

ファセット的セル状結晶成長機構の研究
宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所 稲富裕光

(1) 発表概要

- 結晶形態が不安定化する際、金属などの滑らかな面を持つ結晶では、平坦面からセル状結晶を経て樹枝状結晶へと変化する。平らな結晶面で構成された結晶においてもほぼ同様の変化をし、平坦面からセル状ファセット結晶もしくは骸晶を経て樹枝状ファセット結晶へと変化する。
- ファセットとは平坦な結晶面のことであり、実用的に重要な結晶としては、非線形光学材料等として価値が高い酸化物結晶がファセット結晶として知られている。セル状ファセット結晶では、セルの間隔が結晶成長条件に応じて変化するとされている。即ち、新たにセル状ファセット結晶が形成される、あるいは合体する。この理由として、過冷却度・過飽和度あるいは応力がある閾値よりも大きくなるためであるとの主張がなされているが、決定的な証拠は無い。
- そこで、セル状ファセット結晶の形成、あるいは合体の原因を探り、セル状ファセット結晶の結晶形態不安定化機構を調べることを本研究の目的とした。
- 結晶系としては酸化物を意識し、合金系となるサリチル酸フェニル(ザロール)と t -ブタノールの混合物を用いた。合金系の場合、凝固と共に排出される成分によって比重差が生じ、対流が発生する。対流により現象の理解が非常に困難となるため、微小重力環境を利用した実験を行った。
- 実験の結果、最大過冷却度の位置で不安定化が生じることが明らかとなった。この位置は平坦な面の中央部付近であり、地上実験結果とは異なっていた。

(2) 評価まとめ

① 総論

二波長干渉計を用いて温度・濃度分布を同時精密測定し、セル状ファセット結晶の形成機構を調べることは科学的意義が高い。また、各種条件での画像データを取得できたこと、および平坦面中央部でブレイクダウンが発生し、その場所は過冷却度が最大であることを発見したことは高く評価できる。しかし、現時点ではこれら以外の科学的成果に乏しいことは否めない。以上より、技術的目標は達成され、かつその意義は高いものの、科学的目標については十分達成されたとは言い難い。サクセスクリテリアを予め定めておく必要があったと考える。

*：事後評価会は平成23年12月に実施。

② 研究成果と目標達成度

本研究の目標は、セル状ファセット結晶において、界面カイネティクスと融液中の熱と物質輸送過程の両方を考慮し、セル状結晶形成機構と界面形態の安定性の仕組みを明らかにすることであった。この目標は意欲的であり意義が高い。しかし、現時点までの最大の成果は、平坦面中央部の過冷度が最大になる場所からブレークダウンが始まることを発見した点に留まる。このブレークダウンの発生場所の特定に関しても、本来ならば、再現性の高い微小重力環境において、同一実験条件下でブレークダウンの発生場所が常に同じであることの確認が必要であろう。また、なぜ角のような特異点ではない場所が起点となるのかその理由は明確では無く、今後更なる研究を行い、学術誌への公表が望まれる。メカニズムの理解のためには、本当は1成分系が適するはずであり、2成分系を選択した理由の説明は十分とは言えない。使用されたShangguanモデルでは、成長速度はカイネティクス過冷度の2乗に比例するのに対し、実験で得られたカイネティクス過冷度と成長速度は、ほぼ線形の関係になっている点についての更なる議論が必要である。さらに、Shangguanモデルで示される最大ファセット間隔と微小重力実験結果との比較をはじめとして、微小重力実験結果と地上実験結果との比較が必要である。また、ザロール中の t -ブタノールの拡散係数を $1.3 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ と定量的に求めているが、この結果の妥当性の議論が必要である。

③ 成果の活用、波及効果

微小重力下で溶液中の温度・濃度分布の同時精密測定に成功した意義は大きい。世界をリードする重要な貢献であり、宇宙環境利用の重要性をアピールできる成果である。特に、2成分系のファセット成長において、界面のカイネティクス過冷度と成長速度の関係を初めて得たことは、結晶成長の分野において重要な知見と思われる。

また、セル状ファセット結晶の分裂が最大過冷却度の場所で起き、かつ最大過冷却度の場所が平坦面の中央部付近であることを発見した点は意義が高い。

今後、シミュレーションなどによる理論的な研究と定量的な比較ができることを期待する。

しかし、微小重力下での温度・濃度分布の同時精密測定技術の普及という点を除けば、現時点で特段大きな波及効果は期待できないと考えられる。今後徐々に波及効果が現れてくることを期待する。

④ 今後の「きぼう」利用シナリオに向けた総括

技術的には温度・濃度分布測定は重要な成果であり、今後時間とともに影響が広がっていくと考えられる。

そのためにも、データ解析とその分析、研究成果を、特に微小重力関連以外の分野の国際会議や学術論文として発表していくことが今後の重要な課題である。その際、カイネティクス過冷度の不均一がなぜ起きるのか、また、そこから不安定化に至るプロセスについて、必要があれば成長カイネティクスの異方性を取り入れたフェーズフィールド法など

の理論的研究と結び付けることにより明らかにし、実験の学術的な意義を高めることを望む。

また、実験終了後一年が経過した時点において、画像データの解析が十分進んでいないことから、画像解析法の改善が望まれる。過去、NASDAあるいはJAXAが開発した画像処理ソフトがあるのであれば、今後提供されることを期待したい。