

# 白金液体を用いた浮遊法での表面張力に対するラウンドロビン測定

小島 秀和 (弘前大), 小澤 俊平, 清宮優作, 富田 脩斗 (千葉工大), 渡邊 匡人(学習院大学),  
石川 毅彦 (JAXA), Xiao Xiao, Brillo Juergen (DLR)

## Round Robin Test of Surface Tension Measurement by an Oscillating Droplet Method Using a Liquid Platinum

Taro Sagamihara\*, Akiko Akiruno, Jiro Uchinoura, Hidekazu Kobatake\*, Shumpi Ozawa, Yusaku Seimiya, Yuto Tomita, Masahito Watanabe, Takehiko Ishikawa, Xiao Xiao, Juergen Brillo

\*Hirotsaki Univ., 2-1-3 Matshubara Aomori 030-0813

E-Mail: kobatake@hirosaki-u.ac.jp

Abstract: Levitation technique enables us to measure surface tension of high temperature liquid by oscillating drop method with preventing the contaminations from the contact materials. In spite of this progress of the surface tension measurement achieved by levitation technique, we have still unsolved tasks for accurate surface tension measurement of high heigh temperature liquid metals such as understanding the effect of oxygen partial pressure, or peak identification of the oscillation frequency. In order to find a criterion for surface tension measurement, we have conducted a Round-robin test for surface tension measurement using molten platinum, which is ineffective in the oxygen partial pressure.

Key words: Surface tension, Electrostatic Levitation, Electromagnetic Levitation, Oscillating drop

### 1. はじめに

浮遊法では試料を無容器で保持できることから、容器からの試料の汚染を防ぎながら、高温で熔融状態にある材料の物性値を計測することが可能である。特に高温融体の熱物性の中でも表面張力は液体の安定性や物質移動を支配する物性値であり、溶接や鋳造といった高温の材料プロセスをシミュレーションするために重要なパラメータである。しかし、表面張力はなどのわずかな汚染にさえ影響を受けるため従来の容器を用いた測定では不確かさが大きくなるため、浮遊法による測定は世界的に見てもその重要性を増している。

そこで、浮遊させた熔融金属の表面張力を測定するために、欧州や日本において微小重力実験が現在行われている[1-3]。しかし、近年の微小重力環境下での電磁浮遊装置を用いた液滴振動法による表面張力測定の結果、液滴の表面振動による変形が大きい時には、Rayleighの式によって求められる表面張力を補正する必要があることが指摘されている[3]。さらに、これまでの欧州の実験では強力な表面活性元素である酸素が雰囲気中に存在する事を考慮していない問題がある。

一方日本の実験においては酸素分圧を制御した雰囲気での液滴振動法による熔融金属の表面張力が試みられている[4,5]。これらの測定ではH<sub>2</sub>ガスを用いた還元雰囲気により、酸素分圧をできる限り低くする事が試みられているが、最近の測定によってH<sub>2</sub>ガ

スの混合量が少ない場合は酸素分圧の温度変化を十分に緩衝できず、試料表面の酸素分圧が不確かとなる問題が明らかとなってきている。

このような問題を解決するためには、表面張力の酸素感受性が低いサンプルを用いた表面張力のベンチマークデータの取得と測定手法の妥当性の検証が重要である。

そこで著者らは熔融Ptを用いて日独の電磁浮遊炉、静電浮遊炉、ガスジェット浮遊法によるラウンドロビン試験を開始した。本研究ではその第一歩としてドイツ航空宇宙センターにある電磁浮遊装置およびJAXAにある静電浮遊装置を用いて熔融Ptの表面張力測定を行った結果について報告する。

### 2. 液滴振動法による表面張力測定

微小重力環境下や静電浮遊法によって小さな液滴を浮遊できる場合、液滴はその表面張力により真球の形状を保つことができる。この時、表面振動モードは縮退して表面振動周波数は一つのピークを持つ。このような条件下で液滴の表面振動を励起させると、その表面振動周波数はRayleighの式[6]によって

$$\sigma = \frac{3}{8} \pi f_R^2 M \quad (1)$$

と表される。ここで $\sigma$ は表面張力(Nm<sup>-1</sup>)、 $f_R$ はレイリー表面振動周波数(Hz)、 $M$ は試料の重量(kg)である。一方重力環境下では、試料の形状は重力の影響を

受け変形し 5 つの周波数ピークに分離する。この時の表面張力は Cummings と Blackburn の式[7]より、

$$\sigma = \frac{3\pi M}{8} \left( \frac{1}{5} \sum_{m=0,\pm 1,\pm 2} f_{l=2,m}^2 - 1.9\Omega^2 - 0.3 \left( \frac{g}{a} \right)^2 \Omega^{-2} \right) \quad (2)$$

$$\Omega^2 = \frac{(f_x^2 + f_y^2 + f_z^2)}{3} \quad (3)$$

と表される。ここで  $a$  は試料の半径(m)、 $g$  は重力加速度、 $f_m$  は液滴の表面振動周波数(Hz)、 $f_x$ 、 $f_y$ 、 $f_z$  は試料の  $x$ 、 $y$ 、 $z$  方向への並進運動の周波数(Hz)を示す。

### 3. 結果および考察

Fig.1 に溶融 Pt を電磁浮遊させた時の表面振動周波数の一例を示す。測定に用いた試料の質量は約 1.67 g、半径は約 2.65 mm である。Fig.1 に示すように電磁浮遊させた溶融 Pt の表面振動のピークは分離する。しかし、これらの分離したピークは 30-40 Hz の間に集中しており、正確にそれぞれのピーク位置を同定することが難しい。

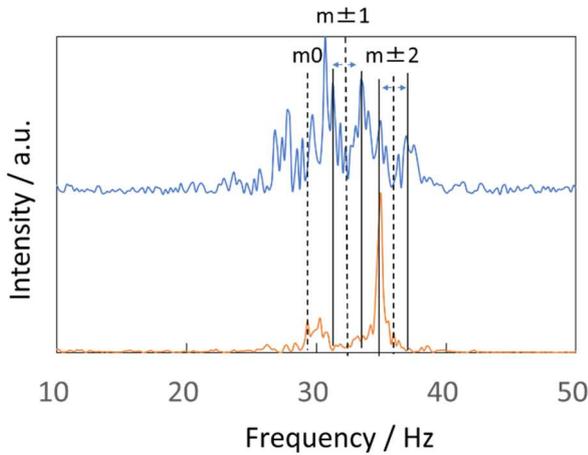


Fig.1 An example of the surface oscillation frequency of the levitated liquid Pt. Because of the measurement under terrestrial condition, the oscillation peak is splitted to 5 peaks.

電磁浮遊装置および静電浮遊装置を用いて液滴振動法で測定した溶融 Pt の表面張力の温度依存性を Fig.2 に示す。Pt の融点(2041 K)近傍において両浮遊法で測定した溶融 Pt の表面張力は  $1.7 \text{ Nm}^{-1}$  程度で良い一致を示す。しかし電磁浮遊法を用いて測定された溶融 Pt の表面張力の方が静電浮遊法によって測定された表面張力に比べてばらつきが大きくなっている。

これは今回電磁浮遊法での表面張力測定に用いた白金試料では、分離した表面振動周波数が 30-40 Hz

以内の狭い周波数領域に集中しているため同定が難しく、Cummings と Blackburn の式に用いる値に解析者によるばらつきが生じたためであると考えられる。

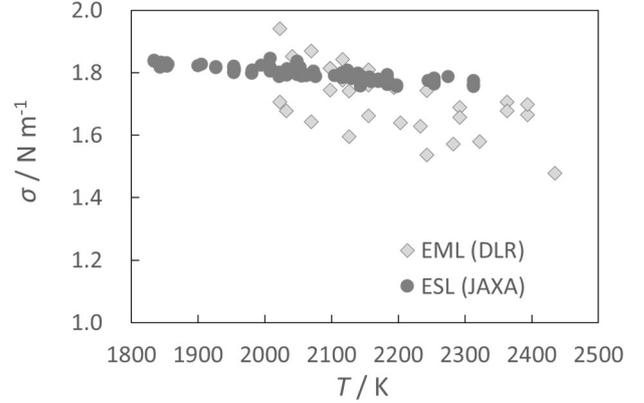


Fig. 2 Temperature dependence of the surface tension of liquid Pt. measured using EML and ESL

Cummings と Blackburn によると、分離した  $m\pm 0$ 、 $m\pm 1$ 、 $m\pm 2$  の振動周波数は以下の式によって与えられる。

$$f_{m0}^2 = f_R^2 + \Omega^2 \cdot \left\{ 3.832 - 0.1714 \cdot \left( \frac{z_0}{a} \right)^2 \right\}, \quad (4)$$

$$f_{m\pm 1}^2 = f_R^2 + \Omega^2 \cdot \left\{ 3.775 + 0.5143 \cdot \left( \frac{z_0}{a} \right)^2 \right\}, \quad (5)$$

$$f_{m\pm 2}^2 = f_R^2 + \Omega^2 \cdot \left\{ -0.9297 + 2.571 \cdot \left( \frac{z_0}{a} \right)^2 \right\}, \quad (6)$$

ここで  $z_0$  は相対的な試料の浮遊位置であり、

$$z_0 = \frac{g}{2\Omega^2} \quad (7)$$

と表される。ここで  $m\pm 1$ 、 $m\pm 2$  に対応する周波数はそれぞれ同じ周波数となる。実際の測定では試料形状の対称性のずれや回転によって見かけ上  $m\pm 1$ 、 $m\pm 2$  のピークが分離する。式(4)-(7)から示唆されるように表面張力が一定の場合、試料の半径を変えることで液滴の表面振動周波数をシフトさせることができることが分かる。

Fig. 3(a)に液滴振動法によって同定されるピーク位置の計算結果の一例を示す。簡略化のためにそれぞれのピーク強度は等しく、ガウス分布のピーク形状を仮定している。また  $m\pm 1$ 、 $2$  の分離幅は実験値を用いた。28 Hz 近傍の周波数において二つの振動ピークがほぼ同じ位置に出現している。これらのピークを足し合わせたものを Fig.3(b)に示す。二つのピークの重なりによって本来 5 本出現するはずのピークが 4 本しか確認できなくなっており、ピーク位置の

同定が困難になっていることが分かる。このことが電磁浮遊装置を用いた液滴振動法による表面張力測定におけるデータのばらつき要因となっていると考えられる。

一方 Fig 4(a) に試料半径を 2.12 mm とした時の液滴表面振動周波数の計算値を示す。今回の試料半径が 2.65 mm の時(Fig.3(a))と比べ液滴表面振動周波数がシフトし、それぞれのピーク間隔が広がっていることが分かる。また、これらの液滴表面振動周波数のピークを足し合わせても Fig 4(b)のように、明瞭に5本のピークが分離されている。このように、電磁浮遊法を使った液滴振動法で測定した表面張力のばらつきはサンプルの小型化で抑制できると考えられる。

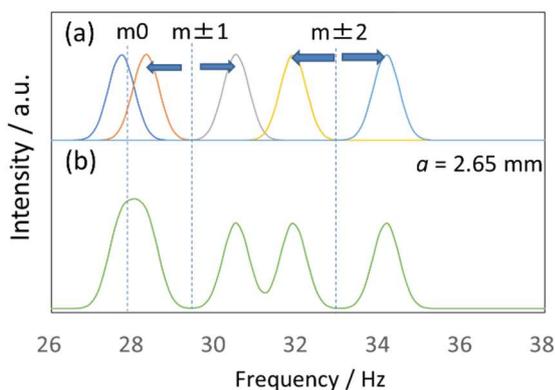


Fig.3 Calculated surface oscillation peaks using experimentally determined values with a sample radius of 2.65 mm (a) and superimposed spectrum (b).

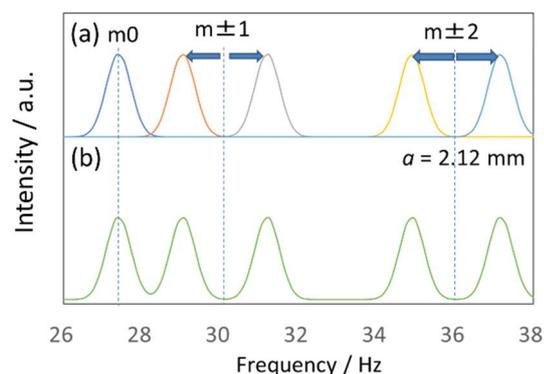


Fig.4 Calculated surface oscillation peaks using experimentally determined values with a sample radius of 2.12 mm (a) and superimposed spectrum (b).

#### 謝辞

本研究は、2019年度宇宙環境利用専門委員会短時間微小重力実験による支援の下行われたものである。また本研究の一部は、科研費補助金の援助によるものである。

#### 参考文献

- 1) Ozawa S., Takenaga N., Inoue T., Takei Y., Hibiya T., Mizuno A., and Watanabe M.; Measurement of Surface Tension of Molten Metal under Reducing Gas Atmosphere in Microgravity Condition during Parabolic Flight -Attempt to Control Oxygen Partial Pressure, *Int. J. Microgravity Sci. Appl.*, 31, 11–16 (2014).
- 2) Kobatake H, Brillo J.; Surface Tension and Viscosity Measurement of Ternary Cr-Fe-Ni Liquid Alloys under Microgravity during Parabolic Flights, *High Temp. High Press.* 47 465 – 477 (2018).
- 3) Xiao X., W.Hyers R., Wunderlich R.K., Fecht H-J., and Matson D.M.; Deformation Induced Frequency Shift of Oscillating Droplets during Molten Metals Surface Tension Measurement, *Appl. Phys. Sci. Lett.* 113, 011903 (2018).
- 4) Ozawa S., Suzuki S., Hibiya T., and Fukuyama H.; Influence of Oxygen Partial Pressure on Surface Tension and Its Temperature Coefficient of Molten Iron, *J. Appl. Phys.*, 109, 014902 (2011).
- 5) Ozawa S., Nishimura M., and Kuribayashi K.; Surface Tension of Molten Silver in Consideration of Oxygen Adsorption Measured by Electromagnetic Levitation, *Int. J. Micro. Sci. Appl.* 33 330310 (2016).
- 6) Rayleigh L.; On the capillary phenomena of jets., *Proc R Soc London* 29, 71–97 (1879).
- 7) Cummings D.L., and Blackburn D.A.; Oscillations of magnetically levitated aspherical droplets, *J Fluid Mech* 224 395 – 416 (1991).