

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 31 日現在

機関番号：13301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K12185

研究課題名(和文) 超ダイナミックレンジ高速ナノ粒子分級技術の開発と環境ナノ粒子動態解析への応用

研究課題名(英文) Development of high speed separation technology of nanoparticles for a wide range of particle loading and its application to analysis of dynamic behavior of environmental aerosol nanoparticles

研究代表者

古内 正美 (FURUUCHI, MASAMI)

金沢大学・環境デザイン学系・教授

研究者番号：70165463

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：大気中環境ナノ粒子の特性や発生源情報を変質が少ない状態で評価できるツールである慣性フィルタ技術をベースにして、その高精度化、高速化、耐粉塵負荷特性向上を目指した技術開発と応用を行った。分級径が接近した前段インパクトとメッシュ積層慣性フィルタを組み合わせたシングルノズル構造複合型慣性フィルタを試作し、シャープな分級と低圧損を実現できることを示した。また、これをマルチノズル化することで大流量化可能なことを示した。さらに、耐粉塵特性を向上させるためマルチサイクロンと組み合わせたPM0.13分級ユニットを携帯型エアサンブラ用に試作して、環境ナノ粒子中の化学成分の時間変動評価を行った。

研究成果の概要(英文)：A multi-nozzle layered mesh inertial filter was investigated in an attempt to improve the steepness of the separation efficiency curve by combining the inertial filter and an impactor. In this system, the separation curves overlap each other. Such a combination, which we refer to as a "hybrid inertial filter" was far validated for a single nozzle geometry, was scaled up using a multi nozzle geometry to a high volume air sampling flow rate. An air sampling unit designed for a commercial portable high volume air sampler, consisting of a multi-cyclone and a hybrid inertial filter, was devised. The scale up of the hybrid inertial filter using multi-nozzle geometry was confirmed. A sampler with the above sampling unit was successfully applied to evaluate various chemicals in ambient PM0.13 in a road tunnel collected at every 2-hrs. evaluated by the present unit was found to be in good agreement with values obtained for 2 different types of cascade air samplers.

研究分野：環境動態解析, エアロゾル工学

キーワード：ナノ粒子 慣性フィルタ 高速 大流量 環境動態解析

1. 研究開始当初の背景

気中粒子を高速捕集する既存の大流量エアサンプラは、粒子成分の多角的分析や高時間解像度の動態解析、毒性評価を行う上で学術的に重要なツールであり、主に総浮遊粒子に対してこの役割を果たしてきた。一方、環境ナノ粒子に対する大流量サンプラは存在しない。このことは、時々刻々変化する発生源に対応する環境ナノ粒子特性の理解を極めて限定的なものにしている。現存しない最大の理由は、あるがままの特性を議論できるナノ粒子を捕集できる技術がこれまでなかったことである。これに対する現時点での唯一の解答は「慣性フィルタ」であるが、大流量化は単純なスケールアップでは原理的に困難であり、全く新しい発想が必須である。また粉塵負荷への対応は、大流量慣性フィルタを、学術的要請を技術的に実現するツールとする上で重要である。

2. 研究の目的

本研究は、現存しないナノ粒子を高速分離回収する技術を実現するため、大流量化に適した構造を持つナノ粒子分級装置を新たに開発し、これと粉塵負荷抑制技術を効果的に組み合わせて、最大 1000 L/min の大流量化と最大 g/m³ オーダの高濃度粒子による粉塵負荷への対応を達成し、環境ナノ粒子評価からナノ粒子製造プロセスに適用できる超ダイナミックレンジ・高速ナノ粒子分級技術の開発に挑戦しようとするものである。さらに、新たに開発した装置で、主に都市大気を対象として、これまで不可能かつ未知であった高時間解像度の環境ナノ粒子の特性を評価・考察を行って環境ナノ粒子の動態とナノ粒子発生源の関係を詳細に考察するとともに、本開発技術のナノ粒子製造プロセスへの応用への可能性を検証する。

3. 研究の方法

ワイヤメッシュスクリーン (φ47mm, 繊維径 14.7 μm, 目開き 52.8 μm, 開口率 62%, 5枚, ASADA mesh SHS-380/14) と中心に円孔 (φ3.5mm) を有するステンレス製円形スペーサー (6枚) を交互に重ねてフィルタホルダーで保持したシングルノズル・メッシュ積層タイプの慣性フィルタを評価用慣性フィルタとした。概念図を図1に示す。慣性フィルタの上流に市販のスリット型インパクト (SKC, Siutas Impactor Stage-D, スリット幅 W = 0.15mm (S/W = 10: S はノズルの出口から衝突板までの距離), スリット長 20mm) を組み合わせた。インパクトの分級径は、スリットの一部をマスクングして長さ (断面積) を変えて調整した。加熱・凝縮法による発生粒子および大気塵を DMA で分級して試験粒子とし、CPC (TSI, Model 3785) と LAS (TSI, Model 3340) で分級前後の個数濃度を測定した。また、分級部の圧力損失をデジタルマノメータで評価した。慣性フィルタの性能評価

は主に塩化亜鉛粒子と CPC, 前段インパクトについては大気塵粒子と LAS の組み合わせで測定した。

凝集粒子等による高粉塵負荷への対応およびナノ域とは大きく離れた粗粒子のナノ粒子分級部への混入を避けて適用場所・濃度範囲を広げるため粗粒除去用サイクロン (分級約 1 μm) を前段に置き、これに分級径が接近したインパクト (スリット長 25mm, 幅 0.25mm, 20本, S/W=10, 分級径約 0.25 μm) とメッシュ積層慣性フィルタ (分級径約 150nm) を連結したインパクト複合型慣性フィルタ, ナノ粒子捕集用バックアップフィルタとそのホルダーで構成されるナノ粒子分級ユニットを試作した (図2参照)。メッシュ積層慣性フィルタは、シングルノズル型をマルチノズル化してスケールアップしたもので、ステンレス製メッシュスクリーン (繊維系 14.7 μm, 目開き 52.8 μm, 開口率 62%, ASADA mesh SHS-380/14) 5枚とステンレス製多孔スペーサー (円孔 φ3.5mm×28個, 厚さ 100 μm) 6枚を、円孔中心が揃うように交互に積層してホルダーに固定した。既報の分級特性評価装置を用いて、各分級段の分級特性および「インパクト複合型マルチノズル慣性フィルタ」の分級特性および圧損を評価した。ここで、分級特性の目標を、市販の携帯型ハイボリウムエアサンプラ (SHIBATA HV-500R) に装着して 400L/min の流量で連続運転が可能な圧損 (15kPa 前後), 可能な限りシャープな分級曲線 ($\sigma = (d_{psd}/d_{p16})^{1/2} < 1.8$) と 100nm に近い分級径を実現することに置いた。

試作装置による粒子濃度評価の妥当性を検証するため、大気塵を既存のエアサンプラと同時に捕集して濃度を比較した (使用フィルタ: Pallflex 2500QAT-UP)。試作装置以外の使用機材は、粒子径別多段サンプラ (PM_{0.1/0.5/1/2.5/10}) (以下 NS) とハイボリウムエアサンプラ (SHIBATA HV-500R, 以下 HV) と、減圧インパクト (以下 LPI) である。金沢大学角間キャンパス内 (自然科学研究科 B棟 6F バルコニー) に観測点を設置し、表1に示す観測期間で捕集した。

検証済みのマルチノズル複合型慣性フィルタユニットを市販の携帯型ハイボリウムエアサンプラに装着して、比較的発生源が単純な道路トンネル内の環境ナノ粒子の高時間解像度 (2時間毎) モニタリングに応用した。

4. 研究成果

図3はインパクト複合型メッシュ積層慣性フィルタの粒子分級曲線を従来型の慣性フィルタと比較した結果を示す。200nm 超の粗粒域での粒子反発を排除しながら、分級径約 100nm かつシャープな分級特性を比較的低压損で実現している。従来タイプのステンレス繊維マットとメッシュ積層慣性フィルタの組み合わせの分級特性は、エアフィルタとしての上限性能に対応すると考えられ、これ

と比較すると複合型の分級特性が圧損・シャープネスとも大幅に改善されていることが分かる(図4)。複合型慣性フィルタをマルチノズル化してスケールアップした場合(400L/min)でも、同様の分級特性を発揮できることを確認した(図5)。複合型慣性フィルタに前段分級装置として分級径1ミクロンのサイクロンを装着したものをナノ粒子分級ユニットとして携帯型ハイボリュウムエアサンプラーに取り付け、道路トンネル内で2時間毎にPM_{0.13}粒子を捕集した結果を図6に示す。2時間毎であるが、従来捕集できなかった環境ナノ粒子の様々な化学成分の時間変動を捉えることができている。現在はより低圧損でPM_{0.1}をシャープに分級を実現できる複合インパクトを実現し、より高濃度の条件で使用可能な途上国環境でのフィールド調査を進めるとともに、粉体プロセスへの適用をより容易にするため、複合インパクトをサイクロン形式とする検討を加えている。

表1 サンプルング期間・条件

Air sampler	Sampling period	Duration (hours)
Present air sampling system: High-Volume Nanoparticle Sampler (HVNS)	18, May, 2016 - 21, May, 2016	65
	27, May, 2016 - 30, May, 2016	72
	30, May, 2016 - 2, Jun, 2016	67
	3, Jun, 2016 - 7, Jun, 2016	91
Cascade nanoparticle sampler (NS) (Furuuchi et al., 2010)	18, May, 2016 - 21, May, 2016	65
	27, May, 2016 - 30, May, 2016	72
	30, May, 2016 - 2, Jun, 2016	67
	3, Jun, 2016 - 7, Jun, 2016	91
Low pressure impactor (LPI)	18, May, 2016 - 25, May, 2016	162
	27, May, 2016 - 2, June, 2016	139
	3, Jun, 2016 - 7, Jun, 2016	91

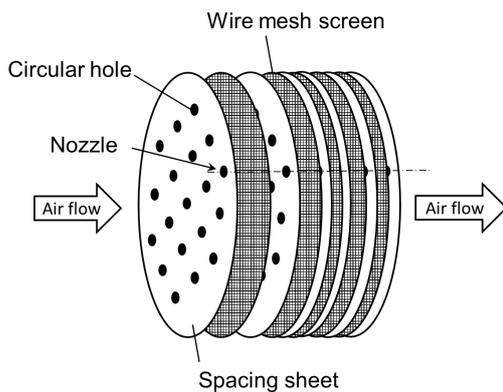


図1 マルチノズル積層メッシュ慣性フィル

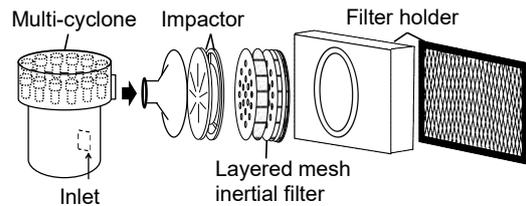


図2 PM0.1分級ユニット

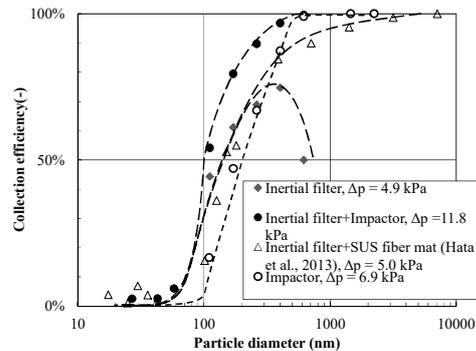


図3 複合慣性フィルタと従来型慣性フィルタの分級特性の比較

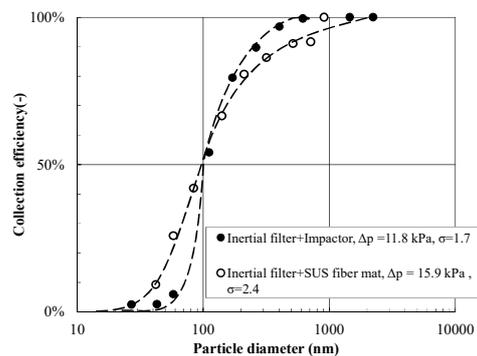


図4 インパクト複合型慣性フィルタの分級特性

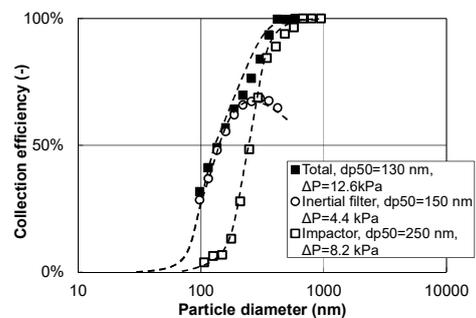


図5 マルチノズル複合型慣性フィルタの分級特性

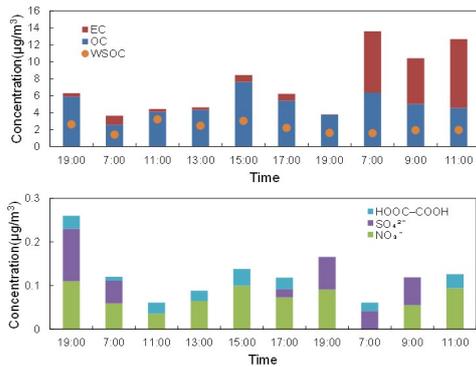


図 6 道路トンネル内 $\text{PM}_{0.13}$ 中の化学成分の変動特性

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

① Tong Zhang, Hideaki Takahashi, Mitsuhiko Hata, Akira Toriba, Takuji Ikeda, Yoshio Otani, Masami Furuuchi, Development of a Sharp-Cut Inertial Filter Combined with an Impactor, Aerosol and Air Quality Research, 査読有, 17, 2, 644-652, 2017, DOI: 10.4209/aaqr.2016.07.0293

② Tong Zhang, Tianren Zhao, Hideaki Takahashi, Mitsuhiko Hata, Akira Toriba, Takuji Ikeda, Yoshio Otani, Masami Furuuchi, High volume air sampler for environmental nanoparticles using a sharp-cut inertial filter combined with an impactor, Measurement Science and Technology, 査読有, 28, 2, 2017, DOI: 10.1088/1361-6501/aa53a5

[学会発表] (計 2 件)

①張瞳, 高橋秀明, 畑光彦, 鳥羽陽, 池田卓司, 大谷吉生, 古内正美, インパクトと複合したメッシュ積層型慣性フィルタの開発, 2016 エアロゾル科学・技術研究討論会, 大阪府立大学, 2016 年 9 月 1 日

②張瞳, 高橋秀明, 畑光彦, 鳥羽陽, 池田卓司, 大谷吉生, 古内正美, マルチノズル慣性フィルタを用いた大流量 $\text{PM}_{0.1}$ サンプラの開発とモニタリングへの応用, 2016 エアロゾル科学・技術研究討論会, 大阪府立大学, 2016 年 9 月 1 日

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

[その他]

ホームページ等

https://www.researchgate.net/profile/Masami_Furuuchi?ev=hdr_xprf&_sg=5Ib2ohre-Sma-7PbK04hV4CEnX_IE-qVK_poLgkj7usszp1dVLzzcHS71Mz9AgqY

6. 研究組織

(1) 研究代表者

古内正美 (FURUUCHI, Masami)
金沢大学・環境デザイン学系・教授
研究者番号：70165463

(2) 研究分担者

畑光彦 (HATA, Mitsuhiko)
金沢大学・環境デザイン学系・准教授
研究者番号：00334756

(3) 研究分担者

大谷吉生 (OTANI, Yoshio)
金沢大学・自然システム学系・教授
研究者番号：10152175

(4) 研究分担者

鳥羽陽 (TORIBA, Akira)
金沢大学・薬学系・准教授
研究者番号：50313680