

令和 6 年 6 月 14 日現在

機関番号：12605

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2023

課題番号：18K04806

研究課題名（和文）表面制御による分離困難な粒子径をもつエアロゾル粒子の半湿式高効率捕集

研究課題名（英文）Semi-wet collection of aerosol particles having sizes in difficulty for high efficiency collection by controlling particle surface conditions

研究代表者

塚田 まゆみ（Tsukada, Mayumi）

東京農工大学・工学（系）研究科（研究院）・技術職員

研究者番号：70376870

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：従来法では捕集効率の低いサブミクロンからナノ領域の粒子径をもつ粒子を、高効率に液中捕集する新規法を実験室レベルで確立することを目的に、粒子発生部・荷電部、捕集部、計測部からなるシステムを用いて、粒子の種類やサイズ、水溶性・不溶性や親水性・疎水性などの特性を変え、捕集条件では、荷電印加電圧、液組成や温度、通気量や気泡の性状を調節することによる捕集性能の違いを調べた。さらに、発展・実用化のための基礎となる超音波印加による固体表面粒子の捕集や燃焼実機エアロゾルの付着特性の考察を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で得られている成果は微粒子工学の基礎を与え、かつ、環境保全への多大な発展性をもつ上、エネルギーや材料開発分野への応用が可能な、工学上きわめて普遍性が高いもので、学術的な意義が非常に大きい。なお、生物系を含むよりサステイナブルな面での幅広い展開が可能である。また、排出エアロゾルの発生源実態解明、さらに、排出防止プロセスの連続化や汚染物質の再放出防止などのプロセス開発に資する重要な社会的意義をもつ。理論の一般化や実用新規開発には至らなかったが、今後の社会へのインパクトが強く応用範囲が広い研究課題である。

研究成果の概要（英文）：To develop the methods, at the laboratory level, for the efficient collection of submicron to nano-sized particles in liquid, for which conventional methods have low collection efficiency, a system consisting of a particle generator, charger, collector, and measurement unit with the variety of the type and size of particles, and their solubility/insolubility and hydrophilicity/hydrophobicity, was used to investigate the difference in collection performance by adjusting the charge voltage, liquid composition and temperature, aeration volume, and bubble properties in the collection conditions. Furthermore, the collection of solid surface particles by applying ultrasonic waves and the adhesion characteristics of actual combustion aerosols were also investigated, which will serve as the basis for further development and practical application.

研究分野：化学工学

キーワード：エアロゾル 微粒子捕集 排出抑制 荷電粒子 粒子表面制御 気泡 超音波 粒子付着

## 1. 研究開始当初の背景

拡散沈着と慣性沈着で除去できる粒子径範囲の狭間にあり、理論的にも捕集が困難であることから、粒子径 300 nm の粒子が防塵マスク等の試験に用いられる「標準」粒子とされる。その 300 nm 粒子を高い効率 (99.97%以上) で捕集できるものが HEPA フィルタであり、粒子濃度の低い家庭用空気清浄機や半導体製造工場のクリーンルームによく使用される。しかし、高濃度の粒子を発生する工場等施設では、全ての排ガスに高価で高性能な HEPA フィルタを使用することは非現実的であり、一般にはバグフィルタや静電集塵装置のような乾式捕集法が使用されている。これらの粒子捕集法では、粒子径が 100nm 前後の粒子に対する捕集効率が低く、多くの粒子が大気中へ放出されている可能性がある。

一方、粒子の壁面への慣性衝突を利用して粒子捕集を行うインピンジャー方式は、ウイルス等のようなバイオ系エアロゾル粒子の捕集にも使用されている。しかし、インピンジャー方式のような湿式捕集装置では 300nm 以下の微小粒子を高い効率で捕集できた研究はなく、特に粒子径 50nm 程度の微小粒子に対して、これまでに報告された捕集効率は 10%以下であり<sup>1)</sup>、気泡を用いた液体型捕集器による気中に浮遊する粒子の捕集に対して、気泡径や液組成を変える検討がなされてきたものの<sup>2)</sup>、高い効率 (99%以上) が達成された研究事例はなかった。

## 2. 研究の目的

本研究では従来法では捕集効率の低いサブミクロンからナノ領域の粒子径をもつ、幅広い特性の粒子に対し、液体を用いた新規捕集法を実験室レベルで確立することを目的としている。粒子としては、サイズならびに特性、すなわち、水溶性・不溶性、親水性・疎水性、導電性、形状や帯電条件が異なるものを、また、捕集条件としては、捕集液中の気泡のサイズや個数、液の種類を変化させて捕集特性を調べることにより、高効率捕集を可能とする条件を見出していく。本法は、気中に浮遊する汚染物質やウイルス等の粒子、ならびに、ガス-粒子転換プロセスにより生成する二次粒子の双方を捕集するシステムを対象とする。発電所や廃棄物焼却炉など燃焼施設の排ガス起源の粒子の多くは有機・無機の多成分系であると予測されているが、その組成の詳細は未解明かつ、多岐にわたる。本研究では異なる粒子径および表面特性をもつ様々な素材の粒子を対象にしており、それらを高効率で液体に捕集できれば、液体サンプルに対して微量分析を行うことで、発生源から放出されるエアロゾル組成の解明にもつながる知見を得ることができ、環境保全への貢献が大きく期待できる。

## 3. 研究の方法

気中に浮遊するエアロゾルのモデル粒子を選定し、粒子発生装置、インピンジャー方式の捕集装置、粒子径分布および粒子個数濃度計測装置から構成されるシステムを組み立てた。粒子側のパラメーターとして、粒子サイズならびに粒子の水溶性・不溶性 (例えば塩化ナトリウムとポリマー粒子) と親水性・疎水性を捕集条件として、気泡のサイズおよび気泡の個数や捕集液の種類を変化させた。水中では負に帯電している気泡<sup>3)</sup>に対して、粒子を正に帯電させることにより、気泡内で気相側から液相側へ粒子を移動しやすくし、捕集装置前後で、全粒子径において粒子捕集効率の向上を期待した。並行して、捕集装置内の物理モデルに基づく数値シミュレーションを行う環境を整え、装置構造や運転条件を最適化する試みた。

具体的には、市販のインピンジャーを数種入手し、または、改造したものをを用い、一般に捕集効率が低い 10 nm~300 nm の粒子 (塩化ナトリウム、ポリスチレンラテックス、シリカ、カーボン等) を液体捕集装置に導入する前に、コロナ放電により帯電させ、気泡内での粒子と気泡表面との静電的な関係により、粒子を液相側へ輸送しやすくし、粒子個数濃度・粒子径分布および印加電圧と、最終的に放出される粒子個数濃度・粒子径分布と比較し、最も捕集効率の高い条件 (電圧や液条件) を選定することをねらった。(2) 気泡サイズを微小化するために捕集液の種類を、例えば、純水より低い表面張力をもつ液体に変えたり、捕集装置を改造して、上記操作条件における粒子捕集効率のデータを取り、最も粒子捕集効率の高い条件を見出すための実験を行った。(3) シミュレーションソフト (COMSOL Multiphysics) により液体内の気泡の形成に関する数値計算と装置設計への反映を行えるようにした。

## 4. 研究成果

塩化ナトリウム をモデル粒子として使用した実験系 (Fig. 1) において、蒸発凝縮法によりエアロゾル粒子を発生させ、コロナ放電により正および負の電荷に帯電させて、液中捕集を行った。捕集器では、孔径 0.1 mm のガラス焼結体から液中にエアロゾルを 3 L/min で吹き込み、発生気泡径は約 2 mm であった。捕集液として、超純水 (pH 3.0, 5.9, 11.0)、陰イオン界面活性剤、陽イオン界面活性剤、エタノール (pH 3.0, 7.5, 11.0 (超純水を除く)) を用い、未通気時の液深さは 60 mm とした。捕集性能はエアロゾル粒子計測器 (SMPS 及び CPC) により捕集前後の粒子径分布および個数濃度を測定して調べた。

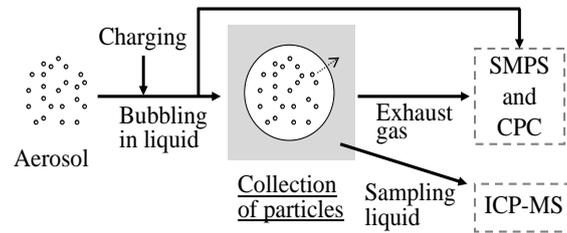


Fig.1 実験系の流れ図

捕集液として水と陽イオンまたは陰イオン界面活性剤水溶液を用い、無帯電と正負に帯電(+3kV、または、-3kVを印加)させた粒子を捕集した際の捕集前後の粒子径分布を求めたところ、正帯電粒子では、陰イオン界面活性剤を用いた時に、低pHになるほど捕集効率が上昇する傾向となった(Fig. 2)。これは、低pH時では気泡界面が電気的中性になり<sup>3)</sup>、陰イオン界面活性剤の吸着が容易になり、粒子と陰イオン界面活性剤との静電引力がより多く働くためと考えられる。一方、負帯電粒子では陽イオン界面活性剤を用いた場合にどのpHでも他の場合に比べて捕集効率が高く、無帯電粒子を水に捕集させた際の100nm粒子捕集効率が最高でも約20%に対し、約40%まで向上した。pHの広い範囲で捕集性能が高かったのは広い範囲のpHで、陽イオン界面活性剤中の気泡のゼータ電位が正である<sup>4)</sup>ことで説明できる。これらより、各捕集液の性質および粒子荷電の影響を確認することはできたが、大幅に高い捕集効率を得ることはできなかった。

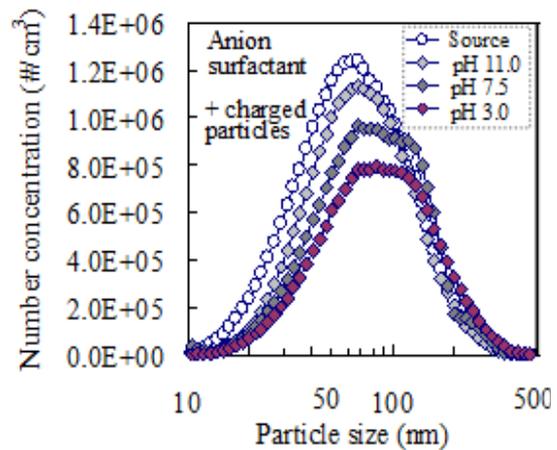


Fig.2 正帯電した塩化ナトリウム粒子の陰イオン界面活性剤入り捕集液への捕集特性

このほか発生エアロゾル粒子や捕集器の構造、各捕集液の物性や液温を変えた実験結果から捕集効率の違いを確認することはできたが、最も捕集が困難とされている100nm前後の粒子の高効率捕集を得ることはできなかった。これは気泡径が大きいため、気泡の体積に対する表面積の割合が小さく、粒子の帯電と気泡界面の帯電による静電引力が小さいため推進力の作用が不十分であったものと考えられる。このことは、別途得ていた通気流量の増加に伴う粒子捕集量の低下とも一致する。

このことを改善するために、きわめて気泡径を減少させたマイクロバブルの適用が期待できる。塩化ナトリウムエアロゾルを用いて予備的な試験を行ったところ、ミリメートルオーダーの気泡(ミリバブル)に比べてマイクロバブルでは20~200nm粒子除去性に大幅な改善が認められ、捕集効率では90%を上回る値が達成できた。しかし、このときの処理ガス流量はミリバブル時の3L/minに対し、マイクロバブルで0.016L/minと極端に少なく実用的ではなかった。

以上、本研究では粒子の帯電と気泡界面の帯電による静電引力を利用して、微粒子の液中捕集効率の向上をめざしたが、気泡径がミリメートルオーダーでは捕集が困難とされる100nm前後の粒子の捕集効率の著しい向上はみられなかった。

本研究では開発した捕集装置および手法を用いて実ガスからの粒子サンプリングを行い、捕集効率を求めると同時に、捕集液のICP-MS分析による実ガス中のエアロゾルのキャラクターゼーションや、フィルタ法によりサンプリングしたエアロゾルとの比較の実施を可能な範囲で行うことを予定していたが、その実施には至らなかった。よって、排ガス中の気相からの粒子化過程を含む微粒子生成・排出・除去をもとにした総合的な粒子排出防止法につながる一般的な知見の取得には至らなかった。それに代わり、実ガス生成を伴う石炭燃焼ボイラーにて発生する灰付着トラブルを抑制するための、高温における灰粒子の付着性に関し、粒子一個レベルでその特性を調べるための計測システムを用い、灰粒子の付着力と灰組成、および、その制御に関する考察を進めるための分析と解析を試みた。これについては参考文献<sup>5)</sup>にまとめた。

さらに、外部エネルギーの印加がもたらす影響を電場に限らず、超音波に拡張し、超音波およびそれがもたらす微細気泡が微粒子の懸濁液に接した固体面に付着・堆積した粒子を分離し、懸濁液に取り込む性能を調べた。具体的には、Fig. 3に示す試験装置にてサンプルとして、燃焼合成したサブミクロンサイズの酸化マグネシウム凝集体を気相法により堆積させたシリコンウェーハ、粗粒および細粒アルミナ被覆樹脂シートの3種類の基板上に堆積させた。サンプル粒子の分離を促進するために、水、界面活性剤溶液、溶媒などの通常の液体媒体とは異なる、ろうそく燃焼のすす粒子からなる固液懸濁液を超音波伝播媒体として選択した。基板と懸濁液の結果を

それぞれ走査型電子顕微鏡 (SEM) 画像と動的  
光散乱に基づく粒子サイズ分布を使用して分  
析した。基板内の洗浄された領域の割合と定  
義し、SEM 画像によって決定した分離効率を  
Fig. 4 に示す。すすを含む媒体を使用した分  
離の方が、すすを含まない水のみを媒体と  
して使用した場合よりも効率が高く、3種類  
の基板すべての粒子分離に最適すす濃度が存  
在することが示された。また、超音波処理後  
の懸濁液の粒径分布より、すす懸濁液中では  
サンプル粒子が良好に分散していた。本知見  
は、本湿式捕集法を発展・実用化する際の基  
礎データとして重要である。

今後の本研究の展開としては、固体面に付  
着した微小粒子の気泡による除去と気泡中  
に分散している微粒子の除去に対する外部  
電場印加の効果をさらに詳細に調べる予定  
である。

なお、実施環境を整えるところまでは達し  
た数値シミュレーションにより、捕集装置と  
条件の最適化とそれを反映させた装置設計  
が予定されていたが、新しい液体捕集装置の  
作製を含め、実施には至らなかった。

以上、サブミクロンからナノ領域にわたる  
粒子径範囲において高い粒子捕集効率を得  
るための捕集条件の取得と一般化および実  
用的な装置設計と開発については、国際的  
にも例を見ない研究であるため、今後も継  
続し、これまでの知見をさらに発展させてま  
めていく予定である。

#### 参考文献

- 1) B. Miljevic *et al.*, *Atmos. Environ.*, 43, 1372 (2009)
- 2) Z. Wei *et al.*, *Atmos. Environ.*, 44, 872 (2010)
- 3) M. Takahashi, *J. Phys. Chem. B*, 109, 21858 (2005).
- 4) S. Najafi *et al.*, *J. Colloid Interface Sci.*, 308, 344 (2007)
- 5) J. Gao, M. Tsukada, H. Kamiya *et al.*, *Energy Fuels*, 34, 6338 (2020)

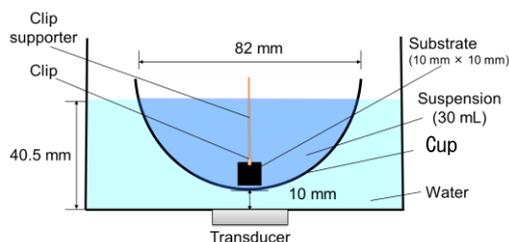


Fig. 3 粒子懸濁液を媒体とした超音波印加  
による基板上付着物の除去試験装置（超音  
波 42 kHz、35 W）

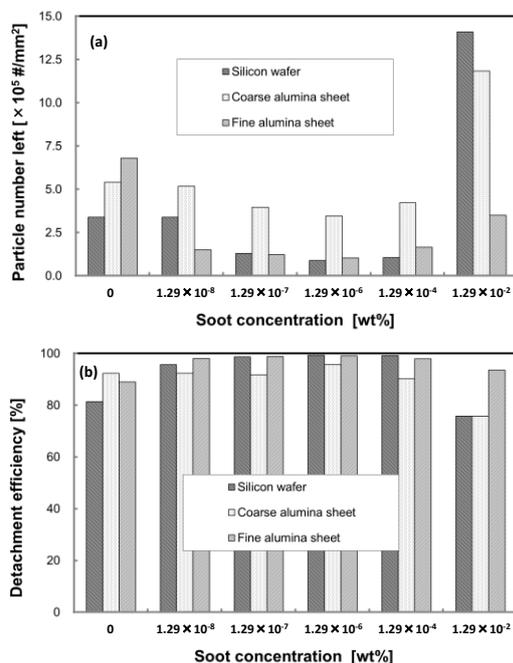


Fig. 4 超音波印加後に基板に残存する粒子数  
(a)と分離効率（粒子が付着していない基板面  
積の割合）(b)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

|  |                       |
|--|-----------------------|
| 1. 著者名<br>Khairunnisa M. P., Ferry FAIZAL, Eiji MIYAZAWA, Kohji MASUDA, Mayumi TSUKADA, I. Wuled LENGGORO    | 4. 巻<br>54            |
| 2. 論文標題<br>Detachment of Submicron Particles from Substrates Using the Suspension-Assisted Ultrasonic Method | 5. 発行年<br>2021年       |
| 3. 雑誌名<br>Journal of Chemical Engineering of Japan   | 6. 最初と最後の頁<br>135-143 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1252/jcej.16we319  | 査読の有無<br>有            |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている（また、その予定である）  | 国際共著<br>該当する          |

|  |                         |
|--|-------------------------|
| 1. 著者名<br>Juguan Gao, Takashi Aozasa, Mayumi Tsukada, Hiromitsu Matsuda, Hisao Makino, and Hidehiro Kamiya   | 4. 巻<br>34              |
| 2. 論文標題<br>Direct Measurement of Single-Particle Adhesion Behaviors on Metal Surfaces at High Temperatures Using Model and Modified Pulverized Coal Combustion Ash | 5. 発行年<br>2020年         |
| 3. 雑誌名<br>Energy & Fuels   | 6. 最初と最後の頁<br>6338-6345 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1021/acs.energyfuels.0c00262   | 査読の有無<br>有              |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>該当する            |

|   |                      |
|---|----------------------|
| 1. 著者名<br>塚田 まゆみ                        | 4. 巻<br>第28回(平成30年度) |
| 2. 論文標題<br>微粒子性状と捕集条件が気中粒子の湿式捕集性能に及ぼす影響 | 5. 発行年<br>2019年      |
| 3. 雑誌名<br>東京農工大学技術職員研修報告                | 6. 最初と最後の頁<br>51-52  |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>なし           | 査読の有無<br>無           |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-            |

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>塚田まゆみ、井口勇貴、Wuled Lenggoro   |
| 2. 発表標題<br>エアロゾル微粒子の捕集に及ぼす粒子特性と捕集条件の影響 |
| 3. 学会等名<br>化学工学会第84年会                  |
| 4. 発表年<br>2019年                        |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

|       | 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号)                       | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号)                  | 備考 |
|-------|---|--|----|
| 研究協力者 | ウレット レンゴロ<br>(Wuled Lenggoro)<br><br>(10304403) | 東京農工大学・工学(系)研究科(研究院)・教授<br><br>(12605) |    |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|