静電微粒化における平均粒径の無次元相関

緒 方 純 俊・波 多 江 俊
将 口 和 夫・篠 原 久
九州大学工学部化学機械工学科*

静電微粒化された液滴の電荷が種々の実験条件のもとで測定され、さらに比電荷に及ぼす因子についての解析が試みられた。

この解析結果を発展させて、体面積平均径 d_{vs} の実験式が次のように定められた。

$$\frac{d_{vs}}{D_o} = 11.4 \left(\frac{v\mu_t}{\sigma} \right)^{2/3} \left(\frac{\epsilon_0}{\kappa} \frac{\sigma}{D_o\mu_t} \right)^{2/9} \left(\frac{V}{\sqrt{D_o\sigma/\epsilon_0}} \right)^{-10/9} \left(\frac{L}{D_o} \right)^{2/5}$$

粒径測定の試料液として蒸留水、グリセリン水溶液、エタノールおよび *n*-プロパノールが用いられた。実験条件は次のとおりであった：印加電圧 9~17.5 kV、液流量 1.3~18 g/min、電極間隔 60~120 mm。

緒 言

導電度の比較的大きい液体 (10^{-10} mho/cm 以上) に高電圧を印加していくとき、液体表面に生じた静電応力のためにみかけ上表面張力が減少し^{1,18)}、ついには微粒化に至る。

微粒化特性、たとえば粒子の大きさ、分布などを推算することは工学的に非常に重要であり、この方面での研究が強く望まれている。しかしながら粒径に及ぼす操作因子、液体物性の影響は定量的にはほとんど何も知られていないのが実情である。Randall¹⁰⁾ によると微粒化特性を支配する主要な操作因子は印加電圧と液流量で、液体物性として導電度と粘度を挙げている¹⁵⁾。萩原²⁾の報告によると表面張力、密度、誘電率の効果は比較的小さい。しかしながら微粒化特性は印加直流電圧の極性の違い(正・負)によっても影響をうける⁷⁾。

微粒化粒子の比電荷と粒径との間には Rayleigh's limit¹¹⁾ の 1/2 に相当する Vonnegut と Neubauer¹⁸⁾ の式があり、これは Hendricks⁹⁾、Hogan ら⁴⁾、Pfeifer⁹⁾、および Jones ら⁵⁾ の実測値とよく一致することが報告されている。

Hogan らと Schene¹⁴⁾ は比電荷を印加電圧、液流量などの関数として表すことを試みたが、いずれも実測値との相関に失敗した。

本研究の目的は比電荷に及ぼす操作因子と液体物性の影響を実験的に分析し、その結果を Vonnegut らの関係式に適用して平均粒径とこれらの因子の関係に帰納させようとするものである。したがって実験はコロナ放電の効果避けるため⁷⁾に 9~17.5 kV の比較的低い電圧範囲で行った。

1. 実験装置と実験方法

本実験では液浸法によって粒子を捕集するが、液体によっては適当な受け止め液がない。そこで捕集困難な液体の場合には電流を測定することにより、粒子平均の比電荷 $\overline{q/m}$ を計算する。これより平均粒径が推算できる。すなわち、粒子の電荷はその表面に分布しており、この電荷と粒径との間には Vonnegut らの式が成り立つことを利用する。

実験装置の概略を Fig. 1 に示す。ノズルとして先端を平滑に仕上げた長さ 10 mm のステンレス製注射針を用いた。内外径はそれぞれ 0.21~0.41, 0.28~0.51, 0.33~0.62, 0.42~0.69 mm の 4 種類である。接地極板は直径 250 mm の真鍮板で中央に 5×80 mm のスリットが設けてある。粒子を捕集する場合、スリットを通過した粒子の一部は捕集箱 (Collector box) のシャッターを開閉することにより、シリコンオイル (3,000~5,000 cs) を含むシャーレに受け止められ、その 300~500 個がただちに、顕微鏡写真に撮られる。電流のみを測定する場合には、このスリットは裏面から塞がれる構造になっている。なお、接地極板は特殊な支柱に取り付けられており、水平および垂直方向に動かすことが可能である。

ノズルと接地極板との間に正極性直流電圧が印加される。これは正・負両極性の高電圧を印加した一連の実験において、負極性ノズルからのコロナ放電が微粒化模様、粒径分布などに著しく影響することが確認されたからである⁷⁾。

ノズルに印加された電圧は静電電圧計で、また接地極板を通して流れる電流は高感度のエレクトロメータによって読み取られる。実験は恒温 (20±1.5°C)、恒湿 (相

* 〒812 福岡市東区箱崎

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental apparatus

対湿度 50%), 常圧下で行った。

Table 1 に試料液の物性値を示す。表面張力の測定は De Nüy 氏法, 誘電率の測定はヘテロダイニート法によった。また導電率の測定は 10^{-8} mho/cm よりも大きい液体については交流法, それ以下の場合には直流法で抵抗を求めることにより計算した。グリセリン水溶液の粘度は比重を測定することにより文献から, またエタノール, *n*-プロパノールのそれらはオストワルド粘度計によった。

微粒化特性に及ぼす液体物性の影響を個別に調べることは非常に困難である。たとえば粘度の影響をみるためにグリセリン水溶液を使用した場合, 粘度だけでなく導電度, 表面張力, 密度なども変化する。また他の物性値が同じで粘度のみが異なる純粋物質はきわめて少ない。ここで用いた水-グリセリン混合液において, 両者の導電度, 表面張力ともあまり変わらないので, この組み合わせが選ばれたが後述するように, この方法では半定量的な知見しか得られない。

2. 実験結果

Fig. 2 に陰絵法によって撮影した炭酸エチルの微粒化模様を示す。本実験におけるすべての測定はこの液柱形

working fluid : diethyl carbonate

Fig. 2 Spraying patterns of diethyl carbonate

成を伴うモードでなされた。この場合の電圧 V と電流 I との関係は Fig. 3 に示され, $I \propto V^{1.8}$ が得られた。おのおのの試料液について同様の測定を行った結果を Table 2 に示す。ここで α, β は次式における $V, \dot{M}_0$ の指数である。

$$\overline{q/m} = \text{const.} \cdot V^\alpha \dot{M}_0^\beta \quad (1)$$

ここで $\overline{q/m}$ は粒子平均の比電荷で, 次の関係がある。

$$I = (\overline{q/m}) \dot{M}_0 \quad (2)$$

したがって β は I と V との関係に Eq. (2) を適用して計算される。

Figs. 4, 5 に $\overline{q/m}$ と V , および $\overline{q/m}$ と $\dot{M}_0$ の関係の一例を示す。Fig. 5 において L をパラメータにとっても同様な関係図が得られる。

Fig. 6 は灯油に ASA-3 (Anti Static Agent, Shell Oil Co., Ltd.) を添加して導電度を変化させた場合の I と導

Table 1 Physical properties of the liquids (at 20°C)

Liquid	Electrical conductivity [mho/cm]	Dielectric constant [farad/ml]	Surface tension [dyne/cm]	Density [g/cm ³]	Viscosity [cP]
Diethylcarbonate	7.7×10^{-10}	2.89	—	—	—
Distilled water	2.4×10^{-7}	80*	73.9	0.997	1.00*
Kerosene + ASA-3					
no. 1	1.2×10^{-8}	2.11	27.5	0.793	—
no. 2	6.2×10^{-9}	2.11	27.2	0.792	—
no. 3	1.1×10^{-9}	2.10	26.9	0.791	—
no. 4	6.2×10^{-10}	2.11	27.1	0.793	—
Glycerine aq. solution					
no. 1	1.6×10^{-6}	—	69.7	1.055	1.96*
no. 2	5.4×10^{-7}	—	69.1	1.115	5.60*
no. 3	6.1×10^{-7}	—	66.3	1.142	6.76*
no. 4	1.9×10^{-7}	—	—	1.179	22.9*
no. 5	6.6×10^{-8}	—	—	1.204	57.9*
KCl aq. solution	7.6×10^{-4}	80*	—	—	—
Ethanol	1.0×10^{-7}	—	22.5*	0.793	1.19
<i>n</i> -propanol	1.7×10^{-7}	—	23.7*	0.807	2.08

* literature values

Fig. 3 Relation between current and applied voltage

Fig. 4 Relation between specific charge and applied voltage

電度 κ との関係を示す。勾配は約 $1/3$ である。Table 1 に示されたように、ASA-3 の添加は他の物性値にほとんど影響を及ぼさないで、Fig. 6 は導電度の効果のみを示すと考えられる。

グリセリン水溶液による粘度効果の試験では $\mu_t < 10$ cP のとき $I \propto \mu_t^{-1/4}$ 、 $10 < \mu_t < 130$ cP のとき $I \propto \mu_t^{-3/4}$ なる関係が得られた。前述したようにグリセリンの導電度は水のそれよりも約 1 オーダ小さく、表面張力も若干異なるので、上の結果はこれらの効果、特に導電度変化の影響を含んでいるものと思われる。

また電極間隔 L を変化させることにより $I \propto L^{-0.6}$ が得られた。

Randall は多数の有機液体を用いて実験を行い α の値として $1.5 \sim 2$ を得ている。また Schene あるいは Hogan らによると $\alpha = 1.5 \sim 3$ 、 $\beta = -1$ である。本実験においても導電度の小さい灯油 (no. 3, 4) と液柱が形成されない KCl 水溶液を除けば $\alpha = 1.7 \sim 1.8$ 、 $\beta = -1$ である。以上の結果をまとめて次式を得る。

$$\bar{q}/m = \text{const.} \cdot V^{3/2-2} \cdot M_0^{-1} \kappa^{1/3} \mu_t^{-1/4 \sim -3/4} L^{-3/5} \quad (3)$$

Fig. 5 Variations of specific charge as a function of mass flow rate

Fig. 6 Variations of current as a function of electric conductivity

Table 2 Experimental results

Liquid	L [mm]	V [kV]	α	β
Diethyle-carbonate	40	10.5~18	1.8	-1
	60	10.5~18	1.8	-1
(vertical)	80	10.5~18	1.8	-1
Distilled water	60	13 ~17	1.8	-1
	80	13 ~18	1.7	-1
(vertical)	100	13 ~18	1.7	-1
(horizontal)	40	10.5~18	1.7	-1
	60	10.5~18	1.7	-1
	80	10.5~18	1.7	-1
	100	10.5~18	1.7	-1
Kerosene + ASA-3 no. 1	60	10 ~16	1.7	-1
	80	10 ~16	1.7	-1
(vertical)	100	10 ~16	1.7	-1
	120	10 ~16	1.7	-1
	80	10 ~16	1.6	-1
no. 3	80	10 ~16	1.5	-1
no. 4	80	10 ~16	1.4	-1
KCl aqueous solution (vertical)	80	12.5~17.5	5.6	-1

3. 結果の議論

電場中の帯電液滴粒子に作用する流体抵抗はレイノルズ数によって異なり、ポアソンの式を近似的に解くことにより次の 4 とおりの解が得られている⁸⁾。

1) 流体抵抗を考察した場合

$Re < 1$

Fig. 7 Dimensionless correlation for volume surface mean diameter

$$\frac{q}{m} = \frac{0.971 \omega^{3/4} \varepsilon_0^{5/4} \sigma^{1/2}}{\mu_f^{3/4} \rho_l^{1/4} \dot{M}_0^{3/4}} \left(\frac{V}{L} \right)^{3/2} \quad (4)$$

$1 < Re < 10^3$

$$\frac{q}{m} = \frac{1.09 \omega \varepsilon_0 (\varepsilon_0 \sigma)^{1/3}}{(\mu_f \rho_f)^{1/3} \dot{M}_0} \left(\frac{V}{L} \right)^{5/3} \quad (5)$$

$10^3 < Re < 2 \times 10^4$

$$\frac{q}{m} = \frac{9.15 \omega^{8/5} \varepsilon_0^{7/5} \rho_l^{1/5} \sigma^{1/5}}{\rho_f^{3/5} \dot{M}_0^{8/5}} \left(\frac{V}{L} \right)^{9/5} \quad (6)$$

2) 流体抵抗を無視した場合

$$\frac{q}{m} = \frac{0.395 (\varepsilon_0 \omega)^2 L}{\dot{M}_0^2} \left(\frac{V}{L} \right)^3 \quad (7)$$

実験式 Eq. (3) は粘度および導電度を含むのに対して近似解 Eqs. (4)~(7) はこれらの項を含まない。この理由は、これらの式が次式で示される Vonnegut らの式を利用して誘導されたためである。

$$\frac{q}{m} = \frac{6 (2 \varepsilon_0 \sigma)^{1/2}}{\rho_l d_p^{3/2}} \quad (8)$$

Schene は液柱先端の電界強度に注目して次式を提案した。

$$\frac{q}{m} = \text{const.} \left(\frac{\kappa}{\varepsilon} \right) \frac{V}{\dot{M}_0} \quad (9)$$

しかしながら前述したように彼のデータから計算した V の指数は $3/2 \sim 3$ で、また Hogan らの値はほぼ 2 である。

萩原は水に非イオン活性剤を添加して幾何平均径 d_0 に及ぼす導電度の影響を、またポリビニールアルコールおよびアクリル酸ソーダ水溶液によって粘度 (2~7 cP) の影響を調べた。図よりこれらの指数を計算すると

$$d_0 = a \kappa^{-0.3} \mu_l^{0.4} \quad (a \text{ は定数}) \quad (10)$$

Eq. (8) の q/m と d_p の互換性が Eq. (10) についても成り立つと仮定すると、 $d_0 = d_p$ としてこれを Eq. (8) に代入して*

* Eq. (8) において d_p と q/m の指数が異なるので、厳密にはこの変換は妥当でない。しかしながら d_0 の分散が非常に小さいならば、この変換はほぼ満たされる。

** Eq. (14) における ε_0/κ は一種の電気的緩和時間を、 $D_0 \mu_l/\sigma$ は一種の力学的緩和時間を表す。Eq. (15) はほぼ最小微粒化電圧の何倍の電圧が印加されたかを表す⁶⁾。

$$\overline{q/m} = b \kappa^{0.45} \mu_l^{-0.8} \quad (b \text{ は定数}) \quad (11)$$

本研究における予備実験において、水にアクリル酸ソーダなどの高分子を添加すると粘度だけでなく導電度、表面張力が大きく変化するので、Eq. (10) は必ずしも κ , μ_l の影響を正しく表すとは思われないが一定の傾向は示しているようにみえる (Eq. (3) 参照)。

Eqs. (3), (4)~(7), (11) の次元解析から次式を得る**。

$$\overline{q/m} = \text{const.} C_a^{-1} T_i^{-1/3} P_0^{5/3} S_e^{-3/5} \quad (12)$$

ここで

$$C_a = \left(\frac{v \mu_l}{\sigma} \right) \quad (13)$$

$$T_i = \left(\frac{\varepsilon_0}{\kappa} \frac{\sigma}{D_0 \mu_l} \right) \quad (14)$$

$$P_0 = \frac{V}{\sqrt{D_0 \sigma / \varepsilon_0}} \quad (15)$$

$$S_e = \frac{L}{D_0} \quad (16)$$

再び粒子平均の比電荷に対して Eq. (8) が成り立つと仮定すると Eq. (12) から

$$\frac{d_{vs}}{D_0} = \text{const.} C_a^{2/3} T_i^{2/3} P_0^{-10/3} S_e^{2/5} \quad (17)$$

Fig. 7 は d_{vs} の無次元相関を示す。勾配は $2/3$ で Eq. (17) における C_a の指数とよく一致する。 $C_a \rightarrow 1$ に外挿して $\text{const} = 11.4$ を得る。

既往の研究では正極性直流電圧による d_{vs} の測定はほとんどなされていないので、ノズルとしてガラスビュレット (内径 0.68 mm) を用いた Randall の 25 kV 以下のデータを図中にプロットした。この場合、毛细管の外径が与えられていないので、図の縦軸は内径で無次元化している。Randall の実験では液流量が少なく (0.92~6.4 g/min)、比較的高粘度の液 (たとえばポリプロピレン $\mu_l \approx 80$ cP) を多く用いている。

本実験でもグリセリン水溶液を用いて粘度効果を追求したが、 $\sigma/\mu_l \leq 10$, すなわち液が曳糸性を示す粘度以上になるとシリコンオイルでは捕集できず、粘度の影響を十分明らかにすることはできなかった。なお $\mu_l \approx 130$ cP ではシリコンオイルによる粒子の捕集が再び可能で、このときのデータは $C_a > 3 \times 10^{-2}$ の Randall のデータに重なる。しかしながら高粘度液体のデータがなぜ相関曲線から偏倚するか現在のところまだ明らかでない。

結 言

コロナ放電の影響の小さい実験条件のもとで微粒化実験を行い、平均粒径に及ぼす因子について考察した。その結果、 $\sigma/\mu_l \leq 10$ で成り立つ次の無次元相関式が得られた。

$$\frac{d_{vs}}{D_o} = 11.4 C_a^{2/3} T_i^{2/9} P_o^{-10/9} S_e^{2/5}$$

【謝 辞】 本研究の初期の装置は原康博氏（現ブリジストンタイヤ(株)）によって作製された。研究のまとめに際しては本学科村上助教授をはじめ、第5講座の諸氏から貴重な助言、討論をいただいた。ここに感謝の意を表します。なお本研究費の一部は昭和50年度文部省科学研究費によった。

Nomenclature

A part of symbol units used in this manuscript, figures and table was different from those presented below, while all of calculation was made on the basis of M.K.S. unit.

C_a	= ($=v\mu_l/\sigma$) capillary number defined by Eq. (13)	[—]
D_i, D_o	= internal and external diameter of the needle	[m]
d_p	= diameter of the droplet	[m]
d_{vs}	= volume surface mean diameter	[m]
I	= electric current	[amp]
L	= electrode separation	[m]
$\dot{M}_0$	= mass flow rate	[kg/sec]
m	= mass of the droplet	[kg]
P_o	= ($=V/\sqrt{D_o\sigma/\epsilon_0}$) dimensionless parameter defined by Eq. (15)	[—]
q	= charge of the droplet	[coul]
q/m	= specific charge	[coul/kg]
$\bar{q}/\bar{m}$	= average specific charge	[coul/kg]
S_e	= ($=L/D_o$) dimensionless parameter defined by Eq. (16)	[—]

T_i	= ($=\epsilon_0\sigma/D_o\mu_l\kappa$) dimensionless parameter defined by Eq. (14)	[—]
V	= electric potential	[volt]
ϵ	= dielectric constant of the liquid	[farad/m]
ϵ_0	= permittivity of the air	[farad/m]
κ	= conductivity of the liquid	[siemens/m]
μ	= viscosity	[kg/m·sec]
ρ	= density	[kg/m ³]
ω	= dispersion angle of droplets	[radian]
<Subscripts>		
f	= refers to fluid	
l	= refers to liquid	

Literature cited

- 1) Auerbach, R.: *Kolloid.*, **43**, 114 (1927)
- 2) Hagiwara, M.: *SHIKIZAI (Japan)*, **37**, 214 (1964)
- 3) Hendricks, C. D.: *J. Colloid Sci.*, **17**, 249 (1962)
- 4) Hogan, J. J. and C. D. Hendricks: *AIAA J.*, **3**, 296 (1965)
- 5) Jones, A. R. and K. C. Thong: *J. Phys. D*, **4**, 1159 (1971)
- 6) Ogata, S., T. Kawashima, O. Nakaya and H. Shinohara: *J. Chem. Eng. Japan*, **9**, 440 (1976)
- 7) Ogata, S., Y. Hara and H. Shinohara: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **3** 127 (1977).
- 8) Ogata, S. and H. Shinohara: *JJAP.*, to be published.
- 9) Pfeifer, R. J.: *Phys. Fluids*, **10**, 2149 (1967)
- 10) Randall, J.: Ph. D. Thesis, Univ. Wisconsin (1964)
- 11) Rayleigh, L.: *Phil. Mag.*, **14**, 184 (1882)
- 12) Ryce, S. A.: *J. Colloid Sci.*, **19**, 490 (1964)
- 13) Sato, M. and T. Sakai: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **2**, 317 (1976)
- 14) Schene, H.: *Ind. Lack. Betrieb*, **34**, 471 (1966)
- 15) Schultze, K.: *Z. f. angew. Phys.*, **13**, 11 (1961)
- 16) Vonnegut, B. and R. L. Neubauer: *J. Colloid Sci.*, **7**, 616 (1952)

(1976 年 9 月 1 日受理)

The Dimensionless Correlation of Mean Particle Diameter in Electrostatic Atomization

Sumitoshi Ogata, Takashi Hatae, Kazuo Shoguchi
and Hisashi Shinohara

Dept. of Chem. Eng., Kyushu Univ., Fukuoka 812

The charge of the droplet generated by electrostatic atomization of liquids was measured for a variety of experimental conditions. Controlling variables on the specific charge were then analyzed.

The experimental equation of volume surface mean diameter d_{vs} could be derived by developing the result of specific charge analysis.

$$\frac{d_{vs}}{D_o} = 11.4 \left(\frac{v\mu_l}{\sigma} \right)^{2/3} \left(\frac{\epsilon_0}{\kappa} \frac{\sigma}{D_o\mu_l} \right)^{2/9} \left(\frac{v}{\sqrt{D_o\sigma/\epsilon_0}} \right)^{-10/9} \left(\frac{L}{D_o} \right)^{2/5}$$

The measurements of droplet size were performed under the following conditions with distilled water, glycerin-water solutions, ethanol and *n*-propanol as the working fluid; applied voltage 9.0 to 17.5, mass flow rate 1.3 to 18 g/min, electrode separation 60 to 120 mm.