

# エアロゾル電荷中和器の荷電効率と イオン移動度の時間変化の関係

佐藤佳宏<sup>\*1</sup>, 桜井博<sup>\*</sup>, 榎原研正<sup>\*</sup>

(2010年9月14日受付; 2011年12月22日受理)

## The Relation between the Charged Fractions of the Aerosol Charge Neutralizer and the Time Change of the Ion Mobility

Yoshihiro SATO,<sup>\*1</sup> Hiromu SAKURAI<sup>\*</sup> and Kensei EHARA<sup>\*</sup>

(Received September 14, 2010; Accept December 22, 2010)

The bipolar diffusion charge neutralizer is in one of the important components of SMPS which is electrostatic-type particle size distribution measurement equipment. Although the charging characteristics of the neutralizer were investigated, they did not understand in detail what has determined the charging nature of the neutralizer. The charged fraction of three neutralizers was measured changing the aerosol flow rate. And the positive ion mobility was estimated from the charged fraction using the Fuchs theory. In addition to it, the relaxation time of the ion of each neutralizer was measured. As a result, when residence time became long, it turned out that positive ion mobility becomes small.

### 1. はじめに

微分型電気移動度分析器(Differential Mobility Analyzer : DMA)を用いた走査型移動度粒径測定器(Scanning Mobility Particle Sizer : SMPS)は、数nmから数100 nmの粒径範囲のエアロゾルの粒径分布を高精度に測定する手段として、エアロゾル基礎研究、粒子合成、吸入毒性研究、大気汚染研究などの広い分野で用いられている。

SMPSを用いた粒径測定では、最初に荷電器で粒子を帯電させ、次にDMAを用いてシーブ流量と分級電圧から特定の電気移動度で分級し、最後に分級された粒子を計数器でカウントしている。そのSMPSの構成要素のうちDMAの分級の正確さについては、分級粒径、分級幅、粒子損失の3つのパラメータについて検討されている<sup>1)</sup>。そのDMA分級粒径は、粒子質量と密度から粒径を決定する計数ミリカン法<sup>2)</sup>によって値付けられた標準粒子を用いて校正される。また、DMA分級幅とDMA粒子損失のパラメータは、2台のDMAを直列につないで測定するタンデムDMA法を用いた値付けが行われている。また計数器には多くの場合凝集型粒子計数器(Condensation Particle Counter : CPC)が用いており、そのCPCは電氣的な粒子計数法であるエアロゾル・

エレクトロメータ(Aerosol Electrometer : AE)を用いて校正されている。

以上のように、SMPSを用いて+1価に帯電したエアロゾルの粒径分布を定量的に測定することは可能である。しかし、無荷電粒子、+2価以上の多価荷電粒子、負荷電粒子の個数は不明であるため全粒子の粒径分布を定量的に測定することは難しい。

一般的にDMAを用いた粒径測定では荷電装置として放射性同位元素をイオン源とした両極拡散電荷中和器(Bipolar Diffusion Charge Neutralizer : 以降では中和器と呼ぶ)を用い、エアロゾルの価数 $z$ に対する分布を平衡帯電状態にしている。エアロゾルを平衡帯電させることにより、ある粒径 $D_p$ の $z$ 価の荷電効率 $f_z(D_p)$ が一意に決定できるため、全粒子数を $N(D_p)$ とすれば、 $z$ 価の粒子数 $N_z(D_p)$ は、 $N_z(D_p) = N(D_p)f_z(D_p)$ となる。実際には、DMAを用いて+1価の粒子数 $N_1(D_p)$ を測定し、それを+1価の荷電効率 $f_1(D_p)$ で割ることにより全粒子数 $N(D_p)$ を推定している。

荷電効率の計算式としてはWiedensohler (1988)<sup>3)</sup>の近似式が広く用いられており、TSI社のSMPSの荷電効率計算でもこの近似式が用いられている。にもかかわらず、SMPSに用いられる中和器の荷電効率がこのWiedensohlerの荷電効率と同じであるか調べられているわけではない。例えば、中和器によって容器内形状や放射線源が異なり、使用環境によってエアロゾルの流量や温度や湿度や個数濃度も異なる。その中で、放射線源に関して言えば、アメリカでは中和器用放射線源として $\beta$ 線源の<sup>85</sup>Krや $\alpha$ 線源の<sup>210</sup>Poが用いられる。一方、日本では $\alpha$ 線源の<sup>241</sup>Amが用いられている。

**キーワード** : DMA, Am-241, 電荷中和器, 荷電効率, イオン移動度

\* 産業技術総合研究所 計測標準研究部門 (305-8563 茨城県つくば市梅園 1-1-1 中央第3)

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 1-1-1 Umezono, Tsukuba, Ibaraki 305-8563, Japan.

<sup>1</sup> satou-yoshihiro@aist.go.jp

それらの、異なる中和器間の荷電効率の測定についてはいくつかの報告がある。Hoppel and Frick (1990)<sup>4)</sup>は形状や放射線源の異なる中和器を比較し、それらの荷電効率が大きく異なることを示した。また Covert et al. (1997)<sup>5)</sup>は+1 価の荷電効率を測定し<sup>210</sup>Po 線源中和器ではどの流量でも Wiedensohler の荷電効率と一致していたのに対して、<sup>85</sup>Kr 線源中和器では 1.0 L/min 以上の流量で一致しないことを報告した。また, Ji et al. (2004)<sup>6)</sup>は 0 価の荷電効率を測定し、<sup>210</sup>Po 線源中和器ではどの流量でも Wiedensohler の荷電効率と一致していたのに対して、<sup>85</sup>Kr 線源中和器では 0.6 L/min 以上の流量で一致しないことを報告した。このような、中和器ごとの荷電効率にばらつきがある場合、Wiedensohler の荷電効率を前提とした SMPS による粒径分布測定において、その定量性に大きな影響を与える。

日本国内の事情としては、前述の通り中和器に用いることが出来る放射線源は <sup>241</sup>Am のみと言ってよく、アメリカにおける中和器の荷電効率調査がそのまま適用できるとは限らない。また、同じα線源である <sup>210</sup>Po と <sup>241</sup>Am を比較した場合、アメリカで用いられる <sup>210</sup>Po の放射能は 18.5 MBq 以上であるのに対して、日本で入手できる <sup>241</sup>Am の放射能は 3.0 MBq と 1/5 以下であり、この放射能で十分な中和が出来るのかという問題もある。

日本国内の <sup>241</sup>Am 線源の中和器の荷電効率の研究としては、Kousaka et al. (1983)<sup>7)</sup>や Adachi et al. (1985)<sup>8)</sup>の初期の研究や、Han et al. (2003)<sup>9)</sup>や Lee et al. (2005)<sup>10)</sup>による軟 X 線エアロゾル荷電器との比較や、Kwon et al. (2005, 2006)<sup>11)12)</sup>の表面放電マイクロプラズマ・エアロゾル荷電器(SMAC)との比較がある。

また、我々は <sup>241</sup>Am 線源の中和器の荷電効率をタンデム DMA 型の荷電効率測定装置を用いて、エアロゾル流量や中和器内の線源の位置を変えながら測定し、測定条件によってはその測定された荷電効率が Wiedensohler とは異なることを報告した (佐藤ら(2007)<sup>13)</sup>). その研究の中で、エアロゾル流量が 1.5 L/min の場合は中和器出口から線源までの距離が離れていても Wiedensohler の荷電効率と一致していたのに対して、0.3 L/min では線源が中和器出口から 50 mm 以内では Wiedensohler の荷電効率とほぼ一致していたが、60 mm 以上では大きく異なっていることを示した。その違いが時間経過によるイオンの状態変化に由来するのではないかと考え、線源からのα線の飛程から中和器出口までのイオンドリフト距離を、流量と中和器断面積から計算した平均流速で割って、イオン滞留時間を計算し、そのイオン滞留時間に対する荷電効率変化を調べた。しかし、イオンの状態変化の起点を線源からにするかα線の飛程からにするかという問題や、中和器全体にイオンが拡散することを前提として計算した流速は実際の流速とは異なる可能性もあった。また、そのイオンの状態がなぜ時間変化するかを明らかに出来なかった。さらに、比較するパラメータとして、個々の粒径に値付けられる荷電効率を用いていたために、そのパラメータの一般化が難しかった。

本研究では、中和器の荷電特性の評価手法の確立のために、中和器の荷電効率を異なる条件で測定し、その荷電効率から

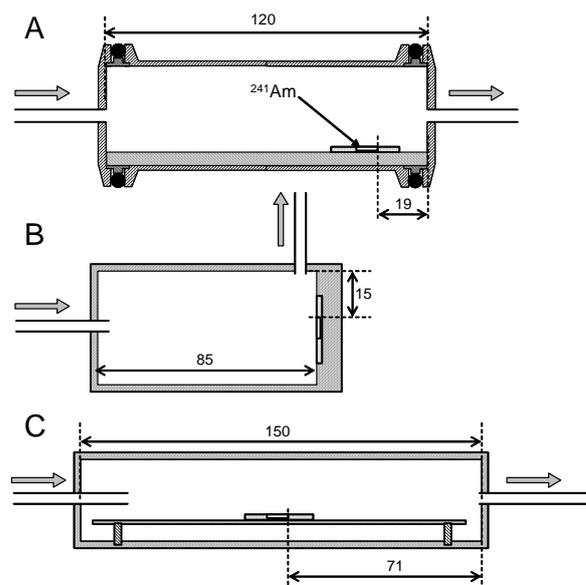


Fig. 1 The cross-section views of three neutralizers.

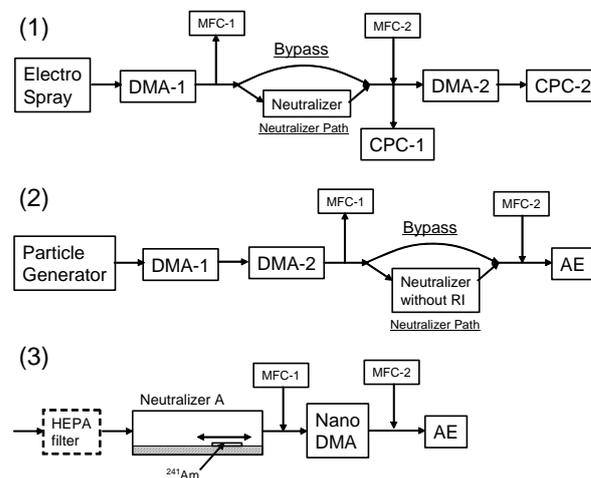


Fig. 2 The schematic diagram of three type of experiments. (MFC: Mass Flow Controller).

Fuchs (1963)<sup>14)</sup>理論を用いてイオン移動度を推定し、さらに中和器内流速の直接測定からイオン滞留時間を推定し、そのイオン滞留時間とイオン移動度の関係を解析した。

## 2. 実験方法

### 2.1 実験(1):中和器の荷電効率の測定

本研究では Fig. 1 に示す 3 台の中和器の荷電効率を測定する。中和器 A は試作品。中和器 B は株式会社司測研製。中和器 C は東京ダイレック株式会社製で日本国内では TSI 社製の SMPS に内蔵されて販売されている。それらの中和器では放射線源に日本アイントープ協会の <sup>241</sup>Am (3.0 MBq) を 1 個用いている。また、それぞれの図には中和器の容器内全長と、放射線源の端から中和器出口までの距離を mm で表示している。

Fig. 2 の(1)に、荷電効率測定実験の配置図を示す。測定粒子

にはポリスチレンラテックス(PSL)の単分散粒子を用いた。単分散粒子を用いる理由は多分散粒子では多価荷電した粒子が混入し正しい荷電効率が得られないからである。使用した PSL は JSR STADDEX の SC-0030A, SC-0050D, SC-0070D, SC-0100D, SC-016S であり中心粒径はそれぞれ, 30, 50, 70, 100, 160 nm である。また, 使用した2台のDMAは TSI 3081 で流量条件はエアロゾル流量( $Q_a$ )=1.0 L/min, シース流量( $Q_s$ )=10 L/minとした。その荷電効率の測定では, 最初にPSLダイマーの発生を抑制するためにエレクトロスプレー(TSI 3480)で粒子発生させ, 1次中和器で中和したあとにDMA-1を用いてそのPSLの粒径で分級し, 分級された粒子は Bypass 経路ではそのまま, 中和経路では測定対象中和器を通してからCPC-1とDMA-2に送られる。その中和器内流量は前後の流量を調節することで0.3, 0.6 1.0, 1.5 L/minに変更可能にした。そのCPC-1では1次分級個数 $N_1$ を計数する。DMA-2では1次分級径を中心にDMA分級電圧 $V$ をステップ状に上げながらCPC-2で計数し,  $V$ に対するスペクトル $N_2(V)$ を得る。このとき,  $V$ が負であれば正荷電スペクトルが,  $V$ が正であれば負荷電スペクトルが得られる。その $N_2(V)$ を $N_1$ で割って正規化し, Bypass 経路の正規化したスペクトルを $N_B(V)$ , 中和経路の正規化した正・負荷電スペクトルを $N_N^+(V)$ とする。以上から各スペクトルのピーク電圧を $V_p$ とすると, 粒径 $d$ の+1 価の荷電効率は $g_1^+(d) = N_N^+(V_p)/N_B(V_p)$ , -1 価の荷電効率は $g_1^-(d) = N_N^-(V_p)/N_B(V_p)$ となる。

## 2.2 実験(2):中和器内平均流速の測定

Fig. 2 (2)に中和器内流速測定実験の配置図を示す。この測定ではDMA-2をパルス状エアロゾル発生器として用い, パルスの平均遅延時間から流速を推定する。最初に, 粒子発生器(TSI 3076)で発生させたNaCl粒子を中和してDMA-1で100 nmに分級してからDMA-2を通し, 放射線源を除いた測定対象中和器もしくは, その中和器の中心距離と同じ長さの Bypass ステンレス・チューブ(内径4.2 mm)を通してからAE (TSI 3068A)で粒子電流を測定した。その中和器内流量は前後の流量を調節することで0.3, 0.6 1.0, 1.5 L/minに変更可能にした。その2台のDMAは TSI 3081 で流量条件は $Q_a=1.5$  L/min,  $Q_s=15$  L/minとした。また100 nm相当の分級電圧を $V_1$ , その $V_1$ の半分の分級電圧を $V_2$ とする。流速測定では, DMA-2 電圧を $V_2$ とし, 1秒間だけ $V_1$ に昇圧した後に $V_2$ に戻しパルス状のエアロゾルを発生させる。そして, Bypass の場合と中和器を通した場合の2通りの時間プロファイル $f_B(t)$ と $f_N(t)$ をAEを用いて測定し,  $f_B(t)$ に対する $f_N(t)$ の遅延時間分布 $P(t)$ を非線形最小二乗法の1つである Levenberg-Marquardt 法<sup>15)</sup>(以下, マルカート法)を用いて推定した。そして, その遅延時間 $t$ を次式を用いて中和器内流速 $w_N$ に変換した。

$$w_N = \frac{L_N w_B}{L_N + w_B t} \quad (1)$$

ここで,  $L_N$ は中和器の中心長さ,  $S_B$ はBypassチューブ内断面積,  $w_B$ はBypassチューブ内平均流速で $w_B=Q_a/S_B$ である。

## 2.3 実験(3):イオン濃度の時間変化測定

Fig. 2(3)にイオン濃度の時間変化測定実験の配置図を示す。この測定では中和器 A 中の線源の位置を変えながら中和器出口のイオン濃度変化を測定する。最初に HEPA フィルターを通した清浄空気を中和器 A に通し, 線源でイオン化する。その中和器内流量は出口の流量を調節することで0.3, 0.6 1.0, 1.5 L/minに変更可能にした。イオン化した空気はNano-DMA (TSI 3085,  $Q_a=1.5$  L/min,  $Q_s=15$  L/min)で正負イオンのみを分級しAE (TSI 3068A, 吸引流量5.0 L/min)を用いてイオン滞留時間 $t_i$ に対するイオン電流 $I(t_i)$ を測定した。ここで, そのイオン滞留時間 $t_i$ を次に示す。

$$t_i = \frac{L_i}{w_N} \quad (2)$$

ここで,  $L_i$ は線源から中和器出口までの距離,  $w_N$ は実験(2)で測定した中和器 A の平均流速である。この $I(t_i)$ の出口配管損失を補正し正規化し, イオン滞留時間 $t_i$ に対する正規化イオン濃度を計算した。同じ計算を負イオンに対しても行い, その $t_i$ ごとの平均値からイオン滞留時間に対する正規化イオン濃度 $Y(t_i)$ を求めた。

## 3. 結果と考察

### 3.1 理論荷電効率

中和器の荷電効率の計算にはFuchs (1963)<sup>14)</sup>の両極拡散荷電理論が使われる。実際の荷電効率計算ではFuchs理論をベースに, Hussin et al. (1983)<sup>16)</sup>, Adachi et al. (1985)<sup>8)</sup>, Kousaka et al. (1985)<sup>17)</sup>, Hoppel et al. (1986)<sup>18)</sup>により体系化された手法を用いる。本研究では特にReischl et al. (1996)<sup>19)</sup>で書かれた手順に基づいて荷電効率を計算する。

最初に,  $z$  価の粒子に正(+)/負(-)イオンが付着する確率を表すイオン付着係数(combination coefficient)  $\eta_z^\pm$ を計算する。単位は(m<sup>3</sup>/s)である。

$$\eta_z^\pm = \frac{\pi^\pm \alpha \delta^{\pm 2} \exp(-\phi_z^\pm(\delta^\pm)/kT)}{1 + \exp(-\phi_z^\pm(\delta^\pm)/kT) \frac{\pi^\pm \alpha \delta^{\pm 2}}{4D^\pm a} \int_0^{d/(2\delta)} \exp(\phi_z^\pm(d/(2x))/kT) dx} \quad (3)$$

ここで,  $d$ は粒子直径,  $T$ は温度,  $k$ はボルツマン定数,  $D^\pm$ はイオンの拡散係数で $D^\pm = (kT/e)Z_i^\pm$ 。ここで $Z_i^\pm$ はイオン移動度,  $e$ は素電荷である。また $c^\pm$ はイオンの平均熱運動速度で $c^\pm = (8kT/(\pi m_i^\pm))^{1/2}$ 。ここで $m_i^\pm$ はイオン質量である。また $\delta^\pm$ は次に示す仮想的な有効半径である。

$$\delta^{\pm} = \frac{d^3}{8\lambda^{\pm 2}} \left( \frac{1}{5} \left( 1 + \frac{2\lambda^{\pm}}{d} \right) - \frac{1}{3} \left( 1 + \frac{4\lambda^{\pm 2}}{d^2} \right) \left( 1 + \frac{2\lambda^{\pm}}{d} \right)^3 + \frac{2}{15} \left( 1 + \frac{4\lambda^{\pm 2}}{d^2} \right)^{5/2} \right) \quad (4)$$

ここで、 $\lambda^{\pm}$ はイオンの平均自由行程であり $\lambda^{\pm} = ((16(2)^{1/2} D^{\pm}) / (3\pi\epsilon_0^2)(M_{\text{air}}/(M_{\text{air}} + m_i^{\pm}))^{1/2})$ ,  $M_{\text{air}}$  は空気質量である。また $\phi_z^{\pm}(r)$  はポテンシャルエネルギーで次に示す。

$$\phi_z^{\pm}(r) = \frac{\pm z e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \frac{e^2}{8\pi\epsilon_0} \frac{(d/2)^3}{r^2(r^2 - (d/2)^2)} \left( \frac{\epsilon_1 - 1}{\epsilon_1 + 1} \right) \quad (5)$$

ここで、 $\epsilon_1$ は粒子の比誘電率である。また、次のインパクトパラメータ $b_z^{\pm}(r)$ の $r$ を $d/2$ から $\delta^{\pm}$ まで変化させたときの $b_z^{\pm}(r)$ の最小値を $b_{\text{min}}$ とする。

$$b_z^{\pm}(r) = \sqrt{r^2 \left( 1 + \frac{2}{3kT} \right) \left( \phi_z^{\pm}(\delta^{\pm}) - \phi_z^{\pm}(r) \right)} \quad (6)$$

この $b_{\text{min}}$ から、 $\alpha = (b_{\text{min}}^{\pm}/\delta^{\pm 2})^{1/2}$ となる。この $\alpha$ をFuchsの $\alpha$ パラメータと呼び、100 nm 以上では $\alpha \approx 1$ となる。

以上で計算した $\eta_z^{\pm}$ から Reischel et al.の方法に従い荷電効率を計算する。最初に粒子荷電生成消滅速度比  $A_z^{\pm}$ を次のように計算する。

$$A_j^+ = n_r \frac{\eta_{j-1}^+}{\eta_j^- + n_r \eta_j^+ - \eta_{j+1}^- A_{j+1}^+} \quad (7)$$

$$A_j^- = n_r^{-1} \frac{\eta_{j-1}^-}{\eta_j^+ + n_r^{-1} \eta_j^- - \eta_{j+1}^+ A_{j+1}^-}$$

ここで、 $n_r$ はイオン濃度比で  $n_r = (n_i^+ / n_i^-)$ 、また  $n_i^+$ と  $n_i^-$ はそれぞれ、陽イオンと陰イオンの個数である。この計算では、中和器中心部におけるイオン消滅は正負イオンの再結合によるものと仮定し、その再結合過程では正イオンと負イオンは同数ずつ減少するため  $n_r = 1$  と近似する。最後に $\pm z$  値の荷電効率  $f_z^{\pm}$ を計算する。

$$f_z^{\pm} = \frac{\prod_{j=1}^z A_j^{\pm}}{1 + \sum_{k=1}^{\infty} \left( \prod_{j=1}^k A_j^+ + \prod_{j=1}^k A_j^- \right)} \quad (8)$$

ここで、分母の総和(Summation)は1  $\mu\text{m}$  までなら10 個, 10  $\mu\text{m}$  までなら 100 個程度まで加算することで十分な計算精度が得られる。

### 3.2 正イオン移動度の推定

実験(1)で得られた中和器Aの荷電効率分布をFig. 3に示す。この粒径に対する $\pm 1$  値の荷電効率にFuchsの理論荷電効率をフィットして、イオンパラメータを推定する。Fuchsの理論荷電効率の計算に必要なパラメータは粒径 $d$ と、正負イオン移動度 $Z_i^{\pm}$ と、正負イオン質量 $m_i^{\pm}$ である。このうち負イオン移動度はNagato

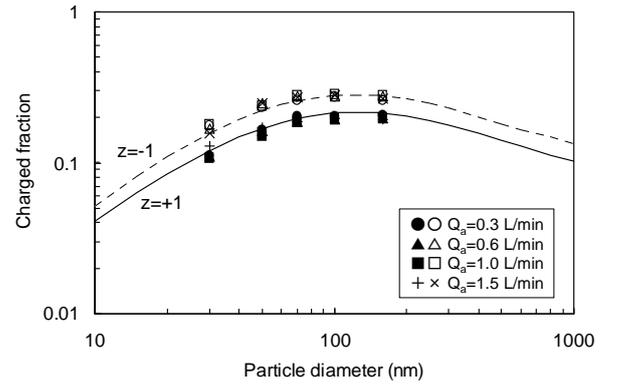


Fig. 3 The charged fractions of the neutralizer A. The solid line and the dashed line are the charged fractions of the Wiedensohler (1988).

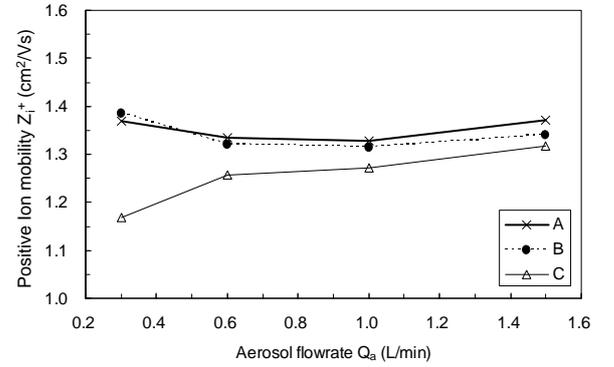


Fig. 4 The positive ion mobility for the flowrates in the neutralizers A, B, and C.

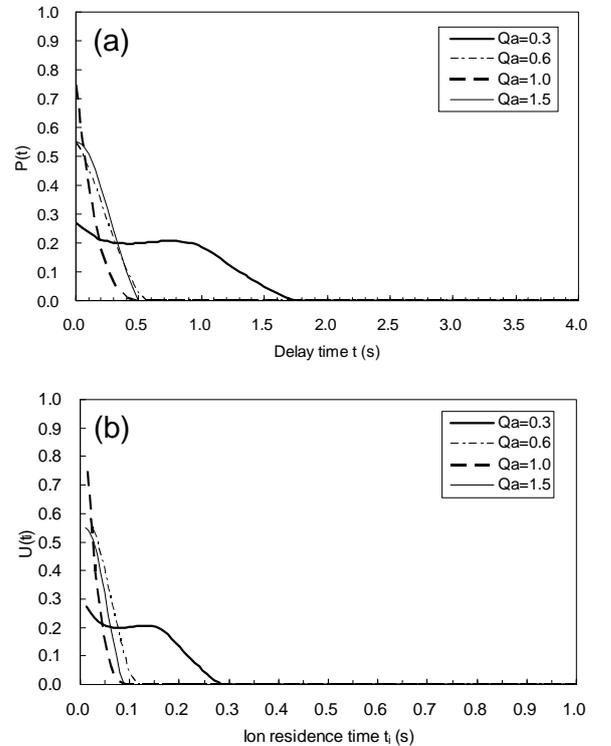


Fig. 5 (a) Delay time distribution for each flowrate in the neutralizer A. (b) Ion residence time distribution for each flowrate in the neutralizer A.

et al. (1998)<sup>20</sup>の負イオン移動度の測定結果から、 $Z_i^-$ と $m_i^-$ は時間変化しないと仮定し、また Wiedensohler の近似式の負イオン移動度が  $1.6 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  であることから、 $Z_i^- = 1.6 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 、 $m_i^- = 100 \text{ amu}$  と仮定する。また、Resischl et al. (1997)<sup>19</sup>の  $Z_i^+$ と $m_i^+$ の関係から  $Z_i^+$ から  $m_i^+$ が一意に決まると仮定し、 $d$ と $Z_i^+$ の2つのパラメータのみで Fuchs の理論荷電効率を計算する。また、その両極イオンは中和器に導入される粒子を十分に平衡帯電状態に出来る濃度であると仮定する。そして、実験で得られた  $d$  に対する  $\pm 1$  価の荷電効率  $g_i^\pm(d)$ と、計算した理論荷電効率  $f_i^\pm(d, Z_i^\pm)$ が等しくなるように  $Z_i^+$ をマルカート法による非線形最小二乗法により最適化した。この最適化計算は中和器 A, B, C に対して行った。その結果を Fig. 4 に示す。ここで、横軸は中和器内流量、縦軸は正イオン移動度である。中和器 A, B は、どの流量でも  $1.35 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  前後であるのに対して、中和器 C では流量が  $0.3 \text{ L/min}$  では  $1.15 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 、 $1.5 \text{ L/min}$  では約  $1.3 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  になり、流量が大きくなると移動度も大きくなる傾向があった。

### 3.3 イオン移動度とイオン滞留時間の関係

Nagato et al. (1998)<sup>20</sup>は電離生成した正イオンの移動度が  $0.5$  秒以下の短い時間に急激に小さくなる現象を報告している。本研究では荷電効率から推定した正イオン移動度に、このような時間変化があるか確認するための実験を行った。Fig. 5a に実験(2)で測定した中和器 A の  $Q_a$  ごとの遅延時間分布  $P(t)$  を示す。その  $P(t)$  は中和器を通る空気の Bypass 測定に対して遅延している成分の割合を表している。その遅延時間  $t$  を式(1)を用いて中和器内流速  $w_N$  に変換する。さらに式(2)を用いてイオンが電離生成してから中和器出口に到達するまでのイオン滞留時間  $t_i$  を得た。

Fig. 5b に中和器 A の  $Q_a$  ごとの滞留時間分布  $U(t_i)$  を示す。ここで、イオンの状態変化の起点を放射線源端としている理由は、放射線源から放射される  $\alpha$  線の放射立体角が不明なためである。また、イオンの状態変化の終点を中和器出口までとしている理由は、例えば直径  $10 \text{ nm}$  の粒子の移動度が  $0.02 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  であるのに対し、イオン移動度は  $1.1 \sim 1.6 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  と非常に大きく、イオンが中和器出口から内径  $4.2 \text{ mm}$  のステンレス配管に入った場合、配管壁面との吸着により急速に減少し、粒子荷電への寄与が小さくなると考えられるからである。ここで、さらに考慮すべきことは、中和器内の正負イオンは再結合により減少するため、滞留時間の長いイオンの寄与が減る効果である。そこで、実験(3)で中和器 A のイオン滞留時間に対する正規化イオン濃度  $Y(t_i)$  を測定した。その結果を Fig. 6 に示す。そして  $U(t_i)$  に、 $Y(t_i)$  を時間ごとにかかけ、再結合によるイオンの減少も考慮したイオン滞留時間分布  $U^*(t_i)$  を計算した。その  $U^*(t_i)$  の一次モーメントから平均イオン滞留時間を計算した。ただし、中和器 C は放射線源を取り外せない構造であるため、中和器 C の  $w_N$  には、ほぼ同じ形状の中和器 A の値を用いた。その中和器 A, B, C の中和器内エアロゾル流量

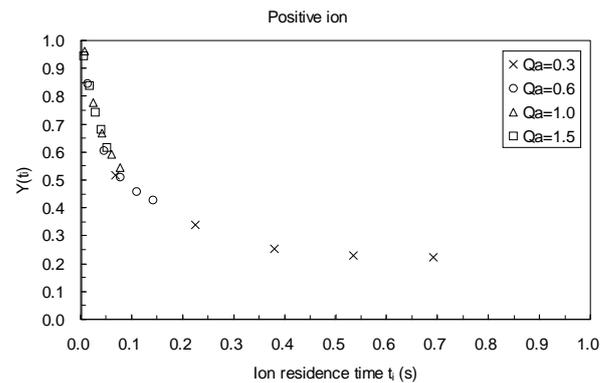


Fig. 6 Normalized ion concentration change to the residence time of the positive ion.

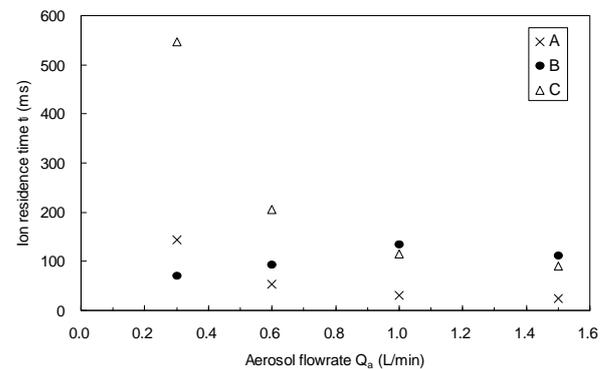


Fig. 7 The ion residence time for the aerosol flowrate in the neutralizers A, B, and C.

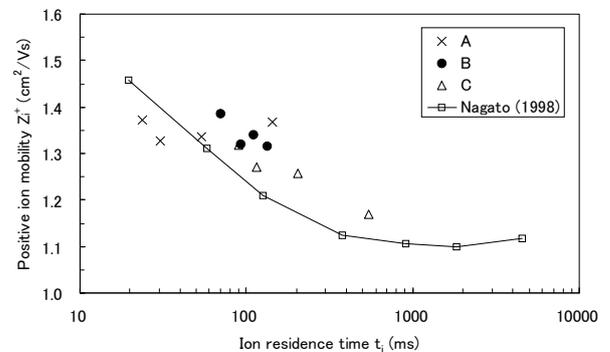


Fig. 8 The positive ion mobility for the ion residence time of the neutralizers A, B, and C.

$Q_a$  に対するイオン滞留時間 Fig. 7 に示す。そして、その中和器 A, B, C のイオン滞留時間と正イオン移動度の関係を Fig. 8 に示す。図中の直線は、Nagato et al. (1998)<sup>20</sup>の Am-241 線源で両極発生させた正イオンのドリフト時間ごとの移動度分布の図から計算した、ドリフト時間ごとの平均正イオン移動度である。ただし、Nagato et al. で同じ条件で測定された負イオン移動度は約  $1.8 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  であるが、本研究の Fuchs の理論荷電効率計算には Wiedensohler の負イオン移動度  $1.6 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  を用いているため、正イオン移動度に  $1.6/1.8$  をかけて変換している。

各中和器で測定された荷電効率から推定された、イオン滞留時間と正イオン移動度の関係は、Nagato et al. のイオンドリフト時間と正イオン移動度の関係とよく似ていた。しかし、滞留時間が100 ms以下の領域ではNagato et al.の結果とは異なり $1.4 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 前後の値になっていた。この理由として考えられるのは、中和器から出た後の正負イオンはただちに配管に吸着し除去されるわけではなく、条件によっては配管内でも粒子荷電反応が進むため、中和器出口を終点として計算した滞留時間よりも実際の滞留時間が長くなり、正イオン移動度が推定よりも小さくなったのではないかと考えられる。また、Adachi et al. (1980)<sup>21)</sup>で指摘されているように配管中の低いイオン濃度では必ずしも平衡帯電状態には達しないため、その影響も考えられる。

しかし、実際の SMPS 測定では出口配管も含めて中和器として機能するため、その荷電状態を評価し、正イオン移動度でパラメータ化し、SMPS 測定されたデータの定量性を高め高精度化に役立てるといった目的から言えば、現状でも十分であると考えられる。

#### 4. まとめ

SMPS など電気移動度を用いた粒径分布測定において、両極拡散電荷中和器の荷電特性は非常に重要である。しかしその荷電特性は中和器ごと、使用条件ごとに異なる問題があった。

本研究では、中和器の荷電特性の評価手法を確立するために、中和器内で電離生成する正イオンの移動度に着目し、中和器で荷電された粒子の荷電効率からその中和器の正イオン移動度を推定する手法を用いて、その中和器の流量ごとの正イオン移動度を推定した。その正イオン移動度は電離生成直後から減少しはじめ、電離生成してからの滞留時間で変化するが、中和器の形状や線源位置や流量などによりその滞留時間に違いが生じ、その滞留時間の違いによる正イオン移動度の違いが中和器の荷電特性に影響するのではないかと考えられる。

#### 参考文献

- 1) 桜井 博, 佐藤 佳宏, 榎原 研正 : エアロゾル研究, **22** (2007) 310-316
- 2) K. Ehara, K. Takahata, M. Koike: *Aerosol Sci. Technol.*, **40** (2006) 514-520
- 3) A. Wiedensohler : *J. Aerosol Sci.*, **19** (1988) 387-389
- 4) W. A. Hoppel, G. M. Frick : *Aerosol Sci. Technol.*, **12** (1990) 471-496
- 5) D. Covert, A. Wiedensohler, L. Russell : *Aerosol Sci. Technol.*, **27** (1997) 206-214
- 6) J. H. Ji, G. N. Bae, J. Hwang : *J. Aerosol Sci.*, **35** (2004) 1347-1358
- 7) Y. Kousaka, M. Adachi, K. Okuyama, N. Kitada, T. Motouchi : *Aerosol Sci. Technol.*, **2** (1983) 421-427
- 8) M. Adachi, Y. Kousaka, K. Okuyama : *J. Aerosol Sci.*, **16** (1985) 109-123
- 9) B. Han, M. Shimada, K. Okuyama, M. Choi : *Powder Technol.*, **135-136** (2003) 336-344
- 10) H. M. Lee, C. S. Kim, M. Shimada, K. Okuyama : *J. Aerosol Sci.*, **36** (2005) 813-829
- 11) S. B. Kwon, T. Fujimoto, Y. Kuga, H. Sakurai, T. Seto : *Aerosol Sci. Technol.*, **39** (2005) 987-1001
- 12) S. B. Kwon, H. Sakurai, T. Seto, Y. J. Kim : *J. Aerosol Sci.*, **37** (2006) 483-499
- 13) 佐藤 佳宏, 桜井 博, 榎原 研正 : エアロゾル研究, **22** (2007) 302-309
- 14) N. A. Fuchs : *Pure & Appl. Geophys.*, **56** (1963) 185-193
- 15) D. W. Marquardt : *J. Soc. Ind. Appl. Math.*, **11** (1963) 431-441
- 16) A. Hussin, H. G. Scheibel, K. H. Becker, J. Porstendörfer : *J. Aerosol Sci.*, **14** (1983) 671-677
- 17) Y. Kousaka, K. Okuyama, M. Adachi : *Aerosol Sci. Technol.*, **4** (1985) 209-225
- 18) W. A. Hoppel, G. M. Frick : *Aerosol Sci. Technol.*, **5** (1986) 1-21
- 19) G. P. Reischl, J. M. Mäkelä, R. Karch, J. Nucid : *J. Aerosol Sci.*, **27** (1996) 931-949
- 20) K. Nagato, T. Ogawa : *J. Geophys. Res.*, **103** (1998) 13917-13925
- 21) M. Adachi, K. Okuyama, Y. Kousaka, T. Takahashi: *J. Chem. Eng. Jpn.*, **13** (1980) 55-60