直流電場におけるニュートン液体の均一微粒滴生成†

山口 学・松井 章*・村上英樹*・片山 俊**

大阪大学基礎工学部 化学工学科†

気相電場中におけるニュートン液体の均一微粒滴生成について実験的に研究を行った。電場は正極の直流電圧を印加した金属ノズルと接地銅板電極で構成される不平等電場である。実験は分散相流量が液柱を形成しない範囲で行われ、ノズルから生成される微粒液滴径は印加電圧と液の電気緩和時間に著しく依存することがわかった。また、液滴生成および比電荷の機構についても考察した。

生成液滴径に関する実験相関式を提出し、相関式は広い液物性の溶液に有効なものである。また、微粒滴生成が開始する臨界電圧に関する相関式も提出した。

緒 言

液体の微粒化操作は、噴霧乾燥、製薬、塗装、液体燃料の燃焼、原子炉緊急冷却等多くの分野で利用されている。最近では、高粘性液体やCOM (Coal in Oil Mixture)³⁾、CWM (Coal in Water Mixture) 燃料をはじめとする非ニュートン液体の効果的な均一微粒化操作の確立が要望されている。液体微粒化の目的は分散液滴の比表面積を大きくするとともに均一粒径の液滴を得ることにある。前者は分散液滴と連続媒体間の接触効率の向上に、後者は分散滴の品質向上に重要である。液体の微粒化法は、圧力、回転、気液二流体、振動、電気等、液体に供給されるエネルギー形態によって分類される¹³⁾。いずれの方法にしても、供給したエネルギーによって生じる液柱や液体膜の不安定運動を液体の分裂に利用するものである。これらの中でも電気エネルギーを直接利用した微粒化法は均一な微粒滴が得られ、静電塗装、ジェットプリンターやミスト生成等に実用化されている。静電微粒化は直流、交流、パルス等、また、遠心力等の組み合わせによる電場形態^{2, 4, 6, 8, 14, 16, 17, 18)}、供給液流量^{1, 4, 5, 7, 9, 10, 12, 14)}、気相流れの有無^{5, 8)}によって種々の微粒化形態をとる。

本研究は、高粘性液体やCOM、CWM 燃料をはじめとする非ニュートン液体の効果的な静電均一微粒化操作の確立を目的として行ったものである。その基礎研究として、直流電圧を印加したノズル先端に懸垂する液体メ

ニスカスからの均一微粒滴生成を対象に、その微粒化特性と制御性についてニュートン液体の広範囲の液物性を用いて実験的に調べた。また、微粒化開始条件についても調べた。

1. 実験装置および実験方法

実験装置の概略を Fig. 1 に示す。装置の主要部は金属ノズル①と接地された円形銅平板②で、ノズルは銅板に対して垂直に設置され、直流電圧発生装置⑥ (Spellman ~ 15 kV) の正極に接続されている。ノズルは金属注射針でその内径および外径はそれぞれ、 $D_i = 0.2$ mm, $D_n = 0.4$ mm と $D_i = 0.4$ mm, $D_n = 0.7$ mm の 2 種類を用い、その先端はノズル軸に対して垂直になるように仕上げてある。下部接地電極板は直径 14 cm で、その中央に直径 10 mm の穴があけてあり、生成液滴はその穴を通過して系外に排出される。ノズルと接地電極板間の距離はノズルを垂直に移動して任意の位置に変えられる。分散相のノズルへの供給は分散相に不溶解な液体⑬ (作動液体) を用いて微量定流量ポンプ (Gilson minipuls 2) ⑨で分散相容器⑦中の分散相液を押し出す方式で行った。分散相に KCl およびグリセリン水溶液を用いた場合、ポンプ側の作動液体として低電気伝導度のシリコーン油 (Shin-etsu KF 96) を用いた。これは分散相の電気伝導度が大きい場合、ノズルに高電圧を印加すると液供給系統が高電位になるのを防ぐためである。分散相に有機溶液を用いた場合、作動液体として蒸留水を用いた。ポンプの脈動が微粒化におよぼす影響を防ぐため流路の途中に脈動緩衝器 (空気溜) ⑧を設けた。分散相流量は以下の方法で決定した。任意の回転数に設定したポンプ駆動により微粒滴生成を行っている液供給系統のコック⑪を瞬時に切り替える。低流量の場合はビュー

† 1994 年 6 月 2 日受理

†† 〒560 豊中市待兼山町 1-3

* 新日本製鐵株式会社

** 大阪大学名誉教授

1: Nozzle, 2: Copper plate, 3: Faraday cage,
4: Electrometer, 5: Stroboscope,
6: High voltage generator,
7: Dispersed phase reservoir, 8: Air damper,
9: Peristaltic pump, 10, 13: Burette,
11: 3-ways cock,
12: Silicone oil reservoir or water reservoir,
14: Silica gel, 15: Constant temperature box

Fig. 1 Experimental apparatus

レット (0.5 cc) ⑩内の、あるいは高流量の場合はビューレット (5 cc) ⑬内の所定の液量を消費する時間より決定した。ノズル先端に形成した液体メニスカスから生成する微粒化滴生成頻度はストロボ発光 (Sugawara PS-240) ⑤と生成した微粒化滴列との同期をとり、微粒化周波数として測定した。生成微粒化滴径は分散相流量と微粒化周波数の比より球相当径換算で算出した。生成滴当たりの電荷量 (比電荷) は次の様にして求めた。下部電極板の中央穴の直下にファラデー・ケージ (Takeda Riken TR-8031) ③が設置されており、生成した帯電滴は中央穴を通過してファラデー・ケージに捕集された。その電荷量はゲージに接続されたエレクトロメータ (Takeda Riken TR-8651) ④により電流量として求めた。比電荷は電流量を1秒間に生成される滴体積で除して算出した。装置全体は $25 \pm 1^\circ\text{C}$ に温調した空気恒温室中⑮に設置した。

実験に使用した試料液の物性値を Table 1 に示す。表面張力は滴重法、誘電率は電気共鳴法、液粘度はウベローデ粘度計により、電気伝導度はそれぞれ交流および直流法で電気抵抗を求めて算出した。

静電微粒化におよぼす液体物性の影響を調べるため、水溶液系には脱イオン水を標準液として溶液粘度を変えるためにグリセリンを、溶液の電気伝導度を変えるために KCl を用いた。また、有機溶媒系にはキシレンを基準液として粘度の効果を調べる場合は流動パラフィン、電気伝導度の効果を調べる場合は ASA-3 (Anti-Static-Additive-3, Shell Chemicals, Co.) を用いた。実験は 23 種類の溶液について、ノズル 2 種類、液流量、電極間距離、印加電圧を操作変数として行った。

Fig. 2 Schematic diagram of electrical liquid dispersion

2. 実験結果および考察

2.1 静電微粒化の一般特性

直流電圧を印加したノズル先端の液体メニスカス (懸垂滴) から生成される液滴径と印加電圧との関係を懸垂滴形状も含めて模式的に Fig. 2 に示した。電圧を印加しない状態では、液体は粒径の大きな液滴となって滴下する。電圧を印加した領域 (1) では、懸垂滴に作用する重力、表面張力、電気力の釣合より一定頻度 (周波数) の単一滴生成が肉眼でも観察できる。分散相流速 (U_n) 一定の条件下で、印加電圧 (E_p) を増加していくと滴生成の周波数 (f) は増加し滴径 (d_e) は減少した。ある印加電圧で、滴生成周波数は不連続に増加して滴径は急激に減少し、微粒滴生成領域 (2) がえられた。この領域では、肉眼による滴生成の観察は不可能で、適当な周波数のストロボ発光を照射すると、その周波数と同期した微粒滴列の静止像が得られた。この領域では、生成滴はノズルと同軸上に滴列を形成しており均一粒径の微粒化領域であり、印加電圧の増加の方向と、減少の方向とで微粒化の周波数は一致しヒステリシスは認められなかった。また、ノズル先端の懸垂滴をマイクロ스코プを用いて観察すると、三次の振動モードで運動している半楕円形状の懸垂滴であることがわかった。さらに印加電圧を増加させていくと、微粒化は不規則となり、ストロボ発光との同期による微粒滴列の静止像が得られなくなる。この領域では、ノズル先端の円錐形状の懸垂滴がノズルを中心軸として回転運動をしながら、その先端

Table 1 Physical properties of liquids used at 25°C

Liquid	Density [kg/m ³]	Surface tension [mN/m]	Viscosity [mPa.s]	Electric conductivity [S/m]	Dielectric constant [—]
System 1	997	72.8	0.894	0.183	80.4
~ 5	997	72.8	0.894	5.51×10^{-3}	80.4
System 6	1120	68.7	4.82	5.51×10^{-3}	61.7
System 7	1150	68.0	8.36	4.12×10^{-3}	58.0
System 8	1180	62.1	18.2	1.90×10^{-3}	54.2
System 9	1200	59.3	47.6	8.80×10^{-4}	50.5
System 10	1230	57.0	143	4.06×10^{-4}	46.7
System 11	867	24.3	0.839	8.83×10^{-6}	2.37
System 12	866	24.2	0.663	2.39×10^{-6}	2.37
System 13	860	24.2	0.641	9.96×10^{-7}	2.37
System 14	866	24.2	0.633	7.34×10^{-7}	2.37
System 15	864	24.1	0.641	9.35×10^{-8}	2.37
System 16	862	24.1	0.636	4.13×10^{-8}	2.37
System 17	864	23.9	0.629	1.74×10^{-8}	2.37
System 18	871	28.5	11.4	7.00×10^{-7}	2.20
System 19	873	28.5	11.6	9.64×10^{-8}	2.20
System 20	871	26.3	11.0	2.15×10^{-8}	2.20
System 21	875	30.7	44.8	2.27×10^{-7}	2.15
System 22	877	30.2	47.9	3.09×10^{-8}	2.15
System 23	868	27.3	41.1	1.36×10^{-8}	2.15

System 1 : water + 0.1 wt% KCl, System 2 : water + 0.02 wt% KCl, System 3 : water + 0.01 wt% KCl, System 4 : water + 0.005 wt% KCl, System 5 : water + 0.0025 wt% KCl, System 6 : 50 wt% aq. glycerine + 0.01 wt% KCl, System 7 : 60 wt% aq. glycerine + 0.01 wt% KCl, System 8 : 70 wt% aq. glycerine + 0.01 wt% KCl, System 9 : 80 wt% aq. glycerine + 0.01 wt% KCl, System 10 : 90 wt% aq. glycerine + 0.01 wt% KCl, System 11 : xylene + 5.83 wt% ASA-3, System 12 : xylene + 1.50 wt% ASA-3, System 13 : xylene + 0.351 wt% ASA-3, System 14 : xylene + 0.299 wt% ASA-3, System 15 : xylene + 0.0608 wt% ASA-3, System 16 : xylene + 0.0104 wt% ASA-3, System 17 : xylene + 0.00508 wt% ASA-3, System 18 : xylene + 75 wt% liq. paraffine + 4.99 wt% ASA-3, System 19 : xylene + 75 wt% liq. paraffine + 0.536 wt% ASA-3, System 20 : xylene + 75 wt% liq. paraffine + 0.0409 wt% ASA-3, System 21 : xylene + 90 wt% liq. paraffine + 5.23 wt% ASA-3, System 22 : xylene + 90 wt% liq. paraffine + 0.477 wt% ASA-3, System 23 : xylene + 90 wt% liq. paraffine + 0.217 wt% ASA-3,

から放射状に微粒滴を生成した。得られた滴径は均一性に乏しく、不均一微粒滴生成領域（3）であった。この領域から電圧を下げていくと、再び、均一微粒化領域（2）が得られた。以後、領域（2）、（3）での液滴生成現象を微粒化と呼ぶことにする。

2・2 生成滴径分布と生成滴径の決定

上述の均一および不均一微粒化領域をストロボ発光の周波数と滴生成のそれとの同期により判断したが、同時に、生成微粒滴を捕集して滴径を実測して、それらの対応を以下の方法で確認した。試料液が、水溶液系の場合シリコン油（ $\nu = 3000$ cSt）を薄層状にいたしたシャーレを電極中央穴の直下に置き、穴を通過して捕集する微粒滴がシャーレ中で合一しないようにシャーレを適当に移動させ生成微粒滴を捕集した。また、有機溶媒系の場合はシリコン油の代わりに水あるいは炭酸マグネシウム（液滴はクレーター状の痕跡を形成する）を用いて微粒滴を捕集した。それらを顕微鏡を用いて写真撮影し、それぞれの滴径を計測して、滴径分布を求めた。その一例として System 6 の結果を Fig. 3 に示した。Fig. 3 (a) は $E_p = 5.48$ kV の結果で、その滴径は $d_e = 260 \mu\text{m}$

付近に集中し均一微粒化領域とみなせる。このときの微粒化現象と同期したストロボ発光の周波数は $f = 333$ Hz であり、分散相流量と周波数より算出される滴径（ $\pi d_e^3 / 6 = Q_n / f$ ）は $d_e = 257 \mu\text{m}$ で両者の一致は良好であった。同じ供給液流量で電圧を印加しない時は $d_e = 2340 \mu\text{m}$ であり、5.48 kV の電圧印加で生成滴径は約 1/9 程度に微粒化されている。Fig. 3 (b) は $E_p = 6.87$ kV の結果で、図に見られるように滴径は広い分布をとっており、均一滴生成とは見なせない。このように、ストロボ発光と微粒滴生成との同期より判断した現象の規則性は生成滴径の均一性に対応していることが確認された。有機溶液系の場合も同様な結果が得られた。以上の結果より、均一微粒化領域（2）の生成滴径はストロボ発光の周波数（微粒化周波数）と分散相供給流量を用いて決定した。

2・3 微粒化周波数と印加電圧の関係

水溶液系の場合： 結果の代表例として試料液（分散相）Systems 3, 6, ~ 10 について f と E_p の実測関係を電極間距離（ L ）= 3.44 cm の場合について示したのが Fig. 4 である。図中の結果は System, 分散相流

(a) Uniform monodispersion (b) Non-uniform dispersion
Fig. 3 Size distribution of 50 wt% aq. glycerine droplets

速 (U_n) をパラメータとして示してある。各系共、 f は E_p の増加と共にほぼ直線的に増加している。 U_n と E_p 一定の条件下では、分散相粘度 (η_d) の増加 ($\circ$, $\triangle$, $\square$, $\diamond$, ∇) と共に f は減少し、大きな液滴を生成した。これは微粒化の静電気力に対する分散相の粘性抵抗のためである。また、同一試料液で同じ印加電圧でも U_n の増加とともに f は減少した。これは U_n の増加と共に懸垂滴に流入する液量が多くなり、大きな滴が生成されるためである。

有機溶液系の場合： 代表例として Systems 11, 13, 16 ~ 23 について f と E_p の実測関係 ($L = 3.44$ cm, $U_n = 1.90$ cm/s) を示したのが Fig. 5 である。結果よりわかるように、この場合の微粒化特性は Systems 11, 13, 16 ~ 17, Systems 18 ~ 20, Systems 21 ~ 23 の 3 グループに分かれた。各グループとも電気伝導度 (κ_d) のオーダは同じであるが、 η_d は異なっている。これらの系も水溶液系の場合と同様、 f は E_p の増加と共に増加しているが、増加の傾向は溶液系によって必ずしも直線的でない。 η_d が f におよぼす影響は水溶液系の場合と同様である。この溶液系の特徴として液体の電気伝導度の減少と共に微粒化周波数は減少し、均一微粒化の印加電

* 最初 Q_0 の電荷をもつ誘電体は伝導により時間の経過とともにその電荷を失う。 $Q = Q_0 \exp(-t/\tau)$, $\tau = \epsilon \epsilon_0 / \kappa$ は物質の電気物性で決まるパラメータで時間の次元をもち電気緩和時間という¹⁹⁾。ある電位に保たれたノズルに懸垂している液滴にはノズルと等電位になるまで電荷が供給される。本文 Fig. 5 中の System 3 の場合 $\epsilon_d = 80.4$, $\kappa_d = 1.95 \times 10^{-2}$ S/m で $\tau = 3.6 \times 10^{-8}$ s となる。懸垂滴の滞留時間を $D_n/U_n \sim 10^{-2}$ s と見積もると、瞬間的に懸垂滴はノズルと等電位になり U_n の影響は小さい。それに対して Fig. 6 中の System 23 の場合、 $\epsilon_d = 2.37$, $\kappa_d = 1.36 \times 10^{-8}$ S/m, で $\tau = 1.5 \times 10^{-3}$ s で $D_n/U_n \sim 10^{-3}$ s と見積もられ、電荷が懸垂滴表面に蓄積されるに必要な時間におよぼす U_n の影響は大きくなる。このように電荷緩和時間は物質の帯電の難易性の尺度となる。

key	Liquid	U_n [mm/s]	key	Liquid	U_n [mm/s]	key	Liquid	U_n [mm/s]
$\circ$	System 3	13.8	$\diamond$	System 8	13.3	$\diamond$	System 10	15.1*
$\bullet$	System 3	18.1	$\blacklozenge$	System 8	17.6	$\blacklozenge$	System 10	18.2*
$\bullet$	System 3	23.8	$\blacklozenge$	System 8	25.2	$\blacklozenge$	System 10	24.2*
$\triangle$	System 6	13.9	∇	System 9	13.1	$\blacklozenge$	System 10	37.9*
$\triangle$	System 6	18.7	∇	System 9	17.4			
$\triangle$	System 6	24.1	∇	System 9	21.4			
$\square$	System 7	14.1	∇	System 9	17.9*			
$\square$	System 7	17.5	∇	System 9	37.7*			
$\square$	System 7	23.4						

Fig. 4 Relation between frequency of droplet formation for aqueous solution and applied voltage

圧の範囲は狭くなる。これは後に考察するが、滴がノズルに懸垂（滞留）している時間（生成時間）と電荷が懸垂滴表面に蓄積されるのに必要な時間（電荷緩和*）に関係する。

2.4 ノズルと平板電極系の電場強度について

ノズルと平板電極系の電場強度の定義は静電微粒化機構を考察する際に重要である。ノズル先端で成長しつつある液滴の周りの電場は液滴の成長（電荷蓄積）、離脱（電荷放出）を伴っているため周期的に変動する。そこで液滴生成直前の懸垂滴の代表的形状を、その先端部での曲率半球が $D_n/2$ である回転双曲面で近似し、さらに良導体（ノズル電位と等しい）であると仮定すると、懸垂滴表面の平均電場強度 (E_0) は次式で与えられる²⁰⁾。

$$E_0 = \frac{4E_p}{\{D_n \ln(8L/D_n)\}} \quad (1)$$

Fig. 6 は System 9 について、 U_n 一定の条件下で、同一の微粒化状態 ($f = \text{const}$) を得るための E_p と L の関

key Liquid	κ_d [S/m]	key Liquid	κ_d [S/m]
● System 11	8.83×10^{-6}	△ System 21	2.27×10^{-7}
⊕ System 13	9.96×10^{-6}	▲ System 22	3.09×10^{-8}
● System 16	4.13×10^{-8}	△ System 23	1.36×10^{-8}
⊖ System 17	1.74×10^{-8}		
■ System 18	7.00×10^{-7}	$D_n = 0.4$ mm	
□ System 19	9.64×10^{-8}	$L = 34.4$ mm	
■ System 20	2.15×10^{-8}	$U_n = 19.0$ mm/s	

Fig. 5 Relation between frequency of droplet formation for organic solution and applied voltage

係を調べた結果である。結果より E_p と $\ln L$ は良好な比例関係にあることがわかる。この直線の傾きは E_0 に関係するもので、微粒化状態が一定の時、懸垂滴表面近傍の平均的な電場強度が Eq. (1) の E_p と $\ln L$ の関係で示されることがわかる。しかし、Figs 4, 5 からわかるように、液物性、分散相流量が異なると、同一の微粒化状態 (f) を得るのに必要な印加電圧、即ち、電場強度は異なる。これは分散相流量、液物性かノズル先端に懸垂する液滴形状に影響を及ぼすためである。

2.5 液滴の帯電量

生成液滴の持つ電荷量はその微粒化機構を知る情報として重要である。Figure 7 は比電荷 (Q/M) と d_e の実測関係を示している。図中の実線および破線はそれぞれ KCl 水溶液、キシレン溶液の比電荷についての Rayleigh¹⁵⁾、Vonnegut ら²¹⁾ の理論解である。

$$\frac{Q}{M} = 12 \frac{(2\epsilon_0 \sigma)^{1/2}}{\rho_d d_e^{3/2}} \quad (2)$$

$$\frac{Q}{M} = 6 \frac{(2\epsilon_0 \sigma)^{1/2}}{\rho_d d_e^{3/2}} \quad (3)$$

Fig. 6 Relation between applied voltage and electrode gap for uniform monodispersion of 80wt aq. glycerine droplets

key Liquid	key Liquid	key Liquid
○ System 1	◇ System 8	⊖ System 11
△ System 6	▽ System 9	~ 17
□ System 7	◇ System 10	⊖ System 18
		~ 20
		△ System 21
		~ 23

Fig. 7 Relation between charge-to-mass ratio of electrically monodispersed droplets and droplet diameter

実測値は両者の中間に位置しており、実測値の傾向は理論解と一致しているが、どちらの機構に従っているかは判定し難い。理論の基礎となるモデルが本実験の現象とは直接対応するものではないが、微粒滴生成が懸垂滴

Fig. 8 Effect of electrical relaxation time on electric field (The key is the same as Fig. 7)

のある種の振動運動の結果より生ずるものである¹⁵⁾と共に生成滴の持つエネルギーを最小にする形態²¹⁾に従っているものと思われる。

2-6 生成微粒滴径の相関式

静電微粒化は電圧印加のノズルに懸垂した液滴の成長、離脱にみられるように、流動性電極の電荷蓄積・放出の電気現象と電場中での液滴表面形成の流動現象が複雑にかつ、相互に作用する現象である。従って生成滴径におよぼす操作因子、液物性の効果も含めた理論解析は困難である。そこで微粒化滴径に影響する諸因子について次元解析を行い、その依存性について検討した。

$$d_e = f(E_0, U_n, D_n, \rho_d, \eta_d, \sigma, \kappa_d, \epsilon_d) \quad (4)$$

π 定理によると互いに独立な無次元量は次の5つで表される。

$$\frac{d_e}{D_n} = \text{func.} \left(\frac{\epsilon_0 E_0^2 D_n}{\sigma}, \frac{\rho_d U_n^2 D_n}{\sigma}, \frac{\eta_d U_n}{\sigma}, \frac{\epsilon_0 E_0 U_n}{\kappa_d D_n} \right) \quad (5)$$

微粒化滴径を決定する諸因子としての Eq. (5) の右辺第1項は懸垂滴表面に作用する無次元静電気応力 (E_0)、第2項は We 数、第3項は Ca 数である。また、第4項は懸垂滴表面の無次元電気緩和時間 (T_r) である。前述したように微粒化滴生成頻度とストロボ発光の周波数とが一致することにより、生成体積は分散相流量と周波数の関係より求め、生成滴径を決定した。実測の微粒滴径について Eq. (5) の各因子の依存性を非線形最小2乗法により決定し、次式の相関式を得た。

$$\frac{d_e}{D_n} = 13.6 E_0^{-0.75} We^{0.08} Ca^{0.10} T_r^{0.08}$$

実測値は上式と $\pm 30\%$ の範囲で相関されたものの各系で系統的なずれがみられた。その原因として2・4でも述べたように d_e に直接影響する懸垂滴形状を決定する支配因子としての E_0 の依存性が各溶液系によって異なるためと考えられる。一つの溶液系について、同一の微

Fig. 9 Correlation between droplet diameter formed from electrified nozzle and dimensionless parameters (The key is the same as Fig. 7)

粒化状態を再現するための E_0 と E_p および L の関係の妥当性は Fig. 6 でも確かめられているが、懸垂滴形状が E_0 におよぼす影響は不明である。ここでは E_0 は懸垂滴表面の生成挙動 (懸垂滴形状も含めて) と帯電挙動によって影響を受けるものと考え、実験に用いた各試料液に対して d_e/D_n の E_s^m 依存性を調べてみると $m = -0.35 \sim -4.4$ の範囲で変化していた。即ち、上式中の E_0 の -0.75 乗は微粒化の平均的な電場強度の依存性を与えているものと思われる。そこで懸垂滴の帯電挙動 (電気物性) および形状 (分散相流速) に影響する因子を各試料について求めた m と T_r の関係を点綴したのが Fig. 8 である。その結果、 m について次式の相関式を得た。

$$m = -9.27 T_r^{0.24} \quad (6)$$

Equations (4), (6) を用いて実測値を非線形最小2乗法により得た最良の相関式とその適用範囲は以下の通りである。

$$\frac{d_e}{D_n} = 9.35 E_s^m We^{0.16} Ca^{0.07} T_r^{0.08} \quad (7)$$

$$\left. \begin{aligned} 2.53 < E_s < 6.64 \\ 5.0 \times 10^{-4} < We < 5.0 \times 10^{-2} \\ 1.0 \times 10^{-4} < Ca < 0.1 \\ 1.0 \times 10^{-6} < Tr < 0.1 \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

実測値と Eq. (7) の相関結果を Fig. 9 に示す。Equation (7) と森ら¹¹⁾の理論解との検討を以下に行った。Figure 8 中の破線は $\kappa_d \geq 0.02$ S/m の溶液の値で、これは微粒化が κ_d に依存しない領域に対応している。この $m = -0.3$ は微粒化が κ_d によらないとする森らの

理論値より予想される $m = -0.245$ にほぼ近い値である。また、 d_e におよぼす U_n の影響は森らの理論では 0.49 乗であるのに対して Eq. (7) では 0.47 乗でほぼ一致している。高伝導性液体の静電微粒化滴径の推算は森らの理論で可能であるけれど、低伝導性液体への適用は不可能で、低伝導性液体も含めた広い範囲の液物性の溶液系の均一微粒化滴径の相関式として Eqs (6), (7), (8) が必要である。

2.7 微粒化開始電圧

微粒化開始の印加電圧はその操作条件の一つとして重要である。用いた全試料液の微粒化開始電圧の結果を Fig. 10 に示した。その結果、液供給速度、ノズル径、液物性によって幾分幅があるものの、微粒化開始の無次元静電気応力として次の相関式を得た。

$$(E_s)_c = 2.7 \quad (9)$$

Equations (6) ~ (9) の関係式はニュートン液体の静電均一微粒化の開始電圧の推定に有効なものである。

非ニュートン流体の静電微粒化の結果についてもその特性および本相関式への適用性を含めた検討を行う予定である。

結 言

直流電圧を印加したノズル先端に懸垂する液滴からの微粒滴生成について、空気～ニュートン液体系を用いて、その微粒化特性を広範囲の液物性について実験的に調べた。その結果、以下の結論を得た。

1) 均一微粒化滴生成を決定する因子は、ノズル先端の電場強度、液供給速度、液粘度、表面張力、電気伝導度およびノズル外径で、生成滴径の実験相関式として Eqs. (6), (7) を得た。Equation (7) の適用範囲は Eq. (8) である。

2) 微粒化開始電圧は Eq. (9) で与えられる。

3) 均一微粒化滴生成の制御は電圧操作だけで可能であり、その再現性は良好である。

Nomenclature

Ca	= Capillary number $\eta_d U_n / \sigma$	[—]
D_i	= nozzle inner diameter	[m]
D_n	= nozzle outer diameter	[m]
d_e	= equivalent spherical diameter of charged droplet	[m]
d_e / D_n	= dimensionless droplet diameter	[—]
E_p	= applied voltage	[V]
E_s	= dimensionless electrostatic stress	[—]
	= $\epsilon_d E_0^2 D_n / \sigma$	[—]
E_0	= electric field strength defined in Eq. (1)

Fig. 10 Minimum voltage applied for monodispersion of Newtonian liquids, (The key is the same as Fig. 7)

		[V/m]
F	=percent of droplet number to total droplet number	[—]
f	=frequency of monodispersed droplet formation	[Hz]
g	=gravitaional acceleration	[m/s ²]
L	=electrode gap	[m]
M	=mass of droplet	[kg]
m	=parameter defined in Eq. (6)	[—]
Q	=electric charge of droplet	[C]
Q_n	=volumetric flow rate of dispersed phase	[m ³ /s]
r	=radius of droplet	[m]
t	=time	[s]
T_r	=dimensionless electric relaxation time	[—]
	$\epsilon_d \epsilon_0 U_n / (\kappa_d D_n)$	[—]
U_n	=linear velocity of dispersed phase through nozzle	[m/s]
v	=volume of monodispersed droplet	[m ³]
We	=Weber number $\rho_d U_n^2 D_n / \sigma$	[—]

ϵ_d	= dielectric constant of liquid	[—]
ϵ_0	= permittivity of vacuum	[F/m]
η_d	= viscosity of liquid	[Pa. s]
κ_d	= electrical conductivity of liquid	[S/m]
ρ_d	= density of liquid	[kg/m ³]
σ	= surface tension	[N/m]

< Subscript >

c = critical

Literature cited

- 1) Balachandran, W. and A. G. Bailey: *J. Electrostatics*, **10**, 189–196 (1981)

- 2) Idem: *IEEE Trans. Ind. Appl.*, **IA-20**, 682–686 (1984)
- 3) Carmi, S. and M. R. Ghassenzadeh: *Fuel*, **60**, 529–533 (1981)
- 4) Fujimoto, H., Y. Konishi, K. Hirata, Y. Hosoi and T. Sato: *Trans. JSME.*, **32**, 779–787 (1966)
- 5) Garmendia, L. A. and I. K. Smith: *Can. J. Chem. Eng.*, **53**, 606–610 (1975)
- 6) Hendricks, C. D. Jr.: *J. Colloid Sci.*, **17**, 249–259 (1962)
- 7) Hibiki, T.: "Formation of Single Charged Droplets from a Laminar Liquid Jet in Electric Fields", Ph.D Thesis, Osaka University (1990)
- 8) Ito, K., K. Yamane and S. Fukazawa: *Nenryo Kyokaishi*, **51**, 724–732 (1972)
- 9) Jones, A. R. and K. C. Thong: *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **4**, 1159–1166 (1971)
- 10) Magarvey, R. H. and L. E. Outhouse: *J. Fluid Mech.*, **13**, 151–155 (1962)
- 11) Mori, Y., K. Hijikata and T. Nagasaki: *Trans. JSME.*, **B**–**47**, 1881–1890 (1981)
- 12) Mutoh, M., S. Kaieda and K. Kamimura: *J. Appl. Phys.*, **50**, 3174–3179 (1979)
- 13) Nagai, N.: "Saikin no Kagaku Kogaku", p. 81–p. 102, Maruzen, Tokyo (1971)
- 14) Ogata, S., Y. Hara and H. Shinohara: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **3**, 127–131 (1977)
- 15) Rayleigh, J. W. S.: *Phil. Mag.*, **14**, 184–186 (1882)
- 16) Saito, M. and M. Sato: *Nenryo Kyokaisi*, **70**, 1039–1046 (1991)
- 17) Sato, M.: *Kagaku Kogaku*, **53**, 104–107 (1989)
- 18) Idem: *IEEE Trans. Ind. Appl.*, **27**, 316–322 (1991)
- 19) Stewart, G. and J. D. Thornton: *I. Chem. E. Sympo. Series* **26**, 29–36 (1967)
- 20) The Institute of Electrostatics ed.: "Handbook of Electrostatics" P. 172, Ohm sha, Tokyo (1983)
- 21) Vonnegut, B. and R. L. Neubauer: *J. Colloid Sci.*, **7**, 616–622 (1952)

Formation of Uniformly Sized Droplets of Newtonian Liquids in a DC Electric Field

Manabu Yamaguchi, Akira Matsui*,
Hideki Murakami* and Takashi Katayama**

Department of Chemical Engineering, Osaka University, Toyonaka 560

Key Words: Charged Droplet Formation, DC Electric Field, Liquid Atomization, Newtonian Liquid, Uniform Size Droplet

Formation of uniformly sized droplets in an electric field was investigated experimentally for Newtonian liquids in air. The field was made of a metal nozzle to which a positive DC voltage was applied and an earthed copper plate. Formation of the droplets was carried out in the range of the flow rate of dispersed phase prior to formation of a liquid jet. It was found that the size of fine charged droplets from the nozzle depended significantly on applied voltage and electrical relaxation time of the liquids. The mechanism of droplet formation and the specific charge of the droplets were discussed.

An empirical correlation for the size of the monodispersed droplets is proposed and is useful for Newtonian liquids with a wide range of physical properties; electrical conductivity, permittivity and viscosity. Also, the minimum voltage required for the formation of monodispersed droplets is proposed.

* Nippon Steel Co.

** Osaka University Emeritus Professor