

ISS 静電浮遊炉を用いた高温融体界面現象の研究 -酸化物・鉄鋼融体の界面張力測定用試料作成-

渡邊匡人（学習院大学）、小野寺健太、田中健大、田口正二郎、芹澤留依、袴田信也、中村藍莉、（学習院大学）後藤弘樹、田中敏宏、中本将嗣（大阪大学）、上野翔也、塚田隆夫（東北大学）、石川毅彦、田丸晴香（JAXA）

Interfacial tension measurements by oscillating drop method for molten steel and oxides interface

Masahito Watanabe¹⁾, Kenta Onodera¹⁾, Kenta Tanaka¹⁾, Seijiro Taguchi¹⁾, Rui Serizawa¹⁾, Shinya Hakamada¹⁾, Airi Nakamura¹⁾, Hiroiki Goto²⁾, Toshihiro Tanaka²⁾, Masashi Nakamoto²⁾, Shoya Ueno³⁾, Takao Tsukada³⁾, Takehiko Ishikawa⁴⁾, Haruka Tamaru⁴⁾

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

²⁾ Osaka University, Yamada-oka, Suita, Osaka 565-0871

³⁾ Tohoku University, Aramaki, Aoba-ku, Sendai, 980-8579

⁴⁾ Japan Aerospace Exploration Agency (JAXA), Tsukuba, Ibaraki, 305-8505

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

Present steel processing, interfacial phenomena between molten steel and oxides in which are usually called slag or mold flux, play important roles in materials design. Therefore, interfacial tension must be known for process controlling. From this requirement, we proposed the interfacial tension measurement technique between molten steel and oxides using the modified oscillating drop method with levitation techniques. The interfacial tension data using traditional technique based on the sessile drop method have been obtained only in temperature at melting temperature of iron due to dissolution of containers and the substrate into molten steel and oxides in higher temperature regions. Our propose technique to obtain temperature dependence of interfacial tension between molten iron and oxides is used a core-shell form droplet including interface between two liquids using the electrostatic levitation, which can achieve the containerless conditions. The measurements perform in International Space Station using the electrostatic levitation furnace (ELF) in KIBO.

Key words; Electrostatic Levitation, Thermophysical Properties, Interfacial tension,

1. はじめに

地上で2つの異なる液体を混合すると、密度差により分離してしまう場合がある。一方、宇宙空間のような微小重力下においては、密度差による分離は起きず2つの液体は完全に混ざり合う。しかし、水と油のような混合しない液体の場合には、微小重力下でも分離し、浮遊した場合には2つの液体が卵のようなコア・シェル形状の液滴になる。これは、2つ液体が分離していたほうが系の自由エネルギーが下がり安定した状態となるためである。このような2液相の分離を維持するためには、液体間の界面形成が必要であり、2液相間での界面自由エネルギー（界面張力）が生成する。この状態で系が安定となるように表面自由エネルギーを下げるには、表面張力の小さい液体が外側（シェル）、表面張力が大きい液体が内部（コア）とならなければならない。このことを利用し、我々は混合しない2液相間の海面

張力の測定を国際宇宙ステーション(International Space Station, ISS)において静電浮遊炉 (Electrostatic Levitation Furnace, ELF)¹⁾を用いて測定をおこなうプロジェクトを進めている²⁾。我々が研究の対象とするのは熔融酸化物と鉄融体間の界面張力である。これは、鉄鋼製造プロセスにおいて、酸化物融体と熔融鉄界面は様々なところで現れ、高品質製品製造のためのプロセス制御に重要な為である。鉄鋼の精錬過程では、脱酸、脱硫で発生するスラグと呼ばれる酸化物融体が熔融鉄の上部に偏析し、酸化物(スラグ)融体・熔融鉄界面が生じる。また、この精錬された鉄を薄板鋼板に加工する連続鋳造プロセスでは、スラグと同様な成分の酸化物融体をモールドフラックスとして熔融鉄の周りを囲み、熔融鉄を薄く伸ばしながら冷却していく。この際にも酸化物(モールドフラックス)・熔融鉄界面が生じる。さらに、鉄鋼材同士の溶接プロセスにおいても、アーク溶解した

溶融鉄プールを酸化物融体（溶接フラックス）が覆い、溶接フラックス・溶融鉄界面が溶接部分の形状制御に重要となっている。このように、酸化物融体と溶融鉄間の界面張力は鉄鋼プロセスの現場では非常に重要であるため、界面張力測定がおこなわれてきた³⁻⁵⁾。しかし、従来の方法では容器の制約から、鉄の融点近傍のみ（1800K）での温度しか測定がおこなえず界面張力の温度変化を知ることはできなかった。そこで、本研究プロジェクトは、ISSにおいてELFを用いて酸化物融体に内包された溶融鉄のコア・シェル液滴を用いて、酸化物・鉄融体の界面自由エネルギーとその温度変化を測定する。界面張力の測定方法は、浮遊液滴の表面振動数から表面張力を測定する液滴振動法を応用したものであり、浮遊したコア・シェル液滴の表面振動数から、シェル部分の液体の表面張力とコア・シェル界面の界面張力を求める。この手法の原理は、1981年にSaffrenら⁶⁾がコア・シェル液滴の振動を解析的に解いた表面振動数と界面張力の関係に基づいている。これまでに数値シミュレーションにおいて、コア・シェル液滴の表面振動から界面張力が得られることは検証してきた。しかし、実際に微小重力環境下で酸化物融体と溶融鉄がコア・シェル液滴形成を確かめる必要があり、さらに酸化物融体と溶融鉄のコア・シェル液滴の表面振動がSaffrenらの解析解と数値シミュレーションの結果と一致するような振動をするかを確かめる必要がある。そこで、航空機の弾道飛行による短時間微小重力環境において、上記について確認をおこなった⁷⁾。さらに、この結果を考慮して、ISS実験用の試料作成をおこなった⁸⁾ので報告する。

2. 短時間微小重力環境での酸化物融体と溶融鉄のコア・シェル液滴形成

コア・シェル液滴の表面振動は、解析解と数値シミュレーションの結果から、2つの振動数をもつことがわかっている。これを実際に確かめるために、Gulfstream G-II型航空機（ダイヤモンドエアサービス（株））に搭載可能な小型電磁浮遊炉(Parabolic Flight Levitation Experimental Facility: PFLEX-II)を作製し、短時間微小重力環境で鉄と酸化物を溶融・浮遊しコア・シェル液滴の表面振動計測実験をおこなった。PFLEX-IIは、航空機実験の限られた時間内で最大回数の実験をおこなえるように最大16個の試料を装填可能なマガジン、およびBN製試料台を雰囲気ガス制御可能なSUS製チャンバー内に備えている。チャンバー上部に備え付けられたハーフミラーによって

高周波コイル内で浮遊した試料を上部から高速度カメラで観察し、同時に2色放射温度計を用いて試料温度を測定した。溶融金属の表面張力は活性元素である酸素の影響を受けるため、チャンバー内の酸素分圧をジルコニア式酸素計を用いて測定した。なお、酸素分圧を測定するためにガスフローさせる必要があり、チャンバー内を加圧状態にすることで強制的なガスフローをおこない酸素計にガスを供給して酸素分圧を計測した。弾道飛行による微小重力開始とともに試料が浮遊した後、高周波電源の出力を低下させることで電磁力を抑制した状態で試料上部を観察した結果Fig.1に示す⁷⁾。酸化物融体と溶融鉄試料に市販の溶接棒(Fe/IL-flux)を用いて実験をおこなった。Fig.1から一様に酸化物層が溶融鉄表面に形成することがわかる。この結果より微小重力下では、酸化物融体が金属融体を覆い二重液滴の形成が可能であることを確認した。このFig.1に示した酸化物融体と溶融鉄のコア・シェル液滴の表面振動を計測した結果から得た表面振動のパワースペクトラムをFig.2に示す⁷⁾。この結果より、Areaと R_c に26.2Hzと41.1Hzの2つのピークが現れていることがわかる。この2つの振動数を用いて界面張力の算出がおこなえるが、今回の実験では実験後の試料の回収に失敗してしまい酸化物層の厚みを計測できなかったため、表面張力の値の算出まではできなかった。しかし、この結果より、金属/酸化物からなるコア・シェル液滴でも2つの振動数で表面振動を確認できた。

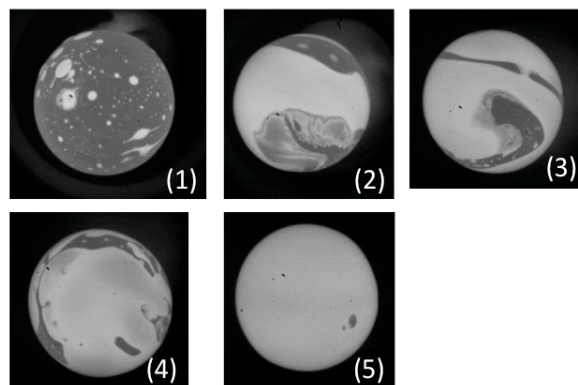


Fig.1 Photograph of core-shell droplet formation by molten oxide and Fe melt under microgravity conditions. White part is molten oxides and dark part is Fe melts.

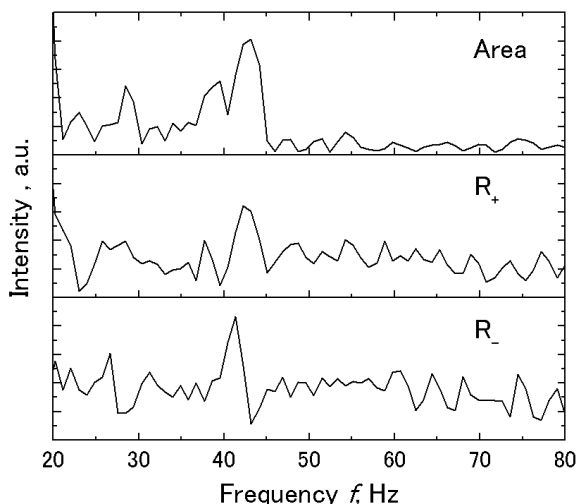


Fig.2 Power spectrum of surface oscillation amplitude with time varying on core-shell droplet by Fe/IL flux; (Top) Area; cross-sectional are of droplet, (Middle) R_+ ; sum of long axis and short axis, (Bottom) R_- ; difference between long axis and short axis.

3. ISS での測定用試料の作成

以上の航空機実験の結果より酸化物融体と熔融鉄が微小重力下でコア・シェル液滴を形成し、2つの表面振動数で液滴振動することが確認できたので、ISSでの軌道上実験を実際におこなう試料の作成をおこなった。静電浮遊炉 ELF は 2015 年 8 月に HTV-5 により ISS へ輸送され現在組み立て作業をおこなっており、実際に実験を開始するのは 2016 年 3 月を予定している。最初の実験では、酸化物のみの物性値を取得することを目指し、第 2 期での実験で酸化物融体と熔融鉄間の界面張力を測定する計画である。このため、酸化物単体の試料と第 2 期での実験の準備として溶接棒の酸化物の組成に近い Al_2O_3 - CaO - MnO - Fe_2O_3 - TiO_2 の酸化物と鉄のコア・シェル試料を作成し、試料カートリッジに封入した (Fig.3)。試料カートリッジには 15 個の試料が搭載でき、これを 3 セット作成し、2015 年 12 月 4 日にケネディ宇宙センターから Orbital-ATK 社の Cgynus-4 により ISS へ輸送された。ISS に輸送された試料の一覧を Table 1 に示す⁸⁾。

4. まとめ

ISS での静電浮遊技術を利用し熔融鉄を内包した酸化物融体を浮遊し、コア・シェル液滴の表面振動から界面張力とその温度依存性を測定するプロジェクトの ISS 実験に向けた準備状況を述べた。航空機を利用した微小重力実験から酸化物融体と熔融鉄がコア・シェル液滴を形成することを明らかにし、

このコア・シェル液滴の表面振動が 2 つの振動数で振動していることを明らかにできた。この成果に基づき、第 1 期の実験試料を作成し ISS へ搭載完了した。2016 年 3 月の軌道上実験の開始を待つ間に、数値シミュレーションを援用し、コア・シェル液滴のより詳細な解析方法を検討し、界面張力の算出に及ぼすシェル相の粘度の影響を検討していく。この界面張力導出のアイデアは、これまでに国際研究協力チーム (International Topical Team) での議論や、研究班ワーキングチームでおこなってきた浮遊液滴の解析の検討に基づいており、微小重力環境実験について十分な議論を重ねたものである。このように界面を有した液滴を試料とすることで、界面張力を知るだけでなく、これまで観測することのできなかつた液滴の振る舞いを調べる事が可能となり、浮遊技術の新たな展開にもつながると期待している。

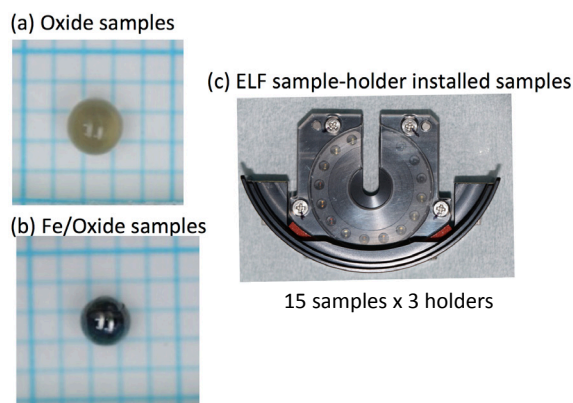


Fig. 3 Samples and sample holder for on-orbital experiments by ELF in ISS, KIBO. (a) Oxide sample, (b) Fe/oxide samples and (c) ELF sample holder.

Table 1 Sample list for first series on-orbital experiments

| | | SiO2 | Al2O3 | CaO | MgO | MnO | TiO2 | FeO |
|----|------------------------|------|-------|------|-----|------|------|-------|
| ① | Refining Slag_1 | 10.0 | 40.0 | 50.0 | | | | |
| ② | Refining Slag_2 | 10.0 | 35.0 | 55.0 | | | | |
| ③ | Refining Slag_3 | 10.0 | 30.0 | 60.0 | | | | |
| ④ | Refining Slag_4 | 14.0 | 36.0 | 50.0 | | | | |
| ⑤ | Refining Slag_5 | 10.0 | 44.0 | 46.0 | | | | |
| ⑥ | Refining Slag_6 | 20.0 | 30.0 | 50.0 | | | | |
| | Welding Flux | | | | | | | |
| 7 | | 25.0 | | 7.0 | | 23.0 | 18.0 | 27.0 |
| 8 | Ilmenite type | 36.0 | | 6.0 | | 21.0 | 15.0 | 22.0 |
| 9 | | 25.0 | | 7.0 | | 20.0 | 18.0 | 30.0 |
| 10 | High TiO2 Type | 27.0 | | 7.0 | | 13.0 | 53.0 | |
| 11 | | 24.0 | | 3.0 | | 9.0 | 64.0 | |
| 12 | | 22.0 | | 12.0 | | 21.0 | 45.0 | |
| 13 | Fe·FeO | | | | | | | 100.0 |
| 14 | Fe·Ilmenite-type Flux | 25.0 | | 7.0 | | 20.0 | 18.0 | 30.0 |
| 15 | Fe·High TiO2-type Flux | 22.0 | | 12.0 | | 21.0 | 45.0 | |

謝辞

本プロジェクトは、本稿の筆者の他に、小澤俊平准教授（千葉工業大学）、福山博之教授（東北大学多元物質科学研究所）、Prof. Joonho Lee (Korea Univ.), Prof. Andreas Meyer, Prof. Florian Kargle (DLR), Prof. Robert Hyres, Dr. Jonghyun Lee (Massachusetts Univ.), Prof. Anders Jarfors, Dr. Taishi Matsushita (Jönköping Univ.)などの国内外のメンバーの協力のもとに進めており関係各位に感謝いたします。

【参考文献】

- 1) H. Tamaru, T. Ishikawa, J. T. Okada, Y. Nakamura, H. Ohkuma, S. Yukizono, Y. Sakai, T. Takada, *Int. J. Microgravity Appl.*, 32 (2015) in press (in Japanese).
- 2) M. Watanabe, T. Tanaka, T. Tsukada, T. Ishikawa, H. Tamaru and A. Mizuno: *Int. J. Microgravity Appl.*, 32(1) (2015) 320102 (in Japanese).
- 3) K. Ogino, *Tetsu-to-Hagane*, 61 (1975) 2118 (in Japanese).
- 4) T. Koshida, T. Ogasawara, H. Kishidaka, *Tetsu-to-Hagane*, 67 (1981) 85 (in Japanese).
- 5) K. Ogino, K. Suetaki, R. Tsukada, A. Adachi, *Tetsu-to-Hagane*, 52 (1966) 135 (in Japanese).
- 6) M. Saffren, D. Ellmann, W. K. Rhim: *Proc. 2nd international colloquium on drops and bubbles*, (1981) 7.
- 7) K. Onodera, K. Tanaka, Y. Ishii, Y. Yamada, S. Nishikoori, H. Goto, M. Watanabe, A. Mizuno and T. Tanaka: submitted in *Int. J. Microgravity Appl.*
- 8) M. Watanabe, K. Onodera, K. Tanaka, S. Taguchi, R. Serizawa, S. Hakamada, A. Nakamura, A. Mizuno, S. Ueno, T. Tsukada, H. Gothoh, T. Tanaka, H. Tamaru, T. Ishikawa: submitted in *Int. J. Microgravity Appl.*