【論文】

静電浮遊液滴の回転分裂挙動を用いた 非接触粘性測定法の開発

Development of non-contact technology for measuring viscosity using breakup of rotating drop

前川知之* 松本聡** 阿部豊*** 金子暁子***

Tomoyuki MAEKAWA, Satoshi MATSUMOTO, Yutaka ABE, and Akiko KANEKO

The electrostatic levitation is utilized as one of the containerless processing techniques. Some recent investigations focus on thermal property measurement of high temperature molten metals with an oscillating droplet method. For example, viscosity has been estimated from the damping constant. However, this method is limited to the low viscosity fluid. Thus, the purpose of the present study is to develop method of wide viscosity measurement on a levitated liquid droplet. In the present study, the droplets with kinds of viscosity were levitated by the electrostatic force. Droplet deformation was induced by applying rotation. The followings are obtained connection rotational breakup and viscosity. The observed dynamics indicated that it is possible to measure physical property of levitated droplet.

[**Keywords:** levitated droplet, rotation, breakup, thermo physical property measurement]

1. はじめに

通常、熔融金属の熱物性測定の際、試料を保持するために、耐火多孔質のつぼなどの容器が必要である。しかし熔融金属の温度が約 2000°C を超えると、容器が耐えられなくなるため、容器接触型の熱物性測定法は適用できない。静電力で物体を浮かせる静電浮遊法を用いると、容器を必要とせず、物体をある空間に保持でき、試料に対して擾乱が少ないことから、未だ実測値のない超高温融体の熱物性測定に用いられている[1-2]。既存の物性測定法には、浮遊液滴に微小振動を印加し、この振動の減衰時間から粘性係数を、液滴の共振周波数から表面張力係数を算出する液滴振動法がある。

* 筑波大学大学院システム情報工学研究科, 〒305-8573 つくば市天王台 1-1-1. Graduate school of systems and information Engineering, University of Tsukuba, 1-1-1 Tennodai, Ibaraki 305-8573. FAX: 029-853-5487
E-mail: maekawa@edu.esys.tsukuba.ac.jp

** 宇宙航空研究開発機構, 〒305-8505 つくば市千現 2-1-1. Institute of Space and Astronautical Science, Japan Aerospace Exploration Agency, 2-1-1 Sengen, Ibaraki 305-8505.
FAX: 029-868-3956 E-mail: matsumoto.satoshi@jaxa.jp

*** 筑波大学大学院システム情報工学研究科, 〒305-8573 つくば市天王台 1-1-1. Institute of Engineering Mechanics and Systems, University of Tsukuba, 1-1-1 Tennodai, Ibaraki 305-8573.
FAX: 029-853-5266 E-mail: abe@kz.tsukuba.ac.jp

*** 筑波大学大学院システム情報工学研究科, 〒305-8573 つくば市天王台 1-1-1. Institute of Engineering Mechanics and Systems, University of Tsukuba, 1-1-1 Tennodai, Ibaraki 305-8573.
FAX: 029-853-5763 E-mail: kaneke@kz.tsukuba.ac.jp

しかし高粘性流体の場合、変形振動を誘起できないため、既存の非接触物性測定法の適用範囲は粘性係数 $\eta = 10^{-1}$ Pa·s 以下と限定されている。一方、非常に粘性の高い流体の粘性計測法として、Ohsaka らにより形状緩和法(Shape relaxation method)が提案されている[3]。これは、回転により変形した浮遊液滴の回転を止め、液滴が球状に戻るまでの時間から粘性係数を求める手法であり、適用範囲は $\eta = 10^2$ Pa·s 以上となっている[3]。よって、BaTiO₃などの溶融酸化物では粘性係数が 10^{-1} Pa·s $< \eta < 10^2$ Pa·s の範囲にあるものが多く、それら高温融体の粘性係数測定は困難である。そのため、本研究では新たな粘性係数測定方法の確立を目的とし、静電浮遊液滴の回転挙動を観測した。回転数と液滴形状の関係、液滴形状の時間変化を調べ、新たな物性測定の可能性を検討した。

2. 実験装置および実験条件

2.1 静電浮遊装置の原理

本実験では、浮遊法の中でも静電気力を用いて物体を浮遊させる静電浮遊法を用いる。静電浮遊法の原理を Fig. 1 に示す。まず液滴の表面を正に帯電させ、自重に打ち勝つほどのクーロン力を鉛直上向きに発生させ、液滴を浮かせる。同時にポジションディテクターにより浮遊液滴の位置を検出し、自重とクーロン力が釣り合うように上電極の電圧を調整する。この位置検出と電圧調整を高速

で制御することで液滴をある位置に保持することが可能である。

Fig. 1 Conceptual diagram of the electrostatic levitation

2.2 実験装置

本実験で用いた静電浮遊装置の概略図を Fig. 2 に示す。図中の装置中央にアクリル製チャンパー(f)を配置し、その内部には上下に対となる電極(h)(i)を設置する。下電極に取り付けられたシリンジ(j)から試料流体を注入し、下電極に正電圧を印加することで、液滴の表面を帯電させる。He-Ne レーザ(a)とフォトディテクター(b)で液滴の位置情報を常時検出する。液滴の自重とクーロン力が釣り合うように、PID 制御により上電極の負電圧を高速で調整することで、安定した浮遊を行う。またチャンパー側面にラインセンサー(c)を設置し、液滴の初期直径および液滴の振動振幅の時系列データを取得する。さらにチャンパー側面には、それぞれの中心軸が直交するように 2 つの音響スピーカ(g)を設置する。これはチャンパー内で音響定在波を発生させ、液滴に回転トルクを付与し、鉛直軸周りの回転を誘起する[4]。スピーカへの入力電圧を調整することで液滴の回転数を制御する。回転液滴は、高速ビデオカメラ(d)(l)で水平方向および鉛直方向から同時に撮影される。上電極には、導電性ガラスを埋め込み、上部可視化が可能となっている。液滴にはあらかじめトレーサ粒子(ナイロン粒子、直径 9~13 μm)を混ぜ、撮影動画から粒子を追跡することで回転数を計測する。またその動画から回転液滴の形状変化を計測する。ナイロン製トレーサは試料流体と比べて誘電率が低いため、電場による外力を受けづらく、液滴の流動に追従すると考えられる。

2.3 試料流体および実験条件

本実験では、低粘性流体としてプロピレンカーボネートを、高粘性流体としてグリセリンとグルコースの混合

液を用いる。この混合溶液が均一に混ざり合うまでを攪拌を行った。試料流体の物性値を Table 1 に示す。実験は全て常温常圧下で行い、液滴の初期直径は 2.0 mm 前後とする。Table 中の表面張力係数は(株)協和界面科学社製の表面張力計によりプレート法で計測された実測値であり、動粘度は毛細管粘度計である HANSEN 社製の高精度粘度計 LAUDA Viscoboy2 により計測された実測値である。

Table 1 Physical property of test fluid

	Kinematic viscosity ν mm^2/s	Specific gravity	Surface tension σ mN/m	Viscosity η $\text{Pa}\cdot\text{s}$
Distilled water	0.893	1.00	72.8	0.00089
Propylene carbonate	2.12	1.21	42.6	0.0026
Glycerol	829	1.27	63.0	1.0
Mixture no.1	1544	1.29	63.0	2.0
Mixture no.2	2461	1.32	65.1	3.3
Mixture no.3	6422	1.34	66.0	8.6
Mixture no.4	8020	1.35	66.4	10.8

Fig. 2 Schematic of experimental apparatus

3. 実験結果および考察

3.1 低粘性流体の回転挙動

低粘性流体であるプロピレンカーボネートを用いて、水平方向から回転液滴挙動を撮影した。代表的な回転液滴の形状を Fig. 3 に示す。回転軸に対して軸対称形状である a), b) は、それぞれ球体、回転楕円体である。一方、伸張方向に対して軸対称形状である c), d) は楕円球、ダンベル形状である。e) は回転分裂した瞬間の液滴である。浮遊液滴にかかるトルクを増加すると、液滴は軸対称形状から非軸対称形状に移し、分裂に至る。また低粘性流体が回転分裂する際、液滴は三つに分かれ、回転中心に微小なサテライト液滴が発生する。

次に実験結果と数値計算結果を比較するため、観測画像から液滴の回転数と水平方向長さを読み取る。この結果を Fig. 4 に示す。グラフの横軸は、無次元回転数 Ω/ω_0 、縦軸は、無次元水平方向長さ L_{max}/D_0 である。ここで Ω 、 ω_0 はそれぞれ液滴の回転数、共振周波数、 L_{max} 、 D_0 はそれぞれ液滴の r 方向の最大長さ、液滴の初期直径とする。液滴の共振周波数 ω_0 を求めるときは、下電極に sine 波の電圧を印加し、浮遊液滴に微小な振動を励起する。次にレーザー変位計により液滴の振動振幅の時系列データを取得し、高速フーリエ変換を行うことで液滴の共振周波数 ω_0 を定める。またグラフ内の実線および点線は、Brown & Scriven[5] の数値計算結果である。実線は回転軸に対して液滴が軸対称形状である場合の計算結果であり、点線は液滴が 2 つに分裂する場合の計算結果である。さらに $\Omega/\omega_0=0.26$ の点線は、安定した液滴形状の限界を示す。この計算モデルでは、非粘性非圧縮性の流体を仮定し、一連の回転挙動において体積は常に一定で、表面張力によるエネルギーと回転運動エネルギーのみが釣り合うエネルギーバランスから液滴の水平方向長さと回転数の関係を算出している。

実験結果を白抜きプロットで示し、試験流体は低粘性流体であるプロピレンカーボネートである。回転数の増加に伴い、液滴の r 方向の最大幅である L_{max} は増加する。しかし $\Omega/\omega_0=0.58$ 付近で回転数は減少に転じ、同時に軸対称形状から非軸対称形状に移す。そして $\Omega/\omega_0=0.26$ 付近で回転分裂に至る。グラフより、Brown らの計算結果と実験結果はよく一致する。

Fig. 3 Rotational dynamics of low viscous fluid

Fig. 4 Correlation between the normalized velocity and the maximum normalized length

3.2 高粘性流体の回転挙動

高粘性流体であるグリセリンとグルコースの混合溶液 no. 1 を用いて、水平方向から回転液滴挙動を撮影した。観測画像を用いて代表的な回転液滴の形状を Fig. 5 に示す。a'), b'), c'), d') は、それぞれ球体、回転楕円体、楕円球、ダンベル形状であり、低粘性流体の回転挙動と同様の傾向を示す。しかし粘性流体が分裂する直前である e') において、低粘性流体のようにサテライト液滴は発生せず、液滴中心部が糸状(破断糸)になり、液滴は二つに分裂することがわかる。

次に混合溶液 no. 1 より粘性の高い混合溶液 no. 4 の回転挙動を観測し、そこで得られた液滴の回転数と水平方向長さの関係を Fig. 6 に示す。実験結果は、黒塗りプロットで示し、グラフより、軸対称形状から非軸対称形状に移行し、分裂直前の $\Omega/\omega_0 = 0.26$ までは数値計算結果とよく一致するが、 $\Omega/\omega_0 < 0.26$ で L_{max}/D_0 の数値結果と大きく異なることがわかる。これは回転分裂直前で粘性の影響が顕著になったと考えられる。詳細に観測すると、回転分裂直前の液滴形状は不安定であり、分裂に向かって非定常に変化する。分裂直前で液滴の中心部直径は減少し、水平方向の長さは増加する。この急激な形状変化により粘性力が抵抗力となり、切れずに水平方向に伸び続けたと考えられる。

Fig. 5 Rotational dynamics of viscous fluid

3.3 回転分裂挙動を用いた粘性測定法

回転分裂する液滴のくびれ部分に着目し、Kolte & Szabo[6]による破断糸における力のつり合いの式を本実験体系に適用した。これを式(1)に示す。また本実験体系では伸長方向と重力の方向が一致しないので、重力が分裂に影響与えないとした。これにより粘性係数は、表面張力 σ と液滴の中心部直径 D_{mid} の時間変化の比で求まることできる。粘性が高い流体ほど、中心部直径の縮まる速度が遅いという現象を表現できている。

$$\eta_e = \frac{-\sigma}{dD_{mid} / dt} \quad (1)$$

3.4 回転印加が回転挙動に与える影響

トルクのかけ方の違いで、回転分裂挙動に及ぼす影響を調べるために、二つの異なる回転印加条件で実験を行う。また液滴の回転は、音響スピーカーの音圧で調整可能である。浮遊液滴に対して、十分に分裂しうる音圧を瞬時に印加した場合(in the case of step)と、階段状に徐々に

Fig. 6 Correlation between the normalized velocity and the maximum normalized length

音圧を上昇させながら印加した場合(in the case of stepwise)で、液滴中心部直径の時間変化を比較する。音圧を瞬時に印加した場合、浮遊液滴は軸対称から非軸対称に形状変化し、音圧を印加したところから数秒で分裂する。徐々に音圧を印加した場合、浮遊液滴はダンベル形状で準安定状態となり、次の瞬間に回転分裂する。

高粘性流体として $\eta=2.0 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ の混合溶液 no. 1 を用いた瞬時に音圧を印加した場合の実験結果を Fig. 7(a)と(b)に、徐々に音圧を印加した場合の実験結果を Fig. 8(a)と(b)に示す。縦軸は液滴の中心部直径 D_{mid} ，横軸は回転分裂時を 0.0 sec とした時間軸とする。ただし液滴が回転軸に対して軸対称である場合は中心部直径を水平方向長さとしている。グラフ内には液滴初期直径 D_0 が 1.9 から 2.8 mm の結果を示す。Fig. 7(a)によると、-1.0 sec 付近を越えて、中心部直径が急激に減少している。これは液滴が軸対称形状から非軸対称形状に遷移した瞬間である。

(a) Midpoint diameter

(b) Top view of levitated drop

Fig. 7 Rotational dynamics of high viscous fluid in the case of step input

(a) Midpoint diameter

Initial
condition
 $D_0=2.82 \text{ mm}$
 $\eta = 2.0 \text{ Pa}\cdot\text{s}$

(b) Top view of levitated drop

Fig. 8 Rotational dynamics of high viscous fluid in the case of stepwise input

Fig. 8(b)によると、Fig. 8(a)内の全てのプロットは非軸対称形状である。また約-3.0 sec から-0.6 sec の間が、液滴が次の瞬間分裂に至る準安定状態である。Fig. 7, 8 によると、液滴初期直径によらず、分裂に向かうほど中心部直径は収束することがわかる。すなわち回転の印加方法の違いは、液滴の体積によらず、物性に依存し、粘性を決定できることが示唆される。

3.5 回転分裂挙動を用いた粘性測定結果

回転分裂直前の中心部直径の時間変化を粘性算出式(1)に代入し、粘性算出結果を Fig. 9 に示す。グラフの横軸はウペロード粘度計で計測した値を示し、縦軸は式(1)より算出した粘性係数を示す。グラフ内の白抜きのプロット、黒塗りのプロットは、それぞれ瞬時に音圧を印加した場合の実験結果、徐々に音圧を印加した場合の実験結果である。同一の試料流体で複数回実験し、粘性算出値

の平均値をプロットで示し、エラーバーを標準偏差で表している。同じグラフより、実測値よりも粘性算出値の方が高い値を示すが、実測値と粘性算出値は比較的一致することがわかる。回転液滴が分裂する直前には、急激な形状変化に伴うため、粘性力だけでなく表面張力などが液滴の形状変化を妨げる方向に力が働き、液滴のくびれ部が縮みづらくなる。式(1)は近似式であり、曲率を1と仮定していることから、回転分裂直前の中心部直径の時間変化が低い値となり、粘性算出値が実測値よりも大きく見積もられた可能性があると考えられる。より精度を上げるためには、時々刻々変化する曲率の評価を含め、実際に液滴の破断部に作用する力として表面張力などを考慮する必要があると考えられる。

4. 結 論

静電浮遊液滴の回転分裂挙動から粘性測定を行った結果、以下の結論が得られた。粘性の影響が顕著になる回転分裂挙動を観測することで、粘性係数を算出した。これらにより以下の知見が得られた。

1. 粘性液滴の回転分裂挙動において、液滴の中心部の時間変化を利用することで、粘性係数を見積もることができた。
2. 徐々に音圧を印加する場合と瞬時に音圧を印加する場合で粘性を算出した結果、粘性係数 $\eta=2.0 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ の高粘性流体においては大きな違いは見られなかった。
3. 粘性範囲 $1 \text{ Pa}\cdot\text{s} < \eta < 10 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ において、液滴の回転挙動を利用することで非接触粘性測定の可能性が示唆された。

[謝辞]

本研究は、宇宙航空研究開発機構 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。本研究を実施するにあたり、東京大学の西成活裕教授、日本原子力研究開発機構の渡辺正研究主幹には貴重なご助言を頂いた。ここに記して感謝の意を表する。

NOMENCLATURE

- η : Viscosity, $\text{Pa}\cdot\text{s}$
 ν : Kinematic viscosity, mm^2/s
 σ : Surface tension, mN/m

- Ω : Rotational velocity, Hz
 ω_0 : Resonance frequency, Hz
 D_0 : Initial diameter, mm
 D_{mid} : Midpoint diameter, mm
 L_{max} : Maximum length, mm
 η_0 : Measured viscosity, $\text{Pa}\cdot\text{s}$
 η_e : Estimated viscosity, $\text{Pa}\cdot\text{s}$

Fig. 9 Estimated viscosity

参考文献

- [1] W. K. Rhim, K. Ohsaka, P. F. Paradis, and R. E. Spjut ; "Noncontact technique for measuring surface tension and viscosity of molten materials using high temperature electrostatic levitation", *Rev. Sci. Instrum.*, **70** (1999) 2796-2801.
- [2] T. Ishikawa, P. F. Paradis, and S. Yoda ; "Noncontact surface tension and viscosity measurements of rhenium in the liquid and undercooled states", *Appl. Phys. Lett.*, **85** (2004) 5866-5868.
- [3] K. Ohsaka, A. Rednikov, S. Sadhal and E. H. Trinh ; "Noncontact technique for determining viscosity from the shape relaxation of ultrasonically levitated and initially elongated drops", *AIP Conf. Proc.*, **73** (2002) 2091-2099.
- [4] W. K. Rhim, S. K. Chung, and D. D. Elleman ; "Experiments on rotating charged liquid drops", *AIP Conf. Proc.*, **197** (1990) 91-105.
- [5] R. A. Brown, and L. E. Scriven ; "The Shape and Stability of Rotating Liquid Drops", *Proc. R. Soc. Lond.*, **371** (1980) 331-357.
- [6] M. I. Kolte, and P. Szabo ; "Capillary Thinning of Polymeric Filaments", *J. Rheology.*, **43** (1999) 609-626.

[Received Mar. 29, 2011, Accepted Nov. 30, 2011]