地上で無重力を模擬した表面張力の一測定方法

正員 磯貝秀明 (電子技術総合研究所)

A surface tension measuring method on the ground for mimic micro gravity condition.

H.Isogai, Member (Electrotechnica Laboratory)

This paper proposes a new method of surface tension measurement as Spinning Drop Method(SDM). It estimates surface tension by measuring the surface area of spinning droplet. This method has availability for non-contact-surface tension measuring of high temperature melt of semiconductor such as silicon in a mimic microgravity facility on the ground. In this paper, a principle of SDM and two types of theoretical model were described. Experimental equipment using a pipe shaped rotation stage to form a spinning droplet was made to confirm the validity of SDM, and basic experimental results and improvement of the equipment were discussed.

キーワード：表面張力、無重力、スピニングドロップ法、吸着、ヌレ

1. 序

高真空と無重力の宇宙環境で、対流で攪乱されず下方への歪みもない状態を活かした、整然と原子配列した超硬度合金、新素材や高品質半導体結晶を製造する産業が創出されようとしている。1500℃程の高温で化学反応も激しい熔融液を無容器で結晶成長させる工程に最適な要素技術について、欧米や我が国でも産学官共同で開発している。しかし、身近な密度差対流に埋没していたマランゴニ対流を無重力で顕在化させて熔融液を攪拌し、また、容器に吸着して不純物を出すなど結晶造りを台無しにする主要因である表面張力は、厳密な制御を要する熱物性値の一つである。地上でこの表面張力を測定するには、基板に載せた液滴の接触角から算定する方法、毛细管上昇法、更には、液面に付けた円環を引き上げる方法や液滴を吊下げる方法など、平衡状態から、大きい重力加速度を含む中で各物理量を読み取って算定する。そこで、不要で大きい重力加速度項を含まず正確に算定できる無重力を利用したスピニングドロップ法(SDM)に着目した。地上での前述の手法や無重力の液滴振動法(1)(2)(3)や液滴を回転させて計る発想(4)などをこれ迄模索して来て、後者の液滴を回転させて測定するアプローチを採用することとした。無重力下で自由回転する液滴に支配的に働く、遠心力と表面張力の2力の平衡で総エネルギーが最小化するように安定化する。更に、熔融した液滴の回転が増すに連れて球形から回転楕円体に一層変形する前後の変動量から算定するという単純明快なSDMの手法で測定する。回転を上げ増加する遠心力が、液滴をより扁平化し、ついには飛散させる迄繰り返す、専ら方法論の確立を目指す単純化した対象の水滴を扱う後述の基礎実験手法と器具とを創り出した。これを用いて回転する液滴の形状が重力で歪む低速時の誤差、回転ス

テージと被測定の液滴との吸着による高速での誤差等がどの程度現われるかを把握する。より精度を上げ、理想に近づけるために必要な新たなメカニズムを模索し、これまで筆者の手掛けた機構(5)(6)を参考に、ここで考察し検討した成果を活かし、熔融液の本格測定の機構を試作する資料を得ようと試みた。

2. 液滴回転法の原理

自由回転する液滴におけるスピニングドロップ法の物理モデルは、回転がまだ遅く遠心力が小さいため球形からそれほど扁平していない液滴の状態においては、次の(1)式における、静置した圧力差による項が有効に残り、このまま安定化し、外力がなければ総エネルギーは最小化し保存される。

$$\sigma S_e - \frac{1}{2} I \omega^2 + (P_e - P_0) V_e = k \quad \text{--- (1)}$$

ここに、 σ ：表面張力、 I ：慣性モーメント、 ω ：スピン角速度、 P_e ：液体の内圧、 P_0 ：外気の圧力、 S_e ：回転楕円体の表面積、 S_c ：球体の表面積、 V_e ：回転楕円体の体積、 V_c ：球体の体積である。この(1)式で表わす状況を低速の物理モデルとする。スピニングが人為的に速まると遠心力が増して新たな安定状態に向かう。このとき、球体の液滴から、中心軸に添った上下が圧縮し、地球儀で言う赤道周辺に大きく膨張して、より扁平化したFig. 1の様な回転楕円体と成る。静止状態から、この高速時までの回転運動エネルギー変化と、それに伴う表面積の変化から平均の表面張力を、次の(2)式で求める。

Fig. 1 Dependence of ellipse shape of water droplet on centrifugal force.

図 1 遠心力の水滴の形状への影響

$$\sigma = \frac{1}{2} I \omega^2 / (S_e - S_c) \quad \text{-----}(2)$$

なお、この前後の液滴の各局部の密度は均等ではないが、液滴全体で平均したマクロな密度を用いて慣性モーメントも算定する。ここに、慣性モーメントは、

$$I = \frac{2}{5} / (\rho \frac{3}{4} \pi a^2 b) a^2 \quad \text{-----}(3)$$

回転楕円体の ρ :密度、 a :長径、 b :短径であり、表面積は、

$$S_e = 2 \pi a^2 + 2 \pi b^2 \ln \frac{b}{a} (1 + e) \quad \text{-----}(4)$$

式中の e は離心率であり、 $e = \frac{1}{a} \sqrt{a^2 - b^2}$ である。

なお、この(3)と(4)の式の導出は付録に後述した。この無重力を模擬した様に自由回転する状況、即ち、遠心力と表面張力との純粋2力の平衡状態を実現できる簡便な方法を模索して、下のFig. 2 の様な、円環の断面を持ったパイプ状の液ヌレの悪い処理を施した芯ブレを抑えた設計の回転ステージ上で、液滴を回転させて楕円体の上半分を捉えて、長軸、短軸と回転数とを読み取る機構を考案した。

なお、低速、及び、高速の物理モデルに対応した(1)式と(2)式で求めた数値を読み取り数値をキー入力すると同時に算出できるN88BASICプログラムを駆使して算定し操作演算に伴うエラーを削減した。Fig. 3 で標準となる理科年表の数値の様に本来一定となる筈が、回転数に対する依存性が最少自乗現われて、Fig. 3の右肩上がりの特

Fig. 2 Experimental apparatus for the micro gravity environment.

図 2 地上で無重力状態を模擬する実験と装置

性を示した。この回転数依存性を考察し、この模擬方式と装置のもつ本質的な問題点を明かにし、どのような補強、又は改造を要するものか次の3. に述べる。

3. 実測結果の考察と今後の展望

Fig. 3 の模擬実験結果では、中央のstandard valueなる理科年表の横一直線の数値に対し、high speed model の(2)式で求めたデータでは、高速回転であっても分母の値が小さい、即ち、円環の底面との吸着力が、表面張力を見掛け上大きく作用して700(r.p.m)付近で液滴が飛散するまで右肩上がりに最少自乗法の回帰線が傾いて表示される。測定誤差が拡大されて大かきくバラつく現象は高速ほど収まっていく傾向が観られる。それに対してlow speed model の(1)式で求めたデータは、変動少なく比較的精度高く計れる。この事は本来、高速の物理モデルが適合する回転数には成っているにも拘わらず、低速の物理モデルにおける(1)式が適合する状態に留まっている、即ち、液滴が十分扁平し膨張できないのは、円環状の回転ステージが液滴を吸着し拘束する作用が大きく球形のままに留めている事が判った。このため、高速回転にした後に気流、等で保持する自由な空間に浮遊させた状態に円滑に移行すれば、本来の高速モデルの遠心力に相当する回転楕円体の実現でき、円環容器への吸着の誤差から解放された理論通りの表面張力の数値を計れる事が判明した。

Fig. 3 Experimental results of water droplet

図 3 水の液滴の模擬実験結果

早速、離脱と浮遊機構の補強を現在試みている。この回転ステージを用いた、垂直軸を中心に整然と液滴を自転させる目的の本機構では、避けられない誤差でもある。

また、低速では逆に、僅かな遠心力以上に重力で形状が扁平するため、表面張力は少なめに現われる。このため、右肩上がりの回転数依存性を持ったと考える。

4. 結論

この円環吸着式の器具で、前述の低速時の重力による扁平の誤差と高速時の円環との吸着で拘束される誤差を避けた回転速度の秒速5回転程度の回転数において、温度24度の標準の数値(7.2)に近い測定値を捉えている。

この素朴な簡易装置に係る検討に加えて、高速モデルに移行した時点で、回転ステージから離脱させ、その後の重力に拮抗しながら定点で安定に浮遊する位置制御機構を補強すると、理想とするSDMの高速モデルに近く、より一層表面張力の数値を精密に測定出来ることが分かった。即ち、このような簡便な装置であっても、SDMは、無重力下で、無容器で液滴になった半導体熔融液の表面張力の測定に適した計測手段と成り得る事が分かる。今、計測の原理に係る実施事例を紹介するのも意義があると考え、また、以後、半導体熔融制御の機構の製作と人工的浮遊保持とそこへの離脱の機構を速やかに導入し、理想的な原理により近い、高速の物理モデルの実現を試みるつもりである。このため、SDMの利点と本円環式の簡易測定器のデメリットを整理すると。改めて、本測定器の利点を挙げれば

(1) 再現性良く身近で手軽に繰り返し測定できる。

(2) 観察状況から即物的に数値が求まり、測定原理が単純明快であるので真の値から大きく逸脱しない。更には、

(3) 既存の回転型粘性真空計⁽⁵⁾⁽⁶⁾の機構を、適切な超音波や気流などの他の物理的メカニズムに置換して実現が可能なことなどである。SDMが有効な範囲は、遠心力が大きく扁平の度合いが強く、(2)式の分母が十分大きい値を持ったときのみ精度が十分に得られ、遠心力が支配的に成り、球の表面積より大きな表面積の回転楕円体に膨張し平衡して、始めて精度が十分に得られることが分かった。本円環吸着式の場合のデメリットは、遠心力が円環との吸着力に減殺され、扁平の度合いが少く(2)式の球体と回転楕円体の表面積の違いが顕著でない場合は、計測誤差が拡大する傾向をもつことである。一方、測定困難な内外圧力差の項を無視できない、(1)式が適合する低速モデルでは、この僅かな遠心力が加わる以前に重力で既に液滴が扁平しているため、過小に表面張力が表示される。つまり、高速でも低速でも両極端に誤差を含む事とこれを克服する処方とが明かになった。このため、高速モデルに移行した時点で、形状計測するとき、回転ステージから離脱させ、重力に拮抗しながら定点で浮遊し位置を制御させるための機構が必要となった⁽⁷⁾⁽⁸⁾⁽⁹⁾。又は、高速に導いて形状測定に至ったときに、真空落下塔により最大10秒の間に、自由空間で回転する楕円体を拡大撮像できればより理想的である。

5. 謝辞

元宇宙技術研究室長 工藤 勲(現北海道大学教授)氏には、表面張力の物性の基礎から、地上の各種の測定方法

の調査検討の際に御助言頂き、欧州共同宇宙開発機構（ESA）の研究報告等を閲覧させて頂きました。また、今後の展開となる半導溶融液を扱う設備を、重要地域技術開発予算を以て整備させて頂きました。御担当であられた通商産業省工業技術院地域技術課の宇田川氏と田和氏に御尽力頂きました。これら諸氏に、深謝致します。

（平成10年9月2日受付、平成11年1月22日再受付）

引用文献

- (1) B.Feuerbacher et al, Gravity dependent phenomena: Fluid and Material Science: Vol.13, No.9, '93
- (2) A.D.Myshkis et al, Low-gravity fluid mechanics: Springer- Verlag, '86
- (3) 磯貝：宇宙における液体の挙動：電子技術総合研究所集報、Vol.58 No.5, P1, '94
- (4) I.Martinez et al, H.U.Walter(editor): Fluid Sciences and Materials Science in Space: European Space Agency: Springer-Verlag, '87
- (5) 磯貝：スピニングローター真空計の総合オフセットの解析：電気学会論文誌、Vol.117-A No.12, P1177, '97
- (6) H.Isogai: An analysis on the effects of eddy current on the accuracy of of a Spinning Rotor Gauge: Vacuum, Vol.48 No 2, '97
- (7) 宇宙開発事業団：航空機による微小重力下での静電位置制御の実験：航空機微小重力実験結果報告：'93
- (8) 荻原、藤井他 二次元4重極静電浮遊装置における試料加熱実験：第34回宇宙科学技術連合講演会：'90
- (9) 石川、駒田：音波浮遊装置による液滴の安定保持：第36回宇宙科学技術連合講演会：'92

付録

回転楕円体の表面積の算出の過程について、長軸をa, c 短軸をbとして右の図の回転楕円体において3次元の回転楕円体の方程式は、短軸に対称な立体でしかもa=c であるから次式の2次元の軸対称な断面を持った図形として取り扱える。

$$\frac{x^2}{a^2} + \frac{y^2}{b^2} + \frac{z^2}{c^2} = 1$$

即ち、液面の形状は、左下の式の楕円を短軸中心に回転させた回転楕円体の式となる。次に微小な幅 ds の円環の表面積を知り、これを基にbから -bまで定積分して、回転楕円体の表面積 S を求める。

$$\frac{x^2}{a^2} + \frac{y^2}{b^2} = 1$$

$$\begin{aligned} S &= 2 \pi x ds = 2 \pi \int_{-b}^b x \left(\sqrt{1 + \left(\frac{dx}{dy} \right)^2} \right) dy \\ &= 2 \pi \int_{-b}^b \sqrt{x^2 + (x')^2} dy \end{aligned}$$

$$x^2 = a^2 \left(1 - \frac{y^2}{b^2} \right), \quad x' = -\frac{a y}{b^2}, \quad e^2 = \frac{a^2 - b^2}{a^2}$$

であるから、

$$S = 2 \pi a \int_{-b}^b \sqrt{1 + \frac{y^2}{b^2} \left(\frac{a^2}{b^2} - 1 \right)} dy = 4 \pi a \int_0^b \sqrt{1 + \frac{y^2 a^2 e^2}{b^4}} dy$$

$$t = \frac{y a e}{b^2} \quad \text{左の様に置いて整理していくと}$$

$$\begin{aligned} &= \frac{4 \pi a^2}{e} \int_{-b}^b \sqrt{1 + t^2} dt = \frac{2 \pi a^2}{e} \left[t \sqrt{1 + t^2} + \ln (t + \sqrt{1 + t^2}) \right]_{-b}^b \\ &= 2 \pi a^2 + \frac{2 \pi b^2}{e} \ln \frac{a(1+e)}{b} \end{aligned}$$

なお、y 軸に関する回転慣性モーメントは、周知の様に

$$I = \frac{1}{5} m (c^2 + a^2) = \frac{2}{5} m a^2 \quad \text{である。}$$

磯貝 秀明（正員）1945年8月12日生、現在、電子技術総合研究所極限技術部にて、宇宙環境利用（熱物性値測定及び真空計測）及び、環境蘇生加速の要素技術の開発研究に従事。