浮遊液滴の非線形挙動に関する研究*

(静電浮遊液滴の振動・回転に対する変形挙動)

Study on Nonlinear Behavior of Levitating Liquid Drop

Deformation behavior to oscillation and rotation of electrostatic levitated drop

阿部 豊** 栗津 茂** 松本 聡***
 ABE Yutaka AWAZU Shigeru MATSUMOTO Satoshi
 渡辺 正† 西成 活裕††
 WATANABE Tadashi NISHINARI Katsuhiko

Abstract An electrostatic levitation technique is a promising method to measure physical properties of extremely high melting temperature materials, since it can avoid the effect of container. Previously, surface tension and viscosity have been calculated by an oscillating drop method based on linear approximations. However, the actual levitating drop includes nonlinear effects on the oscillation. For highly precise measurements, nonlinear effects should be taken into account. In the present study, the oscillatory motion and rotating drop of levitated drop is experimentally investigated to clarify the nonlinear effect. From the experimental results, it is clarified that the resonance frequency becomes smaller as the oscillation amplitude is larger. But, on the rotating drop, resonance frequency becomes larger as the rotation speed is increased. The result indicates that the large-amplitude oscillation includes the effect of nonlinear oscillation.

Keywords: Nonlinear, Electrostatic levitation, Oscillation drop, rotation drop

1. 緒 言

近年、スペースシャトルや宇宙ステーションでの微小重力環境を利用して、様々な研究が行われようとしてきている。微小重力環境下では、地上重力環境とは異なり、物質の密度差による浮遊・沈降や流体の密度差による対流も起こらないな

どの特徴があり、特に容器を用いることなく液体を保持できる無容器浮遊は、工業の広い範囲において利用されることが期待されている。無容器浮遊では、通常の方法製造プロセスにおいて欠くことのできない坩堝などの容器を必要とせず非接触で材料を扱うことが可能であるため、超高温溶

* 2006.11.10 受付

** 筑波大学大学院 システム情報工学研究科 〒305-8573 茨城県つくば市天王台 1-1-1
 TEL&FAX: (029)853-5266 E-mail: abe@kz.tsukuba.ac.jp

*** 宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究本部 〒305-8505 茨城県つくば市千現 2-1-1
 TEL: (029)868-3816 FAX: 029-868-3956

† 日本原子力研究所 計算科学技術推進センター 数値実験技術開発グループ
 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4
 TEL: (029)282-5029

†† 東京大学大学院 工学系研究科 〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1
 TEL: (03)5841-6596

融物を取り扱うことができる。また、容器壁からの汚染防止により極めて高純度な材料の製造が可能であること、容器壁からの核生成が抑制されることで深い過冷却状態が達成される、などの利点が挙げられる。

現在、地上重力環境下において静電力を用いた無容器浮遊によって、従来の方法では測定が困難であった融点が 3000°C を超えるようなタングステンなどの超高温溶融金属の熱物性測定が行われている[1-3]。表面張力や粘性係数の測定では、液滴振動法が適用される。表面張力測定においては、液滴の動的変形から固有振動数を特定し、Rayleigh [4]や Lamb [5]によって線形近似を基に導出された固有振動数と表面張力の線形理論の関係式により値を算出している。しかし、浮遊液滴の固有振動数を特定するために印加される軸対称振動や、安定浮遊を促すために印加される回転により液滴形状が大きく変化すると、液滴の非線形効果が顕著になるため、熱物性測定において線形関係式が適用できなくなり、測定に大きな誤差を与えることが懸念される。液滴の変形に対する非線形効果は、現段階では詳細に解明されてはおらず、この浮遊液滴に対する非線形効果の解明は、熱物性測定への寄与だけでなく、過去1世紀以上に渡り続けられてきた浮遊液滴の変形挙動に関する研究の発展につながるものと考えられる。

本研究では、線形理論での熱物性測定の限界や、大振幅・大変形時の浮遊液滴における非線形効果を解明することを目的としている。液滴の無容器浮遊技術としては、音波や電磁力を利用する方法に比べて比較的安定に真球に近い液滴を保持できる静電浮遊技術を用い、常温・大気圧下での液滴浮遊を行った。また、液滴振動法による表面張力測定を行い、測定誤差となりうる要因について検討した。次に大振幅振動、または回転印加時の液滴挙動観測を行い、液滴形状の変形が共振周波数に与える影響を調べ、理論との比較を行った。

2. 実験装置

2.1 静電浮遊法

静電浮遊の原理を Fig.1 に示す。浮遊開始前、下電極に正の電圧を印加しておき、試料は下電極に接触させておく。これにより、試料表面は正電荷に帯電する。次に、上電極に負の電圧を印加すると、試料と上電極間にクーロン力による引力が

働き、液滴は鉛直上向きに引き上げられ浮遊する。しかしながら、これだけでは試料が安定に保持されないため、レーザー光を試料に照射し、その影を光検出器に投影することによって位置情報を検出し、検出された位置データをもとに PID 制御を行い、位置のずれに応じて上電極の電圧を調節することで、液滴の安定した浮遊が可能となる。高温溶融金属などを浮遊させる静電浮遊炉においては、試料を加熱すると電荷が減る傾向があり、このため、試料の電荷供給が必要不可欠になる。一方、本実験では、常温・大気圧下において、液滴を浮遊させるため、電荷の減少はほとんどないものとして扱うことが可能である。

Fig.1 Conceptual diagram of the electrostatic levitation.

2.2 静電浮遊装置

実験で用いた静電浮遊装置の概略図を Fig.2 (a),(b)に示す。実験装置の中央には、浮遊液滴の観察のためにアクリル製透明チャンパー (180[mm]×180[mm]×110[mm]) を配置した。その中央には、上下一対の平行電極、また、そのチャンパー周囲に、液滴の鉛直方向長さの変化を測定するためのデジタル寸法測定器、液滴の位置制御のための He-Ne レーザー、その反対側にレーザー光量調整のための偏光板とノイズ除去のためのバンドパスフィルター、液滴の影を検出する光検出器、液滴の挙動観察と液滴の回転を測定するための CCD カメラ 2 台と高速度カメラ、液滴に回転を印加させるためのスピーカーを配置した。実験における液滴径の時系列データ、および、液滴の下電極からの位置、上下電極に印加された電圧値の取り込みには、計測制御用プログラミングソフトウェア Labview によりサンプリング周波数 2400[Hz]で行った。

Fig.2 Schematic of experimental apparatus.

2.3 試験流体の選定

試験流体として、液滴の形状、界面変形などの可視が容易な流体を選定することとした。具体的な選定基準は以下に示す4点である。

- ・ 無色・透明である
- ・ 表面張力が大きく、低粘性である
- ・ 蒸発しにくい
- ・ 化学的に安定で安全な物質である

候補となった試験流体を Table 1 に示す。第一候補に挙げられる流体としては純水である。しかし、純水は不純物の影響を受けやすく、特に表面張力の測定においては大きな誤差が見られた。また、長時間の浮遊させたまま測定を行う実験では、蒸発により液滴径が変化してしまうため、液滴の表面電荷量、共振周波数のデータなどに大きな影響が出た。

他の候補流体においても浮遊実験を行った結果、表面張力が 20 [mN/m]程度の流体では、本実験装置による浮遊が不可能であった。また、浮遊出来たとしても、高粘性流体については、液滴に

振動は励起されなかった。以上のような結果より、最終的に静電力による浮遊が可能であり、かつ、上記の実験条件を満たす流体として、本実験では、プロピレンカーボネート(旭硝子株式会社 アサヒネート、化学式： $C_4H_6O_3$)を使用することとした。プロピレンカーボネートの物性値を Table 1 に示す。使用したプロピレンカーボネートの表面張力をプレート法により実測した結果、室温 25℃において 42.6 ± 0.16 [mN/m]であった。

本実験では、直径約 2 から 3 [mm]の液滴を浮遊させ、その振動挙動を観察した。

Table 1 Properties of test fluid

	融点 [K]	沸点 [K]	密度 [kg/m ³]	表面張力 [mN/m]	動粘度 [mm ² /s]
水	273.15	373.15	997.1	72.7	0.89
エタノール	159.05	351.7	785	22.3	1.4
エチレングリコール	260.6	471	1110	48.4	23
グリセリン	291	563	1263	63.4	1190
プロピレン カーボネート	223.8	514.7	1205.7	42.6	2.3
シリコンオイル 1cst			818	16.9	1.0

3. 結果および考察

3.1 液滴振動実験

浮遊させた液滴に外力による振動を印加することで、鉛直方向の振動を誘起した。外力の振動周波数を変化させ、そのときの液滴の鉛直方向長さの時間変化の測定を行った。振動の印加方法については、ファンクションジェネレータにより生成した正弦波を高速高電圧アンプにより増幅した電圧を電極に印加することにより、印加周波数と同じ周波数の振動が液滴に励起される。印加する周波数を 0.2 [Hz]刻みで増加させ、それぞれについて液滴の鉛直軸方向長さの測定を行い、時系列データから振幅を計測した。この振幅がピークとなる点を共振周波数とし、これを超える領域まで測定を行なった後、今度は印加電圧の大きさを変化させることで浮遊液滴の振幅を段階的に大きくした状態で、同様の測定を行った。

本実験において、液滴に印加される平均的外力は、下電極に面する液滴の下半分均一に与えられると仮定し、液滴の表面電荷量と下電極への印加電圧から、次式で算出することとした。

$$F_{osc} = \frac{Q}{2} E_{osc} \quad (1)$$

ここで、 F_{osc} は液滴に印加される外力、 E_{osc} は印加電圧、 Q は液滴の表面電荷量である。

3.2 印加周波数に対する振動振幅の変化

印加周波数を変えた場合の液滴振動振幅の変化を Fig.3 に示す。液滴の直径は 2.08 [mm] である。横軸は印加周波数、縦軸は振動振幅であり、印加外力を 1.92 ~ 39.2 [μ N] の間で変化させたデータをプロットした。この結果、印加外力が増加するにつれて振動振幅が増大し、また、それに伴って振幅が最大となる共振周波数の値は減少することが確認された。

Fig.3 Applied frequency versus amplitude in applied power. The diameter is 2.08 [mm].

また、Fig.3 の結果より、大振幅振動領域において、振幅が最大となる値が急激に増加する傾向が見られた。この現象についてより詳細に考察するために、同一の浮遊液滴に対し、印加周波数を増加させた後、今度は印加周波数を減少させていき、液滴の振動振幅の測定を行った。この結果を Fig.4, 5 に示す。横軸は印加周波数、縦軸は振動振幅である。黒点のプロットが印加周波数を増加させた場合、丸のプロットが印加周波数を減少させた場合である。Fig.4 は印加外力が 1.9 [μ N]、Fig.5 は印加外力 29 [μ N] の場合である。この結果、Fig.4 の小振幅振動の場合では、2 つの結果はほぼ同じ経路であるのに対し、Fig.5 の大振幅振動の場合においては、2 つの結果が同じ経路をたどらないヒステリシス特性を有しており、振幅がピークとなる共振周波数については大きく異なっていた。また、ある周波数において液滴の振幅が急激に変化する現象が確認された。

以上のようなヒステリシス特性、共振周波数の

低下、振幅のジャンプ現象については、非線形振動の特徴として挙げられる現象である[6]。これらの現象は振幅の増加とともに顕著に見られたことから、浮遊液滴の振幅増加によって何らかの非線形効果が強く現れている可能性が実験的に示唆された。

Fig.4 Applied frequency versus oscillation amplitude. The applied force is 1.9 [μ N].

Fig.5 Applied frequency versus oscillation amplitude. The applied force is 29 [μ N].

3.3 振動挙動の考察

3.3.1 小振幅振動

小振幅振動時の液滴鉛直方向長さの時系列データ、ならびにそのデータを FFT 解析した結果を Fig.6 (a),(b)に示す。片振幅を真球時の半径で割り無次元化した振幅 ε は 0.1 である。Fig.6 (a) より、振動振幅が小さい時、液滴振動は正弦波的な振動であった。Fig.6 (b) から、この振動は、102 [Hz] に単一のピークを持つ単振動であることが

分かる。この液滴に振動無印加時に測定した共振周波数は、102.5 [Hz]であり、共振周波数の大きな変化は見られなかった。また、バックライト法により浮遊液滴を横から高速カメラで撮影した振動一周分分の形状変化の画像を Fig.7 に示す。撮影速度は、1125 [fps]である。この結果より、液滴の振動が軸対称の正弦波的振動であることが確認できる。

Fig.6 Waveform and power spectrum of small amplitude oscillation ($\varepsilon = 0.1$).

Fig.7 Observation result of the drop deformation on the large amplitude oscillation. The dimensionless amplitude ε is 0.1. The time between two consecutive images is 1.8 [ms].

3.3.2 大振幅振動

大振幅振動を印加した場合の結果を Fig.8 (a),(b)に示す。無次元振幅 ε は、0.46 である。Fig.8 (a)に示す振動波形は、正弦波周期的な波形とは異なり鉛直方向に伸びたときの振幅が大きく、かつ波形も歪んでいることが分かる。Fig.8 (b)に示す FFT 解析の結果からは、86.1 [Hz]に基本周

波数のピークを持ち、振動無印加時の共振周波数 102.5 [Hz]から大きく減少している。また、その整数倍の周波数にもいくつかの強いピークが見られることから、液滴の振動に高調波成分が存在することが示唆され、これより、液滴の振動は正弦波周期の振動から歪みが生じているものと考えられる。この高調波成分のピークは、小振幅振動においては確認されなかったことから、振幅増加に起因するものと考えられる。

Figure 9 に大振幅振動時の液滴挙動を高速カメラにより撮影したスナップショットを示す。この結果から、液滴の振動が上下対称ではなく、液滴形状も複雑に変形していることが確認できる。これは、重力の影響、もしくは大振幅に伴う非線形効果の影響と考えられる。

Fig.8 Waveform and power spectrum of large amplitude oscillation ($\varepsilon = 0.46$).

Fig.9 Observation result of the drop deformation on the large amplitude oscillation. The dimensionless amplitude ε is 0.46. The time between two consecutive images is 1.8 [ms].

3.3.3 液滴鉛直方向長さの変化速度

小振幅、大振幅の液滴振動における正弦波的振動からの差異を見るため、液滴振動波形から液滴径の変化速度を算出した結果を Fig.10 (a),(b)に示す。横軸に液滴径の振動振幅、縦軸に液滴径の変化速度をとった。この結果より、小振幅振動では、微小な誤差はあるものの、実線で示した正弦波周期で振動した場合の変化速度と比較すると、点線の実験結果はほぼ一致しているが、大振幅振動では、正弦波周期の結果から大きく歪むことが確認された。これは、Fig.9 に示す液滴画像からもわかる通り、大振幅振動においては、液滴形状が上下対称ではないこと、また、液滴が伸びた場合と縮んだ場合での振幅が異なっていることなどに起因するものと考えられる。

Fig.10 Oscillation velocity versus amplitude.

3.4 振動振幅に対する共振周波数の変化

J.A.Tsamopoulos と R.A.Brown [7]は、非粘性、非圧縮性の液滴や気泡に対する非線形項を含む2次モードの軸対称振動の方程式から、摂動法を用いることで、振動振幅と共振周波数の関係式を導出した。

$$\frac{\delta f}{f_0} = -\frac{1}{2}C\varepsilon^2 \quad (2)$$

ここで、 ε は無次元振幅 (a/R)、 a は振幅、 R は液滴半径、 f_0 は共振周波数、 δf は振動無印加時の共振周波数からの変化量、 C は定数であり1.17037である[8]。

Figure 11に、実験結果と式(2)を比較したものを示す。横軸は液滴直径で割って無次元化した振幅、縦軸は振動無印加時の共振周波数からの減少量割合である。この結果、振幅の増加とともに液滴の共振周波数は大きく減少することが確認された。また、この実験結果は実線で示した関係式の結果とほぼ一致していることから、本実験により理論式の妥当性が示唆された。

Fig.11 Dimensionless amplitude versus frequency shift.

4. 液滴回転実験

4.1 実験概要

液滴に軸対称振動を印加し、正確な熱物性測定を行うためには、液滴に回転を印加し、安定に浮遊させることが必要不可欠である。しかしながら、液滴は表面張力により球形をしているものの、液滴の回転数の増加に伴う遠心力により、液滴が扁平な形状に変化する。本実験では、液滴を浮遊させた後、液滴に回転を印加し、そのときの共振周

波数の測定と高速度カメラによる観察を行う。回転の印加方法については、アクリル製チャンパー側面に直交するように設置した 2 つのスピーカーより 1/4 波長の位相差をつけて 2 つの定在波をチャンパー内に発生させることで、浮遊液滴に鉛直軸周りの回転が誘起される[9]。回転数の変化は、スピーカーへの入力電力を変化させることにより行い、また、液滴の回転数の測定については、液滴にトレーサ粒子を混入し、液滴からの散乱光を CCD カメラで撮影した画像からその光強度の変化について FFT 解析することで液滴の回転数の特定を行った。

4.2 実験結果

4.2.1 回転による液滴形状の変化

回転を印加した場合の液滴形状の変化を Fig.12 に示す。これは、液滴を回転させるために印加するスピーカーへの入力電力を徐々に増加させた場合の浮遊液滴の状態について、高速度カメラで横から撮影した画像である。この結果、回転数の増加に伴い、Fig.12 (b)-(e)に示すような軸対称形状の扁平回転体になり、ある回転数で軸対称形状が維持できなくなる様子が確認された。Fig.12 (f)-(k)は非軸対称形状の画像であり、棒形状からアレイ形状に変化していく様子が観察された。Fig.12 (l)は、分裂直後の画像である。

R.A.Brown と L.E.Scriven は、回転に伴う液滴形状の変化について有限要素法による計算を行った[10]。この計算結果と実験結果を比較したものを Fig.13 に示す。横軸は液滴の回転数を回転無印加時の固有振動数で割った無次元回転数、縦軸は変形した液滴の水平方向半径を初期液滴半径で割った無次元液滴長さである。

この結果より、実験結果と計算結果はほぼ一致し、軸対称形状を維持できる無次元回転数の臨界値については、計算では 0.559 であるのに対して、実験結果は 0.58 でありほぼ一致することが確認された。

4.2.2 回転による共振周波数の変化

回転による液滴の共振周波数の変化については、F.H.Busse が 2 次モードの軸対称振動に対して理論解析を行った[11]。回転数と液滴の共振周波数の関係については次式が提案されている。

$$\frac{\delta f}{f_0} = \frac{19}{21} \left(\frac{\Omega}{\omega_0} \right)^2 \quad (3)$$

ここで、 Ω は液滴の回転数、 ω_0 は液滴の固有振動数である。液滴に回転を印加した場合の回転数と共振周波数の関係を Fig.14 に示す。横軸は無次元回転数、縦軸は回転無印加時の共振周波数からの増加量の割合である。実線で示した曲線は、F.H.Busse による理論式(3)である。実験結果から、回転数の増加とともに共振周波数が増加し、また、無次元化した回転数 0.58 の点を境に、増加していた回転数が、減少に転じていることが確認された。これは、液滴が軸対称形状から非軸対称形状に転移したことに起因すると考えられ、軸対称形状である領域での共振周波数の増加については、理論式(3)にほぼ一致していることがわかる。

今回の実験では、回転のみによる共振周波数の変化を考察したが、今後は、前節で記述した液滴の振動振幅増加による共振周波数減少への影響とともに、回転と振動によって液滴挙動、ならびに共振周波数がどう変化するかを明確にしていくなが必要があると考えられる。

Fig.12 Observation result of the deformation on rotating drop.

Fig.13 Dimensionless rotation rate versus dimensionless length.

Fig.14 Dimensionless rotation rate versus frequency shift.

5. 結 言

静電浮遊装置によって、常温・大気圧下において液滴を浮遊させ、液滴の振動、または回転による外力により変形する液滴について、非線形効果の影響の評価を行った。まず、浮遊液滴に振動を印加し、鉛直方向長さの時系列データに対しFFT解析や液滴径の変化速度の算出を行い、浮遊液滴の小振幅、大振幅振動挙動の考察を行った。次に液滴に回転を印加し、共振周波数の変化、形状変化について評価した。以上の結果より、本実験では以下のことが示された。

- ・ 印加周波数を変化させて振動振幅を測定した結果、非線形振動に見られる振幅のジャンプ現象、ヒステリシス特性などが確認された。また、振動振幅が大きくなるにつれて、振動波形の正弦波からの歪み、液滴の上下形状の非対称性がみられ、これは、非線形効果、重力の影響であることが示唆された。今後は、液滴表面・内部における流れなどについて詳細に調べ、大変形に伴う非線形効果の原因を追究する必要があると考えられる。
- ・ 振動印加時の共振周波数の変化について考察した結果、理論式にほぼ一致した振幅の増加に伴った共振周波数の減少が確認され、本実験における理論式の妥当性が示唆された。
- ・ 浮遊液滴に回転を印加し、液滴形状の変化、共振周波数の変化について理論式との比較を行った。この結果、液滴形状が軸対称から非軸対称形状に転移する回転数の臨界値、共振周波数の増加がほぼ理論と一致することが確認された。

謝 辞

本研究の一部は、日本学術振興会科学研究費補助金の援助を受け行われた。宇宙環境利用科学委員会研究班 WG「浮遊液滴非線形ダイナミクス」の一部として実施したものである。

本研究を実施するにあたり、宇宙航空研究開発機構の石川毅彦博士、Paul-Francois Paradhis 博士には実験装置の製作および実験に関する協力をいただきました。記して感謝の意を表す。

参考文献

- [1] Rhim, W.-K., Ohsaka, K., and Paradis, P.-F., Noncontact Technique for Measuring Surface Tension and Viscosity of Molten Materials using High Temperature Electrostatic Levitation, *Rev. Sci. Instrum.*, 70(6), 2796-2801 (1999).
- [2] Rhim, W.-K. and Ishikawa, T., Noncontact surface tension measurement by drop rotation, *Rev. Sci. Instrum.*, 72(9), 3572-3575 (2001).
- [3] Ishikawa, T., Paradis, P.-F., and Yoda, S., Noncontact Surface Tension and Viscosity Measurement of Rhenium in the Liquid and Undercooled states, *Appl. Phys. Lett.*, 85(24), 5866-5868 (2004).
- [4] Rayleigh, L., On the capillary phenomena of jets, *Proc. R. Soc. London.*, A29, 71-97 (1879).
- [5] Lamb, H., *Hydrodynamics*, 6th edn. Dover., (1945).
- [6] ランダウ・リフシッツ理論物理学教程、力学、東京図書 (1974).
- [7] Tsamopoulos, J.A. and Brown, R.A., Nonlinear Oscillations of Inviscid Drops and Bubbles, *J. Fluid Mech.*, 127, 519-537 (1983).
- [8] Tsamopoulos, J.A., Nonlinear dynamical Break-up of charged drops, *In AIP Conf. Proc.* (1989).
- [9] Busse, F.H. and Wang, T.G., Torque generated by orthogonal acoustic waves – Theory, *J. Acoust. Soc. Am.*, 69(6), 1632-1638 (1981).
- [10] Brown, R.A. and Scriven, L.E., The shape and stability of rotating liquid drops, *Proc. R. Soc. London.*, A371, 331-357 (1980).
- [11] Busse, F.H., Oscillations of a rotating liquid drop, *J. Fluid Mech.*, 142, 373-395 (1984).
- [12] 小野寺博樹、浮遊液滴の振動変形挙動に関する研究、東京工業大学修士論文 (2004).
- [13] 阿部豊、栗津茂 他、浮遊液滴の非線形挙動に関する研究、日本混相流学会年会講演会 2006 講演論文集, G213, 336-337 (2006).