溶融 NaOH の表面張力およびマランゴニ対流挙動*

安廣 祥一^{*2}, 有福 智之^{*1}, 有馬 博史^{*1}
百 崎 信^{*1}, 佐藤 恒之^{*2}, 今石 宣之^{*3}

Surface Tension and Marangoni Convection of Molten NaOH

Shouichi YASUHIRO, Tomoyuki ARIFUKU, Hirofumi ARIMA,
Makoto MOMOSAKI, Tsuneyuki SATO and Nobuyuki IMAISHI^{*4}^{*4} Kyushu University, Institute of Advanced Material Study,
Kasuga-Koen 6-1, Kasuga, Fukuoka, 816-8580 Japan

The surface tension of molten NaOH was measured by means of the maximum bubble pressure method under the various temperature conditions. The measured value has a maximum at $T = 723.1$ K (T^*), which shows somewhat low temperature compared to that of Nakamura et al⁽¹⁰⁾. The two distinct temperature coefficients of surface tension ($= \partial\sigma/\partial T$) with different signs were determined at the lower temperature ($T < T^*$) and at the higher temperature ranges ($T > T^*$), but these values are much smaller than those reported by Nakamura et al⁽¹⁰⁾. Two dimensional numerical calculations were also conducted to simulate flow patterns due to thermal Marangoni convection formed in a small molten NaOH bridge under the various thermal conditions. By using the measured values of surface tension, the numerical results succeed in reproducing the observed visualized flow cell patterns, and revealed that the different multi-roll cell flow patterns are distinguishably formed in the bridge depending upon the surface temperature distribution.

Key Words: Surface Tension, Marangoni Convection, Numerical Analysis, Flow Visualization, Molten NaOH, Maximum Bubble Pressure Method, Liquid Bridge, Multi Roll Cell

1. 緒 言

近年、高度情報機器の急速な発展に伴い、各種半導体単結晶の高品位化へ対する要求がますます高まっている。半導体バルク単結晶育成技術として、融液からの結晶成長法であるCz法やFZ法が知られている⁽¹⁾。これらの成長法では融液内に結晶や坩堝の回転による回転流および浮力対流などが重畳した極めて複雑な流れ場が形成され、結晶品質との関連が重要な問題となっている^{(1)~(4)}。重力に起因する浮力対流の影響を取り除く目的で無重力場を利用した結晶成長が注目されている^{(5)~(6)}。しかし無重力場では界面温度不均一に起因するマランゴニ対流が顕在化する⁽⁷⁾。マランゴニ対流の挙動については不明な点が多く、特に高温融液では、界面から周囲気体への放熱量が大きい

ため、常温場とは異なった挙動を示す可能性がある。また高温融体の表面張力など物性値自体の蓄積もいまだ十分とは言えない状況にある。一方、シリコン Cz 炉を対象とした融液表面近傍の流れの解析ではマランゴニ効果に基づく強い表面流の存在が予想されている⁽⁸⁾。これに対し実際の装置では多くの場合半径方向の表面速度は極めて小さい。この差異の原因として融液表面における不純物の存在によりマランゴニ効果が作用しなくなる、あるいは表面張力の温度係数値が純粋融液の値と著しく異なるなどの要因が考えられる。特に、後者に関しては負の温度係数値を示す純溶融鉄の場合、溶存酸素濃度とともに温度係数値が増大し、100ppm 以上の濃度で正值に逆転する研究例⁽⁹⁾も報告されており、このような系に対するマランゴニ対流挙動の理解が今後一層求められるものと考えられる。

* 原稿受付 1999年8月19日。

^{*1} 九州大学大学院総合理工学研究科 (〒816-8580 春日市春日公園 6-1)。^{*2} 九州大学機能物質科学研究所。^{*3} 正員, 九州大学機能物質科学研究所。

E-mail: imaishi@cm.kyushu-u.ac.jp

本研究では上記現状をふまえ、表面張力の測定法として最大泡圧法を適用し溶融 NaOH の表面張力を計測するとともに、溶融 NaOH 微小液柱内のマランゴニ効果に基づく対流を実験的ならびに理論的に解析する。溶融 NaOH の表面張力は、ある温度において最大値を有し、表面張力係数の符号が正から負に変化することが知られている⁽¹⁰⁾。しかし、その実測例は極めて少なく表面張力測定の実験を含むさらなる検証が不可欠と考えられる。

2. 使用記号

a	: 液柱半径	[m]
b	: 気泡先端の曲率半径	[m]
Bi	: 自然対流によるビオ数 ($= \bar{h} L / \lambda_m$)	[-]
Bi^*	: 輻射によるビオ数	
	$(= (\epsilon \sigma_B \Delta T^3 L / \lambda_m) ((\theta + \theta_m)^2 + \theta_g^2) (\theta + \theta_m + \theta_g))$	[-]
Bi_m^*	: 平均温度での輻射によるビオ数	
	$(= (\epsilon \sigma_B \Delta T^3 L / \lambda_m) ((\theta_m^2 + \theta_g^2) (\theta_m + \theta_g)))$	[-]
Bo	: ボント数 ($= \rho g r_c^2 / \sigma$)	[-]
C_p	: 比熱	[J/kgK]
D	: 微分演算子	
g	: 重力加速度	[m/s ²]
H	: 浸漬深さ	[m]
$\bar{h}$	: 平均熱伝達率	[W/m ² K]
h	: 局所熱伝達率	[W/m ² K]
L	: 液柱高さ	[m]
Ma	: マランゴニ数 ($= -(\partial \sigma / \partial T)_m \Delta T L / (\alpha_m \mu_m)$)	[-]
Ma^*	: 液柱最大温度差の下でのマランゴニ数	[-]
Nu	: ヌッセルト数 ($= h L / \lambda_g$)	[-]
$(Nu_L)_C$	: 鉛直円柱周りの平均 Nu	[-]
$(Nu_L)_P$	: 層流鉛直平板の平均 Nu	[-]
p	: 圧力	[Pa]
P	: 無次元圧力	[-]
p'	: 泡圧	[Pa]
p'_{in}	: ノズル内圧	[Pa]

p'_l	: 静水圧	[Pa]
p'_{max}	: 最大泡圧	[Pa]
p'_{out}	: 大気圧	[Pa]
Ra	: レーリー数 ($= \beta_g g \Delta T L^3 / (\alpha_g \nu_g)$)	[-]
r, z	: 座標	[m]
R, Z	: 無次元座標	[-]
r_c	: ノズル内半径	[m]
t	: 時間	[s]
T	: 温度	[K]
ΔT	: 温度差 ($= T_h - T_c$)	[K]
u_0	: 基準流速 ($= Ma \alpha_m / L$)	[m/s]
u, w	: 流速の (r, z) 成分	[m/s]
U, W	: 無次元流速の (R, Z) 成分	[-]
ν	: 速度ベクトル	[m/s]
X	: 気泡先端までの長さ	[m]

ギリシャ文字

α	: 温度伝導度 ($= \rho C_p / \lambda$)	[m ² /s]
β	: 体膨張係数 ($= 1/\rho \partial \rho / \partial T$)	[1/K]
ϵ	: 輻射率	[-]
λ	: 熱伝導度	[W/mK]
Λ	: 無次元熱伝導度	[-]
μ	: 粘度	[Pas]
M	: 無次元粘度	[-]
ν	: 動粘度 ($= \mu / \rho$)	[m ² /s]
θ	: 無次元温度 ($= (T - T_m) / \Delta T$)	[-]
ρ	: 密度	[kg/m ³]
σ	: 表面張力	[N/m]
σ_B	: ボルツマン定数	[W/m ² K ⁴]
τ	: 無次元時間 ($= t u_0 / L$)	[-]

添え字

c	: 低温プレート
g	: 周囲気体
h	: 高温プレート
l	: 試料液体
m	: 平均温度

Fig.1 Schematics of the measurement apparatus of surface tension

3. 表面張力の測定

3.1 測定方法 表面張力の測定には最大泡圧法を採用した。融液密度 ρ_l 、気泡ガス密度 ρ_g 、浸漬したノズル半径 r_c 、浸漬したノズル深さ H 、ノズル端から気泡先端までの距離 X 、大気圧 p'_{out} とすると、気泡先端における融液の静水圧 p'_l は、

$$p'_l = p'_{out} + g\rho_l(H + X) \quad (1)$$

一方、気泡先端の曲率半径 b 、融液の表面張力 σ とすると液面レベルにおけるノズル内圧 p'_{in} はラプラスの式より、

$$p'_{in} = \frac{2\sigma}{b} + p'_l - g\rho_g(H + X) \quad (2)$$

となる。したがって式(1)、(2)よりノズル内外の気体間の圧力差は、

$$\begin{aligned} \Delta p' &= p'_{in} - p'_{out} \\ &= \frac{2\sigma}{b} + g(\rho_l - \rho_g)(H + X) \end{aligned} \quad (3)$$

となる。気泡体積が増加し気泡先端の曲率半径 b が極小値をとった時 $\Delta p'$ は極大値を示す。この時の圧力を最大泡圧 $\Delta p'_{max}$ と呼ぶ。試料融液温度一定の場合、実測の最大泡圧 $\Delta p'_{max}$ とノズルの浸漬深さの関係

$$\begin{aligned} \Delta p'_{max} &= A + C \times H \\ A &= \frac{2\sigma}{b} + g(\rho_l - \rho_g)X, \\ C &= g(\rho_l - \rho_g) \end{aligned} \quad (4)$$

より融液密度および表面張力が式(4)の傾き C および切片 A より決定される。地上重力が作用する場ではノズル先端に成長する気泡が真半球とならず、わずかに歪んだ形状を有する。そこで本報では Hozawa⁽¹¹⁾らの有限要素法に基づく気泡形状のシミュレーション法を利用し気泡形状を正確に求め $\Delta p'_{max}$ の補正を行った。なお、形状補正シミュレーション結果は、Bashforth⁽¹²⁾らの行った気泡変形に関する計算結果と比較し、両者が完全に一致したことから妥当と判断した。また、ノズル半径 r_c および浸漬深さ H については、ノズル材の熱膨張による伸びを考慮した。

3.2 実験装置 実験に使用した装置の概略図を図1に示す。

装置全体は、坩堝、ヒーター、ノズル、マスフローコントローラー(MFC)、圧力計、ペンレコーダーからなる。坩堝には腐食防止の目的で純金製坩堝(内径 51mm、厚さ 0.5mm、深さ 120mm)を使用し、ステンレス容器内(内径 52mm、外径 54mm、深さ 120mm)に収めた。坩堝の加熱は、容器の上中下3ゾーンをそれぞれ PID コントロールすることにより調温し、熱電対で温度測定を行った。試料には特級試薬の NaOH をそのまま使い、坩堝に所定量投入し、融解させた。

ノズル先端は熔融 NaOH に対して高い濡れ性を示す金-パラジウム合金製(30%Pd、内径約 1mm、長さ 50mm)で、長さ 250mm のステンレスパイプ端に銀蝋付けた。MFC(アエラ社 FC-770AC [FS10SCCM])により一定流量で Ar ガスを供給した。ガス供給系にはバイパスを設け、ニードルバルブにより気泡の生成がおおよそ 15 秒程度になるようにした。差圧測定はダイヤフラム式高感度微差圧計(セトラ社製 model246、フルスケール 635mmAq)により行い、圧力計からの DC 信号をペンレコーダー上に直接記録した。

3.3 誤差評価 密度および表面張力値の測定誤差要因として、浸漬深さ、圧力およびノズル径の読みとり誤差、気泡形状などが考えられる。しかしながら本実験における最大読みとり誤差として、表面張力に影響を及ぼすノズル半径測定時で最大 1.0%、密度に及ぼす最大泡圧測定時で最大 1.3%程度であり、実験精度は十分高いものと判断した。実際、本実験に先立ち行った水および KNO₃ 融液を用いた検定において、いずれの場合も文献値と 1%以内で一致した。

3.4 表面張力の測定結果 表面張力の測定は 657K から 2~13K 間隔で 798K までの温度域で行った。熔融温度に対する密度および表面張力値を、それぞれ図 2、3 に示す。

Fig. 2 Density of molten NaOH (Key : measured results, solid line: correlated results by Eq.(5), dotted line : Ref (10))

本実験より得られた密度の実測値は図 2 中に破線で示した文献値⁽¹⁰⁾に比べ約 1%高い値を示した。しかし、前節の誤差評価から、精度的には十分高いものと判断できる。また本法では、この程度の誤差は表面張力値に実質ほとんど影響を及ぼさない。次に表面張力の温度変化をみると、中村ら⁽¹⁰⁾の結果(図 4)と同様、この温度範囲では極大値が存在することが分かる。しかし極大値(T^*)を示す温度は本実験結果では 723.1K となり、中村らの示す温度($T=737.4\text{K}$)と比較して 14K ほど低い。また表面張力の温度係数($\partial\sigma/\partial T$)値も、 T^* より低温側では約 3/10 倍、高温側では約 1/17 倍となっている。両者の差異の原因については緒言でも述べたように不純物などの影響が考えられるが詳細についてはいまのところ不明である。

以上の結果をまとめ、密度および表面張力の温度依存性をあらわす相関式として式(5),(6),(7)

$$\rho = -4.904 \times 10^{-1} T + 2099 \quad (5)$$

$$\sigma = 2.645 \times 10^{-2} T + 115.2 \quad [657\text{K} < T < 723.1\text{K}] \quad (6)$$

$$\sigma = -1.214 \times 10^{-2} T + 143.1 \quad [723.1\text{K} < T < 798\text{K}] \quad (7)$$

Fig. 3 Surface tension of molten NaOH measured in the present experiment

Fig. 4 Surface tension of molten NaOH reported by Nakamura et al.⁽¹⁰⁾

がそれぞれ得られ、また、その結果を図中(図 2, 3)にそれぞれ示す。

4. マランゴニ対流実験・数値計算

NaOH 融液の密度ならびに表面張力測定結果の妥当性を検討する目的で、NaOH 融液の微小液柱内に発生する熱マランゴニ対流の数値シミュレーション結果と流れの可視化実験結果との比較を行った。なお数値計算にあたっては前節において測定した表面張力データをそのまま用いた。

4.1 対流可視化装置 実験装置の概要を図 5 に示す。NaOH 融液の液柱(直径 2mm、高さ 3mm)は上下 2 枚の白金プレート(直径 2mm 厚さ 0.5mm)間に形成した。融液の加熱ならびに測温は上下のプレート中央に接続されている R 型熱電対を介して、ホットサーモカップル法⁽¹⁰⁾により行った。この方法は、R 型熱電対に半波整流した電流を流し通電半波期間には素線を発熱体として用い、非通電半波期間には通常の熱電対として温度検出を行う加熱測温システムである。熱電対の接続しているプレート間に形成した液柱を Ar ガス雰囲気中に置き、融液内の流れの可視化を行った。可視化に際しては、トレーサとして白金微粒子(平均粒径 50μm)を混入して、その軌跡を CCD カメラおよび一眼レフカメラで記録することにより、局所流速を求めた。VTR 画像を駒送りで再生し、フレーム毎にトレーサ粒子の位置を追跡し、移動距離と駒時間間隔(0.033 秒)から速度を測定した。撮影の際、液柱表面に CCD カメラの焦点を合わせ、液柱表面近傍を移動するトレーサの挙動を録画し、更に中心付近に焦点を移して中心部分でのトレーサの運動を記録した。液柱径が小さいためスリット光照射が困難であったので、全体照射を行った。実験は上下プレート温度を表 1 のように設定して行った。

4.2 理論計算

4.2.1 計算モデルおよび基礎方程式 数値計算には二次元定常マランゴニ対流計算コード⁽¹³⁾を適用した。

Fig. 5 Schematic of the experimental apparatus for the visualization of Marangoni convection

Table 1 Setting temperature of upper and lower disks

	Large ΔT	Middle ΔT	Small ΔT
Low T region	630-680K	650-680K	660-660K
Moderate T region(near T^*)	705-775K	720-760K	750-750K
High T region	760-810K	760-790K	780-780K

このコードでは表面張力の温度係数、粘度⁽¹⁴⁾、熱伝導率⁽¹⁴⁾は温度の関数として近似しており、それ以外の物性値は温度に依存せず一定値であるとしている。

液柱は、半径 $a=1\text{mm}$ 、高さ $L=3\text{mm}$ の真円柱であると仮定した。図 6 に二次元軸対称モデル模式図を示す。また、無次元化された基礎式および境界条件を以下に示す。ここで、液柱は微小であり、体積力としての重力による浮力対流は無視できるものと仮定した。

Equation of continuity:

$$\nabla \cdot \mathbf{V} = 0 \quad (8)$$

Equation of motion:

$$\frac{Ma}{Pr} \frac{D\mathbf{V}}{D\tau} = -\nabla P + \nabla(M\nabla\mathbf{V}) \quad (9)$$

Energy equation:

$$Ma \frac{D\theta}{D\tau} = \nabla(\Lambda \nabla \theta) \quad (10)$$

なお表面張力の温度係数が正から負に転じる (T^*) 付近では、計算がきわめて不安定になるため本計算では T^* を挟む $\pm 0.2^\circ\text{C}$ の範囲で表面張力の直線的な変化を滑らかな 3 次関数により近似して与えた。

また、鉛直液柱表面から周囲気体への熱損失速度は、自然対流による熱損失と輻射による熱損失を考慮して式 (17) で与えた⁽¹⁴⁾。輻射による熱損失速度は Bi^* で表し、平均温度での Bi_m^* で評価した。ここで輻射率 ε は実験結果を最も良く表現する値 $\varepsilon=0.75$ を採用した。

Fig. 6 2D-axisymmetric Marangoni convection model

Boundary conditions ($0 \leq \tau$):

$$R = 0 : U = 0, \quad \frac{\partial W}{\partial R} = 0, \quad \frac{\partial \theta}{\partial R} = 0; \quad (11,12,13)$$

$$R = \frac{a}{L} : U = 0, \quad M \frac{\partial W}{\partial R} = \left(\frac{\partial \sigma}{\partial T} \right) \left/ \left(\frac{\partial \sigma}{\partial T} \right)_m \right. \frac{\partial \theta}{\partial Z}, \quad (14,15)$$

$$\Lambda \frac{\partial \theta}{\partial R} = -Bi(\theta + \theta_m - \theta_g) - Bi^*(\theta + \theta_m - \theta_g); \quad (16)$$

ここで

$$Bi = \bar{h}L / \lambda_m, \quad \frac{\bar{h}L}{\lambda_m} = \frac{\lambda_g}{\lambda_m} \frac{\bar{h}L}{\lambda_g} = \frac{\lambda_g}{\lambda_m} (Nu_L)_C, \quad (17,18)$$

$$\left(\frac{Nu_L}{L} \right)_C = 1 + 0.428 \left[\left(\frac{L/a}{(Nu_L)_P} \right)^{\frac{5}{6}} \right] \quad (19)$$

$$Bi^* = \frac{\varepsilon \sigma_B L \Delta T^3}{\lambda_m} ((\theta + \theta_m)^2 + \theta_g^2)(\theta + \theta_m + \theta_g) \quad (20)$$

$$Z = 0 : U = 0, \quad W = 0, \quad \theta = \theta_h; \quad (21,22,23)$$

$$Z = L : U = 0, \quad W = 0, \quad \theta = \theta_c; \quad (24,25,26)$$

これら式中の無次元量は以下のように定義されている。

$$\begin{aligned} R &= \frac{r}{L}, \quad Z = \frac{z}{L}, \quad U = \frac{u}{u_0}, \quad W = \frac{w}{u_0}, \quad P = \frac{pL}{u_0 \mu_m}, \\ \Delta T &= (T_h - T_c), \quad T_m = \frac{(T_h + T_c)}{2}, \quad \theta = \frac{T - T_m}{\Delta T}, \quad \theta_g = \frac{T_g - T_m}{\Delta T}, \\ \theta_m &= \frac{T_m - T_c}{\Delta T}, \quad Pr = \frac{\nu_m}{\alpha_m}, \quad Ma = \frac{-(\partial \sigma / \partial T)_m \Delta T L}{\alpha_m \mu_m}, \quad u_0 = \frac{Ma \alpha_m}{L}, \\ \alpha_m &= \frac{\lambda_m}{\rho_m C_{P_m}}, \quad \nu_m = \frac{\mu_m}{\rho_m}, \quad M = \mu / \mu_m, \quad \Lambda = \lambda / \lambda_m \end{aligned}$$

4.2.2 数値解析法 上記方程式を有限差分法により数値解析した。基礎式の離散化には、コントロールボリューム法⁽¹⁵⁾を用い、SIMPLE(Semi-Implicit Method for Pressure Linked Equation)法により解を求めた。格子条件としては液柱表面および中心軸近傍ならびに発熱体近傍で格子間隔が小さい不等間格子を用いた。

5. 計算結果と実験値との比較

計算では表面張力値として本実験値のほか、中村らの報告値⁽¹⁰⁾を使用し、それぞれ可視化実験結果より得られた気液表面近傍の流速値との比較を行った。なお、液柱に及ぼす重力の影響を検討する目的で、真円柱を仮定して重力値を1G、-1G、0G とした場合の数値シミュレーションを行い、液柱内部流線温度分布が3者間で、略一致したことから、本微小系では内部流に及ぼす重力の影響は極めて小さいと判断した。

(a) (lines :calculated results using Nakamura's data, points: experiments)

(a) (lines :calculated results using Nakamura's data, points: experiments)

(b) (lines :calculated results using the data measured in the present experiment, points: experiments)

(b) (lines :calculated results using the data measured in the present experiment, points: experiments)

Fig.7 Comparison of the numerical velocity distributions with experimental ones

Fig.8 Comparison of the numerical velocity distributions with experimental ones

液柱の上下プレート温度が表面張力の極値を示す温度より低温および高温となるように、そして温度差が $\Delta T(=T_h - T_c)=30\text{K}$ となるように設定し、内部流の可視化実験結果と計算結果の比較を行った。温度が比較的高温になるように設定した場合の結果を図 7(a),(b)に、比較的低温になるよう設定した場合の結果を図 8(a),(b)に示す。

図 7(a), 図 8(a)に示す中村らの実測値を使った計算結果は、可視化した流速値の 5~20 倍も大きい値を見積もることがわかる。

一方、今回の測定結果を使用した場合(図 7(b), 図 8(b)), 高温, 低温の場合共に、流速分布は実験結果と比較的良好な一致が得られ、中村らの測定値を用いた場合に予測不可能な液柱上部低温プレート近くに生じる表面での逆向き流れの存在も良く表現できている。

5.1 低温域(図 9) 低温域では、温度係数の符号が正のため、表面では常に低温部から高温部へ向かう流れが発生する。 $\Delta T=50\text{K}$ とした場合(a)、融液内には、単一のロールセルが形成される。 $\Delta T=30\text{K}$ の場合(b)、上部低温プレート付近に表面からの放熱に起因する最低温度 $T_{\min}$ 点が生じ、そこを起点とし各プレートへ向かって流れる 2 対のロールセルが形成される。 $\Delta T=0\text{K}$ の場合(c)、最低温度点が更に界面中央付近に移動し、ほぼ対称な 2 対のロールセルが発生する。これらの結果は、(b)の

場合にロールセルの大きさが若干異なるが、流れのパターンを良好に再現している。

5.2 高温域(図 10) 高温域では、温度係数の符号が負となるため、表面では常に高温部から低温部へ向かう流れが発生する。 $\Delta T=50\text{K}$ の場合(a)、単一のロールセルが形成される。 $\Delta T=30\text{K}$ の場合(b)、上部低温プレート付近の表面で最低温度点を示し、そこへ向かって流れ込む 2 対のロールセルが形成される。そして $\Delta T=0\text{K}$ の場合(c)、表面中央付近に最低温度点が移動するためほぼ対称な 2 対のロールセルの発生する様子が明らかとなっている。

5.3 中温域(図 11) 中温域では温度係数の符号に正負の逆転が起こるため複雑な流れ様式が生じる。プレート温度を T^* を挟みかつ $\Delta T=70\text{K}$ とした場合(a)、界面中央付近にピーク温度 T^* 点が存在するため、各プレートからピーク温度点に流れ込む 2 対のロールセルが形成される。ところが(a)同様にプレート温度を T^* を挟む様に $\Delta T=40\text{K}$ とした場合(b)、 T^* に加えて放熱に伴う最低温度 $T_{\min}$ 点も生じ、3 対のロールセルが形成される。更に $\Delta T=0\text{K}$ とした場合(c)(ただし両プレート温度は T^* より若干高めに設定)、ピーク温度点が 2 点と放熱による最低温度点 1 点が同時に表面上に発生し、4 対のロールセルの発生が確認できる。

(a) $T_h=680\text{K}$, $T_c=630\text{K}$ ($\Delta T=50\text{K}$)
 $Bi=0.116$, $Bi_m^*=0.415$, $Pr=7.35$ and $Ma^*=5094$

(a) $T_h=810\text{K}$, $T_c=760\text{K}$ ($\Delta T=50\text{K}$)
 $Bi=0.120$, $Bi_m^*=0.601$, $Pr=3.57$ and $Ma^*=7934$

(b) $T_h=680\text{K}$, $T_c=650\text{K}$ ($\Delta T=30\text{K}$)
 $Bi=0.117$, $Bi_m^*=0.428$, $Pr=6.81$ and $Ma^*=3869$

(b) $T_h=790\text{K}$, $T_c=760\text{K}$ ($\Delta T=30\text{K}$)
 $Bi=0.120$, $Bi_m^*=0.570$, $Pr=3.88$ and $Ma^*=5021$

(c) $T_h=660\text{K}$, $T_c=660\text{K}$ ($\Delta T=0\text{K}$)
 $Bi=0.117$, $Bi_m^*=0.422$, $Pr=7.07$ and $Ma^*=1916$

(c) $T_h=780\text{K}$, $T_c=780\text{K}$ ($\Delta T=0\text{K}$)
 $Bi=0.120$, $Bi_m^*=0.593$, $Pr=3.64$ and $Ma^*=4145$

Fig. 9 Visualized flow patterns (left side) and calculated stream functions (center) and temperature (right side) distributions at low temperature region

Fig. 10 Visualized flow patterns and calculated stream functions and temperature distributions at high temperature region

このような複雑な流れ様式をとる各温度条件に対し、計算より得られた流れパターンは実験結果を良好に再現しており、本実験において実測した表面張力は妥当な値を示すものであるといえることができる。

6. まとめ

溶融 NaOH の表面張力値を最大泡圧法により測定した。測定値は従来の報告値と同様、温度変曲性を示したが、従来の報告値に比べ全体に小さい値を示し、また T^* の値も異なることが分かった。

さらに溶融 NaOH 液柱内のマランゴニ対流可視化実験を行い、数値計算結果と比較したところ、表面張力の本実測値を適用した結果は実測の流動パターンと良好に一致し、測定された表面張力値が妥当であることが明らかとなった。

本研究では、平成 6 年度宇宙環境利用フロンティア共同研究において作製された微小液柱実験装置を使用した。付記して謝意を表します。

(a) $T_h=775\text{K}$, $T_c=705\text{K}$ ($\Delta T=70\text{K}$)
 $Bi=0.120$, $Bi_m^*=0.533$, $Pr=4.33$ and $Ma^*=10365$

(b) $T_h=760\text{K}$, $T_c=720\text{K}$ ($\Delta T=40\text{K}$)
 $Bi=0.120$, $Bi_m^*=0.533$, $Pr=4.33$ and $Ma^*=7453$

(c) $T_h=750\text{K}$, $T_c=750\text{K}$ ($\Delta T=0\text{K}$)
 $Bi=0.120$, $Bi_m^*=0.548$, $Pr=4.14$ and $Ma^*=4983$

Fig. 11 Visualized flow patterns and calculated stream functions and temperature distributions near T^* region

文 献

- (1) 例えば, 今石宣之・塚田隆夫(社)日本機会学会編、新編伝熱工学の進展 1, (1995), 225-332.
- (2) Tsukada, T., ほか 2 名, J. Chem. Eng. Japan, **21**(1988), 184-191.
- (3) 渡辺匡人・ほか 3 名, 日本結晶成長学会, **18**(1991), 447-454.
- (4) Ozoe, H., ほか 2 名, J. Crystal Growth, **110**(1991), 472-480.
- (5) Walter, H.U., Fluid Sciences and Material Science in Space, Springer Verlag(1987).
- (6) Eyer, A., ほか 2 名, Proc. 5th European Symposium on Materials Sciences under Micro-gravity, Schlob Elman, ESA SP-222(1984), 173-177.
- (7) Cröll, A., ほか 2 名, Mater. Res. Bull., **24**(1989), 995-999.
- (8) 藤岡・中山、第 27 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, D342(1990).
- (9) 瀧内・ほか 4 名, 日本金属学会誌, **55**(1991), 180-186.
- (10) Nakamura, T., ほか 2 名, Proc. 4th Int. Conf. Molten Slags and Fluxes, (1992), Sendai, ISIJ.
- (11) Hozawa, M., ほか 3 名, J. Chem. Eng. Japan, **14**(1981), 358-364.
- (12) Bashforth, F. and Adams, J. C., Cambridge Univ. Press, Deighton Bell & Co., England (1883)
- (13) Imaishi, N., ほか 2 名 Proc. the 1st Int. Seminar on Manufacturing of Advanced Materials, (1995), 36-41.
- (14) 日本機械学会, 伝熱工学資料(改定第 4 版), (1986), 68-71.
- (15) Pantankar S.V., Hemisphere Publ., Washington , Numerical Heat Transfer and Fluid Flow, (1980).