

静磁場印加電磁浮遊法による高温液体の熱物性計測

渡邊匡人(学習院大・理),丹野光浩,河内大弥(学習院大・自然科学),水野章敏(学習院大・理),福山博之,小畠秀和(東北大・多元物質研),塚田隆夫,杉岡健一(東北大・工),小澤俊平(首都大東京・システムデザイン),日比谷孟俊(慶應義塾大・SDM)

Thermophysical properties measurement of high-temperature liquids by electromagnetic levitation technique combined with static magnetic fields

Masahito Watanabe¹⁾, Mitsuhiro Tanno¹⁾, Hiroya Kawauchi¹⁾, Akitoshi Mizuno¹⁾, Hiroyuki Fukuyama²⁾, Hidekazu Kobatake²⁾, Takao Tsukada³⁾, Kenichi Sugioka³⁾, Shumpei Ozawa²⁾, Taketoshi Hibiya³⁾

¹⁾Department of Physics, Gakushuin University, Mejiro, Tokyo 171-8588

²⁾Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials (IMRAM),Tohoku University, Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-8577

³⁾Graduate School of Engineering, Tohoku University, Aramaki, Aoba-ku, Sendai, 980-8579

⁴⁾Department of Aerospace System Engineering, Tokyo Metropolitan University, Hino, Tokyo 191-0065

⁵⁾Graduate School of System Design and Management, Keio University, Hiyoshi, Yokohama 223-8526

E-Mail: masahito.watanabe@gakushuin.ac.jp

Abstract: Thermophysical properties of high-temperature melts are indispensable for numerical simulations of materials processes. Accurate data are necessary to improve the process modeling, which leads to cost-effective production of high-quality products. However, crucial obstacles make measurements of thermophysical properties difficult at elevated temperatures because of high chemical reactivity and fluidity of melts. From the background mentioned above, the levitation technique, which provides containerless conditions during the measurements, is applied into the thermophysical property measurement. We are planning thermophysical properties of high-temperature melts using electromagnetic levitation technique under microgravity. Under microgravity conditions, convections in the levitated melts are suppressed, so we can accurately measure the transport properties, such as thermal conductivity. On the other hand, if we can suppress the convection on the ground conditions, we can evaluate the measurement data under microgravity conditions. Thus, we have been developed the system of thermophysical properties measurement by EML with a static magnetic field. The static magnetic field can suppress the convection in the levitated liquid metals droplets. Using the system, we have been measuring heat capacity, thermal conductivity, emissivity, surface tension and density of high-temperature metallic melts. Comparing the data obtained by the method to the data obtained under microgravity conditions, we can evaluate the accuracy of measurement data, and also we exactly know the effect of convection on the thermophysical properties measurements.

Key words; Electromagnetic Levitation, magnetic field, thermophysical properties

1. はじめに

微小重力環境での浮遊法による高温融体の熱物性計測は、鋳造、結晶成長および溶接などの高温材料プロセス制御に必要な、高温融体熱物性値の提供という観点から着目されている宇宙環境利用技術の一つである。高温融体の熱物性値は、高温プロセスを直接支配する物理量であるため、高温プロセスを自在に制御する上で必要不可欠なデータである。特に熱物性値の温度依存性は、実際のプロセスにおける温度勾配のある融体の輸送特性を決定する要素であり、極めて重要である。このため、非接触法である浮遊法を用いた高温融体の物性値測定法の

開発、改良が行われている。我々は、電磁浮遊法を用い表面張力を含めた高温融体の熱物性を微小重力環境下において、制御した条件の下で精度よく計測する手法を検討してきた。このなかで、融体内の対流に大きく影響を受ける熱伝導率は、微小重力環境での測定が最も必要となる物性値である。このため、地上においても対流の影響を受けずに精度よく熱伝導率の測定が可能となれば、微小重力環境で測定した値の検証と、熱伝導に及ぼす流れの効果を定量的に調べる事が可能となる。このため、電磁浮遊法に静磁場を印加し融体内の対流を抑止し、熱伝導率などの熱物性値を計測するシステムの構築を

おこなってきた[1]. このシステム構築は, JST 先端計測分析技術・機器開発事業の支援を受けて, 平成19-21年度に「高度ものづくり支援—超高温熱物性計測システムの開発」(代表者: 東北大学 福山博之) の課題で「静磁場印加電磁浮遊装置”PROSPECT” (Properties and Simulations Probed with Electromagnetic Containerless Technique) の開発をおこない, 平成21年から現在まで「超高温熱物性計測システム支援ソフトウェアの開発」(代表者: 東北大学 塚田隆夫) の課題で装置と測定システムの完全システム化を目指して開発を進めている. この高温融体熱物性計測システム開発の過程で得られた, いくつかの高温融体熱物性について紹介していく. 電磁浮遊した金属融体に静磁場を印加すると, 融体内の対流を抑制できるだけでなく, 液滴の表面振動と並進運動も抑制できる [2]. この効果は, 浮遊液滴の形状から体積を算出する必要がある密度計測には非常に有効である. 液滴表面振動と並進運動を抑制することで, 液滴形状を精密に計測できるの, 密度計測の精度を格段に向上させることができる [3]. この技術を発展させ, 2011年後半から2012年に実施予定の, ISSにおけるESA運用の電磁浮遊装置MSL-EML (Materials Science Laboratory-Electromagnetic Levitator) を用いた高温融体熱物性計測の測定結果の検証をおこなっていく.

2. 静磁場印加電磁浮遊法

Fig.1のように電磁浮遊した金属液滴に静磁場を印加すると, 試料内に発生した渦電流に静磁場が作用し試料を一定の位置に保持するように力が働く. さらに, 試料内に対流がある場合には, この対流による電荷の動きに対して静磁場がこれを止めるように作用するため, 対流も抑制される. さらに, 並進運動と同様に, 液滴表面が振動しようとするのを抑制する方向に電磁力が働き, 表面振動も抑制され, 結局, 鉛直軸を中心とした回転運動のみが電磁力に抑制されずに残る.

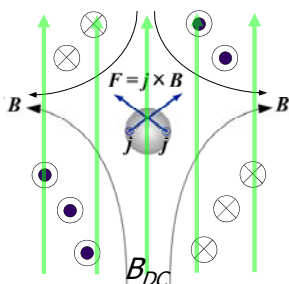


Fig.1 Schematic figure of electromagnetic levitated liquid droplets under the static magnetic fields.

この原理を適応し, 電磁浮遊した金属液滴に静磁場を印加できるように Fig.2 に示した装置を作成した. 水冷ジャケット付きの SUS 製チャンバーを超伝導マグネット(NbTi-coil, Max 10T)内に入れ, 電磁浮遊がおこなえるようにした. 通常の電磁浮遊法では, 高周波加熱のみで試料温度を変化させるが, 本装置では AC カロリメトリと半導体物質の予備加熱がおこなえるように, 半導体レーザー (140W, 808nm) による加熱もおこなえるようになっている. 試料温度は放射温度計(測定波長, 1350nm)を用いて, 試料の下方から測定する. また, 表面張力と密度測定のための, 液滴形状観察用高速カメラを2台設置している. 表面振動測定用は試料の上部から液滴形状を観察できるように設置し, 密度測定用は試料側面から液滴形状を観察できるように設置されている. 密度測定は液滴形状を正確に計測する必要があり, 高温融体の場合, 高温では液滴の自己発光で液滴外形のエッジがぼやけてしまうため, 試料背面からレーザー光 (532nm) をビームエキスパンダーで広げた平行光束を照射するバックライト光学系を採用し, 液滴形状の影を撮影し体積を計測する.

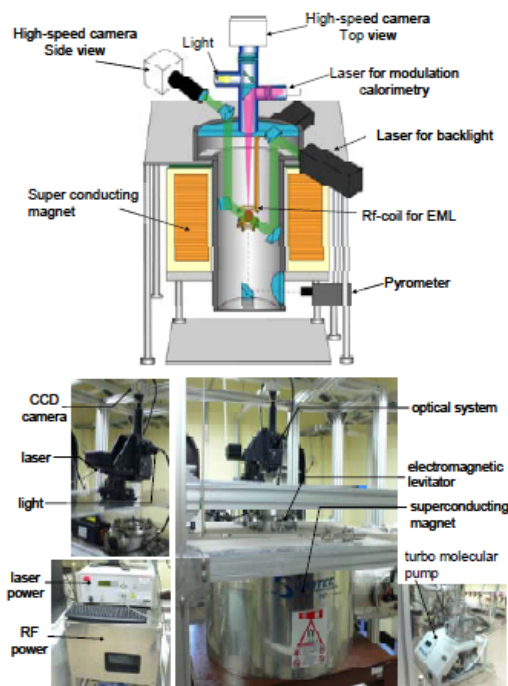


Fig.2 Schematic diagram of thermophysical property measurement system based on electromagnetic levitation method.

3. レーザー周期加熱法による熱物性測定

本研究におけるレーザー周期加熱カロリメトリーでは, 浮遊液滴上部から正弦波で強度変調したレーザーを照射し, 液滴下部からその温度応答を測定す

る。この時の熱の流れを Fig. 3 に示す。真空中あるいはガス中で試料を浮遊溶解させ、試料上部から、角周波数 ω で変調したレーザーを照射して周期加熱をおこない、試料下部での温度を放射温度計を用いて測定し、レーザーの周期加熱による試料下部での温度振幅と位相差を測定する。この測定から、熱容量と放射率と熱伝導率の値が得られる。Fig.4 にこの測定により得られた、熔融 Si 及び Fe の定圧モル熱容量の温度依存性を示す。測定された温度範囲において、両者には、明確な温度依存性は認められないため、全データの平均をとって次の値を得た[4, 5].

$$\text{Si: } C_p = 24.1 \pm 1.4 \text{ J/mol} \cdot \text{K} \quad (1500 - 1960 \text{ K})$$

$$\text{Fe: } C_p = 45.5 \pm 4.1 \text{ J/mol} \cdot \text{K} \quad (1816 - 1992 \text{ K})$$

ここで、測定における不確かさは、全データに対する標準偏差の2倍とした。ちなみに、NIST-JANAF 熱化学データ[6]に収録されている熔融 Si 及び Fe のモル熱容量の融点における値は、それぞれ 27.196 J/mol·K と 46.024 J/mol·K であり、Fe については、不確かさの範囲内でよく一致しているが、Si については、やや小さい値が得られ、さらに検討が必要である。

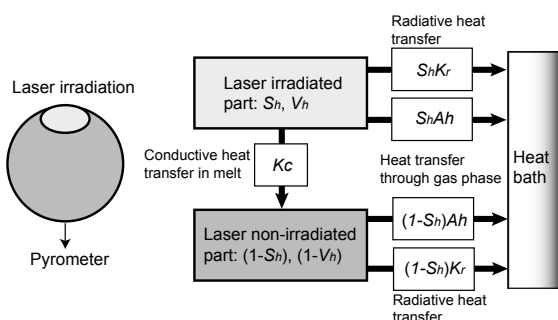


Fig. 3 Heat flow model for noncontact modulated laser calorimetry in a gas stream.

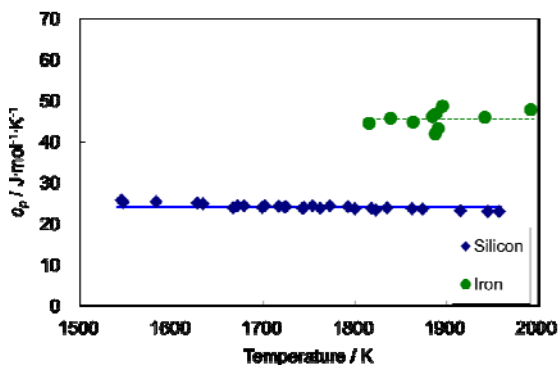


Fig. 4 Temperature dependence of isobaric molar heat capacities of liquid Si and Fe.

熔融 Si と Fe の熱伝導率は、両者とも静磁場を大きくすると、徐々に小さくなり、Si の場合は、4 T 以上で、また、Fe の場合は、9 T 以上で収束することがわかった。これは、静磁場によって、液滴内部の対流が抑制され真の熱伝導率の値に近づいたためである。それぞれの熱伝導率の温度依存性を Fig. 5 に示す。これより、Si の熱伝導率の温度依存性は、

$$\text{Si: } \kappa = (56.0 \pm 1.9) + 0.01 \times (T - 1685) \text{ W/m} \cdot \text{K} \quad (1500 - 1960 \text{ K})$$

と表せる。一方、Fe については、顕著な温度依存性が認められないため、全データの平均をとり、次式に示す値を得た。

$$\text{Fe: } \kappa = 38.7 \pm 2.5 \text{ W/m} \cdot \text{K} \quad (1794 - 2039 \text{ K})$$

ここでも、測定における不確かさを全データに対する標準偏差の2倍とした。本研究で得られた Si の熱伝導率は、レーザーフラッシュ法の値より若干高めの値がでている[4]。また、Wiedemann-Franz 則の妥当性については、電気伝導率に関する報告値がばらついているため、厳密なことは言えないが、1996 年に Schnyders ら[7]によって測定された電気伝導率の値から計算された熱伝導率とは、よく一致している。また、Fe の熱伝導率は、Touloukian ら[8]による推奨値や Zinovyev ら[9]によって測定された値とよく一致した。また、Wiedemann-Franz 則を仮定して計算した結果[10]より若干大きな値となった。

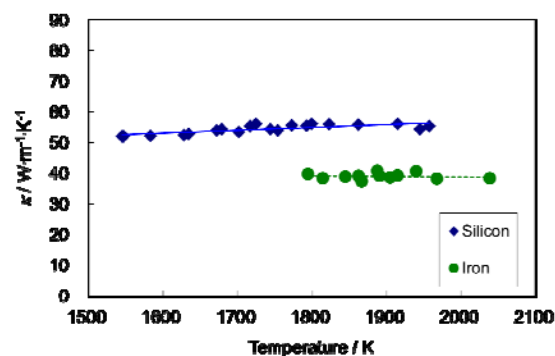


Fig.5 Temperature dependence of thermal conductivities of liquid Si (4 T and 5 T) and Fe (9 T and 10 T).

4. 合金融体の密度測定

密度の測定は前記したようにレーザー光をバックライトして用い、浮遊液滴の影を撮影し体積を算出し求めた。通常の電磁浮遊法では液滴の表面振動が誘起されてしまうため、温度を一定にして数枚の液滴画像の平均をとり体積を算出するが、静磁場印

加電磁浮遊法では、液滴表面振動が抑止されているため、1枚の画像から正確な体積を算出でき、温度を変化させながら各温度での密度を計測できる。このため測定時間を従来法に比べ大幅に短縮でき、蒸発に伴う質量変化を無視できる程度まで低減することができる。このため、合金融体の密度を精密に測定できるようになった。Fig.6にFe-Si合金融体の全組成範囲において測定した密度の温度依存性を示す。この密度の温度依存性のデータから、モル体積の温度依存性を算出し、各組成でのモル体積を求めた。1873Kでの各組成におけるモル体積の結果をFig.7に示す。この図において直線で示したのは、混合の効果により体積変化のない理想溶液と考えてFeとSiのモル体積の加成則に従ってプロットしたものである。この結果より、Fe-Si系では体積が収縮する系であることがわかり、相図と比較しても化合物を形成しやすい系であることがわかる。この他の合金系についても、同様の手法で密度を測定しモル体積算出し、密度が未知の合金融体の密度を推定するモデルを現在構築中である。

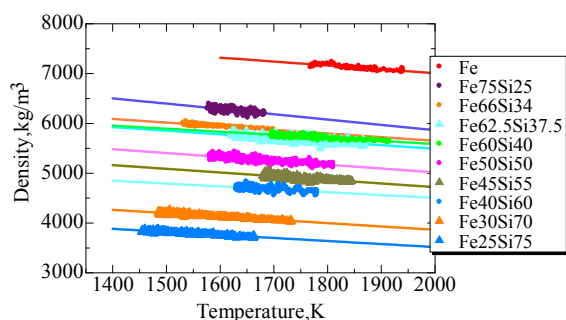
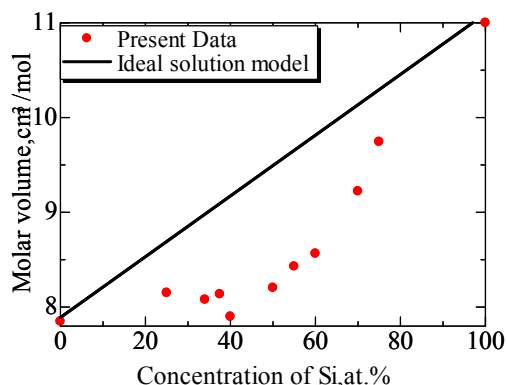


Fig.6 Temperature dependence of molten Fe-Si alloys density.

Fig.7 Molar volume of molten Fe-Si alloys with



different compositions.

5. まとめと今後の微小重力実験への適応

以上述べたように静磁場印加電磁浮遊法では、微小重力環境と同様に融体内の対流を抑止することができ、純粋な熱伝導率の測定がおこなえることがわかった。さらに静磁場を強度を変化させることで、熱伝導に及ぼす対流の影響を系統的に知ることができる。また、合金融体密度を高精度に計測できるため、他の物性値を算出する際に必要となる密度データを提供できる。このため、現在ワーキンググループにおいて計画しているISSにおけるMSL-EML装置を用いた高温融体の熱物性計測において得られた値の検証、対流の影響をこの装置を用いた測定と比較し、測定値の検証に役立てていく。また、熱物性計測における対流効果の定量的な議論を今後おこなえるようにしていく。

謝辞

本研究の一部は、JST 先端計測分析技術・機器開発事業「高度ものづくり支援—超高温熱物性計測システムの開発」、 「超高温熱物性計測システム支援ソフトウェアの開発」助成を受けたものであり、また JAXA 研究班ワーキンググループでの共同研究の成果でもあります。関係各位にこの場を借りて感謝致します。

参考文献

- [1] H. Fukuyama *et al.*, Meas. Sci. Technol., 18 (2007) 2059.
- [2] H. Yasuda *et al.*, J. Crystal Growth 260 (2004) 475.
- [3] M. Watanabe *et al.*, Faraday Discussions 136 (2007) 279.
- [4] H. Kobatake *et al.*, Meas. Sci. Technol., 21 (2010) 025901.
- [5] 杉江一寿ら, 鉄と鋼, 96 (2010) 673.
- [6] M. W. Chase, Jr., ed.: NIST-JANAF Thermochemical Tables, 4th Ed. (The American Chemical Society, Washington, DC and the American Institute of Physics, New York, 1998).
- [7] H. S. Schnyders and J. B. Van Zytveld: J. Phys.: Condens. Matter, 8 (1996) 10875.
- [8] Y. S. Touloukian *et al.*, The TPRC data series volume 1, p. 169, Plenum, New York, (1970).
- [9] V. Y. Zinovyev *et al.*, Phys. Met. Metallog., 61 (1986) 85.
- [10] K. C. Mills *et al.*, Int. Mat. Rev., 41 (1996) 209.