

論 文

大気中で球形の帶電粒子が保持できる 最大電気量の推算

中島 耀二*,¹, 佐藤 孝**,²

(1998年12月7日受付; 1999年2月2日受理)

Estimation of Maximum Charge Sustainable for a Spherical Particle in Normal Air

Yoji NAKAJIMA*,¹ and Takashi SATO**,²

(Received December 7, 1998; Accepted February 2, 1999)

The knowledge of the maximum charge sustainable for a spherical particle in normal air is very important for discussions of electrohydrodynamic phenomena of charged droplets. The electrospray ionization for mass spectrometry, for instance, is feasible only if no electron avalanches occur in spite of very high electric field strength near the surface of charged droplets. The authors have reported experimental evidence of electron avalanches around glycerol droplets evaporating in normal air, but recent measurements reveal that the results should be reconsidered. In this paper an estimate of the maximum charge for negative particles is presented. The estimation is based on the classical theory of Townsend for inception of negative corona discharge. The calculated result implies that the maximum charge in normal air is on the same level of the theoretical value of the Rayleigh limit for water droplets.

1. はじめに

帶電液滴の挙動に関する研究は静電スプレーなどとの関連で盛んに行われているが、それに関連した測定はたいへん大気中で行われている。このときもし、液滴粒子の周りの空気中で電子なだれによる絶縁破壊が起っているならば電気流体力学的な考察ばかりではなく放電理論も考慮して解析する必要がある。また最近、質量分析を目的にした物質のイオン化法として静電スプレーを利用する方式が提案されているが¹⁾、これは荷電液滴が蒸発する際に電気流体力学的な分裂のみが起こり、液滴表面のイオンを再結合させてしまう絶縁破壊が発生しないことを前提にしている。こうした重要性があるにもかかわらず、球形粒

子が大気中で絶縁破壊を起すことなく保持しうる最大電気量に関してはあまり研究されていない。

筆者らはこの方面に興味を持ち若干の報告をしてきた。²⁾以前の学会発表³⁾でグリセリン液滴のまわりで絶縁破壊の発生を示唆するデータを紹介したが、ここではまず、雰囲気ガスを変えた測定結果などによって、それらのデータも絶縁破壊の結果としては受け入れにくいことを報告する。つぎに Townsend の放電理論に基づいて負に帯電した粒子の最大電気量に関する推算式を提案する。なお習慣にしたがい、本報の式では電荷の符号を省略して記す。

2. グリセリン液滴の測定データの特異性

筆者らは、筆者らが以前から用いている電界振動凝集の実験装置⁴⁾を利用して、蒸発する帶電液滴の粒子径と電気量の変化を測定した。この装置では四重極交流電界で LDV の測定部に閉じ込めた 1 個の帶電液滴を電界で振動させ、その粒子の直径と電荷の変動を追跡できる。粒子径の測定誤差は直径数 μm の粒子に対して $\pm 15\text{nm}$ 程度であり、Taflin らの装置⁵⁾に比較すると粒子径測定の精度が若干劣るが、彼らが液滴の Rayleigh 分裂時に観測したように、粒子径に 0.5% 程度の変化があれば確実に検出できる。また電気量の測定精度は彼らの装置よりも高く、その推定誤差は $\pm 2\%$ 以内であるので、今回の測定目的には十分であ

キーワード: 帯電粒子、帶電液滴、Rayleigh 限界、最大電気量、気体の絶縁破壊

*北海道大学大学院工学研究科物質工学専攻 (060-8628 札幌市北区北 13 西 8)

Division of Materials Science and Engineering,
Graduate School of Engineering, Hokkaido University,
Kitaku, Sapporo, 060-8629, Japan

**北海道工業大学電気工学科 (006-8585 札幌市手稲区前田 7 条 14 丁目)

Department of Electrical Engineering, Hokkaido
Institute of Technology, Maeda, Teineku, Sapporo,
006-8585, Japan

¹ yoji@eng.hokudai.ac.jp

² tsato@hit.ac.jp

る。しかし測定部に閉じ込められた余分な液滴を取り除き一個だけにするのに時間がかかるため、沸点が540K程度以上の揮発性の低い液体しか測定していない。

図1に負に帯電した Di-n-butyl Phthalate(以降DBPと略記する)液滴が常温常圧の清浄な空気中で蒸発するときの粒子径と電気量の変化を示した。液滴が蒸発しても電荷はある限界までは一定に保たれ、液滴表面のイオンが殆ど蒸発しない事がわかる。しかし液滴径がその電気量で定まる限界値に達すると、電気量と粒子径が階段状に同時に減少する。Rayleighの理論⁶⁾にしたがえば表面張力 γ 、直径 D_p の球形液滴が誘電率 ϵ の大気中で電気力学的な安定性を失う限界の電気量は

$$q_{RL} = \pi \sqrt{8\epsilon\gamma D_p^3} \quad (1)$$

と表せる。帶電液滴のRayleigh分裂については古くから観測されており、実際に分裂が起こる電気量は(1)式の限界値 q_{RL} よりも若干低いことが知られている⁵⁾。図1の電気量の階段図には電荷放出時の限界電気量をそのときの液滴径に応じた(1)式のRayleigh限界値 q_{RL} で除した相対電気量(以降、相対限界電気量と呼ぶ)を書き添えた。その値は液滴径 D_p によらず q_{RL} の約95%で分裂が起っており、この図は典型的なRayleigh分裂の例であるといえる。

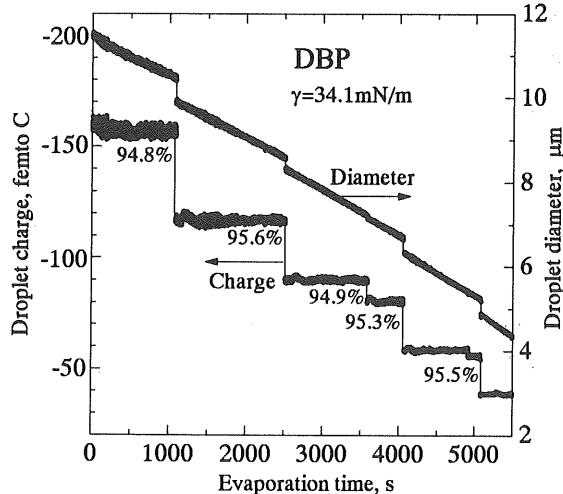


図1 Rayleigh分裂の典型例(DBP液滴)
Fig.1 Typical example of the Rayleigh disruption.
(Di-n-butyl Phthalate droplet)

(1)式からわかるように、限界電気量は表面張力が大きいほど大きい。グリセリンは表面張力($\gamma=63\text{mN/m}$)が大きいのでRayleigh分裂が起こる前に電子なだれが観測できる可能性がある。実際、図2に示したグリセリン液滴のデータでは図中の粒子径変化の拡大図に見られるように、直径8.1μmの液滴から非常に大きな電荷の放出が起ったときでさえ粒子径に不連続な変化が全く観測できること、

1回の電荷放出量が大きいこと、相対限界電気量がDBPに比較してかなり低く、しかもその値が蒸発の進行にしたがって低下することなど、典型的なRayleigh分裂をする液滴とは様子がはっきり異なることが明らかになった。

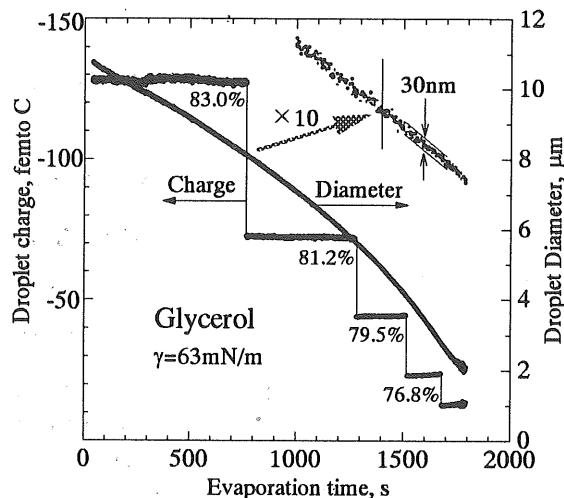


図2 蒸発するグリセリン液滴の電気量と粒子径の変化
Fig.2 Change in charge and diameter of an evaporating glycerol droplet.

Richardsonら⁷⁾はTaflinら⁵⁾と同様な装置を用い、Dioctyl Phthalate(DOP)液滴と硫酸液滴の電気的分裂現象を観測した。彼らは気体の電子なだれが起らないように真空中で測定している。彼らのDOP($\gamma=28.3\text{mN/m}$)の結果は典型的なRayleigh分裂の特徴を示しているが、硫酸($\gamma=55.4\text{mN/m}$)の結果は、筆者らのグリセリンの場合と同様に、相対限界電気量が低く、かつ電荷放出に伴う体積変化を示さない。彼らは、硫酸液滴では液滴が橢円体状に変形してTaylorコーンを発生し、その先端からイオンジェットが電界放出されると推論した。大気中では真空中におけるイオンの電界放出条件⁷⁾(4.7GV/m)より遙かに低い電界強度で電子なだれが発生するから、液滴の変形が少なくTaylorコーンが未発達の状態で空気の絶縁破壊が生じることが想像される。Richardsonらは硫酸がRayleigh分裂しない理由について言及していないが、硫酸よりも表面張力の大きいグリセリンでは更にRayleigh分裂し難いと考えれば図2を空気の絶縁破壊の結果であると解釈できそうに思える。

ところがグリセリン液滴の電荷放出を気体の絶縁破壊の結果とは受け入れ難いことを示唆する結果も得られた。すなわち、電荷放出の限界電気量と液滴径の関係に極性効果が全く観測されないこと、絶縁性のガスであるSF₆中と空气中で限界電気量に有意な差が認められないことである。図3は、正あるいは負に荷電した初期液滴径約14μmのグリセリン液滴を空气中およびSF₆ガス中で蒸発させたときの液滴径と電気量の関係である。電荷放出の起こる

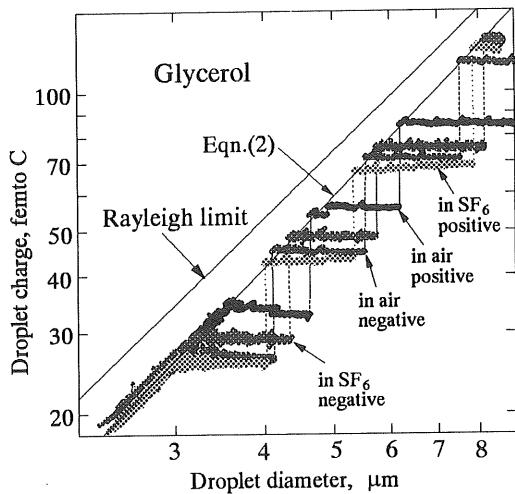


図3 異なる霧囲気ガス中で蒸発する異極性の
グリセリン液滴の電気量(絶対値)と粒子径の変化
Fig.3 Change (absolute value) in droplet charge and diameter
for evaporating glycerol in different polarity and gases.

限界電気量と液滴径の関係が電荷の極性やガスの種類に無関係であることがわかる。この図では省略したが、窒素ガス中でも全く同じ関係が得られた。この関係を数10組のデータを整理して実験式にまとめると、直径2~10μmのグリセリン液滴に対し、限界電気量 q_c [C]と液滴直径 D_p [m]の関係として次式が得られた。

$$q_c = 1.8 \times 10^{-5} D_p^{1.6} \quad (2)$$

更に次のような反証も見出された。図2で述べたようにグリセリン液滴の相対限界電気量は蒸発の進行にしたがって低下する。グリセリン液滴の蒸発に伴い(1)式の q_{RL} が小さくなるため液滴の電気量が一定でもRayleigh限界に対する相対電気量は上昇し、ある粒径に達すると電荷の放出が起こる。その結果、液滴径と相対電気量 (q/q_{RL}) の関係は図4のような鋸歯状の波形になる。電荷放出の機構が気体の絶縁破壊であれば、鋸歯状波の頂点(相対限界電気量)は液滴径だけで決まるはずである。ところが図4に示したように、蒸発開始時の液滴径が14μmの場合と4.4μmの場合には明らかな差が現われた。初期径14μmの場合の頂点は(2)式にしたがっているが、4.4μmの場合は10%ほど高い。この結果は電荷放出の機構を気体の絶縁破壊によるものであると仮定すると説明できない。

この現象はグリセリン中の不純物が蒸発にしたがい液滴表面に蓄積され、表面張力を著しく低下させると考えれば説明できる。そこで純度98.5%の特級試薬(関東化学製)と純度99.5%の蛍光分析用試薬(Merck社製)を用いて比較測定したが、有意な差は認められなかった。現在までのところこの現象の原因は解明できていない。なおこの測定はグリセリンの空気酸化や水分の吸収による表面張力の影響を避けるため窒素ガス中で行った。

最後に、絶縁破壊を起こしやすいアルゴンガス中で測定し、電子などが生じる時にはどのようなデータが観測できるかを調べた。その結果、負に帯電したグリセリン液滴の場合、直径6μm以上では(2)式の限界値に達する前に放電が生じ、しかも放電限界値と粒子径の関係に確率過程的な揺らぎが見られた。また正粒子は6μm以上でも限界値が(2)式にしたがう事から極性効果の存在が確認できた。これらのことから6μm以上の負粒子ではアルゴンガスの絶縁破壊による電荷の放出が生じたものと信じられる。図2、3のデータはこのような絶縁破壊の特徴を持たない。

上記の理由によって、(2)式を空気の絶縁破壊で決まる最大電気量としては受け入れ難いが、最大電気量の下限と見なすことはできる。すなわち大気中の球形粒子の表面で絶縁破壊が起るのは粒子の電荷が少なくとも(2)式の q_c を超えてからである。この事は、例えば直径5μmの粒子では、その粒子の表面電界強度が85MV/m以上にならないと空気の絶縁破壊が起らないことを意味し、この値は大粒子の場合に対する約3MV/mより28倍も大きい。

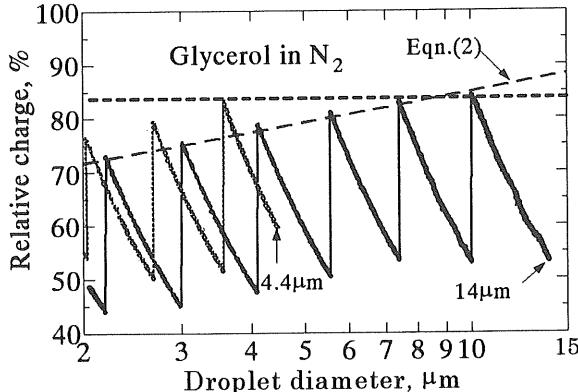


図4 窒素ガス中におけるグリセリン液滴の限界電気量
と液滴径の関係
Fig.4 Relationship between the critical charge and droplet
size for glycerol in nitrogen gas.

3. 最大電気量の推算 I

最大電気量の実験式が得られなかったので、本節では今までに提唱されている説を紹介し、若干の検討を加える。

3.1 Crowley の説⁸⁾

細かい議論を差し置くと、大気中の絶縁破壊電界強度はおよそ3MV/mである。また、いわゆる Paschen曲線には最小放電電圧があって、大気中では約300Vである。これは平等電界の観測から得られた知見であるが、球の周りの不平等電界でも上記の両方の条件が満足されたときに放電が起こると仮定すると直径 D_p [m]の球形粒子が保持できる最大電気量 q_{max} [C]として次の関係式を得る。

$$q_{\max} = 600\pi\varepsilon D_p \quad \text{for } D_p \leq 2 \times 10^{-4} \text{ m}$$

$$q_{\max} = 3 \times 10^6 \pi \varepsilon D_p^2 \quad \text{for } D_p > 2 \times 10^{-4} \text{ m} \quad (3)$$

この説は大まかな目安をつける目的に提案されたようで、極性効果のような細かい議論が無視されているばかりでなく、平等電界と不平等電界の重大な差異についても考慮されていない。

3.2 Elghazaly らの説⁹⁾

この説では、Meek¹⁰⁾の正ストリーマ理論に基づいた Hartmann のコロナ開始電界強度（コロナ放電が開始されるときの電極表面の電界強度）に関する半理論式¹¹⁾を用い、正荷電粒子のまわりでストリーマによる放電が発生する限界値を推定している。Hartmann の式との電極形状の違いは Berger¹²⁾が提唱した相当陽極半径の概念を導入して吸収している。原報では圧力や湿度の効果も論じられており、直径 20μm～1mm の水滴につき、Rayleigh 限界に対する相対値が図示されている。それによれば、常温、常圧、湿度 60% の空气中では、水滴から正コロナが発生する限界電気量が水滴の Rayleigh 限界より 2～20% くらい高い所にあることが示されている。わずか 2 点ではあるが、減圧下での実験値と理論推定値のよい一致が示されている。ただし Hartmann が用いた陽極付近の電界に対する近似式¹¹⁾は、球電極の場合、限界なだれ長さ L が球半径よりも十分に小さくなければ成立しない。この点を考慮すると Elghazaly らの説は直径数 100μm 以下の粒子には適用できないが、その点さえ改善すれば正に荷電した粒子からの放電を予測する理論として説得力がある。

3.3 Townsend の放電理論に基づく説

筆者らが本報で提案する計算法も Townsend の放電理論に基づいており、その詳細は次章で述べる。Townsend の理論をよりどころにする以上、陰極からの 2 次電子放出の寄与が重要であるので、以下に紹介する理論は負に帶電した粒子からの放電に限られる。

Schumann の著書¹³⁾に細い電線表面でコロナ開始電界強度に関する実測データと、Townsend の放電理論に基づいた理論的な解析が詳細に解説されている。更に、同じコロナ開始電界強度を与える球と円柱（電線）を比較すると、球の直径は円柱の直径の 2 倍になる事が近似理論によって指摘されている。Harper¹⁴⁾はこの結果に着目し、電線のコロナ開始電界強度 E_{bk} [V/m] に関する実験式を球の場合に拡張し、 q_{\max} [C] と D_p [m] の関係として次式を提案した。

$$E_{bk} = 1.14 \times 10^6 D_p^{-0.3} = q_{\max} / \varepsilon \pi D_p^2$$

$$q_{\max} = 3.17 \times 10^{-5} D_p^{1.7} \quad (4)$$

しかし Schumann の原著を詳しくたどると、上記の近似理

論は直径数 100μm 以上の球形粒子に対してのみ有効であることがわかる。

Pedersen¹⁵⁾は Paschen 曲線の $p_{20}d > 0.8 \text{ kPa cm}$ の領域を簡単な式で近似し、Townsend の放電開始条件式から 2 次電子放出係数 γ が関係する項を巧妙に消去した。その結果にしたがうと大気中での放電開始条件は次式で表せる。

$$\int_0^{z_0} \left\{ \frac{E}{p_{20}} - B \right\}^2 dz = \frac{C^2}{p_{20}} \quad (5)$$

ここで E [V/cm] は電界強度であり、 p_{20} [kPa] は 20°C での空気密度が放電雰囲気の空気密度と同じになる圧力である。また B と C は空気の Paschen 曲線から求められ、それぞれ

$$B = 242 \text{ V/cm kPa}$$

$$C = 658 \text{ V/(cm kPa)}^{1/2} \quad (6)$$

となる。また積分の上限 z_0 [cm] は実効電離係数が 0 になる位置、つまり電界強度が $E = p_{20}B$ となる位置である。一様に帶電した球の周りの電界強度は簡単に計算できるので(5)式から球表面でのコロナ開始電界強度、したがってその球が保持しうる最大電気量 q_{\max} [C] と球の直径 D_p [m] の関係が計算できる。筆者らの計算によれば、その結果は直径 1μm～1cm の範囲で次の式で近似できる。

$$q_{\max} = 1.05 \times 10^{-4} D_p^2 \left(1 + \frac{4.87 \times 10^{-2}}{D_p^{0.493}} \right) \quad (7)$$

ただし、Paschen 曲線における $p_{20}d > 0.8 \text{ kPa cm}$ の制限は換算電界強度では $E/p_{20} < 1 \text{ kV/cm kPa}$ の制限に相当し、直径数 100μm 以下の粒子への適用は疑問視される。

3.4 諸説の比較

ここに紹介した推算法による計算結果を図 5 に示した。Elghazaly らの方法では Hartmann¹¹⁾の論文を参照すれば任意の温度、圧力、湿度の空気に対する計算が可能である。ここでは 20°C、101.3kPa、湿度 60% ($H=10.3 \text{ g/m}^3$) の空気に対する計算結果を示した。

図中に示した破線は水の Rayleigh 限界の理論値である。水は身近な液体としては表面張力 ($\gamma = 72 \text{ mN/m}$) が大きく、液体金属を除けば静電スプレイで用いられる液体の上限と考えてよい。筆者らの装置では測定空間に閉じ込めた液滴を 1 個にするのに時間がかかるため、水は蒸発が速すぎて測定できないが、静電場で浮遊させた直径数 10μm 以上の水滴については既に報告^{16,17)}がある。それらの結果は水滴が大気中で Rayleigh 限界付近の電荷を保持しうる事を示しており、Crowley の予想値より 5 倍程度も大きい。有機液体のように表面張力の小さな液滴でさえ Crowley の値を超える実測値が多数報告⁹⁾されている。この事実と、この説が少々粗すぎる仮定を含むことから、この説を否定的

に評価せざるをえない。

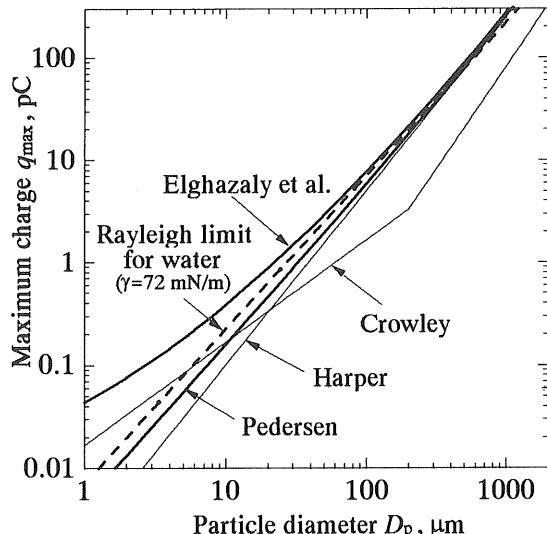


図5 球形粒子が空気中で保持できる最大電気量の計算値
Fig.5 Calculated values of the maximum charge sustainable for a spherical particle in normal air.

Crowleyの説を除けば直径数100μm以上ではほぼ同じ結果を与えており、前述のようにElghazalyらの説は陽極付近のストリーマに関する考察から導かれた結果であり、他の2者はTownsendの放電理論をよりどころにしているにもかかわらず、それらがほぼ同じ予想値を与える事は興味深い。Dawson¹⁸⁾は減圧空気中の水滴からの放電測定に基づき、大気圧の空気中では絶縁破壊による水滴の放電は起らないと結論している。HarperおよびPedersenの予測値は直径約500μm以下で水のRayleigh限界を下回っており、上記の結論と矛盾する。しかしこれはTaflinら⁵⁾の測定などで指摘されているように、実際のRayleigh分裂は理論値より10~20%程度低い電気量で起こることと、彼らの理論が直径数100μm以下では正しく成立しない近似を含んでいることを考えると、Dawsonの結論はTownsendの放電理論に基づく考え方を否定するものではない。

4. 最大帶電量の推算Ⅱ

上述したとおり、直径100μm以下の粒子に対しても理論的な妥当性を失なわない推算法は提案されていない。正荷電粒子に対するElghazalyらの説はHartmannの計算に含まれる電界の近似式を帶電球の周りの厳密な(しかも簡単な)電界式に置き換えれば微粒子にも適用できるはずであるが、残念なことにHartmannの原報¹¹⁾に記載された空気の電離係数に関する実験式の係数が誤記されていて、それを修正しなければ計算できない。本報では負に帶電した粒子に限り、Townsendの放電理論に基づいたHarperおよびPedersenの理論を再構築する。

陰極を出発した電子は、電界強度がある程度強ければガス分子を電離しながら陽極に向う。その結果、陰極には出発電子1個当たり

$$\exp\left(\int_{r_0}^{r^*} \alpha dx\right) - 1$$

個の正イオンが到来し、ある確率 γ で2次電子を放出する。したがって放電が自続的になる条件は

$$\gamma \left\{ \exp\left(\int_{r_0}^{r^*} \alpha dx\right) - 1 \right\} = 1 \quad (8)$$

$$\text{つまり } \int_{r_0}^{r^*} \alpha dx = \ln\left(1 + \gamma^{-1}\right) = k \quad (9)$$

ここで α は電離係数、 γ は2次電子放出係数、 r_0 は陰極表面、 r^* は付着係数を差し引いた実効電離係数が0になる位置(空気の場合 E/p_{20} が243 V/cm kPaになる位置¹⁹⁾である。なおHeldら²⁰⁾は放電条件式として一見異なる

$$\gamma \int_{r_0}^{r^*} \alpha \exp\left\{\int_{r_0}^r \alpha dr'\right\} dr = 1$$

を採用しているが、これは α が位置の関数であっても(8)式と数学的に同等である。

空気の電離係数 α についてはDutton²¹⁾が広い範囲のデータをまとめているのでそれを図6に示した。ただし図中の○は文献¹⁹⁾にあった空気の実効電離係数である。換算電界強度 $E/p_{20}=500$ [V/cm kPa]あたりでDuttonのデータと滑らかに接続している。微粒子の周りの強度な不均等電界では電子の増殖の起こる主領域は粒子表面近傍の強電界域であるから、(8)式のように電子の付着係数を電離係数に比較して無視しても妥当である事が図から了解できる。図示した換算電離係数 $\alpha/p_{20}[(\text{cm kPa})^{-1}]$ は換算電界強度

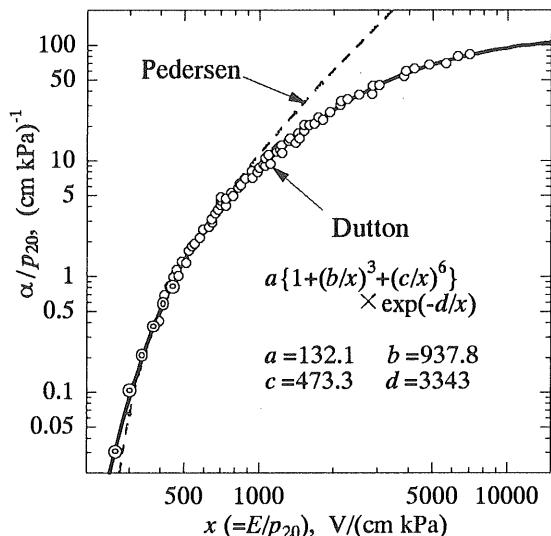


図6 空気の実効電離係数

Fig.6 Effective ionization coefficient of air.

E/p_{20} [V/cm kPa]の関数として次式で近似できる。

$$\frac{\alpha}{p_{20}} = 132.1 \left\{ 1 + \left(\frac{937.8}{E/p_{20}} \right)^3 + \left(\frac{473.3}{E/p_{20}} \right)^6 \right\} \times \exp \left(- \frac{3343}{E/p_{20}} \right) \quad (10)$$

図中の破線は Pedersen の計算で推算される α/p_{20} であるが、 $E/p_{20} < 1$ kV/cm kPa ではよい近似になっている。

2次電子放出係数 γ は適当なデータが見あたらないので図 7 の Paschen 曲線²²⁾から逆算した。この Paschen 曲線は

$$V_{bk} = \left(247.5 p_{20} d + 649 \sqrt{p_{20} d} \right) \times \left\{ 1 + \frac{0.0512}{p_{20} d} + \left(\frac{0.01572}{p_{20} d} \right)^2 + \left(\frac{0.02784}{p_{20} d} \right)^4 \right\} \quad (11)$$

で精度よく近似できる。ここで V_{bk} [V] は絶縁破壊電圧、 d [cm] は電極間隔である。 V_{bk} を $p_{20}d$ [kPa cm] で除せば平等電界で絶縁破壊が起こる換算電界強度が求められる。その値を(10)式に代入し α/p_{20} を求め、更に $p_{20}d$ を掛ければ αd すなわち平等電界に対する(9)式の電離積分 k [-] が得られ、これから 2 次電子放出係数 γ [-] もわかる。2 次電子放出は陰極面上の現象なので換算電界強度に陰極面上の値を使えば図 8 に示した結果は不平等電界にも使用できる。ただし k より γ は陰極材料にも関係するので、厳密にいえば図 8 は真鍮に対する値である。また直径数 mm 以下の球形粒子からの放電を考慮する場合には、図 8 の $E/p_{20} > 500$ [V/cm kPa] の領域が問題になるが、図 6 の電離係数の実測データが $E/p_{20} = 7000$ [V/cm kPa] 付近までしか報告されていないので図 8 では相当する部分を破線にした。

最大電気量 q_{max} の計算は圧力 p_{20} を 101.3 kPa に固定して次のような試行錯誤法によって計算した。

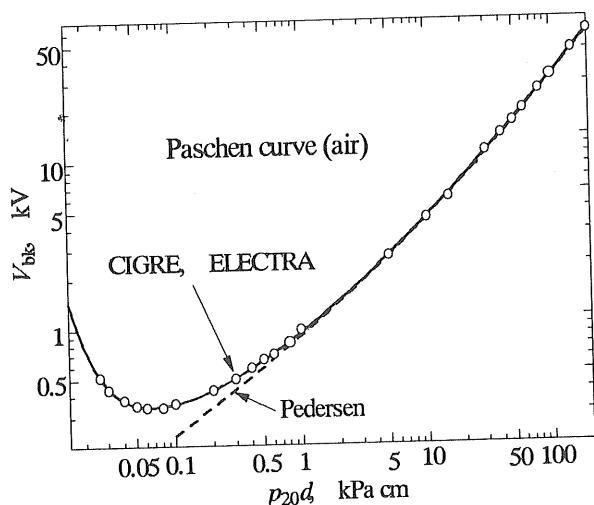


図 7 空気の Paschen 曲線（陰極：真鍮）
Fig.7 Paschen curve for air. (cathode : brass)

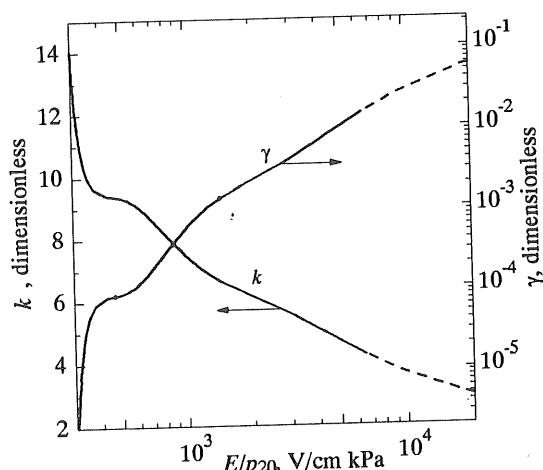


図 8 γ と k の換算電界強度依存性
Fig.8 Dependence of γ and k on reduced field strength.

- 1) 粒子半径 r_0 を適当な値に設定する。
- 2) その粒径に対する最大電気量 q_{max} を仮定する。
- 3) 粒子表面の電界強度 $E_0 = q_{max} / 4\pi\epsilon r_0^2$ を計算する。
この値に対する電離積分 k を図 8 から読み取る。
- 4) 半径 r での電界が $E = E_0 r_0^2 / r^2$ である事に留意し
(10)式を用いて(9)式を積分する。
- 5) 3) で求めた k と 4) の積分値が一致するまで 2) の
 q_{max} を修正して計算を繰り返す。

図 9 はこうして求めた計算結果である。直径 10 μm 以下の計算には、電離係数を図 6 の実線のように測定範囲外に外挿する必要があったので図 9 ではその部分を破線で示した。この数値計算の結果を直径 1 μm ~ 1 cm の範囲で近似式にまとめたところ q_{max} [C] と粒子直径 D_p [m] の関係は次のように表わせた。

$$q_{max} = 112 \times 10^{-4} D_p^2 \left\{ 1 + \frac{3.08 \times 10^{-2}}{D_p^{0.540}} + \frac{4.48 \times 10^{-7}}{D_p^{1.41}} \right\} \quad (12)$$

図 9 には Elghazaly らと Pedersen の方法による結果も合わせて示してある。本報の推算法では両者の中間になった。参考のため筆者らが観測したグリセリン液滴の限界電気量(2)式も示してあるが、最大電気量は必ずこれ以上でなければならない。ところが Pedersen の結果は直径 10 μm の位置でこのデータより約 13% 下まわっているので、この粒子径域では Pedersen の推算法は妥当性を失っているといえる。Elghazaly らの推算には明らかな破綻は見られないものの、理論的には適用領域を越えており、図 9 に示した Elghazaly らの結果は必ずしも妥当であるとはいえない。

本節で筆者らが提案した推算法の難点は γ あるいは k の物質依存性を評価していないことである。厳密な立場をとると負に帯電した真鍮粒子の最大電気量を求めたにすぎ

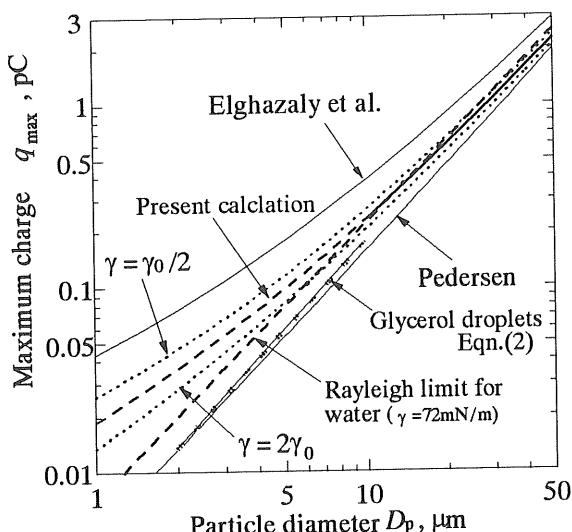


図9 球形粒子が空気中で保持できる最大電気量の計算値
Fig.9 Calculated values of the maximum charge sustainable for a spherical particle in normal air.

ない。もし2次電子が液体本体の中性分子から放出されるなら γ は非常に小さく(k は大きく)なるであろう。しかし負に帯電した液滴からの2次電子は液体分子からではなく、液滴表面の負イオンから剥離して放出されるであろう。この場合には γ が図8に示した程度になることはありそうに思える。とくに大気中に発生した負イオンを付着して帯電した液滴であれば、イオン種は液滴の種類に関係しないものと考えられ、その場合には γ および k は液滴の種類にほぼ無関係になる。図9の計算結果の上下に描いた点線は、図8で求めた2次電子放出係数 γ_0 を2倍にした場合と $1/2$ にした場合の結果であるが、この程度の変動であれば γ の影響はあまり大きくなないと見える。

5. まとめ

表面張力の大きなグリセリン液滴を帯電して蒸発させたところ Rayleigh 分裂する前に気中放電が起っていることを示唆する測定結果が得られたので、この測定から球形粒子が大気中で保持しうる最大電気量に関する知見を得ることを試みた。しかし確認のため種々の測定をしたところ、グリセリン液滴の周りでも空気の絶縁破壊が起っているとは考えにくいことが示された。

そこで球形粒子からの放電に関する既往の理論を精査したところ、いずれの理論も直径数100μm以下の粒子にあてはめるには理論的な欠陥を持っていることがわかった。この点を改善するため、信頼性の高い電離係数と Paschen 曲線を用い陰極からの2次電子放出係数(実際にはそれに相当する電離積分)を算出して、空気中で負に帯電した粒子が保持し得る最大電気量を推算した。これにより推算領域の理論的信頼下限を直径 10μm まで拡張できた。この数

値計算結果を直径 1μm ~ 1cm の範囲で(12)式で近似した。

ここに提案した推算法によれば、球形粒子が大気中で保持できる最大電気量は直径 10μm 以上の粒径域では水滴の Rayleigh 限界の理論値とほぼ同じレベルにあり、100μm 前後ではそれを 10% 程度下まわる。実際の Rayleigh 分裂は理論値より低い電荷で起こるといえ、電離係数が増大する高温、高湿の環境で 100μm 前後の高帯電水滴が関係する現象を扱う場合には、電気流体力学的な現象のみならず絶縁破壊が発生する可能性を考慮する必要がある。しかし多くの有機液体の表面張力は水の 1/2 以下なので、通常の大気環境では電気流体力学的な現象が支配的になろう。

この研究に対しホソカワ粉体工学振興財団より助成を受けた。また限界電気量の測定は北大院工学研究科修士課程学生、阿部秀雄君の努力によるところが大きいことをここに付記して謝意を表する。

参考文献

- 1) J.B.Fenn, M.Mann, C.K.Meng, S.F.Wong and C.M. Whitehouse : Science, 246, 6 October (1989) 64
- 2) 浜本伸夫, 中島耀二, 佐藤孝 : 静電気学会誌, 15 (1991) 452 および J.Electrostat., 28 (1992) 161
- 3) 中島耀二, 佐藤孝 : 静電気学会講演論文集 '96, p.81, 静電気学会 (1996)
- 4) 中島耀二, 小室弥栄, 佐藤孝 : 静電気学会誌, 18 (1994) 49 および J.Electrostat., 34 (1995) 37
- 5) D.C.Taflin, T.L.Ward and E.J.Davis : Langmuir, 5 (1989) 376
- 6) Lord Rayleigh : Phil.Mag., 14 (1882) 184
- 7) C.B.Richardson, A.L.Pigg and R.L.Hightower : Proc.R. Soc. Lond., A422 (1989) 319
- 8) J.M.Crowley : *Fundamentals of Applied Electronics*, p.28, Krieger Pub.Co. Malabar, Florida (1991)
- 9) H.A.Elghazaly and G.S.P.Castle : Phys.Conf. Ser. No.85: Poster Session 1, Electrostatics '87, Oxford, p.121, IOP Publishing, Bristol (1987)
- 10) J.M.Meek : Phys.Rev., 57 (1940) 722
- 11) G.Hartmann : 1980 Proc. IEEE-IAS Conf., p.1113, IEEE, Piscataway, N.J. (1980)
- 12) G.Berger : 1980 Proc. IEEE-IAS Conf., p.1108, IEEE, Piscataway, N.J. (1980)
- 13) W.O.Schumann : *Elektrische Durchbruch-feldstarke von Gasen*, p.85 & 192-197, Springer-Verlag, Berlin (1923)
- 14) W.R.Harper : *Contact and Frictional Electrification*, p.13-15, Oxford Univ. Press, London (1967)
- 15) A.Pedersen : IEEE Trans.Electrical Insulation, 24 (1989) 721
- 16) A.Doyle, D.Read Moffett and B.Vonnegut : J.Colloid Sci., 19 (1964) 136
- 17) M.A.Abbas and J.Latham : J.Fluid Mech., 30 (1967), part4, p.663
- 18) G.A.Dawson : J.Geophys.Res., 78 (1973) 6364
- 19) 坂本三郎, 田頭博昭 : 新高電圧工学, p.55, 朝倉書店 (1974)
- 20) B.Held, N.Soulem, R.Peyroux and N.Spyrou : 電学論 A, 116 (1996) 925
- 21) J.Dutton : J.Phys.Chem.Ref.Data, 4 No.3 (1975) 730
- 22) CIGRE, Electra, No.32 (1974) 61