HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	ISS「きぼう」における氷の結晶成長とパターン形成実験
Author(s)	古川, 義純; 横山, 悦郎; 吉崎, 泉 他
Citation	日本結晶成長学会誌, 39(2), 61-67
Issue Date	2012-12-01
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/66195
Type	journal article
File Information	kaisetu -.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

日本結晶成長学会誌
Vol. 39, No. 2（2012）

解説

ISS「きぼう」における氷の結晶成長とパターン形成実験

古川義純[1]・横山悦郎[2]・吉崎　泉[3]・島岡太郎[4]・曽根武彦[5]・友部俊之[6]

過冷却水中で成長する氷結晶のパターンは，成長条件によってきわめて薄い円盤状から，六方対称の発達した樹枝状まで大きく変化する．円盤結晶の形態不安定化とパターン形成の機構を解明するために，国際宇宙ステーション「きぼう」において氷の結晶成長実験を実施した．氷は，a 軸および c 軸方向への成長がそれぞれ付着成長と沿面成長に対応し，異方性の強い樹枝状結晶を生成する．これまで，樹枝の先端（a 軸方向）の成長速度は，極低過冷却（⊿T＝0.2 K 以下）では，遠方の過冷却度で決まる樹枝状成長の基本則からずれており，この原因は対流の影響であると解釈されていた．しかし，対流効果のない微小重力下でもこの“ずれ”が見られたことから，本質的な成長モードの違いであることがわかった．また，沿面成長する底面（c 軸方向）の成長については，臨界過冷却度（約 0.2 K）以下では成長しないことも初めて明らかになった．これらは，樹枝状成長の基本則は，氷のような異方性の強い結晶にはもはや適用できないことを意味しており，今後成長モードの異方性と成長により放出される潜熱の大きさの異方性を考慮した樹枝状成長のモデルのさらなる発展が必要である．

1. は　じ　め　に

雪や氷は，六方対称の整った美しい樹枝状結晶を作る．このため，結晶成長に伴う形態不安定化やパターン形成を議論するための試料物質として，多くの研究がなされてきている．両者は，同じ H_2O の結晶であることは言うまでも無いが，前者は水蒸気からの気相成長，後者は過冷却水からの融液成長で生成されるものに便宜上区別すると，その成長パターンにも異なる特徴が存在する．雪の結晶は，平らなベーサル面とプリズム面で囲まれた多面体結晶である[1]のに対し，氷の結晶ではベーサル面のみがファセット面として現れ，その他の結晶面は完全にラフな面となる．同じ物質の結晶であっても，成長環境によって形態不安定化やパターン形成のメカニズムが異なる．したがって，これらを比較研究することで結晶成長における形態不安定化やパターン形成のメカニズムの解明に大いに寄与することができるであろう．

結晶成長の実験を行う場合，結晶周囲に発生する対流は結晶の成長速度やモルフォロジーに大きな影響を与えるため，その効果を定量的に明らかにすることも重要である．また，この対流効果のために本来観察されるはずの興味深い現象がその影に隠されてしまっている可能性もある．雪の結晶については，1930 年代に Nakaya[2] によって行われた有名な人工雪の実験で得られた写真を見ても，結晶周囲の空気の流れによって結晶形が大きく影響を受けることは明らかである．のちに，Keller ら[3]は実際に一定速度の気流の中での雪結晶の成長実験を行い，流速と結晶成長速度や結晶形との関連を調べた．しかしながら，地上実験では大気の流れを完全に制御することは困難であり，雪の結晶の形態変化の理解にはさまざまな問題点が残されている[4]．

一方，本解説のテーマである氷の結晶についても状況は同様である．前述の中谷の研究室では，すでに 1950 年代初めには，シャーレに張った水面で成長する氷結晶のパターン発展をその場観察し，写真に収めている．この観察では，氷の結晶は成長初期には非常に薄い円盤状であり，やがて円盤の縁で形態不安定化が発生し，最終的に六方対称の樹枝状結晶が生成する様子を明確に示した[5]．これは，成長界面での形態不安定化を論じた最初のモデルとして知られる Mullins-Sekerka 形態不安定化[6]の論文発表よりも 10 年以上も先駆けていて，おそらく結晶成長におけるパターン発展をその場観察した最初の例と考えられる．Mullins-Sekerka モデル[6]は，結晶成長における形態不安定化の理解に大きなブレークスルーを与えたことは周知のことであるが，Sekerka によればこのモデルを考えることになったきっかけの一つは，氷のパターン形成の観察結果であったとのことである．

氷結晶のパターン形成に関する最初の本格的な実験・理論的研究は，Fujioka ら[7]による円盤の厚みは一定であると仮定して，円盤の縁で起きる形態不安定化を論じたモデルの構築である．さらに，Langer ら[8,9]は，氷の樹枝状結

[1] 北海道大学低温科学研究所　〒 060-0819 札幌市北区北 19 条西 8 丁目
[2] 学習院大学計算機センター　〒 171-8588 東京都豊島区目白 1-5-1
[3] 宇宙航空研究開発機構　〒 305-8505 茨城県つくば市千現 2-1-1
[4] 日本宇宙フォーラム　〒 101-0062 東京都千代田区神田駿河台 3-2-1　新御茶ノ水アーバントリニティビル 2 階
[5] 有人宇宙システム㈱　〒 300-0033 茨城県土浦市川口 1-1-26　アーバンスクエア土浦ビル
[6] IHI エアロスペース富岡事業所　〒 370-2398 群馬県富岡市藤木 900

晶の先端成長速度の過冷却度依存性を測定し，樹枝状成長ユニバーサルモデル[10]による理論予測と良く一致することを示した．これらの実験や理論では，基本的に氷結晶は，二次元または一様な厚みを持つ結晶であることを仮定して議論がなされていた．その後，Gill ら[11-13]が氷結晶の成長実験を行ったが，結晶パターンを二次元あるいは一様な厚みに単純化した解析はそのまま踏襲された．

1990 年代になると，氷結晶は本来三次元的に複雑な形状を持つことが，氷結晶の形態不安定化に重要な役割を果たすことが明らかになり，先端成長速度はユニバーサルモデルと一致するが，先端曲率（半径）についてはモデルとは著しく異なることが，指摘された[14-16]．

本解説では，2008 年 12 月から 3 カ月にわたり，国際宇宙ステーション ISS に設置された日本独自の実験モジュールである「きぼう」において実施された氷結晶のパターン形成実験の概要を紹介する．このテーマは，1994 年に ISS の日本実験モジュール（JEM）を利用する宇宙利用一次選定テーマの 1 件として選定されたものであるが，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の影響で大幅に遅延し，14 年後にようやく実現した．実験の実現に至るまでのさまざまな経緯については，すでにいくつもの解説が発表されている[17-21]ので，本解説では宇宙実験の結晶成長学的な成果の概要に焦点を絞り紹介する．

2. 氷結晶の形態不安定化の特徴

最初に，過冷却水中で自由成長する氷結晶のパターン形成の特徴をまとめておこう．図 1 は，成長過程の氷結晶の写真と三次元でのパターン発展の模式図である．成長初期には薄い円盤状を保ったままで成長する（安定成長領域）

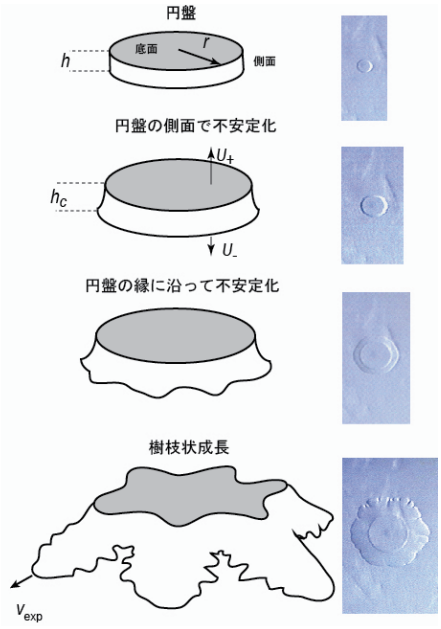


図 1　氷結晶の三次元パターン形成過程の模式図.

が，円盤の厚さがある臨界値に達すると円盤の縁で形態不安定化が発生し，最終的に六回対称の発達した樹枝状結晶へと発展（不安定成長領域）する．円盤状の形態は，ベーサル面のみが分子レベルで平らなファセット面であるのに対し，その他の面は完全なラフ面であることを示している．樹枝状パターンになっても，ベーサル面は常に平らであるが，上下の面のサイズが大きく異なっており，両者は連続した曲面で繋がれている．

氷の圧力融点降下を利用して，平衡に近い状態での氷結晶の形態の観察[22]では，−16 ℃以上では円盤状であるのに対し，この温度以下では六角板状に変化することが示された．すなわち，氷のプリズム面は，−16 ℃でラフニング転移を起こすが，ベーサル面では 0 ℃に至るまで，ラフニング転移は観察されない（ラフニング転移温度は 0 ℃以上）．氷の結晶成長実験は，通常は 1 気圧のもとで行われるので，結晶成長温度は 0 ℃にごく近い範囲に限定される．この条件では，ベーサル面を除くすべての結晶面は常に完全に荒れた状態にある．したがって，氷結晶のパターン形成は，ファセット面とラフ面が同時に存在するような特別な系で起きる形態不安定化の問題で，両者の相互作用を正しく考慮してモデルを構築することが要求される．

さらに，Shimada and Furukawa[16]は，干渉計を使って氷結晶の安定成長領域で観察される円盤結晶の半径方向の成長速度と厚み方向の成長速度を同時に測定した．その結果，円盤結晶の成長には，2 つのタイプが存在することが明らかになった．まず，タイプ I では，結晶の開始から結晶の半径方向と厚み方向に，それぞれ一定の速度で継続的な成長が観察される場合で，円盤の厚みが臨界値（h_c）に達すると円盤の縁に沿って形態不安定化が起きる．一方，タイプ II では，成長初期には厚み方向の成長はほとんど観察されず，半径方向の成長のみに継続的に成長する．しかし，この場合も成長の進行とともにベーサル面の成長が開始し，タイプ I と同様に円盤の厚みが h_c に達すると形態不安定化が起きた．すなわち，形態不安定化は円盤の半径ではなくその厚みに支配され，h_c は結晶の成長条件である過冷却度 ΔT に反比例することも明らかになった．また，円盤の縁での形態不安定化は，最初に厚み方向に非対称な形状を作って不安定化が生じ，これに引き続き円周方向に不安定化する（図 1）．これらの観察結果は，2 次元あるいは厚みの一定な結晶形を前提とした形態不安定化モデルではもはや説明することはできない．

3. 氷の円盤結晶と形態不安定化に関するモデル

前述の氷結晶の形態不安定化に関する最初のモデル[7]では，円盤の厚みは一定で変化しない場合について円盤の縁の安定性を議論し，円盤の半径が臨界値に達すると形態不安定化が起きるという結論を導いた．しかしながら，この結果は，円盤の厚みが縁の形態不安定化の臨界を与えるという実験結果とは完全に矛盾している．Yokoyama ら[23-24]

は，この実験結果をベースにして，プリズム面の成長機構とベーサル面の成長機構が異方性を持つことを考慮した新しい円盤成長モデルを提案した．このモデルでは，ラフ面である円盤の縁の面の成長は潜熱の拡散により律速され，この界面の温度は融点に等しいとした．一方，ベーサル面の成長は，ステップの運動による沿面成長により律速され，その面の中心における界面温度に依存するとした．ベーサル面の成長は側面に較べて非常に遅いので，この面の成長に伴って放出される潜熱は無視する．このような条件では，成長に伴う潜熱の放出はすべて円盤の縁で起きるため，円盤結晶の内部にも温度分布が生じる．すなわち，ベーサル面の温度は縁から面の中心に向かって低下するため，この面の中心で発生した成長ステップは，縁に向かって前進することになる．さらにこのステップの移動速度は縁に近づくほど低下するので，ベーサル面上でステップのバンチングが発生し，不安定化が誘起される．通常，多面体結晶を取り囲む平らな結晶面上での形態不安定化は，成長の駆動力が結晶面の縁で最大となる（ベルグ現象）が，円盤氷のベーサル面ではこれとは正反対の駆動力分布になっていることに注意が必要である．すなわち，平らな界面とラフな界面が共存することによる効果である．モデルの数理科学的な構造は，原論文を参照いただきたいが，荒れた界面に対する Mullins-Sekerka 形態不安定と平らな界面の形態不安定化とが相互作用するという，極めて興味深い特徴を持つ．

一方，Xu and Shimizu[25−26] は，樹枝先端に定常波振動が起きるとことを前提とするモデルを円盤結晶に適用して形態不安定化を論じた．すなわち，円盤の縁に沿って，半径方向と厚み方向に $r=R+\delta_z \sin k_z z+\delta_c \cos k_c z$ の形で与えられる振動をもとに円盤の縁の 3 次元形態不安定化を予測し，円盤の縁で最初に起きる形態不安定化のモードは，厚み方向に対称な凸型（樽型）やベーサル面が張り出した凹型モードではなく，非対称なモードがより不安定だと結論している．

以上のように，氷の円盤結晶の形態不安定化モデルは多くの理論研究者の興味を引いてきたが，一方でどのモデルが最も現実の氷結晶の形態不安定化を正しく表現しているかは十分な検証がなされていない．地上で行う実験では，結晶成長に伴う自然対流などの擾乱を排除することが極めて困難であるため，結晶のパターン発展の観察を行っても，その解析精度を十分に向上させることは困難である．氷結晶のように異方性の強い結晶では，結晶本来の異方性に起因する現象なのか，結晶周辺の擾乱に起因する現象なのかを区別することが難しいことにその原因がある．ここに，外界の擾乱を排除することが可能な微小重力環境で結晶成長実験を行うことの科学的な意義が存在し，特に結晶成長に伴うパターン形成の研究は，成長条件によっては 1 ～ 2 時間を越える観察時間が必要な場合も多いので，長時間微小重力環境が実現できる ISS の利用が必須である．

4. 宇宙実験用氷結晶成長装置の特徴

ISS「きぼう」において，実験を実施するために新たに氷結晶成長装置（Ice Crystal Cell）が開発された．氷結晶を成長させるための装置の基本概念は，図 2 に示した．氷の結成長システムは，円筒形の結晶成長セル（直径 24 mm，奥行 26 mm）と核生成セル（直径 10 mm 厚み 1 mm）を，ガラスキャピラリー（外径 1 mm）で結合してある．2 つのセルは，ペルチエ素子で独立に温度制御が可能であり，両者の設定温度の変更だけで，自由に氷結晶を成長させたり融かしたりすることができる．結晶成長の試料としては，重水（D_2O）を使うことを前提とした．重水を使うことで，融点（+3.8 ℃）が H_2O（0 ℃）よりも高いため冷却に要

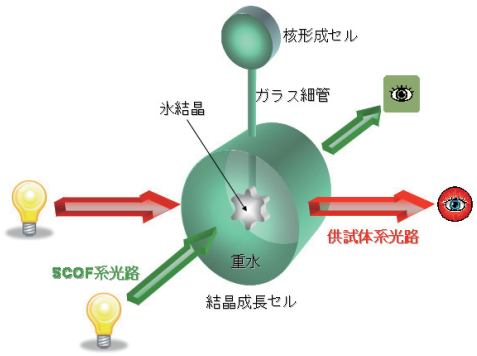


図 2　宇宙実験用氷結晶成長セルの概念図．

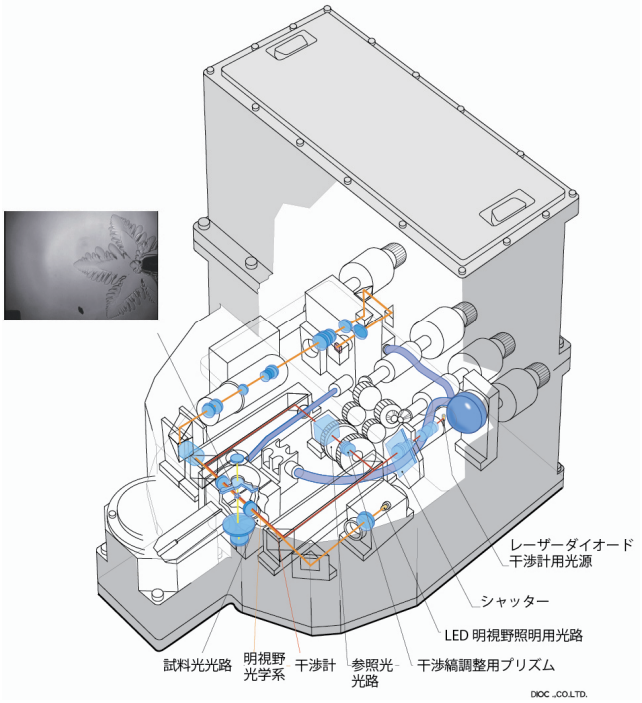


図 3　宇宙実験装置 Ice Crystal Cell の透視図．外寸は，25 cm × 30 cm × 21 cm．オリンパス提供．

する電力を節約できること，融点近傍での密度や屈折率の温度依存性が H_2O よりわずかであるが大きい[27-28]ために解析が有利になることなどの利点がある．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考慮して，地上からのコマンドのみですべての動作が可能であるように製作された．図3は，Ice Crystal Cell の内部構造を示す透視図である．

本装置は，「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，Ice Crystal Cell に内蔵されたマッハツェンダー型干渉顕微鏡と SCOF の干渉顕微鏡を同時に使って，直交する2軸で結晶成長過程のその場観察が可能である．これらの装置の詳細な説明は省くが，その優れた特徴だけをまとめておく．

(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．
(2) 核形成セルの急冷だけで氷結晶を発生でき，それらをガラスキャピラリー内で競合成長させることで，最終的に一個の結晶粒だけに絞り込むことができる．このため，成長セル内では1個の結晶粒のみが成長し，c軸方位はキャピラリーの軸に直交する確率が高い．
(3) 実験終了後，セルの温度を上昇させて氷結晶を融解するだけで，次の実験への準備が完了する．このため，さまざまな温度条件で何度でも繰り返し実験を行うことが可能．

5. 氷結晶成長の実験結果

5.1 ISS「きぼう」での実験

実験は，2008年12月から翌年の3月までのおよそ3か月間にわたって実施された．0.03 K から 2 K の間のさまざまな過冷却温度条件で，当初予定の110回を上回る134回の実験を繰り返すことができた．「きぼう」で取得された氷結晶成長を観察するビデオ画像は，実験の進行と同時に，明視野画像と干渉縞画像とを1～2秒おきに切り替えながらデジタルデータとして連続的に地上に送信される．「きぼう」内でも録画されているが，直接地上に持ち帰る手段はなく，地上で受信された動画がそのまま実験データとなる．

5.2 微小重力で得られた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 0.4 K 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，一部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て地上で実施された実験で得られた樹枝状結晶のスナップ写真であるが，対流効果のため主枝の長さは大きく異なっている．

宇宙実験で取得した画像データを概観すると，得られた

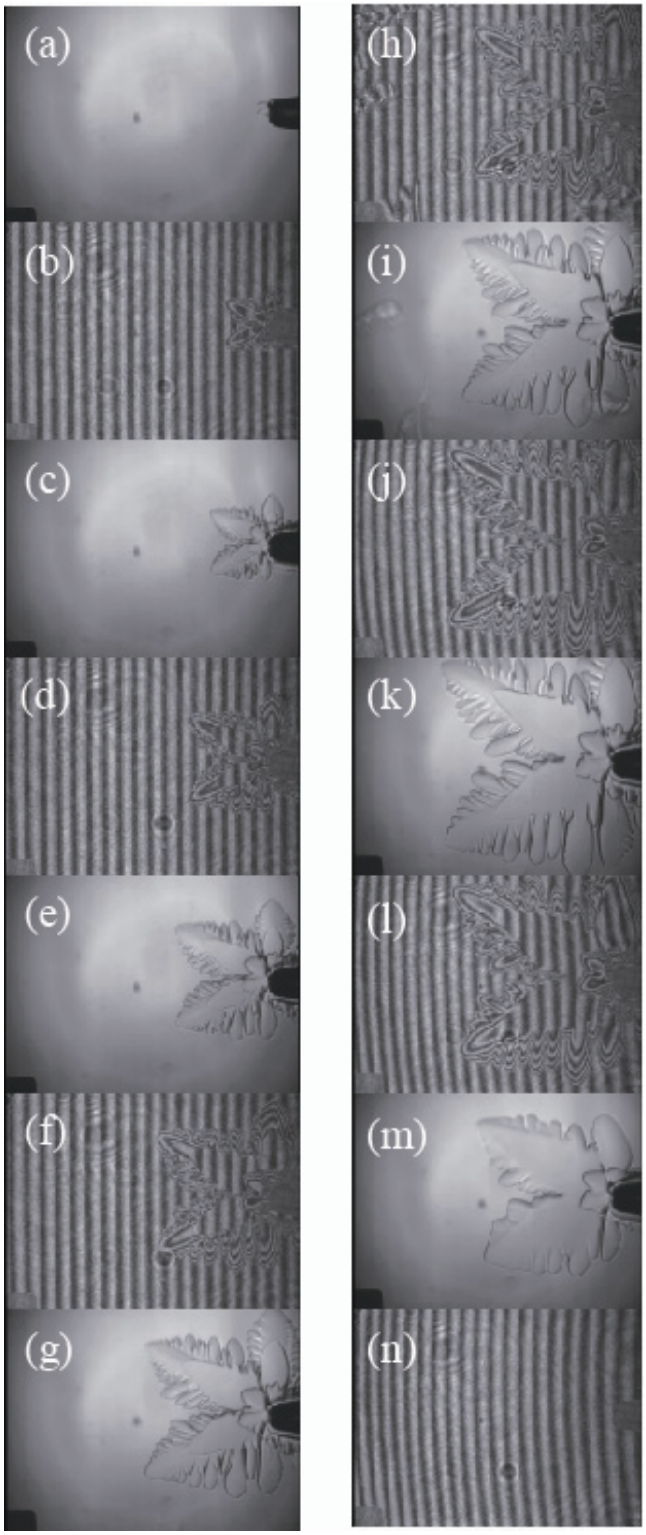


図4 「きぼう」実験で取得された氷結晶成長画像．過冷却度は，$\Delta T = 0.4$ K．明視野画像と干渉縞画像が交互に切り替わって，地上にダウンリンクされる．各写真の時間間隔は，およそ30秒．各画像サイズは，横幅 6.4 mm，高さ 4.8 mm．(a) から (h) までは，氷結晶の成長過程，(i) から (n) までは，融解過程を観察している．



図5　Ice Crystal Cell を使って地上で成長させた氷結晶．自然対流の影響で主枝の長さが大きく異なる．

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．ガラスキャピラリーの内径で結晶の厚みが決定されてしまう．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) 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影響が顕在化する．

(4) 宇宙実験では，融解過程においても対流の効果がないため，融解パターンの変化も観察可能であった．本解説では，詳細には触れないが成長時のパターン発展の逆経過とは明らかに異なっている．成長時と融解時のパターン変化についての解析も，重要である．

以上のように，「きぼう」で得られた氷結晶パターンには，地上とは異なる特徴が観察された．これらの特徴が何を意味するのかを詳細に解析することが極めて重要であるが，本解説では結晶成長速度の測定結果について紹介する[29]．

5.3　結晶成長速度の測定

動画から結晶の成長速度の時間変動を精密に測定するためには，時空間画像処理法（Space-time plot 法）と呼ばれる方法が有効である[30]．図6は，その一例で，(a) に示される写真にひかれた白線（a 軸方向）に沿った各画像の輝度値分布を抜き出し，すべての連続した画像についての輝度値分布（縦軸）を時間（横軸）に対してプロットする．この作業を行うことで，(b) に示されるような時空間断面画像を得ることができる．(b) のイメージで水平方向に縞模様が生じるのは，「きぼう」から得られた映像は明視野と干渉縞画像が一定時間ごとに切り替わるためである．この画像から樹枝先端の位置の時間変化を読み取ることができ，その微分をとることで樹枝先端の成長速度の時間変化が決定できる．

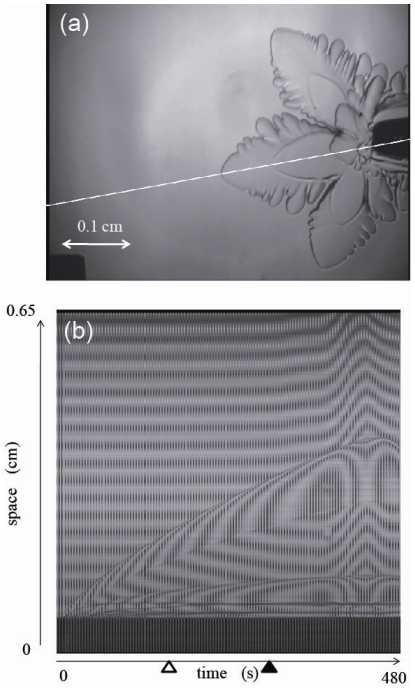


図6　(a) ΔT=0.3 K の条件で観察された氷結晶の成長パターン．a 軸方向成長速度（すなわち，樹枝先端成長速度）の解析のために白線で示す方向で時空間画像解析を行う．(b) 時空間解析画像．各画像で白線に沿った輝度値分布を取得し，対応する経過時間（横軸）の位置にその輝度値分布を縦軸方向にプロットすることで，この解析画像が得られる．△と▲の間で成長速度を測定した．

この様な画像処理法によりそれぞれの実験データを解析して，a 軸方向の成長速度の過冷却度依存性を求めた結果を図7に示す．成長速度の温度依存性を樹枝状成長理論と比較検討するため，横軸は$\Delta = \dfrac{T_M - T_\infty}{L/c_p}$で与えられる無次元過冷却度$\Delta$でプロットしてある．ここで，$T_M$ は氷結晶の融点，T_∞は結晶成長実験時の重水の温度，L は氷の単位体積当たりの凝固潜熱，c_p は比熱である．また，縦軸の成長速度も毛管長 d_0 と重水の熱拡散長 κ_T の比でスケー

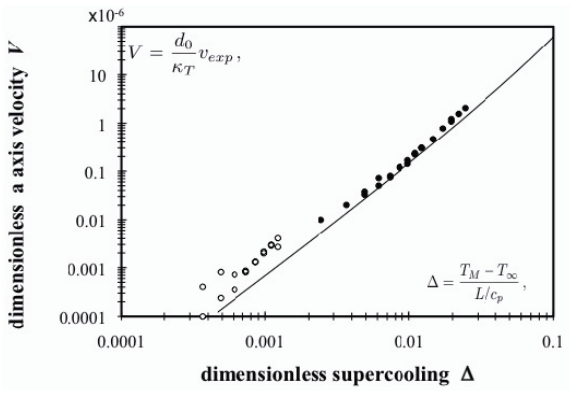


図7　a 軸方向成長速度の過冷却度依存性．過冷却度と成長速度は，理論と比較するために，無次元化されている．

ルされた無次元成長速度，$V=\frac{d_0}{\kappa_T}v_{exp}$ で与えられる．ここで，v_{exp} は a 軸成長速度の実測値，$d_0=\frac{\gamma c_p-T_M}{L^2}$ である．ここで，γ は等方性を仮定した界面張力である．それぞれのパラメータに重水に対する値を導入すると，図 7 に実線で示される理論曲線を決定することが出来る．実験結果と比較すると，$\Delta=0.002$ で理論予測と実験結果の関連が大きく変化する．すなわち，過冷却度がこの値より大きいと理論と実験が非常によく一致するのに対し，過冷却度が小さい領域では一致しない．この図で，黒丸と白丸は，ベーサル面の成長が観察された場合とされなかった場合に対応している．

一方，氷結晶の厚み h も干渉縞の運動を時空間プロット法で解析することにより，測定可能である．図 8 は，過冷却温度 $\Delta T=T_M-T_\infty$ に対する厚みの変化率 dh/dt を示している．dh/dt のスロープは，$\Delta T=0.5$ K の前後で 2 から 1 に明らかに減少しており，この温度でベーサル面の成長機構が 2 次元核成長から付着成長へと変化したことを示唆している．また，特筆すべきことは，$\Delta T<0.2$ K の領域では，ベーサル面の成長は観察されなかったことである．この $\Delta T=0.2$ K は，無次元過冷却温度に換算すると，$\Delta=0.00245$ となる．以上の結果は，図 7 で示した a 軸成長速度が，ベーサル面の成長カイネティクスにより強く影響されていることを示す．

また，今回の実験で使った干渉計では，2 つのベーサル面の成長速度を独立に解析することは原理的に不可能であるが，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 倍になったり，また 1/2 に減少したり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 dh/dt 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（すなわち，$\frac{dh}{dt}=|U_+(t)|+|U_-(t)|$，ここで U_+ および U_- は図 1 参照）ので，この観察結果は 2 つのベーサル面が必ずしも均等に成長するわけではなく，どちらか片面だけ成長する場合が存在することを示している．すなわち，ベーサル面の成長は必ずしも均等ではなく，Yokoyama ら [23−24] 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．

また，円盤の縁の形状の発展 [31] や樹枝先端の曲率半径 [32] についても解析が行われたが，詳細はそれぞれ原論文を参照していただきたい．この宇宙実験で得られたデータは今後一般に公開され，さらに詳細な解析に活用される予定である．

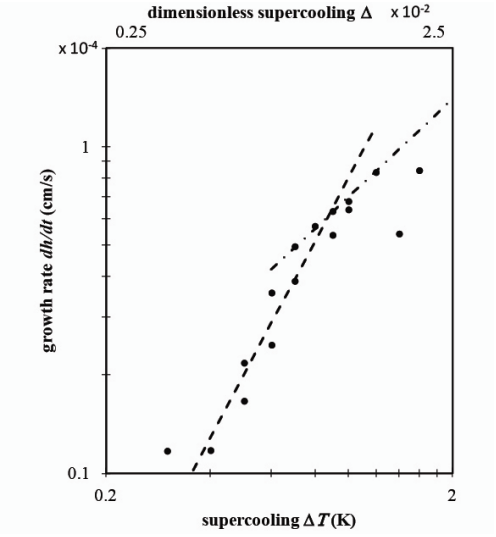


図 8　結晶の厚みの増加速度の過冷却度依存性．

6. むすび

ISS「きぼう」の運用開始後，最初の結晶成長実験として，過冷却水中での氷結晶成長実験を実施した．「きぼう」での実験は，地上の管制室から制御コマンドが送信されると，ほぼ数秒後に結果が反映された映像が手元に届くなど，我々が地上の実験室で日常行っているとほとんど同じ感覚でその場観察が可能である．すなわち，我々は結晶成長実験にきわめて有力な，長時間微小重力環境と言う新しい実験手段を手に入れたことになる．宇宙実験のための装置開発には，依然として長い時間と多額の費用がかかることは確かであるが，宇宙実験はもはや夢物語ではない．この環境を利用した新しい視点での結晶成長実験が，今後とも継続的に実施されることを期待したい．

最後に，氷は融液成長機構や結晶のパターン形成機構の研究を行う上での典型的な試料物質であることは本解説の冒頭で述べたが，一方で氷は地球の寒冷圏に普遍的に存在するユビキタスな物質でもあることを強調しておきたい．氷の結晶成長（広い意味では，相転移現象）は，このような環境で起きるさまざまな自然現象や環境現象を駆動している．すなわち，氷の結晶成長の研究は，単に結晶成長学の発展に寄与するだけではなく，地球科学・環境科学など幅広い分野に関連し，極めて普遍性の高いものである．宇宙実験による氷結晶成長の研究は，日本独自のテーマであり，今後のさらなる発展を期待したい．

謝　辞

本宇宙実験を実施するにあたり，計画立案から運用にいたるまで，多くの皆様から支援を頂いた．特に，真木孝雄氏，山本明日佳氏（オリンパス）の両氏には，実験装置開発に尽力いただいた．また，Prof. Robert F. Sekerka（Carnegie Mellon Univ.）には，理論面のサポートを頂いた．これらのすべての皆様の夢と情熱がなければ本実験の成功はなかったことを明記して謝辞とする．

参 考 文 献

1） 黒田登志雄：*結晶は生きている―その成長と形の変化のしくみ―*（サイエンス社，1984）.
2） U. Nakaya: *Snow Crystals*（Harvard Univ, Press, 1954）
3） V. W. Keller and J. Hallett: J. Crystal Growth, **60**（1982）91
4） Y. Furukawa and J. S. Wettlaufer: Physics Today, **60**-12（2007）70
5） K. Arakawa and K. Higuchi: J. Fac. Sci. Hokkaido Univ., Ser. II, **4**（1952）201
6） W. W. Mullins and R. F. Sekerka: J. Appl. Phys., **35**（1964）444
7） T. Fujioka and R. F. Sekerka: J. Cryst. Growth, **24/25**（1974）84
8） J. S. Langer, R.F. Sekerka, and T. Fujioka: J. Cryst. Growth, **44**（1978）414
9） T. Fujioka: Study of ice growth in slightly undercooled water, Doctoral Thesis, Department of Metallurgy and Material Science, Carnegie Mellon Univ.（1978）
10） J. S. Langer and H. Müller-Krumbhaar: Acta Metall., **26**（1978）1681, 1689
11） S. H. Trimizi and W. N. Gill: J. Cryst. Growth, **85**（1987）488
12） S. H. Trimizi and W. N. Gill: J. Cryst. Growth, **96**（1989）277
13） K. -K. Koo, R. Ananth, and W. N. Gill: Phys. Rev., A**44**（1991）3782
14） Y. Furukawa and W. Shimada: J. Cryst. Growth, **128**（1993）234
15） W. Shimada: Experimental studies on the pattern formation in growth of ice crystals. Doctoral Thesis, Hokkaido Univ.,（1995）
16） W. Shimada and Y. Furukawa: J. Phys. Chem., B**101**（1997）617
17） 吉崎　泉：日本マイクログラビティ応用学会誌，**27**（2010）18
18） 古川義純，横山悦郎，吉崎　泉，依田眞一，田中哲夫，島岡太郎，曽根武彦，友部俊之：日本マイクログラビティ応用学会誌，**27**（2010）24
19） 島岡太郎：日本マイクログラビティ応用学会誌，**27**（2010）37
20） 曽根武彦，安部裕喜子：日本マイクログラビティ応用学会誌，**27**（2010）46
21） 古川義純：化学，**64-8**（2009）38
22） M. Maruyama, Y. Kishimoto, and T. Sawada: J. Cryst. Growth, **172**（1997）521
23） E. Yokoyama, R. F. Sekerka, and Y. Furukawa: J. Phys. Chem., B**104**（2000）65
24） E. Yokoyama, R. F. Sekerka, and Y. Furukawa: J. Phys. Chem., B**113**（2009）4733
25） J. J. Xu and J. Shimizu: Discrete Continuous Dyn. Syst., B**4**（2004）1091
26） J. J. Xu and J. Shimizu: Commun. Pure Appl. Anal., **3**（2004）527
27） A. G. Notcovich, I. Braslavsky, and S. G. Lipson: J. Cryst. Growth, **198/199**（1999）10
28） I. Braslavsky and S. G. Lipson: Physica, A**249**（1998）190
29） E. Yokoyama, I. Yoshizaki, T. Shimaoka, T. Sone, T. Kiyota, and Y. Furukawa: J. Phys. Chem., B**115**（2011）8739
30） Y. Furukawa, E. Yokoyama,Y. Nishimura, J. Ohtsubo, N. Inohara, and S. Nakatsubo: J. Jpn. Soc. Microgravity Appl., **21**（2004）196
31） S. Adachi, I. Yoshizaki, T. Ishikawa, E. Yokoyama, Y. Furukawa, and T. Shimaoka: Physical Review E, **84**（2011）051605
32） I. Yoshizaki, T. Ishikawa, S. Adachi, E. Yokoyama, and Y. Furukawa: Microgravity - Science and Technology,（2012）DOI: 10.1007/s 12217-012-9306-9

（2012 年 5 月 9 日受理）

Review

Ice Crystal Growth and Pattern Formation Experiments Conducted in KIBO of ISS

Yoshinori Furukawa[1], Etsuro Yokoyama[2], Izumi Yoshizaki[3], Taro Shimaoka[4], Takehiko Sone[5], and Toshiyuki Tomobe[6]

Microgravity experiments on the morphological instability and pattern formation of ice crystals growing in the supercooled heavy water were carried out in the Japanese Experiment Module KIBO of the International Space Station in the period from December 2008 to March 2009. The velocities of dendrite tips parallel to the a-axis and the growth rates of basal faces parallel to the c-axis were analyzed in the same time under supercooling conditions from 0.03 to 2 K. The tip velocities of dendrite agreeed with the theory for larger amounts of supercooling when the growth on the basal faces was not zero. The combined effect of tip velocity and basal face kinetics on pattern formation during the ice growth was discussed.

[1] Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University, Kita-19 Nishi-8, Kita-ku, Sapporo, 060-0819 Japan
[2] Computer Centre, Gakushuin University, 1-5-1 Mejiro, Toshima-ku, Tokyo, 171-8588 Japan
[3] Japan Aerospace Exploration Agency, 2-1-1 Sengen, Tsukuba, Ibaraki, 305-8505 Japan
[4] Japan Space Forum, Shin-Ochanomizu Urban Trinity Bldg. 2F, 3-2-1, Kandasurugadai, Chiyoda-ku, Tokyo, 101-0062 Japan
[5] Japan Manned Space Systems Corporation, 1-1-26 Kawaguchi, Tsuchiura, Ibaraki, 300-0033 Japan
[6] Tomioka Branch, IHI AEROSPACE Co.,Ltd, 900 Fujiki, Tomioka, Gunma, 370-2398 Japan