

委 2 6 - 3

宇宙実験用小型ロケット (TR-IA) 4 号機
微小重力実験成果報告

— 溶液成長や共晶合金の分野で微小重力下での理論検証に成功 —

平成 8 年 9 月 4 日
宇宙開発事業団

宇宙開発事業団は、宇宙環境利用の促進、宇宙ステーションでの各種実験に必要な宇宙実験技術の高度化、宇宙ステーション用共通実験装置の要素技術の開発に資することを目的として、平成 7 年 8 月 25 日に TR-IA 4 号機を打ち上げ、合計 5 テーマの微小重力実験を実施した。

その後、実験結果の解析作業を行ってきたが、この度、実験成果を報告書として取りまとめたので、その概要を報告する。

流体物理実験においては、世界で初めて液柱マランゴニ対流において粒子の位置・速度を 3 次元的に計測することに成功した。これにより流速分布及び振動マランゴニ流の温度振動周期を求めることが出来た。この結果は、長年不明であるマランゴニ振動流のメカニズムの解明にとって貴重な実験データを提供することとなった。

拡散実験においては、地上実験では対流のため取得できなかった鉛・錫・テルル化合物半導体の 1000℃ における拡散係数の測定ができ、拡散係数測定における微小重力利用の有効性が示された。この結果及び今後継続的な微小重力実験を行うことにより、本材料の拡散係数の温度依存性の解明、融液中の拡散メカニズム解明への寄与のほか、半導体製造の最適条件の導出に向けて工業的に大きな前進を促すことが期待される。

半導体実験においては、微小重力下でのシリコン半導体融液の振動マランゴニ対流を世界で初めて観察することに成功し、シリコン融液のマランゴニ対流のメカニズム解明にとって貴重な基礎データを取得できた。これにより、振動マランゴニ対流のメカニズム解明が大きく前進することが期待される。

溶液成長実験においては、結晶面が成長する様子の分子レベルでの観察に成功し、ごく微小な結晶成長速度と成長面近傍の溶液濃度との関係を微小重力下で初めて計測することができた。この結果から、地上では溶液中の不純物が成長面に付着し成長核が形成されるが、微小重力下ではこの成長核が形成されないことを世界に先駆けて見出した。これにより、新しい結晶成長理論の検証がなされた。

金属・合金実験においては、凝固分野における長年の問題であった共晶系合金の重力による偏析メカニズムについて、微小重力を利用することにより、この系の重力偏析の原因が結晶粒と融液との密度差による沈降・浮上によって生ずることが世界で初めて明らかとされた。

以上

流体物理実験

(1) 実験テーマ (代表研究者)

液柱マランゴニ流による振動流の3次元観察

(東京理科大学 理工学部 河村 洋 教授)

(2) 実験目的

流体物理基礎特性測定装置Ⅱ型(F T X-Ⅱ)を用いて、周期的に変化する振動マランゴニ対流を3次元的に観察し、それにより流れの構造を世界で初めて明らかにすると共に、コンピュータを使った計算結果と比較する。

また、本実験を通じて透明流体の流れの3次元観察技術や3次元画像解析ソフト等の技術の獲得を図る。

(3) 実験成果

① 科学的成果

液体内での軸対称流と非軸対称流のマランゴニ対流が観察され、粒子の3次元位置を特定し、流速分布及び振動マランゴニ流の温度振動周期を求めることができた。

この成果は、集積回路の高密度化に対応したシリコンウエハの作製にとって問題となってきたマランゴニ対流現象の解明に寄与し、その制御手法への反映を通じて、半導体等の結晶成長技術の向上に貢献することが期待できる。

② 技術開発成果

透明流体の流れの3次元観察技術では、透明流体内に可視化手段として微小粒子を混入し、光学観察系により観察画像を取得し、微小粒子の3次元追跡を行い、流体の流れを3次元観察することを可能とした。

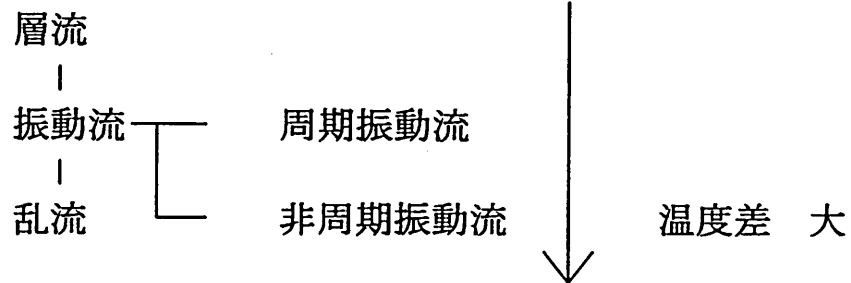
3次元画像解析プログラムの開発では、流体内の微小粒子の観察画像からの粒子追跡・同定に関し、高精度カメラ校正用ソフトウェアや、粒子追跡ソフトウェア、及び3次元流れ場構築用ソフトウェアを製作し、今後の宇宙ステーションでの実験に必要な各種の技術が習得できた。

液柱マランゴニ流による振動流の3次元観察

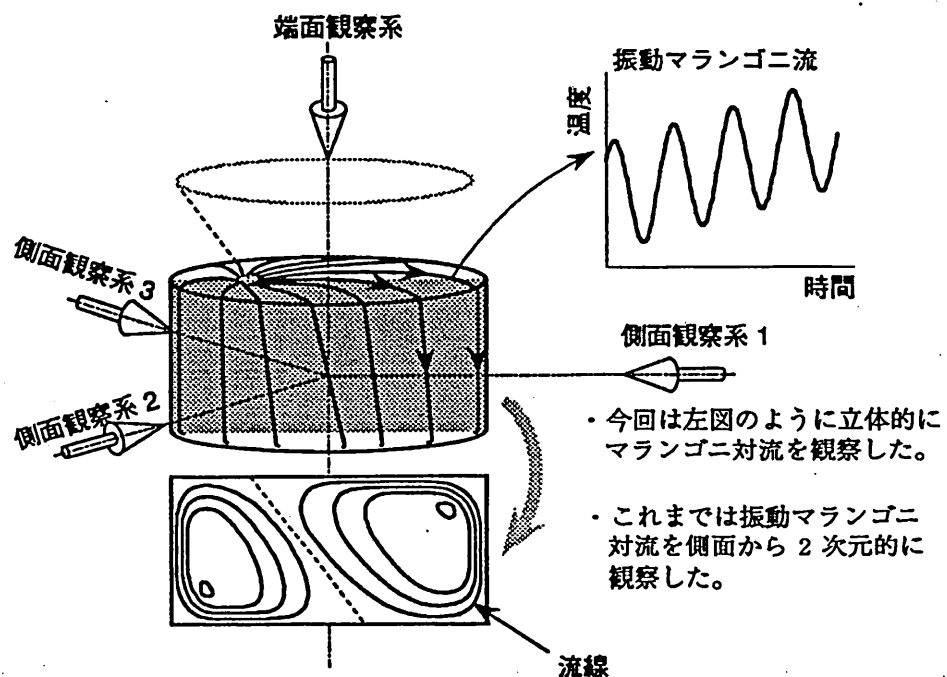
<本実験の特徴>

3次元マランゴニ対流観察（軸対称流および非軸対称流）
大型液柱の形成（液柱サイズ50 mm ϕ $\times$ 33 mm L）

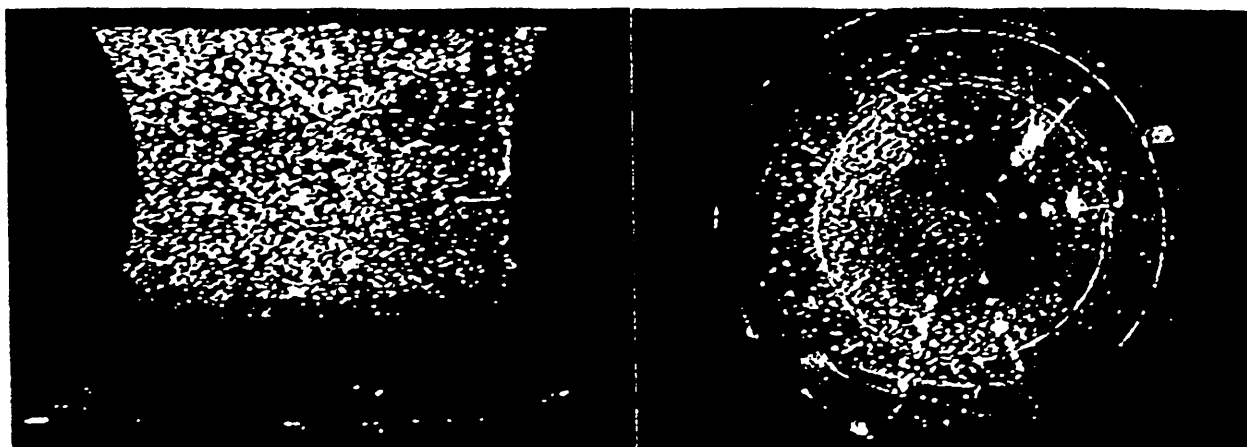
<マランゴニ対流の種類>



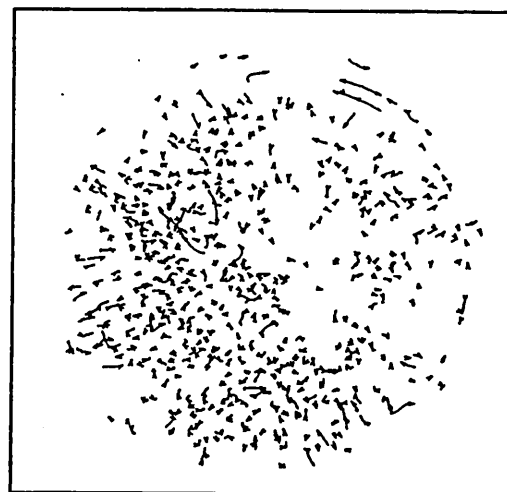
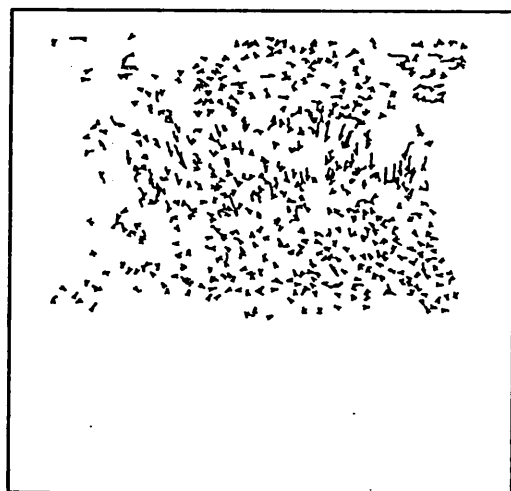
マランゴニ対流は、層流以外はまだあまり明らかにされていない



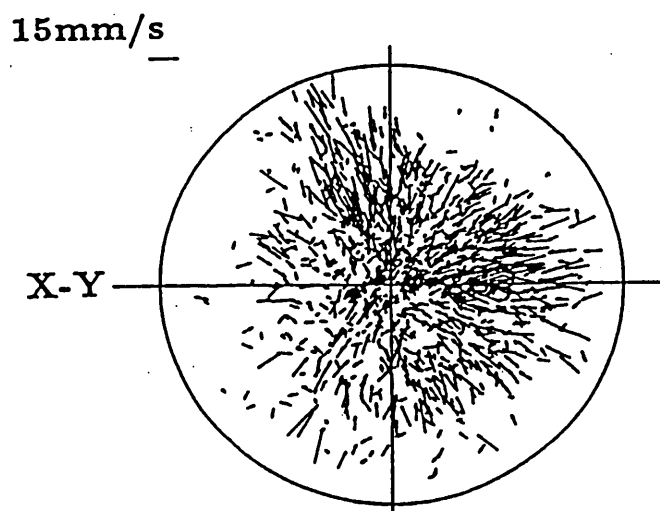
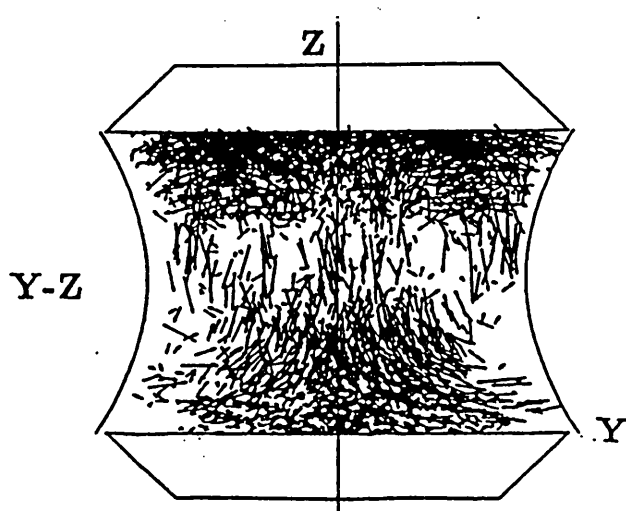
3次元流速分布の測定について



- (1) 液柱内のトレーサーの動きを、3台のカメラでビデオ観察する。
(写真左は側面観察系の2台のカメラのうち1つのビデオ画像であり、
写真右は端面観察系のカメラで取得したビデオ画像)



- (2) トレーサーのコンピュータ画面取り込み結果。



- (3) コンピュータに取り込まれた粒子の動きを3次元的に捉え、速度分布を算出する。算出にあたっては、液柱表面での屈折も考慮に入れる。

拡散実験

(1) 実験テーマ (代表研究者)

微小重力下の化合物半導体鉛スズテルルの融液拡散係数の測定
(石川島播磨重工業株式会社 技術研究所 内田 美佐子 研究員)

(2) 実験目的

汎用加熱装置を用いて、物質の輸送・移動に対する熱対流の影響を取り除くことにより、赤外線素子材料として有望視されている鉛スズテルルのスズの拡散係数を高精度に測定する。本実験では拡散実験に必要な試料急冷技術の開発を行う。

(3) 成果の概要

① 科学的成果

1 G.リファレンス実験では対流のため取得できなかった鉛・¹¹⁹スズ・テルル化合物半導体の1000℃における拡散係数の測定が、ロケット実験で測定できた。本実験から算出した拡散係数を解析により温度依存性をもとめ、他のロケット実験や地上実験と比較することができ、高精度の拡散係数算出への足がかりとなった。

本実験結果は、融液中の拡散のメカニズムの解明に寄与することのほか、環境計測用赤外線レーザー等に使用される鉛スズテルル化合物半導体製造の最適条件の導出に寄与し、工業的に大きな前進を促すことが期待される

② 技術開発成果

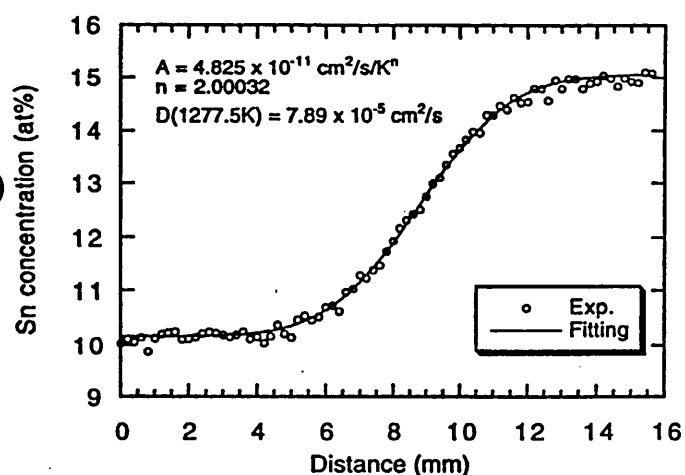
ガス流しによる冷却用カートリッジを開発し、従来の小型ロケット実験に比べ飛躍的に速い試料急冷技術の開発を行うことができ、小型ロケット実験による高精度拡散係数測定が可能となった。

微小重力下の化合物半導体鉛スズテルルの融液拡散係数の測定

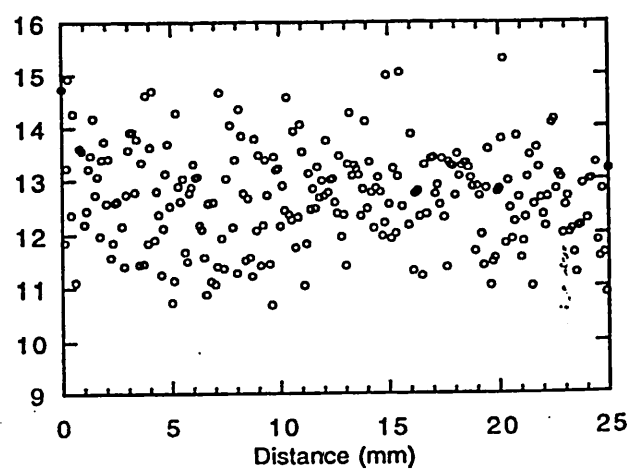
～ 短時間微小重力での拡散係数の測定に成功 ～

精度の高い拡散係数を測定するためには、長時間（2時間程度）の実験時間が必要とされている。

本実験では、短時間（6分間）の実験で濃度分布を得ることができ、高い精度で拡散係数を取得することができた。



(a) フライト実験試料のスズの濃度分布



(b) 1gリファレンス試験でのスズの濃度分布

<本実験において導入された新しい手法>

・急冷カートリッジの開発

冷却時の拡散は実験にとっての誤差となるため、冷却時間を短くし、精度を高めることができた。

・新しい拡散係数の解析手法の開発

これまでの実験では、定常温度での拡散のみを考慮していたが、本実験では、短時間実験に適するよう、昇温時と冷却時の拡散を考慮した解析手法を開発し、精度を高めた

これらの実験成果は、今後の宇宙での拡散実験にとって大きな指針となり、様々な物質の精密な拡散係数測定に寄与するものである。

半導体実験

(1) 実験テーマ (代表研究者)

フローティングゾーンシリコンメルト内の温度変動の測定
(日本電気株式会社 研究開発グループ 日比谷 孟俊 主席研究員)

(2) 実験目的

高温加熱装置Ⅱ型を用いて、シリコン半導体融液中の振動マランゴニ流による温度変動を測定することにより、マランゴニ対流について定量的に理解し、シリコン融液における振動マランゴニ流のモデルを構築する。

また、本実験を通じてマランゴニ対流の測定および温度制御技術、実験試料への供給熱量の制御技術、その場観察技術、高温処理技術、材料と容器との適合性評価技術の獲得を図る。

(3) 成果の概要

① 科学的成果

シリコン半導体の振動マランゴニ対流を世界で初めて観察できた。液柱形成過程では温度周期として、0.1Hzの振動が観察されたが、液柱形成後は、固有振動数の無い非定常的な流れが観察された。液柱温度勾配、液柱形状などのパラメータとして得られた結果は、シリコン等の融液のマランゴニ対流のメカニズム解明のための基礎データとして、極めて貴重である。

本実験の結果は、振動マランゴニ対流について定量的な理解を可能とし、初めて融体の振動マランゴニ対流のモデル化が図られることとなった。このことは、高密度集積回路用のシリコンウェハを作製する際の組成制御に役立ち、地上でのシリコン半導体の製造技術の改良に貢献すると考えられる。

② 技術開発成果

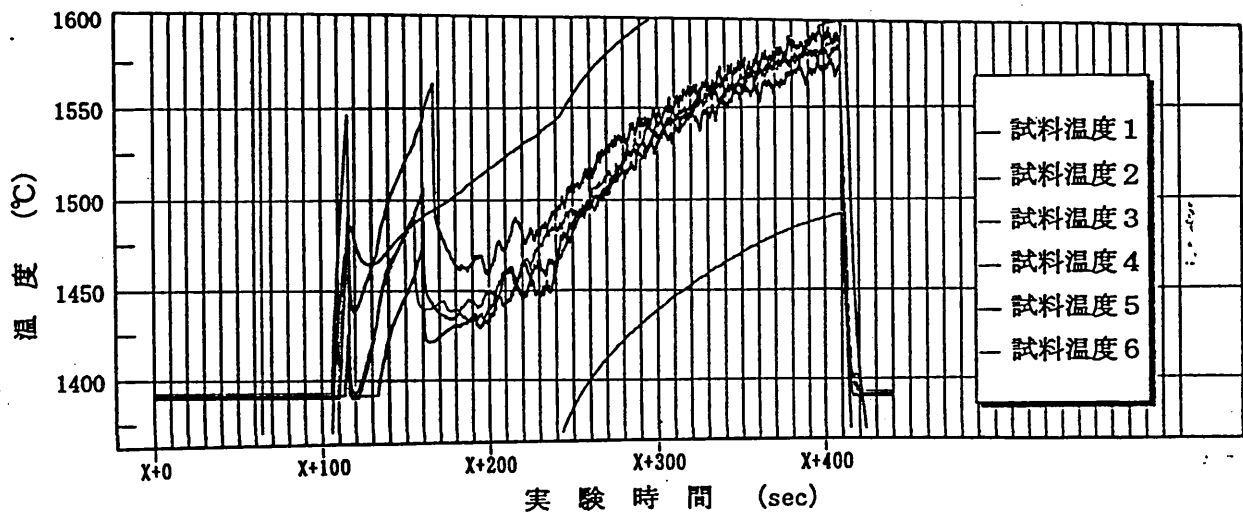
マランゴニ対流の測定および温度制御技術では、温度測定頻度40Hzと周波数応答の高い温度測定を可能とした。その場観察技術では、CCDカメラ並びにVTRにより、実験試料の加熱／熔融過程並びにシリコン液柱形状の観察を行うことができた。ぬれ性の良いカーボンを支柱として用いることにより、熔融シリコン液柱を安定して形成できた。シリコンの熱膨張を考慮した二分割初期試料形状により円柱状液柱形成を達成できた。

フローティングゾーンシリコンメルト内の温度変動の測定

- 融液の流れが、定常的な流れである層流から振動流へと変化すると、その振動に対応した変動が融液温度にも観察される。

<実験成果>

融液表面にある4本の熱電対による温度測定結果から、宇宙実験として初めて、シリコン融液の振動流の観察を行うことが出来た



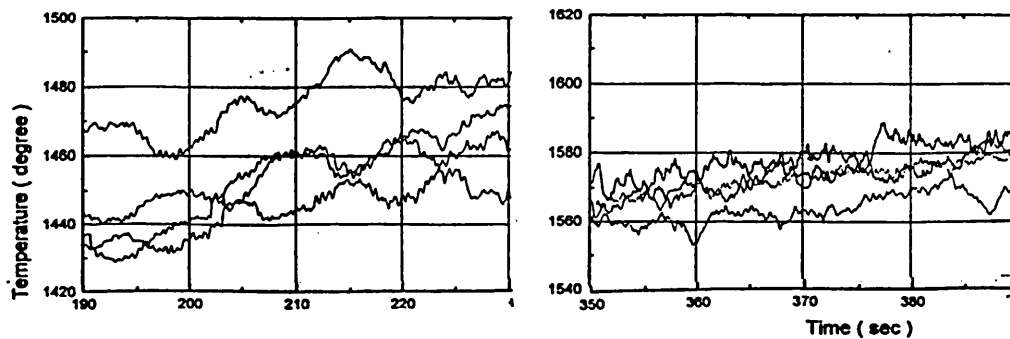
(図1) フライト実験の試料温度プロフィール

融液の温度振動は、液柱形成過程と液柱形成後で挙動が異なっている。

液柱形成過程・・・0.1 Hz の温度周期を持つ

液柱形成後・・・固有振動数のない非定常な流れ

液柱の形状変化が流れに大きく影響していることと思われる。



(図2) 液柱形成過程(左)および液柱形成後(右)の温度変動

溶液成長実験

(1) 実験テーマ (代表研究者)

多面体結晶形態安定性理論の微小重力下での検証
(東北大学大学院 理学研究科 塚本 勝男 助手)

(2) 実験目的

観察技術実験装置Ⅱ型を用いて、結晶が平面で囲まれた安定形から、不安定形へと変化する過程を明らかにするために、結晶表面状態と結晶面成長速度の過飽和度依存性を測定する。

これにより、世界に先駆けてミクロな視点から結晶形態安定性理論を検証する。

また本実験では、反射型リアルタイム位相シフト干渉法による結晶成長面その場観察技術を獲得し、結晶成長セルの設計技術等の蓄積を図る。

(3) 成果の概要

① 科学的成果

硝酸バリウム結晶をごくわずかに成長させ、結晶の端部と中央部の成長速度の過飽和度依存性を初めて測定できた。これにより、地上では臨界過飽和度以下でも結晶が成長したが、微小重力下では成長しないことが確認できた。これは微小重力環境下の条件では2次元均質核生成により結晶が成長することを示している。また、地上実験、理論からの臨界過飽和度の予想と、微小重力実験結果は一致した。

この成果は、新薬の開発等にとって重要なタンパク質結晶などの溶液成長において完全な結晶を得る最適な結晶条件を見出すことに寄与すること以外にも、星間物質や隕石の成因の研究にも寄与することが期待される。

② 技術開発成果

実時間位相シフト干渉法による結晶成長面その場観察に成功し、宇宙での溶液結晶成長における結晶表面の分子レベルでの挙動をその場観察する技術が獲得された。また、本結晶成長実験の実施の過程において、結晶成長セルの設計技術の蓄積等が行われた。

多面体結晶形態安定性理論の微小重力下での検証

宇宙での溶液成長実験

—地上と微小重力環境との結晶成長の相違を調べる—

<宇宙での結晶成長実験の目的>

- ・重力による対流等の擾乱のない場での理想的な結晶成長
- ・結晶成長理論の検証

<TR-I A 4号機での実験>

成長速度の精密測定

- ・結晶の形態の変化の解析
(成長速度の方向依存性の解析)
- ・極端に“遅い”結晶成長の観察を可能とした

<実験成果>

☆臨界過飽和度の存在の確認

(微小重力環境) 結晶表面での過飽和度が3%になるまで
結晶は全く成長しなかった
(地上) 3%以下の過飽和度でも十分な結晶成長
速度が得られている。

☆理論モデルの定量的検証

「3%の臨界過飽和度の存在」

理論的に予想されてきた理想的な2次元核形成のモデルと量的にも一致する。

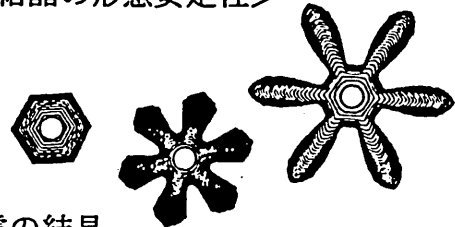
☆結晶成長形態に関する知見

モザイク結晶が微小重力下で発生しにくい原因が特定できた

不純物粒子の挙動と重力環境

(地上) 不純物は、対流や流れで容易に結晶表面に付着 ⇒ 成長中心の発生
(微小重力環境) 不純物は、流れによって結晶表面には運ばれない。結晶表面
では不純物の助けを借りない均質な核形成がおこる

<結晶の形態安定性>



—雪の結晶—

成長条件により形態が変化する

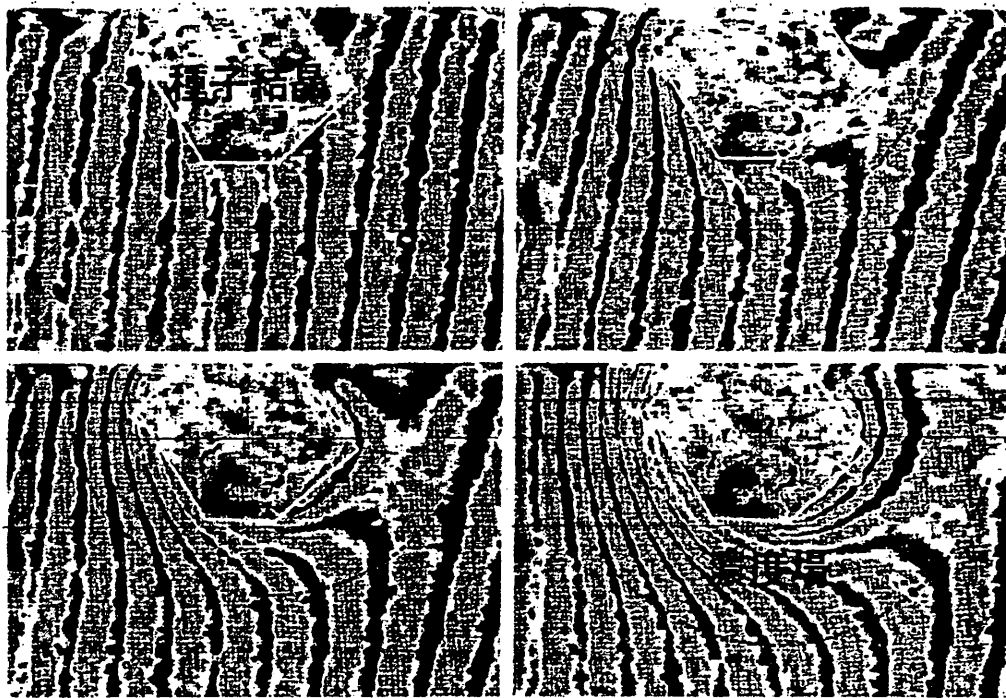


図1 結晶周囲の濃度分布の時間変化

成長速度 [nm/秒]

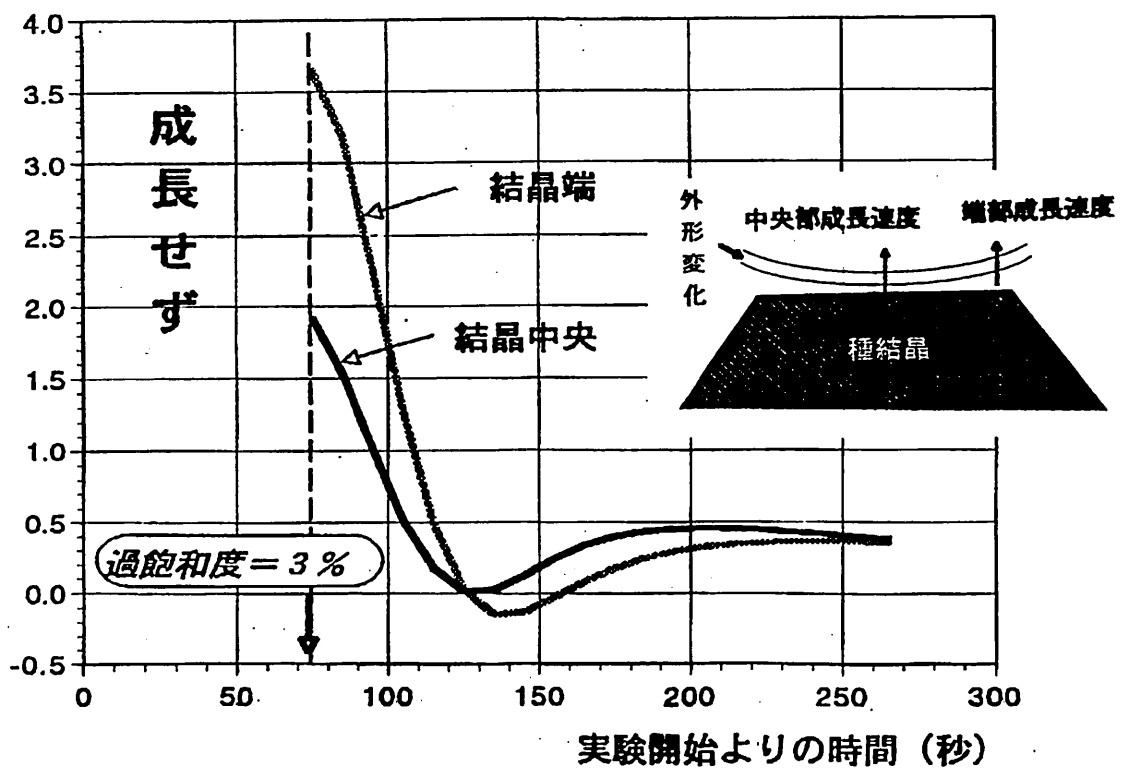
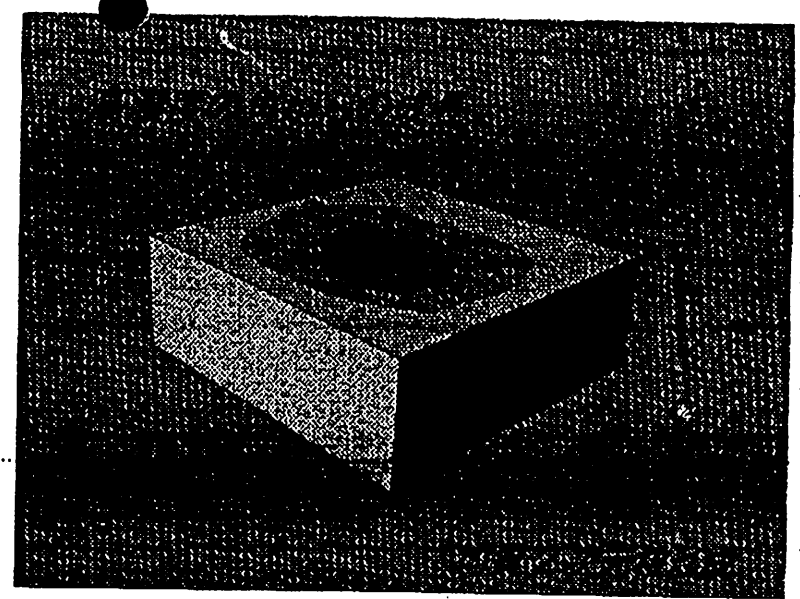
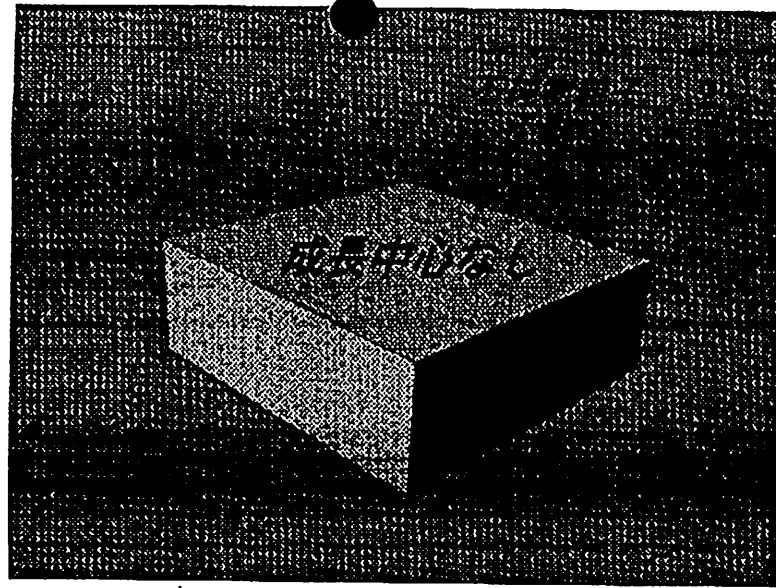
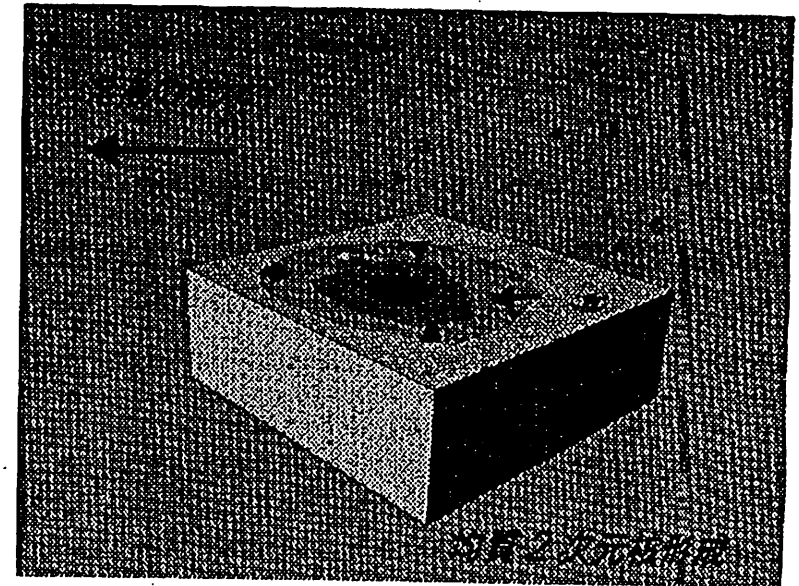
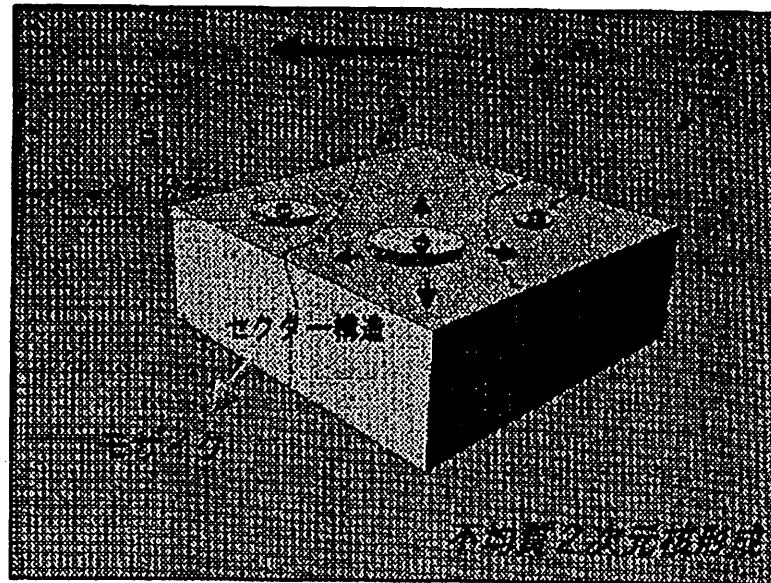


図2 結晶成長の臨界飽和度

微小重力



重力



臨界過飽和度=3%

過飽和度

図3 成長様式の違い

金属・合金実験

(1) 実験テーマ (代表研究者)

微小重力下でのスズ-鉛共晶系合金の凝固

(千葉工業大学 金属工学科教室 茂木 徹一 教授)

(2) 実験目的

温度勾配型加熱装置を均熱炉として用いて、溶融・凝固時の重力環境を制御することにより、重力偏析のメカニズムを世界に先駆けて解明する。また本実験では、加熱・冷却特性および試料との適合性に優れたルツボの開発や試料漏洩及びマランゴニ対流発生を防ぐための加圧機構の開発を行う。

(3) 成果の概要

① 科学的成果

共晶合金の重力偏析のメカニズムを明らかにできた。地上で溶融し、小型ロケット加速時の加重力環境下に置かれ、微小重力下で凝固させた試料には、偏析は観察されず、このことから重力偏析は、凝固過程での結晶粒の融液密度との差異による沈降・浮上により生じることが明らかにできた。

自動車部品、航空機部品等に鑄造製品として用いられる共晶合金は、重力偏析により不均質性が生じるが、本実験で得られた重力偏析の生成機構に関する知見は、鑄造材料の組織制御に役立ち、高品質化に寄与することが期待される。

② 技術開発成果

自由表面形成によるマランゴニ流れを防ぐために必要なルツボの試料加圧機構に関し、小型ロケットの静加速度と振動の複合環境下でも試料融液の漏洩を生じない設計技術を開発した。これにより小型ロケットの微小重力時間がより有効に活用できることとなった。

微小重力下でのスズ-鉛共晶系合金の凝固

(共晶系合金の特徴)

鋳造製品等で使用される共晶系合金は融液状態では合金成分が均一に溶け合い、共晶点を外れ初晶が生成した場合でも、理論的には均質な組織が形成されるはずであるが、現実には素材製造の過程で、重力による作用のため不均質なものとなりやすい。

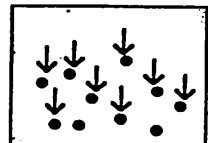
- (本実験の目的)
- ・ 重力下での共晶系合金の重力偏析生成メカニズムの解明
 - ・ 合金の凝固メカニズムの解明と均質材料製造への指針

< 重力偏析の原因に関する 2つの理論 >

(a) 融液の状態、物質の密度の大小により物質の上下で成分差が生じ、これにより偏析が発生する。



(b) 融液の状態では均質であるが、初晶が生成した後、重力による結晶の移動、集積が原因となり偏析が起こる。



本実験の結果、(b)の理論が正しいことが判明した。

< 凝固メカニズムの解明 >

微小重力下での凝固では、樹枝状結晶（デンドライト）が共晶融液内に微細に分散し、浮上や沈降がないまま共晶凝固が完了するため、全体として均質な組織を作ることができる。

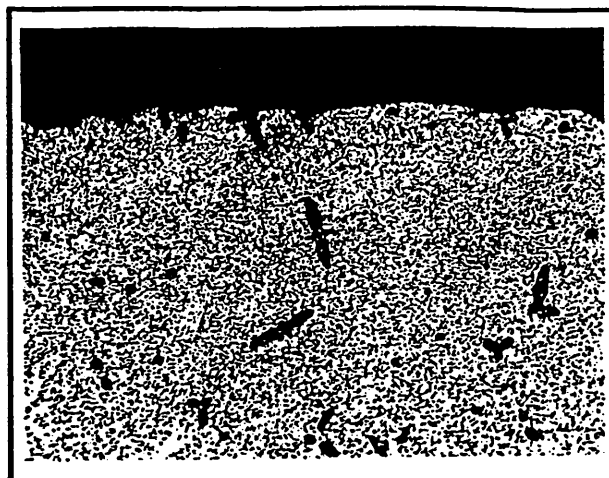
本実験では、微小重力下でのデンドライトの生成の状態を観察することができた。微小重力環境では、均質組織の共晶系合金材料の生成が期待できる。

(その他)

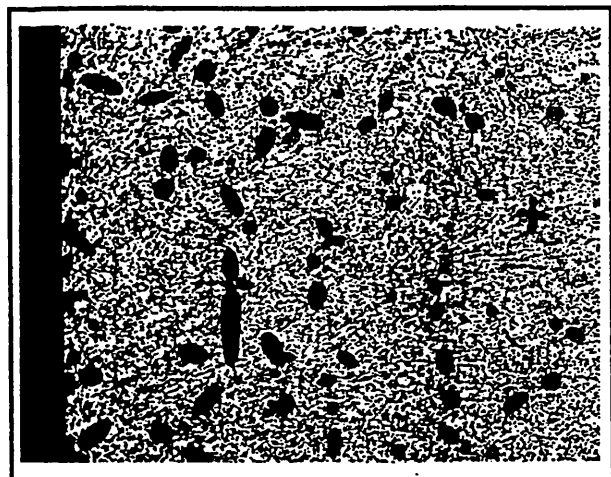
微小重力下で溶融凝固した試料の組織観察において、気泡の発生が確認された。気泡は均質材料製造の妨げとなるため、気泡除去技術の開発が必要である。



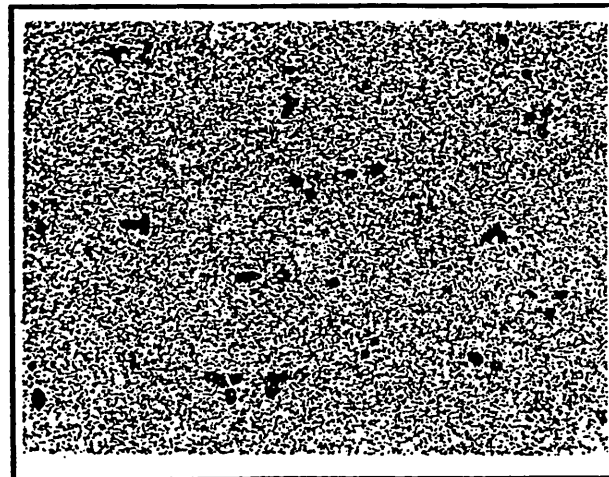
(a) 上部側面



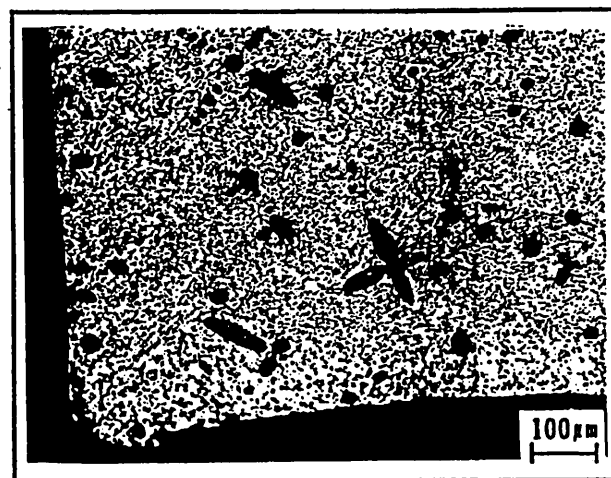
(d) 上部中央



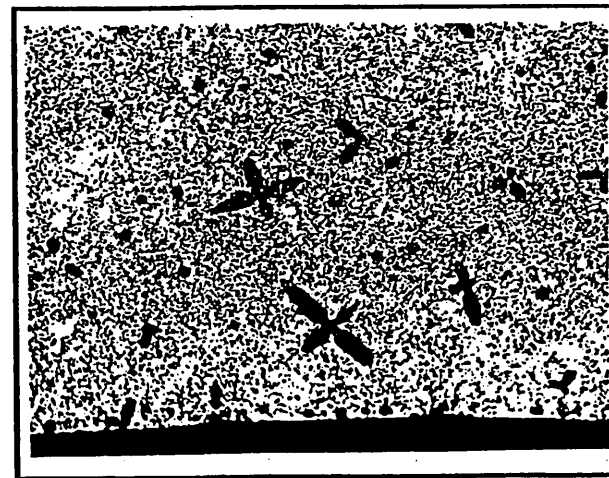
(b) 中部側面



(e) 中部中央

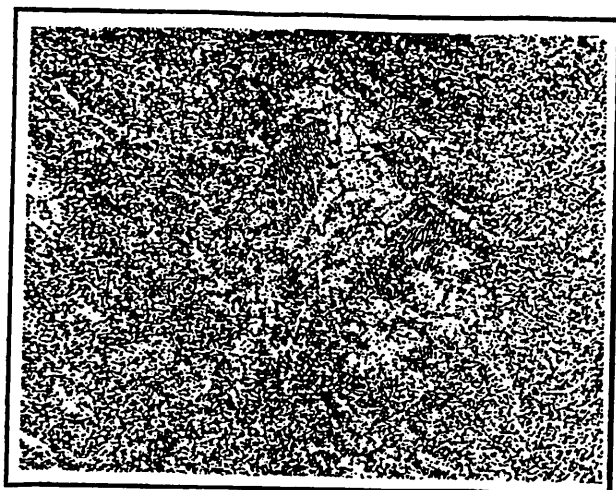


(c) 下部側面

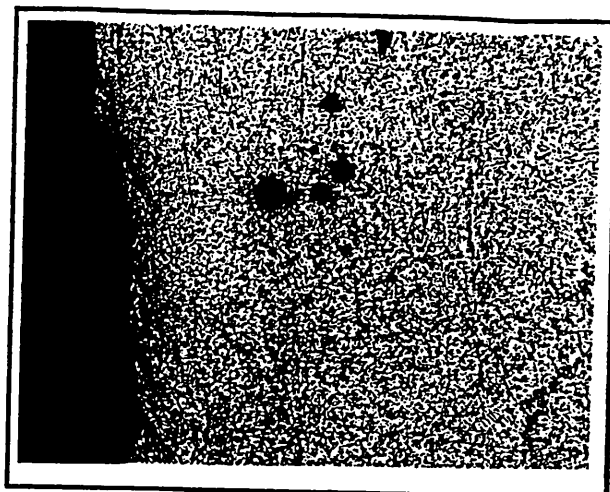


(f) 下部中央

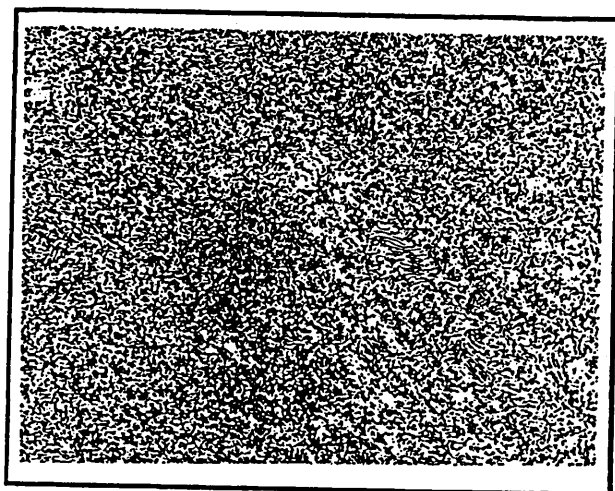
図1 Sn-38.1%Pb共晶合金の凝固組織（試料はロケット打ち上げ時に溶融しておき、微小重力下で凝固させたもの。黒い粒状の結晶は初晶Pb、細かい組織はSnとPbの共晶）



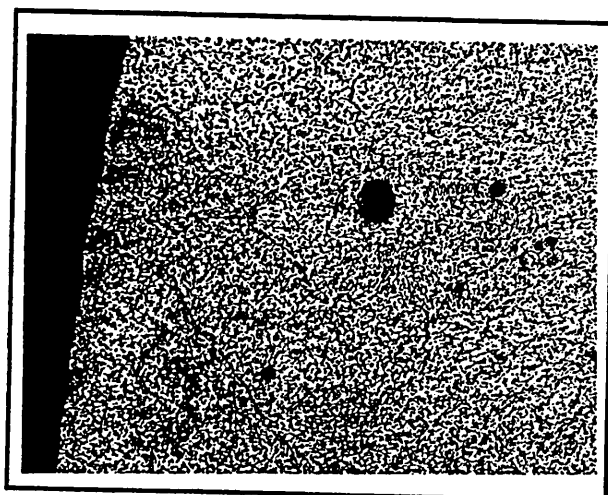
(a) 上部



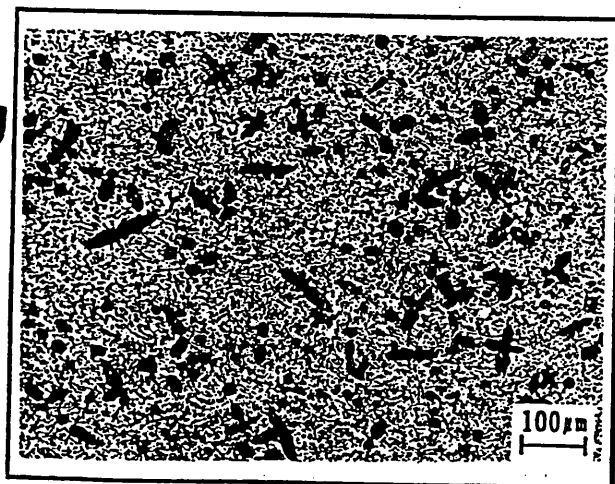
(a) 上部側面



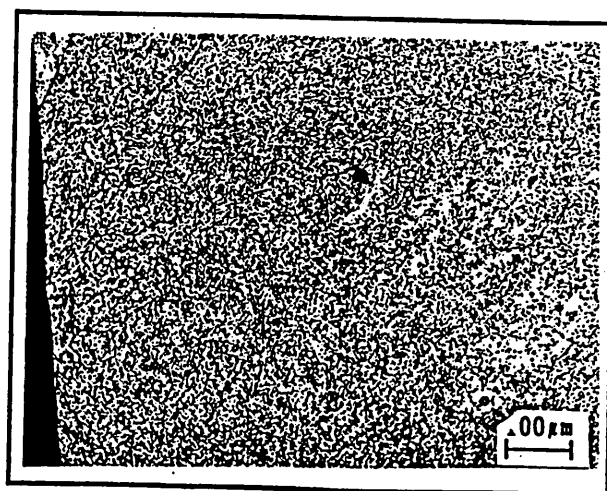
(b) 中部



(b) 中部側面



(c) 下部



(c) 下部側面

図2 Sn-38.1%Pb共晶合金の凝固組織
(地上で溶解凝固させたもの)
初晶Pbは試料下部に偏析している

図3 微小重力下で溶解凝固した試料に
現れた球形気泡 (大小の黒い丸)