

# 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), 須田捷生 (筑波大・院), 渡辺輝光 (筑波大・院), 本田恒太 (筑波大・院)

## Non-linear Dynamics of Levitated Droplet

Yutaka Abe, Satoshi Matsumoto, Katsuhiro Nishinari, Tadashi Watanabe, Hiroyuki Kitahata, Koji Hasegawa\*, Akiko Kaneko, Toshiki Suda, Terumitsu Watanabe, Kota Honda

\*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

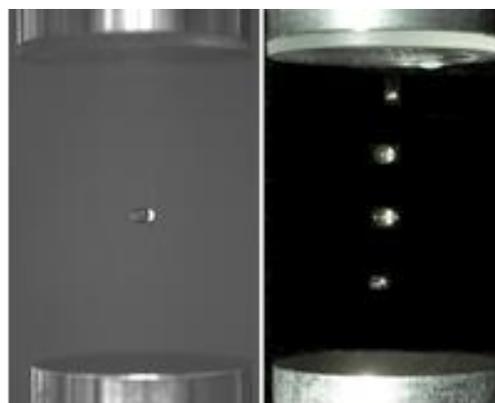
### 1. 緒言

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>1-30)</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>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、非接触流体制御に必要な不可欠な浮遊安定性を向上させることを目的とする。具体的には、音場浮遊液滴の微粒化挙動を可視化するとともに、界面不安定性モデルと比較することで浮遊液滴の安定浮遊領域の特定を試みた。

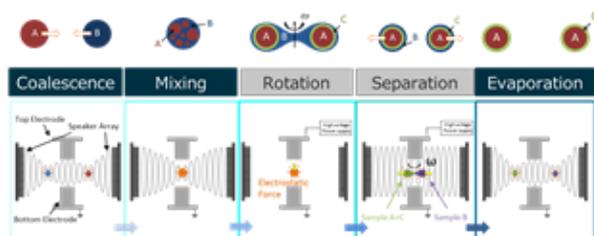


Fig. 2 Concept of contactless sample manipulation in air.

### 3. 浮遊液滴の微粒化ダイナミクス

Fig. 3 にエタノール液滴およびシリコンオイル液滴の浮遊領域を示す。図中、横軸は液滴径、縦軸は入力電圧を示している。また、安定浮遊条件を○、微粒化条件を×で示している。実験では、液滴の安定浮遊後、液滴が微粒化するまで印可電圧を0.5 V刻みで段階的に増加させた。この結果より、液滴径の増加に伴い、低電圧で液滴の微粒化が生じる傾向が確認された。これは液滴径の増加に伴い、界面保持が困難になり、相対的に小さな電圧上昇でも界面の不安定性が生じたためであると考えられる。

Fig. 4 にエタノールとシリコンオイルの液滴の微粒化過程を示す。微粒化時を時刻  $t = 0$  ms とし、音圧を-6 ms から上昇させた。液滴は初期形状 (-6 ms  $\leq t \leq -3$  ms) から徐々に扁平し、ARが増加していく。-3 ms 時より液滴の扁平化が加速され、微粒化に至った。微粒化直後において、エタノールの2次液滴はシリコンオイルよりも微細であった。これはシリコンオイルに比べてエタノールが低粘度のためであると考えられる。

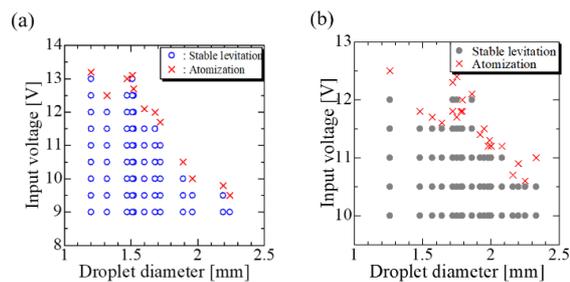


Fig. 3 Levitation maps of droplets in acoustic levitation: (a) ethanol, (b) silicone oil.

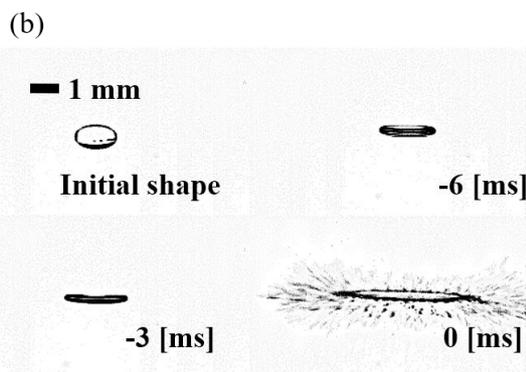
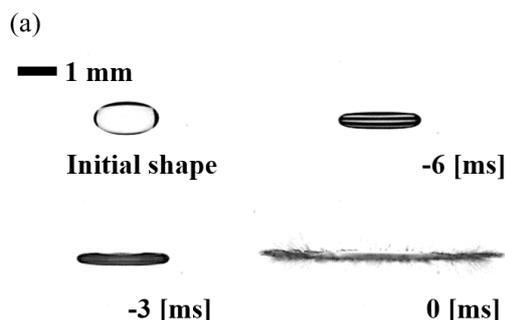


Fig. 4 Droplet atomization: (a) ethanol, (b) silicone oil.

Fig. 5 にエタノール液滴のアスペクト比の時系列変化を示す。図中、横軸は時刻を示し、微粒化開始時点の時刻を0 ms とした。縦軸はアスペクト比を示す。入力電圧は0.5 V ずつ段階的に増加させた。液滴のアスペクト比は  $t < -6$  ms (12.0 V) までは緩やかに線形的に上昇しつつも、液滴は安定して浮遊する様子が確認できた。一方で音圧を上昇させた  $t \geq -6$  ms (12.5 V) 時に液滴界面に表面張力波が形成され、アスペクト比が非線形的に上昇する挙動が確認された。これは音響放射力と表面張力の平衡状態の保持が不可能となったことに加え、表面張力波による界面の不安定性が促進されたことで臨界アスペクト比を上回ったためであると考えられる。また、理論的に予測される臨界アスペクト比<sup>37</sup>である8と比較すると、 $t = -6$  ms 時点を通り越した場合は、 $AR = 4.2$  で

あり、低い臨界アスペクト比を示した。これは理論では一様流での界面不安定性および微粒化を仮定しているものの、フェーズドアレイにより形成される音場はより複雑化し、かつ液滴界面近傍の流動場が非一様流であることが要因であると考えられる。

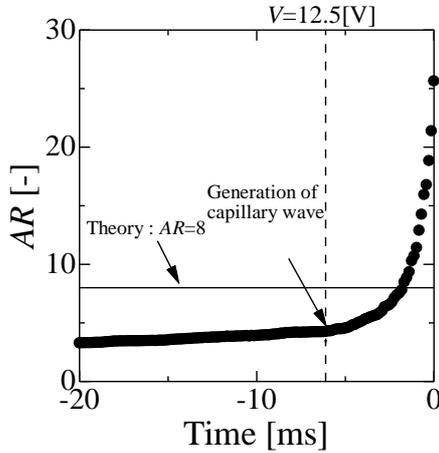


Fig. 5 Time evolution of aspect ratio of ethanol droplet.

Fig. 6 にはエタノール液滴の微粒化過程を液滴上部から可視化観測した結果を示す。撮影速度は 8500 fps, 空間解像度は 20  $\mu\text{m}/\text{pixel}$  に設定した。液滴は、初期形状から半径方向へ拡大し、液滴界面端部から微粒化が生じる様子が確認された ( $t = 0 \text{ ms}$ )。微粒化後には界面端部から生じた同心円状の波立ちが中心方向に伝播する過程が観察された ( $t=2.70\sim 5.40 \text{ ms}$ )。一方で、液滴端部付近において帯状の円環帯が形成され、時間経過と共に中心部に収縮し、中心部での衝突により液体が剥離し、0 ms 時の微粒化径より大きな液滴が飛散する様子が確認された。これは音響放射圧によって液滴扁平時に表面張力波が生じた後、波立ちにより液滴の微粒化が促進され、その後液滴は拡大の反動で中心部に収縮したためであると考えられる。

Fig. 7 (a)には微粒化に至るまでの液滴界面の拡大速度の時系列変化を示す。印可電圧の上昇後、特に -2 ms 以降で拡大速度が非線形的に増加した。これは印可電圧の上昇に伴い液滴に加わる音響放射圧が増大し、拡大速度も上昇したものと考えられる。また本体系での Kelvin-Helmholtz 不安定性に基づく臨界速度<sup>38)</sup>を式(1)に示す。

$$v_{crit} = \sqrt{\frac{2(\rho_d + \rho_a)}{\rho_d \rho_a} \sigma (\rho_d - \rho_a) g}, \quad (1)$$

ここで、 $\rho$  は密度、 $\sigma$  は表面張力、 $g$  は重力加速度を、添え字の  $d$  は液滴を、 $a$  は空気を示す。式(1)より得られる本体系での臨界速度は、約 4.75 m/s であり、Fig. 7(a)中の破線を示す。Fig. 5 では臨界速度は約 4.75 m/s

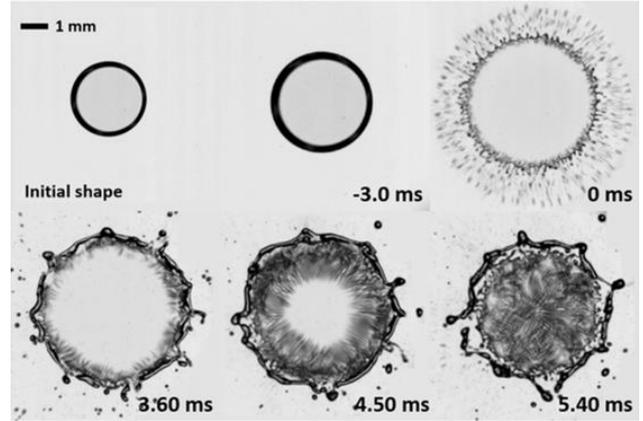
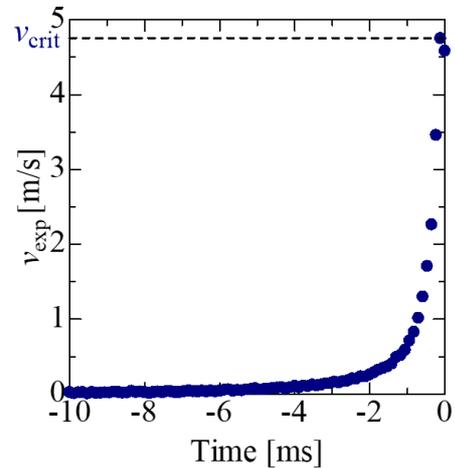


Fig. 6 Atomization of an ethanol droplet. (Atomization occurs at 0 ms).

(a)



(b)

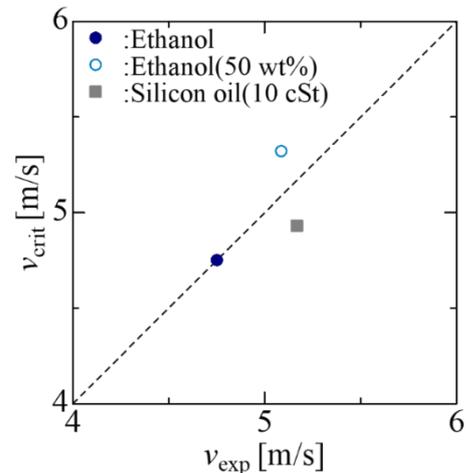


Fig. 7 Breakup mechanism of droplets during acoustic levitation: (a) Time evolution of the interfacial velocity of an ethanol droplet, (b) Comparison of the experimental data with theoretical prediction.

( $t=0$  ms)となり、両者は定量的に一致した。Fig. 7 (b) に本報で調査した全ての液滴での界面速度をまとめた結果を示す。いずれの場合も、式(1)から導かれる理論予測が実験値と良く一致していることが示された。しかしながら、空気中の音速 ( $c\sim 346$  m/s) に比べて、ここで求めた液滴の界面速度および理論予測 ( $\sim 5$  m/s) は遥かに小さく、その速度スケールの差に対する物理的な説明が必要である。ここで線形音場を仮定した場合の媒質中の粒子速度 ( $U = P/(\rho_a c)$ )<sup>39)</sup> を考える。仮に音圧  $P$  を 2 kPa、空気の密度  $\rho_a$  を 1.18 kg/m<sup>3</sup>、音速  $c$  を 346 m/s として計算すると、約 4.90 m/s の粒子速度が得られる。これは Fig. 7(b)中に示す臨界面速度と概ね一致する。

#### 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、「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。

本報では音場浮遊液滴の微粒化挙動を解明し、液滴の非接触制御時の浮遊安定性を向上させることを目的とした。本報では、空間内の音圧を上昇させることで浮遊液滴を微粒化させ、その過程を可視化計測するとともに、その界面拡大速度と Kelvin-Helmholtz 不安定性に基づく臨界速度と比較し、議論した。音響場に浮遊する液滴が微粒化した後には、2次液滴が生成され、液滴界面から放射状に広がっていくことがわかった。微粒化した液滴上のキャピラリー波が微粒化を誘発し、微粒化した2次液滴のサイズ分布が決定されることが考えられる。

本報では、浮遊液滴の微粒化メカニズムを定量的に議論したものの、その詳細理解には、浮遊液滴界面に生じる圧力場と速度場の直接測定が必要であること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) W. J. Xie et al., Appl. Phys. Lett., 89, 214102 (2006).
- 32) L. Puskar et al., Lab on a Chip, 7, 1125-1131 (2007).
- 33) E. T. Chainani et al., Anal. Chem., 86, 2229-2237 (2014).
- 34) M. Sundvik et al., Sci. Rep. 5, 13596 (2015).
- 35) C. Bouyer et al., Adv. Matter, 28, 161-167 (2015).
- 36) T. Hoshi et al., Jpn. J. Appl. Phys. 53, 07KE07, (2014).
- 37) S. D. Danilov et al., J. Acoust. Soc. Am., 92(5), 2747-2755, (1992).
- 38) M. Naka et al., Phys. Fluids, 32(12), 124109, (2020).
- 39) A. L. Yarin et al., J. Fluid Mech., 399, 151-204, (1999).