

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 15 日現在

機関番号：22604

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2011～2012

課題番号：23740409

研究課題名（和文） テイラーコーンを利用した大気圧コロナ放電の生成とプラズマリアクタへの応用

研究課題名（英文） Generation of atmospheric negative corona discharge using Taylor cone and its application for plasma reactor

研究代表者

白井 直機（SHIRAI NAOKI）

首都大学東京・大学院理工学研究科・助教

研究者番号： 80552281

研究成果の概要（和文）：

液体を針電極とした大気圧負コロナ放電の特性を調査した。液体の針電極として、液体が電界によって円錐形上に変形するテイラーコーンを利用した。内径 10 mm 程度のノズル電極に液体を満たし、電極間を 10 mm 程度離して対抗電極には金属平板電極を用いる。電極間に直流電圧を印加することでテイラーコーンが形成される。液体の特性を変化させるために、純水に界面活性剤であるドデシル硫酸ナトリウムを添加して表面張力を変化させ、ポリビニルアルコールを用いることで溶液の粘性を変化させた。純水は表面張力が高いためにテイラーコーンが安定に形成されないが、界面活性剤により表面張力が低下すると、安定にテイラーコーンが形成され、その先端には安定にコロナ放電が形成される。液体の粘性が増加すると、液体の表面から細い液体のフィラメントが形成され、コロナ放電はコーンの情報-7-1.0 mm 程度のところに観測された。液体の導電率が増加すると、コロナ放電の発光は強くなり、コロナ生成電圧は低下した。金属針電極を用いた場合はコロナ放電は印可電圧やギャップ間によって変化するが、テイラーコーンを用いた場合には、金属針電極の場合とは異なるコロナ放電の特性が観測された。

研究成果の概要（英文）：

We examined characteristics of atmospheric negative corona discharge using liquid needle cathode. As a liquid needle cathode, we adopted Taylor cone with conical shape. A nozzle with inner diameter of 10 mm is filled with liquid, and a plate electrode is placed at 10 mm above the nozzle. By applying a dc voltage between electrodes, Taylor cone is formed. To change the liquid property, we added sodium dodecyl sulfate to reduce the surface tension, sodium sulfate to increase the conductivity, and polyvinyl alcohol to increase the viscosity, in distilled water. The liquid, with high surface tension such as pure water could not form a Taylor cone. When we reduced surface tension, a Taylor cone was formed and the stable corona discharge was observed at the tip of the cone. When we increased viscosity, a liquid filament protruded from the solution surface was formed and corona discharge was observed along the filament at position 0.7-1.0 mm above from the tip of the cone. Increasing the conductivity resulted in the higher light intensity of corona and the lower corona onset voltage. When we use the metal needle electrode, the corona discharge depends on the voltage and the gap length. Using Taylor cone, different types of discharges were observed by changing the property of the liquid.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：プラズマ工学

科研費の分科・細目：プラズマ科学

キーワード：大気圧プラズマ、コロナ放電、テイラーコーン、液体電極

### 1. 研究開始当初の背景

大気圧下でも低温で高い電子エネルギーを有する大気圧非熱平衡プラズマは、従来必要条件であった低気圧環境という制約がなくなり、これまでにない応用が可能となるため注目されている。中でも液中や液体と接した大気圧非平衡プラズマの研究が医療応用、材料プロセス、水浄化技術などを目的として世界中で行われている。液体が介在した放電の場合、水中、噴霧雰囲気など様々な利用法があるが、応用研究が先行する一方で、気液界面での反応プロセス・物理現象の解明は、実験・シミュレーションを含めて、十分な理解はなされていない。

申請者はこれまでに、大気圧空気中で液体を電極とした直流駆動のマイクロプラズマを微細希ガス流を用いて安定にグロー放電として生成する手法を提案し、プラズマ液体界面の基礎的な解析を行うと同時に、界面で液中の金属イオンを還元することによるナノ粒子生成について検討してきた。

### 2. 研究の目的

本研究では、これまで行ってきた液体電極グロー放電より電流値の低いコロナ放電を生成し、大気圧プラズマリアクタとしての応用を目指す。コロナ放電生成のためには、電極近傍に強い電界強度を与える必要があるが、このテイラーコーンを液体針電極として先端にコロナ放電を生成する。大気中のコロナ放電は電気集塵技術や近年では空気浄化技術等へ応用されている。生成するために針先端電極等を用いて不平等電界により電極先端に高い電界を生成する必要があるが、針電極を用いた場合にはその先端の損耗等が問題になる。しかし、本研究で提案するテイラーコーンは液体を電界によって変形させるので電極の損耗等はなく、また印加電圧によって図1のように形状を制御することができる。また液相部分と放電部分の作用により従来の技術にはない新たな反応も期待できる。そこでまずテイラーコーン生成のための条件、先端で形成される放電特性を明らかにするとともにその応用方法について検討する。

### 3. 研究の方法

ノズル電極先端に液体を導入すると、表面張力によって液体は半球状になる。平板電極を陽極、ノズル電極を陰極として電圧を印加すると図1(a)の矢印の向きに電界が生じて液中

の陰イオンが液面付近に集まり、これらの陰

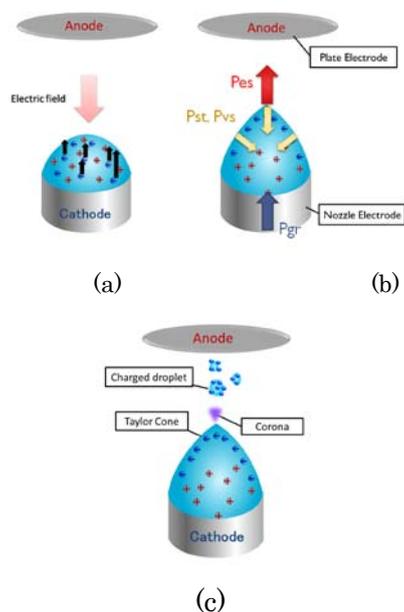


図1 テイラーコーン形成の原理

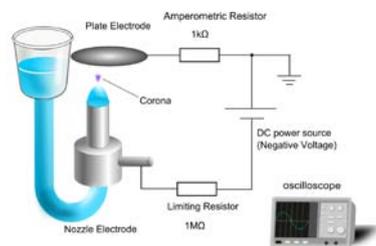


図2 実験装置

イオンと陽極間に静電気力が生じて液面が盛り上がる(6)。このとき、図1(b)に示す静電気力(Pes)、表面張力(Pst)、粘性力(Pvs)、内部から液体を押し上げる圧力(Pgr)が釣り合った際にテイラーコーンが形成される。この際にコーン先端の電界強度が放電開始に必要な値に達するため、直ちに放電が開始される。コーンの先端では液体が帯電微小液滴となり対向電極に噴霧され、コロナ放電からの発光が観測される(図1(c))。装置のパラメータとしては印加電圧やU字管の高さ、液体のパラメータとしては表面張力、導電率、粘性率、流量(8)などが非常に重要な役割を果たす。

本研究に用いた実験装置の概略図を図2に示す。実験は全て大気圧空気中で行う。内径1.0

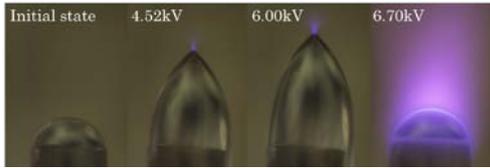
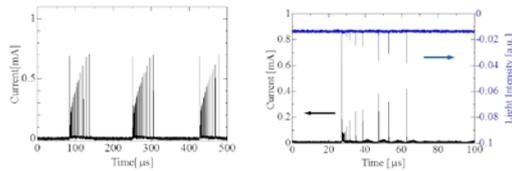


図3 濃度 10%の SDS 溶液を用いたときの液面形状とコロナ放電の様子



(a) 電流パルス群 (b) 電流パルス列

図4 4.52 kV 印加時の電流波形およびコロナ発光強度

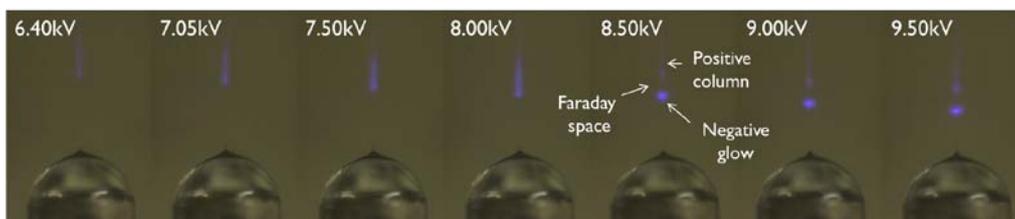
mm、外径 1.5 mm のステンレス製ノズルを陰極に、直径 80 mm のアルミ板を陽極にそれぞれ用いた。試液として純水にドデシル硫酸ナトリウムを混合した溶液（以後、SDS 溶液）及び純水にポリビニルアルコールを混合した溶液（以後、PVA 溶液）を用い、これをノズル電極に接続された U 字管の高さを調整し、過不足なく供給できるようにした。SDS には液体の表面張力を低下させる効果が、PVA には液体の粘性率を増加させる効果がそれぞれある。また、塩化ナトリウムを導電率の調整に用いた。電極間距離は 5 mm~20 mm の間で変化させ、1 M $\Omega$  制限抵抗を介して電極間に直流電源 (Matsusada: HAR-30R5) を用いて直流電圧を 0~-15 kV の範囲で印加した。コロナ放電の様子は拡大レンズ (Edmund: VZM-300) を接続した CCD カメラ (OLYMPUS: PEN E-PL2) を用いて、液面の様子はズームレンズ (LEICA: Z16 AP0) を接続した高速度ビデオカメラ (Photron: Fastcam SA3) を用いてそれぞれ観測した。放電プラズマからの発光は、光ファイバを介して分光器 (StellaNet: EPP2000C) により測定した。回路を流れる電流値は電圧プローブ (LeCroy: PP006A) を用いて、また、電極間電圧は高電圧プローブ (Tektronix: P6015A) を用いてそれぞれ測定し、デジタルオシロスコープ (LeCroy: WaveJet354A) 上で観測した。液体の導電率は導電率計 (HORIBA: D-54) で測定し、粘性率はデジタル回転式粘度計 (FUNGILAB: ONEL100026) で測定した。また、ノズル電極との比較用として、市販のニッケル製の縫い針を針電極として用い、同様の実験を行った。

#### 4. 研究成果

##### (4.1) SDS 溶液を用いた負コロナ放電

安定したテイラーコーンを生成するにあたり、エタノールのような表面張力の低い液体の使用が必須であることは先行研究で解明されている。本研究では SDS の表面張力を抑える界面活性剤としての性質に着目し、塩化ナトリウムを加えることで、液体の表面張力を低く維持したまま導電率を高め、安定したテイラーコーンとコロナ放電の生成を試みた。質量パーセント濃度 10%、導電率 11.5 mS/cm の SDS 溶液を用いて、電極間距離を 10 mm とした場合の典型的なコロナ放電の様子を図 3 に示す。電圧を印加すると表面張力によって半球状であった液面が盛り上がり、4.52 kV に達すると円錐状のテイラーコーンを形成し、その先端でコロナ放電が生じた。その際に微小な液体がコーン先端より噴出し、対向平板電極に堆積する様子が観測された。これは液体の表面に分布する負電荷の反発力によって、微小帯電液体となり分散する現象である。放電が生じると図 4(a) に示すような電流パルス群が 100  $\mu$ s 毎に観測された。図 4(b) で示すように、各パルス群は先頭の大きなパルス波形に付随する多数のパルスの集合で形成されており、時間経過で振幅、並びに周期が徐々に増加し、また、コロナ発光のタイミングが電流パルスの発生と同期していることが分かる。印加電圧を増加させると、電流パルス列を構成する各パルスの振幅、周期が共に増加してゆき、電圧が 6.0 kV に達すると、針電極を用いた際に観測されるトリチェルパルス) と酷似した電流波形となった。また、印加電圧の増加に伴うコーンの高さの増加は電界による力が強まることでテイラーコーンが変形し、対向平板電極に向かって引き伸ばされることが原因である。このように印加電圧によってコロナ放電位置が変化する現象は針電極では生じず、テイラーコーンを液体電極として用いたときの特徴の一つである。印加電圧が 6.70 kV に達するとテイラーコーンが消滅し、液面は初期状態のような半球状となりグロー放電と思われる放電形態に遷移した。

質量パーセント濃度で 0.2%、2.9%、10.0% の三種類の SDS 溶液を用いて、SDS の濃度をパラメータとしたときの電極間距離と放電開始電圧の関係を調べると、針電極を用いた際と同様に、電極間距離が広がるほど放電開始に必要な電圧は高くなるが、SDS 濃度を高めることで放電開始電圧が低下する。ここで、濃度 0.2%、2.9%、10.0% の SDS 溶液の導電率を計測したところ、それぞれ 0.49 mS/cm、3.01 mS/cm、11.50 mS/cm であったことから、放電開始電圧の低下は導電率の増加に起因するものであることが分かった。



(a) Single mode の様子



(b) Multiple mode の様子

図5 PVA 溶液を用いた際の液面形状とコロナ放電の様子（電極間距離 20mm, 導電率 20.1 mS/cm, 粘性率 35.0 mPa·s)



(a)水平方向より撮影 (b)30° 上方から撮影

図6 高粘性PVA 溶液を用いた際の液体フィラメントの回転の様子（電極間距離 20mm, 導電率 31.5 mS/cm, 粘性率 180.3 mPa·s)

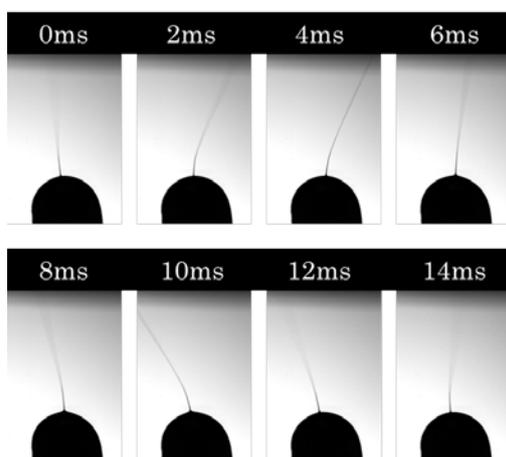


図7 高速ビデオカメラで撮影したフィラメントの挙動

の重要なパラメータである液体の粘性率に着目し、高い粘性率を有する PVA 溶液を用いて SDS 溶液を用いた際と異なる放電現象について検討した。

(1) 液体フィラメントの生成と分裂 ノズル電極を陰極として、電極間距離 20 mm、導電率 20.1 mS/cm、粘性率 35.0 mPa · s の PVA 溶液を用いたときの典型的なコロナ放電の様子を図 5 に示す。印加電圧が 6.40 kV に達すると、図 5 (a) のような液面の中心のみが微小なテイラーコーンを形成し、その先端から液体がフィラメント状となって対向電極に流出し、フィラメントの途中でコロナ放電が観測された。このように単一の液体フィラメントの途中でコロナ放電が生成される状態を single mode と呼ぶことにする。このときに観測された放電電流は数十  $\mu\text{A}$  程度で、DC 状となった。極性を変化させた場合も、放電は生じなかったが同様の電流が観測されたため、この電流は対向平板電極まで連続している液体フィラメントの内部を流れているものと考えられる。同時に、SDS 溶液や針電極で見られたパルス状の電流が観測されないことから、これらとは異なる物理現象で放電が維持されていると思われる。印加電圧を増加させると、液面からコロナの発光位置までの距離は減少し、発光強度は増加した。なお、8.5 kV 以上では液体フィラメントに沿って下から、球状の強い発光、暗部、広い領域に渡る弱い発光で構成される放電構造がはっきりと観測されたが、これは電界が強まったことで正イオンの  $\gamma$  作用が促進されて局部的に安定な定常グロー放電が生じていると考えられ、発光各部の構造は負グロー、ファラデー暗部、陽光柱に対応するものと思

〈4・2〉 PVA 溶液を用いた負コロナ放電 次に、テイラーコーン生成におけるもう一つ

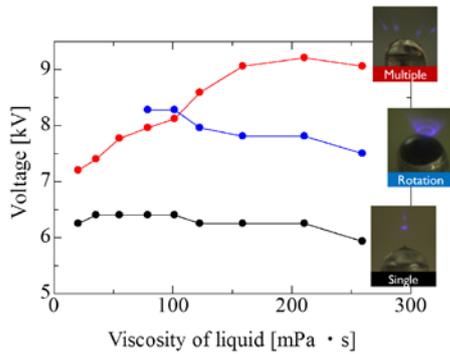


図 8 粘性を変化させた際の放電形態の変化

われる。

印加電圧が 7.5 kV に達すると single mode とは別に、液体表面の中央以外の場所の電界も強まり、図 5 (b) に示すように別の液体フィラメントが形成され、液面上を不規則に動き始めた。この状態で電圧を増加させると、液体フィラメントの本数が増加し、その全てのフィラメントでコロナが生じた。また、液体フィラメントの配置には対称性があることが分かるが、これはフィラメント内部に存在する陰イオンにより負に帯電したフィラメント同士が互いに反発し合い、最も安定な位置に落ち着くためであると考えられる。このような複数の液体フィラメントが形成される状態を multiple mode と呼ぶことにする。なお、7.5kV 以上では図 5(a) の single mode と (b) の multiple mode が混在しており、数秒単位で液体フィラメントの本数が変化した。

(2) 液体フィラメントの回転 粘性率を 180.3 mPa · s まで高めた PVA 溶液 (導電率 31.5 mS/cm) を用いて電極間距離 20 mm として放電させたところ、図 6(a) に示すように液体フィラメントが左右に振動しており、帯状のコロナが観測された。この現象を高速度ビデオカメラで撮影した様子を図 7 に示す。ここで、CCD カメラを地面に対して 30° 傾けて上方から観測したところ、液体フィラメントが方位角方向に約 14 ms の周期で高速回転していることが判明した。すなわち帯状のコロナは、フィラメントと共に回転するコロナの描く軌跡であった (図 6(b))。これを rotation mode と呼ぶことにする。テイラーコーン先端から離れた位置で液体フィラメントが曲がりながら回転する現象 (エレクトロスピンニング) に関して Alexander L. Yarin が提唱した理論によると、フィラメント中に均一に分布した電荷の電氣的反発力によってフィラメントの半径方向の力が生じるためと説明しているが、今回観測された回転状態も同様の原

理で生じているものと考えられる。

粘性率を変化させたときの各放電モードが観測される電圧をまとめると図 8 のようになる。粘性率を増加させると Single mode は粘性率に関係なくほぼ一定の電圧値になることが観測されたが、粘性率の増加に伴って multiple mode が観測される電圧値は増加し、反対に rotation mode が観測される電圧値は減少した。なお、粘性率が 80 mPa · s 以下の溶液では rotation mode は観測されなかった。

#### (4・3) 放電の発光スペクトル

SDS 溶液、PVA 溶液を用いた際に生じる負コロナ放電の発光スペクトルを調べるとどちらも波長 337 nm の窒素第二正帯を中心としたスペクトル帯が観測され、発光の主成分は大気中の窒素であることが分かる。PVA 溶液は導電率調整のために塩化ナトリウムを混合しており、また、SDS 溶液はそれ自体にナトリウムが含まれているが、溶液中のナトリウムイオンは発光に寄与していないことが分かった。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

① Naoki Shirai, Satoshi Uchida, Fumiyoshi Tochikubo, Self-organized Self-Organized Anode Pattern on the Surface of Liquid or Metal Anode in Atmospheric DC Glow Discharges, IEEE Tran. Plasma Sci. 2011 submitted.

② Naoki Shirai, Ryuto Sekine, Satoshi Uchida, Fumiyoshi Tochikubo, Atmospheric Negative corona discharge using Taylor cone as a liquid electrode, Japanese Journal of Applied Physics 投稿中

[学会発表] (計 6 件)

① 関根隆人, 白井直機, 内田 諭, 柝久保文嘉, 「テイラーコーンを用いた負極性コロナ放電の特性」 平成 24 年電気学会全国大会 1-105

② Naoki Shirai, Ryuto Sekine, Satoshi Uchida, Fumiyoshi Tochikubo, "Generation of atmospheric negative corona discharge using Taylor cone as liquid electrode", IUMRS-ICEM 2012, C-8-P26-015

③ Ryuto Sekine, Naoki Shirai, Satoshi

Uchida, Fumiyoshi Tochikubo, "Atmospheric negative corona discharge using a Taylor cone as liquid electrode", 65th Annual Gaseous Electronics Conference PR1.00071

④ 関根隆人, 白井直機, 内田 諭, 朽久保文嘉, 「液体電極を用いた大気圧負コロナ放電の生成と評価」 電気学会プラズマパルスパワー合同研究会 PST-12-133, PPT-12-156

⑤ 白井直機, 内田諭, 朽久保文嘉, 「液体電極を用いた大気圧グロー放電の特性と応用－発光の自己組織化と金属ナノ粒子生成－」 第12回プラズマ新領域研究会(招待講演) 東京大学 本郷キャンパス

⑥ Naoki Shirai, Satoshi Uchida, Fumiyoshi Tochikubo  
Plasma-liquid interfacial phenomena of atmospheric DC glow discharge using liquid electrode  
7th International Workshop on Microplasmas 2013 (招待講演)

[その他]  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

白井直機 (SHIRAI NAOKI)  
首都大学東京・大学院理工学研究科・助教  
研究者番号：80552281

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし