JAEA-Research
2012-033

軸対称な流体 - 液体界面形状の極座標系による数値計算と U-Pu 混合転換技術にかかわる界面の例

Numerical Calculation of Axisymmetric Fluid-Liquid Interfaces by Polar Coordinate System and Examples Associated with U-Pu Co-conversion Technology

細馬 隆

Takashi HOSOMA

東海研究開発センター
核燃料サイクル工学研究所
再処理技術開発センター
技術部

Technology Development Department
Tokai Reprocessing Technology Development Center
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Tokai Research and Development Center

January 2013
Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Research

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ（http://www.jaea.go.jp）
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構　研究技術情報部　研究技術情報課
〒319-1195　茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

軸対称な流体−液体界面形状の極座標系による数値計算と U-Pu 混合転換技術にかかわる界面の例

日本原子力研究開発機構東海研究開発センター
核燃料サイクル工学研究所再処理技術開発センター技術部

細馬　隆

(2012年10月22日受理)

泡や滴或いは液架橋などの気液界面の美しい形は、界面の表面張力及び平均曲率による圧力と、界面内外の密度差による圧力が、垂直方向でそれぞれ連続的に変化しながらも釣り合うという関係から生み出される。しかしながら、その正確な形状や曲率及び体積等を論じた資料は意外に少ない。U-Pu 混合転換技術に関する研究開発では、これらを正確に求めることにより理解を深めることのできた現象が幾つかあり、静的で軸対称という条件ではあるものの、極座標系を導入し、原点移動アルゴリズムにより適用範囲を拡大することにより、水平接面と垂直接面を共に複数有する形状に適用可能な数値計算方法を導いた。本方法では、実際に観察される界面形状は、数値計算によって得られる曲線の一部が、物理的条件に対応して選ばれると考える。

実例として、密度及び液位の測定に用いられる浸漬管の先端に生じる気泡、マイクロ波加熱により円筒形状の液中に核生成する気泡、転換後の造粒物中に生じていると推定される液架橋をとりあげた。体系的な計算の例は、室温，大気圧下における水と空気の界面とした。曲線の一部が選ばれる際の物理的条件は、接触角、内外圧力差、体積、表面エネルギー及び周期的に変化する形状の波長等である。

核燃料サイクル工学研究所：〒319-1194　茨城県那珂郡東海村村松 4-33

Numerical Calculation of Axisymmetric Fluid-Liquid Interfaces by Polar Coordinate System and Examples Associated with U-Pu Co-conversion Technology

Takashi HOSOMA

Technology Development Department
Tokai Reprocessing Technology Development Center
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Tokai Research and Development Center, Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received October 22, 2012)

An exquisite shape of gas-liquid interface, that is a bubble/drop/liquid bridge, is the result of continuous pressure balance along vertical axis between the pressure due to difference of density and the pressure due to surface tension and curvature of interface. However, there have been surprisingly a little papers arguing the accurate shape, curvatures and volume. Regarding the research and development of U-Pu co-conversion technology, some phenomena were well understood by obtaining the accurate shape and/or volume. A numerical solving method by polar coordinate system with a switched-origin algorithm applicable to the shape that includes multiple tangential planes both in horizontal and in vertical was derived through such experiences, although static physical conditions and axisymmetrical property are assumed. The real interface shape is actualized or selected as a part of the calculated curve, which depends on physical conditions.

A bubble at the tip of dip-tube used for density/level measurement, a bubble nucleates in the cylindrical shape of liquid heated by microwave and an estimated liquid bridge in the granule after co-conversion were described as actual examples. Interfaces between water and air under normal temperature and atmospheric pressure were described as numerical examples for systematic investigation. Contact angle, internal/external pressure difference, volume, surface energy and wavelength of periodically deforming shape are physical conditions actualizing the calculation.

Keywords Gas-Liquid Interface, Surface Tension, Bubble, Drop, Capillary, Meniscus, Rayleigh-Taylor, Plateau-Rayleigh, Polar Coordinate System, Dip-Tube Manometry, Microwave Heating, Liquid Bridge, Catenary, Granulation

目次

Contents

1. はじめに

気液界面の美しい形は、誰もが日常的に見る形であると同時に、水滴系のカオスに関連する研究領域でもある。この美しい形は、界面の表面張力及び平均曲率により生じる圧力差と、界面内外の密度差により生じる圧力差が、垂直方向でそれぞれが連続的に変化しながらも釣り合うという関係から生み出されており、1857 年に英国の Francis Bashforth と John Couch Adams は、その著作 An attempt to test the theories of capillary action において、水平平面上に静止している液滴の形状を数値計算によって正確に求めている[1]。

界面のエネルギーが最小になるよう、流体又は液体の表面が変形する現象は広く毛管現象と呼ばれ、1805 年に Thomas Young によって表面張力の概念が提案された後[2]、1806 年には Pierre-Simon Laplace によって毛管現象による圧力差が定式化された[3]。界面の表面張力及び平均曲率により生じる圧力差はこの圧力差に基づいている。その後、19 世紀後半には Joseph Plateau, Lord Rayleigh らにより界面形状の不安定性に関する発見[4][5]がなされ、数学者の Henri Poincaré は 1895 年に有名な著作 Capillarité を残している[6]。1924 年の Henri Bouasse による Capillarité et phénomènes superficiels もまた良質な著作として知られている[7]。天体物理学者の Subrahmanyan Chandrasekhar は 1965 年に、軸対称かつ表面張力が重力よりも十分に大きいと見なせる（重力を無視できる）場合、第一種と第二種の楕円積分を用いて解析的に界面形状を求めることができることを示した[8][9]が、解は球に限らないこともまた知られている[10]。重力下で日常的に見る形は、数値計算でしか求めることができない。

軸対称な気液界面形状の分類として、Bashforth と Adams はその著作の中で水平な平面上の液滴を Sessile drop, 水平な平面下の液滴を Pendant drop と呼んでいるが、1976 年の Stanley Hartland と Richard W. Hartley による Axisymmetric Fluid-Liquid Interfaces では更に External menisci（水平な２つの平面に挟まれた液滴）が加えられている[11]。例えば、平らな葉の上で転がる露は Sessile drop に近く、葉の先端や裏側から滴る露は Pendant drop に近く、葉と葉の間に時折り見られる液架橋は External menisci に近い。露でなく泡の場合、水草の下面に付いた気泡は Sessile drop に近く、放出前のエアストーンの気泡は Pendant drop に近く、水面に浮く親水性又は疎水性の円盤の周囲に形成される気液界面は External menisci に近い。

現代でもなお、表面張力の寄与の大きい微小スケールの工学、例えば液滴輸送において、流体−液体界面の形状はテーマの一つとされる。時間的な変化を伴う複雑な界面形状を逐次計算法で解く[1]こともさることながら、流体−液体界面形状に関する幾何的で簡素かつ直感的な理解は、依然として重要ではないかと考えられる。本報告では、静的で軸対称という条件ではあるが、極座標系と原点移動法を用いて、水平接面と垂直接面を共に複数有する形状に適用可能な数値計算方法を導き、流体−液体界面の正確な形状や曲率及び体積等を求めた。

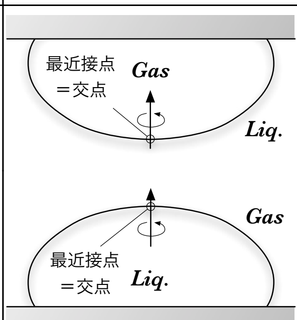
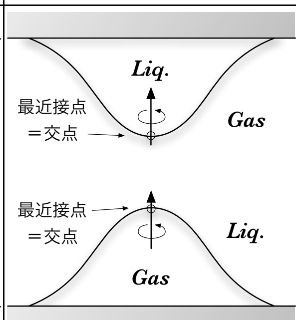
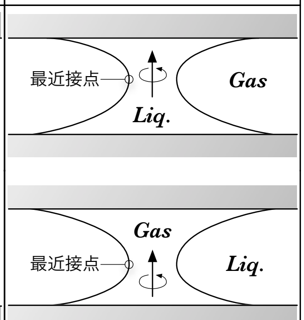
1. Boundary-integral methods (BIMs) 或いは Volume-of-fluid (VOF) method など

2. 軸対称な流体−液体界面形状の数値計算

2.1 軸対称な界面形状の分類

水平な平面上の液滴（Sessile drop）、水平な平面下の液滴（Pendant drop）、水平な２つの平面に挟まれた液滴（External menisci）の幾何的な違いを表 1 に整理する。ガウス曲率は界面上の直交する２つの曲率の積 $\kappa_1 \times \kappa_2$、平均曲率は算術平均 $(\kappa_1 + \kappa_2)/2$ である。直交する２つの曲率 κ_1, κ_2 を図 1 に示す。どのような形の界面であれ、その微小部分に着目すれば、図 1 のように捉えることができる。

表 1　軸対称な３種類の界面形状の幾何的な違い

	Sessile drop	**Pendant drop**	**External menisci**
対称軸との最近接点	交点 （軸との距離が零）	交点 （軸との距離が零）	交点なし
最近接点でのガウス曲率	正	正	負
最近接点での平均曲率	正	正	正〜零〜負
くびれの有無	なし	なし〜あり	あり
最近接点からの界面の拡がり方	重力と逆方向（気泡） 重力方向（水滴）	重力と逆方向（水滴） 重力方向（気泡）	重力方向と 重力と逆方向の両方
最近接点からの界面の拡がりに沿った平均曲率の変化	交点から離れるに従い 平均曲率は増加する （正のまま）	交点から離れるに従い 平均曲率は減少する （正→零→負）	平均曲率は重力方向に 増加する（水柱） 平均曲率は重力方向に 減少する（気柱）
日常的に見える形状			

２つの円は点 P における接円の２つで、中心は法線 P-P' 上にある。接円を含む２つの平面が直角に交わる時に２つの曲率は直交している。従って、直交する２つの曲率（κ_1, κ_2）は、点 P において、界面に垂直かつ互いに直角に交わるように包丁を２回当てた際の切り口に現れる曲線の曲率に相当する。容易に想像できるように、直交する切り口の選び方は垂線 P-P' を含むならば沢山ある。２つの曲率を界面上でどのように採るかは任意であるが、

一般的には、対称軸を含む切断面に現れる曲線の曲率（κ_1）とこれに直交する曲率（κ_2）を選ぶ。この時の κ_1 と κ_2 は任意に採った２つの曲率の最大と最小に対応する。なお、ガウス曲率も平均曲率も、切り口の選び方に依らない性質を持つ。

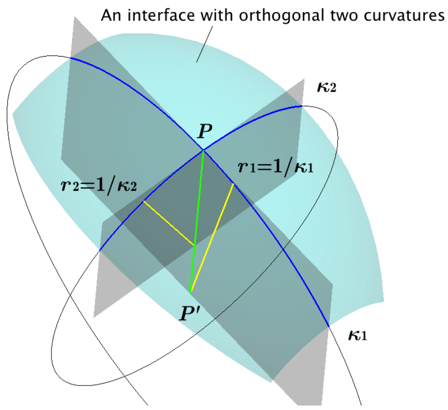


図１　界面上の点 P において直交する２つの曲率（κ_1, κ_2）

κ_1 は理解し易いが κ_2 には注意が必要である。κ_2 は対称軸に垂直な切断面に現れる曲線の曲率ではない（多くの場合一致しない）。例えば、Sessile drop 又は Pendant drop の最近接点では κ_2 は κ_1 に等しく無限大ではない。曲率を感覚的かつ正確に把握するためには、界面に垂直かつ互いに直角に交わるように包丁を２回当てる時の対称軸を含む切り方（κ_1 が現れる）とこれに直交する切り方（κ_2 が現れる）を正しくイメージすることが必要である。

External menisci のように２つの曲率の符号が逆（κ_1 が負で κ_2 が正）の場合、界面を貫いて延長した法線上の互いに反対側に２つの接円の中心がある。曲率の正負は後述する式 (3) に従い y の二次微分に対応するが、図２に示すように円周の２つの法線のうち y が増大する方向の法線を選んだ場合に相当し、円周の上半分と下半分で正負が入れ替わる。

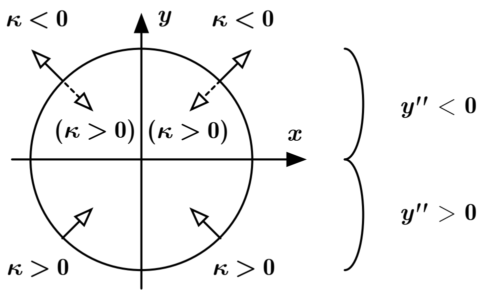
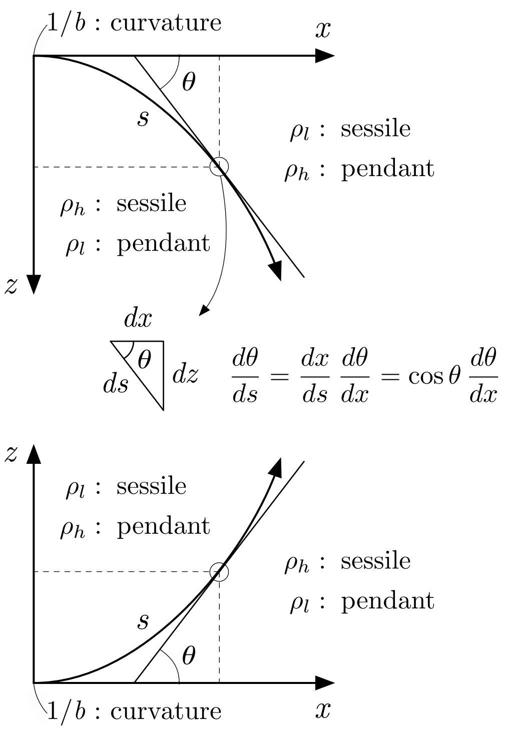


図２　曲率の定義と正負の関係

表１の External menisci の場合も、最近接点より上側 $y > 0$ では二次微分が負、下側 $y < 0$ では二次微分が正であるため、対称軸を含む切断面に現れる曲線の曲率 κ_1 は、最近接点を境として曲率の正負が入れ替わることになり、奇妙な感じを受ける。但し、$y = 0$ を境として２つの法線のどちらを採るのかを入れ替えれば（上側では y が減少する方向、下側では y が増大する方向）、曲率の正負の入れ替わりは元に戻り、連続するようになるので、幾何的な感覚（座標系の取り方とは無関係）と一致する。図２の場合も円周の上半分で曲線の内側方向の法線を選ぶならば、全周で曲率は正となって連続し、幾何的な感覚と一致する。

2.2 Bathforth と Adams による界面形状の数式表現

これら美しい気液界面形状を正確に計算する試みは、軸対称を仮定することにより、英国の Bathforth と Adams によって 1857 年に成功した。但し、界面上には水平接面と垂直接面が共に存在しており、x-y 直交座標系では計算が途中で発散するため、図 3 に示す特殊な座標系が工夫されている。



直交座標 $z = g(x)$ に見えるが、x, θ を独立変数、z を従属変数とする $z = f(x, \theta)$ である。

対称軸に平行な方向を z とし，対称軸に直交する方向を x とする。
κ_1 を x-z 断面（左図）上での曲率,
κ_2 を κ_1 と直交する曲率,
σ を界面の表面張力,
$1/b$ を交点での界面の曲率
ΔP を界面内外の圧力差とすると、

力の釣り合いは：

$$
\begin{aligned}
\Delta P &= \frac{2\sigma}{b} + (\rho_h - \rho_l)\,gz \\
&= \frac{2\sigma}{b} + \Delta\rho\,gz \\
\Delta P &= \sigma\,(\kappa_1 + \kappa_2) \\
&= \sigma\left(\frac{d\theta}{ds} + \frac{\sin\theta}{x}\right) \\
&= \sigma\left(\cos\theta\,\frac{d\theta}{dx} + \frac{\sin\theta}{x}\right) \\
&= \sigma\,\frac{1}{x}\,\frac{d}{dx}\,(x\,\sin\theta)
\end{aligned}
$$

第 1 式の第 2 項は界面と対称軸の交点を起点とする静水圧の変化分

図 3　$z = f(x, \theta)$ 座標系（文献 [11] を参照し作成）

$z = f(x, \theta)$ 座標系において解くべき力の釣り合い方程式は、式 (1) で表される：

$$
\frac{2}{b} + \frac{\Delta\rho\,g}{\sigma}\,z = \frac{1}{x}\,\frac{d}{dx}\,(x\,\sin\theta) \tag{1}
$$

これを $c^{1/2} = \sqrt{\Delta\rho\,g/\sigma}$ で規格化及び無次元化して、式 (2) を解く：

$$
\frac{2}{B} + Z = \frac{1}{X}\,\frac{d}{dX}\,(X\,\sin\theta) \tag{2}
$$

ここで $X = x\,c^{1/2}$, $Z = z\,c^{1/2}$, $B = b\,c^{1/2}$ である。無次元化された $Z = f(X, \theta)$ 座標系による表現はこのように大変簡素である。

日常的に見える水滴や気泡の形状の殆どはこの方法で求めることができ、最近の文献[12]やADSA[13]と呼ばれる方法でもこの座標系は変わっていない。しかしながら、対称軸との交点以外で境界条件を１つ定めなければ解くことができず、例えば泡や滴が水平面で終わる場所の接触角などを与える必要があった（図４）。

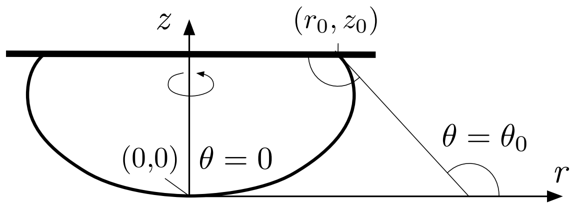


図４　従来の解法の初期条件と境界条件の例（文献[12]を参照し作成）

筆者が遭遇した問題で、境界条件を与えることが難しい例を図５に示す。この図は、核燃料物質、特にプルトニウムの計量管理に用いられる浸漬管に関するコールド試験の例であるが、水中に設置された管に空気を供給し、管の先端で気泡をゆっくりと生成・離脱させて、その背圧から液位を求めている。知りたいのは、管の下端における正確な液圧である（密度は別に測定する）が、背圧には気泡の高さと気泡下端の曲率による圧力が加わり、かつ変動している。この時、管の内外径とトーラス頂部の直径の大小関係が気泡の離脱条件となり、背圧変動の上限となる。気泡の上部がトーラス状であることは予想でき、気泡離脱の瞬間に一瞬見えるのであるが、境界条件を与えることが難しい。計量管理における測定バイアスの大きさを評価し必要に応じて補正するためには、新たな座標系を工夫して、トーラスの正確な直径と気泡の正確な高さ及び曲率を求める必要があった。

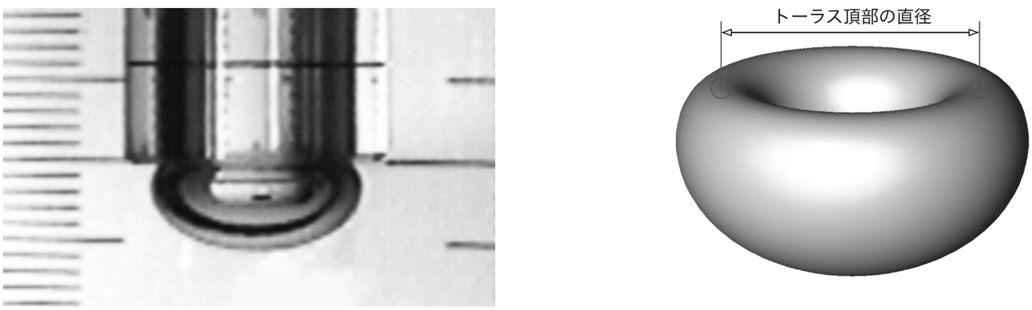


図５　対称軸との交点以外で境界条件を定めることが難しい例

この例では、水深に比例して直線的に増加する静水圧と、界面の表面張力及び平均曲率により生じる圧力が、気泡内部の圧力（＝一定）と釣り合う。従って、気泡の最下端（先端）から気液界面に沿って移動すると、界面の平均曲率は、水深の減少に伴い直線的に増加してゆく。さらに、最上端（水平面と接する部分）を過ぎても界面が滑らかに連続していれば、今度は平均曲率が減少し、水に囲まれた気泡の上部の形はトーラス状になると予想された。このような形状を正確に求めるには、独立変数が１つで気泡の最下端と最上端の中間に原点を持つ極座標系が適切であると考えられた。

2.3 界面形状の解法への極座標系の導入

界面の表面張力及び平均曲率に応じて生じる圧力は Young-Laplace 式として知られ、界面上で直交する２つの曲率 κ_1, κ_2 を含む。対称軸を含む平面に x-y 座標（但し y 軸を対称軸とする）を設定する場合は、κ_1, κ_2 は Bathforth とAdams の時代から公知の次式で表される：

対称軸（y 軸）を含む切断面に現れる曲線の曲率 $$\kappa_1 = \frac{y''}{(\,1 + y'^{\,2})^{\frac{3}{2}}} \tag{3}$$

κ_1 に直交する曲率 $$\kappa_2 = \frac{y'}{x\ (\,1 + y'^{\,2})^{\frac{1}{2}}} \tag{4}$$

ここで $y' = \dfrac{dy}{dx},\ \ y'' = \dfrac{d^2y}{dx^2}$ である。一方、原点を $(x, y) = (0, a)$ とし偏角 $t = 0$ の方向を x-y 座標の原点方向にとる極座標系では（図６参照[2]） $y = a - r\cos t,\ \ x = r\sin t$ なので：

対称軸を含む切断面に現れる曲線の曲率 $$\kappa_1 = \frac{r^2 + 2\,(r')^2 - r\,r''}{\left[\,r^2 + (r')^2\right]^{\frac{3}{2}}} \tag{5}$$

κ_1 に直交する曲率 $$\kappa_2 = \frac{r - r'\cot t}{r\ \left[\,r^2 + (r')^2\right]^{\frac{1}{2}}} \tag{6}$$

ここで $r' = \dfrac{dr}{dt},\ \ r'' = \dfrac{d^2r}{dt^2}$ である。式 (5), (6) を導くには、以下の式変形を用いればよい：

$$\begin{cases} y &= a - r\cos t \\ x &= r\sin t \end{cases} \quad \Rightarrow \begin{cases} \dfrac{dy}{dt} &= r\ \sin t\ -\ r'\ \cos t \\[2ex] \dfrac{dx}{dt} &= r\ \cos t\ +\ r'\ \sin t \end{cases} \quad \Rightarrow \begin{cases} \dfrac{dy}{dx} &= \dfrac{r\ \sin t\ -\ r'\ \cos t}{r\ \cos t\ +\ r'\ \sin t} \\[2ex] \dfrac{d^2y}{dx^2} &= \dfrac{r^2 + 2\,(r')^2 - r\,r''}{(r\ \cos t\ +\ r'\ \sin t)^3} \end{cases}$$

$$\begin{aligned} \because\ \frac{d^2y}{dx^2} &= \frac{d\frac{dy}{dx}}{dt}\,\frac{dt}{dx} \\ &= \left[\frac{r\cos t + 2\,r'\sin t - r''\cos t}{r\ \cos t + r'\ \sin t} - \frac{(\,r\sin t - r'\cos t\,)\,(-\,r\sin t + 2\,r'\cos t + r''\sin t\,)}{(\,r\ \cos t + r'\ \sin t\,)^2}\right]\frac{dt}{dx} \\ &= \frac{dt}{dx}\ \frac{r^2 + 2(r')^2 - r\,r''}{(\,r\ \cos t + r'\ \sin t\,)^2} \\ &= \frac{r^2 + 2(r')^2 - r\,r''}{(\,r\ \cos t + r'\ \sin t\,)^3} \end{aligned}$$

2. 他にもいろいろ取り方はあるが、原点と偏角の方向をこのように取ることにより、パラメータの変更のみで同じ座標系と式を用いて３種類の界面を取り扱うことができる。

座標系の設定と力の釣り合い及び数値計算の開始点と進行方向等を図６に示す。３種類の界面で式を統一するため、Pendant drop と External menisci では y 軸と重力を通常の向きとしたが、Sessile drop では y 軸を重力と同じ下向きとした。界面内外の密度差により生じる圧力差 P_h は界面から気相方向が正、気相圧力 P_{gas} は界面から液相方向が正であるが、平均曲率に応じて生じる圧力差 P_σ は、界面から液相方向を正とした（図２で述べたようにどちらの法線を採るのかを決める必要がある）。最近接点における２つの曲率は κ_1^0, κ_2^0、最近接点における偏角は t^0（Sessile と Pendant では $t^0 = 0$）とした。

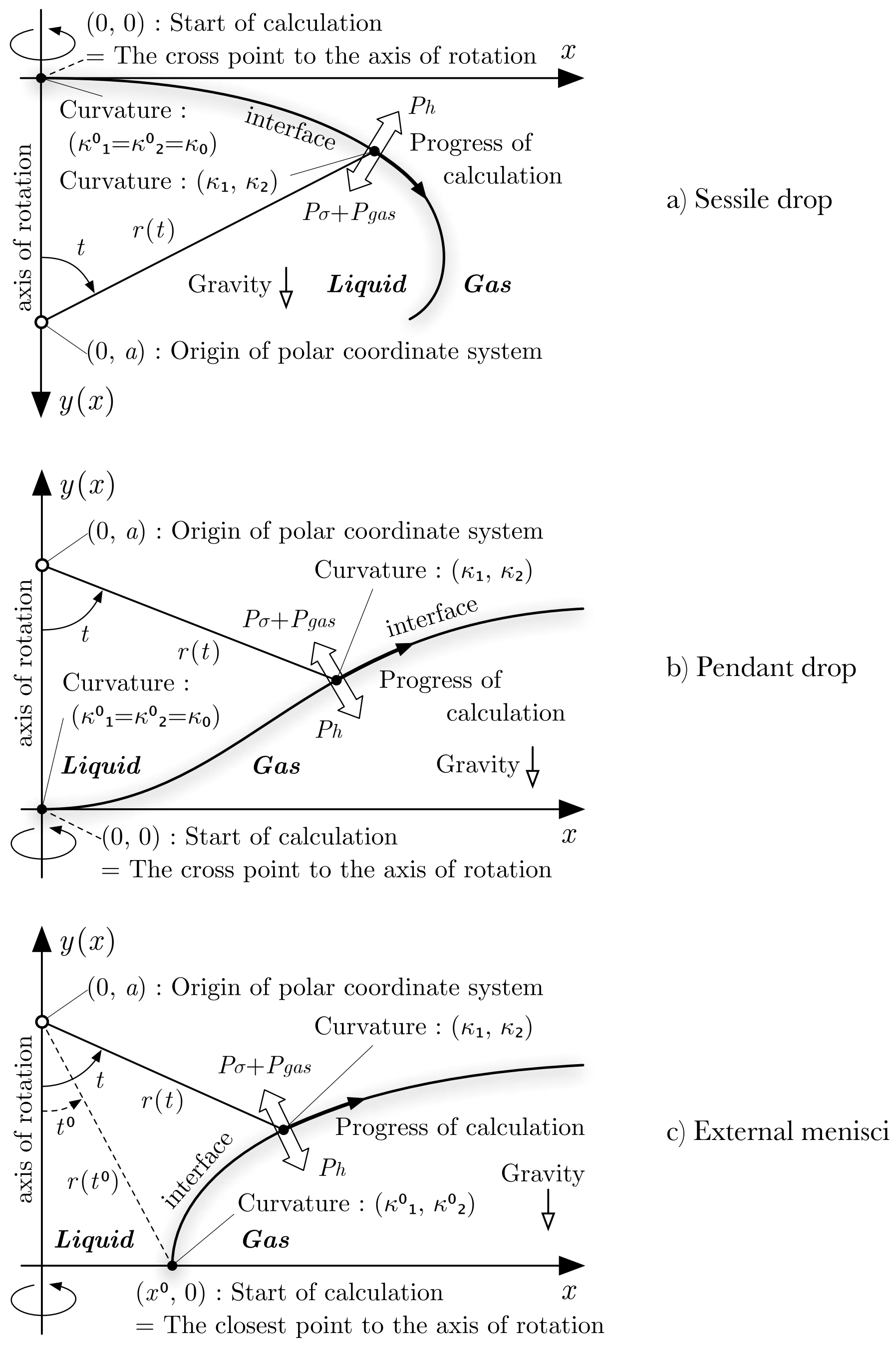


図６　座標系の設定と力の釣り合い及び数値計算の開始点と進行方向等

内部が液相で外部が気相の場合、力の釣り合いは、界面の種類によらず、以下の式に統一することができる：

$$P_\sigma + P_{gas} = P_h \tag{7}$$

それぞれの力は次のように表される：

・界面の表面張力及び平均曲率に応じて生じる圧力[3]（Young-Laplace 式）

$$P_\sigma = \sigma\left(\kappa_1 + \kappa_2\right) \tag{8}$$

・密度差による圧力差のうち $y = 0$ からの変化分（最近接点からの静水圧の変化分）

$$\begin{aligned} P_h &= \left(\rho_{liq} - \rho_{gas}\right) g\left(-y\right) \\ &= -\Delta\rho\, g\, y \quad \text{or} \quad -\Delta\rho\, g\left(a - r\cos t\right) \end{aligned} \tag{9}$$

・密度差による圧力差のうち $y = 0$ での圧力差（一定の気相圧）

$$P_{gas} = -\sigma\left(\kappa_1^0 + \kappa_2^0\right) = \text{const.} \tag{10}$$

ここで $\Delta\rho$ は液相密度 ρ_{liq} と気相密度 ρ_{gas} の差、σ は気液界面の表面張力、g は重力加速度、a は原点の y 座標、$\kappa^0{}_1$ と $\kappa^0{}_2$ は数値計算の開始点 $y = 0$ における曲率である。数値計算ではこれら６つを計算条件として与える。重力加速度は、Pendant drop と External menisci に対しては正の値を与えるが、Sessile drop に対しては負の値を与える。単位系は SI 或いは CGS に統一する。密度差、表面張力、原点の y 座標は正とする。

なお、曲線の形（対称軸を含む切断面に現れる曲線の形）は、a をどう選ぶのかには影響されない。但し、曲線に対応する r-t 座標の値は a によって変化するので、曲線に対応する x-y 座標の値（a によって変化しない）に最後に戻すのがよい。この方法では、$\mathrm{d}r/\mathrm{d}t \to \infty$ となった所で数値計算が終わる（図７）ので、曲線のできるだけ広い範囲で接線方向が原点を向かないよう、原点を選ぶ工夫が必要である。図７の場合ならば、a をもう少し小さくして x-y 座標の原点に近いところに極座標の原点を設定する方が有利となる。

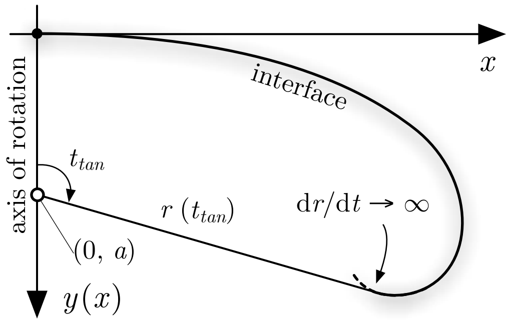


図７　数値計算の終了ポイントと極座標の原点との関係

3. 界面から液相方向を正の圧力としたので、曲率の正負もこれに一致させなければならない。Sessile drop では自明だが、Pendant drop や External menisci の場合は自明ではなく、実際、圧力は正負両方をとる。

2.4 断面曲線について解くべき微分方程式

式 (5), (6) を式 (8) に、式 (8), (9), (10) を式 (7) に代入すれば、解くべき微分方程式が極座標系において得られ、$z=f(x,\theta)$ 座標系による計算範囲の限界を超えることができる：

$$\sigma\left\{\,2\,r^3+3\,r\,(r')^2-r^2\,r''-\left[\,r^2+(r')^2\,\right]\,r'\cot t\,\right\}+ \\ \left[\,\Delta\,\rho\,g\,(a-r\cos t)-\,\sigma\,(\,\kappa_1^0+\kappa_2^0\,)\,\right]r\left[\,r^2+(r')^2\,\right]^{\frac{3}{2}}=0 \tag{11}$$

変数は、図６及び式 (5), (6) (7), (8), (9), (10) と共通である。与えるパラメータは、３つの界面に共通するものとして：

$$\sigma\,(>0),\ \Delta\rho\,(>0),\ a\,(>0) \tag{12}$$

それぞれの界面に対して：

Sessile drop では $$g\,(<0),\ \kappa_0=\kappa_1^0=\kappa_2^0\,(>0) \tag{13}$$

Pendant drop では $$g\,(>0),\ \kappa_0=\kappa_1^0=\kappa_2^0\,(>0) \tag{14}$$

External menisci では $$g\,(>0),\ \kappa_2^0\,(>0),\ \kappa_1^0\,(<0) \tag{15}$$

最近接点における初期条件は：

Sessile drop と Pendant drop では $$\begin{cases} t^0 & =0 \\ r(t^0) & =a \\ r'(t^0) & =0 \end{cases} \tag{16}$$

External menisci では[4] $$\begin{cases} t^0 & =\cos^{-1}\left[\,a/r(t^0)\right] \\ r(t^0) & =\sqrt{a^2+(\,1/\kappa_2^0\,)^2} \\ r'(t^0) & =-\,r(t^0)\,\cot t^0 \\ \quad\because & \dfrac{dx}{dy}=\dfrac{r\cos t\,+\,r'\sin t}{r\sin t\,-\,r'\cos t}=0 \\ \quad\because & \dfrac{1}{\kappa_2^0}=x^0 \end{cases} \tag{17}$$

Mathematica[5] を使って、External menisci の微分方程式を解く例を図８に示す。`In[2]` でパラメータを、`In[3]` で初期条件を与え、`In[4]` で最近接点より上の部分の、`In[7]` で最近接点より下の部分の微分方程式を解き、得られた結果を `In[10]` でグラフ化している。最近接点より下の部分では、与えた g を符号を逆にして解けばよい。

4. 図６の External menisci で、(0, 0) と (0, a) 及び (x^0, 0) で囲まれる三角形を考える。

5. Wolfram-Research 社の数学用汎用プログラム

Parameter Input

```
In[2]:= {sTension, deltaRho, gRavity, origDist, stepSize, inplKappa1, crplKappa2} =
          {0.072, 997.3, 9.80665, 0.002, 0.001, -1 / 0.00045, 1 / 0.0005};
```

Numerical Calculation

```
In[3]:= rrZero = Sqrt[origDist ^ 2 + (1 / crplKappa2) ^ 2];
        ttZero = ArcCos[origDist / rrZero]; drdtZero = -1 * rrZero * Cot[ttZero];

In[4]:= Off[NDSolve::"ndsz"];
        ifUpp = First[NDSolve[{sTension (2 r[t] ^ 3 + 3 r[t] r ' [t] ^ 2 - r ' ' [t] r[t] ^ 2 -
                  r ' [t] * (r[t] ^ 2 + r ' [t] ^ 2) * Cot[t]) +
               (deltaRho * gRavity * (origDist - r[t] * Cos[t]) -
                  sTension * (inplKappa1 + crplKappa2)) * r[t] * (r[t] ^ 2 + r ' [t] ^ 2) ^ (3 / 2) == 0,
            r[ttZero] == rrZero, r ' [ttZero] == drdtZero}, r, {t, ttZero, Pi}]];
        stUpp = Part[Part[ifUpp[[1, 2]], 1, 1], 1]; enUpp = Part[Part[ifUpp[[1, 2]], 1, 1], 2];
        plUpp = ListPlot[Table[{r[u] * Sin[u] /. ifUpp, origDist - r[u] * Cos[u] /. ifUpp},
            {u, stUpp, enUpp, stepSize}], DisplayFunction → Identity];

In[7]:= Off[NDSolve::"ndsz"];
        ifLow = First[NDSolve[{sTension (2 r[t] ^ 3 + 3 r[t] r ' [t] ^ 2 - r ' ' [t] r[t] ^ 2 -
                  r ' [t] * (r[t] ^ 2 + r ' [t] ^ 2) * Cot[t]) +
               (deltaRho * (-gRavity) * (origDist - r[t] * Cos[t]) -
                  sTension * (inplKappa1 + crplKappa2)) * r[t] * (r[t] ^ 2 + r ' [t] ^ 2) ^ (3 / 2) == 0,
            r[ttZero] == rrZero, r ' [ttZero] == drdtZero}, r, {t, ttZero, Pi}]];
        stLow = Part[Part[ifLow[[1, 2]], 1, 1], 1]; enLow = Part[Part[ifLow[[1, 2]], 1, 1], 2];
        plLow = ListPlot[Table[{r[u] * Sin[u] /. ifLow, r[u] * Cos[u] - origDist /. ifLow},
            {u, stLow, enLow, stepSize}], DisplayFunction → Identity];

In[10]:= plAll = Show[plUpp, plLow, DisplayFunction → $DisplayFunction, AspectRatio → 1,
           PlotRange → {{0, 10 / crplKappa2}, {-5 / crplKappa2, 5 / crplKappa2}}]
```

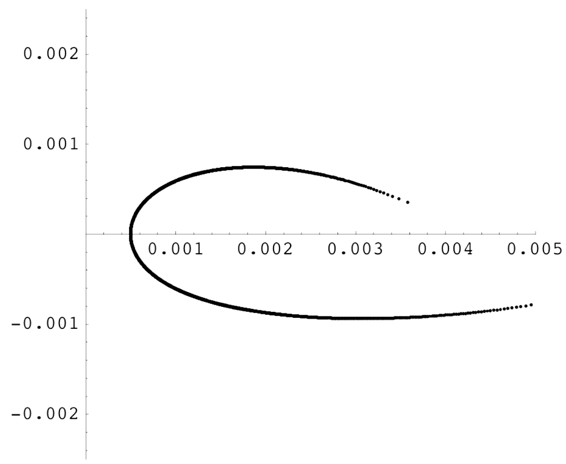


図８　*Mathematica* を使って最近接部の直径 1 mm の External menisci の界面形状を求める例

入力するパラメータは、$\sigma \rightarrow$ `sTension`, $\Delta\rho \rightarrow$ `deltaRho`, $g \rightarrow$ `gRavity`, $a \rightarrow$ `origDist`, $\kappa^0{}_1 \rightarrow$ `inplKappa1`, $\kappa^0{}_2 \rightarrow$ `crplKappa2` と `stepSize` の７つである。inpl は inplane, crpl は crossplane を意味する。`stepSize` は数値計算の際の偏角 t の刻みで、この例では 0.001 rad を与えている。また `inplKappa1` は −1/0.45 mm, `crplKappa2` は +1/0.5 mm を与えている。単位系は m 或いは cm に統一する限りどちらでもよいが、この例では m を用いている。微分方程式の解は *Mathematica* の内部関数（interpolating function）として求められ、最近接点より上の部分で `ifUpp`、最近接点より下の部分で `ifLow` で表される。`if` は interpolating function を意味する。

2.5 表面積と体積及び外接球半径の求め方

y 軸を中心とする回転体の表面積と体積の微小部分 dS と dV について、導出に係わる変数と導出の過程を図９に示す。偏角 t の微小変化 dt に対応する曲線上の長さの微小変化 dl と、dl を辺に持つ直角三角形 Δabc と Δabd を考える時、点 a,b,c,d は共に dl を直径とする円の円周上に存在する。このとき、円周角の定理から $\angle cad = \angle cbd = \pi/2 - (t + dt)$ であるから、$dt \to 0$ で $\angle cad = \angle cbd \to \pi/2 - t$ が得られる。また、dl の垂直方向の長さ（体積積分時の厚み）として $dl\cos(\pi/2 - t + \theta)$ が得られる。

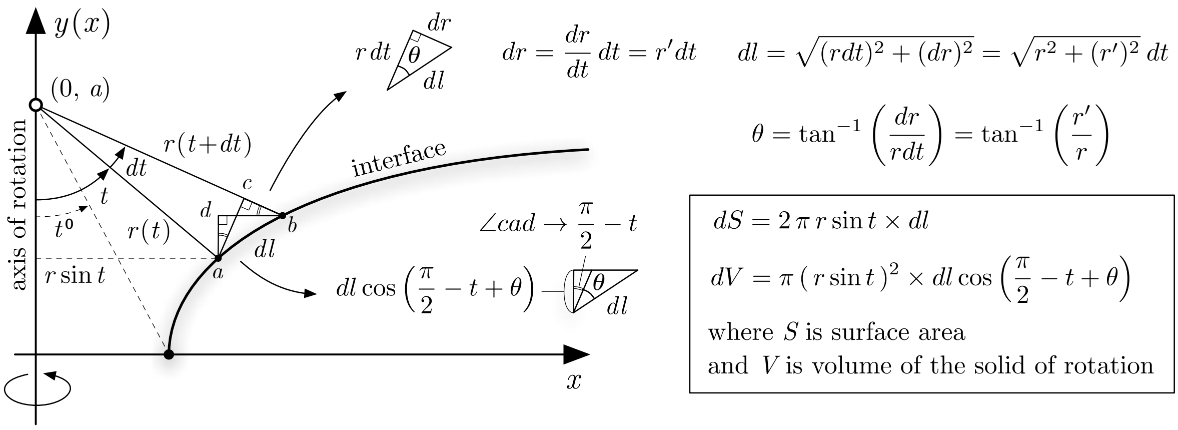


図９　回転体の表面積と体積の微小部分の導出方法（３種類の界面に共通）

図９では External menisci を例としたが、導出の方法と過程は３種類の界面で共通（Sessile drop と Pendant drop の場合は $t^0 = 0$ とすればよい）。図９の気液界面の断面の曲線を y 軸の周りに回転して得られる回転体の表面積 S と体積 V（回転軸側）は、偏角 t の関数として以下の式で表される：

$$S = 2\pi \int_{t_0}^{t} r \sin t \sqrt{r^2 + (r')^2}\, dt \tag{18}$$

$$V = \pi \int_{t_0}^{t} r^2 \sin^2 t \sqrt{r^2 + (r')^2}\ \sin\left[t - \tan^{-1}\left(\frac{r'}{r}\right)\right] dt \tag{19}$$

$$\text{where} \begin{cases} t_0 = 0 \text{ for Sessile drop and Pendant drop} \\ t_0 = \cos^{-1}\left[\dfrac{a}{\sqrt{a^2 + (1/\kappa_2^0)^2}}\right] \text{ for External menisci} \end{cases} \tag{20}$$

体積積分時の厚みに含まれる cos は式 (19) では sin に直してある。式 (19) は $r \neq 0$ が条件であるが $a > 0$ であるので問題ない。式 (20) は式 (17) から導かれる。但し、External menisci の回転体はいわゆる液架橋の半分だけであることに注意する必要がある。図８に続くプログラム（変数名は共通）で表面積と体積を求める例を図１０と図１１に示す。

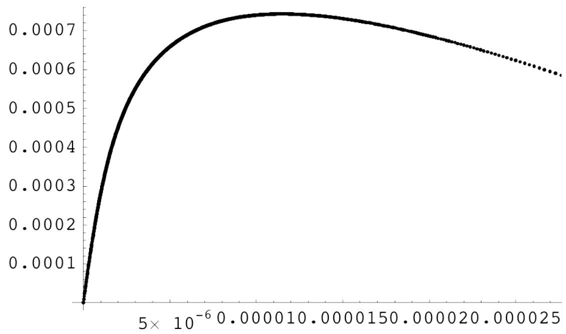
図１１の縦軸は図８の縦軸と同じ y 軸、横軸が表面積或いは体積である。式 (18), (19), (20) による定義で図８の界面形状（External menisci）の場合、表面積は最上部を過ぎても増加し続けるが、体積は最上部を過ぎると増加分が負となり減少に転じる。これは dl の垂直方向の長さが定義によって負となった結果であり、液架橋でこの領域が問題になることは少ないと思われるが、必要ならば dl の垂直方向の長さの絶対値で積分すればよい。

```
In[11]:= kappa1Upp := (r[u]^2 + 2 * r'[u]^2 - r[u] * r''[u]) / (r[u]^2 + r'[u]^2)^(3 / 2) /. ifUpp;
         kappa2Upp := (r[u] - r'[u] * Cot[u]) / (r[u] * Sqrt[r[u]^2 + r'[u]^2]) /. ifUpp

In[13]:= surfaceUpp :=
           2 * Pi * NIntegrate[r[z] * Sin[z] * Sqrt[r[z]^2 + r'[z]^2] /. ifUpp, {z, ttZero, u}];
         volumeUpp := Pi * NIntegrate[r[z]^2 * Sin[z]^2 * Sqrt[r[z]^2 + r'[z]^2] *
              Sin[z - ArcTan[r'[z] / r[z]]] /. ifUpp, {z, ttZero, u}]
```

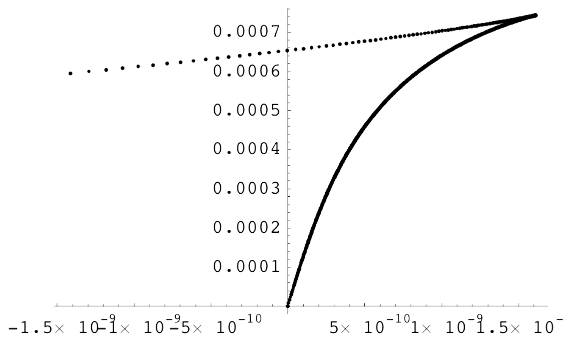
図１０　微分方程式の解（ifUpp）を使って κ_1, κ_2 と表面積及び体積を求める例

```
In[17]:= ListPlot[
          Table[{surfaceUpp, origDist - r[u] * Cos[u] /. ifUpp}, {u, ttZero, enUpp, stepSize}]]
```




```
Out[17]= - Graphics -

In[18]:= Off[NIntegrate::"ncvb"]; ListPlot[
          Table[{volumeUpp, origDist - r[u] * Cos[u] /. ifUpp}, {u, ttZero, enUpp, stepSize}]]
```




```
Out[18]= - Graphics -
```

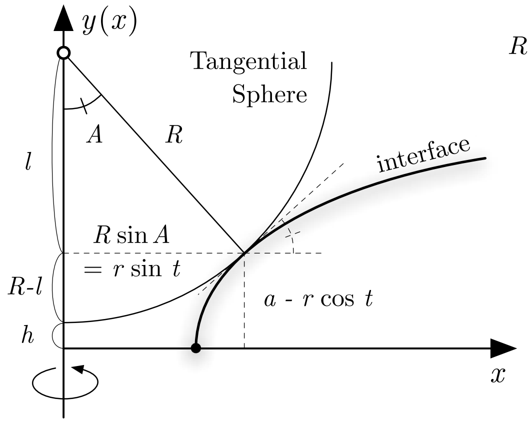
図１１　表面積（上）及び体積（下）の計算例

液架橋の問題を取り扱う場合には、External menisci に対し上下で接する面が、水平面ではなく２つの球体表面となる。液架橋の体積は、気液界面の断面の曲線（球との接線まで）を y 軸の周りに回転して得られる回転体の体積から、この回転体と球体が重複している部分

（部分球と呼ぶ）の体積を差し引くことにより得られる。球の半径 R (>0)、部分球の高さ又は深さ $R\text{-}l$ (>0)、部分球の頂上又は底と $y = 0$ との隙間 h (>0)について、導出にかかわる変数と導出の過程を図１２に示す。

$$\tan A = \frac{r\sin t}{l} = \frac{dy}{dx} = \frac{r\sin t - r'\cos t}{r\cos t + r'\sin t} \qquad l = r\sin t \times \frac{r\cos t + r'\sin t}{r\sin t - r'\cos t}$$

$$R = \frac{l}{\cos A} = \sqrt{l^2 + r^2\sin^2 t} \qquad h = a - r\cos t + l - R$$



$$R = \frac{r\sin t\,\sqrt{r^2 + (r')^2}}{r\sin t - r'\cos t}$$

$$R - l = \frac{r\sin t\left[\sqrt{r^2 + (r')^2} - r\cos t - r'\sin t\right]}{r\sin t - r'\cos t}$$

$$h = \frac{r\sin t\left[a - \sqrt{r^2 + (r')^2}\right] + rr' - ar'\cos t}{r\sin t - r'\cos t}$$

図１２　外接球の半径、部分球の高さ又は深さ等の導出方法（External menisci のみ）

部分球の体積 V_{dish} は、球冠の体積の公式[6]に R と $R - l$ を代入すれば、次式で表される：

$$V_{dish} = \frac{\pi}{3}\,(R - l\,)^2\,\left[\,3R - (R - l)\,\right] \tag{21}$$

液架橋の体積 V_{bridge}（但し $y \geq 0$ なので液架橋全体の半分）は、式 (19) で求めた体積 V と式 (21) で求めた体積 V_{dish} の差となる：

$$V_{bridge} = V - V_{dish} \tag{22}$$

外接球の半径及び部分球の高さ等を求め、図９と図１１で求めた断面曲線/表面積/体積も合わせて出力する *Mathematica* のプログラムを図１３に示す。出力は、汎用の表計算ソフトやグラフ作成専用ソフトで処理できるようタブ区切りテキストとしたが、タブ区切りテキストファイルを生成するマクロは市販の解説本等を参照して作成する必要がある。なお図１３では、`radSphUpp` は R に、`btmDishUpp` は h に、`depDishUpp` は $R\text{–}l$ に、`sLopeUpp` は接線の傾きに、`mdUpp` は y が最大となる偏角 t に、`coUpp` は h=0 となる偏角 t に対応する。`stUpp` と `enUpp` は図８で定義しているが、偏角 t の可動範囲であり、`stUpp` は t^0 と同じになる。また、出力 *In[30]* では、パラメータ（$\sigma, \Delta\rho, g, a, \kappa^0{}_1, \kappa^0{}_2$）を様々に変化させながら出力を繰り返す際、出力ファイル名に全パラメータ値が含まれるように工夫している[7]ので、与えたパラメータ値と出力の対応に誤りが生じることはない。

---

6. 機械工学便覧 基礎編 A1 及び A2 の A2-41 の球冠の体積の公式等を利用する。
7. 出力ファイル名が長くピリオドも含まれるので Win XP では注意が必要。OSX や Windows 7 では問題ない。

```
In[26]:= radSphUpp :=
           (r[u] * Sin[u] * Sqrt[r[u]^2 + r'[u]^2]) / (r[u] * Sin[u] - r'[u] * Cos[u]) /. ifUpp;
         btmDishUpp := (r[u] * Sin[u] * (origDist - Sqrt[r[u]^2 + r'[u]^2]) + r[u] * r'[u] -
              origDist * r'[u] * Cos[u]) / (r[u] * Sin[u] - r'[u] * Cos[u]) /. ifUpp;
         depDishUpp := (r[u] * Sin[u] * (Sqrt[r[u]^2 + r'[u]^2] - r[u] * Cos[u] - r'[u] * Sin[u])) /
             (r[u] * Sin[u] - r'[u] * Cos[u]) /. ifUpp;
         sLopeUpp := ArcTan[(r[u] * Sin[u] - r'[u] * Cos[u]) / (r[u] * Cos[u] + r'[u] * Sin[u])] /.
            ifUpp;

In[30]:= SetDirectory["/Users/takashi/Desktop"];
         mdUpp = u /. {Part[FindMinimum[
               (r[u] * Cos[u] - origDist) /. ifUpp, {u, stUpp, stepSize, enUpp}], 2, 1]};
         coUpp = u /. {First[FindRoot[btmDishUpp ⩵ 0 /. t → u, {u, stUpp, mdUpp}]]};
         toExcel2007["ExM_U" <> "_sT" <> ToString[AccountingForm[sTension]] <>
           "_dR" <> ToString[AccountingForm[deltaRho]] <>
           "_oD" <> ToString[AccountingForm[origDist]] <>
           "_gR" <> ToString[AccountingForm[gRavity]] <>
           "_iK1" <> ToString[AccountingForm[inplKappa1]] <>
           "_cK2" <> ToString[AccountingForm[crplKappa2]] <> ".xls",
          Prepend[
             Table[   {u, r[u] /. ifUpp, r'[u] /. ifUpp, r''[u] /. ifUpp,
                      r[u] * Sin[u] /. ifUpp, origDist - r[u] * Cos[u] /. ifUpp,
                      kappa1Upp, kappa2Upp, 0.5 * (kappa1Upp + kappa2Upp),
              If[u > stUpp, sLopeUpp, 0.5 * Pi], surfaceUpp, volumeUpp, radSphUpp,
              If[u <= coUpp, 0, btmDishUpp], If[u <= coUpp, 0, depDishUpp],
              If[u <= coUpp, 0, volumeUpp - Pi * depDishUpp^2 * (radSphUpp - depDishUpp / 3)]},
            {u, stUpp, mdUpp, stepSize}
                  ],
                     {"t", "r", "r'", "r''", "x", "y",
                      "K1", "K2", "(K1+K2)/2", "dy/dx", "S", "V", "R", "h", "R-l", "V-Dish"}
                 ]  ]      (*Please wait for a few minutes to get output*)
```

図１３　微分方程式の解（ifUpp）を使って外接球の半径及び部分球の高さ等を求め
図８と図１０で求めた界面形状/表面積/体積も合わせて出力する例

本プログラムは *Mathematica* Ver.5.0 では比較的速く計算が行える（t の分割数が数百の場合に CPU が G4 クラスの５年以上前の Macintosh OSX で計算時間が 10 分程度）が、最新の *Mathematica* Ver.8 と Core i7 クラスの Windows 7 で計算が遅くなる問題があり、改良が必要である[8]。解の収束性については *Mathematica* の関数（図８, １０, １１, １３を参照）に全面的に依存しているが、標準的な設定で大きな問題は生じていない。収束が遅いというメッセージがパラメータによっては出るものの、計算は続行可能である。

なお、気液界面の実際の寸法が得られるよう無次元化は行わなかったが、式 (11) を見れば判るように、物性項は $\sqrt{\Delta\rho g/\sigma}$ [1/m] の形に集約できるので、これに r を乗じれば無次元長さを得ることができる。理論的な解析を行う場合はそのようにすべきであろう。実際に、既存の多くの文献ではこのような無次元化が行われている。しかしながら本報告では、計算結果が実際に見られる形と正確に一致すること、日常的に見られる形は計算結果の一部であること（接触角等の物理的条件に対応して選ばれる）を理解し易くするため、あえて無次元化は行わなかった。

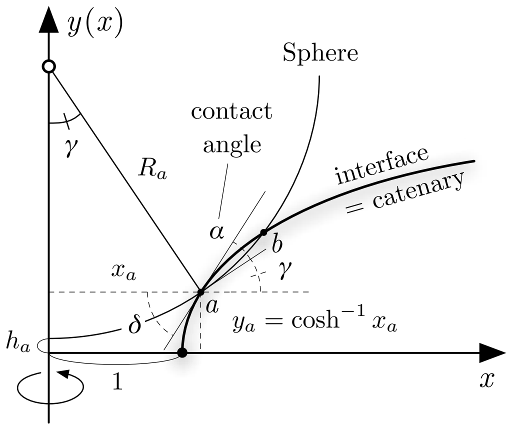
8. 執筆時点（H24年8月末）では適切な方法が見つかっていない。t を変化させながらの積分計算に時間がかかっており、Table 関数に NIntegrate 関数が組み込まれている構造に問題があると予想している。

2.6 断面が懸垂線となる特別な場合の厳密解

External menisci の場合、表面張力が重力よりも十分に大きいと見なせる（重力を無視できる）ならば、力の釣り合いを満たす気液界面の断面図は懸垂線になることが 17 世紀末から知られている[14]。また平均曲率は零となる（巻末の付録を参照）。この場合は、数値計算によらずに表面積や体積、外接球の半径及び部分球の高さ等を厳密に求めることができ、また球が界面と交差する場合の角度（接触角）も厳密に求めることができる。等径の球状小粒子間に形成される液架橋が典型的な例である。

懸垂線が x 軸と交差する点を $x = 1$ に規格化した上で、粒子と液架橋が交差する点 a, b のうち、液架橋側の交点の x 座標 x_a と粒子径 R_a を変数として、接触角 α 及び 粒子と $y = 0$ との隙間 h_a を導出する方法を図１４に示す。懸垂線の規格化の結果として $\kappa_1 = -1, \kappa_2 = +1$ であり、図１２と同様に粒子が外接する場合は $R = x^2$ なので $\alpha \geq 0$ に対応して $R_a \geqq (x_a)^2$ である[9]。$h_a \geq 0$ という条件については後述する。

$$x_a = \cosh y_a = \frac{e^{y_a} + e^{-y_a}}{2} \qquad \left(\frac{dx}{dy}\right)_a = \sinh y_a = \frac{e^{y_a} - e^{-y_a}}{2} \qquad \tan\delta = \left(\frac{dy}{dx}\right)_a = \sqrt{\frac{1}{(x_a)^2 - 1}}$$



$$\tan\gamma = \frac{x_a}{\sqrt{(R_a)^2 - (x_a)^2}} = \sqrt{\frac{1}{(R_a/x_a)^2 - 1}}$$

$$\alpha = \tan^{-1}\sqrt{\frac{1}{(x_a)^2 - 1}} - \tan^{-1}\sqrt{\frac{1}{(R_a/x_a)^2 - 1}}$$

$$h_a = \cosh^{-1} x_a - \left(R_a - \sqrt{(R_a)^2 - (x_a)^2}\right)$$

$$\text{where}\begin{cases} 1 < x < R_a \\ (x_a)^2 < R_a & \because \alpha > 0 \end{cases}$$

図１４　懸垂線を描く界面と球が交差する場合の接触角等の導出方法

懸垂線（粒子と液架橋が交差する点まで）を y 軸の周りに回転して得られる回転体の体積は、粒子と液架橋の交点の座標を（x_a, y_a）として：

$$\begin{aligned} V &= \int_0^{y_a} \pi\,(\cosh y\,)^2 dy \ = \frac{\pi}{2}\left(\frac{e^{2y_a} - e^{-2y_a}}{4} + y_a\right) \\ &= \frac{\pi}{2}\,(\cosh y_a\ \sinh y_a + y_a\,) \\ &= \frac{\pi}{2}\left(x_a\sqrt{(x_a)^2 - 1} + \cosh^{-1} x_a\right) \end{aligned} \tag{23}$$

9. 液架橋から遠い側の交点の x 座標 x_b では $(x_b)^2 > R_b$ となる

一方、部分球の体積 V_{dish} は式 (21) を応用して：

$$V_{dish} = \frac{\pi}{3}\left(R_a - \sqrt{(R_a)^2-(x_a)^2}\right)^2\left(3R_a - R_a + \sqrt{(R_a)^2-(x_a)^2}\right) \tag{24}$$

液架橋の体積 V_{bridge}（但し $y \geq 0$ なので液架橋全体の半分）は、式 (23) で求めた体積 V と式 (24) で求めた体積 V_{dish} の差であり、式 (22) と同じとなる。

次に、懸垂線（粒子と液架橋が交差する点まで）を y 軸の周りに回転して得られる回転体の表面積は次式で与えられ、体積の丁度２倍になる。dl は図９と同じ界面に沿った微小長さである：

$$\begin{aligned} S &= \int_0^{y_a} 2\pi\,\cosh y\,dl = \int_0^{y_a} 2\pi\,(\cosh y)^2 dy \;= 2\,V \\ \because dl &= \sqrt{(dx)^2+(dy)^2} = dy\sqrt{\left(\frac{dx}{dy}\right)^2+1} = x\,dy \end{aligned} \tag{25}$$

上下の球が重ならない、即ち $h_a \geq 0$ という条件も必要である。この時、次式が成り立つ：

$$y_a = \cosh^{-1} x_a \geqq R_a - \sqrt{(R_a)^2-(x_a)^2} \tag{26}$$

R_a を不等号の左辺に移し、両辺を自乗すれば R_a の下限[10]が得られる：

$$R_a \geqq \frac{\left(\cosh^{-1} x_a\right)^2 - (x_a)^2}{2\cosh^{-1} x_a} \tag{27}$$

$\alpha \geq 0$ かつ $h_a \geq 0$ を満たす領域は、図１５の曲線 A の上側（$\alpha \geq 0$ に対応）かつ曲線 B の上側（$h_a \geq 0$ に対応）の領域となる：

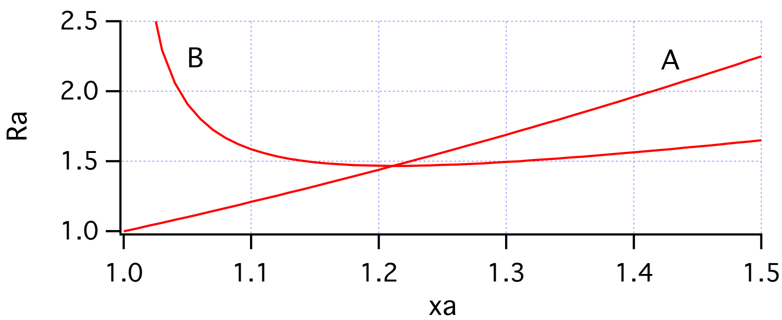


図１５　液架橋を懸垂線と見なす場合に $\alpha \geq 0$ かつ $h_a \geq 0$ を満たす領域

10. 原点（0, 0）と交点（x_a, y_a）を通る円の半径に相当する。

接触角 α と x 座標 x_a を与えて粒子径 R_a を求める場合、次の式を用いることができる：

$$\begin{cases} \tan\delta = \sqrt{\dfrac{1}{(x_a)^2-1}} \\ R_a = x_a\,\dfrac{\sqrt{1+\tan^2\delta\,\tan^2\alpha+\tan^2\delta+\tan^2\alpha}}{\tan\delta-\tan\alpha} \end{cases} \tag{28}$$

h_a を求めるには図１４の枠内の式を用いる。式 (28) から δ を求め、δ - α = γ と図１４の $\tan\gamma$ の式を用いて $\sqrt{(R_a)^2-(x_a)^2}$ を求めてもよい。V_{dish} についても同様である。

特別ではあるが有用なケースとして、上下の粒子が点接触し（$h_a = 0$）かつ液相と粒子の濡れ性が非常に良い場合（$\alpha = 0$）は、x_a は一点に決まるので、こららの式は非常に簡単になる。まず $\alpha = 0$ から $R_a = (x_a)^2$ であり、$h_a = 0$ から：

$$\begin{aligned} y_a = \cosh^{-1} x_a &= (x_a)^2 - x_a\sqrt{(x_a)^2-1} \\ &= (\cosh y_a)^2 - \cosh y_a\,\sinh y_a \\ &= \frac{1}{2}\left(e^{-2y_a}+1\right) \end{aligned} \tag{29}$$

が得られる。この式は $2t = e^{-2t}+1$ の形であるから、これを解くと y_a が得られ、続いて cosh に代入すると x_a が得られる。また、式 (23), (24) も非常に簡単になる：

$$\begin{cases} V = \dfrac{\pi}{2}\,(x_a)^2 \\ V_{dish} = \dfrac{\pi}{3}\,(y_a)^2\,[\,3\,(x_a)^2 - y_a\,] \end{cases} \tag{30}$$

WolframAlpha[11] を利用すると以下の解（図１５の曲線 A と曲線 B の交点）が得られる：

$$y_a = 0.6392,\ x_a = 1.2114,\ V = 2.3050,\ V_{dish} = 1.6102,\ V_{bridge} = 0.6948,\ R_a = 1.4674 \tag{31}$$

上下の粒子が接触しない（$h_a > 0$）時でも、液相と粒子の濡れ性が非常に良い（$\alpha = 0$）ならば、以下の式が成り立つ：

$$\begin{cases} V = \dfrac{\pi}{2}\,\left[\,h_a + (x_a)^2\right] \\ V_{dish} = \dfrac{\pi}{3}\,(y_a - h_a)^2\,\left[\,3\,(x_a)^2 - y_a + h_a\,\right] \end{cases} \tag{32}$$

この他にも、有用な式変形は幾つかあると思われるが、これ以上は省略する。

11. *Mathematica* のエンジンを無料でオンライン利用できるサービス（http://www.wolframalpha.com/）。

2.7 常温常圧の空気−水界面形状の計算例とその特徴

Sessile drop について式 (11), (12), (13), (14), (16) により求めた室温かつ大気圧下における水と空気の界面形状を図１６に示す。tCn の n は最近接点（y 軸との交点）における界面の曲率 $\kappa_1^0 = \kappa_2^0 = \kappa_0$ [1/m] である。密度差 $\Delta\rho$ は 997.3 [kg/m^3]、表面張力 σ は 0.072 [N/m]、重力加速度 g は 9.80665 [m/sec^2]、偏角 t の刻みは 0.002 [rad] とした。極座標の原点の y 座標 a は 1 mm（n が小さい場合）又は 0.5 mm（n が大きい場合）としたが、図７で述べたように曲線の形は a をどう選ぶのかには影響されず、また偏角 t の刻みの影響も殆どない[12]。

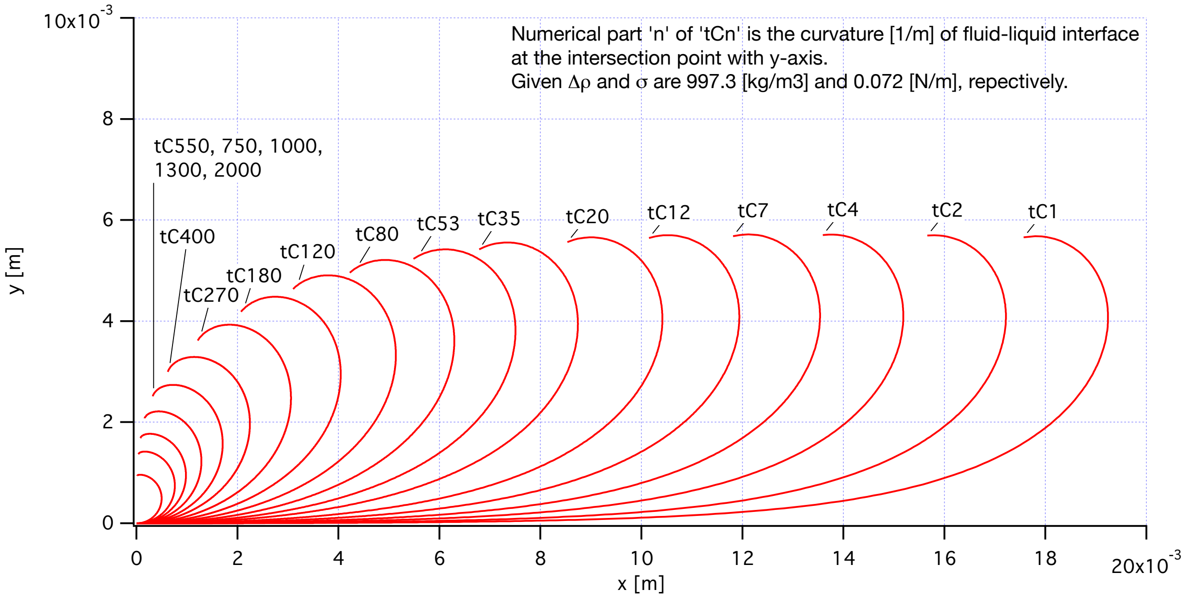
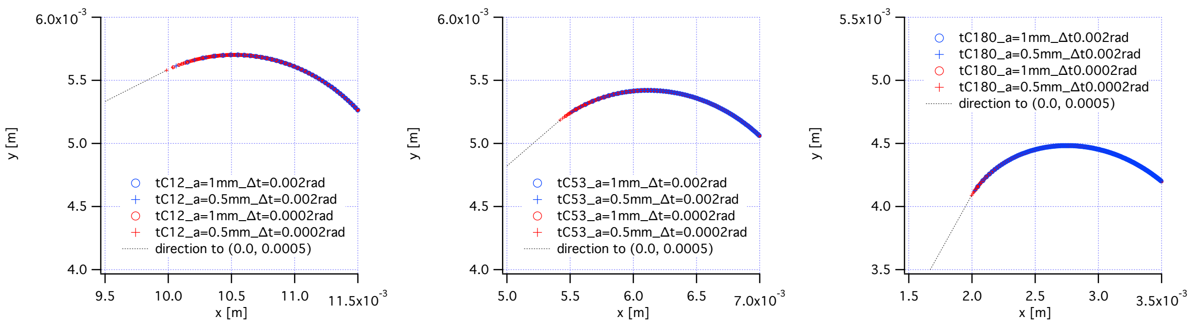


図１６　室温，大気圧下における水と空気の界面形状（Sessile drop）

表１に示した日常的に見られる気泡或いは液滴の形状を良く再現しており、目論見通り、図５の場合に代表されるトーラスの正確な直径と気泡の正確な高さ及び曲率を求めることができた。水中で実際に気泡形状を観察して計算結果と比較した結果、及び硝酸プルトニウム溶液中でこれらがどのようになるか予想する方法等については第３章で述べる。

---

12. tC12, tC53, tC180 について、a = 1 mm の場合と a = 0.5 mm の場合で、t の刻み 0.002 rad と 0.0002 rad の場合の計算終了点（dr/dt→∞）付近の詳しい形状を以下に示す。



続いて、横軸に y 座標、縦軸に主曲率 κ_1 と κ_2 をプロットした結果を $\kappa_0 = 12, 53, 180, 550$ [1/m] について示す（図１７）。図１６を図５の気泡形状と見た時、$\kappa_2 = 0$ となる点が気泡の高さ（y 座標）の最大、即ちトーラスの頂部となる。$\kappa_2 < 0$ はトーラスの内側に対応し、偏角の計算限界で終わる。平均曲率 $(\kappa_1 + \kappa_2)/2$ は、気泡の高さ＝水深の減少に伴い直線的に増加する。日常的に見られる気液界面でこのトーラスを観察することは難しいが、偏角の計算限界で界面が終わる物理的な理由はなく、座標系の限界に過ぎない。

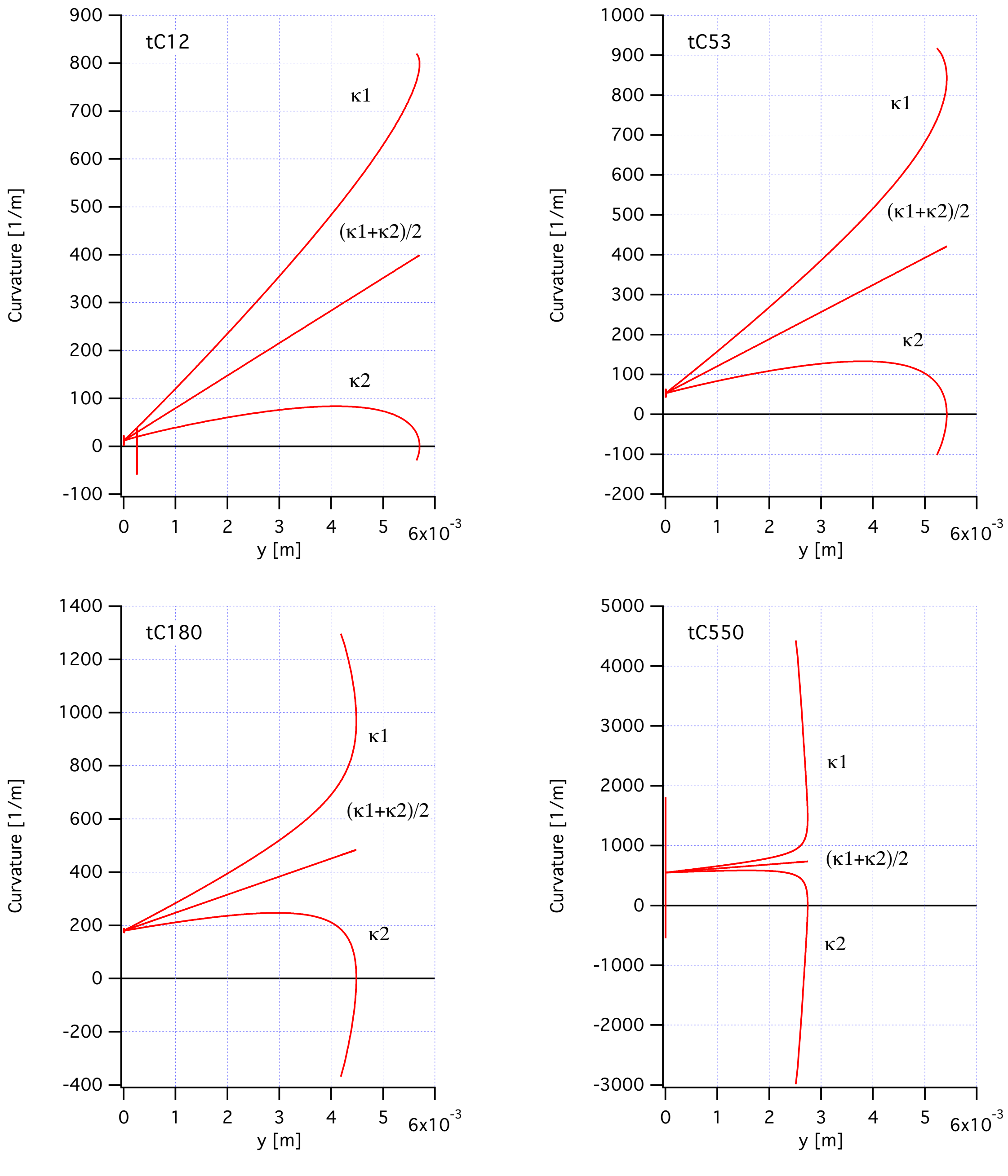


図１７　室温，大気圧下における水と空気の界面の主曲率の変化（Sessile drop）

計算の初期（偏角 t が小さい時）に計算が乱れることがあった（tC12, tC550 に見られる）が、計算は続行可能で、得られた値からみても妥当な結果となっている。

次に Pendant drop について水と空気の界面形状を図１８に示す。凡例や与えたパラメータは図１６と同じであるが、できるだけ広い範囲を計算するためには、曲線の接線が極座標の原点を向く（図７）状況を避ける必要があり、tC150 以下で $a = 10$ mm、tC450 で $a = 16$ mm と増加させ、tC500 では $a = 10$ mm、tC600 で $a = 7$ mm と減少させ、徐々に neck に近い位置に極座標の原点を置いた。適当と思われる a で計算を行い、試行錯誤で修正してゆけばよい。なお Pendant drop の最も水平幅の大きい箇所を "bulge"、小さい箇所を "neck" と呼ぶ。

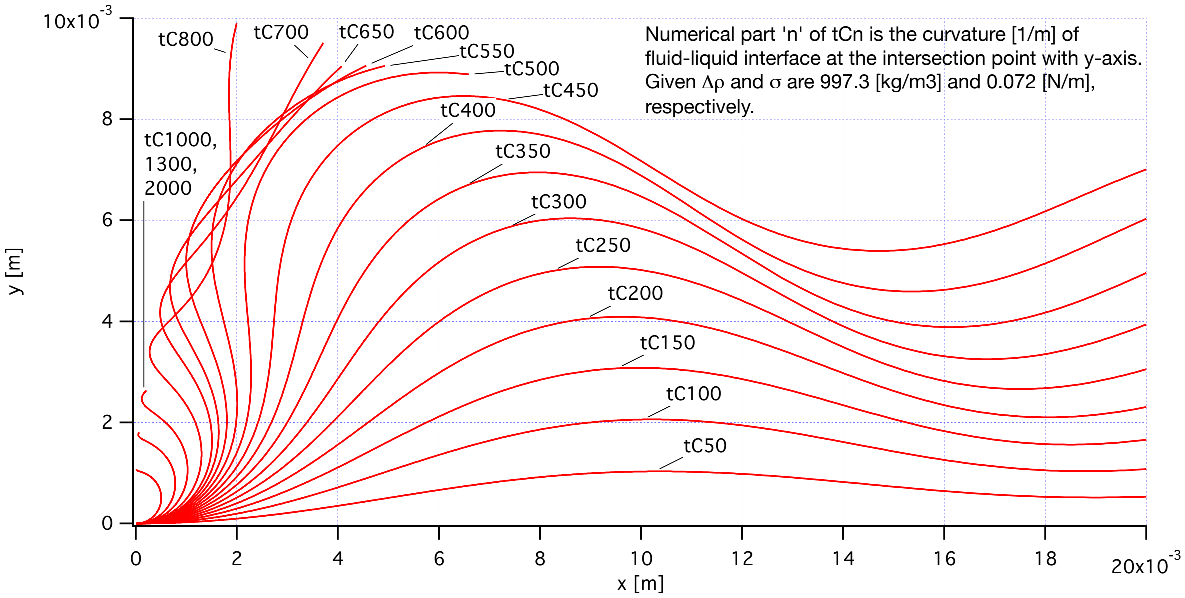


図１８　室温，大気圧下における水と空気の界面形状（Pendant drop）

図１６の Sessile drop の場合と比較すると、κ_0 の大きい時に蛇口から滴る水の形が、κ_0 の小さい時に天井から滴る水の形が現れているが、日常的に見られる形を大きく超えている。その理由は第４章で述べる。また、特徴的な主曲率の振動が現れる（図１９）。

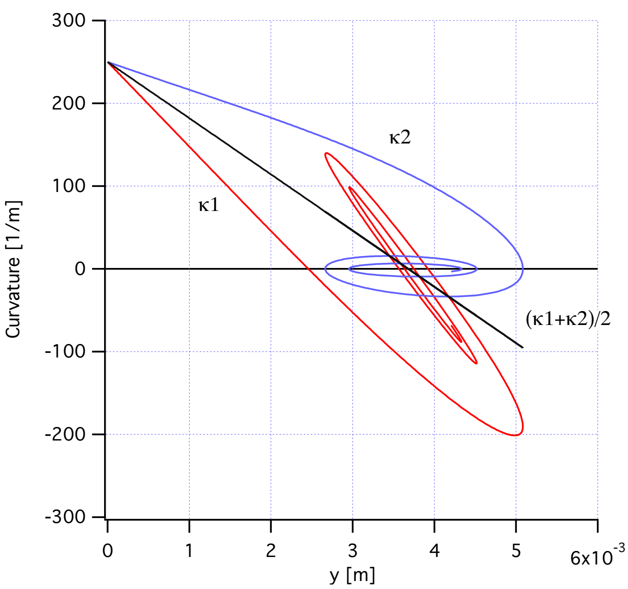


図１９　Pendant drop (tC250) に現れた主曲率の振動

Sessile drop の場合との大きな違いは、y の増大とともに平均曲率が減少し途中からは負に転じている点と、主曲率 κ_1, κ_2 が振動している点である。これらの特徴を見るために、横軸に y 座標、縦軸に主曲率 κ_1 と κ_2 をプロットした結果を $\kappa_0 = 250, 500, 550, 700$ [1/m] について示す（図２０）。いずれの場合も、平均曲率が負に転じることでは同じ（tC700 は直前で計算限界に達しているものの）だが、主曲率の振動は κ_0 の増大とともに紐が解けるように様相を変えてゆくことがわかる。また、y が最大を持つ場合は κ_2 が零になる時に y が最大になること、κ_1 が最小になる y と κ_2 が最大になる y は「ずれ」ており、κ_2 が最大になる y が neck に対応すること、bulge との対応は明確でないことがわかる。

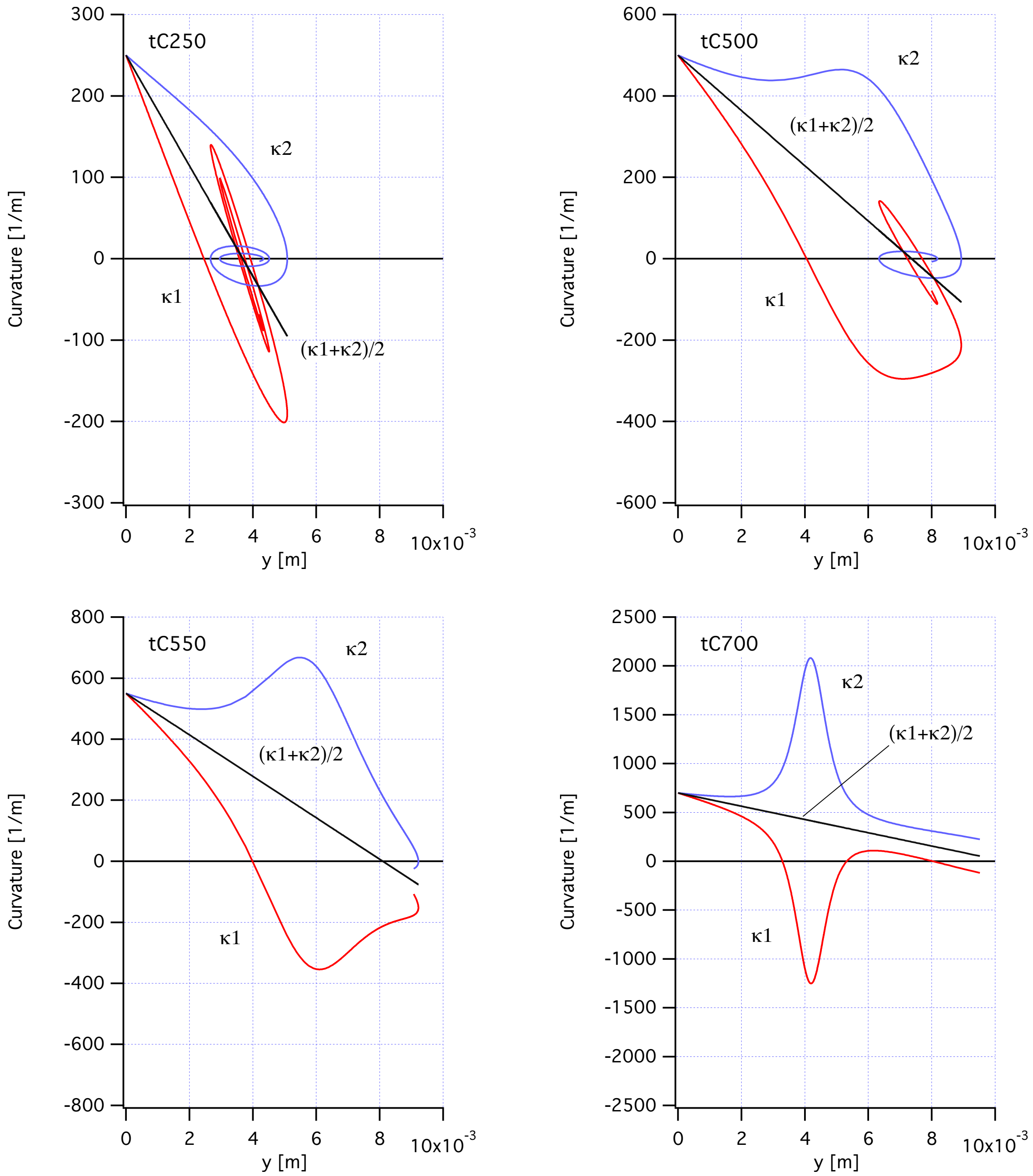


図２０　室温，大気圧下における水と空気の界面の主曲率の変化（Pendant drop）

次に External menisci について水と空気の界面形状を図２１に示す。与えた物性値は図１６と同じであるが、最近接点（y 軸との交点）における界面の曲率は、図１６や１８と異なり κ_1^0, κ_2^0 が独立である。κ_2^0 を $+2000$（$+1/0.0005$）[1/m]、すなわち最近接点或いは neck の直径を 1 mm に固定し、κ_1^0 を -3333（$-1/0.0003$）から -1428（$-1/0.0007$）[1/m] まで変化させた。図２１は、$y \geq 0$ の領域と $y \leq 0$ の領域で別々に極座標の原点を設定し別々に計算を行った結果を合わせてプロット（図８参照）しているので、図１８の場合ほど極座標の原点を敏感に変化させてはいないが、ある程度の試行錯誤は必要とした。

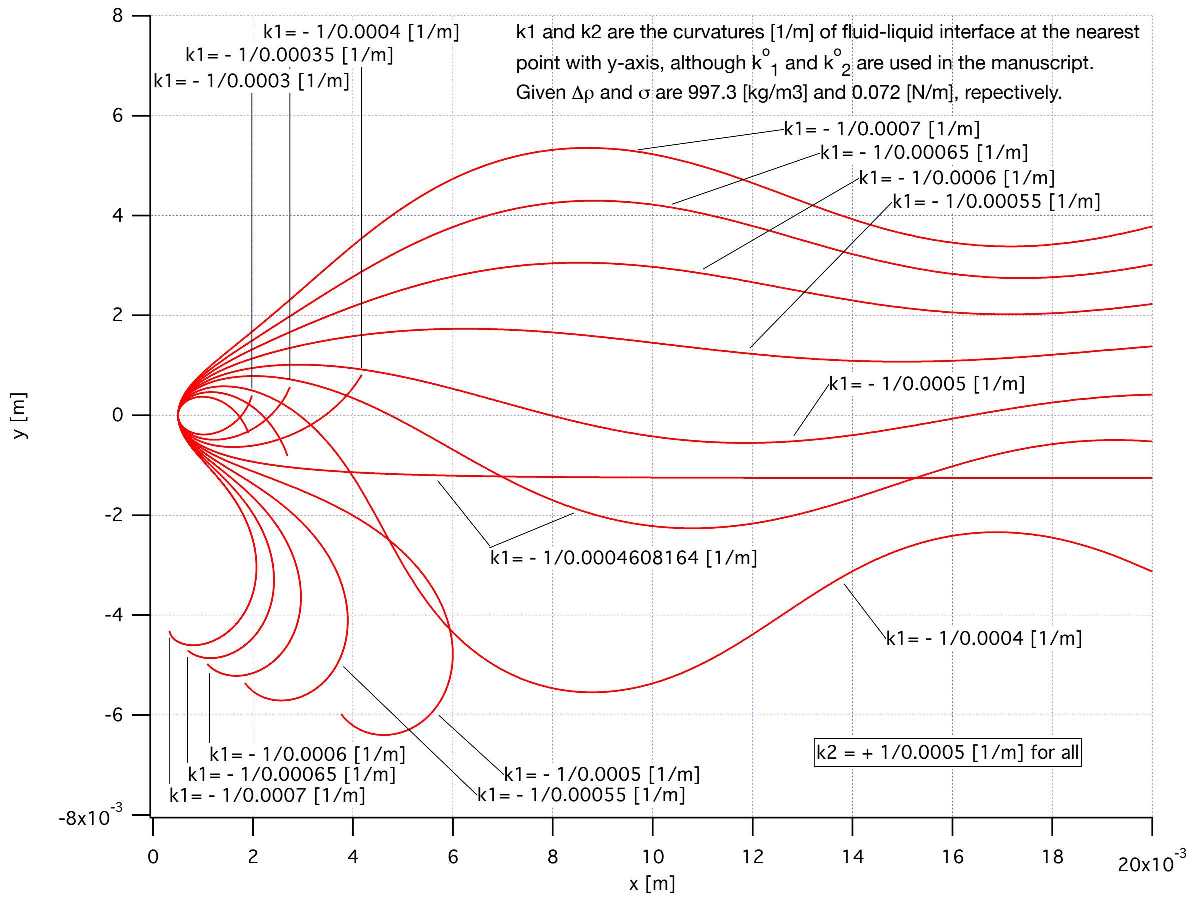


図２１　室温，大気圧下における水と空気の界面形状（External menisci）

κ_1^0 を -2170.062（$-1/0.0004608164$）[1/m] とした時、界面の下半分は限りなく水平線に近づいた。これは、親水性又は疎水性の直径 1 mm の円盤（円柱）の周囲に形成される水面の形に相当し、水平線と原点の y 座標の差（1.25 mm）までは円盤（円柱）を水面から離すか或いは押し込むことができる。直径が大きく（κ_2^0 が小さく）なればこの距離は大きくなり、直径→∞では、接触角が零の親水性の垂直平面と遠方水面の間に形成される湾曲面[13]の高さ（$\sqrt{2\sigma/(\rho g)} \doteqdot 3.8$ mm [14]）に、直径→0では零に収束する。詳細は第４章で述べる。

13. 小野周, 表面張力, 共立出版, 1992. の式 (4.11) で、この湾曲面の形状が解析的に与えられている。

14. ドゥジェンヌ他, 表面張力の物理学, 吉岡書店, 2008. の式 (2.20) で、$\theta_E = 0$ とすればこの式が得られる。

図１７及び図２０と同様に、横軸に y 座標、縦軸に主曲率 κ_1 と κ_2 をプロットした結果を $\kappa_1 = -1/0.0007, -1/0.0005, -1/0.0004608164, -1/0.0004$ [1/m] について示す（図２２）。κ_2^0 は $+1/0.0005$ [1/m] に固定した。$\kappa_2 = 0$ となる場所が y 座標の最大と最小に対応すること、平均曲率が減少し途中からは負に転じること、図２０でもそうであったが、平均曲率 = 0 となる y 座標を中心に主曲率 κ_1, κ_2 が振動することなど、Sessile drop と Pendant drop の主曲率の変化を併せ持つことがわかる。また、図２０の tC700 において偏角の計算限界で終わっている右端部分は、$\kappa_1 = -1/0.0007$ [1/m] のグラフの右端部分と同様ではないか、紐が解けるように見えるのは計算限界による誤解ではないか、と予想することができる。

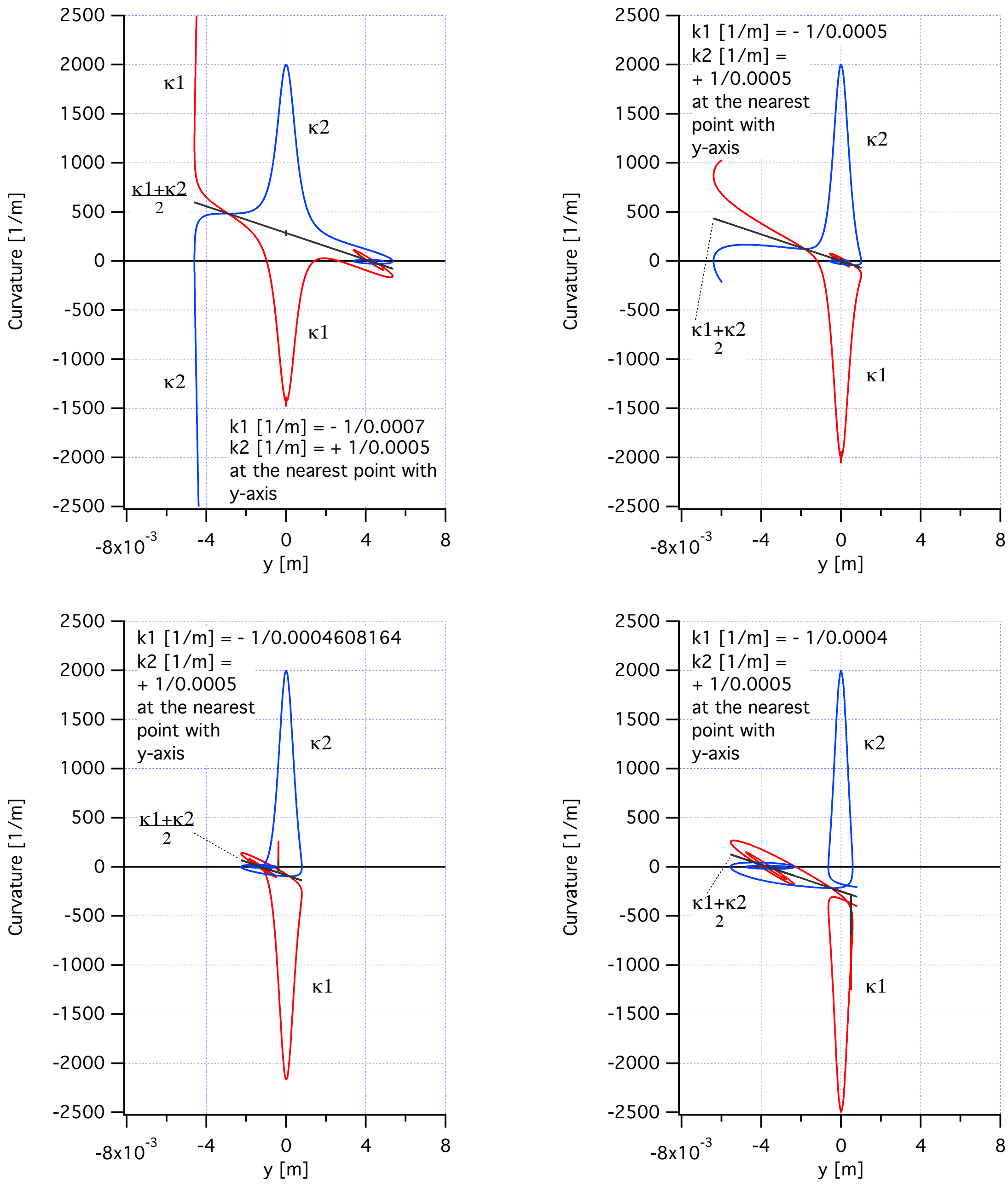


図２２　室温，大気圧下における水と空気の界面の主曲率の変化（External menisci）

重力が無い場合、Sessile drop や Pendant drop は球に収束する他ないが、External menisci の場合は、特徴あるさまざまな形状をとり得る。図２１と同じ条件で重力が無い場合の、水と空気の界面形状を図２３に示す。図２１と比較できるよう、描写範囲は同一とした。

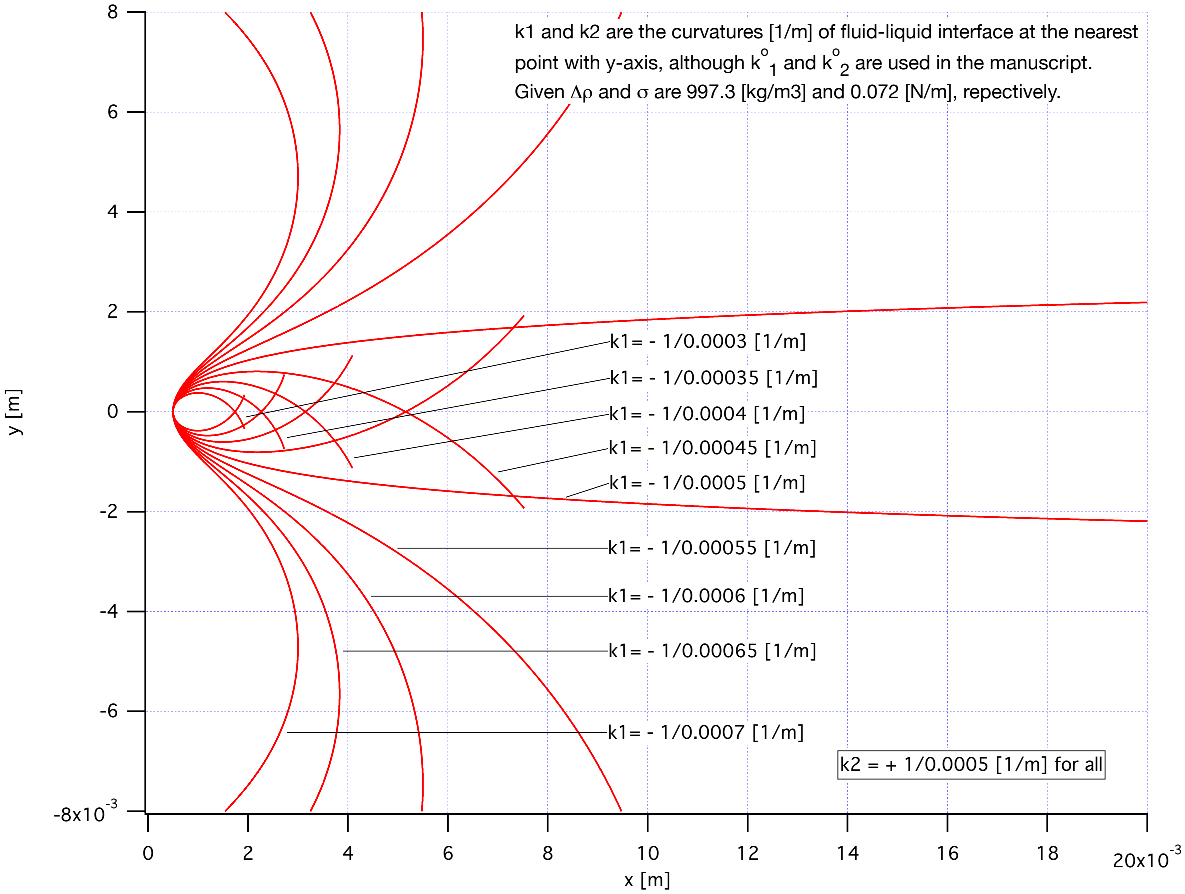


図２３　無重力，室温，大気圧下における水と空気の界面形状（External menisci）

ここで、$-\kappa_1 = \kappa_2 = +1/0.0005$ [1/m] の場合、曲線は 2.6 で述べたように懸垂線となる。図２３の場合、最近接部（$y = 0$）の半径は 0.5 mm であるから、x, y を mm 単位で表す時に $2x = \cosh 2y = (e^{2y} + e^{-2y})/2$ を満たす筈であり、調べてみると数値計算との差は、$x = 10$ mm で 0.0010 %、$x = 20$ mm で 0.0024 % であった。従って、数値計算で得られる形状の精度は、形状や曲率及び体積等を見る上では特に問題はないものと考えられる。但し、$x = 7000$ mm と離れた場所では 0.05 % に増大した。

一方で、重力ありの場合と異なり、界面の下半分が限りなく水平線に近づくような κ_1^0 は探し出すことが出来なかった。従って、無重力下では完全な親水性の完全な平面同士の間に液架橋は存在しないことになる。もっとも、実際の接触角は零ではないので、無重力下では重力下で日常的に見るよりも大きな拡がりの液架橋（neck の直径を変えないで考える場合）又は neck の細い液架橋（拡がりを変えないで考える場合）が現れると予想される。但し、平面に僅かでも膨らみがあると、このような特徴は目立たなくなる。

図２３をズームアウトすると、$|\kappa_1| < |\kappa_2|$ に共通する特徴的な形が現れる。横軸に y 座標、縦軸に主曲率 κ_1 と κ_2 をプロットした結果と共にこの特徴的な形を示す（図２４）。重力が無いので、平均曲率は y 方向で一定となる。

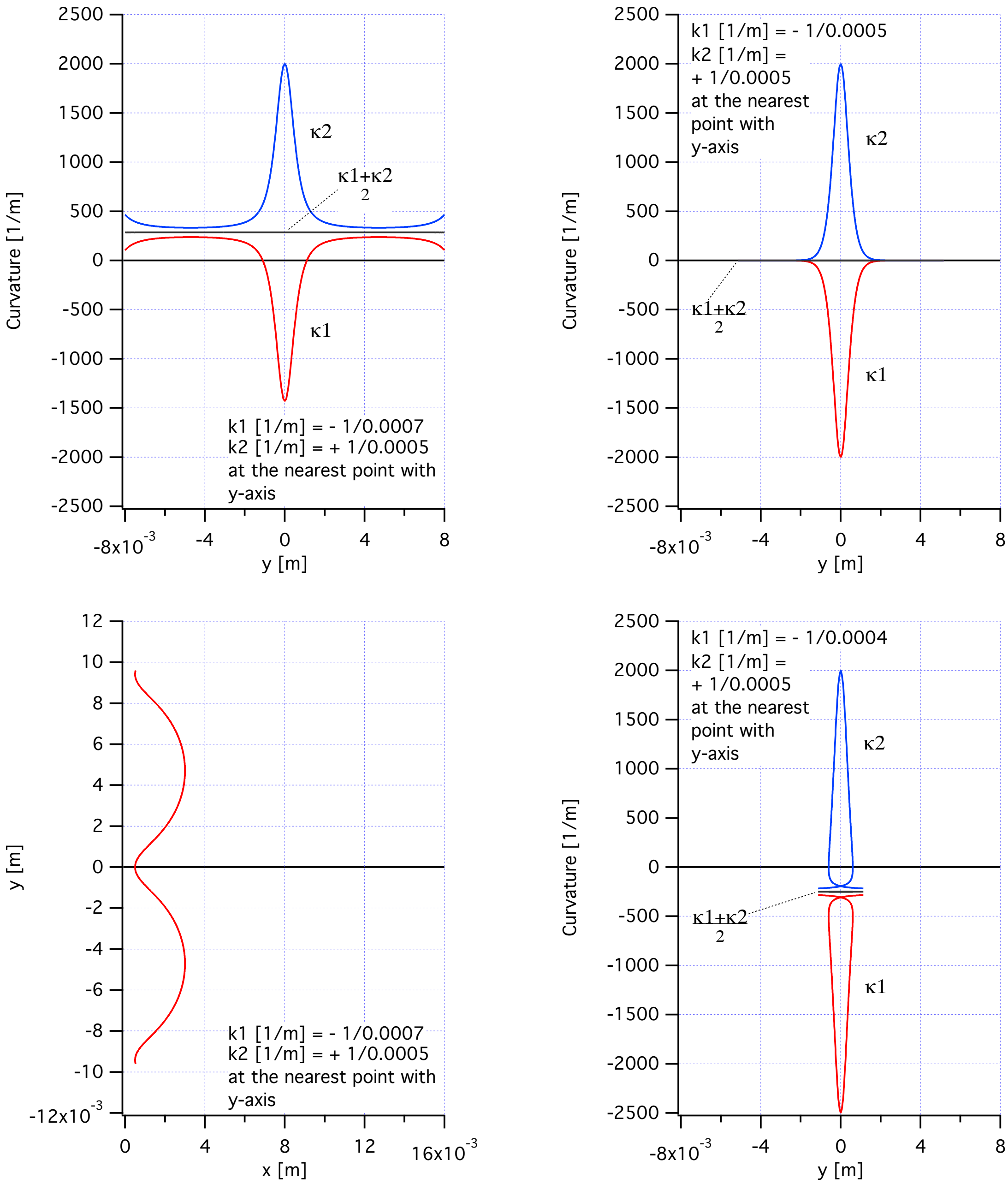


図２４　無重力，室温，大気圧下における水と空気の界面の主曲率変化（External menisci）及び $|\kappa_1| < |\kappa_2|$ に共通する特徴的な形（左下）

$|\kappa_1| < |\kappa_2|$ に共通する特徴的な形を詳しく見ると、neck に関してのみならず bulge に関しても正確に上下対称であり、$y = 0$ は特別な場所ではなかった。平均曲率は y 方向で一定なので、この特徴的な形は一定周期でずっと繰り返されることになる。このパターンは、Plateau-Rayleigh 不安定性として知られている現象と関係があり、詳しくは第４章で述べる。

一方 $|\kappa_1| > |\kappa_2|$ の場合は、計算限界によって現れてはいないが、右下の図の中央のピークが一定周期でずっと繰り返されるのではないかと予想される。よって、重力がない場合又は無視しうる（表面張力に対し）場合、水と空気の界面形状と主曲率変化は次の３種類に分類される（図２５）。曲面論或いは微分幾何学において、図２５右上の曲面は Onduloid 又は Unduloid、右下の曲面は Nodoid と呼ばれ[15]、1841 年に Charles Delaunay により発見されている[15]。球と平面及び円柱を除くと平均曲率一定の曲面がこの３種類であることは、曲面論の知見と一致する。

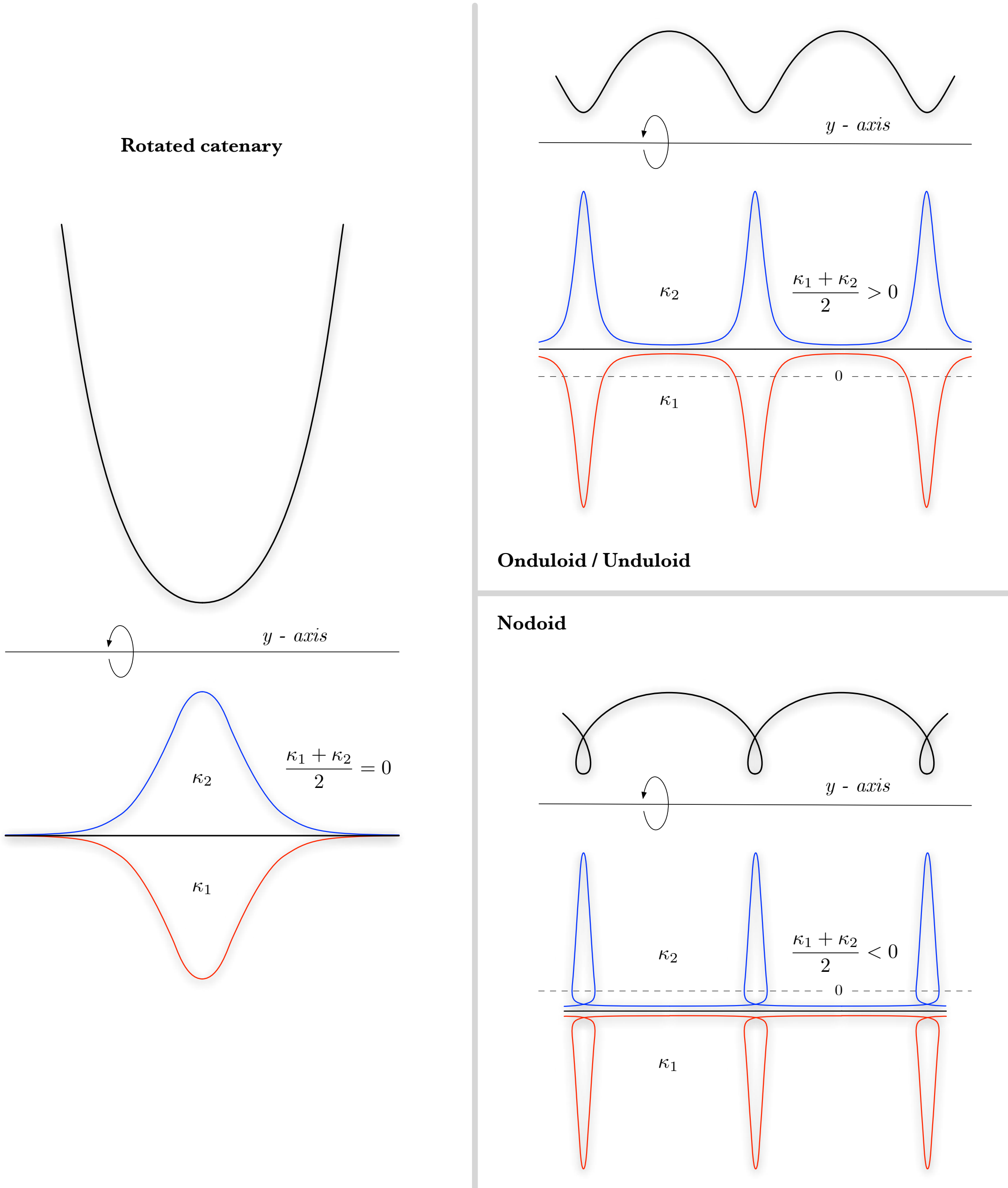


図２５　無重力下における界面の基本形状と主曲率の変化の予想（球, 平面, 円柱を除く）

15. 剱持勝衛, 周期的回転面 http://www.math.tohoku.ac.jp/~kenmotsu/kenpmc.htm など

2.8 原点移動法による計算範囲の拡大と得られた知見

重力下における主曲率の変化（図１７，図２０，図２２）と図２５を比較すると、重力下では y 方向に平均曲率が増大（Sessile drop）又は減少（Pendant drop, External menisci）するために $(\kappa_1+\kappa_2)/2$ のラインが傾くほか、このラインが y 軸と交わる点を中心として主曲率の振動が加わる。また、最近接点から離れるに従って、κ_1 と κ_2 の間隔が開いてゆくように見える。但し、偏角の計算限界（図７）から先の様子がつかめず、特に Sessile drop について顕著である。そこで、極座標の原点を移動して計算を続行する方法を考案した。

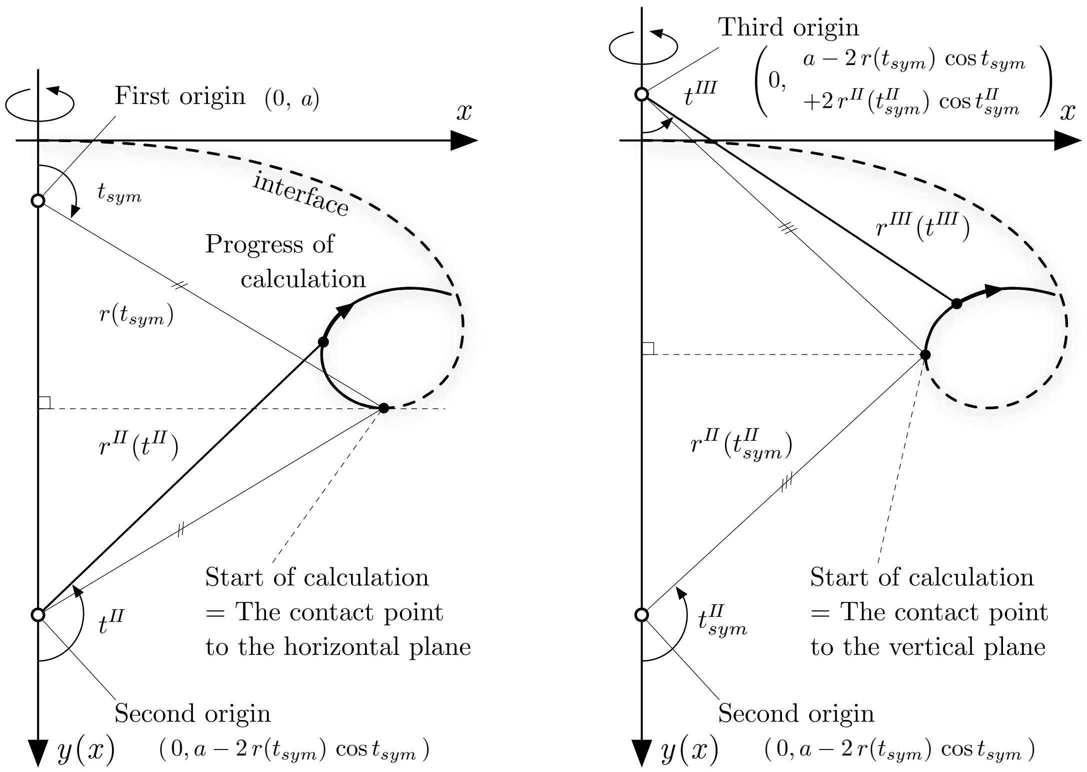


図２６　原点移動法における座標系の設定（Sessile drop）

界面が水平となる点を中心に第一原点と上下対称の位置に第二原点を、界面が垂直となる点を中心に第二原点と上下対称の位置に第三原点を設定する。偏角の増加方向は計算の進行方向と一致させる。第二原点及び第三原点の y 座標はそれぞれ次のように表される：

$$\text{第二原点の } y \text{ 座標：}\ a-2\,r(t_{sym})\,\cos t_{sym} \tag{33}$$

$$\text{第三原点の } y \text{ 座標：}\ a-2\,r(t_{sym})\,\cos t_{sym}+2\,r^{II}(t^{II}_{sym})\,\cos t^{II}_{sym} \tag{34}$$

ここで t_{sym}, t^{II}_{sym} （sym は対称の意味）はそれぞれ、界面が水平となる点及び界面が垂直となる点を、第一原点及び第二原点での偏角で示す値である。第二原点及び第三原点による計算の開始点はそれぞれ、界面が水平となる点及び界面が垂直となる点とする。

このとき、それぞれの計算開始点では以下の関係が成り立つ：

$$\text{第二原点の計算開始点：}\begin{cases} r^{II}(t_{sym}) = r(t_{sym}) \\ \left(\dfrac{dr^{II}}{dt^{II}}\right)_{t_{sym}} = \left(\dfrac{dr}{dt}\right)_{t_{sym}} \end{cases} \tag{35}$$

$$\text{第三原点の計算開始点：}\begin{cases} r^{III}(\pi - t^{II}_{sym}) = r^{II}(t^{II}_{sym}) \\ \left(\dfrac{dr^{III}}{dt^{III}}\right)_{\pi - t^{II}_{sym}} = -\left(\dfrac{dr^{II}}{dt^{II}}\right)_{t^{II}_{sym}} \end{cases} \tag{36}$$

それぞれの計算開始点において、新しい原点による動径 r^{II}, r^{III} が、古い原点による動径と等しいことは、対称性から明らかである。動径の一次微分 dr^{II}/dt^{II}, dr^{III}/dt^{III} は、新しい原点による値と古い原点による値の絶対値が等しい。図２７は第二原点の場合を示しているが、第三原点の場合も同様である。

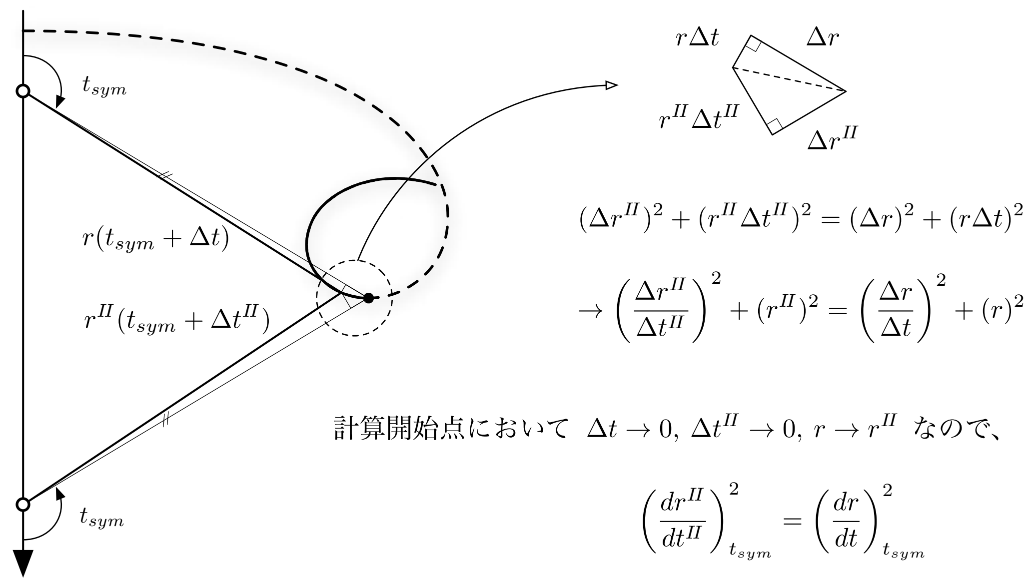


図２７　第二原点の計算開始点において dr^{II}/dt^{II} が dr/dt と等しいことの証明

新しい原点による計算では、計算開始点におけるこれら条件（式 (33), (34), (35), (36)）を、第一原点における初期条件（式 (12), (13), (16)）に代えて用いる。表面張力 σ、密度差 $\Delta\rho$、重力加速度 g、最近接点における曲率 $\kappa_0 = \kappa_1^0 = \kappa_2^0\,(>0)$ は変わらない。

なお t_{sym}, t^{II}_{sym} は、数値計算の際に刻まれた偏角の中から最も近い点を選ぶのではなく、最大・最小を数値的に求める方法（*Mathematica* では `FindRoot` や `FindMinimum` を利用する）により、断面形状に対応する内部関数の y 座標が最大になる偏角と x 座標が最小になる偏角を、それぞれできるだけ正確に定める必要がある。

次に、x-y 座標と極座標の関係がどのように変わるのかを見ると：

$$\text{第二原点：}\begin{cases} y = a - 2\,r(t_{sym})\,\cos t_{sym} + r^{II}\cos t^{II} \\ x = r^{II}\sin t^{II} \end{cases} \tag{37}$$

$$\text{第三原点：}\begin{cases} y = a - 2\,r(t_{sym})\,\cos t_{sym} + 2\,r^{II}(t^{II}_{sym})\,\cos t^{II}_{sym} + r^{III}\cos t^{III} \\ x = r^{III}\sin t^{III} \end{cases} \tag{38}$$

であるから、式 (5), (6) は次のように書き直すことができる：

$$\text{第二原点：}\kappa_1 = \frac{-(r^{II})^2 - 2\,(r^{II})'^{\,2} + (r^{II})\,(r^{II})''}{[\,(r^{II})^2 + (r^{II})'^{\,2}]^{\frac{3}{2}}} \tag{39}$$

$$\text{第二原点：}\kappa_2 = \frac{-(r^{II}) + (r^{II})'\cot t^{II}}{r^{II}\ \ [\,(r^{II})^2 + (r^{II})'^{\,2}]^{\frac{1}{2}}} \tag{40}$$

$$\text{第三原点：}\kappa_1 = \frac{-(r^{III})^2 - 2\,(r^{III})'^{\,2} + (r^{III})\,(r^{III})''}{[\,(r^{III})^2 + (r^{III})'^{\,2}]^{\frac{3}{2}}} \tag{41}$$

$$\text{第三原点：}\kappa_2 = \frac{-(r^{III}) + (r^{III})'\cot t^{III}}{r^{III}\ \ [\,(r^{III})^2 + (r^{III})'^{\,2}]^{\frac{1}{2}}} \tag{42}$$

ここで $(r^{II})' = \dfrac{dr^{II}}{dt^{II}},\ (r^{II})'' = \dfrac{d^2r^{II}}{d(t^{II})^2},\ (r^{III})' = \dfrac{dr^{III}}{dt^{III}},\ (r^{III})'' = \dfrac{d^2r^{III}}{d(t^{III})^2}$ である。

このように第二原点の式と第三原点の式は同じ形となり、また式 (5), (6) と符号が逆になるので、解くべき方程式は、式 (11) に次の置き換えを行い：

$$r \to r^{II},\ t \to t^{II},\ a \to a - 2\,r(t_{sym})\,\cos t_{sym} \tag{43}$$

続いて一部の符号（矢印）を置き換えたものになる：

$$\begin{aligned} &\sigma\left\{\,2\,(r^{II})^3 + 3\,(r^{II})\,(r^{II})'^{\,2} - (r^{II})^2\,(r^{II})'' - \left[\,(r^{II})^2 + (r^{II})'^{\,2}\,\right]\,(r^{II})'\cot t^{II}\,\right\} - \\ &\quad\left[\,\Delta\,\rho\,g\,(a - 2\,r(t_{sym})\cos t_{sym} + r^{II}\cos t^{II}) - \,\sigma\,(\,\kappa^0_1 + \kappa^0_2\,)\,\right] r^{II}\left[\,(r^{II})^2 + (r^{II})'^{\,2}\,\right]^{\frac{3}{2}} = 0 \end{aligned} \tag{44}$$

式 (43), (44) は第二原点の場合を示しているが、第三原点の場合も同様である。符号の置き換えは、偏角 = 0 の方向が最初の原点の場合と 180 度異なっているために生じる。

原点移動法と数値計算により求めた、室温かつ大気圧下における水と空気の界面形状を、図２８と図２９に示す。凡例や与えたパラメータは図１６及び図１８と同じである[16]。

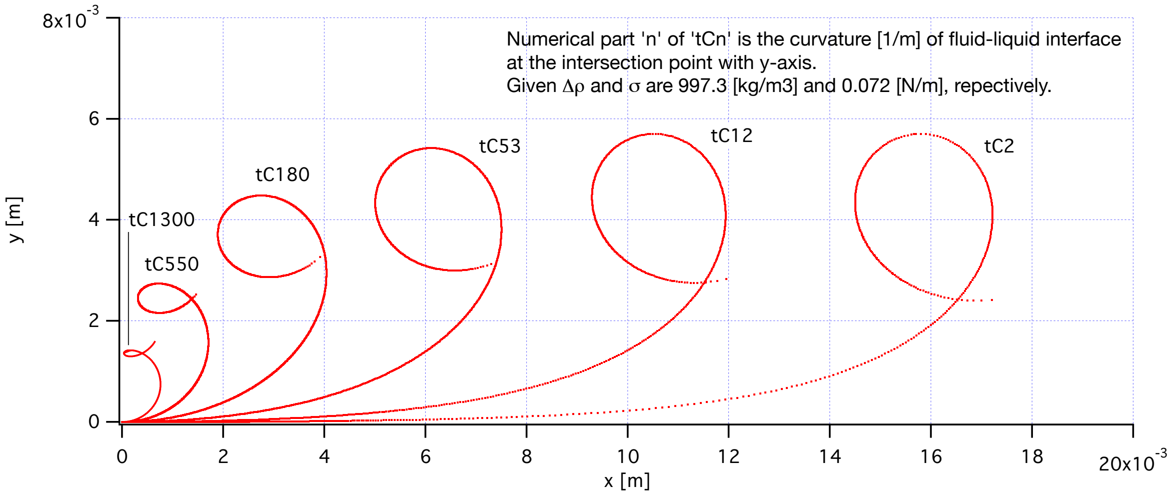


図２８　室温，大気圧下における水と空気の界面形状（Sessile drop、原点移動法）

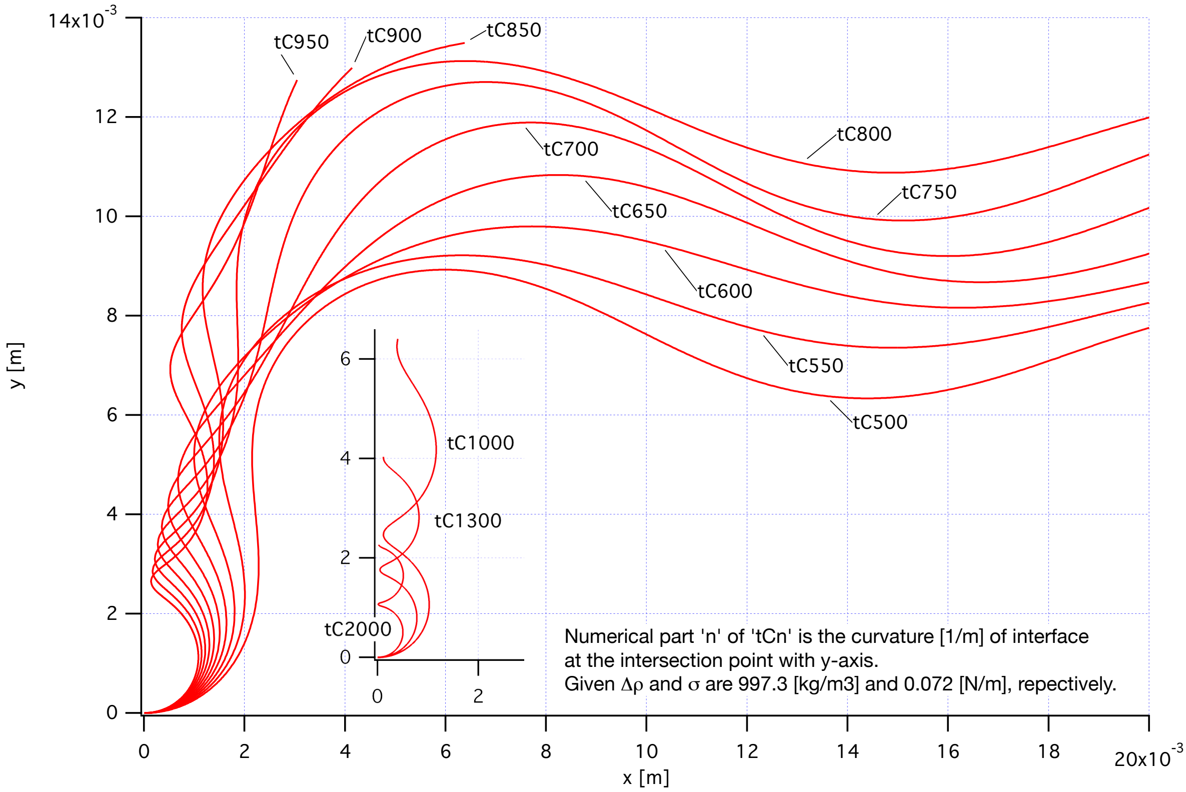


図２９　室温，大気圧下における水と空気の界面形状（Pendant drop、原点移動法）
tC450 よりも小さな曲率の界面形状は図１８と同じなので省略した

16. 曲率についても図１８と同じ一連の曲率を選んだが、くびれを持たない形から持つ形に移行してゆく境界に対応する曲率 tC474 など、特別な意味を持つ曲率がある（第４章で述べる）。

図２９は線が重なり合って見にくいため、重なったグラフの分割表示を示す（図３０）。図３０は既出の界面形状（図１６，１８，２８，２９）と同一縮尺ではない。

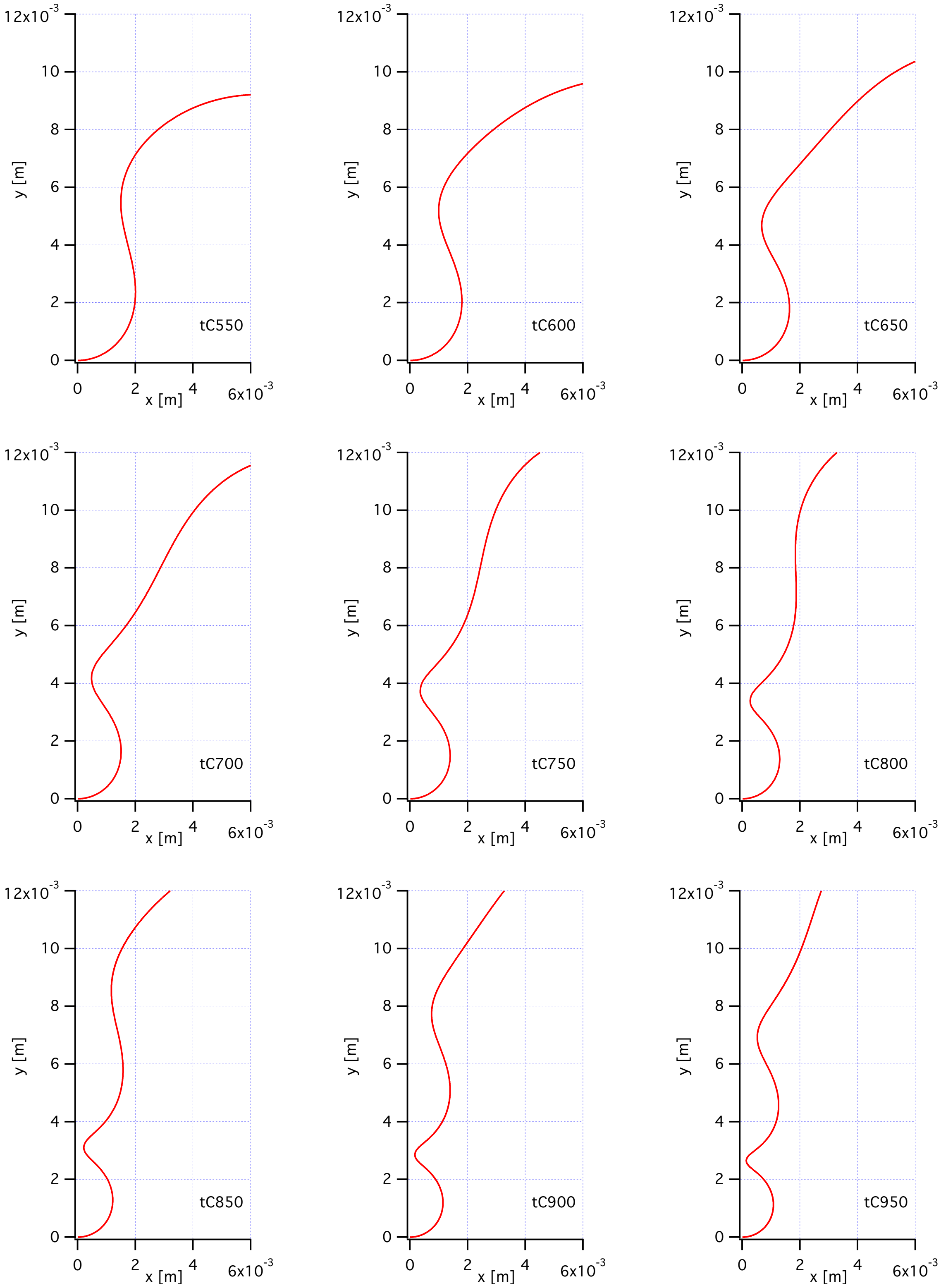


図３０　室温，大気圧下における水と空気の界面形状（Pendant drop、原点移動法）で図２９を分割表示したもの

続いて、Sessile drop について横軸に y 座標、縦軸に主曲率 κ_1 と κ_2 をプロットした結果を κ_0 = 12, 53, 180, 550 [1/m] について示す（図３１）。図１７と比較すると、図２０と同様に κ_1, κ_2 に明確な最大・最小が現れること、y が最大を持つ場合は κ_2 が零になる時に y が最大になること、κ_1 が最大になる y と κ_2 が最小になる y は「ずれ」ており、κ_2 が最小になる y が neck に対応すること、bulge との対応は明確でないことがわかる。

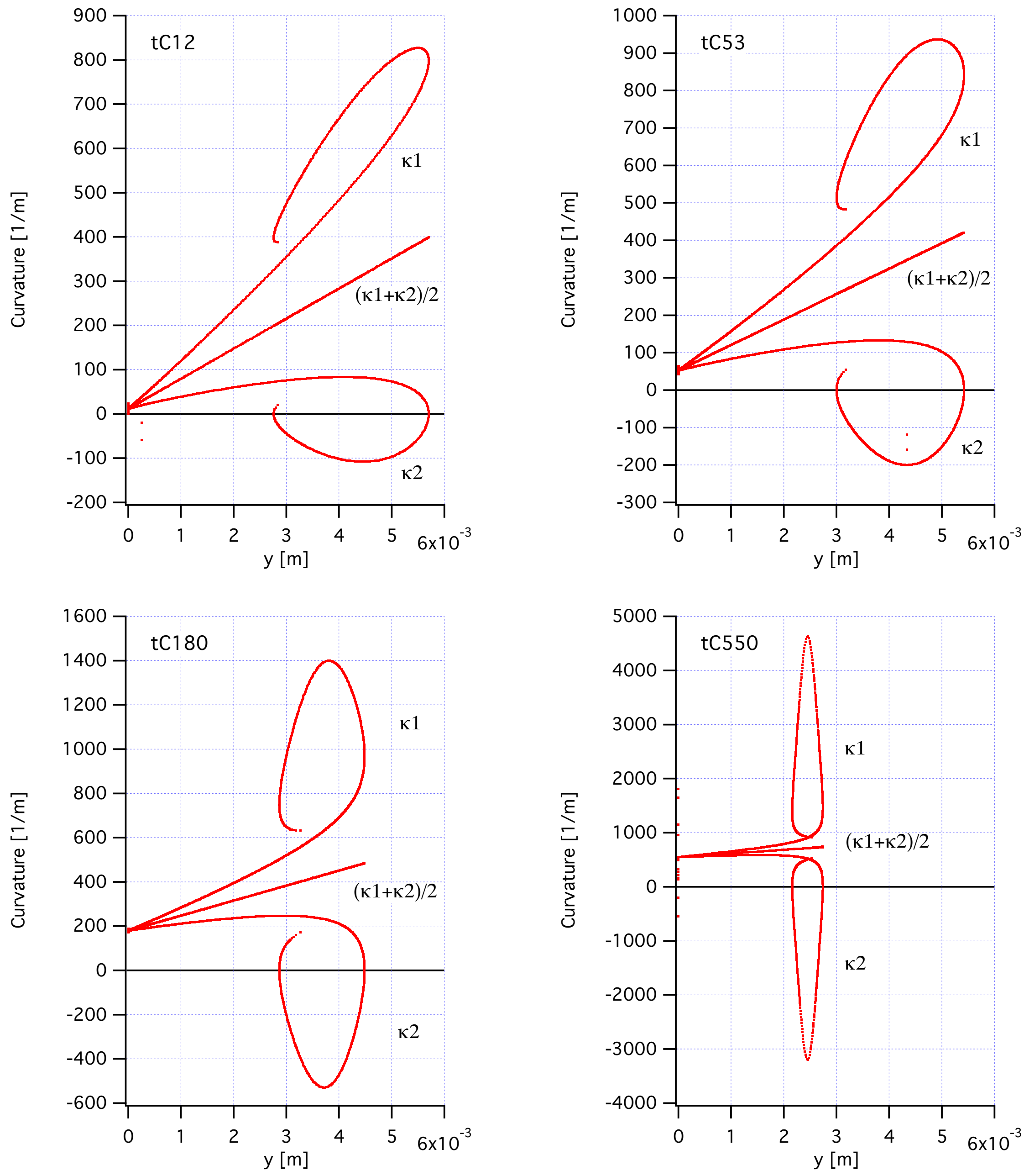


図３１　室温，大気圧下における水と空気の界面の主曲率変化（Sessile drop、原点移動法）

原点移動法の重要な成果として、Pendant drop（図２０）には Onduloid 或いは Unduloid に似た主曲率変化（図２５右上）が κ_0 の増大と共に現れるのに対し、Sessile drop には Nodoid に似た主曲率変化（図２５右下）が κ_0 の増大と共に現れることが明確となった。

続いて、Pendant drop について横軸に y 座標、縦軸に主曲率 κ_1, κ_2 をプロットした結果を κ_0 = 560, 700, 800, 1300 [1/m] について示す（図３２）。図２０と比較すると、大きな κ_0 の場合に確認できなかった主曲率の振動が、平均曲率が零になる点を中心に生じていることが確認できるようになった。従って、図２０で主曲率の振動が κ_0 の増大とともに紐が解けるように様相を変えてゆくとしたのは、見かけであったことになる。

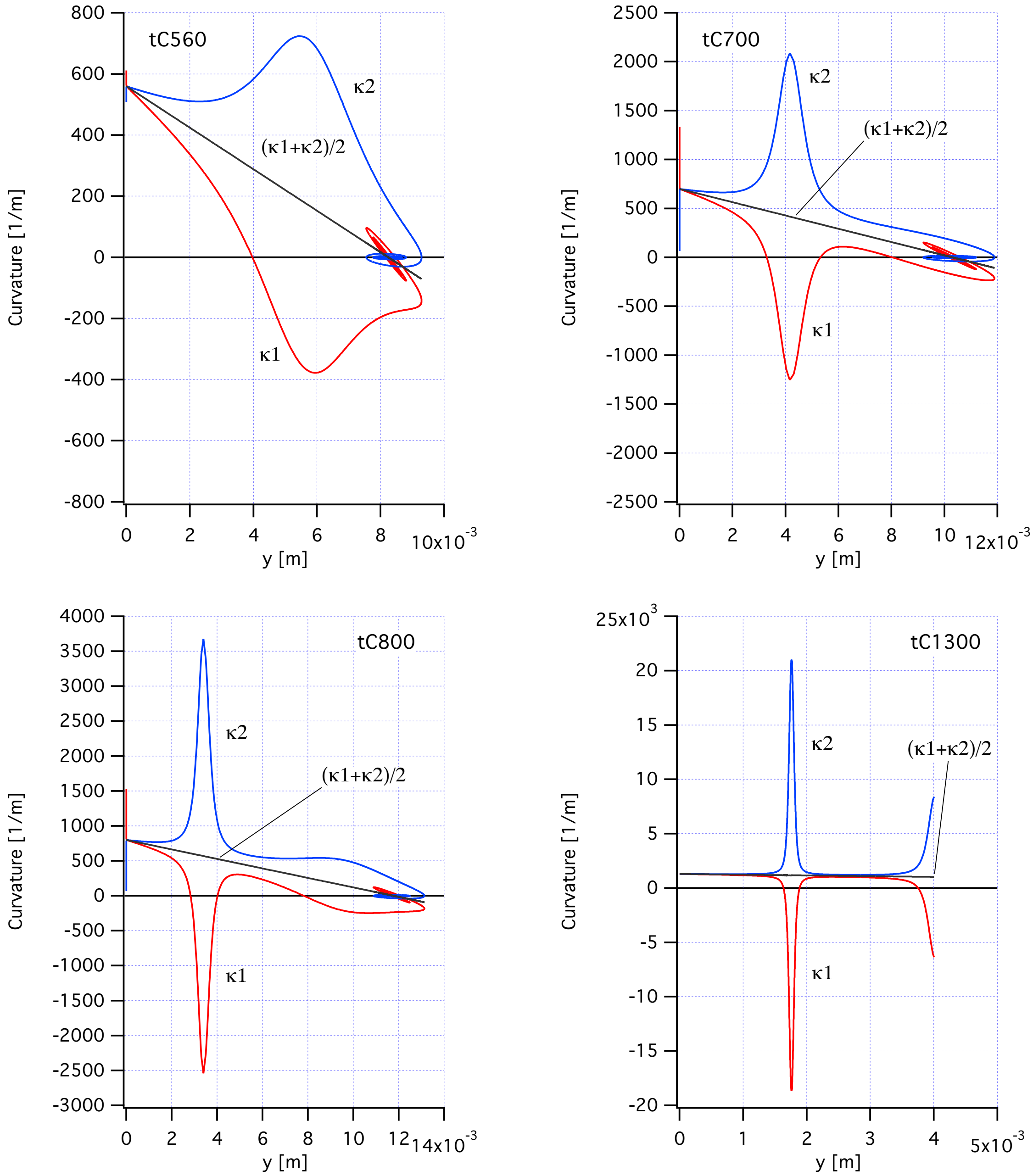


図３２　室温, 大気圧下における水と空気の界面の主曲率変化（Pendant drop、原点移動法）

κ_0 が 800 [1/m] を超えると、全体形状を描き出すためには第四原点が必要になる。しかしながら界面の y 方向の高さには限度があり、その直前で平均曲率＝零を中心として主曲率が振動すること、振動の前に Onduloid に似た変化が複数現れることは容易に想像できる。

以下に、2.7 と 2.8 の内容をまとめる：

- 導いた数値計算方法により、Sessile drop, Pendant drop, External menisci の室温，大気圧下における水と空気の界面形状を求めた。External menisci については、無重力下における界面形状も求めた（Sessile drop や Pendant drop は無重力の場合、球に収束する他ない）。
- Sessile drop の結果は日常的に見られる気泡或いは液滴の形状を良く再現しており、当初の目論見通り、特徴的なトーラスの正確な直径と気泡の正確な高さ及び曲率を求めることができた。
- Pendant drop の結果も日常的に見られる気泡或いは液滴の形状、例えば蛇口から滴る水の形や天井から滴る水の形を良く再現しているが、計算結果は日常的に見られる形を大きく超えている。また、特徴的な主曲率（κ_1 と κ_2）の振動が現れる。
- External menisci の結果で日常的に見られる気泡或いは液滴の形状に対応するものは多くはないが、例えば親水性又は疎水性の円盤（円柱）の周囲に形成される水面の形を良く再現している。但し、Pendant と同じく計算結果は日常的に見られる形を大きく超えており、また特徴的な主曲率の振動が現れる。
- 無重力下における External menisci の結果は、回転懸垂面（平均曲率が零で一定），Onduloid / Unduloid（平均曲率が正で一定），Nodoid（平均曲率が負で一定）となり、曲面論における平均曲率一定の曲面の分類（球と平面及び円柱を除くとこの３種類であること）と一致した。
- 重力下では、平均曲率が y 軸方向で直線的に増加（Sessile drop）又は減少（Pendant drop）する。また、特徴的な主曲率の振動は、平均曲率が零となる y を中心として現れるように見える。
- 原点移動法により計算範囲を拡大した結果、Sessile drop には平均曲率の y 軸方向の直線的増加に Nodoid に似た主曲率の変化が重なること、Pendant drop には平均曲率の y 軸方向の直線的減少に Onduloid / Unduloid に似た主曲率の変化が重なること、External menisci には平均曲率の y 軸方向の直線的減少に Nodoid に似た主曲率の変化と Onduloid / Unduloid に似た主曲率の変化が重なることが明確になった。
- また、Nodoid や Onduloid / Unduloid では κ_1 と κ_2 のピーク位置（y 座標）は一致するが、平均曲率が直線的増加又は減少しているとピーク位置は一致しないこと、Pendant drop と External menisci の界面の y 方向の高さには限度があり、その直前で平均曲率＝零を中心として主曲率が振動すること、振動の前に Onduloid / Unduloid に似た主曲率の変化が複数個現れることが明確になった。

これらの結果から想像するに、少々乱暴な言い方になるが、Sessile drop は Nodoid を途中で切って閉じたもの、Pendant drop は Onduloid / Unduloid を途中で切って閉じたもの、途中で切って閉じるために平均曲率に傾きを与えている、という見方もできそうに思われる。

3. U-Pu 混合転換技術にかかわる界面の例

3.1 密度及び液位の測定に用いられる浸漬管の先端に生じる気泡

当機構では、使用済燃料を再処理して得られる硝酸 Pu 溶液をそのまま Pu 二酸化物粉末に転換するのではなく、劣化 U を溶解して得られる硝酸ウラニル溶液又は使用済燃料を再処理して得られる硝酸ウラニル溶液（回収 U）と混合し、続いて U-Pu 混合二酸化物粉末（MOX 粉末）に転換する U-Pu 混合転換技術を開発・実証してきた。この方法は、単位体積あたりの Pu 量が大きい Pu 二酸化物が工程に存在せず、優れた核拡散抵抗性を有すること、転換の方法として沈殿法ではなくマイクロ波加熱直接脱硝法を用い、工程が短く、廃液の発生量が少なく、かつ粉末特性が良い等の特徴を有する。実証プラント（プルトニウム転換技術開発施設：Pu スループット量は実績値で年間 0.6 トン程度）は 1983 年にホット試運転に入り、得られた成果は実用プラント（日本原燃（株）の六カ所再処理工場 U-Pu 混合脱硝施設）の設計・建設・運転準備等に反映された[16]。

実証プラントにおいて実施される計量管理及び国と IAEA によって行われる査察は、実用プラントが稼働するまでの技術や手法の進展を除けば、実用プラントと何ら変わるところがない。試運転当初の課題の 1 つが、再処理工場からプルトニウム転換技術開発施設に移動した硝酸 Pu 溶液の正確な体積の測定方法であった。図３３に概要を示す。溶液の密度と液位を浸漬管の背圧測定から求めて体積に換算し、単位体積あたりの Pu 濃度を乗じて、槽内の Pu 量を決定する。換算のための液位と体積の関係は溶液の種類によらないから、純水等を用いて予め決定しておく（槽校正）。この方法は、構造が簡単で故障が少なく、国際規格が ISO により定められている[17]。

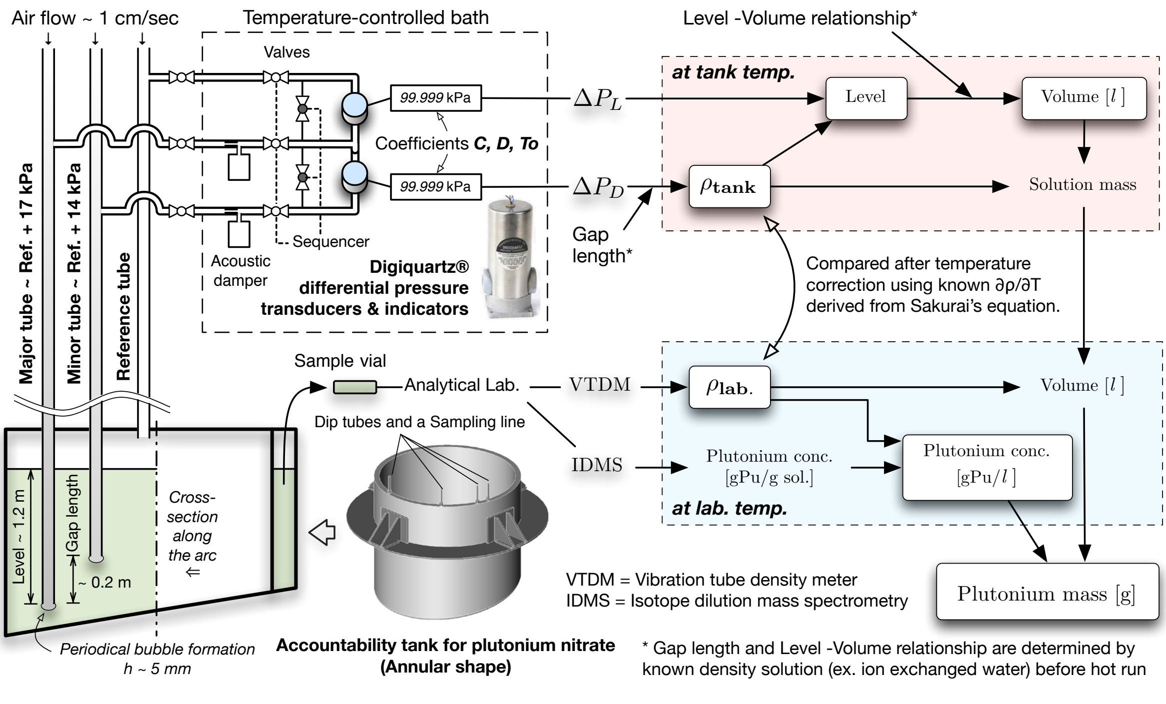


図３３　浸漬管を用いた槽内溶液の密度と液位の測定方法（文献[19]から転載）

高精度を安定して得るための開発要素は、正確な背圧測定システム（圧力センサの選定と校正）、繰り返し測定では排除が困難な不確かさの選定と評価（必要に応じて補正）、更に査察下での長期運用経験と物質収支など統計データによる確証等であり、これらについては既報[18][19]にまとめている。繰り返し測定では排除が困難な不確かさの一つが、図５で示した浸漬管の先端に生じる気泡の高さと気泡下端の曲率による過大な圧力である。この過大圧は、硝酸プルトニウム溶液と槽校正に用いる純水等では気泡の高さも下端曲率（＝回転対称軸との交点における界面の曲率 κ_0）も異なり、また浸漬管内に溶液が浸入しないよう湿潤空気を常に供給しているので、時間的にも変動している（図３４）。この変動に対しては、時間平均値又はピーク値を用いる方法が考えられるが、後述する理由によって時間平均値を測定する場合、過大圧は背圧測定のばらつきの５倍前後と見積もられるものの、正確な評価方法は不明であった[17]。極座標による界面形状の数値計算方法は、この過大圧の影響を正確に評価する過程で導かれた。

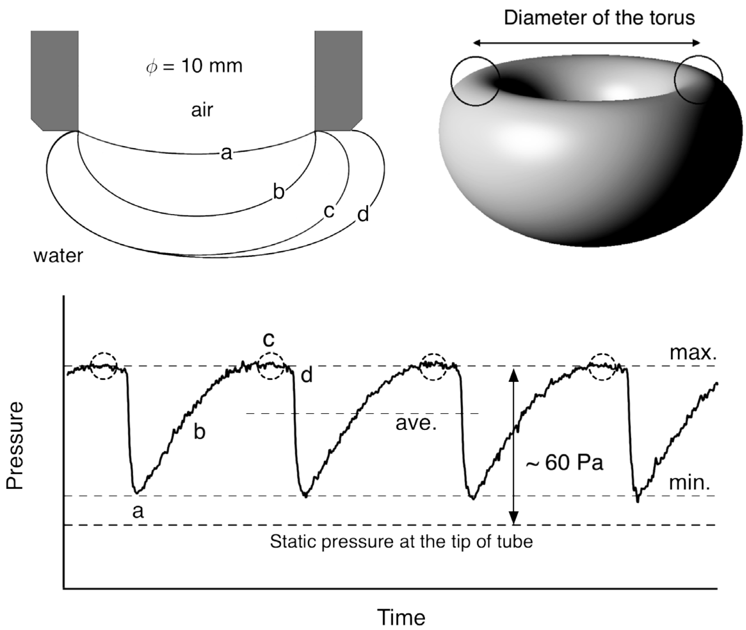


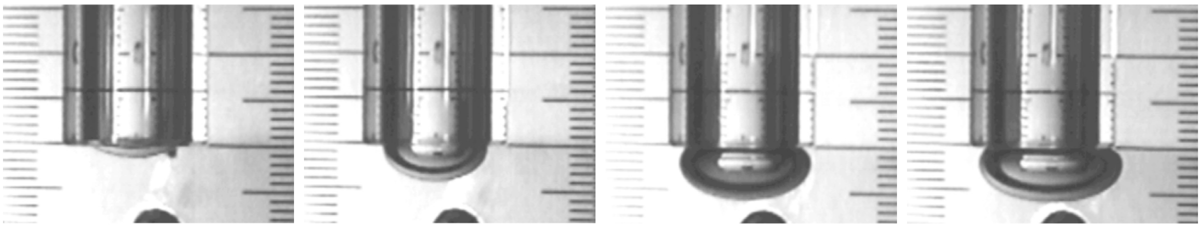
図３４　過大圧と気泡形状の時間的変動（文献[19]から転載）

気泡の生成離脱過程を水中で詳細に観察した結果、気泡上部のトーラスの直径（極座標による界面形状の数値計算によって得られる値）が管の内径と一致した時（c）に圧力は最大となり、次に圧力はやや減じて（高さの増加よりも下端曲率の減少の影響が大きいため）、トーラスの一端が管の水平部の限界に達した直後（d：水平度が厳密ではないのでどちらか片方にしか気泡は成長しない）、気泡は不安定となり管の先端から離脱し圧力が急減すること、離脱直後の気液界面（a：界面は振動するのでその振動中心）の曲率は離脱直前の気液界面の曲率に近いと見なしてよいこと、下端曲率が最大となる状態（b：最大泡圧法による

17. 仏国では、時間的変動の周期を数十秒まで長くしてピーク値を測定し（ISO 18213-4）、Hartland と Hartley の著作（文献[11]）の経験式を使って過剰な圧力の最大値を求める。

表面張力測定で利用される状態）は内径が 1 cm もあると半円とはとても見なせない形状であること等が判った。内径 1 cm の管で圧力が最大となる状態 c の下端曲率は 77.5 [1/m] で図１６に示した例の中では tC80 に近く、高さを 5 [mm]、下端曲率を 80 [1/m]、密度と界面張力を図１６と同じとして、過大圧を約 60 [Pa] と見積もることができる。詳細は文献[18]に述べたが、水の場合の実験結果は ~ 1 Pa の差で計算と良く一致した。

硝酸プルトニウム溶液中の場合、仮に数 100 cc を槽からグローブボックス内に取り出しても、濃度が高く光の透過度が低いので、実験と計算の一致を確認することは容易ではない。しかしながら 2.5 の末尾で触れたように、物性項は $\sqrt{\Delta\rho g/\sigma}$ [1/m] の形に集約でき、これに r を乗じれば無次元長さを得ることができるので、無次元化した気泡を考え、先の物性項の集約値が硝酸プルトニウム溶液と同じ溶液を用いることにより、実験と計算の一致を確認することができる。詳細は文献[18]に述べたが、このような溶液は、水−エタノール混合溶液で作製可能である。水−エタノール混合溶液を用いて得られた実験の結果は、~ 3 Pa の差で計算と一致した。水中における気泡形状の時間変化を図３５に示す。



a　b　c　d

図３５　水中における気泡形状の時間変化（文献[18]から転載）

静水圧を仮定した数値計算結果と、時間的に変動している界面の形が一致するのかという点については、離脱直後の振動状態を除けば、変動周期５秒で得られる気泡形状と静水圧を仮定した数値計算結果との間に明確な差は見いだせなかった。図３４の波形はこの時の波形である。実際の変動周期は、湿潤空気の流量により設計段階で経験的に１秒前後に設定されており、この条件で計量管理や査察が既に行われていたため変更することは出来なかったが、変動周期１秒では図３４の波形に変化が現れるものの、時間平均値に変化はなかった。念のため、硝酸プルトニウム溶液中で周期１秒で気泡が成長する時のウェーバー数（慣性力と表面張力の比）を求めてみると $0.7 \sim 1.2 \times 10^{-2}$ であり、気泡の形状は慣性力ではなく表面張力支配と考えてよい。仏国の方法（脚注17）では過大圧の評価方法はもう少し簡素になる。但し、測定前後で湿潤空気の流量を１桁も上げ下げする必要が生じ、浸漬管を通じての汚染拡大の僅かな可能性を考慮すると、時間平均値を採用し十分な量の湿潤空気を常に供給するほうが、経験的にみても、また流量の戻し忘れがないことからみても、安全性が高い。時間平均値は離脱直後の界面の振動の影響を受け、過大圧の評価方法がやや複雑になるものの正確な評価は可能であることが判った。一方、他の誤差要因を評価した結果、条件次第では逆方向に同程度の系統的な誤差を与え得る要因もあり、評価に基づく補正は、誤差要因を総合的に判断してから導入すべきものであることもまた判っている。

3.2 マイクロ波加熱により円筒形状の液中に核生成する気泡

U-Pu 混合転換技術に用いられているマイクロ波加熱では、ヒーター等による外部加熱とは異なり、被加熱物（溶液等）を構成する誘電体の分子（双極子モーメントを持つ水分子等）が、マイクロ波による電界の変化にやや遅れて追従し運動する際に、マイクロ波からエネルギーを得ることにより、被加熱物内部から発熱する。マイクロ波は、被加熱物への侵入深さに従い減衰する[18]ため、内部から発熱するとは言っても表面近くが最も強く発熱するが、それでも外部加熱では通常生じない特徴的な沸騰現象を起こすことがある[20][21]。

図３６はその一例であるが、内径 60 mm 及び内径 80 mm の円筒容器内でマイクロ波加熱された水中に生じた気泡の核生成〜成長の様子を示す。ヒーターによる外部加熱では、容器内面の小さな傷の部分に気泡の核が生じ（不均質核生成）100 °C での通常の沸騰に至るが、マイクロ波加熱では内部から発熱するので、水中に気泡の核が生じ（均質核生成）、表面に依存することなく100 °C で沸騰に至る。図３６では、円筒容器の中央に近い場所で核生成が起こる場合を示しているが、必ずしも容器の中央で核生成が起こるわけではない。

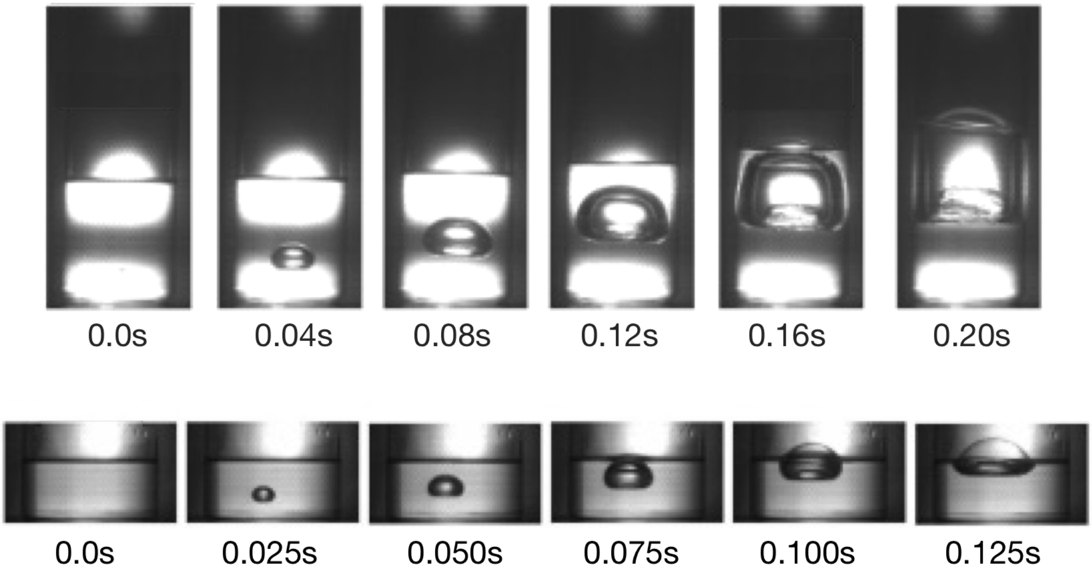


図３６　マイクロ波加熱された水中に生じた気泡の核生成〜成長の様子
上側：内径 60 mm の円筒容器、下側：内径 80 mm の円筒容器
（文献[21]から転載、一部省略）

一見して判るように、核生成からおよそ 0.1 秒を経過するまでの気泡形状は Sessile drop に分類される。トーラス状の部分も明瞭ではないが確認することができる。但し、界面の動的変化の中でこのような形状が現れていること、水中に静止した（水平面の下の）気泡形状とは上下が逆になっていること、が著しく異なる点である。トーラス状に見える部分が、光の

18. マイクロ波の周波数を f [Hz], 被加熱物の比誘電率を εr, 誘電体損失角を $tan\ \delta$ として、電力半減深度 D [m] を $3.32 \times 10^7 \left(f\,\varepsilon_r^{1/2}\,\tan\delta\right)^{-1}$ で表わす。2450 MHz のマイクロ波で水を加熱する場合の D は約 1 cm となる。

反射でないこと、静止した気泡形状の数値計算結果と重ねてみると縦横比が少し異なるものの界面に沿った曲率の変化が良く一致することを、別の写真[22]で示す（図３７）。斜めから見ているので、数値計算結果の y 方向の高さを 90% にした。

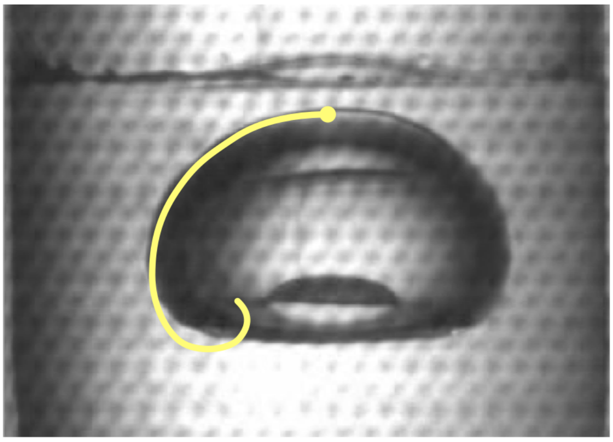


図３７　トーラス部分が明瞭に現れている場合（文献[22]から転載）と
静止した気泡形状の数値計算結果と重ね合わせ

直径 2 cm の場合のウェーバー数を求めてみる[19]と 80 前後であり、気泡の形状は表面張力ではなく慣性力支配と考えてよい。また、円筒容器の中央に近い場所で気泡の核生成～成長が起こる場合、水面が平坦なまま上昇していることが図３６から判るので、成長の際に排除される水の慣性力は回転軸対称かつ単純な分布になっていると推測される。図３７から想像すると、気液界面の最も浅い場所（成長気泡の最上部）では水相側から界面を押す力が最も強く、界面に沿って下方に移動するに従って水相側から界面を押す力が弱くなり、気相側の圧力（界面のどこでも同じ）と釣り合うよう界面の平均曲率が増大していると考えられる。従って、静止した気泡における重力の役割を慣性力が担っているものと推測される。また、トーラス状の部分を界面に沿って移動するに従って、水相側から界面を押す力が再び強くなってゆくように見えるのは、水が気泡の上面から下面に移動する結果、気泡下面の中央部が流れの湧き出し点となり、水相側から界面を押す力を生じるためと推測される。このように慣性力支配の現象であっても、慣性力の変化が表面張力支配によって現れる形状寸法よりもなだらかであれば、表面張力支配の特徴的な形状が現れる場合があることが判った。

---

19. 水中の無限小の気泡に無限小の針で空気を一定速度 f で供給し、気泡（直径 d, 体積 V ）を成長させる場合を考える。$V = ft = \frac{\pi d^3}{6} \rightarrow d = \left(\frac{6f}{\pi}\right)^{1/3} t^{1/3}$ なので、ウェーバー数 We と代表長さ L 及び代表速度 U を

$$We = \frac{\rho U^2 L}{\sigma},\ L = d,\ U = d' \text{ とすれば、} U = \frac{1}{3}\left(\frac{6f}{\pi}\right)^{1/3} t^{-2/3} \rightarrow We = \frac{2}{3}\frac{\rho}{\pi\sigma}\frac{f}{t}$$

よって、気泡直径が所定の大きさ d_0 に達する時刻 t_0 とウェーバー数は

$$t_0 = \frac{\pi d_0^3}{6f},\ We = \frac{\rho}{\sigma}\frac{1}{d_0^3}\left(\frac{2f}{\pi}\right)^2$$ で表される。但し、これは一定速度を仮定した粗見積もりである。

3.3 転換後の造粒物中に生じていると推定される液架橋

U-Pu 混合転換技術の今後の姿として、現在の混合転換工程と MOX 燃料製造工程を一体と考えて中間的な工程をできるだけ省くとともに、燃料製造工程で行われている造粒処理を混合転換の直後に行うための技術開発[23]が進められている（図３８）。工程の短縮、廃棄物の削減、有機物バインダの不使用、グローブボックス内に飛散する粉末量の削減、総合的なコストの削減等、様々なメリットが期待されている。この技術開発では、マイクロ波加熱によって U-Pu 混合溶液をケーキと呼ばれる脱硝体に転換し（現行プロセスも同じ）、続いて破砕～造粒を行う。このための装置（図の New apparatus）の開発、運転条件と性能の把握が、新しいプロセスの成否を左右する。

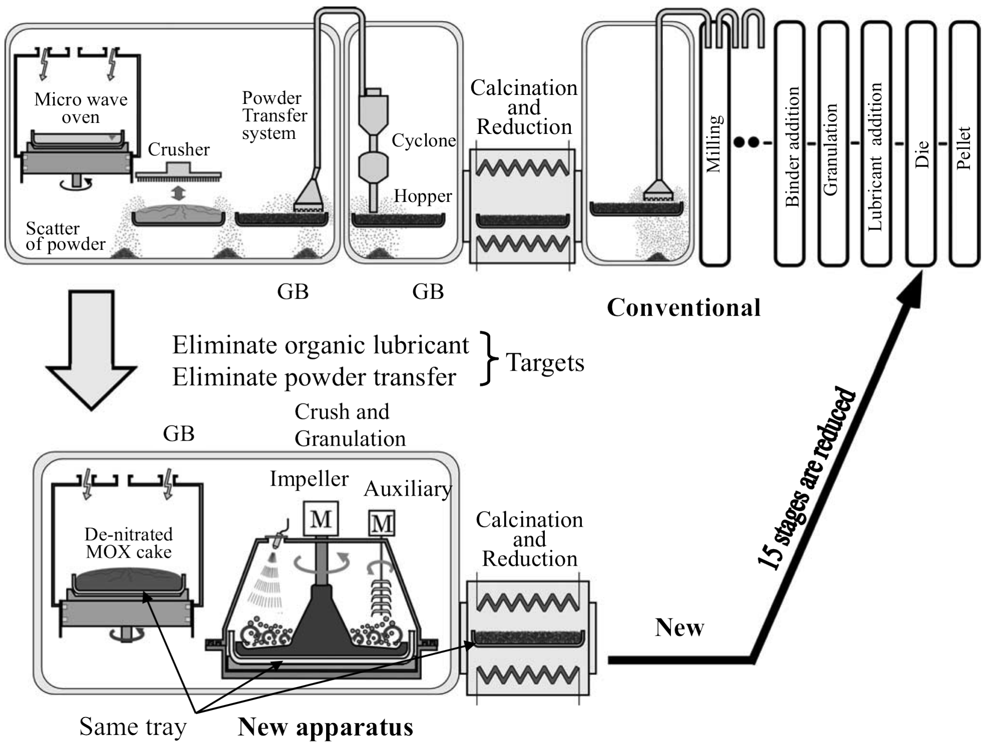


図３８　現行プロセスと技術開発中のプロセスの比較（文献[23]から転載、一部改変）

現在、実用よりも一回り小さい規模での試験が進められており、使用する装置、製造条件と性能について目処が得られつつある[24]。この方法では、有機物バインダに代えて水を使用するので、水添加率に対し造粒物の流動性や収率（後工程での使用に耐えない大きな凝集物を除いた割合）がどのように変化するのか調べられた。その結果、高い流動性（流動性指数[20] > 70）と高い収率（> 90 %）が得られるのは水添加率が 12.5 - 13.5 wt% という狭い範囲に限られ、また流動性が水添加率に対し急激に上昇していることが判った（図３９）。

20. Carr の流動性指数として知られている値。図３９で、水添加率が 8-9 wt% 未満の場合、造粒が進まず流動性指数が 25 未満で動いていないが、この状態では粉末取り扱い機器内に閉塞を頻繁に生じる。流動性指数が 60 を超え 70 付近になると、閉塞はほとんど生じないとされる。

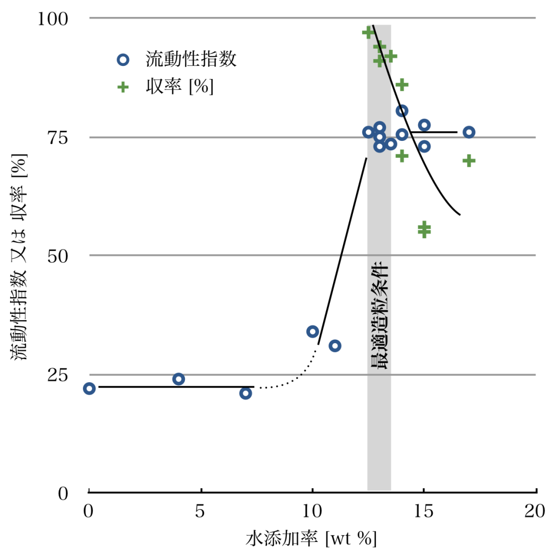


図３９　水添加率に対する造粒物の流動性や製品化率の変化（文献[24]のデータから作成）

何故、このように製造条件が狭いのか（拡げることは可能か）、粒子と粒子を結合させている液架橋（External menisci）と粒子２個の体積比を計算したところ、粒子表面の濡れ性が良く（界面と粒子の接触角が零と見なせる）、液架橋断面は懸垂線と仮定できる（サイズがμm オーダーで重力の寄与が小さい）ので図４０に示す状態と推測された。このうち a, b の場合は体積比は 0.052-0.057 であった。a の場合は式 (31) が適用できる。c の場合は体積比が更に小さいが、体積あたりの表面エネルギーが大きくなるので、このような状態が粉末全体に均一に存在することは考えにくく、a, b の液架橋が形成された部分と液架橋が形成されていない部分が混在すると推測された。更に、粉末全体に a, b の液架橋が形成されるのに必要とされる以上の水を加えると、造粒物は凝集を起こしてゆくと推測された。

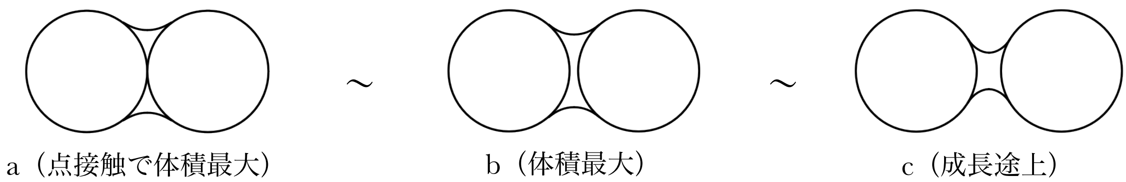


図４０　推定される液架橋の状態

これにより、少量の水添加によって造粒に必要な液架橋が形成され（水添加率に対し流動性が急激に上昇し）、その量を超えると凝集物を生じて収率が低下する理由を説明することができた。なお、液架橋の２粒子に対する体積比が 5 % 強になるという推測値と粒子密度の測定値、図３９の液架橋形成に伴う水添加率の増大（8 - 9 wt% と 12.5 - 13.5 wt% の差で 3.5 - 5.5 wt%）から考察した結果、多粒子から成る造粒物中では液架橋は１粒子あたり 2.0 - 2.5 個と考えられるので、造粒物として良好な Pendular 状態[21]にあることが確認できた。

21. 例えば、S.M. Iveson et al., Powder Technology 117 (2001), 3-39 の Figure 9 など

4. 計算値の具現に関する物理的条件

4.1 接触角

これら観察された界面形状や日常的に観察される界面形状では、数値的に計算された結果の一部しか現れていない。このことを「具現」と呼ぶことにするが、接触角は計算値が具現されるための重要な条件である。接触角によって計算値が具現化される一例を、Sessile drop の場合について図４１に示す。界面と水平面のなす角度（水相側）が、水の水平面材料への接触角（物理的条件）に等しくなるところまで、計算値は具現化される。

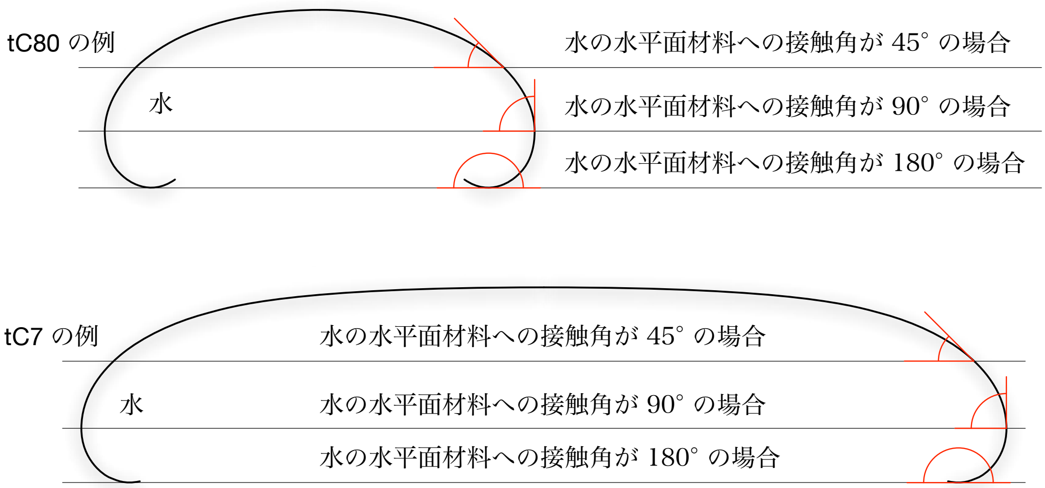


図４１　接触角によって計算値が具現化される一例（Sessile drop）

通常、接触角が決まっていて、液滴は体積に応じて様々な拡がりをとるが、これは界面と回転対称軸との交点における界面の曲率 κ_0、即ち tCn の n [1/m] を様々に変化させることに相当する。一例として、水の水平面材料への接触角が 90° であれば（普通のワックス床面の程度）、図１６と図４１から、液滴が体積を増すにつれて水平方向に拡がる一方、高さ方向への拡がりはおよそ 4.1 mm を超えないことが判る。水平面材料が理想的な疎水材（接触角が 180° ）の場合でも、この高さはおよそ 5.7 mm を超えないことが判る。

中が空気で外側が水の場合（気泡の場合）、界面と水平面のなす角度（水相側）は図４１に示した角度の補角[22]となる。従って、気泡の高さは、水平面材料が疎水性であればが小さくなり、親水性であればが大きくなる。図３５は、親水性のガラス管の先に形成される気泡の例であり、気泡の拡がりと高さを計算値と比較してみると接触角は 15° 程度となる。水の水平面材料への接触角を 15° - 180° まで 15° 刻みで変化させた時の、図１６の各形状の端点の位置（水平面との接触半径と水平面からの高さ）と表面積及び体積を表２に示す。気泡の場合、表２に示した接触角は、水の水平面材料への接触角の補角に対応する。

22. 180° を平角、平角よりも小さな角度に対し、合わせて平角となる角度を補角と呼ぶ。

表２　接触角を変化させた時の各界面の接触半径/高さ/表面積/体積（Sessile drop）

	接触角 15°				接触角 30°			
κ_0 [1/m]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]
1	15.54	0.76	763.3	405.6	17.42	1.51	973.8	1052.8
2	13.50	0.76	576.2	292.2	15.39	1.52	762.2	794.4
4	11.44	0.75	414.3	196.9	13.35	1.51	575.3	571.2
7	9.76	0.73	302.2	133.6	11.69	1.50	442.6	417.1
12	8.14	0.70	210.5	84.4	10.08	1.47	330.5	291.2
20	6.61	0.64	138.9	48.9	8.55	1.41	238.7	193.1
35	4.97	0.54	78.7	22.5	6.87	1.30	155.2	109.9
53	3.83	0.45	46.9	10.8	5.65	1.17	105.4	65.1
80	2.83	0.35	25.5	4.5	4.48	1.01	66.6	34.4
120	2.01	0.26	12.9	1.7	3.42	0.82	38.9	16.0
180	1.39	0.18	6.2	0.55	2.49	0.63	20.8	6.4
270	0.94	0.12	2.8	0.17	1.75	0.46	10.3	2.3
400	0.64	0.08	1.3	0.06	1.22	0.32	5.0	0.77
550	0.47	0.06	0.70	0.02	0.90	0.24	2.7	0.31
750	0.34	0.05	0.38	0.01	0.66	0.18	1.5	0.12
1000	0.26	0.03	0.21	< 0.01	0.50	0.13	0.83	0.05
1300	0.20	0.03	0.13	< 0.01	0.38	0.10	0.50	0.02
2000	0.13	0.02	0.05	< 0.01	0.25	0.07	0.21	0.01

	接触角 45°				接触角 60°			
κ_0 [1/m]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]
1	18.37	2.23	1107.9	1776.3	18.90	2.90	1208.0	2512.1
2	16.35	2.24	881.9	1367.5	16.88	2.91	971.7	1955.8
4	14.32	2.24	680.5	1010.3	14.84	2.92	759.8	1466.6
7	12.66	2.23	535.9	760.0	13.19	2.91	606.7	1121.2
12	11.06	2.20	412.0	551.8	11.59	2.89	474.4	831.1
20	9.53	2.15	308.9	385.0	10.07	2.84	363.2	595.5
35	7.85	2.04	212.4	237.7	8.40	2.73	257.7	383.1
53	6.62	1.90	152.5	153.0	7.16	2.60	190.8	257.5
80	5.42	1.72	103.4	90.0	5.95	2.41	134.6	160.2
120	4.29	1.48	65.6	47.5	4.80	2.14	89.6	90.8
180	3.25	1.21	38.2	21.8	3.72	1.82	55.2	45.4
270	2.36	0.92	20.3	8.7	2.77	1.45	31.1	19.7
400	1.68	0.67	10.3	3.2	2.00	1.09	16.5	7.7
550	1.25	0.51	5.7	1.3	1.51	0.84	9.4	3.3
750	0.93	0.38	3.2	0.55	1.13	0.64	5.3	1.4
1000	0.70	0.29	1.8	0.24	0.85	0.49	3.0	0.62
1300	0.54	0.22	1.1	0.11	0.66	0.38	1.8	0.29
2000	0.35	0.15	0.46	0.03	0.43	0.25	0.78	0.08

表２の続き

	接触角 75°				接触角 90°			
κ_0 [1/m]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]
1	19.16	3.52	1288.6	3217.2	19.23	4.07	1356.4	3860.5
2	17.14	3.53	1044.0	2522.0	17.21	4.09	1104.9	3039.1
4	15.11	3.54	823.9	1908.4	15.18	4.10	877.9	2312.5
7	13.46	3.54	664.0	1472.9	13.53	4.10	712.3	1795.4
12	11.86	3.52	525.2	1105.1	11.94	4.09	568.0	1357.0
20	10.34	3.48	407.7	804.3	10.41	4.05	445.2	996.8
35	8.66	3.37	295.0	529.9	8.74	3.94	326.6	666.0
53	7.43	3.24	222.8	364.9	7.50	3.81	250.0	465.4
80	6.22	3.04	161.1	234.6	6.29	3.61	183.8	304.9
120	5.06	2.77	110.6	138.6	5.14	3.33	128.8	184.7
180	3.97	2.41	70.7	73.1	4.04	2.95	84.6	100.6
270	2.99	1.98	41.6	33.7	3.06	2.48	51.3	48.2
400	2.19	1.54	22.9	13.9	2.25	1.97	29.0	20.7
550	1.66	1.21	13.4	6.3	1.71	1.57	17.3	9.6
750	1.25	0.93	7.6	2.7	1.29	1.23	10.0	4.2
1000	0.95	0.71	4.4	1.2	0.98	0.95	5.9	1.9
1300	0.73	0.56	2.7	0.57	0.76	0.75	3.6	0.90
2000	0.48	0.37	1.1	0.16	0.50	0.49	1.5	0.26

	接触角 105°				接触角 120°			
κ_0 [1/m]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]
1	19.17	4.56	1415.2	4419.6	19.00	4.96	1467.5	4880.2
2	17.15	4.58	1157.8	3488.2	16.98	4.98	1204.6	3857.3
4	15.12	4.59	924.6	2663.0	14.95	4.99	966.0	2950.2
7	13.47	4.59	754.1	2074.7	13.30	5.00	791.0	2302.8
12	11.87	4.58	605.0	1575.0	11.71	4.98	637.6	1752.3
20	10.35	4.54	477.6	1163.3	10.18	4.94	506.0	1298.0
35	8.68	4.44	353.9	783.6	8.51	4.84	377.7	878.2
53	7.44	4.30	273.4	552.1	7.27	4.71	293.8	621.4
80	6.23	4.10	203.4	365.7	6.06	4.51	220.4	413.9
120	5.07	3.82	144.7	224.7	4.91	4.22	158.3	256.2
180	3.98	3.42	96.7	124.7	3.82	3.81	107.1	143.5
270	3.00	2.92	59.9	61.1	2.85	3.30	67.3	71.2
400	2.19	2.37	34.7	26.9	2.05	2.71	39.6	31.8
550	1.66	1.92	21.0	12.6	1.54	2.22	24.3	15.1
750	1.25	1.51	12.3	5.7	1.14	1.76	14.4	6.8
1000	0.95	1.18	7.3	2.6	0.86	1.39	8.6	3.1
1300	0.74	0.93	4.5	1.2	0.67	1.10	5.3	1.5
2000	0.48	0.62	1.9	0.35	0.43	0.73	2.3	0.43

表２の続き

	接触角 135°				接触角 150°			
κ_0 [1/m]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]
1	18.76	5.27	1514.9	5234.8	18.47	5.50	1558.5	5481.9
2	16.74	5.29	1247.0	4140.3	16.45	5.52	1285.8	4336.6
4	14.71	5.31	1003.3	3169.3	14.42	5.54	1037.3	3320.3
7	13.06	5.31	824.2	2476.1	12.77	5.54	854.3	2594.7
12	11.46	5.30	666.7	1886.1	11.17	5.52	693.1	1977.1
20	9.94	5.26	531.3	1399.0	9.65	5.48	554.0	1467.0
35	8.27	5.16	398.8	948.3	7.98	5.38	417.6	994.9
53	7.03	5.03	311.7	672.3	6.74	5.25	327.5	705.6
80	5.82	4.82	235.2	448.9	5.54	5.04	248.1	471.3
120	4.67	4.53	170.1	278.7	4.39	4.74	180.2	292.7
180	3.59	4.12	116.0	156.6	3.32	4.33	123.5	164.6
270	2.63	3.58	73.6	78.1	2.37	3.78	78.7	82.0
400	1.85	2.98	43.7	35.0	1.61	3.16	47.0	36.7
550	1.36	2.46	27.0	16.7	1.14	2.62	29.2	17.5
750	0.99	1.97	16.1	7.6	0.80	2.11	17.5	7.9
1000	0.73	1.56	9.7	3.5	0.57	1.68	10.5	3.6
1300	0.56	1.24	6.0	1.7	0.42	1.34	6.5	1.7
2000	0.36	0.83	2.6	0.48	0.26	0.91	2.8	0.50

	接触角 165°				接触角 180°			
κ_0 [1/m]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]
1	18.14	5.64	1599.3	5624.9	17.80	5.68	1638.0	5670.7
2	16.12	5.66	1322.0	4449.5	15.79	5.70	1356.2	4485.4
4	14.09	5.67	1068.9	3406.6	13.76	5.71	1098.5	3433.9
7	12.45	5.67	882.1	2662.0	12.11	5.72	908.1	2683.0
12	10.85	5.66	717.2	2028.1	10.52	5.70	739.6	2044.0
20	9.33	5.62	574.7	1504.7	9.00	5.66	593.8	1516.3
35	7.66	5.51	434.5	1020.3	7.34	5.56	449.8	1027.9
53	6.43	5.38	341.6	723.4	6.12	5.42	354.2	728.7
80	5.23	5.17	259.4	483.0	4.92	5.21	269.3	486.4
120	4.09	4.87	188.9	299.8	3.79	4.91	196.4	301.8
180	3.03	4.45	129.8	168.4	2.75	4.48	134.9	169.4
270	2.10	3.90	82.9	83.8	1.84	3.93	86.1	84.2
400	1.37	3.26	49.5	37.5	1.14	3.29	51.3	37.6
550	0.92	2.71	30.7	17.8	0.72	2.74	31.7	17.9
750	0.61	2.19	18.4	8.1	0.44	2.22	19.0	8.1
1000	0.41	1.75	11.1	3.7	0.27	1.77	11.4	3.7
1300	0.28	1.40	6.8	1.8	0.17	1.42	7.0	1.8
2000	0.16	0.95	3.0	0.51	0.07	0.96	3.1	0.51

但し、良く知られているように、液滴が体積を徐々に増す時に観測される接触角と、徐々に減じる時に観測される接触角は異なる（前進角と後退角）。これは、水平面材料の表面の微細な凹凸等の影響ではないかと考えられている。また、液滴が安定的に存在できるような温度、湿度、圧力では、ファン・デル・ワールス力や電気的な力によって、水の薄膜が表面に安定的に形成される。この薄膜は極めて薄い[25]が非常に動き難いものであるため、空気と水と水平面材料が出会う円周域（三重線領域）では、界面を外周から拘束することになる。このように三重線領域では、数値計算に含まれていない影響が加わるため、界面形状は計算結果から僅かに異なってくる（図４２）。

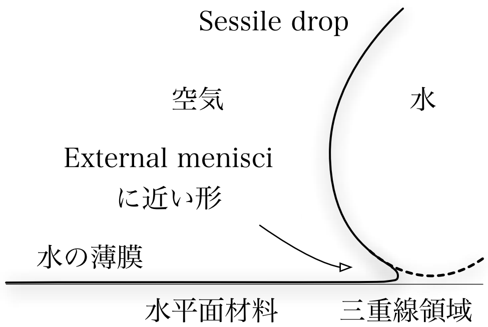


図４２　水平面材料上の水の薄膜の影響（模式図）

三重線領域の界面形状を想像してみると、水平領域～三重線領域～ Sessile drop 間で界面が連続しているため、界面形状は External menisci に分類される形になる。曲率もまた連続しているため、曲率が正の Sessile drop と曲率が零の水平領域の間で、三重線領域の曲率は正から零に変化する。図２１の曲線群からこのような条件を満たすものを選ぶと、$\kappa_1^0 < 0$, $\kappa_2^0 > 0$, $\kappa_1^0 + \kappa_2^0 > 0$ を満たす External menisci で、図２１の形状の上下を逆にした形が、三重線領域の界面形状に近いと考えられる。

一方、力の釣り合いを考えると、図２１では y が小さくなる（下方に移動する）につれて界面を内側から押す力（静水圧）が増大し、これに対応して界面の曲率が増大して力の釣り合いを保っているが、図４２の三重線領域では、水平面材料に近いと界面を内側から押す力が弱く（水平面材料との結合が強い）、水平面から遠いと（上方に移動すると）界面を内側から押す力が増大する。従って、上記の連続性から導かれる上下の逆転と、力の釣り合いは整合する。但し、三重線領域では、図２１と異なり静水圧が y に対し直線的に変化しないので、いわば歪んだ External menisci になると考えられる。三重線領域での形状と図４１からの外れの程度、結果としての表２からの外れの程度については、前進角と後退角の違いも影響しやや難しい問題[23] なので、本報告では割愛する。

23. 水平面材料の表面には、三重線をピン留めするような化学的或いは物理的不均一があり、力の釣り合いだけでなく、三重線が移動する際のエネルギー散逸を考慮しなければならないとされる。

4.2 内外圧力差と体積及び表面エネルギー

図１８で触れたが、Pendant drop の場合の数値計算結果は、日常的に観察される界面形状を大きく超えている。例えば、風呂の天井に薄く拡がった水膜から液滴が滴る場合、図４３に示す形状が現れ、右端の状態を超えると落下するが、これらの形状は数値計算結果の原点に近い領域に限られる。その理由は明らかで、内側（水相）の圧力が、外側（気相）の圧力よりも大きく、内外圧力差を打ち消すような曲率を気液界面が持っているためである。

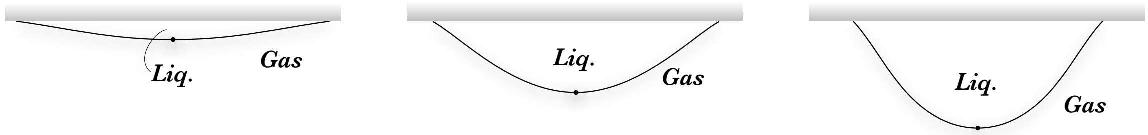
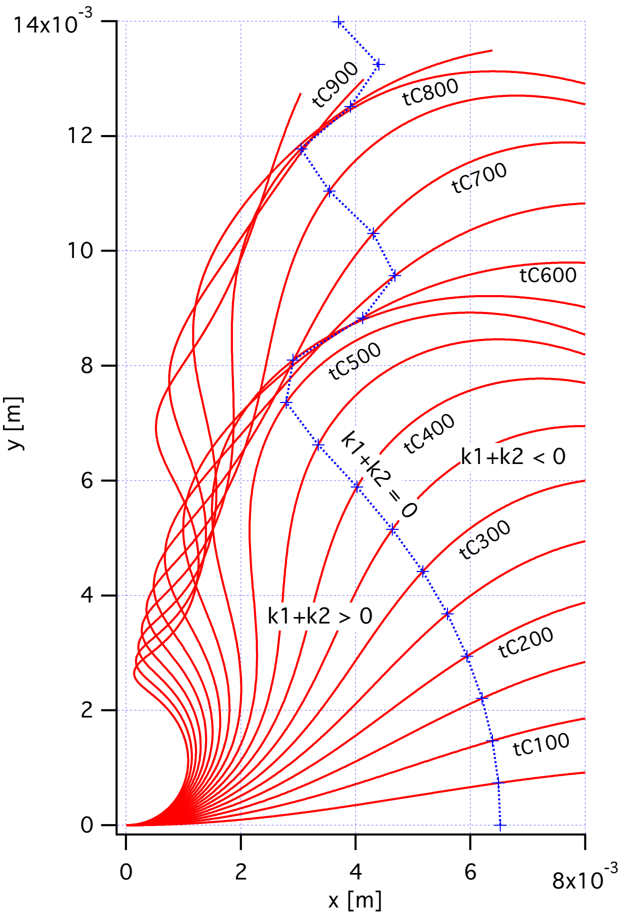


図４３　薄く拡がった水膜から液滴が滴る場合の形状の一例（Pendant drop）

従って、計算値が具現化されるのは $\kappa_1+\kappa_2 \geq 0$ を満たす領域となる。図１８と図２９の曲線群に $\kappa_1+\kappa_2=0$ を重ねた結果を図４４（表を含む）に示す。図４３の右端の状態は、およそ tC300 に相当する。また、$\kappa_1+\kappa_2=0$ は $y=0$ で $x=6.52$ mm に収束する。



Points satisfying k1+k2=0		
	x [m]	y [m]
Extrapolated at y=0	0.00652	0.00000
tC50	0.00649	0.00074
tC100	0.00638	0.00147
tC150	0.00620	0.00221
tC200	0.00594	0.00294
tC250	0.00560	0.00368
tC300	0.00517	0.00442
tC350	0.00464	0.00515
tC400	0.00402	0.00589
tC450	0.00335	0.00663
tC500	0.00279	0.00736
tC550	0.00291	0.00810
tC600	0.00412	0.00883
tC650	0.00468	0.00957
tC700	0.00431	0.01031
tC750	0.00354	0.01104
tC800	0.00305	0.01178
tC850	0.00391	0.01252
tC900	0.00440	0.01325
tC950	0.00370	0.01399

図４４　図１８と図２９の曲線群に $\kappa_1+\kappa_2=0$ を重ねた結果

点滴筒の中に見える液滴のように水平面の半径が数 mm に限られている場合は、x = 半径で各曲線を切って得られる形状が具現化される（図４５）。半径 2 mm の場合、実際の液滴は 6 mm 程度まで長くなるので、tC511（y 軸との最近接点＝先端の曲率が 511 [1/m] で neck の部分が x = 2.0 mm に接する）や tC522（ y = 6.4 mm で x = 2.0 mm と交わる）まで具現化されること、液滴の体積が増加してゆく際に先端の曲率は単調に変化しないことが判る。tC522 よりも大きくならない＝これが落下直前の形状になる理由は図４６で説明する。

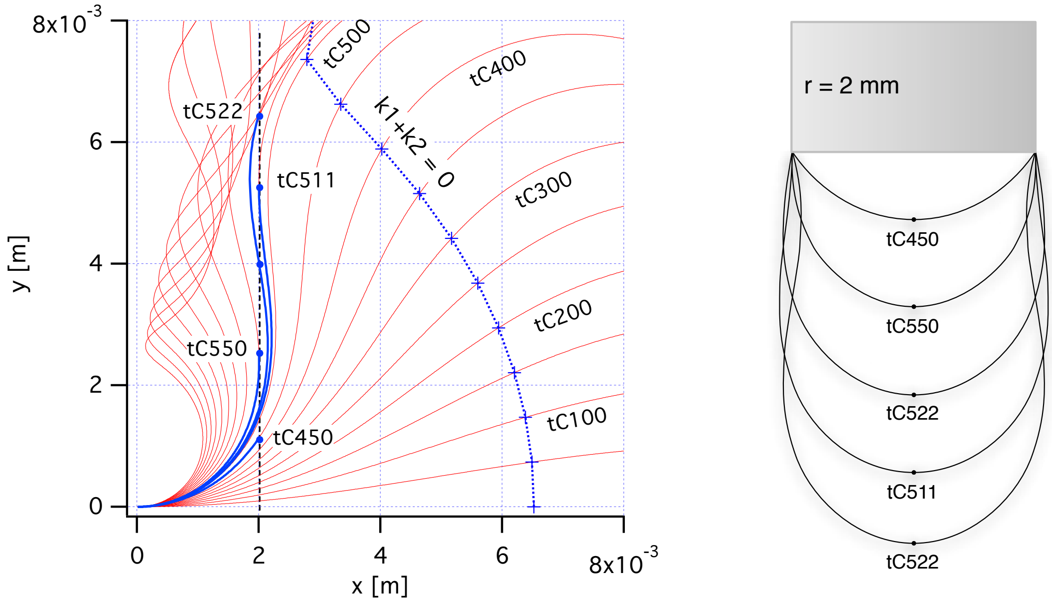


図４５　水平面の半径が 2 mm の場合の界面形状を求める例

図４４と図４５に関して、次のような重要な疑問が直ちに浮かぶ：

a) y = 0 で x = 6.52 mm に収束する特徴は、何を意味しているか？

b) 薄く拡がった水膜から液滴が滴る場合、tC300 以上の状態が現れないのは何故か？

c) 水平面の半径 2 mm の場合、tC550 には x = 2 mm で $y \approx$ 2.6 mm と $y \approx$ 7.1 mm の２つの交点が存在するが後者が現れない（tC522 よりも大きくならない）のは何故か？

このうち a) は、曲率を持った界面が、直径 13 mm 以上になると、安定的に存在できないことを意味し、ストローの先を水で塞ぐことはできるが、ホースの先を水で塞ぐことはできない、という日常経験に対応している。

表面張力の教科書[26] に付属する CD には、大きなガラス平面の裏側に安定的に形成される液滴の間隔が 13 mm 以上となることを示す実験のムービー（b_24_m_3549.mov）が含まれており（本文では 1 cm 程度と書かれているがムービーでは 13 mm と表示される）、Rayleigh - Taylor 不安定性の一例として説明されている[26]。薄膜が変形して液滴になると考えるとそのような理解が必要になるが、変形に係わる粘性や動力学を持ち出さなくとも、安定的に存在できる曲率を持った界面の直径に限度があることは、本方法で説明できる。

次に、$\kappa_1 + \kappa_2 \geq 0$ を満たす領域の曲線群の持つ体積をプロットしてみる（図４６）と、b) と c) の理由が明らかとなる。線の重複を避けるため tC650 以上は途中でカットした。

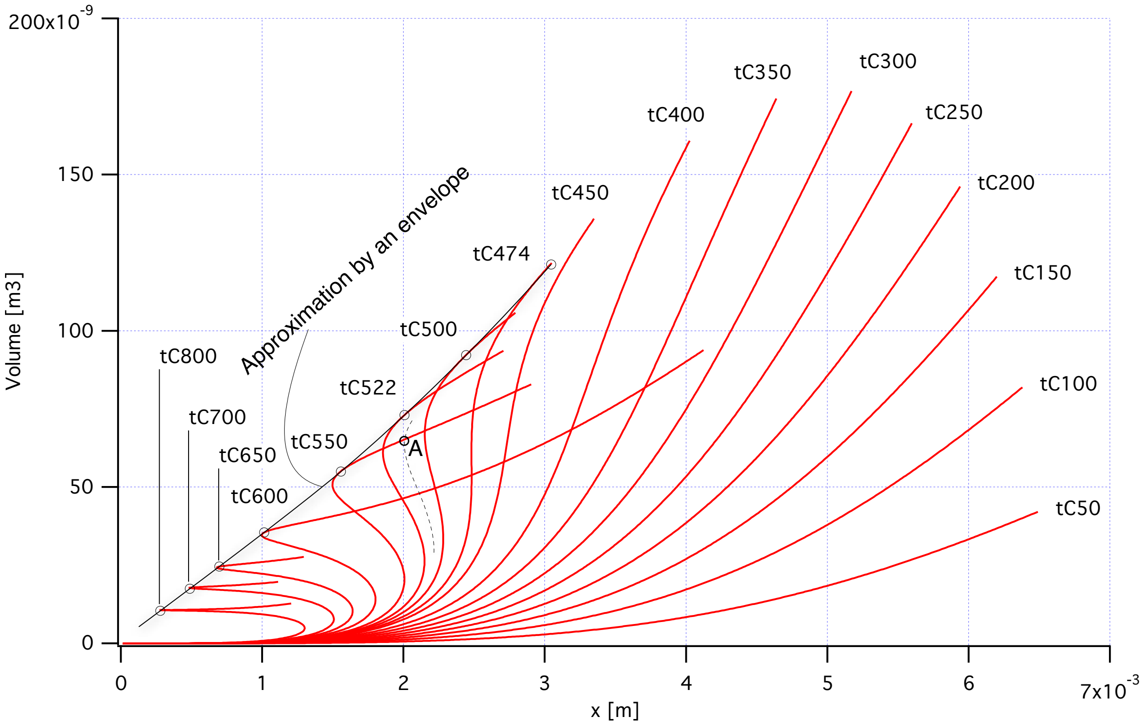


図４６　$\kappa_1 + \kappa_2 \geq 0$ を満たす領域の曲線群の持つ体積

薄く拡がった水膜から液滴が滴る場合に tC300 以上の状態が現れない（疑問 b）のは、tC300 付近が体積最大であり、これ以上成長することが出来ずに落下するためである。曲線と水平面のなす角度は必ずしも接触角と一致しない（実際には三重線領域となっている）。

また、tC474 以下（neck を持たない）では $\kappa_1 + \kappa_2 = 0$ を満たす点（曲線の右端）が体積最大となるが、tC474 以上（neck を持つ）では曲線群に接するような包絡線が存在し、この包絡線が体積最大を与えることが判る。この接点は neck の少し上にあり、tC600 程度までは neck とのずれが図上でわかる程度に大きいが、tC600 程度を超えると図上では目立たない。水平面の半径が 2 mm ならば、体積最大で落下直前の形状は tC522 に相当しており、これは小さいが明確な neck を持っている。実際、点滴筒の中に見える落下直前の液滴には neck があることが観察できる。落下中でなく落下直前であることは、点滴クランプを止めることによって確認できる。

次に tC550 上の点 A（$x = 2$ mm, $y \approx 7.1$ mm に対応する）に着目すると、同じく tC500 と tC522 の中間にあり点 A を通る曲線（点線で示した曲線で、tC511 に非常に近いが同じではない）が存在しており、力の釣り合いの下では表面積 = 表面エネルギーのより小さい後者（点線で示した方）が具現化する。tC550 には $x = 2$ mm で $y \approx 2.6$ mm と $y \approx 7.1$ mm の２つの交点が存在するが後者が現れない（疑問 c）のは、点 A において同じ x 座標・同じ体積で表面エネルギーの小さい別の界面が存在するためである。

この場合に限らず、包絡線が存在する領域では、同じ x 座標・同じ体積で表面積の異なる複数の曲線が存在する。包絡線が存在しない領域では、同じ体積で表面積の異なる複数の曲線が存在するが x 座標は異なる。そこで、$\kappa_1+\kappa_2 \geq 0$ を満たす領域の曲線群の持つ表面積をプロットした（図４７）。線の重複を避けるため、tC650, tC700, tC800 は図４５と同じく neck の少し上から先をカットし、tC600 も同じくカットした。

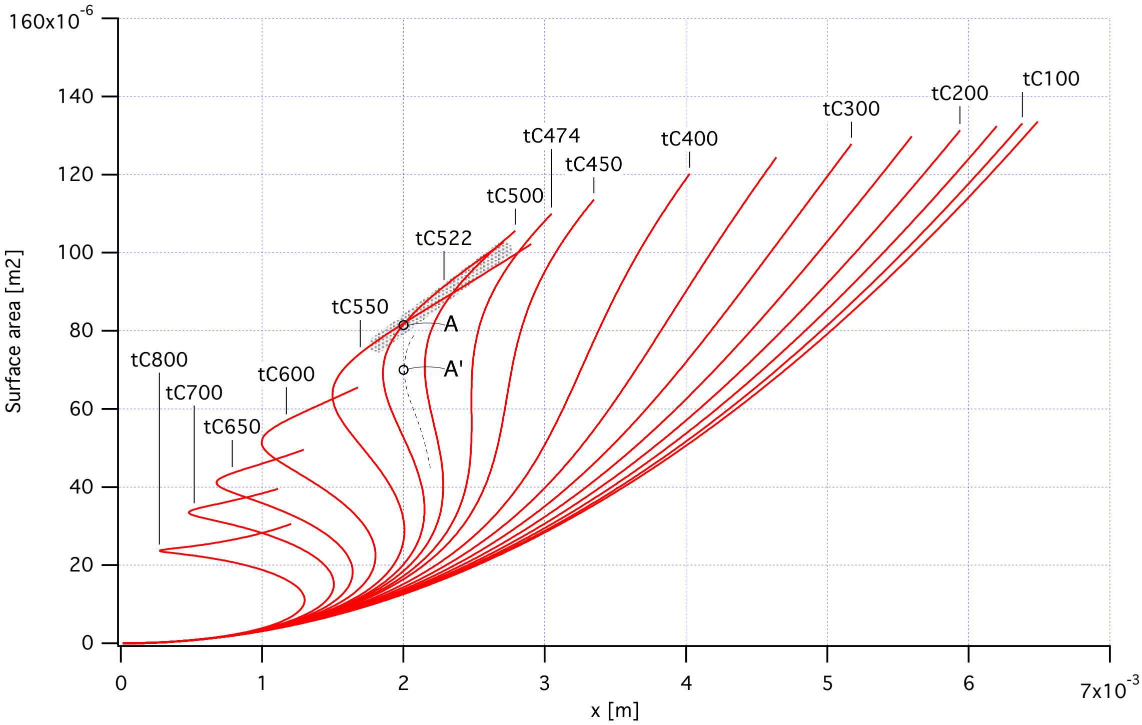


図４７　$\kappa_1+\kappa_2 \geq 0$ を満たす領域の曲線群の持つ表面積

薄く拡がった水膜から液滴が滴る場合、例えば tC100 → tC200 → tC300 と体積が増大するにもかかわらず、表面積 = 表面エネルギーは漸次減少することが判る。また、図４６の点 A は tC550 上の点 A と点線で示した曲線上の点 A' に分離され、後者の表面積が 10 mm^2 程度小さいことが確認できる。表面エネルギーの差としては 7.2×10^{-7} [N•m] に相当する。

図４７を表面エネルギーの違いと見ると、包絡線が存在する領域、特に tC550 までの範囲で、同じ x 座標・同じ体積で表面積の異なる複数の界面の表面エネルギーの違いはせいぜい 5×10^{-7} N•m 程度であることがわかる（網掛けで示したおよその範囲）。図４６から体積を 70 ~ 90 mm^3 程度と見積もると、密度を 1000 kg/m^3 としてポテンシャルエネルギーに対応する高さの差は 0.6 ~ 0.7 mm である。これは面白い特徴で、図４５のように液滴が滴る場合は tC511 ~ tC522 間で 0.6 mm 程度の重心の変化（高さの差で 1.1 mm）があるので、ポテンシャルエネルギーの減少と表面エネルギーの増加が同時に起こりかつその差が小さい。このため、何らかの外乱があると、ポテンシャルエネルギーと表面エネルギーの交換（振動）が容易に生じ、場合によっては正のフィードバックになることも考え得る。この点については、先端の曲率を更に細かく区切った計算が必要なため、今後の課題としたい。

なお、図４５では水の水平面材料への接触角に言及しなかったが、水平面材料が疎水性の場合は図４８a、親水性の場合は図４８b のようになるので、管の外表面が親水性であったり液滴が著しく小さくない限り、ここで考察した様々な特徴は接触角に大きくは依存しないと考えられる。管の外表面が親水性の場合、界面は管の外表面の影響を受けるので、neck 付近の液滴直径と管の外径及び接触角の関係が重要になると考えられる（図４８c, 図４８d）。

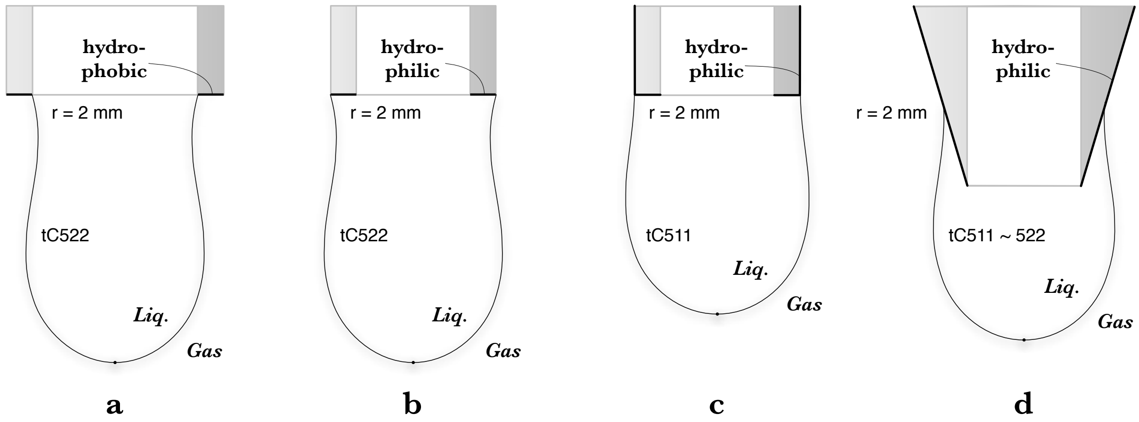


図４８　水平面材料の親水性・疎水性及び外表面が親水性の管の傾きによる最大体積の違い

次に、図４６で最大体積となる際の x 座標，y 座標，表面積と体積及び水平面と成す角度を表３に示す。包絡線の近似式（x 座標と体積の関係）も合わせて示した。表に示した範囲で、近似による体積の不確かさは 0.3 mm^3 未満であった。

表３　最大体積をとる際の x 座標，y 座標，表面積及び水平面と成す角度

κ_0 [1/m]	x [mm]	y [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]	水平面と成す角度 [rad]	備考
50	6.49	0.74	133.61	42.13	0.14	$\kappa_1 + \kappa_2 = 0$
100	6.38	1.47	133.21	82.03	0.28	
150	6.20	2.21	132.50	117.47	0.42	
200	5.94	2.94	131.41	146.28	0.56	
250	5.60	3.68	129.87	166.53	0.70	
300	5.17	4.42	127.67	176.39	0.83	
350	4.64	5.15	124.56	174.60	0.95	
400	4.02	5.89	120.07	160.65	1.04	
450	3.35	6.63	113.70	136.00	1.07	
474	3.05	6.98	109.91	121.65	1.04	
500	2.41	6.66	92.64	91.04	包絡線の x 座標に対する体積の関係 $V = 0.6397\,x^3 + 0.4731\,x^2 + 31.886\,x + 2.10$ where V [mm^3], x [mm]	
522	2.00	6.43	81.61	72.81		
550	1.54	6.01	68.68	54.61		
600	1.01	5.42	52.97	35.43		
650	0.68	4.80	41.68	24.43		
700	0.48	4.18	33.50	17.77		
800	0.27	3.40	23.70	10.64		

落下直前の最大体積については、いわゆる Tate の法則 $2\pi r\sigma = mg$（m は液滴重量）が知られているが、この法則と表３の tC474 ~ tC800 の x（$= r$）から体積を求めると、表３の体積より２割弱〜３割強も大きな値となる。即ち、Tate の法則に達する手前で液滴は落下する。実際、Tate の法則には様々な補正が必要とされている[27][28]。

接触角については、落下した後の界面形状にも影響があると考えられる（図４９）。液滴の落下はカオスの様相を示す現象として知られており[29][30][31]、単純な仮定のみを置くことは出来ない。しかしながら、水平面材料が親水性で、接触角が小さいならば、安定な最小体積として図４９を仮定することは合理的と考えられる。

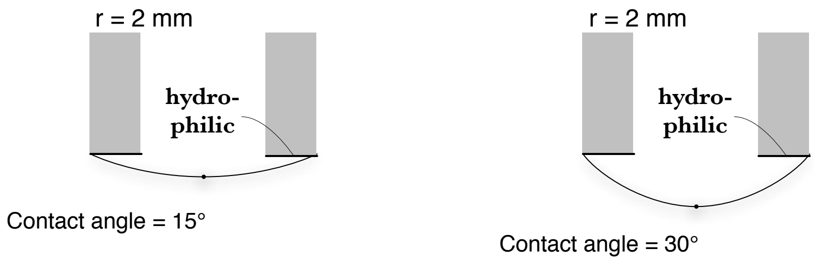


図４９　水平面材料が親水性である時の安定な最小体積

内外圧力差及び最大体積に関する条件を満たす Pendant drop について、水の水平面材料への接触角を 15° 刻みで変化させた時の、図１８と図２９の各形状の端点の位置（水平面との接触半径と水平面までの高さ）と表面積及び体積を表４に示す。表５には、Pendant drop に特徴的な neck におけるこれらの値を示す。

表４　接触角を変化させた時の各界面の接触半径/高さ/表面積/体積（Pendant drop）

	接触角 15°				接触角 30°			
κ_0 [1/m]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm²]	体積 [mm³]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm²]	体積 [mm³]
100	3.05	0.44	29.8	6.3	–	–	–	–
150	1.83	0.25	10.7	1.3	–	–	–	–
200	1.33	0.18	5.7	0.50	2.93	0.86	29.1	11.5
250	1.06	0.14	3.6	0.25	2.18	0.61	16.1	4.6
300	0.87	0.12	2.4	0.14	1.76	0.49	10.5	2.4
350	0.75	0.10	1.8	0.09	1.49	0.41	7.5	1.4
400	0.65	0.09	1.4	0.06	1.29	0.35	5.6	0.93
450	0.58	0.08	1.1	0.04	1.14	0.31	4.4	0.64
474	0.55	0.07	0.96	0.03	1.08	0.29	3.9	0.54
500	0.52	0.07	0.87	0.03	1.02	0.28	3.5	0.46
511	0.51	0.07	0.83	0.03	1.00	0.27	3.3	0.43
522	0.50	0.07	0.79	0.03	0.97	0.26	3.2	0.40
550	0.47	0.06	0.71	0.02	0.92	0.25	2.9	0.34
600	0.43	0.06	0.60	0.02	0.84	0.23	2.4	0.26
700	0.37	0.05	0.44	0.01	0.72	0.19	1.8	0.16
800	0.32	0.04	0.34	< 0.01	0.63	0.17	1.3	0.11

表４の続き

	接触角 45°				接触角 60°			
κ_0 [1/m]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]
250	3.83	1.95	56.7	45.3	–	–	–	–
300	2.73	1.24	27.9	15.0	–	–	–	–
350	2.22	0.98	18.4	7.9	3.03	2.05	40.8	32.1
400	1.89	0.82	13.3	4.8	2.46	1.57	26.3	16.4
450	1.66	0.71	10.2	3.2	2.11	1.31	19.2	10.1
474	1.56	0.67	9.0	2.7	1.98	1.22	16.8	8.3
500	1.47	0.63	8.0	2.2	1.86	1.13	14.8	6.8
511	1.44	0.61	7.7	2.1	1.81	1.10	14.0	6.3
522	1.41	0.60	7.3	1.9	1.77	1.07	13.3	5.8
550	1.33	0.56	6.5	1.6	1.67	1.00	11.8	4.8
600	1.21	0.51	5.4	1.2	1.51	0.90	9.7	3.6
700	1.03	0.43	3.9	0.76	1.28	0.76	6.9	2.2
800	0.90	0.37	3.0	0.50	1.11	0.65	5.2	1.4

	接触角 75°				接触角 90°			
κ_0 [1/m]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]
400	3.12	3.30	59.4	60.4	–	–	–	–
450	2.49	2.23	33.8	25.8	–	–	–	–
474	2.31	2.02	28.6	20.1	2.48	3.79	55.9	53.1
500	2.15	1.84	24.5	15.9	2.28	3.00	41.0	34.2
511	2.09	1.78	23.1	14.5	2.21	2.82	37.5	30.0
522	2.03	1.72	21.8	13.3	2.15	2.68	34.7	26.8
550	1.91	1.59	19.0	10.8	2.01	2.41	29.3	20.9
600	1.72	1.41	15.3	7.8	1.80	2.08	22.9	14.5
700	1.45	1.16	10.7	4.5	1.51	1.68	15.6	8.2
800	1.25	0.99	7.9	2.9	1.30	1.43	11.5	5.2
900	1.10	0.87	6.1	2.0	1.15	1.21	8.6	3.3
1000	0.99	0.77	4.9	1.4	1.02	1.06	6.8	2.3
1300	0.75	0.58	2.8	0.62	0.78	0.80	3.9	1.0
2000	0.49	0.37	1.2	0.17	0.50	0.51	1.6	0.27

表５　各界面の neck の接触半径/高さ/表面積/体積（Pendant drop）

κ_0 [1/m]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]	κ_0 [1/m]	接触半径 [mm]	高さ [mm]	表面積 [mm^2]	体積 [mm^3]
474	2.48	4.24	63.0	61.8	700	0.48	4.17	33.5	17.8
500	2.15	5.13	70.8	67.1	800	0.27	3.39	23.7	10.6
511	2.00	5.29	70.4	64.6	900	0.17	2.85	17.8	7.0
522	1.85	5.40	69.1	61.1	1000	0.12	2.47	14.0	4.9
550	1.50	5.47	63.6	50.8	1300	0.05	1.76	7.9	2.1
600	1.00	5.17	51.4	34.7	2000	0.01	1.07	3.2	0.54
650	0.68	4.66	41.1	24.2					

液滴の落下条件について本報告書では深入りしないが、図４６に関して「tC474 以上（neck を持つ）では曲線群に接するような包絡線が存在し、この包絡線が体積最大を与えることが判る。この接点は neck の少し上にあり、tC600 程度までは neck とのずれが図上でわかる程度に大きいが、tC600 程度を超えると図上では目立たない。」と書いた点に関して、気づいた点を補足しておきたい。図５０a は多くの教科書に載っている蛇口或いはガラス管先端からの液滴の落下の様子[7][32]、図５０b はガラス管の端に先の尖った金属棒を差し込んだ場合の液滴の落下の様子[33]である。図５０a の 1 は落下直前でなく落下中の初めの状態に見える。図５０b の 1 は落下直前なのか落下中の初めの状態なのかわからない。

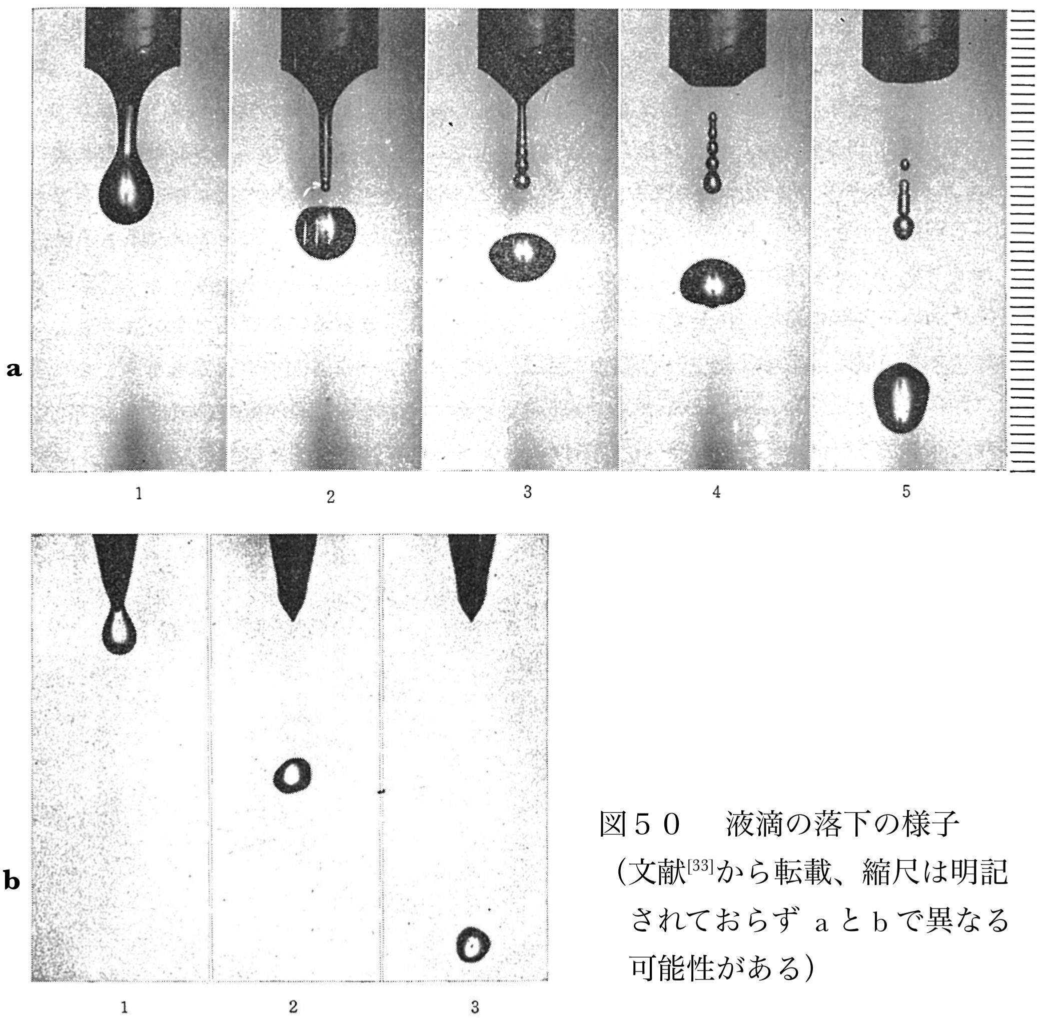


図５０　液滴の落下の様子
（文献[33]から転載、縮尺は明記されておらず a と b で異なる可能性がある）

筆者の理解では、b の場合の安定界面は neck の部分まで（図４８d）であるが、a の場合は neck の少し上の包絡線までが安定界面である。a に特徴的な細長い尾（一連の小さな球に分裂する）は、安定界面のうち neck の少し上の部分が変化しているのではないかと思われる。表３と表５から、tC550 の場合であれば、neck 以上の部分の neck までの部分に対する体積比はおよそ 7 %、tC522 の場合であればおよそ 19 % になる。文献[33]には 9 % くらいと記載されている。先端の曲率を更に細かく区切った計算や実験による確認等が必要なため、今後の課題としたい。

4.3 周期的に変化する形状の波長、その他

External menisci の具現化の例として、親水性又は疎水性の円盤（円柱）の周囲に形成される水面の形について説明する。この形は、図２１において界面の下半分が限りなく水平線に近づく場合に相当し、κ_2^0 = 1/0.0005 [1/m] の場合 κ_1^0 = −1/0.0004608164 [1/m] で水平線の高さは -1.25 × 10^{-3} [m] であった。親水性の円盤（円柱）の周囲では対称軸側が水相となり、疎水性の円盤（円柱）の周囲では対称軸側が気相となるので、上下が逆転しているが両者は同一形状である。様々な κ_2^0 に対する κ_1^0 と水平線の高さを表６にまとめた。与えた物性値は図１６と同じである。遠方まで水平であるためには κ_1^0 の微調整が必要であり、κ_2^0 = 1/0.0005 [1/m] の場合の κ_1^0 は、再計算により −1/0.0004608156 [1/m] となった。桁数が多いほど水平部は延々と伸びてゆき、別の曲線が現れるような傾向は見られない。

表６　界面の下半分が水平線に近づく場合の κ_2^0, κ_1^0 と水平線の高さ（External menisci）

$\kappa^0{}_2$ [1/m]	$\kappa^0{}_1$ [1/m]	水平線の高さ [mm]
1/0.0005	-1/0.00046081656	-1.2517
1/0.0010	-1/0.00080055668	-1.8344
1/0.0020	-1/0.00119985856	-2.4576
1/0.0030	-1/0.001406000999	-2.7826
1/0.0040	-1/0.0015259174773	-2.9844
1/0.0050	-1/0.00160268411475	-3.1211
1/0.0070	-1/0.001693661947730	-3.2952
1/0.0100	-1/0.0017629719553088	-3.4397
1/0.0200	-1/0.001842928116374751	-3.6265
1/0.0500	-1/0.00188912554084908787	-3.7497
1/0.1000	-1/0.00190401393462416972	-3.7929
1/0.2000	-1/0.00191133736437745819	-3.8149

水平線の高さを零に揃えた時の各界面の断面図（図２１の $y = 0$ の高さが各曲線の上端に対応）を図５１に示す。例えば、円盤（円柱）の直径が 100 mm ならば κ_2^0 = 1/0.05 [1/m] で水平線からの高さは 3.75 [mm] となる。なお、図の縦横比は縦が横の 5.0 倍で、各曲線は縦方向に延ばされている。また、Theoretical limit は以下の理論式[34] で計算される値で、σ は気液界面の表面張力、$\Delta\rho$ は気液密度差、g は重力加速度、θ_E は水の垂直平面材料への接触角である：

$$h = \sqrt{\frac{2\,\sigma}{\Delta\rho\,g}\,(\,1 - \sin\theta_E)} \tag{45}$$

この式は垂直平面の場合であるから、円盤（円柱）の直径→∞ に対応しており、θ_E = 0 ならば h = 3.837 [mm] となる。図５１の水平線からの高さは、円盤（円柱）の直径が大きくなるにつれてこの極限値に近づいており、数値計算結果は理論式と良く一致していることが

判る。また、曲線が水平と見なせるまでに 5 mm 強を要しているが、この距離が κ_2^0 に強く依存する傾向が見られないことも従来の知見[35]と変わらない。なお、垂直平面の場合には、曲線の形状についても理論式が導かれており[36]、双曲線逆関数（arccosh）を含む簡素な式で曲線形状を表すことができるようである。

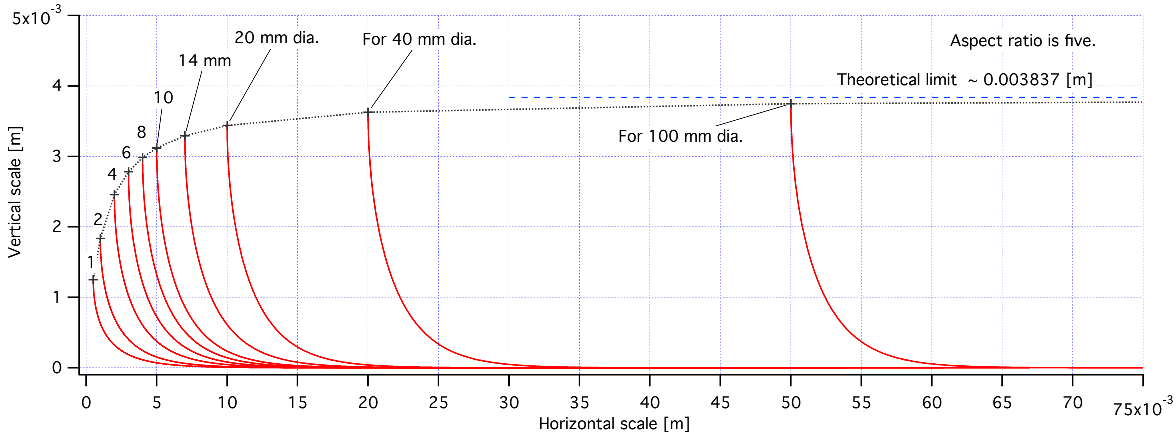


図５１　水平線の高さを零に揃えた時の各界面の断面図

別の具現化の例として、日常的に目にするよりも小さなスケールの気液界面では表面張力と比較して重力の影響が小さくなるため、無重力下における界面形状で半径が周期的に変化する Onduloid 又は Unduloid（図２５右上）に似た形が現れる。例えば、繊維を液体で被覆する際、繊維を覆う半径の円柱状の界面はこのような形に向かう。一見、安定に向かう変化に見えるがそうではなく、Plateau - Rayleigh の不安定性[37]と呼ばれる。

External menisci で Onduloid 又は Unduloid となる条件（$\kappa_1 < 0$ かつ $\kappa_2 > 0$ で $|\kappa_1| < |\kappa_2|$ 又は $\kappa_1 + \kappa_2 > 0$ ）の計算結果のうち neck と bulge の位置，その位置での表面積と体積，波長 λ，同じ体積の円柱の半径（等価半径）$R_{eq.}$，円柱の周長に対する波長の割合 $\lambda/2\pi R_{eq.}$，円柱の表面積に対する表面積の割合 $S/2\pi R_{eq.}\lambda$ を表７に示す。また、$\kappa_2^0 = 2000$ [1/m] の幾つかのケースについての波形（１波長分）を図５２に示す。κ_2^0 を固定して $|\kappa_1^0|$ を減少させると、波長は短く、neck と bulge の半径（x 座標）の差は小さく、等価半径は小さくなってゆく。

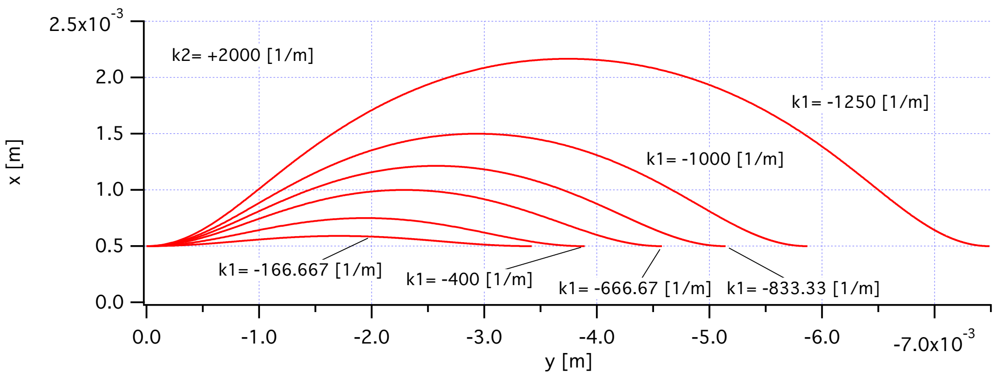


図５２　Onduloid 又は Unduloid となる条件での波形（１波長分）

図５２の曲線は文献[37]では cos で近似されているが、κ_2^0 = 2000 [1/m] で κ_1^0 = -1250 [1/m] の場合、この曲線と cos を 0, π, 2π で合わせると、0.42-0.43 π と 1.57-1.58 π の位置で x 方向の最大のずれが現れ、その大きさは 0.3 mm 程度（cos が小さい）であった。

また、κ_2^0 を固定して $|\kappa_1^0|$ を減少させると、円柱の周長に対する波長の割合 $\lambda/2\pi R_{eq.}$ は 100% 未満から 100% に、円柱の表面積に対する表面積の割合 $S/2\pi R_{eq.}\lambda$ は 100% 超から 100% に近づいた。表７の範囲外についても計算を行ったが、前者が 100% を超えたり後者が 100% 未満になる様子は見られなかった。その他、同じ体積の円柱の平均曲率に対する Onduloid 又は Unduloid の平均曲率の割合も 100% を僅かに超えるが、κ_2^0 を固定して $|\kappa_1^0|$ を減少させると 100% に近づいた。

表７　Onduloid 又は Unduloid となる条件での波長や等価半径等（External menisci）

k^0_2 [1/m]	k^0_1 [1/m]	x [mm]	y [mm]	S [mm^2]	V [mm^3]	λ [mm]	$R_{eq.}$ [mm]	$\lambda/2\pi R_{eq.}$	$S/2\pi R_{eq.}\lambda$
2000 (+1/0.0005)	-166.67 (-1/0.0060)	0.591	-1.710	5.882	1.610	3.421	0.547	99.5%	100.0%
		0.500	-3.421	11.767	3.220				
	-181.82 (-1/0.0055)	0.600	-1.724	5.984	1.652	3.449	0.552	99.4%	100.0%
		0.500	-3.449	11.967	3.305				
	-200 (-1/0.0050)	0.611	-1.738	6.094	1.701	3.484	0.558	99.3%	100.0%
		0.500	-3.484	12.222	3.412				
	-222.22 (-1/0.0045)	0.625	-1.753	6.232	1.762	3.524	0.566	99.1%	100.0%
		0.500	-3.524	12.531	3.546				
	-250 (-1/0.0040)	0.643	-1.782	6.446	1.855	3.580	0.576	99.0%	100.0%
		0.500	-3.580	12.953	3.729				
	-285.71 (-1/0.0035)	0.667	-1.828	6.772	1.996	3.650	0.589	98.6%	100.0%
		0.500	-3.650	13.512	3.981				
	-333.33 (-1/0.0030)	0.700	-1.872	7.157	2.177	3.747	0.608	98.0%	100.0%
		0.500	-3.747	14.321	4.355				
	-400 (-1/0.0025)	0.750	-1.938	7.759	2.471	3.888	0.637	97.1%	100.0%
		0.500	-3.888	15.578	4.964				
	-500 (-1/0.0020)	0.833	-2.060	8.902	3.057	4.124	0.687	95.5%	100.1%
		0.500	-4.124	17.825	6.123				
	-666.67 (-1/0.0015)	1.000	-2.287	11.401	4.502	4.579	0.792	92.0%	100.2%
		0.500	-4.579	22.828	9.017				
	-769.23 (-1/0.0013)	1.125	-2.455	13.513	5.873	4.911	0.873	89.6%	100.4%
		0.500	-4.911	27.036	11.752				
	-833.33 (-1/0.0012)	1.214	-2.575	15.160	7.029	5.144	0.932	87.9%	100.5%
		0.500	-5.144	30.278	14.031				
	-909.09 (-1/0.0011)	1.333	-2.725	17.459	8.768	5.450	1.012	85.7%	100.8%
		0.500	-5.450	34.911	17.530				
	-1000 (-1/0.0010)	1.500	-2.931	20.959	11.664	5.870	1.126	83.0%	101.1%
		0.500	-5.870	41.989	23.382				
	-1111.11 (-1/0.0009)	1.750	-3.245	26.966	17.255	6.487	1.301	79.4%	101.7%
		0.500	-6.487	53.902	34.482				
	-1250 (-1/0.0008)	2.167	-3.744	38.617	30.080	7.487	1.599	74.5%	102.7%
		0.500	-7.487	77.225	60.150				
		上段は bulge、下段は neck の位置							

表７の続き

k^0_2 [1/m]	k^0_1 [1/m]	x [mm]	y [mm]	S [mm^2]	V [mm^3]	λ [mm]	$R_{eq.}$ [mm]	λ/2π$R_{eq.}$	S/2π$R_{eq.}$λ
10000 (+1/0.0001)	-500 (-1/0.0020)	0.111	-0.331	0.219	0.012	0.661	0.105	99.7%	* 99.9%
		0.100	-0.661	0.438	0.023				
	-588.24 (-1/0.0017)	0.113	-0.334	0.223	0.012	0.667	0.106	99.7%	* 100.1%
		0.100	-0.667	0.446	0.024				
	-714.29 (-1/0.0014)	0.115	-0.338	0.229	0.012	0.676	0.108	99.5%	* 99.9%
		0.100	-0.676	0.459	0.025				
	-833.33 (-1/0.0012)	0.118	-0.342	0.235	0.013	0.684	0.110	99.4%	* 99.9%
		0.100	-0.684	0.471	0.026				
	-1000 (-1/0.0010)	0.122	-0.348	0.244	0.014	0.696	0.112	99.2%	* 99.9%
		0.100	-0.696	0.489	0.027				
	-1111.11 (-1/0.0009)	0.125	-0.353	0.251	0.014	0.705	0.113	99.0%	* 99.9%
		0.100	-0.705	0.501	0.028				
	-1250 (-1/0.0008)	0.129	-0.358	0.259	0.015	0.715	0.115	98.9%	100.0%
		0.100	-0.715	0.518	0.030				
	-1428.57 (-1/0.0007)	0.133	-0.365	0.270	0.016	0.729	0.118	98.5%	100.0%
		0.100	-0.729	0.540	0.032				
	-1666.67 (-1/0.0006)	0.140	-0.375	0.287	0.017	0.749	0.122	97.9%	100.0%
		0.100	-0.749	0.572	0.035				
	-2000 (-1/0.0005)	0.150	-0.388	0.311	0.020	0.778	0.127	97.1%	100.0%
		0.100	-0.778	0.623	0.040				
	-2500 (-1/0.0004)	0.167	-0.412	0.356	0.025	0.825	0.138	95.4%	100.0%
		0.100	-0.825	0.713	0.049				
	-3333.33 (-1/0.0003)	0.200	-0.458	0.456	0.036	0.916	0.158	92.1%	100.3%
		0.100	-0.916	0.913	0.072				
	-5000 (-1/0.0002)	0.300	-0.587	0.840	0.094	1.174	0.225	83.0%	101.1%
		0.100	-1.174	1.679	0.187				
		上段は bulge、下段は neck の位置				* 計算誤差の影響と思われる			

円柱の表面積と Onduloid 又は Unduloid の表面積の差、即ち表面エネルギーの差は、λ が短いと非常に小さく 0.1% にも満たないことが大きな特徴である。κ_2^0 = 2000 [1/m] で κ_1^0 = -500 [1/m] の場合、１波長分の表面エネルギーの差は 1.3 × 10^{-9} N•m、体積は 6.1 mm^3 であるから密度を 1000 kg/m^3 としてポテンシャルエネルギーに対応する高さの差は 0.02 mm 程度になる。この値は、波長はもちろん等価半径よりも小さく、最大体積の液滴に関して図４７で述べたポテンシャルエネルギーと表面エネルギーの交換が、この場合についても何らかの外乱によって容易に生じることを示唆している。

一方、Plateau - Rayleigh の不安定性に関する理論では、円柱の周長に対する波長の割合は 100% を超え、同じ体積の円柱の表面積に対する不安定形状（cos 波で近似される）の表面積の割合は 100% を超えないとされる。従って、Plateau - Rayleigh の不安定性によって現れる界面形状と Onduloid 又は Unduloid は排他的であり、前者は厳密には Onduloid 又は Unduloid ではない。想像するに、安定な気液界面は、円柱形状と $|\kappa_1^0|$ の小さい Onduloid 又は Unduloid 形状の間でゆらいでおり（表面エネルギーの差が極めて小さい）、何らかの外乱によって λ/2π$R_{eq.}$ が 1 を超えるような波が生じると、表面エネルギーが減少して、この方向に

向かう。これが Plateau - Rayleigh の不安定性であり、Onduloid 又は Unduloid 形状が具現化する訳ではない。しかしながら、Onduloid 又は Unduloid 形状は具現化の原動力と言うことはできる。

日常的に目にすることのできる気液界面のうち、流量を絞った時に蛇口から落ちる水流の形、即ち重力加速度を受けて流速が上がるにつれて断面積が小さくなり、断面積が周期的に変化する部分を経て水玉に分裂する様子（図５３）もまた、Plateau - Rayleigh の不安定性の現れと説明されている[38]。水玉に分裂する位置は不安定であるが、水流に向かって声を出すと不安定だった水玉に分裂する位置が上昇し、かつ安定するのは良く知られている[39]。

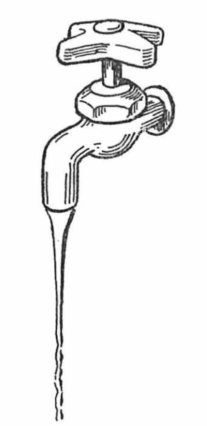


図５３　蛇口から落ちる水流の形
（模式図、文献[39]から転載）

この場合、$\lambda/2\pi R_{\mathrm{eq.}}$ が 1 を超えるような波をもたらす要因は、重力加速度を受けたことによる流速の上昇と考えられる。ゆらいる状態で生じている波の波長を、流速の上昇によって直接的に伸ばすからである[24]。測ってみると、水玉に分裂する位置付近の水流の直径は 1 mm 程度であるから、表７の κ_2^0 = 2000 [1/m] で $|\kappa_1^0|$ が最も小さいあたりに近い。従って、波長は 3 mm 強、波長あたりの体積は 3 mm^3 強、これが球になった時の直径は 2 mm 弱となる。実際、表７で κ_2^0 を固定して $|\kappa_1^0|$ を減少させた時、先に述べた傾向以外に、波長や等価半径が上記の値に収束する傾向があるように見える。繰り返しになるが、この点については曲率を更に細かく区切った計算が必要なため、今後の課題としたい。粘性や動力学を導入しなくても、迫ることのできる部分があるように思われる。

24. 水流の一点に着目した時、初速度が零ならば、流速は蛇口を離れてからの経過時間に比例し蛇口からの距離の 1/2 乗に比例する。断面半径は蛇口からの距離の – 1/4 乗に比例する。

5. まとめ

U-Pu 混合転換技術に関する研究開発の過程で課題となった或いは議論となった気液界面の形状を発端として、軸対称な流体−液体界面形状について、極座標系を導入し、原点移動アルゴリズムにより適応範囲を拡大することにより、水平接面と垂直接面を共に複数有する形状に適用可能な数値計算方法を導いた。本方法では、実際に観察される界面形状は、数値計算によって得られる曲線の一部が、物理的条件に対応して選ばれると考える。

導いた数値計算方法により、Sessile drop, Pendant drop, External menisci の室温，大気圧下における水と空気の界面形状を求めた。External menisci については、無重力下における界面形状も求めた（Sessile drop や Pendant drop は無重力の場合、球に収束する他ない）。

Sessile drop の結果は日常的に見られる気泡或いは液滴の形状を良く再現していた。また、特徴的なトーラスの正確な直径と気泡の正確な高さ及び曲率を求めることができた。Pendant drop の結果も日常的に見られる気泡或いは液滴の形状、例えば蛇口から滴る水の形や天井から滴る水の形を良く再現しているが、計算結果は日常的に見られる形を大きく超えていた。また、特徴的な主曲率（κ_1 と κ_2）の振動が現れた。External menisci の結果で日常的に見られる気泡或いは液滴の形状に対応するものは多くはないが、例えば親水性又は疎水性の円盤（円柱）の周囲に形成される水面の形を良く再現していた。Pendant と同じく、計算結果は日常的に見られる形を大きく超えており、また特徴的な主曲率の振動が現れた。

無重力下における External menisci の結果は、回転懸垂面，Onduloid / Unduloid，Nodoid となり、曲面論における平均曲率一定の曲面の分類（球と平面及び円柱を除くとこの３種類であること）と一致した。原点移動法により計算範囲を拡大した結果、Sessile drop には平均曲率の y 軸方向の直線的増加に Nodoid に似た主曲率の変化が重なること、Pendant drop には平均曲率の y 軸方向の直線的減少に Onduloid / Unduloid に似た主曲率の変化が重なること、External menisci には平均曲率の y 軸方向の直線的減少に Nodoid に似た主曲率の変化と Onduloid / Unduloid に似た主曲率の変化が重なることが明確になった。また Pendant drop と External menisci の界面の y 方向の高さには限度があること、その手前で平均曲率＝零を中心として主曲率が振動すること、振動の前に Onduloid / Unduloid に似た主曲率の変化が複数現れる場合があることが明確になった。

次に実例として、密度及び液位の測定に用いられる浸漬管の先端に生じる気泡、マイクロ波加熱により円筒形状の液中に核生成する気泡、転換後の造粒物中に生じていると推定される液架橋をとりあげた。トーラスの正確な直径と気泡の正確な高さ及び曲率を求めることができたことにより、繰り返し測定では排除が困難な測定の不確かさを正確に評価し、プルトニウムの正確な計量管理と査察対応に大きく寄与することができた。マイクロ波加熱により核生成する気泡については、その特徴的な形状の背景を推定するとともに、表面張力よりも慣性力が支配的な場合でも慣性力の変化（位置に対する）が表面張力の変化よりも緩やかであれば、表面張力の影響による形状が現れると考えられた。造粒物中の液架橋については、

粒子の体積に対する安定な液架橋の体積の比を評価することにより、実験によって明らかになっていた製造条件の狭さについて、その理由を定量的に説明することができた。

続いて、室温，大気圧下における水と空気の界面について体系的に計算を行い、数値計算によって得られる曲線の一部が選ばれる際の物理的条件を調べた。その一つは接触角であり、水の水平面材料への接触角を 15 度刻みで変えた時の Sessile drop の曲線の選び方（水平線での切り取り方）と結果（水平面との接触半径、高さ、表面積と体積）を表にまとめた。

Pendant drop において計算結果が日常的に見られる形を大きく超える理由は、平均曲率が y 軸方向に直線的に減少するにも係わらず、内側（水相）の圧力が外側（空気）の圧力よりも大きいという物理的条件により、実際には平均曲率が正となる領域しか具現化しないためである。この物理的条件によって Pendant drop 曲線を選ぶ（切り取る）ことにより、曲率を持った界面が直径 13 mm 以上になると安定に存在できない（ストローの先を水で塞ぐことはできるがホースの先を水で塞ぐことはできない）ことや、水平面の直径が数 mm に限られている場合に液滴の成長と共に neck（液滴の水平幅の最も小さい場所）が生じる理由を定量的に説明することができた。前者は、Rayleigh - Taylor の不安定性（薄膜が変形して液滴になる）で説明されていたが、変形に係わる粘性や動力学を持ち出さなくとも、安定的に存在できる曲率を持った界面の直径に限度があることは、本方法で説明できる。

また液滴には、落下直前の最大体積があるが、neck を持たない場合と neck を持つ場合についてそれぞれ、最大体積の生じる理由を定量的に説明することができた。neck を持つ場合の最大体積は neck の少し上の位置に対応することが明らかになり、教科書でよく目にする液滴落下時の付随液滴は neck の少し上の部分に対応しているのではないかと考えられた。また neck を持つ場合は、同じ水平方向半径、同じ体積で表面エネルギーの異なる別の界面が存在すること、表面エネルギーの差は重心の高さの差（ポテンシャルエネルギーの差）と同等かやや少ない程度であり、何らかの外乱があるとこれらの交換（振動）が容易に生じることが考えられた。

External menisci について、Onduloid 又は Unduloid の波長や等価半径（同じ体積の円柱の半径）を調査した結果、円柱の周長に対する波長の割合は 100% 未満から 100% に近づき、円柱の表面積に対する表面積の割合は 100% 超から 100% に近づいた。これらは Plateau - Rayleigh の不安定性の条件に対して排他的であり、また円柱の表面積に対する表面積の割合は 100 % をごく僅かに超えるものの、差はポテンシャルエネルギーの差と同等かやや少ない程度であり、何らかの外乱があると表面エネルギーとの交換（振動）が容易に生じることが考えられた。おそらく、安定な気液界面は、円柱形状と Onduloid 又は Unduloid 形状の間でゆらいでおり、何らかの外乱によって安定を超える波が生じると、表面エネルギーが減少してこの方向に向かうものと想像された。

結論として、今回導いた数値計算方法とアルゴリズムによって、液滴の形状や曲率変化、安定性等について、新たな観点と見通しを得ることができた。これらを詳細に確かめるには曲率を更に細かく区切った計算が必要であり、今後の課題にしたいと考えている。

参考文献

文献 [22] については、鈴木政浩氏（日本原子力研究開発機構）から快く写真を提供していただきました。また執筆後には、清野健先生（大阪大学大学院基礎工学研究科）から本報告に関連する論文（J. F. Padday and A. R. Pitt, The Stability of Axisymmetric Menisci, Philosophical Transactions of the Royal Society of London, Ser.-A Mathematical Physics 275, pp. 489-528 (1973)）があることを教わりました。ここに深く感謝いたします。

[1] F. Bashforth and J. C. Adams, An attempt to test the theories of capillary action, Cambridge University Press, 1883.

[2] 小野周, 表面張力, 共立出版, 1992, p. 11.

[3] Wikipedia, Young-Laplace equation（http://en.wikipedia.org/wiki/Young-Laplace_equation）

[4] J. Plateau, Statique expérimentale et théorique des liquides soumis aux seules forces moléculaires, Gauthier-Villars, 1873.

[5] ドゥジェンヌほか（奥村剛 訳）, 表面張力の物理学, 吉岡書店, 2009, 1.1.5 節

[6] H. Poincaré. Capillarité, Georges Carré, 1895.

[7] ドゥジェンヌほか（奥村剛 訳）, 表面張力の物理学, 吉岡書店, 2009, 第1章

[8] 渡辺宙志, 回転液滴の平衡形状, 東京大学物性研究所渡辺宙志公開メモ.
（http://apollon.issp.u-tokyo.ac.jp/~watanabe/pdf/rotation.pdf）

[9] S. Chandrasekhar, The stability of a rotating liquid drop, Proc. R. Soc. London Series A, 286 (1404), pp. 1-26, 1965.
（この論文の Appendix に楕円積分を用いた解法が書かれている）

[10] 十河清, 重力下にある液滴の平衡形状について, 北里大学理学部十河研究室公開メモ.
（http://www.kitasato-u.ac.jp/sci/resea/buturi/hisenkei/sogo/yamagata_full.pdf）

[11] S. Hartland, Richard W Hartley, Axisymmetric Fluid-Liquid Interfaces, Elsevier, 1976.

[12] 立野昌義, 画像計測による液滴幾何学条件を用いた液滴形状算出法, 表面科学 Vol.22, No.6, pp. 388-396, 2001.

[13] O.I. Río and A.W. Neumann, Axisymmetric Drop Shape Analysis, J. colloid and interface science 196, 137-147 (1997)

[14] G.W. Leipniz, Two papers on the catenary curve and logarithmic curve, Acta Eruditorum (1691), English translated by Pierre Beauty (http://www.schillerinstitute.org/fid_97-01/011_catenary.html#2)

[15] Ch. Delaunay, Sur la surface de révolution dont la courbure moyenne est constante, Journal de mathématiques pures et appliquées 1re série, tome 6 (1841), pp. 309-314.
（http://mathdoc.emath.fr/JMPA/PDF/JMPA_1841_1_6_A24_0.pdf）

[16] 細馬隆ほか, マイクロ波加熱直接脱硝法による混合転換プロセスの実証20年の歩み−プルトニウム転換技術開発施設の運転経験と技術開発−, サイクル機構技報, 2004 (24) pp. 12-26.

[17] ISO 18213-1, 18213-2, 18213-3, 18213-4, 18213-5:
Nuclear Fuel Technology - Tank Calibration and Volume Determination for Nuclear Materials Accountancy.

[18] 細馬隆, 硝酸プルトニウムの高精度液量測定に関する研究, PNC TN8419 98-002.

[19] T. Hosoma, Volume Measurement System for Plutonium Nitrate Solution and its Uncertainty to be Used for Nuclear Materials Accountancy Proved by Demonstration over Fifteen Years, JAEA-Research 2010-033.

[20] 未来を拓く原子力2009−原子力機構の研究開発成果−（http://jolisfukyu.tokai-sc.jaea.go.jp/fukyu/mirai/2009/index.html）→ 次世代原子力システム研究開発 → 11. 簡素化ペレット法燃料製造技術の実用化への研究開発

[21] S. Hori, Y. Abe, M. Suzuki, K. Fujita et al., On the Nucleation Behavior of the Solution by the Microwave Direct Heating, Proc. of ICONE17, 75653, Brussels, Belgium, 2009.

[22] M. Suzuki, Private communication

[23] T. Kurita, Y. Kato, M. Suzuki, Y. Kihara and K. Fujii, Innovative powder production and granulation for advanced MOX fuel fabrication, Proc. of Global 2009, 9181, Paris, France, 2009.

[24] Y. Kato, Wet granulation of mixed oxide powders de-nitrated by the microwave heating, J. of Nucl. Sci. and Technol., Vol.49, No.10, 2012, pp. 999-1009.

[25] ドゥジェンヌほか（奥村剛 訳）, 表面張力の物理学, 吉岡書店, 2009, 第4章など

[26] ドゥジェンヌほか（奥村剛 訳）, 表面張力の物理学, 吉岡書店, 2009, 5.2.3 節など

[27] 松本仙一, 界面張力の測定, 石油技術協会誌, 第17巻, 第6号, 1952, pp. 347-353.

[28] ドゥジェンヌほか（奥村剛 訳）, 表面張力の物理学, 吉岡書店, 2009, 2.6.1.1 節

[29] ロバート・ショウ（佐藤壌/津田一郎 訳）, 水滴系のカオス, 岩波書店, 2006.

[30] 清野健, 水漏れ蛇口のカオス動力学, 数理解析研究所講究録 1430 巻 2005 年, pp. 136-145. 及び
K. Kiyono, T. Katsuyama, T. Masunaga and N. Fuchikami, Picture of the low-dimensional structure in chaotic dripping faucets, Physics Letters A 320, pp. 47-52 (2003).

[31] 渕上信子, 雫の物理 1~3, 数理科学, 445, p. 68, 2000 ; 446, p. 59, 2000 ; 447, p. 68, 2000. 及び
N. Fuchikami, S. Ishioka and K. Kiyono, Simulation of a Dripping Faucet, Journal of the Physical Society of Japan, 68 (4), pp. 1185-1196 (1999).

[32] イアン・スチュアート（吉永良正 訳）, 自然の中に隠された数学, 草思社, 1996, p193.

[33] ロゲルギスト, 第四 物理の散歩道, 岩波書店, 1969, pp. 120-124.

[34] ドゥジェンヌほか（奥村剛 訳）, 表面張力の物理学, 吉岡書店, 2008. 式 (2.20)

[35] ドゥジェンヌほか（奥村剛 訳）, 表面張力の物理学, 吉岡書店, 2008. 2.1 節

[36] 小野周, 表面張力, 共立出版, 1992, pp. 48-51.

[37] ドゥジェンヌほか（奥村剛 訳）, 表面張力の物理学, 吉岡書店, 2009, 5.2.4 節など

[38] ドゥジェンヌほか（奥村剛 訳）, 表面張力の物理学, 吉岡書店, 2009, 1.1.5.1 節

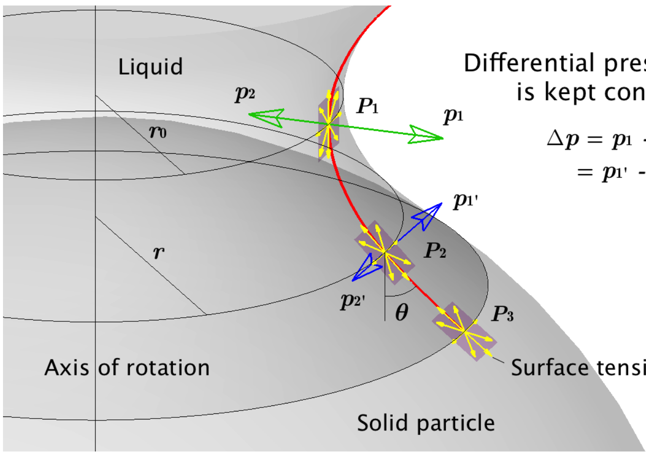
[39] ロゲルギスト, 物理の散歩道, 岩波書店, 1963, pp.113-118.

付録

「2.6　断面が懸垂線となる特別な場合の厳密解」に関する補足説明

等径の球状小粒子間に、External menisci に分類される軸対称な気液界面を考える。これは液架橋とも呼ばれ、２つの小粒子を強く付着させることが知られている。

図Ａ１に示すように、液架橋の界面では界面に接する小面内であらゆる方向に、表面張力による引っ張り力が作用している。点 P_1 は半径が最小となる点、点 P_2 は任意の点、点 P_3 は液と空気の界面が粒子と接する点で、P_3 では液が粒子を（粒子が液を）P_1 や P_2 における表面張力と同じ力で引っ張っている（でないと静止しない）。これが第１の付着力である。これとは別に、界面の表面張力及び平均曲率に応じて生じる圧力差（Young-Laplace 式）があり（p_1, p_2 は曲率 κ_1, κ_2 に対応）、この圧力差は法線方向に作用するから、第１の付着力と圧力差は界面のどこでも直交し互いに独立である。



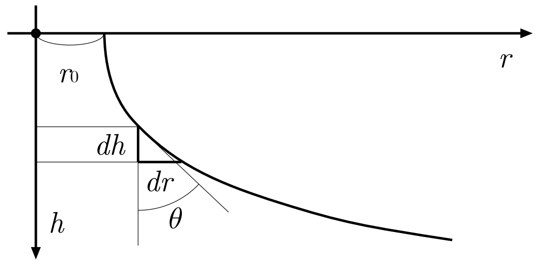
図Ａ１　液架橋の界面上で小面内に作用する力と法線方向に作用する力

表面張力は長さを乗じて初めて「力」の次元を持つ。小面内の表面張力の水平方向成分は第１の付着力には寄与せず、寄与するのは界面に接する垂直方向成分である。点 P_1 においてこの力が作用する長さは中央半径 r_0 の円周であるから、点 P_1 における引っ張り力は $2\pi r_0\,\sigma$ と求まる。また、垂直方向の力のつり合いから、これが点 P_3 を含む任意の点 P_2 で保たれるので、次式が成り立つ。接触角が零でない場合にも次式は成り立つ：

$$f_1 = 2\pi r\,\sigma\cos\theta = 2\pi r_0\,\sigma \tag{A1}$$

例えば、水を想定して σ = 0.072 N/m, r_0 = 0.5 mm とすると、第１の付着力は 2.26 × 10^{-4} N なので、直径 2 mm, 密度 2.7 g/cm^3 の球状の砂粒に作用する重力 1.13 × 10^{-5} N に十分に抗することができる。実際に指先を水で濡らして小さな砂粒をくっつけ、ティッシュで水を少しずつ吸い取ってみるとよい。このように、ミリオーダー未満の液架橋では、表面張力が重力よりも十分に大きいと見なすことができ、実際、このオーダーの水滴はほぼ球形である。

次に、図A 1の垂直断面を考える。対称軸上で点 P_1 と同じ高さからの垂直下方向の長さ h を導入する（図A 2）。



図A 2　図A 1の垂直断面

図A 2から次の関係が得られる：

$$\tan\theta = \frac{dr}{dh} \tag{A2}$$

式 (A1) の $r_0 = r\,\cos\theta$ から $1+\tan^2\theta = 1/\cos^2\theta$ により θ を消去して：

$$\left(\frac{dr}{dh}\right)^2 - \frac{r^2}{r_0^2} + 1 = 0 \;\;\rightarrow\;\; \frac{dr}{dh} = \sqrt{\left(\frac{r}{r_0}\right)^2 - 1} \tag{A3}$$

次に $r/r_0 = R$ と置き換えて次式を得る：

$$\frac{dh}{dr} = \sqrt{\frac{1}{R^2-1}} \;\;\rightarrow\;\; \frac{dh}{dR} = r_0\sqrt{\frac{1}{R^2-1}} \tag{A4}$$

続いて不定積分の公式[1]に従って次の解を得る：

$$\frac{h}{r_0} = \cosh^{-1} R \;\;\rightarrow\;\; \frac{r}{r_0} = \cosh\left(\frac{h}{r_0}\right) \tag{A5}$$

ここで cosh は $(e^x + e^{-x})/2$ で定義される双曲線関数で式 (A5) は懸垂線を表す。このように表面張力が重力よりも十分に大きいと見なせる（重力を無視できる）ならば、力の釣り合いを満たす気液界面の断面図は懸垂線になる。

続いて、懸垂線を対称軸のまわりに回転して得られる界面の曲率を求める。式 (A3) は次のように書くことができる：

$$1 + (r')^2 = \frac{r^2}{r_0^2} \tag{A6}$$

1. 機械工学便覧 A2 数学 4.1.4 の b の 20. の公式

これを h で微分して次式を得る：

$$r'' = \frac{r}{r_0^2} \tag{A7}$$

ここで $r' = \dfrac{dr}{dh}$, $r'' = \dfrac{d^2r}{dh^2}$ である。これは、図A２の $h-r$ 平面において h を x と見なしかつ x 軸を対称軸と考えているので、本文の式 (3), (4) の曲率の定義を書き直す[2]：

対称軸（x 軸）を含む切断面に現れる曲線の曲率 $\quad \kappa_1 = \dfrac{-y''}{(1+y'^2)^{\frac{3}{2}}}$ (A8)

κ_1 に直交する曲率 $\quad \kappa_2 = \dfrac{1}{y\,(1+y'^2)^{\frac{1}{2}}}$ (A9)

ここで $y' = \dfrac{dy}{dx}$, $y'' = \dfrac{d^2y}{dx^2}$ である。式 (A8), (A9) は造粒に関する文献[3]では公知であるが、この文献では本文の式 (8) が正値となるように符号を決めているので注意を要する。最後に式 (A6), (A7) を式 (A8), (A9) に代入すると次式が得られる：

$$-\kappa_1 = \kappa_2 = \frac{r_0}{r^2} \tag{A10}$$

従って、懸垂線を対称軸のまわりに回転して得られる界面の平均曲率は零である。このように、表面張力が重力よりも十分に大きいと見なせる（重力を無視できる）ならば、力の釣り合いを満たす気液界面の断面図は懸垂線となり、界面の平均曲率は零となる。

なお、第２の付着力は、Young - Laplace 式に基づく圧力差によって、液体内が外気よりも負圧になる場合に発生する。ここで「場合」と断ったのは、図A１の p_1, p_2 の大小関係によって負圧にも正圧にもなり得ること以外に、液架橋に液が入って行ける或いは液が出て行ける条件であれば、又は液架橋への液の出入りが制限されていても粒子が動くことができる条件であれば（粒子間の距離が固定されていなければ）、力の釣り合いを満たすべく液架橋が変形できるからである。その結果、液体内は外気と同じ圧力となり、第２の付着力は発生しない。

2. 本文の式 (3), (4) の x と y を入れ替えた後、次の式変形を利用する：

$$\left[1+\left(\frac{dx}{dy}\right)^2\right]^{\frac{3}{2}} = \left[\left(\frac{dx}{dy}\right)^2\right]^{\frac{3}{2}}\left[\left(\frac{dy}{dx}\right)^2+1\right]^{\frac{3}{2}} = \left|\frac{dx}{dy}\right|^3\left[1+\left(\frac{dy}{dx}\right)^2\right]^{\frac{3}{2}} \quad \text{（本文の式 (3) の分母について）}$$

$$\frac{d^2x}{dy^2} = \frac{d(dx)}{dy\,dy} = \frac{d(dx)\,dy}{dy\,dy\,dy} = -\frac{d(dy)\,dx}{dy\,dy\,dy} = -\frac{d(dy)}{dx\,dx}\frac{dx\,dx\,dx}{dy\,dy\,dy} = -\frac{d^2y}{dx^2}\left(\frac{dx}{dy}\right)^3 \quad \text{（本文の式 (3) の分子について）}$$

$$\frac{\frac{dx}{dy}}{y\left[1+\left(\frac{dx}{dy}\right)^2\right]^{\frac{1}{2}}} = \frac{\frac{dx}{dy}}{y\left[\left(\frac{dx}{dy}\right)^2\right]^{\frac{1}{2}}\left[\left(\frac{dy}{dx}\right)^2+1\right]^{\frac{1}{2}}} = \frac{\pm 1}{y\left[1+\left(\frac{dy}{dx}\right)^2\right]^{\frac{1}{2}}} \quad \text{（本文の式 (4) について）}$$

3. 遠藤ほか, 2粒子間に働 く液架橋付着力の解析, 化学工学論文集, Vol.19, No.1, 1993, pp. 55-61. など

国際単位系（SI）

表１．SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表２．基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m^{2}
体積	立法メートル	m^{3}
速さ，速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s^{2}
波数	毎メートル	m^{-1}
密度，質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m^{3}
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m^{2}
比体積	立方メートル毎キログラム	m^{3}/kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m^{2}
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度[(a)]，濃度	モル毎立方メートル	mol/m^{3}
質量濃度	キログラム毎立法メートル	kg/m^{3}
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m^{2}
屈折率[(b)]	（数字の） 1	1
比透磁率[(b)]	（数字の） 1	1

(a) 量濃度（amount concentration）は臨床化学の分野では物質濃度（substance concentration）ともよばれる。
(b) これらは無次元量あるいは次元１をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の１は通常は表記しない。

表５．SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10^{24}	ヨタ	Y	10^{-1}	デシ	d
10^{21}	ゼタ	Z	10^{-2}	センチ	c
10^{18}	エクサ	E	10^{-3}	ミリ	m
10^{15}	ペタ	P	10^{-6}	マイクロ	µ
10^{12}	テラ	T	10^{-9}	ナノ	n
10^{9}	ギガ	G	10^{-12}	ピコ	p
10^{6}	メガ	M	10^{-15}	フェムト	f
10^{3}	キロ	k	10^{-18}	アト	a
10^{2}	ヘクト	h	10^{-21}	ゼプト	z
10^{1}	デカ	da	10^{-24}	ヨクト	y

表６．SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h =60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	’	1’=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	”	1”=(1/60)’=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	1ha=1hm^{2}=10^{4}m^{2}
リットル	L，l	1L=1l=1dm^{3}=10^{3}cm^{3}=10^{-3}m^{3}
トン	t	1t=10^{3} kg

表３．固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン[(b)]	rad	1 [(b)]	m/m
立体角	ステラジアン[(b)]	sr[(c)]	1 [(b)]	m^{2}/m^{2}
周波数	ヘルツ[(d)]	Hz		s^{-1}
力	ニュートン	N		m kg s^{-2}
圧力，応力	パスカル	Pa	N/m^{2}	m^{-1} kg s^{-2}
エネルギー，仕事，熱量	ジュール	J	N m	m^{2} kg s^{-2}
仕事率，工率，放射束	ワット	W	J/s	m^{2} kg s^{-3}
電荷，電気量	クーロン	C		s A
電位差（電圧），起電力	ボルト	V	W/A	m^{2} kg s^{-3} A^{-1}
静電容量	ファラド	F	C/V	m^{-2} kg^{-1} s^{4} A^{2}
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m^{2} kg s^{-3} A^{-2}
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V	m^{-2} kg^{-1} s^{3} A^{2}
磁束	ウエーバ	Wb	Vs	m^{2} kg s^{-2} A^{-1}
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^{2}	kg s^{-2} A^{-1}
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m^{2} kg s^{-2} A^{-2}
セルシウス温度	セルシウス度[(e)]	℃		K
光束	ルーメン	lm	cd sr[(c)]	cd
照度	ルクス	lx	lm/m^{2}	m^{-2} cd
放射性核種の放射能[(f)]	ベクレル[(d)]	Bq		s^{-1}
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m^{2} s^{-2}
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト[(g)]	Sv	J/kg	m^{2} s^{-2}
酸素活性	カタール	kat		s^{-1} mol

(a)SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
(b)ラジアンとステラジアンは数字の１に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の１は明示されない。
(c)測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
(d)ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
(e)セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
(f)放射性核種の放射能（activity referred to a radionuclide）は、しばしば誤った用語で”radioactivity”と記される。
(g)単位シーベルト（PV,2002,70,205）についてはCIPM勧告2（CI-2002）を参照。

表７．SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位で表される数値
電子ボルト	eV	1eV=1.602 176 53(14)×10^{-19}J
ダルトン	Da	1Da=1.660 538 86(28)×10^{-27}kg
統一原子質量単位	u	1u=1 Da
天文単位	ua	1ua=1.495 978 706 91(6)×10^{11}m

表８．SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=10^{5}Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10^{-10}m
海里	M	1 M=1852m
バーン	b	1 b=100fm^{2}=(10^{-12}cm)2=10^{-28}m^{2}
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的な関係は、対数量の定義に依存。
ベル	B	
デジベル	dB	

表９．固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10^{-7} J
ダイン	dyn	1 dyn=10^{-5}N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm^{-2}=0.1Pa s
ストークス	St	1 St =1cm^{2} s^{-1}=10^{-4}m^{2} s^{-1}
スチルブ	sb	1 sb =1cd cm^{-2}=10^{4}cd m^{-2}
フォト	ph	1 ph=1cd sr cm^{-2} 10^{4}lx
ガル	Gal	1 Gal =1cm s^{-2}=10^{-2}ms^{-2}
マクスウェル	Mx	1 Mx = 1G cm^{2}=10^{-8}Wb
ガウス	G	1 G =1Mx cm^{-2} =10^{-4}T
エルステッド[(c)]	Oe	1 Oe ≙ (10^{3}/4π)A m^{-1}

(c) ３元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ≙ 」は対応関係を示すものである。

表４．単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘度	パスカル秒	Pa s	m^{-1} kg s^{-1}
力のモーメント	ニュートンメートル	N m	m^{2} kg s^{-2}
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	kg s^{-2}
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m^{-1} s^{-1}=s^{-1}
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s^{2}	m m^{-1} s^{-2}=s^{-2}
熱流密度，放射照度	ワット毎平方メートル	W/m^{2}	kg s^{-3}
熱容量，エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m^{2} kg s^{-2} K^{-1}
比熱容量，比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m^{2} s^{-2} K^{-1}
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	m^{2} s^{-2}
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s^{-3} K^{-1}
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m^{3}	m^{-1} kg s^{-2}
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s^{-3} A^{-1}
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m^{3}	m^{-3} sA
表面電荷	クーロン毎平方メートル	C/m^{2}	m^{-2} sA
電束密度，電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m^{2}	m^{-2} sA
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	m^{-3} kg^{-1} s^{4} A^{2}
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s^{-2} A^{-2}
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m^{2} kg s^{-2} mol^{-1}
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m^{2} kg s^{-2} K^{-1} mol^{-1}
照射線量（X線及びγ線）	クーロン毎キログラム	C/kg	kg^{-1} sA
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	m^{2} s^{-3}
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m^{4} m^{-2} kg s^{-3}=m^{2} kg s^{-3}
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m^{2} sr)	m^{2} m^{-2} kg s^{-3}=kg s^{-3}
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m^{3}	m^{-3} s^{-1} mol

表10．SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10^{10}Bq
レントゲン	R	1 R = 2.58×10^{-4}C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10^{-2}Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10^{-2}Sv
ガンマ	γ	1 γ =1 nT=10-9T
フェルミ		1フェルミ=1 fm=10-15m
メートル系カラット		1メートル系カラット = 200 mg = 2×10-4kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリー	cal	1cal=4.1858J（「15℃」カロリー），4.1868J（「IT」カロリー）4.184J（「熱化学」カロリー）
ミクロン	µ	1 µ =1µm=10^{-6}m

（第8版，2006年改訂）