

# Mesure de tension de surface de métaux à l'état liquide par lévitation aérodynamique.

## Surface tension measurement of liquid metals by aerodynamic levitation.

Dylan LE MAUX\*, Mickaël COURTOIS, Thomas PIERRE, Philippe LE MASSON

Univ. Bretagne Sud, UMR CNRS 6027, IRDL, F-56100 Lorient, France

\*(auteur correspondant : dylan.le-maux@univ-ubs.fr)

**Résumé** – Dans le cadre général de la caractérisation des métaux liquides, un dispositif expérimental, qui a déjà permis de mesurer la masse volumique de métaux fondus, est cette fois-ci présenté pour la mesure de la tension de surface. La méthode utilisée est celle de la goutte oscillante validée sur du fer pur à différents niveaux de température entre 1 773 K et 2 230 K. Une nouvelle méthodologie permettant de limiter la résonance de l'échantillon liquide au seul mode 2 par l'ajout d'un jet de gaz latéral sera présentée et discutée.

**Mots-clés** : Tension de surface ; Métaux liquides ; Lévitation aérodynamique ; Goutte oscillante.

**Abstract** – The presented study is a part of the general topic of liquid metals characterization. An experimental apparatus, which already worked for the density measurements, is now dedicated to the surface tension measurement. The used method is the oscillating drop, tested and validated on pure iron and in the following temperature range 1 773 K – 2 230 K. A new methodology allowing the resonance of the liquid sample to be limited to mode 2 by the addition of a lateral gas jet will be presented and discussed.

**Keywords**: Surface tension; Liquid metals; Aerodynamic levitation; Oscillating drop.

### Nomenclature

#### *Lettres latines*

<i>a</i>	paramètre de l'ellipse
<i>b</i>	paramètre de l'ellipse
<i>ℓ</i>	mode
<i>m</i>	masse, kg
<i>R</i>	rayon, pixels
<i>T</i>	température, K

*v* fréquence, Hz

#### *Symbole grec*

$\sigma$  tension de surface, N.m<sup>-1</sup>

#### *Indices*

<i>R</i>	résonance
<i>T</i>	translation

## 1. Introduction

La tension de surface du métal liquide est un élément clé dans la modélisation numérique de procédés tels que le soudage et la fabrication additive métallique. Il est par exemple possible de prédire la forme du bain fondu connaissant, entre autres, la thermo-dépendance de la tension de surface (effet Marangoni). Cependant, concernant les aciers, cette propriété est généralement mal connue. Un dispositif expérimental a été développé afin de mesurer les propriétés thermophysiques dont la tension de surface de métaux liquides. Ce dispositif a déjà permis de mesurer la masse volumique de corps purs ainsi que d'aciers commerciaux pour des températures allant de la surfusion (pouvant atteindre 400 K sous le point de fusion) jusqu'à 3 300 K dans le cas du niobium avec une précision de 2 % [1].

La littérature cite plusieurs méthodes pour la détermination de la tension de surface et surtout deux familles, celles avec et celles sans contact entre le matériau et son support. Dans le cas

des mesures avec contact sur des métaux liquides, la température est nécessairement supérieure à celle de fusion, et dans ce cas de figure les problèmes de diffusion entre le métal et son support ne sont plus négligeables, voire sont inévitables. Trois techniques sont classées dans cette catégorie : la pression maximale de bulle [2] ; la goutte sessile [3], [4] ; et la goutte pendante [5]. La méthode sans contact la plus fréquente est celle de la goutte oscillante [6], [7].

Dans cet article, le dispositif expérimental est dans un premier temps présenté (partie 2), puis la méthode théorique de calcul de la tension de surface est l'objet de la partie 3, enfin la dernière partie concerne l'expérience et le post-traitement des données pour obtenir la tension de surface. La méthode de mesure de cette propriété est explorée et validée sur du fer pur à différents niveaux de température entre 1 773 K et 2 230 K. Ce corps pur a été choisi au vu de ses propriétés proches de l'acier que nous rencontrons dans la plupart de nos applications (soudage, fabrication additive, etc.).

## 2. Présentation du dispositif expérimental

Le dispositif est présenté figure 1 (voir aussi [1]). Un mélange argon et hydrogène Ar-2,5 % H<sub>2</sub> est soufflé à travers une buse convergente-divergente de 60° et fait léviter un échantillon de 30 mg (environ 2 mm de diamètre) (A). Un premier débitmètre numérique mesure et contrôle le gaz sustentateur à environ 2 l·min<sup>-1</sup> (B). La partie lévitation est placée dans une enceinte en acier inoxydable équipée de hublots (C). Le hublot supérieur est dédié au chauffage laser (D) et à la mesure pyrométrique (E). Une caméra haute vitesse (F) est placée devant un hublot latéral et un laser de rétro-éclairage (G) devant le hublot opposé. L'échantillon est chauffé par le laser jusqu'à atteindre l'état liquide à une température contrôlée par le pyromètre. Puis une sollicitation mécanique (acoustique) est employée pour faire osciller le métal liquide sous forme de goutte : un signal sinusoïdal est généré (voir partie 4), amplifié (H) et transformé en ondes de pression par un haut-parleur (J). Le second débitmètre (B) contrôle un jet de gaz latéral (0,02 l·min<sup>-1</sup>) pour forcer la rotation de la goutte selon l'axe vertical dans le but de faciliter le post-traitement lors de l'analyse fréquentielle (voir partie 4). Finalement un analyseur d'oxygène résiduel mesure son taux au niveau de l'arrivée du gaz de lévitation (K)

Le laser à diode (IPG PHOTONICS YLR 300/3000 QCW à 1070 nm) a une puissance maximale de 280 W en continu. Il est équipé d'une optique de focalisation de 500 mm légèrement défocalisée pour que la surface visée soit de l'ordre de 2 mm. Le pyromètre est monochromatique de longueur d'onde 1 550 nm et son émissivité a été réglée empiriquement à 0,32 par rapport à la température du plateau de solidification du fer *a priori* connu (1 808 K). L'influence de l'environnement et de l'atmosphère est supposée négligeable.

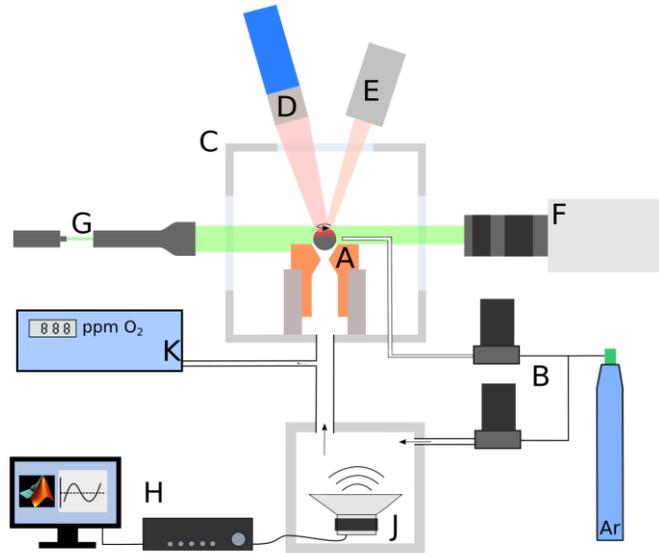


Figure 1 : Schéma du dispositif expérimental.

### 3. Méthode de mesure de la tension de surface

La méthode de la goutte oscillante est une technique souvent utilisée avec succès pour mesurer la tension de surface. Rayleigh décrit le premier la relation entre cette dernière  $\sigma$  et la fréquence de résonance  $\nu_R$  de la goutte [8]:

$$\sigma = \frac{3\pi\nu_R^2 m}{\ell(\ell - 1)(\ell + 2)} \quad (1)$$

où  $m$  est la masse et  $\ell$  décrit le mode d'oscillation. Cette formule est valable pour les gouttes sphériques, donc peu sujettes à l'effet de la gravité. Cependant, passé un certain volume, la goutte va s'aplatir sous l'effet de la gravité, une approche variationnelle peut alors résoudre le problème [9].

L'expérience montre que si les modes autres que le mode 2 sont négligés, ainsi l'équation (1) devient-elle :

$$\sigma = \frac{3}{8}\pi\nu_{R,2}^2 m \quad (2)$$

Dans de nombreux cas, l'échantillon subit une déformation statique due aux forces de lévitation et à la gravité ainsi qu'une rotation. Ces deux effets conduisent à la séparation du mode d'oscillation 2 en 5 modes caractéristiques ( $\nu_{20}$ ,  $\nu_{2\pm 1}$  et  $\nu_{2\pm 2}$ ), chacun ayant une fréquence propre [10]. La figure 2 présente les oscillations de goutte associées à chacun de ces modes.

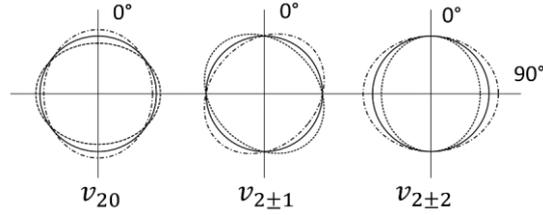


Figure 2 : Ellipse avec oscillation de mode 2.

Cummings and Blackburn [10] ont proposé une loi de type somme (3) pour estimer la fréquence de résonance :

$$v_{R,2}^2 = \frac{1}{5} \sum_{i=1}^5 v_{R,i}^2 - 2\overline{v_T^2} \quad (3)$$

où  $v_{R,i}$  sont les 5 fréquences caractéristiques et  $v_T$  la fréquence de mode 1, c'est-à-dire la fréquence de translation.

L'expérience montre que les observables expérimentaux sont les variations du rayon de la goutte au cours du temps selon plusieurs directions, par exemple à  $0^\circ$ , à  $45^\circ$ , à  $90^\circ$ , ou encore la variation de la différence ou de la somme de deux rayons perpendiculaires. L'analyse de fréquence de ces différents signaux permet, par discrimination, de retrouver les 5 fréquences caractéristiques [11]. Par exemple, si une même fréquence apparaît sur le spectre de fréquence du signal à  $0^\circ$  et à  $90^\circ$ , alors elle pourra être attribuée au mode  $v_{20}$  (voir figure 2).

## 4. Mesures expérimentales et analyses

### 4.1. Analyse des fréquences de résonance

Le signal sinusoïdal réalise un unique balayage pendant 2 s sur une gamme de fréquence large de 60 Hz autour d'une valeur de fréquence de résonance estimée à partir de la relation (2) et des données de tension de surface *a priori* connues obtenues dans la littérature.

L'image de la goutte qui oscille est obtenue avec la caméra rapide réglée à la fréquence de 2 000 images par seconde et avec le laser de rétro-éclairage. Ces images subissent un post-traitement en deux étapes : la binarisation et la détection de contour (figure 3 et [1]). Une ellipse est ajustée par moindres-carrés sur le contour. L'équation de l'ellipse (4) est fonction de deux rayons  $a$  et  $b$  ; ces deux observables sont donc déterminées en fonction du temps (figure 4).

$$\left(\frac{x}{a}\right)^2 + \left(\frac{y}{b}\right)^2 = 1 \quad (4)$$

Sur la figure 4,  $R_0$  et  $R_{90}$  sont respectivement  $a$  et  $b$ .

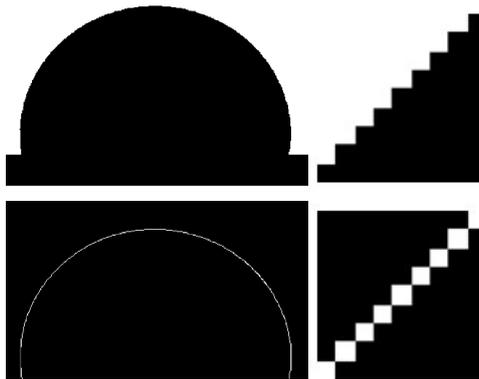


Figure 3 : Les deux étapes de la binarisation des images de la caméra haute vitesse. Gauche : échantillon complet ; droite : grossissement sur le bord de l'échantillon.

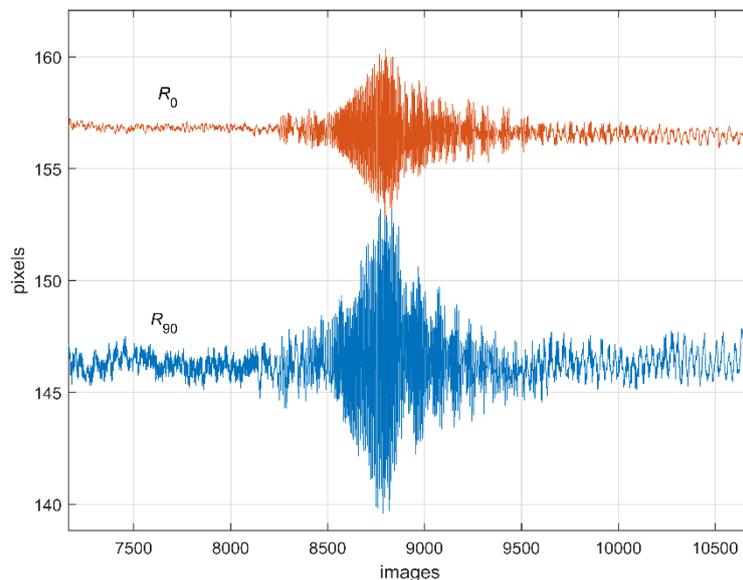


Figure 4 : Évolution des rayons  $R_0$  et  $R_{90}$  en fonction du temps pour une goutte de fer liquide sous sollicitation acoustique variable.

À partir des données présentées sur la figure 4, une transformée de Fourier est pratiquée à l'aide de la fonction FFT de Matlab® sur les rayons à  $0^\circ$ ,  $90^\circ$  mais aussi  $45^\circ$ . Les signaux sont normalisés pour faciliter la lecture.

Dans notre cas, sans précaution particulière, l'échantillon tourne de manière hasardeuse dans la buse de lévitation. Il est donc compliqué de déterminer les 5 fréquences caractéristiques. Dans ces travaux, un jet de gaz latéral à  $0,02 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$  est appliqué sur la goutte (figure 5) afin de forcer la rotation selon un axe vertical à une vitesse suffisante pour prévenir toute autre oscillation que celle du mode 2 pur. En effet, les figures 6 et 7 montrent bien une différence significative. Sans la rotation forcée, les spectres présentent plusieurs fréquences caractéristiques difficilement identifiables au regard de la relation (3). En revanche, avec la rotation forcée il ne subsiste qu'une seule fréquence. En la considérant comme la fréquence de résonance, la tension de surface est calculée avec la formule de Rayleigh (2). Nous précisons que les figures 6 et 7 ne sont pas issues d'une même expérience, les échantillons n'ont pas la même masse, ce qui implique une résonance à des fréquences différentes.

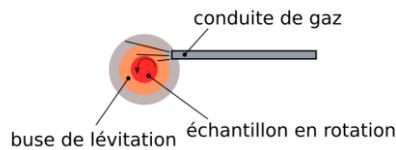


Figure 5 : Principe du jet de gaz latéral vu de dessus.

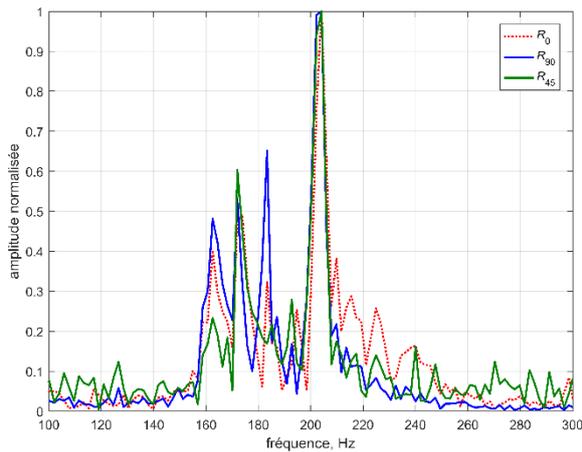


Figure 6 : Spectre de fréquence sans rotation forcée.

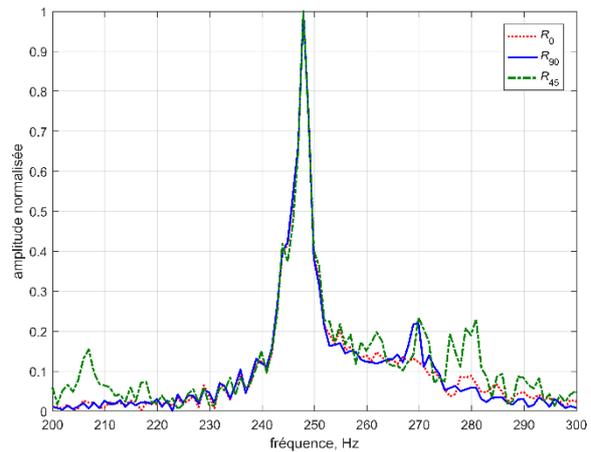


Figure 7 : Spectre de fréquence avec rotation forcée.

## 4.2. Résultats

La figure 8 compare nos résultats obtenus sur du fer pur (99,95 %) par notre méthode avec ceux rencontrés dans la littérature. La plage de mesure s'étend de 1773 K (basse surfusion) à 2 230 K. Il est difficile de monter au-delà de cette température du fait de la chaleur latente d'évaporation qui devient plus importante que l'apport d'énergie par le laser (confirmé par un modèle numérique non présenté ici). Monter à un niveau significativement plus élevé nécessiterait un laser plus puissant et un temps de chauffe très court pour limiter au maximum la vaporisation, rendant alors compliquée la mesure de la tension superficielle. Expérimentalement il est observé post-expérience un dépôt noir (vapeurs métalliques condensées) sur le bord de la buse de lévitation quand la température atteint cette limite haute, signe d'une vaporisation partielle de l'échantillon. Nous estimons qu'environ 2 essais sur 3 sont exploitables pour le calcul de la tension de surface, les échecs étant principalement dus à un défaut de lévitation (accrochage de la goutte à la buse) ou à une oxydation trop importante de l'échantillon.

Les barres d'erreurs de  $\pm 0,35\%$  sont estimées à partir du pas de fréquence du spectre obtenu par la transformée de Fourier. Nos résultats peuvent être exprimés par la relation (5) dans la gamme de température précédemment citée, avec  $T$  exprimée en kelvin. La dispersion de nos points expérimentaux autour de cette loi est importante et sort des barres d'erreurs calculées. Elle est donc probablement due à certains paramètres opératoires non maîtrisés. Par exemple, il est difficile de reproduire la même amplitude d'oscillation de goutte d'une mesure à l'autre. Aussi, l'oxydation finale de l'échantillon (réduite au maximum mais inévitable) est difficile à mesurer. La valeur de la pente de l'équation (5) est plus faible que les lois données par la

littérature [12], [13]. Néanmoins, sur la plage de température étudiée, nos valeurs restent proches de la littérature mais nécessitent d'être complétées par d'autres essais.

$$\sigma(T) = 1,53 \times 10^{-4} T + 2,09 \quad (5)$$

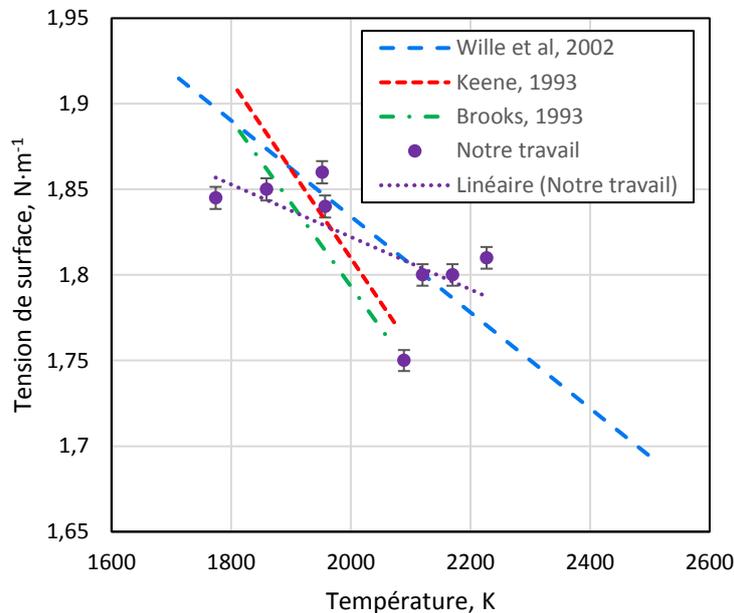


Figure 8 : Tension de surface du fer liquide en fonction de la température. Comparaison de nos résultats expérimentaux avec la littérature

## 5. Conclusion

Cet article a présenté des mesures de tension de surface sur des échantillons de fer pur grâce à un dispositif de lévitation aérodynamique sur une plage de température allant de 1 773 K à 2 230 K. La méthode utilisée est celle de la goutte oscillante : cette dernière est amenée à entrer en résonance à l'aide d'ondes acoustiques via le gaz de lévitation. La tension de surface est obtenue en deux étapes : la première consiste à enregistrer les variations des rayons de la goutte au cours du temps, dont l'analyse fréquentielle par transformée de Fourier permet de déterminer la fréquence de résonance (seconde étape), la tension de surface étant fonction de celle-ci.

Les résultats obtenus sont comparables à ceux présentés dans la littérature malgré une dispersion importante imputable à certains paramètres opératoires difficiles à contrôler (stabilité aérodynamique par exemple), plutôt qu'à la phase de post-traitement. D'autres expériences sur du fer pur sont à prévoir pour confirmer ou infirmer les premiers résultats mais aussi sur d'autres matériaux (zirconium, niobium, etc.) et ainsi sur d'autres gammes de température.

Ce dispositif de lévitation aérodynamique ayant déjà été adapté pour la mesure de masse volumique de métaux liquide, il sera par la suite exploité pour la mesure de la viscosité.

## Références

- [1] D. Le Maux, M. Courtois, T. Pierre, B. Lamien, and P. Le Masson, 'Density measurement of liquid 22MnB5 by aerodynamic levitation', *Review of Scientific Instruments*, vol. 90, no. 7, p. 074904, Jul. 2019, doi: 10.1063/1.5089620.
- [2] T. Dubberstein, H.-P. Heller, J. Klostermann, R. Schwarze, and J. Brillo, 'Surface tension and density data for Fe–Cr–Mo, Fe–Cr–Ni, and Fe–Cr–Mn–Ni steels', *J Mater Sci*, vol. 50, no. 22, pp. 7227–7237, Nov. 2015, doi: 10.1007/s10853-015-9277-5.
- [3] M. Dal, F. Coste, M. Schneider, R. Bolis, and R. Fabbro, 'Laser based method for surface tension and density measurements for liquid refractory metals (Nb, Ta, and W)', *Journal of Laser Applications*, vol. 31, no. 2, p. 022604, May 2019, doi: 10.2351/1.5096138.
- [4] N. Chikhi, P. Fouquart, J. Delacroix, and P. Piluso, 'Measurement of Type 304L Stainless Steel and 16MND5 Ferritic Steel Density and Surface Tension: Possible Impact for Stratified Molten Pool', *Nuclear Technology*, vol. 205, no. 1–2, pp. 200–212, Jan. 2019, doi: 10.1080/00295450.2018.1486160.
- [5] B. Vinet, J. P. Garandet, and L. Cortella, 'Surface tension measurements of refractory liquid metals by the pendant drop method under ultrahigh vacuum conditions: Extension and comments on Tate's law', *Journal of Applied Physics*, vol. 73, no. 8, pp. 3830–3834, Apr. 1993, doi: 10.1063/1.352891.
- [6] I. Egly, H. Giffard, and S. Schneider, 'The oscillating drop technique revisited', *Measurement Science and Technology*, vol. 16, no. 2, pp. 426–431, Feb. 2005, doi: 10.1088/0957-0233/16/2/013.
- [7] Y. Ohishi *et al.*, 'Thermophysical properties of molten core materials: Zr–Fe alloys measured by electrostatic levitation', *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 53, no. 12, pp. 1943–1950, Dec. 2016, doi: 10.1080/00223131.2016.1174626.
- [8] Lord Rayleigh, 'On the Stability, or Instability, of certain Fluid Motions', *Proceedings of the London Mathematical Society*, vol. s1-11, no. 1, pp. 57–72, Nov. 1879, doi: 10.1112/plms/s1-11.1.57.
- [9] M. Perez, Y. Brechet, L. Salvo, M. Papoular, and M. Suery, 'Oscillation of liquid drops under gravity: Influence of shape on the resonance frequency', *Europhys. Lett.*, vol. 47, no. 2, pp. 189–195, Jul. 1999, doi: 10.1209/epl/i1999-00371-6.
- [10] D. L. Cummings and D. A. Blackburn, 'Oscillations of magnetically levitated aspherical droplets', *J. Fluid Mech.*, vol. 224, pp. 395–416, Mar. 1991, doi: 10.1017/S0022112091001817.
- [11] S. Sauerland, K. Eckler, and I. Egly, 'High-precision surface tension measurements on levitated aspherical liquid nickel droplets by digital image processing', *Journal of Materials Science Letters*, vol. 11, no. 6, pp. 330–333, 1992, doi: 10.1007/BF00729172.
- [12] G. Wille, F. Millot, and J. C. Rifflet, 'Thermophysical Properties of Containerless Liquid Iron up to 2500 K', *International Journal of Thermophysics*, vol. 23, no. 5, pp. 1197–1206, Sep. 2002, doi: 10.1023/A:1019888119614.
- [13] K. C. Mills, *Recommended values of thermophysical properties for selected commercial alloys*. Cambridge: Woodhead, 2002.