

## 静止流体中における伸張液滴の運動

埼玉大学・工学部応用化学科 本間 俊司 (Shunji Homma)  
Department of Applied Chemistry,  
Saitama University

### 概要

静止流体中で一次元方向に十分伸張させた液滴（液柱）の運動について直接数値シミュレーションによる研究を行った。界面の非定常運動は、有限差分/ Front-Tracking 法で追跡した。伸長後流れが停止すると、液柱の先端に生じる界面張力によって、液柱の先端から液柱の重心方向への流れが生じる。数値実験の結果、1) 界面張力波の成長により複数の液滴へと分裂する、2) 液柱先端にバルブが生じるがそのまま単一の球状液滴へと戻る、3) 液柱先端に大きなバルブが生じることなく単一の球状液滴へと戻る、の三つのモードが観察された。線形安定理論によって求めた界面張力波の成長速度と液柱先端の移動速度の比によって、1) と 2) および 3) のモードを分類した。

### 1 はじめに

液柱あるいはジェットが液滴へと分裂する現象は、液体の微粒化における基礎的な現象として重要であり、多くの研究がなされてきた。液柱がその周りの流体の影響を受けながら分裂する現象は、一般に、液-液系で観察することができる。Taylor による実験 [7] は、この現象に対する研究の先駆けとなり、Tomotika [8, 9] は、軸対称モードの線形安定理論を確立した。以後この理論は、液-液系における分散液滴径の推算に広く用いられてきた [1, 3, 4]。

実際の液-液系で観察される分散液滴径は均一でなく、分布を持つ。これは、現象の非線形性によるもので、その分布は、線形安定理論で予測することができない。代表的な非線形の分裂現象として、サテライト液滴の生成、*end-pinching*、などが挙げられる。

*end-pinching* とは、軸方向に伸張させた液滴が分裂する場合、その先端に比較的大きなバルブが生じる現象で、Stone ら [5] によって確認された。一般に、*end-pinching* の時間スケールは、界面張力波の成長の時間スケールより小さく、液滴の軸方向の長さが短い場合、界面張力波が十分成長する前に *end-pinching* による界面の破断 (*pinch-off*) が起き、線形安定理論で予測される径より大きな液滴が生じる。Stone ら [6] は、低レイノルズ数領域かつ液滴とその周りの流体の粘度が等しい場合について、境界要素法による解析を行ったが、広い条件範囲における系統的小よび定量的な研究はこれまで行われていない。

そこで、本研究では軸方向に伸張させた液滴が分裂する現象について、直接数値シミュレーションにより分裂の様子を可視化し、バルブの移動速度と界面張力波の成長速度に注目した解析を行う。

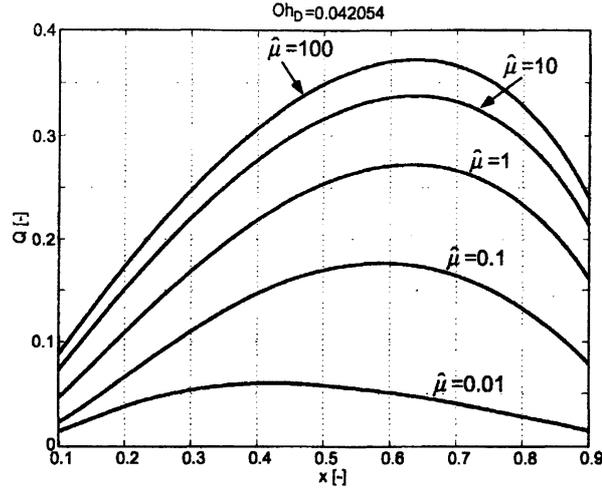


図1: 粘度比をパラメータとした分散関係

## 2 線形安定理論

ある流体中 (粘度  $\mu_C$ 、密度  $\rho_C$ ) で軸方向に伸張させた液滴 (粘度  $\mu_D$ 、密度  $\rho_D$ ) の表面に生じる界面張力波の成長速度を求めるため、Tomotika[8] の分散関係を使用する。無次元の成長速度  $Q$  および波数  $x$  の関係は、

$$\begin{vmatrix} I_1(x) & I_1(y') & K_1(x) & K_1(y) \\ xI_0(x) & y'I_0(y') & -xK_0(x) & -yK_0(y) \\ 2\hat{\mu}I_1(x) & \hat{\mu}(x^2 + y'^2)I_1(y') & 2x^2K_1(x) & (x^2 + y'^2)K_1(y) \\ h_1 & h_2 & h_3 & h_4 \end{vmatrix} = 0 \quad (1)$$

を解くことによって求められる。ここに、 $I_n$  および  $K_n$  はそれぞれ  $n$  次の第1種および第2種の変形ベッセル関数で、その他変数は以下のとおり：

$$h_1 = 2\hat{\mu}x^2\dot{I}_1(x) - \hat{\mu}\frac{Q}{2\text{Oh}_D}I_0(x) + \frac{\hat{\mu}}{Q\text{Oh}_D}(x^2 - 1)xI_1(x),$$

$$h_2 = 2\hat{\mu}xy'I_1(y') + \frac{\hat{\mu}}{Q\text{Oh}_D}(x^2 - 1)xI_1(y'),$$

$$h_3 = 2x^2\dot{K}_1(x) + \frac{\hat{\mu}}{\hat{\rho}}\frac{Q}{2\text{Oh}_D}K_0(x),$$

$$h_4 = 2xy\dot{K}_1(y),$$

$$Q = q\sqrt{2\rho_D a^3/\sigma}; \quad q: \text{成長速度}, \quad a: \text{液柱の半径}, \quad \sigma: \text{界面張力},$$

$$x = ka; \quad k: \text{波数},$$

$$y = k_C a, \quad k_C^2 = k^2 + q/\nu_C, \quad y' = k_D a, \quad k_D^2 = k^2 + q/\nu_D,$$

$$\text{Oh}_D = \mu_D/\sqrt{2\rho_D a \sigma}: \text{Ohnesorge 数},$$

$$\nu_C = \mu_C/\rho_C, \quad \nu_D = \mu_D/\rho_D: \text{動粘性係数},$$

$$\hat{\mu} = \mu_D/\mu_C: \text{粘度比}, \quad \hat{\rho} = \rho_D/\rho_C: \text{密度比}.$$

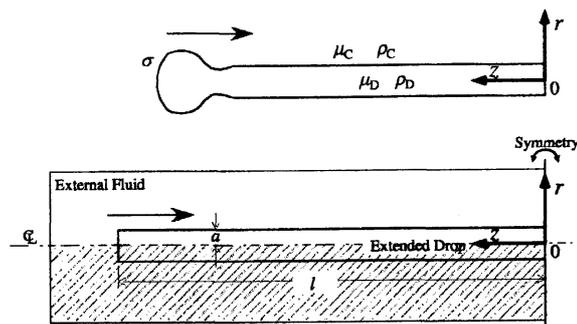


図2: 伸長させた液滴のシミュレーションに用いた解析ドメイン

なお、式(1)の導出は、Appendixに示した。

式(1)は、 $Q$ および $x$ の陰関数なので、両者間の関係は数値的に求める必要がある。本研究では、 $x$ を $0 < x < 1$ で離散的に変化させ、式(1)を満たす $Q$ をそれぞれ求めた。図(1)に、 $Oh_D = 0.042$ の場合の粘度比をパラメータとした分散関係を示す。図より、粘度比が小さいほど界面張力波の成長が遅いことがわかる。これは、液柱の周りの流体の粘度が高いほど液柱は安定であることを示している。

### 3 直接数値シミュレーション

軸方向に伸張させた液滴が分裂する現象を、end-pinching等の非線形現象も含めて解析するためには、界面の運動と流れの支配方程式を同時に解く必要がある。解析対象は、図2に示すように、伸張させた液滴の重心を境に半分のみとした。解析ドメイン内には、長さ $l$ の円柱状の液滴を配置し、液滴先端の界面張力によって誘起された流れと、それに伴い移動する界面を追跡することによって、この現象を数値的に再現する。液滴および周りの流体を非圧縮性ニュートン流体とし、界面を境に密度および粘度が異なる一流体と考えれば、流れの支配方程式は、

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad (2)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho \mathbf{u} + \nabla \cdot \rho \mathbf{u} \mathbf{u} = -\nabla P + \nabla \cdot \mu (\nabla \mathbf{u} + \nabla \mathbf{u}^T) + \int_f \sigma \kappa \mathbf{n}_f \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}_f) dA_f, \quad (3)$$

$$\frac{D}{Dt} \rho = \frac{D}{Dt} \mu = 0 \quad (4)$$

となる。ここに、 $\mathbf{u}$ は速度ベクトル、 $P$ は圧力である。重力は無視した。界面張力は、界面の曲率( $\kappa$ )および法線ベクトル( $\mathbf{n}_f$ )を用い計算し、界面のみで値を持つように、デルタ関数 $[\delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}_f); \mathbf{x}_f$ : 界面位置]を乗じて、局所的にはたらく体積力として考慮されている。

本研究では軸対称流れを仮定したので、支配方程式は二次元円筒座標上の有限差分近似(空間について二次、時間について一次精度)で離散化した。 $t=0$ において、ドメイン内に流れはなく、 $u=v=0$ を初期条件とした。ここに、 $u$ および $v$ はそれぞれ、半径方向( $r$ )および軸方向( $z$ )の速度成分である。境界条件は、中心軸(下)および $z=0$ (右)に対称条件、それ以外(上および左)はすべり壁の条件を与えた。

時々刻々と変化する自由界面位置の追跡には、Front-Tracking法[11]を用いた。Front-Tracking法では、界面を計算格子とは独立の要素として表現する。二次元の場合、点と点を結ぶ線要素の組

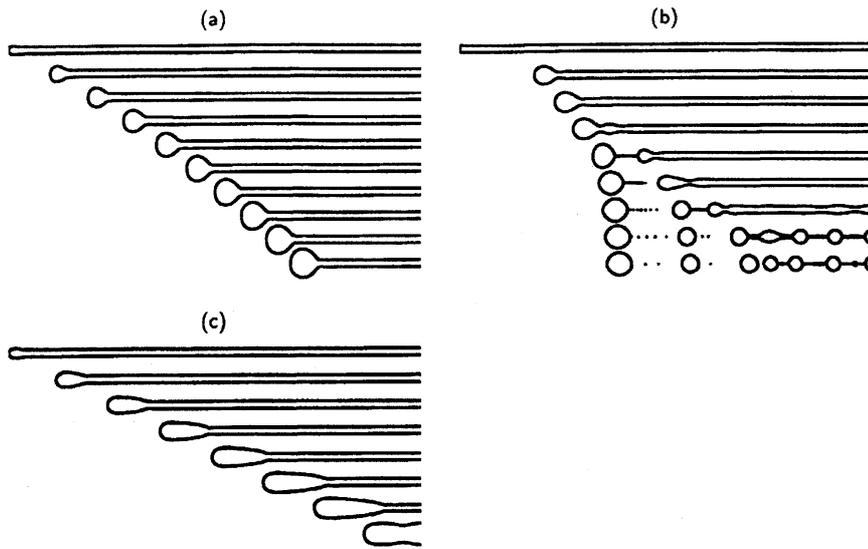


図 3: 運動の様子: (a)  $\hat{\mu} = 10, Oh_D = 4.2 \times 10^{-1}$ , (b)  $\hat{\mu} = 1, Oh_D = 4.2 \times 10^{-2}$ ,  
(c)  $\hat{\mu} = 0.1, Oh_D = 4.2 \times 10^{-3}$

を用いる。Front-Tracking 法の詳細およびその応用例については、文献 [10] を、二次元軸対称フロントトラッキング法は文献 [2, 12] を参照されたい。

#### 4 結果および考察

図 3 に、粘度比を変化させた場合の液滴の運動の様子を示す。初期液滴の軸方向長さ  $l_0$  は、初期半径の 12 倍 ( $l_0/a_0 = 12$ ) とした。ドメインの解像度は、 $128 \times 1920$  である。液滴の粘度が高い場合 (a)、液滴は先端に球状のバルブが成長しながら短くなっていく。連続相と液滴の粘度が等しい場合 (b)、液滴先端のバルブが end-pinching により分裂した後、残りの部分に表面張力波が成長し、複数の均一な液滴へと分裂する。液滴間には、細長いスレッドが生じ、これも表面張力波により複数のサテライト液滴へと分裂している。液滴の粘度が低い場合 (c)、液滴先端のバルブは細長い形状を示し、全体が分裂することなく球状の液滴へと戻った。このように、粘度比によって液滴の運動の様子が大きく異なることがわかる。

図 4 に、液滴先端位置の時間変化を示す。どの条件においても、ほぼ一定の速度で収縮していることがわかる。なお、粘度比が 1 の場合 [図 3(b)]、途中から先端位置が階段状に変化しているが、これは分裂によって液滴が生成するためである。

粘度比が 1 の場合 [図 3(b)] のみ複数の均一な液滴へと分裂していることから、この場合は、伸長させた液滴がもとの球状に戻るまでの間に、界面張力波が十分成長する時間があると考えられる。すなわち、伸長させた液滴が均一な液滴へと分裂する場合とそうでない場合を決定するのは、液滴の収縮速度と界面張力波の成長速度との比であることが予想される。図 5 に、いくつかの異なる条件 ( $4.2 \times 10^{-3} < Oh_D < 4.2 \times 10^{-1}$ ,  $0.01 < \hat{\mu} < 10$ ) における液滴の収縮速度 ( $v_{tip}$ ) と界面張力波の成長速度 ( $v_\sigma$ ) との比を示す。 $v_{tip}$  は、特性速度  $\sqrt{\sigma/\rho_D(2a_0)}$  で無次元化した。また、 $v_\sigma$  は、無次元の成長速度  $Q$  を  $a_0$  で除した。すなわち、図 5 の縦軸の値は長さの次元を持ち、擾乱が成長し液滴の分裂に至るまでの時間に液滴の先端が移動する距離を表すと考えられる。図より、伸長させた液滴が均一な液滴へと分裂するか元の球状の液滴に戻るかどうかの閾値は約 20 で

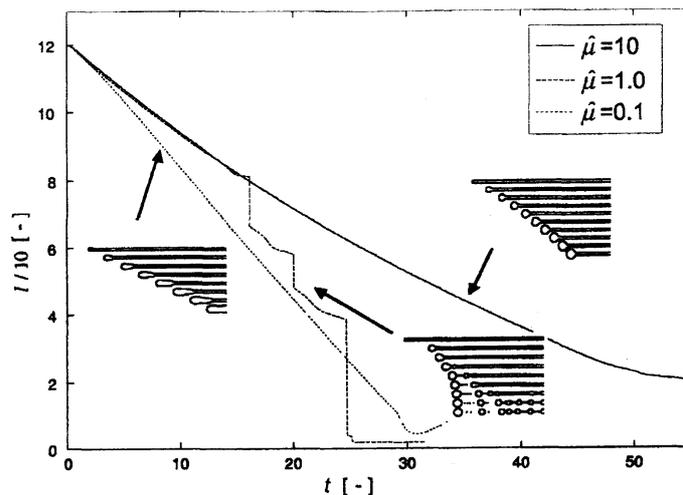


図 4: 液滴先端位置の時間変化

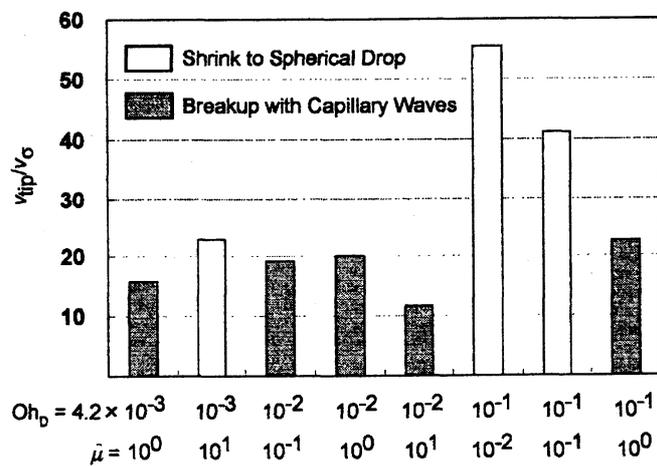


図 5: 界面張力波の成長速度に対する液滴の収縮速度

あり、この値は初期液柱のアスペクト比の2倍 ( $2 \times l_0/a_0 = 24$ ) の値に近く興味深い。現在、他のアスペクト比の試験結果で、閾値がアスペクト比とほぼ等しいかどうかを確認中である。

## Appendix

密度  $\rho_D$ 、粘度  $\mu_D$  の無限に長い液柱が、それとは混じり合わない別の流体 (密度:  $\rho_C$ 、粘度:  $\mu_C$ ) 中に存在し、それらが軸方向に遅い速度で運動している場合を考える (図 6)。支配方程式は、二次元軸対称の Navier-Stokes 方程式

$$\frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial r} + v \frac{\partial u}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial r} + \nu \left( \frac{\partial^2 u}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial u}{\partial r} - \frac{u}{r^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right), \quad (5)$$

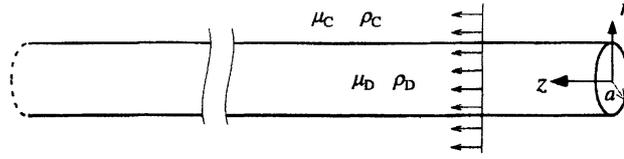


図 6: 液柱の初期形状

$$\frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial r} + v \frac{\partial v}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} + \nu \left( \frac{\partial^2 v}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial v}{\partial r} + \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right) \quad (6)$$

と連続の式

$$\frac{\partial u}{\partial r} + \frac{u}{r} + \frac{\partial v}{\partial z} = 0 \quad (7)$$

である。ここに、 $\nu$  は動粘性係数 ( $= \mu/\rho$ ) である。境界条件は、界面 ( $r = a$ ;  $a$ : 液柱の半径) における運動学的条件

$$u_D = u_C, \quad v_D = v_C, \quad (8)$$

および力学的条件

$$\mu_D \left( \frac{\partial u_D}{\partial z} + \frac{\partial v_D}{\partial r} \right) = \mu_C \left( \frac{\partial u_C}{\partial z} + \frac{\partial v_C}{\partial r} \right), \quad (9)$$

$$\Delta \left[ -p + 2\mu \left( \frac{\partial u}{\partial r} \right) \right]_{r=a} = \sigma \left( \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \quad (10)$$

である。ここに、 $R_1$  および  $R_2$  は、曲率半径で、 $\Delta[\ ]$  は、液柱と周りの流体との差を表す。

いま、連続の式 (7) を満足する流れ関数  $\psi$  を

$$u = \frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial z}, \quad v = -\frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r} \quad (11)$$

のように定義すると式 (6) は、

$$\left( D - \frac{1}{\nu} \frac{\partial}{\partial t} \right) D\psi = 0 \quad (12)$$

と変形できる。ここに  $D$  は微分演算子  $D \equiv \partial^2/\partial r^2 - (1/r)\partial/\partial r + \partial^2/\partial z^2$  である。ここで流れ関数  $\psi$  を  $\psi_1$  および  $\psi_2$  の二つに分け、それぞれ以下の方程式

$$D\psi_1 = 0, \quad \left( D - \frac{1}{\nu} \frac{\partial}{\partial t} \right) \psi_2 = 0 \quad (13)$$

を満たすとする。さらに、運動が  $z$  軸に対して周期的かつ時間に対して線形に変化するとし、

$$\psi_1 = \phi_1(r) \exp(ikz + \alpha t), \quad \psi_2 = \phi_2(r) \exp(ikz + \alpha t) \quad (14)$$

とおけば、式 (13) より、

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \phi_1}{dr^2} - \frac{1}{r} \frac{d\phi_1}{dr} - k^2 \phi_1 &= 0, \\ \frac{d^2 \phi_2}{dr^2} - \frac{1}{r} \frac{d\phi_2}{dr} - k_1^2 \phi_2 &= 0 \end{aligned} \quad (15)$$

が得られる。ここに、 $k_1^2 = k^2 + \alpha/\nu$  である。式 (15) の解は、

$$\begin{aligned}\phi_1 &= A_1 r I_1(kr) + B_1 r K_1(kr), \\ \phi_2 &= A_2 r I_1(k_1 r) + B_2 r K_1(k_1 r)\end{aligned}\quad (16)$$

と容易に求められる。ここに、 $A_1$ 、 $B_1$ 、 $A_2$ 、 $B_2$  は任意の定数である。よって、式 (12) の解は、

$$\begin{aligned}\psi &= \psi_1 + \psi_2 \\ &= [A_1 r I_1(kr) + B_1 r K_1(kr) + A_2 r I_1(k_1 r) + B_2 r K_1(k_1 r)] \exp(ikz + \alpha t)\end{aligned}\quad (17)$$

となる。

ここで、液柱の中心 ( $r = 0$ ) および無限遠点 ( $r = \infty$ ) を考慮すると、液柱内では  $r = 0$  で非有界な  $K_n$  を、周りの流体では  $r = \infty$  で非有界な  $I_n$  をそれぞれ解に含むことは適当でない。よって、

$$\begin{aligned}\psi_D &= \psi_{D,1} + \psi_{D,2} \\ &= [A_1 r I_1(kr) + A_2 r I_1(k_D r)] \exp(ikz + \alpha t),\end{aligned}\quad (18)$$

$$\begin{aligned}\psi_C &= \psi_{C,1} + \psi_{C,2} \\ &= [B_1 r K_1(kr) + B_2 r K_1(k_C r)] \exp(ikz + \alpha t).\end{aligned}\quad (19)$$

ここに、 $k_D = k^2 + \alpha/\nu_D$ 、 $k_C = k^2 + \alpha/\nu_C$  である。

次に、境界条件 (8)、(9)、(10) を式 (11) を用いて流れ関数で表し、式 (18) および (19) を代入すれば、

$$\begin{aligned}A_1 I_1(ka) + A_2 I_1(k_D a) - B_1 K_1(ka) - B_2 K_1(k_C a) &= 0, \\ A_1 ka I_0(ka) + A_2 k_D a I_0(k_D a) + B_1 ka K_0(ka) + B_2 k_C a K_0(k_C a) &= 0, \\ \frac{\mu_D}{\mu_C} [2A_1 k^2 I_1(ka) + A_2 (k^2 + k_D^2) I_1(k_D a)] - 2B_1 k^2 K_1(ka) - B_2 (k^2 + k_C^2) K_1(k_C a) &= 0, \\ A_1 F_1 + A_2 F_2 - B_1 F_3 - B_2 F_4 &= 0.\end{aligned}\quad (20)$$

ここに

$$\begin{aligned}F_1 &= 2 \frac{\mu_D}{\mu_C} k^2 \dot{I}_1(ka) - \frac{\alpha \rho_D}{\mu_C} I_0(ka) + \frac{\sigma(k^2 a^2 - 1)}{a^2} \frac{k}{\alpha \mu_C} I_1(ka), \\ F_2 &= 2 \frac{\mu_D}{\mu_C} k k_D \dot{I}_1(k_D a) + \frac{\sigma(k^2 a^2 - 1)}{a^2} \frac{k}{\alpha \mu_C} I_1(k_D a), \\ F_3 &= 2k^2 \dot{K}_1(ka) + \frac{\alpha \rho_C}{\mu_C} K_0(ka), \\ F_4 &= 2k k_C \dot{K}_1(k_C a)\end{aligned}\quad (21)$$

である。式 (20) は、 $A_1 \sim A_4$  に関する斉次連立一次方程式で、ゼロ以外の解を持つためには、その係数行列の行列式がゼロでなければならない。よって、式 (1) が導かれる。なお、関数  $F_1 \sim F_4$  は、本文中では無次元化された  $h_1 \sim h_4$  となっている。

## 参考文献

- [1] T. K. Das. Droplet formation with single and multiple nodes from a liquid jet in immiscible liquids. *Atomization Sprays*, 7:407–415, 1997.

- [2] S. Homma, J. Koga, S. Matsumoto, and G. Tryggvason. Formation of a jet and its breakup into drops in liquid-liquid systems. *Theor. Appl. Mech.*, 51:241–250, 2002.
- [3] Y. Kitamura, H. Mishima, and T. Takahashi. Stability of jets in liquid-liquid systems. *Can. J. Chem. Eng.*, 60:723–731, 1982.
- [4] B. J. Meister and G. F. Scheele. Drop formation from cylindrical jets in immiscible liquid systems. *AIChE J.*, 15(5):700–706, 1969.
- [5] H. A. Stone, B. J. Bentley, and L. G. Leal. An experimental study of transient effects in the breakup of viscous drops. *J. Fluid Mech.*, 173:131–158, 1986.
- [6] H. A. Stone and L. G. Leal. Relaxation and breakup of an initially extended drop in an otherwise quiescent fluid. *J. Fluid Mech.*, 198:399–427, 1989.
- [7] G. I. Taylor. The formation of emulsions in definable fields of flow. *Proc. Royal Soc. London A*, 146:501–523, 1934.
- [8] S. Tomotika. On the instability of a cylindrical thread of a viscous liquid surrounded by another viscous fluid. *Proc. Royal Soc. London A*, 150:322–337, 1935.
- [9] S. Tomotika. Breaking up of a drop of viscous liquid immersed in another viscous fluid. *Proc. Royal Soc. London A*, 153:302–318, 1936.
- [10] G. Tryggvason, B. Bunner, A. Esmaeeli, D. Juric, N. Al-Rawahi, W. Tauber, J. Han, S. Nas, and Y.J. Jan. A front-tracking method for the computations of multiphase flow. *J. Comput. Phys.*, 169:708–759, 2001.
- [11] S. O. Unverdi and G. Tryggvason. A front tracking method for viscous, incompressible, multi-fluid flows. *J. Comput. Phys.*, 100:25–37, 1992.
- [12] 本間俊司. 多流体中のジェットの分裂および液滴の生成. 京都大学数理解析研究所講究録, 1311:98–110, 2003.