

平成22年5月28日現在

研究種目：基盤研究(B)
 研究期間：2006～2009
 課題番号：18310064
 研究課題名（和文）浮遊ナノ粒子の粒子径・化学組成同時計測技術の開発
 研究課題名（英文）Development of technology for measuring diameters and chemical compositions of volatile organic nanoparticles

研究代表者
 岡田 芳樹 (OKADA YOSHIKI)
 関西大学・環境都市工学部・教授
 研究者番号：90211119

研究成果の概要（和文）：気相中に浮遊する有機ナノ粒子に対して、粒子径ごとの化学組成をオンラインで計測できる技術を開発することに成功した。開発したシステムは、気相浮遊ナノ粒子を粒径ごとに選別するDMA（Differential Mobility Analyzer：微分型電気移動度測定装置）と、選別された有機ナノ粒子の化学組成を計測するためのGC-MS（ガスクロマトグラフィー質量分析計）から構成されている。計測できる下限粒子濃度がおよそ 6×10^4 個/ccで低濃度の粒子の化学組成を定量的に計測できることがわかった。また、約1Hzの高速な時間応答性を持った計測が可能であることもわかった。自動車の排ガス中に含まれる揮発性有機ナノ粒子の化学組成を、十分に高感度で、かつ高速な時間応答性を持って計測できる技術を開発することに成功した。

研究成果の概要（英文）：The researcher developed an aerosol spectrometer that simultaneously measures the diameters and the chemical compositions of volatile organic nanoparticles, using a differential mobility analyzer (DMA) for size analysis and a gas chromatography mass spectrometer (GC-MS) for chemical composition analysis. The lower detection limit of the spectrometer for particle concentration was as low as 6×10^4 particles cm^{-3} . The spectrometer has a time response as fast as 1 Hz enough for environmental applications.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	4,800,000	1,440,000	6,240,000
2007年度	4,200,000	1,260,000	5,460,000
2008年度	3,600,000	1,080,000	4,680,000
2009年度	2,800,000	840,000	3,640,000
年度			
総計	15,400,000	4,620,000	20,020,000

研究分野：ナノ粒子工学

科研費の分科・細目：環境学・環境材料

キーワード：環境分析、ナノ粒子、粒径計測、化学組成計測

1. 研究開始当初の背景

ディーゼル車の排ガス中に含まれる「ディーゼル排気粒子 (DEP)」は、ベンゾピレンなど発がん性物質を含む上、多くが 300 ナノメートル以下と非常に小さく、肺の奥まで届いて沈着するため、喘息や肺がんの原因になると心配されている。特に、100 ナノメートル以下の小さな粒子は、大きな粒子より高い肺がん率を示したラットの実験結果が最近報告されている。昨今の排ガス中の微粒子に対する重量規制の効果で、比較的大きな粒子は大幅に減ってきているが、現状では対策が全く取られていない 50 ナノメートル以下のナノ粒子は、DEP のうちで質量では 1~20%に過ぎないが、粒子個数では 90%以上を占め、肺細胞表面からの吸収率が高いことから、健康への悪影響が指摘されている。また、ディーゼル車だけではなく、ガソリン車においても 50 ナノメートル以下のナノ粒子の排出が指摘されている。

このような背景のもと、50 ナノメートル以下の浮遊粒子において、その粒径ごとの化学組成が自動車の運転状況によってどのように変化するのかについては全く調べられていない。ナノ粒子の生成機構すら明らかになっていない。そこで、50 ナノメートル以下の浮遊粒子の粒径分布とその化学組成を同時にその場で迅速に測定し、ナノ粒子の生成メカニズムを明らかにすることが、ナノ粒子を排出しないクリーンエンジンや除去技術の開発の点から自動車メーカーなどで切望されている。

2. 研究の目的

本研究では、50 ナノメートル以下の気相中浮遊ナノ粒子に対して、既存技術では不可能であった粒径分布と粒子構成化学物質組成の迅速なその場観測を可能にする新規技術として、DMA (Differential Mobility Analyzer: 微分型電気移動度測定装置) をもとに、オンラインで浮遊ナノ粒子の粒径ごとの化学組成を計測できる技術を新たに開発することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、「気相ナノ粒子の高効率帯電化技術の開発」、「高透過率 DMA の開発」、「オンラインで気相ナノ粒子の粒径ごとの組成を計測できる技術の開発」の 3 つの課題が重要であり、それらを中心に開発を行った。

4. 研究成果

(1) 気相ナノ粒子の高効率帯電化技術の開発

浮遊ナノ粒子をより高感度に計測するために、DMA にて分級されるナノ粒子をより高効率で帯電させる技術を開発するための研究を行った。まず、一般的に用いられる帯電効率数%以下の平衡帯電よりも高い帯電効率が期待できる方法として、コロナ放電を利用した単極荷電装置を試作した。単極荷電装置は、一般的な平衡帯電装置とは異なり、正あるいは負、一方のみのイオンを発生させそれを粒子帯電に利用する。それにより、平衡

帯電のような両イオンの再結合がないので、帯電効率が高い。試作した単極荷電装置は、コロナ放電を用いて選択的に単極イオンを発生させ、粒子をイオンと衝突させて帯電させる構造を持つ。開発した荷電装置を用いて、気相に発生させた NaCl 粒子をモデル粒子として、その粒子を荷電させてみた。その結果、一般的に用いられる帯電効率数%以下の平衡帯電と比較して、数倍高い帯電効率を実現できた。また、その帯電率は、コロナ放電電圧や、放電距離に強く依存し、それらの操作、構造条件を最適化することができた。

(2) 高透過率 DMA の開発

高透過率 DMA の開発を目指して、透過率向上のための最適な構造と操作条件の探索を実験的に行った。DMA における分級スリットのスリット幅を変えて透過率を調べた結果、スリット幅に依存せず透過率はほぼ一定であることがわかった。また、DMA 透過率は、DMA 内に流すシーガス流量にも依存しないことがわかった。DMA 透過率がスリット幅に依存しないことから、スリット幅を広くすると粒径分級の分解能が低下するので、スリット幅を狭くすることが高分解能を維持しながら高い透過率を達成できる条件になることがわかった。および、粒子粒径が小さくなるほど、DMA 透過率が低下することがわかった。

(3) オンラインで気相ナノ粒子の粒径ごとの組成を計測できる技術の開発

オンラインで気相ナノ粒子の粒径ごとの組成を計測できる技術の開発を目指して、高透過率粒子選別装置の下流に装備させて、DMA にて粒径選別された排出ナノ粒子を加熱蒸発後に、その化学組成を分析する装置を開発した。DMA では、粒径を測定すると同時に、

粒径選別を行うことが可能であり、この機能を利用すれば、粒子を粒径ごとに計測することが容易にできる。粒径選別された粒子を加熱することにより、粒子を構成する揮発性有機物の化学成分分析を GCMS (ガスクロマトグラフィー質量分析計) により行った。これにより、粒径ごとの化学組成を調べることが可能になった。

次に、オンラインで気相ナノ粒子の粒径ごとの組成をその場で計測できる技術の完成を目指して、昨年度までに開発した「高効率粒子帯電装置」、「高透過率DMA粒子選別装置」および「粒子の化学組成分析装置」を直列に接続し、技術の性能評価として定量性と時間応答性を調べた。

まず、化学組成分析装置で得られた質量スペクトルのピーク強度が、装置に導入された粒子濃度に比例することを確認した。また、ピーク強度と粒子濃度の定量性カーブより、計測できる下限粒子濃度がおよそ 6×10^4 個/ccであることがわかった。これらの結果より、開発した技術を用いて低濃度の粒子の化学組成を定量的に計測できることがわかった。

次に、「粒子の化学組成分析装置」として有機物粒子を気化した後、その蒸気を直接質量分析計に導入する装置を利用することにより、約 1Hz の高速な時間応答性を持った計測が可能となった。以上の結果より、自動車の排ガス中に含まれる揮発性有機ナノ粒子の化学組成を、十分に高感度で十分に高速な時間応答性を持って計測できる技術を開発することに成功した。

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6件)

- ① Yoshiki OKADA, Toshiaki KIDA, Asei KAWASAKI, Hideya KAWASAKI, Ryuichi ARAKAWA; Aerosol Spectrometer for Measuring Diameters and Chemical Compositions of Volatile Organic Nanoparticles, submitted to Earozoru Kenkyu
- ② 岡田芳樹、気相浮遊ナノ粒子の環境計測に関する研究、関西大学先端科学技術推進機構「技苑」、査読無、No. 130、2010、48-50
- ③ 岡田芳樹；浮遊ナノ粒子の粒子径・化学組成同時計測技術の開発、クリーンテクノロジー、査読無、19巻、2009、38-40
- ④ 岡田芳樹；気相浮遊ナノ粒子の環境計測に関する研究、関西大学先端科学技術推進機構「技苑」、査読無、No. 128、2009、38-40
- ⑤ Mitsuo KAWACHI, Yoshiki Okada, Kaoru Nishiumi, Masashi Imanaka; Electrical mobilities of C₆₀ negative ions in noble gases, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, Vol. 47, 2008, 5684-5686
- ⑥ 岡田芳樹；気相浮遊ナノ粒子の環境計測に関する研究、関西大学先端科学技術推進機構「技苑」、査読無、No. 126、2008、16-17

[学会発表] (計7件)

- ① 岡田芳樹ら、気相浮遊ナノ粒子の環境計測に関する研究、第13回関西大学先端科学技術シンポジウム、2010年1月15日、大阪、関西大
- ② Asei Kawasaki et al.、Development of technology for measuring diameters and

chemical compositions of volatile organic nanoparticles、6th Asian Aerosol Conference、2009年11月24日、Bangkok、The Imperial Queen's Park Hotel、

- ③ 川崎亜星ら、有機性ナノ粒子の粒子径・化学組成同時計測技術の開発、第26回エアロゾル科学・技術研究討論会、2009年8月19日、岡山、岡山大
- ④ 紀田俊明、上野倫幸、岡田芳樹；浮遊ナノ粒子の粒子径・化学組成同時計測技術の開発、第25回エアロゾル科学・技術研究討論会、2008年8月20日、金沢
- ⑤ 西海薫、河内満雄、岡田芳樹；自由分子領域におけるナノ粒子粒径計測技術の開発、第25回エアロゾル科学・技術研究討論会、2008年8月20日、金沢
- ⑥ Yoshiki Okada； Aerosol spectrometer for size and composition analysis of nanoparticles, The 7th International Symposium on Advanced Environmental Monitoring, 2008年2月26日、アメリカ、ホノルル
- ⑦ Atsushi Takii, Yoshiki Okada； Experimental study on charging of aerosol nanoparticles with plasma torch, The 1st SCEJ(Kansai-Branch)/SSCCI Joint International Conference on Chemical Engineering, 2007年12月5日、大阪

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岡田芳樹 (OKADA YOSHIKI)

関西大学・環境都市工学部・教授

研究者番号：90211119