

静電場中での液体ジェットの安定性

大阪大学 (Osaka Univ.) 吉永隆夫 (Takao Yoshinaga)

1 まえがき

近年、微小液滴や微細ファイバーを静電場中での流体ジェットを用いて形成する試みが注目されている [1]. エレクトロスプレーやエレクトロスピニングと呼ばれるこの技術は、ジェットノズル部とコレクター間に数キロボルトの高電圧をかけることにより、ジェット表面での静電圧力、コレクターからのクーロン力、表面張力や粘性力などのもとで起こる現象である. 電気流体力学 (EHD) [2] の分野において知られているこのような現象の理論的研究は、Rayleigh [3] による帯電した液滴の安定性解析において始まる. 彼は液滴表面に帯電した電荷による静電圧力が表面張力を超えると不安定になることを示した. 後に、Taylor [4] はこの液滴が変形に対してより不安定になることを示し、さらに静電圧により液体表面から噴出する円錐形状の液糸を解析的に調べ、その形状は Taylor コーンと名付けられている.

静電場のもとで、ノズルから噴出する流体ジェットの安定性に関する実験的研究は、Taylor [5] に始まるが、その後のより詳しい研究では、静電力が十分弱い場合ドリッピング (またはジェッティング) モードと呼ばれる落下液滴現象が現れるが、静電力が増すにつれてノズル近傍で Taylor コーンが出現し、微小な液滴もしくは微細な液糸が形成されるコーンジェットモードが現れる. 液滴の場合、表面での静電圧力により液滴は分裂しながらより小さな液滴になる. 一方、液糸の場合その径はより細く流速はより増加し、振れ回り不安定を伴いながコレクター部に到達する等示された [6]. 一方、このようなジェットの理論的な取り扱いにおいて、Leaky Dielectric モデル [7] の採用により比較的实验と合うことが確かめられた. しかし現在のところ、Taylor コーンから始まる空間的に非一様な定常ジェット [8, 9, 10] と一様なジェット上の空間周期的な攪乱の不安定によるジェットの崩壊 [11, 12] などが調べられているにすぎない. 特に、ドリッピングモードからコーンジェットモードへの移行に現れるような、有限長さジェットの非線形現象に関する理解は不十分である.

最近、Yoshinaga と Iwai [13] は外部静電場が一定の条件のもとで円柱ジェットの安定性と崩壊モードを調べた. 特に、ドリッピングモードからコーンジェットモードへの移行には、静電力比 Λ (静電力/流体慣性力) と電気ペクレ数 Pe (対流電流/電導電流) が重要な役割を果たすことを示し、各モードの存在領域をこれら二つのパラメータで表した. このような円柱ジェットの崩壊に対して、スリットノズル等で形成される平面ジェットにおいても静電場の影響により破断することが予想される. 事実、無限に長い周期的な 1 次元平面

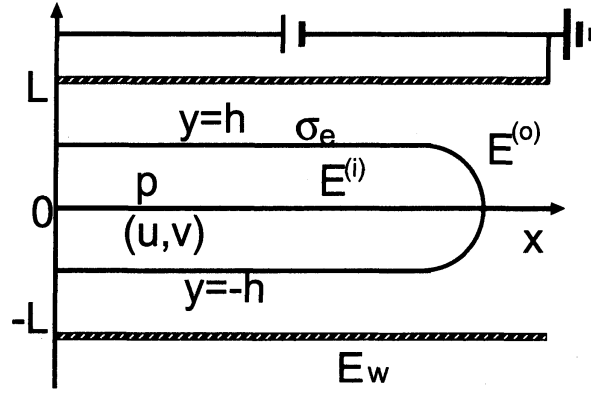


図 1: 外部電場のもとでの 2 次元平面液体ジェット

シートにおいて、長波攪乱に対して不安定であることが示されている [14]. そのため、有限長さの平面ジェットに対しても、同様な不安定現象が期待できる.

そこで本研究では、有限長さの平面液体ジェットが、シート両面で主流方向に平行にかけられた外部電場によりどのような安定性を示すか調べる. 特にシート形状が中央面に関して対称なモードに注目し、周囲流体を考慮しない 1 次元粘性平面ジェットを仮定する.

2 問題の定式化

図 1 に示すような、2 次元 (x, y) 座標系で、平面液体ジェットを考える. $y = \pm L$ にある電導性の平板にかけられた電位差のため、平板上には主流 x 方向に平行な電場 E_w が発生する. ジェット部分に関して、界面を $y = \pm h(x, t)$, ジェット内部の速度ベクトル $\mathbf{u} = (u, v)$, 電場 $\mathbf{E}^{(i)} = (E_x^{(i)}, E_y^{(i)})$, 粘性係数 μ , 密度 ρ , 比誘電率 $\epsilon^{(i)}$ とする. ジェット外部に対しては、比誘電率を $\epsilon^{(o)}$ とするが、周囲流体の運動は無視し、外部電場 $\mathbf{E}^{(o)} = (E_x^{(o)}, E_y^{(o)})$ の影響のみを考える. このとき、ジェット流体および周囲流体の電気電導性が低いため電場は非回転 ($\nabla \times \mathbf{E} = 0$) であり (EHD 近似), Leaky Dielectric モデルに従い電荷 σ_e はジェット表面上にのみ分布する. また、簡単のために、界面、電荷密度及び電場が $y = 0$ に関して対称である場合を考え、解析領域を $0 \leq y \leq L$ とする.

基礎方程式はシート (i) 内部 ($0 \leq y < h$) および (ii) 外部 ($h < y < L$) での流体と電場に対して以下ようになる:

(i) $0 \leq y < h$:

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad \rho(\partial \mathbf{u} / \partial t + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u}) = \nabla \cdot \mathbf{D}, \quad (1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E}^{(i)} = 0, \quad \nabla \times \mathbf{E}^{(i)} = 0, \quad (2)$$

(ii) $h < y < L$:

$$p = p_0, \quad \rho = 0, \quad (3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E}^{(o)} = 0, \quad \nabla \times \mathbf{E}^{(o)} = 0 \quad (4)$$

ここで, $D = -p\mathbf{I} + \mu(\nabla\mathbf{u} + (\nabla\mathbf{u})^t)$ は応力テンソルである. さらに, シート界面 ($y = h$) で表面電荷密度の保存より

$$(d/dt) \int \sigma_e dS + \int (\sigma_e \mathbf{u} + K\mathbf{E}) \cdot \mathbf{n} dS = 0, \quad (5)$$

ここで, dS は時空間で変形する界面の微小面積要素であり, 界面の外向き法線ベクトルを $\mathbf{n} = (-\partial h/\partial x, 1)/\sqrt{1 + (\partial h/\partial x)^2}$, 媒質の電気伝導率を K とする.

一方, シート界面 ($y = h$) での運動学的境界条件は

$$v = \partial h_{\pm}/\partial t + u\partial h_{\pm}/\partial x, \quad (6)$$

$$[\mathbf{E} \cdot \mathbf{t}]_{(i)}^{(o)} = 0, \quad [\epsilon \mathbf{E} \cdot \mathbf{n}]_{(i)}^{(o)} = \sigma_e, \quad (7)$$

力学的条件は

$$[\mathbf{n}D\mathbf{n} + \mathbf{n}T\mathbf{n}]_{(i)}^{(o)} = \gamma\kappa, \quad (8)$$

$$[\mathbf{t}D\mathbf{n} + \mathbf{t}T\mathbf{n}]_{(i)}^{(o)} = 0. \quad (9)$$

ここで, 界面での接線ベクトルを $\mathbf{t} = (1, \partial h/\partial x)/\sqrt{1 + (\partial h/\partial x)^2}$, 表面張力を γ , 曲率を $\kappa = -(\partial^2 h/\partial z^2)[1 + (\partial h/\partial z)^2]^{-3/2}$. 一方, マックスウェルの応力テンソルを $T = \epsilon(\mathbf{E}\mathbf{E} - (1/2)\mathbf{I}\mathbf{E} \cdot \mathbf{E})$ とし, $[\cdot]_{(i)}^{(o)} = (\cdot)_{(o)} - (\cdot)_{(i)}$ は界面横切って $(\cdot)$ の跳びを表わす. なお, 平板面 ($y = L$) で

$$E_x^{(o)} = E_w, \quad (10)$$

を課す.

3 長波近似と発展方程式の導出

3.1 長波近似

シート内部で, 従属変数 $\mathbf{u}$, p 及び $\mathbf{E}^{(i)}$ をシート厚み程度の y ($\sim b$) の偶数幂で展開する以下のような長波近似を導入する:

$$\begin{aligned} u(x, y, t) &= u_0(x, t) + y^2 u_2(x, t) + \cdots, \\ p(x, y, t) &= p_0(x, t) + y^2 p_2(x, t) + \cdots, \\ E_x^{(i)}(x, y, t) &= E_{x0}^{(i)} + y^2 E_{x2}^{(i)}(x, t) + \cdots, \end{aligned} \quad (11)$$

このとき, (1), (2) 式における連続の式より

$$v(x, y, t) = -y(\partial u_0/\partial x) + O(y^3), \quad E_y^{(i)}(x, y, t) = -y(\partial E_{x0}^{(i)}/\partial x) + O(y^3), \quad (12)$$

を得る。一方、シート外部では (4) 式により $\Delta\phi = 0$ を満たす静電ポテンシャル ϕ が存在する。この解として x 方向に緩やかに変化する関数 $a(x)$ を用いて

$$\phi = a(x)(y - L) + \phi_w, \quad (13)$$

と近似する。

$\mathbf{E}^{(o)} = -\nabla\phi$ であることに注意して、境界条件 (7) より $a(x)$ と $E_{x0}^{(i)}$ が決定され、 $h \sim L$ とする最低次の近似で、電場の成分は以下のように表わされる：

$$E_x^{(o)} = E_w + (\partial\sigma_e/\partial x)(y - L)/\epsilon^{(o)}, \quad E_y^{(o)} = \sigma_e/\epsilon^{(o)} + \beta E_w/\epsilon^{(o)}(\partial h/\partial x), \quad (14)$$

$$E_x^{(i)} = E_w + (h - L)/\epsilon^{(o)}(\partial\sigma_e/\partial x) + \sigma_e/\epsilon^{(o)}(\partial h/\partial x), \quad E_y^{(i)} = 0. \quad (15)$$

上式で、 $y = L$ で $E_x^{(o)} = E_w$ であるが $E_y^{(o)} \neq 0$ であることを注意しておく。

3.2 発展方程式

先に示された流体および電場の長波展開を流体、電場の基礎方程式及び境界条件に用い、厚みの最低次の近似で以下の無次元化された方程式系を得る：

$$\partial h/\partial t = -u\partial h/\partial x - h\partial u/\partial x, \quad (16)$$

$$\begin{aligned} \partial u/\partial t = & -u\partial u/\partial x - \text{Wb}^{-1}\partial\kappa/\partial x + 4\text{Re}^{-1} \left[\partial^2 u/\partial x^2 + (1/h)(\partial h/\partial x)(\partial u/\partial x) \right] \\ & + \Lambda \left[(\sigma_e^2/h)(\partial h/\partial x) + \sigma_e(\partial\sigma_e/\partial x)(2 - L/h) + \sigma_e E_w/h \right], \end{aligned} \quad (17)$$

$$\partial\sigma_e/\partial t = -\partial(u\sigma_e)/\partial x - E_w \text{Pe}^{-1}(\partial h/\partial x). \quad (18)$$

上式では、代表長さ h_0 、速度 U 、電場の強さ E_0 とし、以下の無次元数が導入されている： $\text{Wb} = \rho U^2 h_0 / \gamma$ (Weber 数), $\text{Re} = \rho U h_0 / \mu$ (Reynolds 数), $\Lambda = \sigma_e E_0 / (\rho U^2)$, $\text{Pe} = U \sigma_e / (K^{(i)} E_0 h_0)$ (電気 Peclet 数 [$\sim U \epsilon^{(o)} E_0 2\pi h_0 / (K E_0 \pi h_0^2)$]) が導入されている。

(16) 式は運動学的条件 (6) に (12) を用いて得られ、(17) 式は運動方程式 (1) に力学的条件 (8), (9) および電場 (15), (14) を用いて得る。さらに、表面電荷の式 (18) は (5) 式が

$$\partial\sigma_e/\partial t + \mathbf{u}_n \cdot \nabla_n \sigma_s + \nabla_s \cdot (\sigma_e \mathbf{u}_s) + \sigma_e (\mathbf{n} \cdot \mathbf{u}) \nabla_s \cdot \mathbf{n} = -[K \mathbf{E} \cdot \mathbf{n}]_{(i)}^{(o)}, \quad (19)$$

となることを用いている。ここで、 $\nabla_n = \mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \nabla)$, $\nabla_s = \nabla - \nabla_n$, $\mathbf{u}_n = \mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{u})$, $\mathbf{u}_s = \mathbf{t}(\mathbf{t} \cdot \mathbf{u})$ である。また、 $K^{(o)} \ll K^{(i)}$ を仮定している。

4 線形安定性

前述の方程式 (16), (17), (18) において定常解の安定性を調べるために、以下の攪乱を考える：

$$\begin{aligned} h &= \bar{h}(X) + \hat{h} \exp[i(k(X)x - \omega t)], \\ u &= \bar{u}(X) + \hat{u} \exp[i(k(X)x - \omega t)], \\ \sigma &= \bar{\sigma}(X) + \hat{\sigma} \exp[i(k(X)x - \omega t)]. \end{aligned} \quad (20)$$

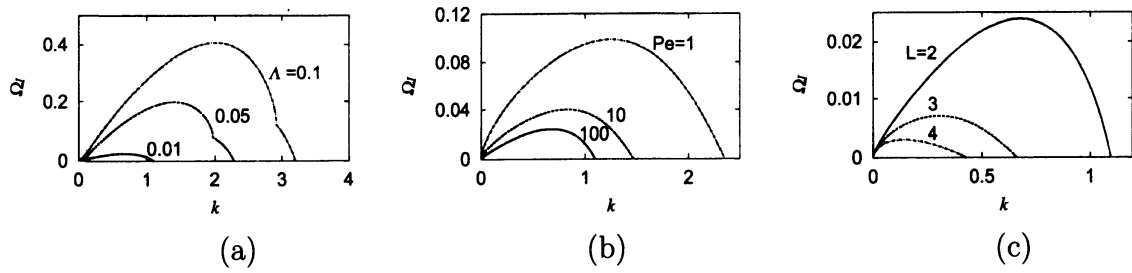


図 2: 実波数 k に対する時間増幅率の変化 ($Re = 100$, $Wb = 100$, $E_w = 1$): (a) $Pe = 100$, $L = 2$, $\Lambda = 0.1, 0.05, 0.01$, (b) $\Lambda = 0.01$, $L = 2$, $Pe = 1, 10, 100$, (c) $\Lambda = 0.01$, $Pe = 100$, $L = 2, 3, 4$.

ここで, x 軸方向電場によるジェット加速と半径の減少が緩やかであるとして, 緩やかに変化する空間スケール X ($\ll x$) が導入されている [15]. そのため, 波数 k も X の関数になり, $\partial/\partial X$ の大きさが $\partial/\partial x$ に比べて十分小さい. これらの攪乱を方程式に用いて微小振幅 $\hat{h}$, $\hat{u}$, $\hat{\sigma}$ に関して線形化して, 定常部分は

$$\begin{aligned} (\bar{u}\bar{h})' &= 0, \\ \bar{u}\bar{u}' &= \Lambda[(1/\bar{h})\bar{h}'\sigma_e^2 + \bar{\sigma}_e\bar{\sigma}_e'(2 - L/\bar{h}) + \bar{\sigma}_e E_w/\bar{h}], \\ (\bar{u}\bar{\sigma}_e)' &= -(E_w/Pe)\bar{h}', \end{aligned} \quad (21)$$

で表わされる. ここで, $' \equiv \partial/\partial X$. 一方, 非定常部分から, $\hat{h}$, $\hat{u}$, $\hat{\sigma}$ に関する連立方程式が自明でない解をもつための条件として, 以下の分散関係が得られる:

$$\begin{aligned} \Omega^3 + i4Re^{-1}k^2\Omega^2 + [\Lambda\bar{\sigma}_e^2k^2(3 - L/\bar{h}) - Wb^{-1}\bar{h}k^4]\Omega \\ + E_wPe^{-1}\Lambda\bar{\sigma}_ek^3(2\bar{h} - L) - iE_w^2Pe^{-1}\Lambda k^2 = 0. \end{aligned} \quad (22)$$

ここで, $\Omega \equiv \omega - k\bar{u}$ である. 以下では簡単のために時間安定性を考える. (21) 式の定常解 $\bar{h}$, $\bar{u}$, $\bar{\sigma}_e$ に対して, (22) 式の Ω の虚数部 Ω_I が正となる実波数 k の領域が攪乱の不安定領域である. 例として, $Re = 100$, $Wb = 100$, $E_w = 1$ の場合 $x = 0$ ($\bar{h} = \bar{u} = \bar{\sigma}_e = 1$) での安定曲線を図 2 に示す. $\Lambda = 0.01$, $Pe = 100$, $L = 2$ を基本パラメータとして, 図 (a), (b) からわかるように, Λ の増加と Pe の減少により, 最大増幅率は増加しそれを与える波数および不安定波数領域も増加する. このことは, 静電力の増加と電気伝導率の減少が不安定性をより増加させることを示している. 一方, 図 (c) からわかるように壁までの距離 L が減少するほどジェットの不安定性は増加する.

5 数値解析結果

得られた発展方程式 (16), (17), (18) において, 以下の初期値境界値に対してノズルから噴出するジェットの様子を調べる: $t = 0: h(x, 0) = \sqrt{1 - x^2}$ ($0 \leq x \leq 1$), $x = 0: h(0, t) = 1$, $u(0, t) = 1$, $\sigma_e(0, t) = 1$

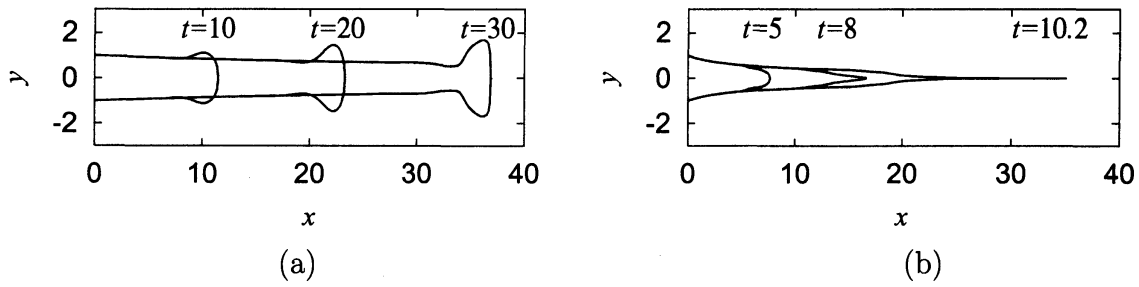


図 3: 異なる Λ に対するシート形状の時間発展 ($Re = 100, Wb = 100, Pe = 100, E_w = 2, L = 2$); (a) $\Lambda = 0.01$, (b) $\Lambda = 0.1$.

計算方法は、 $\partial A/\partial t + u\partial A/\partial x = B$ の形で与えられている方程式に対して Time Sprit 法を用いて解く、すなわち、各時間ステップごとに $\partial A/\partial t + u\partial A/\partial z = 0$ を CIP 法 [16] を用い、得られた解より得られる新たな A^*, B^* を用いて、 $\partial A^*/\partial t = B^*$ をオイラー法を用いて解く。

空間、時間刻みを $\Delta x = 0.1, \Delta t = 0.0001$ とし、基本パラメータを $Wb = 100, Re = 100, Pe = 100, E_w = 2, L = 2$ と選び、異なる Λ に対する形状の時間発展を調べる。すべての計算結果において、体積誤差 1.5 % 以内の精度が保たれている。図 3 にジェット形状の時間発展を示。 (a) 図は $\Lambda = 0.01$ の場合を示しており、静電力に比べて表面張力の効果が大きい場合を示している。表面張力は先端部で内向きに働くため、時間の経過と共に先端部が膨らんでいくが、円柱ジェットのように厚み（半径）方向の表面張力でピンチングを起こして破断することはない。一方、(b) 図は $\Lambda = 0.1$ の静電力が表面張力に比べて大きくなった場合を示している。シート接線方向に働く張力のためジェットは次第に加速し、流量保存のため薄くなっていく。その結果、十分薄い液体シートが形成されることが予想される。

6 結論

以上得られた結果をまとめる。長波近似を用いて静電場中での平面ジェット (対称モード) の発展方程式を導出した。安定性解析の結果、定常流上にある攪乱は Λ の増加、 Pe の減少、 L の減少により時間的により強く不安定化されることがわかった。一方、ジェットの初期境界値問題を解いて得られたジェット形状の時間発展から、 Λ が小さい場合表面張力が支配的になり、先端部が膨れながら破断することなく流れていくことがわかった。しかし、 Λ が大きくなると、静電力が支配的になるため、下流に向かい加速しながらシート厚みは薄くなっていくことがわかった。平面ジェットは円柱ジェットのようにピンチングが起こらず表面張力は安定化するだけである。したがって少なくとも線形の範囲内では周囲流体による不安定性がなければ破断は起こらない。しかし、主流方向の電場の強さが十分強ければ下流で十分薄いシートが形成されることが予想される。

謝辞

本研究は科研費 (No.24560194) の助成を受けたものである。ここに感謝の意を表する。

参考文献

- [1] Li, D. and Xia, Y.: 'Electrospinning of Nanofibers', *Advanced Materials*, 16 (2004) pp.1151-1170.
- [2] Castellanos, A. *Electrohydrodynamics* (CISM 380, ed. Castellanos.A, Springer, 1998).
- [3] Lord Rayleigh, 'On the equilibrium of liquid conducting masses charged with electricity', *Phil. Mag.* 14 (1882) 184-186
- [4] Taylor, G.I. , 'Disintegration of water drops in an electric field', *Proc. Royal Soc. A*.280 (1964) 383-397.
- [5] Taylor, G.I., 'Electrically driven jet ', *Proc, Royal Soc. A*313 (1969) 453-475.
- [6] Cloupeau, M. and Prunet-Foch, B., 'Electrohydrodynamic spraying functioning modes: critical review', *J. Aerosol Sci.* 25 (1994) 453-475, 及び引用文献参照.
- [7] Melcher, J.R. and Taylor, G.I., 'Electrohydrodynamics: A review of the note of interfacial shear stresses ', *Annu. Rev. Fluid Mech.* 1 (1969) 111-146.
- [8] Melcher, J.R. and Warren, E.P., 'Electrohydrodynamics of a current -carrying semi-insulating jet', *L.Fluid Mech.*, 47 (1971) 127-143.
- [9] Ganan-Calvo, A.M., 'On the theory of electrohydrodynamically driven capillary jets', *J.Fluid Mech.*, 335 (1997) 165-188.
- [10] Higuera, F.J., 'Electric current of an electrified jet issuing from a long metallic tube', *J.Fluid. Mech.* 675 (2011) 596-606.
- [11] Lopez-Herrera, J.M., Ganan-Calvo, A.M. and Perez-Saborid, M., 'One-dimensional simulation of the breakup of capillary jets of conducting liquids', *J.Aerosol Sci.*, 30 (1999) 895-912.
- [12] Hohman, M.M., Dhin, M., Rutledge, G. and Brenner, M.P., 'Electrospinning and electrically forced jets. I. Stability theory', *Phys, Fluid.*, 13 (2001) 2201-2220.
- [13] Yoshinaga, T. and Iwai, T., 'Breakup of a liquid column jet in a static electric field', *Theoretical and Applied Mechanics Japan*, 62 (2014) in press.

- [14] Ozen, O., Papageorgiou, D.T., Peteropoulos, P.G., 'Nonlinear stability of a charged electrified viscous liquid film under the action of a horizontal electric field.', *Phys. Fluids*, 18 (2006) 042102.
- [15] Jeffrey.A and Kawahara.T *Asymptotic methods in nonlinear wave theory* (Pitman, 1989).
- [16] Yabe,T. and Aoki,T., 'A numerical solver for hyperbolic equations by cubic-polynomial interpolation', *Comput, Phys. Commun.*, 66 (1991) 219-232.