

令和 2 年 5 月 23 日現在

機関番号：32612

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H01864

研究課題名(和文) 大気エアロゾルの帯電状態の解明と生体沈着への影響評価

研究課題名(英文) Elucidation of the Electrostatic Charging State of Ambient Aerosols and Evaluation of Its Effect on Deposition to Body Tissue

研究代表者

奥田 知明 (Okuda, Tomoaki)

慶應義塾大学・理工学部(矢上)・准教授

研究者番号：30348809

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,000,000円

研究成果の概要(和文)：実環境大気中エアロゾル粒子の帯電状態解明を目的として研究開発を行った。まず、電気移動度法による実環境大気エアロゾルの帯電状態の測定装置(K-MACS: Keio-Measurement System of Aerosol Charging State)の設計製作および性能評価を行った。次に、約1年間の実環境大気エアロゾルの帯電状態の解析を行った。その結果、測定日によって帯電分布は異なり、帯電粒子割合は75～90%程度であり、容積絶対湿度と強い相関があった。室内で一定濃度の大气イオンとエアロゾルを混合し、人為的に容積絶対湿度を変化させた室内実験においても、同様の現象を再現することができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

大気エアロゾル粒子は、呼吸によって生体内に入り込み健康に悪影響を及ぼすことが知られている。エアロゾル粒子の有害性を議論する上で把握すべき特性のうち、粒子の帯電状態については、それが粒子の生体沈着に関わるため重要性が指摘されているにも関わらず、ほとんど研究が進んでいなかった。そこで本研究では、実環境大気エアロゾル粒子の帯電状態を解明することを目的として、その計測手法の開発、年間を通じたフィールド調査、および室内実験を行った。今後は本研究で得られた粒子の帯電挙動の知見を用いて、エアロゾル粒子の帯電状態による生体への沈着挙動に対して、観測事実に基づいた確実性を加えることが可能となると期待される。

研究成果の概要(英文)：Several laboratory experiments and numerical simulations have shown that the aerosol charging state influences particle deposition on human airway surfaces. However, the actual charging state of ambient aerosol particles is still quite unknown. We try to elucidate the mechanisms of aerosol charging and its impact on the surrounding environment including human body by measuring several parameters of atmospheric aerosols through the development of original measurement methods (K-MACS: Keio-Measurement System of Aerosol Charging State). The particle charge distribution varied depending on the measurement date. The fraction of non-charged particles (10-25%) negatively correlated with volumetric humidity. A laboratory experiment supported this correlation between the aerosol charging state and volumetric humidity.

研究分野：環境化学、大気科学、微粒子工学

キーワード：エアロゾル 帯電状態 沈着 生体影響 電気移動度 KPFM PM2.5 粒子状物質

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

PM<sub>2.5</sub> (粒径 2.5 μm 以下の微小粒子状物質) に代表される大気エアロゾルは、呼吸によって生体内に入り込み健康に悪影響を及ぼすことが知られている。エアロゾルの有害性を議論する上で把握すべき特性のうち、サイズや形状、化学組成等に関しては多くの研究が行われ知見が蓄積されてきたが、実環境大気エアロゾルの帯電状態については、それが粒子の生体沈着に関わる (帯電粒子は鏡像力の働きにより非帯電粒子よりも生体沈着しやすいと考えられる<sup>1,2)</sup>) ため重要性が指摘されているにも関わらず、ほとんど研究が進んでいない。その大きな理由として、いわゆる教科書的な知見では、「大気エアロゾルはランダムに荷電され、定常状態では一般にボルツマン平衡荷電分布と呼ばれる対称的な荷電分布を持つ<sup>3,4)</sup>」、とみなされてきたことが挙げられる。しかしこれは、エアロゾル粒子数に対して、それらに電荷を与える大気イオン数が十分に存在する環境下では成り立つが、実環境大気中においても適合するか否かは、まだ明らかにされていない。実環境大気エアロゾルは時間的・空間的・物理化学過程的に極めてダイナミックな複雑系であり、ある限られた時空間を切り出して見た時に、帯電状態が非平衡である可能性は十分にあり得る。我々の先行研究<sup>5)</sup>によって、実環境大気エアロゾルの帯電状態は平衡状態とは異なる可能性が高いことが明らかとなってきたが、その詳細なメカニズムはまだ解明されていない。

### 2. 研究の目的

本研究では、実環境大気エアロゾルが持つ真の帯電状態を解明するため、その計測手法の開発および年間を通じた実地調査を行うことを目的とした。

### 3. 研究の方法

電気移動度法による実環境大気エアロゾルの帯電状態の測定装置 (K-MACS: Keio-Measurement System of Aerosol Charging State<sup>6)</sup>) の諸元は以下の通りとした。電極板の幅 10 cm、長さ 20 cm、極板間距離 0.5 cm、および極板間電圧は 0 V, ±200 V, ±400 V、エアロゾル導入流量は 0.5 L/min、清浄空気導入流量は 1.0 L/min。入口および出口の粒子個数濃度は光散乱式粒子計数器 (OPC, RION KC-01E) により測定した。観測は慶應義塾大学理工学部矢上キャンパス 26 棟 5 階にて実施した。

### 4. 研究成果

フィールド観測の結果としては、2017 年から 2018 年に掛けて得られた約 1 年分の実環境大気エアロゾル粒子の帯電状態の解析を行った (Fig. 1)。その結果、測定日によって帯電分布は異なり、帯電粒子割合は 75~90 % 程度であった。これらの帯電分布の違いが何に起因するものなのかを検討するため、各分布の非帯電粒子 (0 価の粒子) の割合と気温や湿度などの気象条件との相関を調べたところ、実環境大気エアロゾルの帯電状態は容積絶対湿度との相関が強いことがわかった (Fig. 2)。つまり、容積絶対湿度が高いほど非帯電粒子割合が低く (帯電粒子割合が高くなる) になっていることがわかった<sup>7)</sup>。次に、実環境大気エアロゾルの帯電状態の支配要因について調べるため、雨天の日と日射による影響がある晴天の日において、非帯電粒子割合の連続測定を行った。雨天の日に非帯電粒子割合の連続測定を行った結果を Fig. 3 に示す。これより、容積絶対湿度が上昇した後に非帯電粒子割合が減少することが分かった。次に、晴天の日に非帯電粒子割合の連続測定を行ったところ、光化学オキシダント濃度と正の相関があることが分かった (Fig. 4)。なお光化学オキシダント濃度のデータは環境省大気汚染物質広域監視システム<sup>8)</sup>の中原区役所保健福祉センターにおける観測データを用いた。

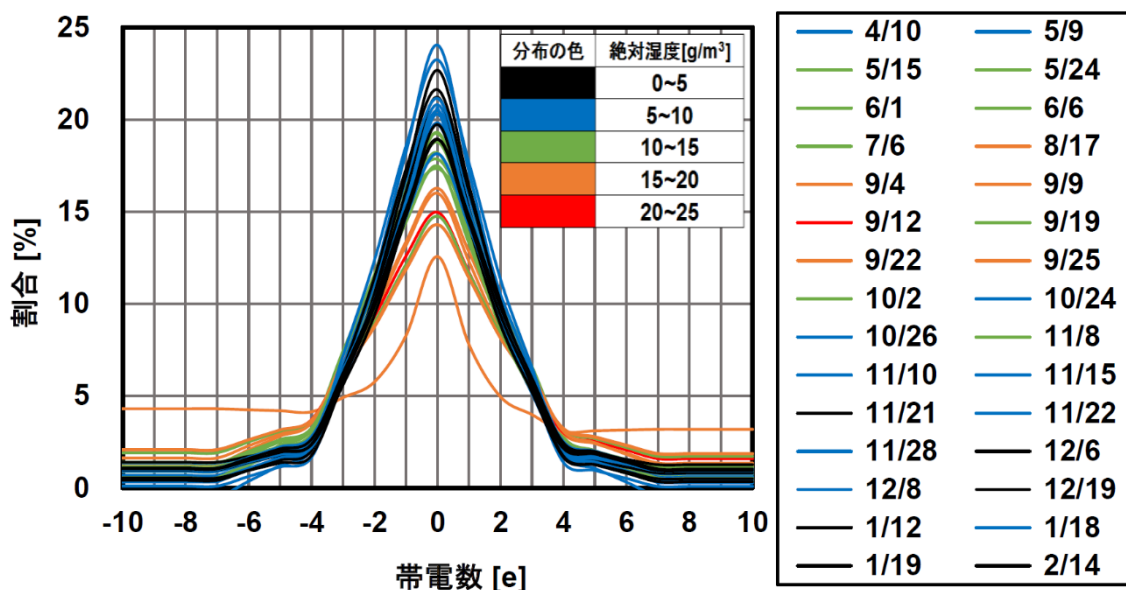


Fig. 1 実環境大気エアロゾル粒子の帯電分布の年間測定結果

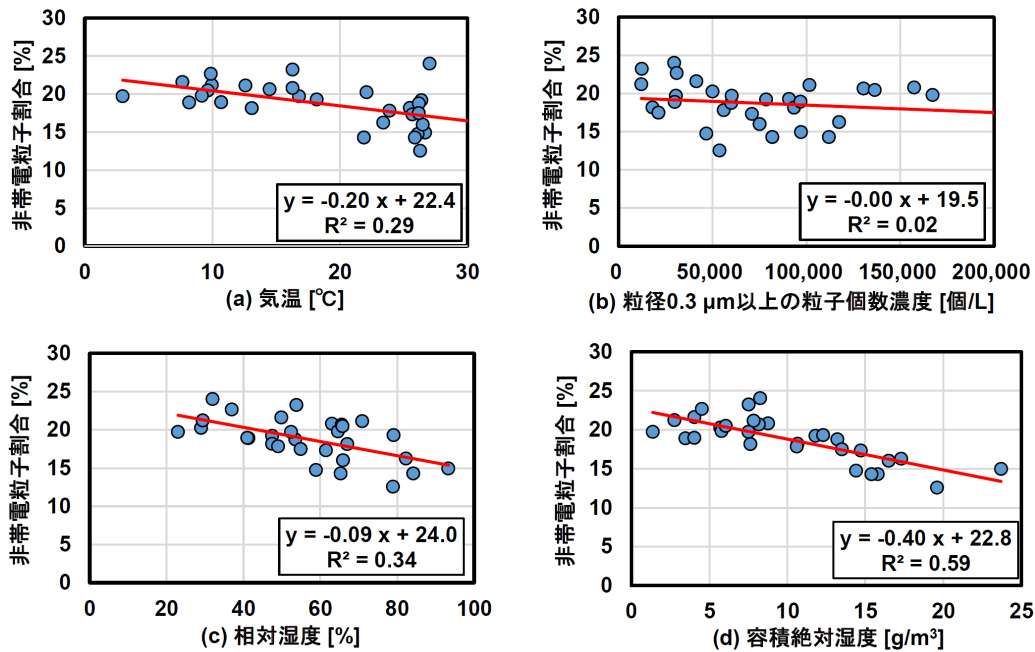


Fig. 2 実環境大気中の非帯電粒子の割合と各種環境条件との相関  
 (a) 気温 (b) 粒径 0.3  $\mu\text{m}$  以上の粒子個数濃度 (c) 相対湿度 (d) 容積絶対湿度

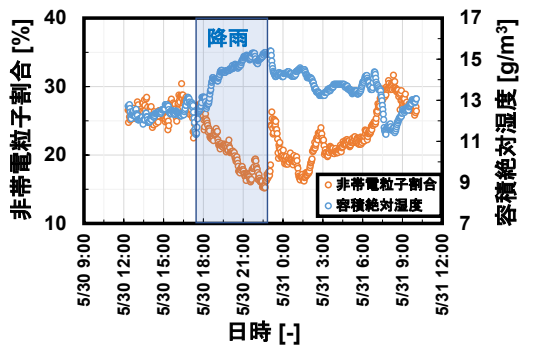


Fig. 3 雨天時の非帯電粒子割合の連続測定  
 (測定期間：2018/5/30～2018/5/31,  
 測定地点：横浜市, 対象粒径：0.3-0.5  $\mu\text{m}$ )

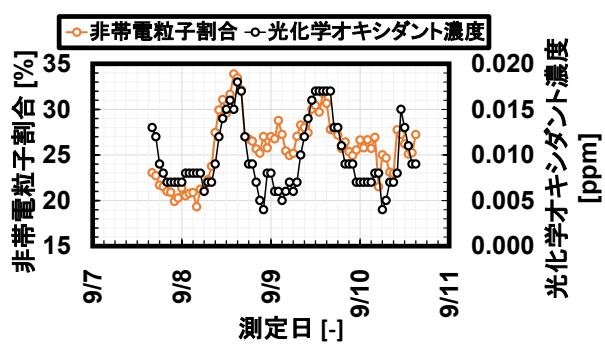


Fig. 4 晴天時の非帯電粒子割合の連続測定  
 (測定期間：2018/9/7～2018/9/10,  
 測定地点：横浜市, 対象粒径：0.3-0.5  $\mu\text{m}$ )

室内で一定の濃度の大气イオンとエアロゾルを混合し、人為的に容積絶対湿度を変化させた場合の大气イオン濃度とエアロゾルの帯電状態の変動を調べた。その結果、容積絶対湿度と非帯電粒子割合の逆相関の関係が室内実験でも確認できた (Fig. 5)。

<引用文献>

- 1) Cohen *et al.* (1998) *Health Phys.* 74, 554-560
- 2) Majid *et al.* (2012) *Aerosol Sci. Technol.* 46, 547-554
- 3) Wiedensohler (1988) *J. Aerosol Sci.* 19, 387-389
- 4) Kulkarni *et al.* (eds.) (2011) *Aerosol Measurement, 3<sup>rd</sup> ed.*
- 5) Okuda & Takashima (2015) *9<sup>th</sup> AAC*, Kanazawa, Japan
- 6) Yonemichi, Fukagata, Fujioka, Okuda (2019) *Aerosol Sci. Technol.* 53, 394-405
- 7) Iwata *et al.* (2019) *Atmos. Environ.* 203, 62-69
- 8) 環境省大気汚染物質広域監視システム, <http://soramame.taiki.go.jp/MstItiran.php>, accessed on Jan 16 2019

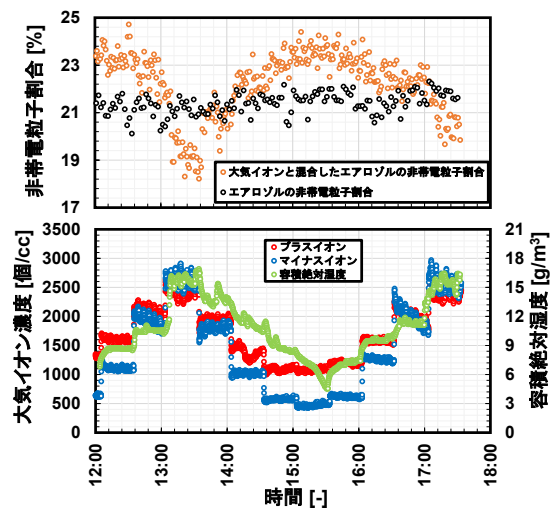


Fig. 5 人為的に容積絶対湿度を変化させた場合の大气イオン濃度と非帯電粒子割合の変動(対象粒径：0.3-0.5  $\mu\text{m}$ )

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 He Yuanping, Gu Zhaolin, Lu Weizhen, Zhang Liyuan, Zhang Daizhou, Okuda Tomoaki, Yu Chuck Wah	4. 巻 52
2. 論文標題 Charging states on atmospheric aerosol particles affected by meteorological conditions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Particuology	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.partic.2019.12.007	査読の有無 有
オープンアクセス 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 該当する
1. 著者名 He, Y., Gu, Z., Lu, W., Zhang, L., Okuda, T., Fujioka, K., Luo, H., Yu, C.	4. 巻 197
2. 論文標題 Atmospheric humidity and particle charging state on agglomeration of aerosol particles	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Atmospheric Environment	6. 最初と最後の頁 141-149
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.atmosenv.2018.10.035	査読の有無 有
オープンアクセス 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 該当する
1. 著者名 Yonemichi, T., Fukagata, K., Fujioka, K., Okuda, T.	4. 巻 53
2. 論文標題 Numerical simulation of parallel-plate particle separator for estimation of charge distribution of PM2.5	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Aerosol Science and Technology	6. 最初と最後の頁 394-405
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/02786826.2019.1569198	査読の有無 有
オープンアクセス 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 -
1. 著者名 Iwata, A., Fujioka, K., Yonemichi, T., Fukagata, K., Kurosawa, K., Tabata, R., Kitagawa, M., Takashima, T., Okuda, T.	4. 巻 203
2. 論文標題 Seasonal variation in atmospheric particle electrostatic charging states determined using a parallel electrode plate device	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Atmospheric Environment	6. 最初と最後の頁 62-69
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.atmosenv.2019.01.040	査読の有無 有
オープンアクセス 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 -

1. 著者名 奥田知明, 坂出壮伸, 藤岡謙太郎, 田端凌也, 黒澤景一, 野村優貴, 岩田歩, 藤原基	4. 巻 54
2. 論文標題 地下鉄構内空气中粒子状物質の特性調査	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 大気環境学会誌	6. 最初と最後の頁 28-33
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11298/taiki.54.28	査読の有無 有
オープンアクセス 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 -

〔学会発表〕 計12件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 8件)

1. 発表者名 Ryoya Tabata, Ayumi Iwata, Kentaro Fujioka, Takuto Yonemichi, Koji Fukagata, and Tomoaki Okuda
2. 発表標題 Elucidation of the relationship between the electrostatic charging state of ambient aerosols and meteorological condition by a parallel electrode plate device
3. 学会等名 11th Asian Aerosol Conference (Hong Kong, China) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ryoya Tabata, Ayumi Iwata, Kentaro Fujioka, Tomoaki Okuda
2. 発表標題 Elucidation of the Influence of Specific Meteorological Conditions on the Electrostatic Charging State of Ambient Aerosols by a Parallel Electrode Plate Device
3. 学会等名 American Association for Aerosol Research 37th Annual Conference (Portland, Oregon, USA) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田端凌也, 岩田歩, 藤岡謙太郎, 奥田知明
2. 発表標題 平行電極板デバイスを用いた実環境大気エアロゾルの帯電状態の支配要因の解明
3. 学会等名 第36回エアロゾル科学・技術討論会、広島大学 (広島県・東広島市)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Fujioka, K., Iwata, A., Tabata, R., Kurosawa, K., Yonemichi, T., Fukagata, K., Okuda, T.
2. 発表標題 Measurement of the electrostatic charging state of aerosol using a parallel electrode plate device
3. 学会等名 10th International Aerosol Conference, St. Louis, USA (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yonemichi, T., Fukagata, K., Fujioka, K., Okuda, T.
2. 発表標題 Numerical simulation of a parallel-plate separator for PM2.5
3. 学会等名 10th International Aerosol Conference, St. Louis, USA (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kurosawa, K., Fujioka, K., Yonemichi, T., Fukagata, K., Okuda, T.
2. 発表標題 Measurement of the chemical components of aerosol particles with different electrostatic charging state
3. 学会等名 Joint International Symposium of 14th CACGP & 15th IGAC, Takamatsu, Japan (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Tabata, R., Iwata, A., Fujioka, K., Kurosawa, K., Yonemichi, T., Fukagata, K., Okuda, T.
2. 発表標題 Measurement of the electrostatic charging state of ambient aerosol using a parallel electrode plate device
3. 学会等名 Joint International Symposium of 14th CACGP & 15th IGAC, Takamatsu, Japan (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kurosawa, K., Iwata, A., Satou, Y., Igarashi, Y., Abe, Y., Okuda, T.
2. 発表標題 Elucidation of electrostatic charging characteristics of radioactive Cs-bearing particles by Kelvin Probe Force Microscopy
3. 学会等名 IU-IRSN/Japan-UK EICHI-project joint international workshop on radioactive particles, Mito, Japan (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yonemichi, T., Fukagata, K., Fujioka, K., Okuda, T.
2. 発表標題 Numerical simulation of a parallel plate particle separator for measurement of charging state of PM2.5
3. 学会等名 9th JSME-KSME Thermal and Fluids Engineering Conference (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 奥田知明
2. 発表標題 生体有害性に関連する微小粒子状物質の物理化学特性解明の試み
3. 学会等名 第34回エアロゾル科学・技術研究討論会、芝浦工業大学 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 藤岡謙太郎、黒澤景一、北川みどり、岡久峻一、高島拓、奥田知明
2. 発表標題 人為的に発生させたエアロゾルの帯電状態の測定
3. 学会等名 第34回エアロゾル科学・技術研究討論会、芝浦工業大学
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 藤岡謙太郎、米道卓音、深瀉康二、北川みどり、岡久峻一、高島拓、奥田知明
2. 発表標題 平行電極板デバイスをを用いた実環境大気エアロゾルの帯電状態の測定
3. 学会等名 第58回大気環境学会年会、兵庫医療大学
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<a href="http://www.applc.keio.ac.jp/~okuda/">http://www.applc.keio.ac.jp/~okuda/</a> <a href="https://research-highlights.keio.ac.jp/2019/03/b.html">https://research-highlights.keio.ac.jp/2019/03/b.html</a>
--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	岩田 歩  (Iwata Ayumi)  (30827340)	慶應義塾大学・理工学部(矢上)・助教   (32612)	
研究分担者	深瀉 康二  (Fukagata Koji)  (80361517)	慶應義塾大学・理工学部(矢上)・教授   (32612)	
研究協力者	藤岡 謙太郎  (Fujioka Kentaro)	慶應義塾大学・理工学部(矢上)・大学院生   (32612)	



## 6. 研究組織（つづき）

	氏名 (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	米道 卓音 (Yonemichi Takuto)	慶應義塾大学・理工学部（矢上）・大学院生  (32612)	
研究協力者	田端 凌也 (Tabata Ryoya)	慶應義塾大学・理工学部（矢上）・大学院生  (32612)	
研究協力者	黒澤 景一 (Kurosawa Keiichi)	慶應義塾大学・理工学部（矢上）・大学院生  (32612)	
研究協力者	村松 凌 (Muramatsu Ryo)	慶應義塾大学・理工学部（矢上）・大学院生  (32612)	
研究協力者	野村 優貴 (Nomura Yuki)	慶應義塾大学・理工学部（矢上）・学部生  (32612)	
研究協力者	坂出 壮伸 (Sakai de Masanobu)	慶應義塾大学・理工学部（矢上）・学部生  (32612)	