電気移動度法，拡散法による気中微粒子の測定と分級*

Measurement and Classification of Submicron Particles by Electric Mobility Analyzer and Diffusion Battery

金岡 千嘉男** 大谷 吉生** 江見 準**
Chikao KANAOKA Yoshio OTANI Hitoshi EMI

1. 緒言

サブミクロン粒子を高効率で捕集分離する高性能エアフィルターは，各種雰囲気気の浄化に広く用いられており最近では $0.1\mu\text{m}$ の粒子に対して 99.99% 以上の効率を保証した超高性能フィルターも現れている。このようなフィルターの性能テスト，浄化雰囲気気のモニタリングなどには標準となるエアロゾルの発生と，粒子の粒径および濃度測定法の確立が不可欠である。

現在，微小粒子の *in situ* 測定装置として市販されているレーザー光散乱式粒子カウンター，電気移動度解析装置，拡散バッテリーなどは，いずれも粒径を直接測定するのではなく粒径により変化する物理現象を利用したものである。このうち，電気移動度解析装置，拡散バッテリーはともに，移動度の違いにより粒子を分級し粒径測定を行っている。したがって，多分散粒子の分級にこれらの装置を用いれば，微小粒子の発生法としても利用できる可能性がある。

そこで，本報告では，微分型電気移動度解析装置 (Differential Mobility Analyzer, DMA) とスクリーン型拡散バッテリー (Screen-type Diffusion Battery, SDB) を取り上げ，両装置の粒径測定性能について検討するとともに，標準粒子発生法としての可能性について検討を行った。

2. 粒径測定の原理と測定結果

2.1 微分型電気移動度解析装置 DMA

Fig. 1 に DMA の概略を，また Table 1 に装置の諸元を示す。DMA は，荷電粒子の電気移動度が次式で示すように粒径 d_p により異なることを利用して粒子を

Fig. 1 Schematic diagram of Differential Mobility Analyzer

Table 1 Dimensions of DMA

collector rod length	[cm]	40
collector rod diameter	[cm]	3.0
outer cylinder diameter	[cm]	5.0

分級し粒径測定を行うものである。

$$z_p = \frac{C_m n_p e E}{3 \pi \mu d_p} \quad \dots\dots(1)$$

Fig. 1 において，外筒壁に沿って上部よりスリット状に流入した荷電粒子は，内外両筒間に形成された電場のために半径方向に移動する。そして，内筒下部に設けた取り出し口に到達した粒子のみが取り出される。このとき，エアロゾルはある巾をもって装置に流入し取り出されるので Knutson and Whitby³⁾によれば，出口での粒子濃度は次式ようになる。

$$C_n = \sum_{p=1}^{\infty} \frac{1}{2} C_i g(d_p, n_p) f(d_p) \Delta d_p \quad \dots\dots(2)$$

for $z_p = \text{const.}$

昭和 59 年 7 月 23 日受付

* 粉体工学会第 20 回夏期シンポジウムにて発表 (1984. 7 函南)

** 金沢大学工学部化学工学科 (〒 920 金沢市小立野 2 - 40 - 20)

TEL 0762 - 61 - 2101

ここで、 C_i は入口粒子濃度、 $g(d_p, n_p)$ 、 $f(d_p)$ はそれぞれ荷電数および粒径の頻度分布関数である。 d_p, n_p, E の間にはEq.(1)の関係があるので、 $g(d_p, n_p)$ が既知であれば、種々の E に対して C_n を測定することにより、Eq.(2)を用いて $f(d_p)$ を求めることができる。そこで本実験では、コリソナトマイザーにより発生したNaCl粒子を ^{241}Am で平衡まで荷電して使用した。**Fig.2**に、幾何平均径 $d_{pg}=0.045\mu\text{m}$ 、幾何標準偏差 $q_g=2.2$ のエアロゾルを、4kVの電圧を印加したDMAに通したときの篩下積算分布の変化を、また**Fig.3**にはDMAにより分級された粒子の平均径と印加電圧の関係を示す。なお、粒径分布の測定は、分級粒子を静電エアサンプラーで捕集したのち、走査型電子顕微鏡により行った。**Fig.2(a)**から明らかなように、DMAにより分級された粒子は鋭い分布をもち、また**Fig.3**に示されるように平均径も $n_p=1$ として求めた理論径にはほぼ一致している。しかし、**Fig.2(a)**において、出口側分布曲線は篩下分布80%程度を境として折れ曲っており、この場合分級された粒子の分布は2峰性であることがわかる。この原因としては、DMA入口部で粒子の荷電数が $n_p=1$ と均一でなく、移動度は等しいが粒径の異なる多重荷電粒子が混入したことが考えられる。そこで、**Fig.2(a)**に示される分布を、篩下分布が80%となる粒径を境として2つの分布に分け、それぞれの部分について積算分布を求め直したのが

Fig.2 Cumulative undersize distribution of aerosol at the outlet of DMA

Fig.3 Comparison between theoretical and experimental geometric mean particle diameters classified by DMA

Fig.2(b)である。同図に示すように、両分布曲線は平行な直線となっている。そこで、それぞれの分布曲線について幾何平均径を求め、**Fig.3**に示した種々のDMA印加電圧における理論分離径と比較した。いずれの印加電圧においても、小粒子側でピークをもつ分布の幾何平均径は $n_p=1$ として求めた理論分離径に、また大粒子側の幾何平均径は $n_p=2$ として求めた理論分離径にはほぼ一致している。したがって、**Fig.2(a)**の分布曲線の折れ曲りは、2個荷電粒子の混入によるものであることがわかる。

DMAにより分級された粒子の q_g が1.1以下と小さく、その大半が1個荷電であること、さらに、Eq.(1)で示される z_p の粒径依存性を考えると、DMAは、粒径 $0.3\mu\text{m}$ 以下の粒子に対し優れた粒径測定装置といえる。

SDBの概略および諸元を**Fig.4, Table 2**に示す。微細スクリーンを多数重ねた層内にエアロゾルを低速で流すと、粒子はブラウン拡散およびさえぎり効果によりスクリーンに捕集される。 n_1 枚のスクリーンを重ねた拡散バッテリーからのエアロゾルの透過率 P_D は次式で与えられる。

$$P_D = \int_0^\infty p_D(d_p, n_1) f(d_p) d(d_p) \quad \dots\dots(3)$$

$$p_D(d_p, n_1) = \exp \left\{ -\frac{4\alpha L \eta_{DR} n_1}{\pi d_f (1-\alpha)} \right\} \\ = \exp \left(-\frac{m n_1}{2.303} \right) \quad \dots\dots(4)$$

Eq.(4)は単分散粒子に対する透過式である。式中の η_{DR} は拡散さえぎりによる単一繊維捕集効率であり、Fuchs

Fig 4 Schematic diagram of Screen-type Diffusion Battery

Table 2 Specifications of SDB

mesh number	wire diameter d_f [μm]	thickness of a screen L [μm]	packing density α [-]
325	35.5	80	0.322

Fig.5 Calibration curve of SDB

ら^{1,2)}により半理論解が与えられている。Fig.5は、Eq.(4)中の m を、 $d_f = 35.5 \mu\text{m}$ 、 $v_1 = 5.3 \text{ cm/s}$ 、 $\alpha = 0.322$ の場合について求めたFuchsらの理論値を粒径に対してプロットしたものである。また、図中の点は前述のDMAで分級したNaCl粒子と、PSL粒子を用いて得られたものである。図より明らかなように、実験値は理論値とよく一致しているので、同図を校正曲線として使用すれば、Eqs.(3)、(4)よりエアロゾルの頻度分布を求めることができる。また、同図におい

て、NaCl粒子の粒径としてはDMAによる理論分離値を用いたので、実験値が理論値と一致したことは、DMAとSDBでは同じ粒径の測定結果が得られることを示している。したがって、DMA、SDBはともに優れた粒径測定装置といえる。しかし、SDBの場合は、Fig.5に示したように校正曲線が粒径に対し単調曲線とならないので、大きな粒子の測定に際しては注意を要する。

3. DMA, SDBによる粒子の分級

DMA, SDBはともに分級法に基づく粒径測定装置であるので、本章では分級装置としての性能の検討を行う。

DMAは、Fig.2(a)で示したようにそのままでも優れた分級特性を示すが、DMAを2台用いれば、単分散性をさらに高めることが可能である。すなわち、DMAから取り出された粒子の粒度分布は、Fig.2(a)に示したように狭い粒径範囲に限定されるため、再度²⁴¹Amにより平衡まで荷電しDMAにより分級を行うと、粒径の異なる多重荷電粒子の割合を減じることができる。しかし、この方法で得られる粒子の割合(回収率)が通常数%程度と非常に小さい点が最大の欠点である。この欠点を改善し、分級粒子の回収率を高めるには、DMAに入る粒子の単分散性をあらかじめ高め、さらに単極イオンによる荷電などを行い同一荷電量の粒子の割合を増しておく必要がある。

次にSDBに、 $d_{pg} = 0.3 \mu\text{m}$ 、 $\sigma_g = 2$ のエアロゾルをろ過速度 $v_1 = 1 \text{ cm/s}$ で通したときに得られる出口頻度分布を、Fig.6中の実線で示す。図より明らかなように、スクリーン枚数が $n_1 = 5.10$ と増えるほど全体

Fig.6 Particle size distributions at the outlets of SDB and parallel fiber screens

Table 3 Size distributions and overall penetrations of aerosols with $d_{pg} = 0.3 \mu\text{m}$ and $\sigma_g = 2.0$ penetrating from SDB and parallel fiber screens.

number of screens in SDB*	number of parallel fiber screens	dimensionless separation between parallel fibers	filtration velocity through parallel fiber screens	geometric mean diameter	geometric standard deviation	overall penetration
n_1 [layers]	n_2 [layers]	H (-)	v_2 [cm/s]	d_{pg} (-)	σ_g (-)	P (-)
5	0	—	—	0.372	1.83	0.528
10	0	—	—	0.422	1.76	0.309
5	20	2	500	0.309	1.60	0.434
5	20	2	800	0.269	1.51	0.350
5	20	2.4	500	0.329	1.66	0.472
5	20	2.4	800	0.311	1.60	0.442
10	20	2.4	500	0.368	1.58	0.269

* Filtration velocity through SDB is 1 cm/s and the packing density is 0.329.

として頻度は減少するが、粒径の小さな領域での頻度の減少が著しく、大きな領域では頻度はそれほど変化していない。このため、Table 3の上2段に示すように、 n_1 の増加により d_{pg} は多少大きくなり、 σ_g は1.8程度までしか減少せず、 σ_g の減少巾はDMAに比べると著しく小さい。これは、SDBは粒子の捕集機構として拡散さえぎりを利用しているため、大粒子側ではさえぎりしか働かず十分な分離力が得られなかったためである。したがって、粒子の単分散性を高めるには、大粒子側で分離力の大きくなる機構と組み合わせるのが有効と考えられる。そこで、粒径、流速が大きいほど捕集効率が大きくなる慣性捕集との組み合わせを考えた。なお、慣性捕集装置としては $d_f = 35.5 \mu\text{m}$ のワイヤーが等間隔に張られた単線スクリーンの積層フィルターを想定して計算を行った。

単線スクリーンからの粒子透過率 P_0 はSDBの場合と同様Eq.(3)で表わされ、また、単分散粒子の透過率 p_i は次式で与えられる。

$$p_i(d_p, n_2) = \left(1 - \frac{1}{H} \eta_{IR}\right)^{n_2} \quad \dots\dots (5)$$

ここで、 H は無次元繊維間距離である。また、 η_{IR} は慣性さえぎりによる単一繊維捕集効率であり、繊維まわりの流れとして平行円筒群に対する宮城の解⁴⁾ ($Re \ll 1$)を用いて軌跡計算により求めた。その結果をFig.7に示す。同図よりわかるように、ストークス数 Stk 、さえぎりパラメータ R が大きくなるほど、また無次元繊維間距離 H が小さくなるほど、 η_{IR} は大きくなっている。とくに、 R が0.05以下で $Stk = 0.5$ 付近で η_{IR} は急激に増加している。したがって、この部分を分級に利用すれば分級効率が高まるはずである。そ

こで、 η_{IR} の立ち上り部での粒径が $0.7 \mu\text{m}$ で Stk が約0.5になるように単線スクリーン通過速度を $v_2 = 500 \text{ cm/s}$ 、 $H = 2.4$ に設定し、SDB通過粒子を処理したときに得られる単線スクリーン出口での頻度分布を推定した。その結果をFig.6中に破線で示す。図よりわかるように、頻度は大粒子側で急激に減少し顕著な分級効果が見られる。また、Table 3には、 $H = 2, 2.4$ および単線スクリーン通過速度 $v_2 = 500, 800 \text{ cm/s}$ の場合の、 d_{pg} および σ_g の計算結果を示してあるが、ろ過速度 v_2 が大きくなると、また H が小さくなると、 d_{pg} 、 σ_g はともに小さくなっており、回収率も35%以上とDMAに比べかなり大きくなっている。したがっ

Fig.7 Single fiber collection efficiency of parallel fiber screen.

て、本方法の場合、 v_2 を大きくまた H を小さくすることによりFig.7に示した η_{IR} の立ち上がりの粒径を小さくすれば、さらに σ_g を小さくすることも可能である。しかし、拡散法と慣性法ではエアロゾルの通過速度が極端に異なり、DMAに比べると σ_g が大きくなる点が欠点といえる。とはいえ、粒子の回収率が大きいので、単分散性はそれほどでもないが高濃度の粒子を必要とする場合には適しているといえる。

4. 結 言

分級法を利用した微小粒子測定装置である微分型電気移動度解析装置とスクリーン型拡散バッテリーの粒径測定性能の検討を行うとともに、標準粒子発生法としての可能性について検討し、以下の結論を得た。

(1) DMA, SDBはともに微小粒子の粒径測定装

置として優れた性能を有しているが、SDBの場合、校正曲線が粒径に対し単調曲線とならないので、大粒子の測定は原理的に困難である。

(2) DMAはそれ自体優れた分級装置であるが、2台連結すればほとんど単分散の粒子が得られるので、標準粒子発生法として利用できる。しかし、粒子の回収率が低く高濃度エアロゾルが得られないのが欠点である。

(3) SDBは、 $0.3\mu\text{m}$ 以上の粒子に対する分離力が小さいのでそのままでは粒子発生法として適していないが、大粒子側で分離力の大きくなる慣性捕集装置と組み合わせれば、粒子回収率の大きな粒子発生法として利用できる。しかし、得られる粒子の単分散性はDMAよりかなり劣る。

Nomenclature

C_i	: inlet concentration of aerosol (particles / cm^3)	n_2	: number of parallel fiber screens [layers]
C_m	: Cunningham slip correction factor (-)	n_p	: number of charges on a particle (-)
C_n	: outlet concentration of aerosol from n-th layer of SDB (particles / cm^3)	P	: overall penetration of aerosol (-)
d_f	: fiber diameter (μm)	p	: penetration of monodisperse aerosol (-)
d_p	: particle diameter (μm)	Q	: air flowrate (cm^3/s)
d_{pg}	: geometric mean diameter of particles (μm)	R	: interception parameter ($=d_p/d_f$) (-)
E	: electric field (V/m)	Stk	: Stokes number ($=C_m\rho_p d_p^2 v_2/9\mu d_f$) (-)
e	: elementary charge (C)	v_1	: filtration velocity in SDB (cm/s)
$f(d_p)$	: particle size distribution function ($1/\mu\text{m}$)	v_2	: filtration velocity in parallel fiber screens (cm/s)
$g(d_p, n_p)$	: charge distribution function (-)	z_p	: electric mobility of a particle ($\text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$)
H	: dimensionless separation distance between fibers ($=h/d_f$) (-)	α	: packing density of SDB (-)
h	: separation distance between fibers (μm)	η	: single fiber collection efficiency (-)
L	: thickness of a screen (μm)	ρ_p	: density of particle (g/cm^3)
m	: filter coefficient defined in Eq.(4) (-)	μ	: viscosity of fluid ($\text{g}/\text{cm}\cdot\text{s}$)
n_1	: number of screens in SDB [layers]	subscript	
		D	: diffusion
		I	: inertia
		R	: interception

References

- 1) Kirsch, A. A., I. B. Stechkina, and N. A. Fuchs: *J. Aerosol Sci.*, **5**, 313 (1974)
- 2) Kirsch, A. A. and Uk. V. Zhulanov: *J. Aerosol Sci.*, **9**, 291 (1978)
- 3) Knutson, E. O. and K. T. Whitby: *J. Aerosol Sci.*, **6**, 443 (1975)
- 4) Miyagi, T.: *Phys. Soc. Japan*, **14**, 493 (1958)

Authors' Abstract

Measurement and Classification of Submicron Particles by Differential Mobility Analyzer and Screen-type Diffusion Battery

Chikao KANAOKA, Yoshio OTANI and Hitoshi EMI

Department of Chemical Engineering, Kanazawa University
2-40-20 Kodatsuno, Kanazawa 920, Japan

Performances of a Differential Mobility Analyzer (DMA) and a Screen-type Diffusion Battery (SDB) for the measurement of submicron particles are studied, and the applicability of these instruments for the generation of submicron test aerosols is investigated since both instruments measure particle size after classifying particles according to electric mobility and Brownian diffusivity, respectively.

As a sizer, both DMA and SDB have sufficient performances for submicron particle giving the same measurement result of particle size. As a generator, (1) DMA classifies aerosol into monodisperse particles (geometric standard deviation $\sigma_g < 1.1$) with low concentration. It is, hence, preferable for the generation of very monodisperse aerosol unless high concentration is required. (2) SDB is not preferable for the generation of monodisperse aerosols by itself since the classification characteristic is poor in large particle size region. Thus, SDB is combined with an inertial classifier (parallel fiber screens), and it makes it possible to generate high concentration aerosol with fairly high monodispersity ($\sigma_g \approx 1.5$). Therefore, the combination of SDB and parallel fiber screens is recommended for the generation of a fairly monodisperse aerosol if high concentration is required.