

機関番号：82101

研究種目：若手研究（A）

研究期間：2009～2010

課題番号：21681004

研究課題名（和文） 拡散荷電を用いた浮遊繊維状粒子の粒子長さに関する研究

研究課題名（英文） Measurement for length of fiber aerosol using diffusion charging

研究代表者

藤谷 雄二 (FUJITANI YUJI)

独立行政法人国立環境研究所・環境リスク研究センター・研究員

研究者番号：20391154

研究成果の概要（和文）：

繊維状のエアロゾル化されたカーボンナノチューブ粒子を 20-50%含んだ系において、エレクトロリカルエアロゾルディテクターと凝縮核計数器を用いて粒子一個あたりの帯電量(荷電効率)を求めた。一方で、その粒子を捕集して透過型電子顕微鏡により形状の情報を得た。荷電効率と、投影面積径、繊維長、繊維径をそれぞれ比較したところ、繊維長が最も相関が良かったが繊維径とは相関がなく、荷電機構に最も効いているのは繊維長である事が示唆された。さらなる繊維状粒子のみの分離を行い評価する必要があるが、荷電効率は繊維長の良い指標となることが示唆される結果が得られた。

研究成果の概要（英文）：

We measured charging efficiency for fibrous multi-walled carbon nanotubes (MWCNT) aerosol and determine the relationship between charging efficiency and fiber length. Charging efficiency was determined by using the EAD and the condensation particle counter for mono-disperse MWCNT aerosol at electrical mobility diameter of 100, 200, 300 nm, respectively. Further, particle morphology (e. g. particle projected equivalent diameter, fiber length, width) was observed with transmission electron microscope. In addition to MWCNT aerosol, mono-disperse diesel particle and polystyrene latex (PSL) particle were measured for reference. The charging efficiency depends on kind of particle at same projected equivalent diameter, and MWCNT aerosol was the highest and 1.5 times higher than that of PSL particle, which suspected that this difference are due to difference of attached surface area. For MWCNT aerosol, the charging efficiency also correlates with fiber length, while no correlates to fiber width, which suggests that charging efficiency determined by using the EAD is well indicator of fiber length.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	16,600,000	4,980,000	21,580,000
2010年度	4,000,000	1,200,000	5,200,000
年度			
年度			
年度			
総計	20,600,000	6,180,000	26,780,000

研究分野：エアロゾル工学

科研費の分科・細目：環境学・環境影響評価・環境政策

キーワード：多層カーボンナノチューブ、繊維長さ、拡散荷電、APM、DMA

1. 研究開始当初の背景

カーボンナノチューブ (CNT) やアスベスト

等の繊維状粒子の毒性は繊維長に関係すると言われている。これらの粒子の特徴として、繊維長と繊維径の次元のスケールが極端に異なる、すなわち、ある方向には長い空気力学径としては小さいことがあげられる。この種の繊維状粒子を吸入した場合には、曲がった軌道を容易に通り返し、細い気管まで達し、そこでさえぎりにより沈着する可能性が高い。このような粒子の場合、繊維長あるいは“粒子長さ”という概念が重要になるが、エアロゾルの物理的な次元の中では測定手法としてあまり発展していない。藤谷ら(2008)の報告¹⁾で、エレクトロリカルエアロゾルディテクター(EAD)を用いた粒子の荷電効率(CE)は粒子長さと強く関係することを示した。

2. 研究の目的

本研究では、この手法を気相中に浮遊している多層カーボンナノチューブ(MWCNT)粒子に適用し、“粒子長さ”と関係する荷電効率が、繊維長や繊維径とどのような関係にあるか、明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

測定対象は電気移動度径として 100, 200, 300 nm の MWCNT 粒子とした。また比較対象としてディーゼル粒子(DEP:低負荷(Low)・高負荷(High))、ポリスチレンラテックス(PSL)粒子を対象とした。MWCNT 粒子は乾式法により発生させた²⁾。DEP は国立環境研究所ナノ粒子健康影響実験施設のエンジン(8L、長期規制対応)から発生させた。PSL 粒子はイオン交換水に懸濁後、アトマイザー(ATM220, TOPAS)により霧化し、ディフュージョンドライヤ(3062, TSI)を二つ通して発生させた。図1に実験系を示す。発生させた粒子はまず中和器に導入し、DMA(SIBATA)により分級した。そのシース・サンプル流量比は 10:1 とした。DMA の分級後に、さらにエアロゾル粒子質量分析器(APM)

により、分級した場合も行った。APM の回転数条件は対象粒径によって 1940-4340 rpm の範囲内の特定の値(分級特性 $\lambda = 0.38$)とした。印可電圧は、もっとも粒子数が多く通過する値に固定した。MWCNT 粒子の場合は APM のみの分級も行った。

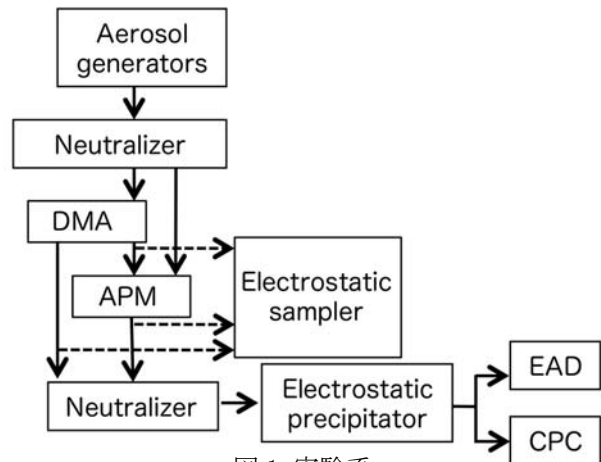


図1 実験系

DMA および APM を通過した粒子は主に+1 価に帯電しているが、その粒子について中和器により平衡荷電状態にし、荷電粒子を荷電粒子除去装置によって除去した。無帯電単分散粒子をフロープリッター(3708, TSI)によって分配後、EAD(3070A, TSI)と凝縮核計数器(CPC)に導入した。EAD 内のコロナ放電により発生する空気イオンを無帯電粒子に拡散荷電によって帯電させ、それらによって生じる電流値を得る。一方同時に CPC により個数濃度を測定し、両者の測定値から粒子一個あたりの帯電量(荷電効率)を求めた。試験の開始時と終了時に HEPA エアーを用いて装置のバックグラウンドを測定し、結果はこれらのバックグラウンドを減じて評価した。また、EAD のゼロ点も確認した。

形態観察の為に、静電サンプラー(SIBATA)により透過型電子顕微鏡(TEM)用コロジオン膜銅グリット(日新 EM)上に分級後の粒子を捕集した。捕集粒子は TEM(JEM-2010, JEOL)により各 30 サンプルについて形態観察を行った。画像処理・解析によって、各種粒子・粒径

について投影断面積からその面積と等しい投影面積を持つ円の直径（投影面積径：PED）を求めた。また、3次元の表面積等は Brasil ら³⁾の手法によって投影像から推定した。MWCNT 粒子については繊維長、繊維幅を求めた。

4. 研究成果

図2にDMA-APMにより電気移動度径300nmに分級後のMWCNT粒子のTEM画像を示す。図に示すように繊維同士が凝集した粒子と単繊維粒子が混在していた。分級しない場合、単繊維粒子は20%程度の混入率であったが、DMA、APM等を用いて分級した場合は単繊維粒子の混入率が最大で50%程度になった。単繊維粒子の場合、繊維長は電気移動度径と相関があり、各電気移動度径の繊維長の平均値は140-390nmの範囲であった。繊維幅は移動度径と相関が比較的悪く、20-70nmの範囲であった。アスペクト比は3.7-11.1の範囲であった。

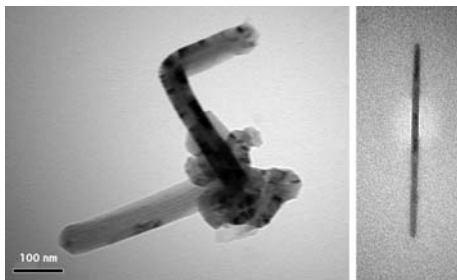


図2 MWCN 粒子の TEM 画像

図3にPEDと荷電効率の関係を示す。分級方法で荷電効率に大きな差が出なかったのでもとめて示す。MWCNT粒子のPEDについては凝集粒子と単繊維粒子の存在比を考慮して算出した。PEDと荷電効率の関係は正の相関がみられており、PEDが大きくなるにつれて荷電効率上がる。粒子種別に累乗関数で近似して比較すると、PEDが300nmの場合に、MWCNT粒子(16.88)とDEPHigh(16.69)がほぼ同程度で最も値が高く、ついでDEPLow(14.32)、PSL粒子(11.58)となり、MWCNT粒子はPSL粒子の1.5倍の荷電効率であった。また、DEPは運転

条件で荷電効率の違いが見られた。形態も両者で異なり、DEPLowが比較的コンパクトな傾向であり、同粒径の場合にDEPHighの表面積が1.16倍大きいと推定された。この値は両者の荷電効率の比と一致することから、運転条件による荷電効率の違いは表面積の差が反映されたと考えられる。電気移動度径が同一の場合、凝集体はsinglet粒子⁴⁾や球体粒子⁵⁾に比べ荷電効率上がる結果が得られていることからこれまでの知見と矛盾のない結果となった。一方で、非繊維状粒子であるDEPHighとMWCNT粒子の荷電効率は同程度であったことから、繊維状粒子の荷電効率が特に高いというわけではないことが分かった。

次に、MWCNTの結果について述べる。荷電効率とPED、繊維長、繊維径をそれぞれ比較したところ、繊維長が最も相関が良く($R^2=0.93$)、ついでPED($R^2=0.73$)であった。繊維径とは相関がなく($R^2=0.07$)、繊維径は荷電機構に大きく関与していない結果が得られた。

さらなる繊維状粒子のみの分離を行い評価する必要があるが、荷電効率は繊維長の良い指標となることが示唆される結果が得られた。荷電効率が繊維長の指標となれば、繊維長のリアルタイムモニタリングが可能になると考えられる。

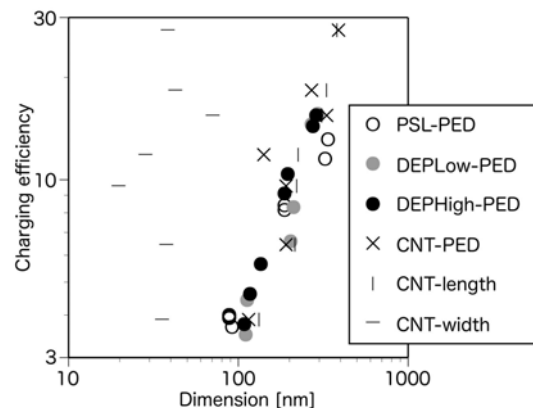


図3 各種粒子の荷電効率

参考文献

- 1) 藤谷ら(2008), 第25回エアロゾル科学・

技術研究討論会

2) Fujitani et al. (2009), Aerosol Sci and Tech, 43:881-890, 2009

3) Brasil, A. M., Farias, T. L. and Carvalho, M. G. (1999). J Aerosol Sci 30:1379-1389.

4) Jung, H. J. and Kittelson, D. B. (2005), Aerosol Sci and Tech 39:902-911.

5) Ku, B. K. and Maynard, A. D. (2005), J Aerosol Sci 36:1108-1124.

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 1 件)

- ① Fujitani Y., Furuyama A., Hirano S., Generation of airborne multi-walled carbon nanotubes for inhalation studies, Aerosol Sci. Technol. 査読有, 43, 881-890

[学会発表] (計 2 件)

- ① 藤谷雄二, 古山昭子, 平野靖史郎 (2009. 8. 19) 吸入実験の為の多層カーボンナノチューブの発生法の検討, 第 26 回エアロゾル科学・技術研究討論会, 岡山
- ② 藤谷雄二, 田邊 潔, 高見昭憲 (2010. 8. 3) DMA-APM 法によるディーゼル粒子の単分散化の研究, 第 27 回エアロゾル科学・技術研究討論会, 名古屋

6. 研究組織

(1) 研究代表者

藤谷 雄二 (FUJITANI YUJI)
独立行政法人国立環境研究所・
環境リスク研究センター・研究員
研究者番号: 20391154

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし