浮遊液滴の回転変形挙動に及ぼす粘性の影響に関する研究*

The Effects of Viscosity on the Deformation Behavior of Rotating Liquid Drop

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

Abstract The electrostatic levitation technique makes it possible to measure thermo-physical properties of extremely high-temperature molten materials. In the technique, viscosity of levitated sample has been estimated from the damping constant time with an oscillating drop method based on linear approximations. However, this method is limited to low-viscosity fluids because the oscillation could not be excited to a highly viscous liquid drop. The measurement method which can be applied to viscosity over the entire range possible has not been established yet. The main purpose of the present study is to investigate the possibility to measure viscosity of entire range with a levitating liquid drop. In the present study, viscous drops were levitated by the electrostatic force. The effect of viscosity on the deformation of a rotating liquid drop was experimentally investigated. As a result, the rotational deformation of a low-viscosity drop is found to be qualitatively similar to the numerical result. On the other hand, large differences from the numerical result are observed in the case of high-viscosity drops. It is confirmed especially that viscosity is closely related to the evolution of drop shape during the drop breakup process. From the experimental results, it is clarified that the viscosity of a levitating liquid drop can be estimated from the breakup behavior of the drop.

Keywords: Electrostatic levitation, Levitating liquid drop, Viscosity, Rotation

1. 緒言

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が起こらないなどの特徴がある。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プロセッシングは、工業的に広範囲の分野で利用されることが期待されている。例えば、通常の

材料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となるため、超高温の熔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、また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

* 2007.11.20 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: abc@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

† 日本原子力研究開発機構 システム計算科学センター 〒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

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技術によって、従来の方法では測定が困難であった融点が 3000[K]を超えるような超高温溶融金属の熱物性測定が行われている[1-3]。このうち粘性係数は、浮遊試料に軸対称の微小振幅振動を印加し、その振動の減衰時間から液滴振動法と呼ばれる Rayleigh[4]や Lamb[5]により導出された関係式を用いて算出される。しかしながら、振動による変形の励起が困難な高粘性流体では減衰時間そのものの測定ができないため、この方法は $10^{-1}[\text{Pa}\cdot\text{s}]$ 以下の低粘性流体に限定される。

この問題に対し、Ohsaka らは音波により浮遊させた高粘性流体液滴に回転を印加することで大変形を誘起させ、回転を停止させてからの形状緩和時間を用いて粘性係数の算出を行っている[6]。その結果、約 $20[\text{Pa}\cdot\text{s}]$ 以上の高粘性流体の浮遊液滴に対しては粘性係数を算出することが可能であるが、それ以下の粘性流体に対しては液滴形状緩和時間が短くなるため、正確な値の算出が困難であることを示している。

以上述べた既存の非接触粘性係数測定法により計測可能な範囲に関してまとめたものを Fig.1 に示す。金属材料に関しては融点付近の粘性係数の測定が可能である。しかしながら、金属酸化物や過冷却状態の材料などを含む広範囲の粘性領域に適用可能な粘性係数測定方法は未だ確立されてはおらず、特に粘性係数 $10^{-1}<\eta<10^2[\text{Pa}\cdot\text{s}]$ の範囲の流体に対しての非接触粘性係数測定は非常に困難である。

著者らはこれまで静電浮遊法を用いて低粘性流体の液滴浮遊を行い、振動・回転といった変形を印加した際の非線形的変形挙動についての研究を行ってきた[7-8]。本研究では、広範囲の粘性流体にも適用した新たな粘性係数測定方法の可能性を検討することを目的として、粘性流体についての変形挙動の可視観測を行うこととした。まず、静電浮遊法により低粘性と比較的高粘性流体の液滴浮遊を行い、回転の印加によって液滴変形を誘起させ、その際の回転数と液滴形状の関係性について評価した。次に、回転変形挙動に対する粘性の影響について調べることで新たな粘性係数測定方法の可能性について検討を行った。

Fig. 1 Noncontact techniques for viscosity measurement.

2. 実験方法

Fig.2 に本実験で用いた静電浮遊装置の概略図を示す。静電浮遊装置中央部には、空気の流れなどの外乱除去のため、アクリル製チャンパー (180[mm]×180[mm]×110[mm]) を配置した。液滴の浮遊は常温・大気圧下において行い、本実験で浮遊させる液滴直径は約 1.5~2.5[mm]の範囲にある。静電浮遊法では、表面を正の電荷で帯電させた試料を、電場を印加した平行電極間に配置して静電力により浮遊を実現する。この時、試料の位置制御機構が必要不可欠となるため、浮遊液滴に側面から He-Ne レーザーを照射し、その後方に設置したフォトディテクターで液滴の位置情報を検出し、PID 制御によって上部に設置した電極の電圧を微小に変化させることで液滴の保持を行った。本実験装置を用いて電極間に液滴を浮遊させた際の画像を Fig. 3 に示す。

次に、本実験で使用する試験流体を Table 1 に示す。試験流体は低粘性流体としてプロピレンカーボネート(旭硝子, アサヒネート)、粘性流体としては、グリセリン(和光純薬工業, Glycerol)と水あめ(林原, マルトラップ 85)の混合比を変えた流体を使用した。Table 1 に示した動粘性係数と表面張力は、それぞれウベローゼ型粘度計(LAUDA, Viscoboy2)とデニューイリング表面張力計(Dataphysics, DCAT21)を用いて測定を行った実測値である。また密度はグリセリンと水あめの比率より算出した推定値である。No.2-No.4 の試験流体の粘性係数は約 $10^0<\eta<10^1[\text{Pa}\cdot\text{s}]$ の範囲であり、これは Fig. 1 に示した非接触粘性係数測定が不可能な範囲に含まれる。

浮遊試料への回転印加方法に関しては、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

つの音響スピーカーから、1/4 波長の位相差をつけた 2 つの定在波を発生させることで浮遊液滴に対して鉛直軸周りの回転を誘起した[9]。液滴の回転数はスピーカーへの入力電力を徐々に増加させることで定在波の強度を変化させて制御を行った。

本研究では液滴回転数と液滴形状についての実験を行い評価した。回転時の液滴変形挙動の可視観測には、側面に設置した CCD カメラ(エルモ, MN400)と高速度ビデオカメラ(フォトロン, Fastcam-ultima SE)を用いた。また上部電極の下面には表面に導電性コーティングを施したガラス板が埋め込まれており、高速度ビデオカメラ(フォトロン, Fastcam-MAX)により上部からの観測が可能となっている。液滴の回転数計測に関しては、液滴に微量に混入させたトレーサー粒子(中空ガラス粒子, 9~13[μm])を高速度ビデオカメラによって撮影した画像から追跡することで算出し、また変形時の液滴形状については画像とデジタル寸法測定器(キーエンス, LS-7000)を用いて算出を行った。

Fig. 2 Schematic of experimental apparatus.

Fig. 3 Typical image of a levitating liquid drop.

Table 1 Test fluids

Sample	Density ρ [kg/m^3]	Kinematic viscosity ν [mm^2/s]	Surface tension σ [mN/m]
Propylene carbonate (No.1)	1203	2.12	42.6
Glycerol 100% (No.2)	1263	829	63.0
Glycerol + Glucose 30wt% (No.3)	1321	2461	65.1
Glycerol + Glucose 40wt% (No.4)	1334	6422	66.0
Glycerol + Glucose 50wt% (No.5)	1350	8020	66.4

3. 実験結果

3.1 回転数と液滴形状の関係

任意の大きさの浮遊液滴に関して回転数の変化に対する形状変化を調べた結果を Fig.4 に示す。試験流体は低粘性流体のプロピレンカーボネート(No.1)を用いており、液滴直径が 2.06[mm]の場合の実験結果である。グラフ横軸は回転角速度 Ω 、縦軸は Fig.5 に示すように変形した液滴の水平方向長さ L_{max} を表している。グラフ内には各位置での液滴形状の水平方向から撮影した画像を示した。スピーカーへの入力電力を増加させていくと、液滴は(a)-(g)まで回転数の変化とともに徐々に形状が変化した。Fig.4 の結果、 Ω の増加とともに液滴形状はグラフ中の画像に示す(b), (c)のような軸対称形状の扁平回転体に変形する様子が確認された。この浮遊液滴の条件において、 $\Omega=260[\text{rad/s}]$ で液滴は軸対称形状を維持することが不可能となり、(d)-(f)のような棒状またはアレイ状の非軸対称形状へと遷移した。この時、スピーカーへの入力電力を増加させているにもかかわらず、 Ω は L_{max} の増加とともに減少に転ずることが確認された。最終的に、回転液滴は(g)に示すような 2 つに分裂する様子が実験的に確認された。

次に既存の数値解析結果[10]との比較を行った結果を Fig.6 に示す。試験流体としては低粘性流体であるプロピレンカーボネート(No.1)、粘性流体としてはグリセリンに水あめを 50%混合させた流体(No.5)を用いた。グラフの横軸は、試験流体の表面張力から Lamb[5]により導出された関係式を用いて算出した回転角速度 Ω を液滴の固有振動数 ω_0 で割って無次元化した値、縦軸は水平方向長さ L_{max} を初期液滴直径 D_0 で割って規格化した値である。またグラフ中の点線・実線は、Brown と Scriven[10]によって行われた非粘性、非圧縮性流体液滴に対する回転数と液滴形状についての数値解析結果であり、それぞれ軸対称回転体、非軸対称回転体領域での結果を表している。この結果より、 Ω/ω_0 の増加に伴い L_{max}/D_0 が増加する軸対称形領域においては、白プロットで示した低粘性液滴の結果と黒プロットで示した粘性液滴の結果の両方とも数値解析の結果とほぼ一致した。また、液滴形状が非軸対称形状へ遷移する回転数が実験結果と数値解析ではほぼ一致していることを確認した。しかしながら、 Ω/ω_0 の低ドに伴い L_{max}/D_0 が増加する非軸対称形状領域において、低粘性流体の結果は解析結果にほぼ一致しているが、粘性流体の結果は低粘性流体の液滴が分裂した点を過ぎても分裂せず、分裂までの回転変形挙動に関して低粘性流体の実験結果や解析結果と大きな相違あることが観測された。液滴の分裂位置について比較すると、低粘性流体での実験結果が $(\Omega/\omega_0, L_{max}/D_0)=(0.29, 2.15)$ であるのに対し、粘性流体での実験結果は $(\Omega/\omega_0, L_{max}/D_0)=(0.08, 3.52)$ となっており、液滴分裂挙動において粘性の影響が特に顕著に現れていると考えられる。

回転分裂直前の液滴変形挙動についてより詳細な観測を行った結果の一例として、Fig.7 に回転分裂挙動観測結果を示す。これは回転する液滴を上部から撮影したものである。試験流体はグリセリン(No.2)、初期液滴直径は 1.89[mm]であり、撮影速度が 500[fps]の結果である。この結果、分裂直前の液滴形状はアレイ形状を保持できなくなり、液滴中央部のくびれ部分が回転とともに非定常的に減少していき、そして糸状の流動へと発展して($-8 \leq t \leq 2$ [ms])、最終的に 2 つに分裂する様子($t=0$ [ms])が確認された。

Fig. 4 Relation between rotational angular velocity and maximum drop length.
(Propylene carbonate, $D_0 = 2.06$ [mm])

Fig. 5 Schematic of characteristic dimension of levitated drop.

Fig. 6 Correlation between normalized rotation rate and normalized drop length.

Fig. 7 Top view of evolution of levitating liquid drop prior to its breakup.
(Glycerol, $D_0 = 1.89$ [mm])

3.2 液滴回転分裂に対する粘性の影響

3.2.1 液滴分裂時の水平方向長さの粘度依存性

液滴回転分裂挙動の粘度依存性について、より詳細に評価を行うため、粘性の異なる流体についての回転分裂直前の液滴形状画像を Fig. 8 に示す。画像からわかるように、低粘性流体であるプロピレンカーボネート(No.1)の液滴は、回転とともに液滴中央部に形成されたくびれ部分が急速に減少して2つに分裂する。一方で、グリセリンと水あめの混合流体(No.2-No.4)を用いた粘性流体の液滴では、中央部のくびれ部分が糸状の流動へと発展しており、分裂の瞬間の水平方向長さ L_{max} に関しては動粘性係数の増加とともに増加する傾向が確認された。この分裂直前の水平方向長さ L_{max} の粘度依存性についてまとめたものを Fig. 9 に示す。グラフ横軸は動粘性係数 ν 、縦軸は分裂直前の L_{max}/D_0 を表している。また、グラフ内の実線で示した結果は実験結果に対して行った対数近似の結果である。この結果より、分裂直前の L_{max} には粘度依存性が存在することを示しており、粘性の増加に伴い L_{max}/D_0 の最大値が対数近似に沿うように増加する関係性があると考えられる。

Fig. 8 Top view of levitating liquid drops at the moment of its breakup.

Fig. 9 Correlation between kinematic viscosity and maximum drop length at the moment of its breakup.

3.2.2 分裂時液滴形状の時間変化

分裂までの液滴形状の時間変化について検討するため、液滴水平方向長さ L_{max} と中央部直径 D_{mid} の推移をプロットした結果をそれぞれ Fig. 10(a), (b) に示す。実験結果は粘性がオーダーで異なるプロピレンカーボネート(No.1)、グリセリン(No.2)、グリセリンと水あめの混合流体(No.5)の3流体を使用した。グラフ横軸の時間は分裂の瞬間を 0[s] としており、液滴が分裂するまでの約 0.1[s] 間について、形状の時間推移をプロットした。縦軸の D_{mid} は、Fig. 5 に示した液滴中央くびれ部分の直径である。Fig. 10(a) より、低粘性流体 No.1 の結果では、 L_{max} が液滴分裂直前でほとんど変化していないことがわかる。一方、試験流体 No.3 から No.5 と試験流体の粘度がオーダーで高くなるにつれて L_{max} の増加傾向は時間に依存して大きく変化し、分裂直前の変化量は粘性が高い流体ほど急峻に増加していることが確認された。これは粘性の増加とともに液滴中央部分に発生する糸状の流動に起因するものと考えられる。また、Fig. 10(b) の結果からは、低粘性流体

の場合、 D_{mid} が分裂直前の約-0.02[s]付近から急峻に減少し、粘性の増加とともにその減少勾配は緩やかになっている。以上のことから、分裂直前の液滴形状は粘性に強く依存した時間変化を示すことがわかった。

Fig. 10 Time-series data prior to its breakup.

最後に、 D_{mid} の減少勾配に関する粘度依存性について検討する。液滴回転分裂直前の D_{mid} の時間変化率を算出した結果を Fig.11 に示す。横軸は動粘性係数 ν を表している。また、縦軸の時間変化率 $d(D_{mid})/dt$ は実験結果に対して線形近似を行い算出した。Fig.11 の結果、液滴の分裂直前の中央部直径の時間変化率は粘性の増加とともに増加しており、3.2.1 で記述した分裂直前の L_{max} と同様の相関関係があることが示された。また、低粘性流体の場合は初期液滴の大きさや液滴に働く遠心力の影響により $d(D_{mid})/dt$ のばらつきが多少あるものの、本実験で用いた粘性係数が約

$10^0 < \eta < 10^4$ [Pa $\cdot$ s]の流体の領域に関しては、粘度の増加とともにばらつきが小さくなっていることから、液滴の粘度に対して強い相関性を示すと考えられる。今後、この液滴中央部直径の時間変化に対する計測精度の向上を図り、また分裂時の液滴中央部分に働く力のバランスをより詳細に評価することで新たな粘性係数測定法を確立できるものと考えられる。

Fig. 11 Dependence of the rate of decrease in the drop midpoint diameter on drop viscosity.

4. 結 言

静電浮遊装置を用いて液滴の浮遊を行い、回転変形を印加した際の液滴形状の粘度依存性について検討した結果、以下のような知見を得た。

- 1) 低粘性流体、粘性流体の浮遊液滴に対して、液滴回転数と液滴形状の関係性について数値解析の結果との比較を行った。その結果、低粘性流体の場合は既存の数値解析とほぼ一致するが、粘性流体の場合は粘性の影響によって数値解析結果からの大きな逸脱が確認された。
- 2) 異なる粘度の流体に対して、回転分裂時の液滴形状について調べた結果、動粘性係数の増加とともに分裂時の水平方向長さに関して増加する傾向があることが確認された。またこの時、液滴中央部において非定常的な糸状の流動が確認された。
- 3) 回転分裂時の液滴中央部直径の時間変化について観測を行った結果、その時間変化率に粘度依存性があることが確認された。今後、

この依存性をより詳細に評価することで新たな粘性係数の測定方法について検討できる可能性が示された。

謝 辞

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究 B16360097 による研究として行われた。また、JAXA 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、筑波大学の藤原暁子講師、宇宙航空研究開発機構の依田眞一教授、石川毅彦准教授、Paul-Francois Paradhis 博士には実験装置の製作および実験に関する多大な協力をいただいた。ここに記して感謝の意を表する。

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.*, Vol. 70(6), 2796-2801 (1999).
- [2] 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.*, Vol. 85(24), 5866-5868 (2004).
- [3] Ishikawa, T., Janding, Y. and Paradis, P.F., Noncontact surface tension and viscosity measurement of molten oxides with a pressurized hybrid electrostatic-aerodynamic levitator, *Rev. Sci. Instrum.*, Vol. 77, 053901 (2006).
- [4] Rayleigh, L., On the capillary phenomena of jets, *Proc. R. Soc. London.*, Vol. A29, 71-97 (1879).
- [5] Lamb, H., *Hydrodynamics*, 6th edn. Cambridge University Press (1932).
- [6] Ohsaka, K., Rednikov, A., Sadhal, S.S., and Trinh, E.H., Noncontact technique for determining viscosity from the shape relaxation ultrasonically levitated and initially elongated drops, *Rev. Sci. Instrum.*, Vol. 73(5), 2796-2801 (2002).
- [7] Onodera, H., The oscillation behavior of levitated drop, Master Thesis, Tokyo institute of Technology (2004).
- [8] Abe, Y., Awazu, S., Matsumoto, S., Watanabe, T. and Nishinari, K., Study on Nonlinear Behavior of Levitating Liquid Drop, *Progress Multiphase Flow Research*, Vol. 2, 63-70 (2007).
- [9] Busse, F.H. and Wang, T.G., Torque generated by orthogonal acoustic waves – Theory, *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 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.*, Vol. A371, 331-357 (1980).