

## 種々の液滴の落下中の形について (2)\*

岩井 邦中\*\* 近藤 一彦\*\*\*

### 要 旨

前回(岩井・小山, 1975)の報告で, 一価のアルコール類の落下中の液滴の形が特異になることを示した。今回はその原因を究明するために, 種々の濃度のエチルアルコール水溶液の液滴の落下中の形を実験的に調べた。

その結果, エチルアルコールの重量比が20パーセントをこえると, アルコールの濃度に余りよらないで, 落下中の形は, エチルアルコール液滴の形に類似することがわかった。また四塩化炭素にエチルアルコールを加えた溶液の液滴の落下中の形は四塩化炭素液滴のそれと著しく異なることがわかった。これらの事実と界面化学で得られている知識を考え合わせると, 一価のアルコール類の落下中の液滴が特異な形になるのは, 液滴表面での, アルコール分子の配向構造によるものと推定した。

### 1. ま え が き

表面張力, 密度等の異なる比較的大きな, 種々の液滴の落下中の形について, 岩井・小山(1975)は実験的に調べた。その結果, エチルアルコール等一価のアルコール類以外の液滴の落下中の形は, 表面張力・密度・大きさ・落下速度等によって大体きまり, 次の様な無次元数

$$\frac{1/2\rho_a V^2 + 2\rho_L g a_0}{2\sigma/a_0}$$

ここで  $\rho_a$ : 空気密度  $V$ : 落下速度

$\rho_L$ : 液滴の密度  $g$ : 重力の加速度

$a_0$ : 相当半径  $\sigma$ : 表面張力

をとると, 扁平の度合いを表わす  $a/b$  ( $2a$  は液滴の高さ,  $2b$  は水平方向の最大直径) がほぼ定まることを示した。しかしエチルアルコール等の液滴においては, 他の液滴と同じ方式で上記の無次元数をとると, 実測される  $a/b$  が大きい領域にずれることを示した。また一価のアルコール類の液滴の落下中の形の特徴は, 底面から側面にかけてのわん曲が鋭くなっていることであった。

Ryan (1972) は表面活性剤により表面張力を減少させた水滴を垂直風洞内に浮遊させ, その形, 落下速度を

調べたところ, その形, 落下速度が著しく変わることを見出した。すなわち, 短軸方向の長さと同軸方向の長さの比が大きくなり, 落下速度が減少することを見出している。しかし, その論文では, どのような表面活性剤を用いたかは述べていないし, 形が変化する原因についても触れていない。田中(1970)によると, ソ連では, 表面活性剤を用いた水溶液の液滴の成長や分裂を考慮に入れて, 雲や霧の人工変換の可能性についての理論的, 実験的検討が行われているとのことである。

本論文の目的は, エチルアルコール液滴の落下中の形が特異になる原因を究明することである。そのために, 種々の濃度でのアルコール水溶液の液滴の落下中の形を実験的に調べた。その他, イソプロピルアルコール,  $n$ -ブチルアルコール, 酢酸, エチルエーテル, 四塩化炭素とエチルアルコールの溶液の液滴の落下中の形も調べた。

なお, 落下中の液滴の写真撮影装置, 方法等は岩井・小山(1975)が報告したのと同じであるので, ここでは省略する。

### 2. 結 果

#### a) 液滴の落下中の形

エチルアルコール水溶液の液滴の落下中の形について, 便宜上, 大粒と小粒に分けて示す。種々の濃度でのエチルアルコール水溶液の大粒の液滴の落下中の代表的写真を第1図に示す。 $a_0$  は相当半径をミリメートルで表わし,  $x$  はアルコールの濃度を, 水溶液に対するアル

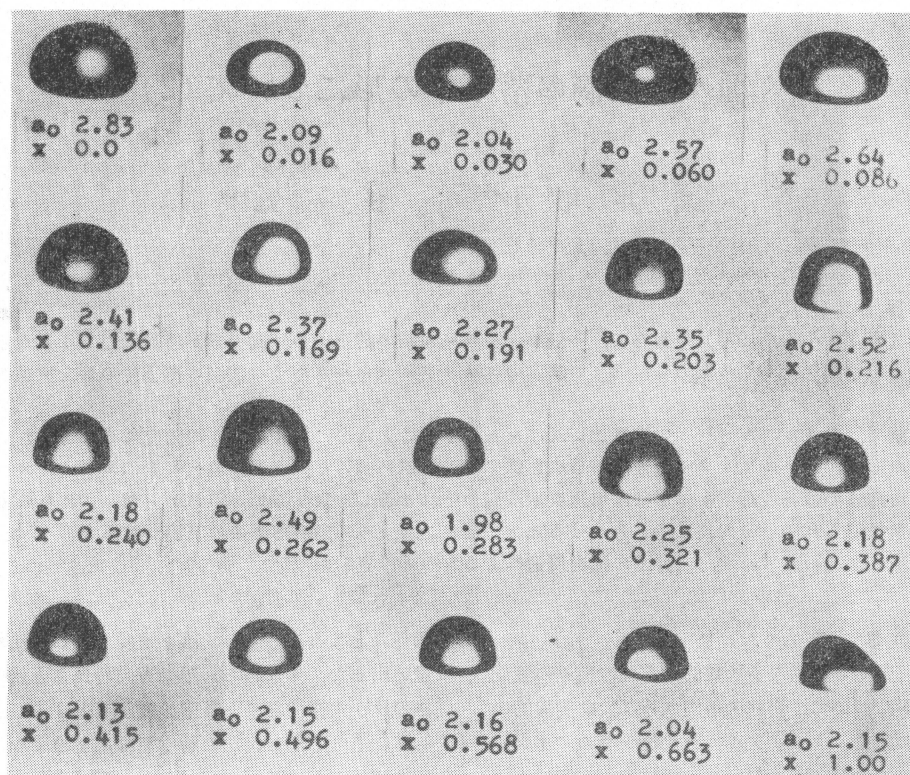
\* On the Shape of Falling Drops of Various Liquids —Part II—

\*\* K. Iwai, 信州大学教育学部地学教室

\*\*\* K. Kondo, 現在長野県下伊那郡智里西小学校

——1976年4月23日受領——

——1976年6月7日受理——



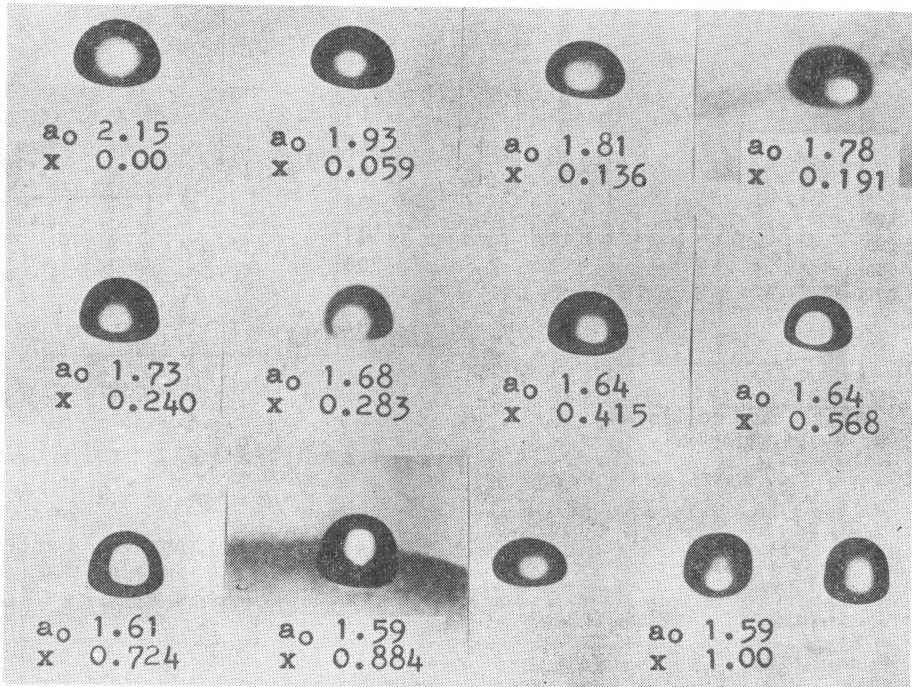
第1図 種々の濃度におけるアルコール水溶液の大粒の落下中の代表的写真。  $a_0$  は相当半径を mm として示している。  $x$  はアルコールの濃度を重量比で示す (100 倍すれば重量百分率である)。

コールの重量比で表わしている。写真からわかる様に、重量比が 0.15~0.20 以下の液滴の形は水滴に近い形をしているが、0.2 をこえると、濃度に余りよらないで、底面から側面にかけてのわん曲が鋭くなり、岩井・小山が示したアルコール液滴の落下中の形の特徴を持つようになる。第2図に小粒の落下中の代表的写真を示す。この場合は、大粒ほど明瞭ではないが、重量比が 0.2 をこえると、底面から側面にかけてのわん曲が鋭くなることがわかる。小粒のアルコール液滴 ( $x=1.00$ ) の落下中の写真を3枚示しているが、今回の実験では、3つのうちの最も左に示している様に、かなり扁平になっており、底面から側面にかけてのわん曲が鋭くないのも見られたが、右に示す様に  $a/b$  が大きく、これまで述べたアルコール液滴の特徴を示すものの方が多く見られた。

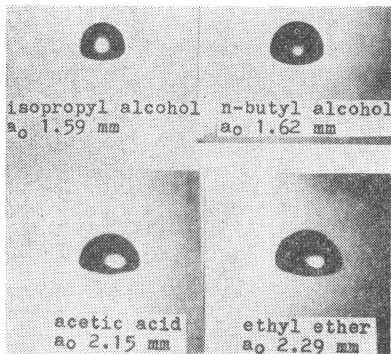
第3図に、イソプロピルアルコール、*n*-ブチルアルコール、酢酸、エチルエーテル液滴の落下中の代表的写真を示す。イソプロピルと *n*-ブチルアルコールの場合、岩井・小山が報告した液滴より、小粒になってい

るので、 $a/b$  はそれらより大きくなっており、エチルアルコールと同様の特徴をもっている。またエチルアルコールよりも粘性率が大きいので落下中の液滴の振動の振幅は小さく、比較的安定している。酢酸はアルコール類と同様、表面活性物質として知られており、写真からわかる様に、かなり扁平になっているが底面から側面にかけてのわん曲が鋭くなっている。エチルエーテルは、表面張力が小さく (15.8 dyne/cm) 落下中の液滴の上部に波立つように凹凸になっている。しかしアルコールや酢酸のように、底面から側面にかけてのわん曲はそれ程鋭くない。

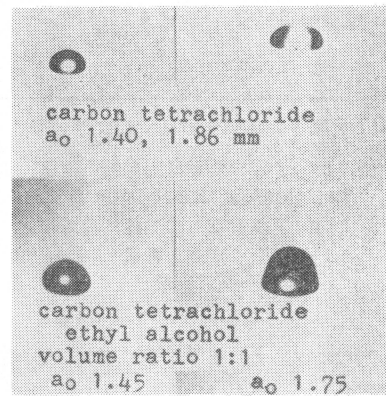
第4図の上段には、岩井・小山による四塩化炭素液滴の落下中の写真を再録する。四塩化炭素は表面張力が比較的小さく、密度が大きいので落下中の液滴は写真に示す様に非常に扁平になっている。第4図の下段に四塩化炭素に同容量のエチルアルコールを加えた溶液の液滴の代表的写真を示す。写真から明らかな様に、エチルアルコールを加えた液滴の方一特に大粒一では  $a/b$  が大き



第2図 種々の濃度におけるアルコール水溶液の小粒の落下中の代表的写真,  $a_o$  と  $x$  は第1図と同じ.



第3図 イソプロピルアルコール, n-ブチルアルコール, 酢酸, エチルエーテル液滴の落下中の代表的写真.



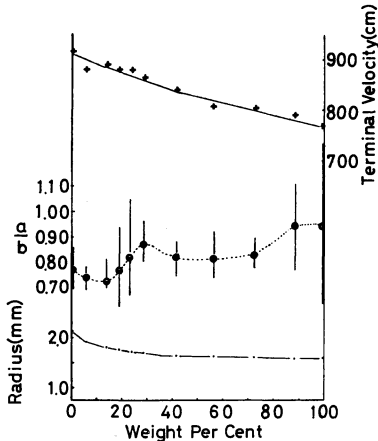
第4図 上段は四塩化炭素液滴のみの落下中の写真である. 下段は四塩化炭素に同容量のアルコールを加えた溶液滴の落下中の代表的写真である.

くなり, 底面から側面にかけてのわん曲が鋭くなってエチルアルコール液滴の落下中の形のように特異な形になっていることがわかる.

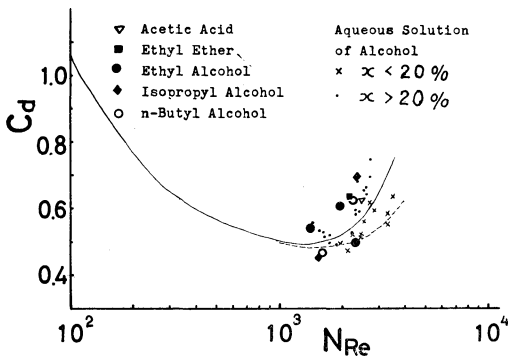
b) 落下速度, 偏平の度合い  $a/b$

アルコール水溶液の小粒について, 落下速度,  $a/b$  と半径をアルコールの重量百分率の関数として表わしたものを第5図に示す. アルコールの濃度の増加につれて溶

液の表面張力が減少していくので (第8図参照), 液滴を落とすビューレットの口の変えないならば, 表面張力の減少 (濃度の増加) につれて, 液滴の大きさは漸次, 減少してゆく. また密度も減少してゆくので, 重量



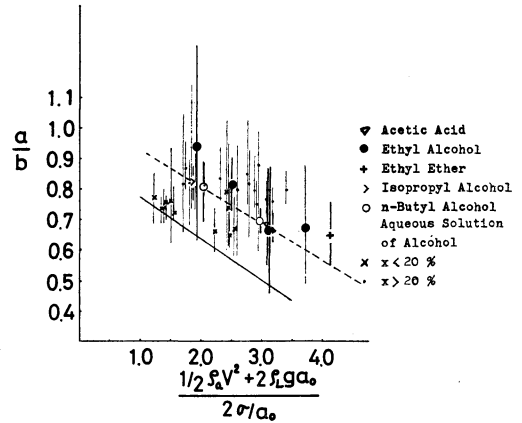
第5図 アルコール水溶液の小粒の相当半径,  $a/b$ , 落下速度とアルコールの重量百分率の関係。



第7図 レイノルズ数と抵抗係数の関係。実線は Gunn と Kinzer (1949) による水滴の関係を示し、破線は付録に述べている水滴の変形を考慮して Gunn と Kinzer の関係を補正したものである。

百分率の増加に従って、落下速度が減少しているのは、大きさ（質量）の違いだけによる結果であるのか、それに加えて、濃度によっても落下速度が変化するかはこの図からはわからない。この点については、抵抗係数とからめて後で論ずる。

偏平の度合いを表わす  $a/b$  はアルコール濃度の増加につれて複雑に変化しているが次の点を読みとれる。重量百分率が0から20パーセントの近くまでの範囲では、 $a/b$  はわずかに減少しているが、20から30パーセントの範囲で増加し、その後はほぼ一定か、わずかに増加している。



第6図 種々の液滴の偏平の度合いを表わす

$a/b$  と無次元数  $\frac{1/2 \rho_a V^2 + 2 \rho_L g a_0}{2 \sigma / a_0}$  と

の関係。実線は岩井・小山 (1975) によって見いだされた、アルコール類以外の液滴の関係を示す。

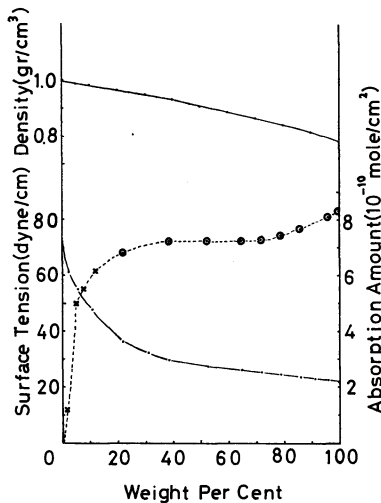
第6図にまえがきで述べた無次元数

$$\frac{1/2 \rho_a V^2 + 2 \rho_L g a_0}{2 \sigma / a_0}$$

$a/b$  の関係を示す。図の各点は約30個の平均値であり、縦棒は  $a/b$  の最大値と最小値の範囲を示している。ななめの実線は、岩井・小山がベンゼン、四塩化炭素等の液滴で見出した関係を示している。図からわかる様に、アルコール類、アルコール水溶液、酢酸、エーテルの液滴の  $a/b$  はすべて実線より上側にある。水溶液については、重量百分率が20パーセント以下と以上の場合にわけて表わしている。いくつかをのぞいて、一般的に重量百分率が20パーセント以上の液滴の  $a/b$  は20パーセント以下の液滴のそれに比べて大きい。図の破線は、前回と今回のイソプロピール、n-ブチルアルコールの実験値を結んだものであるが、これを境にして、上側に20パーセント以上の液滴、下側に20パーセント以下の液滴が位置している。

c) レイノルズ数と抵抗係数

第7図にエチルアルコール水溶液、アルコール類等の液滴の落下中のレイノルズ数と抵抗係数の関係を示す。実線は Gunn と Kinzer (1949) による水滴のものであるが、前回指摘した様に、レイノルズ数と抵抗係数の計算にあたって、水滴の変形を考慮していない。破線は、付録に示すように、水滴の変形を考慮して Gunn と Kinzer のレイノルズ数と抵抗係数の関係を補正したも



第8図 アルコール水溶液の種々の濃度(重量百分率)での表面張力(下図実線), アルコール分子の表面吸着量(破線), 慶伊による)密度(上図実線)を示す。

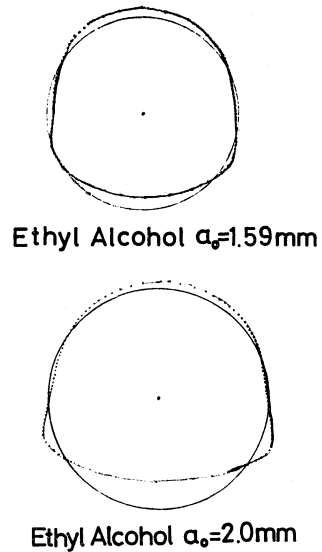
のである。レイノルズ数が1000以下の場合には、変形が小さく、両者に差はほとんど見られないが、1000をこえると、かなりの差が生じる。

アルコール水溶液の場合、重量百分率が20パーセント以下の液滴は大部分、実線と破線の間にあるが、20パーセント以上の液滴は、実線より上側にある。すなわち同じレイノルズ数なら、重量百分率が20パーセント以上の液滴の抵抗係数は20パーセント以下の液滴のそれよりも大きい。酢酸とエチルエーテルの抵抗係数も大きくなっているが、本実験のエチル、イソプロピール、*n*-ブチルアルコール液滴の抵抗係数が小さくなっている。エチルアルコールの場合、第1図に示している様に、形がかなり歪んでおり、水平方向の最大直径のとり方に誤差があるように思える。

### 3. 考 察

アルコール水溶液の液滴において、重量百分率が20パーセントを境にして、それより大きい場合と小さい場合により、落下中の形、扁平の度合いを表わす $a/b$ や抵抗係数等に違いが生じていることを示した。

液滴の落下中の形を決める因子として、McDonald (1954)は表面張力、液滴のまわりの空気力学的な圧力分布、水滴内の静水圧等をあげている。岩井・小山(1975)は、密度が同程度の液滴の場合は、表面張力が小さい程度扁平になり、表面張力が同程度の場合は、密度が大きい



第9図 エチルアルコール液滴の落下中の形の鉛直断面図。中心の点は液滴の質量中心を示す。

程度扁平になることを示した。アルコール水溶液の場合、第8図に示すように、アルコールの重量百分率の増加につれて、密度は漸次減少するのに対し、表面張力は、重量百分率が0から20パーセントまでの範囲で急減し、その値は約半分になっている。小粒のアルコール水溶液の $a/b$ が重量百分率が20パーセントまでの範囲で減少しているのは、表面張力が減少することにより、落下中の液滴がつぶれやすくなるとして説明できる。しかし20パーセントより濃度の高いところで $a/b$ が大きくなっているのは、密度の減少や表面張力の減少では説明できない。

$a/b$ の大きいアルコールおよびアルコール水溶液の液滴の形は、第1図や第2図に示した写真からはわかりにくい、第9図に示す様に球形に近い\*。

このことは、アルコール類の液滴の変形については、表面張力や密度、液滴のまわりの空気力学的な圧力分布等の巨視的な因子だけでは説明できないうと、液滴を扁平にしようとする力に抵抗して、球形に近い形を保とうとする何らかの因子があることを意味している。

第4図に示した様に、四塩化炭素にエチルアルコール

\* 別の論文で発表する予定であるが、液滴の落下中の形を Fourier の余弦級数で表わすと、アルコール液滴の落下中の形は波数1の振幅(すなわち球形の重心移動に近い形)が卓越していたことからわかる。

を加えた液滴の形は、四塩化炭素のみの液滴の落下中の形とは、著しく異なっている。このことは、表面張力や密度の違いだけでは説明できないでアルコールを加えたことが落下中の形に影響をおよぼしていることを示唆している。酢酸の液滴も落下中の形は底面から側面にかけてのわん曲が鋭くなっており、岩井・小山による他の液滴の形とは違い、アルコール液滴の形に近い。一方、エチルエーテルの分子式はブチルアルコールと同じであるが構造が異なるため、化学的性質が違えば同じ様に落下中の形もアルコール類とは異なり、底面から側面にかけてのわん曲はそれ程鋭くない。

アルコール類や脂肪酸は界面活性物質として知られており、それらの水溶液の気液界面には、溶質が液体内部より多く存在することが知られている。すなわち、気液界面には、アルコール類や脂肪酸が吸着されている。第8図の破線で示した曲線は、慶伊 (1965) の著書より引用したエチルアルコール水溶液の気液界面における吸着量をアルコールの重量百分率の関数として表わしたものである (慶伊の著書では横軸はモル分率であるがここでは重量百分率に換算している)。図中の×印は内挿値である。図からわかるように、重量百分率が20パーセントまでの範囲で、気液界面の吸着量は急増し、20パーセントをこえると吸着量はわずかに増加するだけで、ほぼ飽和量に達している。いい方をかえれば、重量百分率が20パーセントをこえているアルコール水溶液の気液界面は、水を含んでいないアルコールそのものの表面と同じ程度のアルコール分子によって占められていることを意味している。また界面における分子の向きは、疎水基である  $\text{CH}_3$  を界面に出し、親水基である  $\text{OH}$  を液体内部に向けて、マッチの軸を束ねたように配列していると考えられている (例えばラングミュア、界面化学)。アルコールの重量百分率が20パーセントをこえる液滴の落下中の形が濃度に余りよらないで、アルコール液滴そのものの形に類似することは、液滴の表面がアルコール分子によって大部分占められているとして説明ができる。また表面張力が小さいにもかかわらず、その  $a/b$  が大きいのは、アルコール分子が表面に垂直に配向していることにより、扁平にさせようとする力 (空気力学的な力や内部の静水圧) に抵抗して、球形に近い形を保とうとするためであろう。これと同様な現象と考えられるものに液体内部を上昇する微小な気泡がある。この気泡の抵抗は理論的に期待される値より大きく、レイノルズ数が非常に小さい剛体球の抵抗として知られているストーク

スの抵抗則に近いことが知られている。これは、液体内部に存在する何らかの表面活性物質が泡の表面で大きな分子の網を形成し、部分的に剛体であるかのようにふるまうためであると考えられている (Batchelor, 1967)。

なお第6図に示した無次元数の中の表面張力の値は静的表面張力を使った。その理由は次の通りである。

ビューレットの中にあるアルコール水溶液の場合、気液界面はないので、アルコールは一樣に混じりあっていると考えられるが、ビューレットの口から液滴が出て、新しく表面をつくるとき、その表面へアルコール分子が吸着して、平衡に達するまでに少し時間がかかり、その間、表面張力は刻々と変化していることが知られている。この様に変化しつつある表面張力を動的表面張力とよんでいる。エチルアルコール水溶液の場合、平衡に達するまでの時間がどれぐらいであるのかわからないが、一般に低級のアルコールではきわめて速く平衡に達すると言われているので、ビューレットの口のところで液滴ができ、ちぎれて落下するまでの2〜3秒の間には平衡に達していると考えられる。したがって静的表面張力を使ってもいいであろう。

#### 4. まとめと結論

1 価のアルコール類の液滴の落下中の形にみられる特異性の原因を究明するために、主にエチルアルコール水溶液の濃度を変えてその落下中の形を実験的に調べた。

その結果をまとめると、

(1) 液滴の扁平の度合いを表わす  $a/b$  は、アルコールの重量百分率が0から20パーセントの範囲で減少し、20パーセントをこえると増加し、30パーセント以上では濃度に余りよらないではほぼ一定となる。

(2) アルコールの重量百分率が20パーセントをこえると、液滴の底面から側面にかけてのわん曲が鋭くなり、アルコール液滴のそれに類似する。酢酸の落下中の形も同様に底面から側面にかけてのわん曲が鋭くなっている。しかしエーテルではそれ程鋭くない。

(3) 四塩化炭素に同容量のエチルアルコールを加えた溶液の落下中の形は、四塩化炭素の液滴の形とは著しく異なり、 $a/b$  は増加し、底面から側面にかけてのわん曲が鋭くなり、アルコール液滴の形に類似する。

以上の事実と界面化学で得られている知識を考え合わせると、アルコール液滴の落下中の形が特異になる要因として、表面張力や、密度、落下速度等の巨視的な因子だけでなく液滴表面における、アルコール分子の配向構造が重要であると結論できる。

## 文 献

Batchelor, G.K., 1967: An introduction to fluid dynamics, Cambridge University Press, 236-237.  
Gunn, R. and G.D. Kinzer, 1949: The terminal velocity of fall for water drops in stagnant air, J. Met., 6, 243-248.

岩井邦中, 小山隆文, 1975: 種々の液滴の落下中の形について, 天気22, 245-251.

慶伊富長, 1965: 吸着, 共立出版, 138-139.

ラングミュア, I, 1975: 界面化学 (化学原典 7), 日本化学会編, 東京大学出版会, 155.

McDonald, J.E., 1954: The shape and aerodynamics of large raindrops, J. Met., 11, 478-494.

Pruppacher, H.R. and K.V. Beard, 1970: A wind tunnel investigation of the internal circulation and shape of water drops falling at terminal velocity in air, Q.J. Roy. Met. Soc., 96, 247-256.

Ryan, R.Y., 1972: The shape and terminal velocity of low surface tension water drops, Abstract of Intern. Cloud Phys. Conf. held at London, 170-171.

田中豊顕, 1970: ソ連における雲物理の研究状況, 天気, 17, 526-538.

## 付 録

Gunn と Kinzer (1949) による落下中の水滴のレイノルズ数と抵抗係数は水滴の変形を考慮していないで, 代表的大きさおよび, 水平方向の断面積としてそれぞれ  $2a_0$ ,  $\pi a_0^2$  で計算している. ここで  $a_0$  は相当半径である.

落下中の水滴の水平方向の最大直径  $2b$  は扁平になっていることにより, 相当直径  $2a_0$  より少し大きくなっている. 我々が測定する雨滴の粒度は, 相当直径でとっている. 気象用のレーダで雨を観測する場合, 特に真上を見る場合には, レーダの反射強度は大きさの 6 乗に比例するので, 雨量強度と反射強度の関係を調べるとき, 雨滴の大きさを  $a_0$  でとるか  $b$  でとるかによって, か

なりの誤差が生じるはずである. そのためには,  $a_0$  と  $b$  の関係を知っておく必要があるし, またレイノルズ数や抵抗係数の計算は  $a_0$  より  $b$  をとる方が合理的であると考えられるので, その点を簡単に述べる.

Pruppacher と Beard (1970) によると, 落下中の扁平の度合を表わす  $a/b$  は次の式で与えられる.

$$\frac{a}{b} = 1.030 - 1.24a_0 \text{ (但し } a_0 \text{ は cm でとる)} \quad (1)$$

岩井・小山 (1975) および本観測においても, 再度確認したが  $a/b$  は次の式で表わせる.

$$\frac{a}{b} = 2.65 \frac{a_0}{b} - 1.65 \quad (2)$$

(1) 式と (2) 式から  $\sigma$  を消去して  $b$  を  $a_0$  で表わすと,

$$b = \frac{2.65a_0}{2.68 - 1.24a_0} \quad (3)$$

代表的大きさとして  $2a_0$  ではなく  $2b$  を用いるとレイノルズ数 ( $N_{Re}$ ) は,

$$\begin{aligned} N_{Re} &= \frac{2bV}{\nu} = \frac{2Va_0}{\nu} \left( \frac{2.65}{2.68 - 1.24a_0} \right) \\ &= \left( \frac{2.65}{2.68 - 1.24a_0} \right) N_{Re}' \end{aligned} \quad (4)$$

ここに  $\nu$  は空気動粘性率,  $V$  は落下速度,  $N_{Re}'$  は Gunn と Kinzer によるレイノルズ数,

また抵抗係数  $C_d$  は,

$$\begin{aligned} C_d &= \frac{8\rho_L g}{3\rho_a V^2} \left( \frac{2.68 - 1.24a_0}{2.65} \right)^2 \cdot a_0 \\ &= \left( \frac{2.68 - 1.24a_0}{2.65} \right)^2 \cdot C_d' \end{aligned} \quad (5)$$

ここで  $\rho_a$ ,  $\rho_L$ ,  $g$ ,  $C_d'$  はそれぞれ空気密度, 水の密度, 重力の加速度および Gunn と Kinzer による抵抗係数である. すなわち, (4) 式と (5) 式のかっこ内の値は水滴の変形を考慮した場合の Gunn と Kinzer のレイノルズ数と抵抗係数の補正項である. この補正をした水滴のレイノルズ数と抵抗係数の関係を第 7 図に示す.