



UNIVERSIDAD CARLOS III DE MADRID

TESIS DOCTORAL

**Cargadores de Aerosoles Submicrométricos:
Cargador Bipolar Radiactivo de Baja Actividad
y Cargador Unipolar Corona**

*(Submicron Aerosol Chargers: Weak Radioactive
Bipolar Charger and Corona Unipolar Charger)*

Autor:

María Margarita Vivas

Director: Esther Hontañón Lavín
Departamento de Medio Ambiente, CIEMAT

Co-Director: Andreas Schmidt-Ott
Department of Chemical Technology, Delft University of Technology

Tutor: Antonio Lecuona Neumann
Departamento de Ing. Térmica y de Fluidos, Universidad Carlos III de Madrid

DEPARTAMENTO DE INGENIERÍA TÉRMICA Y DE FLUIDOS

Leganés, Febrero 2007

TESIS DOCTORAL

**Cargadores de Aerosoles Submicrométricos:
Cargador Bipolar Radiactivo de Baja Actividad
y Cargador Unipolar Corona**

*(Submicron Aerosol Chargers: Weak Radioactive
Bipolar Charger and Corona Unipolar Charger)*

Autor:

María Margarita Vivas

Director: Esther Hontañón Lavín

Co-Director: Andreas Schmidt-Ott

Tutor: Antonio Lecuona Neumann

FIRMA DEL TRIBUNAL CALIFICADOR:

Firma

Presidente: Horacio Lamela

Vocal: Manuel Alonso

Vocal: Heinz Burtscher

Vocal: Frank Einar Kruis

Secretario: José Ignacio Nogueira

CALIFICACIÓN:

Leganés, 13 de Abril de 2007

A mi familia, a la que tanto quiero y extraño...
Papá, Mamá, Amor, Kathy, Iván Edilio,
y las pequeñas Cielito, Sofía y Julia

Agradecimientos

Me gustaría dar mi más sincero agradecimiento a todas las personas que a lo largo de estos cuatro años han estado apoyándome y ayudándome de una u otra forma, y que gracias a ellos ha sido posible el desarrollo de esta tesis doctoral y de mi crecimiento profesional.

A mi directora de tesis, la Dra. Esther Hontañón Lavín, por su ayuda constante en el desarrollo de este trabajo. Además, debo agradecerle la realización de las simulaciones numéricas del cargador bipolar, así como la corrección de esta memoria.

A mi co-director de tesis, el Prof. Dr. Andreas Schmidt-Ott, por darme la oportunidad de realizar la parte experimental de este trabajo en los laboratorios del Grupo de Tecnología de Partículas que él lidera en Delft University of Technology (Países Bajos). Gracias por su inestimable ayuda y dedicación durante los 18 meses que estuve en la preciosa ciudad de Delft.

A mi tutor por parte de la Universidad Carlos III de Madrid, el Prof. Dr. Antonio Lecuona Neumann, por su interés y apoyo durante los trámites de presentación y defensa de esta tesis doctoral.

Al Dr. Manuel Martín Espigares, por su constante apoyo y por haberme dado la oportunidad de desarrollar esta tesis doctoral en la División de Tecnologías Ambientales que él lidera en el CIEMAT.

Al Dr. Heinz Burtscher, por su orientación, aportación de ideas y gran ayuda a nivel experimental durante su estadía en Delft University of Technology. Siempre le estaré muy agradecida.

Al Dr. Manuel Alonso, por su gran ayuda en momentos clave del desarrollo de este trabajo, y por facilitarnos el atomizador para la generación de aerosoles.

A D. Juan Antonio Rubio, Director General del CIEMAT, y a Dña. Rosa Vidania Muñoz, de la Secretaría General, por su ayuda económica al momento de finalizar esta tesis doctoral.

A mi amigo y colega Pablo Martínez-Lozano Sinués, por su apoyo y ayuda incondicional en todo momento. Gracias por ayudarme a desarrollar las ideas en el laboratorio y por el desarrollo del sistema de control y automatización con el LabVIEW. Y por supuesto por tu amistad, paciencia y por escucharme a todas horas.

A Giovanni Modica, gracias por tu paciencia, apoyo y amor en todo momento, y por tu inmensa ayuda con el LaTeX.

Por parte del CIEMAT quiero agradecer especialmente a Marino García, por su infinita ayuda en la construcción y reparación de los cargadores y precipitadores. A Alfonso Casado y Daniel de Miguel, del taller general. Al Laboratorio de Metrología, por proporcionarnos las fuentes radiactivas de americio-241. A Enrique Rojas, Francisco Gómez Moreno, Jesús Maroto, José Luis Dorronsoro, Rosa Pérez, Luis del Hoyo, por haber estado siempre dispuestos a ayudarme. Y a mis colegas y amigos Manuel Prieto, Rafael Muñoz, Miguel Embid, Bertrand Naud y Alberto Bollero, por hacer mi estadía en el centro más especial.

Por parte de Delft University of Technology quiero dar mi más sincero agradecimiento a Ajay Galdar, Christian Peineke y Raghu Pitchumani, por su inestimable ayuda en el laboratorio. A Alex Boot, Alex Ploegman y Bart Boshuizen por su ayuda en los talleres y con la automatización. A los profesores Jan Marijniseen, Henk Nugteren y Stefan Luding por haber sido siempre tan amables conmigo. Y a Ineke, Nooshin, Sjaak, Fieneke, Micha, Tomasz, Anna, Mike, Andy, Jan, Bas, Tobias y Ricardo, por hacer mi estadía en la universidad tan acogedora.

A mi familia, que desde Venezuela siempre me han enviado ánimos y muchas fuerzas para seguir adelante. A mi tío Héctor por estar siempre atento desde que me vine a España. A mis buenos amigos Claudia Astete, Zaira Girbau, Miguel Barajas, José Miguel Caballero, Diego Romero, Jordi Figueras y Claudia Fernández, por su apoyo y ánimo en los momentos en que más lo he necesitado.

Esta tesis doctoral ha sido sufragada por el Ministerio de Educación y Ciencia y el Fondo Social Europeo a través de la beca DPI2001-0689.

Resumen

En el transcurso de esta Tesis Doctoral se han desarrollado y caracterizado dos cargadores de aerosoles submicrométricos, de los tipos radiactivo y corona, para el cargado de partículas en el rango de tamaños de 50 a 250 nm. Se ha optimizado el diseño y las condiciones de operación de los cargadores para su utilización en técnicas de medida basadas en la movilidad eléctrica de las partículas, como las que se emplean para la medida de la distribución de tamaños de partícula de aerosoles polidispersos y para la generación de aerosoles monodispersos.

Estas técnicas requieren el cargado eléctrico de las partículas del aerosol previamente a su entrada en un clasificador electrostático (DMA), el cual separa las partículas según su movilidad eléctrica. La movilidad eléctrica es función del tamaño y de la carga de la partícula, por lo que si se conoce la distribución de carga de las partículas a la entrada del DMA se puede conocer también su distribución de tamaños. Idealmente, las partículas del aerosol polidisperso deberían adquirir todas carga unidad, en cuyo caso la conversión a distribución de tamaños de la distribución de movilidades que proporciona el DMA es sencilla. En los cargadores reales, sin embargo, las partículas adquieren más de una carga y el número de carga aumenta con el tamaño de partícula. Así, en la práctica, la determinación de la distribución de tamaños a partir de la distribución de movilidades es un proceso tedioso que requiere el desarrollo de algoritmos numéricos complejos.

La mayoría de los sistemas para la medida de la distribución de tamaños de aerosoles submicrométricos basados en DMA utilizan cargadores radiactivos. Los cargadores radiactivos proporcionan una distribución de carga estacionaria bien conocida. Por el contrario, la utilización de cargadores corona en estos sistemas es muy limitada, debido fundamentalmente al alto número de cargas que adquieren las partículas. En esta Tesis Doctoral se introducen dos nuevos modelos de cargadores, radiactivo y corona, para el cargado de partículas en el rango submicrométrico. En ambos cargadores el mecanismo de cargado de partículas es de tipo difusivo; las partículas se cargan debido a las colisiones de los iones del gas con la superficie de las partículas.

En primer lugar, se ha desarrollado y caracterizado un cargador bipolar radiactivo basado en una fuente de ^{241}Am de baja actividad. Se ha probado experimentalmente y mediante simulación numérica que el cargador es idóneo para el cargado de aerosoles submicrométricos (distribución de carga estacionaria) con caudales del gas de arrastre entre 0.5 y $2.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ (valores típicos del caudal de aerosol en DMAs) y concentraciones numéricas de partículas hasta $2\cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$. La actividad de la fuente de ^{241}Am es inferior al límite de exención que impone el Reglamento sobre Instalaciones Nucleares y Radiactivas (Real Decreto 1836/1999) vigente en España. Al tratarse de una fuente radiactiva exenta, no aplica a la misma el Reglamento sobre Protección Sanitaria contra Radiaciones Ionizantes (Real Decreto 783/2001). Así, el cargador de ^{241}Am presenta dos ventajas importantes con respecto a los cargadores que utilizan fuentes radiactivas no exentas. En primer lugar, el coste del cargador de ^{241}Am es notablemente inferior, debido a la menor actividad de la fuente; entre tres y cuatro órdenes de magnitud inferior a la actividad de las fuentes que utilizan los cargadores radiactivos que existen actualmente en el mercado. Por otra parte, el cargador de ^{241}Am puede utilizarse sin restricciones, al contrario de los cargadores que emplean fuentes radiactivas no exentas, cuya manipulación, transporte y almacenamiento ha de hacerse siguiendo estrictos protocolos, de obligado cumplimiento, que impone la normativa sobre protección radiológica.

En segundo lugar, se ha modificado un cargador unipolar de efecto corona ya existente [[Büscher *et al.* \(1994\)](#)], para su aplicación a la generación de aerosoles monodispersos en el rango submicrométrico, seguido de un DMA. En este caso, el requisito fundamental es que las partículas de todos los tamaños presentes en el aerosol polidisperso que entra al DMA adquieran una carga. Así, se han introducido modificaciones en el diseño y condiciones de operación del cargador corona original, encaminadas a minimizar el número de partículas que adquieren múltiples cargas en el cargador. En particular se ha optimizado la geometría del electrodo interior y el voltaje aplicado a dicho electrodo. Este último tiene forma de onda rectangular de amplitud y frecuencia constantes. El único parámetro variable es la duración del pulso; es decir la fracción de tiempo, referida al periodo de la onda, durante el cual se aplica un voltaje positivo al electrodo (D). El resto del tiempo ($1 - D$) el voltaje aplicado es cero. El parámetro que determina el nivel

de carga que adquieren las partículas en un cargador es el producto $N_i t$, donde N_i es la concentración de iones y t el tiempo de residencia del aerosol en el cargador. En el cargador corona, la concentración de iones aumenta con la duración del voltaje pulso que se aplica al electrodo interior. Se ha verificado experimentalmente que, fijado el caudal (y por tanto el tiempo de residencia) para cada tamaño de partícula existe un valor óptimo de D para el cual la fracción de partículas con múltiples cargas se hace despreciable frente a la fracción de partículas con carga unidad. Así, el cargador corona puede utilizarse para la generación de aerosoles monodispersos en el rango submicrométrico seguido de un DMA. En la práctica, el valor óptimo de D deberá determinarse para cada caso particular, según la distribución de tamaños, la concentración numérica de partículas y el caudal del aerosol polidisperso de partida. Por último, los resultados experimentales han servido para la validación de un modelo estado del arte de cargado de partículas en un cargador unipolar corona [Büscher *et al.* (1994), Biskos *et al.* (2005b)]. El modelo tiene en cuenta el efecto de la carga de los iones en el campo eléctrico en el cargador y se basa en la teoría de Fuchs (1963) de la probabilidad de cargado de partículas por difusión. El trabajo de la Tesis incluye un estudio de sensibilidad de las predicciones del modelo a la incertidumbre asociada a las propiedades de los iones, en particular la movilidad eléctrica y la masa, basado en distintos valores de estos parámetros encontrados en la bibliografía.

Abstract

In the course of this PhD Thesis, two aerosol chargers, of the radioactive and corona types, have been developed and characterized for the charging of submicron particles in the size range of 50 to 250 nm. The design and the operating conditions of the chargers have been optimized to be used in measurement techniques based on the particle electrical mobility, like the ones employed for the measurement of the particle size distribution of polydisperse aerosols and for the generation of monodisperse aerosols.

These techniques require the electrical charging of the particles prior to their entrance into an electrostatic analyser (DMA), which classifies particles according to their electrical mobility. The electrical mobility is a function of the particle size and charge. Thus, if the charge distribution of the particles at the entrance of the DMA is known, the particle size distribution can be determined. Ideally, the particles of the polydisperse aerosol should carry a single charge, which makes easy the conversion of mobility distributions to size distributions. However, in the real chargers, the particles acquire more than one charge and the number of charges increases with the particle size. In practice, the determination of the particle size distribution from the mobility distribution is therefore a tedious process that requires the development of complex numerical algorithms.

Most of the DMA-based systems used for the measurement of the particle size distribution of submicron aerosols contain radioactive chargers. These chargers provide a well known stationary charge distribution. In contrast, the utilization of corona chargers in these systems is very limited, basically due to the high number of charges acquired by the particles. Two new models of chargers have been introduced in this work for the charging of submicron particles: a weak radioactive charger and a corona charger. In both of them the particle charging mechanism is of diffusive type (particles are charged because of the collisions of the gas ions with the surface of the particles).

In a first stage, a radioactive bipolar charger based on a ^{241}Am source of low activity has been developed and characterized. It has been shown both expe-

perimentally and numerically that the ionizer is suitable for the charging of submicron aerosols (stationary charge distribution) at gas flow rates between 0.5 and 2.5 l·min⁻¹) (typical values of aerosol flow rate in DMAs) and particle number concentrations up to 2·10⁶ cm⁻³. It is important to note that the activity of the ²⁴¹Am source is below the exemption limit, in accordance with the current Regulation on Nuclear and Radioactive Installations (Real Decreto 1836/1999) in Spain. Consequently, the Regulation on Sanitary Protection against Ionizing Radiations (Real Decreto 783/2001) does not apply to this charger. Thus, the ²⁴¹Am charger exhibits two major advantages with respect to the chargers that use non-exempted high activity sources. Firstly, its cost is significantly lower due to the reduced activity of the source (three or four order of magnitudes). And, secondly, the ²⁴¹Am charger can be used without restrictions on handling, transport and storage, avoiding to follow the obligatory strict protocols imposed by the regulation on radiological protection.

In a second stage, an existing corona unipolar charger [[Büscher *et al.* \(1994\)](#)] has been modified for its application to the generation of monodisperse aerosols with particle sizes in the submicron range, followed by a DMA. In this case, the crucial point is that particles of all sizes present in the polydisperse aerosol at the entrance of the DMA carry at most a single charge. Thus, modifications in the design and operating conditions of the original corona charger have been introduced, in order to minimize the number of particles that acquire multiple charges. Particularly, the geometry of the inner electrode and the voltage applied on it have been optimized. The voltage is a rectangular wave of constant amplitude and frequency. The only variable parameter is the pulse duration, i.e the fraction of the time during which a positive voltage is applied on the electrode (D). The rest of the time ($1-D$) the applied voltage is zero. The parameter that determines the charge level acquired by the particles is the $N_i t$ product, where N_i is the ion concentration and t is the aerosol residence time. In the corona charger, the ion concentration increases with the pulse voltage duration applied to the inner electrode. For a fixed flow rate, i.e. the residence time, it has been proved experimentally that an optimal value of D can be found for which the fraction of multiply charged particles is negligible with respect to the fraction of singly charged particles. In practice, an optimal value of D must be determined for each particular case,

depending on the particle size distribution, the particle number concentration and the aerosol flow rate. Furthermore, the experimental results have served to validate a state of the art model for the charging of particles in a corona unipolar charger [[Büscher *et al.* \(1994\)](#), [Biskos *et al.* \(2005b\)](#)]. This model is based on the particle diffusion charging theory of [Fuchs \(1963\)](#) and it takes into account the effect of the space charge of the ions in the electrical field inside the charger. The work includes a sensitivity study of the model predictions to the uncertainty in the ion properties, mainly electrical mobility and mass, based on different values of these parameters reported in the literature.

Contenido

Lista de Tablas	xvi
Lista de Figuras	xxiv
Nomenclatura	xxxii
1. Introducción	1
2. Fundamentos del Cargado de Aerosoles	9
2.1. Aerosoles y sus Propiedades	10
2.1.1. Parámetros de Caracterización de Aerosoles	10
2.1.1.1. Tamaño de partícula	11
2.1.1.2. Concentración de partículas	13
2.1.2. Movilidad de una Partícula	13
2.1.2.1. Movilidad mecánica	13
2.1.2.2. Movilidad eléctrica	15

2.2. Cargado Eléctrico de Aerosoles	17
2.2.1. Cargado por Difusión	17
2.2.1.1. Cargado por difusión bipolar	18
2.2.1.2. Cargado por difusión unipolar	22
2.2.2. Cargado por un Campo Eléctrico	23
2.3. Fuentes de Ionización de Gases	26
2.3.1. Fuentes Radiactivas	26
2.3.1.1. Tipos de radiaciones	27
2.3.1.2. Interacción de las partículas con la materia	30
2.3.1.3. Alcance	32
2.3.1.4. Ionización	33
2.3.2. Descarga Corona	36
2.3.2.1. Principio de operación	36
2.3.2.2. Campo eléctrico de inicio de la corona	39
2.3.2.3. Voltaje de inicio de la corona	41
2.4. Tipos de Cargadores	42
2.4.1. Cargadores Bipolares	44
2.4.1.1. Cargadores bipolares radiactivos	45
2.4.1.2. Cargadores bipolares corona	50

2.4.2. Cargadores Unipolares	54
2.4.2.1. Cargadores unipolares radiactivos	54
2.4.2.2. Cargadores unipolares corona	59
3. Submicron Aerosol Chargers	67
3.1. Weak Radioactive Bipolar Charger	67
3.1.1. Design Features	68
3.1.2. Estimation of the $N_i t$ Product	71
3.1.3. Theoretical Modelling of Bipolar Diffusion Charging	72
3.1.3.1. Governing equations	74
3.1.3.2. Ion to particle attachment coefficients	76
3.1.3.3. Ion properties	79
3.1.3.4. Stationary charging	81
3.2. Corona Unipolar Charger	83
3.2.1. Design Features	84
3.2.2. Estimation of the $N_i t$ Product	87
3.2.3. Theoretical Modelling of Unipolar Diffusion Charging	90
3.2.3.1. Governing equations	91
4. Instalación y Métodos Experimentales	93

4.1. Instalación Experimental	93
4.1.1. Atomizador	98
4.1.2. Desecador	100
4.1.3. Clasificador Electrostático	101
4.1.4. Neutralizador Radiactivo	102
4.1.5. Analizador de Movilidad Eléctrica	103
4.1.6. Precipitador Electrostático	107
4.1.7. Contador de Núcleos de Condensación	108
4.2. Experimental Variables	110
4.2.1. Charging Efficiency	110
4.2.2. Charge Distribution	111
5. Results and Discussion	113
5.1. Weak Radioactive Bipolar Charger	114
5.1.1. Estimation of the $N_i t$ Product	114
5.1.2. Experimental Results	115
5.1.2.1. Monodisperse aerosols	115
5.1.2.2. Polydisperse aerosols	121
5.1.3. Experiments versus Numerical Simulation	126
5.1.3.1. Ion to particle attachment coefficients	127

5.1.3.2.	Monodisperse aerosols	128
5.1.3.3.	Polydisperse aerosols	134
5.1.3.4.	Stationary charging	136
5.2.	Corona Unipolar Charger	145
5.2.1.	Experimental Results	145
5.2.1.1.	Optimal configuration and operating conditions .	145
5.2.1.2.	Charging efficiency	149
5.2.1.3.	Particle charge distribution	151
5.2.2.	Experiments versus Theoretical Model	151
5.2.2.1.	Estimation of the $N_i t$ product	151
5.2.2.2.	Mean number of charges	156
6.	Conclusions	161
6.1.	Weak radioactive bipolar charger	161
6.2.	Corona unipolar charger	163
	Bibliografía	176

Lista de Tablas

2.1. Rango de tamaños de aerosoles y otros fenómenos (Hinds, 1999). . .	12
2.2. Distribución de cargas de equilibrio de Boltzmann sobre partículas de aerosol.	20
3.1. Characteristics of the radioactive sources used in this work.	70
3.2. Properties of air ions reported by different authors.	80
3.3. Coefficients $a_{i,n}$ of the formula of Wiedensohler (1988) for the steady-state bipolar charge distribution of submicron particles. . .	82
3.4. Distribution of charges on aerosol particles according to Wiedensohler formulas.	83
5.1. Values of the $N_i t$ product of the weak radioactive charger of ^{241}Am (this work) and of other radioactive chargers reported in the literature.	116
5.2. Particle charge distributions measured at the outlet of the ionizers of ^{241}Am and ^{210}Po in experiments with uncharged and singly charged monodisperse aerosols at a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, and stationary charge distributions of Wiedensohler (1988).	120

- 5.3. Particle charge distributions measured at the outlet of the ionizer of ^{241}Am in experiments with uncharged and singly charged monodisperse aerosols at a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, particle charge distributions calculated with the numerical model, and stationary charge distributions of Wiedensohler (1988). 129
- 5.4. Particle charge distributions at the outlet of the ionizer of ^{241}Am in the simulations with polydisperse aerosols at a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, and stationary particle charge distributions of Wiedensohler (1988). 137
-

Lista de Figuras

2.1. Análisis de las fuerzas que actúan sobre una partícula suspendida en un gas en reposo, bajo la acción de la gravedad.	14
2.2. Análisis de las fuerzas que actúan sobre una partícula suspendida en un gas en reposo, bajo la acción de una fuerza eléctrica.	16
2.3. Número de cargas en función del diámetro de partícula obtenidas para diferentes mecanismos de cargado. Cargado por difusión a $N_i t = 10^7 s \cdot cm^{-3}$; cargado por un campo eléctrico a $E = 5 kV \cdot cm$, $N_i t = 10^7 s \cdot cm^{-3}$ y $\epsilon = 5,1$; límite de Rayleigh para agua con $\nu = 0.073 N \cdot m^{-1}$	21
2.4. Líneas de campo eléctrico para una partícula en un campo uniforme (iones negativos y electrodo negativo a la izquierda). a) partícula sin carga; b) partícula parcialmente cargada; c) partícula con carga de saturación.	25
2.5. Espectro de energía de la desintegración β^- del ^{210}Bi	30
2.6. Ionización específica relativa del ^{241}Am en función de la distancia desde la fuente radiactiva (referido en Alonso y Alguacil, 2003).	35
2.7. Relación típica entre voltaje y corriente.	37
2.8. Principio de operación de una descarga corona.	38

2.9. Mecanismo de ionización y carga de partículas en coronas positivas y negativas.	39
2.10. Descargas coronas en electrodos tipo aguja.	40
2.11. Intensidad del campo eléctrico en un tubo de 20 cm de diámetro con un alambre concéntrico de 1 mm de diámetro a 50 kV. La región corona no se presenta a escala.	42
2.12. Diferentes diseños de cargadores bipolares radiactivos.	47
2.13. Diferentes diseños de cargadores bipolares corona.	52
2.14. Diferentes diseños de cargadores unipolares radiactivos.	57
2.15. Diferentes diseños de cargadores unipolares corona de alambre. . .	61
2.16. Diferentes diseños de cargadores unipolares corona de aguja. . . .	64
3.1. Layout of the weak radioactive bipolar charger: frontal view (top) and lateral view (bottom).	69
3.2. Picture of the weak radioactive bipolar charger.	69
3.3. Motion of ions inside the limiting sphere (Funchs, 1963).	79
3.4. Layout of the corona unipolar charger by Büscher et al. (1994). .	85
3.5. Picture of the corona unipolar charger and internal detail.	85
3.6. Representation of the pulse voltage applied to the inner electrode (grid).	87
3.7. Detail of the corona charger to illustrate the movement of ions in the charging region when a positive/zero pulse voltage is applied to the grid.	88

4.1. Instalación experimental empleada para la caracterización de los cargadores de partículas.	95
4.2. Fotografía de la instalación experimental.	97
4.3. Atomizador de salida constante (TSI 3076).	99
4.4. Principio de operación del atomizador comercial de TSI.	99
4.5. Desecador de partículas por difusión.	100
4.6. Clasificador electrostático (TSI 3071).	102
4.7. Neutralizador de ^{85}Kr de 2 mCi (TSI 3077).	103
4.8. Neutralizador de ^{210}Po de 10 mCi (NUCLECEL P-2021).	103
4.9. Esquema de funcionamiento de un DMA cilíndrico.	105
4.10. Representación esquemática de la función de transferencia de clasificación de un DMA (izquierda) y función de transferencia triangular obtenida en el desarrollo de Knutson y Whitby (derecha). Los círculos representan las partículas que logran alcanzar el sensor (área gris en el electrodo superior) mientras que las líneas discontinuas representan las trayectorias de las partículas que impactan aguas arriba y aguas abajo del sensor.	105
4.11. Precipitador electrostático.	108
4.12. Contador de núcleos de condensación (TSI 3025A).	109
4.13. Principio de operación del CPC.	109
4.14. Definition of particle concentrations in the corona charger.	111

5.1. Current-voltage relationship in the weak radioactive bipolar charger (^{241}Am , 9 kBq).	114
5.2. Picture of the perforated plate (left) and the grid (right) used in the weak radioactive charger.	117
5.3. Fractions of uncharged particles measured at the outlet of the ionizers of ^{241}Am and ^{210}Po in experiments with singly charged (a) and uncharged (b) monodisperse aerosols, and stationary values of Wiedensohler (1988).	118
5.4. Normalized mobility distributions of positively and negatively charged particles measured at the outlet of the ionizers of ^{241}Am and ^{210}Po in experiments with uncharged (a) and singly charged (b) particles of 200 nm at a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$	119
5.5. Normalized mobility distributions of positively and negatively charged particles measured at the outlet of the ionizers of ^{241}Am and ^{210}Po in experiments with uncharged particles of 200 nm at flow rates of $0.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ (a) and $2.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ (b).	119
5.6. Particle charge distributions measured at the outlet of the ionizers of ^{241}Am and ^{210}Po in experiments with uncharged and singly charged particles of 50 nm (a), 100 nm (b), 150 nm (c), 200 nm (d) and 250 nm (e) at a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, and stationary charge distributions of Wiedensohler (1988).	123
5.7. Particle size distributions of non-diluted and diluted polydisperse aerosols at the entrance to the radioactive ionizers of ^{85}Kr , ^{210}Po and ^{241}Am	124
5.8. Particle mobility distributions measured at the outlet of the ionizers of ^{85}Kr , ^{210}Po and ^{241}Am in experiments with diluted (a) and non diluted (b) polydisperse aerosols at a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$	125

5.9. Particle losses in the ionizer of ^{241}Am measured experimentally (open symbols) and calculated with the formula of Cheng and Yeh (1980) (dotted lines).	126
5.10. Ion to particle attachment coefficients predicted by the theory of Fuchs (open symbols, dotted lines) and calculated in this work (solid symbols, solid lines).	127
5.11. Evolution with time of the particle charge distribution in the ionizer of ^{241}Am in simulations with uncharged (a.1) and singly charged (a.2) monodisperse particles of 50 nm, and uncharged (b.1) and singly charged (b.2) monodisperse particles of 250 nm.	130
5.12. Particle charge distributions measured at the outlet of the ionizer of ^{241}Am in experiments with uncharged and singly charged particles of 200 nm (a) and 250 nm (b) at a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, and particle charge distributions calculated with the numerical model.	131
5.13. Particle charge distributions measured at the outlet of the ionizer of ^{241}Am in experiments with uncharged and singly charged particles of 50 nm (a), 100 nm (b), 150 nm (c), 200 nm (e) and 250 nm (f) at a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, particle charge distributions calculated with the numerical model, and stationary charge distributions of Wiedensohler (1988).	133
5.14. Evolution with time of the charge distribution of particles of 50 nm (a) and of 250 nm (b) in the ionizer of ^{241}Am in simulations with diluted (left) and non diluted (right) polydisperse aerosols.	135
5.15. Charge distributions of particles of 50 nm (a), 100 nm (b), 200 nm (c) and 250 nm (d) at the outlet of the ionizer of ^{241}Am in simulations with diluted and non diluted polydisperse aerosols at a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, and stationary charge distributions of Wiedensohler (1988).	138

-
- 5.16. Stationary values of the concentration of bipolar ions and of the ratio of ion concentrations in the ionizer of ^{241}Am versus the particle to ion concentration ratio. Numerical predictions for uncharged monodisperse particles of 50 nm (a) and 250 nm (b). 140
- 5.17. Stationary values of the concentration of positively charged ions (a) and of the ratio of ion concentrations (b) in the ionizer of ^{241}Am versus the particle to ion concentration ratio. Numerical predictions for uncharged monodisperse particles of 50, 100, 150, 200 and 250 nm. 140
- 5.18. Stationary particle charge distributions in the ionizer of ^{241}Am versus the particle to ion concentration ratio. Numerical predictions for uncharged monodisperse particles of 50 nm (a) and 250 nm (b). 141
- 5.19. Mean charge of the stationary particle charge distributions in the ionizer of ^{241}Am versus the particle to ion concentration ratio. Numerical predictions for uncharged monodisperse particles of 50, 100, 150, 200 and 250 nm. 142
- 5.20. Stationary values of the total fraction of charged particles in the ionizer of ^{241}Am versus the particle to ion concentration ratio. Numerical predictions for uncharged monodisperse particles of 50, 100, 150, 200 and 250 nm. 142
- 5.21. Time to attain the steady-state in the ionizer of ^{241}Am versus the particle to ion concentration ratio. Numerical predictions for uncharged monodisperse particles of 50, 100, 150, 200 and 250 nm. . 143
- 5.22. Current-voltage relationship in the corona unipolar charger. . . . 146
- 5.23. Normalized mobility distributions of positively charged particles of 80 nm measured at the outlet of the corona charger in experiments with constant voltage (a) and pulse voltage (b) on the grid of 15 mm length and a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ 147
-

-
- 5.24. Normalized mobility distributions of positively charged particles of 250 nm measured at the outlet of the radioactive bipolar charger (^{210}Po) and at the outlet of corona charger in experiments with pulse voltage on the grids of 7.5 mm length (a) and 3 mm length (b) and a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ 149
- 5.25. Experimental values of the extrinsic particle charging efficiency in the corona charger ξ_{ext} versus the duty cycle of the pulse voltage applied to the grid (open symbols) and values of the total fraction of positively charged particles in a radioactive charger calculated by Wiedensohler ξ^* (solid symbols), for particles of various sizes and flow rates of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ (left) and $2.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ (right). 150
- 5.26. Charge distributions of particles of 50 nm (a), 100 nm (b), 150 nm (c), 200 nm (d) and 250 nm (e) measured at the outlet of the corona charger versus the duty cycle of the pulse voltage applied to the grid for flow rates of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ (left) and $2.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ (right). 153
- 5.27. Experimental values of the ion current versus the duty cycle of the pulse voltage applied to the grid. 154
- 5.28. Radial profiles of the ion concentration N_i (a) and of the $N_i t$ product (b) in the charging region for several values of the duty cycle of the pulse voltage applied to the grid and a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$. 155
- 5.29. Mean value of the $N_i t$ product in the charging region versus the duty cycle of the pulse voltage applied to the grid, for flow rates of 1.5 and $2.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ 155
- 5.30. Ion to particle attachment coefficients predicted by the Fuchs' theory for values of the mobility and mass of air ions (+) reported by different authors. 156
-

- 5.31. Mean number of charge per particles (left) and extrinsic charging efficiency and electrostatic losses (right) as a function of the $\bar{N}_i t$ product, for particles of 50 nm (a), 100 nm (b), 150 nm (c), 200 nm (d) and 250 nm (e). The lines show theoretical calculations using Fuchs' limiting sphere theory using attachment coefficients calculated with ion properties assumed by different authors. . . . 158

Nomenclatura

Símbolos Romanos

a	Radio de la partícula (<i>Radius of the particle</i>) [m]
$a_{i,n}$	Coefficiente de aproximación del modelo de Wiedensohler (<i>Approximation coefficient of Wiedensohler's model</i>) $[-]$
A_o	Actividad de la fuente radiactiva (<i>Activity of the radioactive source</i>) [Bq]
b	Parámetro de impacto (<i>Impact parameter</i>) [m]
B	Movilidad mecánica de la partícula (<i>Mechanical mobility of particle</i>) [$m \cdot N^{-1} \cdot s^{-1}$]
c	Constante de integración (<i>Integration constant</i>) $[-]$
C_c	Factor de corrección de Cunningham (<i>Cunningham corrector factor</i>) $[-]$
$\bar{c}_i$	Velocidad térmica media del ion (<i>Ionic mean thermal speed</i>) [$m \cdot s^{-1}$]
D	Ciclo del pulso (<i>Duty cycle</i>) $[-]$
d_f	Diámetro de la fibra (<i>Fiber diameter</i>) [m]
d_g	Diámetro medio geométrico (<i>Geometric mean diameter</i>) $[-]$
D_i	Coefficiente de difusión del ion (<i>Ion diffusion coefficient</i>) [$m^2 \cdot s^{-1}$]
d_p	Diámetro de la partícula (<i>Particle diameter</i>) [m]
D_p	Coefficiente de difusión de la partícula (<i>Particle diffusion coefficient</i>) [$m^2 \cdot s^{-1}$]

d_t	Diámetro del tubo (<i>Diameter of tube</i>) [m]
d_w	Diámetro del alambre corona (<i>Diameter of corona wire</i>) [m]
e	Carga del electrón (<i>Electron charge</i>) [$= 1.602 \cdot 10^{-19}C$]
E	Intensidad del campo eléctrico (<i>Electric field strength</i>) [$N \cdot C^{-1}$]
E_o	Campo eléctrico de inicio de la corona (<i>Corona initiation field strength</i>) [$N \cdot C^{-1}$]
F	Velocidad de producción de iones (<i>Ion production rate</i>) [$ionpairs \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$]
F_D	Fuerza de fricción de Stokes (<i>Stokes drag force</i>) [N]
F_E	Fuerza eléctrica (<i>Electrostatic force</i>) [N]
F_G	Fuerza gravitatoria (<i>Force of gravity</i>) [N]
f_n	Fracción de partículas portando n cargas elementales (<i>Fraction of particles carrying n elementary charge units</i>) [$-$]
f_o	Fracción de partículas sin carga (<i>Fraction of uncharged particles</i>) [$-$]
g	Aceleración de gravedad (<i>Acceleration of gravity</i>) [$= 9.81m \cdot s^{-2}$]
I_{ion}	Intensidad de corriente iónica (<i>Ion current</i>) [A]
I_s	Ionización específica de partículas energéticas (<i>Specific ionization of energetic particles</i>) [$ionpairs \cdot m^{-1}$]
$I_{s,\alpha}^-$	Ionización específica media de partículas alfa (<i>Mean specific ionization of alpha particles</i>) [$ionpairs \cdot m^{-1}$]
$I_{s_o,\beta}$	Ionización específica inicial de partículas beta (<i>Initial specific ionization of beta particles</i>) [$ionpairs \cdot m^{-1}$]
I_{sat}	Corriente de saturación (<i>Saturation current</i>) [A]
I_t	Ionización total de partículas energéticas (<i>Total ionization of energetic particles</i>) [$ionpairs$]

j	Densidad de corriente iónica (<i>Ion current density</i>) [$C \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$]
k	Constante de Boltzmann (<i>Boltzmann's constant</i>) [$= 1.38 \cdot 10^{-23} J \cdot K^{-1}$]
K_E	Constante de Coulomb (<i>Coulomb's constant</i>) [$= 9 \cdot 10^9 N \cdot m^2 \cdot C^{-2}$]
K_n	Número de Knudsen (<i>Knudsen number</i>) $[-]$
L	Longitud de la zona de clasificación (<i>Length of the classification zone</i>) [m]
L_G	Longitud de la rejilla (<i>Length of the grid</i>) [m]
m	Masa de la partícula (<i>Particle mass</i>) [g]
m_g	Masa de las moléculas de gas (<i>Mass of the gas molecules</i>) [g]
m_i	Masa del ion (<i>Ion mass</i>) [g]
n	Número de cargas elementales (<i>Elementary charge units</i>) $[-]$
N_{diff}	Concentración numérica de partículas que se pierden por difusión hacia las paredes (<i>Particle number concentration lost by diffusion to the walls</i>) [m^{-3}]
N_{el}	Concentración numérica de partículas que se pierden por fuerzas electrostáticas (<i>Particle number concentration lost due to electrostatic forces</i>) [m^{-3}]
N_i	Concentración de iones (<i>Ion concentration</i>) [m^{-3}]
N_{in}	Concentración numérica de partículas sin carga a la entrada (<i>Inlet uncharged particle number concentration</i>) [m^{-3}]
n_o	Número de cargas elementales inicial (<i>Initial elementary charge units</i>) $[-]$
N_{out}^0	Concentración numérica de partículas sin carga a la salida (<i>Outlet uncharged particle number concentration</i>) [m^{-3}]
N_{out}^q	Concentración numérica de partículas cargadas a la salida (<i>Outlet charged particle number concentration</i>) [m^{-3}]
N_{out}^{tot}	Concentración numérica de partículas totales a la salida (<i>Outlet total particle number concentration</i>) [m^{-3}]

N_p	Concentración de partículas (<i>Particle concentration</i>) [m^{-3}]
Δp	Caída de presión (<i>Drop pressure</i>) [Pa]
p	Presión (<i>Pressure</i>) [Pa]
P	Energía cinética de partículas energéticas (<i>Kinetic energy of energetic particles</i>) [eV]
P_α	Energía cinética de partículas alfa (<i>Alpha kinetic energy</i>) [eV]
$P_{\beta,max}$	Energía cinética máxima de partículas beta (<i>Maximum beta kinetic energy</i>) [eV]
Pe	Número de Peclet (<i>Peclet number</i>) [$-$]
P_o	Energía cinética inicial de partículas energéticas (<i>Initial kinetic energy of energetic particles</i>) [eV]
q	Carga de la partícula (<i>Particle charge</i>) [C]
Q	Caudal de aerosol (<i>Aerosol flow rate</i>) [$m^3 \cdot s^{-1}$]
Q_e	Caudal de salida de aire de arrastre del DMA (<i>Outlet sheath air flow rate of the DMA</i>) [$m^3 \cdot s^{-1}$]
Q_i	Caudal de entrada de aerosol al DMA (<i>Inlet aerosol flow rate to the DMA</i>) [$m^3 \cdot s^{-1}$]
Q_o	Caudal de salida de aerosol del DMA (<i>Outlet aerosol flow rate of the DMA</i>) [$m^3 \cdot s^{-1}$]
Q_s	Caudal de entrada de aire de arrastre al DMA (<i>Inlet sheath air flow rate to the DMA</i>) [$m^3 \cdot s^{-1}$]
R	Alcance de partículas energéticas (<i>Range of energetic particles</i>) [m]
r	Posición radial (<i>Radial position</i>) [m]
r_i	Radio interior (<i>Inner radius</i>) [m]

r_{max}	Alcance máximo de partículas beta independientes del material (<i>Maximum range of beta particles material independent</i>) [$g \cdot m^{-2}$]
r_o	Radio exterior (<i>Outer radius</i>) [m]
T	Temperatura absoluta (<i>Absolute temperature</i>) [K]
T	Periodo de una onda rectangular (<i>Period of a rectangular waveform</i>) [s]
t	Tiempo de residencia (<i>Residence time</i>) [s]
t_{con}	Tiempo convectivo (<i>Convective time</i>) [s]
t_{diff}	Tiempo difusivo (<i>Diffusive time</i>) [s]
t_{el}	Tiempo electrostático (<i>Electrostatic time</i>) [s]
ΔU	Diferencia de potencial (<i>Potential difference</i>) [V]
U	Voltaje (<i>Voltage</i>) [V]
U_{ESP}	Voltaje del precipitador electrotático (<i>Electrostatic precipitador voltage</i>) [V]
U_G	Voltaje de la rejilla (<i>Grid voltage</i>) [V]
U_o	Voltaje de inicio de la corona (<i>Corona onset voltage</i>) [V]
U_W	Voltaje corona (<i>Corona voltage</i>) [V]
V	Volumen activo del cargador (<i>Active volume of the charger</i>) [m^3]
$\bar{v}$	Velocidad media del flujo (<i>Mean flow velocity</i>) [$m \cdot s^{-1}$]
v_i	Velocidad del ion (<i>Ion velocity</i>) [$m \cdot s^{-1}$]
$v(r)$	Perfil de velocidad (<i>Velocity profile</i>) [$m \cdot s^{-1}$]
v_T	Velocidad terminal de la partícula (<i>Terminal velocity of particle</i>) [$m \cdot s^{-1}$]
v_{TE}	Velocidad electrostática terminal de la partícula (<i>Terminal electrostatic velocity of particle</i>) [$m \cdot s^{-1}$]

v_{TS}	Velocidad de sedimentación terminal de la partícula (<i>Terminal settling velocity of particle</i>) [$m \cdot s^{-1}$]
w	Espesor de la rejilla (<i>Thickness of screen</i>) [m]
W	Potencial de ionización del medio material (<i>Ionization potential of material</i>) [$eV \cdot ionpairs^{-1}$]
Δx	Distancia entre electrodos (<i>Distance between electrodes</i>) [m]
x	Recorrido de partículas energéticas en el medio material (<i>Distance traveled by the energetic particles</i>) [m]
Z	Movilidad eléctrica de la partícula (<i>Electrical mobility of particle</i>) [$m^2 \cdot V^{-1} \cdot s^{-1}$]
$\bar{Z}$	Movilidad eléctrica adimensional (<i>Adimensional electrical mobility</i>) [$-$]
Z^*	Movilidad eléctrica crítica de la partícula (<i>Critical electrical mobility of particle</i>) [$m^2 \cdot V^{-1} \cdot s^{-1}$]
Z_i	Movilidad eléctrica del ion (<i>Electrical mobility of ion</i>) [$m^2 \cdot V^{-1} \cdot s^{-1}$]

Símbolos Griegos

α_r	Coefficiente de recombinación de iones (<i>Ion recombination coefficient</i>) [$= 1.6 \cdot 10^{-12} m^3 \cdot s^{-1}$]
β	Caudal adimensional, definido por la ecuación 4.4 (<i>Adimensional flow rate, given by equation 4.4</i>) [$-$]
χ	Distancia apsoidal (<i>Apsoidal distance</i>) [m]
δ	Radio de la esfera limitante (<i>Radius of limiting sphere</i>) [m]
δ_g	Densidad relativa del gas (<i>Relative gas density</i>) [$-$]
ϵ	Constante dieléctrica del material de la partícula (<i>Dielectric constant of particle</i>) [$-$]
ϵ_o	Permitividad del vacío (<i>Vacuum permittivity</i>) [$= 8.855 \cdot 10^{-12} C^2 \cdot N^{-1} \cdot m^{-2}$]

η	Coeficiente de fijación del ion hacia la partícula (<i>Ion to particle attachment coefficient</i>) [$m^3 \cdot s^{-1}$]
γ	Probabilidad de colisión (<i>Collision probability</i>) $[-]$
λ	Recorrido libre medio de las moléculas del gas (<i>Mean free path of gas</i>) [$= 6.6 \cdot 10^{-8}m$, para aire a condiciones estándar]
λ_i	Recorrido libre medio del ion (<i>Ionic mean free path of</i>) [m]
Λ	Parámetro geométrico del DMA (<i>Geometric parameter of the DMA</i>) [m]
μ	Viscosidad del aire (<i>Air viscosity</i>) [$= 1.81 \cdot 10^{-5}Pa \cdot s$]
ν	Tensión superficial del líquido (<i>Surface tension of droplet liquid</i>) [$N \cdot m^{-1}$]
ω_D	Velocidad de agotamiento de iones por difusión hacia las paredes (<i>Ion depletion rate by diffusion to the walls</i>) [s^{-1}]
Ω	Función de transferencia del DMA (<i>Transferring function of the DMA</i>) $[-]$
ϕ	Potencial electrostático entre la partícula y el ion (<i>Electrostatic potential between the particle and the ion</i>) [J]
π	Número pi (<i>Number pi</i>) [$\simeq 3.1416 \dots$]
ρ	Densidad de carga espacial (<i>Space charge density</i>) [$C \cdot m^{-3}$]
ρ_g	Densidad del gas (<i>Gas density</i>) [$g \cdot m^{-3}$]
ρ_m	Densidad del medio absorbente (<i>Material density</i>) [$g \cdot m^{-3}$]
ρ_p	Densidad de la partícula (<i>Particle density</i>) [$g \cdot m^{-3}$]
σ_g	Desviación estándar geométrica (<i>Geometric standar deviation</i>) $[-]$
τ	Duración del pulso (<i>Pulse duration</i>) [s]
φ	Caudal adimensional, definido por la ecuación 4.4 (<i>Adimensional flow rate, given by equation 4.4</i>) $[-]$
θ	Porosidad de la rejilla (<i>Screen porosity</i>) $[-]$

ξ_{ext} Eficiencia de cargado extrínseca (*Extrinsic charging efficiency*) [–]

ξ_{int} Eficiencia de cargado intrínseca (*Intrinsic charging efficiency*) [–]

Acrónimos

CPC Contador de núcleos de condensación (*Condensation Particle Counter*)

DMA Analizador de movilidad eléctrica (*Differential Mobility Analyzer*)

EAA Analizador de aerosoles eléctricos (*Electrical Aerosol Analyzer*)

EAD Detector de aerosoles eléctricos (*Electrical Aerosol Detector*)

ESP Precipitador electrostático (*Electrostatic Precipitator*)

FWHH Anchura del pico a la mitad de altura (*Full Width at Half Height*)

SMPS Escáner de movilidad de partícula (*Scanning Mobility Particle Sizer*)

Capítulo 1

Introducción

Los procesos de cargado eléctrico de partículas tienen una importancia fundamental en el campo de la ciencia de los aerosoles. Se requieren, por ejemplo, para la utilización de los equipos que permiten determinar la distribución de tamaños de las partículas de un aerosol, los Analizadores de Movilidad Eléctrica o DMAs (acrónimo de *Differential Mobility Analyzers*). Son imprescindibles también en el diseño y operación de precipitadores electrostáticos o electrofiltros, dispositivos utilizados en el control de la contaminación ambiental a través de la retención de partículas cargadas. Además, tienen gran importancia para el recubrimiento de superficies por deposición electrostática, para el control de la contaminación superficial en la fabricación de semiconductores y circuitos integrados, así como para la captación y toma de muestras de aerosoles.

Los procesos de cargado se llevan a cabo en dispositivos de diseños especiales llamados ***cargadores de partículas***, en los cuales un aerosol es expuesto a una atmósfera gaseosa previamente ionizada en el interior del dispositivo, y las partículas terminan cargándose como consecuencia de las colisiones de los iones del gas con su superficie. Suelen denominarse también *ionizadores*.

El propósito de la presente Tesis Doctoral es validar dos tipos de cargadores de aerosoles para su aplicación a un DMA. El analizador de movilidad eléctrica

clasifica *partículas cargadas*, basándose en la capacidad de éstas para migrar en un campo eléctrico [[Knutson & Whitby \(1975a,b\)](#)]. Básicamente, el DMA opera introduciendo una muestra de aerosol cargado en una corriente de gas limpio que arrastra las partículas a través de dos electrodos entre los que existe un campo eléctrico. En esta región las partículas se separan en función de su *movilidad eléctrica*, la cual es función de la carga y el tamaño de la partícula. Así, si se conoce la distribución de carga del aerosol que entra al DMA, se puede determinar la distribución de tamaños de sus partículas. En la práctica, es deseable tener una distribución de cargas con fracciones muy altas de partículas con carga unidad, para poder realizar una conversión directa entre movilidad eléctrica y tamaño de partícula (ver ecuación [2.15](#)).

El cargador de partículas tiene entonces la finalidad de cargar el aerosol según una distribución de carga conocida, aguas arriba del DMA. Cada cargador se caracteriza según la fuente de generación de iones que contenga. Existen diferentes fuentes de ionización de gases, entre ellas se encuentran principalmente las *fuentes radiactivas* y las *descargas corona*. Estas fuentes pueden crear nubes iónicas positivas y negativas o nubes de un solo signo, así, según el tipo de iones producidos los cargadores pueden ser clasificados como *bipolares* o *unipolares*. Para el diseño de estos dispositivos de cargado es importante determinar uno de los parámetros de cargado clave, el llamado *producto $N_i t$* ; éste corresponde al producto de la concentración de iones en el volumen activo del cargador y el tiempo de residencia del flujo de aerosol pasando a través del mismo.

Los **cargadores bipolares**, específicamente los **radiactivos**, son los más ampliamente usados en conjunto con los DMAs para la medida de la distribución de tamaños de las partículas de un aerosol, debido a que permiten alcanzar una distribución de carga estacionaria; además, la relación de partículas de una carga a partículas de cargas múltiples es alta, y como ya se mencionó anteriormente, ésta es una condición deseable en las técnicas de análisis o separación por movilidad eléctrica. La función de equilibrio de Boltzmann ha sido utilizada frecuentemente para aproximar la distribución de carga proporcionada por las fuentes radiactivas [[Hinds \(1999\)](#)]. Esta distribución tiene una carga media de cero, ya que las distribuciones de cargas positivas y negativas son iguales; por esta razón los

cargadores bipolares son llamados frecuentemente *neutralizadores*. Sin embargo, existen modelos más exactos que consideran las diferencias de las movilidades de los iones positivos y negativos; estas diferencias conducen a leves desviaciones del equilibrio de Boltzmann, en el cual domina una polaridad, como lo han indicado [Gunn \(1955\)](#), [Fuchs \(1963\)](#), [Marlow & Brock \(1975b\)](#).

En este tipo de cargadores se da una ionización bipolar debido a la *emisión de partículas α o β* de la fuente radiactiva localizada en el interior del dispositivo. Usualmente utilizan fuentes de ^{241}Am , ^{210}Po , ^{244}Cm (emisiones α) o ^{85}Kr , ^{63}Ni , ^{204}Tl , ^{90}Sr , ^{14}C (emisiones β), con actividades que van desde 0.1 a 60 mCi. La presencia de las fuentes radiactivas conlleva importantes inconvenientes tanto económicos como prácticos. Además de incrementar el coste del aparato, obliga a los fabricantes y a los usuarios del mismo a cumplir la normativa vigente en relación con el almacenamiento, transporte y manipulación de isótopos radiactivos. En la presente investigación se ha diseñado y validado un cargador radiactivo, pero con una actividad tan baja que el dispositivo queda exento de clasificación (su actividad no sobrepasa los límites establecidos en la legislación).

Básicamente, el cargador bipolar radiactivo de baja actividad desarrollado consiste de un tubo cilíndrico con tres fuentes de ^{241}Am instaladas en su periferia, con entradas y salidas cónicas para el laminarizado del flujo de aerosol. Cada fuente radiactiva tiene una actividad de 3 kBq (0.08 μCi), siendo la actividad total del cargador de sólo 9 kBq (el límite de exención para este tipo de fuentes es 10 kBq). Este isótopo de americio posee una energía de radiación α bastante elevada y una distancia máxima de penetración en el medio de unos pocos centímetros, por lo que es posible aprovechar toda la energía de la fuente en un aparato relativamente pequeño y manejable. El dispositivo presenta unas características de diseño que permiten alcanzar un producto $N_i t$ comparable al conseguido en cargadores comerciales de actividades mucho más altas. El diseño del dispositivo permite lograr: a) una alta concentración de iones dentro del volumen activo del cargador, b) irradiar el aerosol que atraviesa la zona de carga por diferentes ángulos, c) conseguir un flujo y una distribución uniforme del aerosol sobre la sección transversal de la zona de carga, y d) alcanzar tiempos de residencia adecuados para lograr un estado estacionario dentro del mismo. Con estas características el dispositivo

consigue alcanzar las mismas eficiencias de cargado/neutralización que los cargadores comerciales de alta actividad, para los caudales típicos usados en análisis de movilidad eléctrica, entre 0.5 y $2.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, y concentraciones de partículas en el orden de 10^4 a 10^6 cm^{-3} , para aerosoles monodispersos y polidispersos en el rango de tamaños submicrométricos.

Los **cargadores unipolares**, concretamente los del tipo **corona**, se utilizan principalmente para el limpiado eléctrico de gases por medio de precipitadores electrostáticos y para la determinación de la distribución de tamaños a través de medidas de movilidad eléctrica. Sin embargo, su uso es más limitado en esta última aplicación debido a que este tipo de cargadores proporciona fracciones muy altas de partículas con cargas múltiples, condición no deseable en este tipo de técnicas. Fundamentalmente, los cargadores corona constan de dos electrodos, en uno de ellos se aplica un potencial lo suficientemente alto para producir una *descarga corona*, fenómeno por el cual se ioniza el gas a su alrededor. Los iones producidos son dirigidos hacia el segundo electrodo, permitiendo que en su camino colisionen con las partículas del aerosol que entra en el cargador, y por ende terminen cargándolas. Por lo general, este tipo de cargadores produce una concentración de iones bastante alta, permitiendo obtener mayores eficiencias de cargado, en comparación con los métodos de cargado bipolar (donde la recombinación de iones de signos opuestos es bastante significativa, reduciendo la concentración de los mismos).

Así, la segunda parte de esta investigación consiste en la validación de un cargador unipolar corona para su aplicación a un DMA, reduciendo las fracciones de partículas con cargas múltiples y manteniendo eficiencias de cargado altas y pérdidas electrostáticas mínimas. Para esto se partió del modelo de cargador diseñado por Büscher *et al.* (1994), el cual consiste en dos cilindros metálicos concéntricos con un alambre muy fino localizado a lo largo de su eje, sobre el cual se aplica un voltaje corona que genera los iones unipolares (positivos). El cilindro interior contiene una rejilla metálica sobre la cual se aplica un potencial que permite el paso de los iones desde la zona de generación hacia la zona de cargado (región anular entre los dos cilindros), por la cual fluye el aerosol. Este cargador fue concebido originalmente para el cargado de partículas ultrafinas (tamaños por debajo de los

35 nm en diámetro), las cuales presentan un área superficial muy pequeña, por lo que la probabilidad de que se carguen es también muy baja; además, su difusividad y movilidad eléctrica son muy altas, por lo que una fracción importante de las partículas que entran en el cargador se deposita en los electrodos. Para resolver esto, los autores aplicaron un voltaje de onda cuadrada sobre la rejilla interna, con el cual se cambia periódicamente la polaridad del campo eléctrico en el interior del cargador, de forma que las partículas describen un movimiento de zig-zag que las mantiene alejadas de los electrodos, evitando así las pérdidas por deposición.

El diseño original y modo de operación de este cargador han sido adaptados en este trabajo para el cargado de partículas submicrométricas, con el fin de proporcionar distribuciones de carga con altas fracciones de partículas con carga unidad. Para lograr esto, se redujeron los valores del producto $N_i t$ a través de reducciones en el área de paso de la rejilla interna y la aplicación de un voltaje pulso sobre la misma, permitiendo una disminución de la concentración de iones en la zona de cargado. Con esto se han logrado conseguir distribuciones de carga comparables a las distribuciones de partículas positivas obtenidas con un cargador radiactivo de referencia; incluso se han logrado reducir aún más los multipletes, manteniendo eficiencias de cargado superiores a las conseguidas por las distribuciones positivas del cargador bipolar. Las pérdidas electrostáticas bajo estas condiciones de operación son mínimas. Los flujos de aerosol utilizados en este dispositivo fueron de 1.5 y 2.5 l·min⁻¹, y las concentraciones de partículas del orden de 10⁴ a 10⁵ cm⁻³, para aerosoles monodispersos en el rango submicrométrico.

El **objetivo** de esta Tesis Doctoral consiste en diseñar, desarrollar y caracterizar un cargador bipolar radiactivo de baja actividad y un cargador unipolar corona para partículas monodispersas y polidispersas dentro del rango de tamaños submicrométrico (entre 50 y 250 nm en diámetro), para su posterior utilización con un DMA.

La **estructura de la tesis** consiste en un texto dividido en seis capítulos. Los capítulos 1, 2 y 4 han sido redactados en español, mientras que los capítulos 3,

5 y 6) han sido redactados en inglés, por norma de la Universidad Carlos III de Madrid para optar al Doctorado con Mención Europea.

El capítulo 1, la presente introducción, describe la importancia de los procesos de cargado en el campo de la tecnología de aerosoles, así como los objetivos de esta investigación; además, describe brevemente la finalidad de los cargadores bajo estudio, así como su diseño, funcionamiento y logros obtenidos.

El Capítulo 2 describe los fundamentos del cargado de aerosoles. Inicialmente se da una definición de aerosol y de los parámetros más importantes para la caracterización del comportamiento de los mismos. Luego se describe el proceso de cargado eléctrico de partículas por difusión, así como el cargado unipolar y bipolar. Se detallan las diferentes fuentes de ionización de gases, así como los diferentes tipos de cargadores existentes.

El Capítulo 3 describe los cargadores de aerosoles bajo estudio. Primeramente se describe el cargador bipolar radiactivo de baja actividad diseñado y validado en este trabajo. Se detallan sus características de diseño y funcionamiento; además se realiza un estudio de la estimación del parámetro de cargado $N_i t$ para este cargador y de las ecuaciones del cargado por difusión bipolar. Posteriormente se describe el segundo de los cargadores bajo estudio, el cargador unipolar corona, diseñado originalmente por Büscher *et al.* (1994) y adaptado en esta investigación para el cargado de partículas submicrométricas. Se detallan las características de diseño del cargador, así como su funcionamiento y modo de operación, con el fin de proporcionar distribuciones de carga con altas fracciones de partículas con carga unidad; además, se presentan las ecuaciones para estimar el producto $N_i t$ y las ecuaciones del cargado por difusión unipolar.

El Capítulo 4 describe el dispositivo experimental utilizado para la generación de aerosoles monodispersos y polidispersos, y para la validación de los cargadores bajo estudio. Además, se describe brevemente el funcionamiento de los principales equipos utilizados. Luego, se presentan las variables experimentales utilizadas para la caracterización de los cargadores, como son los métodos de medida de la eficiencia de cargado y de la distribución de carga.

El Capítulo 5 presenta los resultados experimentales y las predicciones teóricas sobre el funcionamiento de los cargadores bajo estudio. Primeramente, se expone el análisis del cargador radiactivo de baja actividad, comenzando con la estimación del producto $N_i t$ en la zona de cargado. Luego, se muestran las distribuciones de cargas obtenidas experimentalmente a la salida del ionizador. Además, se presenta un modelo numérico para investigar el cargado bipolar de aerosoles en el cargador de baja actividad. En segundo lugar se muestra el estudio del funcionamiento del cargador corona a diferentes condiciones de operación. Se estima la distribución radial del producto $N_i t$ en la región anular de cargado, utilizado para predecir los niveles de carga de las partículas. Luego se presentan las distribuciones de cargas y las eficiencias de cargado obtenidas experimentalmente. Finalmente, el número medio de cargas por partícula es comparado con las estimaciones teóricas basadas en la teoría del cargado por difusión de [Fuchs \(1963\)](#).

Finalmente, el Capítulo 6 presenta las conclusiones de esta investigación, destacando las principales contribuciones realizadas con cada cargador. Algunas sugerencias para futuros trabajos en esta línea de investigación también se presentan en este capítulo.

Capítulo 2

Fundamentos del Cargado de Aerosoles

El objetivo de este capítulo es describir los conceptos fundamentales para caracterizar el funcionamiento de los cargadores de aerosoles. Para esto el capítulo se ha dividido en cuatro secciones. Inicialmente, en la sección 2.1, se realiza una pequeña definición de aerosol, se describen los parámetros más importantes para su caracterización y se detalla una de las principales propiedades de las partículas, su movilidad. Luego, en la sección 2.2, se estudian los diferentes mecanismos del cargado eléctrico de partículas de aerosol, cuando éstas se encuentran en una atmósfera ionizada tanto bipolar como unipolarmente. Las fuentes de ionización de gases se describen en la sección 2.3, donde se hace hincapié en las fuentes de ionización radiactivas y las producidas por descargas corona. Finalmente, la sección 2.4, presenta la descripción y funcionamiento de los tipos de cargadores existentes. Se hace una primera clasificación dependiendo de la polaridad de la atmósfera iónica dentro del cargador, describiendo entonces a los cargadores bipolares y cargadores unipolares. Dentro de cada uno de estos tipos de cargadores, se hace una segunda clasificación dependiendo de la fuente de ionización utilizada, así, los cargadores se clasifican en cargadores bi/uni-polares radiactivos y cargadores bi/uni-polares corona.

2.1. Aerosoles y sus Propiedades

Las partículas microscópicas que flotan en el aire pueden ser de diversos tipos, partículas resuspendidas del suelo, humos procedentes de la generación de energía, partículas formadas fotoquímicamente, partículas de sal provenientes de los océanos, y nubes atmosféricas de gotas de agua o partículas de hielo. Ellas varían en su habilidad de afectar no solo la visibilidad y el clima, sino también nuestra salud y la calidad de vida. Todas estas partículas en el aire son ejemplos de *aerosoles*.

Un aerosol es definido en su forma más simple como un conjunto de partículas sólidas o líquidas suspendidas en un gas. Por lo tanto, los aerosoles son sistemas bifásicos formados por las partículas y el gas en el cual están suspendidas. Se presentan en la naturaleza de diversas formas, como polvos, humos, neblinas, nieblas, nubes y smog.

La palabra aerosol fue conocida alrededor de 1920, como una palabra análoga al término hidrosol, una suspensión estable de partículas sólidas en un líquido. Los aerosoles son también referidos como materias particuladas suspendidas, sistemas aerocoloidales, y sistemas dispersos. Aunque la palabra aerosol se utiliza popularmente al referirse a los productos presurizados en latas (sprays), también es el término científicamente aceptado para suspensiones de partículas en un medio gaseoso.

2.1.1. Parámetros de Caracterización de Aerosoles

Para caracterizar un aerosol se requiere información acerca de su composición química, morfología, y espectro de tamaños. El espectro involucra dos parámetros de caracterización muy importantes, el *tamaño de partícula* y la *concentración de partículas*, los cuales se describen a continuación.

2.1.1.1. Tamaño de partícula

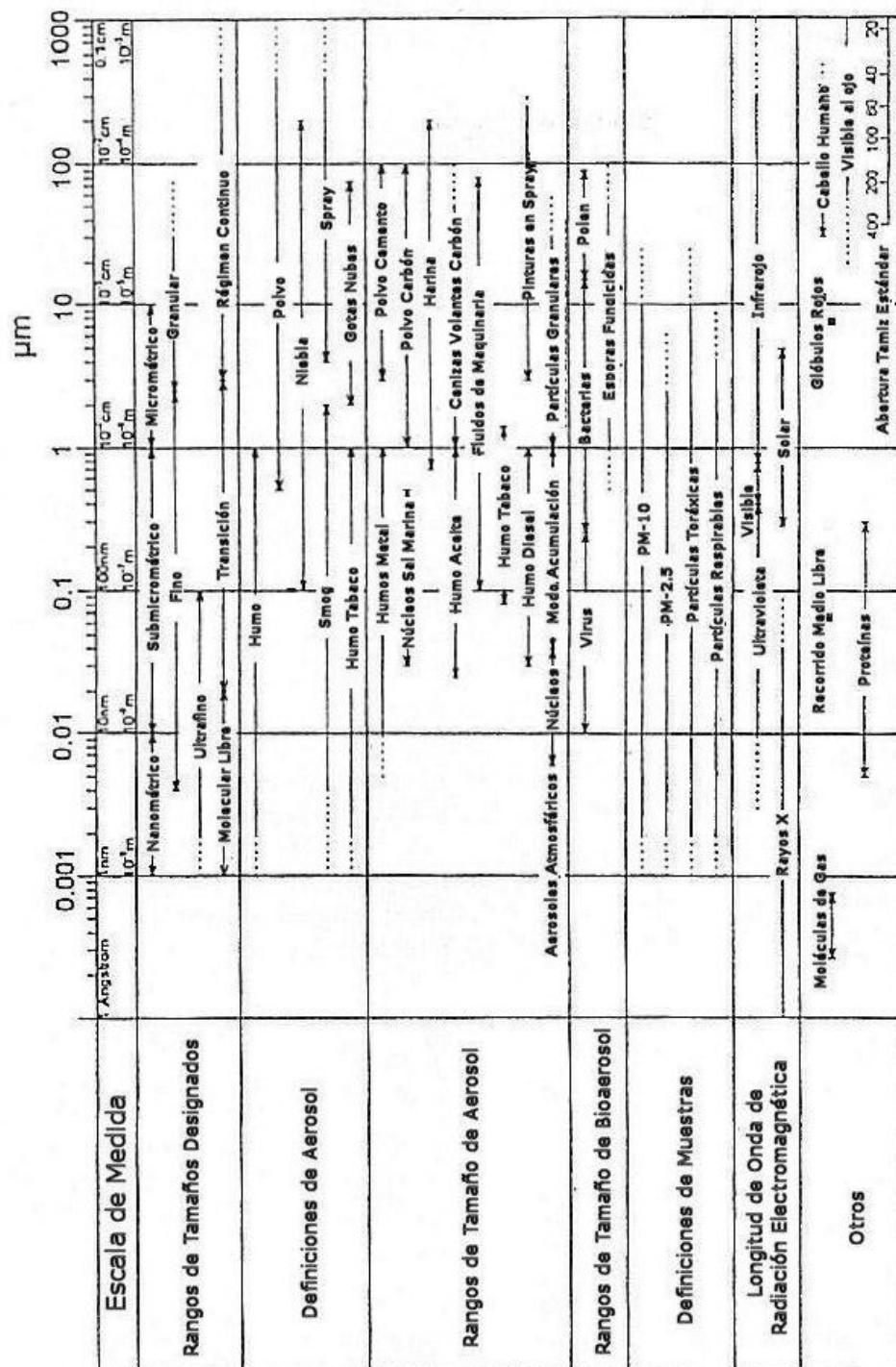
El tamaño de partícula no es fácil de definir, ya que por lo general las partículas de aerosol presentan gran variedad de formas, como esferas, fibras, láminas, partículas porosas y agregados de partículas de forma irregular. En los casos en los que las partículas no son esferas sólidas compactas se utiliza el término de *diámetro equivalente*; la equivalencia significa que el comportamiento de una partícula irregular en una situación determinada es el mismo que el de una partícula esférica. Para los casos en los que se utilizan los instrumentos que miden la distribución de tamaños de un aerosol (los DMAs) donde las partículas se seleccionan en función de su movilidad eléctrica, el diámetro equivalente corresponde al diámetro de una esfera de densidad unidad que en presencia de un campo eléctrico tiene la misma movilidad eléctrica que la partícula real.

Todas las propiedades de los aerosoles dependen de este parámetro, algunas muy estrechamente. Los aerosoles cubren un amplio rango de tamaños, variando desde 1 nm a más de 100 μm , como se observa en la Tabla 2.1. La línea de división de 1 μm marca el límite superior del rango de tamaños para partículas submicrométricas (menores a 1 μm) y el límite inferior para partículas micrométricas (1 - 10 μm). En general, los polvos, las partículas provenientes del suelo y los pólenes están en el rango micrométrico o superior, y los humos y smog se ubican en el submicrométrico. Las partículas de aerosol más pequeñas se acercan en tamaño a las moléculas grandes de gas, adquiriendo así muchas de sus propiedades. Las partículas ultrafinas cubren el rango de las moléculas grandes de gas, desde 1 a 100 nm. Las partículas menores a 10 nm usualmente son llamadas partículas nanométricas o nanopartículas.

Los modelos que describen los fenómenos de cargado de partículas dependen del tamaño relativo de las partículas con respecto al recorrido libre medio de las moléculas del gas λ ¹, o en otras palabras, al régimen de transporte determinado por el número de Knudsen de la partícula K_n . Éste se define como el cociente entre el recorrido libre medio del gas y el radio de la partícula, $K_n = 2\lambda/d_p$. Para

¹ $\lambda = 66$ nm, a condiciones estándar.

Table 2.1: Rango de tamaños de aerosoles y otros fenómenos (Hinds, 1999).



$K_n \ll 1$ se habla de transporte en el *régimen continuo*, $K_n \gg 1$ indica el transporte en el *régimen molecular libre*, y $K_n \approx 1$ señala el *régimen de transición*.

Los términos *aerosol monodisperso* y *aerosol polidisperso* se refieren a aerosoles que tienen las partículas del mismo tamaño o que varían en un amplio rango de tamaños, respectivamente. Ambos pueden ser producidos en el laboratorio para el uso en pruebas de caracterización de aerosoles.

2.1.1.2. Concentración de partículas

La concentración de partículas se puede expresar en términos de masa o en términos de número. La *concentración másica* corresponde a la masa de la materia particulada por unidad de volumen de aerosol; mientras que la *concentración numérica* corresponde al número de partículas por unidad de volumen de aerosol. Usualmente, las medidas de concentración másica son útiles y más fáciles de realizar para las partículas mayores a $1 \mu\text{m}$, mientras que para partículas en el rango submicrométrico comúnmente se utiliza la concentración numérica.

2.1.2. Movilidad de una Partícula

2.1.2.1. Movilidad mecánica

El concepto de movilidad mecánica se deriva a partir de un análisis de la Ley de Stokes. Esta ley se refiere a la fuerza de fricción F_D experimentada por objetos esféricos moviéndose en el seno de un fluido viscoso en un régimen laminar de bajos números de Reynolds. En general, la ley es válida en el movimiento de partículas esféricas pequeñas moviéndose a velocidades bajas, por lo que es aplicable al estudio de los aerosoles.

La ley de Stokes puede escribirse como

$$F_D = 3\pi\mu v_T d_p \quad (2.1)$$

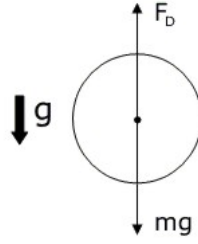


Figure 2.1: Análisis de las fuerzas que actúan sobre una partícula suspendida en un gas en reposo, bajo la acción de la gravedad.

donde d_p es el diámetro de la partícula, v_T su velocidad terminal y μ la viscosidad del fluido¹.

La velocidad terminal puede derivarse de un análisis de las fuerzas que actúan sobre la partícula. Cuando una partícula cae bajo la acción de la gravedad en el seno de un gas en reposo, al movimiento de la partícula se opone la fuerza de fricción o resistencia del gas F_D , la cual actúa en la misma dirección y sentido opuesto a la fuerza gravitatoria F_G (Figura 2.1). Debido a la gravedad la partícula se acelera y como consecuencia la fuerza de fricción aumenta. Cuando ambas fuerzas se igualan, la partícula cae con una velocidad constante, llamada velocidad de sedimentación terminal v_{TS} , la cual puede determinarse a partir de la ecuación 2.1, obteniendo

$$v_{TS} = \frac{F_D}{3\pi\mu d_p} \quad (2.2)$$

Con $F_D = F_G = mg$ y teniendo en cuenta que la masa viene dada por $m = \frac{\pi}{6}\rho_p d_p^3$, la velocidad terminal toma la forma

$$v_{TS} = \frac{g\rho_p d_p^2}{18\mu} \quad (2.3)$$

La movilidad mecánica de una partícula B se define como el cociente entre esta velocidad terminal y la fuerza de fricción de Stokes

$$B = \frac{v_{TS}}{F_D} \quad (2.4)$$

¹ $\mu_{aire} = 1.81 \cdot 10^{-5} N \cdot s \cdot m^{-2}$.

Teniendo en cuenta 2.1 se obtiene

$$B = \frac{1}{3\pi\mu d_p} \quad \text{para} \quad d_p > 1\mu m \quad (2.5)$$

La Ley de Stokes asume que la velocidad relativa del gas sobre la superficie de la esfera es cero. Esta suposición no se satisface para partículas pequeñas cuyos tamaños se acercan al recorrido libre medio del gas. Estas partículas sedimentan más rápidamente que lo predicho por la Ley de Stokes, debido al "deslizamiento" del gas sobre la superficie de la partícula. A condiciones estándar, este error llega a ser significativo, para partículas menores a $1\mu m$. En 1910, Cunningham derivó un factor de corrección para la Ley de Stokes para explicar el efecto del deslizamiento. El factor, llamado *factor de corrección de Cunningham* C_c , es siempre más grande que uno, y reduce la fuerza de fricción de Stokes

$$F_D = \frac{3\pi\mu v_{TS} d_p}{C_c} \quad (2.6)$$

C_c viene expresado en función del número de Knudsen de la partícula K_n [Hinds (1999)]

$$C_c(K_n) = 1 + K_n \left[1,17 + 0,525 \exp\left(\frac{-0,78}{K_n}\right) \right] \quad (2.7)$$

Así, la movilidad mecánica toma finalmente la forma

$$B = \frac{C_c}{3\pi\mu d_p} \quad \text{para} \quad d_p < 1\mu m \quad (2.8)$$

2.1.2.2. Movilidad eléctrica

En presencia de un campo eléctrico, una partícula cargada experimenta una fuerza eléctrica F_E , la cual actúa en la dirección del campo eléctrico E y es proporcional a la intensidad del mismo y a la carga de la partícula

$$F_E = neE \quad (2.9)$$

siendo n el número de cargas elementales y e la carga del electrón. La velocidad de la partícula resultante de esta fuerza se puede determinar de una manera similar

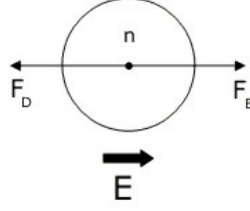


Figure 2.2: Análisis de las fuerzas que actúan sobre una partícula suspendida en un gas en reposo, bajo la acción de una fuerza eléctrica.

al caso anterior, donde la fuerza de fricción del gas F_D se opone al movimiento de la partícula, actuando en la misma dirección y sentido opuesto al campo eléctrico (Figura 2.2). Cuando las fuerzas eléctricas y de fricción se igualan, la partícula se desplaza con una velocidad constante, llamada velocidad electrostática terminal v_{TE} , la cual puede determinarse a partir de las ecuaciones 2.6 y 2.9

$$F_E = F_D \quad (2.10)$$

$$neE = \frac{3\pi\mu v_T d_p}{C_c} \quad (2.11)$$

$$v_{TE} = \frac{neEC_c}{3\pi\mu d_p} \quad (2.12)$$

Esta última ecuación puede escribirse en términos de movilidad mecánica

$$v_{TE} = neEB \quad (2.13)$$

La movilidad eléctrica de una partícula Z se define como el cociente entre la velocidad terminal de la partícula en un campo eléctrico y la intensidad del mismo

$$Z = \frac{v_{TE}}{E} \quad (2.14)$$

Sustituyendo 2.12 en 2.14 la movilidad eléctrica toma finalmente la forma

$$Z = \frac{neC_c}{3\pi\mu d_p} \quad (2.15)$$

Ambas movilidades están relacionadas por la expresión

$$Z = neB \quad (2.16)$$

2.2. Cargado Eléctrico de Aerosoles

En los procesos de cargado convencionales se hace fluir una población de partículas de aerosol a través de una nube de iones de ambos signos (bipolares) o iones de un solo signo (unipolares). Las partículas "capturan" los iones, conduciendo a la aparición de cargas eléctricas sobre las mismas. En ausencia de un campo eléctrico, el mecanismo de captura ocurre principalmente debido al movimiento térmico aleatorio de los iones y la colisión entre éstos y las partículas. El proceso es usualmente referido como mecanismo de *cargado por difusión*. En presencia de un campo eléctrico alto, los iones se mueven rápidamente a lo largo de las líneas de campo, incrementando sus colisiones con las partículas. En este caso el proceso se denomina *cargado por un campo eléctrico*. Ambos nombres fueron sugeridos inicialmente por [White \(1951\)](#), para describir los diferentes mecanismos de cargado en estudios de precipitación electrostática. Existen otros mecanismos, como el cargado por llama, cargado por electrificación estática, cargado electrolítico (descritos por [Hinds \(1999\)](#)), o el cargado fotoeléctrico (descrito por [Burtcher et al. \(1992\)](#)). En este trabajo sólo se hace referencia al cargado por difusión y por acción de un campo eléctrico, describiéndolos a continuación.

2.2.1. Cargado por Difusión

El cargado por difusión es uno de los métodos más usados para el cargado de partículas de aerosol. Además de su importancia en aplicaciones industriales y en la física atmosférica, el fenómeno es de gran interés en la tecnología de medición de aerosoles por análisis de movilidad eléctrica.

Este mecanismo de carga es el resultado de colisiones al azar entre iones y partículas, a causa del movimiento Browniano (movimiento térmico aleatorio debido a la energía cinética de iones y partículas). Al presentarse estas colisiones, los iones son atrapados por las partículas, y éstas adquieren su carga. El proceso se presenta cuando hay un campo eléctrico externo bajo o igual a cero, y puede ser

caracterizado como bipolar o unipolar dependiendo de la polaridad de los iones presentes en el gas.

2.2.1.1. Cargado por difusión bipolar

El cargado por difusión bipolar ocurre cuando un aerosol interactúa con gases que contienen iones positivos y negativos. Las partículas de aerosol que son inicialmente neutras (sin cargas) ganarán cargas eléctricas por la colisión con los iones; mientras que las partículas inicialmente cargadas perderán su carga lentamente principalmente por la atracción de iones de carga opuesta. Como resultado de la competencia entre estos dos procesos, de carga y de neutralización, se alcanza un estado de carga de equilibrio, con partículas neutras y partículas cargadas positiva y negativamente. Las fracciones de partículas positivas y negativas son comparables y comúnmente se utiliza la Ley de Boltzmann para predecir la distribución de cargas [[Keefe et al. \(1959\)](#), [Rich et al. \(1959\)](#), [Whitby & Peterson \(1965\)](#), [Takahashi \(1971\)](#), [Kudo & Takahashi \(1972\)](#), [Takahashi & Kudo \(1973\)](#), [Liu & Pui \(1974a,c\)](#)]. A continuación se hace una referencia más detallada sobre esta distribución de equilibrio.

Distribución de carga de equilibrio de Boltzmann

La carga mínima que una partícula de aerosol puede tener es cero; sin embargo, en la naturaleza raramente se logra esta condición, debido a las colisiones al azar entre las partículas y los iones presentes en aire¹. Las interacciones entre los iones y las partículas permiten alcanzar eventualmente un estado de carga de equilibrio, llamado *distribución de carga de equilibrio de Boltzmann*, *distribución de carga de equilibrio bipolar* o *estado estacionario*. La distribución de carga de equilibrio representa entonces la distribución de carga de un aerosol en equilibrio de cargas con iones bipolares.

¹A causa de la radioactividad natural y la radiación cósmica algunas moléculas del aire llegan a ser ionizadas; cada centímetro cúbico de aire contiene alrededor de 10^3 iones, con aproximadamente igual número de iones positivos y negativos [[Hinds \(1999\)](#)].

Para concentraciones de iones positivos y negativos iguales ($N_i^+ = N_i^-$), la fracción de partículas de un tamaño dado f_n teniendo n unidades de cargas elementales positivas o negativas viene dado por

$$f_n = \frac{\exp\left(\frac{K_E e^2 n^2}{d_p k T}\right)}{\sum_{n=-\infty}^{+\infty} \exp\left(\frac{K_E n^2 e^2}{d_p k T}\right)} \quad (2.17)$$

donde k es la constante de Boltzmann¹, T es la temperatura absoluta, y $K_E = \frac{1}{4\pi\epsilon_o}$ donde ϵ_o es la permitividad del vacío². Para partículas mayores a $0.5 \mu\text{m}$, la ecuación 2.17 llega a ser idéntica a la ecuación que representa la distribución normal, escribiéndose de una manera más sencilla para su uso como

$$f_n = \left(\frac{K_E e^2}{\pi d_p k T}\right)^{1/2} \exp\left(\frac{-K_E e^2 n^2}{d_p k T}\right) \quad (2.18)$$

Esta ecuación se ajusta con la ecuación 2.17 dentro de un 0.04 % para partículas mayores a $0.06 \mu\text{m}$. Para partículas menores a $0.05 \mu\text{m}$ ambas ecuaciones subestiman la fracción de partículas cargadas, y deben utilizarse procedimientos más complicados [Hoppel & Frick (1986)].

En la Tabla 2.2 se muestra el porcentaje de partículas de un tamaño dado teniendo la carga indicada. La distribución es simétrica respecto a cero; esto es, la fracción de partículas con n cargas positivas es igual a la fracción con n cargas negativas. De manera práctica, la distribución de cargas para partículas menores a $0.1 \mu\text{m}$ consiste de una fracción de partículas sin carga y una fracción remanente de partículas con carga unidad, con fracciones iguales de cargas positivas y negativas. El número promedio de cargas indicado en la tabla corresponde a la media calculada sin considerar el signo de las cargas. En la Figura 2.3 se compara este equilibrio promedio de Boltzmann con otras condiciones de carga, como el límite de Rayleigh³, el cargado por difusión unipolar o el cargado por un campo eléctrico, que se estudiarán más adelante.

¹ $k = 1.38 \cdot 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$.

² $\epsilon_o = 8.85 \cdot 10^{-12} \text{ C}^2 \cdot \text{N}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$.

³El límite de Rayleigh se observa en partículas líquidas y depende de la tensión superficial del líquido ν . Cuando la repulsión mutua entre las cargas eléctricas de una gota excede la fuerza que la mantiene junta (la tensión superficial), la partícula se rompe en partículas más pequeñas. Cuando la gota se desintegra, los fragmentos quedan por debajo del límite de Rayleigh porque la misma cantidad de carga se distribuye sobre una superficie más grande.

Table 2.2: Distribución de cargas de equilibrio de Boltzmann sobre partículas de aerosol.

Diámetro de Partícula (μm)	Número Promedio de Cargas	Porcentaje de Partículas Portando el Número de Cargas Indicado								
		< -3	-3	-2	-1	0	+1	+2	+3	> +3
0.01	0.007				0.3	99.3	0.3			
0.02	0.104				5.2	89.6	5.2			
0.05	0.411			0.6	19.3	60.2	19.3	0.6		
0.1	0.672		0.3	4.4	24.1	42.6	24.1	4.4	0.3	
0.2	1.00	0.3	2.3	9.6	22.6	30.1	22.6	9.6	2.3	0.3
0.5	1.64	4.6	6.8	12.1	17.0	19.0	17.0	12.1	6.8	4.6
1.0	2.34	11.8	8.1	10.7	12.7	13.5	12.7	10.7	8.1	11.8
2.0	3.33	20.1	7.4	8.5	9.3	9.5	9.3	8.5	7.4	20.1
5.0	5.28	29.8	5.4	5.8	6.0	6.0	6.0	5.8	5.4	29.8
10.0	7.47	35.4	4.0	4.2	4.2	4.3	4.2	4.2	4.0	35.4

La velocidad a la cual un aerosol alcanza la distribución de carga de equilibrio de Boltzmann depende de la concentración de iones bipolares N_i y del tiempo de exposición de éstos con las partículas t . Estas dos variables constituyen un parámetro de cargado clave, el llamado *producto* $N_i t$. Así

$$\frac{n}{n_o} = \exp\left(\frac{e}{\epsilon_o} Z_i N_i t\right) \quad (2.19)$$

donde n es el número de cargas sobre la partícula con carga inicial n_o en el tiempo $t = 0$ y Z_i es la movilidad eléctrica de los iones. La relación n/n_o es un indicador de lo cerca que la distribución de carga está del estado estacionario y no depende del tamaño de partícula ni de su carga inicial. Para muchas aplicaciones, un valor de $n/n_o = 5\%$ es considerado como bastante cercano, así a partir de la ecuación 2.19 puede aproximarse el valor de $N_i t$ mínimo necesario para alcanzar el estado estacionario

$$N_i t \cong \frac{3\epsilon_o}{e Z_i} \cong 1 \cdot 10^{12} s \cdot m^{-3} \cong 1 \cdot 10^6 s \cdot cm^{-3} \quad (2.20)$$

asumiendo una movilidad media de los iones del aire de $1.65 \cdot 10^{-4} m^2 \cdot V^{-1} \cdot s^{-1}$ [Adachi *et al.* (1993)]. Las movilidades eléctricas de los iones positivos y negativos suelen ser diferentes; debido al menor tamaño de los iones negativos (electrones) con respecto a los iones positivos, su movilidad suele ser superior. Los valores exactos son difíciles de determinar, como ha sido indicado por muchos investigadores [Zeleny (1929), Huertas *et al.* (1971), Takebe (1974), Ungethüm (1974)]. Haciendo un promedio de los datos publicados, los valores medios de

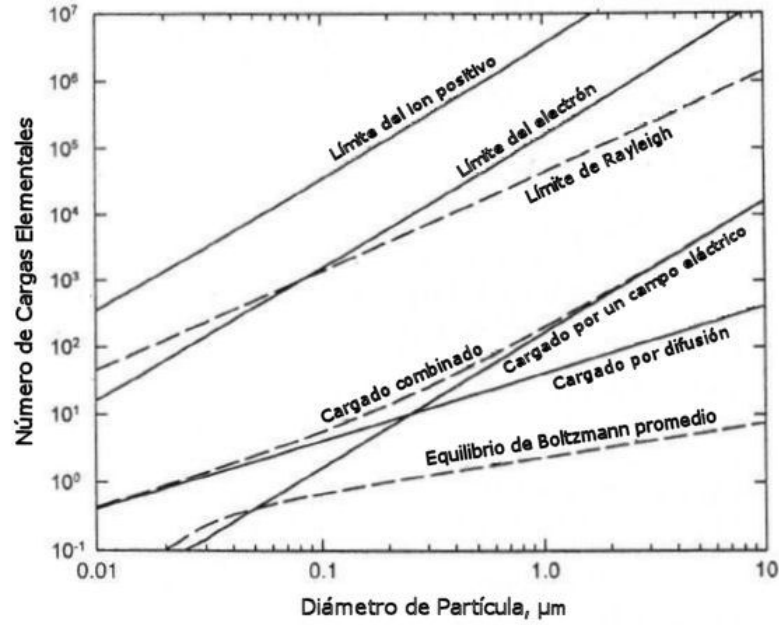


Figure 2.3: Número de cargas en función del diámetro de partícula obtenidas para diferentes mecanismos de cargado. Cargado por difusión a $N_i t = 10^7 s \cdot cm^{-3}$; cargado por un campo eléctrico a $E = 5 kV \cdot cm$, $N_i t = 10^7 s \cdot cm^{-3}$ y $\epsilon = 5,1$; límite de Rayleigh para agua con $\nu = 0.073 N \cdot m^{-1}$.

movilidades eléctricas de iones positivos y negativos son $Z_i^+ = 1.4 \cdot 10^{-4} m^2 \cdot V^{-1} \cdot s^{-1}$ y $Z_i^- = 1.9 \cdot 10^{-4} m^2 \cdot V^{-1} \cdot s^{-1}$, respectivamente. Estos valores se han considerado apropiados en el estudio de la ciencia atmosférica y de los aerosoles [Vohra *et al.* (1969), Mohnen (1974), Adachi *et al.* (1985)], por lo que se han adoptado también en esta investigación.

La distribución de equilibrio de Boltzmann es válida sólo cuando las movilidades de los iones positivos y negativos son similares, y sus concentraciones numéricas son iguales ($N_i^+ Z_i^+ = N_i^- Z_i^-$). La diferencia en las movilidades de los iones que se ha indicado conduce a una distribución de carga levemente asimétrica, como han indicado Gunn (1955), Fuchs (1963), Marlow & Brock (1975b). Basado en las aproximaciones de Gunn y Fuchs, Wiedensohler (1988) ha propuesto una solución analítica para el cálculo rápido de la distribución de carga bipolar para aerosoles en todo el rango de tamaños submicrométricos. Las ecuaciones que Wiedensohler propone se utilizan para predecir la distribución de cargas en el estado estacionario

2.2.1.2. Cargado por difusión unipolar

En el cargado por difusión unipolar el aerosol interactúa con gases que contienen iones de un solo signo. Las partículas al colisionar con los iones van acumulando cargas, que producen un campo que tiende a repeler iones adicionales, reduciendo la velocidad de cargado, es decir, reduciendo la probabilidad de colisiones ion-partícula. Mientras que las cargas en la partícula aumentan, menos iones tienen la suficiente energía térmica para superar la fuerza repulsiva, haciendo que la velocidad de carga se acerque lentamente a cero; sin embargo, ésta nunca llega a ser nula porque la distribución de velocidades de Boltzmann no tiene límite superior.

El proceso de cargado unipolar generalmente conduce a fracciones más altas de partículas cargadas (mayores eficiencias de cargado) que el proceso bipolar, debido a la recombinación de iones de signos opuestos que se presenta en este último mecanismo, y que por ende disminuyen su concentración. Esto también explica que con el cargado unipolar el porcentaje de partículas con múltiples cargas sea mayor que el obtenido en un cargado bipolar.

Este proceso de cargado ha sido estudiado teóricamente, disponiendo en la literatura de varios modelos que lo describen. Usualmente, los modelos permiten predecir la velocidad con que una partícula adquiere cargas eléctricas, es decir, el flujo de iones hacia la superficie de la partícula [[White \(1963\)](#), [Fuchs \(1963\)](#), [Boisdron & Brock \(1970\)](#), [Gentry \(1972\)](#), [Marlow & Brock \(1975a\)](#)]. El proceso es bastante complejo y no hay una teoría única que cubra todo el rango de tamaños de partículas; por esta razón, los modelos suelen depender del tamaño relativo de las partículas con respecto al recorrido libre medio de las moléculas del gas, o sea, dependen del régimen de transporte (definido en la sección 2.1.1.1).

Las ecuaciones para el cargado por difusión unipolar para el rango de tamaños de interés en este estudio y la estimación del parámetro de cargado $N_i t$ se especifican en la sección 3.2.2, donde se estudia en detalle el cargador unipolar corona bajo estudio. Los modelos que predicen la distribución de cargas obtenidas por las partículas en este tipo de cargador se describe en la sección 3.2.3.

2.2.2. Cargado por un Campo Eléctrico

Este mecanismo de cargado se da en presencia de un campo eléctrico moderado a alto. El rápido movimiento de los iones inducido por este campo incrementa la frecuencia de las colisiones de los iones con las partículas. Por lo tanto, este mecanismo produce niveles de carga mucho más altos que los obtenidos con el cargado por difusión, cuando el tipo de iones y su concentración son las mismas.

El mecanismo de cargado en una atmósfera iónica unipolar se esquematiza en la Figura 2.4. Las líneas de campo representan la trayectoria de los iones. Cuando una partícula sin carga se encuentra en un campo eléctrico uniforme, ésta distorsiona el campo, como se observa en la Figura 2.4(a). La extensión de la distorsión de las líneas de campo depende de la permitividad relativa o constante dieléctrica ϵ del material de la partícula¹ y de su carga n . Para una partícula sin carga, cuanto mayor es el valor de ϵ , mayor es el número de líneas de campo que convergen en la partícula.

Dentro del campo eléctrico, los iones viajan a lo largo de las líneas de campo y colisionan con la partícula donde las líneas interceptan a la misma. Todos los iones sobre las líneas de intersección, a la izquierda de la partícula, colisionarán con ella y le transferirán su carga. Como la partícula llega a cargarse, tenderá a repeler nuevos iones. Esta situación se muestra en la Figura 2.4(b), en la cual la partícula está parcialmente cargada. La presencia de carga en la partícula reduce la intensidad del campo y el número de líneas de campo que convergen sobre el lado izquierdo de la misma, aumentando estas dos cantidades a la derecha.

¹ $\epsilon_{vacio} = 1$, $\epsilon_{aire} = 1.00059$, $\epsilon_{NaCl} = 5.9$, $\epsilon_{aguapura} = 80$, $\epsilon_{particulasconductoras} = \infty$.

Por último, las cargas aumentan hasta el punto donde ninguna de las líneas de campo converge sobre la partícula y ninguno de los iones pueda alcanzarla (Figura 2.4(c)). Cuando la partícula llega a esta condición de carga máxima, se dice que tiene la *carga de saturación*.

Las teorías o modelos que predicen el número de cargas adquiridas por una partícula en el cargado por un campo eléctrico, originalmente propuesta por [Pautenier & Moreaut-Hanot \(1932\)](#), indican que éste es proporcional al cuadrado del diámetro de la partícula ($n \propto d_p^2$), mientras que en el cargado por difusión es proporcional al diámetro ($n \propto d_p$). Así, el cargado por un campo eléctrico es el mecanismo dominante para partículas mayores a $1 \mu m$, y el cargado por difusión es el mecanismo dominante para partículas menores a $0.1 \mu m$, incluso en presencia de un campo eléctrico [[Friedlander \(2000\)](#)]. Entre estos tamaños la situación es más complicada ya que ambos mecanismos son operados.

En general, los modelos de cargado por difusión se utilizan para partículas pequeñas y/o campos eléctricos bajos, mientras que los modelos de cargado por un campo eléctrico se emplean para partículas grandes y campos eléctricos altos. Para las situaciones intermedias los resultados experimentales demuestran que ninguna de estas aproximaciones dan predicciones razonables, por lo que se han ideado modelos que combinan ambos mecanismos. [Murphy et al. \(1959\)](#) fue uno de los primeros en fijar las bases de las teorías combinadas. [Liu & Yeh \(1968\)](#) y [Smith & McDonald \(1976\)](#) propusieron teorías similares en concepto a la de Murphy, pero mucho más fáciles de implementar. [Kirsch & Zagnit'ko \(1990\)](#) han propuesto una teoría que determina el número de cargas adquiridas por una partícula simplemente como la suma de las cargas obtenidas por el mecanismo de difusión y por el de campo eléctrico; sin embargo, investigadores como [Liu & Kapadia \(1978\)](#) y [Lawless \(1996\)](#) han propuesto aproximaciones más complicadas, resolviendo el problema numéricamente. Lawless ha contrastado las soluciones numéricas con datos experimentales, precisando que los modelos combinados sobrepredicen los niveles de carga para partículas menores a 100 nm. Por otra parte, [Fjeld et al. \(1983\)](#) y [Fjeld & McFarland \(1986\)](#) han realizado estudios numéricos del cargado combinado en atmósferas iónicas bipolares.

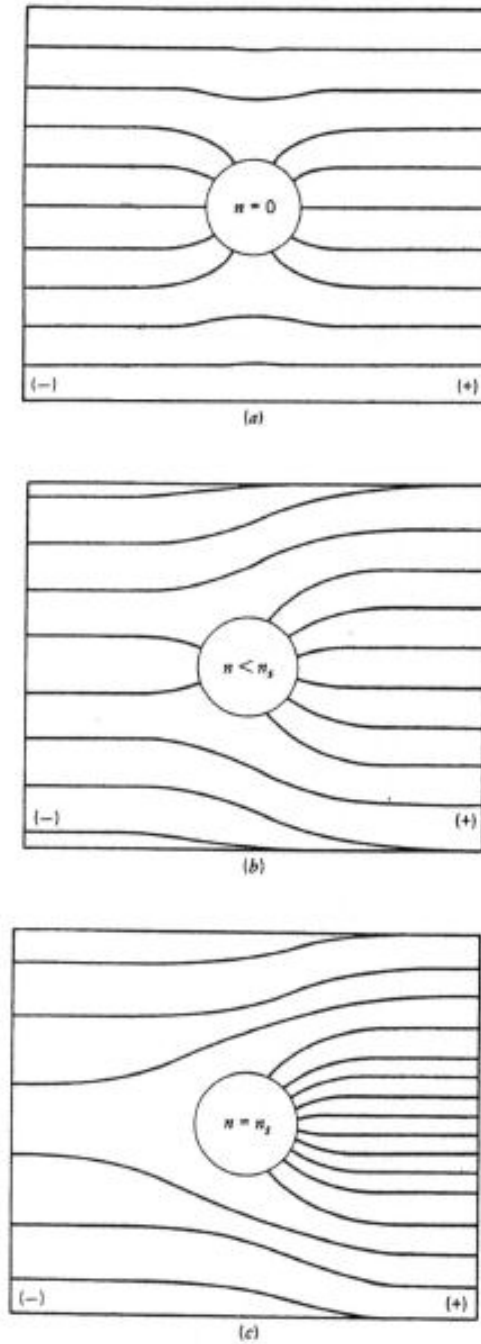


Figure 2.4: Líneas de campo eléctrico para una partícula en un campo uniforme (iones negativos y electrodo negativo a la izquierda). a) partícula sin carga; b) partícula parcialmente cargada; c) partícula con carga de saturación.

El cargador unipolar corona utilizado en este trabajo emplea un campo eléctrico muy débil para aumentar la concentración de iones en la zona de carga (como se verá en el capítulo 3). Por esta razón, en el resto de la tesis sólo se estudiarán las ecuaciones para el cargado por difusión, unipolar en el caso del cargador corona (sección 3.2.3), y bipolar en el caso del cargador radiactivo (sección 3.1.3).

2.3. Fuentes de Ionización de Gases

La ionización es un proceso químico o físico mediante el cual se producen iones, átomos o moléculas cargadas eléctricamente, debido al exceso o falta de electrones respecto a un átomo o molécula neutra. En los procesos físicos se suelen separar los electrones de un átomo o molécula neutra, al aportar un nivel de energía necesario (energía de ionización). Esto es posible en forma de energía térmica, por ejemplo con llamas, con radiaciones ionizantes (luz ultravioleta, rayos X, fuentes radiactivas tipo alfa α , beta β o gamma γ), aplicando campos eléctricos fuertes (descargas coronas) o bombardeando una muestra con partículas. De esta forma se genera una partícula con carga positiva además del electrón liberado.

Las *fuentes radiactivas* y la *descarga corona* son los dos tipos de fuentes de ionización utilizadas en los cargadores desarrollados en el presente trabajo. Ambas generan una producción continua de iones en concentraciones suficientes para el cargado de partículas de aerosol. A continuación se detalla el proceso de generación de iones en cada uno de estos casos.

2.3.1. Fuentes Radiactivas

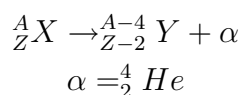
Los materiales radiactivos son capaces de producir la ionización de gases a través de emisiones de núcleos de helio (partículas α), electrones o positrones (partículas β) o fotones (rayos γ). Cuando estas partículas energéticas interaccionan con la materia producen una serie de efectos, que son función del tipo de partícula, de su energía, y del medio material con el que interaccionan. A continuación

se describen las características principales de los diferentes tipos de radiaciones mencionadas, así como los mecanismos de interacción con la materia. Además, se definen dos parámetros muy importantes utilizados en el cálculo del diseño de los cargadores de aerosoles, estos son el alcance y la ionización específica.

2.3.1.1. Tipos de radiaciones

Radiaciones alfa

Las *partículas* α , partículas cargadas positivamente, no son más que átomos de helio doblemente ionizados, núcleos de helio-4, o la unión de dos protones y dos neutrones. Las tres definiciones son completamente equivalentes. Los radionucleidos emisores de partículas α son en general núcleos relativamente pesados (con números atómicos iguales o superiores al del plomo $_{82}\text{Pb}$). Cuando un núcleo X se desintegra y emite una partícula α , su número atómico Z (el número de protones) y su número de neutrones disminuyen en dos, mientras que su número másico A (número de protones más neutrones) se reduce en cuatro. El proceso puede simbolizarse en la forma



Por consiguiente, el núcleo descendiente Y corresponde a un elemento químico distinto, situado dos lugares hacia atrás en la tabla periódica. El núcleo residual queda con $Z - 2$ protones y Z electrones, formándose así un ion negativo que tenderá a expulsar dos electrones para alcanzar la neutralidad eléctrica. La partícula α captará esos dos electrones para convertirse en un átomo neutro de ${}^4\text{He}$.

Los emisores α corrientes emiten partículas con energías cinéticas entre unos 4 y 6 MeV. Sus espectros de energía son discretos. Son poco penetrantes, se detienen con no más de 5 centímetros en el aire o con una hoja delgada de papel. Se necesitan partículas α con una energía de 7.5 MeV para penetrar la epidermis (capa protectora de la piel, de 0.07 mm de espesor). Los emisores α no

plantean por lo general ningún peligro de irradiación externa, pero representan un alto riesgo como contaminación e irradiación interna (vía digestiva, respiratoria y cutánea).

Radiaciones beta

Una *partícula* β es un electrón o positrón¹ muy energético. Los radionucleidos emisores β se extienden a toda la carta de nucleidos, desde los más ligeros hasta los más pesados. Dependiendo de la partícula emitida, este tipo de radiación se puede dividir en desintegración beta negativa (β^-) y desintegración beta positiva (β^+).

La **desintegración** β^- consiste en la emisión espontánea de electrones, llamados en este caso partículas beta negativas, que emergen a velocidades muy próximas a la de la luz. Ocurre en núcleos que tengan exceso de neutrones en comparación con núcleos estables del mismo número másico. La transformación nuclear que se produce es la conversión de un neutrón en un protón, un electrón y un antineutrino². Simbólicamente puede expresarse como

$$n \rightarrow p^+ + e^- + \bar{\nu}$$

Puesto que un neutrón se transforma en protón, el núcleo descendiente tendrá el mismo número másico que el precursor, pero su número atómico será una unidad mayor. En consecuencia el proceso puede representarse por

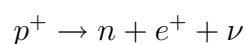
$${}^A_ZX \rightarrow {}^A_{Z+1}Y + \beta^- + \bar{\nu}$$

El núcleo precursor al emitir un electrón se convierte en ion positivo, con un núcleo con $Z + 1$ protones y Z electrones en su corteza, que tenderá a captar un electrón del medio ambiente para convertirse en átomo neutro.

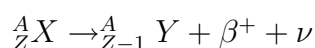
¹El positrón (e^+) es la antipartícula del electrón (e^-). Tiene la misma masa y la mayoría de las demás propiedades del electrón, salvo su carga, cuya magnitud es exactamente la misma que la del electrón, pero de signo positivo.

²El neutrino (ν), y su antipartícula, el antineutrino ($\bar{\nu}$), son partículas eléctricamente neutras, de masa en reposo nula, que se mueven a la velocidad de la luz.

La **desintegración** β^+ consiste en la emisión de positrones, llamados en este caso partículas beta positivas. Se presenta en radionucleidos que tienen exceso de protones en comparación con nucleidos estables de número másico similar al suyo. El proceso elemental que tiene lugar en este caso es la conversión de un protón en un neutrón, un positrón y un neutrino, según el esquema



El núcleo descendiente tiene el mismo número másico que el precursor, pero su número atómico disminuye en una unidad, según el esquema global



Al emitirse un positrón, el nucleido descendiente queda con una carga nuclear $Z - 1$, pero con Z electrones. Se forma pues un ion negativo, del que espontáneamente se desprende un electrón cortical.

Las energías β máximas típicas oscilan entre 18 keV y 2 MeV. Sus espectros de energía son continuos, y se extienden desde energía cero hasta un valor máximo que depende del radionucleido considerado (Figura 2.5). La energía β media del espectro es de alrededor de un tercio de la energía máxima. Su capacidad de penetración es mayor que las partículas α , necesitándose unos 3.65 m por MeV de energía cinética o algunos milímetros de aluminio para detenerlas. Se necesitan partículas β de 70 keV de energía como mínimo para atravesar la epidermis. Representan problemas leves como irradiación externa y un alto riesgo como contaminación interna.

Radiaciones gamma

La *radiación* γ es radiación electromagnética emitida por un núcleo cuando experimenta una transición de un estado de energía más alta a un estado energético más bajo. El número de protones y neutrones del núcleo no varía en estas transiciones. El núcleo puede haber quedado en el estado de más energía después de una

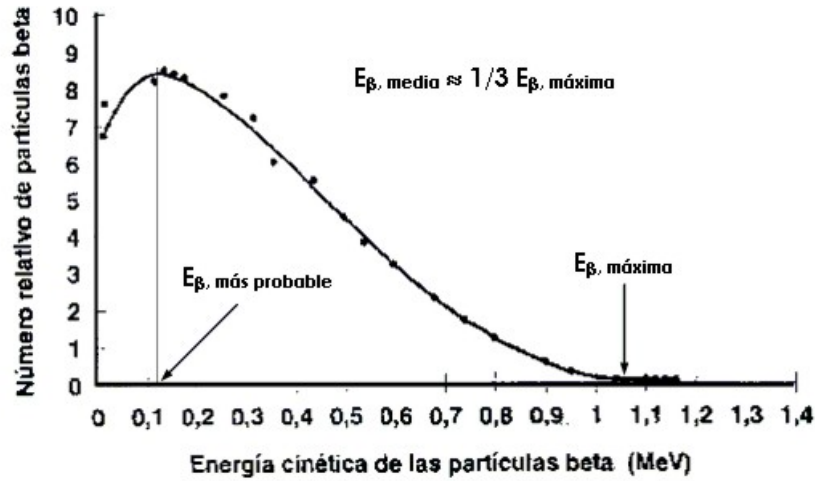


Figure 2.5: Espectro de energía de la desintegración β^- del ^{210}Bi .

desintegración α o β anterior. Es decir, los rayos γ se emiten a menudo inmediatamente después de una desintegración α o β . Tiene gran poder de penetración, los mejores blindajes son los de plomo y hormigón. Son de alto riesgo como fuente de irradiación externa. La ionización que este tipo de radiación produce en el aire es tan pequeña, que resulta no ser práctica para el cargado o neutralización de aerosoles.

2.3.1.2. Interacción de las partículas con la materia

Cuando las partículas energéticas interactúan con la materia producen una serie de efectos, que son función del tipo de partícula, de su energía, y del medio material con el que interactúan. Primordialmente, las partículas experimentan una serie de colisiones con los átomos constituyentes. El proceso predominante de colisión es la interacción coulombiana, proceso de interacción debido a las fuerzas eléctricas producidas entre la partícula incidente, y los electrones y núcleos del medio absorbente. Esta interacción produce una pérdida casi continua de la energía de la partícula, hasta llegar a su detención.

Los procesos que contribuyen a la pérdida de energía de una partícula cargada en

interacción con medios materiales son fundamentalmente de tres tipos [[Ciemat \(2003\)](#)]:

Colisiones elásticas, donde se conserva la cantidad de movimiento y la energía cinética. En la colisión, la partícula cargada transfiere parte de su energía cinética al átomo, pero la estructura electrónica y nuclear de éste se mantienen inalteradas.

Colisiones inelásticas, donde se conserva la cantidad de movimiento pero no la energía cinética. Como resultado de la colisión, la estructura electrónica del átomo se ve alterada, produciéndose diversos fenómenos, la ionización, la excitación o la disociación. Si en los choques de la partícula con los electrones atómicos, la energía transferida es superior a la energía de enlace del electrón colisionado, éste abandona el átomo y en consecuencia crea un ion positivo, produciéndose el fenómeno de *ionización*. Cuando en la colisión de la partícula la energía transferida es insuficiente para producir ionización, el electrón impactado puede ser promovido a una órbita de mayor energía, generando la *excitación* del átomo. El electrón excitado puede volver a su estado fundamental, emitiendo energía en forma de radiación electromagnética o degradándose a calor. Finalmente, cuando la energía cedida a una molécula por una partícula alcanza cierto valor crítico, puede producirse el fenómeno de *disociación*, que consiste en la ruptura de enlaces químicos moleculares, y produce transformaciones químicas en las sustancias irradiadas. Por ser la ionización el fenómeno de interés en este trabajo, se estudiará detalladamente más adelante.

Colisiones radiativas, donde la partícula cargada interacciona con el núcleo de los átomos del medio. Como consecuencia de la interacción, la estructura nuclear del átomo se ve alterada. Durante la colisión, parte de la energía cinética de la partícula cargada se convierte en radiación electromagnética, con la emisión de fotones γ y rayos X.

Interacción de partículas α

Cuando una partícula pesada cargada, tal como la partícula α , penetra en un medio material, interacciona fundamentalmente con los electrones atómicos. Como la masa de estas partículas es miles de veces mayor que los electrones colisionados,

sus trayectorias son prácticamente *rectilíneas*. Si el medio absorbente es un gas, el proceso fundamental de pérdida de energía es la ionización, y en menor escala, la excitación. En medios condensados (sólidos y líquidos), hay un predominio de disipación energética en procesos de excitación y disociación.

Interacción de partículas β

Los mecanismos de interacción de partículas ligeras cargadas son las colisiones con los electrones atómicos, con la producción de ionización y excitación, en el caso de partículas cargadas de baja energía. Como la masa de las partículas β de los electrones incidentes es idéntica a la masa de los electrones atómicos, las trayectorias de estas partículas son muy *sinuosas*, con fuertes desviaciones respecto a la trayectoria media.

2.3.1.3. Alcance

Se define el alcance de una partícula cargada en interacción con un medio material, como la máxima distancia de penetración en el medio absorbente. En el caso de las partículas pesadas α , el alcance coincide con la longitud de la trayectoria, ya que ésta es prácticamente rectilínea. Sin embargo, en el caso de las partículas ligeras β , la trayectoria es muy sinuosa, por lo que el alcance resulta ser muy inferior a la longitud de su trayectoria.

Alcance de partículas α

El alcance R de una partícula α en aire a condiciones estándar puede ser calculado por la siguiente relación [[Cooper & Reist \(1973\)](#), [Cember \(1996\)](#)]

$$R_{air}[cm] = \begin{cases} 0,56P_{\alpha} & \text{para } P_{\alpha} < 4MeV \\ 1,24P_{\alpha} - 2,62 & \text{para } 4 \leq P_{\alpha} < 8MeV \end{cases} \quad (2.21)$$

donde P_{α} es la energía de la partícula α en MeV . Alternativamente, [Tsoulfanidis \(1983\)](#) ha planteado una fórmula semi-empírica para el cálculo del mismo

$$R_{air}[mm] = \begin{cases} \exp(1,61\sqrt{P_{\alpha}}) & \text{para } 1 < P_{\alpha} \leq 4MeV \\ (0,05P_{\alpha} + 2,85)P_{\alpha}^{3/2} & \text{para } 4 < P_{\alpha} \leq 15MeV \end{cases} \quad (2.22)$$

Alcance de partículas β

El alcance de las partículas β suele expresarse en forma de masa por unidad de superficie. La razón es de índole práctica, ya que así el alcance resulta independiente de la naturaleza del absorbente. En efecto, el alcance de un electrón depende, además de su energía cinética, de la densidad de electrones del absorbente, que a su vez depende del número atómico y del número másico, Z/A .

El alcance máximo independiente del material r_{max} de una partícula β puede ser calculado por la fórmula empírica dada por [Katz & Penfold \(1952\)](#)

$$r_{max}[g \cdot cm^{-2}] = \begin{cases} 0,412P_{\beta,max}^{1,265-0,0954\ln(P_{\beta,max})} & \text{para } 0,01 \leq P_{\beta,max} \leq 2,5MeV \\ 0,530P_{\beta,max} - 0,106 & \text{para } P_{\beta,max} > 2,5MeV \end{cases} \quad (2.23)$$

donde $P_{\beta,max}$ es la energía máxima del espectro β en MeV . El alcance máximo con dependencia del material R_{max} corresponde a

$$R_{max}[cm] = \frac{r_{max}}{\rho_m} \quad (2.24)$$

donde ρ_m es la densidad del material en $g \cdot cm^{-3}$. Para aire a $20^\circ C$, la ecuación queda reducida a

$$R_{max,air}[cm] = 830r_{max} \quad (2.25)$$

con r_{max} expresado en $g \cdot cm^{-2}$.

2.3.1.4. Ionización

Como se mencionó anteriormente, un átomo puede sufrir una ionización si la energía que la partícula cargada transfiere al electrón es suficiente como para sacar a éste del orbital en el que se encuentra y alejarlo de la acción del núcleo atómico. En estas condiciones, se produce a lo largo de la trayectoria de la partícula, un cierto número de pares de iones (bipolares), que en condiciones ordinarias tenderán a la recombinación, estableciéndose la neutralidad eléctrica del medio absorbente.

Este tipo de ionización originado por la transferencia de la energía de la partícula cargada a los electrones atómicos, recibe el nombre de ionización primaria. Existe además otro tipo de ionización, generada por electrones producidos en la ionización primaria, con energía suficiente para a su vez, producir nuevas ionizaciones en el medio. Este fenómeno recibe el nombre de ionización secundaria.

El *potencial de ionización* W se define como el trabajo que es necesario realizar para arrancar un electrón de un átomo, es decir, la energía media para producir un par de iones, llevando el electrón desde el orbital en el que se encuentra en el átomo y/o molécula hasta el infinito, fuera de la acción del núcleo. El valor de W depende por una parte de la naturaleza y energía de la partícula incidente y por otra de la naturaleza del medio. Para gases, los valores típicos de este parámetro son 35.5 eV/par de iones para radiaciones α y 34 eV/par de iones para radiaciones β .

La *ionización total* I_t , producida por una partícula cargada a su paso a través de la materia, es igual al número total de pares de iones producidos por ionización primaria y secundaria a lo largo de su trayectoria. Entonces llamando P_o a la energía cinética inicial de la partícula incidente

$$I_t = \frac{P_o}{W} \quad (2.26)$$

donde W es el potencial de ionización de los átomos y/o moléculas del medio.

La *ionización específica* I_s , es igual al número de pares de iones producidos por la partícula incidente, por unidad de recorrido en el medio material. La ionización específica depende de la energía P de la partícula y, por tanto, varía a lo largo del recorrido x de ésta

$$I_s(P) = \frac{dP/dx}{W} \quad (2.27)$$

Ionización específica media de partículas α

Las partículas α producen una ionización específica muy elevada, ya que pierden la totalidad de su energía en un camino recto y muy corto, igual al alcance

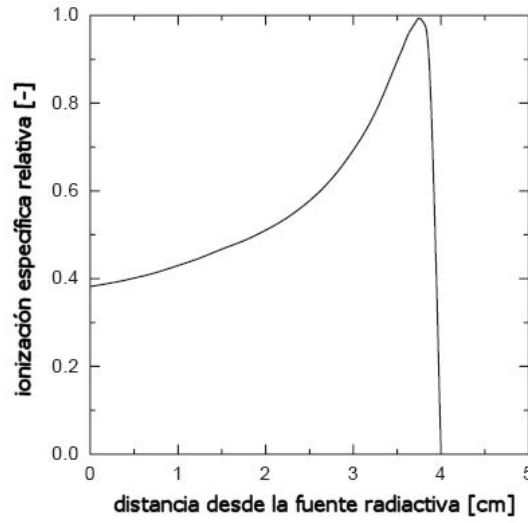


Figure 2.6: Ionización específica relativa del ^{241}Am en función de la distancia desde la fuente radiactiva (referido en Alonso y Alguacil, 2003).

de la misma. La forma de la curva de ionización depende de la variación de la velocidad de la partícula α a lo largo de su recorrido. La Figura 2.6 esquematiza la llamada curva de Bragg, que representa la ionización específica en función de la distancia recorrida. En la producción de pares de iones, las partículas pierden energía y su velocidad disminuye; al moverse más lentamente, permanecen más tiempo en la proximidad de moléculas de aire con que tropiezan, aumentando así la probabilidad de producción de pares iónicos, lo que explica el incremento de la ionización específica. Tras alcanzar el máximo, la partícula viaja ya tan lenta que captura un electrón, lo que explica el descenso brusco, y luego un segundo electrón al final de la trayectoria, formando un átomo neutro de helio, incapaz de producir ionización.

La ionización específica media $\bar{I}_s$ de las partículas α puede ser determinada dividiendo la ionización total por el alcance de la partícula

$$I_{s,\alpha}^- = \frac{I_t}{R} \quad (2.28)$$

Por ejemplo, una partícula α de 5.5 MeV de energía (emitida por el ^{241}Am), tendrá un alcance en aire de 4 cm, producirá $1.5 \cdot 10^5$ pares de iones y tendrá una ionización específica en aire de $3.8 \cdot 10^4$ pares de iones por centímetro.

Ionización específica inicial de partículas β

Para las partículas β el caso es más complicado puesto que la radiación se emite con un espectro de energía continuo, produciendo una ionización a lo largo de un camino largo e irregular. [Cooper & Reist \(1973\)](#) han deducido una ecuación para el cálculo de la ionización específica inicial I_{s_o} de las partículas β

$$I_{s_o,\beta}[\text{ionpairs} \cdot \text{cm}^{-1}] = \frac{17}{3} \rho_m \frac{P_{\beta,max}^{-0,14}}{34\text{eV}/10^6\text{ionpair}} \quad (2.29)$$

con ρ_m expresado en $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ y $P_{\beta,max}$ en MeV . Para aire a 20°C , la ecuación queda reducida a

$$I_{s_o,\beta,\text{air}}[\text{ionpairs} \cdot \text{cm}^{-1}] = 210 P_{\beta,max}^{-0,14} \quad (2.30)$$

Por ejemplo, una partícula β de 0.67 MeV de energía (emitida por el ^{85}Kr), tendrá un alcance en aire de aproximadamente 2 m y una ionización específica inicial de 220 pares de iones por centímetro.

2.3.2. Descarga Corona**2.3.2.1. Principio de operación**

Otra forma de producir un gran número de iones en fase gaseosa es a través de la aplicación de un campo eléctrico no uniforme, cuya fuerza debe superar un valor crítico. Para crear esta fuerza se debe aplicar un alto voltaje a un diseño de electrodos especiales, como una aguja y un disco, o una alambre concéntrico y un tubo. Cuando el voltaje aplicado excede un cierto valor, puede medirse una corriente eléctrica entre los dos electrodos, indicando el inicio de una *descarga corona*, como se observa en la Figura 2.7. Un incremento en el voltaje conduce a un incremento progresivo de la corriente, hasta que se origina literalmente una chispa que marca el rompimiento eléctrico del gas.

Usualmente, un gas contiene el orden de 10^{19} moléculas neutras por cm^3 [[Parker \(1996\)](#)]. A causa de la radioactividad natural y la radiación cósmica algunas

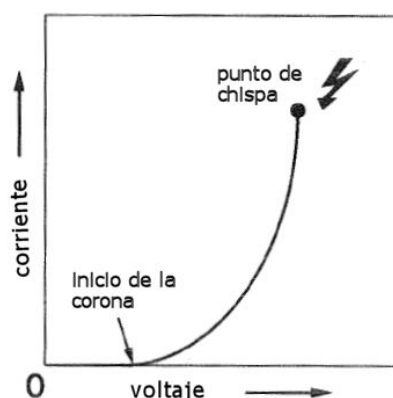


Figure 2.7: Relación típica entre voltaje y corriente.

moléculas llegan a ser ionizadas y recombinadas inmediatamente después. Si un campo eléctrico está presente durante esta ionización, el electrón será acelerado y separado rápidamente del ion positivo (Figura 2.8). A una corta distancia el electrón chocará con otra molécula de gas neutra y se producirá un segundo electrón (siempre y cuando la energía cinética haya sido suficiente para la ionización). Así, comienza un efecto avalancha que produce una densa nube de iones positivos y electrones libres, en las regiones donde el campo eléctrico es suficientemente alto como para llevar a los electrones a los niveles de energía de ionización. Esta región es llamada *zona activa*. Dependiendo de la polaridad del voltaje corona aplicado al electrodo central, los iones del signo opuesto a esta polaridad serán atraídos hacia el mismo, mientras que los iones del mismo signo serán repelidos hacia el electrodo exterior, creando una atmósfera iónica unipolar. Cuando, por ejemplo, los electrones repelidos llegan a la región de más bajo campo eléctrico, la *zona pasiva*, ellos no son capaces de ionizar ninguna nueva molécula; sin embargo pueden unirse a las moléculas de aire (si está presente un gas electronegativo como el O_2), formando un gas iónico negativo. La extensión espacial de la zona activa es sólo un pequeño porcentaje de la zona pasiva. Los iones migran desde el alambre hasta el tubo en concentraciones altas (de 10^6 a 10^9 cm^{-3}), y a velocidades altas (alrededor de los $75 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$), para las condiciones de la Figura 2.11.

Al introducir partículas de aerosol dentro del espacio entre el alambre y el tubo,

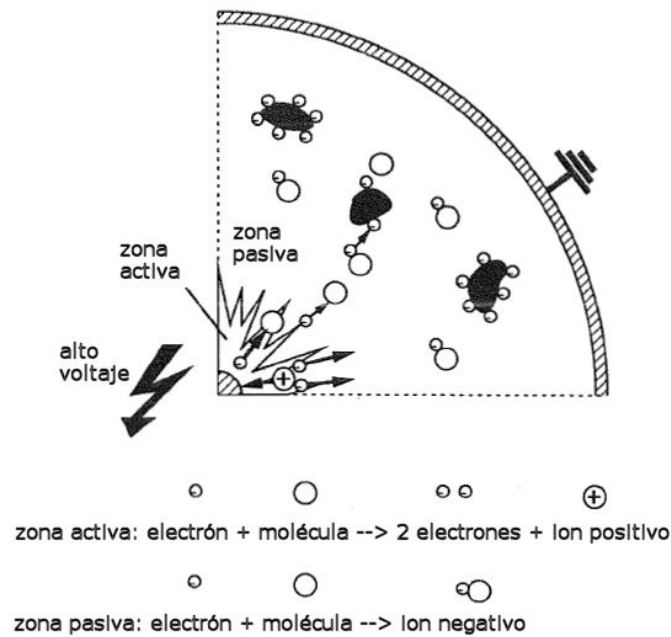


Figure 2.8: Principio de operación de una descarga corona.

se producirá el cargado (por un campo eléctrico) de las partículas de la misma polaridad que el alambre, debido al campo eléctrico usado para producir la corona. Si las partículas de aerosol entran a una región fuera del campo eléctrico, por ejemplo en la región anular de dos cilindros concéntricos, las partículas serán cargadas por el mecanismo de difusión.

En general, los electrodos de descarga pueden ser operados con polaridad positiva o negativa, generando *coronas positivas* o *coronas negativas*, respectivamente. La Figura 2.9 muestra el mecanismo de ionización y carga de partículas producidos en ambos tipos de coronas. Para una geometría dada el voltaje de iniciación de la corona y la rotura eléctrica del gas ocurre a voltajes más altos para la corona negativa que para la positiva. Por otro lado, las coronas tienen apariencias y propiedades muy diferentes. En las coronas positivas, la región alrededor del alambre presenta una especie de cubierta estable e incandescente de un color verde-azulado. En las coronas negativas, la incandescencia de la corona se presenta sobre la superficie del alambre en forma de mechones o hilos en movimiento. La temperatura, presión y composición del gas también afectan la generación de

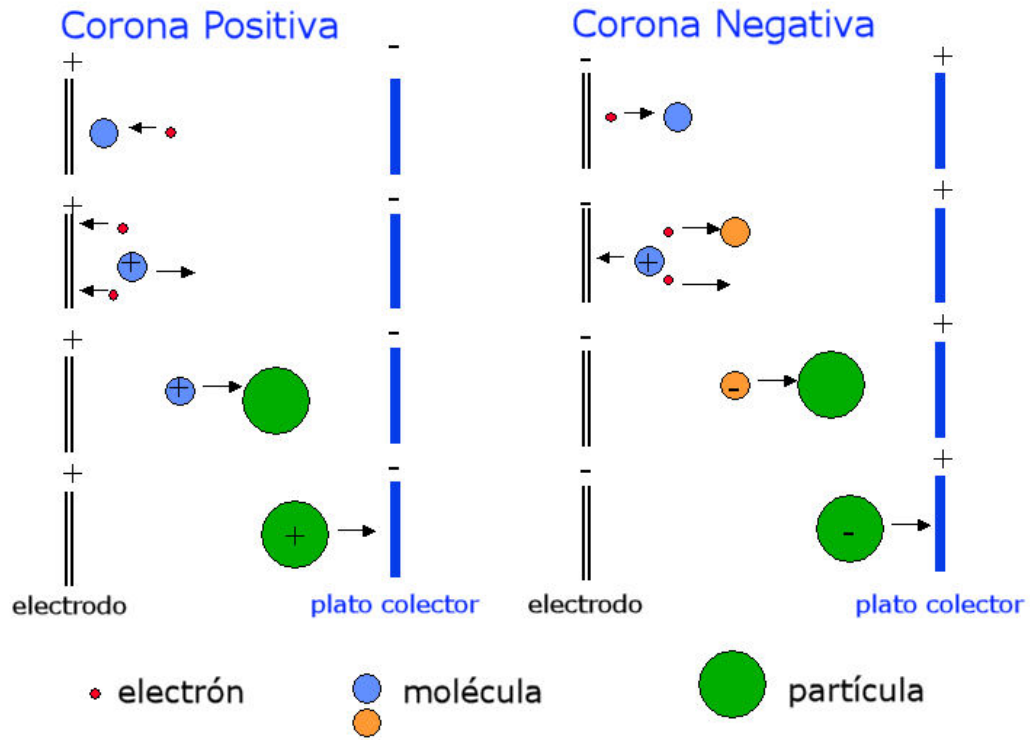


Figure 2.9: Mecanismo de ionización y carga de partículas en coronas positivas y negativas.

la corona. La Figura 2.10 muestra fotografías de diferentes tipos de descargas coronas.

2.3.2.2. Campo eléctrico de inicio de la corona

Un campor eléctrico existe en el espacio alrededor de un objeto cargado y hace que sobre una partícula cargada en este espacio actúe una fuerza, la llamada fuerza eléctrica. La intensidad del campor eléctrico E se expresa en términos de la magnitud de la fuerza eléctrica F_E sobre la partícula por unidad de carga, así

$$E = \frac{F_E}{q} \quad (2.31)$$

donde q es la carga de la partícula, la cual suele expresarse como $q = ne$, donde n es el número de cargas elementales y e es la carga del electrón.

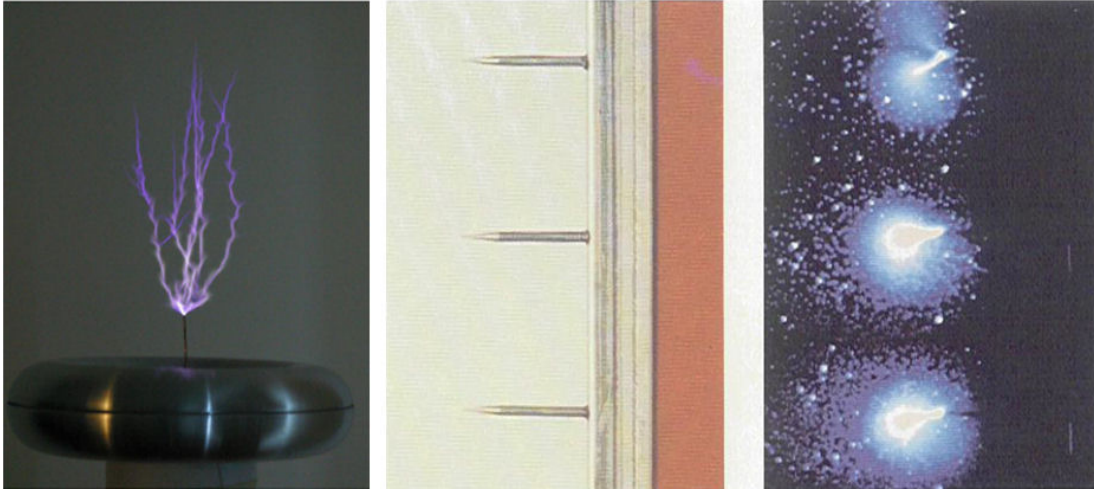


Figure 2.10: Descargas coronas en electrodos tipo aguja.

Una definición alternativa del campo eléctrico se basa en el voltaje o potencial, un parámetro relativamente fácil de medir

$$E = \frac{\Delta U}{\Delta x} \quad (2.32)$$

donde ΔU es la diferencia de potencial entre dos puntos, y Δx es la distancia entre los puntos. Para geometrías simples, el valor del campo eléctrico se puede determinar fácilmente. Para un tubo cilíndrico con un alambre a lo largo de su eje, geometría de nuestro interés, el campo eléctrico viene dado por la expresión

$$E = \frac{\Delta U}{r \ln(d_t/d_w)} \quad (2.33)$$

donde ΔU es la diferencia algebraica de voltaje entre el alambre y el tubo, r es la posición radial en la cual se está calculando el campo eléctrico, y d_t y d_w son los diámetros del tubo y del alambre, respectivamente. La ecuación 2.33 indica que el campo eléctrico tiende a infinito cuando r tiende a cero. El diámetro finito del alambre conductor imposibilita el campo a $r = 0$; sin embargo, la máxima intensidad de campo eléctrico será sobre la superficie del alambre y se incrementará cuando el diámetro del alambre disminuya. La ecuación 2.33 también puede utilizarse para el cálculo del campo eléctrico en el espacio entre dos cilindros concéntricos.

El campo eléctrico requerido para iniciar un proceso de ionización continuo depende de la energía de ionización de las especies de gas presentes y del recorrido

medio libre de las moléculas del gas λ . Puesto que λ se relaciona con el estado del gas, el campo eléctrico de iniciación de la corona E_o es una función de la densidad del gas ρ_g . Una relación semi-empírica propuesta por [White \(1963\)](#) expresa E_o como una función de la densidad relativa del gas δ_g , el diámetro del alambre corona d_w y dos constantes empíricas, a y b , que caracterizan el gas. La relación se expresa como

$$E_o[kV \cdot cm^{-1}] = a\delta_g + b\sqrt{\frac{\delta_g}{d_w}} \quad (2.34)$$

con d_w expresado en cm y

$$\delta_g = \frac{\rho_{g1}}{\rho_{g2}} = \frac{p_2}{p_1} \cdot \frac{T_1}{T_2} \quad (2.35)$$

Usualmente la temperatura y la presión se relacionan con las condiciones normales, así $T_1 = T_0 = 273K$ y $p_1 = p_0 = 1bar$. Las constantes empíricas para el aire son $a = 30kV \cdot cm^{-1}$ y $b = 12.7kV \cdot cm^{-1/2}$, por lo que la ecuación de E_o para aire a condiciones estándar queda reducida a

$$E_{o,air}[kV \cdot cm^{-1}] = 30 + 12,7(d_w)^{-1/2} \quad (2.36)$$

con d_w en cm .

La Figura [2.11](#) muestra el campo eléctrico alrededor de un alambre de 1 mm de diámetro, mantenido a 50 kV en un tubo con un diámetro de 20 cm. Una región de 0.8 mm de espesor alrededor del alambre excede los 70 kV/cm (según la ecuación [\(2.36\)](#)) y es la región de descarga corona.

2.3.2.3. Voltaje de inicio de la corona

Como se estudió anteriormente, para el cálculo del campo eléctrico de inicio de la corona en una geometría alambre-tubo se requiere esencialmente el diseño del electrodo de descarga (d_w). Sin embargo, el voltaje necesario para superar este campo crítico es fijado por la configuración de los dos electrodos (d_w y d_t).

De la teoría del campo eléctrico (ecuación [2.33](#)) se puede deducir la siguiente relación de voltaje de inicio de la corona U_o para configuraciones de electrodos

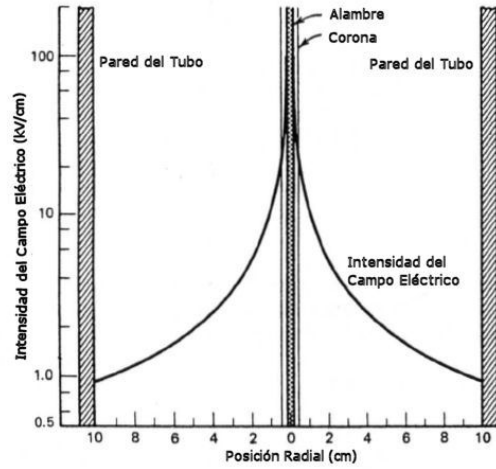


Figure 2.11: Intensidad del campo eléctrico en un tubo de 20 cm de diámetro con un alambre concéntrico de 1 mm de diámetro a 50 kV. La región corona no se presenta a escala.

coaxiales

$$U_o = E_o(\delta, d_w) \cdot d_w \cdot \ln \left(\frac{d_t}{d_w} \right) \quad (2.37)$$

Generalmente, incrementos del diámetro del tubo necesitan voltajes de inicio de la corona más altos. Alternativamente, el voltaje de inicio puede ser disminuido reduciendo del diámetro del alambre corona.

2.4. Tipos de Cargadores

Los cargadores de aerosoles se pueden clasificar según la polaridad que presente la atmósfera iónica generada dentro del mismo, ya que, como se ha estudiado en la sección 2.2, los procesos de cargado son muy diferentes cuando las partículas interactúan con iones de ambos signos o con iones de un mismo signo. Así, una primera clasificación divide a los cargadores en *bipolares* y *unipolares*. Dentro de cada una de estas categorías, puede hacerse una segunda clasificación de acuerdo a la fuente de ionización empleada; las técnicas más usadas son las fuentes radiactivas y las descargas corona, como se ha detallado en la sección 2.3. Los

dispositivos de cargado pueden clasificarse entonces en cargadores *bi/uni-polares radiactivos* y *bi/uni-polares corona*. En cualquiera de los casos, el objetivo principal de los cargadores es lograr una máxima eficiencia de cargado con una mínima pérdida de partículas. Al presentarse estas dos condiciones se pueden generar altas concentraciones de partículas cargadas, necesarias en los equipos utilizados aguas abajo del cargador, como los DMAs y los equipos de detección y conteo de partículas (electrómetros y CPCs¹).

Básicamente, los cargadores *radiactivos* consisten en un recinto con una fuente ionizante radiactiva α o β en su interior. El flujo de aerosol se pasa a través del dispositivo, permitiendo que las partículas colisionen con los iones generados, y por ende terminen cargándolas. Como se ha estudiado en la sección 2.3.1, las fuentes radiactivas producen una ionización bipolar, sin embargo, según el diseño y modo de operación de los dispositivos, se pueden obtener atmósferas unipolares en el interior de un cargador radiactivo. Para lograr esto, usualmente se instalan dos electrodos en el interior del cargador y se aplica un voltaje sobre uno de ellos, el cual permite que se depositen sobre éste los iones del signo opuesto a la polaridad del voltaje aplicado.

Los cargadores *corona* usualmente constan de dos electrodos que limitan un espacio cerrado. Sobre uno de ellos se aplica un potencial lo suficientemente alto para generar una descarga corona y ionizar el gas a su alrededor. Los iones producidos son dirigidos hacia el segundo electrodo, permitiendo que en su camino colisionen con las partículas del aerosol que entra en el cargador, y por consiguiente terminen cargándolas. Los electrodos donde se aplica la descarga corona pueden presentar diferentes formas, como alambres o agujas, y producen una ionización unipolar, según se ha visto en la sección 2.3.2; sin embargo, estos cargadores, generalmente los de aguja, pueden operarse también en modo bipolar, si se aplica un voltaje corona de corriente alterna (AC).

Por lo general, los cargadores radiactivos en modo bipolar suelen ser los dispositivos de cargado más usados en conjunto con los DMAs para la medida de

¹CPC, acrónimo de *Condensation Particle Counter*. Los contadores de partículas se describen en el anexo ??.

la distribución de tamaños de un aerosol, debido a que permiten alcanzar una distribución de carga estacionaria (sin depender de parámetros de cargado externos); además, la relación de partículas de una carga a partículas de cargas múltiples es alta, y ésta es una condición deseable en las técnicas de análisis o separación por movilidad eléctrica, debido a que la conversión entre movilidad y tamaño de partícula es directa (ver ecuación 2.15). Los cargadores bipolares, ya sean radiactivos o corona, también suelen utilizarse para la neutralización de aerosoles o reducción de excesos de cargas (caso que se presenta en los métodos de generación de muestras de aerosoles, como los atomizadores de Collison¹). Por su parte, los cargadores unipolares suelen producir concentraciones de iones más altas, en comparación con los métodos de cargado bipolar, donde la concentración de iones se ve disminuida por la recombinación que se presenta entre iones de signos opuestos; así con este tipo de cargadores se obtienen mayores eficiencias de cargado, obteniendo también altas fracciones de partículas con cargas múltiples, por lo que su aplicación en las técnicas de separación por movilidad eléctrica es más limitada. Sin embargo, en cualquier tipo de dispositivo utilizado, los niveles de carga vienen determinados por el parámetro $N_i t$ que presente cada cargador. Como se estudiará en las secciones 3.1.2 y 3.2.2, dependiendo de las características de diseño y del modo de operación de cada dispositivo, el producto $N_i t$ puede ser ajustado para proporcionar los niveles de carga necesarios en cada aplicación; un incremento en $N_i t$ conlleva a un aumento de los niveles de carga, y viceversa.

A continuación se describen las características de diseño y el modo de operación de los cargadores más representativos reportados hasta el momento.

2.4.1. Cargadores Bipolares

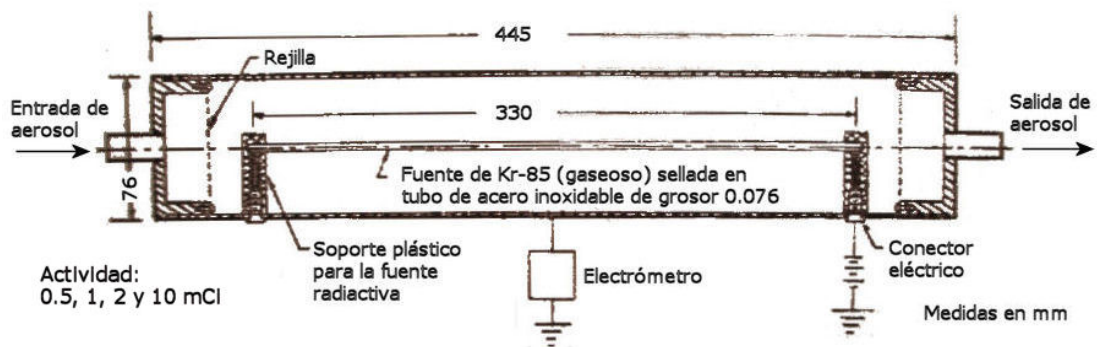
Como se ha mencionado anteriormente, los iones bipolares se pueden producir tanto por la irradiación del aire con fuentes radiactivas como por descargas corona de polaridad alterna. En estos cargadores ocurren dos procesos simultáneamente, el cargado de partículas neutras y la neutralización de las que se han cargado; este último proceso ocurre principalmente por la atracción de un ion hacia una

¹El estudio de los atomizadores se presenta en el anexo ??.

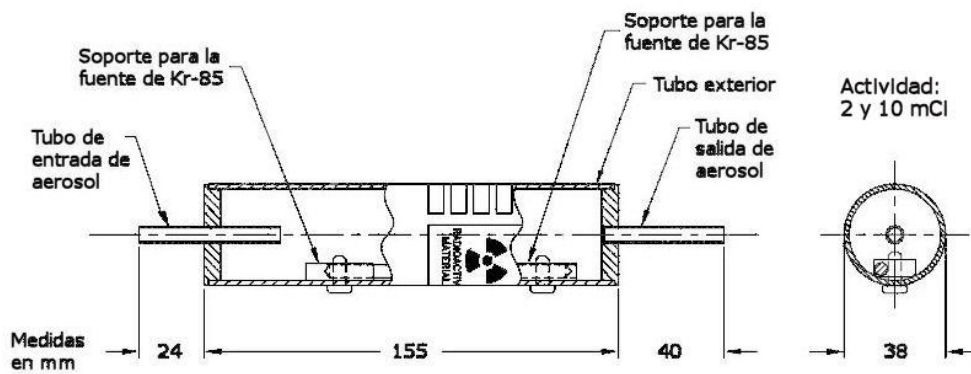
partícula de polaridad opuesta, y en menor grado por colisiones entre partículas cargadas de diferentes signos [[Hernández-Sierra *et al.* \(2003\)](#)]. El dispositivo actuará entonces como "cargador eléctrico" cuando las partículas iniciales se encuentren mayoritariamente sin carga eléctrica, y actuará como "neutralizador eléctrico" cuando la mayoría de las partículas porten un exceso de cargas comparadas con el estado de equilibrio. Algunos diseños representativos se presentan a continuación.

2.4.1.1. Cargadores bipolares radiactivos

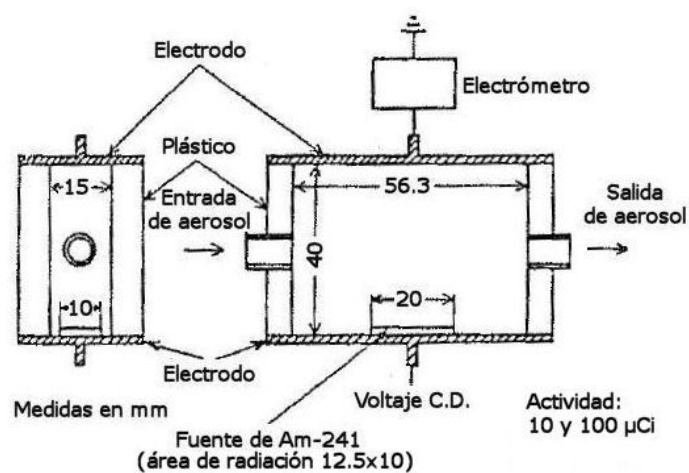
[Whitby & Liu \(1968\)](#) fueron de los primeros investigadores en utilizar fuentes radiactivas para la neutralización de partículas altamente cargadas generadas por un atomizador de Collison, al realizar estudios sobre cargas eléctricas en partículas monodispersas de latex de poliestireno (PSL) entre 0.002 y 5 μm . Para este estudio los autores utilizaron como neutralizador radiactivo una cámara de aluminio cilíndrica con una fuente de ^{85}Kr (gaseoso) de 0.5 mCi de actividad, sellada en un tubo de acero inoxidable de espesor 0.076 mm, localizado a lo largo del eje de la cámara, como se observa en la Figura 2.12(a). La radiación β producida por la fuente es capaz de penetrar la delgada capa del tubo de acero inoxidable para ionizar las moléculas del gas fuera de este recinto; por su parte, el cilindro metálico exterior tiene la función de confinar la radiación β de la fuente de ^{85}Kr y también de proporcionar el volumen de neutralización necesario para el aerosol. Más tarde [Liu & Pui \(1974a,b,c\)](#) utilizaron este neutralizador para realizar estudios sobre la distribución de cargas de equilibrio, observando buenos ajustes entre las distribuciones de cargas obtenidas experimentalmente y las distribuciones predichas por la Ley de Boltzmann. [Liu & Pui \(1974c\)](#) investigaron además los procesos de neutralización utilizando el dispositivo original de [Whitby & Liu \(1968\)](#) con cuatro actividades diferentes (0.5, 1, 2 y 10 mCi). Los autores han indicado que el grado de neutralización depende del parámetro $N_i t$, encontrando valores máximos de $6 \cdot 10^6 \text{ s} \cdot \text{cm}^{-3}$ y $1 \cdot 10^5 \text{ s} \cdot \text{cm}^{-3}$ para la correcta neutralización de cargas eléctricas, sobre partículas en el régimen continuo y el régimen molecular libre, respectivamente.

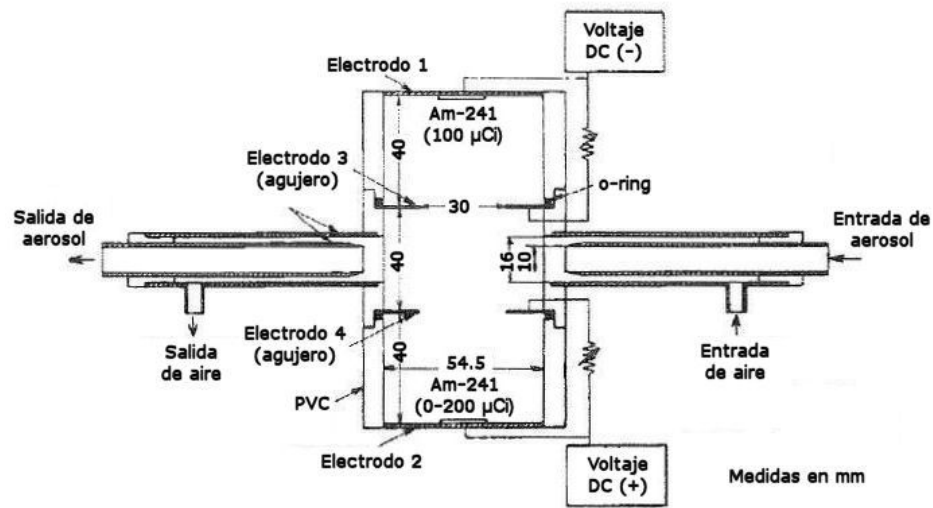


(a) Whitby & Liu (1968) y Liu & Pui (1974a,b,c).

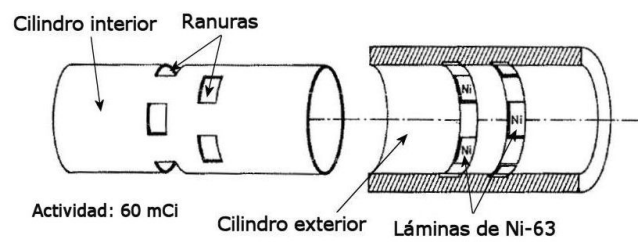


(b) TSI modelo 3077/3077A.

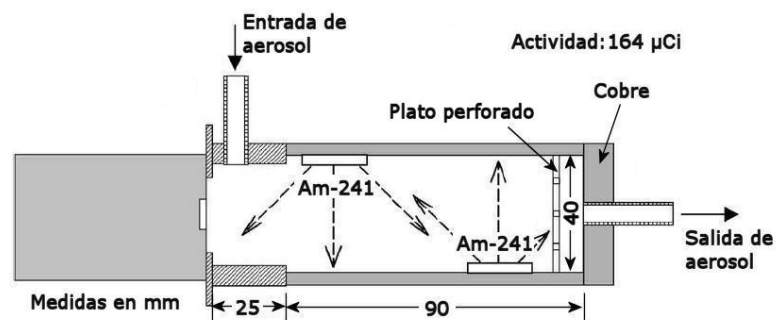
(c) Adachi *et al.* (1980, 1983, 1985) y Kousaka *et al.* (1983).



(d) Adachi *et al.* (1986).



(e) Stober *et al.* (1991).



(f) Lee *et al.* (2005).

Figure 2.12: Diferentes diseños de cargadores bipolares radiactivos.

En 1977 la compañía Thermo-Systems, Inc. (TSI) comercializa este tipo de neutralizador y saca al mercado los modelos 3077 y 3077A, con actividades de 2 y 10 mCi, respectivamente, localizando la fuente radiactiva sobre una de las paredes internas del dispositivo (Figura 2.12(b)), y adoptando la Ley de Boltzmann para determinar la distribución de cargas (según los estudios de Liu & Pui (1974a,c)). Luego, TSI adopta las ecuaciones empíricas propuestas por Wiedensohler (1988) para determinar la distribución de cargas, ya que sus ecuaciones toman en cuenta las diferencias en las movilidades de los iones positivos y negativos¹. Este último modelo ha sido utilizado por Wiedensohler & Fissan (1988, 1991) para estudios del cargado bipolar en atmósferas de argón y nitrógeno de alta pureza; por Rogak & Flagan (1992) en estudios sobre partículas esféricas y aglomerados, para determinar el efecto de la forma de la partícula sobre los procesos de cargado eléctrico; por Alonso *et al.* (2001a) para el estudio en partículas ultrafinas de los efectos del cargado aguas abajo del neutralizador; y por Alonso *et al.* (2001b) en estudios de deposición de nanopartículas sobre rejillas.

Por su parte, Kudo & Takahashi (1972) y Takahashi & Kudo (1973), estudiaron los procesos de cargado eléctrico por iones bipolares utilizando cámaras de vidrio de diferentes volúmenes con fuentes radiactivas de ²⁴¹Am de 2 mCi. Los autores examinaron las condiciones necesarias para alcanzar el equilibrio de Boltzmann, indicando la dependencia con la fuerza de la fuente de iones y del tiempo de retención en el cargador. Han indicado, además, que para un cargado normal la concentración de iones debería exceder de 10^7 cm^{-3} . Un dispositivo de ²⁴¹Am fue utilizado también por Adachi *et al.* (1980, 1983) y Kousaka *et al.* (1983) para el estudio teórico y experimental de los procesos de cargado y neutralización sobre partículas finas de aerosol con y sin carga eléctrica inicial. Los autores han observado como la Ley de Boltzmann se desvía de los datos experimentales, por lo que adoptan como buena aproximación la teoría de Fuchs, al tomar en cuenta las diferencias de los parámetros físicos de ambos iones [Fuchs (1963)]. En este caso el cargador consiste en una cámara plástica de sección rectangular con una pequeña fuente de ²⁴¹Am (100 y 10 μCi) localizada en el fondo del canal de 4 cm de profundidad, distancia que cubre el alcance en aire de las partículas α

¹Las ecuaciones de Wiedensohler (1988) están basadas en las aproximaciones de Gunn (1955) y Fuchs (1963).

proporcionado por esta fuente (Figura 2.12(c)). Las caras superior e inferior de la cámara son metálicas y actúan como electrodos para medir la corriente iónica generada en el interior, a través de un electrómetro. Más tarde, Adachi *et al.* (1985) realizan estudios del cargado bipolar y unipolar para partículas entre 4 y 100 nm, utilizando el mismo diseño de cargador para el modo bipolar; sin embargo, para el cargado en modo unipolar los autores realizaron algunos cambios (ver sección de cargadores unipolares 2.4.2.1). Por su parte, Reischl *et al.* (1996) y Alonso *et al.* (1997) han realizado estudios sobre aerosoles nanométricos (< 10 nm) con cargadores similares; los últimos autores mencionados han utilizado cargadores de ^{241}Am de 100 μCi variando los volúmenes de cargado para determinar el tiempo requerido para lograr el estado de equilibrio. Adachi *et al.* (1986) investigaron el cargado de partículas ultrafinas por iones bipolares de concentraciones desiguales, utilizando para ello un dispositivo similar al de Adachi *et al.* (1985), pero instalando otra fuente radiactiva de ^{241}Am en la parte superior del canal; los autores variaron la relación entre iones negativos a iones positivos instalando fuentes de diferentes actividades y aplicando sobre cada una campos eléctricos de diferentes intensidades, como se muestra en la Figura 2.12(d).

Un cargador de ^{241}Am con geometría diferente y actividad mucho más alta que los cargadores anteriores fue utilizado por Hussin *et al.* (1983) para el estudio experimental del cargado bipolar en partículas de tamaños entre 4 y 30 nm. Los autores utilizaron un cargador cilíndrico cubierto internamente de material radiactivo con una actividad de 6 mCi. Luego, Porstendörfer *et al.* (1984) ampliaron el estudio a partículas entre 0.5 y 2 μm , utilizando una fuente de ^{241}Am de 6 mCi al trabajar con concentraciones iguales de iones positivos y negativos, y una fuente de ^{14}C de 0.75 mCi para concentraciones desiguales. Wiedensohler *et al.* (1986) investigaron la influencia de la temperatura y de la composición del gas sobre los procesos de cargado bipolar, utilizando para ello un cargador similar al de Hussin *et al.* (1983) pero con una fuente de ^{210}Po .

Stober *et al.* (1991) realizaron estudios experimentales para determinar la eficiencia de cargado en gases nobles (argón), en función de la concentración de iones. Para ello utilizaron un cargador radiactivo compuesto por dos cilindros concéntricos de aluminio (como se muestra en la Figura 2.12(e)). El cilindro in-

terior contiene ocho ranuras formando dos anillos. Sobre la pared interior del cilindro externo hay localizadas láminas de ^{63}Ni con una actividad total de 60 mCi, de las mismas dimensiones y sobre las mismas posiciones que las ranuras del cilindro interno. La intensidad de la radiación y la velocidad de producción de iones se pueden variar ya que los tubos de aluminio (que detienen completamente la radiación β de 67 keV que emite el ^{63}Ni) pueden girarse hasta la posición deseada.

Por su parte, [Shimada et al. \(2002\)](#), [Han et al. \(2003\)](#) y [Lee et al. \(2005\)](#) han estudiado el cargado bipolar y unipolar de nanopartículas usando otro mecanismo de cargado, la fotoionización por rayos-X; sin embargo los autores han comparado la velocidad de generación de iones y el proceso de cargado obtenido con el fotoionizador con el producido con un cargadores de ^{241}Am de diferentes configuraciones y actividades de las fuentes radiactivas. Uno de ellos se muestra en la Figura 2.12(f), donde hay dos fuentes radiactivas de 82 μCi cada una; la primera fuente se localiza cerca de la entrada de aerosol y la otra cerca de la salida, ampliando así el espacio de ionización.

Los cargadores de ^{85}Kr , ^{210}Po y ^{241}Am son los más comúnmente usados en la tecnología de aerosoles. [Covert et al. \(1997\)](#) han realizado estudios comparativos de estos dispositivos, estudiando las pérdidas por difusión y eficiencias de cargado en los cargadores de ^{85}Kr de 2 mCi y de ^{210}Po de 0.5 mCi. Recientemente [Ji et al. \(2004\)](#) han caracterizado estos dispositivos cuando se requiere la neutralización de partículas con elevadas cargas iniciales.

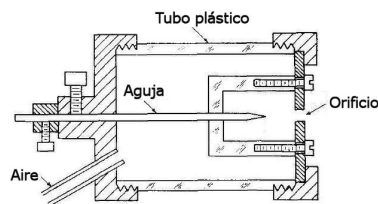
2.4.1.2. Cargadores bipolares corona

[Whitby \(1961\)](#) desarrolló uno de los primeros cargadores corona tipo aguja para la producción de iones en altas concentraciones. Su diseño se muestra en la Figura 2.13(a) y consiste en una aguja metálica y un electrodo plano con un orificio, localizados dentro de una cubierta no conductiva. La aguja se conecta a un potencial de corriente alterna (AC) o corriente continua (DC) lo suficientemente alto para generar una descarga corona. Al aplicar un potencial AC, el ionizador

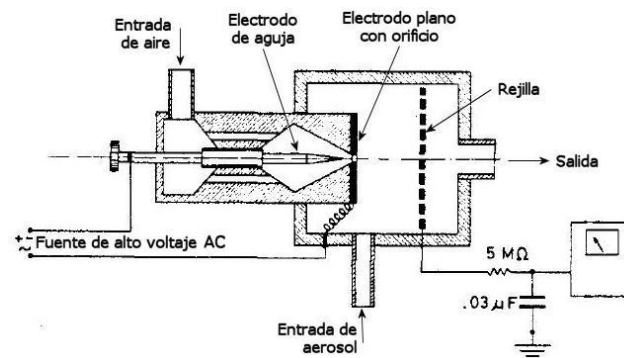
genera iones positivos en la mitad positiva del ciclo y genera iones negativos en la otra mitad, creando una atmósfera bipolar en el interior del dispositivo, mientras que para un potencial DC se generan sólo iones unipolares. Una corriente de aire limpio, junto al orificio sónico, son capaces de forzar a casi todos los iones producidos a pasar través del mismo, obteniendo en la salida una concentración de iones libres del orden de 10^{11} cm^{-3} . Aunque los cargadores tipo aguja comparten muchas similitudes con los cargadores tipo alambre, éstos han sido empleados en instrumentos de medición de aerosoles en menor escala que los cargadores de alambre. Una razón es que los campos eléctricos producidos son generalmente más altos (debido al mayor grosor de la aguja), produciendo mayores pérdidas de partículas. Para reducir este efecto, en algunos cargadores de este tipo, el potencial aplicado sobre la aguja se separa del compartimiento de cargado, como se verá en los próximos diseños.

[Zamorani & Ottobriani \(1978\)](#) realizaron estudios de neutralización de partículas finas de aerosol a través de una descarga corona AC en un dispositivo similar al de Whitby pero incorporando una cámara de cargado aguas abajo del orificio, como se muestra en la Figura 2.13(b). La distancia entre la punta de la aguja y el orificio se puede ajustar dando vuelta al tornillo sobre el cual se sostiene el electrodo central. Los autores utilizaron dos orificios, de 0.26 y 0.65 mm, para evitar una dilución severa de la corriente de aerosol al realizar medidas de la distribución de cargas. Los iones bipolares fueron transportados a la zona de cargado por una corriente de aire a través del orificio y fueron recogidos en una trampa de iones (rejilla conectada a una resistencia).

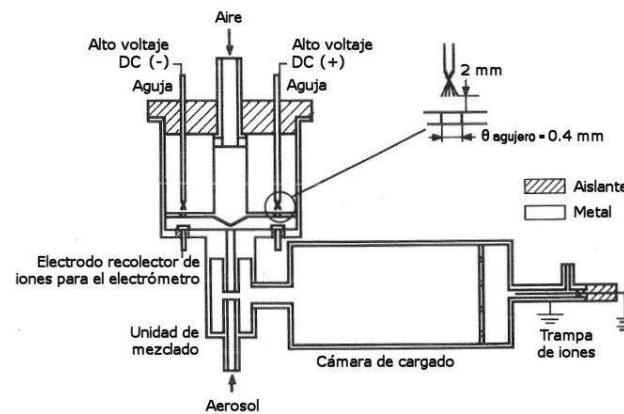
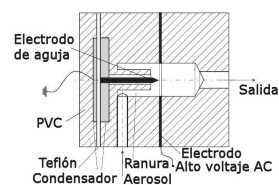
Por su parte, [Adachi *et al.* \(1993\)](#) idearon un neutralizador corona de doble aguja, como se observa en la Figura 2.13(c). Básicamente, el dispositivo consta de tres componentes: una cámara de ionización, una unidad de mezclado de iones y partículas, y una cámara de cargado. La cámara de ionización contiene dos ionizadores unipolares de aguja, similares al cargador propuesto por [Whitby \(1961\)](#) (ver sección de cargadores unipolares 2.4.2.2), para producir iones positivos y negativos, respectivamente. Los ionizadores consisten en una aguja localizada delante de un orificio. En la punta de la aguja, se unen aproximadamente 50 alambres de tungsteno de 0.01 mm de diámetro, los cuales permiten producir una concentra-



(a) Whitby (1961).



(b) Zamorani & Ottobri (1978).

(c) Adachi *et al.* (1993).

(d) Stommel & Riebel (2004).

Figure 2.13: Diferentes diseños de cargadores bipolares corona.

ción estable de iones a voltajes entre 3 y 4 kV. Los iones positivos y negativos generados en cada ionizador se mezclan en un pequeño espacio localizado después de los orificios, para obtener una apropiada atmósfera bipolar. Posteriormente, las partículas de aerosol se juntan con los iones bipolares en la unidad de mezclado, y son cargadas/descargadas eléctricamente por la colisión con los iones bipolares en la cámara de cargado subsiguiente. Como resultado de la ausencia de campo eléctrico en la unidad de mezclado y en la cámara de cargado, las pérdidas de partículas cargadas se reducen al mínimo. Una trampa de iones situada a la salida del dispositivo elimina el exceso de iones que salen de la cámara de cargado, evitando que las partículas puedan recargarse después del neutralizador. Los autores encontraron que la distribución de cargas a la salida de este dispositivo depende de la relación de la corriente eléctrica de iones positivos y iones negativos (I^+/I^-), y que éste valor debe ser igual a la unidad para lograr la distribución de carga de Boltzmann.

Recientemente, [Stommel & Riebel \(2004\)](#) han presentado un cargador para aerosoles submicrométricos, logrando una distribución de carga de equilibrio por medio de una descarga corona AC directamente sobre el aerosol. Como se observa en la Figura 2.13(d), el cargador consiste en dos electrodos y un condensador, acoplados en un soporte de PVC. El electrodo activo, una aguja delgada de acero inoxidable, se conecta con el condensador puesto a tierra, mientras que el electrodo pasivo es un agujero de latón (0.2 mm) encajado en la cubierta de PVC. Los autores utilizaron dos agujas de diámetros diferentes (1 y 3 mm); la aguja más gruesa requiere voltajes más altos para producir la descarga de corona, introduciendo por tanto el efecto del mecanismo de cargado por un campo eléctrico. El condensador consiste en dos placas de metal separadas por un disco del teflón, el cual se puede quitar para permitir un control directo del voltaje del electrodo activo. Conectando el orificio del electrodo pasivo a un voltaje AC y manteniendo el potencial del electrodo activo cerca de cero, la pequeña curvatura de la punta de la aguja permite la producción de una descarga corona. El condensador es cargado por esta descarga, por lo tanto su potencial medio cambia con el tiempo. El voltaje de la aguja se ajusta hasta que la concentración de iones de ambas polaridades sea la misma. Con este dispositivo los autores han logrado alcanzar la misma distribución de cargas que el cargador comercial TSI-3077 para caudales

entre 0.3 y 0.75 l·min⁻¹, y concentraciones de partículas en el orden de 10⁵ a 10⁶ cm⁻³.

2.4.2. Cargadores Unipolares

Los iones unipolares son generados comúnmente por descargas corona de corriente directa (DC), sobre electrodos de diferentes formas (agujas o alambres). También se pueden crear a partir de fuentes radiactivas, pero éstas generan nubes iónicas bipolares; sin embargo, el uso de campos eléctricos apropiados sobre el cargador radiactivo permite la separación de los iones positivos y negativos, haciendo posible la utilización de estos dispositivos en modo unipolar. Una breve revisión de los diferentes diseños reportados se presenta a continuación.

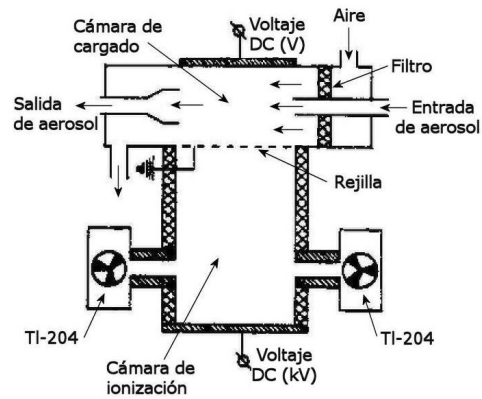
2.4.2.1. Cargadores unipolares radiactivos

[Kirsch & Zagnit'ko \(1981\)](#) realizaron estudios del cargado por difusión de aerosoles submicrométricos con iones unipolares en presencia de vapores de diferentes líquidos. Para ello utilizaron dos cargadores, uno corona tipo Hewitt y otro radiactivo, bajo idénticas condiciones. El cargador radiactivo es por tanto de una geometría similar al cargador Hewitt, en el que se ha sustituido el alambre corona por dos fuentes radiactivas de ²⁰⁴Tl ubicadas en los extremos del cilindro, como se observa en la Figura 2.14(a). El flujo de aerosol es rodeado por una corriente de aire filtrado, fluyendo a su misma velocidad. Los iones son generados por la emisión de partículas β de la fuente de ²⁰⁴Tl, en presencia de un campo eléctrico externo aplicado entre el electrodo inferior y la rejilla conectada a tierra. Los iones de la polaridad opuesta al voltaje aplicado sobre el electrodo inferior se depositaran sobre el mismo, generando una atmósfera iónica unipolar dentro del dispositivo. Un pequeño voltaje es aplicado entre la rejilla y la placa metálica superior, para conducir a los iones no precipitados a la zona de cargado.

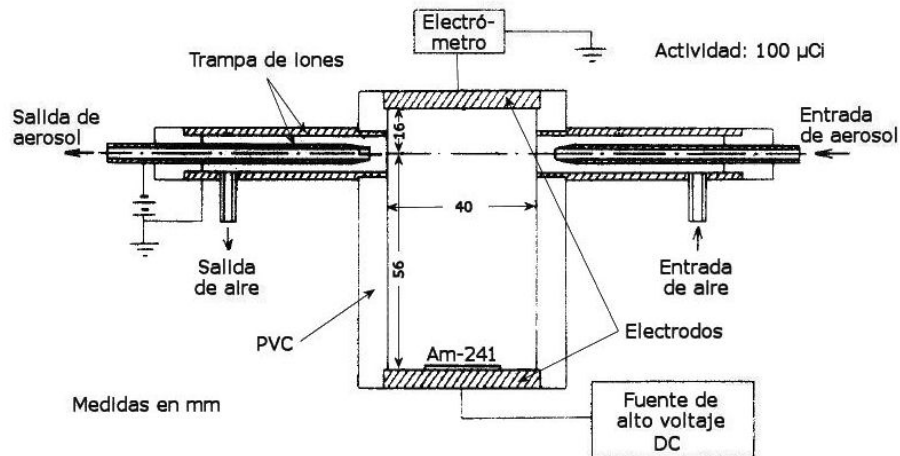
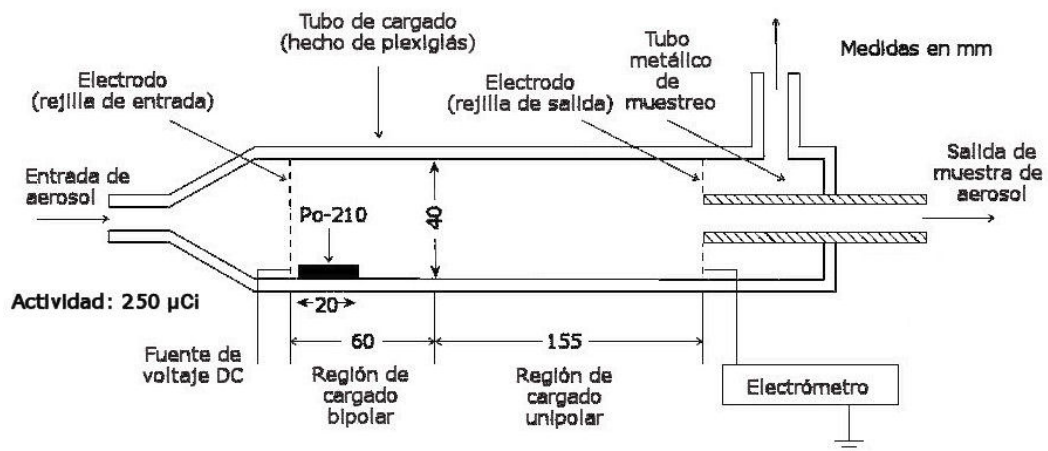
Por su parte [Adachi *et al.* \(1985\)](#) investigaron el cargado por difusión unipolar para partículas ultrafinas utilizando un cargador de ²⁴¹Am (100 μ Ci) en mo-

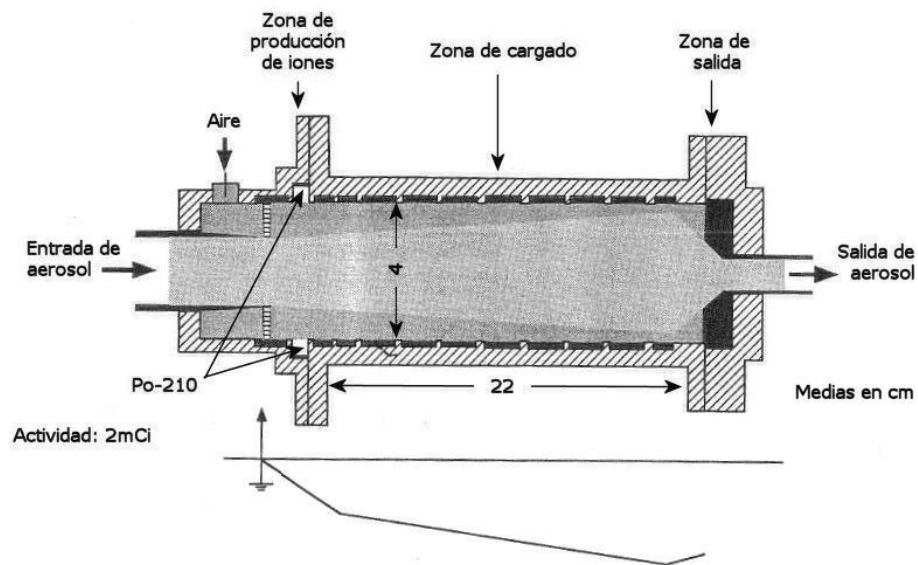
do unipolar. Este cargador, originalmente diseñado por [Takahashi & Kanagawa \(1983\)](#) (referenciado en [Adachi *et al.* \(1985\)](#)), consiste en una cámara plástica de sección rectangular con la fuente radiactiva localizada en el fondo del canal. Las paredes superior e inferior del cargador son metálicas y actúan como electrodos. El electrodo superior se conecta a un electrómetro, mientras que al electrodo inferior (donde está localizada la fuente radiactiva) se le aplica un voltaje DC de 450 ó 900 V. Este débil campo eléctrico aplicado separa los iones positivos y negativos dentro de la cámara de cargado, así, los iones del signo opuesto a la polaridad del voltaje aplicado se depositan sobre el electrodo, y los iones del mismo signo salen del alcance de las partículas α y se mezclan con la corriente de aerosol, en la parte superior del cargador, como se observa en la Figura 2.14(b).

En un trabajo posterior [Adachi *et al.* \(1992\)](#) estudiaron el funcionamiento de un cargador radiactivo de alta eficiencia para partículas entre 10 y 30 nm. El cargador posee dos rejillas metálicas (que actúan como electrodos), localizadas a la entrada y a la salida de un tubo cilíndrico de plexiglás, como muestra la Figura 2.14(c). Cerca de la rejilla de entrada, el cargador contiene una pequeña fuente radiactiva de ^{210}Po con una actividad de 250 μCi . Aplicando un voltaje positivo sobre la rejilla de entrada, y conectando la rejilla de salida a tierra, se establece un campo eléctrico uniforme entre ambas. Los iones negativos son atraídos hacia el electrodo de entrada, mientras que los positivos fluyen hacia el electrodo de salida, llenando de iones unipolares el espacio subsiguiente a la zona de generación de iones. Así el dispositivo presenta dos regiones de cargado: una región bipolar, con una longitud total de 6 cm (2 cm de longitud de la fuente radiactiva + 4 cm del alcance en aire de las partículas α emitidas por el ^{210}Po), y una región unipolar que se extiende hasta la rejilla de salida. Una muestra del aerosol cargado unipolarmente sale a través de un tubo metálico instalado en el centro del electrodo de salida. Este electrodo se conecta a un electrómetro que mide la corriente iónica, dato requerido para el cálculo de la concentración de iones. Los autores han conseguido con este dispositivo una eficiencia de cargado del 50 % para partículas de 10 nm, con un 20 % de pérdidas electrostáticas. Un cargador similar ha sido utilizado por [Romay & Pui \(1992\)](#) para el cargado por electrones libres de partículas ultrafinas.

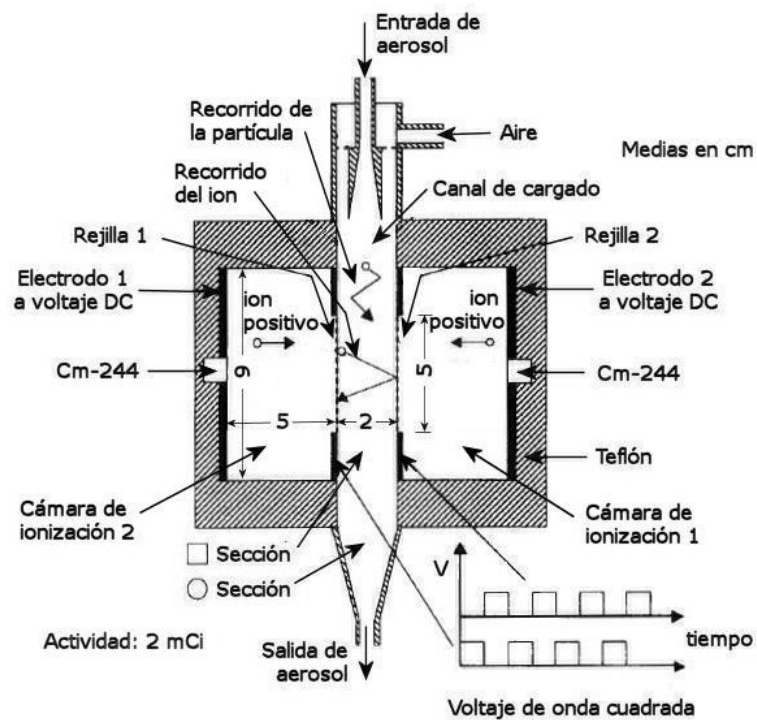


(a) Kirsch & Zagnit'ko (1981).

(b) Adachi *et al.* (1985).(c) Adachi *et al.* (1992).



(d) [Chen & Pui \(1999\)](#).



(e) [Wiedensohler et al. \(1994\)](#).

Figure 2.14: Diferentes diseños de cargadores unipolares radiactivos.

[Wiedensohler *et al.* \(1990, 1994\)](#) han diseñado un dispositivo de cargado unipolar para aerosoles ultrafinos con pérdidas electrostáticas mínimas. El cargador consiste en dos cámaras de generación de iones separadas por dos rejillas que limitan la región de cargado, como se muestra en la Figura 2.14(e). Cada cámara contiene una fuente radiactiva de ^{244}Cm de 2 mCi, localizada a 5 cm de la rejilla que comunica a la zona de cargado. Esta distancia cubre completamente el alcance de las partículas α emitidas por la fuente de ^{244}Cm . En cada cámara de generación se aplica un fuerte campo eléctrico entre el electrodo donde está localizada la fuente y la rejilla correspondiente. Este campo eléctrico separa los iones positivos y negativos y previene que se recombinen. Las rejillas forman un canal rectangular a través del cual pasa el flujo de aerosol, que además es rodeado por una corriente de aire de arrastre. Un voltaje de onda cuadrada se aplica sobre cada

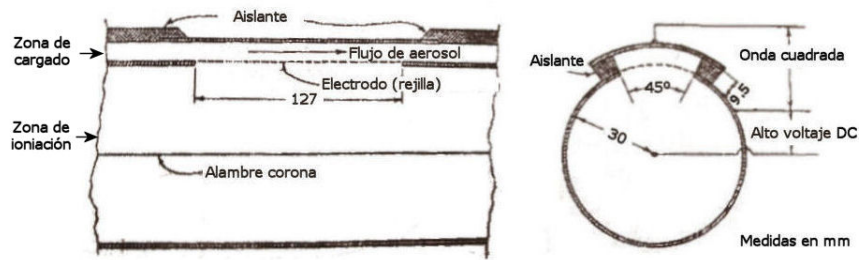
rejilla permitiendo que los iones se muevan de las zonas de generación a la zona de cargado. Los voltajes de onda cuadrada están desfasados, por lo que los iones cargan a las partículas alternativamente desde la cámara izquierda o la derecha. Entonces, las partículas cargadas se mueven bajo la influencia del campo eléctrico alterno, describiendo un movimiento de zig-zag que las mantiene alejadas de los electrodos, evitando así las pérdidas por deposición. Con esta configuración los autores han logrado reducir las pérdidas electrostáticas por debajo de 8.5 % para partículas menores a 7 nm.

2.4.2.2. Cargadores unipolares corona

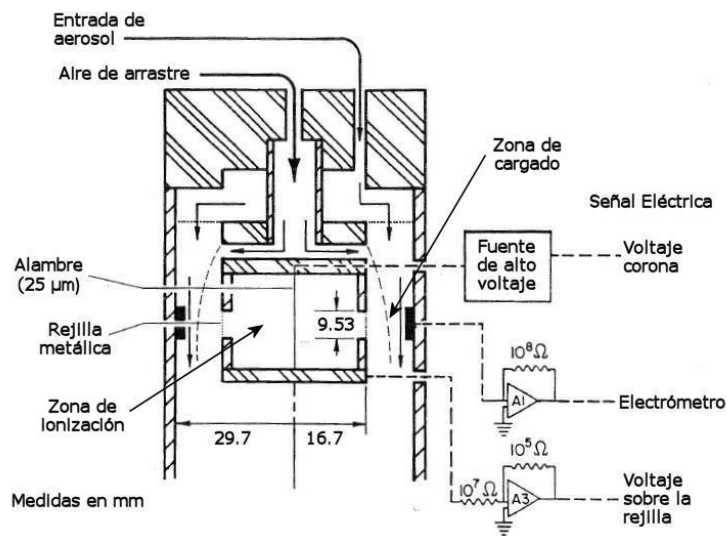
Cargadores corona tipo alambre

[Hewitt \(1957\)](#) fue uno de los primeros en desarrollar e investigar experimentalmente un cargador corona, al estudiar los procesos de cargado en precipitadores electrostáticos. El cargador que Hewitt ideó consiste en un tubo con un alambre concéntrico localizado a lo largo de su eje, sobre el cual se aplica un voltaje corona. El flujo de aerosol se transporta por un pequeño canal unido a la superficie del tubo, donde una rejilla metálica separa la región de cargado de la región de ionización. Sobre la rejilla y el electrodo externo del canal se aplica una diferencia de potencial AC que limita el movimiento transversal de las partículas, evitando así las pérdidas por deposición. El autor ha reportado las condiciones más deseables para los procesos de precipitación electrostática, observando el elevado número de cargas eléctricas obtenidas por partículas de tamaños entre 0.14 y 1.30 μm , para diferentes valores del producto $N_i t$. Al mismo tiempo, [Penney & Lynch \(1957\)](#) investigaron los niveles de cargas obtenidos en un cargador similar al de Hewitt para coronas positivas y negativas. El diagrama del cargador, que luego fue conocido como cargador Hewitt, se ilustra en la Fig 2.15(a).

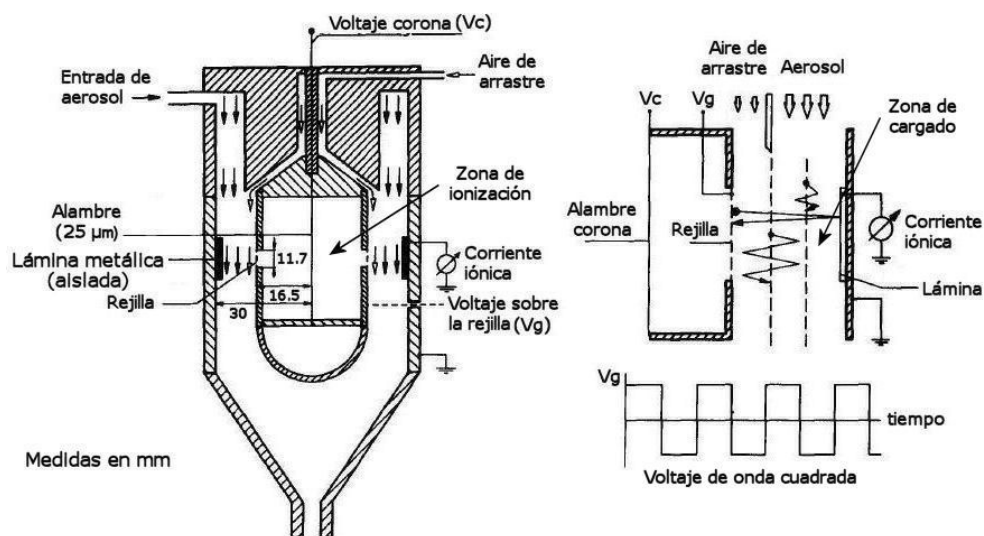
[Whitby & Clark \(1966\)](#) fueron los primeros investigadores en utilizar el cargador Hewitt junto a instrumentos de medición de aerosoles, para aportar cargas eléctricas a las partículas antes de su entrada al clasificador por movilidad eléctrica. Otros investigadores como [Liu et al. \(1967a, 1974\)](#), [Smith et al. \(1978\)](#), [Kirsch](#)

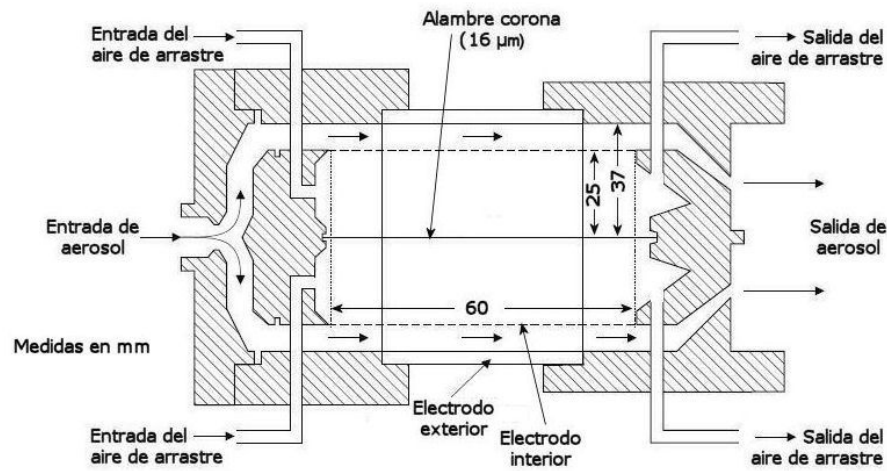


(a) Hewitt (1957).

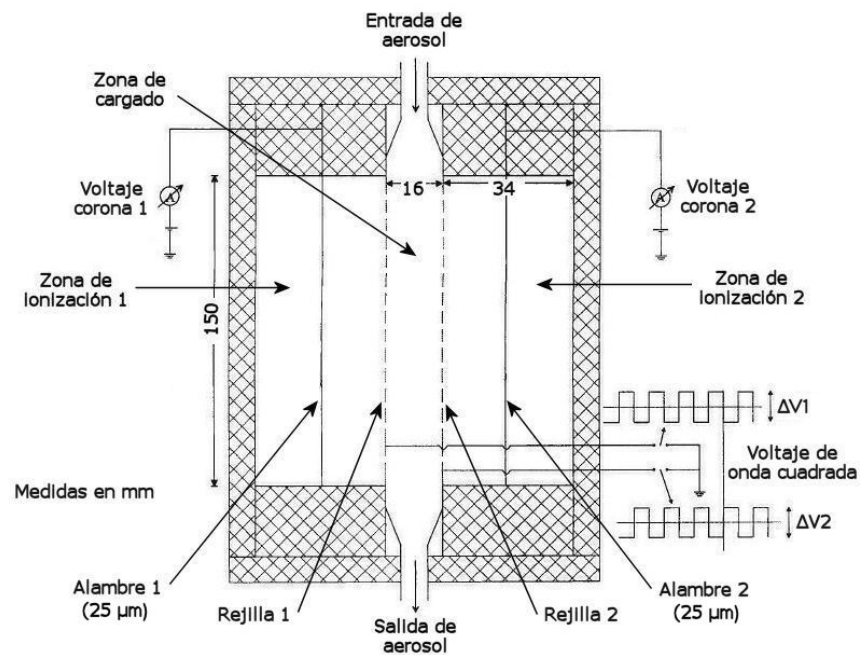


(b) TSI modelo 3030 (EAA).

(c) Büscher & Schmidt-Ott (1990); Büscher *et al.* (1994).



(d) Biskos (2004); Biskos *et al.* (2005a,b).



(e) Kruis & Fissan (2001); Kruis *et al.* (1998).

Figure 2.15: Diferentes diseños de cargadores unipolares corona de alambre.

Büscher & Schmidt-Ott (1990) y Büscher *et al.* (1994) han presentado un cargador por difusión unipolar de onda cuadrada, con una configuración geométrica similar a cargador del TSI-EAA, pero con un rediseño de las tuberías de entrada del aerosol y del aire de arrastre, logrando una alta penetración de partículas y un flujo laminar dentro del cargador. Este cargador fue concebido originalmente para el cargado de partículas ultrafinas (con tamaños por debajo de los 35 nm). Para reducir las pérdidas por deposición de estas partículas tan pequeñas los autores aplicaron un voltaje de onda cuadrada entre los cilindros, con el cual se cambia periódicamente la polaridad del campo eléctrico en el interior del cargador, haciendo que las partículas describan un movimiento de zig-zag que las mantiene alejadas de los electrodos. La Figura 2.15(c) muestra un detalle del área de cargado que ilustra el principio de este cargador. Para explicar las pérdidas de partículas de una manera sistemática, Büscher *et al.* (1994) introdujeron los conceptos de eficiencia de cargado intrínseca y extrínseca; estos valores representan la fracción de partículas que se cargan dentro del dispositivo (eficiencia intrínseca) y la fracción de partículas cargadas que llegan a salir del mismo (eficiencia extrínseca), por lo que su diferencia representa las pérdidas electrostáticas dentro

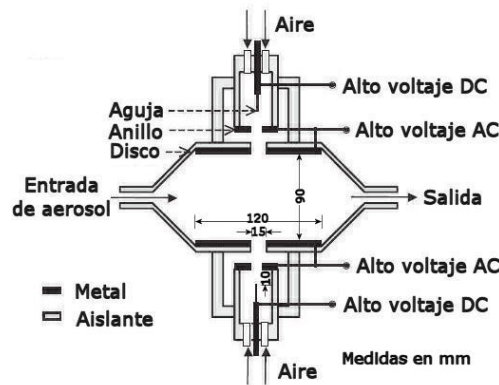
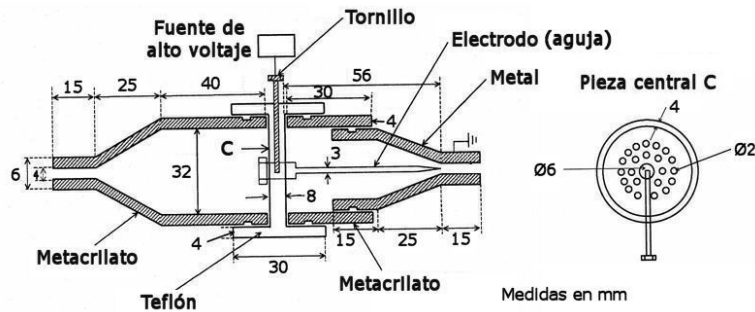
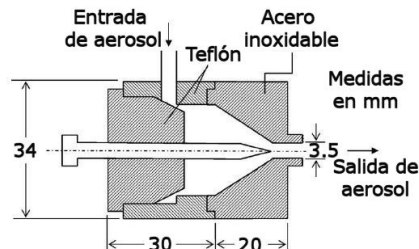
del cargador (en la sección ?? se presentan en detalle estos conceptos). Con este dispositivo los autores han logrado obtener eficiencias de cargado extrínsecas de 82 % y 40 % para partículas de 35 y 15 nm, respectivamente. Cheng *et al.* (1997) han utilizado este tipo de cargador pero adaptado para el cargado electrostático a altos caudales. Recientemente, Biskos (2004) y Biskos *et al.* (2005a,b) han presentado un cargador similar para su aplicación a un espectrómetro de movilidad diferencial a presiones subatmosféricas. En este cargador el voltaje alterno se aplica sobre el electrodo exterior, y el aire de arrastre se hace pasar por la zona de generación de iones, como muestra la Figura 2.15(d).

Por su parte, Kruis *et al.* (1998) y Kruis & Fissan (2001) han presentado un diseño de cargador Hewitt gemelo, donde la zona de cargado es un canal de sección cuadrada que separa dos zonas de descarga corona por medio de dos rejillas metálicas. Las rejillas están conectadas a dos generadores de onda cuadrada con fases opuestas, donde se aplica una diferencia de potencial máxima de 600 V, como muestra la Figura 2.15(e). La longitud de la zona de cargado se puede variar recubriendo parte de las rejillas con hojas de aluminio. Con este dispositivo los autores han logrado obtener una eficiencia de cargado extrínseca de 30 % para partículas de 10nm.

Cargadores corona tipo aguja

Medved *et al.* (2000) desarrollaron un cargador tipo aguja, basado en el modelo original de Whitby (1961), en el cual hay una cámara de cargado central con dos orificios subsónicos que permiten la entrada de dos flujos turbulentos opuestos, uno de los flujos arrastra las partículas de aerosol y el otro los iones empujados por una corriente de aire, los cuales han sido previamente generados por una descarga corona sobre una aguja de platino. El mezclado de los dos flujos turbulentos, combinado con el proceso de difusión, causa un cargado rápido y muy eficiente de las partículas de aerosol. El dispositivo, tal como se muestra en la Figura 2.16(a), se utiliza actualmente en el detector de aerosoles eléctricos de TSI modelo 3070A, denominado EAD (acrónimo de *Electrical Aerosol Detector*).

Marquard *et al.* (2002, 2006a,b) han diseñado un cargador corona de doble aguja, como se muestra en la Figura 2.16(b). El dispositivo consiste en una cámara de

(a) Medved *et al.* (2000).(b) Marquard *et al.* (2002, 2006a,b).(c) Hernández-Sierra *et al.* (2003).

(d) Alguacil & Alonso (2006).

Figure 2.16: Diferentes diseños de cargadores unipolares corona de aguja.

polietileno con dos módulos de generación de iones localizados sobre paredes opuestas, perpendiculares al flujo de aerosol. Cada módulo presenta una aguja donde se produce la descarga corona, así como un anillo y un disco donde se aplica un voltaje alterno que permite establecer diferentes campos eléctricos dentro de la zona de cargado. Los iones son transportados a la zona central a través de dos corrientes de aire humidificado, que pasan a través de los anillos.

[Hernández-Sierra *et al.* \(2003\)](#) han propuesto un nuevo diseño de cargador tipo aguja para partículas nanométricas que, en contraste con los diseños descritos anteriormente, el aerosol entra en contacto directo con el electrodo de descarga. El cargador consiste en un tubo cilíndrico con finales cónicos, dividido en tres secciones: la primera y segunda (de izquierda a derecha en la Figura 2.16(c)) son hechas de metacrilato, y la tercera es hecha de aluminio. Una pieza circular de teflón, localizada entre las dos secciones de metacrilato, contiene una serie de orificios a través de los cuales pasa el flujo de aerosol. Esta pieza central sirve para sostener el electrodo de aguja, coaxialmente con el cilindro externo, a través de una pieza roscada que permite localizar la punta de la aguja al final de la sección cónica de salida o al final de la sección tubular de salida. La cabeza del electrodo se conecta con un tornillo, al que se le aplica un alto voltaje DC, mientras que la sección metálica de salida se conecta a tierra. Con este dispositivo los autores han logrado obtener eficiencias de cargado de 30 % para partículas de 10 nm, a pesar de que las pérdidas por deposición fueron relativamente grandes a voltajes corona altos. Recientemente, [Alguacil & Alonso \(2006\)](#) han investigado el cargado múltiple en partículas menores 35 nm en un cargador de aguja similar al anterior, donde el aerosol también entra en contacto con el electrodo de descarga, ubicado coaxialmente con el cilindro metálico que lo rodea, cuyas paredes internas presentan una forma cónica. La distancia radial entre la punta de la aguja y la pared interior del tubo de salida es 1.75 mm. El aerosol entra al cargador a través de un agujero anular ubicado en la parte superior del dispositivo, como se muestra en la Figura 2.16(d).

Capítulo 3

Submicron Aerosol Chargers

The objective of this chapter is to give a description of the two aerosol chargers under study as well as of the theoretical models of the charging process in both the weak radioactive bipolar charger and the corona unipolar charger designed and characterized in this work. For each charger, the main design features and drawings are provided. The method used to estimate the key charging parameter (N_{it} product) in the charging zone is also given. Finally, the theoretical models employed to describe bipolar and unipolar diffusion charging are covered.

3.1. Weak Radioactive Bipolar Charger

Many tasks in aerosol technology require establishing a well-defined charge distribution on an aerosol. Bipolar chargers are attractive tools for this purpose, because a stationary charge distribution is reached, which does not depend on charging parameters. Bipolar chargers may therefore be considered as self-calibrating. In addition, the ratio of singly to multiply charged particles is rather high, which is desirable in connection with mobility analysis or mobility separation. The Boltzmann equilibrium function has often been used to approximate the charge distribution [[Hinds \(1999\)](#)]. This distribution has a mean charge of zero, and this

is why bipolar chargers are often referred to as neutralizers. More precise models consider the difference in positive and negative ion mobilities and lead to deviations from Boltzmann equilibrium in which one polarity dominates [Gunn (1955), Fuchs (1963), Marlow & Brock (1975b)]. Models considering charger geometry and losses in addition show that the charge distribution obtained is geometry dependent and that it does not acquire a stationary state in a strict sense [Alonso & Alguacil (2003)]. Nevertheless, the approximate steady state makes bipolar chargers useful tools for many applications.

The aerosol is exposed to ions of both polarities in a bipolar charger. Radioactive materials are convenient and reliable ion sources, and they are widely used for aerosol bipolar charging or neutralization purposes. However, regulations on radioactive materials demand classification and restrict handling, transport and use of these materials. In this section, a new bipolar charger concept, which uses a very weak radioactive source, is presented.

3.1.1. Design Features

Figure 3.1 shows a frontal and a lateral view of the low activity radioactive charger. It consists of a central cylinder (60 mm in diameter and 80 mm in length) and two conical ends (60:6 reduction and 15° angle) made of stainless steel. The central piece, where charging takes place, contains three disks ax-symmetrically placed on its periphery. Each disk (25 mm in diameter and 0.5 mm in thickness) is positioned in a holder, which is screwed to the central cylinder. The surface of the disk that faces the volume of the charger, contains a thin layer of radioactive material of ^{241}Am deposited by electro-deposition, with an activity of 3 kBq per disk. Hence, the total activity of the ionizer is 9 kBq (0.24 μCi). This value is inferior to the exemption limit imposed by the current regulation on radiation protection¹, which is 10 kBq for ^{241}Am . In that way, the device is not classified and in contrast to the commercial radioactive ionizers the current regulations do not apply. The ^{241}Am isotope has a half-life of 432.7 y and emits α particles with

¹In Spain the regulation is indicated in the *Real Decreto 1836/1999: Reglamento sobre Instalaciones Nucleares y Radiactivas*.

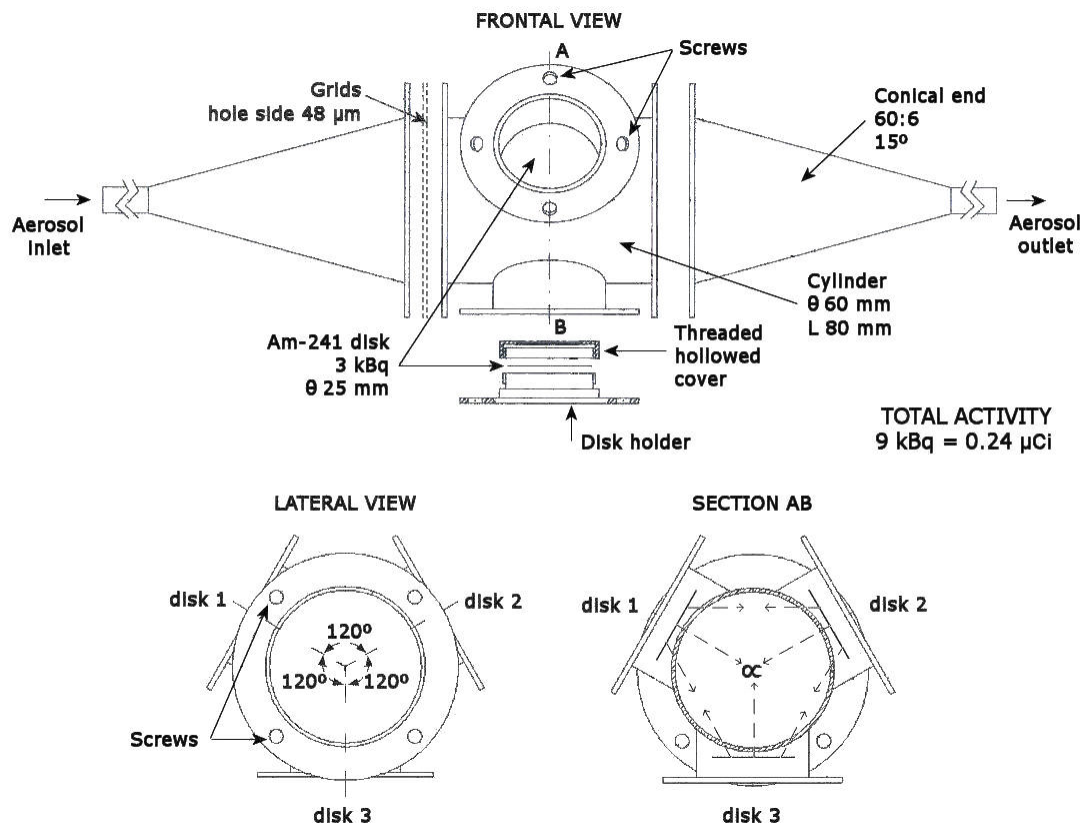


Figure 3.1: Layout of the weak radioactive bipolar charger: frontal view (top) and lateral view (bottom).



Figure 3.2: Picture of the weak radioactive bipolar charger.

Table 3.1: Characteristics of the radioactive sources used in this work.

Radionuclide	^{85}Kr	^{210}Po	^{241}Am
Physical state	gas	solid	solid
Emission	β^-	α	α
Half-life	10.8 years	138.4 days	432.7 years
Energy	0.687 MeV (100%)	4.520 MeV (10 ⁻³⁹ %) 5.305 MeV (100%)	5.443 MeV (12.7%) 5.486 MeV (86%)
Stopping distance (in air)	~ 2 m	~ 4 cm	~ 4 cm
Model	TSI 3077	NUCLECEL TM P-2021	CIEMAT
Geometry	cylinder $\phi = 2.6$ mm, L = 86.0 mm	cylinder $\phi = 4.39$ mm, L = 58.9 mm	disks (3) $\phi = 25$ mm, w = 0.5 mm
Activity	2 mCi (74 MBq)	10 mCi (370 MBq)	0.24 μCi (9 kBq)
Exempt limit	10 kBq 10 ⁵ kBq/kg	10 kBq 1 kBq/kg	10 kBq 1 kBq/kg
Classification	encapsulate no exempt	no encapsulate no exempt	no encapsulate exempt
Risks	irradiation	irradiation contamination	irradiation contamination

a kinetic energy of about 5.5 MeV, which are stopped in a distance of about 4 cm in air. Table 3.1 summarize the characteristics of radioactive materials used in this work, the ^{241}Am source and the ^{85}Kr and ^{210}Po commercial sources used like reference in this work.

The charger includes specific features aimed at maximizing the $N_i t$ product in the charging region. Thus, the dimensions of the central cylinder are in the order of the stopping distance of the α particles, so leading to the highest production of bipolar ions in the volume of the cylinder. Besides, the radioactive sources are placed axi-symmetrically in the periphery of the cylinder (lateral view in Figure

3.1), which favors the uniform distribution of the ions over the cross-section of the cylinder (section AB in Figure 3.1). Also the aerosol particles must spread out uniformly to ensure good mixing of the particles and the ions as well as a uniform distribution of the residence time of the particles in the charging region. For that purpose, two grids with very small squared holes (48 μm in side) were placed at the entrance to the charging region, between the inlet conical part and the central cylinder. The grids were chosen to induce a pressure drop high enough for the flow to spread over the entire cross-section of the cylinder. A picture of the ionizer is shown in Figure 3.2.

3.1.2. Estimation of the $N_i t$ Product

The $N_i t$ product is the product of the ion number concentration in the charging volume of the ionizer and the residence time of the aerosol flow passing through. If the ions distribute uniformly in the active volume of the charger, the concentration of ions of the two polarities $N_i^\pm$ can be obtained by solving the ion balance equations

$$\frac{dN_i^\pm}{dt} = F - \alpha_r N_i^+ N_i^- - \eta^\pm N_i^\pm N_p - \omega_D^\pm N_i^\pm \quad (3.1)$$

where F is the ion production rate, α_r is the ion recombination coefficient ($1.6 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$), $\eta^\pm$ is the ion to particle attachment rate coefficient, $\omega_D^\pm$ is the ion depletion rate by diffusion to the walls, and N_p is the particle number concentration in the gas. In general, $\eta^\pm$ is a complex function of the ion and particle charge, as well as of the particle size, and a number of models have been developed to determine this quantity [Fuchs (1963), Hoppel & Frick (1986), Filippov (1993)]¹. When ion diffusion to walls and attachment of ions to particles are negligible with respect to ion recombination, i.e. $\alpha_r N_i^\pm \gg \eta^\pm N_p, \omega_D^\pm$, equation 3.1 reduces to

$$\frac{dN_i}{dt} = F - \alpha_r N_i^2 \quad (3.2)$$

with $N_i^+ = N_i^- = N_i$; and, in the equilibrium

$$N_i = \sqrt{\frac{F}{\alpha_r}} \quad (3.3)$$

¹The equations to estimate the attachment coefficients are given in section 3.1.3.2.

Theoretically, the ion production rate F can be expressed through the activity of the radioactive source A_o as

$$F = \frac{A_o I_t}{V} \quad (3.4)$$

where I_t is the total number of ions pairs generated by the α particles (total ionization) in the active volume of the ionizer V . Assuming that the α radiation loses all its energy in the volume of the device and that it interacts with the gas molecules causing only ionization events, I_t can be calculated by the equation 2.26, again reproduced here

$$I_t = \frac{P_o}{W} \quad (3.5)$$

where P_o is the initial energy of the α particles and W is the ionization potential of air (35.5 eV).

Experimentally, the ion production rate F can be estimated by means of the measured ion saturation current I_{sat} in the charger, by the expression [[Liu & Pui \(1974c\)](#), [Adachi *et al.* \(1980\)](#)]

$$F = \frac{I_{sat}}{eV} \quad (3.6)$$

where e is the electron charge ($1.602 \cdot 10^{-19}$ C).

On the other hand, the average residence time t of the aerosol in the charging region can be estimated as the quotient of the charging volume V and the aerosol flow rate Q

$$t = \frac{V}{Q} \quad (3.7)$$

Details about how to measure I_{sat} and the experimental and theoretical values of the $N_i t$ product in the weak radioactive charger are given in Section 5.1.1.

3.1.3. Theoretical Modelling of Bipolar Diffusion Charging

The theories on the diffusion of ions to particles depend on the relative size of the particles to the ionic mean free path, or in other words, the transport

regime defined by the ionic Knudsen number K_n ($K_n = 2\lambda_i/d_p$). In the continuum regime ($K_n \ll 1$) diffusion charging is well described by the diffusion-mobility equation [Fuchs (1934), Gunn (1954), Bricard (1949)] and many researchers have experimentally validated it [i.e. Liu & Pui (1977), Kirsch & Zagnit'ko (1981)]. In the free molecular regime ($K_n \gg 1$) and in the transition regime ($K_n \approx 1$), which is the regime of interest in this work, the situation is not so simple and a number of independent theories have been reported in the literature. One approach [Keefe *et al.* (1959)] extends the equilibrium gas kinetic theory to the collision of ions with particles and postulates that the charge distribution follows Boltzmann statistics. Since ion-aerosol interactions are steady-state processes and the Boltzmann law applies only to equilibrium states, the use of the Boltzmann distribution has been criticized [Fuchs (1963)]¹. Another approach to the charging problem is based on the calculation of the steady-state ion flux towards a spherical aerosol particle, which must be determined for each particle charge level; this flux is related to the combination probability of ion with particle (attachment coefficients). Bricard (1962), Fuchs (1963) and Gentry & Brock (1967) have theoretically derived these coefficients under some assumptions. Fuchs theory appears to be the most widely used for particles in the transition regime, since it includes the effect of the electrostatic force on the trajectory of an ion in the vicinity of a particle (image force), which was considered by neither Bricard or Gentry and Brock. Besides, a number of experimental works have supported its validity [e.g. Adachi *et al.* (1985), Pui *et al.* (1988)]. Thus, Fuchs theory will be used here to estimate both bipolar and unipolar (see Section 3.2.3) charging in the two aerosol chargers under study.

In the next sections, the equations that govern bipolar charging of monodisperse and polydisperse aerosol are described. After that, a brief description of the calculation of the attachment coefficients based on the Fuchs' limiting sphere theory is presented (good reviews of it can be found in Wen *et al.* (1984), Adachi *et al.* (1985), Hoppel & Frick (1986), Romay & Pui (1992), Reischl *et al.* (1996) and Biskos *et al.* (2005b)).

¹The Boltzmann distribution, however, is widely used still because it gives nearly the same result as the diffusion-mobility treatment for particle sizes larger of 60 nm. Below this size, the Boltzmann formula increasingly underestimates charging probabilities.

3.1.3.1. Governing equations

The evolution with time of the ion (3.8) and particle (3.9) concentrations in the atmosphere of a bipolar radioactive charger is governed by the population balance equations

$$\frac{dN_i^\pm}{dt} = F - \alpha_r N_i^\pm N_i^\mp + \sum_s \sum_n \eta_{(s,n)}^\pm N_i^\pm N_{p(s,n)} \quad (3.8)$$

$$\begin{aligned} \frac{dN_{p(s,n)}}{dt} = & \eta_{(s,n-1)}^+ N_i^+ N_{p(s,n-1)} - \eta_{(s,n)}^+ N_i^+ N_{p(s,n)} + \\ & + \eta_{(s,n+1)}^- N_i^- N_{p(s,n+1)} - \eta_{(s,n)}^- N_i^- N_{p(s,n)} \end{aligned} \quad (3.9)$$

where $N_i^\pm$ is the concentration of ions of both polarities, $N_{p(s,n)}$ is the concentration of particles in the size class s and charge class n , F is the ion production rate given by equation 3.6, α_r is the ion recombination coefficient ($1.6 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$), and $\eta_{(s,n)}^\pm$ is the ion to particle attachment rate coefficient. It is assumed that ions and particles are well mixed in the atmosphere of the charger. Moreover, ion and particle diffusion to the walls is neglected. Then, the particle concentration and the charge density of the aerosol remain constant, from the inlet to the outlet of the charger, and

$$\sum_s \sum_n N_{p(s,n)} = N_p \quad (3.10)$$

$$N_i^+ - N_i^- + \sum_s \sum_n N_{p(s,n)} = \frac{\rho_o}{e} \quad (3.11)$$

where N_p and ρ_o are, respectively, the total particle concentration and the charge density of the aerosol that enters the charger.

In this work, it has been considered both monodisperse and polydisperse aerosols. In the monodisperse case, the equations above take the simple form

$$\frac{dN_i^\pm}{dt} = F - \alpha_r N_i^\pm N_i^\mp + \sum_n \eta_n^\pm N_i^\pm N_{p,n} \quad (3.12)$$

$$\frac{dN_{p,n}}{dt} = \eta_{n-1}^+ N_i^+ N_{p,n-1} - \eta_n^+ N_i^+ N_{p,n} + \eta_{n+1}^- N_i^- N_{p,n+1} - \eta_n^- N_i^- N_{p,n} \quad (3.13)$$

$$\sum_n N_{p,n} = N_p \quad (3.14)$$

$$N_i^+ - N_i^- + \sum_n N_{p,n} = \frac{\rho_o}{e} \quad (3.15)$$

On the other hand, the particle size distribution of the polydisperse aerosols is assumed to follow a log-normal distribution function [[Hinds \(1999\)](#)]

$$df = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \ln(\sigma_g)} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln(d_p) - \ln(d_g)}{\ln(\sigma_g)} \right)^2 \right] d(\ln(d_p)) \quad (3.16)$$

which gives the fraction of the particles having diameters whose logarithms lie between $\ln(d_p)$ and $\ln(d_p) + d(\ln(d_p))$; d_g and σ_g are, respectively, the geometric mean diameter and the geometric standard deviation of the distribution. Then, the size of the aerosol particles ranges from a minimum diameter $d_{p,min}$ to a maximum diameter $d_{p,max}$, given by

$$\ln(d_{p,min}) = \ln(d_g) - 4\ln(\sigma_g) \quad (3.17)$$

$$\ln(d_{p,max}) = \ln(d_g) + 4\ln(\sigma_g) \quad (3.18)$$

and the particle size range is divided in a finite number of size classes s_{max} , for which an upper diameter $d_{p,s}$, a mean diameter $\overline{d_{p,s}}$ and a particle concentration $N_{p,s}$ are defined, as follows

$$\ln(d_{p,s}) = \ln(d_{p,min}) + \frac{s}{s_{max}} \ln \left(\frac{d_{p,max}}{d_{p,min}} \right) \quad (3.19)$$

$$\ln(\overline{d_{p,s}}) = \ln(d_{p,min}) + \frac{s - \frac{1}{2}}{s_{max}} \ln \left(\frac{d_{p,max}}{d_{p,min}} \right) \quad (3.20)$$

$$N_{p,s} = \frac{N_p}{\sqrt{2\pi} \ln(\sigma_g)} \int_{\ln(d_{p,s-1})}^{\ln(d_{p,s})} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln(d_p) - \ln(d_g)}{\ln(\sigma_g)} \right)^2 \right] d(\ln(d_p)) \quad (3.21)$$

with $s = 1, \dots, s_{max}$.

3.1.3.2. Ion to particle attachment coefficients

The ion to particle attachment coefficients are calculated according to the Fuchs theory [Fuchs (1963)]. This theory assumes that the motion of the ions can be described by the continuum diffusion theory far away from the particle, whereas in the vicinity of the particle, they move in free-molecular regime, without colliding with gas molecules. Then, a limiting sphere concentric with the particle and having a radius in the order of the ion mean free path is defined, and the flux of ions towards the particle is calculated at the limiting sphere according to both the continuum and kinetic theories. By matching the fluxes so obtained, the following expression of the attachment coefficient η is found

$$\eta = \frac{\pi\gamma\delta^2\bar{c}_i \exp\left(-\frac{\phi(\delta)}{kT}\right)}{1 + \frac{\gamma\delta^2\bar{c}_i}{4D_i} \exp\left(-\frac{\phi(\delta)}{kT}\right) \int_{\delta}^{\infty} \frac{1}{\chi^2} \exp\left(\frac{\phi(\chi)}{kT}\right) d\chi} \quad (3.22)$$

where γ is the collision probability (fraction of ions that enter the limiting sphere, collide and transfer their charge to the particle), δ is the radius of the limiting sphere, $\phi(\chi)$ is the electrostatic potential between the particle and the ion, at a distance χ from the centre of the particle, k is the Boltzmann's constant, T is the temperature, and $\bar{c}_i$ and D_i are the mean thermal velocity and the diffusion coefficient of the ions, respectively.

The radius of the limiting sphere δ is obtained from geometric considerations as [Wright (1960)]

$$\delta = \frac{a^3}{\lambda_i^2} \left[\frac{1}{5} \left(1 + \frac{\lambda_i}{a}\right)^5 - \frac{1}{3} \left(1 + \frac{\lambda_i^2}{a^2}\right) \left(1 + \frac{\lambda_i}{a}\right)^3 + \frac{2}{15} \left(1 + \frac{\lambda_i^2}{a^2}\right)^{5/2} \right] \quad (3.23)$$

where a is the radius of the particle and λ_i is the ionic mean free path.

The electrostatic potential energy $\phi(\chi)$ of an ion in the field of the particle is given by

$$\phi(\chi) = \phi_c(\chi) + \phi_i(\chi) = e^2 K_E \left[\pm \frac{|n|}{\chi} - \frac{1}{2} \left(\frac{a^3}{\chi^2(\chi^2 - a^2)} \right) \right] \quad (3.24)$$

where χ is the distance of the ion measured from the center of the particle, e is the electron charge ($1.602 \cdot 10^{-19}$ C), $K_E = \frac{1}{4\pi\epsilon_0}$ is the Coulomb's constant

$(9 \cdot 10^9 \text{ N}\cdot\text{m}^2\cdot\text{C}^{-2})$, and n is the elementary charge units. The first term on the right-hand side of equation 3.24 is the Coulomb potential energy of the ion (± 1) in the electric field of a sphere of charge $q = ne$, and the second term is the self-image potential energy of the ion in presence of a perfectly conducting sphere of radius a . The Coulomb potential can be either attractive or repulsive, depending upon the relative sign of the charges of the ion and the particle, and it is zero for uncharged particles. The self-image potential is always attractive and independent of the particle charge.

The self-image interaction energy of a unit point charge in presence of a sphere of radius a and dielectric constant ϵ has the form [Burko (2002), Messina (2002), Rinke *et al.* (2004)]

$$\phi_i(\chi, \epsilon) = e^2 K_E \left[-\frac{1}{2} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{m(\epsilon - 1)}{m(\epsilon + 1) + 1} \left(\frac{a^{2m+1}}{\chi^{2m+2}} \right) \right] \quad (3.25)$$

from which the self-image interaction energy ϕ_i in equation 3.24 is found in the limit $\epsilon \rightarrow \infty$

$$\phi_i(\chi) = \phi_i(\chi, \epsilon)_{\epsilon \rightarrow \infty} = e^2 K_E \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{a^3}{\chi^2(\chi^2 - a^2)} \right) \right] \quad (3.26)$$

The expression above is considered to be a good approximation for metallic particles. In general, the self-image potential energy for dielectric and metallic spheres are related through the expression

$$\phi_i(\chi, \epsilon) = K(\chi, \epsilon) \phi_i(\chi) \quad (3.27)$$

with

$$K(\chi, \epsilon) = \left(1 - \frac{a^2}{\chi^2} \right) \sum_{m=1}^{\infty} \frac{m(\epsilon - 1)}{m(\epsilon + 1) + 1} \left(\frac{a^2}{\chi^2} \right)^{m-1} \quad (3.28)$$

and introducing the variable $x = a^2/\chi^2$

$$K(x, \epsilon) = \sum_{m=1}^{\infty} \frac{m(\epsilon - 1)}{m(\epsilon + 1) + 1} (x^{m-1} - x^m) = \sum_{j=0}^{\infty} c_j(\epsilon) x^j \quad (3.29)$$

with

$$c_0(\epsilon) = \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2} \quad (3.30)$$

$$c_j(\epsilon) = \frac{(j+1)(\epsilon-1)}{(j+1)(\epsilon+1)+1} - \frac{j(\epsilon-1)}{j(\epsilon+1)+1} \quad \text{for } j > 0 \quad (3.31)$$

at distances much larger than the particle radius, i.e. $x \rightarrow 0$, and at zero order in x

$$K(x, \epsilon)_{x \rightarrow 0} \cong \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2} \quad (3.32)$$

then, substituting equations 3.32 and 3.26 in equation 3.27, the following expression of the self-image potential energy is obtained [Alonso *et al.* (2002)]

$$\phi_i(\chi, \epsilon) = e^2 K_E \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2} \right) \left(\frac{a^3}{\chi^2(\chi^2 - a^2)} \right) \right] \quad (3.33)$$

furthermore, in the limit $\chi \rightarrow \infty$, the self-image potential for metallic particles can be approximated by

$$\phi_i(\chi)_{\chi \rightarrow \infty} \cong e^2 K_E \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{a^3}{\chi^4} \right) \right] \quad (3.34)$$

and equation 3.33 takes the form [Lushnikov & Kulmala (2004)]

$$\phi_i(\chi, \epsilon) = e^2 K_E \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2} \right) \left(\frac{a^3}{\chi^4} \right) \right] \quad (3.35)$$

expression of $\phi_i(\chi, \epsilon)$ that is also obtained by retaining only the first term in 3.25.

In this work, it is used the general form of the self-image potential, equation 3.25, without approximations and with a value of ϵ equal to 6, which is the dielectric constant of the particles of NaCl used in the experiments, as it will be explained in Section 5.1.3. Another difference with respect to the Fuchs model refers to the collision probability γ . Fuchs stated that for attractive ion-particle encounters, the collision probability was equal to unity. In a later revision of the theory of Fuchs by Hoppel & Frick (1986), the authors concluded that the assignment $\gamma = 1$ for attractive events was incorrect, as they found cases in which γ deviated significantly from unity, especially for very small particles, below 20 nm. In this work, the model of Hoppel and Frick is followed to calculate the collision probability for both attractive and repulsive ion-particle encounters. Thus, in the presence of electrical forces γ is calculated from the equation that relates the impact parameter b to the apsidal distance χ [Natanson (1960)]

$$b^2 = \chi^2 \left[1 + \frac{2}{3kT} (\phi(\delta) - \phi(\chi)) \right] \quad (3.36)$$

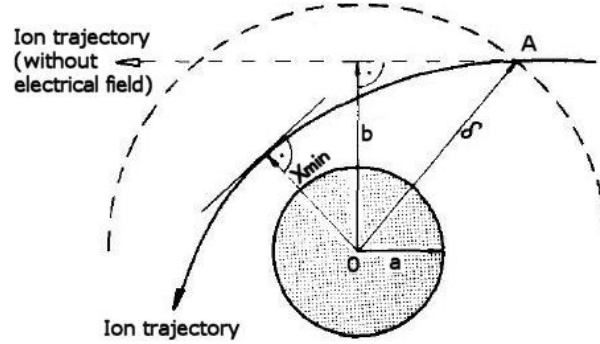


Figure 3.3: Motion of ions inside the limiting sphere (Funchs, 1963).

The minimal apsidal distance χ_{min} must be found between the particle centre 0 and the trajectory of the ion emerging from the point A on the limiting sphere (see Figure 3.3). This minimum apse is found numerically by requiring $db^2/d\chi = 0$ [Keefe *et al.* (1968)]. Thus, the minimal impact parameter b_{min} can be obtained to calculate the collision probability of an ion and a particle of given size and charging state. The fraction of particles that enter the limiting sphere and are captured by the particle is therefore

$$\gamma = \left(\frac{b_{min}}{\delta} \right)^2 \quad (3.37)$$

3.1.3.3. Ion properties

The Fuchs theory, explained in the previous section, requires five ion properties to calculate the attachment coefficients: the electrical mobility Z_i , the mass m_i , the diffusion coefficient D_i , the mean thermal velocity $\bar{c}_i$, and mean free path λ_i . Usually, Z_i and m_i , are measured experimentally and they are used to derive the three others properties. A number of values of Z_i and m_i of air ions have been reported in the literature. These values are listed in Table 3.2 together with the values of D_i , $\bar{c}_i$ and λ_i calculated with equations 3.38, 3.39 and 3.40. The collection of these values shows that they are difficult to determine accurately, because the composition of the ions and their physical properties mainly depend on their age

Table 3.2: Properties of air ions reported by different authors.

Reference	Z_i^+ ($\text{m}^2\cdot\text{V}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$)	Z_i^- ($\text{m}^2\cdot\text{V}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$)	m_i^+ (amu)	m_i^- (amu)	D_i^+ ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$)	D_i^- ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$)	e_i^+ ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)	e_i^- ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)	λ_i^+ (m)	λ_i^- (m)
Hussin <i>et al.</i> , 1983	$1.15\cdot 10^{-4}$	$1.42\cdot 10^{-4}$	140	101	$2.91\cdot 10^{-6}$	$3.59\cdot 10^{-6}$	210.5	247.8	$1.37\cdot 10^{-3}$	$1.64\cdot 10^{-3}$
Wen <i>et al.</i> , 1984	$1.40\cdot 10^{-4}$	$1.90\cdot 10^{-4}$	130	130	$3.54\cdot 10^{-6}$	$4.80\cdot 10^{-6}$	218.4	218.4	$1.66\cdot 10^{-3}$	$2.25\cdot 10^{-3}$
Adachi <i>et al.</i> , 1985 – Voltra <i>et al.</i> , 1969	$1.40\cdot 10^{-4}$	$1.90\cdot 10^{-4}$	109	50	$3.54\cdot 10^{-6}$	$4.80\cdot 10^{-6}$	238.5	352.2	$1.63\cdot 10^{-3}$	$1.98\cdot 10^{-3}$
Adachi <i>et al.</i> , 1985 – Mohlen <i>et al.</i> , 1974 Adachi <i>et al.</i> , 1986	$1.40\cdot 10^{-4}$	$1.90\cdot 10^{-4}$	130	100	$3.54\cdot 10^{-6}$	$4.80\cdot 10^{-6}$	218.4	249.0	$1.66\cdot 10^{-3}$	$2.19\cdot 10^{-3}$
Wiedensolter <i>et al.</i> , 1986	$1.35\cdot 10^{-4}$	$1.60\cdot 10^{-4}$	148	130	$3.41\cdot 10^{-6}$	$4.04\cdot 10^{-6}$	204.8	218.4	$1.62\cdot 10^{-3}$	$1.90\cdot 10^{-3}$
Hoppel & Frick, 1986	$1.20\cdot 10^{-4}$	$1.35\cdot 10^{-4}$	150	90	$3.03\cdot 10^{-6}$	$3.41\cdot 10^{-6}$	203.3	262.5	$1.44\cdot 10^{-3}$	$1.54\cdot 10^{-3}$
Hoppel & Frick, 1990 Raschli <i>et al.</i> , 1996	$1.33\cdot 10^{-4}$	$1.84\cdot 10^{-4}$	200	100	$3.36\cdot 10^{-6}$	$4.65\cdot 10^{-6}$	176.1	249.0	$1.63\cdot 10^{-3}$	$2.13\cdot 10^{-3}$
Wiedensolter & Fissan, 1991	$1.40\cdot 10^{-4}$	$1.60\cdot 10^{-4}$	140	101	$3.54\cdot 10^{-6}$	$4.04\cdot 10^{-6}$	210.5	247.8	$1.67\cdot 10^{-3}$	$1.85\cdot 10^{-3}$
Alonso <i>et al.</i> , 1997 Alonso <i>et al.</i> , 2002	$1.15\cdot 10^{-4}$	$1.65\cdot 10^{-4}$	150	80	$2.91\cdot 10^{-6}$	$4.17\cdot 10^{-6}$	203.3	278.4	$1.38\cdot 10^{-3}$	$1.85\cdot 10^{-3}$
Almagil & Alonso, 2006	$1.1\cdot 10^{-4}$	–	200	–	$2.78\cdot 10^{-6}$	–	176.1	–	$1.35\cdot 10^{-3}$	–

and the nature of the trace compounds present in the air [Reischl *et al.* (1996)]; hence, it is expected that the air ions will change with time and they likely will differ from work to work, as mentioned by Alonso *et al.* (2002).

The ion diffusion coefficient D_i and the electrical mobility Z_i are related through the Stokes-Einstein equation

$$D_i = \frac{kT Z_i}{e} \quad (3.38)$$

while the ionic mean thermal velocity $\bar{c}_i$ is derived from the kinetic theory of the gases

$$\bar{c}_i = \sqrt{\frac{8kT}{\pi m_i}} \quad (3.39)$$

Most works on aerosol diffusion charging [Liu & Pui (1977), Pui *et al.* (1988), Adachi *et al.* (1985), Romay & Pui (1992), Reischl *et al.* (1996)] use the Maxwell-Chapman-Enskog theory to determine the ionic mean free path. According to this theory, λ_i is given by

$$\lambda_i = \frac{8D_i}{3} \sqrt{\frac{1}{\pi kT} \left(\frac{m_i m_g}{m_i + m_g} \right)} \quad (3.40)$$

where m_g is the mass of the gas molecules.

3.1.3.4. Stationary charging

In an atmosphere of bipolar ions, ion depletion occurs by recombination of ions of opposite polarities. When an aerosol enters this atmosphere, ions are removed also by attachment to the particles. The solution of the system of equations 3.12-3.15 has been widely investigated for the particular case in which ion depletion is dominated by ion recombination. Then, the particle balance equations decouple from the ion balance equations, which solution is $N_i^+ = N_i^- = N_i$. By substituting N_i and making equation 3.13 equal zero, a stationary solution is obtained, which is a function of the ion to particle attachment coefficients. Based on the

Table 3.3: Coefficients $a_{i,n}$ of the formula of Wiedensohler (1988) for the steady-state bipolar charge distribution of submicron particles.

$a_{i,n}$	$n = -2$	$n = -1$	$n = 0$	$n = +1$	$n = +2$
a_0	-26.3328	-2.3197	-0.0003	-2.3484	-44.4756
a_1	35.9044	0.6175	-0.1014	0.6044	79.3772
a_2	-21.4608	0.6201	0.3073	0.4800	-62.8900
a_3	7.0867	-0.1105	-0.3372	0.0013	26.4492
a_4	-1.3088	-0.1260	0.1023	-0.1553	-5.7480
a_5	0.1051	0.0297	-0.0105	0.0320	0.5049

Fuchs theory, equation 3.22, these coefficients can be evaluated numerically. The analytical formula of Wiedensohler (1988)

$$f_n = 10^{\{\sum_{i=0}^5 a_{i,n} [\log(d_p)]^i\}} \quad (3.41)$$

reproduces with good accuracy the stationary charge distributions calculated numerically by Fuchs for particles of sizes in the range of 1 nm to 1 μ m and charges 0, ± 1 and ± 2 . In the equation above, f_n is the fraction of particles with n elementary charge units, d_p is the particle diameter in nm, and $a_{i,n}$ is the approximation coefficient given in Table 3.3. For higher charge states, Wiedensohler assumed the expression of Gunn (1956)

$$f_n = \frac{e}{\left(\frac{\pi d_p k T}{K_E}\right)^{1/2}} \exp \left\{ \frac{- \left[n - \frac{d_p k T}{2 K_E e^2} \ln \left(\frac{N_i^+ Z_i^+}{N_i^- Z_i^-} \right) \right]^2}{\frac{d_p k T}{K_E e^2}} \right\} \quad (3.42)$$

with $N_i^+/N_i^- = 1$ and $Z_i^+/Z_i^- = 0.875$.

Equation 3.41 is valid for the following size ranges: $1 \text{ nm} \leq d_p \leq 1000 \text{ nm}$ for $n = -1, 0, 1$ and $20 \text{ nm} \leq d_p \leq 1000 \text{ nm}$ for $n = -2, 2$. Equation 3.42 is valid for $70 \text{ nm} \leq d_p \leq 1000 \text{ nm}$ with triply and higher charged particles. These ranges can be explained because for sizes less than 20 nm, the particles carry, at most, one elementary charge, and for particles smaller than approximately 70 nm, they carry, at most, two elementary charges. Table 3.4 shows the Wiedensohler's values of the charge distribution of bipolarly charged particles.

Table 3.4: Distribution of charges on aerosol particles according to Wiedensohler formulas.

d_p (nm)	f_n (%)											
	< -5	-5	-4	-3	-2	-1	0	+1	+2	+3	+4	+5
1						0.48	99.93	0.45				
10						5.14	91.24	4.11				
20					0.02	10.96	79.31	8.46	0.01			
50					1.14	22.29	58.14	16.96	0.66			
100				0.37	5.61	27.93	42.59	21.38	3.17	0.17		
150			0.13	1.68	9.54	27.90	34.76	21.49	5.53	0.75	0.05	
200		0.05	0.53	3.40	12.11	26.41	29.91	20.43	7.19	1.53	0.18	0.01
250		0.17	1.17	5.07	13.65	24.65	26.55	19.11	8.21	2.27	0.40	0.05
300		0.41	1.96	6.49	14.50	22.98	24.06	17.83	8.78	2.91	0.67	0.11
500	1.40	2.07	5.04	9.80	14.90	18.16	18.18	14.03	8.91	4.40	1.73	0.54
750	3.64	4.28	7.42	11.05	13.72	15.15	14.52	11.56	8.04	4.96	2.55	1.13
1000	5.43	5.84	8.54	11.13	12.61	13.85	12.35	10.39	7.54	5.00	2.93	1.54

3.2. Corona Unipolar Charger

As already mentioned, particle charging is a process of fundamental importance in aerosol technology. Aerosol sizing techniques, i.e. differential mobility analysis (in DMAs), requires previous electrical charging of the particles and the knowledge of their charge distribution, due to the electrical mobility, the property measured in this kind of instruments, which is a function of the charge and the size of the particle (see equation 2.15). Thus, if the charge distribution of the aerosol that enters the DMA is known, the particle size distribution of the aerosol can be determined. In the practice, it is desirable a charge distribution with high fractions of singly charged particles, to carry out a direct conversion between electrical mobility and particle size. In Section 3.1 has been mentioned that radioactive bipolar diffusion chargers are commonly used in connection with mobility analyzers (SMPSs), because a well-defined charge distribution (stationary charge distribution) is reached; besides, the ratio of singly to multiply charged particles is rather high. Corona unipolar diffusion chargers, however, have a more limited application in these sizing instruments, because usually they provide very high

levels of charges; however, they have been used in instruments like the electrical aerosol analyzer (EEA) [[Liu & Pui \(1975\)](#)], and the differential mobility spectrometer (DMS) [[Biskos *et al.* \(2003\)](#)]. In general, the mean number of charges per particle increases with the particle size. Since particles larger than about 20 nm can acquire more than one charge, multiple charges must be reduced in order to simplify the reckoning of size of the particles leaving DMAs. Essentially, the number of charges acquired by a particle of a given size depends on the charging conditions to which aerosol is exposed. The $N_i t$ product represents the key charging parameter and a good estimation of it must be done in order to predict the charging levels of the particles.

Basically, in corona chargers, the $N_i t$ product depends of the strength of the gas ionization source (corona voltage), the design features of the charger (wire or needle electrodes, length of the charging zone), the operation conditions of the charger (internal electric fields to allow the movement of ions), and the aerosol flow rate passing through the charger. In this section, we have adapted an existing corona unipolar diffusion charger which was conceived originally for charging nanoparticles of sizes below 30 nm [[Büscher *et al.* \(1994\)](#)]. Modifications have been introduced in both the design and the operational conditions of the device, which are aimed at reducing multiple charging of submicron particles, mainly in the size range of 50 to 250 nm.

3.2.1. Design Features

The corona unipolar charger used in this work is based on a model by [Büscher *et al.* \(1994\)](#), which was conceived for charging of nanoparticles. In this work, the inner configuration and the operating conditions of the original charger have been modified for charging of submicron particles in the size range of 50 to 250 nm, in order to provide charge distributions with high fractions of singly charged particles.

The charger is a Hewitt type wire corona charger [[Hewitt \(1957\)](#)]. As Figure [3.4](#) shows, it consists of two concentric metallic cylinders ($r_i = 15$ mm and $r_o = 24$

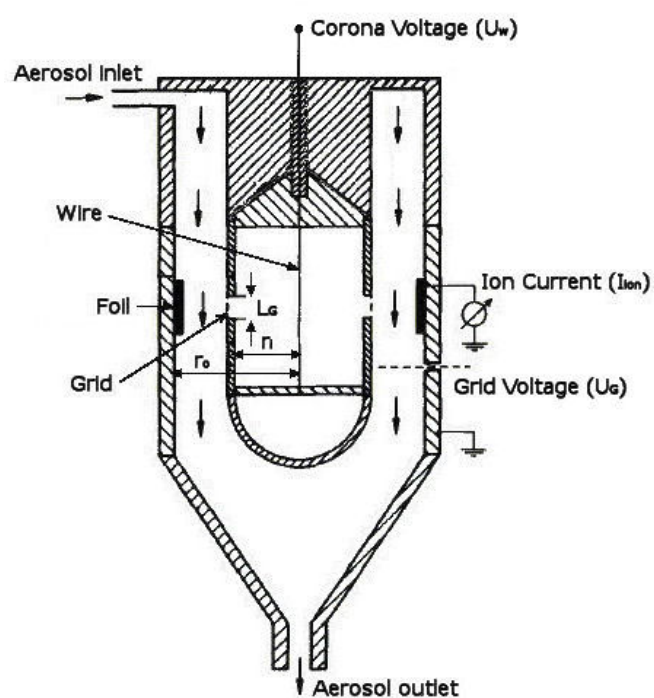


Figure 3.4: Layout of the corona unipolar charger by Büscher et al. (1994).



Figure 3.5: Picture of the corona unipolar charger and internal detail.

mm) with a gold covered tungsten wire ($d_w = 50 \mu\text{m}$) along the axis. The wire is maintained at a positive high voltage U_W to produce a corona discharge and the subsequent generation of ions. The ions migrate toward the inner cylinder due to the high electric field in the discharge zone. The inner electrode is made of a metallic grid in order to allow ions to enter the charging zone, when a positive voltage U_G is applied to it and the outer cylinder is grounded. Aerosol particles flowing in this annular gap region are thus exposed to unipolar positive ions and become electrically charged. In the design by Büscher et al., a particle-free sheath air flow surrounds the inner electrode with the grid and prevents small particles from entering the discharge zone. In addition, a positive-negative square wave voltage is applied between the electrodes in order to reduce losses of ions and small particles due to electrostatic migration toward the wall of the outer electrode.

The charge acquired by a particle of a certain size is determined by the concentration of ions N_i and the residence time t of the particle in the charging region. More specifically, the performance of the charger is a function of the $N_i t$ product. Therefore continuous monitoring of the ion current in the charging zone is necessary, because N_i is approximately proportional to the ion current I_{ion} flowing between the cylinders¹. To measure I_{ion} an insulated foil on the inner side of the outer cylinder, opposite the grid, is connected to an electrometer.

The particles of interest in this work, with sizes between 50 and 250 nm, are relatively large with respect to the nanoparticles used by Büscher et al.; hence the use of the sheath air flow is not necessary. On the other hand, we intend to obtain high fractions of singly charged particles and minor fractions of multiply charged particles, which requires the control of the ion concentration in the charging region. For that purpose, a positive-zero pulse voltage is applied to the grid. This is characterized by two parameters: the pulse amplitude and the duty cycle D , which is defined as the fraction of time during which the voltage operates

$$D = \frac{\tau}{T} \tag{3.43}$$

¹Section 3.2.2 describe the estimation of the $N_i t$ product.

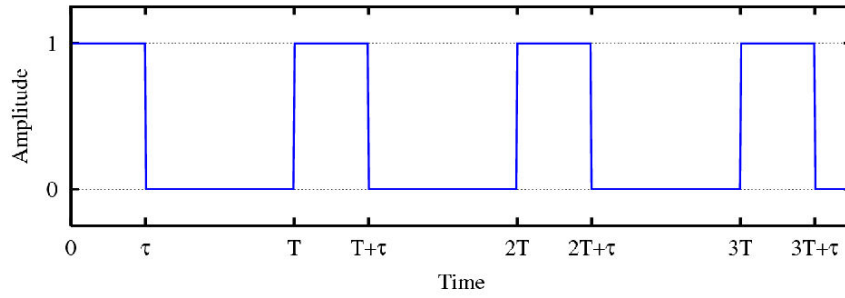


Figure 3.6: Representation of the pulse voltage applied to the inner electrode (grid).

where τ is the pulse duration (when the voltage is non zero), and T is the period of a rectangular waveform, as Figure 3.6 shows.

During the pulse, ions travel from the discharge zone into the charging region, through the grid. Contrarily, when the voltage is zero, ions can not enter the charging zone and they are trapped in the metallic grid. The movement of the ions in the charging region is displayed in Figure 3.7. Ions migrate in the radial direction, from the grid toward the outer electrode, when the pulse operates ($U_G > 0$), and they stop migrating when the pulse does not operate ($U_G = 0$). In both cases, the movement of the ions is affected by the convective flow of the aerosol carrier gas in the axial direction.

3.2.2. Estimation of the $N_i t$ Product

In this section, a method to estimate the $N_i t$ product in the charging region (based on ion current measurements) is described (good reviews of it can be found in Büscher *et al.* (1994), Kruis & Fissan (2001), Biskos *et al.* (2005a)). The charging zone occupies the annular gap region between the cylinders and it has a length equal to the grid length L_G . The ion concentration N_i in the charging zone is a function of the distance r from the cylinder axis. The residence time t depends on r when a velocity profile for stationary laminar flow is assumed. Thus, the spatial distribution of the $N_i t$ product is calculated.

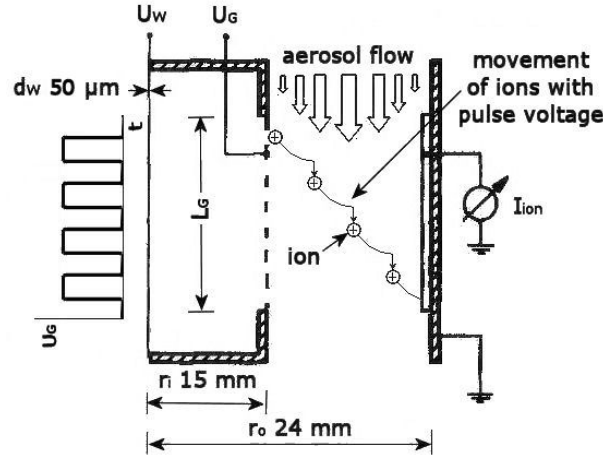


Figure 3.7: Detail of the corona charger to illustrate the movement of ions in the charging region when a positive/zero pulse voltage is applied to the grid.

Based on Maxwell's theory, the electrical field in the charging region can be described by

$$\text{div} \vec{E} = \frac{\rho}{\epsilon_o} \quad (3.44)$$

where $\vec{E}$ is the electric field, ρ is the space charge density, and ϵ_o is the vacuum permittivity. Assuming no axial variations, the equation 3.44 can be expressed in cylindrical coordinates as

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} (rE(r)) = \frac{\rho(r)}{\epsilon_o} \quad (3.45)$$

The space charge ρ defines the ion concentration N_i

$$\rho = eN_i \quad (3.46)$$

and it is related with the ion current density $\vec{j}$ and the ion velocity induced by the electric field $\vec{v}_i$ by

$$\vec{j} = \rho \vec{v}_i \quad (3.47)$$

with

$$j(r) = \frac{I_{ion}}{2\pi r L_G} \quad \text{and} \quad v_i(r) = Z_i E(r) \quad (3.48)$$

where I_{ion} is the measured ion current in a charging length L_G , and Z_i is the electrical mobility of the ions. Introducing 3.48 in 3.47, the space charge density becomes

$$\rho(r) = \frac{I_{ion}}{2\pi r L_G Z_i E(r)} \quad (3.49)$$

Substituting 3.49 into 3.45 and solving, $E(r)$ can be expressed by

$$E(r) = \sqrt{\frac{I_{ion}}{2\pi\epsilon_o L_G Z_i} + \frac{c}{r^2}} \quad (3.50)$$

where c is the integration constant. This equation describes the electric field under space charge conditions¹. The potential difference ΔU between the inner and outer cylinders is equal to the integral of equation 3.50 along the radial distance in the charging region

$$\Delta U = U_G = \int_{r_i}^{r_o} E(r) dr \quad (3.51)$$

for the specific case of our corona charger, U_G is the voltage applied to the grid. Integrating equation 3.51 and assuming $A = \frac{I_{ion}}{2\pi\epsilon_o L_G Z_i}$ to simplify the expressions, the following equations allow determining c , by solving them iteratively for each experimental pair (U_G, I_{ion})

$$U_G = \left| \sqrt{Ar^2 + c} + \sqrt{c} \ln \left(\frac{r\sqrt{A}}{\sqrt{c} + \sqrt{Ar^2 + c}} \right) \right|_{r_i}^{r_o} \quad \text{for } c > 0 \quad (3.52)$$

$$U_G = \left| \sqrt{Ar^2 + c} + \sqrt{-c} \arcsin \left(\frac{1}{r} \sqrt{\frac{-c}{A}} \right) \right|_{r_i}^{r_o} \quad \text{for } c < 0 \quad (3.53)$$

Finally, the ion concentration $N_i(r)$ can be calculated by substituting equation 3.50 in equation 3.49 and the latter in equation 3.46

$$N_i(r) = \frac{I_{ion}}{2\pi e r L_G Z_i E(r)} \quad (3.54)$$

The ion concentration N_i in the charging zone is a function of the distance r from the cylinder axis. Then, the residence time t must be determined in order to

¹If the space charge effect is neglected, the electric field can be determined by equation 2.33, $E(r) = \Delta V / [r \ln(r_o/r_i)]$.

obtain the spatial distribution of the $N_i t$ product. Assuming the velocity profile $v(r)$ for stationary laminar flow between concentric cylinders, $t(r)$ is given by¹

$$t(r) = \frac{L_G}{v(r)} \quad (3.55)$$

At the low operating flow rates used, a parabolic velocity profile develops very quickly downstream of the aerosol inlet. This can be expressed as [Bird *et al.* (1994)]

$$v(r) = \frac{-\Delta p}{4\mu L_G} \left[r_o^2 - r^2 + \left(\frac{r_o^2 - r_i^2}{\ln \frac{r_o}{r_i}} \right) \ln \frac{r_o}{r} \right] \quad (3.56)$$

where μ is the air viscosity, and Δp is the flow pressure drop, which has the form

$$\Delta p = \frac{-8\mu L_G Q}{\pi} \left[\frac{1}{r_o^4 - r_i^4 - \frac{(r_o^2 - r_i^2)^2}{\ln \frac{r_o}{r_i}}} \right] \quad (3.57)$$

whit Q the aerosol flow rate.

The spatial distribution of the $N_i t$ product is obtained by multiplying equations 3.54 and 3.55. Then, the average value of this quantity in the charging region $\overline{N_i(r)t(r)}$ can be obtained by solving numerically the integral

$$\overline{N_i(r)t(r)} = \int_{r_i}^{r_o} 2\pi r N_i(r) t(r) dr \quad (3.58)$$

for given values of the grid voltage U_G , the ion current I_{ion} and the aerosol flow rate Q . Details about how to measure I_{ion} in the corona charger and the values of the average and spatial distribution of the $N_i t$ product are given in Section 5.2.2.

3.2.3. Theoretical Modelling of Unipolar Diffusion Charging

As explained in section 3.1.3, Fuchs' limiting sphere theory is used to estimate the unipolar charge distribution established in the aerosol charger. Therefore, the

¹If the velocity profile is not taken into account, the residence time is given by $t = V/Q = \pi (r_o^2 - r_i^2) L_G / Q$.

calculation of the attachment coefficients (η) and the ions properties (D_i , $\bar{c}_i$ and λ_i) follow the same equations given in section 3.1.3.2 and 3.1.3.3, respectively. The method to estimate the charge distributions is described subsequently.

3.2.3.1. Governing equations

The basic equations of the birth-death model for diffusion charging of particles by unipolar ions can be written as follows [Boisdron & Brock (1970)]

$$\frac{dN_{p,0}}{dt} = -\eta_0 N_i N_{p,0} \quad (3.59)$$

$$\frac{dN_{p,n}}{dt} = \eta_{n-1} N_i N_{p,n-1} - \eta_n N_i N_{p,n} \quad (3.60)$$

where $N_{p,0}$ and $N_{p,n}$ are, respectively, the concentration of uncharged particles and the concentration of particles carrying n elementary charges; and η_0 and η_n are the attachment coefficients of a positive ion to, respectively, an uncharged particle and a particle with n positive elementary charges. The model assumes that ions and particles are uniformly mixed in the charging region and both ion and particle losses onto the walls are neglected.

Biskos *et al.* (2005b) derived an analytical solution of the system of differential equations above, for the particular case in which a population of uncharged monodisperse particles enter the charger, where they are exposed to given $N_i t$ conditions. The solution has the form

$$N_{p,n} = \begin{cases} \exp(-\eta_n N_i t) & \text{for } n = 0 \\ -\sum_{j=0}^{n-1} k_{j,n-1} \left[\frac{\eta_{n-1}}{\eta_j - \eta_n} \right] [\exp(-\eta_j N_i t) - \exp(-\eta_n N_i t)] & \text{for } n \neq 0 \end{cases} \quad (3.61)$$

with

$$k_{j,n} = \begin{cases} 1 & \text{for } j = n = 0 \\ -k_{j,n-1} \left[\frac{\eta_{n-1}}{\eta_j - \eta_n} \right] & \text{for } j < n \\ -\sum_{j=0}^{n-1} k_{j,n} & \text{for } j = n \neq 0 \\ 0 & \text{for } j > n \end{cases} \quad (3.62)$$

In the approach of Biskos *et al.* (2005b), the radial dependence of the $N_i t$ product is not taken into account. Instead, the average value of this quantity in the

charging region $\overline{N_i t}$ is used as a model parameter. It is calculated as described in section 3.2.2, for specific values of the voltage applied to the grid U_G , the concentration of ions in the charging region I_{ion} and the flow rate of the carrier gas Q .

Capítulo 4

Instalación y Métodos Experimentales

En este capítulo se describen la instalación experimental y los métodos usados para caracterizar los cargadores de aerosol bajo estudio. En primer lugar, se describe la instalación experimental utilizada para la generación de aerosoles, tanto polidispersos como monodispersos, así como aerosoles con carga y sin carga. A continuación, se describe el funcionamiento y características principales de los equipos utilizados. Por último, se presentan los procedimientos seguidos para la caracterización de los cargadores, como son los métodos de medida de la eficiencia de cargado y de la distribución de carga.

4.1. Instalación Experimental

Para la caracterización de los cargadores de partículas suelen utilizarse aerosoles con todas las partículas del mismo tamaño (monodispersos) y sin carga, para determinar así la distribución de carga que éstos proporcionan para un tamaño de partícula específico. Sin embargo, en aplicaciones reales, los aerosoles suelen contener partículas de un amplio rango de tamaños (polidispersos) y habitualmente

las partículas están cargadas. Así, la caracterización de los cargadores objeto de estudio en esta tesis, incluye también el estudio sobre aerosoles que presentan una carga pre-existente (para el caso del cargador bipolar radiactivo), así como aerosoles polidispersos.

La Figura 4.1 muestra la instalación experimental utilizada para investigar el funcionamiento del cargador bipolar radiactivo de baja actividad y del cargador unipolar corona. En el esquema se pueden observar los siguientes componentes principales:

- Las muestras de aerosol polidisperso utilizadas en todos los experimentos se generaron por ATOMIZACIÓN de una solución acuosa de cloruro de sodio. El aerosol así generado pasa a través de un DESECADOR por difusión, para eliminar la humedad. En general, las partículas de aerosol generadas por este método (camino 1 de la Figura 4.1) presentan altos niveles de carga.
 - Las muestras de aerosol monodisperso se obtienen al pasar el flujo de aerosol polidisperso a través de un CLASIFICADOR ELECTROSTÁTICO (EC) (camino 2 de la Figura 4.1). En particular, la muestra de aerosol proveniente del desecador pasa en primer lugar a través de un neutralizador de ^{85}Kr , en el que las partículas adquieren una distribución de carga conocida. Luego, el aerosol pasa a través de un clasificador de partículas por movilidad eléctrica (DMA1), el cual selecciona partículas de una determinada movilidad, función del voltaje aplicado. El aerosol monodisperso generado por este método presenta partículas con carga unidad (+1).
 - El aerosol polidisperso o monodisperso generado por los métodos anteriores toma alternativamente uno de los caminos 3 ó 4 de la Figura 4.1. Por el camino 3, el aerosol es NEUTRALIZADO en un ionizador radiactivo de ^{241}Am . La fracción de partículas cargadas a la salida del neutralizador es removida de la corriente por medio de un PRECIPITADOR ELECTROSTÁTICO (ESP1) logrando así la generación de un aerosol sin carga. Por el camino 4, el aerosol mantiene las cargas pre-existentes mencionadas anteriormente.
-

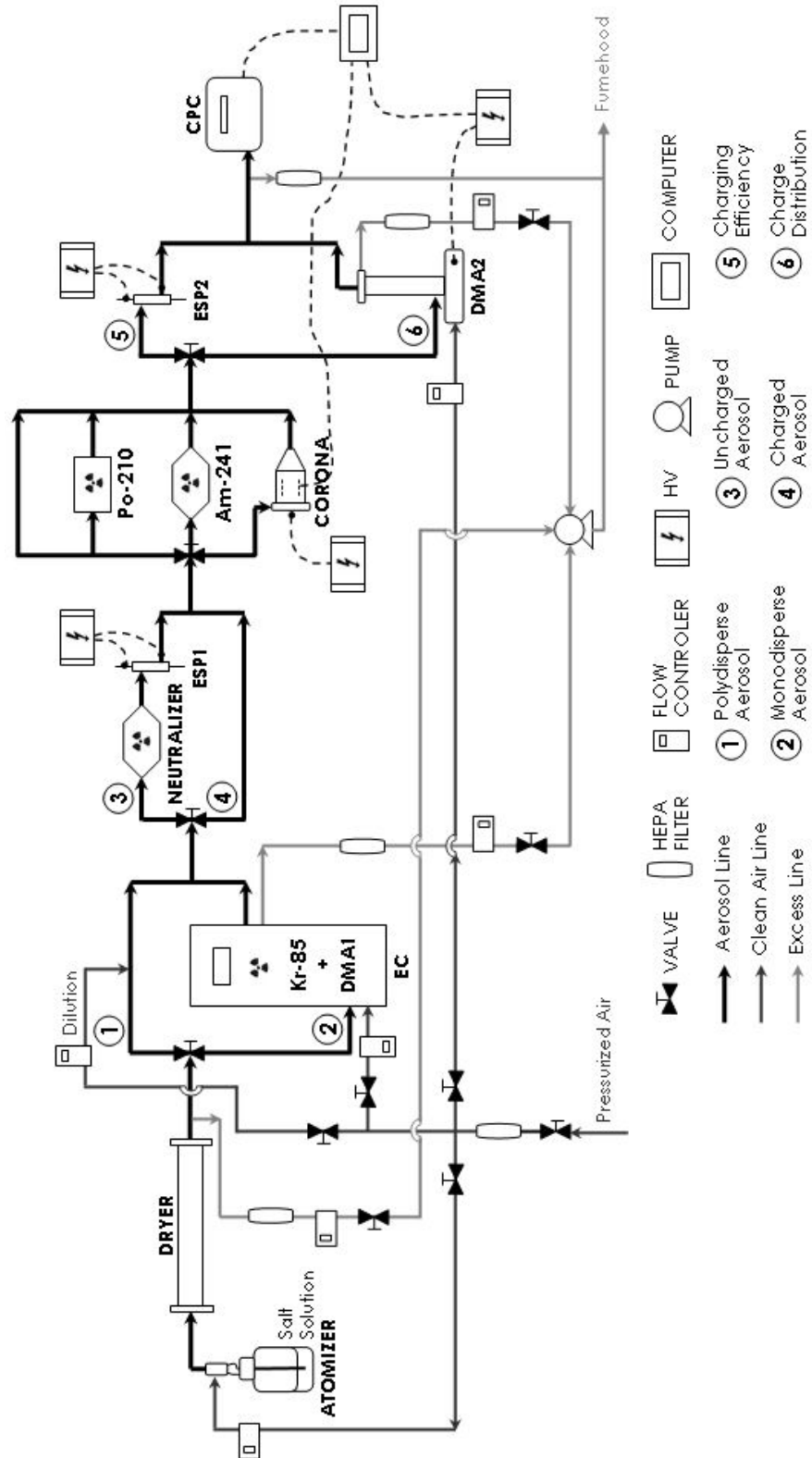


Figure 4.1: Instalación experimental empleada para la caracterización de los cargadores de partículas.

- En este punto, el aerosol pasa alternativamente a través de uno de los CARGADORES bajo estudio (cargador de ^{241}Am y cargador corona) o a través de uno de los cargadores comerciales de referencia (cargador de ^{210}Po de 10 mCi y cargador de ^{85}Kr de 2 mCi. Este último fue utilizado sólo en el caso de aerosoles polidispersos, por disponer de sólo una unidad en el momento de realizar los ensayos experimentales). A la salida de los cargadores, el aerosol posee la distribución de carga característica de cada ionizador.

- La caracterización de los cargadores incluye la medida de la EFICIENCIA DE CARGADO (camino 5) y de la DISTRIBUCIÓN DE CARGA (camino 6). Para medir la eficiencia de cargado, las partículas cargadas son removidas de la corriente por un segundo precipitador electrostático (ESP2). Tanto la concentración de partículas sin carga como la concentración total de partículas en el aerosol se miden con un CONTADOR DE NÚCLEOS DE CONDENSACIÓN (CPC), al aplicar o no un voltaje sobre el ESP2. Finalmente, la distribución de carga de las partículas del aerosol a la salida de los cargadores se mide con un segundo DMA (DMA2) seguido del CPC.

La instalación experimental se complementa con un sistema de control y adquisición de datos instalado en un ordenador. El programa ha sido desarrollado en el CIEMAT y está basado en el software comercial LabVIEW 6.1. Con este sistema se controla la fuente de alto voltaje utilizada para hacer los barridos en el DMA2. El usuario especifica los valores mínimo y máximo del intervalo de voltajes que se desea barrer, el incremento (razón geométrica) del voltaje y el tiempo de espera antes de que comiencen a contarse los valores de la concentración numérica de partículas en el gas que mide el CPC, que son también registradas por el programa. El número de valores y el intervalo de tiempo (frecuencia) entre medidas consecutivas son especificados por el usuario. El programa calcula también el valor medio y la dispersión de estas medidas. Las variables anteriores, voltaje aplicado al DMA y valor medio de la concentración numérica de partículas, se representan gráficamente y son almacenados en ficheros de datos.

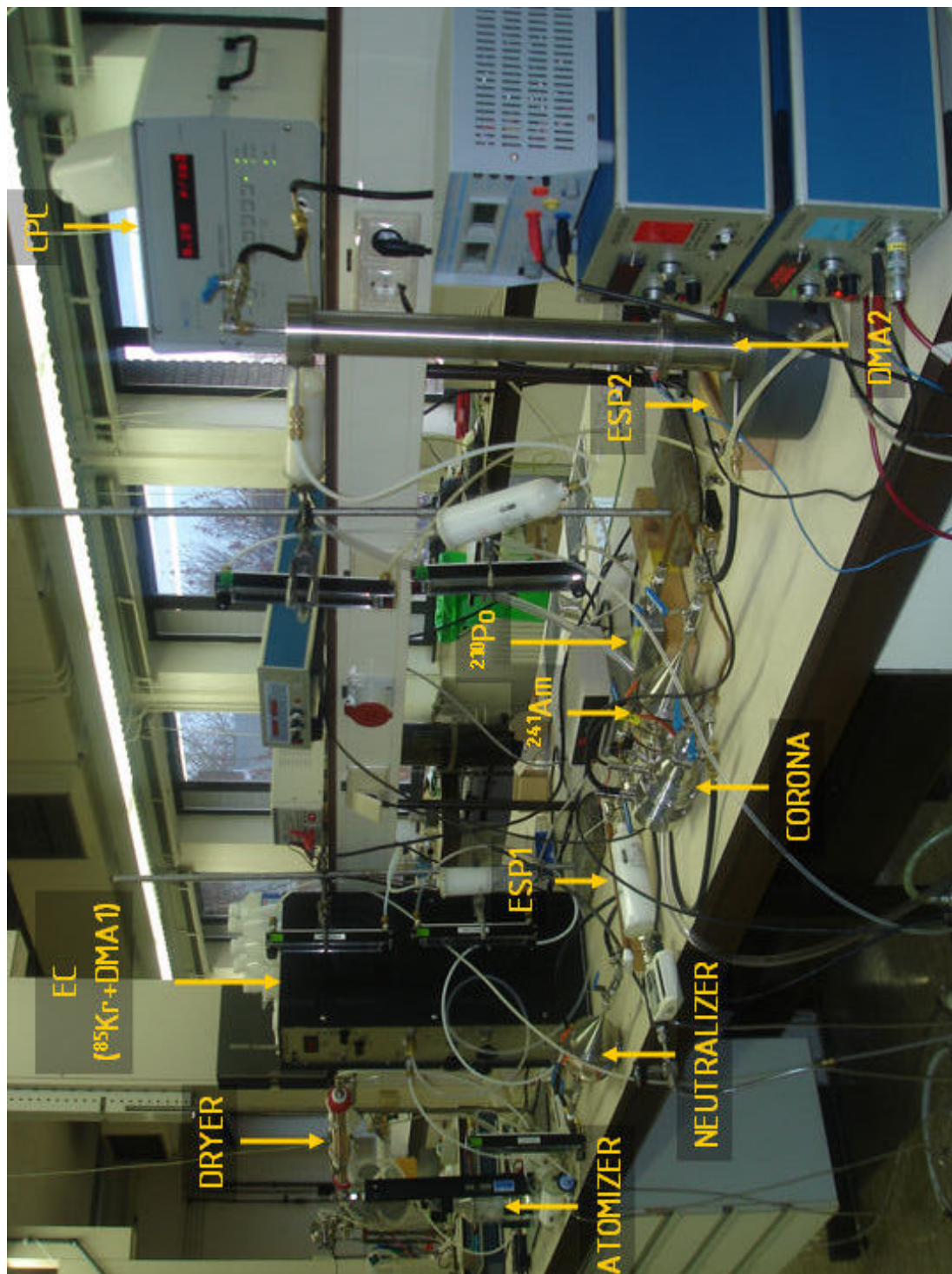


Figure 4.2: Fotografía de la instalación experimental.

Los ensayos experimentales fueron realizados en el Laboratorio de Tecnología de Partículas de Delft University of Technology. La fotografía de la Figura 4.2 muestra una vista del banco experimental instalado para la validación de los cargadores. En ella se especifican los componentes mencionados anteriormente, los cuales se describen brevemente a continuación.

4.1.1. Atomizador

Un atomizador es un nebulizador neumático capaz de generar aerosoles polidispersos en el rango submicrométrico. En los ensayos experimentales se utilizó el atomizador de salida constante de TSI modelo 3076 (Figura 4.3). La sección de atomización de este dispositivo puede verse detallada en la Figura 4.4, donde una corriente de aire comprimido se expande a través de un orificio para formar un chorro de alta velocidad. La solución o suspensión, depositada en un contenedor de vidrio, se introduce en la sección de atomización a través de un conducto vertical y entonces es atomizada por el chorro. Las gotas grandes se remueven por impactación sobre la pared opuesta al chorro y el líquido en exceso se descarga al reservorio de líquido. Las gotas más finas (aerosol húmedo) dejan el atomizador a través de un conducto hacia el tope. El tamaño medio de partícula del aerosol generado en este dispositivo se puede variar entre 20 y 300 nm.

El dispositivo se puede utilizar en dos modos diferentes, con recirculación o sin ésta. En el modo con recirculación (recomendado para soluciones a base de agua), el líquido se toma de la botella de vidrio y el exceso se descarga dentro del mismo contenedor; mientras que en el modo sin recirculación (recomendado para solventes volátiles), el exceso se descarga dentro de un contenedor separado.

En general, las propiedades del aerosol polidisperso (concentración numérica y distribución de tamaños de las partículas) generado con este método dependen de las condiciones de operación del atomizador (presión de entrada y caudal del aire de arrastre), y de la composición química y concentración de la solución o suspensión utilizada. En los ensayos experimentales se generaron aerosoles a partir de soluciones acuosas de una sal inorgánica (cloruro de sodio), con concentraciones

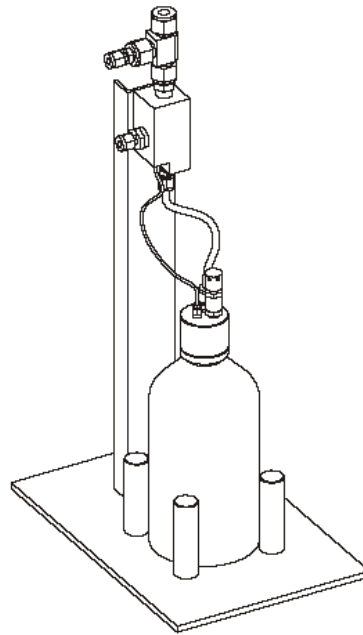


Figure 4.3: Atomizador de salida constante (TSI 3076).

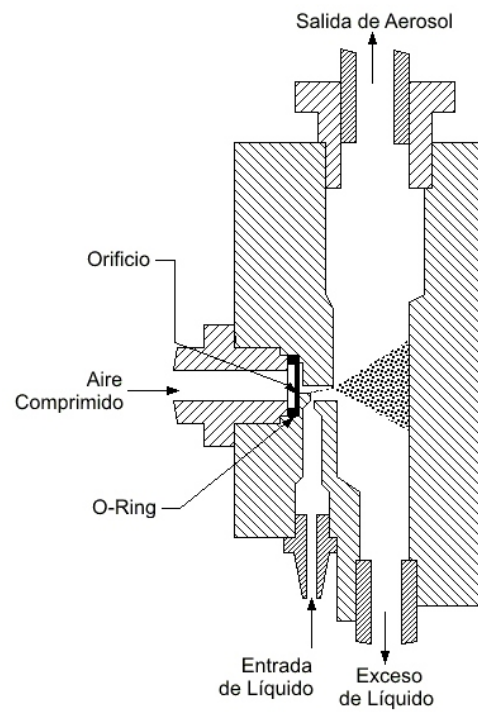


Figure 4.4: Principio de operación del atomizador comercial de TSI.

de 0.01, 0.1 y 1 % peso/volumen. La presión de atomización fue 2.5 bar. El caudal de aire de arrastre, ajustado con un controlador de flujo, fue de $2.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$.

4.1.2. Desecador

Un desecador es un dispositivo utilizado para eliminar, por difusión, la humedad de una corriente. En los ensayos experimentales la corriente a secar está constituida el aerosol que sale del atomizador, el cual está compuesto por una corriente de aire que arrastra gotitas de agua que contienen las partículas de soluto (sal). Consta básicamente de dos cilindros concéntricos, el cilindro interior es una malla metálica de acero inoxidable y el cilindro exterior es un tubo de vidrio o metacrilato que constituye la carcasa del desecador. El espacio anular entre los dos cilindros está relleno de un material absorbente (gel de sílice), que mantiene una atmósfera seca en el conducto interior del desecador (Figura 4.5). A su paso a través del cilindro interior, las gotitas van progresivamente perdiendo agua por difusión hacia la región anular con el material absorbente. Si el cilindro es suficientemente largo, las gotas se secan completamente, quedando suspendidas en la corriente de aire las partículas de soluto totalmente secas.

El estado del gel de sílice se debe examinar con cierta frecuencia, controlando que siga en condiciones activas. Cuando el material absorbente se encuentra con exceso de humedad, determinado por un cambio en el color, se introduce unas horas en un horno a 120°C .

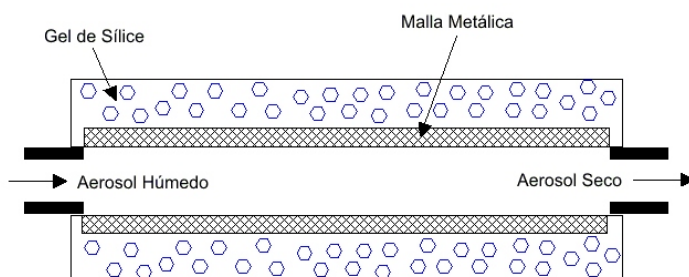


Figure 4.5: Desecador de partículas por difusión.

4.1.3. Clasificador Electrostático

Un clasificador electrostático es un dispositivo que se utiliza para la generación, medida o muestreo de aerosoles. Introduciéndole un aerosol polidisperso, electrostáticamente cargado o sin carga, el instrumento puede generar un aerosol monodisperso de tamaño conocido, o un aerosol polidisperso con una distribución de tamaños conocida. En los ensayos experimentales se utilizó el clasificador electrostático de TSI modelo 3071 (Figura 4.6), que consiste principalmente de un cargador bipolar radiactivo, también llamado neutralizador (ver sección 4.1.4), seguido de un DMA (ver sección 4.1.5). El cargador consiste en una fuente de ^{85}Kr que produce iones bipolares, proporcionando una distribución de carga estacionaria al aerosol. Las partículas cargadas son clasificadas por el DMA, determinado su movilidad eléctrica.

El clasificador electrostático, operado a un voltaje fijo y en conjunto con un CPC, genera aerosoles monodispersos de concentración conocida, en un amplio rango de tamaños, desde 10 nm hasta 1000 nm. Las partículas a la salida del dispositivo son entonces del mismo tamaño y con carga unidad (+1). Es importante hacer notar que las partículas monodispersas producidas por este método, son separadas de acuerdo al diametro equivalente de movilidad eléctrica, y no al tamaño de partícula físico. Por lo tanto, aparte de las partículas cargadas con carga unidad asociadas a un tamaño específico, las muestras monodispersas también incluyen partículas más grandes que poseen más de una carga elemental. La importancia de este efecto aumenta con el tamaño de partícula, pudiendo despreciarse para partículas por debajo de los 100 nm.

Por otro lado, haciendo un barrido a diferentes voltajes, es posible medir la distribución de tamaños de partículas de un aerosol polidisperso. Conociendo la distribución de carga proporcionada a las partículas de aerosol con el cargador bipolar y con un procesamiento apropiado de los datos, el dispositivo puede medir exactamente las distribuciones de tamaños de partículas desde 5 nm hasta 1000 nm. Para hacer uso de esta aplicación debe instalarse el software de TSI Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS), y utilizarlo en conjunto con un CPC.



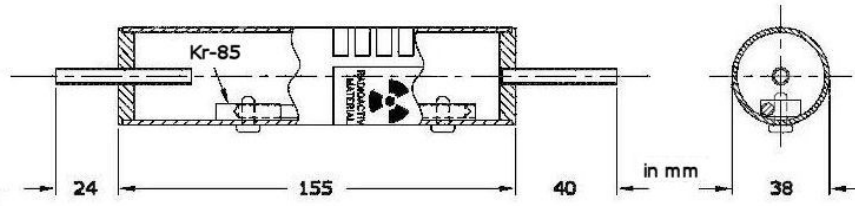
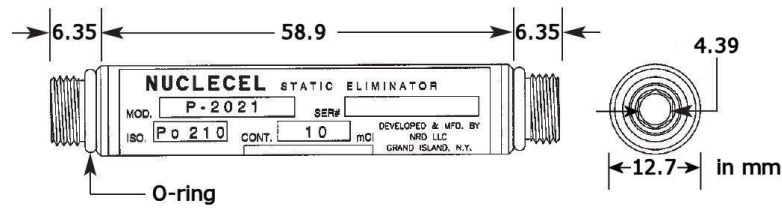
Figure 4.6: Clasificador electrostático (TSI 3071).

4.1.4. Neutralizador Radiactivo

El principio de operación de un neutralizador radiactivo ha sido explicado en las secciones 2.3.1 y 2.4. En los ensayos experimentales se utilizaron tres tipos de ionizadores radiactivos:

- El ionizador comercial de TSI modelo 3077, el cual contiene una fuente radiactiva de ^{85}Kr de 2 mCi de actividad (Figura 4.7). Este ionizador forma parte del clasificador electrostático TSI 3071 referido en la sección anterior.
- El ionizador comercial de NUCLECEL modelo P-2021, el cual contiene una fuente de ^{210}Po de 10 mCi (Figura 4.8). Al momento de realizar los ensayos experimentales, la actividad de este ionizador había decaído hasta 0.63 mCi.
- Un ionizador de ^{241}Am de 0.24 μCi , de las mismas características del cargador radioactivo bajo estudio (Figura 3.1).

Las partículas de aerosol, al pasar a través de los neutralizadores, adquieren una distribución de carga estacionaria. En el caso del neutralizador de TSI, los fabricantes han utilizado el modelo propuesto por Wiedensohler (1988) (ecuaciones 3.41 y 3.42) para predecir la distribución de carga adquirida en el mismo.

Figure 4.7: Neutralizador de ^{85}Kr de 2 mCi (TSI 3077).Figure 4.8: Neutralizador de ^{210}Po de 10 mCi (NUCLECEL P-2021).

4.1.5. Analizador de Movilidad Eléctrica

Un analizador de movilidad eléctrica (DMA) es un dispositivo que clasifica partículas cargadas, basándose en la capacidad de éstas para migrar en un campo eléctrico. La Figura 4.9 ilustra esquemáticamente el funcionamiento de un DMA. Éste consta de dos cilindros metálicos concéntricos que actúan como electrodos, entre los que se aplica una diferencia de potencial que genera un campo eléctrico radial en el interior del instrumento. En la parte inferior del dispositivo hay un filtro por el cual pasa el aire de arrastre Q_s , fluyendo axialmente entre los electrodos. El aerosol que se desea clasificar, polidisperso y previamente cargado Q_i , entra en el DMA a través de una ranura que presenta el cilindro exterior. Tras la ranura, el aerosol se mezcla con la corriente de aire limpio y las partículas se ven arrastradas por dicho gas, moviéndose todas con él en dirección axial y, aproximadamente, a su misma velocidad. El campo eléctrico establecido entre los electrodos empuja a las partículas (que están cargadas) en dirección radial hacia el electrodo interior, con una fuerza proporcional a su movilidad eléctrica. De esta forma, las partículas describirán diferentes trayectorias (parabólicas), bajo la acción de la fuerza del gas de arrastre (axial) y la fuerza eléctrica (radial). La curvatura de las trayectorias depende de la movilidad eléctrica de la partícula. Sólo las partículas

cuya movilidad eléctrica se encuentra en un estrecho intervalo, en torno a un valor determinado por el potencial aplicado, son clasificadas y salen del DMA a través de una ranura presente en el electrodo interior, arrastradas por un caudal de aire prefijado Q_o . El exceso de aire Q_e arrastra consigo las partículas no seleccionadas por el DMA, que abandonan éste por su parte superior. En el caso de que la carga eléctrica transportada por cada partícula sea la misma, el aerosol extraído será un aerosol monodisperso.

[Knutson & Whitby \(1975a,b\)](#) estudiaron la dinámica de las partículas en el interior de un DMA de electrodos cilíndricos, y derivaron la siguiente relación entre la movilidad eléctrica crítica Z^* de las partículas que alcanzan la ranura de salida y son, por tanto, clasificadas por el DMA, el caudal del gas de arrastre Q_s , el voltaje aplicado U y el parámetro geométrico Λ del DMA

$$Z^* = \frac{Q_s}{2\pi\Lambda U} \quad (4.1)$$

con

$$\Lambda = \frac{L}{\ln\left(\frac{r_o}{r_i}\right)} \quad (4.2)$$

donde L es longitud de la zona de clasificación, y r_i y r_o son los radios de los electrodos interno y externo, respectivamente. En los ensayos experimentales se utilizaron los DMAs bala corta ($L = 11.6$ cm) y bala larga ($L = 37.5$ cm) de TSI (modelos 3081 y 3085). En ambos DMAs, $r_i = 0.935$ cm y $r_o = 1.96$ cm.

Para evaluar la respuesta de un DMA, se utiliza el concepto de función de transferencia. Ésta se define como la probabilidad de que una partícula de movilidad Z que entra en la región de clasificación a través de uno de los electrodos alcance un punto situado aguas abajo a una distancia L en el electrodo opuesto. En la Figura 4.10 (tomada de [Martínez-Lozano \(2006\)](#)) se representa de forma esquemática la función de transferencia del DMA. Un grupo de partículas con distintas movilidads entran en el DMA, atraviesan la región de clasificación y son finalmente detectadas por un sensor (área gris en el electrodo superior). Sólo una fracción de las partículas, aquellas de movilidads comprendidas en un estrecho intervalo entorno a la movilidad crítica ($Z^* - Z, Z^* + Z$) alcanzan el sensor. Las partículas

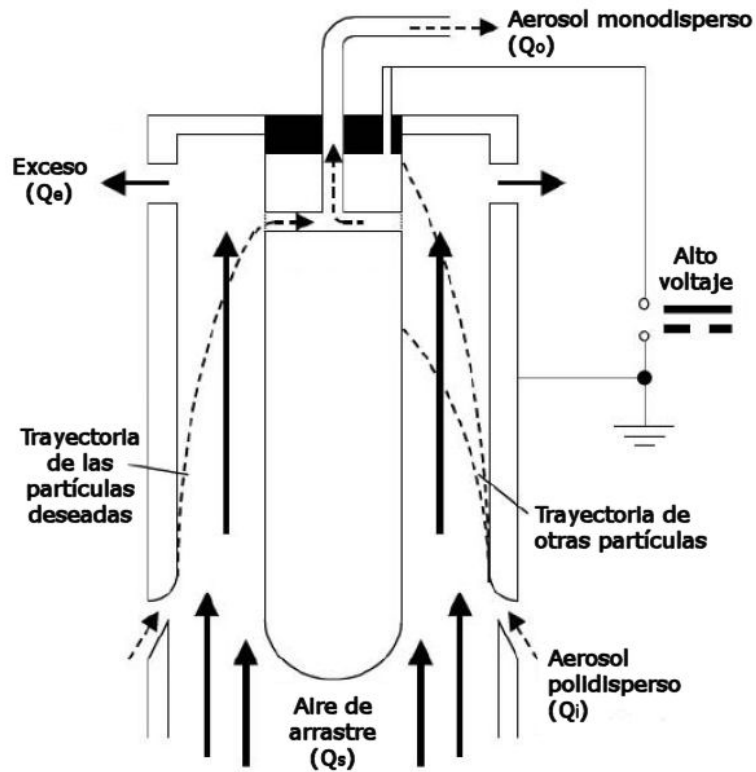


Figure 4.9: Esquema de funcionamiento de un DMA cilíndrico.

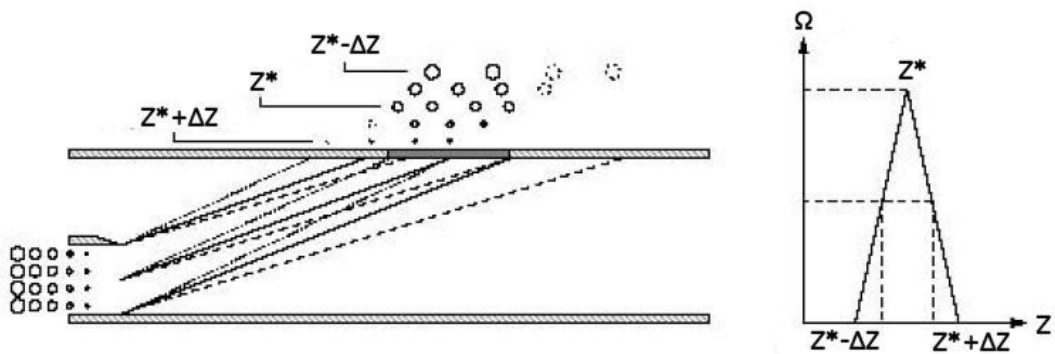


Figure 4.10: Representación esquemática de la función de transferencia de clasificación de un DMA (izquierda) y función de transferencia triangular obtenida en el desarrollo de Knutson y Whitby (derecha). Los círculos representan las partículas que logran alcanzar el sensor (área gris en el electrodo superior) mientras que las líneas discontinuas representan las trayectorias de las partículas que impactan aguas arriba y aguas abajo del sensor.

de movilidad superior a $Z^* + Z$ impactan en el electrodo aguas arriba del sensor, mientras que las partículas de movilidad inferior a $Z^* - Z$ alcanzan el electrodo aguas abajo del sensor.

Para el caso ideal, con partículas no difusivas, Knutson y Whitby obtuvieron la siguiente expresión analítica de la función de transferencia del DMA cilíndrico

$$\Omega(\bar{Z}, \beta, \varphi) = \frac{1}{2\beta(1-\varphi)} (|\bar{Z} - (1+\beta)| + |\bar{Z} - (1-\beta)| - |\bar{Z} - (1+\beta\varphi)| - |\bar{Z} - (1-\beta\varphi)|) \quad (4.3)$$

en la que $\bar{Z}$, β y φ son parámetros adimensionales

$$\bar{Z} = \frac{Z}{Z^*}, \quad \beta = \frac{Q_o + Q_i}{Q_s + Q_e} \quad \text{y} \quad \varphi = \frac{Q_o - Q_i}{Q_s + Q_e} \quad (4.4)$$

siendo Q_i y Q_o los caudales de entrada y salida del aerosol, Q_s y Q_e los caudales de entrada y salida del aire de arrastre. En el caso en el que el DMA opera con caudales simétricos, $Q_i = Q_o$ y $Q_s = Q_e$, la movilidad crítica Z^* viene dada por la ecuación 4.1, $\beta = Q/Q_s$, $\varphi = 0$ y la función de transferencia

$$\Omega(\bar{Z}, \beta) = \frac{1}{2\beta} [|\bar{Z} - (1+\beta)| + |\bar{Z} - (1-\beta)| - 2|\bar{Z} - 1|] \quad (4.5)$$

toma la forma de un triángulo isósceles centrado en $Z^* = 1$, como muestra la Figura 4.10.

El intervalo de movilidades entorno a la movilidad crítica cuya probabilidad de clasificación es no nula ΔZ viene dado por

$$\Delta Z = \frac{Q \ln \left(\frac{r_o}{r_i} \right)}{2\pi UL} \quad (4.6)$$

y teniendo en cuenta (4.1) se encuentra que ΔZ es el producto de la movilidad crítica y el cociente entre los caudales de aerosol Q y aire de arrastre Q_s en el DMA

$$\Delta Z = Z^* \frac{Q}{Q_s} \quad (4.7)$$

La resolución del DMA está asociada a la función de transferencia. En general, ésta se define como el cociente entre la movilidad correspondiente al máximo de la

función de transferencia y la anchura a media altura de la función de transferencia. La función de transferencia del DMA cilíndrico ideal con caudales simétricos aparece representada en la Figura 4.10. El máximo de la función de transferencia corresponde a la movilidad crítica Z^* dada por la ecuación 4.1 y la anchura a media altura (FWHH, acrónimo de *Full Width at Half Height*). La función de transferencia ΔZ_{FWHH}^* es igual a la mitad de la base del triángulo ΔZ . En este caso, la resolución es igual a la relación entre los caudales de aire de arrastre y aerosol

$$Resolution = \frac{Z^*}{\Delta Z} = \frac{Q_s}{Q} = \frac{1}{\beta} \quad (4.8)$$

siendo este el valor máximo teórico que puede alcanzar la resolución de un DMA de cualquier geometría, para partículas de cualquier movilidad.

En los ensayos experimentales, los DMAs fueron operados con caudales simétricos. Los flujos de entrada y salida de aerosol variaron desde 0.5 hasta 2.5 l·min⁻¹, mientras que los flujos de aire de arrastre y de exceso variaron entre 5 y 15 l·min⁻¹. Así, los DMAs fueron operados con resoluciones entre 10 y 17.

4.1.6. Precipitador Electrostático

Un precipitador electrostático (ESP) es un dispositivo que captura las partículas cargadas de una corriente gaseosa, por medio de fuerzas eléctricas. Consta básicamente de un tubo, conectado a tierra, y un alambre a lo largo de su eje, en el cual se aplica un voltaje (positivo o negativo) necesario para precipitar las partículas con una movilidad igual o mayor a una cierta movilidad crítica Z^* . Las partículas cargadas, al encontrarse con el campo eléctrico generado, son dirigidas hacia el electrodo del signo opuesto, precipitando tanto en las paredes como en el alambre central del precipitador, obteniendo así una corriente de gas limpio de partículas cargadas. En la Figura 4.11 se observa un esquema del precipitador utilizado. En los ensayos experimentales se aplicaron voltajes por encima de los 8 kV, para garantizar la deposición sobre los electrodos de todas las partículas cargadas dentro del rango de tamaños de interés.

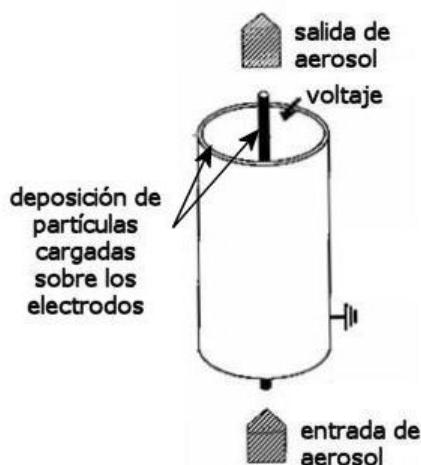


Figure 4.11: Precipitador electrostático.

4.1.7. Contador de Núcleos de Condensación

Un contador de núcleos de condensación (CPC) es un dispositivo utilizado para medir la concentración numérica de partículas en un gas. En los ensayos experimentales se utilizó el CPC para partículas ultrafinas de TSI modelo 3025A (Figura 4.13). El aerosol accede a este dispositivo a través de una cámara llena de vapor saturado de n-butanol a una temperatura de 35 °C. A continuación, la mezcla de vapor y aerosol pasa a través de una sección de enfriamiento, donde el vapor condensa sobre las partículas a una temperatura en torno a los 10 °C, como se observa en la Figura ???. El aumento de tamaño que experimentan las partículas como resultado de la condensación del vapor, hace que éstas sean fácilmente detectadas por el contador óptico que se encuentra a la salida de la sección de enfriamiento. En el contador óptico, las partículas atraviesan un haz de luz y al hacerlo dispersan una fracción de esta luz, que es recogida por un fotodetector.

El tamaño mínimo de partícula detectado por este dispositivo es 3 nm (con un 50 % de detección) y 5 nm (con un 90 % de detección). El rango de concentración de partículas se extiende desde 0.01 hasta $9.99 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$, con una exactitud de $\pm 10 \%$. El dispositivo fue operado a un caudal de $0.3 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$, desviando el exceso de aerosol a través de un filtro HEPA hasta la campana de extracción de gases.



Figure 4.12: Contador de núcleos de condensación (TSI 3025A).

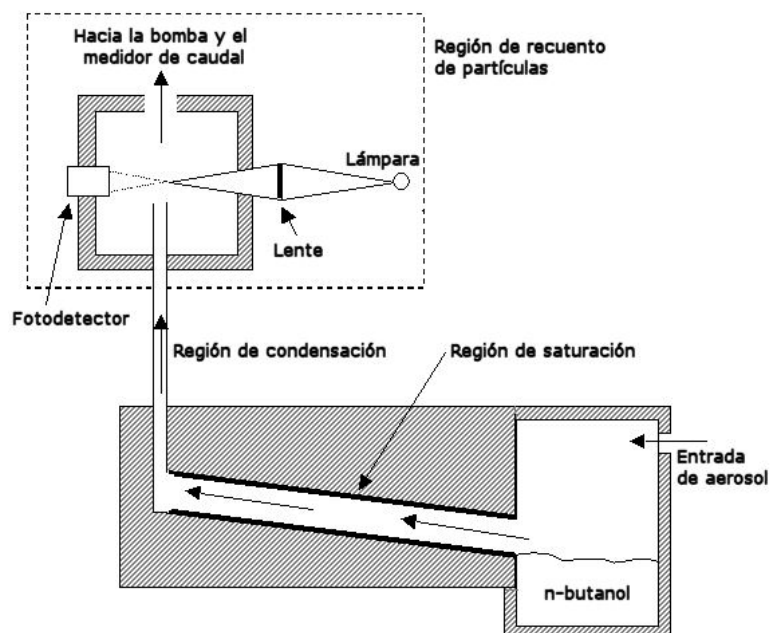


Figure 4.13: Principio de operación del CPC.

4.2. Experimental Variables

4.2.1. Charging Efficiency

Frequently, the concepts of intrinsic and extrinsic charging efficiencies and particle losses are used to characterize the performance of aerosol chargers [Büscher *et al.* (1994), Marquard *et al.* (2006a), Alonso *et al.* (2006)]. Figure 4.14 shows the splitting of the concentration of uncharged particles N_{in} inside the charger: some particles attain charges N_{out}^q , and some remain uncharged N_{out}^0 ; some particles are lost by diffusion to the walls N_{diff} , and some charged particles are lost due to electrostatic forces N_{el} . These concentrations are either measured or calculated as described in the following.

N_{diff} is calculated as the difference between the particle concentrations measured with the CPC at the inlet N_{in} and at the outlet N_{out} of the charger, in absence of ion source ($U_W = 0$). On the other hand, for measuring charging efficiencies, an ESP is placed downstream the charger (route 5 in Figure 4.1). Then, the ion source is started up ($U_W > 0$), and the total particle concentration N_{out}^{tot} and the concentration of uncharged particles N_{out}^0 are measured with the CPC at the outlet of the ESP, by turning the voltage applied to the ESP off and on, respectively. In general, N_{out}^{tot} is lower than N_{out} , since some charged particles are lost by electrostatic migration to the wall of the outer electrode in the charger N_{el} . Finally, the concentration of charged particles leaving the charger N_{out}^q is calculated as the difference between the total concentration of particles N_{out}^{tot} and the concentration of uncharged particles N_{out}^0 .

The intrinsic charging efficiency ξ_{int} represents the true charging efficiency inside the charger. This is defined as the ratio of the total concentration of charged particles to the total concentration of particles inside the charger

$$\xi_{int} = \frac{N_{el} + N_{out}^q}{N_{in} - N_{diff}} \quad (4.9)$$

The extrinsic charging efficiency ξ_{ext} is the magnitude of interest for practical

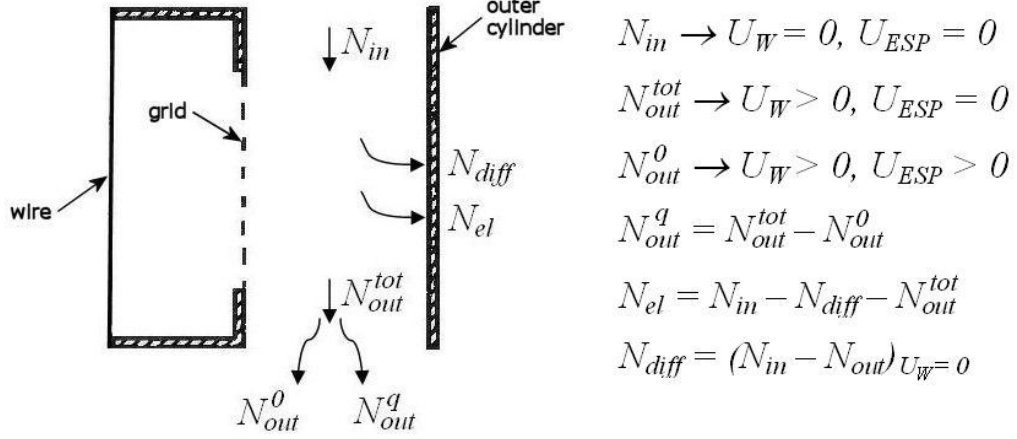


Figure 4.14: Definition of particle concentrations in the corona charger.

purposes. It is defined as the quotient between the concentration of charged particles leaving the charger and the concentration of uncharged particles entering the charger

$$\xi_{ext} = \frac{N_{out}^q}{N_{in}} \quad (4.10)$$

Particles are lost by diffusion and electrostatic migration to the walls, thus particle losses are expressed as

$$Losses_{tot} = \frac{N_{diff} + N_{el}}{N_{in}} \quad (4.11)$$

4.2.2. Charge Distribution

The knowledge of the particle charge distribution provided by an aerosol charger is very important since it determines the electrical mobility of a particle within the DMA. Thus, if the charge distribution of the aerosol that enters the DMA is known, the particle size distribution of the aerosol can be determined. For the measurement of the charge distribution, the mobility distribution of monodisperse particles downstream the charger is measured with the second DMA and the CPC (route 6 in Figure 4.1). For a given particle size, the resulting distributions are

multi-peak curves. Each peak corresponds to mobility values of the particles of a specific size with different number of elementary charges. The fraction of particles carrying n elementary charge units f_n are determined from the relative areas under the corresponding peaks, multiplied by the extrinsic charging efficiency for the particle size under consideration. The fraction of neutral particles ($n = 0$) is calculated as one minus the extrinsic charging efficiency.

Capítulo 5

Results and Discussion

This chapter presents the experimental results and the theoretical predictions of the performance of the aerosol charges under study. Section 5.1 shows the analysis of the low activity radioactive charger, beginning with the estimation of the $N_i t$ product in the charging zone. Next, the experimental results about the particle charge distributions measured at the outlet of the ionizer on monodisperse and polydisperse aerosols are exposed. Subsequently, the numerical model described in Section 3.1.3 is used to investigate aerosol bipolar charging in the weak radioactive charger. Firstly, the experiments with both monodisperse and polydisperse aerosols are simulated. Then, additional calculations in order to determine the limits beyond which stationary charging is not attained in the ionizer are performed. Section 5.2 presents the study of the performance of the corona unipolar charger at different operating conditions, starting with the estimation of the radial distribution of the $N_i t$ product in the annular charging region, which is then used to predict the charging levels of the particles. After that, experimental particle charge distributions and charging efficiencies are shown for different duty cycles of the pulse voltage applied in the inner electrode. Finally, the mean number of charges per particles of a given size is compared with theoretical calculations using the birth-death approach and using the Fuchs' theory to estimate the attachment coefficients.

5.1. Weak Radioactive Bipolar Charger

5.1.1. Estimation of the $N_i t$ Product

The $N_i t$ parameter of the charger was experimentally estimated based on the ion saturation current I_{sat} measurements on the charger, as already discussed in section 3.1.2. The current between the cylinder where ^{241}Am sources are attached and a wire (electrode) installed on the axis of the ionizer was measured by an electrometer as a function of applied voltage. The current is seen to increase with increasing voltage, attaining a saturation state of 66 pA at an applied voltage of 250 V, as shown in Figure 5.1. From this saturation current, the ion pair production rate F in unit volume of the ionizer can be determined.

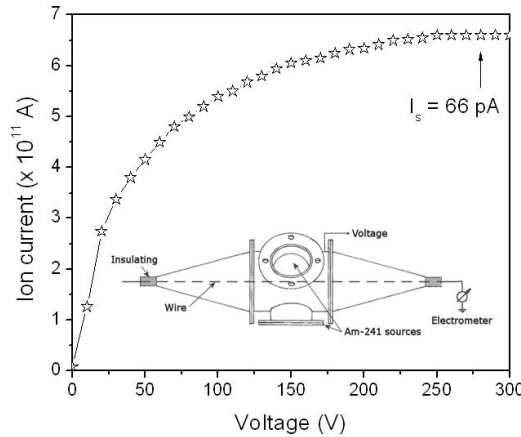


Figure 5.1: Current-voltage relationship in the weak radioactive bipolar charger (^{241}Am , 9 kBq).

Values of N_i equal to $1.1 \cdot 10^{12}$ and $2.0 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-3}$ were obtained by substituting, respectively, the experimental (equation 3.6) and the theoretical (equation 3.4) values of F in equation 3.3. The discrepancy between the values of N_i predicted by the theory and measured experimentally are attributed to the fact that the atoms of ^{241}Am deposited on the surface of the disks emit α particles in all directions of the space. The radiation forwards points to the interior of the central cylinder, whereas the radiation backwards points to the walls of the cylinder. Thus, in

practise, only one half of the total α particles emitted by the ^{241}Am sources is able to ionize the atmosphere inside the charger.

In Table 5.1, the values of the $N_i t$ product estimated for the ^{241}Am ionizer under study are compared to the values of this parameter measured for ionizers having different designs and radioactive sources: ^{85}Kr ionizers with activities of 0.5, 1 and 2 mCi [Liu & Pui (1974c)], and ^{241}Am ionizers with activities of 10 and 100 μCi [Adachi *et al.* (1983), Han *et al.* (2003)]. The values taken from the literature were estimated as described above. It is worthy to notice that despite of the much lower activity of the new ^{241}Am ionizer, up to four orders of magnitude, its $N_i t$ product is only one order of magnitude inferior to the $N_i t$ product of the high activity ionizers of ^{85}Kr and ^{241}Am or even less. This is due to the higher ionization efficiency of the α radiation (^{241}Am) with respect the β radiation (^{85}Kr) and to the longer residence times of the aerosol in the new ^{241}Am ionizer with respect to those in the ^{241}Am ionizer of Adachi *et al.* (1983) (see values in Table 5.1). Another factor to be considered is that, substituting equation 3.4 in equation 3.3, the ion concentration goes with the square root of A_o . Thus, a higher N_i is paid for with a much higher A_o .

5.1.2. Experimental Results

This section provides the experimental results obtained with the weak radioactive charger. The performance of this new concept to neutralize and to charge monodisperse and polydisperse particles in the size range of 50 to 250 nm is investigated experimentally and compared to radioactive bipolar chargers currently used.

5.1.2.1. Monodisperse aerosols

The experiments were carried out with monodisperse particles of diameters 50, 100, 150, 200 and 250 nm, and number concentrations in the range of 10^4 to 10^5 cm^{-3} . The flow rate of the carrier gas was varied between 0.5 and 2.5 $\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$.

Table 5.1: Values of the $N_i t$ product of the weak radioactive charger of ^{241}Am (this work) and of other radioactive chargers reported in the literature.

Charger	A_o (μCi)	P_o (MeV)	V (cm^3)	I_{sat} (nA)	F ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)	N_i (m^{-3})	t (s)			$N_i t$ ($\text{m}^{-3} \cdot \text{s}$)		
							$0.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$	$1.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$	$2.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$	$0.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$	$1.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$	$2.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$
^{241}Am (this work)	0.24	5.5	226	0.066	$1.8 \cdot 10^{12}$	$1.1 \cdot 10^{12}$	27.0	9.0	5.4	$2.9 \cdot 10^{13}$	$9.7 \cdot 10^{12}$	$5.8 \cdot 10^{12}$
^{85}Kr (Lim & Pui, 1974)	500	0.687	1380	0.47	$2.1 \cdot 10^{12}$	$1.2 \cdot 10^{12}$	165.5	55.2	33.1	$1.9 \cdot 10^{14}$	$6.4 \cdot 10^{13}$	$3.8 \cdot 10^{13}$
	1000			0.72	$3.3 \cdot 10^{12}$	$1.4 \cdot 10^{12}$				$2.4 \cdot 10^{14}$	$7.9 \cdot 10^{13}$	$4.7 \cdot 10^{13}$
	2000			1.90	$8.6 \cdot 10^{12}$	$2.3 \cdot 10^{12}$				$3.8 \cdot 10^{14}$	$1.3 \cdot 10^{14}$	$7.7 \cdot 10^{13}$
^{241}Am (Adachi <i>et al.</i> , 1983)	10	5.5	52	-	$1.1 \cdot 10^{14}$	$5.0 \cdot 10^{12}$	6.0	2.0	1.2	$3.1 \cdot 10^{13}$	$1.0 \cdot 10^{13}$	$6.3 \cdot 10^{12}$
	100			-	$2.5 \cdot 10^{15}$	$4.1 \cdot 10^{13}$				$2.6 \cdot 10^{14}$	$8.5 \cdot 10^{13}$	$5.1 \cdot 10^{13}$
^{241}Am (Han <i>et al.</i> , 2003)	100	5.5	164	3.6	$5.3 \cdot 10^{14}$	$1.1 \cdot 10^{13}$	20.0	6.7	4.0	$2.2 \cdot 10^{14}$	$7.2 \cdot 10^{13}$	$4.3 \cdot 10^{13}$

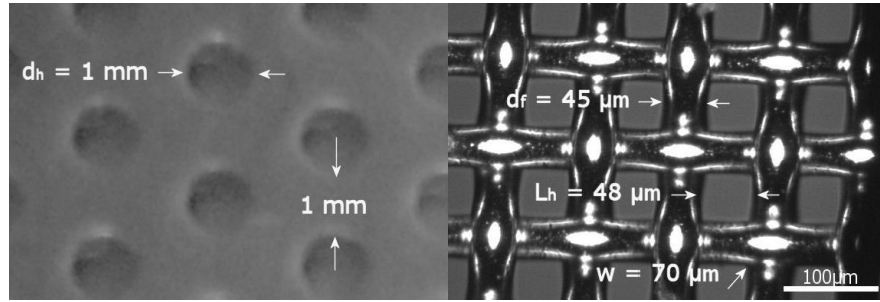


Figure 5.2: Picture of the perforated plate (left) and the grid (right) used in the weak radioactive charger.

Two series of experiments were performed. In the first series, the fraction of uncharged particles at the outlet of the new ionizer and of the commercial ionizer was measured, following route 5 in Figure 4.1. In the second series, the charge distribution of the particles at the exit of the ionizers of ^{241}Am and ^{210}Po was measured, following route 6 in Figure 4.1.

The charger of ^{241}Am was used with two different configurations, firstly with perforated plates at the inlet and at the outlet of the central cylinder, and secondly with two grids at the inlet. The perforated plates have circular orifices of 1 mm diameter and the distance between consecutive orifices is 1 mm also, as Figure 5.2 shows in the left side. The grids have squared orifices of $48\ \mu\text{m}$ side and wires of $45\ \mu\text{m}$ diameter, as Figure 5.2 shows in the right side. The fraction of uncharged particles f_o measured at the outlet of the ionizers of ^{241}Am and ^{210}Po is displayed in Figure 5.25 as a function of the aerosol flow rate Q , for particles of the various sizes. The stationary values of the fraction of uncharged particles calculated with the formula of Wiedensohler (1988) (equation 3.41) are shown for comparison also. In the experiments, particles were either singly charged ($n_o = +1$) or uncharged ($n_o = 0$) at the entrance to the ionizers.

The fraction of uncharged particles that leave the ionizer of ^{210}Po reaches the stationary values predicted by Wiedensohler for particles of all sizes, either uncharged or singly charged, and all flow rates. With the perforated plates, the ionizer of ^{241}Am exhibits the same performance as the one of ^{210}Po for flow rates up to $1\ \text{l}\cdot\text{min}^{-1}$. At higher flow rates, however, the fraction of uncharged particles

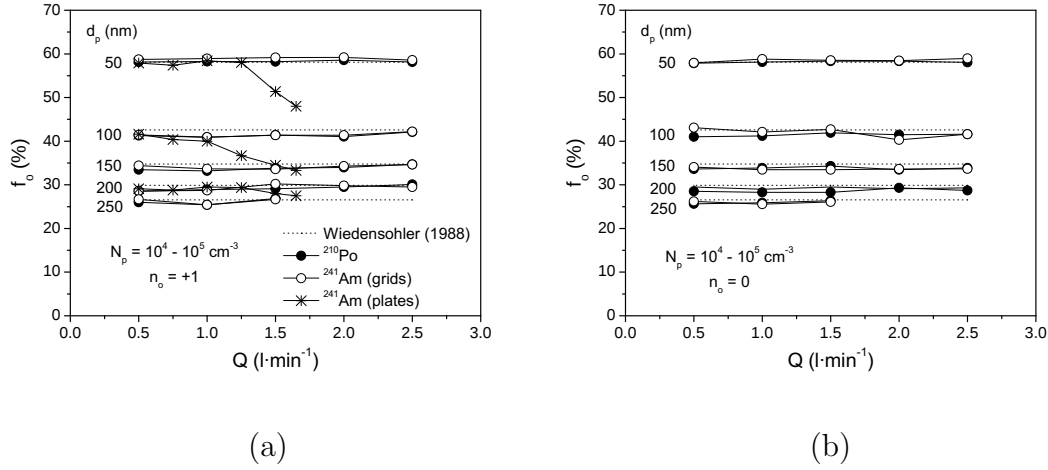


Figure 5.3: Fractions of uncharged particles measured at the outlet of the ionizers of ^{241}Am and ^{210}Po in experiments with singly charged (a) and uncharged (b) monodisperse aerosols, and stationary values of Wiedensohler (1988).

diminishes, as shown in Figure 5.25(a). This result is attributed to a non-uniform distribution of the aerosol over the cross-section of the cylinder, which results in residence times smaller than the average residence time given by equation 3.7. This problem was overcome in the configuration with two grids at the entrance to the cylinder, which cause a higher flow pressure drop than the perforated plates. With the two grids, the fraction of uncharged particles at the exit of the ^{241}Am ionizer reaches the stationary values at flow rates up to at least $2.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, the highest flow rate used in the experiments. Hence, the configuration with two grids was chosen for the rest of the experiments with the weak radioactive charger of ^{241}Am reported hereinafter.

Then, the charge distributions of the particles at the outlet of the ionizers of ^{241}Am and ^{210}Po were measured. Particles in the size range of 50 to 250 nm should attain the stationary charge distribution at least in the ^{210}Po ionizer for the aerosol flow rates used here. Figure 5.4 shows the normalized particle mobility distributions found at the exit of the two radioactive ionizers in experiments with singly charged and uncharged particles of 200 nm at a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$. The peaks correspond to particles carrying ± 1 , ± 2 , ± 3 and ± 4 charges. It can be seen that the peaks of particles with multiple charges measured with the ionizers

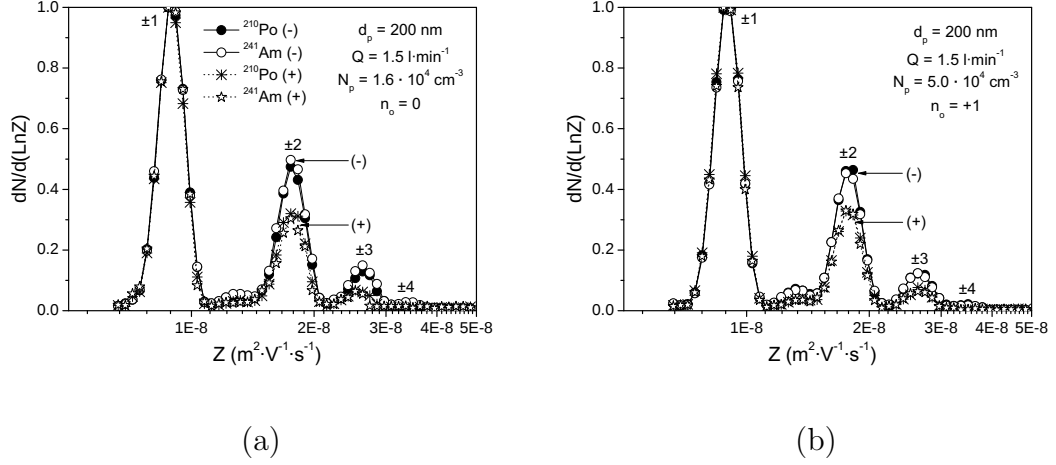


Figure 5.4: Normalized mobility distributions of positively and negatively charged particles measured at the outlet of the ionizers of ^{241}Am and ^{210}Po in experiments with uncharged (a) and singly charged (b) particles of 200 nm at a flow rate of 1.5 l·min $^{-1}$.

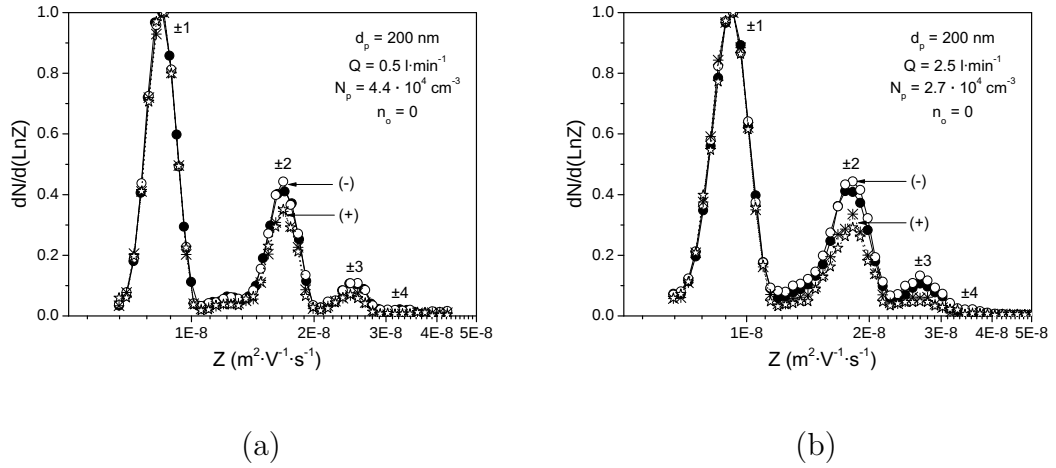


Figure 5.5: Normalized mobility distributions of positively and negatively charged particles measured at the outlet of the ionizers of ^{241}Am and ^{210}Po in experiments with uncharged particles of 200 nm at flow rates of 0.5 l·min $^{-1}$ (a) and 2.5 l·min $^{-1}$ (b).

Table 5.2: Particle charge distributions measured at the outlet of the ionizers of ^{241}Am and ^{210}Po in experiments with uncharged and singly charged monodisperse aerosols at a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, and stationary charge distributions of Wiedensohler (1988).

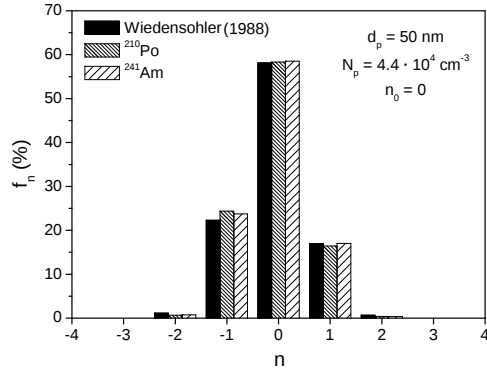
[illegible]

of ^{241}Am and ^{210}Po are quite similar, for both positively and negatively charge particles. The distributions of negative particles are higher than positive particles (in the no-normalized case) because of the higher diffusivity of negative ions, as is stabilised by theory of [Fuchs \(1963\)](#). On the other hand, the normalized particle mobility distributions measured at the outlet of the two radioactive ionizers in experiments with uncharged particles of 200 nm at flow rates of 0.5 and 2.5 $\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$ are plotted in [Figure 5.5](#). Differences can be noticed in the mobility distributions obtained with uncharged particles at flow rates of 0.5, 1.5 and 2.5 $\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$. This result may be attributed to the different resolution of DMA2 used in the experiments with different aerosol and sheat flow rates.

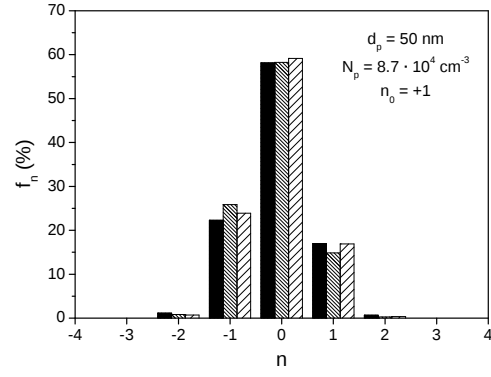
The particle charge distributions measured at the exit of the ionizers of ^{241}Am and ^{210}Po in the experiments with uncharged and singly charged monodisperse particles at a flow rate of 1.5 $\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$ are compared to the stationary charge distributions of [Wiedensohler \(1988\)](#) in [Figure 5.6](#) and [Table 5.2](#). It can be seen that the particle charge distributions obtained with the ionizers of ^{241}Am and ^{210}Po in the experiments with uncharged and singly charged particles agree rather well for all particle sizes, and they are reasonably close to the stationary charge distributions of Wiedensohler also. In the case of the ionizer of ^{241}Am , small differences are observed between the charge distributions obtained with uncharged and singly charged particles, especially for large particle sizes. In general, the fractions of negatively charged particles decrease and, correspondingly, the fractions of positively charged particles increase, when going from uncharged to singly charged particles.

5.1.2.2. Polydisperse aerosols

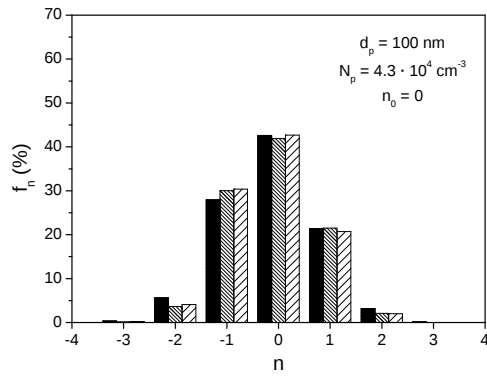
The charging of polydisperse aerosols in the weak radioactive ionizer of ^{241}Am was investigated and compared with two commercial ionizers containing radioactive sources of ^{85}Kr (2 mCi) and ^{210}Po (10 mCi). The polydisperse aerosol was neutralized by means of an ionizer of ^{241}Am similar to the one under study and, at the outlet of the ionizer, charged particles were removed from the aerosol by ESP1, following route 3 in [Figure 4.1](#). Hence, the particles of the polydisperse



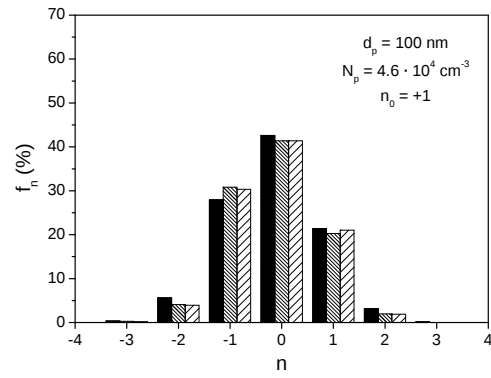
(a.1)



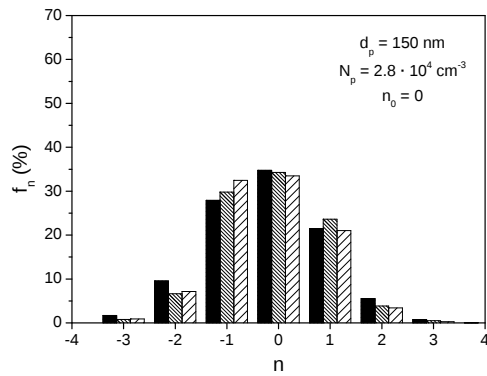
(a.2)



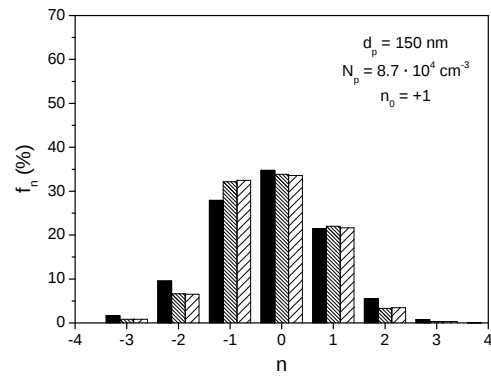
(b.1)



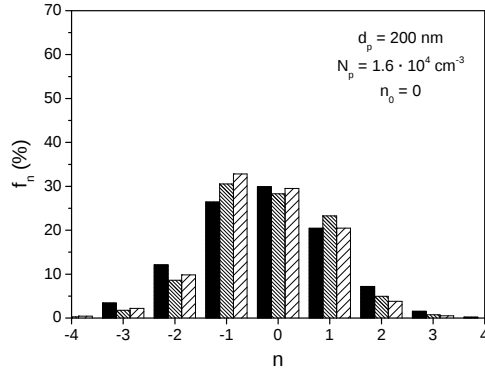
(b.2)



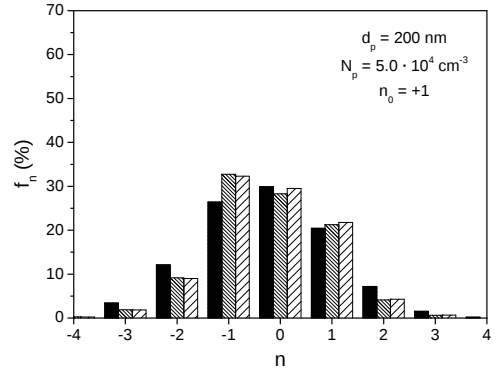
(c.1)



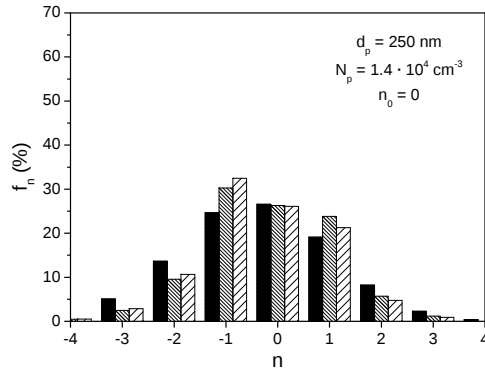
(c.2)



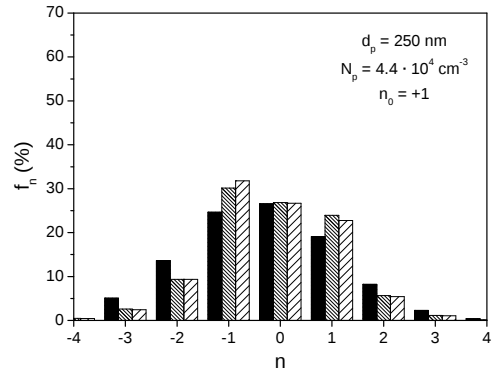
(d.1)



(d.2)



(e.1)



(e.2)

Figure 5.6: Particle charge distributions measured at the outlet of the ionizers of ^{241}Am and ^{210}Po in experiments with uncharged and singly charged particles of 50 nm (a), 100 nm (b), 150 nm (c), 200 nm (d) and 250 nm (e) at a flow rate of $1.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$, and stationary charge distributions of Wiedensohler (1988).

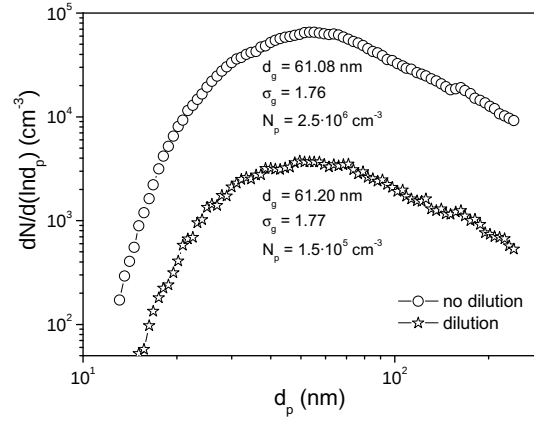


Figure 5.7: Particle size distributions of non-diluted and diluted polydisperse aerosols at the entrance to the radioactive ionizers of ^{85}Kr , ^{210}Po and ^{241}Am .

aerosols that entered the ionizers of ^{241}Am , ^{85}Kr and ^{210}Po were uncharged. Experiments with aerosols having the same particle size distribution but different particle concentrations were performed. In one case, the aerosol as it exits the diffusion dryer was used and, in another case, this aerosol was diluted in order to reduce the particle concentration. The particle size distributions of the uncharged polydisperse aerosols measured at the outlet of ESP1 in the two cases are displayed in Figure 5.7. The aerosols have a geometric mean diameter d_g of 61 nm and geometric standard deviation σ_g of 1.77, and the particle concentration N_p of the non-diluted and diluted aerosols are, respectively, $2.5 \cdot 10^6$ and $1.5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-3}$.

Figure 5.8 shows the particle mobility distributions obtained at the outlet of the three radioactive ionizers with the two aerosols above, at a flow rate of $1.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$. The mobility distributions measured with the ionizers of ^{85}Kr and ^{210}Po agree reasonably well. However, the curves of the mobility distribution measured with the ionizer of ^{241}Am fall down below the curves of the ionizers of ^{85}Kr and ^{210}Po , particularly for values of Z higher than $2 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, which correspond to singly charged particles of diameters inferior to 100 nm. This result is attributed to particle losses in the ionizer of ^{241}Am , mainly in the grids placed at the entrance to the charging region.

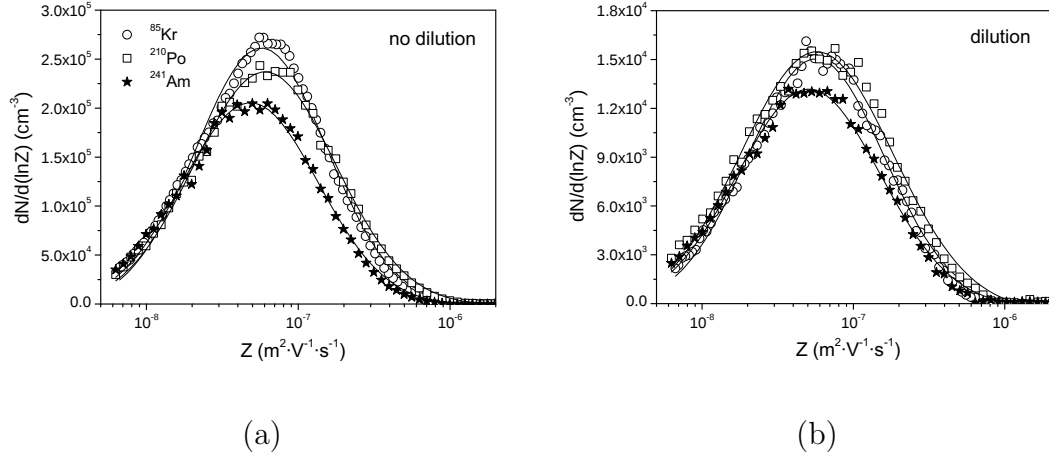


Figure 5.8: Particle mobility distributions measured at the outlet of the ionizers of ^{85}Kr , ^{210}Po and ^{241}Am in experiments with diluted (a) and non diluted (b) polydisperse aerosols at a flow rate of $1.5 \cdot \text{min}^{-1}$.

Particle losses in the ionizer of ^{241}Am were measured for monodisperse particles of various sizes (50, 100, 150, 200 and 250 nm) at different aerosol flow rates (0.5, 1.5 and $2.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$). Besides, the fraction of particles retained in the grids (see Figure 5.2) was calculated by means of the formula of [Cheng & Yeh \(1980\)](#)

$$\text{Particle Losses} = 1 - \text{Penetration} = 1 - \exp\left(-\frac{10,8(1 - \theta)wPe^{-2/3}}{\pi\theta d_f}\right) \quad (5.1)$$

where θ is the porosity or fraction of open area of the grid (0.266), w is the depth of the holes ($70 \mu\text{m}$), d_f is the diameter of the fiber ($45 \mu\text{m}$), and Pe is the Peclet number given by

$$Pe = \frac{d_f \bar{v}}{D_p} \quad (5.2)$$

where $\bar{v}$ is the mean velocity of the flow in the holes, and D_p is the particle diffusivity given by 3.38, with electrical mobility of particle Z . The fraction of particles lost in the ionizer measured experimentally and the fraction of particles retained in the grids given by equation 5.1 are compared in Figure 5.9. The formula fits rather well the experimental data.

On the other hand, the total concentration of particles in the polydisperse aerosols at the outlet of the ionizers of ^{85}Kr , ^{210}Po and ^{241}Am is given by the area

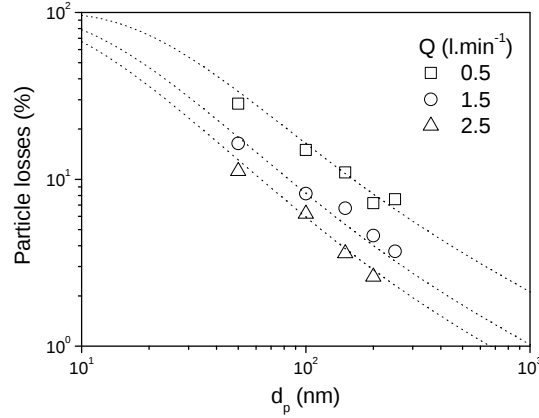


Figure 5.9: Particle losses in the ionizer of ^{241}Am measured experimentally (open symbols) and calculated with the formula of Cheng and Yeh (1980) (dotted lines).

under the curves in Figure 5.8. The particle concentrations obtained with the ionizer of ^{241}Am are between 16 and 20 % lower than the particle concentrations found with the ionizers of ^{85}Kr and ^{210}Po . Then, the equation 5.1 was used to estimate the total fraction of particles lost in the grids of the ionizer of ^{241}Am in the experiments with polydisperse aerosols, which particle size distributions are shown in Figure 5.7. It was found that about 17 % of the aerosol particles that entered the ionizer were lost in the grids. Hence, particle retention in the grids is a plausible explanation for the lower particle concentrations measured at the exit of the ionizer of ^{241}Am , with respect to the commercial ionizers of ^{85}Kr and ^{210}Po . The experimental results presented previously are discussed in more detail in Section 5.1.3, in connection with a numerical model used to simulate bipolar charging in the weak radioactive charger of ^{241}Am .

5.1.3. Experiments versus Numerical Simulation

The numerical model described in Section 3.1.3 was used to investigate aerosol charging in the weak radioactive ionizer of ^{241}Am . The system of differential equations, equation 3.12 - 3.15, was solved numerically for given conditions, particle number concentration N_p and charge density ρ_o , of the aerosols at the entrance

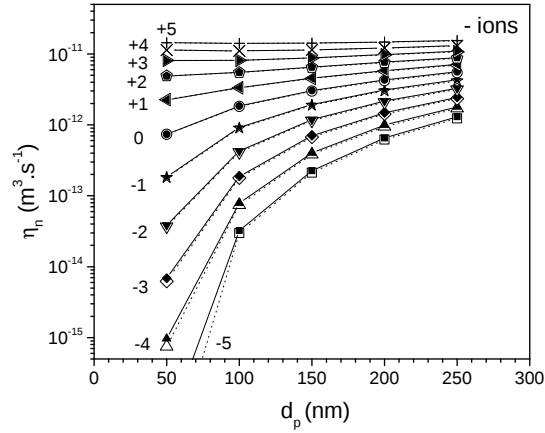


Figure 5.10: Ion to particle attachment coefficients predicted by the theory of Fuchs (open symbols, dotted lines) and calculated in this work (solid symbols, solid lines).

to the ionizer. Firstly, the ion to particle attachment coefficients were calculated for specific ion properties. After that, the experiments with both monodisperse and polydisperse aerosols described in Section 5.1.2 were simulated. Then, additional calculations were performed in order to determine the limits beyond which stationary charging is not attained in the ionizer.

5.1.3.1. Ion to particle attachment coefficients

To calculate the attachment coefficients η by the Fuchs theory, equation 3.22, the ion properties must be known. The electrical mobility and the mass of the air ions in our experiments were unknown; hence, we assumed the values of Z_i and m_i used by Wiedensohler *et al.* (1986). These values are listed in Table 3.2 together with the values of D_i , $\bar{c}_i$ and λ_i calculated with equations 3.38, 3.39 and 3.40, respectively.

Figure 5.10 shows the attachment coefficients of negatively charged ions and particles of sizes in the range of 50 to 250 nm predicted by the original theory of Fuchs and calculated in this work, with the modifications in the self-image

potential and collision probability described in Section 3.1.3.2. The values of η_n are slightly higher in our approach and the difference increases when decreasing the particle size. The differences are also larger for repulsive events than for attractive events. We found values of η_n between 1 and 8% higher than the values predicted by Fuchs.

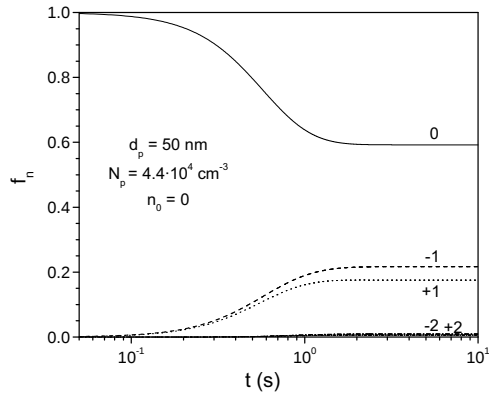
5.1.3.2. Monodisperse aerosols

The evolution with time of the fraction of particles of different charge states f_n inside the ionizer is plotted in Figure 5.11. They correspond to the experiments with uncharged and singly charged monodisperse particles of 50 and 250 nm. The simulations show that the time to reach stationary conditions in the charger of ^{241}Am is in the order of 2-3 s for the sizes (50-250 nm) and number concentrations (10^4 - 10^5 cm^{-3}) of the particles used in the experiments with monodisperse aerosols. On the other hand, the average residence time of the aerosols in the ionizer of ^{241}Am was larger than 5 s in all the tests. Thus, according to the simulations, particles would have been charged to steady-state in the ionizer of ^{241}Am in the experiments with uncharged and singly charged monodisperse particles of all sizes at all flow rates.

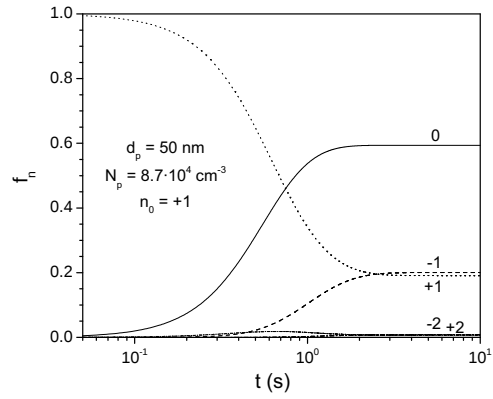
The particle charge distributions measured at the outlet of the ionizer of ^{241}Am , calculated numerically and predicted by Wiedensohler are compared in Table 5.3. The numerical values correspond to a time of 9 s, which is the estimated average residence time of the aerosols in the ionizer of ^{241}Am at a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$. In the simulations, this time is sufficient to attain the steady-state; hence, the numerical values in Table 5.3 are also the stationary values.

Firstly, differences are observed between the particle charge distributions obtained with uncharged and singly charged particles of a given size, both in the experiments and in the simulations. To figure out the reason for that discrepancy, two series of calculations were performed. In the first series, the concentration of particles was constant ($N_p = 10^4 \text{ cm}^{-3}$) and the initial charge of the particles was varied ($n_o = 0, +1$). In the second series of calculations, the initial charge of the

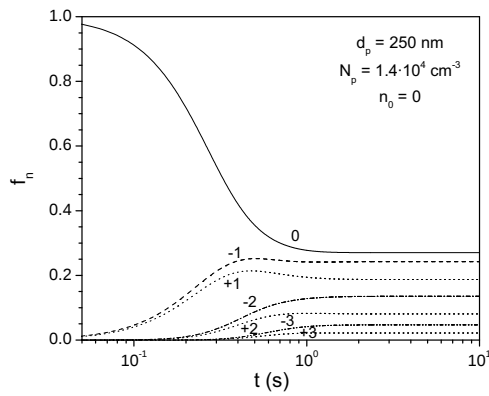
d_b (nm)	N_b (cm ⁻³)	n_0	Charger	f_n (%)								
				-4	-3	-2	-1	0	+1	+2	+3	+4
50	-	-	Wiedensohler	-	-	1.14	22.29	58.14	16.96	0.66	-	-
	$4.4 \cdot 10^4$	0	numerical model ²⁴¹ Am	- -	- -	0.93 0.73	21.71 23.74	59.22 58.52	17.53 17.03	0.60 0.36	- -	- -
	$8.7 \cdot 10^4$	+1	numerical model ²⁴¹ Am	- -	- -	0.79 0.69	20.04 23.91	59.37 59.17	19.09 16.92	0.70 0.34	- -	- -
100	-	-	Wiedensohler	-	0.37	5.61	27.93	42.59	21.38	3.17	0.17	-
	$4.3 \cdot 10^4$	0	numerical model ²⁴¹ Am	- -	0.31 0.23	5.14 4.09	26.83 30.40	43.16 42.70	21.20 20.70	3.20 1.99	0.15 -	- -
	$4.6 \cdot 10^4$	+1	numerical model ²⁴¹ Am	- -	0.27 0.21	4.73 3.93	25.79 30.35	43.32 41.37	22.21 21.03	3.50 1.90	0.17 -	- -
150	-	-	Wiedensohler	0.13	1.68	9.54	27.90	34.76	21.49	5.53	0.75	0.05
	$2.8 \cdot 10^4$	0	numerical model ²⁴¹ Am	0.10 -	1.39 0.92	9.09 7.16	26.70 32.47	35.37 33.48	21.01 21.01	5.61 3.40	0.68 0.27	0.04 -
	$8.7 \cdot 10^4$	+1	numerical model ²⁴¹ Am	0.07 -	1.09 0.81	7.69 6.52	24.67 32.46	35.67 33.58	23.13 21.66	6.74 3.47	0.89 0.31	0.05 -
200	-	-	Wiedensohler	0.53	3.40	12.11	26.41	29.91	20.43	7.19	1.53	0.18
	$1.6 \cdot 10^4$	0	numerical model ²⁴¹ Am	0.42 0.44	3.01 2.19	11.82 9.83	25.58 32.83	30.45 29.50	19.92 20.47	7.16 3.81	1.42 0.52	0.16 -
	$5.0 \cdot 10^4$	+1	numerical model ²⁴¹ Am	0.35 0.25	2.60 1.85	10.73 8.99	24.48 32.29	30.72 29.50	21.18 21.76	8.03 4.29	1.67 0.66	0.19 -
250	-	-	Wiedensohler	1.17	5.07	13.65	24.65	26.55	19.11	8.21	2.27	0.40
	$1.4 \cdot 10^4$	0	numerical model ²⁴¹ Am	1.01 0.53	4.69 2.87	13.53 10.65	24.25 32.45	27.02 26.10	18.72 21.28	8.06 4.77	2.16 0.91	0.36 0.00
	$4.4 \cdot 10^4$	+1	numerical model ²⁴¹ Am	0.85 0.43	4.11 2.45	12.42 9.36	23.35 31.80	27.32 26.69	19.85 22.75	8.97 5.44	2.52 1.05	0.44 0.16



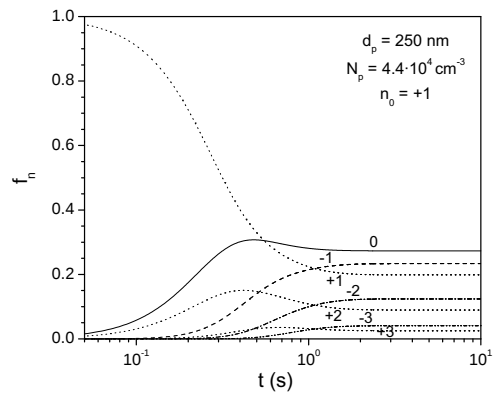
(a.1)



(a.2)



(b.1)



(b.2)

Figure 5.11: Evolution with time of the particle charge distribution in the ionizer of ^{241}Am in simulations with uncharged (a.1) and singly charged (a.2) monodisperse particles of 50 nm, and uncharged (b.1) and singly charged (b.2) monodisperse particles of 250 nm.

particles was constant ($n_o = 0$) and the particle concentration was varied ($N_p = 10^4, 10^5 \text{ cm}^{-3}$). The results show that the concentration of particles has a larger effect on the stationary charge distribution, as compared to the initial charge, which played a minor role in the simulations. By increasing the particle concentration, the fractions of negatively charged particles decrease and the fractions of positively charged particles increase, for all charge states. This tendency was confirmed experimentally, especially for large particle sizes. Figure 5.12 displays the particle charge distributions found in the experiments and in the simulations with low ($n_o = 0$) and high ($n_o = +1$) concentrations of particles of 200 and 250 nm. In the experiments with uncharged particles, the singly charged particles that leave DMA1 are neutralized and, then, charged particles are removed by means of ESP1, following route 3 in Figure 4.1. That is the reason why lower particle concentrations are attained in the experiments with uncharged particles than in the ones with singly charged particles (route 4).

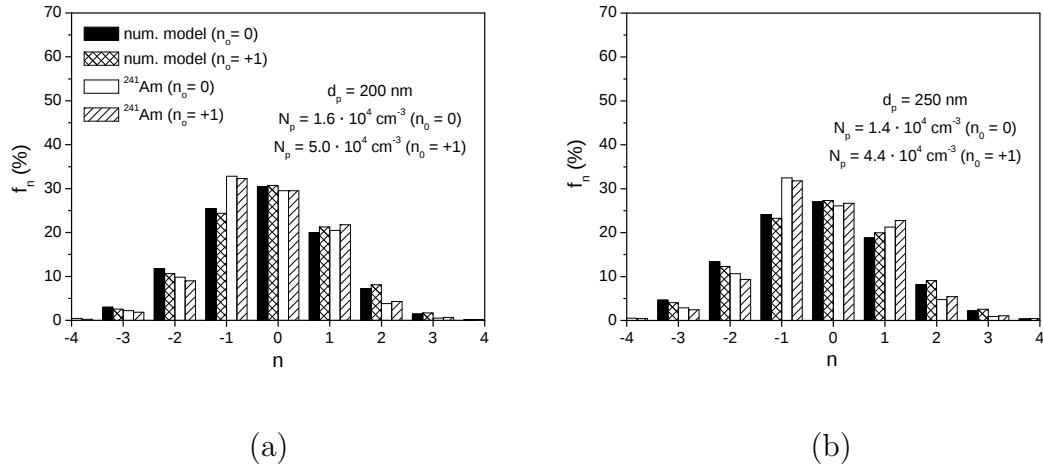
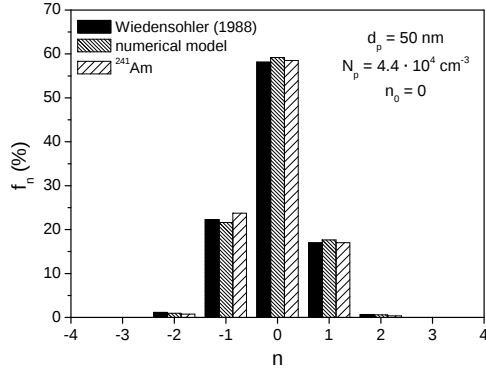
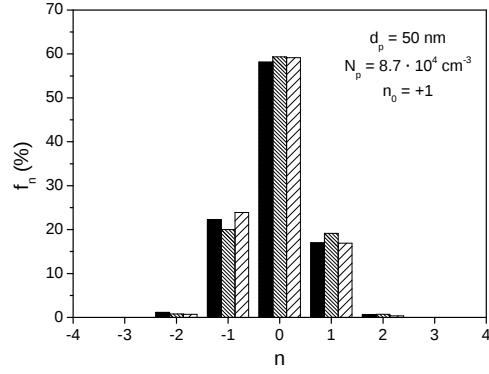


Figure 5.12: Particle charge distributions measured at the outlet of the ionizer of ^{241}Am in experiments with uncharged and singly charged particles of 200 nm (a) and 250 nm (b) at a flow rate of $1.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$, and particle charge distributions calculated with the numerical model.

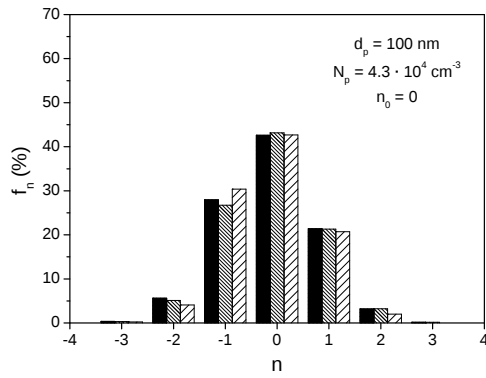
On the other hand, the particle charge distributions found at the outlet of the ionizer of ^{241}Am in the experiments with low ($n_o = 0$) and high ($n_o = +1$) particle concentrations are compared to the charge distributions calculated with the nu-



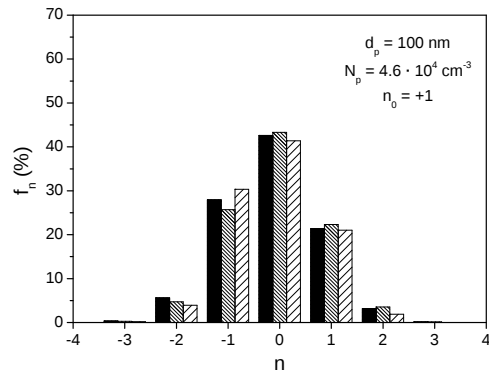
(a.1)



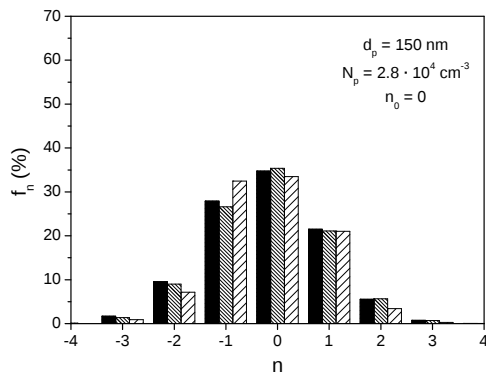
(a.2)



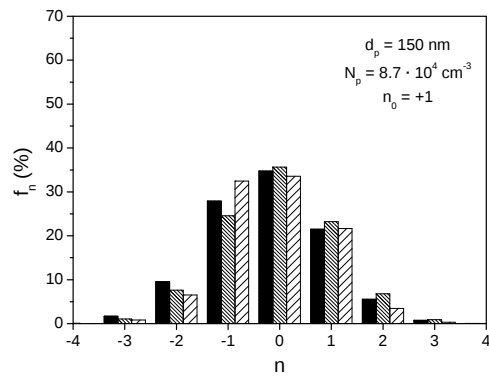
(b.1)



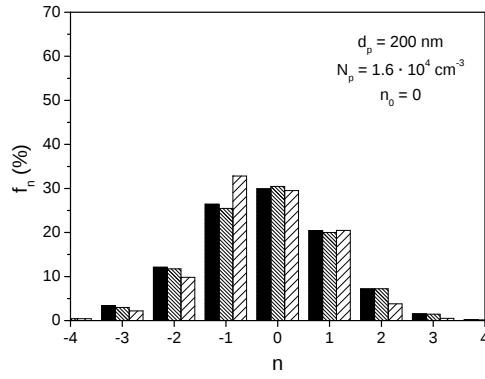
(b.2)



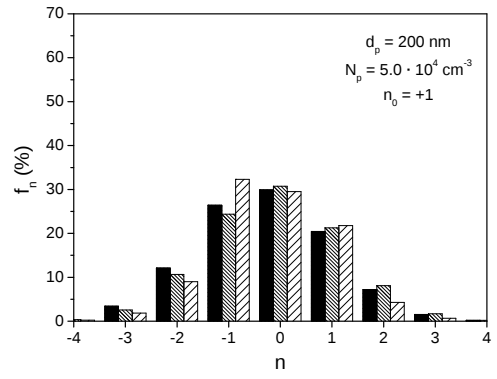
(c.1)



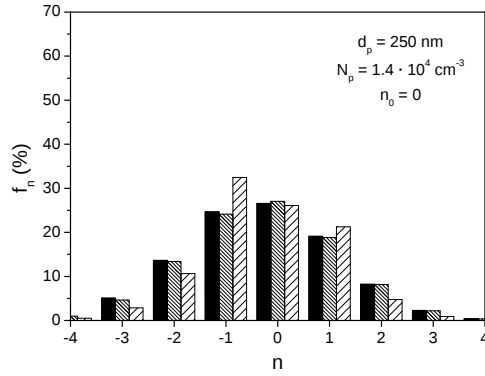
(c.2)



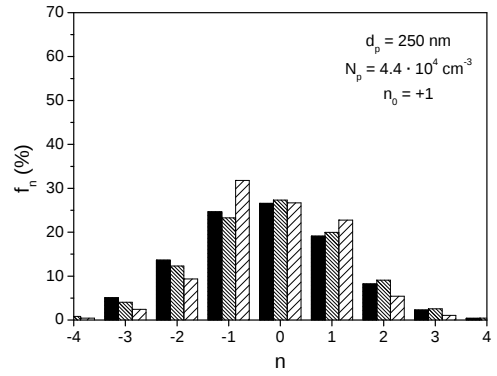
(d.1)



(d.2)



(e.1)



(e.2)

Figure 5.13: Particle charge distributions measured at the outlet of the ionizer of ^{241}Am in experiments with uncharged and singly charged particles of 50 nm (a), 100 nm (b), 150 nm (c), 200 nm (e) and 250 nm (f) at a flow rate of $1.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$, particle charge distributions calculated with the numerical model, and stationary charge distributions of Wiedensohler (1988).

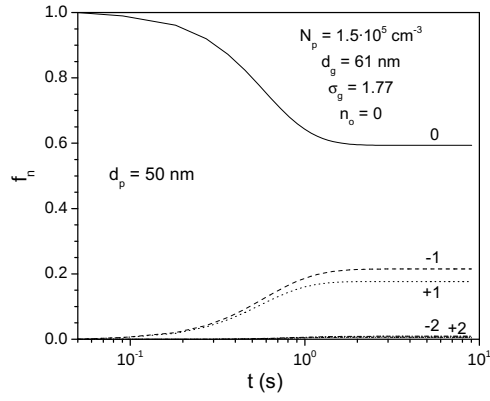
merical model and to the stationary charge distributions of Wiedensohler in Figure 5.13. It can be seen that the numerical values agree rather well with the stationary values of Wiedensohler. Larger deviations are observed, however, between the experimental results and the predictions of Wiedensohler. We attribute these differences to uncertainties both in the experiments and in the theory. In particular, model parameters, like the electrical mobility and the molecular weight of the air ions, must be determined experimentally. The values of these parameters found in the literature vary significantly from one author to another. The mobility or the molecular weight of the air ions were not measured either; hence, the values of these parameters in the experiments could differ from the ones assumed by Wiedensohler.

5.1.3.3. Polydisperse aerosols

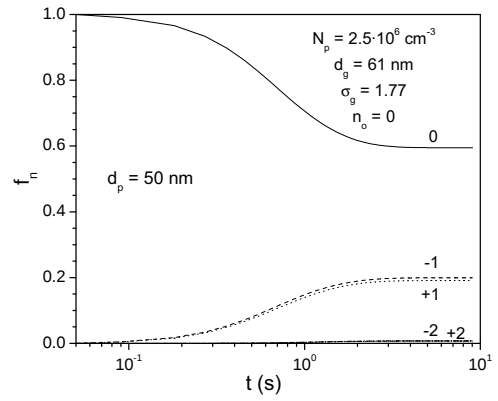
In the simulations with polydisperse aerosols, particle losses in the grids were taken into account. Thus, the aerosol particle size distributions measured at the inlet of the ionizer of ^{241}Am was corrected (Figure 5.7) according to the formula of Cheng & Yeh (1980). Then, the total concentration of particles in the diluted and non-diluted aerosols that entered the charging region of the ionizer was, respectively, $1.24 \cdot 10^5$ and $2.06 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$. These values are lower than the values of the particle concentration, $1.5 \cdot 10^5$ and $2.5 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$, measured in the aerosol upstream.

Figure 5.14 shows the evolution with time of the fraction of particles with different charge states f_n in the aerosol within the ionizer. They correspond to particles of 50 and 250 nm in the experiments with dilution and with no dilution of the aerosol. In the simulations, the time to attain stationary charging conditions varies between 2 and 4 s for particles in the size range of 50 to 250 nm and for the particle concentrations ($10^5 - 2 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$) of the polydisperse aerosols used in the experiments. Since the average residence time of the aerosols in the ionizer was 9 s, correspondent to a flow rate of $1.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$, particles were charged to steady-state in the ionizer of ^{241}Am in the experiments with polydisperse aerosols.

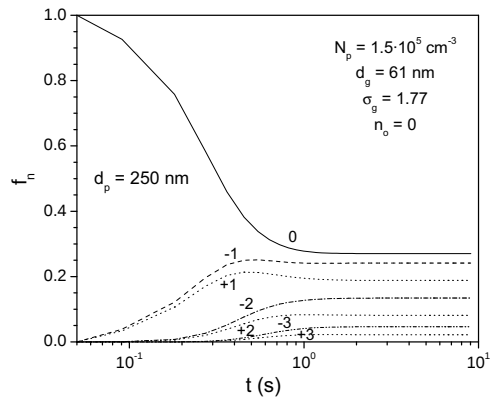
The particle charge distributions at the outlet of the ionizer of ^{241}Am calculated



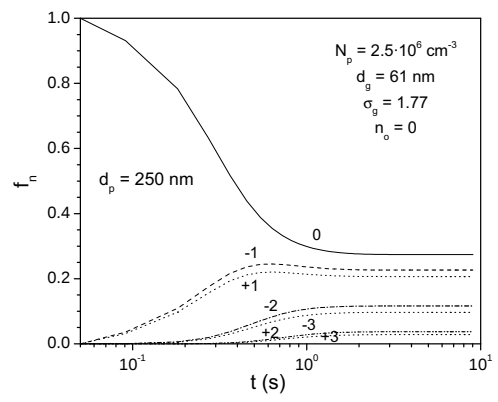
(a.1)



(a.2)



(b.1)



(b.2)

Figure 5.14: Evolution with time of the charge distribution of particles of 50 nm (a) and of 250 nm (b) in the ionizer of ^{241}Am in simulations with diluted (left) and non diluted (right) polydisperse aerosols.

in the simulations with diluted and non diluted aerosols are compared to the stationary charge distributions of Wiedensohler in Table 5.4 and in Figure 5.15. The numerical values correspond to a time of 9 s. This time is sufficient to attain the steady-state in the simulations; hence, the numerical values are the stationary values too. The stationary charge distribution shows the same tendency with the aerosol particle concentration N_p as in the simulations with monodisperse aerosols. For all particle sizes, the charge distribution shifts towards higher fractions of positively charged particles when increasing the concentration of particles in the aerosol. The largest differences between the fractions of negatively and positively charged particles correspond to the charge distribution of Wiedensohler. This is the stationary solution of the population balance equations for very low particle concentrations. The stationary charge distributions of the particles in the ionizer of ^{241}Am calculated numerically deviate slightly from the solution of Wiedensohler for aerosol particle concentrations of 10^5 cm^{-3} (diluted aerosol), whereas larger differences are observed for aerosol particle concentrations in the order of 10^6 cm^{-3} (non diluted aerosol).

5.1.3.4. Stationary charging

The influence of the aerosol particle concentration N_p on the stationary charge distribution in a radioactive ionizer of a given ion concentration N_i is investigated in this section; N_i is the concentration of bipolar ions in the atmosphere of the ionizer in absence of aerosols. In this case, ion depletion occurs by recombination of ions of opposite polarities. When an aerosol enters the ionizer, ions are removed from the atmosphere also by attachment to the particles. As mentioned in Section 3.1.3.4, the solution of the system of equation 3.12-3.15 has been widely investigated for the particular case in which ion depletion is dominated by ion recombination. Then, the particle balance equations decouple from the ion balance equations, which solution is $N_i^+ = N_i^- = N_i$. By substituting N_i and making equation 3.13 equal zero, a stationary solution is obtained, which is a function of the ion to particle attachment coefficients. Based on the Fuchs theory, equation 3.22, these coefficients can be evaluated numerically.

Table 5.4: Particle charge distributions at the outlet of the ionizer of ^{241}Am in the simulations with polydisperse aerosols at a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, and stationary particle charge distributions of Wiedensohler (1988).

d_p (nm)	N_p (cm^{-3})	n_0	Charger ^{241}Am	f_n (%)								
				-4	-3	-2	-1	0	+1	+2	+3	+4
50	-	-	Wiedensohler	-	-	1.14	22.29	58.14	16.96	0.66	-	-
	$1.5 \cdot 10^5$	0	numerical model	-	-	0.90	21.52	59.35	17.62	0.59	-	-
	$2.5 \cdot 10^6$	0	numerical model	-	-	0.78	19.93	59.48	19.10	0.69	-	-
100	-	-	Wiedensohler	-	0.37	5.61	27.93	42.59	21.38	3.17	0.17	-
	$1.5 \cdot 10^5$	0	numerical model	-	0.31	5.13	26.72	43.10	21.31	3.25	0.16	-
	$2.5 \cdot 10^6$	0	numerical model	-	0.25	4.40	24.83	43.31	23.17	3.82	0.20	-
150	-	-	Wiedensohler	0.13	1.68	9.54	27.90	34.76	21.49	5.53	0.75	0.05
	$1.5 \cdot 10^5$	0	numerical model	0.11	1.44	9.14	26.56	35.14	21.09	5.75	0.71	0.04
	$2.5 \cdot 10^6$	0	numerical model	0.08	1.15	7.87	24.74	35.41	23.00	6.78	0.91	0.06
200	-	-	Wiedensohler	0.53	3.40	12.11	26.41	29.91	20.43	7.19	1.53	0.18
	$1.5 \cdot 10^5$	0	numerical model	0.47	3.18	11.97	25.31	30.00	19.90	7.39	1.54	0.18
	$2.5 \cdot 10^6$	0	numerical model	0.35	2.53	10.34	23.66	30.33	21.77	8.75	1.97	0.25
250	-	-	Wiedensohler	1.17	5.07	13.65	24.65	26.55	19.11	8.21	2.27	0.40
	$1.5 \cdot 10^5$	0	numerical model	1.00	4.64	13.41	24.15	27.04	18.84	8.16	2.20	0.37
	$2.5 \cdot 10^6$	0	numerical model	0.74	3.72	11.63	22.64	27.43	20.66	9.68	2.82	0.51

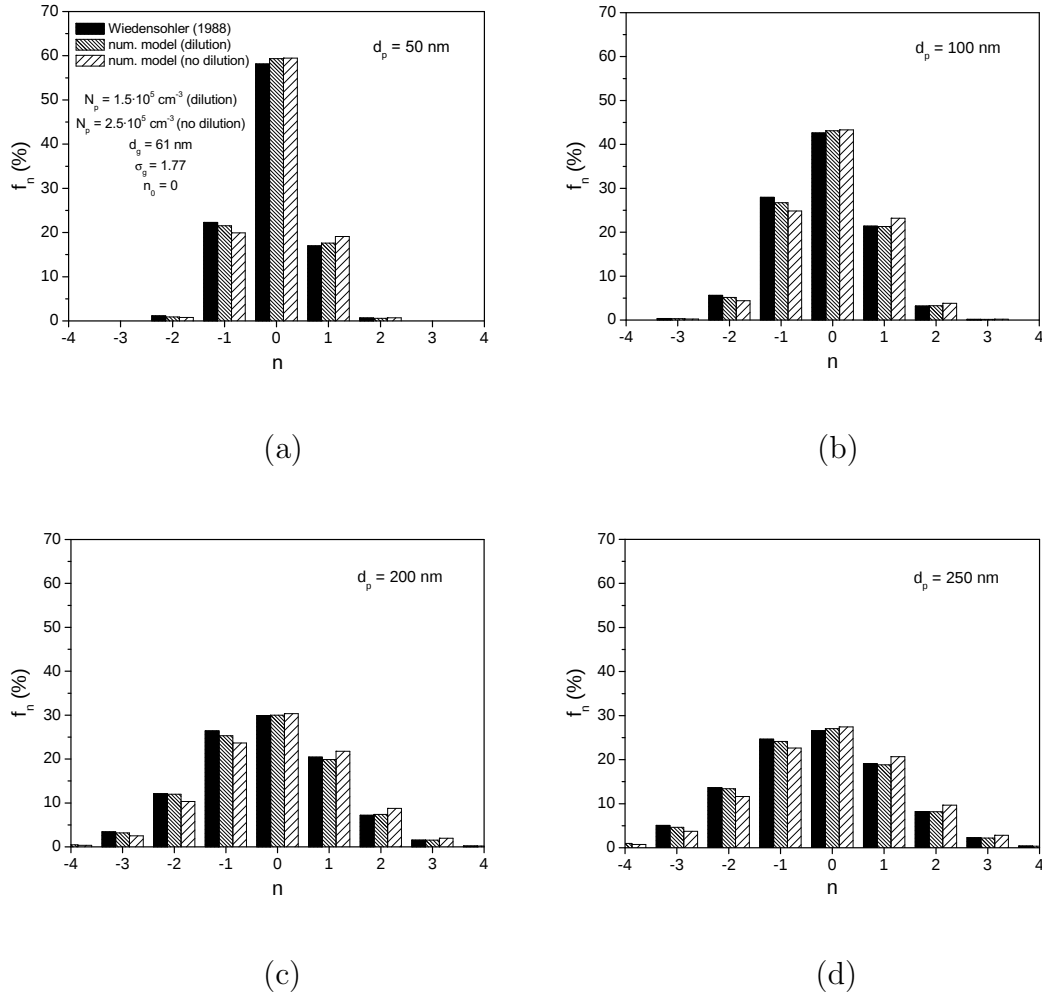


Figure 5.15: Charge distributions of particles of 50 nm (a), 100 nm (b), 200 nm (c) and 250 nm (d) at the outlet of the ionizer of ^{241}Am in simulations with diluted and non diluted polydisperse aerosols at a flow rate of $1.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$, and stationary charge distributions of Wiedensohler (1988).

In the approach proposed by [Wiedensohler \(1988\)](#) (equations 3.41 and 3.42), which reproduces with good accuracy the stationary charge distributions calculated numerically by Fuchs, the stationary charge distribution does not depend on the particle concentration N_p . However, as the concentration of particles in the aerosol increases, the rate of ion depletion by attachment to the particles increases too, up to the point that the term $\eta^\pm N_i^\pm N_p$ must be retained in the ion balance equations. We have studied the influence of the particle concentration N_p on the stationary charge distribution in the weak radioactive ionizer of ^{241}Am . The study covers particle sizes in the range of interest in this work, 50 to 250 nm, and particle concentrations between 10^{-2} and 10^2 times the concentration of ions in the atmosphere of the ionizer of ^{241}Am , $N_i = 1.1 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$ (see Table 5.1). Uncharged monodisperse aerosols were assumed at the entrance to the ionizer in the simulations.

Figure 5.16 shows the stationary values of the concentration of bipolar ions $N_i^\pm$ and of the ratio of ion concentrations N_i^+/N_i^- in the atmosphere of the ionizer as a function of the particle to ion concentration ratio N_p/N_i , for particles of 50 and 250 nm. Besides, the ratio of positively charged ions to the maximum ion concentration N_i^+/N_i and the ratio of ion concentrations N_i^+/N_i^- is plotted as a function of the ratio N_p/N_i for particles of all sizes in Figure 5.17. As a result of the attachment of ions to particles, the concentration of bipolar ions starts deviating from its maximum value N_i for values of the particle concentration in the order of 10^{-2} times N_i . As it is observed in Figure 5.16, the larger is the particle size, the faster is also the depletion of ions when increasing the particle concentration. Moreover, since the negatively charged ions have a higher diffusivity than the positively charged ones, negatively charged ions are removed faster from the atmosphere too. This explains the increase of the ratio of ion concentrations with the particle to ion concentration ratio shown in Figure 5.17. It can be seen that the ratio N_i^+/N_i^- reaches a maximum value of nearly 1.2 for particles of all sizes [[Porstendörfer et al. \(1984\)](#)].

As the ratio of ion concentrations N_i^+/N_i^- increases when going from very low to very high particle concentrations, changes are expected in the stationary charge distribution of the particles in the ionizer of ^{241}Am too. The stationary charge

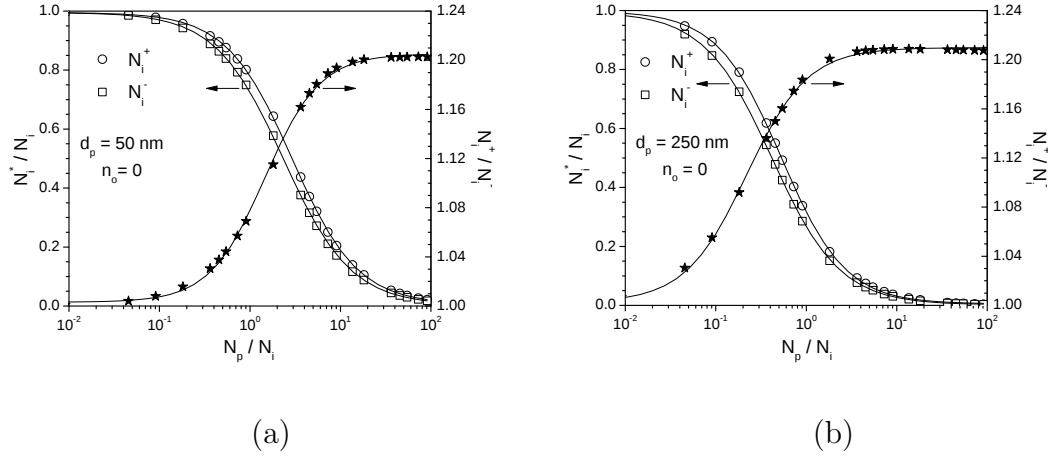


Figure 5.16: Stationary values of the concentration of bipolar ions and of the ratio of ion concentrations in the ionizer of ^{241}Am versus the particle to ion concentration ratio. Numerical predictions for uncharged monodisperse particles of 50 nm (a) and 250 nm (b).

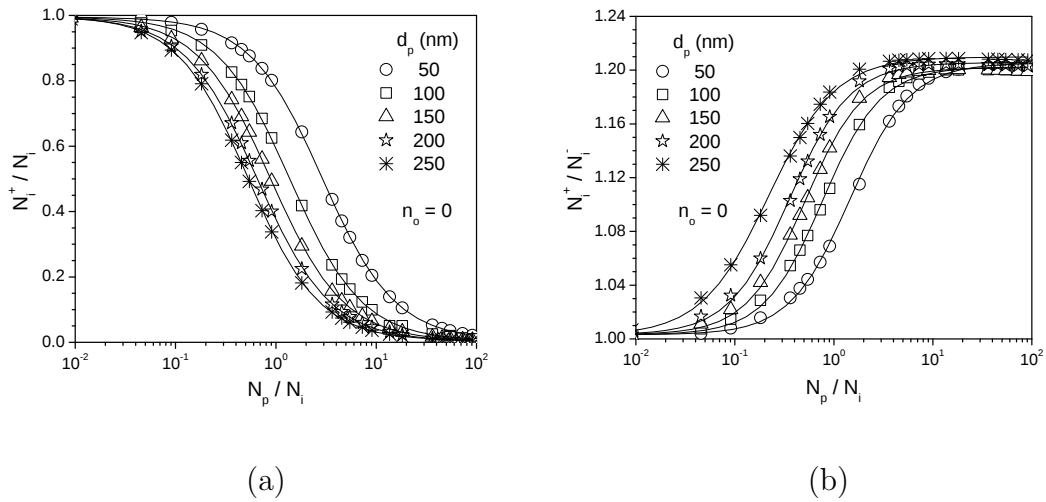


Figure 5.17: Stationary values of the concentration of positively charged ions (a) and of the ratio of ion concentrations (b) in the ionizer of ^{241}Am versus the particle to ion concentration ratio. Numerical predictions for uncharged monodisperse particles of 50, 100, 150, 200 and 250 nm.

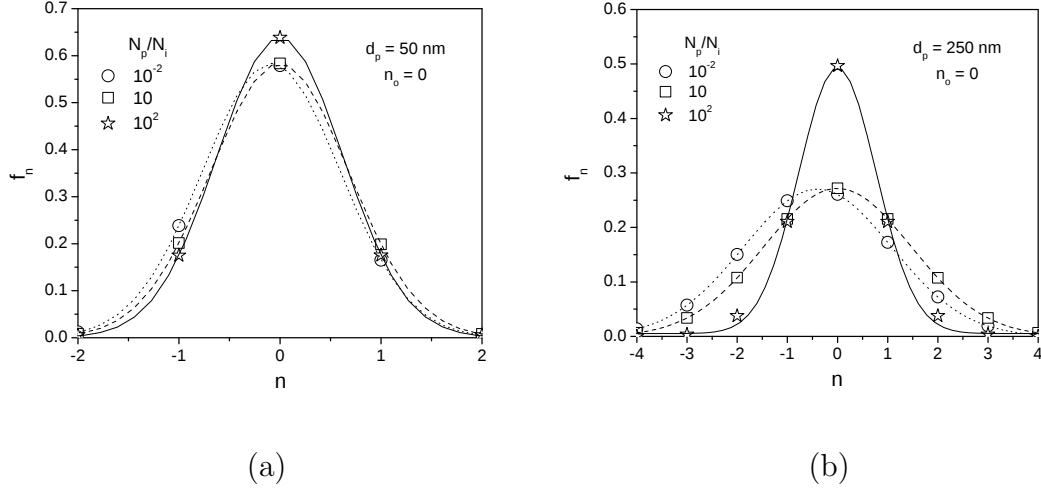


Figure 5.18: Stationary particle charge distributions in the ionizer of ^{241}Am versus the particle to ion concentration ratio. Numerical predictions for uncharged monodisperse particles of 50 nm (a) and 250 nm (b).

distributions predicted with the numerical model for uncharged monodisperse particles of 50 and 250 nm are displayed in Figure 5.18, for three different values of the particle to ion concentration ratio N_p/N_i . The simulations show that, in the limit $N_p/N_i \ll 1$, the concentration of ions of both polarities is the same ($N_i^+/N_i^- = 1$) and the stationary charge distribution is asymmetric with non zero mean. For values of the ratio N_p/N_i nearly 10, the ion concentration ratio N_i^+/N_i^- reaches the maximum value of 1.2; then, the stationary charge distribution becomes symmetric with zero mean. For values of the ratio N_p/N_i above 10, the stationary charge distribution remains symmetric but it gets narrower when increasing the particle concentration.

The mean charge n_{mean} of the stationary particle charge distribution in the ionizer of ^{241}Am is plotted as function of the particle to ion ratio in Figure 5.19, for particles of all the sizes. The values of n_{mean} are divided by the mean charge $n_{mean,0}$ of the stationary particle charge distribution correspondent to $N_p/N_i \ll 1$. It is concluded from Figures 5.17(b) and 5.19 that the mean charge of the stationary particle charge distribution is determined by the ratio of ion concentrations N_i^+/N_i^- . On the other hand, Figure 5.20 displays the stationary values of the

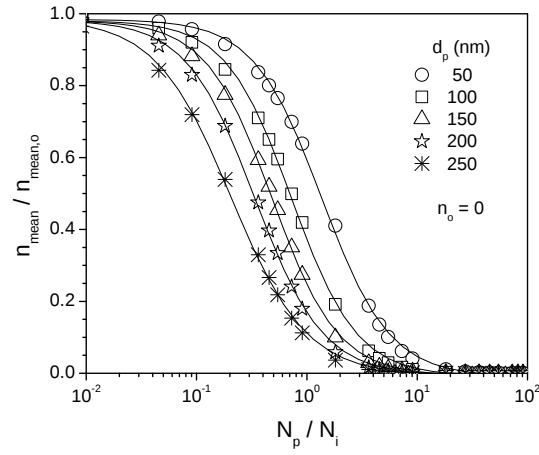


Figure 5.19: Mean charge of the stationary particle charge distributions in the ionizer of ^{241}Am versus the particle to ion concentration ratio. Numerical predictions for uncharged monodisperse particles of 50, 100, 150, 200 and 250 nm.

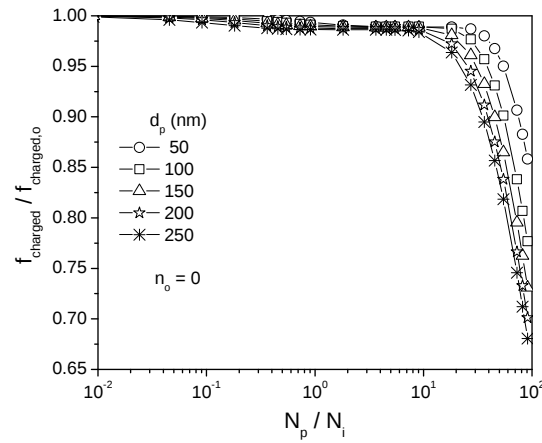


Figure 5.20: Stationary values of the total fraction of charged particles in the ionizer of ^{241}Am versus the particle to ion concentration ratio. Numerical predictions for uncharged monodisperse particles of 50, 100, 150, 200 and 250 nm.

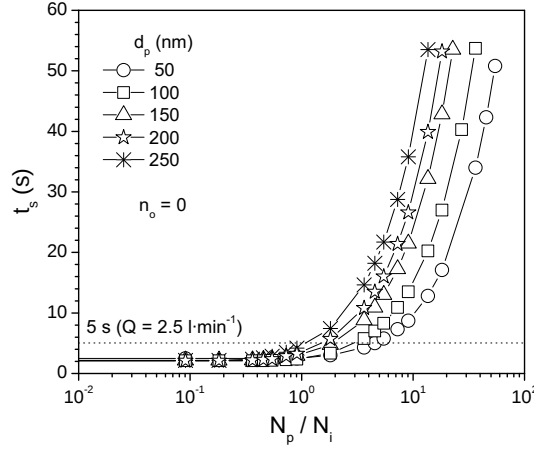


Figure 5.21: Time to attain the steady-state in the ionizer of ^{241}Am versus the particle to ion concentration ratio. Numerical predictions for uncharged mono-disperse particles of 50, 100, 150, 200 and 250 nm.

fraction of charged particles f_{charged} as a function of the ratio N_p/N_i , for particles of all sizes. The values of f_{charged} are divided by the fraction of charged particles $f_{\text{charged},o}$ in the limit $N_p/N_i \ll 1$. The fraction of charged particles decreases smoothly up to the point at which the particle charge distribution becomes symmetric, $N_p/N_i \approx 10$, and it falls down steeply when increasing further the particle concentration. This explains the abrupt narrowing of the stationary charge distribution when increasing the particle concentration in an order of magnitude, $N_p/N_i = 10^2$, that is observed in Figure 5.17, especially for particles of 250 nm.

Finally, the dependence of the time to attain the steady-state t_s in the ionizer of ^{241}Am on the particle concentration was studied. The results are displayed as a function of the particle to ion concentration ratio N_p/N_i in Figure 5.21, for all particle sizes. In general, the rate at which the particle charge distribution approaches the steady-state is determined by the concentration of ions in the atmosphere of the ionizer $N_i^\pm$. As observed in Figure 5.17(a), for a given particle size, the ion concentration decreases when increasing the particle concentration. On the other hand, for a given particle concentration, the ion concentration decreases when increasing the particle size. Thus, the larger is the particle size and the larger is the particle concentration, the lower is the rate of particle charging

and, consequently, the larger is the time to reach the steady-state in the ionizer.

The results of the numerical study confirm the observations of the experiments on aerosol charging in the weak radioactive ionizer of ^{241}Am . Particle concentrations in the interval of 10^4 to 10^5 cm^{-3} and flow rates up to $2.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ were used in the experiments with monodisperse aerosols. Hence, the particle to ion concentration ratio N_p/N_i varied between 10^{-2} and 10^{-1} , and the average residence time of the aerosols in the ionizer was larger than 5 s. In these conditions, monodisperse particles in the size range of 50 to 250 nm are charged to the steady-state in the ionizer, as shown in Figure 5.21. Moreover, for values of N_p/N_i in the interval $10^{-2} - 10^{-1}$, the concentration of positively charged ions exceeds the concentration of negatively charged ions, so the stationary charge distribution of the particles in the ionizer of ^{241}Am differs slightly from the solution of Wiedensohler, which was obtained under the assumption that the concentrations of bipolar ions in the atmosphere of the ionizer are equal.

On the other hand, particle concentrations of 10^5 and $2\cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$ and a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ were used in the experiments with polydisperse aerosols. Thus, the particle to ion concentration ratio N_p/N_i took values in the order of 10^{-1} and 20, and the average residence time of the aerosols in the ionizer was 9 s. Also in this case particles of sizes between 50 and 250 nm were charged to the steady-state in the ionizer of ^{241}Am . The simulations show that the stationary charge distribution of the particles correspondent to a value of 20 of the ratio N_p/N_i deviates largely from the solution of Wiedensohler, and it approaches a symmetric charge distribution.

5.2. Corona Unipolar Charger

5.2.1. Experimental Results

5.2.1.1. Optimal configuration and operating conditions

To reduce multiply charging of submicron particles, the configuration and the operating conditions of the corona charger must be optimized. The aim is to attain the value of the N_it product for which the fraction of singly charged particles and the extrinsic charging efficiency are enhanced to the maximum, while multiply charged particles are reduced to the minimum. In the corona charger under study, the N_it product depends on four parameters: the corona voltage U_W , the grid length L_G , the grid voltage U_G , and the flow rate Q .

The corona onset voltage was measured experimentally and a value about 3.8 kV was found, as shown in Figure 5.22. This value is close to the theoretical value of 3.6 kV calculated with equation 2.37. An increase in the voltage leads to a progressively increasing current until spark over occurs, which shows the electrical break-down of the gas. It was observed also that the minimum voltage required to guarantee a stable and constant ion current was 4.5 kV. Thus, this value was chosen for the operational corona voltage of the charger.

Then, several series of experiments were carried out in order to determine the optimal grid configuration and the optimal grid voltage for singly charging of submicron aerosols. A grid with squared orifices of 0.8 mm side and a length of 15 mm was used in the first place. Different constant voltages $U_{G,const}$ and pulse voltages $U_{G,pulse}$ were applied to the grid. Figure 5.23 shows the normalized mobility distributions measured at the outlet of the corona charger in experiments with monodisperse particles of 80 nm and a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$. It can be seen (a) that the level of charging of the particles decreases when decreasing the constant voltage $U_{G,const}$ applied to the grid. On the other hand, we used the LabView programme to generate pulse voltages of amplitude +5 V, frequency 10 kHz and variable duty cycle. It is observed (b) that the level of charging of the

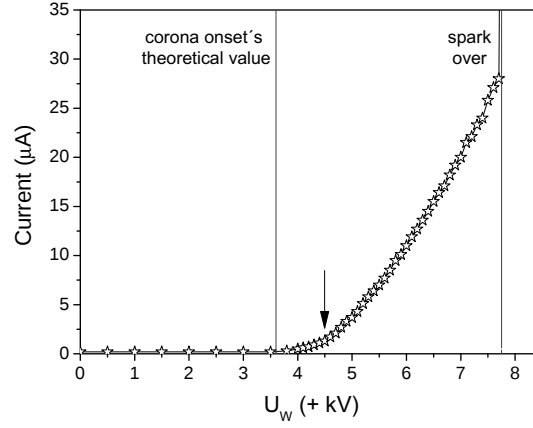


Figure 5.22: Current-voltage relationship in the corona unipolar charger.

particles diminishes when reducing the duty cycle. The results show that for the purpose of single charging, the most favourable situation is the one in which a zero constant voltage is applied to the grid.

However, ideally, ions and particles should mix uniformly in the charging region. To meet that goal, the ions that enter the charging zone through the grid have to spread out and fill the free volume between the electrodes quickly, in times much shorter than the residence time of the flow in the charging region. When a constant zero voltage is applied to the grid, the electric field between the electrodes is null; hence the ions move in the radial direction only by diffusion. In this case, the time it takes the ions to migrate from the grid to the outer electrode can be estimated by means of the expression

$$t_{diff} = \frac{(r_o - r_i)^2}{2D_i} \quad (5.3)$$

on average, the residence time of the flow in the charging region is given by

$$t_{con} = \frac{\pi(r_o^2 - r_i^2)L_G}{Q} \quad (5.4)$$

For the values of the ion diffusivity D_i in Table 3.2, a diffusive time t_{diff} about 12 s is obtained, whereas for the flow rate used in the experiments ($Q=1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$), the average convective time t_{con} is nearly 0.7 s. It means that with a zero constant

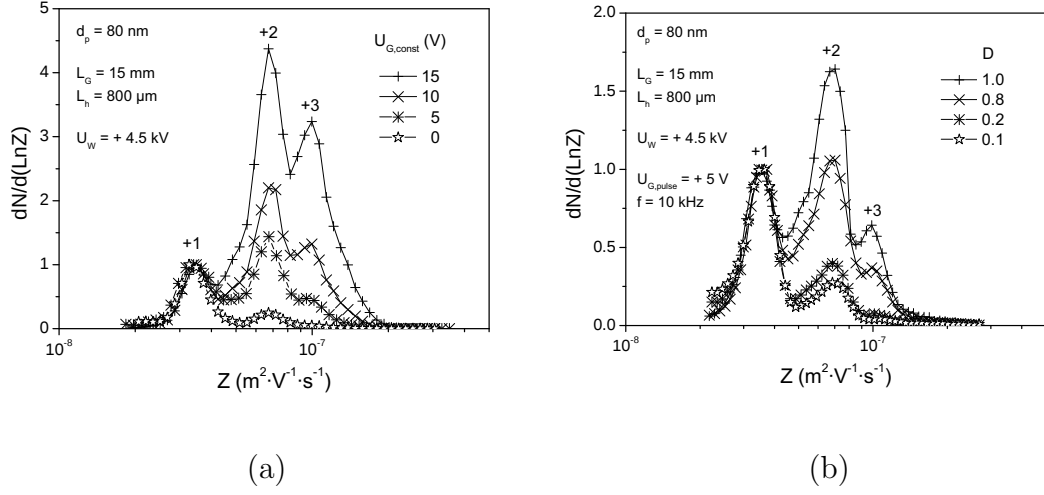


Figure 5.23: Normalized mobility distributions of positively charged particles of 80 nm measured at the outlet of the corona charger in experiments with constant voltage (a) and pulse voltage (b) on the grid of 15 mm length and a flow rate of $1.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$.

voltage on the grid, the ions penetrate only a very short radial distance in the region between the electrodes; hence, the mixing of ions and particles in that region is very poor. This problem is overcome by applying a positive voltage to the outer grid, which speeds up the movement of ions from the grid toward the outer electrode. To estimate the migration time of the ions across the annular gap due to the electrostatic field, we used the expression

$$t_{el} = \frac{(r_o - r_i) \left(\frac{r_o + r_i}{2} \right) \ln \left(\frac{r_o}{r_i} \right)}{Z_i U_G} \quad (5.5)$$

then, the minimum voltage that needs to be applied to the grid is calculated by assuming $t_{el} = t_{con}$, with the result

$$U_{G,min} = \frac{Q \ln \left(\frac{r_o}{r_i} \right)}{2\pi Z_i L_G} \quad (5.6)$$

for the values of the ion mobility Z_i in Table 3.2, a flow rate Q of $1.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$ and a grid length L_G of 15 mm, $U_{G,min}$ is in the order of 1 V.

On the other hand, when a positive voltage is applied to the grid, the particles that acquire positive charges as a consequence of the ion collisions migrate and

deposit onto the wall of the outer electrode. For a given value of the voltage on the grid, higher particle losses are expected in constant voltage mode than in pulse voltage mode. The reason is that particles remain longer time in the charging zone when a pulse voltage is applied, since radial migration is delayed a time equal to the fraction of the pulse period in which the grid voltage is zero (see Figure 3.7).

As Figure 5.23(a) shows, in the series of experiments in which a pulse voltage was applied to the grid, a significant fraction of doubly charged particles was found even when the duty cycle (duration of the voltage of +5 V) was only 10 % of the pulse period, and higher fractions of multiply charged particles were observed for particles larger than 80 nm. Then, it was decided to reduce both the open area and the length of the grid, in an attempt to reduce the concentration of ions in the charging zone N_i . Experiments were performed with two grids having squared orifices of 0.2 mm side and lengths of 7.5 and 3 mm. Figure 5.24 displays the normalized mobility distributions measured at the outlet of the corona charger in experiments with monodisperse particles of 250 nm at a flow rate of $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ and a pulse voltage on the grids. The mobility distributions of positively charged particles correspondent to the commercial charger of ^{210}Po are plotted also for comparison. It can be seen (a) that the charge distribution that the particles of 250 nm acquire in the corona charger with the shortest grid (3 mm) and a duty cycle of 0.1 matches closely the charge distribution of the positively charged particles in the radioactive charger. Equation 5.6 was used to calculate the minimum grid voltage $U_{G,min}$ necessary for the ions to reach the outer electrode before leaving the charging region of 3 mm length; a value of 4.5 V was obtained. This value is close to the value of 5 V supplied by the programmes used to generate the pulse voltage in the experiments. The results showed that by using the grid of 3 mm length and properly tuning-up the duty cycle of the pulse voltage, high fractions of singly charged particles and minor fractions of multiply charged particles can be attained. Then, it was decided to use the grid of 3 mm length for the rest of the experiments reported in this paper.

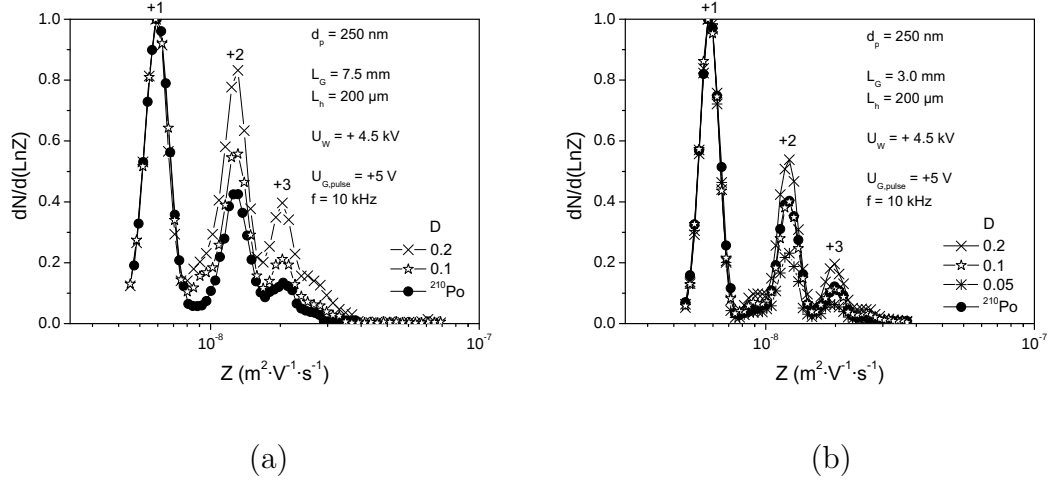


Figure 5.24: Normalized mobility distributions of positively charged particles of 250 nm measured at the outlet of the radioactive bipolar charger (^{210}Po) and at the outlet of corona charger in experiments with pulse voltage on the grids of 7.5 mm length (a) and 3 mm length (b) and a flow rate of $1.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$.

5.2.1.2. Charging efficiency

The extrinsic charging efficiency ξ_{ext} is one of the quantities that are commonly used to assess the performance of aerosol chargers. We measured diffusional losses of particles in the size range under study (50-250 nm) in the corona charger. Negligible particle losses were found in the device. Hence, $N_{diff} = 0$, and equations 4.9, 4.10 and 4.11 take the form

$$\xi_{int} = 1 - \frac{N_{out}^0}{N_{diff}} \quad (5.7)$$

$$\xi_{ext} = \frac{N_{out}^{tot} - N_{out}^0}{N_{in}} \quad (5.8)$$

$$Losses_{el} = 1 - \frac{N_{out}^{tot}}{N_{in}} \quad (5.9)$$

Equation 5.8 is used to calculate ξ_{ext} in the corona unipolar charger. In addition, we measured the charge distribution of the particles at the outlet of both the

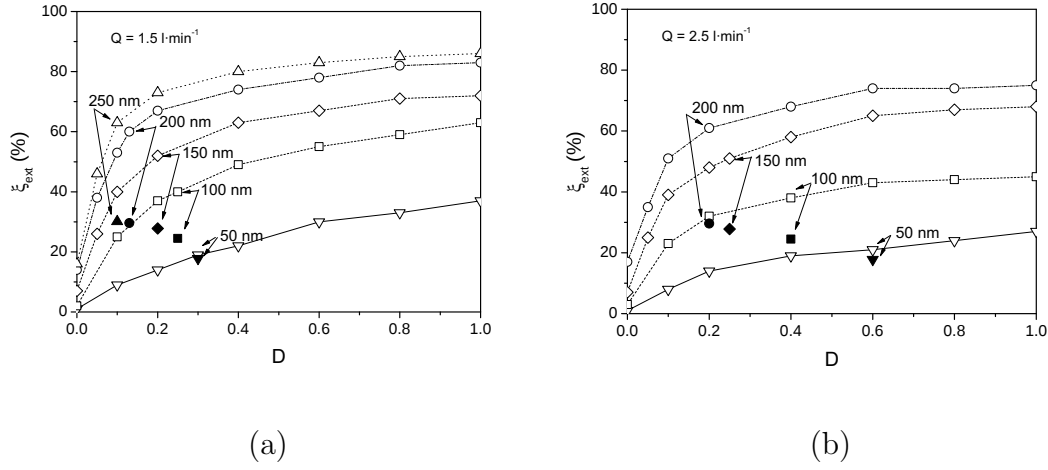


Figure 5.25: Experimental values of the extrinsic particle charging efficiency in the corona charger ξ_{ext} versus the duty cycle of the pulse voltage applied to the grid (open symbols) and values of the total fraction of positively charged particles in a radioactive charger calculated by Wiedensohler ξ^* (solid symbols), for particles of various sizes and flow rates of $1.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$ (left) and $2.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$ (right).

corona charger and the radioactive charger of ^{210}Po used as reference. The values of ξ_{ext} obtained with the corona charger are plotted in Figure 5.25 as a function of the duty cycle of the pulse voltage applied to the grid, for two values of the aerosol flow rate typically used in mobility analysis, $1.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$ (a) and $2.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$ (b). We determined the values of the duty cycle of the pulse voltage D^* at which the charge distribution that the particles acquire in the corona charger is similar to the charge distribution of the positively charged particles in the charger of ^{210}Po . The latter is usually well approximated by the stationary charge distribution of Wiedensohler (1988). Thus, we used the Wiedensohler's formula to calculate the total fraction of positively charged particles in the radioactive charger ξ^* , and we compared it to the extrinsic efficiency ξ_{ext} measured with the corona unipolar charger. The pairs (D^*, ξ^*) are represented by solid symbols in Figure 5.25. It can be seen that D^* diminishes when increasing the particle size and, for a given particle size, it increases with the flow rate. An important result is that, for the same distribution of positively charged particles in the two aerosol chargers (D^*), higher charging efficiencies are attained with the corona unipolar charger (ξ_{ext})

than with the radioactive bipolar charger (ξ^*), for all particle sizes and flow rates.

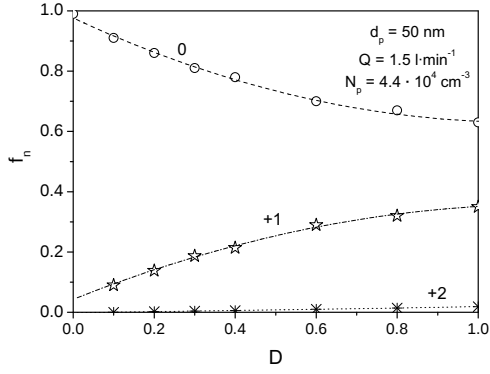
5.2.1.3. Particle charge distribution

The mobility distribution of the particles was measured at the outlet of the corona charger, and from these distributions the fractions of particles carrying different number of elementary charges were derived. The fraction of uncharged particles was measured by turning the voltage applied to ESP2 off and on. The fractions of uncharged particles and positively charged particles f_n ($n = 0, +1, +2, +3, \dots$) are plotted in Figure 5.26 for all particle sizes under study and flow rates of 1.5 and 2.5 l·min⁻¹. In the experiments, the number concentration of monodisperse particles varied in the range of 10^4 to 10^5 cm⁻³. It can be seen that, for a given particle size, the fractions of particles of all charge states decrease when the duty cycle of the pulse voltage decreases and when the flow rate increases; in other words, when the $N_i t$ product diminishes (see Figure 5.29). A major advantage of our corona charger is that it allows reducing multiple charging of submicron aerosols to levels below the ones found in conventional radioactive chargers, just by applying a pulse voltage to the inner electrode and tuning up the duty cycle, which is a variable parameter. When reducing the duty cycle the fractions of both singly and multiply charged particles diminish; hence the optimal value of this parameter must be determined for any specific application.

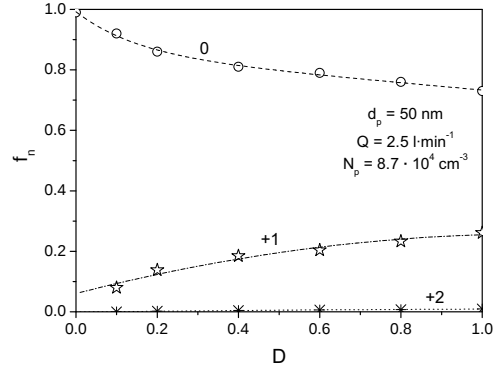
5.2.2. Experiments versus Theoretical Model

5.2.2.1. Estimation of the $N_i t$ product

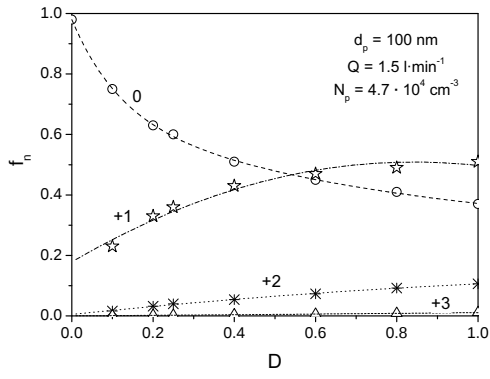
Estimations of the $N_i t$ product in the charging region allow predicting the charging levels of the particles. As described in section 3.2.2, the ion concentration N_i can be estimated based on measurements of the ion current I_{ion} , which depends on the corona voltage and on the grid voltage. To measure I_{ion} an insulated foil was placed on the inner side of the outer cylinder of the corona charger, opposite the grid, and connected to an electrometer. Then, we fixed the corona voltage to



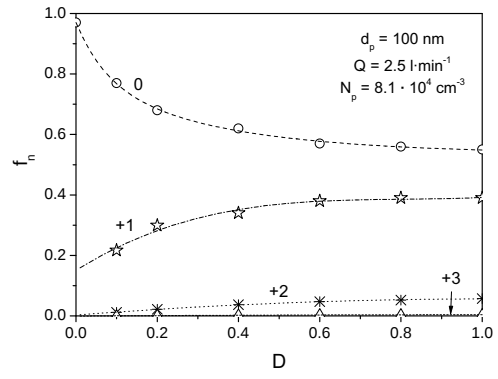
(a.1)



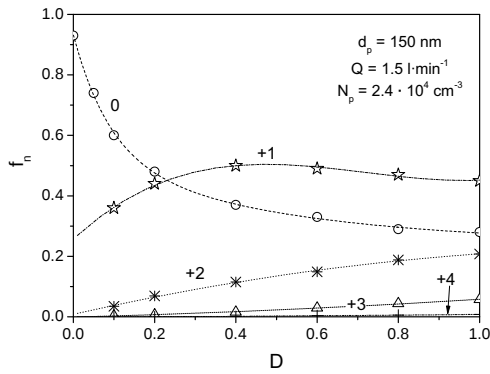
(a.2)



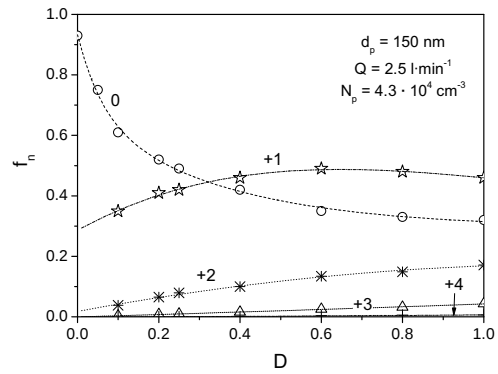
(b.1)



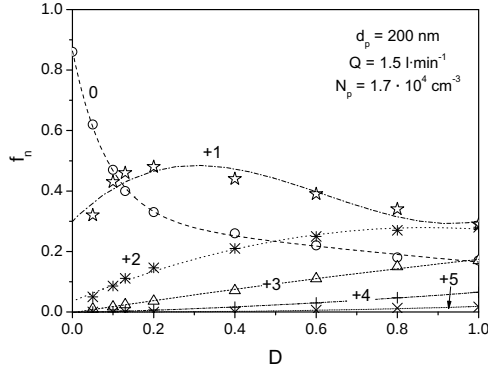
(b.2)



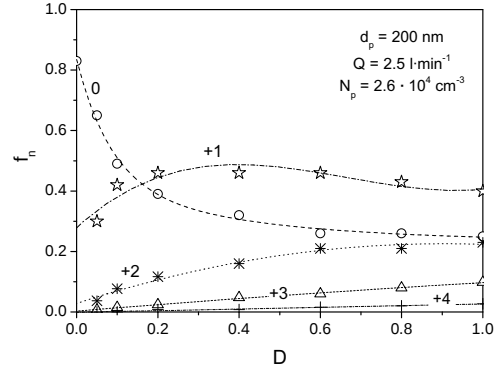
(c.1)



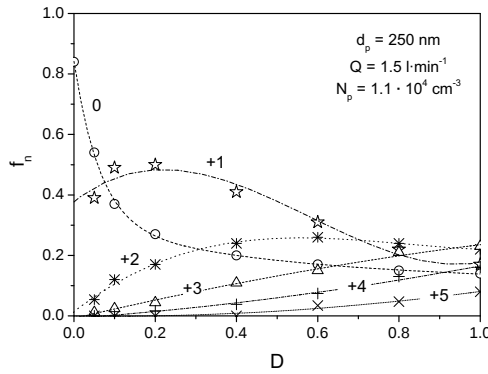
(c.2)



(d.1)



(d.2)



(e)

Figure 5.26: Charge distributions of particles of 50 nm (a), 100 nm (b), 150 nm (c), 200 nm (d) and 250 nm (e) measured at the outlet of the corona charger versus the duty cycle of the pulse voltage applied to the grid for flow rates of $1.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$ (left) and $2.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$ (right).

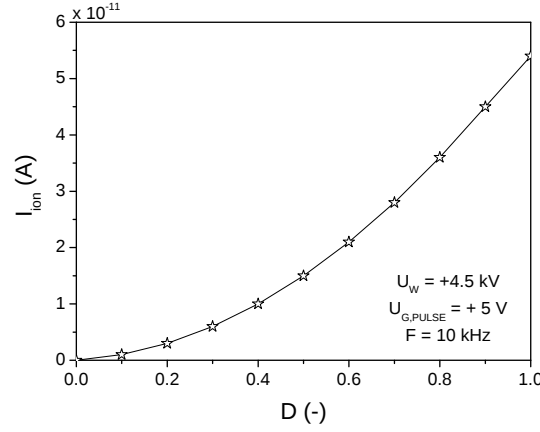


Figure 5.27: Experimental values of the ion current versus the duty cycle of the pulse voltage applied to the grid.

+4.5 kV and a pulse voltage of amplitude +5 V, frequency 10 kHz and different duty cycle values was applied to the grid (0.2 mm side and 3 mm length). Then, we measured the ion current I_{ion} as a function of the duty cycle of the pulse voltage D , with the result shown in Figure 5.27. An increase in the duty cycle leads to a progressively increasing ion current.

The radial distribution of the ion concentration N_i and the radial distribution of the $N_i t$ product in the charging region of the corona charger are displayed in Figure 5.28, for several values of the duty cycle D . To calculate $N_i(r)$ equation 3.54 was used, with the electric field $E(r)$ given by equation 3.50 and the values of the ion current I_{ion} measured experimentally. To evaluate $t(r)$ equation 3.55 was used, with the flow velocity profile $v(r)$ given by equations 3.56 and 3.57 and a flow rate Q of 1.5 l·min⁻¹. As it can be seen in Figure 5.28(a), the concentration of ions in the charging region varied in the range of $4 \cdot 10^{11}$ to $4 \cdot 10^{13}$ m⁻³ for values of the duty cycle between 0.1 and 1.0 (pulse voltage of +5V). Then, the average value of the $N_i t$ product in the charging region $\bar{N}_i t$ was estimated by solving numerically equation 3.58. The values of $\bar{N}_i t$ so obtained are plotted as a function of the duty cycle in Figure 5.29 for flow rates of 1.5 and 2.5 l·min⁻¹.

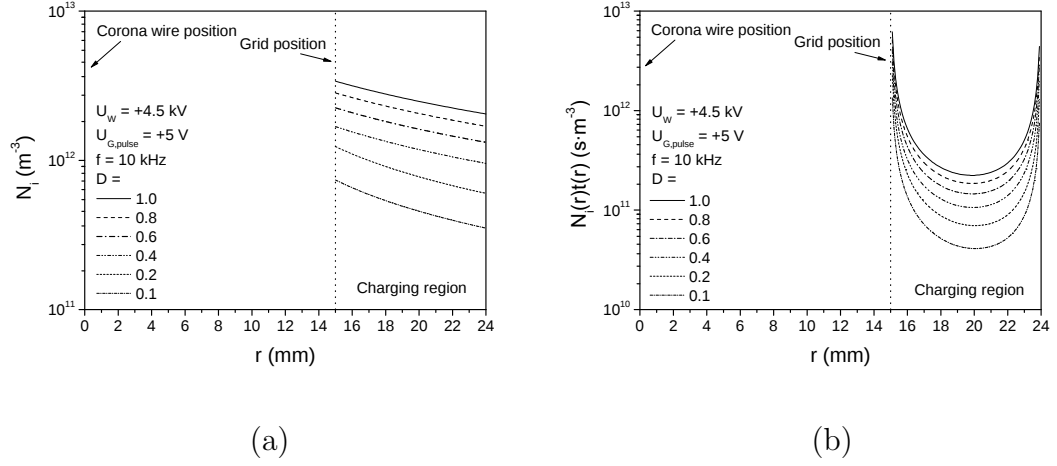


Figure 5.28: Radial profiles of the ion concentration N_i (a) and of the $N_i t$ product (b) in the charging region for several values of the duty cycle of the pulse voltage applied to the grid and a flow rate of $1.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$.

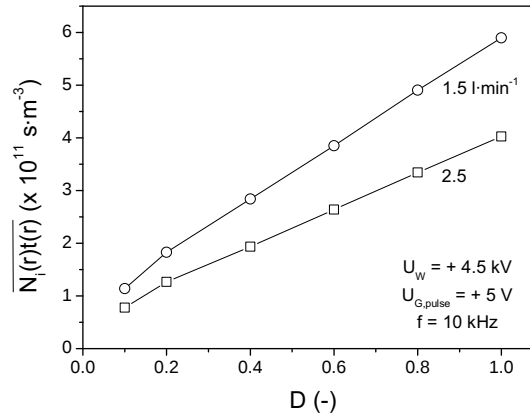


Figure 5.29: Mean value of the $N_i t$ product in the charging region versus the duty cycle of the pulse voltage applied to the grid, for flow rates of 1.5 and $2.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$.

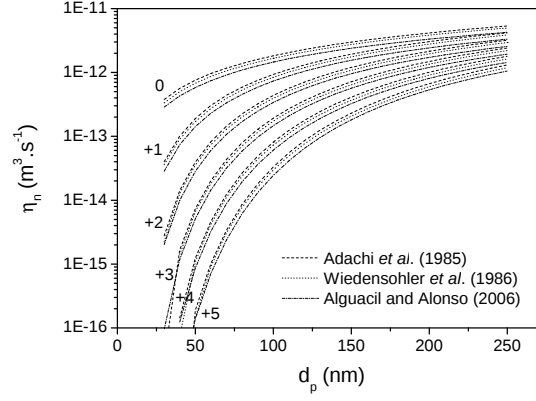
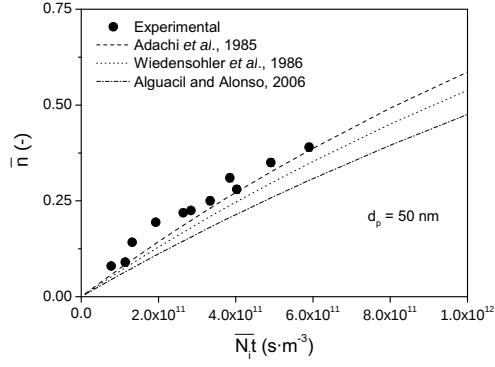


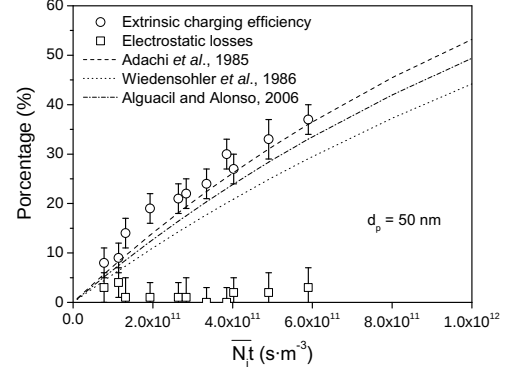
Figure 5.30: Ion to particle attachment coefficients predicted by the Fuchs' theory for values of the mobility and mass of air ions (+) reported by different authors.

5.2.2.2. Mean number of charges

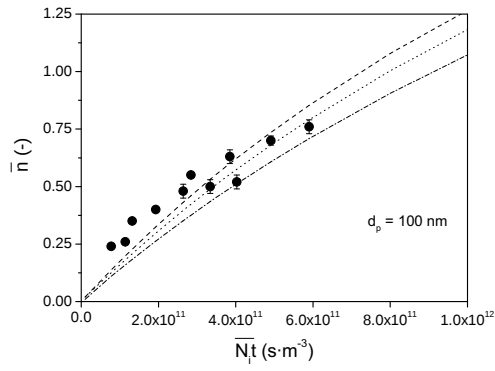
Figure 5.31 shows the more important parameters in charging process as a function of the particle diameter and the average of the $N_i t$ product established in the charger. The first charging parameter represented in the left plots is the mean number of charges per particle $\bar{n}$, calculated as the average of the values showed in Figure 5.26, for each specific operation condition and particle size. The experimental values of $\bar{n}$ are compared with the theoretical values (dashed lines) predicted by diffusion theory of Fuchs and using the equations that represent the analytical solution of the unipolar diffusion charging (equations 3.61 and 3.62). For the calculation of the attachment coefficients based on the Fuchs' limiting sphere theory we follow the equations written in section 3.1.3.2. As the electrical mobility and the mass of the air ions in our experiments were unknown, we assumed the values of Z_i and m_i used by three different authors, [Adachi et al. \(1985\)](#)- [Vohra et al. \(1969\)](#), [Wiedensohler et al. \(1986\)](#) and [Alonso et al. \(2006\)](#), listed in Table 3.2. Figure 5.30 shows the attachment coefficients of positively charged ions and particles in the size range of interest predicted by the Fuchs' theory. The second and third charging parameters represented in the right plots are the extrinsic charging efficiency and the electrostatic losses corresponding to each specific operation condition and particle size.



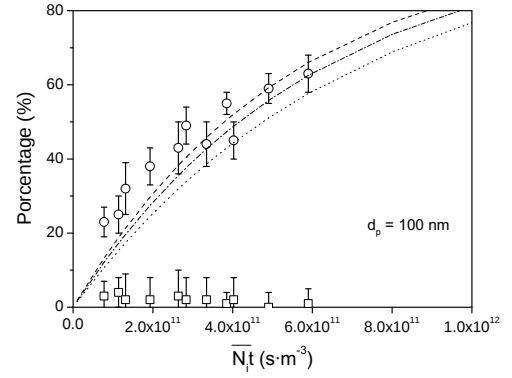
(a.1)



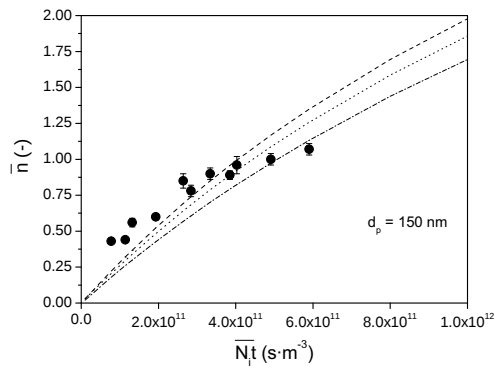
(a.2)



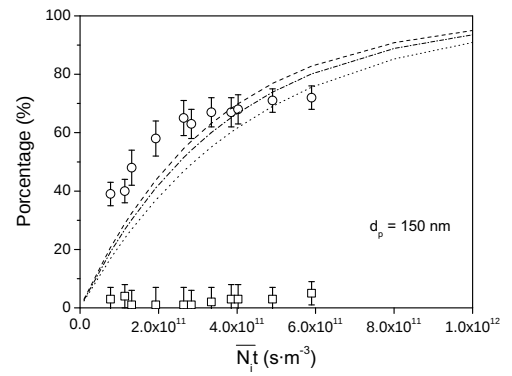
(b.1)



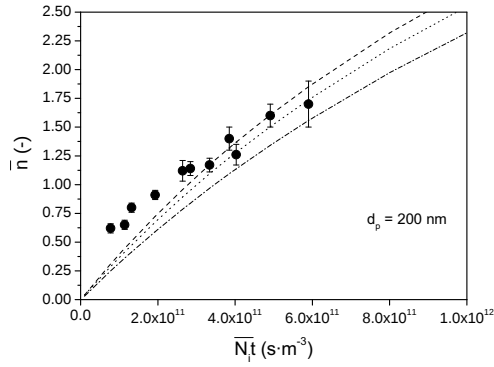
(b.2)



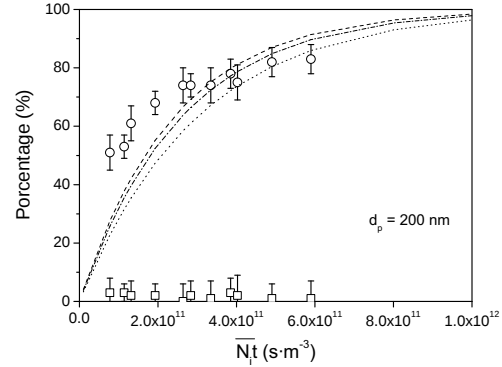
(c.1)



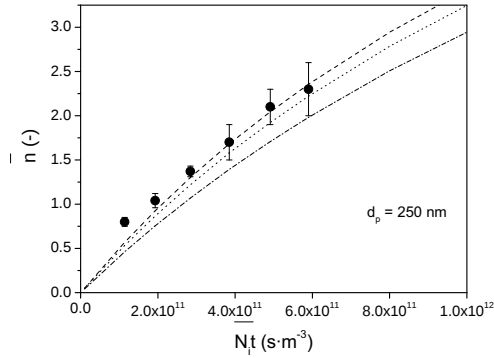
(c.2)



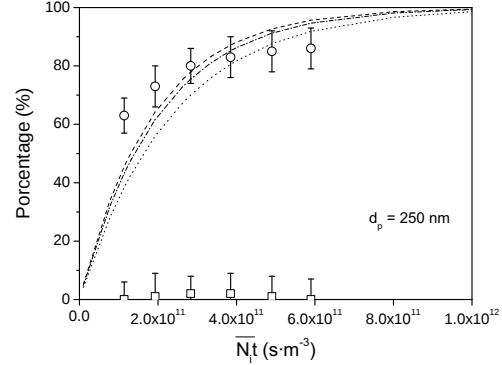
(d.1)



(d.2)



(e.1)



(e.2)

Figure 5.31: Mean number of charge per particles (left) and extrinsic charging efficiency and electrostatic losses (right) as a function of the $\bar{N}_i t$ product, for particles of 50 nm (a), 100 nm (b), 150 nm (c), 200 nm (d) and 250 nm (e). The lines show theoretical calculations using Fuchs' limiting sphere theory using attachment coefficients calculated with ion properties assumed by different authors.

Left plots in Figure 5.31 show for $N_i t$ conditions between $8 \cdot 10^{10}$ and $6 \cdot 10^{11} \text{ s} \cdot \text{m}^{-3}$, the mean number of charges per particle are inferior to 1 for the two smallest particle sizes under study (50 and 100 nm), and inferior to 2 for the biggest particle sizes (200 and 250 nm). The measurements agree with the theoretical predictions for highest $N_i t$ products and for the ion properties reported by Adachi *et al.* (1985) ($Z_i = 1.40 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ and $m_i = 109 \text{ amu}$). The observed deviations for the lowest $N_i t$ products can be explained due to the errors introduced when ion current measurements were done for the lower duty cycles, because of those were measured inside the minimum range of the electrometer. Right plots show the extrinsic charging efficiency for each charging condition, and the electrostatic losses produced inside the charger, which were inferior to 5 % in all the cases and particle sizes.

Capítulo 6

Conclusions

The main conclusions of the Thesis are summarised in this chapter. This work was aimed at investigating the performance of two new aerosol chargers, a weak radioactive bipolar charger and a modified corona unipolar charger, for charging of aerosols in the submicron size range. The final objective is to use these devices in DMA based applications such as the measurement of particle size distributions (radioactive charger) and the generation of monodisperse particles (corona charger).

6.1. Weak radioactive bipolar charger

- The feasibility of weak radioactive sources for the charging of submicron aerosols with relatively low particle concentrations has been proved. With a proper election of the radioactive isotope based on the emitted radiation (type, energy) together with an optimal design of the charging device (geometry, volume, dimensions, flow distribution features, source location), low activity sources ($\approx \mu\text{Ci}$) allow for values of the N_it product comparable to the ones attained with high activity sources ($\approx \text{mCi}$) in current radioactive chargers.
- A radioactive ionizer based on a weak source of ^{241}Am ($0.24 \mu\text{Ci}$) has been

developed and characterized. The $N_i t$ product ranges from $6 \cdot 10^{12}$ to $3 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-3} \cdot \text{s}$, for aerosol flow rates between 0.5 and $2.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$. It has been demonstrated that the ionizer is suitable for charging polydisperse aerosols with particle sizes in the range of 50 to 250 nm. Stationary charging conditions are attained in the charger provided that the particle number concentration and the aerosol flow rate do not exceed, respectively, $2 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$ and $2.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$. Then, the charger can be used followed by a DMA for measuring size distributions of polydisperse particles in the size range mentioned previously.

- An inconvenience of the weak radioactive charger of ^{241}Am is the loss of particles (mainly of sizes below 100 nm) in the grids which serve to distribute the aerosol flow at the entrance to the charger. To overcome that problem it is recommended to operate the charger at low aerosol flow rates ($\approx 0.5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$). Otherwise, it has been found that the correlation of [Cheng & Yeh \(1980\)](#) is adequate to estimate particle losses in the grids.
- A numerical model based on the Fuchs theory of diffusion charging has been validated against the experiments with the charger of ^{241}Am . Good agreement between the experimental results and the numerical predictions was observed in all the cases.
- The numerical model was used to gain an insight into the influence of the aerosol particle concentration N_p on the stationary charge distribution that the particles attain in radioactive bipolar charger. Basically, two limiting cases exist. When the particle concentration is much lower than the ion concentration ($N_p/N_i \ll 1$), the concentration of ions of the two polarities in the gas is the same ($N_i^+/N_i^- = 1$) and the stationary charge distribution of the particles is asymmetric with non-zero mean [[Wiedensohler \(1988\)](#)]. For values of the particle concentration comparable to the ion concentration ($N_p/N_i \approx 1$), negatively charged ions are depleted faster than positively charged ions from the atmosphere due to ion attachment to the particles, and the concentration of positively charged ions becomes higher than the concentration of negatively charged ions ($N_i^+/N_i^- > 1$). When increasing

further the particle concentration ($N_p/N_i \gg 1$), the ratio of ion concentrations N_i^+/N^- reaches an asymptotic value of about 1.2 and the stationary charge distribution of the particles becomes symmetric with zero mean [[Porstendörfer et al. \(1984\)](#)]. This behaviour is general and applicable to any radioactive bipolar charger.

- The charger of ^{241}Am shows two major advantages with respect to radioactive chargers which use high activity sources. Firstly, the weak radioactive charger is cheaper, because of the much lower activity of the ^{241}Am source (0.24 μCi) as compared to the activity of the sources (^{85}Kr , ^{210}Po) used in commercial chargers (1-10 mCi). On the other hand, the activity of the ^{241}Am source is below the exemption limit imposed by the current legislation; thus the weak radioactive charger is not classified as radioactive material. It can be manipulated, transported and stored without restrictions, which is not the case of the radioactive chargers containing non-exempted sources.

6.2. Corona unipolar charger

- The feasibility of a corona unipolar charger for singly charging of submicron aerosols has been demonstrated. For that purpose, an existing corona charger [[Büscher et al. \(1994\)](#)] has been modified. By optimizing the design and the voltage applied to the inner electrode of the corona charger, the ion concentration (the $N_i t$ product) can be reduced to the desired level in order to minimize multiple charging of the aerosol particles. A rectangular (positive-zero) wave voltage is applied to the electrode. The pulse duration (fraction of time of the wave period during which the positive voltage is applied) is a variable parameter which allows for controlling the ion concentration in the charger N_i .
- The modified corona charger has been developed and characterized. Mean values of the $N_i t$ product in the charger are $8 \cdot 10^{11}$ and $6 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-3} \cdot \text{s}$ for aerosol flow rates of 1.5 and 2.5 $\text{l} \cdot \text{min}^{-1}$, respectively. It has been proved that the corona charger is suitable for single charging of polydisperse aerosols

with particle sizes in the range of 50 to 250 nm. Then, the charger can be used followed by a DMA as a source of monodisperse particles in that size range.

- The experimental results have validated a state of the art model for charging particles in a corona unipolar charger [[Büscher *et al.* \(1994\)](#), [Biskos *et al.* \(2005b\)](#)] based on the particle diffusion charging theory of Fuchs and taking into account the charge of the ions in the electrical field inside the charger. Also, it has been include a sensitivity study of the model predictions to the uncertainty of the electrical mobility and the mass of the ions, based on different values of theses parameters reported in the literature.
-

Bibliografía

- ADACHI, M., OKUYAMA, K. & KOUSAKA, Y. (1980). Electrical charging of uncharged aerosol particles under at bipolar ion concentrations. *Journal of Chemical Engineering of Japan*, **13**, 55–60. [46](#), [48](#), [72](#)
- ADACHI, M., OKUYAMA, K. & KOUSAKA, Y. (1983). Electrical neutralization of charged aerosol particles by bipolar ions. *Journal of Chemical Engineering of Japan*, **16**, 229–235. [46](#), [48](#), [115](#)
- ADACHI, M., KOUSAKA, Y. & OKUYAMA, K. (1985). Unipolar and bipolar diffusion charging of ultrafine aerosol particles. *Journal of Aerosol Science*, **16**, 109–123. [21](#), [46](#), [49](#), [54](#), [55](#), [56](#), [73](#), [81](#), [156](#), [159](#)
- ADACHI, M., OKUYAMA, K., KOUSAKA, Y. & KITADA, N. (1986). Diffusion charging of ultrafine aerosol particles by bipolar ions of unequal concentrations. *Journal of Chemical Engineering of Japan*, **19**, 214–221. [47](#), [49](#)
- ADACHI, M., DAVID, F.J. & PUI, D.Y.H. (1992). High-efficiency unipolar aerosol charger using a radioactive alpha source. *Journal of Aerosol Science*, **23**, 123–137. [55](#), [56](#), [58](#)
- ADACHI, M., PUI, D.Y.H. & LIU, B.Y.H. (1993). Aerosol charge neutralization by a corona ionizer. *Aerosol Science and Technology*, **18**, 48–58. [20](#), [51](#), [52](#)
- ALGUACIL, F.J. & ALONSO, M. (2006). Multiple charging of ultrafine particles in a corona charger. *Journal of Aerosol Science*, **37**, 875–884. [64](#), [65](#)
- ALONSO, M. & ALGUACIL, F.J. (2003). The effect of ion and particle losses in a diffusion charger on reaching a stationary charge distribution. *Journal of Aerosol Science*, **34**, 1647–1664. [68](#)

- ALONSO, M., KOUSAKA, Y., NOMURA, T., HASHIMOTO, N. & HASHIMOTO, T. (1997). Bipolar charging and neutralization of nanometer-sized aerosol particles. *Journal of Aerosol Science*, **28**, 1479–1490. [49](#)
- ALONSO, M., ALGUACIL, F., NOMURA, T. & KOUSAKA, Y. (2001a). Examination of after-charging effects downstream of an aerosol neutralizer. *Journal of Aerosol Science*, **32**, 287–294. [48](#)
- ALONSO, M., ALGUACIL, F. & NOMURA, T. (2001b). Turbulent deposition of aerosol nanoparticles on a wire screen. *Journal of Aerosol Science*, **32**, 1359–1367. [48](#)
- ALONSO, M., HERNÁNDEZ-SIERRA, A. & ALGUACIL, F.J. (2002). Diffusion charging of aerosol nanoparticles with an excess of bipolar ions. *Journal of Physics A: Mathematical and General*, **35**, 6271–6280. [78](#), [81](#)
- ALONSO, M., MARTIN, M. & ALGUACIL, F. (2006). The measurement of charging efficiencies and losses of aerosol nanoparticles in a corona charger. *Journal of Electrostatics*, **64**, 203–214. [110](#), [156](#)
- BIRD, R.B., STEWART, W.E. & LIGHTFOOT, E.N. (1994). *Transport Phenomena*. John Wiley and Sons. [90](#)
- BISKOS, G. (2004). *Theoretical and Experimental Investigation of the Differential Mobility Spectrometer*. Ph.D. thesis, University of Cambridge. [61](#), [63](#)
- BISKOS, G., REAVELL, K., HANDS, T. & COLLINGS, N. (2003). Fast measurements of aerosol spectra. *Journal of Aerosol Science*, **1**, S67–S68. [84](#)
- BISKOS, G., REAVELL, K. & COLLINGS, N. (2005a). Electrostatic characterisation of corona-wire aerosol chargers. *Journal of Electrostatics*, **63**, 69–82. [61](#), [63](#), [87](#)
- BISKOS, G., REAVELL, K. & COLLINGS, N. (2005b). Unipolar diffusion charging of aerosol particles in the transition regime. *Journal of Aerosol Science*, **36**, 247–265. [61](#), [63](#), [73](#), [91](#), [164](#)
-

- BOISDRON, K. & BROCK, J.R. (1970). On the stochastic nature of the acquisition of electrical charge and radioactivity by aerosol particles. *Atmospheric Environment*, **4**, 35–50. [22](#), [91](#)
- BRICARD, J. (1962). *Geofisica Pura e Applicata*, **51**, 237–242. [73](#)
- BRICARD, P. (1949). L'équilibre ionique de la basse atmosphere. *Journal of Geophysical Research*, **54**, 39–52. [73](#)
- BURKO, L.M. (2002). Self interaction near dielectrics. *Physical Review E*, **65**, 046618(5). [77](#)
- BURTSCHER, H., SCHERRER, L., SIEGMANN, H., SCHMIDT-OTT, A. & FEDERER, B. (1992). Probing aerosols by photoelectric charging. *Journal of Applied Physics*, **53**, 3787–3791. [17](#)
- BÜSCHER, P. & SCHMIDT-OTT, A. (1990). A new concept for a unipolar diffusion charger. *Journal of Aerosol Science*, **21**, S567–S570. [60](#), [62](#)
- BÜSCHER, P., SCHMIDT-OTT, A. & WIEDENSOHLER, A. (1994). Performance of a unipolar 'square wave' diffusion charger with variable nt-product. *Journal of Aerosol Science*, **25**, 651–663. [4](#), [6](#), [60](#), [62](#), [84](#), [87](#), [110](#), [163](#), [164](#)
- CEMBER, H. (1996). *Introduction to Health Physics*. McGraw-Hill, 3rd edn. [32](#)
- CHEN, D.R. & PUI, D.Y.H. (1999). A high efficiency, high throughput unipolar aerosol charger for nanoparticles. *Journal of Nanoparticle Research*, **1**, 115–126. [57](#), [58](#)
- CHENG, S.H., RANADE, M.B. & GENTRY, J.W. (1997). Experimental design of high volume electrostatic charger. *Aerosol Science and Technology*, **26**, 433–446. [63](#)
- CHENG, Y. & YEH, H. (1980). Theory of a screen-type diffusion battery. *Journal of Aerosol Science*, **11**, 313–320. [125](#), [134](#), [162](#)
- CIEMAT (2003). Curso de protección radiológica para supervisores de instalaciones radiactivas. Tech. rep. [31](#)
-

- COOPER, D.W. & REIST, P.C. (1973). Neutralizing charged aerosols with radioactive sources. *Journal of Colloid and Interface Science*, **45**, 17–26. [32](#), [36](#)
- COVERT, D., WIEDENSOHLER, A. & RUSSELL, L. (1997). Particle charging and transmission efficiencies of aerosol charge neutralizers. *Aerosol Science and Technology*, **27**, 206–214. [50](#)
- FILIPPOV, A.V. (1993). Charging of aerosol in the transition regime. *Journal of Aerosol Science*, **24**, 423–436. [71](#)
- FJELD, R.A. & MCFARLAND, A.R. (1986). Bipolar charging in the transition regimen. *Journal of Aerosol Science*, **17**, 653–667. [24](#)
- FJELD, R.A., GAUNTT, R.O. & MCFARLAND, A.R. (1983). Continuum field-diffusion theory for bipolar charging of aerosols. *Journal of Aerosol Science*, **14**, 541–556. [24](#)
- FRIEDLANDER, S.K. (2000). *Smoke, Dust and Haze. Fundamentals of Aerosol Dynamics..* Oxford University Press. [24](#)
- FUCHS, N. (1934). *Z. Physik*, **89**, 736. [73](#)
- FUCHS, N.A. (1963). On the stationary charge distribution on aerosol particles in a bipolar ionic atmosphere. *Geofisica Pura e Applicata*, **56**, 185–193. [3](#), [7](#), [21](#), [22](#), [48](#), [62](#), [68](#), [71](#), [73](#), [76](#), [121](#)
- GENTRY, J. & BROCK, J. (1967). *Journal of Chemical Physics*, **47**, 64. [73](#)
- GENTRY, J.W. (1972). Charging of aerosol by unipolar diffusion of ions. *Journal of Aerosol Science*, **3**, 65–76. [22](#), [62](#)
- GUNN, R. (1954). Diffusion charging of atmospheric droplets by ions, and the resulting combination coefficients. *Journal of Meteorology*, **11**, 339–347. [73](#)
- GUNN, R. (1955). The statistical electrification of aerosols by ionic diffusion. *Journal of Colloid and Interface Science*, **10**, 107–119. [3](#), [21](#), [48](#), [68](#)
- GUNN, R. (1956). The ratio of the positive and negative light ion conductivities within a neutral aerosol space. *Journal of Colloid Science*, **11**, 691–696. [82](#)
-

- HAN, B., SHIMADA, M., CHOI, M. & OKUYAMA, K. (2003). Unipolar charging of nanosized aerosol particles using soft x-ray photoionization. *Aerosol Science and Technology*, **37**, 330–341. [50](#), [115](#)
- HERNÁNDEZ-SIERRA, A., ALGUACIL, F.J. & ALONSO, M. (2003). Unipolar charging of nanometer aerosol particles. *Journal of Aerosol Science*, **34**, 733–745. [45](#), [64](#), [65](#)
- HEWITT, G.W. (1957). The charging of small particles for electrostatic precipitation. *AIEE Transactions*, **76**, 300–306. [59](#), [60](#), [84](#)
- HINDS, W.C. (1999). *Aerosol Technology: Properties, Behavior, and Measurement of Airborne Particles*. John Wiley and Sons, 2nd edn. [2](#), [15](#), [17](#), [18](#), [67](#), [75](#)
- HOPPEL, W.A. & FRICK, G.M. (1986). Ion-aerosol attachment coefficients and the steady-state charge distribution on aerosols in a bipolar ion environment. *Aerosol Science and Technology*, **5**, 1–21. [19](#), [71](#), [73](#), [78](#)
- HUERTAS, M., MARTY, A., FONTAN, J., ALET, I. & DUFFA, G. (1971). Measurement of mobility and mass of atmospheric ions. *Journal of Aerosol Science*, **2**, 145–150. [20](#)
- HUSSIN, A., SCHEIBEL, H.G., BECKER, K.H. & PORSTENDÖRFER, J. (1983). Bipolar diffusion charging of aerosol particles - 1: experimental results within the diameter range 4–30 nm. *Journal of Aerosol Science*, **14**, 671–677. [49](#)
- HWANG, S., GENTRY, J. & DAVISON, S. (1986). Unipolar charging of ultrafine aerosols. *Journal of Aerosol Science*, **17**, 117–127. [62](#)
- JI, J., BAE, G. & HWANG, J. (2004). Characteristics of aerosol charge neutralizers for highly charged particles. *Journal of Aerosol Science*, **35**, 1347–1358. [50](#)
- KATZ, L. & PENFOLD, A.S. (1952). Range-energy relations for electrons and the determination of beta-ray end-point energies by absorption. *Reviews of Modern Physics*, **24**, 28–44. [33](#)
-

- KEEFE, D., NOLAN, P. & RICH, T. (1959). Charge equilibrium in aerosols according to the boltzmann law. *Proceedings of the Royal Irish Academy*, **60-A**, 27–45. [18](#), [73](#)
- KEEFE, D., NOLAN, P. & SCOTT, J. (1968). *Proceedings of the Royal Irish Academy*, **66A**, 17–29. [79](#)
- KIRSCH, A.A. & ZAGNIT'KO, A.V. (1981). Diffusion charging of submicrometer aerosol particles by unipolar ions. *Journal of Colloid and Interface Science*, **80**, 111–117. [54](#), [56](#), [59](#), [73](#)
- KIRSCH, A.A. & ZAGNIT'KO, A.V. (1990). Field charging of fine aerosol particles by unipolar ions. *Aerosol Science and Technology*, **12**, 465–470. [24](#), [62](#)
- KNUTSON, E.O. & WHITBY, K.T. (1975a). Accurate measurement of aerosol electric mobility moments. *Journal of Aerosol Science*, **6**, 453–460. [2](#), [104](#)
- KNUTSON, E.O. & WHITBY, K.T. (1975b). Aerosol classification by electric mobility: Apparatus, theory, and applications. *Journal of Aerosol Science*, **6**, 443–451. [2](#), [104](#)
- KOUSAHA, Y., ADACHI, M., OKUYAMA, K. & NITADA, M.T., N. (1983). Bipolar charging of ultrafine aerosol particles. *Aerosol Science and Technology*, **2**, 421–427. [46](#), [48](#)
- KRUIS, F.E. & FISSAN, H. (2001). Nanoparticle charging in a twin hewitt charger. *Journal of Nanoparticle Research*, **3**, 39–50. [61](#), [63](#), [87](#)
- KRUIS, F.E., OTTEN, F., JORDAN, F. & FISSAN, H. (1998). A new efficient unipolar charger for nanoparticles. *Journal of Aerosol Science*, **29**, S1021–S1022. [61](#), [63](#)
- KUDO, A. & TAKAHASHI, K. (1972). A method of determining aerosol particle size distribution applying boltzmann's law. *Atmospheric Environment*, **6**, 543–549. [18](#), [48](#)
- LAWLESS, P.A. (1996). Particle charging bounds, symmetry relations, and an analytic charging rate model for the continuum regime. *Journal of Aerosol Science*, **27**, 191–215. [24](#)
-

-
- LEE, H., KIM, C., SHIMADA, M. & OKUYAMA, K. (2005). Bipolar diffusion charging for aerosol nanoparticle measurement using a soft x-ray charger. *Journal of Aerosol Science*, **36**, 813–829. [47](#), [50](#)
- LIU, B. & YEH, H. (1968). On the theory of charging of aerosol particles in an electric field. *Journal of Applied Physics*, **39**, 1396–1402. [24](#)
- LIU, B.Y.H. & KAPADIA, A. (1978). Combined field and diffusion charging of aerosol particles in the continuum regime. *Journal of Aerosol Science*, **9**, 227–242. [24](#)
- LIU, B.Y.H. & PUI, D.Y.H. (1974a). Equilibrium bipolar charge distribution of aerosols. *Journal of Colloid and Interface Science*, **49**, 305–312. [18](#), [45](#), [46](#), [48](#)
- LIU, B.Y.H. & PUI, D.Y.H. (1974b). A submicron aerosol standard and the primary, absolute calibration of the condensation nuclei counter. *Journal of Colloid and Interface Science*, **47**, 155–171. [45](#), [46](#)
- LIU, B.Y.H. & PUI, D.Y.H. (1974c). Electrical neutralization of aerosols. *Journal of Aerosol Science*, **5**, 465–472. [18](#), [45](#), [46](#), [48](#), [72](#), [115](#)
- LIU, B.Y.H. & PUI, D.Y.H. (1975). On the performance of the electrical aerosol analyzer. *Journal of Aerosol Science*, **6**, 249–264. [62](#), [84](#)
- LIU, B.Y.H. & PUI, D.Y.H. (1977). On unipolar diffusion charging of aerosols in the continuum regime. *Journal of Colloid and Interface Science*, **58**, 142–149. [62](#), [73](#), [81](#)
- LIU, B.Y.H., WHITBY, K.T. & YU, H.S. (1967a). Diffusion charging of aerosol particles at low pressures. *Journal of Applied Physics*, **38**, 1592–1597. [59](#)
- LIU, B.Y.H., WHITBY, K.T. & PUI, D.Y.H. (1974). A portable electrical analyzer for size distribution measurement of submicron aerosols. *Journal of the Air Pollution Control Association*, **24**, 1067–1072. [59](#)
- LIU, C. & GENTRY, J. (1982). Charge distribution of ultrafine aerosols undergoing bipolar charging. *Journal of Aerosol Science*, **13**, 127–138. [62](#)
-

- LUSHNIKOV, A.A. & KULMALA, M. (2004). Flux-matching theory of particle charging. *Physical Review E*, **70**, 046413(9). [78](#)
- MARLOW, W.H. & BROCK, J.R. (1975a). Unipolar charging of small aerosol particles. *Journal of Colloid and Interface Science*, **50**, 32–38. [22](#), [62](#)
- MARLOW, W.H. & BROCK, J.R. (1975b). Calculations of bipolar charging of aerosols. *Journal of Colloid and Interface Science*, **51**, 23–31. [3](#), [21](#), [68](#)
- MARQUARD, A., EHOARN, P. & KASPER, G. (2002). Designing a unipolar corona charger with efficiency and minimum losses of nanoparticles. *6th International Aerosol Conference, Taiwan Taipei*. [63](#), [64](#)
- MARQUARD, A., MEYER, J. & KASPER, G. (2006a). Characterization of unipolar electrical aerosol chargers - part 1: A review of charger performance criteria. *Journal of Aerosol Science*, **37**, 1052–1068. [63](#), [64](#), [110](#)
- MARQUARD, A., MEYER, J. & KASPER, G. (2006b). Characterization of unipolar electrical aerosol chargers - part 2: Application of comparison criteria to various types of nanoaerosol charging devices. *Journal of Aerosol Science*, **37**, 1069–1080. [63](#), [64](#)
- MARTÍNEZ-LOZANO, P. (2006). *Clasificadores de iones por movilidad eléctrica de alta resolución*. Ph.D. thesis, Universidad Carlos III de Madrid. [104](#)
- MEDVED, A., DORMAN, F., KAUFMAN, S.L. & POCHER, A. (2000). A new corona-based charger for aerosol particles. *Journal of Aerosol Science*, **31**, S616–S617. [63](#), [64](#)
- MESSINA, R. (2002). Image charges in spherical geometry: Application to colloidal systems. *Journal of Chemical Physics*, **117**, 11062–11074. [77](#)
- MOHNEN, V.A. (1974). Formation, nature, and mobility of ions of atmospheric importance. *Proceedings of the 5th International Conference on Atmospheric Electricity*, 1–17. [21](#)
- MURPHY, A.T., ADLER, F.T. & PENNEY, G.W. (1959). A theoretical analysis of the effects of an electric field on the charging of fine particles. *AIEE Transactions*, 318–326. [24](#)
-

- NATANSON, G.L. (1960). On the theory of the charging of amicroscopic aerosol particles as a result of capture of gas ions. *Soviet Physics Technical Physics*, **5**, 538–551. [78](#)
- PARKER, K.R. (1996). *Applied Electrostatic Precipitation*. Chapman and Hall, 1st edn. [36](#)
- PAUTHENIER, M.M. & MOREAUT-HANOT, M. (1932). Le charge des particules sphériques dans un champ ionisé. *Journal de Physique*, **7**, 591–613. [24](#)
- PENNEY, G.W. & LYNCH, R.D. (1957). Measurements of charge imparted to fine particles by a corona discharge. *AIEE Transactions*, **76**, 294–299. [59](#)
- PORSTENDÖRFER, J., HUSSIN, A., SCHEIBEL, H.G. & BECKER, K.H. (1984). Bipolar diffusion charging of aerosol particles - 2: influence of the concentration ratio of positive and negative ions on the charge distribution. *Journal of Aerosol Science*, **15**, 47–56. [49](#), [139](#), [163](#)
- PUI, D.Y.H., FRUIN, S. & MCMURRY, P.H. (1988). Unipolar diffusion charging of ultrafine aerosols. *Aerosol Science and Technology*, **8**, 173–187. [62](#), [73](#), [81](#)
- REISCHL, G.P., MAKEHI, J.M., KARCH, R. & NECID, J. (1996). Bipolar charging of ultrafine particles in the size range below 10 nm. *Journal of Aerosol Science*, **27**, 931–949. [49](#), [73](#), [81](#)
- RICH, T., POLLAK, L. & METNIEKS, A. (1959). Estimation of average size of submicron particles from the number of all and uncharged particles. *Geofisica Pura e Applicata*, **44**, 233–241. [18](#)
- RINKE, P., DELANEY, K., GARCÍA-GONZÁLEZ, P. & GODBY, R.W. (2004). Image states in metal clusters. *Physical Review A*, **70**, 063201(5). [77](#)
- ROGAK, S. & FLAGAN, R. (1992). Bipolar diffusion charging of spheres and agglomerate aerosol particles. *Journal of Aerosol Science*, **23**, 693–710. [48](#)
- ROMAY, F. & PUI, D. (1992). Free electron charging of ultrafine aerosol particles. *Journal of Aerosol Particles*, **23**, 679–692. [55](#), [73](#), [81](#)
-

- SHIMADA, M., HAN, B., OKUYAMA, K. & OTANI, Y. (2002). Bipolar charging of aerosol nanoparticles by a soft x-ray photoionizer. *Journal of Chemical Engineering of Japan*, **35**, 786–793. [50](#)
- SMITH, W. & McDONALD, J. (1976). Development of a theory for the charging of particles by unipolar ions. *Journal of Aerosol Science*, **7**, 151–166. [24](#)
- SMITH, W.B., FELIX, L.G., HUSSEY, D.H., PONTIUS, D.H. & SPARKS, L.E. (1978). Experimental investigations of fine particle charging by unipolar ions - a review. *Journal of Aerosol Science*, **9**, 101–124. [59](#)
- STOBER, J., SCHLEICHER, B. & BURTSCHER, H. (1991). Bipolar diffusion charging of particles in noble gases. *Aerosol Science and Technology*, **14**, 66–73. [47](#), [49](#)
- STOMMEL, Y.G. & RIEBEL, U. (2004). A new corona discharge-based aerosol charger for submicron particles with low initial charge. *Journal of Aerosol Science*, **35**, 1051–1069. [52](#), [53](#)
- TAKAHASHI, K. (1971). Numerical verification of boltzman's distribution for electrical charge of aerosol particles. *Journal of Colloid and Interface Science*, **35**, 508–510. [18](#)
- TAKAHASHI, K. & KUDO, A. (1973). Electrical charging of aerosol particles by bipolar ions in flow type charging vessels. *Journal of Aerosol Science*, **4**, 209–216. [18](#), [48](#)
- TAKAHASHI, T. & KANAGAWA, A. (1983). *Kagaku Kougaku Ronbunshu*, **9**, 575. [55](#)
- TAKEBE, M. (1974). Positive ion species and their mobilities in air. *Japanese Journal of Applied Physics*, **13**, 207–217. [20](#)
- TSOULFANIDIS, N. (1983). *Measurement and Detection of Radiation*. Hemisphere Publishing Corporation, 1st edn. [32](#)
- UNGETHÜM, E. (1974). The mobilities of small ions in the atmosphere and their relationship. *Journal of Aerosol Science*, **5**, 25–37. [20](#)
-

- VOHRA, K.G., SUBBARAMU, M.C. & VASEDUVAM, K.N. (1969). Nucleation of water cluster ions. Tech. rep., Bhabha Atomic Research Center, Bombay. [21](#), [156](#)
- WEN, H.Y., REISCHL, G.P. & KASPER, G. (1984). Bipolar diffusion charging of fibrous aerosol particles - part1: charging theory. *Journal of Aerosol Science*, **15**, 89–101. [73](#)
- WHITBY, K. & LIU, B. (1968). Polystyrene aerosols - electrical charge and residue size distribution. *Atmospheric Environment*, **2**, 103–116. [45](#), [46](#)
- WHITBY, K. & PETERSON, C. (1965). Electrical neutralization and particle size measurement of dye aerosols. *Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals*, **4**, 66–72. [18](#)
- WHITBY, K.T. (1961). Generator for producing high concentrations of small ions. *The Review of Scientific Instruments*, **32**, 1351–1355. [50](#), [51](#), [52](#), [63](#)
- WHITBY, K.T. & CLARK, W.E. (1966). Electric aerosol particle counting and size distribution measuring system for the 0.015 to 1 μ size range. *Tellus*, **18**, 573–586. [59](#)
- WHITE, H.J. (1951). Particle charging in electrostatic precipitation. *AIEE Transactions*, **70**, 1186–1191. [17](#)
- WHITE, H.J. (1963). *Industrial Electrostatic Precipitation*. Addison-Wesley Publishing Company Inc. [22](#), [41](#), [62](#)
- WIEDENSOHLER, A. (1988). An approximation of the bipolar charge distribution for particles in the submicron size range. *Journal of Aerosol Science*, **19**, 387–389. [21](#), [48](#), [82](#), [102](#), [117](#), [121](#), [139](#), [150](#), [162](#)
- WIEDENSOHLER, A. & FISSAN, H. (1988). Aerosol charging in high purity gases. *Journal of Aerosol Science*, **19**, 867–870. [48](#)
- WIEDENSOHLER, A. & FISSAN, H. (1991). Bipolar charge distributions of aerosol particles in high-purity argon and nitrogen. *Aerosol Science and Technology*, **14**, 358–364. [48](#)
-

- WIEDENSOHLER, A., LOTKEMEIER, E., FELDPAUSCH, M. & HELSPER, C. (1986). Investigation of the bipolar charge distribution at various gas conditions. *Journal of Aerosol Science*, **17**, 413–416. [49](#), [127](#), [156](#)
- WIEDENSOHLER, A., MARTINSSON, B. & HANSSON, H.C. (1990). A new unipolar charger for submicron particles. *Journal of Aerosol Science*, **21**, S571–S574. [58](#)
- WIEDENSOHLER, A., BÜSCHER, P., HANSSON, H.C., MARTINSON, B.G., STRATMANN, F., FERRON, G. & BUSCH, B. (1994). A novel unipolar charger for ultrafine aerosol particles with minimal particle losses. *Journal of Aerosol Science*, **25**, 639–649. [57](#), [58](#)
- WRIGHT, P. (1960). On the discontinuity involved in diffusion across an interface. *Faraday Discuss.*, **30**, 100–111. [76](#)
- ZAMORANI, E. & OTTOBRINI, G. (1978). Aerosol particle neutralization to boltzmann's equilibrium by a.c. corona discharge. *Journal of Aerosol Science*, **9**, 31–39. [51](#), [52](#)
- ZELENY, J. (1929). The distribution of mobilities of ions in moist air. *Physical Review*, **34**, 310–334. [20](#)
-