

## 研究班活動：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

日比谷孟俊<sup>1</sup>, 小澤俊平<sup>1</sup>, 尺長憲昭<sup>1</sup>, 渡辺匡人<sup>2</sup>, 小畠秀和<sup>3</sup>, 福山博之<sup>3</sup>, 塚田隆夫<sup>4</sup>, 安田秀幸<sup>5</sup>, 景山太郎<sup>6</sup>

<sup>1</sup>首都大学東京, <sup>2</sup>学習院大学, <sup>3</sup>東北大学, <sup>4</sup>大阪府立大学, <sup>5</sup>大阪大学, <sup>6</sup>D A S

## Measurement of Oxygen Partial Pressure Dependence of Surface Tension for High Temperature Melts under Microgravity

Taketoshi Hibiya<sup>1</sup>, Shumpei Ozawa<sup>1</sup>, Noriaki Takenaga<sup>1</sup>, Masahito Watanabe<sup>2</sup>, Hiroyuki Fukuyama<sup>3</sup>, Hidekazu Kobatake<sup>3</sup>, Takao Tsukada<sup>4</sup>, Hideyuki Yasuda<sup>5</sup>, Dairo Kageyama<sup>6</sup>

<sup>1</sup>Tokyo Metropolitan University, 6-6 Asahigaoka Hino Tokyo 191-0065

<sup>2</sup>Gakushuin University, Mejiro, Toshima, Tokyo 171-8588

<sup>3</sup>Tohoku University, 2-2-1 Katahira, Aoba, Sendai 980-8577

<sup>4</sup>Osaka Prefetural Univesity, Naka-ku, Sakai 599-8531

<sup>5</sup>Osaka University, Yamada-oka, Suita 565-0871

<sup>6</sup>Diamond Air Service, Toyoyama-cho, Nishikasugai 480-0202

E-Mail: hibiya@cc.tmit.ac.jp

**Abstract:** Levitation is an elegant method to measure thermophysical properties of high temperature melts, such as molten semiconductors, molten steel and so on. The effect of applying magnetic field and use of microgravity environment are compared. We propose measurement of surface tension by electromagnetic levitation in an atmosphere with various oxygen partial pressures in microgravity on board the airplane under the collaboration with European scientists in a the frame work of collaboration program “JAXA-ESA Topical Team”

**Key words;** Surface tension, Oxygen partial pressure, microgravity, ESA-JAXA Topical Team, Parabolic flight

### 1. 緒言

半導体の結晶成長や、航空機用タービンブレードの精密鑄造、原子炉容器の溶接など、高付加価値高温融体プロセスの最適化には、実験により行うことに加えてコンピュータの数値計算で行うことが、製品開発期間の短縮とコスト低減に貢献している。しかしながら、高温融体の場合、測定が困難であることから、コンピュータの性能の向上に比べて、シミュレーションに用いる融体の熱物性データの整備が遅れている。無容器浮遊技術は、反応性に富む高温融体を取り扱う上で優れた方法である。特に、電磁浮遊法は、導電性試料の熱物性値、とくに、表面張力の測定を雰囲気酸素分圧の関数として測定するためには、優れた技術である。当初、金属融体に適用されていたこの方法は、半導体融液にも利用が可能となった[1]。

浮力による対流が顕著な高温融体を扱う際に、対流を抑制するために、結晶成長や製鉄製鋼プロセスなどでは、静磁場の印加が利用されている。安田らは、電磁浮遊法に静磁場を重畳させることにより、浮遊液滴法における不必要な振動が除去できること、また、液滴は熱的には剛体として取り扱える可能性を報告している[2]。

本報告では、本研究班のメンバーが携わってきた、電磁浮遊法と静磁場の組み合わせによる効果を利用した高温融体の熱物性測定について、研究の成果を概観し、熱物性測定における静磁場印加について検討する。電磁浮遊における表面張力測定にあつては、微小重力環境の利用が最も望ましいことを述べ、航空機の放物線飛行による高温融体熱物性測定計画について提案する。

### 2. 電磁浮遊法による熱物性測定における静磁場印加

電磁浮遊に静磁場を組み合わせた場合の、熱物測定における効果を紹介する。渡辺らのグループでは、電磁浮遊による融液の密度測定を、静磁場中で実施し、測定の不確かさが減少することを報告している[3]。密度の測定は質量が既知の融液試料の体積を求めることによって行う。電磁浮遊の場合、コイル中で液滴が振動、あるいは、回転する。このため、試料の水平方向から画像を観察して体積を求めると、通常は figure 1 のように、見かけの体積が時間軸に対して振動するように見える (0T の場合)。磁場を印加しない場合には、バラツキの大きい画像を時間に対して 200 枚程度重ね合わせ、液滴形状の

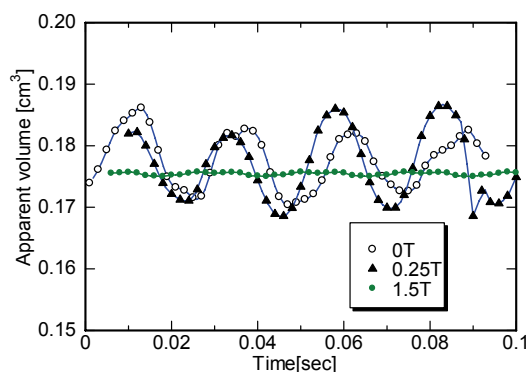


Figure 1 Time dependence of apparent volume of electromagnetically levitated molten Si at 1680K under various static magnetic fields 1 [3].

平均を取り、平均した液滴の形状は軸対称であることを仮定して、ルジャンドルの多項式を用いて体積を算出することになる。磁場を印加した場合には、磁場の印加により液滴形状の軸対称性が向上する。Figure1 の例では、1.5T の磁場により、見かけの液滴体積は時間依存性を示すことが殆どなくなる。この結果、体積測定の際の不確かさが減少することになる。

福山らのグループでは、静磁場印加下での電磁浮遊法に、レーザの周期加熱を組み合わせた AC カロリメトリを、浮遊液滴に適用することを試みた[4,5]。この方法は、Wunderlich および Fecht[6]が、宇宙環境での測定のために開発した方法であるが、福山らは、磁場を印加することにより液滴内部の流れを殆ど止め、浮遊液滴に AC カロリメトリを適用した熱伝導率の測定に、世界で初めて成功した。Figure 2 に示すように、電磁浮遊させた液滴試料の上部からレーザビームで周期加熱し、下方で温度を測定する。レーザによる加熱を止めたときの試料の冷却曲線から半球全放射率が求まる。周期加熱したときの、試料下部において測定された温度振動の振幅から

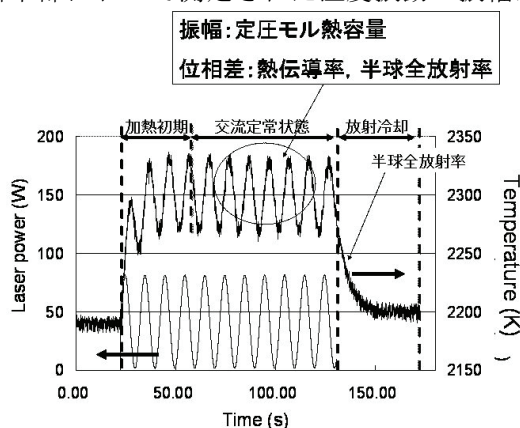


Figure 2 AC calorimetry using electromagnetic levitation.

Table.1 Hemispherical total emissivity (measured by a cooling curve and the phase difference), isobaric molar heat capacity and thermal conductivity of levitated molten silicon [4,5]

半球全放射率： 冷却曲線より	半球全放射率： 位相差より	定圧モル熱容量 量 kJ/mol-K	熱伝導率 W/m-K
1690 ~	1750 ~	1750~	1750~
1800K	1950K	2050K	2050K
0.23±0.033	0.25±0.033	28.2±3.3	62 ± 5

液滴試料の低圧モル熱容量が測定できる。また、周期加熱に用いるレーザビームの変調周期と、試料下部において二色温度計で測定される温度振動の周期との位相差から、熱伝導率と半球全放射率が測定できている(Table 1 参照)。

電磁浮遊による表面張力測定において静磁場を重畳した場合には、重心移動のみならず、表面張力起因の振動をも抑制することになり、強い磁場の印加は表面張力の測定には適さない。磁場の強度を大きくした場合、 $m = \pm 2$  モードのみが残存するように見える場合がある。このことから、5 つに分裂する振動モードが縮退するように見えるので、振動周波数からの表面張力計算が容易になるかと思われたが、回転による効果が観察されていたことが判明した[7]。表面振動の減衰から粘性率を測定する場合においても、磁場の印加は振動の減衰を速めることになり、測定に利用できない[8]。

以上から、密度、半球全放射率、低圧モル熱容量、熱伝導率の測定は、磁場印加が有効であるが、粘性率と表面張力には磁場印加は有効な手段ではない。

### 3. 航空機利用による表面張力測定

電磁浮遊法による表面張力の測定には、液滴の形状が真球になり、振動モードが1つとなる。重力および磁気力によって5つのモードに分裂した場合に比べ、測定が容易になる。JAXA が開発した航空機搭載用電磁浮遊装置 (Parabolic Flight Experimental Facility: PFLEX) (Fig. 3)を航空機に搭載し、かつ、この装置が雰囲気制御が可能であることを用いて、シリコン融液や金属融液の表面張力測定を計画している。

### 4. JAXA-ESA トピカルチーム

2006 年 10 月 23 日 JAXA と ESA との間で、高温融体熱物性測定にトピカルチームの会合が持たれた。日本側が提案する航空機による熱物性計測共同研究の枠組みがスタートした。当ワーキンググルー



Fig. 3 Members of ESA topical team.

ブでは、航空機の放物線飛行による微小重力状態を利用した、酸素分圧制御による金属性融体の表面張力測定を計画している。一方、ヨーロッパの熱物性研究者ら（Fig. 3 参照）は、ESA が開発した電磁浮遊装置 MSL-EML による高温融体の熱物性計測計画を有している。しかしながら、MSL-EML では雰囲気気を制御した浮遊は困難である。トピカルチームの



Fig. 4 航空機搭載用電磁浮遊装置：PFLEX: Parabolic Flight Levitation Experiment Facility.

席上、JAXA が開発した航空機搭載用電磁浮遊装置 PFLEX（Fig.4）を紹介した。日本側での実験機会公募の際に、共同で雰囲気制御による高温融体熱物性測定実験を提案することとなった。

#### 5. PFLEX による微小重力実験計画

現在、学習院大学と首都大から、粘性率測定と表面張力測定技術確立のための実験が提案されており[8]、2006-2007 年度において実施の予定である。さらに、次の提案の機会に、ESA 研究者と共同で、制御された雰囲気のもとで、高温融体の表面張力測定を提案し実施してゆきたい。

#### 6. PFLEX 整備状況

PFLEX を日本宇宙フォーラムより借用し、首都大

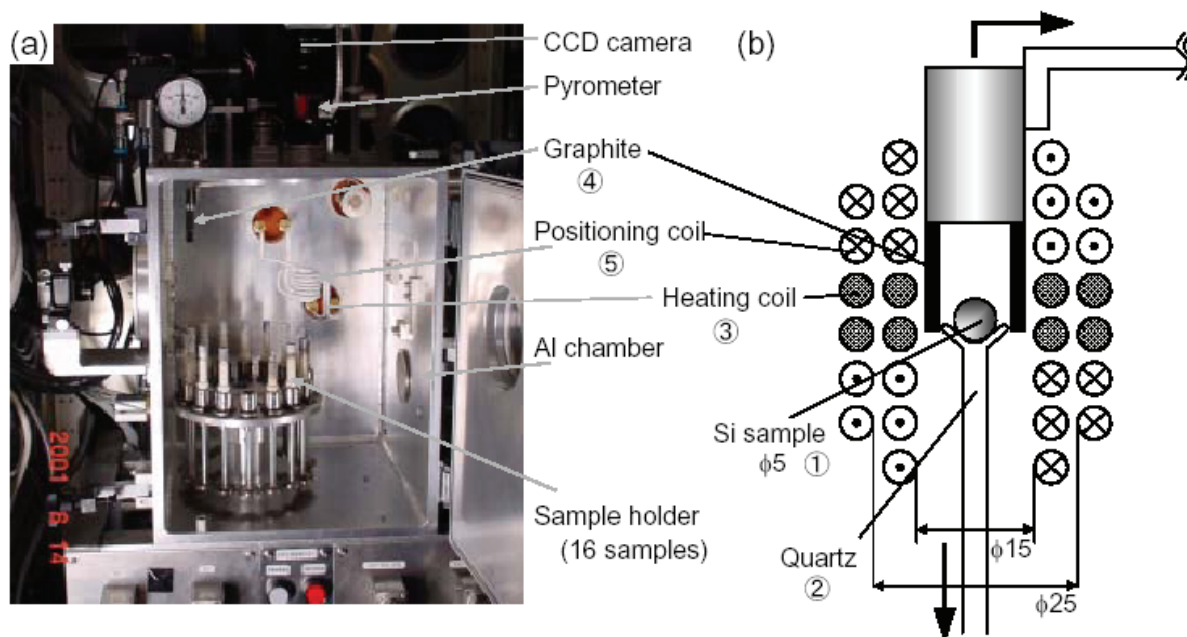


Fig 5 Sample holder and susceptor for the PFLEX.

に設置し、整備を進めている (Fig.4) . 現状、以下の問題について検討を行っている.

- ・ 予熱用サセプタ取り付け位置
- ・ 電子式ガス流量制御の導入
- ・ 試料ホルダー材質
- ・ 試料形状の検討
- ・ 磁気中心合わせ (地上と微小重力下との違い)

現状の PFLEX では、室温では電気抵抗が大きな半導体試料を浮遊溶融させるために、カーボンサセプタを試料上方から被せるようにしている[5]. しかし、この方法では、試料上方からの液滴振動の観察が困難であるために、サセプタを試料の下方に設ける. 測定時の雰囲気酸素分圧を制御するために、電子式ガス流量制御装置を導入する. 現状では、試料ホルダーは石英ガラス製であるが、溶融試料と反応する可能性があるため、BN もしくは pBN 製に交換する. 微小重力状態において試料の浮遊溶融を行い、かつ、試料の振動を観察するためには、試料の浮遊溶融を、短時間で、かつ、安定に行う必要がある. このためには試料を安定に浮遊させる必要がある、したがって、試料形状としては球状のものを採用する. 重力加速度が働く地上と微小重力状態とでは、試料の安定浮遊位置が異なることになる. 微小重力状態で安定浮遊できるよう、運用時の調整が必要となる.

## 7. まとめ

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に関する研究班では、電磁浮遊装置による金属性融体の熱物性計測を行う場合の、磁場重量と微小重力環境利用の異同について検討した. 密度、半球全放射率、熱伝導率測定においては、地上において静磁場を測定することにより、測定値における不確かさの向上、あるいは、測定そのものが地上において可能となるという結論を導いた. 表面張力と粘性測定においては、原理的に微小重力状態の利用が望ましい.

## 参考文献

- 1) M. Przyborowski, T. Hibiya, M. Eguchi and I. Egry, "Surface Tension Measurement of Molten Silicon by the Oscillating Drop Method using Electromagnetic Levitation", *Journal of Crystal Growth*, 151, (1995) 60-65.
- 2) H. Yasuda, I. Ohnaka, Y. Ninomiya, R. Ishii, S. Fujita, K. Kishio, "Levitation of metallic melt by using the simultaneous imposition of the alternating and the static magnetic fields" *J. Crystal Growth*, 260, (2004) 475-485.
- 3) M. Adachi, K. Higuchi, A. Mizuno, M. Watanabe, H. Kobatake, H. Fukuyama, "Precise density measurement for electromagnetically levitated liquid combined with the surface oscillation analysis", *Int. J. Thermophys.* Submitted.
- 4) 福山博之, 小島秀和, 塚田隆夫\*, 淡路智, "静磁場中非接触 AC カロリメトリーによる溶融シリコンの熱容量, 放射率, 熱伝導率同時測定法の開発", 熱測定, 33, (2006).204-210.
- 5) H. Kobatake, H. Fukuyama, I. Minato, T. Tsukada, S. Awaji, "Noncontact measurement of thermal conductivity of liquid silicon in a static magnetic field", *Appl. Phys. Lett.*, in press.
- 6) R. K. Wunderlich, H.- J. Fecht, "Modulated electromagnetic induction calorimetry of reactive metallic liquids", *Meas. Sci. Tech.nol.*, 16, (2005) 402-416.
- 7) 小澤俊平, 尺長憲昭, 江田拓朗, 小島秀和, 福山博之, 渡辺匡人, 日比谷孟俊, 淡路智, "静磁場印加中で電磁浮遊したシリコン液滴の振動挙動", 宇宙利用シンポジウム (第 23 回), 2007 年 1 月.
- 8) 渡辺匡人, 日比谷孟俊, "航空機を用いた微小重力環境下での電磁浮遊法による高温融体熱物性値計測", 宇宙利用シンポジウム (第23 回), 2007年1月.