

WG 活動報告

微小重力下での酸素分圧制御による金属性融体の表面張力測定

渡邊匡人（学習院大），小澤俊平（首都大），水野章敏（学習院大），日比谷孟俊（慶大），西村秀和（慶大），田川 俊夫（首都大），塚田隆夫（東北大），杉岡健一（東北大），福山博之（東北大多元研），小島秀和（東北大多元研）田中敏宏（大阪大），安田秀幸（大阪大），景山大郎（DAS），石川毅彦（JAXA），H. J. Fecht, R. Wunderlich（ウルム大），E. Ricci（国立研究協会・エネルギー界面研），E. Arato（ジェノア大）

WG activity report: Measurement of Oxygen Partial Pressure Dependence of Surface Tension for High Temperature Space Experiment on International Space Station

Masahito Watanabe¹⁾, Shumpei Ozawa²⁾, Akitoshi Mizuno¹⁾, Taketoshi Hibiya³⁾, Hidekazu Nishimura³⁾, Takehiko Ishikawa⁴⁾, Toshio Tagawa²⁾, Takao Tsukada⁵⁾, Kenichi Sugioka⁵⁾, Hiroyuki Fukuyama⁶⁾, Hidekazu Kobatake⁶⁾, Toshihiro Tanaka⁷⁾, Hideyuki Yasuda⁷⁾, Dairo Kageyama⁸⁾, Hans-Jürgen Fecht⁹⁾, Rainer Wunderlich⁹⁾, Enrica Ricci¹⁰⁾, Elisabetta Arato¹¹⁾

¹⁾ Department of Physics, Gakushuin University, Mejiro, Tokyo 171-8588

²⁾ Tokyo Metropolitan University, Hino, Tokyo 191-0065

³⁾ Keio University, Hiyoshi, Yokohama 223-8526

⁴⁾ Japan Aerospace Exploration Agency (ISAS-JAXA), Tsukuba, Ibaraki, 305-8505

⁵⁾ Tohoku University, Aramaki, Aoba-ku, Sendai, 980-8579

⁶⁾ IMRAM, Tohoku University, Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-8577

⁷⁾ Osaka University, Yamada-oka, Suita, Osaka 565-0871

⁸⁾ Diamond Air Service (DAS), Toyoyama-cho, Nishikasugai, Aichi 480-0202

⁹⁾ Universität Ulm, Albert-Einstein-Allee 47, D-89081 Ulm, Germany

¹⁰⁾ IENI-Genova, Istituto per l'Energetica e le Interfasi – CNR, Via de Marini, 6, 16149 Genova

¹¹⁾ Dipartimento di Ingegneria Ambientale, Università di Genova, 16145 Genova, Italy

E-Mail: masahito.watanabe@gakushuin.ac.jp

Abstract: Microgravity conditions have advantages of measurement of surface tension and viscosity of metallic liquids by the oscillating drop method with an electromagnetic levitation (EML) device. Recently, it has been identified that dependence of surface tension on oxygen partial pressure (P_{O_2}) must be considered for industrial application of surface tension values. Effect of P_{O_2} on surface tension would apparently change viscosity. Therefore, surface tension and viscosity must be measured simultaneously in the same atmospheric conditions. Moreover, effect of the electromagnetic force (EMF) on the surface oscillations must be clarified to obtain the ideal surface oscillation because the EMF works as the external damping force to the oscillating liquid droplets, so extensive EMF makes apparently the viscosity values large. In our working group (WG), using the parabolic flight levitation experimental facilities (PFLEX) the effects of P_{O_2} and external EMF on surface oscillation of levitated liquid droplets are systematically investigated for the precise measurements of surface tension and viscosity of high temperature liquids. In this year since we could not perform microgravity experiments by the parabolic flight, we focused on the preparation of ISS-experiments samples and surface oscillations analysis with different P_{O_2} condition from ground experiments. On the basis of activity of our working group and European WG, we discussed the experimental conditions and details parameter of samples for the research thermophysical properties measurement of high-temperature liquids under microgravity conditions in ISS.

Key words; Surface Tension, Oxygen Partial Pressure, Viscosity, Electromagnetic Levitator

1. はじめに

高温融体の表面張力およびその温度係数は、酸素やイオウなどの界面活性物質に敏感であり、高温材料プロセス、特に溶接プロセス、ではこの表面張力の酸素分圧依存性に関する情報の要求が非常に高い。このため、本研究班ワーキンググループ(WG)では、これまでに金属や半導体融体などの高温融体の表面張力測定を精密に測定するため、微小重力環境下において雰囲気酸素分圧を制御した下で測定する技術および解析方法の開発を進めてきた[1]。この成果を基に、欧州の熱物性 WG と共同で国際宇宙ステーション (ISS) における高温融体熱物性計測の準備を進めている。2013 年後半から 2015 年にかけて予定されている ISS での電磁浮遊装置 MSL-EML (Material Science Laboratory-Electromagnetic Levitator)を用いた第 1 期実験 (bach-1, bach-2) で本 WG が参画している「半導体融体熱物性計測プロジェクト (SEMITHERM)」では、SiGe 融体の測定をおこなうことが決定している[2]。この測定に向けての準備も、地上実験と航空機による微小重力環境での実験をおこなっている。bach-1 と bach-2 では酸素分圧のモニタと制御がおこなえないが、2015 年以降の Bach-3 からは酸素分圧を制御した測定をおこなう計画が進んでいる。この酸素分圧制御環境での高温融体熱物性計測プロジェクト “ThermoLab-ISS” と “OXTHERM” が今年度の ESA-AO において採択され[1]、本 WG もこのプロジェクトに参画しており、プロジェクト遂行の準備として、航空機の放物飛行による短時間微小重力環境での酸素分圧制御下での測定技術を改良し、ISS 実験に備えた測定をおこなってきた。

本報告では、SEMITHERM プロジェクトのための SiGe 試料作製と地上での密度の予備測定、および酸素分圧制御環境での表面張力測定の解析について報告する。さらに、SEMITHERM, ThermoLab-ISS および OXTHERM プロジェクト準備に関わる、国際電磁浮遊ワーキンググループ (IWG-EML) の活動と、International Topical Team Meeting について報告する。

2. 高 B ドープ SiGe 単結晶の作成

SiGe 結晶は組成により格子定数とバンドギャップを制御できる特徴があり、Si にかわる太陽電池材料としての期待が再び高まっている。このため、SEMITHERM プロジェクトでは Si にかわり SiGe 融体の熱物性計測に注力することとした。SiGe は全組成で完全に混合する系であるが、Si と Ge の密度差のため、地上では混合が難しい。このため、SiGe 融液

の熱物性値測定も密度差の影響を受け、広い組成範囲にわたっての測定が系統的におこなわれておらず、融液熱物性値の組成変化を推定するモデルはなかった。このため、SEMITHERM プロジェクトでは、SiGe 融体の熱物性について $\text{Si}_{25}\text{Ge}_{75}$, $\text{Si}_{50}\text{Ge}_{50}$, $\text{Si}_{75}\text{Ge}_{25}$, Ge について MSL-EML で測定し、全組成範囲での熱物性を予測するモデルの構築を目指している。しかし、当初 MSL-EML には予備加熱用レーザー搭載予定であったが、このレーザーが搭載されないことになり半導体である SiGe の電磁浮遊が困難となった。そこで、ドーパント不純物を高濃度に混ぜた試料を用意することにした。しかし、高濃度のドーパント不純物を設定した濃度で混入させるには、単結晶を成長させる必要がある。このため、ベルリンのドイツ結晶成長研究所 (The Leibniz Institute for Crystal Growth (IKZ)) と共同で、高濃度のボロンをドーパした SiGe 結晶の成長を試みた。試行錯誤の結果、Fig.1 に示すような SiGe 結晶を育成することができた。単結晶ではないがほぼ単結晶に近いようなグレインの大きな多結晶であった。また、抵抗率はであり、B が 程度ドーパされていたことになる。この程度の抵抗率であれば、MSL-EML の加熱用コイルの に対する効率は十分に得られる。また、B は偏析係数が 1 に近いと、結晶のインゴット内でほぼ均一に分布するため、どの部位から試料を採取しても抵抗率の変化がない。また、半導体融体中の B は蒸気圧が低く蒸発量が少ないため、ISS での金属蒸発量の胃制限に対して問題とはならない。(しかし、B 濃度が増えると Si と Ge の蒸発量が大きくなるため、試料の蒸発量の調査は必要である。) また、の B 濃度は、母材の SiGe に対して 01.%程度であり物性値に影響を及ぼすような量ではない。

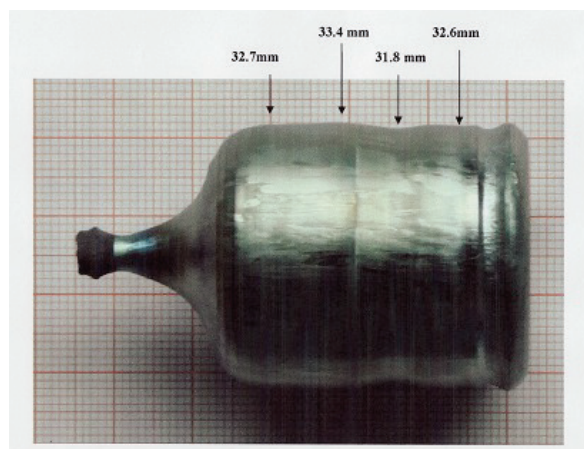


Fig.1 SiGe crystal grown by Cz technique at IKZ, Berlin.

上記したように熱物性の測定は、 $\text{Si}_{25}\text{Ge}_{75}$ 、 $\text{Si}_{50}\text{Ge}_{50}$ 、 $\text{Si}_{75}\text{Ge}_{25}$ 、の組成の融体を計画しており、この組成の試料が必要である。このため、いくつかの条件を検討し上記組成の結晶育成をおこなった。Fig.2 にインゴットの引上げ方向の Ge 組成を固化率に対してプロットした結果を示す。Fig.2 では、2つの異なる条件で育成した結晶の場合を示した。この結果より、Ge 濃度が 50%以上の結晶と、Ge 濃度が 40-60%の結晶が得られたことがわかる。Ge 組成が 40%以下の場合、比較的簡単に結晶育成が可能であった。これらの条件を参照して、引き上げ方向になるべく均一な組成な結晶を育成し、 $\text{Si}_{25}\text{Ge}_{75}$ 、 $\text{Si}_{50}\text{Ge}_{50}$ 、 $\text{Si}_{75}\text{Ge}_{25}$ 、の試料を作成した。

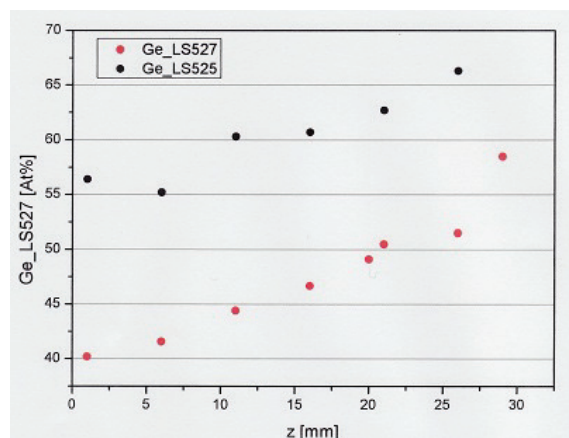


Fig.2 Composition of Ge along growth directions in SiGe crystal.

3. SiGe 融体の密度測定

ISS での測定の予備実験として、地上において静磁場印加電磁浮遊装置[3]を用いて、密度測定をおこなった。静磁場印加電磁浮遊装置[1]を用いて SiGe 融体の密度測定をおこなった。前記した高 B ドープした SiGe 試料を用いて、電磁浮遊と溶解をおこなった。Ar+5% H_2 混合ガスを用い還元雰囲気中で試料を融解し、He ガスで試料温度を制御した。浮遊した試料側面から形状観察し体積を求め、別途測定した質量を使い密度を求めた。側面から液滴形状を取得する際、温度変化による自己発光強度が変化し体積算出に影響を及ぼしてしまう。このため、バックライト光学系を採用し、液滴の影から体積を取得し、自己発光強度に依存しない体積計測をおこなった。この結果得られた、SiGe 融液密度の各組成で温度依存性を Fig. 3 に示す。この結果から、各温度での密度の組成依存性を求め、モル体積の組成依存性を算出した。この結果、SiGe 融液では余剰モル体積がほぼ 0 であり、混合の効果による体積変化がほとんどないことがわかった。これは、前年におこなったノンドープ SiGe 試料の結果と一致しており、B の高ドープの影響は無いことを確認した。

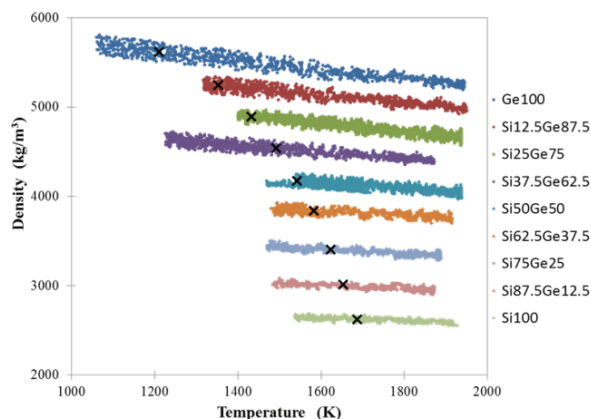


Fig.3 Temperature dependence of liquid SiGe densities with different compositions.

4. 国際 WG による ISS 利用実験計画

2013 年後半に予定している ISS における MSL-EML の実験全般の準備状況について述べる。MSL-EML での試料選定と実験条件などの実際の実験の運用方法を決定していくため、International Working Group of Electromagnetic Levitation が 2009 年に発足し[4] (議長: Prof. I. Egly (DLR), 事務局: Dr. D. Voss (ESA/ESTEC)), 2011 年度は 7 月 15,16 日に第 4 回, 12 月 13,14 日に第 5 回の IWG-EML ミーティングを ESA-ESTEC 会議室においておこなった。この 2 回の会議では、電磁浮遊した試料の蒸発量を検討し、Batch#1 での実験温度、実験回数 および試料の搭載試料の準備方法を決定した。現状での MSL-EML の予定は[5], 2013 年 2 月予定の ATV-5 で装置と Batch#1 試料を ISS へ搬送し実験開始となっている。このため、搭載用試料 Ge,SiGe を 2012 年 9 月までに準備することとなっている。このため、DLR/MUSC (Microgravity User Support Center) で各試料の蒸発レートを測定した。Ge,SiGe 試料の蒸発レートの結果を Fig.4 に示す。この結果より、Ge, SiGe については蒸発の問題がないことを確認した。このデータを基に、各試料の実験の回数を決定していく。

謝辞

本研究は、宇宙環境利用科学委員会研究班ワーキンググループ活動として実施された。また、一部は、JST 先端計測分析技術・機器開発事業「超高温熱物性計測システム支援ソフトウェアの開発」、私立大学戦略的研究基盤事業「環境調和を指向する基盤技術と新物質の開 (学習院大学)」、慶応義塾大学グローバル COE プログラム「環境共生・安全システムデザイン」の先導拠点の一環として実施した成果であり、関係各位に感謝いたします。

【参考文献】

- [1] S. Ozawa et al., J. Appl. Phys. , 109 (2010) 014902.
S. Ozawa et al., J. Jpn. Soc. Microgravity Appl., 27 (2010) 215-221.
- [2] 渡邊匡人ら, 日本マイクログラビティー応用学会誌 27(2010)143.
- [3] H. Fukuyama *et al.*, Meas. Sci. Technol., 18 (2007) 2059.
- [4] I. Egry and D. Boss, J. Jpn. Soc. Microgravity Appl., 27 (2010) 178-182.
- [5] W. Soellner et al., J. Jpn. Soc. Microgravity Appl., 27 (2010) 183-189.