

研究報告

コア・シェル型液滴の界面自由エネルギー

学習院大学 理学部物理学科 渡 邊 匡 人
 学習院大学 理学部物理学科 小野寺 健 太
 学習院大学 理学部物理学科 水 野 章 敏
 東北大学 大学院工学研究科 塚 田 隆 夫
 東北大学 大学院工学研究科 上 野 翔 也

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、空間に浮かせた場合には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。このため、Fig. 1のようなコア・シェル液滴の系全体での表面自由エネルギーは、液体1と液体2の表面張力をそれぞれ σ_1 と σ_2 ($\sigma_1 < \sigma_2$) として、界面自由エネルギーを σ_{12} とすると、

$$G_S = 4\pi R_0^2 \sigma_1 + 4\pi R_i^2 \sigma_{12} \quad (1)$$

(R_0 と R_i はコア・シェル液滴の外半径と内核半径) と表せる。

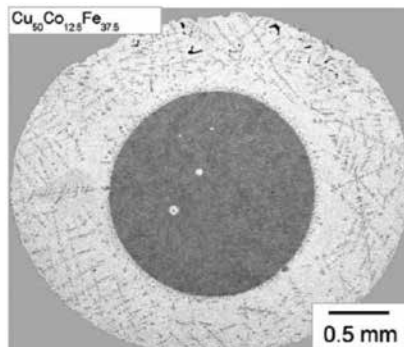


Fig.1 微小重力下で二相分離してコアシェル液滴となった CuCo 合金液体
 (ドイツ航空宇宙センター I. Egrý 教授提供)

この2液相間の界面自由エネルギーを推定する方法は現在なく、実測でしか値を得ることができない。(非常に大胆な近似では、2つの液体の表面張力の差 $\sigma_{12} = \sigma_2 - \sigma_1$ で推定できる。)このような2液相間の界面自由エネルギーは、界面活性剤の設計や生体内での様々な現象解明などにおいて重要であるが、本研究ではこのような室温での2液相界面自由エネルギーが対象ではなく、1000℃以上の高温液体での界面自由エネルギーを求めることが目的である。これは、鉄鋼製造プロセスにおいて高温液体の界面が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溶融鉄の上部に偏析し、酸化物(スラグ)・溶融鉄界面が生じる。また、この精錬された鉄を薄板鋼板に加工する連続铸造プロセスでは、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溶融鉄の周りを囲み、溶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)・溶融鉄界面が生じる。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・溶融鉄の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・溶融鉄間の界張自由エネルギーは鉄鋼プロセスの現場では非常に重要であるため、界面自由エネルギー測定がおこなわれてきた¹⁻³⁾。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自由エネルギーの温度変化を知ることはできなかった。

そこで我々は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)⁴⁾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プロジェクトを立ち上げ、その準備をおこなっている⁵⁾。このコア・シェル液滴の界面を利用して界面自由エネルギーを測定する方法は、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⁶⁾、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⁷⁾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自由エネルギー(界面張力)の関係に基づいている。しかし、この手法を用いて実際に界面張力を測定した例はなく、まずSaffrenらが解析的に求めた浮遊したコア・シェル液滴の表面振動と界面自由エネルギーの関係を検証する必要がある。そこで、本研究では、数値計算によりコア・シェル液滴の表面振動と界面自由エネルギーの関係の検証をおこなった。さらに、実際にこの手法を用いて界面自由エネルギーの測定をおこなう際の条件の最適化もおこなった。また、この数値シミュレーションの結果を、航空機を用いた短時間微小重力環境での実験により確認した。

2. コア・シェル液滴の表面振動

単一の液相からなる非粘性液滴の表面振動数 ω_0 と表面張力 σ の関係は、Rayleigh により

$$\omega_0^2 = \frac{8\sigma}{\rho R^3} \quad (2)$$

となることが解析的に求められている⁸⁾。これは、液滴を非圧縮性流体と仮定し、液滴と外界（気相）との圧力差 ΔP を表面張力 σ を使って $\Delta P = -2\sigma/R$ として、液滴内の運動方程式を速度ポテンシャル $\psi(\gamma, \theta, \phi, t)$ を使って、（流体密度 ρ 、真球時の半径 R ）

$$\rho \frac{\partial^2 \psi}{\partial t^2} = \frac{\sigma}{R} \left(2 \frac{\partial \psi}{\partial r} + \frac{\partial}{\partial r} \hat{L} \psi \right) \quad (3)$$

$$\hat{L} = \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} \quad (4)$$

と表し、液滴表面は振動数 ω_0 で微小振幅する調和振動とし、速度ポテンシャルを

$$\psi(r, t) = A_0 e^{-i\omega_0 t} r^l Y_l^m(\theta, \phi) \quad (5)$$

と仮定し、(3) 式が成り立つ条件より (1) 式の表面振動数と表面張力の関係が得られる。（ (l, m) は振動モード： $l=2$ 、 $Y_l^m(\theta, \phi)$ は球面調和関数）この (1) 式の関係は、浮遊技術の進展により多くの液体で成立つことが確認されており、この式を用いて表面張力の測定がおこなわれている。実際の測定では、 $R^3 \rho = 3M/4\pi$ の関係から液滴の質量 M を予め知っておくことで表面振動数 ω_0 の測定のみで表面張力 σ を容易に得ることができる。

一方、コア・シェル液滴の表面振動について、Saffren ら⁷⁾ は上記の解析を基本とし、コア / シェル界面とシェル / 外界（気相）の 2 つの界面での境界条件を用い以下のように解析した。コア相、シェル相と外界での速度ポテンシャル $\psi_1(r, t)$, $\psi_2(r, t)$, $\psi_3(r, t)$ は、

$$\begin{aligned} \psi_1(r, t) &= [A(t)r^l + B(t)r^{-(l+1)}] Y_l^m(\theta, \phi) \\ \psi_2(r, t) &= A_2(t)r^l Y_l^m(\theta, \phi) \\ \psi_3(r, t) &= B_3(t)r^{-(l+1)} Y_l^m(\theta, \phi) \end{aligned} \quad (6)$$

で表わせ、係数 A_2 , B_3 は、

$$A_2(t) = A(t) - \frac{l+1}{l} B(t) R_1^{-(2l+1)}, B_3(t) = B(t) - \frac{l}{l+1} R_2^{(2l+1)} \quad (7)$$

となる。（ R_1 と R_2 は真球時のコア半径とシェル半径）コア / シェル界面とシェル / 外界（気相）の 2 つの界面での界面張力をそれぞれ σ_{12} と σ_2 として、2 つの界面がある場合の (3) 式が成り立つ速度ポテンシャルの条件を求めると、以下のような表面振動数 ω_{\pm} が得られる。

$$\omega_{\pm}^2 = K_{\pm} (W/J) \quad (8)$$

ここで,

$$K_{\pm} = \frac{1}{2} \left(\frac{\sigma m_1}{\tau^3} + \frac{m_2 \tau^3}{\sigma} \right) \pm \sqrt{\frac{1}{4} \left(\frac{\sigma m_1}{\tau^3} - \frac{m_2 \tau^3}{\sigma} \right)^2 + 1} \quad (9)$$

$$\frac{W}{J} = \frac{\omega_2^2 \tau^8}{\sigma} \frac{1}{(1 + \Delta\rho) \tau^{10} + (2/3) \Delta\rho} \quad (10)$$

であり, (9) 及び (10) 式中の各パラメータは次式で与えられる.

$$\tau = \sqrt{\frac{R_2}{R_1}}, \quad \sigma = \sqrt{\frac{\sigma_2}{\sigma_{12}}}, \quad \Delta\rho = \frac{3}{5} \frac{\rho_1 - \rho_2}{\rho_2} \quad (11)$$

$$m_1 = (1 + \Delta\rho) \tau^5 - \Delta\rho \tau^{-5}, \quad m_2 = \frac{3}{5} \tau^5 + \frac{2}{5} \tau^{-5} \quad (12)$$

(10) 式中の ω_2 は, シェル相の液体だけからなる液滴 (密度 ρ_2 , 表面張力 σ_2 , 半径 R_2) に関する Rayleigh の表面振動数 ((1) 式) である. (8) – (10) 式からわかるようにコア・シェル液滴の表面振動は, シェル相の表面振動とコア/シェル界面振動の 2 つの振動が重なりあったものになることがわかる. つまり, 液滴のコア半径とシェル半径, コア液体とシェル液体の密度がそれぞれわかっているならば, コア・シェル液滴の 2 つの表面振動数を測定して, コア/シェル液体間の界面張力 σ_{12} とシェル液体の表面張力 σ_2 を同時に得ることができる. 液滴の表面振動数は, 浮遊法を用いて浮遊した液滴を高速度カメラで撮影し, その径と面積の時間変化を計測して得ることができる. この浮遊法を用いた液滴表面振動の測定方法と, 上記したコア・シェル液滴の表面振動とコア / シェル界面張力の関係を用いて, 混じり合わない 2 相の液体の界面自由エネルギー (界面張力) が得られるはずである. しかし, 実際にコア・シェル液滴の表面振動測定から界面自由エネルギーを求めた例はなく, 次に示すような数値シミュレーションにより, コア・シェル液滴の表面振動と界面張力の関係を検証した.

3. コア・シェル液滴の表面振動の数値シミュレーション⁹⁾

前述したコア・シェル液滴の表面が (8) – (10) 式のような 2 つの振動数で振動するのを確認するために, 以下のような数値シミュレーションをおこなった. 重力を含む外力の影響は無いものとして, Fig.2 に示すように, 気相 (密度 ρ_0 , 粘度 μ_0) 中に浮遊する密度 ρ_1 , 粘度 μ_1 のコア相と密度 ρ_2 , 粘度 μ_2 のシェル相からなる液滴の $l=2$ モードの軸対称振動についてシミュレーションした. ここで, 平衡時 (球形状) のコア相及びシェル相の半径はそれぞれ R_1 及び R_2 であり, コア相 / シェル相界面張力及びシェル相表面張力はそれぞれ σ_{12} 及び σ_2 である. 解析に当り, 円筒座標系を適用し,

$l=2$ モードの振動であることを考慮して系は軸対称、かつ $z=0$ の面に対して鏡像対称を仮定した。また、コア・シェル液滴のシェル相 / コア相界面及びシェル相表面形状の解析法として VOF (Volume of Fluid) 法を使用し数値シミュレーションをおこなった。数値シミュレーションは、有限体積法に基づいた流体解析ツールボックス OpenFOAM を利用しておこなった。数値シミュレーションの結果得られるシェル相表面形状の振動波形を高速フーリエ変換 (FFT) し、2つのピーク周波数 ω_+ 及び ω_- を用いて (8) - (10) 式から界面張力 σ_{12} を求めた。さらに、この ω_+ 及び ω_- に及ぼすシェル相 / コア相半径比 R_2/R_1 、およびシェル相 / コア相粘度比 μ_2/μ_1 の影響も検討した。Table 1 に数値シミュレーションに使用した熱物性値と幾何学パラメーターを示す。この物性値を用いて初期形状 $(b_1/a_1)_0 = (b_2/a_2)_0 = 1.2$ として数値計算をおこなった。Fig.3 にシミュレーションの結果を示す。各図は、 r 軸上におけるシェル相 / コア相界面及びシェル相表面の振動の無次元振幅 $(b_1 - R_1)/R_1$ 及び $(b_2 - R_2)/R_2$ の経時変化を示す。

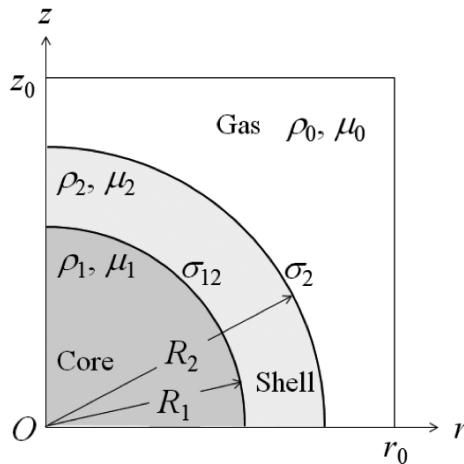


Fig.2 数値シミュレーションに用いた座標系とパラメーター

この計算では、コア相の粘度と半径は一定にしてシェル相の粘度 μ_2 と半径 R_2 を増加させて $\mu_2/\mu_1 = 3.9, 19, 39$ および $R_2/R_1 = 1.2, 1.3, 1.8$ と変化させている。Fig.3 の結果で無次元振幅が各条件で変化しているのは、コア・シェル液滴のシェル相が占める体積割合の増加により、シェル相の粘度の影響が大きくなり、シェル相 / コア相界面及びシェル相表面の振動振幅の減衰率が大きくなるためである。また、Table 1 に示すように、シェル相 (溶融スラグ) / コア相 (溶融鉄) の界面張力 σ_{12} がシェル相表面張力 σ_2 より大きい場合、 R_2/R_1 が比較的小さい場合はシェル相 / コア相界面の振動が支配的となり、シェル相表面の振動はシェル相 / コア相界面の振動に同期した振動挙動を示す。

Table 1 数値シミュレーションに用いた物性値と形状パラメータ

Physical properties	Molten iron	Molten slag
Density ρ_i [kg/m³]	7.03×10³	2.85×10³
Viscosity μ_i [mPa.s]	5.50	21.4, 107, 214
Surface tension σ_i [N/m]	1.76	0.450
Interfacial tension σ_{12} [N/m]	1.30	
Geometrical parameters		
Equilibrium radius R_i [mm]	0.549, 0.618, 0.706, 0.760, 0.823	0.988
Initial drop shape $(b_i/a_i)_0$ [-]	1.20, 1.50	

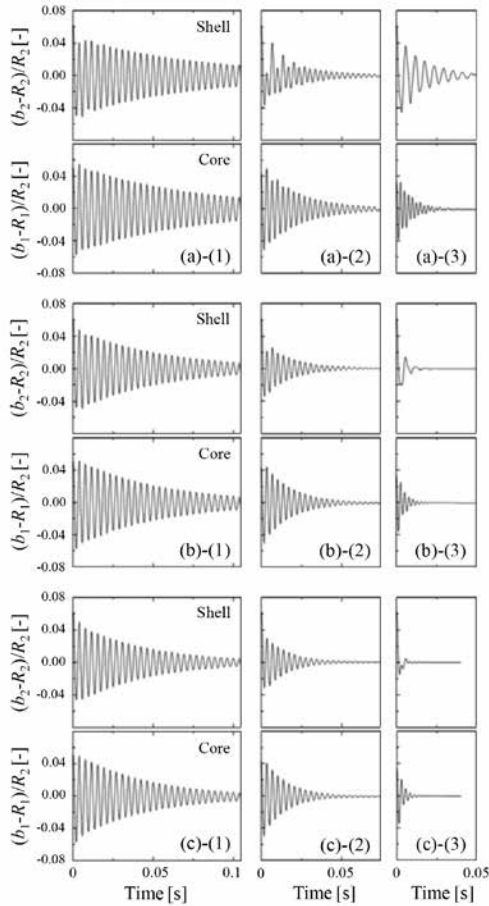


Fig.3 コア・シェル液滴の無次元化表面振動。Shell はシェル相の表面振動, Core は界面振動を示す。粘度比を (a)3.9, (b)19, (c)39 とし, 半径比を (1)1.3, (b)1.4, (c)1.6 と変えた結果

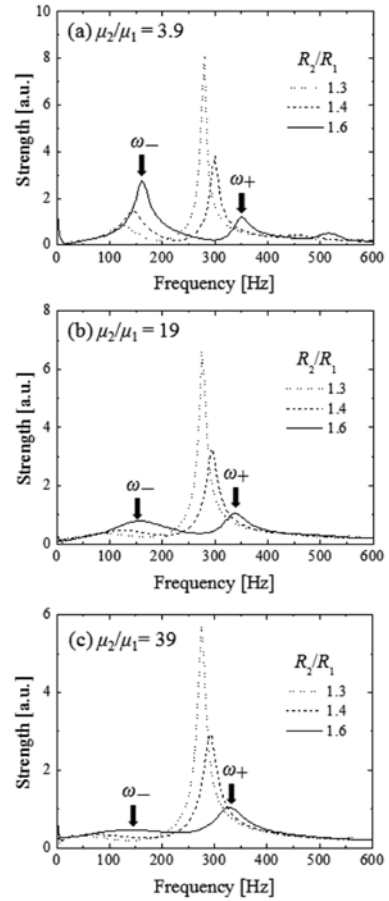


Fig.4 Fig.3 の表面振動を FFT 解析して得たパワースペクトラム。粘度比と半径比は Fig.3 と同様

しかし、 R_2/R_1 が増加すると、シェル相/コア相界面とシェル相表面は、それぞれの界面、表面張力に応じた振動挙動を示すようになる。なお、 μ_2/μ_1 の増加に伴い速度境界層の厚さが増加するため、界面張力の大きいシェル相/コア相界面の影響は、より大きな R_2/R_1 にまで及ぶこともわかる。このFig.3に示した無次元振動をFFT解析した結果をFig.4に示す。Fig.4もFig.3と同様に、粘度比 $\mu_2/\mu_1=3.9, 19, 39$ に関して、表面振動周波数 ω_+ 、 ω_- に及ぼすシェル相/コア相半径比 R_2/R_1 の影響を示している。いずれの粘度比においても、 R_2/R_1 の増加に伴い、 ω_+ （高周波側）から ω_- （低周波側）の振動が支配的となり、特定の R_2/R_1 の条件で2つの振動周波数ピークを容易に分離・認識できることがわかる。この ω_+ 、 ω_- から(8)–(10)式を使ってシェル相/コア相界面張力の値 σ_{12} を求めた。Fig.4から ω_+ 、 ω_- は、 μ_2/μ_1 と R_2/R_1 によって変化することがわかるので、 σ_{12} も条件により変化する。数値シミュレーションでは、 σ_{12} には一定値1.30N/mを入力しているため、この値からずれるのはシェル相の粘性の影響であり、実際の実験ではこの粘性の影響を受けない R_2/R_1 条件を探す必要がある。そこで、Fig.4の ω_+ 、 ω_- から得られた σ_{12} と数値シミュレーションの入力値 $\sigma_{12}^{\text{sim}}=1.30\text{N/m}$ との偏差 $[(\sigma_{12}^{\text{num}}-\sigma_{12}^{\text{sim}})/\sigma_{12}^{\text{sim}}]\times 100$ をFig.5に示す。Fig.5の結果より、 R_2/R_1 の増加に伴い、シェル相の粘性の影響により偏差が大きくなることがわかる。また偏差がほとんどない条件は、 $R_2/R_1=1.3$ であることがわかる。つまり、この熔融鉄と熔融酸化を用いて、コア・シェル液滴の表面振動から測定するためには、コア相/シェル相の半径比を1.3になるように設定する必要がある。またこのように設定することでシェル相の粘性の影響を受けずに、界面張力 σ_{12} の値を得られることがわかった。

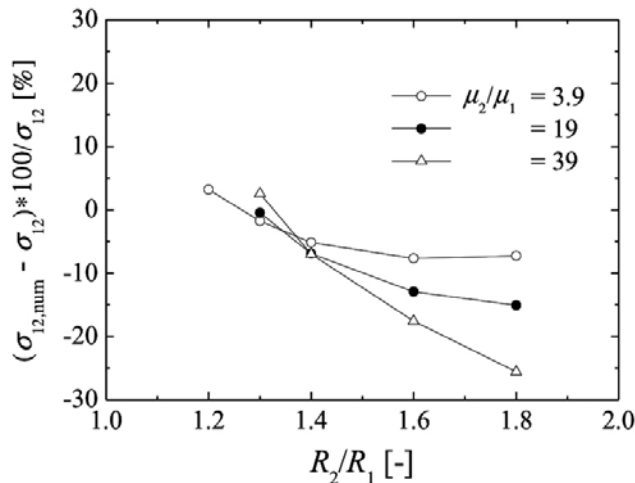


Fig.5 Fig.4の結果から得られた界面張力の値とシミュレーションに入力した値との偏差。粘度比と半径比は、Fig.3とFig.4と同様。

4. 航空機による短時間微小重力環境でのコア・シェル液滴の表面振動の計測¹⁰⁾

これまでに述べてきたコア・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、 ω_+ 、 ω_- の2つの振動数をもつことがわかった。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。Fig.6 に今回作成した PFLEX- II を航空機に搭載した様子を示す。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。

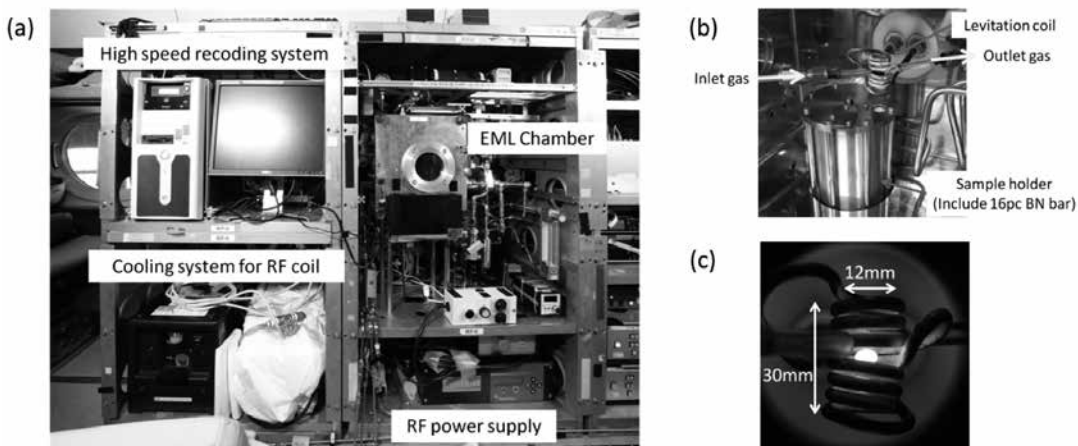


Fig.6 航空機による短時間微小重力実験に用いた小型電磁浮遊装置 (PFLEX-II).

(a) G-II 航空機に搭載した様子, (b) 電磁浮遊コイルと試料マガジン（16 個の試料を搭載可能）, (c) 電磁浮遊コイル内で実際に浮遊している溶融鉄 / 酸化物融体.

試料は、市販されている被覆アーク溶接棒を用い、電磁浮遊装置の BN 試料台に装填可能にするために 6.6mm に切断して使用した。被覆アーク溶接棒は芯材の Fe の周りに酸化物粉末を圧粉体として付着させたものである。酸化物はイルミナイト系フラックス (IL flux) と呼ばれるもので、 Fe_2O_3 と TiO_2 を多く含む $\text{CaO}+\text{Al}_2\text{O}_3$ 基の酸化物である。

この Fe/IL flux 試料を用いることで、微小重力下でコア・シェル液滴を得ることに成功した。今回得られた Fe/IL flux の試料側面画像から液滴断面積 A_{area} 、X 軸と Y 軸方向の半径長さ R_x 、 R_y の和 R_+ と差 R_- の時間変化を抽出し、高速フーリエ変換によって得られた周波数スペクトルを Fig. 7 に示す。(8) – (10) 式の 2 つの表面振動数のピークが $\nu_+ = 41.1\text{Hz}$ と $\nu_- = 26.2\text{Hz}$ に存在していることがわかる。しかし、航空機実験による短時間微小重力環境では液滴振動の計測時間が短いためピーク強度が小さい。ISS での長時間微小重力環境では、液滴振動を長時間計測可能なので鮮明なピークが得られることが期待される。

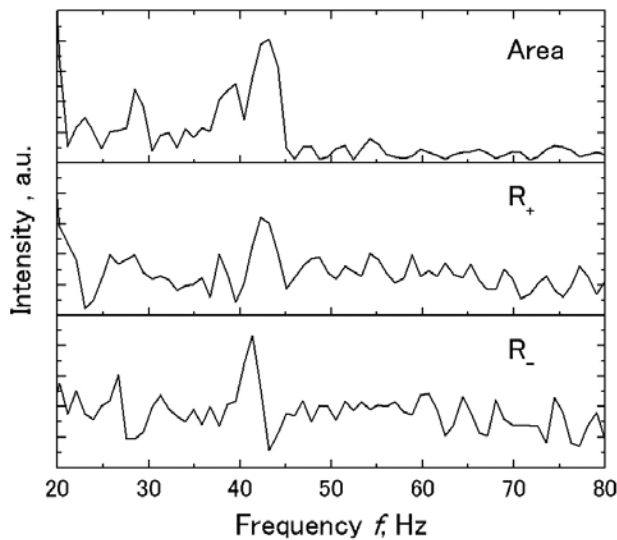


Fig.7 短時間微小重力実験で得られた Fe/IL flux コアシェル液滴の表面振動のパワースペクトラム。Area は液滴の断面積、 R_+ は X 軸半径と Y 軸半径の和、 R_- は X 軸半径と Y 軸半径の差。Area と R_+ に 26.2Hz と 41.1Hz のピークが現れている。

この結果より、金属 / 酸化物からなる 2 重液滴でも (8) – (10) 式のような 2 つの振動数で表面振動をすることが確認できた。この 2 つの振動数を用いて Fe/IL flux の界面張力の算出を行なった。界面張力算出に際し、2 重液滴の試料外径が必要となるが、今回の実験では浮遊した試料を外径測定可能な状態で回収をすることができなかった。そこで、内殻に相当する Fe 球の半径を浮遊前の試料外寸から求め $R_- = 2.8\text{mm}$ を得た。そして、Fe 球半径を基準にシェル相の厚さを $0.1\text{mm} \sim 1.5\text{mm}$ と仮定して外径半径を概算した。また、IL flux の密度は既知ではないので 3000 、 3600 、 4200kg/m^3 と仮定した。Fe の密度を 7041kg/m^3 ¹¹⁻¹²⁾ として Fe の融点である 1808K での界面張力 σ_{12} を算出した。Fig. 8 に半径比に対する算出した界面張力 σ_{12} とシェル相の表面張力 σ_2 (IL Flux の表面張力) を示す。外径の厚さを取得できなかったため、参考値ではあるが、Fe/IL flux の界面張力値 σ_{12} はおよそ $0.7 \sim 1.1\text{N/m}$ の範囲にあると考えられる。また、シェル相の密度を変化させて σ_{12} と σ_2 を算

出しているため、 σ_2 は密度により値が変化しているが、 σ_{12} はシェル相の密度にあまり影響を受けていないことがわかる。Saffren ら⁷⁾の解析結果から、液滴振動法による界面張力測定では密度差による界面張力値への影響が心配されたが、本実験によりコア・シェル液滴を用いた液滴振動法による界面自由エネルギー測定ではコア相とシェル相の密度差の影響を受けにくいことが確かめられた。以上の結果から、国際宇宙ステーションにおける静電浮遊炉を用いて酸化物融体と溶融鉄のコア・シェル液滴を用いた酸化物・鉄融体の界面自由エネルギー（界面張力）とその温度変化の測定が、実現可能であることを確認できた。

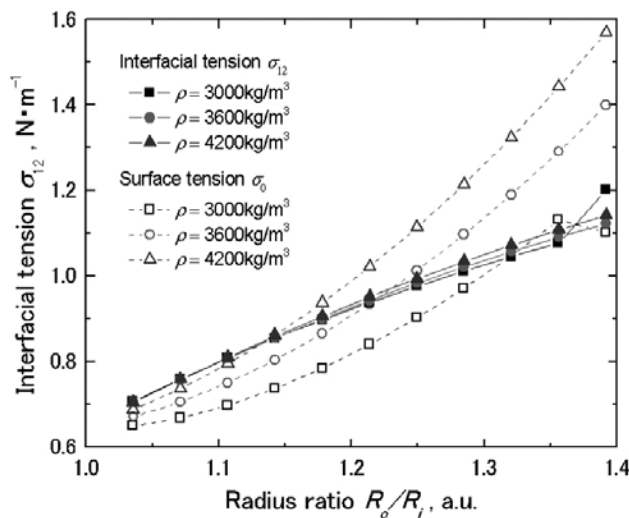


Fig.8 Fig.7の結果より求めた Fe/IL flux 界面張力 と IL flux の表面張力。シェル相半径と IF flux の密度が不明のため、それぞれを変えて算出している。はシェル相の IL flux の密度にはあまり依存していないことがわかる。

5. まとめ

本研究は、微小重力環境で溶融鉄 / 溶融酸化物からなるコア・シェル液滴の表面振動計測による溶融鉄 / 酸化物融体の界面自由エネルギー測定の可能性を、数値シミュレーションと航空機による短時間微小重力実験で確かめる目的でおこなった。それぞれの結果から、コア・シェル液滴の表面振動計測から溶融鉄 / 酸化物融体の界面自由エネルギー（界面張力）を測定できることを明らかにした。また、最適なコア・シェル液滴の形状は、コア相の半径とシェル相の半径比が 1.3 であることも明らかにした。この形状のコア・シェル液滴の表面振動を計測することでシェル相の粘度に影響を受けずに界面自由エネルギーの測定ができることを明らかにした。本研究成果に基づき、国際宇宙ステーションでの測定に向けた試料作成と解析方法の精密化を今後進めていく。

謝辞

溶融鉄と酸化物融体の界面について、いつも有意義な議論をしていただいている大阪大学 田中敏宏教授、千葉工業大学 小澤俊平准教授に感謝いたします。本研究のうち、航空機による短時間微小重力実験は宇宙航空研究開発機構（JAXA）の支援を受けておこなったもので、ここに感謝の意を表します。また、航空機実験に協力いただいた、学習院大学 田中健大、石井友梨香、山田好一、大阪大学 錦織創太、後藤弘樹、千葉工業大学 工藤裕、西村大の諸氏に感謝いたします。

参考文献

- 1) K.Ogino: Kouon Kaimen Kagaku, Agne Gijutsu Center Inc., Tokyo, 2008 (in Japanese).
- 2) H. Sun, R. Ito, K. Nakashima and K. Mori: Tetsu-to-Hagane, 81 (1995) 888 (in Japanese).
- 3) H. Sun, N. Yoneda, K. Nakashima and K. Mori: Tetsu-to-Hagane, 83 (1997) 1 (in Japanese).
- 4) H. Tamaru, T. Ishikawa, J. T. Okada, Y. Nakamura, H. Ohkuma, S. Yukizono, Y. Sakai and T. Takada: Int. J. Microgravity Appl., 32(1) (2015) 320104 (in Japanese).
- 5) M. Watanabe, T. Tanaka, T. Tsukada, T. Ishikawa, H. Tamaru and A. Mizuno: Int. J. Microgravity Appl., 32(1) (2015) 320102 (in Japanese).
- 6) I. Egry, L. Ratke, M. Kolbe, D. Chatain, S. Curiotto, L. Battezzati, E. Johnson and N. Pryds: J. Mater. Sci., 45 (2010) 1979.
- 7) M. Saffren, D. Ellmann and W. -K. Rhim: Proceedings of the 2nd International Colloquium on Drops and Bubbles, 82-7, Monterey, United States, Nov. 1981, 7.
- 8) Lord Rayleigh: Proc. R. Soc. London 29(1879) 71.
- 9) S. Ueno, M. Kubo, T. Tsukada, K. Sugioka and M. Watanabe: Int. J. Microgravity Appl., 32(4) (2015) (in printing).
- 10) K. Onodera, K. Tanaka, Y. Ishii, Y. Yamada, S. Nishikoori, H. Goto, M. Watanabe, A. Mizuno and T. Tanaka: Int. J. Microgravity Appl., 32(4) (2015) (in printing).