

論 文

エアロゾルによるイオン移動度分布の変化

藤岡伸宏*, 東谷邦彦**

(1987年6月26日受理)

Change of Ion Mobility Distribution with Aerosol

N. FUJIOKA* and K. HIGASHIYA**

(Received June 26, 1987)

This paper describes the differences of ion mobility distribution, generated by d.c. corona discharge, in a laboratory air and a clean air. Variations of the ion current I with the applied voltage ϕ were measured with a coaxial cylinder ion-counter. Using the calculated ion capture ratio of the ion-counter and the assumed ion mobility distribution, variations of the $I-\phi$ characteristics of the ion-counter were obtained in many cases. From the comparisons of the calculated $I-\phi$ curves with the experimental $I-\phi$ curves, ion mobility distributions were deduced. As the results, it is found that large ions ($k \approx 1 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{V}\cdot\text{s}$) are dominantly generated in the laboratory air, and small ions ($k \approx 1 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V}\cdot\text{s}$) are only generated in the clean air.

1. まえがき

最近のマイクロエレクトロニクスや精密機械などのハイテク産業および医療関連分野では、その作業空間中のエアロゾルの管理を厳格に行なうことがますます必要とされている¹⁾。気体中のエアロゾル計測法には種々のものがあり^{2,3)}、また最近では正極性コロナ放電の特性⁴⁻⁶⁾を利用して、サブミクロン粒子から分子イオンにおよぶエアロゾルを高感度で検出する方法が検討されてい^{7,8)}。従来の計測法のなかで、電気移動度法は、帯電したエアロゾルすなわちイオンの移動度分布を測定し、移動度と粒径の関係式からエアロゾルの粒径分布を導出する方法である。この方法は、自然大気中のエアロゾルの粒径分布測定に使用できるが、清浄大気に対してはその検出感度が不十分とされている。しかし計測対象の大気中エアロゾルをコロナ放電で予備帶電させれば、この欠点は改善でき、さらに電気移動度法の利点を生かして微量なエアロゾルの粒径分布を推定できる可能性が生じる。そこで通常の実験室大気中と清浄大気中のコロナ放電によりイオンを発生させ、同軸円筒型イオン計を用いてその電流-電圧特性を測定し、イオン計の動作特性の

計算結果⁹⁾と比較して、両大気中のイオン移動度分布を導いた。その結果、コロナ放電により、実験室大気中においては大イオンが、清浄大気中においては小イオンがおもに生成されることを見いたした。これらの結果について報告する。

2. 実験の装置と方法

図1に実験装置の概略を示す。断面積が $0.3 \times 0.3 \text{ m}^2$ 、長さが約 1.1 m の半密閉型鉄製容器③の中にコロナ放電電極①を設置し、直流正極性コロナ放電で発生させた正極性イオンをイオン計④で測定した。放電させた大気の条件は次の2種類である。すなわち第一の方法では、容器③の左端を開放し、実験室大気中のコロナ放電でイオンを発生させ、また第二の方法は容器の左端からエアフィルタ（アブソリュートフィルタD型、Cambridge 製）を通した清浄大気を流入させ、清浄大気中のコロナ放電でイオンを発生させた。両大気中のエアロゾルを、ポラックカウンタ②（PL 330型、ダン産業製）で測定した。なお直径 0.174 mm 、長さ 250 mm の銅線を 20 mm 間隔に9本張った放電線と、 3 mm メッシュの銅金網の平面電極を放電電極①として用いた。この場合、放電線と直流高圧電源の間に直流電流計を挿入してコロナ電流を測定した。図2に、同軸円筒型イオン計の断面図を示す。同図の左側からイオンを含む大気を吸いし、課電極②と大地間に直流電圧（直流安定化電源 415 B型、Fluke 製）を印加して、集電極①に捕集されるイオンの電流を、コネクタ⑥と大地間に挿入した高感度電流計

* 神戸大学工学部電気工学科 (657 神戸市灘区六甲台町 1-1)
Department of Electrical Engineering, Faculty of
Engineering, Kobe University, 1-1, Rokkodai-cho,
Kobe, 657 Japan

** 松下電工株式会社 (571 門真市大字門真 1048)
Matsushita Electric Works, Ltd., 1048, Oaza-Kado-
ma, Kadoma, 571 Japan

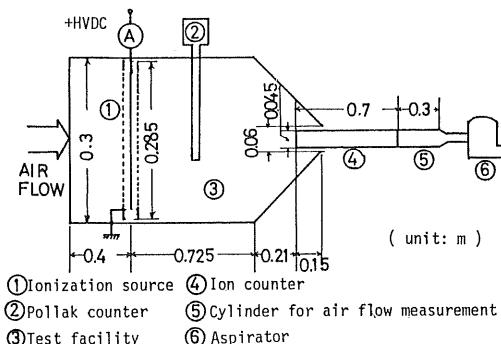


図1 実験装置

Fig. 1 Experimental setup.

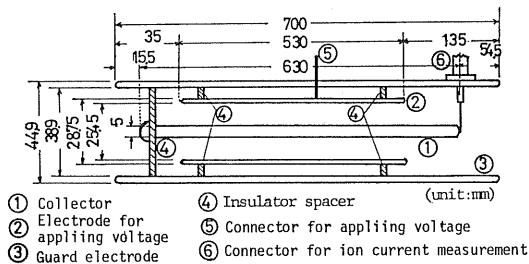


図2 同軸円筒型イオン計

Fig. 2 Coaxial cylinder ion-counter.

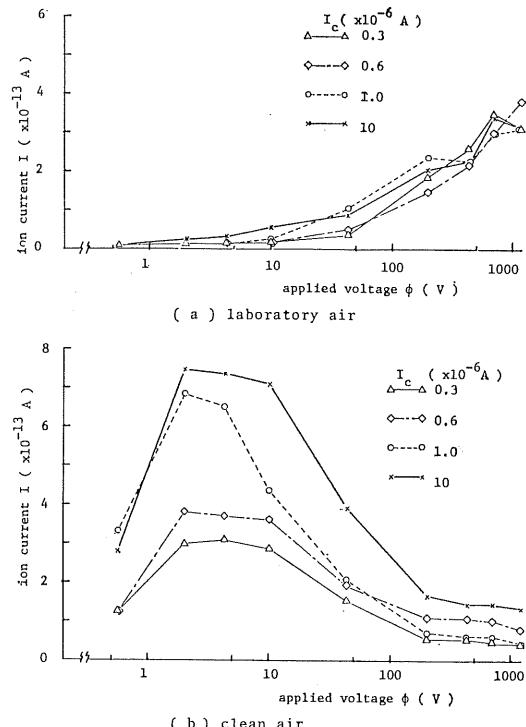
(84 M型, タケダ理研製)で測定した。なお実験室の気象条件は、温度が5~7°C、相対湿度が55~70%の範囲内であった。

3. 実験結果と検討

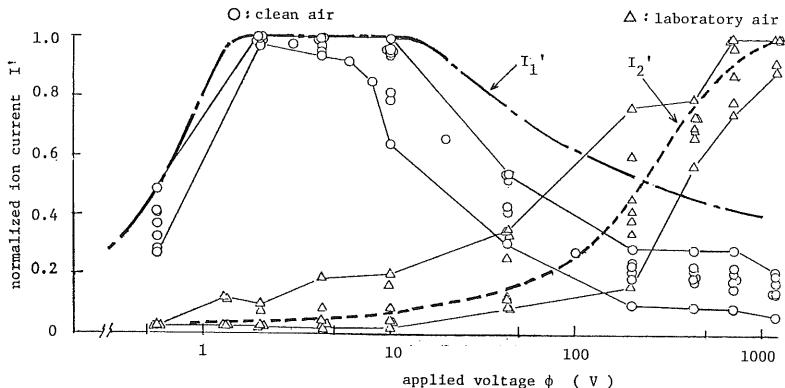
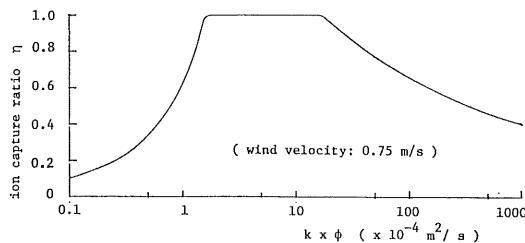
3.1 実験結果

図3に、イオン計への印加電圧 ϕ を変化させた場合のイオン計電流 I の変化特性を示す。なおパラメータはコロナ放電電流 I_c である。図3(a)は実験室大気中の測定結果であり、この場合には ϕ の増加とともに I がほぼ単調に増加する特性を示す。同図(b)は清浄大気中の測定結果であり、 ϕ を増加させると、 ϕ が約2Vまでは I が急速に増加し、 ϕ が2Vから10Vまでの範囲では I の変化が少なく、また ϕ が10V以上では I が減少する特性を示す。図3(a), (b)のイオン電流の大きさを比較すると、 ϕ が約70~150Vまでは清浄大気中のほうが実験室大気中よりもそのイオン電流が大きく、それ以上の ϕ では大小関係が逆転する。 I の大きさは、イオン計の捕集特性と被測定大気中のイオン移動度分布に関係するので、後述するように、両者を含めた検討が必要である。

図3(a)実験室大気の測定結果に及ぼす I_c の影響は明確でないが、同図(b)清浄大気の測定結果では I_c の

図3 イオン計の I - ϕ 特性(実測値)Fig. 3 Characteristics of I - ϕ of ion-counter (measured values).

増加とともに I が増加する特性が見られる。しかし、 I_c の影響は実験日により変化し、実験室大気中で I_c の小さい場合のほうが同じ ϕ に対する I が大きい結果や、また清浄大気中で I_c の影響が顕著でない結果も得られた¹⁰⁾。そこで I の最大値で規格化して電流 I' を縦軸にして、各条件における測定結果をまとめてプロットすると図4のようになった。なおこの場合に、ある ϕ における I' の最大値と最小値を直線で結んだ。同図から、ある ϕ における I' の値はばらつき幅を示すが、 I_c の値にかかわらず、両大気中の I - ϕ 特性の顕著な差、すなわち実験室大気中では ϕ の増加とともに I' は単調増加を示し、一方清浄大気中では ϕ のある範囲で I' は最大値を示すことなどが読み取れる。図中の I'_1 , I'_2 は計算結果で、これらについて3.2節で述べる。ポラックカウンタで両大気中のエアロゾル数密度を測定すると、実験室大気中ではエイトケン粒子(粒径 10^{-2} ~ 10^{-1} μm)に換算して $(1.1\sim 4.3)\times 10^{10}$ 個/m³であり、一方清浄大気中ではポラックカウンタの最低検出感度(10^8 個/m³)以下であった。また実験室大気の実験において、容器中心軸上の風速を測定すると、イオン計の直前まで風速はゼロとみなせる程度に小さい。したがって、この場合の

図4 規格化した場合の $I' - \phi$ 特性（実測値）Fig. 4 Normalized characteristics of $I' - \phi$ (measured values).図5 イオン計の捕集率 η (計算値)Fig. 5 Ion capture ratio η of ion-counter (calculated values).

イオンはおもに拡散運動でイオン計に到達したものと推定できる。一方、清浄大気の実験において、容器中心軸上の風速は、エアーフィルタ通過直後で 0.4 m/s 、コロナ放電電極の風下側で約 0.1 m/s であった。したがってこの場合のイオンは発生してから約 10 秒後にイオン計に到達していると推定できる。なお両大気状態において、イオン計に流入する時点でのイオン数密度は、 3.2 節で述べるよう 10^9 個/m^3 のオーダとなり、大差がないが、イオンの発生からイオン計で測定するまでの時間は同じではないと考えられる。

3.2 イオン移動度分布の推定

図2に示すイオン計では、課電極②の内径以内の気流に含まれるイオンが測定対象となる。そこで測定対象の全イオンに対して集電極①に捕集されるイオンの比率をイオン捕集率 η とすると、それは次式となる。

$$\eta = (R_1/R_2)^2 \quad (1)$$

ここで R_1 は集電極に捕集されるイオンの最大半径方向距離、 R_2 は課電極の内側半径である。このイオン計の動作特性の計算結果⁹⁾によると、イオン計の半径方向風速分布を考慮しない場合でも η の計算誤差は小さい。したがってイオン計内におけるイオンの軌跡は、移動度

k と静電界 $V\phi$ の積および軸方向風速とで決定されると取り扱ってもよい。また $V\phi$ の大きさは印加電圧 ϕ に比例するので、このイオン計の $\eta-k\cdot\phi$ 特性は図5のようになる。同図において、 $k\cdot\phi \approx 1.6 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$ までは $k\cdot\phi$ の増加とともに集電極に捕集されるイオンが増加するので η が増加し、 $k\cdot\phi$ が 1.6×10^{-4} から $16 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$ までは全イオンが集電極に捕集されるので η は 1 となり、またそれ以上の $k\cdot\phi$ ではイオン計入口の端部効果のために、 $k\cdot\phi$ の増加とともに η は減少する。なおこの場合の端部効果とは、課電極とガード電極間の電界が原因で、一部のイオンがガード電極に捕集されることを意味する⁹⁾。本論文では荷電したエアロゾルをイオンと記述しているが、1個のエアロゾルに単一の素電荷量の荷電、すなわち単一荷電を仮定すると、イオン計の電流は次式で表わされる。

$$I(\phi) = eQ \int_0^\infty n(k) \cdot \eta(k\cdot\phi) dk \quad (2)$$

ここで e は素電荷、 Q はイオン計への吸入空気量（測定値）、 $n(k)$ は単位移動度当たりのイオン数密度分布関数、 $\eta(k\cdot\phi)$ は $k\cdot\phi$ の関数としてのイオン捕集率（計算値）である。

ところで自然大気中に存在するイオンは、 $10^{-7} \text{ m}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ のオーダ（大イオン：粒径 $0.05 \sim 0.1 \mu\text{m}$ ）と $10^{-4} \text{ m}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ のオーダ（小イオン：粒径 $0.005 \mu\text{m}$ 以下）にピークをもつような移動度分布を示すことが知られている^{11,12)}。そこで図6に示すように、A（大イオン群）とB（小イオン群）の二つのピークをもつイオン移動度分布を仮定して以下の計算を行なった。イオン群の移動度分布関数として正規分布関数を用いると、その期待値と標準偏差がそれぞれ μ と σ の場合に、 $\mu+3\sigma$ と $\mu-3\sigma$ の範囲について積分するとそのイオン群のイオン数密度は 0.3% 以内の誤差で求められ、また μ と σ を変化させ

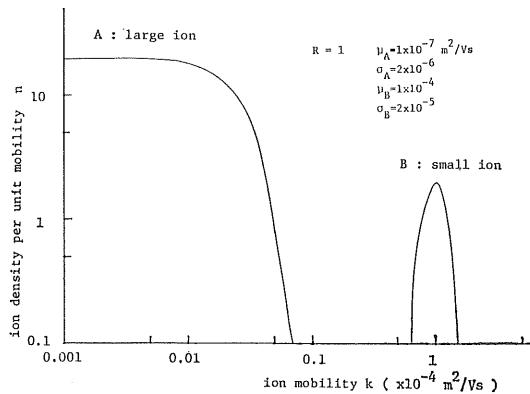


図6 イオン移動度分布の例

Fig. 6 Example of assumed ion mobility distribution.

ると異なる移動度分布を近似的に表現できる。しかし図6の大イオン群に対しては、 $\mu - 3\sigma$ が正の値となる範囲内でのみ正規分布関数は物理的な意味をもつ。そこで大イオン群に対しては、第一近似として正規分布関数の右半分だけを使用した。この場合に両イオン群の移動度分布関数は次式となる。

$k \geq \mu_A$ では

$$n_A(k) = \{N_A / (\sqrt{2\pi} \cdot \sigma_A)\} \cdot \exp\{-(k - \mu_A)^2 / (2\sigma_A^2)\} \quad (3)$$

$k < \mu_A$ では

$$n_A(k) = 0 \quad (4)$$

$$n_B(k) = \{N_B / (\sqrt{2\pi} \cdot \sigma_B)\} \cdot \exp\{-(k - \mu_B)^2 / (2\sigma_B^2)\} \quad (5)$$

ここで $N_A/2$ は大イオン数密度、 N_B は小イオン数密度である。

次に、大イオン数密度と小イオン数密度との比をイオン組成比 R として定義すると、 R は次式で表わされる。

$$R = \left\{ \int_{\mu_A}^{\mu_A + 3\sigma_A} n_A(k) dk \right\} / \left\{ \int_{\mu_B - 3\sigma_B}^{\mu_B + 3\sigma_B} n_B(k) dk \right\} \\ = (N_A/2) / N_B \quad (6)$$

そしてイオン計の電流 I は、(2)～(6)式から、次式となる。

$$I(\phi) = (eQN_B / \sqrt{2\pi}) \cdot \left[(2R/\sigma_A) \cdot \int_{\mu_A}^{\mu_A + 3\sigma_A} \right. \\ \times \exp\{-(k - \mu_A)^2 / (2\sigma_A^2)\} dk \\ \left. + (1/\sigma_B) \cdot \int_{\mu_B - 3\sigma_B}^{\mu_B + 3\sigma_B} \right. \\ \times \exp\{-(k - \mu_B)^2 / (2\sigma_B^2)\} dk \left. \right] \quad (7)$$

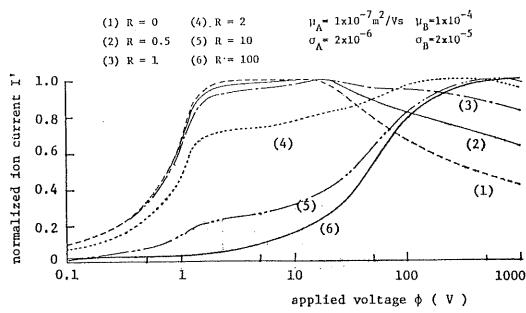
図7 イオン組成比 R による I' - ϕ 特性の変化 (計算値)

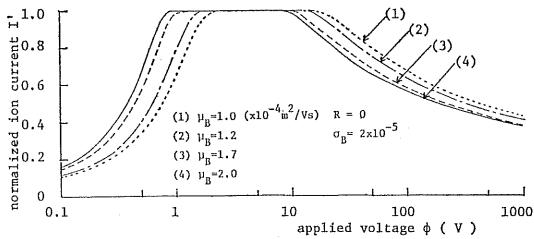
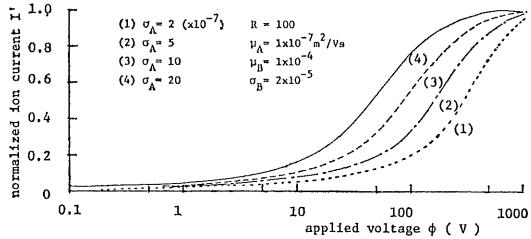
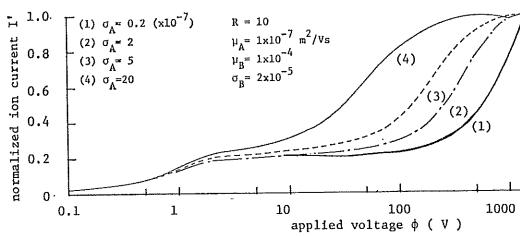
Fig. 7 Variations of I' - ϕ characteristics with ratio R (calculated values).

したがって、 I の最大値で規格化した I' は次式となる。

$$I'(\phi) = I(\phi) / (eQN_B / \sqrt{2\pi}) \quad (8)$$

(7)式または(8)式において、パラメータは R , μ_A , μ_B , σ_A および σ_B である。しかし本論文では、(8)式を計算する場合に、 $\mu_A = 1 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{Vs}$ を固定し、 3σ の区間を 100 等分して、数値計算を行なった。図7に、イオン組成比 R をパラメータとした場合のイオン計の I' - ϕ 特性の計算結果の例を示す。同図で $R=0$ の計算結果では、 ϕ が数Vで I' は最大となり、その後数十Vまでは I' は変化せず、それ以上の ϕ では ϕ の増加とともに I' が減少するという特性が得られた。このような特性は、図4の清浄大気中のイオン測定時の結果と定性的に一致している。また $R=10$ 以上の計算結果では、 ϕ の増加とともに I' が増加する特性が得られ、この特性は図4の実験室大気中のイオン測定時の結果と定性的に一致している。実験室大気中には粒径の大きいエアロゾルが多く存在するので、コロナ放電で発生させた小イオンが、拡散作用でイオン計に到達する過程で粒径の大きいエアロゾルに拡散帶電し、大イオンに変化すると考えられる。そのために実験室大気中における I' - ϕ の測定結果は、 $R=10$ 以上すなわち大イオン量が小イオン量よりも圧倒的に多い場合の計算結果と定性的に一致するものと考えられる。図8は、 $R=0$ すなわち小イオン群のみが存在するとした場合に、 σ_B を固定し、 μ_B を 1.0×10^{-4} から $2.0 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{Vs}$ までの範囲で変化させたときの I' - ϕ 特性の計算結果である。同図から、 μ_B を増加させた場合に I' - ϕ の形状の変化は少なく、その特性全体が ϕ の小さくなる方向にシフトするといえる。図9は、 $R=10$ すなわち大イオン数密度が小イオン数密度の 10 倍である場合に、 μ_A , μ_B と σ_B を固定して、 σ_A を変化させたときの I' - ϕ 特性である。

σ_A を増加させることは、大イオンと小イオンの両ビ

図8 μ_B による $I'-\phi$ 特性の変化 ($R=0$, 計算値)Fig. 8 Variations of $I'-\phi$ characteristics with μ_B ($R=0$, calculated values).図10 σ_A による $I'-\phi$ 特性の変化 ($R=100$, 計算値)Fig. 10 Variations of $I'-\phi$ characteristics with σ_A ($R=100$, calculated values).図9 σ_A による $I'-\phi$ 特性の変化 ($R=10$, 計算値)Fig. 9 Variations of $I'-\phi$ characteristics with σ_A ($R=10$, calculated values).

一区間の広い移動度範囲に大イオン群の存在を仮定することに相当し、 σ_A を大きくすると、 ϕ の増加とともに ϕ の小さい値から I' が増加しはじめて最大値 1 に早く収束する特性を示す。また ϕ が 1 V 付近までは I' に及ぼす σ_A の影響が少なく、 $\phi=1.5$ V 付近に I' の変曲点が存在し、 ϕ が 1.5 V 以上では ϕ の増加とともに I' の増加率の少ない領域が存在する。図 10 は、 $R=100$ の場合に μ_A 、 μ_B と σ_B を固定して、 σ_A を変化させたときの $I'-\phi$ 特性である。図 9 と比較すると、図 10 では $\phi=1.5$ V 付近の I' の変曲点および ϕ の増加とともに I' の増加率の少ない領域が存在しない。また同一の ϕ 、 σ_A の I' を比べると、図 9 の $R=10$ のほうが図 10 の $R=100$ の場合より大きく、この特徴は ϕ が数十 V 以下の領域においてとくに顕著である。このようにパラメータを変化させた計算結果において、図 4 の実験結果に比較的よく一致するものを選び、図中の I_1' 、 I_2' として記入した。この場合の清浄大気中では、 $R=0$ すなわち小イオンのみ存在し、その平均移動度は 1.2×10^{-4} m^2/Vs 、標準偏差は 0.2×10^{-4} m^2/Vs である。また実験室大気中では、 $R=100$ すなわち大イオン数密度は小イオン数密度の 100 倍で、その平均移動度は 0.013×10^{-4} m^2/Vs である。

次に両大気状態のイオン数密度を概算してみよう。実験室大気中では大イオン数密度が小イオン数密度の 100

倍であるので、そのイオン移動度を 1×10^{-7} m^2/Vs とみなすと、図 5 より $\phi=1,000$ V のとき $\eta=1$ とみなせる。また図 3 より $\phi=1,000$ V のとき $I=4 \times 10^{-13}$ A であり、イオン計への吸入空気量 $Q=0.37 \text{ m}^3/\text{s}$ であるから、(2)式より、実験室大気中のイオン数密度は約 7×10^9 個/ m^3 となる。清浄大気中のイオン移動度を 1×10^{-4} m^2/Vs とみなすと、 $\phi=2$ V で $\eta=1$ とみなせる。また図 3 より、 $\phi=2$ V のときの $I=(3 \sim 7) \times 10^{-13}$ A であるので、清浄大気中のイオン数密度は $(5 \sim 12) \times 10^9$ 個/ m^3 となる。したがって両大気中のイオン数密度はおよそ等しいといえる。

4. む す び

以上に述べてきたことを要約すると次のようになる。

(1) エアロゾル数密度の異なる 2 種類の大気において、コロナ放電で発生させたイオンを同軸円筒型イオン計で計測した。イオン計の最大電流値で規格化した電流-電圧特性の実測値は、イオンの移動度分布関数として正規分布関数を使用し、またイオン計の捕集率を考慮して計算した結果と比較的よく一致する。

(2) 実験室大気中のエアロゾル数密度は $(1.1 \sim 4.3) \times 10^{10}$ 個/ m^3 であり、この大気中のコロナ放電で発生させ、おもに拡散運動で約 1 m 離れた位置に到達させたイオンは、主として大イオン ($k=10^{-7}$ m^2/Vs) である。

(3) エアーフィルタを通過させた大気中のエアロゾル数密度は、ボラックカウンタの最低検出感度 (10^8 個/ m^3) 以下である。この清浄大気中のコロナ放電で発生させ、その発生後約 10 秒程度経過したイオンは小イオン ($k=10^{-4}$ m^2/Vs) のみである。

最後に、本研究を進めるにあたり、終始熱心にご指導下さいました神戸大学名誉教授・角田美弘先生および神戸大学教授・荒井健次先生に感謝します。また実験およ

び計算に協力していただいた若林善兼（現在四国電力）、橋本長（現在三菱電線）、白津哲哉（現在古野電気）の諸氏に感謝します。

参考文献

- 1) 諸早典夫：静電気学会誌，8 (1984) 8
- 2) 田森行男：同上，8 (1984) 17
- 3) 星名民雄：同上，8 (1984) 27
- 4) 藤岡伸宏，石川光一，荒井健次，角田美弘：電気学会論文誌，97-A (1984) 571
- 5) 藤岡伸宏，角田美弘：同上，99-B (1979) 627
- 6) Y. Goshio and A. Hara : Proc. of 7th International Conference on Gas Discharge, p. 193 (1982)
- 7) 増田閃一，板垣敏文，細川俊介，河東晴子：静電気学会講演論文集'85, 19 pC 4, p. 59 (1985)
- 8) 増田閃一，板垣敏文，小坂田昌幸：静電気学会講演論文集'86, 24 aC 5, p. 155 (1986)
- 9) 藤岡伸宏，橋本長，白津哲哉，角田美弘：静電気学会誌，11 (1987) 37
- 10) 藤岡伸宏，橋本長，白津哲哉，角田美弘：静電気学会講演論文集'86, 25 aB 2, p. 225 (1986)
- 11) 静電気学会：静電気ハンドブック，p. 316，オーム社 (1981)
- 12) 高橋幹二：基礎エアロゾル工学，p. 91，養賢堂 (1982)