

IIII 身近な宇宙，落下塔による微小重力実験 IIIII
(解説)

落下塔を活用したホットディスク法による金属融液の
熱伝導度測定における対流効果の検証

永井 秀明

Verification of Convection Effect on Thermal Conductivity Measurement of Molten Metals by Hot-disk Method using Drop Tower

Hideaki NAGAI

Abstract

Microgravity circumstance is useful for measurement of thermal conductivity of molten metals, because thermal convection is suppressed. To measure the thermal conductivities of molten metals systematically under microgravity, it needs many chances for the microgravity experiments. The short-duration microgravity of drop tower experiments is suitable for this purpose. In this study, the thermal conductivities of several molten metals were measured by hot-disk method under short-duration microgravity of drop tower experiments to study the influence of convection, limitation of time and space. In addition, the thermal conductivities of molten metals without convection effect were compared with those derived from Wiedemann-Franz law. The thermal conductivities of Hg and Bi melts were good agreement with those derived from Wiedemann-Franz law, but those of Sn, Si and InSb melts were different from those derived from Wiedemann-Franz law.

Keyword(s): Thermal conductivity, Molten metal, Hot-disk Method, Drop tower, Convection

1. はじめに

近年，コンピュータの性能の進歩のおかげもあり，様々な物理現象をシミュレーションにより解き明かす計算科学が急速に進歩している。その中で，鋳造や溶接，単結晶育成などの融体が関与する製造プロセスは，物質移動とともに熱の移動の管理が生成物の性状，ひいては物性に影響を与えるため，厳密な管理が必要な分野の一つである。この分野はこれまでは経験的，あるいは半経験的に熱移動の制御を行っており，スケールアップや複雑形状に対応するために，シミュレーションによる効率化や設計へのフィードバックの期待が高まっている。ただし，シミュレーションを行うためには，(1)初期条件，(2)対象物の熱物性値が必要である。精度の高いシミュレーションを行うためには，熱物性値として信頼性が高いものが必要であり，シミュレーション結果に多大な影響を与える。このため，例えば，Si デバイスメーカーへのアンケートを元に，固体および液体（すなわち，融液）の Si 熱物性値の重要度について調べた結果，まだまだ融液状態の熱物性値が十分ではないとの意見が寄せられている¹⁾。また，欧州では，次世代ジェットエンジンタービ

ンブレードなどを対象とした，高温融体熱物性計測のプロジェクトが行われてきており²⁾，最近における国際宇宙ステーションでの高温融体熱物性計測に発展してきている。その中でも，Si を初めとする金属融液の熱伝導度については，熱移動を司る重要なパラメータであり，注目度は高い。

金属融液の熱伝導度測定の歴史を紐解いてみると，その測定のひとつが 1960 年代から 1970 年代に行われており，Y. S. Touloukian らがまとめた金属や合金の熱伝導度についてはいまでもこの値が推奨値として用いられている場合が多い³⁾。この当時，測定法の主役は平行平板型に代表される定常法である。この方法はフィックの法則に従った測定法であり，熱移動の定常状態を達成するために長時間の測定時間を必要とする。そのため，固体試料では問題とならない熱対流の影響が金属融液では顕著に現れる。当時の測定でこのことに触れた記述は皆無であり，今一度検証の必要性がある。この熱対流の効果を無視できる環境として，微小重力環境が挙げられる。この微小重力環境下で金属融液の熱伝導度測定を系統的に行えば上記の問題に明確な答えを与えてくれると考えられる。既に中村らが航空機やロケットによる弾道飛行，

産業技術総合研究所 先進製造プロセス研究部門 〒305-8565 茨城県つくば市東 1-1-1 中央第 5
National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Advanced Manufacturing Research Institute,
Central 5, 1-1-1 Higashi, Tsukuba, Ibaraki 305-8565, Japan.
(E-mail: hideaki-nagai@aist.go.jp)

大型落下シャフトによる自由落下を用いた微小重力環境下で液状金属の熱伝導度を測定し、微小重力の効果について議論をしている⁴⁻⁶⁾。ただし、これらの大型の設備を必要とする微小重力環境を利用できる機会は限られており、系統的な議論をするにはより多くの機会が必要である。一方、比較的小型の落下塔は、本格的な宇宙実験の補助的設備として考えられており、微小重力時間は0.5~1s程度であるが、繰り返し性に優れている。このため、上記の目的に使用できれば系統的な測定が可能となる。また、対流の影響を排除するという観点では、静磁場を用いたHgの熱伝導度測定^{7,8)}や電磁浮遊と静磁場を組み合わせた無容器下でのSi融液等の熱伝導度測定^{9,10)}などの擬似微小重力環境下での報告もなされている。

本研究では、繰り返し測定の可能な小型落下塔を用いた短時間微小重力環境下で室温から高温までの幅広い金属融液の熱伝導度を系統的に測定するための測定方法を開発してきた¹¹⁻¹⁴⁾。短時間微小重力環境としては、産業技術総合研究所、北海道センターで保有している10m落下塔(2重カプセル方式、微小重力時間:1.4s、微小重力の質:10⁻³G)を用いた(Fig. 1)。微小重力下での熱伝導度の測定方法としては、コンパクトかつ堅牢で、1s程度で測定が可能な方法としてホットディスク法を用いた。ここでは、落下塔を活用したホットディスク法による熱伝導度測定の信頼性に強い影響を及ぼす対流の効果を中心に検証を行うことを目的としている。更に、無対流下で得られた金属融液の熱伝導度とWiedemann-Franz則との比較を行った。



Fig. 1 AIST 10m drop tower.

2. 実験方法

2.1 ホットディスク法

ホットディスク法は、熱伝導度測定法の非定常法の1つであり、主に絶縁固体の熱伝導度測定に用いられている細線加熱法(ホットワイヤー法)と類似点は多い。ホットワイヤー法は、センサー部である細線をステップ状に通電加熱し、その時の細線の温度変化が外部環境、すなわちセンサー周辺に存在する測定対象である試料の熱物性によって変化する挙動を解析解と照らし合わせて熱伝導度を求める方法である。ホットディスク法では、そのセンサー部が金属薄膜で2重螺旋状に加工されており、あたかも円盤状の発熱体(ホットディスク)として機能し、通電加熱で得たセンサーの温度変化を検出する役割も担っている。2重螺旋状になっているため、ホットワイヤー法に比べてセンサー部がコンパクトになり、金属融液の熱伝導度測定時の融液量の減量、すなわち小型化にも役立っている。また、センサー部の金属箔は絶縁膜で覆われており、電気伝導性のある金属融液の熱伝導度測定にも対応できる。

ここではホットディスク法の測定原理の概要について説明する。測定原理の詳細については別の文献を参考にして欲しい^{15,16)}。

ホットディスク法では、ホットディスクセンサーに一定電流を通電することによって発熱させ、その時のホットディスクセンサーの温度変化と相関のある電気抵抗変化を測定する。ホットディスクセンサーの電気抵抗の時間依存性は次のように表すことができる。

$$R(t) = R_0 \left[(1 + \alpha \Delta T_i) + \alpha P_0 \left(\pi^2 d \lambda \right)^{-1} D(\tau) \right] \quad (1)$$

$R(t)$: 時間 t におけるホットディスクセンサーの電気抵抗

R_0 : 測定前のホットディスクセンサーの電気抵抗

α : ホットディスクセンサーの電気抵抗の温度依存性

ΔT_i : ホットディスクセンサーの金属薄膜と絶縁膜表面との温度差

P_0 : 全出力

d : ホットディスクセンサーの半径

λ : 測定試料の熱伝導度

$D(\tau)$: 無次元時間 τ に依存したホットディスクセンサーの温度上昇の理論解の無次元関数

このように、ホットディスクセンサーの電気抵抗変化は只1つの無次元時間 τ の関数として表すことができる。 τ は(2)式のように表すことができる。

$$\tau = \left(\frac{t}{\theta} \right)^2, \quad \theta = \frac{d^2}{\kappa_s} \quad (2)$$

θ : Characteristic time

κ_s : 測定試料の熱拡散率

θ が(2)式によって導かれる値の時、(1)式の $R(t)$ と $D(\tau)$ の間には直線関係が成り立つことから、その直線の傾きから試料の熱伝導度 λ を求めることができる。その際に(1)式

が最も直線に近くなるように無次元時間 τ を変化させて $D(\tau)$ が決定される。実際の解析では、(1)式が最も直線にフィッティングできるように θ 値を変数として計算している。また、その時の θ 値から試料の熱拡散率が求められる。解析に用いられる測定時間は、熱伝導度と熱拡散率を同時に求める場合には θ 値の概ね 0.5 倍～1 倍が適切である。ただし、その範囲を大幅に外れる場合でも、単位体積あたりの比熱 ρC_p (ρ :密度, C_p :比熱)を既知として代入することで、熱伝導度を求めることができる。この時、熱拡散率は、 $\lambda = \rho C_p \cdot \kappa_s$ の関係より従属的に決定される。

通常、熱伝導度を理論的に解析する際には試料は無限に大きいものとして取り扱うが、現実には試料はある有限の大きさを持っている。そのため、解析するには試料サイズに適した測定範囲が存在する。ホットディスク法では、ホットディスクセンサーから発生した熱が試料内を伝わり、その熱が試料の末端まで届かない範囲で測定することを想定している。測定中にホットディスクセンサーから発生した熱が試料中を伝わった距離を「プローブ深さ(Δ_p)」と呼び、(3)式のように表される。

$$\Delta_p = \beta(\kappa_s t)^{\frac{1}{2}} \quad (3)$$

有限の大きさを持つ試料の場合には測定に使用できる範囲を判断する際に使用し、 β は定数で通常は $\beta=2$ が用いられている。

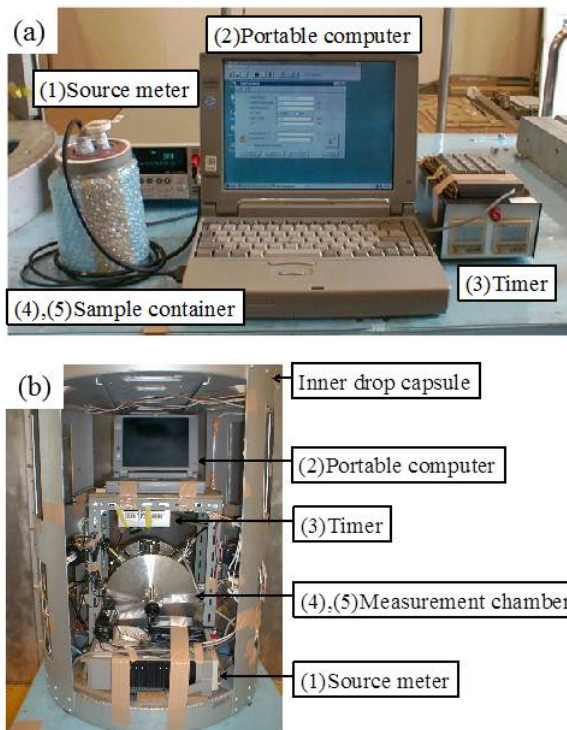


Fig. 2 Hot-disk equipment for drop tower experiments. (a):System components of hot-disk equipment. (b):Set up configuration of drop tower experiments.

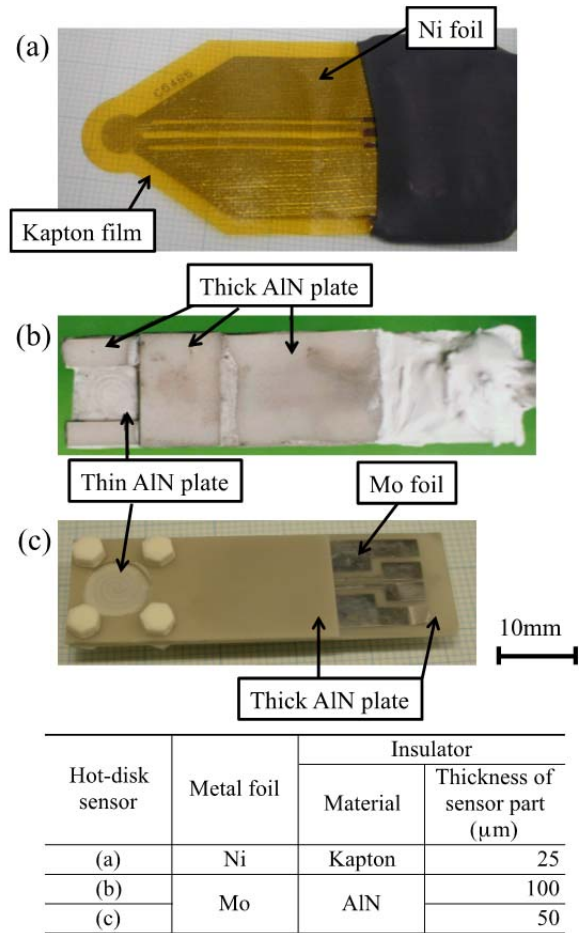


Fig. 3 Hot-disk sensors for thermal conductivity measurement of molten metals.

2.2 実験装置

ホットディスク装置の外観図を **Fig.2(a)**に示す。計測部は、(1)電流供給源と電圧測定器を兼ねたソースメーター (Keithley 2400) と(2)機器制御とデータ記録・解析を兼ねたノート型コンピュータ、(3)測定開始用タイマーからなる。測定部は、基本的には、(4)試料容器と(5)ホットディスクセンサーからなり、必要に応じて温度制御用の電気炉や雰囲気制御用のチャンバーを用意した。**Figure 2(b)**は、落下塔実験用の内カプセルに搭載した様子を表している。今回、使用したホットディスクセンサーは、室温付近での測定は、半径 3.2mm の Ni 箔製カプトン被覆ホットディスクセンサー (市販品) であり、200℃以上の温度域では、半径 2.75mm (熔融 Si 用) と半径 3.05mm (その他) の Mo 箔製 AlN 被覆ホットディスクセンサー (筆者製作) を用いた (**Fig. 3**)。

2.3 実験試料及び手順

本実験に用いた試料を **Table 1** に示す。Hg の場合は、室温で液体のため、スチロール容器 (内径約 40mm) に入れた試料にホットディスクセンサーを垂直に差し込ん

Table 1 Sample list for drop tower experiments of thermal conductivity measurements.

Sample	Product company	Purity
		(%)
Hg	Wako Pure Chemical	99.5
Bi	Wako Pure Chemical	99.999
Sn	Wako Pure Chemical	99.999
Si	Shin-Etsu Handotai	99.99999999
InSb	Koujyundo Chemical	99.999

で液漏れしないように 2 重にシールしたものを測定部とした。それ以外の試料の場合は、内径 17mm、高さ 50-60mm のタンマン管（ニッカトー製、材質：アルミナ [SSA-S]）にホットディスクセンサーを挿入し、ホットディスクセンサーがタンマン管の直径の中心にある状態で、熔融時にホットディスクセンサーの測定部である二重らせん部が十分に浸漬するだけの試料を隙間にまんべんなく入れた。それを雰囲気制御型電気炉に入れ、真空排気後にアルゴンガスで置換した。その後、所定の温度まで加熱を行った。電気炉を用いた温度制御を行う場合には、熱対流の影響を抑制するために、試料上部が下部より温度が高くなるように試料配置を調整した。また、熱伝導度測定では、測定前の熱的安定状態が基本となるため、温度が一定になってからの保持時間を 5-10 分程度設けた。落下塔実験では、測定時にホットディスクセンサーから発する熱による試料融液の擾乱を抑制するために落下後 0.1s 程度経ってから熱伝導度測定を行った。常重力下の実験もほぼ同様の構成、手順で行った。

3. 結果及び考察

3.1 落下塔を用いたホットディスク法における熱伝導度測定の信頼性の検証

まず、熱伝導度を正確に測定する上で、対流の影響が抑制されているかどうかを議論しておくことは重要である。微小重力環境を考えた場合には、密度差による熱対流とともに表面張力差によるマランゴニ対流も重要な要素である。

Figure 4 は、代表的な測定時のホットディスクセンサーの電気抵抗変化を示している。常重力下における測定では、典型的な電気抵抗値の上昇パターンを示しており、この結果だけでは対流の影響について議論はできない。一方、微小重力下では、測定初期においては常重力下と比較してわずかに高い値を示している。このことから、微小重力下では測定初期において何らかの原因でホットディスクセンサー周辺の熱伝導度が低下していることがわかる。ここで考えられる主な原因は、(1)試料融液の対流の抑制と(2)ホットディスク界面での気泡の発生による被覆である。どちらも見かけ上の熱伝導度の低下に寄与するが、測定結果だけからこれらを判断することはでき

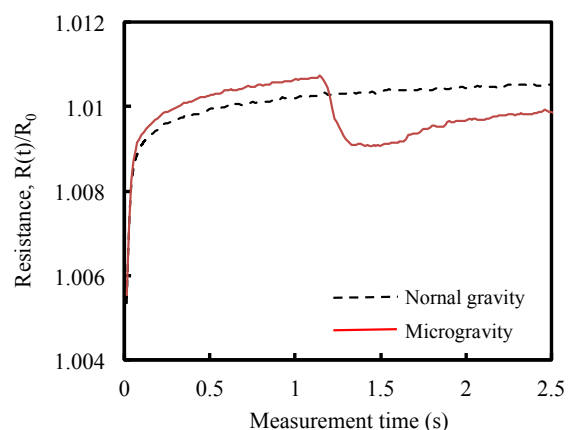


Fig. 4 Typical plots of resistance profile of hot-disk sensor as a function of measurement time for molten InSb at 977 K.

ない。特に(2)については、Hg 以外的高温融液を用いる場合にはその反応性の高さから注意が必要である。本研究の場合、高温測定に用いたホットディスクセンサーの被覆材には耐食性の高い AlN を用いており、Si 融液の場合にはわずかに反応生成相ができてはいるが¹²⁾、ほとんどの試料融液とは反応していない^{13,14)}。また、測定温度範囲も試料融液の蒸気圧の低い範囲で行っており、気泡の発生する要因はほとんどない。このことから、微小重力下における試料融液の熱伝導度の低下は、(1)試料融液の対流の抑制の影響によるものと考えられる。また、微小重力環境が終了する 1.3s 付近においては大幅な電気抵抗値の減少が見られ、制動時における過重力による熱対流及び振動による攪拌の効果によって試料融液の見かけ上の熱伝導度が増加したためと考えられる。

対流の効果の内、熱対流に関しては、Krishnamurti の報告では、いずれの液体においてもレイリー数 Ra が 1700 未満の時には無対流であることが示されている¹⁷⁾。

$$Ra = \left(\frac{g\beta}{\kappa\nu}\right) \Delta T \cdot l^3 \quad (4)$$

g : 重力加速度

β : 熱膨張係数

κ : 熱拡散率

ν : 動的粘性率

ΔT : 温度差

l : 試料容器の半径

落下塔で得られる $10^{-3}G$ 環境での Table 1 で示された試料の熱伝導度測定時のレイリー数の代表値を Table 2 にまとめた。これらの試料のレイリー数は、試料容器の大きい Hg で 140 程度、その他の試料では 10 未満であり、落下実験中には熱対流の影響は皆無であると言って良い。

もう 1 つの対流であるマランゴニ対流については微小重力下でその影響が顕在化すると考えられる。多くの場合には、駆動力である自由界面を極力減らす方向での対応を行うに留まっており、定量的な評価を行うには至っ

Table 2 Data for calculating Ra

Sample	Temperature	Thermal expansion coefficient ^{a)}	Thermal diffusivity ^{b)}	Kinematic Viscosity ^{c)}	ΔT	Ra
	(K)	(10^{-4} 1/K)	(10^{-6} m ² /s)	(10^{-6} m ² /s)		
Hg	295	1.80	3.9	0.12	4.5	136.
Bi	997	1.40	12.8	0.1	8.8	5.
Sn	977	0.99	23.5	0.144	5.8	1.
Si	1713	1.59	17.8	0.315	6.9	1.
InSb	977	1.16	14.4	0.254	8.7	1.

- a) These data were estimated from density data (refs. 18-20).
 b) These data were measured by the hot-disk method in microgravity (refs. 11-14).
 c) Refs. 18,20 and 21.

ていない。しかし、自由界面は試料容器の開口部のみであり、仮にマランゴニ対流が起こった場合でも 1s 程度の短時間微小重力環境下では試料融液の上部のみに限定されるため、熱対流ほど顕著な影響は現れないと考えられる。

これらの考察より、落下塔による短時間微小重力下では、対流の影響は無視し得るほど小さいと考えて差し支えないと考えられる。

次に、ホットディスク法の測定条件を検証した。ホットディスク法では、通常、試料の大きさや熱拡散率によってホットディスクセンサーの半径や出力、測定時間を最適になるように選択することで、幅広い熱伝導度の測定領域を確保している。しかし、落下塔による実験では、測定時間や実験装置上の試料サイズの制約により自由度が制限されており、測定結果の信頼性に影響を与える。

そこで、**Table 1** で示した試料について、微小重力下で測定した熱拡散率の値を用いて、測定結果の信頼性を判断するのに必要な(2)式及び(3)式の値を求めた。測定範囲の最低温度と最高温度での結果を **Table 3** に示す。落下塔による測定で利用可能な時間は[落下時間(1.4s)]-[待ち時間(0.1s)]=1.3s であり、いずれの試料融液においても解析の目安である θ 値の概ね 0.5 倍~1 倍が範囲に入っている。

また、ホットディスク法では、測定したデータを(1)式にフィッティングして直線の傾きから熱伝導度を求める。実際の計算においては、**Fig. 5** に示すような直線関係の成り立つ領域とプローブ深さ Δ_p を参考にして測定範囲を限定して再度計算を行う。この時、計算値と実測値の差分のばらつき具合を確認しながら直線性の妥当性を判断する。概ね抵抗値の比のばらつきが 10^{-6} 程度(温度で換算したばらつきとして 10^{-3} K 程度)以下であれば直線と見なせる。ほとんど場合、このばらつきが上記の範囲に収まるように **Table 3** に示すように測定データの範囲を選択している。また、直線の妥当性を判断するために少なくとも 20 個程度のデータ点数が必要であると考えられている。ホットディスク法で最小の測定時間を選択した場合、全体の測定時間は 2.5s であり、この間に 200 点のデータを採取することができるため、データの取得間隔は 0.0125s

Table 3 Data for calculating θ and Δ_p .

Sample	Temperature	Thermal diffusivity ^{a)}	Characteristic time (θ)	Measurement area		Probing depth(Δ_p) ($t=1.3s$)
				Start point	End point	
	(K)	(10^{-6} m ² /s)	(s)	(s)	(s)	(mm)
Hg	285	3.7	2.74	0.25	1.20	4.4
	295	3.9	2.63	0.25	1.20	4.5
Bi	571	8.6	1.08	0.05	1.00	6.7
	1083	13.5	0.69	0.05	1.00	8.4
Sn	521	14.6	0.64	0.05	0.60	8.7
	1083	26.5	0.35	0.05	0.60	11.7
Si	1690	16.9	0.55	0.80	1.20	9.4
	1713	17.8	0.52	0.80	1.20	9.6
InSb	824	14.6	0.64	0.05	1.00	8.7
	977	14.4	0.65	0.05	1.00	8.7

- a) These data were measured by the hot-disk method in microgravity (refs. 11-14).

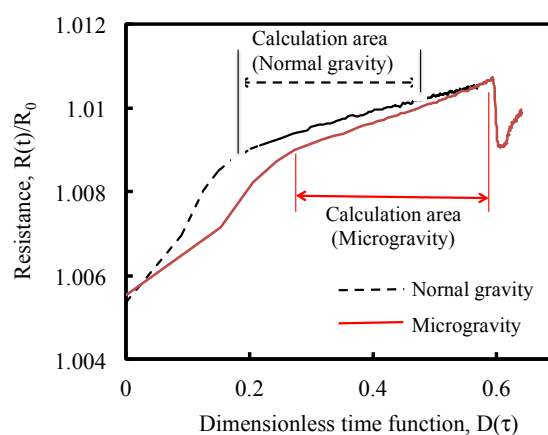


Fig. 5 Typical plots of resistance profile of hot-disk sensor as a function of dimensionless time function for molten InSb at 977K.

となる。このことから、20 個のデータ取得にかかる時間は 0.25s に相当し、少なくともこれ以上の測定時間が確保できる必要がある。これも全ての試料で満たされている。ただ、Si 融液の測定の場合に関しては、ホットディスクセンサーの絶縁層の厚みの問題で測定範囲が θ 値から大きく外れた領域しか利用できず、単位体積当たりの比熱の代入が必須であることがわかる。実際には、Bi や Sn 融液については、測定範囲のデータ点数で熱伝導度と熱拡散率を同時に求めることが理論上は可能であるが、原因不明なノイズなどによるデータ自体のばらつきが大きかったため、体積当たりの比熱の文献値を活用して、計算式の直線性の向上を図っている。

プローブ深さ Δ_p については、微小重力時間の 1.3s を用いて計算しているが、Si 融液と高温域の Sn 融液を除いてほとんど試料内に収まっていた。上記の 2 点については測定時間を短くすることで実質的な Δ_p を短くして解析を行っており、解析に支障の無いデータ点数は確保できている。

このようにホットディスク法で金属融液を短時間微小重力下で測定した場合、測定条件の観点からも問題なく測定が可能であることがわかった。一方、熱拡散率の高い Sn や Si 融液では測定データ数がかなり少なくなっており、単位体積当たりの比熱を代入しなければならなかったことを考えると、許容可能な範囲でホットディスクセンサーの半径を増やす方向も検討すべきであることがわかった。

3.2 無対流下での金属融液の熱伝導度と Wiedemann-Franz 則との比較

落下塔によって得られる 1s 程度の微小重力環境で無対流下の金属融液の熱伝導度が系統的に測定できることがわかった。この知見を用いて、金属融液の特性に繋がる議論が可能かどうかを検討した。

金属融液の熱伝導度を議論する上で、Wiedemann-Franz 則はよく用いられている。

$$\lambda = L \frac{T}{r} \quad (5)$$

λ : 測定試料の熱伝導度

L : ローレンツ数($2.445 \times 10^{-8} \text{ W}\Omega/\text{K}^2$)

T : 試料温度

r : 測定試料の電気抵抗

しかし、この法則は固体金属を対象とした自由電子モデルから導かれたものであり、金属融液に適用できるかどうかははっきりしていない。これは、過去に測定された金属融液の熱伝導度が対流の効果を含むかどうか定かでないため、十分な議論に至っていないことも原因の 1 つと考えられる。ここで、無対流下で測定した金属融液の熱伝導度を用いて議論すれば、金属融液の特性に関して、新たな知見が得られる可能性がある。

Figure 6 は、Table 1 で示した試料の無対流下で測定した熱伝導度と Wiedemann-Franz 則から導出された熱伝導度を示している。また、他の研究者による微小重力環境や静磁場の効果を利用した無対流下での測定結果も同時に示している。この図から、Hg と Bi 融液に関しては、およそ両者が一致していることがわかり、Hg については本研究の結果と他の研究者らの結果が一致していることがわかる。一方、Sn, Si, InSb 融液については、低温域の Sn 融液を除き、両者には明確な違いが見られる。ここでは InSb 融液に関しては本研究の結果と他の研究者の結果は概ね一致していたが、Si 融液に関しては測定結果が Wiedemann-Franz 則の結果を挟むようになっていた。この違いについて、金属融液の半導体的性質の影響²³⁾や電子-電子散乱効果²⁴⁾、部分的な Si 原子間の共有結合の存在²⁵⁾、不純物による電気伝導度への影響²⁶⁾など様々な説が考えられており、金属融液の構造や特性の違いに由来するであろうと推測することはできる。しかしながら、現状ではデータがまだまだ不十分なため、推測の域を出

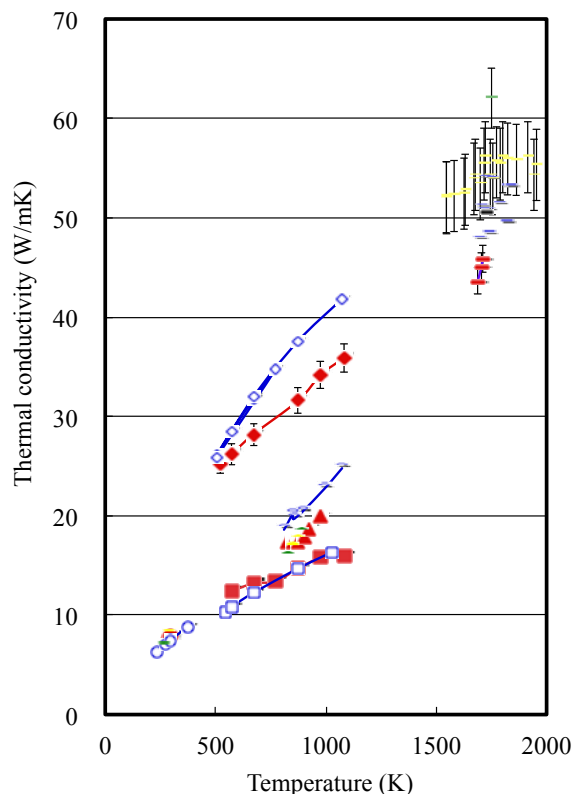


Fig. 6 Comparison between the thermal conductivities of molten metals without convection and those derived from Wiedemann-Franz law.

Red marks were the values measured by hot-disk method in microgravity. Blue marks were the values derived from Wiedemann-Franz law. Electrical resistivities of sample were referred from refs. 18,20, and 22. Green and yellow marks were the values measured in non-convection environments referred from refs. 5-10

ないが、確実なデータの積み上げによって将来的には明らかになると考えている。

4. まとめ

繰り返し性に優れた落下塔による短時間微小重力環境と小型で 1s 程度の短時間測定に対応可能なホットディスク法との組合せによって、対流の影響のない環境で金属融液の熱伝導度が、これまでの微小重力実験と比較して幅広い範囲で系統的に行えることを確認することができた。ただ、系統的な議論を行うにはまだまだデータ量が必要であるが、将来的には、より多くのデータが積み重ねていくことで、金属融液の特性についても議論できる可能性が示唆された。

参考文献

- 1) H. Fukuyama, T. Tsukada, M. Watanabe, T. Tanaka, T. Baba and T. Hibiya: *J. Jpn. Assoc. Crystal Growth*, **30** (2003) 364 (in Japanese).
- 2) H.-J. Fecht, R. Wunderlich, I. Battezzati, J. Etay, E. Ricci, S. Seetharaman and I. Egry: *Euro Physcs News*, **39** (2009) 19.
- 3) *Thermophysical Properties of Matter, Vol.1, Thermal conductivity-Metallic Elements and Alloyus*, ed. Y. S. Touloukian, R. W. Powell, C. Y. Ho and P. G. Klemens, Plenum Press, New York, 1970.
- 4) S. Nakamura, T. Hibiya and F. Yamamoto: *Microgravity Sci. Technol.*, **5** (1992) 156.
- 5) S. Nakamura, T. Hibiya, F. Yamamoto and T. Yokota: *Int. J. Thermophys.*, **12** (1991) 783.
- 6) S. Nakamura and T. Hibiya: *Microgravity Sci. Technol.*, **6** (1993) 119.
- 7) S. Nakamura, T. Hibiya, T. Yokota and F. Yamamoto: *Int. J. Heat Mass Transfer*, **33** (1990) 2609.
- 8) H. Fukuyama, T. Yoshimura, H. Yassuda and H. Ohta: *Int. J. Thermophys.*, **27** (2006) 1760.
- 9) H. Kobatake, H. Fukuyama and I. Minato: *Appl. Phys. Lett.*, **90** (2007) 094102.
- 10) H. Kobatake, H. Fukuyama, T. Tsukada and S. Awaji: *Meas. Sci. Technol.*, **21** (2010) 025901.
- 11) H. Nagai, F. Rossignol, Y. Nakata, T. Tsurue, M. Suzuki and T. Okutani: *Mater. Sci. & Eng.*, **A276** (2000) 117.
- 12) H. Nagai, Y. Nakata, T. Tsurue, H. Minagawa, K. Kamada, S. E. Gustafsson and T. Okutani: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **39** (2000) 1405.
- 13) H. Nagai, M. Mamiya, M. Castillo and T. Okutani: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **45** (2006) 6455.
- 14) H. Nagai, M. Mamiya and T. Okutani: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **46** (2007) 7920.
- 15) S. E. Gustafsson: *Rev. Sci. Instrum.*, **62** (1991) 797.
- 16) H. Nagai: *J. Soc. Inorg. Mater., Jpn.*, **14** (2007) 489 (in Japanese).
- 17) R. Krishnamurti: *J. Fluid Mech.*, **60** (1973) 285.
- 18) *Smithells Metals Reference Book 7th, ed. E. A. Brande, G. B. Brooks, Chap. 14, p.6, Butterworth, Heinemann, London, 1992.*
- 19) M. Gomez, L. M. Garin, P. bedon and P. Desre: *Bull. Soc. Chim. France*, **7-8** (1976) 1030.
- 20) V. M. Glazov, S. N. Chizhevskaya and N. N. Glagoleva: *Liquid Semiconductor*, ed. A. Tybulewicz, p. 319, Plenum Press, New York, 1969.
- 21) T. Iida, Z. Morita and S. Takeuchi: *Nihon Kinzoku Gakkai-shi*, **39** (1975) 1169 (in Japanese).
- 22) *Reactor Handbook Engineering*, ed. United State Atomic Energy Commission, Chap. 2.2, p.253, McGraw-Hill Book Company, New York, 1955.
- 23) V. I. Fedorov and V. I. Machuev: *High Temp.*, **8** (1970) 419.
- 24) E. Yamasue, M. Susa, H. Fukuyama and K. Nagata: *Int. J. Thermophys.*, **24** (2003) 713.
- 25) J. T. Okada, P. H.-L. Sit, Y. Watanabe, Y. J. Wang, B. Barbiellini, T. Ishikawa, M. Itou, Y. Sakurai, A. Bansil, R. Ishikawa, M. Hamaishi, T. Masaki, P.-F. Paradis, K. Kimura, T. Ishikawa and S. Nanao: *Phys. Rev. Lett.*, **108** (2012) 067402.
- 26) E. Yamasue, M. Susa, H. Fukuyama and K. Nagata: *J. Crystal Growth*, **234** (2002) 121.

(2014年7月30日受理, 2014年10月1日採録)