

キレートフレイム法で作製した多孔質な酸化マグネシウム断熱膜の熱伝導率 Thermal Conductivity of Porous Magnesium Oxide Insulating Films Synthesized by Chelate Flame Deposition

○(M2)徐 若暉¹・小松 啓志¹・中村 淳^{1,2}・伊藤 治²・齋藤 秀俊¹
Nagaoka University of Technology¹, Chubu Chelest²

○(M1) Ruohui Xu¹, Keiji Komatsu¹, Atsushi Nakamura^{1,2}, Osamu Ito^{1,2}, Hidetoshi Saitoh¹
E-mail:hts@nagaokaut.ac.jp

【緒言】キレートフレイム法は、エチレンジアミン四酢酸(EDTA)金属錯体などの金属イオンをキレートした金属錯体原料粉末の分解及び担持金属イオンの酸化反応を進行させることで金属酸化物を得る手法である¹⁾。この手法では、燃焼ガスにアセチレンガスや酸水素ガスを用いる。化学反応により形成した金属酸化物は、飛翔中の溶融過程と基板上での固化過程を経て、ミクロンオーダーの層を形成する。基板上での固化過程において、スプラットの形状が変化すると得られる金属酸化物膜の形態や気孔率が変化するため、基板の熱伝導率が重要な因子のひとつとなる¹⁾。本研究は、キレートフレイム法を用いて、多孔質な酸化マグネシウム(MgO)膜の製膜を目指し、鋳鋼基板(熱伝導率(400 °C):約 80 W/(m・K))で製膜実験を行った。原料には、マグネシウムイオンをキレートしたヒドロキシエチルイミノ二酢酸(HIDA)金属錯体、HIDA・Mg を用いた。本研究では、さらに EDTA・Al・NH₄ 溶液を MgO 膜に塗布焼成することで形成する MgAl₂O₄ により、膜の強度の向上を狙う。加えて、周期加熱法と呼ばれる簡便な熱拡散率の測定を実施し、熱拡散率と熱伝導率の関係から製膜した MgO 膜の熱伝導率を算出した。

【実験方法】 HIDA・Mg の原料粉末を原料粉末供給装置(5MPE : Sulzer Metco 社製)に投入し、酸素をキャリアガスとしてスプレーガン(6P-II : Sulzer Metco)へ搬送し、SUS 鋳鋼基板(50×50×8 mm³)に MgO を製膜させた。スプレーガンから基板までの距離は 130 mm とした。供給量は 3 g/min に設定し製膜を行った。熱入力はスプレーガンにて行い、熱源として酸水素炎(H₂: 32.5 L/min, O₂: 43.0 L/min)を用いた。製膜したサンプルに EDTA・Al・NH₄ の 0.3 wt%水溶液 0.8 g を塗布した。焼成は 5°C/min で昇温し、大気中 900 °C で 2 時間保持後、自然冷却を行った。サンプルを回転治具に固定し、60 rpm で回転し周期的に熱入力をした。このとき、K 型熱電対を用いてサンプル表面温度及び裏面温度の経時変化を測定した。また、熱入力開始時から 65 s の温度応答を、データロガー(SHTDL4-Hispeed: SysCom 製)に 10 ms 間隔で記録した。測定した温度の経時変化から位相差を求め、熱拡散率及び熱伝導率を算出した。

【結果と考察】 キレートフレイム法で作製した鋳鋼基板上の堆積物は、立方晶系 MgO(ICDD:000-04-0829)に同定できた。EDTA・Al・NH₄ 溶液を塗布焼成した MgO 膜には、MgAl₂O₄(ICDD:010-75-1796)の存在も確認できた。図 1 に鋳鋼基板上に製膜した MgO 膜(供給量 3 g/min)の温度プロファイルを示す。製膜した MgO 膜の表面の平均温度は 500 °C であり、裏面は 300 °C となり、その差は 200°C であった。位相差から算出された熱伝導率を表 1 に示す。文献値から単結晶 MgO の 300-600°C の熱伝導率はそれぞれ約 24.60 W/(m・K)、20.64 W/(m・K)、17.68 W/(m・K)と 15.39 W/(m・K)²⁾であった。一方、製膜した MgO 膜の 350-550°C の熱伝導率は $5.20 \times 10^{-2} - 1.71$ W/(m・K) だった。文献値と比べて、大幅に小さくなった。表 1 により、塗布焼成後の MgO 膜(1.94×10^{-2} W/(m・K))は焼成前(5.20×10^{-2} W/(m・K))と比べて、熱伝導率の変化は小さかった。

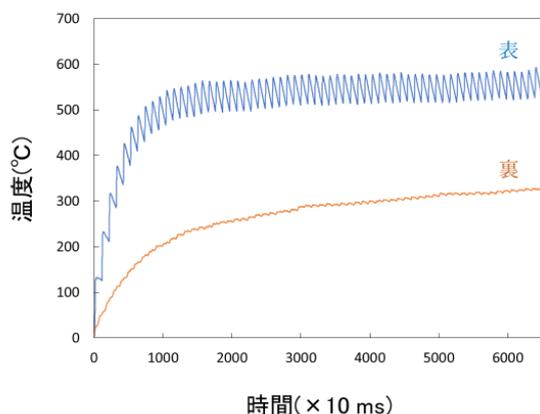


図 1 鋳鋼基板上に作製した MgO 膜の温度プロファイル

表 1 作製した MgO 膜の熱伝導率

| サンプル | 温度 (°C) | 全体の位相差 (Φ) | 膜の位相差 (Φ _f) | 面直熱伝導率 (W/(mK)) |
|---------------|---------|---------------------|-------------------------|-----------------------|
| 鋳鋼基板 | 300 | $0.433 \times 2\pi$ | - | 80.31 |
| | 450 | $0.470 \times 2\pi$ | - | 81.32 |
| MgO 鋳鋼 | 350 | $0.437 \times 2\pi$ | $0.004 \times 2\pi$ | 1.71 |
| | 550 | $0.493 \times 2\pi$ | $0.023 \times 2\pi$ | 5.20×10^{-2} |
| MgO 鋳鋼 焼成後 | 350 | $0.467 \times 2\pi$ | $0.034 \times 2\pi$ | 2.96×10^{-2} |
| | 550 | $0.512 \times 2\pi$ | $0.042 \times 2\pi$ | 1.94×10^{-2} |

- 1) K.Komatsu et al, Surf. Coat. Tech., **378**, 125037 (2019).
- 2) Anne M. Hofmeister, Phys Chem Minerals, **41**,361–371(2014).