気泡表面での核形成、結晶成長を容易に観察できることが期待できる。したがって、本研究では過冷却水に含まれる気泡からの核形成を光学的な方法で“その場”で観察し、核形成の条件依存性を調べることを目的とする。気泡を水中に入れる方法は3つの方法を考えている。フライト前の地上実験の結果により、その中からひとつの方法を選択する。薄い結晶化セルを作成し、ペルチェ素子でその温度をコントロールする。ペルチェ素子を用いることにより、微小重力条件下に達した直後に水を過冷却状態まで急冷することができる。また、可能ならば、微小重力下で顕在化する他の現象が結晶の晶出に与える影響についても同時に観察したい。他の現象とは、例えば表面張力による対流であるマランゴニ対流や、液体から固体への状態変化の際に発生する潜熱などである。例えば潜熱が発生して結晶がいったん融けてもその場にマランゴニ対流が発生していると、そこから雪崩式に再び結晶化が進むことがある。

3. 実験の目的・概要

(実験のねらい、その基本となる仮定、期待する成果などを記載してください)

<目的>

超音波を利用して気泡を発生させ結晶化を促進することが工業晶析の世界で研究されているが、その詳しいメカニズムなどは分かっていない。一般に、重力下の核形成の原因として、容器の壁面や溶存する不純物質粒子などからの不均質核形成が考えられ、溶存する気泡表面も不均質核形成の原因のひとつになっている可能性がある。しかし、これまでそれを証拠だてる実験がなかったため、今回はその検証を実験の目的とした。この実験では、微小重力下で静止している気泡表面での結晶核形成状態を観察し、気泡の存在が核形成を助長するかどうか、また助長するとしたら気泡表面のどこで核形成するかを調べる。

<原理>

●均質核形成と不均質核形成●

一般に、融液の温度を少しでも過冷却にすれば結晶がただちに晶出し、成長していくと考えられている。しかし現実には融液の過冷却度が小さいと、結晶はなかなかあられない。これは核形成が発生するためには越えなければいけない障壁エネルギーがあることによる。

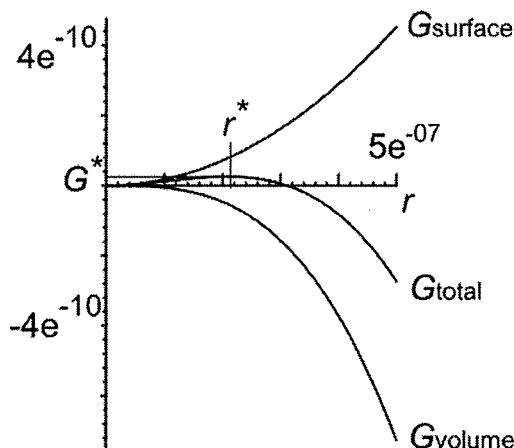
結晶の核となる粒子集合体の表面は自由エネルギーの増加をもたらすのに対し、内部は自由エネルギーの現象をもたらす。表面エネルギー(G_{surface})と内部エネルギー(G_{volume})の和は、核形成した場合の自由エネルギー (G_{total}) であり、核半径 (r) との関係は[図 1]のようになる。

図中の G^* は過冷却液の自由エネルギーである。この図をみると、結晶核が十分に大きければ過冷却液体より自由エネルギーが小さくなる。つまり液相よりも結晶相の方が安定な熱平衡状態になることがわかる。 G_{total} が極大になるときの R^* を臨界核半径という。臨界核（臨界半径をもつ核）より大きなクラスターが生成されてはじめて準安定相の中に安定な結晶の芽が生まれた、つまり核形成がおこったとみなせる。

液体中に濡れ性の良い界面があるとき、例えば不純物が入っているときや、容器壁面の濡れ性がいいときなどのことを考える。このとき結晶核の一部が界面と接触していれば表面エネルギーが小さくてすむ。このように不純物や壁などの助けを借りて核形成する場合を不均質核形成といい、完全に均質環境下での核形成を均質核形成という。均質核形成は R^* が大きく、不均質核形成よりも起こりにくい。

上の理由から気泡表面も良い不均質核形成の場となることが予想される。本実験では、気泡の助けをかりて起こる結晶の核形成の様子をビデオで詳細に記録し、気泡のどこで、どのような過冷却条件で生じるかを考えたい。

可能ならば、核形成過程における潜熱が誘発する流れの影響も考慮して観察を行いたい。潜熱とは液体が固体に状態変化する際に発生する熱であり、本実験で用いる水は液体の中でも特に潜熱が大きい物質である。



[図1 :核形成の自由エネルギーと核半径]

4. 実験内容の区分

物理

5. 実験手順

(予想される実験手順・操作を記載してください。)

(観察・測定項目とその手段、試料の種類・名称もできるだけ具体的に、可能であれば化学物質に関する国連番号または CAS 番号を記載してください)

本実験では液体中で気泡が結晶化する様子の観察をおこなう。実験装置の概略を図1に示す。結晶化セルは液体、ガラス板、ペルチェ素子の三層からなる。ペルチェ素子およびガラス板の上下には観察窓を設け、凝固する様子を顕微鏡で観察し、同時にカメラで記録する。観察窓には厚さ約 0.2mm のカバーガラスを用いる。

実験1

1. 結晶化セルに気泡が入らないように注意しながら水を注入する。
2. 微小重力状態の開始と同時にシリンジで大きな気泡を注入する。
3. ペルチェ素子で温度を急速に下げる。急冷のために、結晶化セルの厚さは 0.5mm 程度とする。
4. 液中の温度をガラス板とペルチェ素子の間の温度計で測定し、時間変化とともに記録する。

実験2

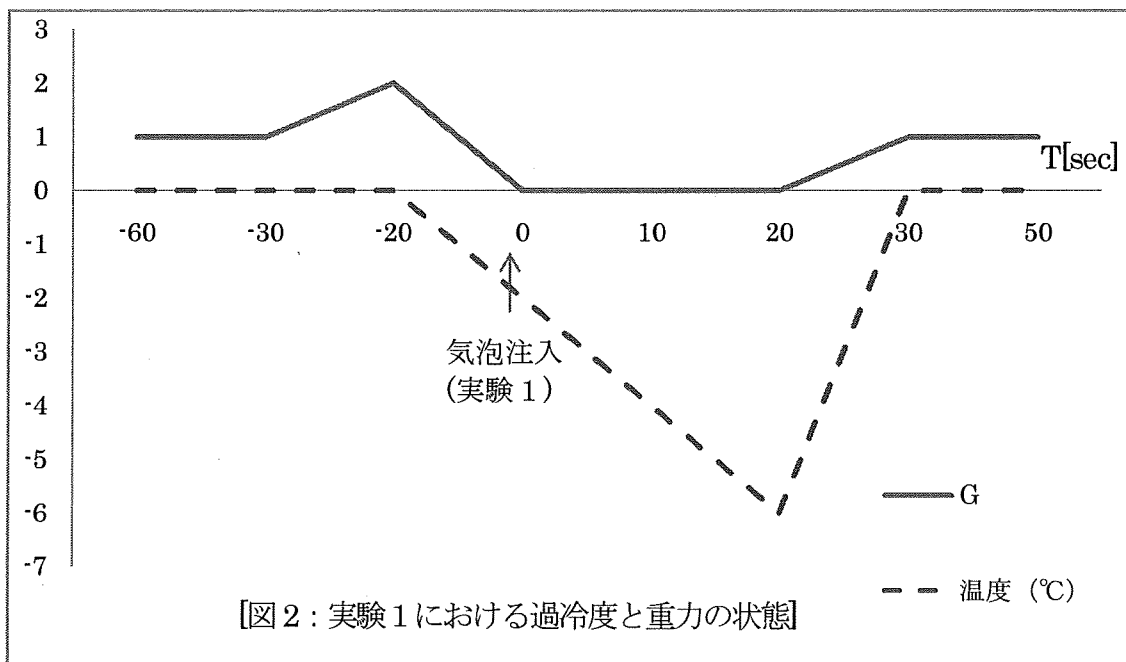
1. 気泡を観察窓に固定するために、カバーガラスにドット状にテフロン膜を作成し、ぬれ性を低下させておく。
2. 前述のカバーガラスを観察窓に用いて結晶化セルを組み立てる。
3. 水をセルに注入する。このとき、多数の小さな気泡が観察窓に固定されていることを確かめる。
4. ペルチェ素子で液体を急冷する。実験1と同様、結晶化セルの厚さは 0.5mm 程

度とする。

5. 液中の温度を測定し、時間変化とともに記録する。

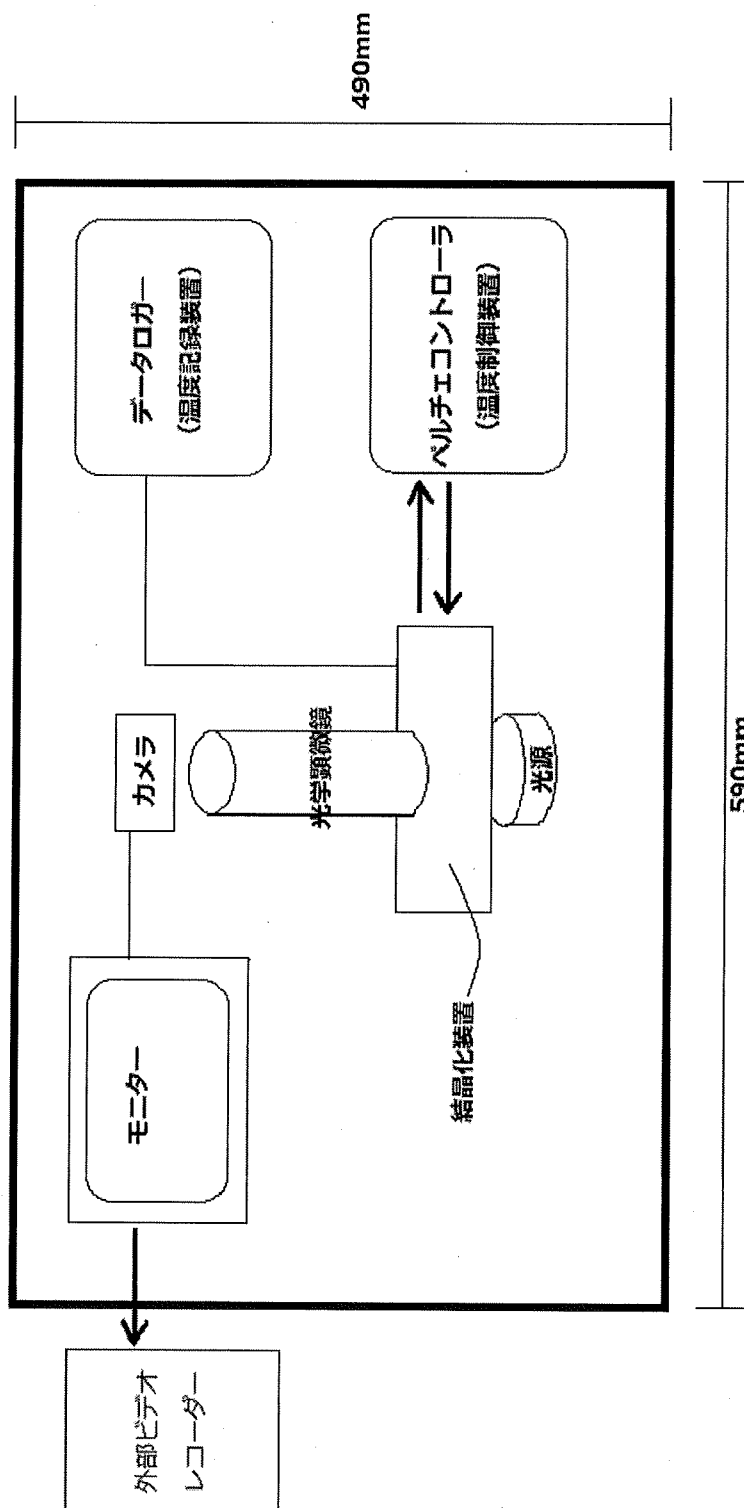
実験3

1. 結晶化セル中に電極を入れる。
2. 結晶化セルに気泡が入らないように注意しながら水を注入する。
3. 微小重力状態の開始と同時に電流を流し電気分解によって水全体に多数の小さな気泡を発生させる。
4. ペルチェ素子で液体を急冷する。実験1と同様、結晶化セルの厚さは0.5mm程度とする。
5. 液中の温度を測定し、時間変化とともに記録する。

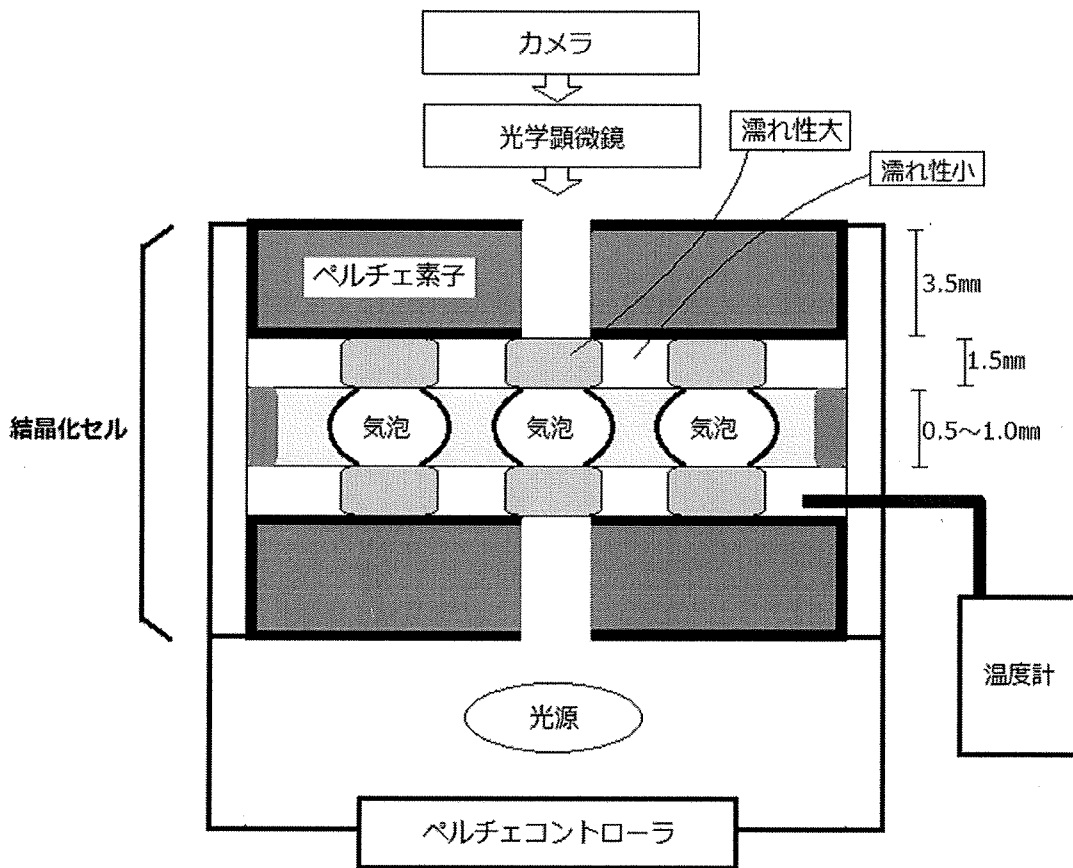


6. 実験装置概要

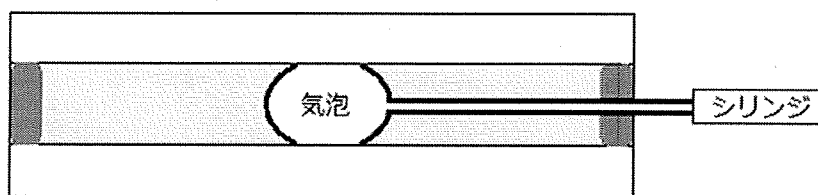
(可能な限り詳細に図示してください)



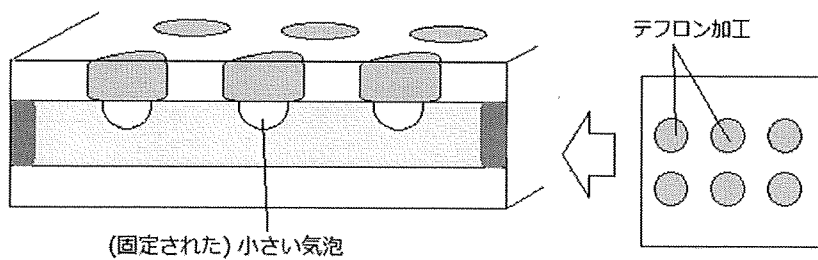
【 図3: 実験装置全体図 】



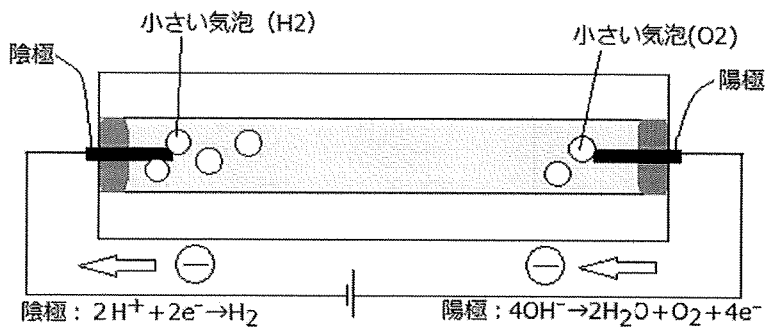
[図4: 結晶化セルの模式図]



[図5: シリンジによる気泡注入(実験1)]



[図6: 濡れ性のちがいによる気泡注入(実験2)]



[図7: 電気分解による気泡注入(実験3)]

7. 実験装置のサイズ/重量概算

カメラ(×1)…1kg
光学顕微鏡(×1)…20kg
結晶化装置(×1)…1kg
ペルチェコントローラ(×1)…1kg
データロガー(×1)…1kg

合計…～30kg

装置全体は 600mm×500mm×500mm のラックに収まるサイズ

8. 必要な電源容量概算

(AC100V (Max.3Amp) ・ DC28V (Max.5Amp))

光学顕微鏡…50W
ペルチェコントローラ…100W
ビデオカメラ 60W

9. 実験支援装置の利用要望

(実験開始信号、計測データの収録装置)

実験開始信号、ビデオ映像データのモニターと記録

10. 危険物等の搭載の有無

(無)

11. 実験実施時の航空機への搭乗希望有無

(有)

12. 役割分担

実験責任者：五十嵐愛子

実験協力者：大谷真理・川代智史・仲田愛里・前田郁也

13. その他特記事項

機内温度は 20℃程度で一定に。また、セルの曇りを防ぐためにガスか空気をセルに吹き付けたい。