

浮遊液滴非線形ダイナミクスワーキンググループ活動報告

筑波大 阿部 豊、金子暁子、前川知之、河上雅則、池田啓、石井光、田中類比

JAXA 松本 聡

東大 西成 活裕、江口 隆大

原研 渡辺 正

Report of The Research Working Group on Nonlinear Dynamics of Levitated Droplet

Yutaka Abe, Akiko Kaneko, Tomoyuki Maekawa, Masanori Kawakami, Hiromu Ikeda,

Hikaru Ishii and Rui Tanaka

University of Tsukuba, Tennouda, Ibaraki, 305-8573

E-Mail: abe@kz.tsukuba.ac.jp

Satoshi Matsumoto

Japan Aerospace Exploration Agency, 2-1-1 Sengen, Tsukuba, Ibaraki, 305-8505

E-Mail: matsumoto.satoshi@jaxa.jp

Katsuhiko Nishinari, Takahiro Eguchi

University of Tokyo,

E-Mail: tknishi@mail.ecc.u-tokyo.ac.jp

Tadashi Watanabe

Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1195

E-Mail: watanabe@sugar.tokai.jaeri.go.jp

Abstract: It is expected to manufacture new materials with containerless processing under the micro-gravity environment in space. If the levitated droplet is large, the surface of the levitated droplet nonlinearly and dynamically deforms and vibrates in space. In the present working group, nonlinear dynamics of the levitated droplet, surface deformation, its internal flow and the external flow, are experimentally and analytically investigated. The levitation experiments with the ultrasonic levitation apparatus and electrostatic levitation apparatus are conducted under the normal gravity condition and micro-gravity condition with aircraft. Based on the experimental results, theoretical and numerical analyses are conducted to clarify the nonlinear dynamics of the surface deformation, vibration and oscillation, as well as the internal and external flow of the levitated droplet in space. In the present study, new technology to measure the viscosity in high viscosity region is proposed.

Key words; Acoustic Standing Wave, Electrostatic Levitation, Internal Flow, Microgravity

1. 緒言

浮遊技術によって高温熔融液滴を無容器非接触で保持することにより、容器壁に起因する核発生を排除することができる。その結果、冷却凝固過程において過冷却凝固が発生する。このような過冷状態からの凝固によって、均質で高機能な材料製造が可能となる。また、浮遊技術によってプローブを接触させることが出来ない数千度の超高温融液の表面張力や粘性係数などの物性測定が可能となる⁽¹⁾。生物学の分野においても、浮遊技術を用いることによって、融液状態からの均質核生成を発生させることによって、タンパク質などの高分子やインスリンなどの薬剤融液からの良質な結晶が得られることが示されている⁽²⁾。分析化学の分野においても、 $m1 \sim \mu 1$ オーダーの極微量のサンプルを取り扱う場合、

容器を用いた通常の方法では、容器壁面からのコンタミネーションあるいは壁面への吸着・吸収といった問題が顕在化する。このような問題を回避する手段として、音場浮遊法が用いられている。音場浮遊法は、無用器状態を実現でき、かつ浮遊流体の種類に制限がないため、分析化学の分野において、濃縮・分離・抽出・誘導体化といったサンプルの前処理に活用され始めている⁽³⁾⁻⁽⁴⁾。

このように、浮遊技術を用いることによって、従来に無い新たな材料製造や物性測定、さらには生化学プロセッシングや極微量分析など、より高機能な流体プロセス技術への展開が期待されている。

しかしながら、これら従来の浮遊技術は全て、浮遊状態にある液滴の挙動が線形で定常であることを前提としている。これに対して、申請者は、超音

波や静電場を用いた液滴浮遊実験により、浮遊液滴には回転や振動さらには分裂など、非定で大きな変形を伴う界面挙動や液滴内外流動など、非線形でダイナミックな流動挙動が発現することを明らかにしている。Fig.1 に示したものは、超音波によって浮遊した水液滴ならびに高粘性のグリセリン液滴の内部流動と外部流動の3次元PIV計測結果の一例である。浮遊液滴の外部にトロイダル渦構造が形成されるとともに、液滴内部にも粘性や液滴径に対応する非線形でダイナミックな3次元で非定常の流動構造が形成されていることが分かる。

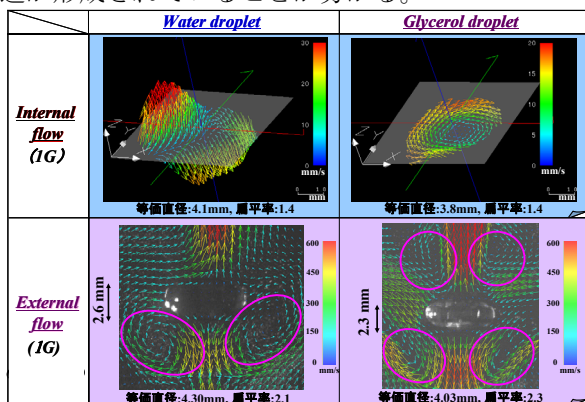


Fig.1 Internal and external flow of levitated droplets

浮遊技術を用いた新たな高機能流体プロセス技術を実現するためには、このような非定常な界面大変形や液滴内外流動の非線形ダイナミクスを、流体力学的知見から明らかにすることが必要不可欠となっているが、現在、このような浮遊液滴の非線形ダイナミックな挙動については、実験ならびに解析の両面からの科学的知見が殆ど無いのが現状となっている。

本ワーキングチームにおいては、浮遊状態にある大粒径液滴を取り扱うために、どのような非線形でダイナミックな現象が発生するかについての実験的知見、その現象を記述する非線形理論、さらには非線形で非定常な変動界面を有する現象を予測評価するための多次非定常の数値解析手段などを構築することとしている。更に、得られた知見に基づいて、これまで精度的に不十分とされている浮遊法を用いた超高温浮遊液滴の粘性測定法について、新たな手法の提案を行うこととする。

そのために、まず静電浮遊システムを用いて空間に浮遊させた浮遊液滴の界面変形や振動や回転の挙動を実験的に調べるとともに(担当: 松本・前川・田中)、強力超音波を用いた音波浮遊システムを用いて空間中に浮遊させた大型浮遊液滴の界面変形と内部・外部流動の可視観測を行う(担当: 阿部・河上・池田・石井)。これらの実験と同時に、浮遊液滴の非線形を含む界面変形を取り扱うための理論構築を行うとともに(担当: 西成・江口)、浮遊液滴界面の非線形でダイナミックな挙動や内部での流動を再現するための多次元で非定常の数値解析手法を用いた解析を行っている(担当: 渡辺)。

2. 実験

2.1 静電浮遊実験

浮遊技術を用いた非接触浮遊法によってのみ、容器が使用できない超高温物質の粘性などの物性測定が可能である。既存の方法では浮遊液滴の挙動が線形で定常であることを前提としている。すなわち、界面振動の減衰の時定数から粘性係数を算出する液滴振動法では、振動の減衰時刻が長い粘性の低い流体だけが計測可能である。一方、液滴を微小変形させた状態からの緩和時間を計測する方法では、極めて大きな粘性の流体だけが計測可能となっている。その結果、Fig.2に示す様に、熔融酸化物や過冷却金属など、実用上極めて有望な材料の大部分の粘性が、計測不可能となっており、この範囲での粘性計測法の確立が強く求められている。

申請者らは、Fig.3に示すように静電浮遊法によって浮遊させた液滴を回転させることによって、回転浮遊液滴が、回転楕円体から非対称なアレイ状回転体へと遷移した後分裂に至る非線形でダイナミックな挙動の実験情報を収集してきており、アレイ状回転体から分裂に至る直前の、中央部の液ブリッジの挙動が粘性に依存することを発見し、Fig.4に示す様に従来計測不可能であった範囲の粘性測定の可能性を示した。この新しい粘性測定法にはまだ計測精度に相当の誤差が認められており、その手法の確立のためには、粘性流体の非線形な分裂挙動を実験的に、より詳細に捉えるとともに、その実験情報をもとに浮遊液滴の非線形で非定常な挙動を記述することが不可欠である。本手法が確立された暁には、これまで不可能であった範囲の粘性が計測可能となり、新しい材料製造のために大きく資することができる。

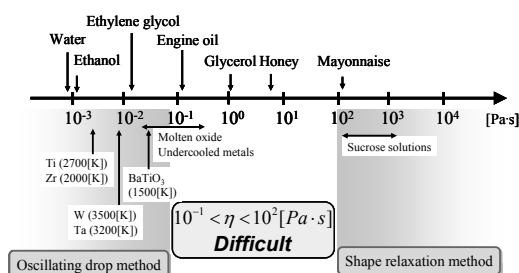


Fig.2 Non-contact measurement techniques for viscosity with electrostatic levitation apparatus

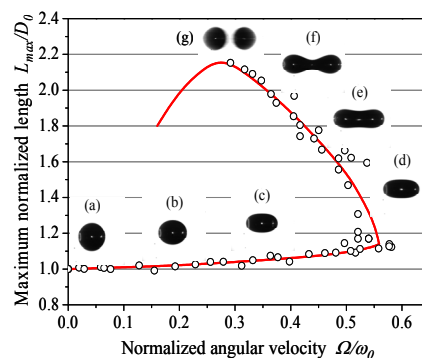


Fig.3 Relationship between rotation velocity and horizontal length levitated droplet

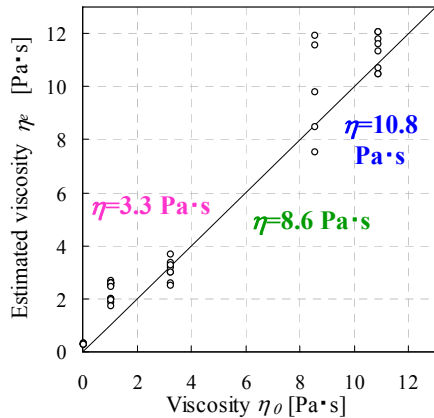


Fig.4 Estimated viscosity

2.2 超音波浮遊実験

超音波により浮遊装置では、物性に関わらず大型の液滴を浮遊させ、その内部流動を観測することができる。本研究では、観測された画像に対し、多次元PIV解析を施すことによって液滴内部の流動状況を評価し、粘性の異なる液滴の内部流動状況を把握することとした。

大型浮遊液滴の界面大変形に伴う液滴内部ならびに周囲流体の非線形でダイナミックな流動場を計測するために Fig.5 に示すような3次元PIVシステムを構築し、Fig.6 に示すような流れ場が計測されている。この結果より、Fig.7 の右図に模式的に示すように、浮遊液滴界面を境とする液滴内側と外側の流速方向が逆方向になっていることが分った。これは、振動流に対する Schlichting の理論に示されるストークス層内での循環によってもたらされたものと推定されるが、線形理論からはストークス層の厚さが十数 μm と評価されており、このように極めて薄い層の存在そのもの、ならびにそのように薄い層内で循環が存在しうるか、についての科学的な証明はいまだなされていない。浮遊液滴内外の流動挙動や凝固ならびに相変化挙動は、このような液滴表面での流動の微細構造に支配される可能性があることから、本研究によって、ストークス層内での循環を実験的に把握し、解析的に評価することができれば、浮遊技術を用いた新たな物性測定や生化学分析のための非接触での流体プロセッシングのために必要となる、浮遊液滴の非線形ダイナミクスに関する科学的知見を得ることができる。

Fig. 8 には、水液滴とエタノール液滴の蒸発挙動計測結果を示す。水液滴の初期液滴径 d_0 は 4.4 mm、エタノールの d_0 は 2.4 mm である。図中横軸を時間、縦軸を初期径で無次元化した液滴径の二乗 $(d/d_0)^2$ としている。液滴の蒸発挙動を示す理論として式(1)に示す単一液滴の拡散による蒸発の式が知られている⁽⁵⁾。

$$\left(\frac{d}{d_0}\right)^2 = 1 - \left\{ \frac{8DM}{\rho_l R} \left(\frac{P_s}{T_s} - \frac{P_\infty}{T_\infty} \right) \right\} \frac{t}{d_0^2} \quad (1)$$

式(1)中の D は拡散係数、 M は分子量、 ρ_l は密度、 R

は気体定数、 P は蒸気圧、 T は温度、添え字の s は液滴表面、 ∞ は周囲気体を表している。式(1)から、液滴は径の二乗相当の液滴の表面積を通して蒸発することが分かる。実験結果について、水液滴では、液滴径が 15 分の間に一定の割合で減少し、理論と良い一致を示している。対してエタノール液滴は水と比較すると 0 s から約 350 s までの間に急激に蒸発し理論と一致している。しかし、それ以降で蒸発率が変化し傾きが緩やかになっており、理論値が線形的に変化するのに対して実験値は二段階の変化を示し、理論よりも実験値のほうが液滴径の減少割合が小さいことが分かる。

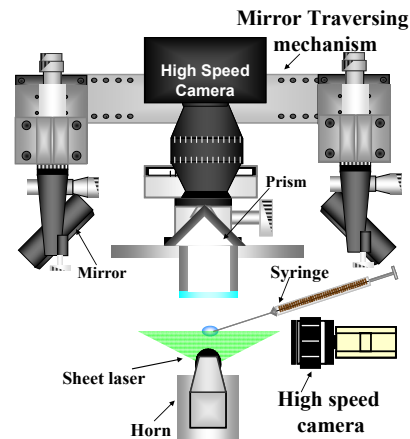


Fig.5 Three dimensional measurement system with ultrasonic levitation apparatus

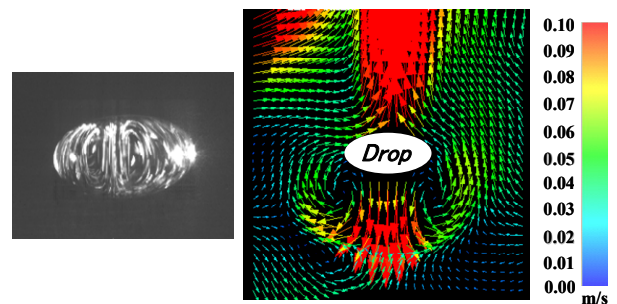


Fig.6 Visual observation results

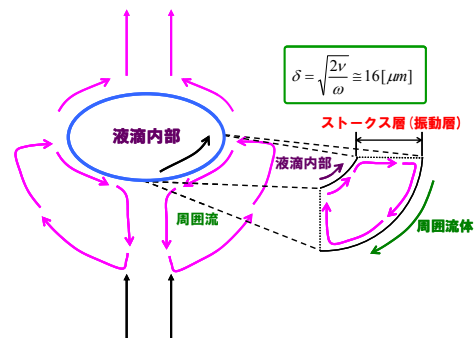


Fig.7 Schematic diagram of Stokes layer

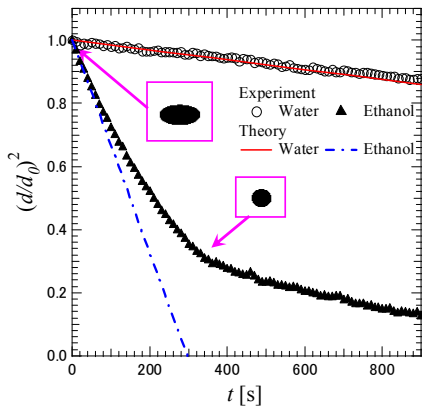


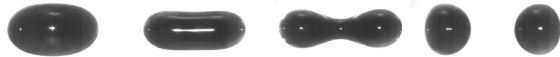
Fig.8 Evaporation behavior of a levitated droplets

3. 解析

3.1 理論解析

浮遊液滴に誘起される非線形でダイナミックな挙動を記述する理論的な解析手段は、未だ構築されていない。従来の摂動法では、低次の近似ではこのような大変形を伴う非線形挙動を記述することはできず、高次の近似ではその解を求めることが極めて困難になるためである。本研究では、Fig.3 に示す一般的な曲面の大変形運動を厳密に記述することのできる微分幾何学的枠組みを構築し、界面の非線形ダイナミクスを解析し、Fig.9 のように、実験との比較検討を行い、その適用を可能としている。

Experiment



Analytic Solutions

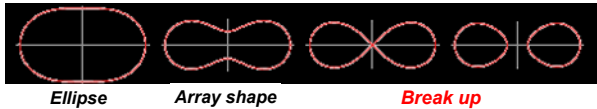


Fig.9 Analysis of rotating droplet shape

3.2 数値解析

浮遊液滴の多次元的な非定常運動を数値解析するために、レベルセット法による数値解析プログラムを作成している。基礎方程式は、連続の式および非圧縮ナビエーストークス方程式である。界面位置ならびに曲率を評価するためのレベルセット関数を定義し、レベルセット関数の輸送方程式を解くことで求めている。このシミュレーションコードを用いて、浮遊液滴の内部ならびに外部の流動を解析した結果を、渦度場として Fig.10 に示す。Fig.6 に示す PIV 計測結果と定性的に一致する結果となっており、浮遊液滴の非線形でダイナミックな挙動が再現できる可能性が示された。

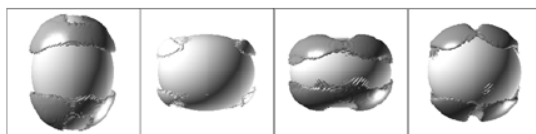


Fig.10 Numerical simulation result

5. 結言

- 静電浮遊システムを用いて空間に浮遊させた浮遊液滴の非線形でダイナミックな界面変形や振動や回転の挙動に関する実験的な知見を得ることができた。
- 得られた知見を用いて、これまで不可能であった 10^{-1} から 10^2 [Pa·s] までの広範囲の粘性領域に適用する粘性係数測定方法を新たに構築した。
- 浮遊液滴界面を境とする液滴内側と外側の流速方向が逆方向になっていることが分かった。これは、振動流に対する Schlichting の理論に示される Stokes 層内での循環によってもたらされたものと推定される。
- これらの実験と同時に、浮遊液滴の非線形を含む界面変形を取り扱うための微分幾何学的枠組みを用いた界面変形に対する新しい非線形理論の構築を行って、浮遊液滴の回転時の変形挙動を再現することができた。
- 浮遊液滴界面の非線形でダイナミックな挙動や内部での流動を再現するための多次元で非定常の数値解析手法を用いた解析を行って、浮遊液滴内外の流動場の予測が可能であることを示した。
- 今後、静電浮遊システムならびに超音波浮遊システムを用いた液滴浮遊実験を実施するとともに新しい非線形理論の構築と数値解析の実施をさらに実施することによって、浮遊液滴の非線形ダイナミクスを解明し、将来の宇宙環境下での浮遊実験に資する科学的知見を得てゆくこととする。

参考文献

- 1) P. F. Paradis, T. Ishikawa, and S. Yoda, Journal of Material Science, Vol.36, pp.1-6, (2001).
- 2) S. K. Chung, E. H. Trinh, Journal of Crystal Growth, Vol.194, No.3-4, pp.384-397, (2002).
- 3) R. Tucheran, et. al., Anal. Bioanal. Chem., Vol372, pp.122-127, (2002).
- 4) S. Santesson, et. al., Anal. Chem, 76 (2), pp.303-308, (2004).
- 5) A. Frohn, N. Roth, Dynamics of Droplets, pp.29-38, (2000).
- 6) Ohsaka, K., Rednikov, A., Sadhal, S.S., and Trinh, E.H., Vol. 73(5), 2796-2801 (2002).
- 7) Onodera, H., Master Thesis, Tokyo institute of Technology (2004).
- 8) Abe, Y., Awazu, S., Matsumoto, S., Watanabe, T., and Nishinari, K., Progress Multiphase Flow Research, Vol. 2, 63-70 (2007).