# 電荷数ごとの粒子数濃度を 高精度・高時間分解能で計測する手法の開発

慶應義塾大学 理工学部 応用化学科

森 樹大

## 1. はじめに

環境大気中に浮遊するエアロゾル粒子がイオンと衝突すると、粒子に電荷が帯びることが 報告されている (以下、帯電粒子)。その帯電粒子が半導体素子などに付着すると、静電気に よってホコリ等が集積し、通信障害の原因になると考えられている。有効的な帯電防止策を 講じるためには、粒子の集積速度に強く依存する帯電粒子の表面電荷数とその個数濃度を同 時に計測する技術開発が必要不可欠である。そこで本研究では、粒子の個数濃度の多い粒径 範囲 (0.3~0.5 μm) に着目し、電荷数ごとの粒子の個数濃度を高時間分解能で且つ、高精度 に測定する技術を開発し、その測定法を確立することを目的とした。

## 2. 従来の帯電粒子の計測法の問題点

これまで当研究室では、帯電粒子の分級装置を独自に開発し、帯電粒子の個数濃度を計測す る技術を確立してきた。<sup>1-3)</sup>この帯電粒子の分級装置とは、エアロゾル流を平行電極板に導入 し、一定の電圧を印加することで正や負に帯電した粒子を主流から分離させ、中央の主流と両 側流の出口から、それぞれ帯電していない粒子(以下、非帯電粒子)と正・負の帯電粒子を分 級する装置である(図1a)。この装置の後段に3台の光散乱粒子計数器 OPC(KA-02, RION Co., Ltd)を用いることで、0.3~0.5 µm(粒径範囲)における正の帯電粒子、非帯電粒子、負の帯電 粒子の個数濃度を同時に測定することが可能である。

Mori et al. (2024) は装置内の帯電粒子の透過効率を粒子の電荷数ごとに算出する解析法を 粒子の前方流跡線解析に基づき考案し、粒子の電荷数ごとの個数濃度を算出する手法を開発し た。さらにその手法を用いて、排出源近傍である横浜において、帯電粒子の個数濃度の通年観 測を実施してきた。しかしながら、屈折率と粒径 (0.37µm) が既知である標準粒子 (ポリスチ レンラテックス粒子,以下 PSL 粒子) を用いて PSL 粒子の帯電分布を室内実験から調べたと ころ、理論計算で得た粒子の帯電分布の幅と約 20% ほど異なった。<sup>1)</sup> その要因を明らかにす るため、装置内の粒子の運動を流体数値シミュレーションを用いて理解することを試みた。

「帯電粒子の分級装置内でどのように粒子が運動するのか」という問いを明らかにするた め、当研究室に所属する Aiman 博士とともに流体数値シミュレーション (Computational Fluid Dynamics: CFD) を用いて、装置内の粒子の運動を計算した。その結果、<u>帯電粒子の分級装置</u> の形がL字型をしていることから、サンプル空気が電極板間を通過する際、負に印加された電 極板に偏って粒子が分布することが示唆された (図 1b の赤の点線箇所)。測定の不確かさの要 因の一つに、粒子の電極板導入時に粒子が不均一に分布していたことが挙げられる。また、本 装置はアクリル板を組み合わせて作製されているため、経年劣化による外壁の損傷など、長期 の地上観測には適さない可能性がある。長期にわたり、安定した帯電粒子の計測を行うために は、経年劣化が起こりにくい素材を使用し、且つ粒子の電極板導入時に粒子が均一に分散する ような装置を新たに設計し、開発する必要がある。



図 1. (a) 従来の帯電粒子の分級装置の概略図、(b) 数値シミュレーションを用いて計算し た電極板内の非帯電粒子の流線。カラープロットは電極板に印加した電圧値を表す。

## 3. 数値シミュレーションを用いた流体解析と新規デバイスの設計

従来の装置の問題点を解決するため、本課題で考案した新しい帯電粒子の分級装置 (Keio Measurement system of Aerosol Charging State; K-MACS)の構造について説明する (図 2a)。本装 置は、4 つのインレットがある Mixing chamber と 2 枚の電極板、OPC に導入する 3 つのアウト レットから構成されている。サンプル空気は Mixing chamber に導入されたあと、2 か所から流 入するエアロゾルフリーの空気 (シースエアー)とともに電極板間に導入され、3 方向の出口 からそれぞれ 2.83 L/min の流量で空気が流れる、という仕組みである。Mixing chamber は、電 極板間に導入する流れを整流にするために必要であり、シースエアーはサンプル導入口からの 空気が中央出口に収束するために必要である。具体的な装置の寸法を決定するため、粒子の直 径 (0.3-0.5 μm)と流量 (8.49 L/min)を用いて、装置内の層流条件を満たす電極板間の断面積 (y-z 平面)を 2.50×10<sup>-3</sup> m<sup>2</sup> と決定した。さらに、実環境大気中で最も数の多い 1 価の帯電粒子 <sup>1)</sup>が壁面の損失なく測定できるように、電極板の長さを 0.25 m と決定し、K-MACS 全体の寸法 も決定した。

次に、装置内の流れが層流条件を満たすかどうかを確かめるため、流体数値シミュレーション (CFD)を用いて装置内の流体の速度分布を計算した (図 2b: x-z 平面,図 2c: x-y 平面)。 極板間では速度分布が一様であり、レイノルズ数が 70 と低かった。これは、装置内の流れが層 流であることを示唆している。本結果をもとに、本大学の加工施設の技術者と密に連絡をとり、 帯電粒子の分級装置の作製を行った。組み立て前と組み立て後の装置の様子を図 2d-e に示す。 本装置の素材は経年劣化が起こりにくいアルミニウムを使用した。本装置は、アルミ製の筐体 ((W) 73 × (D) 416 × (H) 110 mm)と電気伝導率の高い銅板 ((W) 1 × (D) 208 × (H) 100 mm)、絶縁 体のアクリル板 ((W) 3 × (D) 218 × (H) 100)などの部品から構成された。また、筐体自体に電 荷が帯びないように、筐体自体に電圧が印加しないように工夫している。



図 2. (a) K-MACS の模式図、(b, c) x-z 平面と x-y 平面における装置内の流体の速度分布、(d) 組み立て前の加工用機器部品(単位は mm)、(e)組み立て後の K-MACS(単位は mm)

## 4. 印加電圧の実計測

高圧電源モジュール (Model HFR5-6N, MATSUSADA Precision, Inc.) と USB-6001 マルチフ アンクション I/O デバイスを組み合わせ、両者の信号値の関係を、テスターを用いて実測した。 USB-6001 の入力電圧値と実測電圧値との関係と USB-6001 からの出力電圧値と実測電圧値と の関係を図 3 に示す。-5000 ~ 0 V の範囲で調べたところ、どちらも実測値と高い相関関係が あることがわかった。これらの関係式を用いることで PC から高圧電源モジュールに意図した い出力電圧を、USB-6001 を介して電極板に印加できることを確かめた。



図 3. (a) USB-6001 の入力電圧値と実測電圧値との関係 (b) USB-6001 からの出力電圧値と実 測電圧値との関係。最小二乗法で近似した直線と近似式も同時に示す。

## 5. 計測ソフトウェアと解析プログラムの開発

従来の帯電粒子の分級装置(図1)では、5分毎に印加電圧を0,1090V,1450V と連続的に変 化させ、それぞれの電圧値で分級された帯電粒子と非帯電粒子の数濃度をOPC で計測してき た。<sup>1-3)</sup>そのため、帯電粒子の数濃度や粒子の帯電分布は15分という時間分解能で取得され てきた。より高い時間分解能で帯電粒子の数濃度データを取得するために、印加電圧値を一定 にすることやOPCの出力信号の読み取り時間、計測ソフトウェアの改良を行った。その結果、 20s ごとの帯電・非帯電粒子の数濃度値を取得することに成功した。ソフト面の改良にあたり、 汎用性の高い LabVIEW を用いたソフトウェアを開発し(図4)、粒子の個数濃度の生データを 処理するため、Python を用いた解析プログラムも同時に開発した。



図4 帯電粒子と非帯電粒子の数濃度を連続観測するための LabVIEW プログラム画面

## 6. 帯電粒子の分級性能評価実験

「電圧印加時に、K-MACS内に導入された粒子のうち、正に帯電した粒子が負の電極板方向 に移動するのか?また、負に帯電した粒子が正の電極板方向に移動するのか?」という問いを 調べるための実験を行った。実験のダイアグラムを図5に示す。環境大気中の粒子をアメリシ ウム (<sup>241</sup>Am)を含んだ中和器に導入した後、電池式帯電ガン (GC25B, Green Techno, Inc.)を 用いて、直後のチャンバー内で粒子と正または負のイオンと衝突させ、正または負に帯電した 粒子を発生させた。中和器とはエアロゾルに一定のイオンを衝突させることで、エアロゾル群 を平衡帯電分布に変化させる装置である。正または負の帯電粒子をK-MACSで分級したあと、 正極板方向に移動した粒子の数濃度を OPC1 で、中央出口の粒子数濃度を OPC2 で、負極板方 向に移動した粒子数濃度を OPC3 で測定した。チャンバー直後の粒子数濃度を OPC4 で測定し た。OPC1~OPC4 は全て KA-02 であり、実験前に器差実験を行ったところ、それぞれ 10%以内 で粒子数濃度が一致していた。計測粒径範囲は、0.3-0.5 µm と 0.5 µm 以上の 2 チャンネルで ある。



図 5. 帯電粒子の分級装置の性能評価を調べる実験ダイアグラム

まず、0V、100V、300V の3種類の電圧を変化させ、正の帯電粒子(0.3 – 0.5µm)がど の OPC で検出されるのかを調べた。その結果、電圧を印加していない場合(0V)は、K-MACS の出口中央のみから粒子が検出される一方、電圧印加時には中央出口の粒子数濃度 が大幅に減少し、負に印加した電圧の極板方向から正の帯電粒子が多く検出されることが わかった。また、負イオン出力用のコロナ帯電ガンを用いた場合も同様に、正に印加した 電圧の極板方向から負の帯電粒子が検出されることがわかった。これらの結果は、正また は負に帯電した粒子が反対の極性を持つ極板方向に移動することを示唆しており、帯電粒 子が K-MACS 内で正常に分級できることを示唆している。また、0.5 µm 以上の粒子につ いても同様の結果を得た。以上の室内実験から、どの粒径においても正と負に帯電した粒 子を K-MACS で分級でき且つ、高い時間分解能(20s)で粒子数濃度を計測する手法を確 立した。



図 6(a) 正極性用のコロナ帯電ガンを用いた実験結果。0.3-0.5 µm における全粒子数濃度 (黒)、 電極板の正極側 (Fig.5 OPC1) に移動した粒子数濃度 (赤)、K-MAC の中央出口 (Fig.5 OPC2) から出てくる粒子数濃度 (緑)、電極板の負極側 (Fig.5; OPC3) に移動した粒子数濃度 (青)、 出力電圧 (ピンク) の時間変化。(b) 負極性用のコロナ帯電ガンを用いた実験結果。

## 7. 今後の展望

電荷数ごとの粒子数濃度を算出するためには、まず PSL 粒子 (0.37µm) の懸濁液をアトマイ ザーで発生させ、乾燥させた後、PSL 粒子を K-MACS に導入する実験を行う必要がある。測 定した粒子の帯電分布の形が、理論計算から得た平衡帯電分布と一致するように、最適な印加 電圧を決定するための実験を今後行う予定である。

### 8. まとめ

本研究では、まず従来の帯電粒子の分級装置の問題点である「電極板導入時における粒子の 不均一な分布」を克服するため、新たな装置の設計と開発を行った。本装置の構造は、流体数 値シミュレーションを用いて装置内の流れが層流条件で且つ、電極板導入時に粒子が均一に分 散するように決定された。次に、帯電粒子の個数濃度をより高時間分解能で測定するため、 LabVIEW を用いて計測ソフトウェアを開発し、python を用いて解析プログラムも開発した。 その結果、従来の測定時間分解能(15分)よりも遥かに高い時間分解能(20s)で生データを 取得し、帯電粒子の個数濃度を算出することに成功した。また、コロナ帯電ガンを用いて帯電 粒子を発生させた実験では、正に帯電した粒子は負に印加した電圧の電極板方向に、負に帯電 した粒子は正に印加した電圧の電極板方向に、それぞれ移動することを実証した。K-MACSと OPC を組み合わせた新たな計測システムを開発したことにより、今後、環境大気中の帯電粒子の個数濃度を高時間分解能で計測できることが期待される。

## 9. 研究成果

貴財団の助成金の成果を以下に記す。

## <u>査読付き原著論文(1 件)</u>

 Mori, T., Ishii, Y., Iwata, A., Okuda, T. (2024). Seasonal charge distributions of submicron atmospheric particles in Yokohama, Japan. *Atmospheric Environment*, 120421, 13. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2024.120421

## <u>招待講演(国際シンポジウム 1件)</u>

 Mori, T. Observational studies on the charging state of submicron atmospheric particles. 8th Kanomax International Aerosol Workshop (Shinagawa, Tokyo), 2024/10.

## 学会発表(国内 2件)

- 1. <u>森樹大</u>,松木篤,岩田歩,鴨川仁,奥田知明,横浜と能登における粒子の帯電分布の変動要因,第65回大気環境学会年会,(慶應義塾大学(横浜市日吉),2024,9/11-9/13),ポスター.
- 2. <u>森樹大</u>,松木篤,岩田歩,鴨川仁,奥田知明,能登における帯電粒子の季節変化と変動要因の解明,第 41 回エアロゾル科学・技術討論会,(工学院大学 (東京都八王子),2024,8/20 8/22),ポスター.

#### 謝辞

本研究を遂行するにあたり、天野工業技術研究所、科研費基盤 C (24K15319;代表森樹大,2024~2026 年度)、慶應義塾大学学事振興資金から多大なご支援を頂きました。ここに記して謝意を示します。

#### 参考文献

- Mori, T., Ishii, Y., Iwata, A., Okuda, T., 2024. Seasonal charge distributions of submicron atmospheric particles in Yokohama, Japan. *Atmospheric Environment*, 120421, 13. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2024.120421
- Okuda, T., Gunji, Y., Lenggoro, I.W., 2015. Measurement of the electrostatic charging state of individual particles in ambient aerosol using Kelvin Probe Force Microscopy. *Earozoru Kenkyu*, 30, 190–197. https://doi.org/10.11203/jar.30.190 (in Japanese).
- Iwata, A., Fujioka, K., Yonemichi, T., Fukagata, K., Kurosawa, K., Tabata, R., Kitagawa, M., Takashima, T., Okuda, T., 2019. Seasonal variation in atmospheric particle electrostatic charging states determined using a parallel electrode plate device. *Atmospheric Environment*, 203, 62–69. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.01.040.