

温度勾配炉（GHF）を用いた高精度拡散係数測定法の開発

正木 匡彦*¹, 伊丹 俊夫*², 渡辺 勇基*³

Measurement of diffusion coefficient of liquid metals by using gradient heating furnace in ISS

Tadahiko MASAKI*¹, Toshio ITAMI*², Yuki WATANABE*³

Abstract : The experimental techniques for the measurements of diffusion coefficient have been studied in JAXA toward the utilization of microgravity environment in ISS. The experimental cartridge for the gradient heating furnace, GHF, was developed for the application of shear cell which is the advanced technique of diffusion experiments. The temperature profiles of GHF were measured for the diffusion experiments and the isothermal condition can be attained by the optimization of furnaces positions and temperatures

Keywords : Diffusion, shear cell, GHF

概 要

JAXA では宇宙環境を利用した拡散係数測定のための実験技術の研究を進めており、温度勾配炉 (GHF) を使用するための試料カートリッジとシアセルを開発している。本年度は、GHF を用いた均熱加熱実験のための加熱パラメータおよび電気炉配置の最適化を行い、1000℃における均熱実験が可能であることを確認した。

1. 緒 言

金属や半導体融液の輸送係数、特に拡散係数は、凝固や結晶成長過程を理解する上で最も重要な物性のひとつである。この拡散係数を高精度に測定するため、細管法やシアセル法が研究されてきている。高温液体の拡散係数を通常の重力環境において測定する場合、試料中の温度勾配により発生する対流の影響を考慮する必要がある。細管法は、試料を直径 1 mm 程度の細管中に入れることにより対流による流動を小さくし、高精度に拡散係数を測定する方法である。この細管法を用いることにより、通常の重力下や無重力環境下において、様々な物質の拡散係数が測定されている [1]。しかしながら、直径 1 mm 程度の細管では、対流の影響を完全に排除することは不可能であるため、微小重力環境を利用した本質的に対流の無い条件の測定が試みられてきた。例えば、スペースシャトルを用いた Sn の自己拡散係数の測定実験では、温度環境や試料の直径が異なっているにもかかわらず、Frohberg ら [2] と Itami ら [3] の実験結果がよく一致しており、対流の影響を考慮する必要のない微小

*¹ : Japan Aerospace Exploration Agency, 2-1-1 Sengen, Tsukuba, Ibaragi, 305-8505
e-mail: masaki.tadahiko@jaxa.jp

*² : Graduate School of Science, Hokkaido Univ. N10W8, Kita-ku, Sapporo, 060-0810

*³ : Advanced Engineering Service Co.Ltd., 1-6-1 Takezono, Tsukuba, Ibaragi, 305-0032

重力環境が、拡散係数を測定する際の理想的環境であることが示されている。細管法は、比較的簡便かつ精度の高い測定法であるが、試料の温度変化や溶融凝固時の体積変化による流動の影響を避けられない点が、合金や半導体融液の拡散係数測定に適用する際の課題であった。これら影響を取り除くために、シアーセルと呼ばれる坩堝機構が考案された。これは、Fig.1に示すように複数の円盤状坩堝を組み合わせることで細管を構成し、さらにその円盤状坩堝を独立に回転制御することにより、拡散試料を自在に接合・分断することが可能な方法である。このシアーセルを用いることにより、幅広い温度範囲における合金や半導体融液の拡散係数を測定することが可能である。近年、日米独の各国において、シアーセル法と微小重力環境を組み合わせた拡散係数測定実験が行われてきている [4]。また、国際宇宙ステーション (International Space Station, ISS) における定常的な微小重力環境を利用することにより、将来的に様々な物質の液体状態の拡散係数を高精度に測定することが可能である。JAXA では、微小重力環境における拡散係数測定法を確立するために、国際宇宙ステーションへの搭載が計画されている温度勾配炉 (GHF) のための宇宙実験用のシアーセルの開発を進めてきた。現在、カートリッジの試作が完了し、GHF を均熱炉として使用するための電気炉コンフィギュレーションの最適化や試料近傍の温度分布の取得を進めている。本報告では、この GHF 用カートリッジの開発状況について報告する。

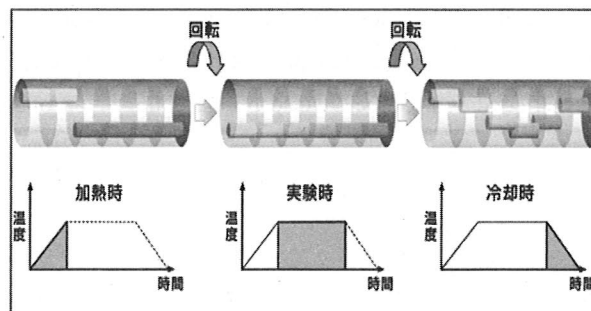


Fig. 1 Schematic figure of shear cell

2. GHF 用シアーセルカートリッジと温度分布

シアーセル法を用いることにより、地上の重力環境化においても高温融体の拡散係数を高精度に測定することが可能になりつつあるが、対流の影響を実験的に分離し、真の拡散係数を得るためには無対流条件の実験との比較が不可欠である。現在建設が進められている国際宇宙ステーションでは、最初の高温実験用の装置として温度勾配炉 (Gradient heating furnace, GHF) の搭載が計画されている。我々はこの GHF を用いた微小重力拡散実験を目指し、宇宙実験用のシアーセルおよびその実験カートリッジの開発を進めてきた。GHF は Fig.2 に示すように 3 基の加熱室を有する温度勾配型の加熱装置であるが、加熱室の配置や加熱条件を工夫することにより、試料長は限定されるものの、ほぼ均熱の加熱実験をすることが可能である。そこで、我々は宇宙ステーションに搭載される GHF とほぼ同等の加熱性能を有する適合性試験用 GHF を使用し、加熱試験用の実験カートリッジの試作と均熱加熱性能試験を行った。製作したシアーセルおよびシアーセルカートリッジの概念図を Fig.3 に示す。シアーセルを収納する金属製の鞘やカートリッジを装置に固定するための把持部については、GHF の標準的なカートリッジの設計を踏襲した。シアーセルの特徴である円盤状坩堝の回転による試料の接合・分断をするために、把持部内に小型のモーターを設置するとともに、カートリッジ内に密閉封入したアルゴンガスの気圧を 1 気圧程度に維持するために、金属ベローズを追加した。

今回の実験は温度分布の取得を目的としているため、カートリッジからモーターやシアーセル坩堝を取り外し、三本の熱電対を新たにカートリッジ内に挿入した。試料部には、シアーセルと同等の熱容量および熱伝導度を有するグラファイトブロックを設置し、熱電対の先端をそのグラファイトブロックに差し込むことにより実際

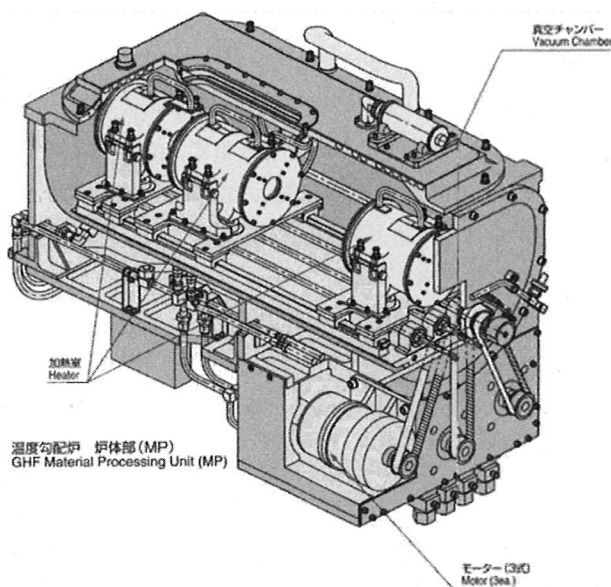


Fig. 2 Configuration of furnaces of GHF

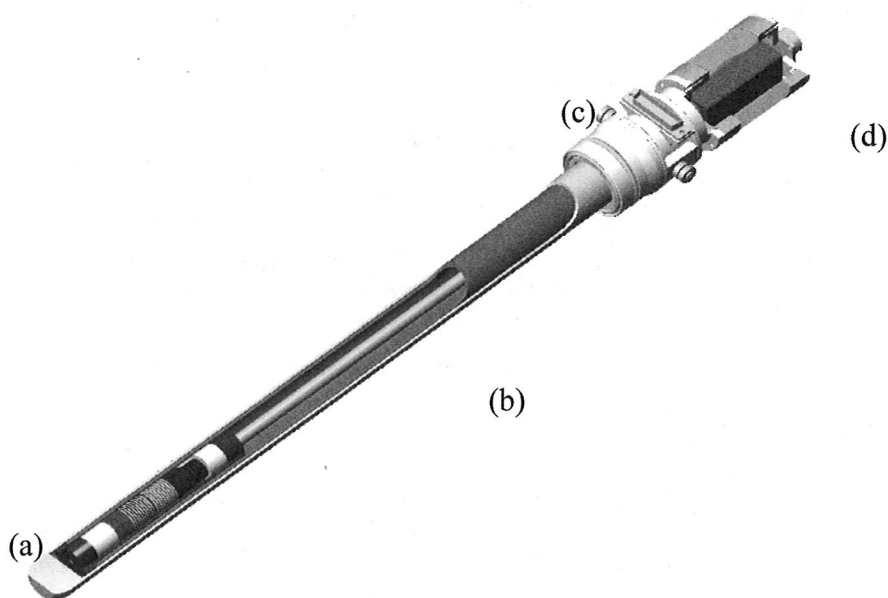


Fig. 3 Shear cell cartridge for microgravity experiments with GHF
(a) Shear cell, (b) metal tube, (c) fitting part and (d) gas reservoir and DC motor.

の試料を入れた際の温度分布に近いデータが取得できるように考慮した。Fig. 4は得られた温度分布と電気炉およびカートリッジの位置関係を示しているが、中央の電気炉を約1000℃に設定し、カートリッジ端部の電気炉を約1130℃に設定することにより、一般的な拡散実験の試料長である約60mmにおいて±2 Kの均熱条件が得られることが明らかになった。我々がこれまでリファレンスデータを取得してきたAg-Au合金や半導体材料のひとつであるゲルマニウムは1000℃近傍に融点を有するため、GHFを用いることによりこれらリファレンス系の均熱条件の拡散実験をすることが可能である。

均熱加熱条件の拡散係数と同様に、温度勾配下における不純物原子の輸送現象（ソーレ効果）も重要な物性の

ひとつである。GHFは本来温度勾配加熱用の電気炉であることから、今回試作したカートリッジを使用したソーレ効果の実験の可能性を考慮することは重要である。そこで、我々は同じカートリッジを使用して試料部における最大の温度勾配を求めた。電気炉の配置については均熱加熱条件と同じとし、端部室の温度を1400℃に上げることにより、約60mmの試料の両端に180Kの温度差をつけられることを確認した。過去の宇宙実験[2]では、Sn中のCoのソーレ効果の測定において、18mmの試料に対して340Kの温度差を与えている。今回の条件では、過去の宇宙実験よりも試料長を長くすることにより空間的な濃度分布の分解能を上げているため、温度勾配は小さくとも、ソーレ効果の検出が可能であると考えられる。また、坩堝やカートリッジ形状を工夫することにより大きな温度勾配を印加することが可能であり、将来の宇宙実験の重要課題の一つとして、ソーレ係数の計測の検討を始める必要がある。

今後、実際にカートリッジ内にシアーセル坩堝を装填し、金属試料を用いた拡散実験およびソーレ効果の測定実験を行う予定である。

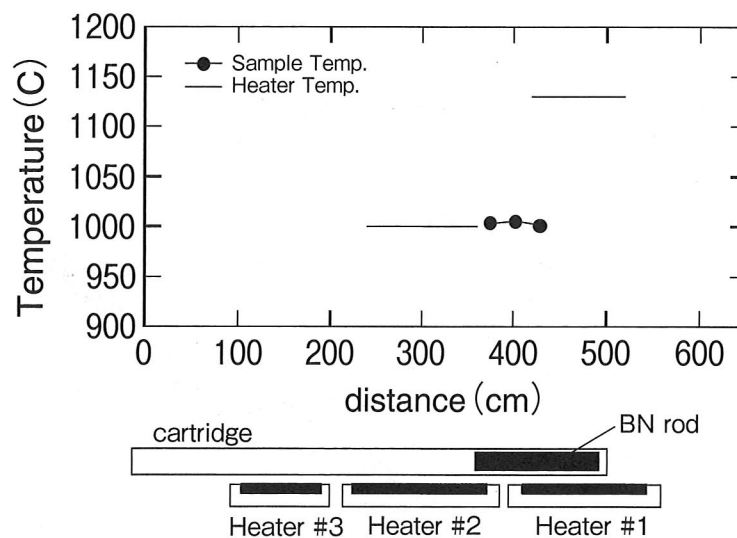


Fig. 4 Temperature profile of GHF in the isothermal configuration

3. 宇宙実験の実施に向けたシアーセルの改良

国際宇宙ステーションにおける微小重力実験を効率よく行うためには、実験に使用する装置や器具の往復の輸送コストを十分に考慮する必要がある。従来のGHF用のカートリッジ設計は、炉体へはめ込むための把持部を含めたカートリッジ全体を地上からISSへ運び、実験後に再びカートリッジ全体を持ち帰ることを前提とした設計となっていた。しかしながら、国際宇宙ステーションの稼動初期においては、輸送可能な重量や機会が限定されることから、カートリッジ本体と試料部を切り離すことが可能な設計に変更し、試料部のみを輸送したほうが実験機会の獲得において、より有利である。我々は現状のシアーセルの開発を進めるとともに、上記の設計思想に基づいたより簡略化したシアーセルの開発を開始した。たとえば、簡略化のひとつとして、溶断ヒューズとカーボンスプリングを用いたパッシブなシアーセル駆動機構などを検討中である。このような簡略化かつ小型化したシアーセルを新たに開発することにより、国際宇宙ステーションだけでなく、回収カプセルや小型ロケットなど宇宙実験手段の選択肢を広げることが可能であると考えられる。

4. まとめ

GHF のカートリッジを試作し、1000℃における均熱加熱および温度勾配加熱実験のための電気炉コンフィグレーションを求めた。最適化したコンフィグレーションでは、試料長60mm において± 2 K の均熱拡散実験と30 K/cm の温度勾配実験が可能であることを明らかにした。今後 GHF が均熱・温度勾配加熱の両実験に活発に使用され、結晶成長などの材料プロセッシング実験だけでなく物性計測実験にも活用されることを期待する。

参 考 文 献

- [1] M. Shimoji and T. Itami, “*Atomic transport in liquid metals*”, Trans Tech Publications, 1986.
- [2] G. Frohberg, “Diffusion and Atomic Transport” in “*Materials Science in Space*”, Springer-Verlag, Berlin(1986), pp.93.
- [3] T. Itami, M. Kaneko, M. Uchida, M. Odawara, T. Masaki, and S. Yoda, “Diffusion of liquid metals and alloys – The study of self-diffusion under microgravity in liquid Sn in the wide temperature range”, *J. Jpn. Soc. Microgravity Appl.*, 15, 225(1998).
- [4] T. Masaki, T. Fukazawa, S. Matsumoto, T. Itami, and S. Yoda, “Measurements of diffusion coefficient of metallic melt under microgravity – Current status of the development of shear cell technique towards JEM on ISS–”, *Measure. Sci. Tech.*