

〔特集〕国際宇宙ステーション日本実験棟「きぼう」における流体実験

## 無重力下における氷の結晶成長実験

\*北海道大学 低温科学研究所

古川 義純†

宇宙航空研究開発機構 宇宙科学研究所 ISS 科学プロジェクト室

吉崎 泉

### Ice Crystal Growth Experiments under Microgravity Condition

Yoshinori FURUKAWA, Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University

Izumi YOSHIZAKI, Institute of Space and Astronautical Science, Japan Aerospace Exploration Agency

#### 1 はじめに

雪の結晶や過冷却水中で成長する氷結晶は、六方対称の整った精緻な樹枝状結晶を作る。その見事な結晶形は、どのようなしくみで決まるのだろうか？この多くの研究者を魅了してきた問題は、多くの理論的な考察とともに実験的検証がなされてきたが、最後に問題となるのは理論において想定した理想的な条件が実験では実現が極めて困難であるという点である。地上での実験では、重力の効果のため結晶周辺に発達する温度場や濃度場によって生じる密度分布により誘発される自然対流の影響を無視できない。このため、成長する結晶の形は理想形からは大きくずれてしまい、理論検証の障害となる。これを解決する唯一の手段が微小重力環境であり、それを可能にする究極の施設が国際宇宙ステーション (International Space Station, ISS) である。これまでもスペースシャトルや落下塔・航空機などを用いた実験がなされているが、長時間微小重力が得られ、宇宙飛行士による実験操作も可能な施設は ISS のみである。ISS に取り付けられた日本独自の宇宙実験施設である「きぼう」の稼働が 2008 年に開始され、初めての結晶成長実験として氷の結晶成長におけるパターン形成実験が実施された<sup>1-4)</sup>。本報告では、この宇宙実験の概要について紹介する。

#### 2 氷結晶パターンの特徴と微小重力実験

図 1 は、氷の成長パターンの時間発展を示す連続

写真である。氷の結晶は成長初期には薄い円盤状であるが、やがて円盤の縁で形態不安定化が発生し、最終的に氷結晶構造の異方性を反映する六方対称の樹枝状結晶が生じる<sup>5)</sup>。このような特徴は、結晶の成長界面における形態不安定化を論じた最初の理論モデルである Mullins-Sekerka 形態不安定化モデル<sup>6)</sup>が発表される 10 年以上も前にすでに指摘されており、結晶の形態不安定化の研究のきっかけの一つになったと言われている。

このモデルの発表後、氷結晶の形態不安定化の研究も加速され、多くの実験・理論的考察が実施されてきた。Langer ら<sup>7,8)</sup>は、氷の樹枝状結晶の先端成長速度が Langer & Müller-Krumbhaar の樹枝状成長のユニバーサルモデル<sup>9,10)</sup>の予測とよく一致することを示した。さらに、Fujioka ら<sup>11)</sup>は円盤の厚みは一定であるとして、円盤の縁で起きる形態不安定化のモデルを構築した。これらの初期の実験や理論では、氷結晶は完全に二次元、あるいは一定の厚みを持つものであると単純化した仮定のもとですべての議論が構築された。しかしながら、図 1 の写真を見ても分かるように氷結晶の縁の内側には複雑なパターンが観察される。すなわち、氷の結晶パターンは決して二次元ではなく、複雑な三次元的構造を持つものであり、このことが氷結晶の形態不安定化に決定的に重要な役割を果たすことが明らかになってきた<sup>12,13)</sup>。このことから、氷結晶成長における形態不安定化やパターン形成に適用できる新しいモデルの構築が求められるようになり、そのためには氷の結晶界面の微細構造や成長機構には大きな異方性が存在することを正しく取り込む新しい理論モデル<sup>14,15)</sup>の構築と、それを検証するための精密な実験・観察が不可欠に

\*〒060-0819 札幌市北区北 19 条西 8 丁目

† E-mail: frkw@lowtem.hokudai.ac.jp

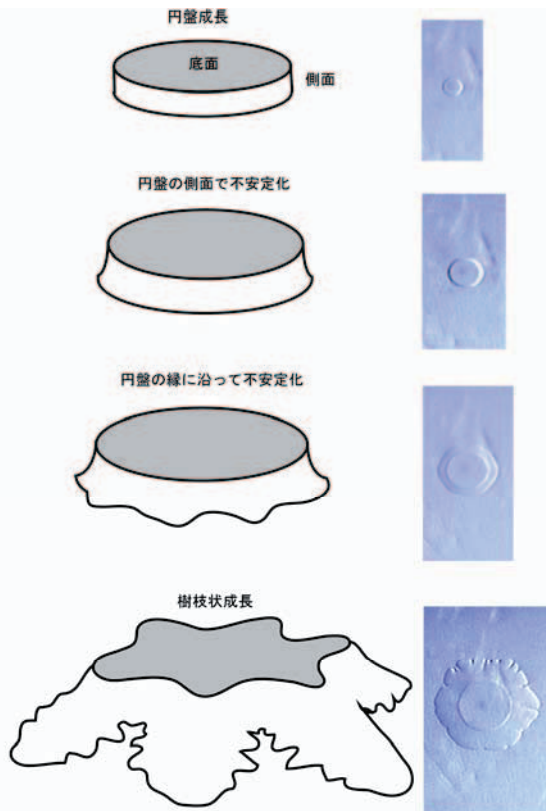


図1 氷結晶パターンの発展過程を示す模式図。円盤面と縁の面では、成長機構が異なることが特徴である。

なった。

このため、ISS で実現される擾乱のない長時間微小重力環境における氷結晶成長実験を提案し、1993年に日本実験モジュール利用一次選定テーマのひとつとして採択された<sup>16)</sup>。氷の結晶成長では、融液の過冷却度が唯一の実験パラメータになるため、さまざまな制約条件のある宇宙実験の計画を構築するのが比較的容易と考えられ、当初は1999年ごろには実験が実現できると予想された。しかしながら、ISSの建設の遅れやスペースシャトルコロンビアの事故などが立て続けに起こり、実験の延期が繰り返されてきた。2000年代後半に入りようやくISSの建設が軌道に乗りはじめ、2008年6月に「きぼう」与圧部がISSに組み付けられた。そして、2008年12月に「きぼう」を利用した氷結晶成長実験が実現した。実験テーマの提案から実現まで、実に15年がかかったことになるが、その準備の段階でモデルの詳細化や落下塔/航空機、さらにはロケットを使った予備実験を十分に行うことができ、実験テーマの詳細化や装置の開発に十分な時間をかけることができた。とはいえ、15年という時間はあまりにも長すぎる。こ

の間本実験が宇宙実験テーマとして生き残ることができたのは、この実験が物理学や結晶成長学の本質に迫る最も基礎的な課題を取り扱うものであったことが幸いしたと言えよう。

### 3 Ice Crystal Cell

氷結晶の成長の場合は、温度制御したセルの中に試料の水を充填し、冷却スプレーで一部を冷却するだけでも氷結晶の成長を開始でき、結晶の向きやフォーカスを合わせて、最も良好な観察画像を得るのも大きな困難はない。しかし、それを宇宙で実現することを考えると決して簡単なことではなく、宇宙実験に使う実験装置（供試体）の開発は、多くの困難の克服と工夫が必要である。さらに有人宇宙施設である「きぼう」での実験とはいっても、宇宙飛行士が実験作業のために割ける時間は極めて限定的である。実験装置はこのことを十分に考慮して設計・製作がなされなければならない。

図2は、Ice Crystal Cellの基本構造を示す模式図で、円筒形の結晶成長セル（直径26mm、奥行き24mm）と核生成セル（直径6mm、厚さ1.2mm）を、両者をガラス毛细管（内径0.4mm）で結んでいる。2つのセルは、ペルチエ素子により独立に温度制御可能である。これらのセルとガラス管に試料として重水を充填して実験を行った。まず、結晶成長セルを冷却し、所定の過冷却度が達成されたとき核生成セルを急冷して氷結晶を核形成する。生成した結晶粒は、

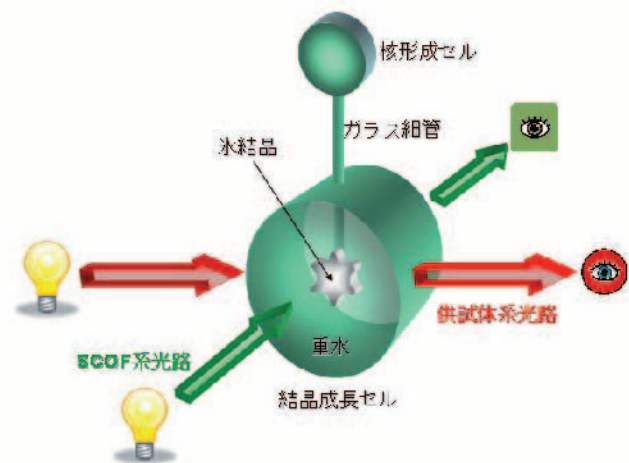


図2 氷結晶の成長装置の原理を示す模式図。結晶成長セルの中心に、1個の単結晶を作成することが実験のカギである。氷結晶では、種結晶を仕込むことができないので、独自の工夫がなされている。

毛細管内部を成長するとともに自然に淘汰され、最終的に1個の結晶粒のみが生き残る。この結晶が成長セル側の中心部まで挿入した毛細管の先端に達すると、セル内で1個の単結晶が成長を開始する。この様子が2軸の干渉計で観察され、画像データとして地上に伝送されることで実験データを得る。

実験に重水を使ったのは、重水の融点(+3.8°C)が水よりも少し高めであること、融点近傍での密度や屈折率の温度勾配も水よりわずかに大きいこと<sup>28-30)</sup>など、宇宙で使用する装置の設計や結晶成長の観察において、より有利な条件を設定するためである。結晶成長におけるパターン形成の特性は、基本的に水の場合と同じである。

この装置は、「きぼう」に搭載された溶液結晶化観察装置(Solution Crystallization Observation Facility, SCOF)のステージに設置された。結晶成長の様子は、結晶成長装置に内蔵された Maki 型干渉顕微鏡と SCOF に内蔵された Mach-Zehnder 型干渉顕微鏡を同時に利用して、直交する2軸での観察が可能である。この供試体の宇宙実験装置としての優れた特性をまとめると以下のような点である。

1. 稼動部分が存在せず、結晶成長セルと核生成セルの温度制御のみで、氷結晶の成長・融解等の制御が可能である。
2. 宇宙環境で結晶成長の実験を行う場合、通常では種結晶を保持する必要がある。しかし、氷結晶の場合は融点が室温以下であるために、種結晶を保持したままで装置を打ち上げることは不可能である。このため、本装置は核形成セルを設置することで、種結晶を必要としないシステムとなっている。さらに、核形成により生じた複数個の単結晶がガラス毛細管内を成長することで、自動的に結晶粒が一個だけ選択される。これによって、成長セル内で自由成長する氷結晶は、常に単結晶でc軸方位が毛細管の軸に直交する方位となる。
3. 実験装置自体に高性能干渉顕微鏡が組み込まれている。これにより、SCOF 光学系とあわせて、直交する2軸の光学系での同時観察が可能で、氷結晶のパターン解析や熱拡散場の解析が有利になる。
4. 結晶成長実験の終了後、セル全体の温度を融点以上に上げて結晶を完全に融解させるだけで、実験装置のリセットが完了する。このため、さまざまな過冷却度で何度でも繰り返し実験を実施できる。

#### 4 実験運用

「きぼう」での実験は、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(図3)。12月2日早朝、SCOFに取り付けられた供試体に最初のコマンドが送信されて、いよいよ実験が開始された。成長セル内の温度が安定した後、核形成セルの温度を一気に-10°Cまで低下させると、温度低下の途中でセンサーがいったん温度上昇を検知した。核形成セル内で氷が生成し潜熱が発生した証しである。あとは、キャピラリーの中を結晶が成長をしてくるのを待つだけである。緊張で張りつめた空気の中、11分後にキャピラリーの先端から氷が顔をだし、見事な樹枝状結晶が成長をはじめた。15年間待ちに待った瞬間であった。

このあと実験は、宇宙飛行士の寝静まった時間帯(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繰り返された。実験終了までの総実験回数は、打上前の準備段階で予定されていた105回を大幅に超過し、134回に達した。氷結晶成長に対する過冷却温度条件は、0.01Kから2Kの範囲で設定された。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の精度が保証されている。

「きぼう」で取得された実験画像(動画)は、ISSと地上との通信が可能である限り、衛星回線を通じて



図3 ISS「きぼう」の内部に浮かぶ Ice Crystal Cell. JAXA/NASA 提供.

地上にダウンリンクされる。この時のタイムラグは、条件が良ければ数秒以内であり、ほとんどリアルタイムで実験の進行状況をモニターすることができる。このタイムラグは、当初の予想より非常に小さく、実験が遠く離れたISSの内部で進行していることを、つい忘れてしまうほどであった。さらに、実験の結果をモニターしながら、必要であれば事前の計画を離れて、実験条件や実験の進行手順をその場で変更することもできるなど、地上実験では通常行う作業手順を宇宙においても実現することができた。様々な条件で取得された氷結晶の成長過程を記録した画像は、現在までにデータセットとして整理され、第一次的な解析が終了次第ネット等で一般に公開される予定である。

## 5 実験の結果

### 5.1 宇宙での氷のパターン発展の特徴

図4は、本実験で得られた典型的な樹枝状結晶の成長過程を示す。成長開始時の過冷却度の設定は0.5Kである。氷の結晶構造を反映して、樹枝状結晶は本来6本の主枝を持つが、キャピラリー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。図5は、この実験装置を使った地上実験で得られた樹枝状結晶のスナップ写真であるが、3本の主枝の長さは、対流効果のため大きく異なっている。この写真を見るだけでも、宇宙実験で得られたデータの質が極めて高いことを推測することが可能である。

宇宙実験で取得した画像データを概観すると、得られた氷結晶パターンは、地上実験とは異なるいくつかの特徴が見られる。まず、それらをまとめておこう。

1. 円盤成長する温度領域が極めて狭い。
2. ガラスキャピラリーの先端で成長を開始する結晶の厚みが非常に大きい。ガラス毛细管の内径で結晶の厚みが決定されてしまう様である。このため、円盤成長から、円盤の縁で形態不安定が起きる過程を観察することが基本的に困難であった。
3. 円盤結晶の側面は、外に張り出した曲面状である。
4. 宇宙実験では対流の効果が完全に抑制されるために、地上実験よりもより対称な結晶パターンが得られる。しかし、宇宙実験といえども成長セルの大きさや形状、さらにキャピラリーの存

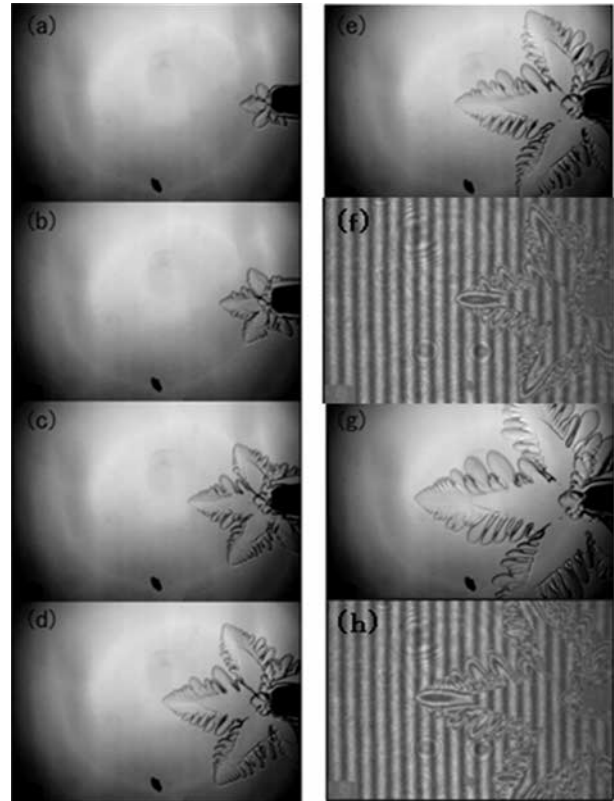


図4 「きぼう」で観察された氷結晶の成長過程の一例。過冷却度0.5K。明視野画像(a-e, g)と干渉計画像(f, h)が2秒毎に交互に切り替わって、地上にダウンリンクされる。

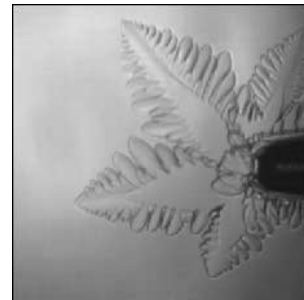


図5 地上で行った参照実験で得られた氷結晶。対流の効果が顕著に表れ、枝の長さやパターンが不均等である。

在などの影響を避けることはできず、結晶パターンに対する効果が顕在化する。

5. 樹枝の2次枝については、同じ結晶であっても主枝ごとに異なるパターンを生じる。特定の主枝についても、主枝の両側の2次枝のパターンは必ずしも対称ではない。
6. 結晶が融解するときのパターンも観察可能であった。成長パターンの逆経過とは明らかに異なる。

## 5.2 結晶成長速度の測定

取得されたデータの詳細解析の一例として、結晶の成長速度の精密測定を紹介しよう。Space-time plot法と呼ばれる動画の画像処理により、樹枝状結晶の主軸（a 軸）方向とそれに直交する c 軸方向（底面）の成長速度を独立に測定することができる。過冷却度の大きい領域（ $\Delta T > 0.2\text{K}$ ）では、樹枝先端速度が理論モデルから予測される過冷却度依存性によく一致することが明らかになった。さらに、この過冷却度領域では、底面の成長も確認された。一方、低過冷却度の領域（ $\Delta T < 0.2\text{K}$ ）では、樹枝の発達は抑制されて円盤状の結晶形となり、成長速度も理論モデルからのずれが顕著になる。また、この領域では、ベーサル面の成長も抑制されることが明らかになった<sup>17)</sup>。

また、結晶の厚みの増加速度の時間変化を詳細に観察すると、速度が突然2倍になる場合が観察された。さらに、1/2に減少する場合があることも明らかになった。結晶厚みの増加速度は上下2面のベーサル面の成長速度の合計で記述されるので、この観察結果はベーサル面の両面が必ずしも均等に成長するわけではなく、片面だけの成長モードが存在することを示唆している。すなわち、底面の成長は必ずしも均等ではなく、Yokoyamaら<sup>15)</sup>の円盤結晶の形態不安定化のモデルによる予測と一致する。

地上での実験で得られる結晶パターンでは、枝の長さが対流の影響により極端に変化することを示したが、このようなパターンからの測定ではあまりにも誤差が大きく、理論との比較などは困難である。現在もなお詳細な解析の進行中であるが、宇宙実験によるデータにより、初めて理論モデルとの比較検証が可能となった<sup>17)</sup>。

## 6 終わりに

マランゴニ対流の実験に続き、「きぼう」での2番目の科学実験として実施された氷結晶の成長実験は、見事な樹枝状パターンの時間発展が動画として観察されることから、多くの新聞や雑誌等にも紹介された。本実験では、科学的な成果はもちろんであるが、宇宙実験の啓蒙というもう一つの重要な役割を果たすことができたと考えている。ISS「きぼう」の運用が開始されたことで、かつてのように、いつ実現するかも分からない実験機会をひたすら待ち続けるということもなくなった。これからこの分野に参入を狙う若手研究者の皆さんにとって、かつてよ

りハードルが大幅に低くなったと言えよう。われわれの研究が先駆けとなって、多くの皆さんが宇宙実験に興味を持っていただくことができたなら、筆者の望外の喜びである。

## 謝辞

本実験の実施に当たり、横山悦郎（学習院大学）、島岡太郎（JSF）、曾根武彦（JAMSS）の各氏には、宇宙実験の準備・計画段階から実際の実験運用まで全面的な支援を頂いた。また、友部俊之（IHI エアロスペース）、真木孝雄（オリンパス）、山本明日佳（オリンパス）の各氏には供試体の設計開発を担当いただいた。「きぼう」内での供試体の取り扱い、マグナス、若田両宇宙飛行士に担当していただいた。そのほかにも、ここには記載しきれないほどの多数の皆さまにご協力をいただいた。この実験に関連したすべての方々の熱意と希望の集大成として、実験が成功に導かれたことを記して、感謝したい。

## 引用文献

- 1) 吉崎泉: 「きぼう」での結晶成長実験に至るまで. 日本マイクログラビティ応用学会誌, 27 (2010) 18-23.
- 2) 古川義純, 横山悦郎, 吉崎泉, 依田眞一, 田中哲夫, 島岡太郎, 曾根武彦, 友部俊之: 氷の結晶成長における形態不安定化—ISS「きぼう」実験の概要. 日本マイクログラビティ応用学会誌, 27 (2010) 24-31.
- 3) 島岡太郎: 「きぼう」結晶成長実験の実験計画調整について—地上予備実験について—. 日本マイクログラビティ応用学会誌, 27 (2010) 37-45.
- 4) 曾根武彦, 安部裕喜子: 「きぼう」結晶成長実験のフライト実験準備について. 日本マイクログラビティ応用学会誌, 27 (2010) 46-49.
- 5) K. Arakawa and K. Higuchi: Study on the freezing water (I). J. Fac. Sci. Hokkaido Univ., Ser. II, 4 (1952) 201-209.
- 6) W. W. Mullins and R. F. Sekerka: Stability of a planar interface during solidification of a dilute binary alloy. J. Appl. Phys., 35 (1964) 444-451.
- 7) J. S. Langer, R.F. Sekerka and T. Fujioka: Evidence for a universal law of dendritic growth rates. J. Crystal Growth, 44 (1978) 414-418.
- 8) T. Fujioka: Study of ice growth in slightly undercooled water. Doctoral thesis, Department of Metallurgy and Material Science, Carnegie Mellon

- Univ., (1978).
- 9) J. S. Langer and H. Müller-Krumbhaar: Theory of dendrite growth—I. Elements of a stability analysis. *Acta Metall.*, 26 (1978) 1681-1687.
  - 10) J. S. Langer and H. Müller-Krumbhaar: Theory of dendrite growth—II. Instabilities in the limit of vanishing surface tension. *Acta Metall.*, 26 (1978) 1689-1695.
  - 11) T. Fujioka and R. F. Sekerka: Morphological stability of disc crystals. *J. Crystal Growth*, 24/25 (1974) 84-93.
  - 12) Y. Furukawa and W. Shimada: Three-dimensional pattern formation during growth of ice dendrites-its relation to universal law of dendritic growth. *J. Crystal Growth*, 128 (1993) 234-239.
  - 13) W. Shimada and Y. Furukawa: Pattern formation of ice crystals during free growth in supercooled water. *J. Phys. Chem.*, B101 (1997) 6171-6173.
  - 14) E. Yokoyama, R. F. Sekerka and Y. Furukawa: Growth trajectories of disk crystals of ice growing from supercooled water. *J. Phys. Chem.*, B104 (2000) 65-67.
  - 15) E. Yokoyama, R. F. Sekerka and Y. Furukawa: Growth of an ice disk: dependence of critical thickness for disk instability on supercooling of water. *J. Phys. Chem.*, B113 (2009) 4733-4738.
  - 16) 足立聡, 木戸脇健司, 内田美佐子, 荒井康智, 白川正輝, 河野靖, 岡由里子, 加藤秀輝, 阿久津亮夫, 島岡太郎, 川本洋, 友部俊之, 石川毅彦, 依田眞一: スペースシャトル STS-R2 を利用した結晶成長機構の研究. *日本マイクログラフィティ応用学会誌*, 18 (2001) 228-232.
  - 17) E. Yokoyama, I. Yoshizaki, T. Shimaoka, T. Sone, T. Tomobe, T. Kiyota and Y. Furukawa: Measurements of growth rates of an ice crystal from supercooled heavy water under microgravity conditions- basal face growth rate and tip velocity of dendrite. *J. Phys. Chem.*, B (2011), Submitted.