

# 浮遊液滴非線形ダイナミクス

阿部 豊 (筑波大), 松本 聡 (JAXA), 西成 活裕 (東大), 渡辺 正 (福井大),  
北畑 裕之 (千葉大), 長谷川 浩司 (工学院大), 金子 暁子 (筑波大), 東 顕二郎 (千葉大),  
佐々木 裕哉 (筑波大・院), 駒谷賢 (筑波大・院), 須田捷生 (筑波大・院),  
渡辺輝光 (筑波大)

## Non-linear Dynamics of Levitated Droplet

Yutaka Abe, Satoshi Matsumoto, Katsuhiro Nishinari, Tadashi Watanabe, Hiroyuki Kitahata,  
Koji Hasegawa\*, Akiko Kaneko, Kenjiro Higashi, Yuya Sasaki, Suguru Komaya, Toshiki Suda,  
Terumitsu Watanabe

\*Kogakuin University, 1-24-2 Nishi-shinjuku, Shinjuku, Tokyo, 163-8677, Japan

E-Mail: kojihasegawa@cc.kogakuin.ac.jp

Abstract: It is expected to process materials under the container-less condition by utilizing the microgravity environment. Ultrasonic and electrostatic levitation (and those hybrid) technologies are promising to achieve the container-less fluid manipulation in midair. In this paper, a mixing method with mode oscillation on the internal flow field of a levitated droplet is investigated. The effect of internal flow fields on the mixing behavior of acoustically levitated droplets remains unclear. For a better understanding, the mixing mechanism of an acoustically levitated droplet, the effect of the internal flow field on droplet mixing from mode oscillation during acoustic levitation is of paramount importance for practical lab-in-a-drop applications.

Key words, Acoustic levitation, Non-linear dynamics, Fluid manipulation, Lab-in-a-drop

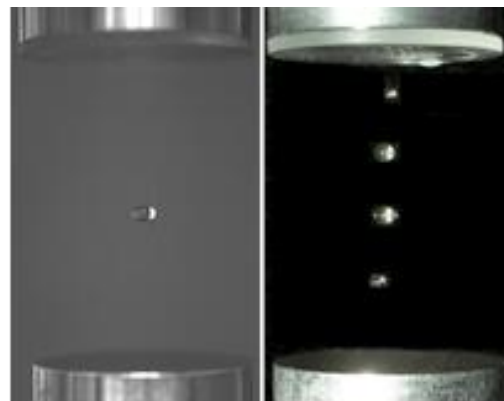
### 1. 緒言

著者らは、これまで超音波ならびに静電力を用いた液滴浮遊技術の開発を行ってきた<sup>1-30)</sup>。静電浮遊液滴を回転させることで、液滴の変形・分裂が制御可能であることを実験的に実証し、その分裂挙動が、数値解析結果と整合することを示してきている。また、超音波浮遊液滴の内・外部流動の相関を明らかにし、非接触で液滴内部の攪拌が可能であることを示してきている。これらの静電力および超音波による浮遊技術を用いることで、創薬などの医療バイオ分野や分析化学の分野において切望されている混合・反応・分離・保持・蒸発のような流体プロセスを非接触で実現する技術開発に取り組んでいる。これは、静電浮遊と超音波浮遊をハイブリットに用いたものであり、そのための技術開発と実証を通して、高度な熱流体プロセス技術の実現を目指している。

特に液滴浮遊実験においては、微小重力実験を実施する2つの利点がある。1つ目は、重力の影響が軽減されることで、地上重力環境下と比較し、液滴保持に必要な音圧が小さくなるため、通常重力環境下での実験では得られない大粒径かつ真球形状に近い液滴の浮遊が可能となることである。2つ目は、液滴浮遊のために必要な音響エネルギーを最小化することができ、非線形音響効果に起因した複雑現象の影響を最小化できる点である。

著者らは、これまでに宇宙環境利用を目指して、航空機を用いた短時間での微小重力実験を実施して

いる。Fig. 1には、浮遊させた超音波浮遊液滴の静止画の一例を示す。



(a) Single droplet (b) Multiple droplets

Fig. 1 Levitated droplets under the normal gravity.

### 2. 非接触流体制御技術の提案

異なる流体を混合・攪拌し、濃縮・反応・相分離させた後に、蒸発・乾燥させるなどの流体プロセスは、創薬などの医学バイオ分野や化学分析分野などにおいて不可欠である。しかしながら、超高純度の微量成分を取り扱う場合、溶媒の容器壁への付着や不純物の残留の問題が指摘されており、非接触での熱流体プロセス制御技術が切望されている。

近年、非接触浮遊技術を用いた流体制御技術をバ

イオ分野に適用しようとする試みが、世界各国において急速に行われつつある<sup>31-35</sup>。しかしながら、非接触無容器での流体制御技術を、生化学や製剤などのバイオ分野に適用するための科学的な知見は、未だ解明されておらず、その技術も未だ確立されていない。

これを実現しうる手法として、試料の空中保持を可能とする音場浮遊法が注目されている。近年では、本手法による浮遊試料の搬送技術<sup>36</sup>が報告されているものの、界面変形や流動、相変化を伴う液体試料を扱った例は数少ない。そこで本研究では、超音波浮遊法を用いることで、混合・反応・分離・保持・蒸発のような流体プロセスを非接触で実現する技術を提案している。Fig. 2に我々が提案する非接触流体制御技術の概要図を示す。本提案では液滴の浮遊・保持、合体、混合・反応、回転・分裂、蒸発・分離の一連のプロセスを超音波および静電浮遊法をハイブリットに活用することで実現させることを目指している。

本報では、非接触流体制御の1つのプロセスである合体した液滴の混合に着目し、高効率な混合手法の構築のために液滴のモード振動を活用した流体の非接触混合の実験結果を述べる。浮遊液滴に非接触でモード振動を誘起し、その振動周波数と液滴径の関係を既存理論と比較した。また、液滴の混合挙動を可視化し、モード振動の有無で液滴の混合性能を定量的に比較した。

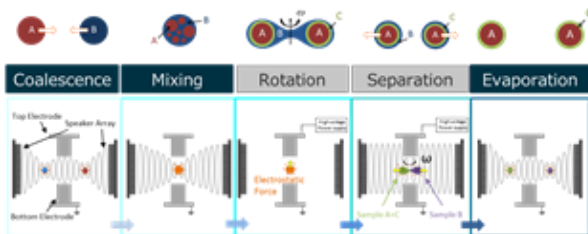


Fig. 2 Concept of contactless sample manipulation in air.

### 3. 界面モード振動を利用した非接触流体混合

Fig. 3にモード振動を誘起した液滴の挙動を示す。試料には2c Stのシリコンオイルを用い、撮影速度を4000 fps、露光時間を250 μsとした。音波の振幅変調により、非接触で液滴に振動を印加し、モード振動を誘起可能であることがわかった<sup>27, 37</sup>。

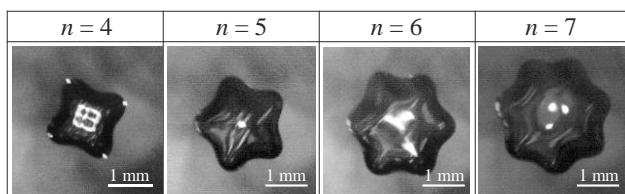


Fig. 3 Mode oscillation behavior of a levitated droplet.

次に、Fig. 3の可視化結果から、液滴の振動周波数を計測した結果をFig. 4に示す。横軸は設定した変調周波数、縦軸は算出した液滴の振動周波数を示している。すべての結果において液滴は印加した振動周波数の約半分の周波数で振動していることがわかる。さらに、液滴径と振動周波数の関係を、以下に示すRayleighの理論式<sup>38</sup>と比較した結果をFig. 5に示す。

$$f_n = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{8\sigma}{\rho a^3} n(n-1)(n+2)} \quad (1)$$

ここで、 $\sigma$ は表面張力、 $\rho$ は液滴密度、 $n$ はモード数を表し、 $a$ には液滴寸法として、振動未印加時の長径を採用した。図から、各振動モードで理論と実験が類似の傾向を示すことがわかる。これにより、Fig. 4とFig. 5を用いることで、モード振動の誘起条件が予測可能であることが示された。

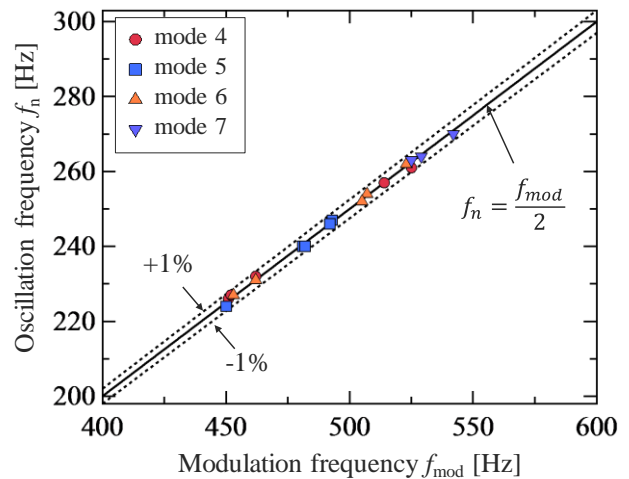


Fig. 4 Relationship between modulation frequency and oscillation frequency of a droplet.

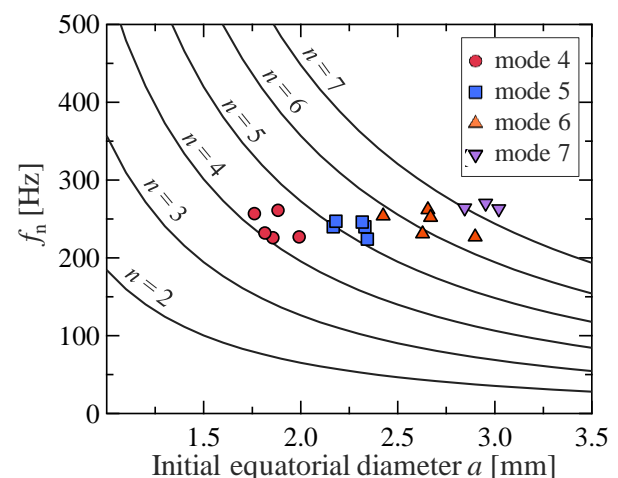


Fig. 5 Relationship between droplet diameter and oscillation frequency.

次に、水とメチレンブルー水溶液を合体させ、混合挙動を可視化した結果を Fig. 6 に示す。撮影速度は 1000 fps、露光時間は 1000  $\mu\text{s}$  とした。振動未印加の条件よりも、4 次モードの振動印加の条件の方が、メチレンブルー成分がより素早く液滴全体に行き渡ることが定性的に確認できる。次に、混合状態を定量化し比較するために、Mixing parameter<sup>39)</sup>を導入する。混合領域における輝度値の平均値  $\mu$  と標準偏差  $\sigma$  を算出し、平均値で除して規格化した標準偏差を用い、以下の式で Mixing parameter  $\eta$  を定義する。

$$\eta = \frac{\left(\frac{\sigma}{\mu}\right)_t - \left(\frac{\sigma}{\mu}\right)_{t=\infty}}{\left(\frac{\sigma}{\mu}\right)_{t=0} - \left(\frac{\sigma}{\mu}\right)_{t=\infty}} \quad (2)$$

$\eta$  は、混合前 ( $\eta = 1$ ) と比較して、混合パターンがどの程度均一混合 ( $\eta = 0$ ) に近づいたかを表す指標である。画像処理により、 $\eta$  の時間変化を算出した結果を Fig. 7 に示す。振動未印加の条件では、2.0 s の時間経過では混合度が収束しなかった。一方で、4 次モードの振動印加の結果では 0.5 s 程度で混合度が収束していることがわかる。この結果より、液滴の非接触混合には、モード振動の利用が有効であることが示された。

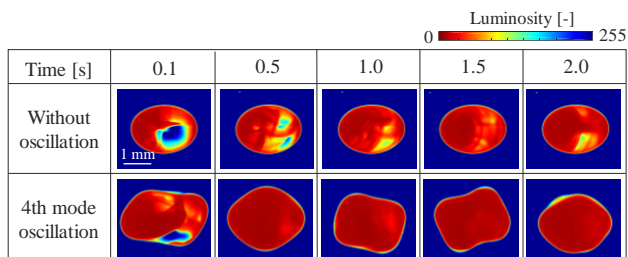


Fig. 6 Mixing behavior of coalescence droplet.

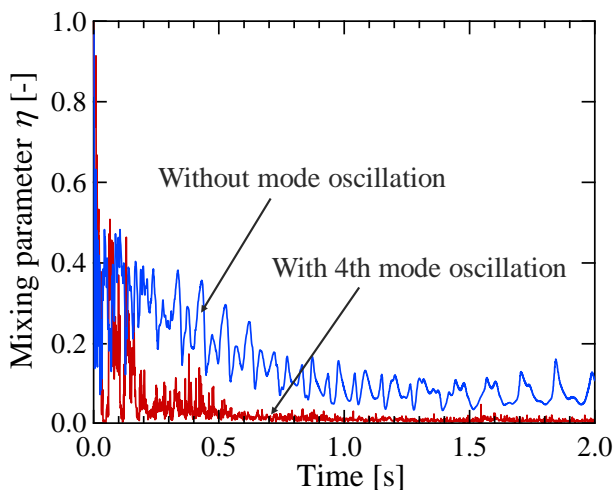


Fig. 7 Comparison of time change of mixing parameter.

#### 4. 結言

異なる流体を非接触で混合・攪拌し、濃縮・反応・相分離させる技術を実現するため、「超音波浮遊法を用いた非接触無容器のプロセス制御技術」を提案する。

本報では、超音波フェーズドアレイに着目し、液滴の合体・混合を非接触で実現する手法の構築を試みた。音波の振幅変調により液滴に非接触でモード振動を誘起可能であり、その振動周波数は変調周波数の半分となることがわかった。さらに、液滴径と液滴の振動周波数の関係は Rayleigh の式<sup>38)</sup>で予測でき、液滴径が既知であればモード振動を誘起可能な周波数を予測可能であることが示された。最後に、合体時の液滴の混合挙動を評価した結果、液滴の非接触混合にはモード振動の利用が有効であることが示された。

#### 謝辞

本研究は JAXA 宇宙環境利用科学委員会研究班ワーキング・グループ「浮遊液滴非線形ダイナミクス」の活動の一環として実施したものである。本研究の実施にあたり、JAXA 宇宙科学研究所の宇宙環境利用専門委員会が募集した平成 28 年度および 29 年度短時間微小重力実験に採択され、ダイヤモンドエアサービス (DAS) 社が有する MU-300 航空機を用いたパラボリックフライトによる微小重力環境にて実験を実施した。ここに記して関係各位に感謝の意を表す。

#### 参考文献

- 1) 阿部豊 他, 日本機化学会論文集(B 編), 70(692), 242-227, (2003).
- 2) 阿部豊 他, 日本機化学会論文集(B 編), 71(712), 36-41, (2005).
- 3) Y. Abe et al., Ann. N.Y. Acad. Sci., 1077, 49-62 (2006).
- 4) 阿部豊 他, 混相流研究の進展 2, 63-70, (2007).
- 5) Y. Abe et al., Microgravity Sci. and Tech. XIX-3/4・2007 Two-Phase System for Ground and Space Applications, 19(3-4), 33-34 (2007).
- 6) K. Hasegawa et al., Microgravity Sci. Technol., 20(3-4), 261-264 (2008).
- 7) Y. Yamamoto et al., Microgravity Sci. Technol., 20(3-4), 277-280 (2008).
- 8) Y. Abe et al., Ann. N.Y. Acad. Sci., 1161, 211-224 (2009).
- 9) K. Hasegawa et al., Microgravity Sci. Technol., 21(1), 9-14 (2009).
- 10) M. Kawakami et al., Microgravity Sci. Technol., 22(2), 145-150 (2010).
- 11) M. Kawakami et al., Microgravity Sci. Technol., 22(3), 353-359 (2010).
- 12) 長谷川浩司 他, 混相流, 23(5), 523-530, (2010).
- 13) K. Hasegawa et al., International Journal of

- Transport Phenomena, 12(3-4), 151-160 (2011).
- 14) 石井光 他, 日本機化学会論文集(B 編), 78(794), 1696-1709 (2012).
  - 15) 下西国治 他, 混相流, 25(5), 537-544, (2013).
  - 16) 長谷川浩司 他, 混相流, 27(5), 563-570, (2014).
  - 17) K. Shitanishi et al., Microgravity Sci. Technol., 26(5), 305-312 (2014).
  - 18) 合田篤 他, 混相流, 28(5), 539-546, (2015).
  - 19) H. Kitahata et al., Phys. Rev. E, 92(6), 062904 (2015).
  - 20) K. Hasegawa et al., npj Microgravity, 2(1), 16004 (2016).
  - 21) 丹羽基能 他, 混相流, 29(5), 501-508, (2016).
  - 22) 丹羽基能 他, 混相流, 30(5), 537-546, (2017).
  - 23) A. Watanabe et al., Sci. Rep. 8, 10221 (2018).
  - 24) K. Hasegawa et al., Sci. Rep. 9, 16603 (2019).
  - 25) K. Kobayashi et al., Phys. Fluids, 30, 082105 (2018).
  - 26) Y. Sasaki et al., Phys. Fluids, 31, 102109 (2019).
  - 27) K. Hasegawa et al., Phys. Fluids, 31, 112101 (2019).
  - 28) Y. Niimura et al., PLOS ONE, 14(2), e0212074, (2019).
  - 29) K. Hasegawa et al., AIP Adv. 9, 035313, (2019).
  - 30) Y. Maruyama et al., RSC Adv., 10(4), 1870-1877, (2020).
  - 31) C. Bouyer et al., Adv. Matter, 28, 161-167 (2015).
  - 32) E. T. Chainani et al., Anal. Chem., 86, 2229-2237 (2014).
  - 33) L. Puskar et al., Lab on a Chip, 7, 1125-1131 (2007).
  - 34) M. Sundvik et al., Sci. Rep, 5, 13596 (2015).
  - 35) W. J. Xie et al., Appl. Phys. Lett., 89, 214102 (2006).
  - 36) T. Hoshi et al., Jpn. J. Appl. Phys. 53, 07KE07, (2014).
  - 37) C. L. Shen et al., Phys. Rev. E, 81(4), 046305 (2010).
  - 38) L. Rayleigh, Proc. R. Soc. Lond., 29, 71-97 (1879).
  - 39) B. Carrol et al, Exp. Fluids, 53, 1301-1316 (2012).