

令和元年5月31日現在

機関番号：22604

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K12587

研究課題名(和文) 粒子飛行時間検出に基づくミクロン粒子分級技術の新規開発

研究課題名(英文) Development of a new method to classify micrometer-size particles based on particle time-of-flight detection

研究代表者

竹川 暢之 (Takegawa, Nobuyuki)

首都大学東京・理学研究科・教授

研究者番号：00324369

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：大気エアロゾルのうち粒径1-10 μm 程度のミクロン粒子は、主に海塩、鉱物、生物などの自然起源から発生し、地球の物質循環において重要な役割を果たす。本研究の目的は、粒子飛行時間計測と対向流バーチャルインパクトを応用した新しい概念のミクロン粒子分級技術を開発することである。本研究で、粒子の物理特性を多角的に捉えることが可能な二波長レーザー散乱光検出装置を構築した。研究期間内に分級装置の完成には至らなかったものの、将来の継続的な研究開発に向けて基幹技術を確立することができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

エアロゾルの最も根本的な物理量は粒径であり、粒子を浮遊状態で分級することはエアロゾル計測における重要な基幹技術である。ミクロン粒子の分級技術は確立しておらず、その計測には大きな制限がある。本研究は、新しい概念のミクロン粒子分級技術を目指したものであり、成功すれば大気中における粗大粒子の動態解明の進歩に貢献するものと期待される。装置の完成には至らなかったが、様々な技術的困難や課題を洗い出すことで、装置の実現に向けて重要な基礎を築くことができた点に学術的意義があると考えられる。

研究成果の概要(英文)：Atmospheric aerosol particles with diameters ranging from 1 to 10 micrometers are emitted mainly from natural sources including sea salt, mineral dust, and biological materials, and play an important role in the geochemical cycles. The purpose of this research is to develop a new method to classify micrometer-size particles based on particle time-of-flight detection and counter-flow virtual impactor. We have successfully developed an optical particle detection system with two-wavelength lasers for the measurements of particle time-of-flight and wavelength dependency of light scattering signals. Although we have not completed the development of the particle classification system by the end of the project period, we have established key components relevant for future studies.

研究分野：大気化学

キーワード：環境計測 エアロゾル ミクロン粒子 分級 空気力学粒径

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

大気エアロゾルは太陽光の散乱・吸収（直接効果）および雲凝結核としての作用（間接効果）により、地球の放射収支に大きな影響を及ぼす。エアロゾルのうち粒径 $1\ \mu\text{m}$ 程度以下のサブミクロン粒子は硫酸塩や炭素性物質が主体であり、人為発生源の影響を強く反映する。一方、粒径 $1\text{--}10\ \mu\text{m}$ 程度のミクロン粒子では人為起源も部分的に重要であるが、海塩、鉱物、生物粒子など自然起源が主体となる。ミクロン粒子の中には巨大雲凝結核（Giant CCN）として効率的に雲生成に寄与するもの、あるいは氷晶核（IN）として作用するものがある。また、鉱物粒子は鉄を大陸から海洋に輸送するキャリアとして作用し、生物地球化学の観点からも重要である。

エアロゾルの最も根本的な物理量は粒径であり、粒子を浮遊状態で単分散にする（分級する）ことはエアロゾル計測における重要な基幹技術である。サブミクロン粒子については、静電分級法が用いられるが、ミクロン粒子の分級技術は確立しておらず、その計測には大きな制限がある。研究代表者らがこれまで実施してきたレーザー光散乱粒子検出法の開発の実績を踏まえて、新しいミクロン粒子分級技術を着想するに至った。

2. 研究の目的

エアロゾル粒子を浮遊状態で分級することは、あらゆる粒子計測技術を開発・評価する上で基本となる。粒径 $1\ \mu\text{m}$ 程度以下の粒子は、電気移動度を用いた粒径分級や遠心力を用いた質量分級方法が確立しており、微分型電気移動度分級器（DMA）やエアロゾル粒子質量分級器（APM）として市販されている。これらの方法では、放射線で荷電平衡となった粒子が電場中で受ける静電気力と、空気抵抗または遠心力との釣り合いに基づき分級が行われる。一方、DMAを用いて粒径 $1\ \mu\text{m}$ 以上の粒子を分級するためには特殊な仕様が必要である。また、ミクロン粒子を適切に荷電すること自体が容易ではない。エアロゾル計測において最も基本的な事項でありながら困難とされてきたミクロン粒子の分級が実現すれば、大気中における粗大粒子の動態解明の進歩に貢献するものと期待される。

本研究の目的は、粒子飛行時間（Particle Time-of-Flight: PTOF）計測による空気力学粒径検出と対向流バーチャルインパクト（Counter Flow Virtual Impactor: CVI）を応用した新しい概念のミクロン粒子分級技術（PTOF-CVI）を開発することである。産総研において新たに開発されたインクジェットエアロゾル粒子発生器（Inkjet Aerosol Generator: IAG）により精密な校正を行い、PTOF-CVIのコンセプトを実証することを目指す。

3. 研究の方法

(1) 粒子飛行時間（PTOF）計測部

飛行時間計測から得られる空気力学粒径には、体積等価粒径 d_v 、密度 ρ 、形状の効果が含まれている。市販の空気力学径分級装置（APS）はこの原理に基づいている。一方、光散乱から得られる光学粒径には、 d_v 、複素屈折率 n 、形状の効果が含まれている。市販の光学粒子カウンタ（OPC）等はこの定義に基づいている。したがって、APS や OPC を単体で用いる場合、様々な物理特性が複合した結果を見ている。

本研究で目指す装置の概念図を図1に示す。ノズル出口近傍に、異なる波長のレーザー光（ λ_1 , λ_2 ）を隣接して配置し、その前方および後方散乱（ θ_1 , θ_2 ）を取得する。サブミクロン粒子の光散乱検出では可視光を用いるが、ミクロン粒子で精度を向上させるために近赤外レーザーを用いる。この検出系により、粒子飛行時間（レーザー散乱光の時間差）に加えて計4種類の光学信号が同一粒子に対して得られる。 λ 依存性は d_v と n に主に感度があり、 θ 依存性は d_v と形状に主に感度がある。これらの信号から分級に必要な情報を高速で導出することが重要となる。

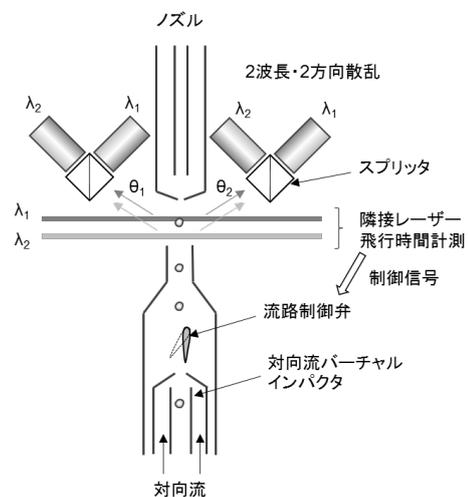


図1. ミクロン粒子分級技術（PTOF-CVI）の概念図。

(2) 粒子挙動制御部および対向流バーチャルインパクト（CVI）

CVI部は、数濃度・質量濃度が相対的に多く干渉要因となりうるサブミクロン粒子を除去するために用いる（図1）。CVIの基本構造については、航空機観測で雲粒のサンプリングに用いられているものを参考にしながら新たに設計する。CVIの小粒子カット特性は、ノズル径、サンプル流量、対向流の流量によって決まる。粒径 $1\ \mu\text{m}$ 以下を除去できるような条件を見出す。

PTOFとCVIの接続部では、流路制御弁によって捕集ノズルへの粒子導入を制御する。PTOF部で所定の条件を満たしたときのみ弁が流れに平行になって粒子を通す。この機構により、空気の流れを大きく乱すことなく粒子の流れを制御することが可能になると考えている。

各要素について、標準粒子を用いて校正および性能評価を行う。最適条件が見出された段階で、PTOF 部からの信号に基づいて流路制御弁をコントロールする機構を試験する。最終的に、各要素を組み上げて全体試作機 (ハードウェア・ソフトウェア) を完成させる。

4. 研究成果

現有のレーザー散乱光検出装置 (波長 1.0 μm) を用いて、粒子発生制御が容易なサブミクロン粒子について予備実験を行った。標準粒子としてポリスチレンラテックス (PSL) を用いるとともに、典型的な大気中の無機塩粒子である硫酸アンモニウムと硝酸アンモニウムを用いた。電気移動度分級器 (DMA) を用いて粒径 250 nm の単分散エアロゾルとして装置に導入し、レーザー散乱光信号の波高分布を導出した。図 2 にその例を示す。分布のずれの要因となる粒径補正を精密に行ったところ、硫酸アンモニウムと硝酸アンモニウムについてはほぼ同じ波高分布となった。また、無機塩粒子はいずれも PSL に比べて波高分布が低い方にシフトする結果となった。複素屈折率など様々な要素の考察を行った結果、観測された光散乱信号のばらつきには、粒子種の違いより粒子ジェット広がりや顕著に効いていることが分かった。PTOF 部において粒子物理特性に応じた分類を行うためには、このような粒子ジェットの広がりを大幅に低減する必要がある。

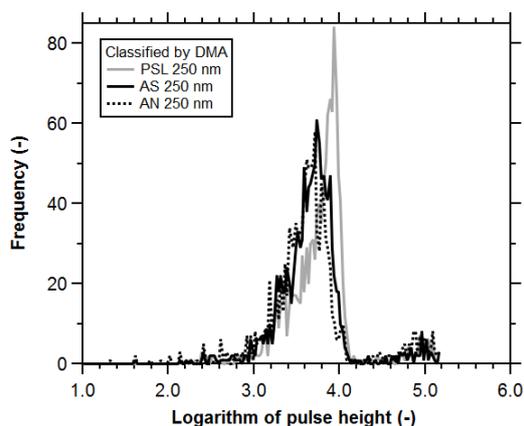


図 2. 電気移動度分級器 (DMA) により粒径 250 nm に分級したポリスチレンラテックス (PSL)、硫酸アンモニウム (AS)、硝酸アンモニウム (AN) 粒子からの散乱光信号の波高分布。

予備実験の結果を踏まえて、二波長レーザーに対応した光学チェンバーの実装および基礎性能評価を行った。当初予定では赤外域の波長 1.0 と 1.6 μm を用いる予定であったが、実験の利便性 (光路の視認性) を考慮して可視域の波長 532 nm (緑色) と 635 nm (赤色) を用いた。シースイアノズルは予備実験で用いたものと同じ構造である。図 3 に光学系の概念図を示す。二つのレーザー光線は直交しており、粒子ジェット軸方向 (紙面に垂直) に約 0.5 mm 隔てて、波長 532 nm が上になるように配置されている。波長 532 nm と 635 nm を感度域に含む光電子増倍管を、二つのレーザーに対して 45 度の前方散乱を検出するように設置した。

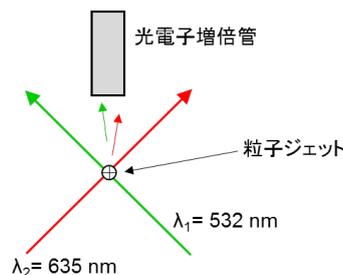


図 3. 二波長レーザー散乱光検出システムの光学系の概念図。

構築した二波長レーザー散乱光検出システムを用いて各種実験を行った。まず、粒子ジェット生成の評価および最適化を行った。一般に流量が大きいほど粒子の加速度は大きくなり、粒径分離に有利になる。ただし、流量が過大でノズル出口で乱流が大きくなると粒子ジェットの品質が低下する。ネブライザーで粒径 0.7 および 2.0 μm の PSL 粒子を発生させ、波長 635 nm のレーザー散乱光を用いて粒子ジェットの最適条件を探索した。しかしながら、粒径分解に必要な流量条件を見出すには至らなかった。上記と並行して、関係する企業と協力しながら流体力学計算による評価を行った。これらの試行の結果、ノズル構造についてさらなる見直し・検討を要することが分かった。

次に、二波長レーザー散乱光検出に基づき、粒子飛行時間およびピーク強度比の導出を試みた。ネブライザーを用いて様々な粒径の PSL 粒子を生成し、シースイア流量とサンプル流量を変化させて信号波形の変化を観察した。図 4 は、シースイア流量 1.5 lpm、サンプル流量 0.4 lpm のときの粒径 1.0 および 1.5 μm に対する光散乱信号の例である。各散乱信号はレーザープロフィールを反映したガウス関数形になっているため、二つのガウス関数を用いてフィッティングを行った。得られたピーク時間の差を取ることで粒子飛行時間を導出した。

図 4 において、いずれの粒径でも波長 635 nm の方が 532 nm に比べて散乱光の強度やタイミングのばらつきが大きい。これは、下流の 635 nm レーザーの位置で粒子ジェットの乱れが生じていることを示唆している。ばらつきが大きいながらも粒径 1.5 μm の方が波長 635 nm/532 nm の強度比が大きい傾向が見られるが、これは散乱光の波長依存性によるものと考えられる。この粒径域では散乱光の粒径依存性が複雑な形になることから、定量的な解釈のためにはミー散乱の理論的な解析が必要である。図 4 のデータについて、ピーク時間の差から求めた飛行時間は、粒径 1.0 μm は $9.6 \pm 1.3 \mu\text{s}$ 、粒径 1.5 μm は $8.9 \pm 0.5 \mu\text{s}$ となった。これ以外の幾つかの測定でも概ね同様の傾向が得られた。すなわち、粒径が大きいほど速度が大きく、従来の空気力学径測定装置 (APS) とは逆の粒径依存性となった。また、粒径が大きいほど飛行時間のばらつきは小さくなった。これが統計的に有意な結果であることを示すためには、より多くのデータを取る必要がある。現段階では、いったんノズル出口で加速された粒子が、レーザー位置での

気体ジェットの広がりに伴い減速され、粒径の小さい粒子ほどその効果が顕著に見えた（相対的に遅くなった）ものと解釈している。

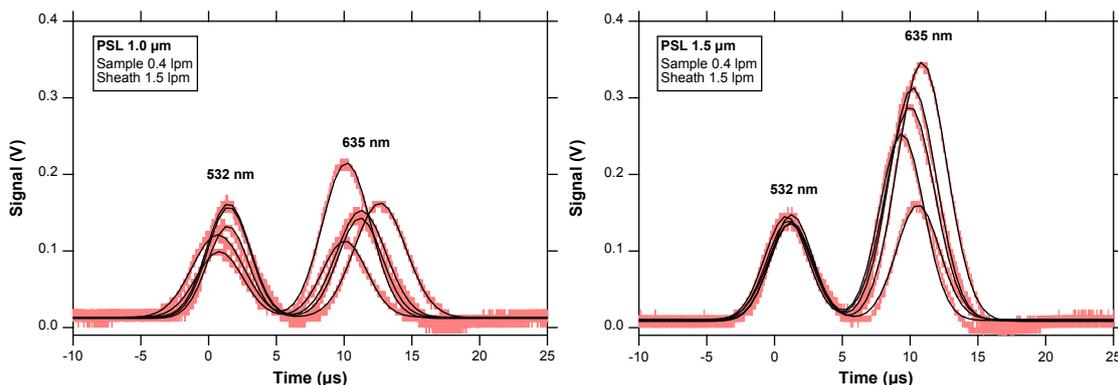


図 4. 粒径 1.0 μm (左) および 1.5 μm (右) の PSL 粒子に対する散乱光信号の例。最初のピークは波長 532 nm、次のピークは波長 635 nm の散乱光を表す。測定データ (赤色) に対して、二山のガウス関数でフィッティング (黒色) を行っている。

研究期間内において、光散乱によって粒子分類を行うための要素技術が未完了であったため、当初目的のミクロン粒子分級技術の開発は実現できなかった。ミクロン粒子の判別および挙動制御は当初計画において想定した以上に様々な技術的課題があることが分かった。一方、本研究においてミクロン粒子の物理特性（飛行時間や光散乱波長依存性）を多角的に捉えることが可能なレーザー散乱光検出装置を構築し、分級技術の開発に向けて基礎を築くことができた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 0 件)

〔学会発表〕 (計 1 件)

- ① 三澤 健太郎, 竹川 暢之, レーザー光散乱粒子計測装置における粒子ジェット特性の評価, 第 35 回エアロゾル科学・技術研究討論会, 名古屋, 2018 年 7 月.

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

- 出願状況 (計 0 件)
○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

特記事項なし。

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：三澤 健太郎

ローマ字氏名：MISAWA, Kentaro

所属研究機関名：首都大学東京

部局名：理学研究科

職名：助教

研究者番号 (8 桁)：10431991

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：飯田 健次郎

ローマ字氏名：IIDA, Kenjiro

※科費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。