

# 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), 谷田 桜子 (東大), 渡辺 正 (福井大), 北畑 裕之 (千葉大), 小谷野 由紀 (神戸大), 長谷川 浩司 (工学院大), 金子 暁子 (筑波大), 本田 恒太 (筑波大・院), 相子 珠希 (筑波大・院)

## Non-linear Dynamics of Levitated Droplet

Yutaka Abe, Satoshi Matsumoto, Katsuhiro Nishinari, Sakurako Tanida, Tadashi Watanabe, Hiroyuki Kitahata, Yuki Koyano, Koji Hasegawa\*, Akiko Kaneko, Kota Honda, Tamaki Aiko

\*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 sample 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, Droplet, Non-linear dynamics, Contactless manipulation, Lab-in-a-drop

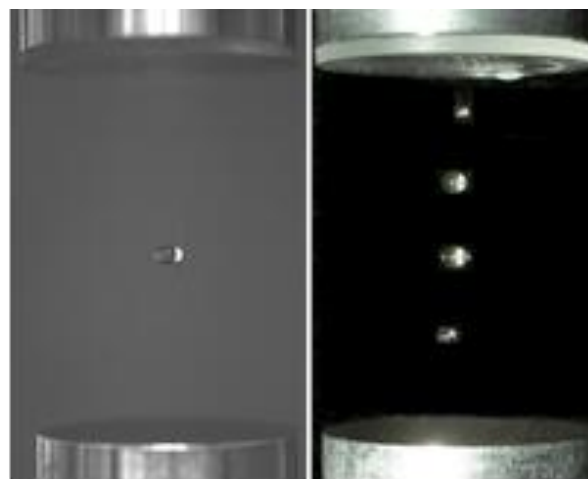
### 1. 緒言

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>1-31)</sup>。その一例として、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明らかにし、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<sup>15)</sup>。また、超音波浮遊液滴の内・外部流動の相関を明らかにし<sup>16)</sup>、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<sup>19)</sup>。これら非接触で物体操作が可能な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で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、新規かつ独創的な高精度な熱流体プロセス技術の基盤確立を目指す。

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<sup>20)</sup>。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>32-36)</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。これを実現する手法として、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（固体）の搬送技術<sup>37)</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、非接触流体制御技術の確立の鍵となる複数液滴の合体過程を明らかにすることを目的とする。具体的には、同種の音場浮遊液滴の合体過程を可視化するとともに、合体後の液滴の浮遊状態を数値モデルの結果と比較することで浮遊安定性を議論する。

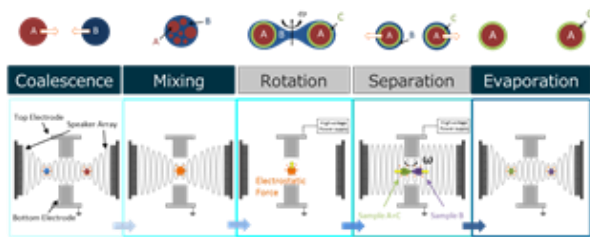


Fig. 2 Concept of contactless sample manipulation in air.

### 3. 浮遊液滴の合体ダイナミクス

浮遊液滴に作用する音響放射力に基づき、液滴が浮遊する位置を予測するために、音響ポテンシャル分布の算出を行った。以下に示す Gor'kov による簡易式を用いた<sup>19)</sup>。

$$U = 2\pi R^3 \left( \frac{p_{rms}^2}{3\rho_f c^2} - \frac{\rho_f v_{rms}^2}{2} \right) \quad (1)$$

ここで、 $R$  は音場中に置かれた小球の径、 $\rho_f$  は空気密度、 $c$  は音速、 $p_{rms}$  は音圧の実行値、 $v_{rms}$  は速度の実行値である。音響ポテンシャル  $U$  は、勾配をとると音響放射力を与える量として定義される。音響ポテンシャル分布を算出するために、分布点音源法 (DPSM) を用いて振動子アレイとリフレクター間の音圧と粒子速度を算出した。DPSM により算出した

音響ポテンシャルを Fig. 2 (a) に示す<sup>19)</sup>。焦点の間隔が 12 mm の場合には (Fig. 2 (a A)) 各焦点位置に局所定在波が形成されていることが分かる。焦点の間隔を近づけるに従って (Fig. 2 (a B, C)) 2 つの定在波は 1 つの大きな定在波となることが分かる。Fig. 2 (a) に対応する水液滴を用いた実証結果を Fig. 23 (b) に示す。Fig. 23 (a) の数値計算結果に対応するように水液滴が合体する様子が確認できる。

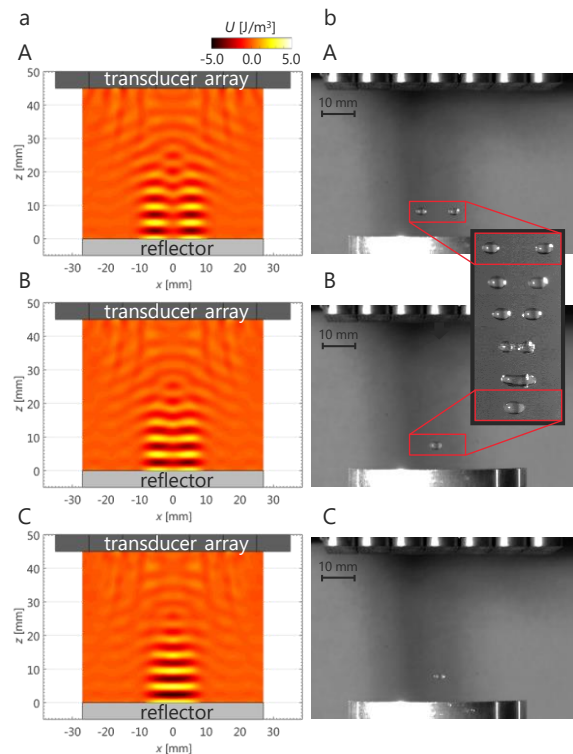


Fig. 3 Acoustic potential distributions: (a) numerical simulation by DPSM and (b) experimental results.

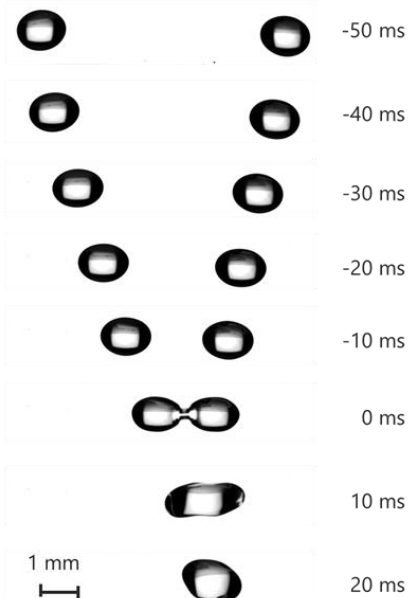


Fig. 4 Coalescence process of levitated water droplets.

液滴合体時の様子を高速カメラにより詳細に観測した結果を Fig. 2 に示す. 本結果より超音波フェーズドアレイを用いて液滴の非接触合体の実現可能性が実証された<sup>27)</sup>.

以上の結果より, 焦点切り替えによる複数焦点の形成を実現させることで, 2つのポテンシャルの谷を形成し, 液滴を同時浮遊させることができる. 焦点間の距離を近づけることで, ポテンシャルは2つの明確な谷を有する形状から1つの谷を持つ形状に遷移することが, ポテンシャルの算出により明らかとなり, 液滴が合体する焦点間距離は Gor'kov ポテンシャルにより予測可能であると考えられる.

次に, 液滴の合体後の安定性を議論する. 合体時の液滴挙動としては, 合体後も1つの液滴となって安定して浮遊した場合(Fig. 5 (a))や, 合体した液滴が扁平し, 端部から微粒化する挙動 (Fig. 5 (b)), 微粒化せずに膜形状となって落下する挙動 (Fig. 5 (c)) が観測された. 液滴の非接触合体技術を確認するためには, 合体後の安定浮遊条件を把握することが重要となる. そこで, 音圧と液滴径をパラメータとした際の安定浮遊条件の整理を試みた.

Fig. 6 に音圧の実効値  $p_{rms}$  を縦軸, 合体後の体積等価直径  $d$  を横軸としてプロットした結果を示す<sup>20)</sup>. 試験流体はエタノールである.  $p_{rms}$  には液滴に作用する音圧として, 衝突点の直上における腹音圧を採用した. 円形で示すプロットが合体後に安定して浮遊した結果, 三角のプロットが合体後の形状が不安定になり, 微粒化または落下した結果を表す. また, Fig. 5 (b), (c) のように, 超音波浮遊液滴が扁平し, 楕円体形状を保つことができなくなる臨界音圧  $p_{rms,cr}$  は, 音圧により液滴を扁平させようとする作用と, 表面張力により形状を保とうとする作用の比を Weber 数 ( $We$  数) で表し, その臨界  $We$  数を基に以下の式で予測される<sup>20)</sup>.

$$p_{rms,cr} = \sqrt{\sigma \rho_0 c_0^2 \left( \frac{3.2}{d} - \frac{1.3\pi}{\lambda} \right)} \quad (1)$$

ここで,  $\sigma$  は表面張力係数,  $\rho_0$  は空気密度,  $c_0$  は音速,  $d$  は液滴径,  $\lambda$  は波長である. 予測される臨界音圧を Fig. 6 中に実線で示している.

結果より, 合体後の安定浮遊領域と安定浮遊を保つことができない領域の境界は, 実験値と予測値は良好な一致を示しているものの, 予測値を上回る領域においても安定浮遊するケースも確認された. この理由としては, 予測値が平面定在波を仮定して算出されているのに対して, 本研究では集束超音波を用いる点で相違が存在することが挙げられる.

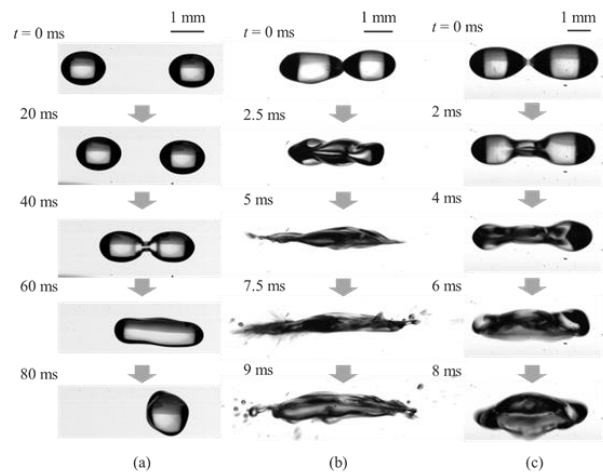


Fig. 5 Visualization of coalesced water droplet: (a) successful droplet coalescence, (b) droplet atomization, and (c) droplet falling immediately after coalescence

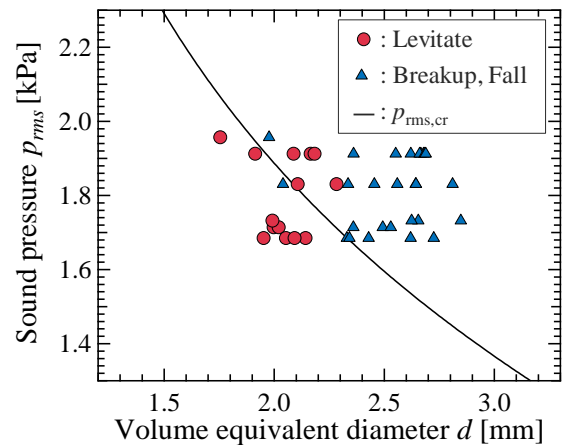


Fig. 6 Interfacial stability of coalesced water droplet.

#### 4. 結言

著者らは, 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の「浮遊法を用いた非接触無容器のプロセス制御技術」の開発に取り組んできた.

非接触流体制御技術の鍵となる複数液滴の合体過程を明らかにすることを目的とし, 本報では音場浮遊液滴の合体過程を可視化するとともに, 合体後の液滴の浮遊状態を数値モデルの結果と比較して浮遊安定性を議論した.

本報では, DPSM を用いて振動子アレイとリフレクター間の音圧と粒子速度を求めることで音響ポテンシャル分布を数値計算で再現した. 計算結果を基に, 複数液滴の浮遊および合体を実験的実証に成功した. 合体後の液滴の安定性を可視化計測し, 合体後の安定浮遊条件を把握するために, 音圧と液滴径をパラメータとした際の安定浮遊条件を調べた. 臨界  $We$  数から予測される臨界音圧と液滴の合体後の

界面挙動を比較した結果、実験結果と理論との間で定性的に良好な一致を示した。ただし、一部の実験値は、予測値を上回る領域においても安定浮遊することも確認された。この理由としては、予測値が平面定在波を仮定して算出されているのに対して、本研究では集束超音波を用いる点で相違が存在することが挙げられる。得られた結果を基に予測式を補正することで、合体後の安定浮遊条件を予測式の改善が期待される。本報では、同種の液滴の合体ダイナミクスを定量的に議論したものの、応用的観点からは、異種流体の合体過程および合体後の混合過程を高時空間分解能で可視化かつ定量的に評価する必要が今後の課題である。

#### 謝辞

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) Y. Abe et al., *Ann. N.Y. Acad. Sci.*, 1077, 49-62 (2006).
- 2) K. Hasegawa et al., *Microgravity Sci. Technol.*, 20(3-4), 261-264 (2008).
- 3) Y. Yamamoto et al., *Microgravity Sci. Technol.*, 20(3-4), 277-280 (2008).
- 4) Y. Abe et al., *Ann. N.Y. Acad. Sci.*, 1161, 211-224 (2009).
- 5) K. Hasegawa et al., *Microgravity Sci. Technol.*, 21(1), 9-14 (2009).
- 6) M. Kawakami et al., *Microgravity Sci. Technol.*, 22(2), 145-150 (2010).
- 7) M. Kawakami et al., *Microgravity Sci. Technol.*, 22(3), 353-359 (2010).
- 8) 長谷川浩司 他, *混相流*, 23(5), 523-530, (2010).
- 9) K. Hasegawa et al., *International Journal of Transport Phenomena*, 12(3-4), 151-160 (2011).
- 10) 石井光 他, *日本機会学会論文集(B 編)*, 78(794), 1696-1709 (2012).
- 11) 下西国治 他, *混相流*, 25(5), 537-544, (2013).
- 12) 長谷川浩司 他, *混相流*, 27(5), 563-570, (2014).
- 13) K. Shitanishi et al., *Microgravity Sci. Technol.*, 26(5), 305-312 (2014).
- 14) 合田篤 他, *混相流*, 28(5), 539-546, (2015).
- 15) H. Kitahata et al., *Phys. Rev. E*, 92(6), 062904 (2015).
- 16) K. Hasegawa et al., *npj Microgravity*, 2(1), 16004 (2016).
- 17) 丹羽基能 他, *混相流*, 29(5), 501-508, (2016).
- 18) 丹羽基能 他, *混相流*, 30(5), 537-546, (2017).
- 19) A. Watanabe et al., *Sci. Rep.* 8, 10221 (2018).
- 20) K. Hasegawa et al., *Sci. Rep.* 9, 16603 (2019).
- 21) K. Kobayashi et al., *Phys. Fluids*, 30, 082105 (2018).
- 22) Y. Sasaki et al., *Phys. Fluids*, 31, 102109 (2019).
- 23) K. Hasegawa et al., *Phys. Fluids*, 31, 112101 (2019).
- 24) Y. Niimura et al., *PLOS ONE*, 14(2), e0212074, (2019).
- 25) K. Hasegawa et al., *AIP Adv.* 9, 035313, (2019).
- 26) Y. Maruyama et al., *RSC Adv.*, 10(4), 1870-1877, (2020).
- 27) K. Hasegawa et al., *Micromachines*, 11(4), 343, (2020).
- 28) K. Aoki et al., *AIP Adv.* 10(5), 055115, (2020).
- 29) Y. Sasaki et al., *Phys. Fluids*, 32(7), 072102, (2020).
- 30) Y. Koyano et al., *Phys. Rev. E*, 102(3), 033109, (2020).
- 31) M. Naka et al., *Phys. Fluids*, 32(12), 124109, (2020).
- 32) W. J. Xie et al., *Appl. Phys. Lett.*, 89, 214102 (2006).
- 33) L. Puskar et al., *Lab on a Chip*, 7, 1125-1131 (2007).
- 34) E. T. Chainani et al., *Anal. Chem.*, 86, 2229-2237 (2014).
- 35) M. Sundvik et al., *Sci. Rep.* 5, 13596 (2015).
- 36) C. Bouyer et al., *Adv. Matter*, 28, 161-167 (2015).
- 37) T. Hoshi et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* 53, 07KE07, (2014).