研 究 解 説　　　　　　UDC 536.25 : 536.2.01

マランゴニ対流の関連する伝熱問題(I)

Heat Transfer Problems Relating to Marangoni Convection (I)

棚 沢 一 郎*
Ichiro TANASAWA

液体の表面張力は，その温度および溶質の濃度に依存する．したがって，気・液あるいは液・液界面の温度や濃度が一様でない場合には，そこに表面(あるいは界面)張力の勾配が生じ，時によってはこれに起因する流体運動，すなわちマランゴニ対流が生ずる．マランゴニ対流が重要な役割を演じる現象はいくつか知られているが，本稿では主として，単結晶生成との関連で行われた研究成果を紹介する．

1. は じ め に

液体の表面張力（あるいは界面張力）は，その温度および溶けている物質の濃度に依存する．たとえば，液体の温度 T と表面張力 σ の間には，Eötvösの関係式と呼ばれる次のような近似式が古くから知られている．

$$\sigma(M/\rho)^{2/3}=k(T_c-T) \tag{1}$$

ここで，M は液体の分子量，ρ は密度，T_c は臨界温度，k は定数で，液体の種類によらずほぼ 2.1×10^{-7} J/K という一定値をとると言われている．より新しい関係式は，van der Waalsによるもので，後にGuggenheimにより修正された次式である．

$$\sigma=\sigma_0\left(1-\frac{T}{T_c}\right)^n \tag{2}$$

ここで，指数 n は多くの有機液体については11/9，金属については1に近い値をとる．表1[1]にいくつかの液体の表面張力およびその温度係数（温度に対する表面張力の変化率）の値を示した．濃度と表面張力の関係は，液体と溶質の組み合わせによってもっと多様に変化するので，式(1)，(2)のような簡単な関係式は得られていない．

いずれにせよ，気・液あるいは液・液界面の温度や濃度が一様でない場合には，そこに表面（あるいは界面）張力の勾配が生じ，時によってはこれに起因する流体運動が生ずる．こうした表面（界面）張力の不均一性によって誘起される流れは，表面張力対流(capillary convection)あるいはマランゴニ対流(Marangoni convection)と呼ばれている．

マランゴニ対流が重要な役割を演じる現象はいくつか知られている．ワイン・グラスの内面で，ワインの滴が上昇下降を繰り返す不可思議な現象はLord Rayleighによって「ワインの涙」(wine's tears) として紹介されているが，これはワインの滴の周縁部でアルコール分が蒸発するために生じる表面張力の不均一が原因となっている．このほか，風呂場のタイルの上に石けんを落としたときに水膜が逃げて行く現象，あるいは昔夜店でよく見かけた，樟脳によって駆動され不規則に動きまわるセルロイド製の舟なども同じ原理に基づくものである．

表1　各種液体の表面張力と温度依存性[1]

液　体	表面張力 σ 〔mN/m〕	温度 T〔℃〕	温度係数 $d\sigma/dT$
ヘリウム	0.308	−270.5	−0.07
窒素	9.71	−198	−0.23
エタノール	22.75	20	−0.086
水	72.88	20	−0.138
ベンゼン	28.88	20	−0.13
n-オクタン	21.80	20	−0.10
ナトリウム	191	98	−0.10
硝酸ナトリウム	116.6	308	−0.050
銀	910	961	−0.164
銅	1550	1083	−0.176
鉄	1880	1535	−0.43

工学的あるいは工業的な面では，最近，宇宙空間のような微小重力場における単結晶生成，合金製造，その他の新材料製造過程とマランゴニ対流の関係が注目されている．たとえば，現在単結晶生成には，チョクラルスキー (Czochralski) 法，ブリッジマン (Bridgman) 法あるいはボート法，フローティングゾーン(floating zone)法など〔図1参照〕が用いられているが，これらのいずれの方法においても，融液は自由表面を持っており，その表面上の温度あるいは濃度に不均一があればマランゴ

* 東京大学生産技術研究所　第2部

ニ対流が発生する可能性がある．地球上で行われる結晶生成過程においては，当然重力に起因する密度差自然対流もこれに加わるが，いずれにせよ，液相内での対流は，結晶の成長速度，固・液界面の形態，種々の格子不整等に大きな影響を与えるからその特性を明らかにすることは重要な課題である．

著者らの研究室では，数年前から，単結晶生成時に生ずるような浮力・表面張力共存対流の特性を明らかにすることを目的とする基礎研究を行ってきているが，本稿では主としてその成果の紹介を通じて，マランゴニ対流がどのような性格を持つかを解説していきたいと思う．なお，著者らの研究成果の詳細については文献[2)〜7)]を参照されたい．

2．水平矩形液体層におけるマランゴニ対流

2.1　チョクラルスキー法のモデル化

著者らは，まず図1（a）のチョクラルスキー法をモデル化してみることにした．この方法では，るつぼ内の融液の上部自由表面中央部に固・液界面が形成され，そこで結晶生成が行われる．その際，融液の温度は，凝固面上でもっとも低くなるから，自由表面上では，周辺部から中央部に向かって表面張力の勾配が生じ，これによって流れが誘起されるはずである．

図2は著者らのモデルである．ただし，図2（a）では，水平液体層の両側の鉛直側壁が加熱されており，図2（b）では底面が加熱されている．上部自由表面の中央部の液面と接する位置に低温壁があるが，これは凝固面を模擬したものである〔Polezhaev[8]も図2（a）と同様なモデルを用いていることが最近になってわかった〕．なお，チョクラルスキー法による結晶生成においては，種結晶を鉛直軸のまわりにゆっくりと回転させ，また融液を入れた容器をこれとは逆向きに回転させるのがふつうのようであるが，本モデルでは回転は取り入れなかった．著者らの実験では，液体として粘性係数の異なるシリコーン油を用いた．すなわち，25℃における動粘数係数が10^{-2} m^2/s, 10^{-3} m^2/s, 10^{-4} m^2/s, 10^{-5} m^2/s, 10^{-6} m^2/s の5種類であるがこれらのいずれについても，ウイルヘルミ法で測定した表面張力の温度係数は6.55×10^{-5}N/(m･K)であった．

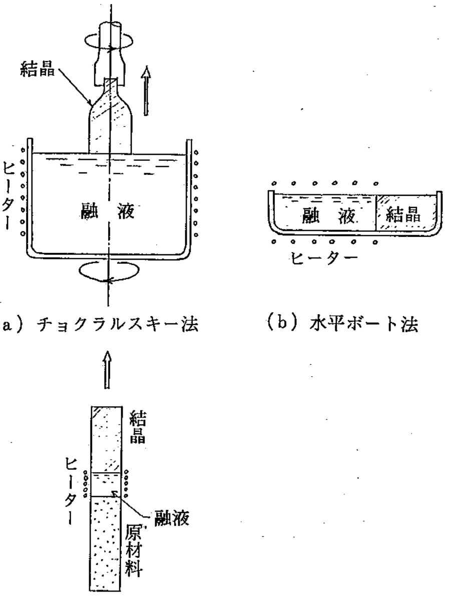
2.1.1　側壁加熱の場合の実験結果

図2（a）に示したような装置を用い，矩形液体層の深さHと半幅Wの比（これをA_1とする）および深さHと低温壁の半幅aの比（これをA_2とする）という二つの寸法比（アスペクト比）の組み合わせをいろいろに変えて実験を行った．その結果をマランゴニ数Maを横軸に，ヌセルト数Nuを縦軸にとって整理したものを図3に示す．ただし，$Ma=\sigma_t H\Delta T/(\varkappa\mu)$, $Nu=qH/(\lambda\Delta T)$, σ_tは表面張力の温度係数，ΔTは高温壁と低温壁の温度差，$\varkappa$およびμはそれぞれ液体の温度伝導率および粘性係数，qは熱流束，λは液体の熱伝導率である．なお，本実験で用いたシリコーン油については，レイリー数Raとマランゴニ数Maの間に

$$Ra=(\alpha\rho gH^2/\sigma_t)\,Ma=30\,Ma \tag{3}$$

という比例関係がある．これは，表面張力の温度係数σ_tがどのシリコーン油についても等しく，また液体層の高さHを一定としたためである．

図3を見ると，ヌセルト数とマランゴニ数の関係がプ



（a）チョクラルスキー法　（b）水平ボート法

（c）フローティングゾーン法

図1　代表的な単結晶生成法

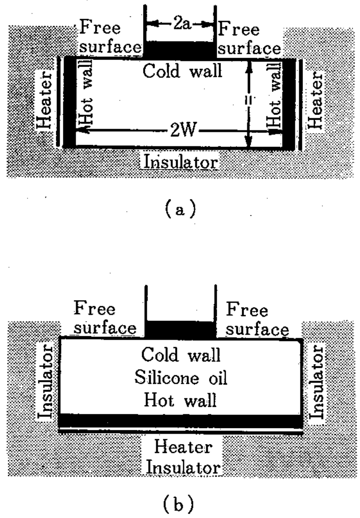


図2　チョクラルスキー法のモデル化

ラントル数 Pr によってわずかながら変化していることがわかる．この関係を整理すると，$1<Ma<10^5$ の範囲で

$$Nu=0.73Pr^{0.06}Ma^{1/4} \tag{4}$$

で表される．

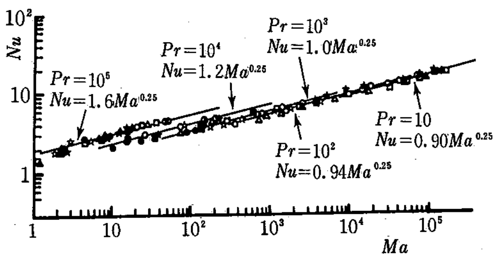
一方，流れ場について調べるため，シリコーン油に微細なアルミ箔を混入してトレーサとし，底面からのスリット光により可視化を行った．

自由表面では，気・液界面せん断力を無視すると

$$\frac{\partial U}{\partial Z}=-Ma\frac{\partial \theta}{\partial X} \tag{5}$$

が成り立つ．ただし，U は水平方向（x 方向）流速成分 u を κ/H で割って得られる無次元流速，θ は温度 T を加熱壁温度 T_h と冷却壁温度 T_c の差で割って得られる無次元温度，X および Z は座標変数 x および z を液体層の深さ H で無次元化したものである．

図4に，可視化写真から求めた自由表面での無次元水平方向温度勾配（$\partial U/\partial Z$）とマランゴニ数 Ma の関係を示す．マランゴニ数が100以上での測定値は，理論式(5)からずれてきているが，これはアルミ箔の移動距離を移動時間で割って求めた流速の測定精度が悪くなるためで



	A_1	A_2		A_1	A_2
△	2	1/3	▲	3	2/3
□	2	2/3	■	3	1
○	2	1	★	3	4/3
●	3	1/3	☆	1	1/3

図3　熱伝達実験結果（Nu と Ma）の関係

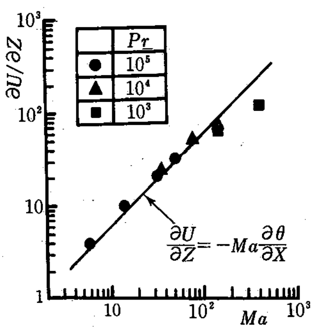


図4　自由表面における速度勾配とマランゴニ数の関係

あろう．

図5に，50までのマランゴニ数における自由表面中央部（冷却壁端部と加熱壁との中間）で測った水平方向流速分布を示す．深さ H の無限水平液体層の自由表面に一定の温度勾配 $(\partial\theta/\partial Z)_{Z=1}$ があるとき，U は Z の2次式で表され

$$U=-\frac{3}{4}Ma\left(\frac{\partial\theta}{\partial X}\right)_{Z=1}\left\{\left(Z-\frac{1}{3}\right)^2-\frac{1}{9}\right\} \tag{6}$$

となる．測定結果に対応するマランゴニ数について式(6)を計算した結果をそれぞれ破線，一点鎖線，二点鎖線で図5中に記入した．図5によれば，測定値は計算値よりも極大点付近で絶対値が大きく，また2次関数では表せないことがわかる．この結果は，流体層が無限に広いとはみなせないことと，浮力による自然対流が伴っていることによるものと考えられる．

次に，透光性媒質中に屈折率勾配があると入射平行光線が曲げられることを利用して，液層内の温度勾配を求めた．一般に，流体の屈折率は温度に依存するからである．幾何光学の範囲では，屈折角 i と屈折率 n の関係は次のように表される．

$$di=\frac{1}{n}\mathrm{grad}_z n ds \tag{7}$$

図6に示すように，流体中の z 方向の温度勾配が負である場合，入射平行光線は正の方向に曲げられる．式(7)をこの系に適用すると，温度勾配は次式で与えられる．

$$\frac{\partial T}{\partial z}=-\frac{n\ell}{n_t D_1\left(D_1+\frac{n}{n_g}D_2\frac{n}{n_a}D_3\right)} \tag{8}$$

ただし，n_t は屈折率の温度係数，D_1, D_2, D_3 はそれぞれ

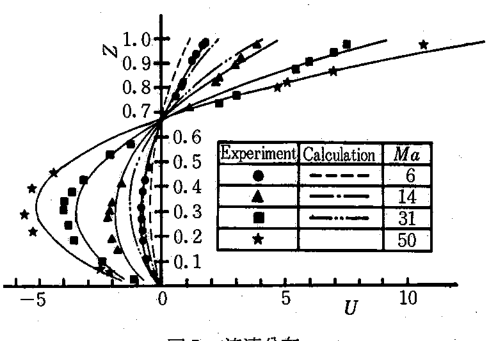


図5　流速分布

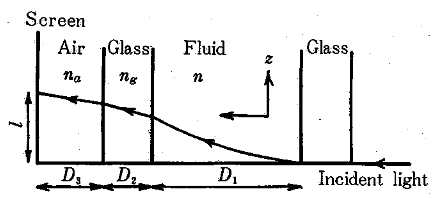
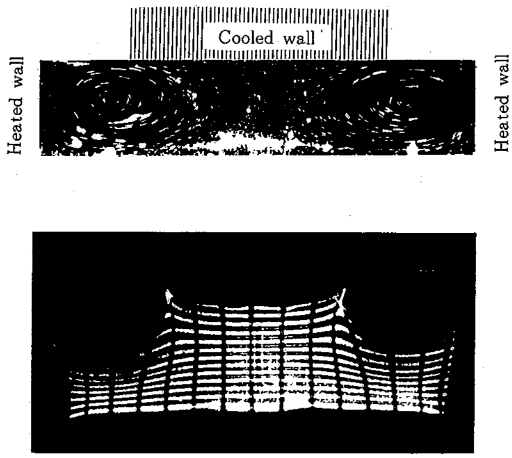


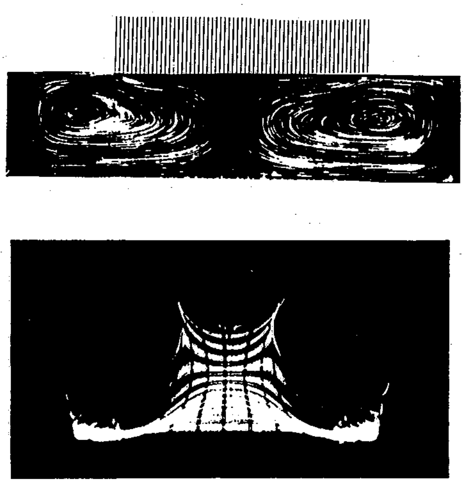
図6　温度分布のある媒体中での光の屈折

流体層，ガラス板，空気層の厚さ，n, n_g, n_a はそれぞれ図に示した媒質の屈折率である．

図7の写真は，アルミ箔をトレーサとして可視化した流れの模様と，それに対する温度勾配分布を示すものである．また，式(8)により計算される高温壁面上での局所ヌセルト数と，低温壁面上での局所熱流束の分布を図8に示した．高温壁と低温壁の温度差が小さい場合，低温壁中央部の直下に流れはなく，局所熱流束は低温壁両端を除きほぼ一定となっている〔図7(a)，図8(b)〕．温度差が大きくなると，流れが低温壁中央部の直下まで侵入してきて，局所熱流束が一定となる領域はなくなり，低温壁両端での熱流束は非常に大きくなる〔図7(b)，図8(b)〕．このような状態は，結晶生成においては好ましいとはいえないであろう．



(a)　$Pr=10^4$, $Ma=26$

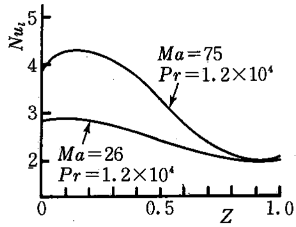


(b)　$Pr=10^4$, $Ma=75$

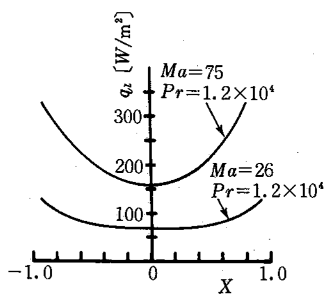
図7　流れの模様とそれに対する温度勾配分布

2.1.2　底面加熱の場合の実験結果

図2(b)に示したような装置を用い，液体層のアスペクト比 A_1 が5（液層の深さ $H=6$ mm）および2.5（液層の深さ $H=12$ mm）の場合について実験を行った．結果を整理し，ヌセルト数 Nu とマランゴニ数 Ma の関係にまとめたものを図9に示す．側壁加熱の場合，液体のプラントル数が決まると，アスペクト比 A_1, A_2 の組み合わせが異なっても熱伝達率には影響が認められなかったが，底面を加熱した場合には，アスペクト比により熱

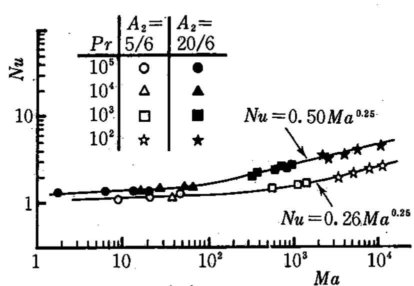


(a) Local Nusselt Number on Hot Wall

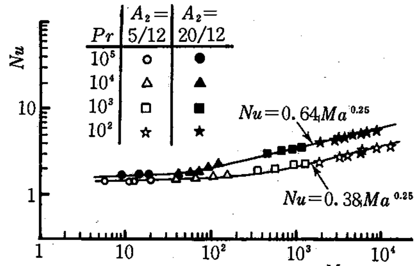


(b) Local Heat Flux on Cold Wall

図8　伝熱面上の熱流束分布



(a) $A_1=5$



(b) $A_1=2.5$

図9　熱伝達実験結果

伝達実験の結果は異なるものとなった．

図9に見られるように，低温壁の幅が広い（A_2が大きい）場合，ヌセルト数の増加率が大きくなり始めるマランゴニ数は，A_2が小さい場合にくらべて小さい．これをレイリー数でくらべてみると，$A_1=5, A_2=20/6$の場合〔図9（a）〕のヌセルト数の増加率上昇に対応するレイリー数は約500であり，$A_1=2.5, A_2=20/12$の場合〔図9（b）〕の場合のそれは1250であった．また，A_2が大きい場合，ヌセルト数はマランゴニ数の1/4乗に比例するようになるが，そのような領域でのヌセルト数は，A_2が小さい場合にくらべて大きいことがわかった．

図10に$A_1=2.5$の場合の流れの模様とそれに対応する温度勾配分布の可視化による写真を示す．また，図8によって計算した高温壁面上における局所ヌセルト数および低温壁面上での局所熱流束の分布を図11に示す．

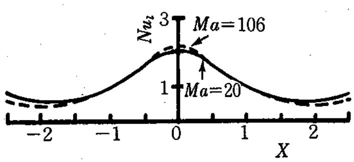
$A_2=5/12$の場合〔図10（a），（b），図11（a）〕，表面張力差によって自由表面の液体が低温壁側に引っ張られ，低温液体が高温壁中央部に向かって降りてくるために，高温壁中央部での熱流束は大きくなる．また鉛直断熱壁側には弱いセルができている．

$A_2=20/12$の場合〔図10（c），（d），図11（b）（c）〕，温度差が小さいうちは表面張力効果による流れのみが存在し，低温壁の下には流動は見られない．このため，低温壁と高温壁の中央部での熱流束は一定となる〔図10（c），図11（b），（c）〕．しかし，温度差が大きくなり，レイリー数が約1250を越えると，低温壁の下に2個のセル運動が発生し，それに応じた低温壁中央部と両端での熱流束は大きくなり，高温壁中央部と両端での熱流束は小さくなる〔図10（d），図11（b），（c）〕．

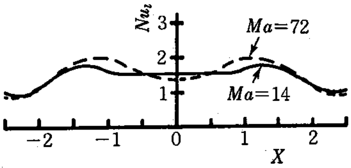
液体層の深さに比べて低温壁の幅が広くなると，低温壁の下にできるセルの数もふえてくる〔図12（a），（b）〕．

前に指摘した，ヌセルト数の増加率上昇に対応するレイリー数は，低温壁下に偶数個のセルが発生するレイリー数に一致し，熱伝達特性が局所的にも全体的にも，重力に起因する対流の発生に強く依存していることがわかる．

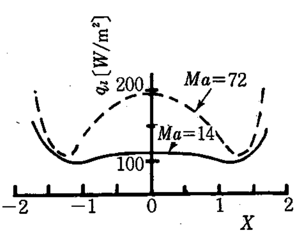
上の結果と，前節の結論とを合わせると，低温壁下の流動を抑え，低温壁面における局所的な熱流束の値を一定にするためには，ある程度低温壁の幅を相対的に広くして，マランゴニ対流が低温壁下に侵入するのを防ぎ，



（a） Local Nusselt Number on Hot Wall

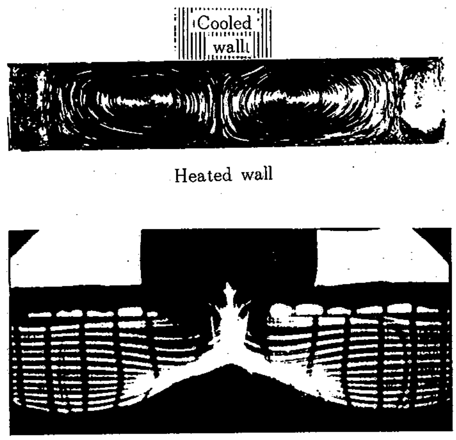


（b） Local Nusselt Number on Hot Wall



（c） Local Heat Flux on Cold Wall

図11　局所熱伝達特性　（a）　高温壁上での局所ヌセルト数，（b）　高温壁上での局所ヌセルト数，（c）　低温壁上での局所熱流束



（a）　$Ma=20, Ra=335, Nu=1.5$

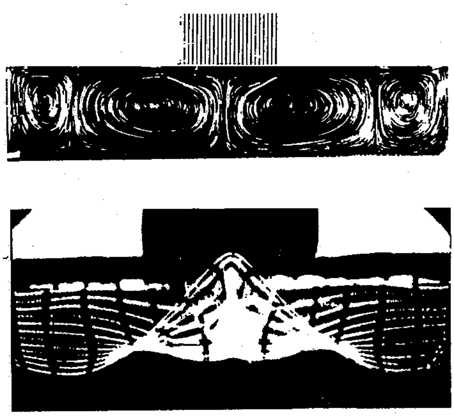
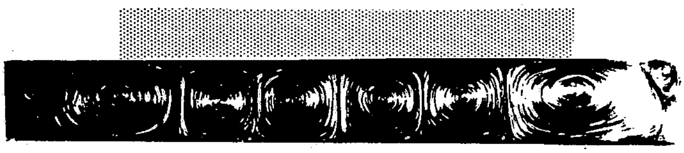

（b）　$Ma=106, Ra=1830, Nu=1.7$

図10　流れの模様とそれに対応する温度勾配分布



（a）　$Ma=370, Ra=2550, Nu=2.3$

（b）　$Ma=860, Ra=4690, Nu=2.8$

図12　流れの模様

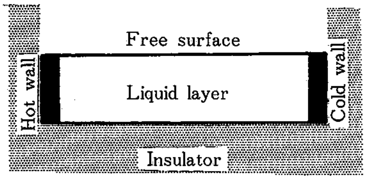


図13　水平ボート法のモデル化

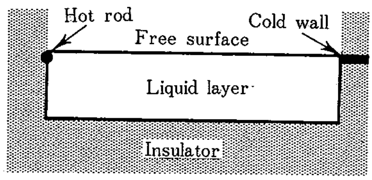


図14　表面張力のみによって駆動される自然対流の実験

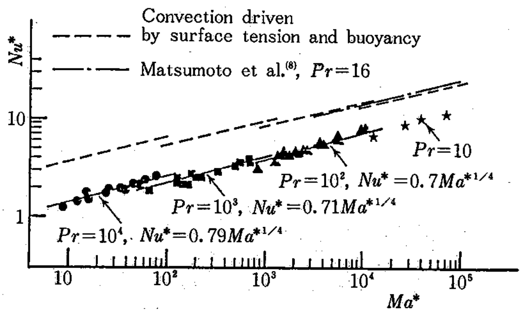


図15　修正ヌセルト数と修正マランゴニ数の関係

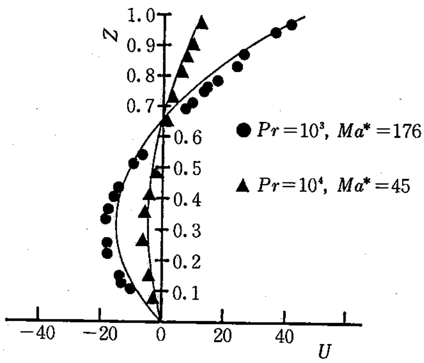


図16　液層内中央部の水平方向流速分布

また底面の加熱を臨界レイリー数を越えない程度にとどめることが必要である．従来のチョクラルスキー法は側面加熱に近い条件となっているため，低温壁面上での局所熱流束の不均一は大きく，結晶生成には不利な条件となってきていると言える．

2.2　水平ボート法のモデル化

図1（b）に示した水平ボート法では，容器（ボート）内の融液は一端から凝固し始め，その界面はほぼ鉛直のまま他端に向かって進行する．この方法をモデル化すると，図13のようになる．すなわち，水平矩形液体層の上面が自由表面，容器の一方の鉛直壁が加熱面，他方が冷却壁であり，底面は断熱壁となっている．このようなモデルを基本として，マランゴニ対流の特性を調べてみた．

2.2.1　液表面のみを加熱・冷却する場合の実験結果

まず，図14に示すような装置を用いて，いわば純マランゴニ対流の実験を行った．すなわち，水平矩形液体層の自由表面の一端に細い加熱面，他端に細い冷却面を置いて，自由表面に温度勾配を付与した．加熱面としては，外径2 mm，内径1 mm，長さ50 mmの銅パイプに直径300 μmのコンスタンタン線ヒータを入れたものを用い，冷却面としては，厚さ2 mm，幅5 mm，長さ50 mmの銅板を用い，その裏側を恒温槽で温度制御した水を冷却した．

図15に熱伝達実験結果を示す．縦軸のNu^*はヌセルト数に相当する無次元数で，その定義は，加熱壁の単位長さ当たりの伝熱量（ヒータの発熱量に等しい）をQとすると

$$Nu^*=\frac{Q}{\lambda \Delta T} \qquad (9)$$

で表される．

深さHの無限水平液体層の自由表面上に一定温度勾配が付与されている場合の水平方向流速分布は式（6）で表されるのでここでは修正マランゴニ数Ma^*を

$$Ma^*=Ma\left(\frac{\partial \theta}{\partial X}\right)_{Z=1} \qquad (10)$$

で定義し，これを図15の横軸にとった．そして，この結果を整理すると

$$Nu^*=0.61Pr^{0.026}Ma^{*1/4} \qquad (11)$$

となることがわかった．この結果を，2.1節の結果と比べるために，後者を破線で図中に記入した．また，松本・斉藤[3]による，水平液体層の自由表面の一部を加熱した場合の実験結果を一点鎖線で示した．この結果から判断する限り，松本らの実験には，浮力の影響があるように思われる．

図16は，アルミ箔をトレーサとして流れの可視化を行った結果から得られた液体層中央部における水平方向流速分布を示す．実験条件に対応する修正マランゴニ数を式(6)に代入して計算した流速分布も実線で記入した．浮力を伴わない，純マランゴニ対流では，実験値と計算値の一致がかなりよいことがわかる．

2.2.2 一つの側壁を加熱し他の側壁を冷却した場合の実験

図12に示したような系については，液体層のアスペクト比（幅と深さ比）A，レイリー数 Ra，マランゴニ数 Ma を種々に変えて流速分布を測定した．図17はその結果の一つで，容器の垂直中央断面上で測った無次元水平方向流速 $u^*(=uH/\nu)$ の深さ方向分布が示されている．また，図18には自由表面における無次元流速 u_s^* が，レイリー数およびマランゴニ数によってどう変化するかが示されている．この結果のうち $Ma=50$ の曲線の傾向からわかるように，レイリー数が小さくなるにつれてマランゴニ対流の効果はいっそう重要になる．

図19および図20には，容器のアスペクト比を変えた場合のフローパターンの可視化写真および水平方向流速分布を示した．本実験範囲内では，容器内にできる対流のセルの数はつねに1個であるが，その運動の中心の位置は，レイリー数が小さいほど，マランゴニ数が大きいほど，そしてアスペクト比が小さいほど自由表面に近づくことがわかった．

2.2.3 凝固を伴うマランゴニ対流

前節で述べたようなチョクラルスキー法を模擬したマランゴニ対流のモデルにおいても，また前2項で扱ったような水平ボート法のモデルにおいても，高温壁面および低温壁面の位置は固定されているものとした．チョクラルスキー法の場合には，実際の結晶生成においても，結晶の成長速度と引き上げ速度が等しい場合には，ほぼこのような条件が成立すると考えられるが，水平ボート法の場合には，凝固界面がしだいに融液中に進出してくることを考慮に入れなければならない．そこで，図12のような系において，低温壁面の温度が液体の凝固点よりも低く，そこから凝固面が発達するような場合について主として数値解析によって考察してみることにした．

低温壁近傍における凝固層の成長速度および固・液界面の形状は凝固層内の熱伝導による熱除去の速さと，融液と固・液界面の間の対流伝熱による入熱の大きさとのバランスによって定まる．このような問題を数値解析によって解くためには，凝固層内の熱伝導と，融液内の流れおよび熱移動についての基礎式をたて，固・液界面における温度および熱流の連続の条件を考慮して計算しなければならないが，途中の界面形状があらかじめ知られていないために，計算はかなりやっかいである．著者らは，このような相変化を伴う伝熱問題の数値解析法として有力な方法である境界固定法[9]を用いて計算を行った．

図21に計算によって得られた流線および等温線（無次元時間 $t=2.96$ の場合）を，図22(a)に凝固界面位置の時間変化を，また図22(b)に凝固量の時間変化を示す．

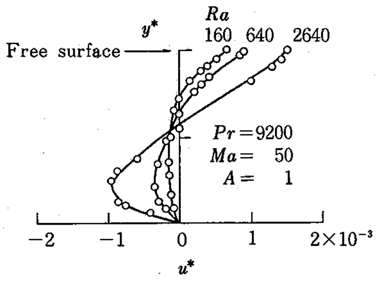


図17　水平方向流速分布

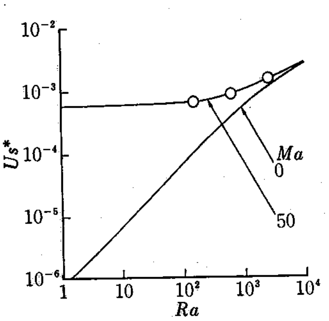


図18　無次元表面流速

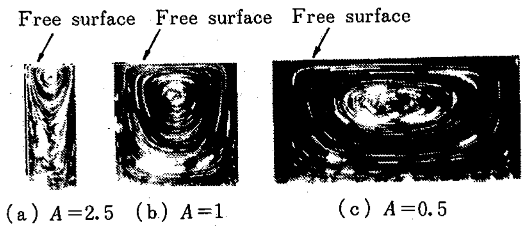


図19　流速分布の可視化写真　(a) $A=2.5$　(b) $A=1$　(c) $A=0.5$

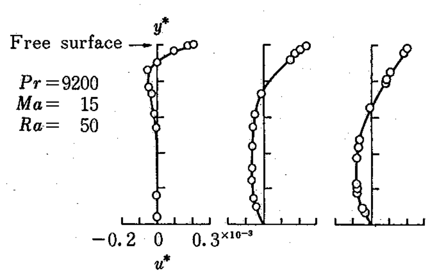


図20　水平方向流速分布（アスペクト比の影響）

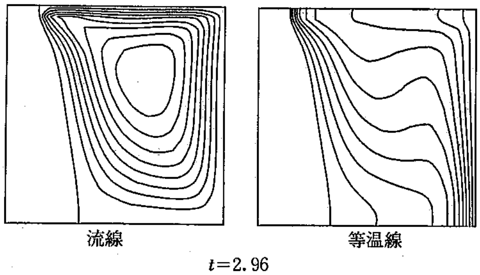


図21　計算によって得られた流線と等温線

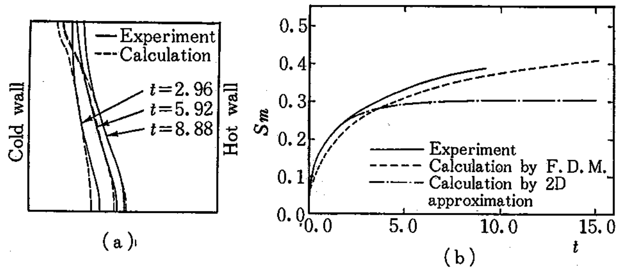


図22　凝固界面位置および凝固量の変化

これらの計算では，$A=1$, $Ra=3\times10^4$, $Ma=3.74\times10^3$, $Ste(=C_{p1}\Delta T/h_{sg})=1.8\times10^{-2}$ としている．ただし，C_{p1} は液体の定圧比熱，h_{sg} は凝固の潜熱である．

図22には，n-octadecaneを用いて行った実験の結果も比較のために示してある（実験の方法については説明を省略する）．3つの無次元時間における界面位置および形状の実測値と計算値を比較してみると，自由表面近傍を除いて両者はよく一致していることがわかる．自由表面近傍における差異は，別に行った温度場の可視化の結果から判断すると，自由表面付近で熱の移動があり，自由表面上で断熱という数値計算上の仮定が成立していないことによるものと考えられる．

図22(b)の中で，1次元近似計算とは融液が低温壁で冷却され凝固する際，凝固面が鉛直平面のまま進行すると仮定した近似計算である．すなわち，凝固を伴わない水平矩形容器内の浮力・表面張力共存対流について数値解析を行い，液体層のアスペクト比と壁面におけるヌセルト数の関係を求めておけば，鉛直凝固面の進行速度が得られることになる．

図22(b)では，実線が実測値，破線が2次元数値解析，一点鎖線が1次元近似計算による結果を示す．無次元時間 t が比較的小さい($t<0.3$)うちは，三者はほぼ一致しているが，凝固面の鉛直性が失われるにつれ，1次元近似計算の結果はしだいに合わなくなっている．なお，1次元近似計算による漸近値(約0.3)は，凝固面から低温壁への熱伝導と，融液から凝固面への対流伝熱とがつり合う値を意味する．一方実測値と2次元数値解析の結果とは，一定の偏差を保ちつつほぼ平行している．この定性的な一致および定量的なわずかの不一致は，前述のように，自由表面からの深さ約25％の領域を除けば，凝固界面位置が実測値と計算値とでよく合っていることに対応している．

以上述べたような結果から，水平ボート法による結晶生成においては，自由表面付近の凝固層の形状および成長速度に対して，マランゴニ対流の影響がきわめて大きいことがわかる．

(1985年7月31日受理)

参 考 文 献

1) Adamson, A. W.: *Physical Chemistry of Surfaces,* (4th ed), John Wiley & Sons (1982), 40.

2) Maekawa, T. and Tanasawa, I.: Free Convection in Horizontal Rectangular Liquid Mayers Driven by Surface Tension and Buoyancy, *Proc. 1983 ASME-JSME Thermal Engineering Conference,* vol. 2 (1983), 235.

3) Maekawa, T. and Tanasawa, I., Buoyancy and Surface Tension Driven Instability of Horizontal Liquid Layers in Containers Heated from Below, *Trans. JSME,* vol. 51, no. 465 (1985), 1468 〔in Japanese〕.

4) Maekawa, T. and Tanasawa, I.: Convective Instability of Hydromagnetic Fluid, *Proc. 21th National Heat Transfer Symposium of Japan* (1984), 601 〔in Japanese〕.

5) Maekawa, T. and Tanasawa, I.: Convective Instability of Hydromagnetic Liquid Driven by Marangoni Effect, *Proc. 22th National Heat Transfer Symposium of Japan* (1985), 410 〔in Japanese〕.

6) Ochiai, J., Kuwahara, K., Morioka, M., Enya, S., Segaki, K., Maekawa, T. and Tanasawa, I.: Experimental Study on Marangoni Convection, *Proc. 5th European Symposium on Material Sciences under Mictrgravity* (*ESA SP-222*) (1984), 291.

7) Munakata, T. and Tanasawa, I.: Buoyancy and Surface Tension Driven Natural Convection with Solidification, *Proc. 22th National Heat Transfer Symposium of Japan* (1985), 428 〔in Japanese〕.

8) Polezhaev, V. I.: Hydrodynamics, Heat and Mass Transfer During Crystal Growth, in *Crystals 10, Growth and Defect Structures,* Springer-Verlag (1984), 87.

9) Saito, T.: Numerical Method for Multi-Dimensional Freezing Problems in Arbitrary Domains, *Trans. ASME, J. Heat Transfer,* vol. 100 (1978), 294.