

## 静磁場印加型電磁浮遊法を用いた高温融体の表面張力測定の可能性

小澤俊平<sup>1</sup>, 尺長憲昭<sup>1</sup>, 小島秀和<sup>2</sup>, 江田拓朗<sup>1</sup>, 青柳智勇<sup>3</sup>, 福山博之<sup>2</sup>,  
渡邊匡人<sup>3</sup>, 日比谷孟俊<sup>4</sup>, 淡路智<sup>2</sup>

1 首都大学東京, 2 東北大学, 3 学習院大学, 4 慶應義塾大学

### Possibility of superimposition of static magnetic field for surface tension measurement of high temperature melt using electromagnetic levitation

Shumpei Ozawa<sup>1</sup>, Noriaki Takenaga<sup>1</sup>, Hidekazu Kobatake<sup>2</sup>, Takuro Koda<sup>1</sup>, Tomowo, Aoyagi<sup>3</sup>,  
Hiroyuki Fukuyama<sup>2</sup>, Masahito Watanabe<sup>3</sup>, Taketoshi Hibiya<sup>4</sup>, and Satoshi Awaji<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Tokyo Metropolitan University, 6-6 Asahigaoka, Hino, Tokyo 191-0065

<sup>2</sup>Tohoku University, 2-2-1 Katahira, Aoba, Sendai 980-8577

<sup>3</sup>Gakushuin University, Mejiro, Toshima, Tokyo 171-8588

<sup>4</sup>Keio University, 2-15-45 Mita, Minato-ku, Tokyo 108-8345

E-Mail: shumpei.ozawa@tmu.ac.jp

Abstract: Static magnetic field was superimposed for surface tension measurement of molten silicon by oscillating droplet method using electromagnetic levitation (EML). Amplitude of surface oscillation of the  $m=0, \pm 1$  and  $\pm 2$  was attenuated with increasing the static magnetic field from 0 to 0.3T. When the static magnetic field was above 0.4T, the surface oscillations of  $m=0$  and  $\pm 1$  vanished, whereas only the  $m=\pm 2$  oscillation remained at 0.4–0.8T. The oscillation frequencies of  $m=0$  and  $\pm 1$  were increased with increasing static magnetic field, whereas that of  $m=\pm 2$  oscillation was constant at 0–0.3T. Although the frequency of the  $m=\pm 2$  oscillation became a slightly small at 0.4T, it kept constant again at 0.4–0.8T. The calculated surface tension of molten silicon was influenced by the static magnetic field. Superimposition of static magnetic field to EML is not equivalent to the microgravity experiment.

*Key words;* surface tension, thermophysical properties, electromagnetic levitation, superimposition of static magnetic field.

#### 1. はじめに

金属性高温融体の表面張力値は、微量の不純物や測定中の雰囲気酸素分圧などに大きく影響される[1, 2]。したがってその測定には、無容器法である電磁浮遊炉を用いた液滴振動法が最も有効な手段であると言える。この方法を微小重力環境で用いた場合、浮遊液滴の表面張力値とその表面振動周波数の関係は、次式で表される[3]。

$$\sigma = (3/8)\pi v_R^2 M \quad (1)$$

ここで、 $\sigma$ は表面張力値、 $v_R$ は Rayleigh 振動の周波数、 $M$ は質量である。しかし地上では、重力と電磁力の影響によって液滴が変形し、Rayleigh 振動の  $l=2$  モードが、 $m=0, \pm 1, \pm 2$  振動に分裂するので、その補正のためにこれらの周波数同定が必要となる[4]。このとき、液滴が回転する場合には、その周波数も周波数解析結果に現れるだけでなく、幾何学的問題から、 $m=\pm 1$  および  $\pm 2$  振動の周波数ピークが分裂するため[5]、これらの同定が非常に困難となるだけでなく、測定の不確かさを増す原因となる問題がある。

近年、安田らは電磁浮遊させた Cu 液滴に対して、重力方向に平行な静磁場を印加させる研究を行っ

た[6]。この研究では、静磁場印加によって  $m=0$  および  $m=\pm 1$  振動が消滅し、 $m=\pm 2$  振動だけが選択的に残存すること、その周波数ピークが低周波数側に移動すること、さらに、液滴の回転が  $z$  軸に対してのみ起こることが示唆された。もし静磁場印加によって  $m=\pm 2$  振動だけが残存することと、微小重力環境下で観察されるように、全ての振動が縮退し周波数が一つになることが等価であれば、測定は極めて容易になり、かつ不確かさが大きく低減するので、静磁場印加の可能性を検討することの意義は大きい。

しかしながら、電磁浮遊液滴の振動挙動に及ぼす静磁場印加影響に関する研究は殆ど行われていない。Bojarevics と Pericleous は、二次元軸対称ながらも、数値計算によって、電磁浮遊液滴の振動挙動へ及ぼす静磁場印加の影響について考察した[7]。その結果、静磁場印加によって、 $l=1, 2$  および 3 モードの周波数は変化しないと報告している。我々は、電磁浮遊させたシリコン液滴に静磁場を印加し、静磁場が液滴振動挙動に及ぼす影響について調べた[8, 9]。その結果、安田ら同様に磁場印加に伴い、 $m=\pm 2$  振動と類似の挙動を示す振動が残存すること

を確認した。しかし、その残存した振動の周波数には温度依存性が無いこと[8]や、液滴の最大直径の時間変化を考慮[9, 10]することによって、それが楕円変形した液滴の回転であると結論付けた。一方、江田らは、 $m=+2$  および  $-2$  振動の位相差によって、たとえ液滴が回転していなくても、あたかも  $z$  軸を中心に回転しているかのように見えることを報告した[11]。

本研究では、江田らの知見をもとに、静磁場印加中で電磁浮遊させたシリコン液滴の振動挙動について再検討し、静磁場印加型電磁浮遊法を用いた高温融体の表面張力測定の可能性や、これが微小重力環境利用と等価であるかについて検討することを目的とした。

## 2. 静磁場印加中での Si 融体の電磁浮遊実験

約 480 mg の角形の Si 単結晶試料（融解時の電気抵抗率  $7.5 \times 10^{-7} \Omega \cdot m$ ）を電磁浮遊炉にセットした。チャンバ内を  $10^{-4} Pa$  程度まで真空引きした後、6N のアルゴンガスで置換した。次に浮遊コイル内に設置した雰囲気制御用の石英ガラス管に Ar および Ar-3%O<sub>2</sub> ガスの混合ガスをフローし、Ratto の式[13]を利用して、試料融解時の液滴表面における雰囲気酸素分圧が  $3.9 \times 10^{-25} MPa$  となるように制御した。混合ガスのフロー開始から十分時間が経過した後、Si 試料を半導体レーザーによって予備加熱し、浮遊コイルからの高周波磁場によって浮遊させた。試料が完全に融解した後、超伝導マグネットによって 0.1T から 1.0T の直流静磁場を印加した。このときの、液滴の温度と振動挙動は、上部から二色温度計と高速度ビデオカメラを用いて記録した。

得られた画像から、液滴の面積  $A$ 、重心位置 ( $G_x, G_y$ )、液滴の  $X$  軸と  $Y$  軸方向への半径長さ  $R_x, R_y$  の和  $R^+$ 、と差  $R^-$ 、液滴の最大直径と  $X$  軸の偏角  $\theta$  ( $0 < \theta < \pi$ ) の時間変化を抽出した。これらを高速フーリエ変換 (FFT) や最大エントロピー法 (MEM) によって周波数解析し、Table 1 に示す対応表にしたがって、振動と回転に起因する周波数を同定した。なお  $m=\pm 2$  振動周波数同定に関しては、

Table 1 Relationship among oscillation mode of  $m=0, m=\pm 1$  and  $m=\pm 2$  corresponding to  $A, R^+$ , and  $R^-$ .

	$m=0$	$m=\pm 1$	$m=\pm 2$	Rotation
$A$	Yes	Yes	No	No
$R^+$	Yes	Yes	No	No
$R^-$	No	Yes	Yes	Yes

液滴の回転周波数や、 $+2$  と  $-2$  振動の位相差による分裂ピーク強度差を十分考慮に加えた[10,11]。

## 3. 結果および考察

Figure 1 に、磁場を印加しない場合を基準としたときの、代表的な  $A, R^+$  および  $R^-$  における、磁場強度と各振幅変化を示す。静磁場強度を大きくするにつれて、 $A$  と  $R^+$  の振幅が小さくなった。これは、Table 1 の対応表に従うなら、静磁場を印加することによって、 $m=0$  および  $\pm 1$  振動が減衰したと考えられ、安田らの報告と一致している。それに対して  $m=\pm 2$  振動または回転に相当する  $R^-$  の振幅は、0.3T までは磁場強度の増加と共に減衰するが、その後 0.4T-0.8T の間でわずかに増加し、0.9T で再び減衰した。

この残存した振動の正体を明らかにするために、 $R^-$  の周波数解析を行った。Figure 2 は、様々な温度において、0.5T の静磁場を印加した場合の、 $R^-$  の周波数解析結果である。この図では温度に関係なく、およそ 37Hz に、大きなピークが認められる。従来の我々の研究では、このピークが温度依存性を持たないことや[8]、最大直径と  $X$  軸が作る偏角の時間変化解析[9]から、回転周波数であるとしていた。しかしながら、液滴が回転し、かつ  $m=+2$  と  $-2$  振動に、時間的位相差  $\Delta \psi$  が存在する場合は、 $m=\pm 2$  振動周波数が二つに分裂し、さらにそれらの強度比が異なる (Figure 3 参照) という江田らの発見[11]に注目して再検討すると、いずれの周波数解析結果に

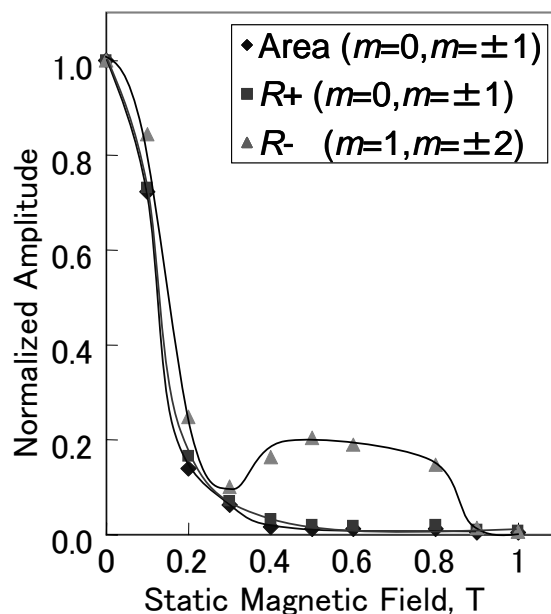


Figure 1 Relationship between amplitude of surface oscillations and superimposed static magnetic field.

おいても, 37H よりも低周波数側に, ▼で示すような, 非常に小さなピークが認められ, 真の  $m=\pm 2$  振動周波数は, 矢印で示すように, これらの大小二つのピークの中心にあることになる. つまり, 静磁場印加中で残存した振動は,  $m=\pm 2$  振動であると言える.

次に, この残存した  $m=\pm 2$  振動周波数が, 静磁場に影響されるかを確認した. その例として Figure 4 に, 1670K における,  $m=0, \pm 1, \pm 2$  および併進移動周波数と静磁場強度の関係を示す. なお, 0.7T では, 液滴が dumbbell 状に変形して高速回転することや, それ以上の磁場では, 液滴振動の振幅が非常に小さく解析できなかったため, 解析対象から除外した. 静磁場強度によらず併進運動周波数は, ほぼ一定であるのに対し,  $m=0$  と  $\pm 1$  振動周波数は, 0.3T までは静磁場印加強度が増すにつれて大きくなった. 一方,  $m=\pm 2$  振動は, 振動周波数を 0.3T まで大きくしても, ほとんど変化しなかった. また,

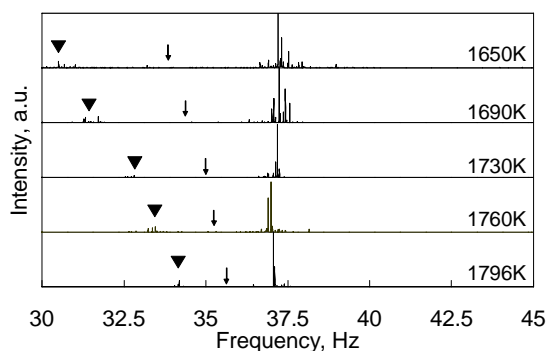


Figure 2 Frequency spectrums for oscillation mode of "R" at 0.5T. large peaks at around 37Hz and small peaks marked by ▼ are the split peaks of  $m=\pm 2$  oscillation frequency due to the sample rotation. Real  $m=\pm 2$  oscillation frequencies are indicated by arrows.

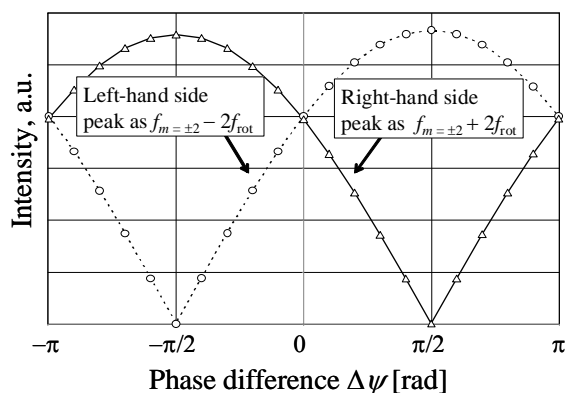


Figure 3 Intensities of split peaks of the  $m=\pm 2$  oscillation frequency due to droplet rotation as a function of temporal phase difference between  $m=+2$  and  $-2$  oscillations  $\Delta\psi$ .

0.4T になると, わずかに小さくなった後, 一定となった. このことから, 安田らの報告[6]と同様に,  $m=\pm 2$  振動周波数が, ある磁場強度で低周波数へとシフトすることが確認されたが, Bojarevics と Pericleous は静磁場を印加しても浮遊液滴の表面振動周波数には変化が生じないと報告しているが[7], それとは異なった結果となった.

この図で示された各振動の周波数を用いて, Cummings と Blackburn の補正式[4]から計算した表面張力値を Figure 5 に示す. 0 - 0.3T では,  $m=0, \pm 1, \pm 2$  振動が確認されたので, これら全ての周波数を用いて計算した. また, 0.4T 以上では, 選択的に残存した  $m=\pm 2$  振動周波数だけを用いて計算した.

$m=0, \pm 1, \pm 2$  振動周波数を用いて計算した 0 - 0.3T では, 磁場強度の増加に伴って, 表面張力の計算値が大きくなった. これは, 静磁場印加の効果によって液滴の内部流動が抑制され, 見かけ上, 表面を固くするような振る舞いをするためと思われる.

また 0.4T 以上になると, 表面張力の計算値はほ

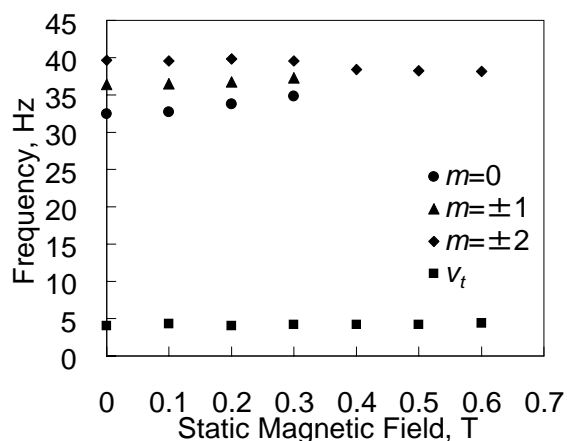


Figure 4 Oscillation frequencies of  $m=0, \pm 1$  and  $\pm 2$  for electromagnetically levitated Si droplet at applied static magnetic field of 0-0.6T.

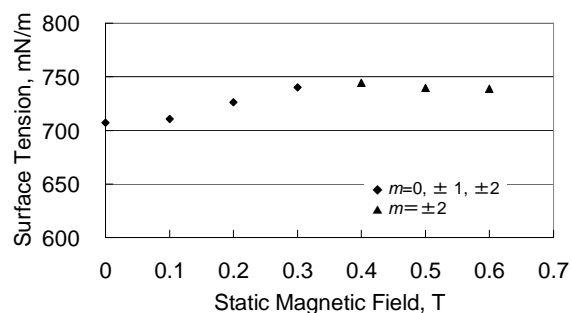


Figure 5 Relationship between calculated surface tension and static magnetic field. Surface tension was calculated from the oscillation frequencies of  $m=0, \pm 1,$  and  $\pm 2$  at 0-0.3T and only from  $m=\pm 2$  oscillation which remained exclusively at 0.4T - 0.6T.

ば一定となった。Figure 4 から理解できるように、静磁場は  $m=\pm 2$  振動に対してよりも、 $m=0$  と  $\pm 1$  振動に顕著な影響を及ぼす。0.4T 以上では、すでに  $m=0$  と  $\pm 1$  振動が抑制され、 $m=\pm 2$  振動だけが選択的に残存しているため、それ以上静磁場の効果が表面張力の計算値に顕著に現れなかったと思われる。

以上のように、静磁場印加は電磁浮遊液滴の表面振動の周波数に大きく影響を及ぼし、本来、物性値であるべき表面張力が、静磁場強度の違いによって、異なることが明らかになった。したがって、電磁浮遊法に静磁場を印加する方法は、熱伝導率や密度の測定には効果がある[12-14]ものの、表面張力測定においては、必ずしも微小重力環境と等価の手段とはならず、高温融体の正確な表面張力測定のためには、現時点では、やはり微小重力環境利用が最適と言える。

ただし、液滴振動挙動に対する静磁場印加の影響を考慮した補正式が導出できたなら、静磁場印加によって液滴が Z 軸に対してだけ回転することや、 $m=\pm 2$  振動だけが選択的に残存することを利用して、表面振動周波数同定の困難さや、表面張力測定の不確かさを大きく低減させることが可能となるのは確実である。

#### 4. まとめ

本研究では、電磁浮遊させたシリコン液滴の表面振動に及ぼす、静磁場印加の影響について検討した。その結果、静磁場強度が 0 - 0.3T では、 $m=0$ ,  $\pm 1$ , および  $\pm 2$  振動の振幅が小さくなった。また、 $m=0$  と  $\pm 1$  振動周波数が磁場強度の増加に伴って大きくなった。一方、 $m=\pm 2$  振動周波数に変化は見られなかった。0.4T 以上になると、 $m=\pm 2$  振動だけが残存した。またその周波数は、0.3T と比べてわずかに小さくなるが、それ以上静磁場強度が増しても一定であった。0 - 0.3T において検出された  $m=0$ ,  $\pm 1$ , および  $\pm 2$  振動周波数から表面張力を計算すると、その値は磁場強度とともに増加した。0.4T 以上において、選択的に残存した  $m=\pm 2$  振動周波数から表面張力を計算すると、その値は、0.3T において、 $m=0$ ,  $\pm 1$ , および  $\pm 2$  振動周波数から求めた値とほぼ同じであった。

#### 謝辞

本研究テーマは、「微小重力下での酸素分圧制御による金属性融体の表面張力測定ワーキンググループ」(代表：日比谷孟俊(慶応大))に属し、研究活動・議論を行っていることを記す。なお、本研究の一部は、「知的基盤創成・利用推進研究開発事

業」制度の一環として、NEDO からダイフク・アルベック・ソフトウェアを通じて委託された「溶接設計支援システム用データベース構築の調査研究及び研究開発等」の成果である。また一部は、JST から東北大学を通じて委託された、「高度ものづくり支援一超高温熱物性計測システムの開発」の成果である。磁場中での測定実験は、東北大金属材料研究所附属強磁場超伝導材料研究センターとの共同研究により実施した。

- [1] K. Mukai, Z. Yuan, and T. Hibiya, *ISIJ international* **40** (2000) S148-S152.
- [2] E. Ricci, E. Arato, A. Passerone, and P. Costa, *Adv. Colloid and Interface Sci.* **117** (2005) 15-32.
- [3] L. Rayleigh, *Proceedings of the Royal Society of London*, **29** (1879) 71-97.
- [4] D. L. Cummings, D. A. Blackburn, *J. Fluid Mech.*, **224**, (1991) 395-416.
- [5] I. Egly, H. Giffard, and S. Schneider, *Measurement science and technology* **16**, (2005) 426-431.
- [6] H. Yasuda, I. Ohnaka, Y. Ninomiya, R. Ishii, S. Fujita, K. Kishio, *J. Crystal Growth*, **260**, (2004) 475-485.
- [7] V. Bojarevics and, K. Pericleous; *ISIJ International*, **43**, (2003) 890-898
- [8] N. Takenaga, S. Ozawa, T. Hibiya, H. Kobatake, H. Fukuyama, M. Watanabe, and S. Awaji, *Proceedings of 57th International astronautical congress*, cited in DVD.
- [9] S. Ozawa, N. Takenaga, T. Koda, H. Kobatake, H. Fukuyama, M. Adachi, M. Watanabe, and S. Awaji, *Mater. Sci. Eng. A*, (inpress)
- [10] 江田拓郎, 小澤俊平, 安達正義, 白鳥英, 尺長憲明, 日比谷孟俊, 渡邊匡人, *熱物性*, **21** (2007) 207-211.
- [11] T. Koda, S. Ozawa, and T. Hibiya, abstract of 3<sup>rd</sup> International Symposium on Physical Science in Space, P-24, October 23, 2007, Nara, Japan.
- [12] H. Kobatake, H. Fukuyama, I. Minato, T. Tsukada, and S. Awaji, *Appl. Phys. Lett.*, **90**, (2007) 094102-1-094102-3.
- [13] [8] T. Tsukada, H. Fukuyama, and H. Kobatake, *Int. J. Heat Mass Trans.*, **50**, (2007) 3054-3061
- [14] M. Adachi, K. Higuchi, A. Mizuno, M. Watanabe, H. Kobatake, and H. Fukuyama, *Proceedings of 16th Symposium on Thermophysical Properties*, Boulder, CO, USA, (CD-ROM)