

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 28 日現在

機関番号：82645

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24360086

研究課題名(和文) 回転法を利用した高温高粘性浮遊試料の表面張力・粘性係数計測

研究課題名(英文) Surface tension and viscosity measurements of highly viscous melts using drop rotation

研究代表者

石川 毅彦 (Ishikawa, Takehiko)

独立行政法人宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究所・教授

研究者番号：00371138

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文)：金属ガラスなど粘性の高い融体の表面張力及び粘性係数を無容器状態で測定する方法を確立する研究である。浮遊試料を回転させ、遠心力による形状変化を高速度カメラを用いて詳細に観察することにより、これらの物性計測法の確立を試みた。表面張力については、軸対称から非軸対称への形状変化が理論通りに起こることを確認し、遷移する回転数から表面張力を測定する方法を確立した。粘性係数については、非軸対称遷移後の形状変化の速度が粘度に依存することを実験的に明らかにし、測定の見処を得た。

研究成果の概要(英文)：Aim of this research is to establish a new method to measure surface tension and viscosity of highly viscous melts combined with containerless techniques. This measurement will be useful for the research of bulk metallic glasses. By employing a high speed camera, bifurcation phenomena from axisymmetric to non-axisymmetric shape were observed on electrostatically levitated rotating drops. It was confirmed that the bifurcation occurs at theoretically predicted rotation rate, and surface tension can be obtained by measuring rotation rate. It was also confirmed that the shape evolution speed after the bifurcation depends on the viscosity of the sample. This result shows a possibility of quantitative viscosity measurement of highly viscous melts using a drop rotation.

研究分野：高温融体熱物性計測

キーワード：表面張力 粘性係数 高温融体 浮遊 液滴ダイナミクス

1. 研究開始当初の背景

鋳造、溶接、溶射など、多くの製造プロセスをシミュレーションによって最適化する手法が実用化されつつある。これらのシミュレーションの精度は融体の熱物性値の精度に依存している。高温融体の熱物性データは適切な試料保持容器が無いために測定が困難であった。近年、浮遊技術が進展し、材料科学における多岐に亘る研究に使用されてきている。浮遊法は無容器プロセスを具現化する方法であり、これにより、容器に起因する様々な問題(例えば試料融体とるつぼとの反応)を回避することが可能となる。更に、容器からの核生成が抑制されるため、深い過冷却状態を容易に達成することができる。浮遊法は高温融体の熱物性計測に広く用いられ始めており、密度、比熱、輻射率、熱伝導率、電気伝導率、表面張力、粘性係数等が各種の浮遊装置を用いて測定されている。そのうち、表面張力及び粘性係数は液滴振動法により静電浮遊炉や電磁浮遊炉で測定されている。この方法では、浮遊熔融した試料を球状から加振により変形させ、モード2の液滴振動を励起し、その共振周波数及び加振を止めた後の振動減衰時間から表面張力及び粘性係数を算出する。この方法を用いて、融点が2000Kを超える高融点金属の表面張力及び粘性係数が体系的に測定されている。しかしながら液滴振動法は、金属ガラス融体など高い粘性を持つ融体に対しては、振動を励起することが困難であり、適用することが難しく、他の測定法の開発が熱望されている。

2. 研究の目的

一般に表面張力及び粘性係数の測定は、エネルギーを加えて平衡状態からずらすことによって行われる。液滴振動法の場合、エネルギーの注入は短時間で少量であるため、高粘性融体を十分に変形させることができない。一方、試料に回転トルクを加えて遠心力を利用して変形させる場合、単位時間あたりに加えるエネルギーは少量であるもののそれを継続・積算することが可能であるため、結果として大きなエネルギーを加えることができる。

本研究では、試料の回転を利用して表面張力および粘性係数の測定法を構築するものである。

図-1は、静電浮遊法により浮遊させた液滴にトルクを加えて回転させ、回転の上昇に伴って液滴形状が変化する様子を記録したものである。回転数を増加させていくと試料は軸対称形状から非軸対称(葉巻型)に移行する。

移行する回転数は、試料の表面張力と遠心力の釣り合いから理論的に求められているため、遷移する回転数を計測することによって表面張力を求めることが可能となる。

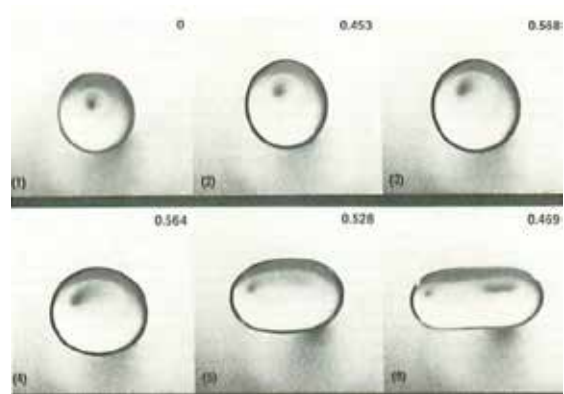


図-1 回転する浮遊液滴の形状。回転数の増加に伴い、非軸対称形状に変化

本研究ではまず静電浮遊炉に高速度カメラを付加して、既存の回転数計測装置の校正を行うとともに、浮遊試料の回転実験を行うことで理論の検証を行う。更に、ZrCoAl系金属ガラス融体について、回転を用いた表面張力測定を行い、高粘性融体の表面張力測定への有効性を確認する。

粘性係数についても、軸対称から非軸対称への遷移挙動の精密観察により計測する。形状が遷移していく速度は、試料の粘性係数に依存する。即ち、低粘度の金属融体では速やかに変化するが、グリセリン等1Pa・sを越える粘度を持つ試料では長い時間が必要である。よって、この遷移過程の液滴形状変化を高速撮影し、そこから遷移速度を求めることによって、粘性係数が算出できると考えられる。

残念ながら、試料粘度と遷移時間に関する理論的な検討はないため、本研究では、分岐点における軸対称から非軸対称へ形状遷移過程を高速度カメラで詳細に観察することによって、非軸対称形状の発展していく時間変化の違いから粘性係数が測定できないか実験的に検討を行った。

3. 研究の方法

(1) 静電浮遊炉

本研究で用いる静電浮遊炉は、Rhimらが開発した装置を基礎としている。試料の浮遊はターボ分子ポンプにより 10^{-5} Pa程度の真空中に保たれた高真空チャンバー内で行われる。図-2のとおり、間隔10 mmの上下電極の間にクーロン力を利用して直径2mm程度の帯電した試料を浮遊させる。重力に拮抗したクーロン力を発生させるため、上下電極間には10 ~ 20 kV/cmの高電場を印加する必要がある。下電極の周囲に4個の横電極を配置し、水平方向の位置制御を行う。試料を安定して浮遊させるため、高速のフィードバック制御を行う。浮遊試料は高出力の炭酸ガスレーザーで3方向から加熱され、試料温度は2台の放射温度計(単色)で計測される。下電極の下部に回転磁場を生成するための4個のコイルが設置されている。鉛直軸周り

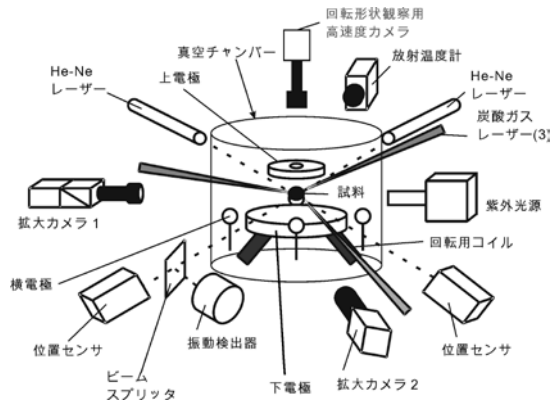


図-2 静電浮遊炉の概要

400 Hz の回転磁場により試料内部に誘導電流が発生し、磁場と電流の相互作用により試料に回転トルクが発生する。これはブラシレスモーターと同様の原理である。各コイルに流す交流電流の量及び位相を調整することにより、回転磁場の強度及び回転方向を制御し、試料の回転をコントロールすることが可能である。試料の形状観察は、拡大レンズを付加したカメラで横方向から行う。

(2)回転数計測機構

図-3 に回転数計測方法を示す。この計測システムは、He-Ne レーザーを試料表面に照射し、その反射光の強度をパワーメーターで測定するものである。試料表面に不均一がある場合（固体の場合の凹凸や液体の場合の不純物など）、測定される反射強度は試料の回転に応じて変化するため、測定信号を高速フーリエ変換(FFT)することによって回転数を得ることが出来る。

問題は、液体試料で表面に不純物など明確な異物が存在しない時、計測が出来ないことである。しかし、試料を非軸対称形状まで回転させた場合、試料形状自体が回転対称でないため、He-Ne レーザーの反射強度は回転に伴って変化して、回転数を計測することができると考えられる。

(3)高速度カメラの設置

試料の回転数計測及び試料形状の詳細観察のため、上方（上電極にあけた穴）に高速度カメラを設置した。（図-2）。図-4 に高速カメラで撮影した浮遊試料を示す。

得られた画像をコンピュータで画像処理し、試料の最大及び最小半径、最大半径の角度（図-4 の f ）を求めた。そして、 f の時間変化から回転数を算出した。

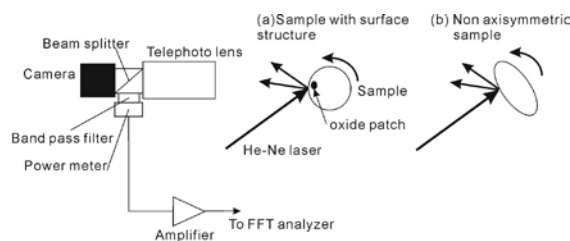


図-3 回転数計測機構の概念図

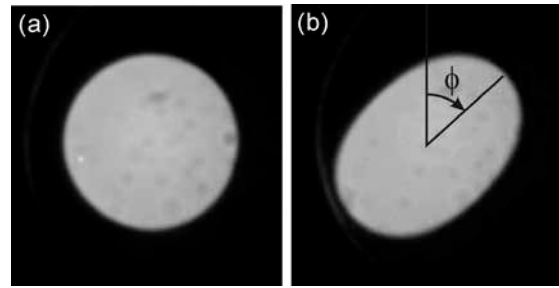


図-4 高速度カメラで撮影した試料

(4)浮遊実験

試料を浮遊溶融させた後、一定温度に保持した状態で回転磁場を印加して試料を鉛直軸周りに回転させた。回転数の上昇とともに遠心力により試料形状は扁平していき、非軸対称形状へ遷移した。図-3 の回転計測系では 1 秒ごとの回転数を実験開始から継続して記録した。一方、高速度カメラでは、メモリーの制約から分岐点前後約 25 秒のみを撮影し、3000 fps で約 75000 枚の静止画を得た。

4. 研究成果

実験は、ジルコニウム (Zr) 及び $Zr_{55}Co_{20}Al_{25}$ 試料 (以下 ZCA と記す) を用いて実施した。Zr は、蒸気圧が比較的低く長時間の浮遊溶融に適していること、粘性係数が既知で比較的低く、液滴振動法による表面張力測定が可能であり、回転法との比較ができることから技術確立に使用した。一方の ZCA 試料は粘性係数が 40mPa·s 程度と Zr の 10 倍高く、液滴振動法による表面張力測定が低い温度領域では困難な試料であり、回転法を用いた実測定を行った。

図-5 に Zr 試料の実験において回転数計測系に記録されたピーク周波数の時間変化を示す。非軸対称遷移前は、試料形状が回転対称で反射強度がほぼ一定であるため、FFT 解析結果はでたらめな値（主に電源ノイズの周波数）を示した。しかし非軸対称形状になると突然 208 Hz のピークが現れた。そしてその周波数は、最大半径の増加に伴って徐々に

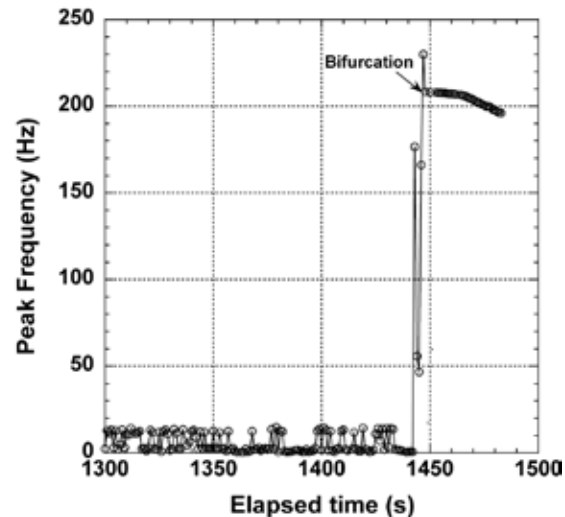


図-5 Zr 試料の回転数計測結果

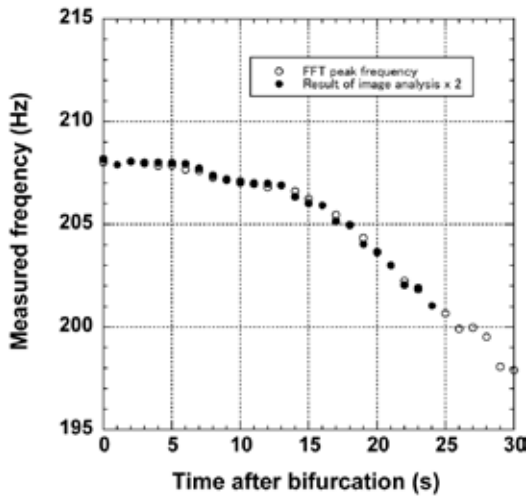


図-6 回転数計測系と高速度カメラでの回転数算出結果の比較

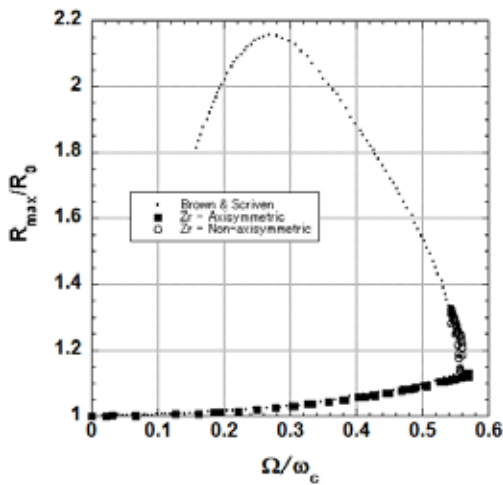


図-7 Zr 試料の回転に伴う形状変化と理論線との比較:回転数(Ω)の上昇に伴って最大半径(R_{max})が上昇し、回転数が0.56で非軸対称に変化する。

低下した。図-6は、高速度カメラの画像解析による回転数算出値と回転計測系での値との比較を示す。回転計測系での測定値は、高速度カメラでの測定値の2倍とほぼ完全に一致した。図-4(b)のとおり、分岐後の試料形状は2回対称であるため、回転毎に2回反射強度の強弱が現れる。このため、回転計測系での測定値は実際の回転数の2倍になったと考えられる。

Zr 試料の回転数と形状変化の測定結果と理論との比較を図-7に示す。理論線に沿って形状が変化していくことが確認された。

図-8及び9は、回転法及び液滴振動法を用いて測定した、ZCA 試料の表面張力及び粘性係数である。高温において、ZCA 試料の粘性係数は比較的low (20 mPa·s)、液滴振動法の適用が可能であった。しかし、温度が低くなると振動の励起が難しくなるとともにデータは大きくばらつきはじめ、1500K以下では測定できなかった。一方、回転法では1360K (推定の粘性係数は約55 mPa·s)まで表面張力測定が可能となった。

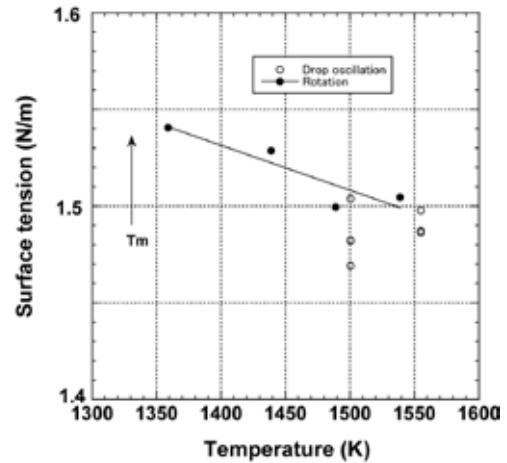


図-8 ZCA 試料の表面張力測定結果

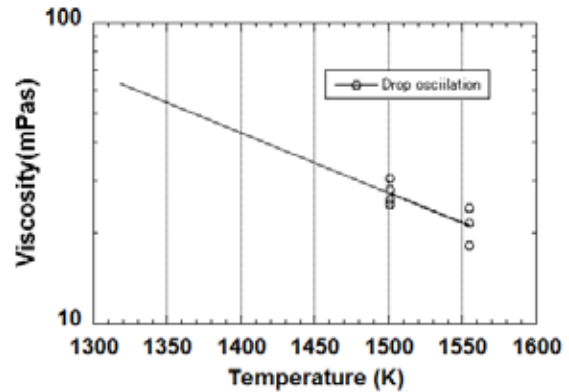


図-9 ZCA 試料の粘性係数

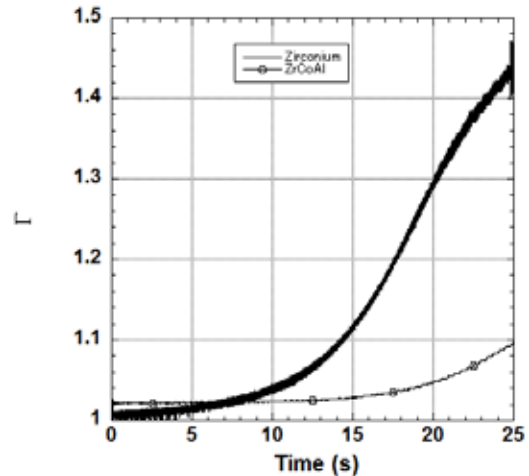


図-10 非軸対称形状の発達の違い:アスペクト比の時間変化の様子

図-10に画像解析から測定した、Zr及びZAC試料(粘性係数約40 mPa·s)の分岐前後のアスペクト比(G)の変化を示す。明らかに、粘性係数が低いZr試料のアスペクト比の増加がZACに比べて早い。実験結果から、高速度カメラによって分岐点後の試料のアスペクト比の時間変化を詳細に捉えることが可能であること、粘性係数の違いが最大半径の発達速度に影響を与えていることが明らかとなり、分岐点を利用した粘性係数測

定への見通しがたった。今後研究を継続して定量的な検討を進めていく予定である。

試料の回転を利用した表面張力および粘性係数測定について研究を行い、以下の結論を得た。

- 分岐点の回転数は理論に一致し、これを用いて表面張力の計測が可能である。試料の回転数計測は、図-3の計測系を用いて1Hzの不確かさで測定可能である。
- 回転法を利用して、ZrCoAl 融体について液滴振動法では測定が困難な粘性係数の高い温度領域の表面張力測定に成功した。
- 分岐点以降、試料変形の発展速度は、粘性係数の影響を受ける。高速度カメラを用いてこの速度を測定することにより、粘性係数が推定可能である。

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

T. Ishikawa, J. Okada, P. -F. Paradis, Y. Watanabe, M. Watanabe, “Surface tension and viscosity measurement of highly viscous melt using a sample rotation”, *Int. J. of Microgravity Sci. Appl.* 32 (2015),320106

T. Ishikawa, J. T. Okada, P.-F. Paradis, Y. Watanabe, M. V. Kumar, M. Watanabe, “Surface tension measurement using sample rotation combined with electrostatic levitation”, *JJAP* 53 (2014), 126601.

[学会発表] (計 10 件)

渡邊勇基, 岡田純平, 石川毅彦, “静電浮遊法を用いた回転変形による高温融体の表面張力測定”, 日本マイクログラフィティ応用学会第28回学術講演会, 姫路 (Nov. 2014) 28H02

石川毅彦, 岡田純平, 渡邊勇基, “静電浮遊法を用いた高温融体粘性係数測定” 日本マイクログラフィティ応用学会第28回学術講演会, 姫路 (Nov. 2014) 28H01
渡邊勇基, 岡田純平, 石川毅彦, 渡邊匡人, “静電浮遊炉におけるZr基合金融体の表面張力測定に対する液滴回転法の適用”, 第35回日本熱物性シンポジウム, C10 (Nov. 2014)

Y. Watanabe, M. Watanabe, V. Kumar, J. Okada, T. Ishikawa, “Measurement of surface tension of molten melts by deformation in rotation using an Electrostatic Levitator”, 10th Asian Microgravity Symposium 2014 Seoul, (Oct. 2014) P50.

石川毅彦, 岡田純平, P.-F. Paradis, M. S. V. Kumar, 渡邊勇基, “静電浮遊法による高温融体の粘性係数測定”, 日本マイクログラフィティ応用学会第27回学術講演会, 東京, 27A05 (Nov. 2013).

渡邊勇基, 今井済, 渡邊匡人, M. S. V.

Kumar, 岡田純平, 石川毅彦, “静電浮遊炉における回転による変形を用いた高温融体の表面張力測定”, 日本マイクログラフィティ応用学会第27回学術講演会, 東京, 27A07 (Nov. 2013).

渡邊勇基, 今井済, 渡邊匡人, 岡田純平, 石川毅彦, “静電浮遊法による液滴の回転を利用した高温融体の表面張力測定”, 第34回日本熱物性シンポジウム, 富山, A221 (Nov. 2013).

T. Ishikawa, J. Okada, M. V. Kumar, P.-F. paradis, Y. Watanabe, “Thermophysical Property Measurements of High temperature Materials using Electrostatic Levitators”, The 10th Asian Thermophysical Properties Conference (ATPC 2013), MoC1-2, Jeju, (Sep. 2013)

C.W. Ryu, D.H. Kang, G.W. Lee, T. Ishikawa, J. Okada, E.S. Park, “Be addition effect on thermophysical property changes of bulk metallic glass-forming alloy measured by electrostatic levitation”, The 20th International Symposium on Metastable, Amorphous and Nanostructured Materials (ISMANAM 2013), 7P4-24 Trino (Jul. 2013)

今井済, 石川毅彦, 岡田純平, V. Kumar, 渡邊匡人, 水野彰敏, “液滴回転法を用いた高温金属融体の表面張力測定”, 日本マイクログラフィティ応用学会第26回学術講演会, 福岡, P32 (Nov. 2012)

[その他]

ホームページ等

<http://www.isas.jaxa.jp/home/iss/lab/ishikawa/index.htm>

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

石川 毅彦 (ISHIKAWA, Takehiko)
宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究所・教授

研究者番号：00371138

(2) 研究分担者

岡田 純平 (OKADA, Junpei)
宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究所・助教

研究者番号：90373282