

平成 30 年 6 月 12 日現在

機関番号：12605

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26420761

研究課題名(和文) 大気中の浮遊微粒子の固体表面への沈着機構の解明のためのモデル化と微粒子の挙動解析

研究課題名(英文) Understanding the mechanism of deposition of airborne particulates on solid surfaces: Modeling and analysis of particle behavior

研究代表者

レンゴロ ウレット (Lenggoro, Wuled)

東京農工大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：10304403

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：大気中で非常に高濃度で浮遊するサブミクロン(0.1～1 $\mu$ m)微粒子(SMP)の沈着の機構が明らかになっていない。本研究で動的(生成・輸送)と静的(表面)に着目し、表面は植物、金属、樹脂を用いた。粒子濃度をリアルタイムで計測し、捕集後の顕微鏡の観察も行った。  
結果：1)浮遊する煤より疎水性または親水性の層が形成できる。2)流れがない時、SMPは高効率で沈着。3)静電気力を主な推進力とし、無電源型捕集器を開発。東京都とマレーシアでSMPを捕集。4)水中で表面からSMPを脱離させる手法を提案。5)植物に水溶性SMPを散布し、葉上の粒子量は時間とともに減少。溶液中イオンとしてが葉に吸収される可能性。

研究成果の概要(英文)：It is well known that submicron particles (SMP) show high number concentration in the atmosphere. However, the mechanism of deposition of SMP from the atmosphere has not been clarified. We focused on "dynamic" side (generation, transport) and "static" side (surface). Metal and polymer were also used as model surface. The SMP concentration was measured in real time and the microscope-route after the collection was also observed.  
Results: 1) Soot derived from combustion forms a hydrophobic or hydrophilic layer. 2) When there is no flow, SMP deposits with high efficiency. 3) Designed/developed a electro-static type collector without a suction pump; From Tokyo and Malaysia, we confirmed high concentration SMP. 4) Proposed a cleaning method for detaching SMP from the collection surface in water. 5) Water-soluble SMP was sprayed on Komatsuna (few weeks); The amount of SMP on the leaves decreased with time. There is a high possibility that the dissolved ions are absorbed into the leaves.

研究分野：化学工学

キーワード：エアロゾル ナノ粒子 植物 葉 サブミクロン 大気環境 表面 静電気力

### 1. 研究開始当初の背景

大気環境中に浮遊する粒子の中で平均径が 0.1 ~ 1 μm (サブミクロン) のもの (以下、微粒子と呼ぶ) が最も高い個数濃度を有すると報告されている。しかし、その微粒子の地上 (土壌、植物、水系環境等) への沈着の機構について未解明な部分が多い。

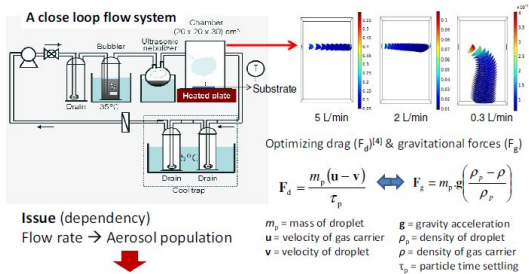
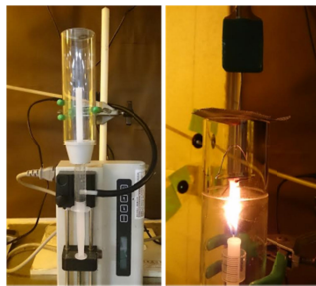
### 2. 研究の目的

本研究では、大気中に浮遊する微粒子の基板 (表面) への沈着機構の解明に向けて、微粒子の「動的ファクター」である生成方法と輸送に加え、「静的ファクター」である基板の性状と粒子の付着状態にも着目し、両方のサイトからの研究アプローチを試す。最終目的の目標の基板は実環境中の植物であり、モデル表面として金属や樹脂板を使用した実験も実施する。浮遊する微粒子の個数濃度についてリアルタイム (online) の計測も行うが、微粒子を回収 (捕集) した後の顕微鏡等の off-line 手法における計測と評価法も行う。

### 3. 研究の方法

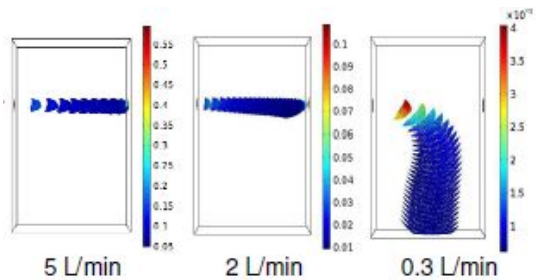
本研究の「動的」アプローチでは、微粒子の生成と輸送および沈着までの過程に視点をあてた。主な実験方法は以下の通りである。

【動的 1】代表的な粒子発生源として燃焼された固体金属 (マグネシウム) またはろうそく由来の微粒子を対象にした。浮遊する微粒子をそのまま基板 (平板: 上写真) に集積させる他にロウソク (煤) 粒子をガラス等の板で回収した後に液体 (水やアルコール) に混入させる。煤と液体の混合系で非常に安定な懸濁液が形成されることを確認した。この液を開発した静電噴霧を用いて別の基板に集積させて、光学特性等を行う。



【動的 2】微粒子の沈着における流れの影響を調べるために、噴霧発生器とキャリアガスとの組み合わせによる closed-loop 流れ系を構築した (上図)。沈着するチャンパーを設けて、その中のガスの流れの有無の

影響を調べるため市販の熱流体シミュレーションソフトウェア (Comsol Multiphysics) を用いて、ガス流れと微粒子の軌跡を解析した (下図)。チャンパーは透明な樹脂で作成され、動画や写真の撮影が可能とし、それらの画像をシミュレーションの結果との比較も行う。人間系の体温を考慮して、30 ~ 40 間に表面 (基板) を保温しながら、沈着実験を行った。基板に沈着した電子顕微鏡等のような減圧場での解析の「誤差」を避けるためにトレーサとして蛍光粒子を用いて、基板上的微粒子の分布を常温常圧で蛍光顕微鏡の画像で得る。



【動的 3】ある方向 (一点) から発生され、気流や電界などにより運ばれる微粒子がどのように平板の両面 (ウラとオモテ) に付着するかを調べる。使用する基板は植物の葉をモデルと仮定するが、その目的の基板を主に接地させる。

【静的 1】実大気環境中には様々な大きさの粒子が浮遊している。本研究の対象が数百 nm の粒子 (微粒子) であるため、「分級」機能も有する新たな微粒子回収 (捕集) 方法を提案した。考案・設計したのは静電気型捕集器であり、吸引ポンプを用いないため、電源がない遠地や樹木等の高所での設置が可能となる。

このアプローチで植物の葉表面に多く報告されるサブミクロン粒子の沈着機構における「電界」の役割を明らかにする。測定は東京都八王子市 (小規模な森林集水域「東京農工大学・FM 多摩丘陵」) とマレーシア (マレー半島の首都と北部の工業地帯都市およびボルネオ島北部コタキナバル市) で行った。東京の観測調査では 30m タワーを用い、10m の高さ別の微粒子回収を行った (右写真)。



【静的 2】高精度な分析装置 (例えば ICP-MS (現有)) を用いることで、捕集され

た微粒子の含有元素（成分）の情報を ppt または ppb オーダーまで解析できるため、水中にサンプルを移送する必要がある。一般的な低電力の超音波洗浄装置を使った場合、平板にサブミクロン粒子の多く残され、課題を確認した。超音波洗浄装置内で生成する気泡（バブル）の大きさが数 10 から数 100 $\mu\text{m}$  とされることから、平板上の数 100nm の微粒子に接触する可能性が低く、せん断力を与えることが難しいと考えられる。そこで、洗浄液に新たな「添加」粒子を加えるが、その第 2 粒子とは【動的 1】で見出された煤（水中でのサイズが 100~200nm）の懸濁液である。それによって、気泡が煤粒子に当たり、煤粒子が平板の微粒子と接触し、微粒子が表面から脱離すると仮説を立てた。

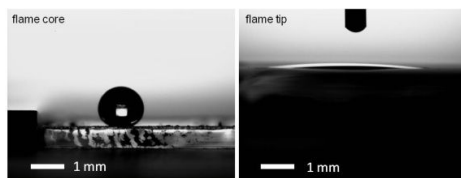
【静的 3】農学系の研究者に依頼され、植物を用いた微粒子の沈着（散布）実験に協力した。16 日間、成長する小松菜の葉に水溶性（硫酸アンモニア AS）サブミクロン微粒子を散布した。微粒子の散布量は一日あたり 22.5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  であった。散布システムは以前（2008~2012 年度、新学術領域研究（研究領域提案型））開発したチャンバーシステムを用いた。一方、有機物結晶である疎水性物質（ワックス）が葉の表面に存在しているが、そのワックスの「役割」について未解明な部分がある。本研究では葉表面上のワックスの個数分布と沈着された微粒子の分布を比較する。

【静的 4】植物葉には親水性部位と疎水性部位がわかっており、金属製の平板をモデル表面とする。表面上に異なる親水性（または疎水性）レベルの 2 つ領域を存在させる。運ばれる微粒子は主にプラス帯電させたものを用いる。

#### 4. 研究成果

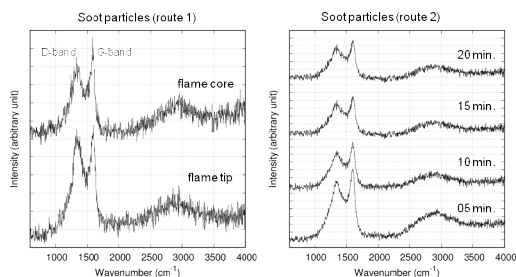
主な結果は以下の通りである。

【動的 1】燃焼場から生成する煤微粒子は、直接集積（沈着, Route 1）させた位置（炎の先端または中間）に依存し、疎水性（下図・左）または親水性（下図・右）の粒子層を示すことがわかった。



Route 2 として、集積した煤微粒子を懸濁液に移し、静電噴霧によって気中分散しながら、基板に集積させた "Wet" ルートも検討した。ラマン分光スペクトル解析では、炎の異なる集積（沈着）領域から得られた疎水性粒子層と親水性粒子層との間の D-band に対する G-band 強度の差を示している（上図）。集積時の気流状態も D/G 比に与える影響を明らかにした。ラマンスペク

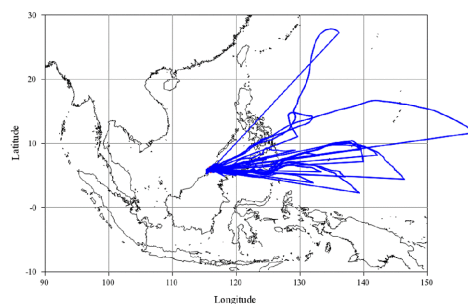
トル変化における "Wet" プロセスの影響がない。紫外可視近赤外分光法では、Route-1 と比べて Route-2 が近赤外領域でより高い吸光度を示し、微粒子層の形態変化に起因する。



【動的 2】キャリアガスの流れが無い場合、浮遊する微粒子が「容易に」30~40 の基板に集積する。微粒子の沈着には周辺霧の流体の状態も影響があることが証明された。

【動的 3】ある一点から帯電微粒子を浮遊させた場合、接地された平板の両面（ウラとオモテ面）に微粒子が沈着していることが確認できた。自然界の植物（葉）において、葉の両面（ウラとオモテ面）に微粒子がほぼ同じ量で沈着するとなれば、大気中の微粒子が帯電された状態で浮遊する可能性が高いという仮説をたてることができる。

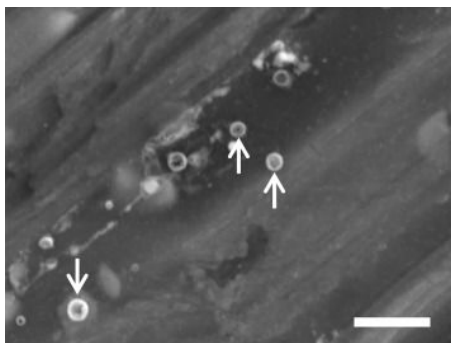
【静的 1】新しく提案した静電型捕集器を用いた東京とマレーシア（下図：ボルネオ島北部・コタキナバル市での測定期間中の大気の流れ）の数日間の観測から、大きな（数  $\mu\text{m}$  以上）粒子の混入されることなく、静電気力を用いることでサブミクロン粒子のみ沈着させることができた。論文投稿時に「データ信頼性の向上のためにさらに長期的な観測とデータ解析も必要」との査読者の意見があった。



【静的 2】低いパワーをもつ超音波洗浄装置を使用においても、安定性の高い微粒子を洗浄液に混入させることで、目的の（捕集された）微粒子を固体基板から高効率で脱離させる手法が提案できた。

【静的 3】小松菜の葉での微粒子の分布ならびに植物の成長における水溶性サブミクロン粒子の影響を調べた。葉表面に沈着（上図：スケールバー 1 $\mu\text{m}$ ）した粒子の量は時間とともに減少した。硫酸アンモニウム粒子が葉表面に堆積し、脱離溶液中のイオンとしてが葉に吸収される可能性が高い。一方、

葉の気孔の（数ミクロン以上の穴）のまわりに多くのワックス（クチクラ層）が存在する場合、微粒子の沈着が少ないことがわかった。ワックスの存在が葉の気孔を大気（汚染）物質から守る役割をもつ可能性が見出された。



**【静的4】**植物葉のモデルとして考案した親水性（または疎水性）レベルが異なる領域をもつ平面において、より親水性レベルの高い領域にプラス帯電微粒子が多く沈着していることがわかった。将来、実環境中の植物の葉においても同じ現象を見出すことができれば、大気中の微粒子が帯電される可能性が高く、植物への沈着する微粒子の推進力が主に静電気力である仮説を立てることができる。

## 5 . 主な発表論文等

### 【雑誌論文】(計 13 件)

- 1) F. Faizal, M.P. Khairunnisa, S. Yokote, I. W. Lenggoro: Carbonaceous Nanoparticle Layers Prepared using Candle Soot by Direct- and Spray-based Depositions, *Aerosol and Air Quality Research*, 査読有, 2018, 18(4):856-865. DOI: 10.4209/aaqr.2017.10.0426
- 2) F. Faizal, S. Saallah, A. Takagi, I. W. Lenggoro, The deposition of submicron fluorescent aerosol particles by a closed-loop flow system, *Journal of Aerosol Research (Erozoru Kenkyu)*, 査読有, 2018. <https://www.jstage.jst.go.jp/browse/jar>
- 3) M. P. Khairunnisa, F. Faizal, E. Miyazawa, K. Masuda, M. Tsukada, I. W. Lenggoro: Detachment of submicron particles from substrates using suspension-assisted ultrasonic method, *Journal of Chemical Engineering of Japan*, 査読有, 2018. <https://www.jstage.jst.go.jp/browse/jcej>
- 4) 野田 直希, 水野 文菜, 牧野 尚夫, 塚田 まゆみ, 濱 尚矢, Wuled Lenggoro, 神谷 秀博, 微粉炭燃焼火力用低低温電気集じん装置の微粒子捕集性能, *粉体工学会誌*, 査読有, 2017, 54(6):398-401. DOI: 10.4164/sptj.54.398
- 5) A. Motai, S. Nakaba, I. W. Lenggoro, M. Watanabe, Y. Wada, T. Izuta: Effects of submicron ammonium sulfate particles on the growth and yield of komatsuna (*Brassica rapa* L. var. *perviridis*), *Atmospheric Environment*, 査読有, 2017, 169:278-286. DOI: 10.1016/j.atmosenv.2017.09.027
- 6) M. P. Khairunnisa, F. Faizal, H. Fukushima, M. Gen, P. Widiatmoko, I. W. Lenggoro: Development of a battery-driven passive sampling system for electrostatically trapping atmospheric particles, *Journal of Purity, Utility Reaction and Environment*, 査読有, 2016, 5(2):43-50. <http://www.sign-ific-ance.co.uk/index.php/PURE/article/view/1301>
- 7) S. Saallah, M. N. Naim, I. W. Lenggoro, M. N. Mokhtar, N. F. Abu Bakar, M. Gen: Immobilisation of enzyme into synthetic resin nanofibres via electrospinning, *Biotechnology Reports*, 査読有, 2016, 10:44-48. DOI: 10.1016/j.btre.2016.03.003
- 8) S. Nakaba, K. Yamane, M. Fukahori, W. D. Nugroho, M. Yamaguchi, K. Kuroda, Y. Sano, I. W. Lenggoro, T. Izuta, R. Funada: Effect of epicuticular wax crystals on the localization of artificially deposited sub-micron carbon-based aerosols on needles of *Cryptomeria japonica* (Sugi), *Journal of Plant Research*, 査読有, 2016, 129:873-881. DOI: 10.1007/s10265-016-0839-7
- 9) M. Gen, I. W. Lenggoro, Aerosol nanoparticle sensor system for probing a dip-coated layer of organic molecules, at sub-100 nm resolution, *RSC Advances*, 査読有, 2015, 5(7): 5158-5163, DOI: 10.1039/C4RA03850A
- 10) T. Okuda, Yoshida, T., Gunji, Y., Okahisa, S., Kusdianto, K., Gen, M., Sato, S., Lenggoro, I.W.: Preliminary study on the measurement of the electrostatic charging state of PM2.5 collected on filter media, *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 査読有, 2015, 9(2):105-113, DOI: 10.5572/ajae.2015.9.2.105
- 11) 奥田知明, 郡司裕真, Wuled Lenggoro: Kelvin Probe Force Microscopy を用いたエアロゾル個別粒子の帯電状態の測定, *エアロゾル研究*, 査読有, 2015, 30(3):190-197. DOI: 10.11203/jar.30.190/

12) M. N. Naim, A. R. Jaafar, N. F. A. Bakar, A. S. Baharuddin, R. K. Basha, I. W. Lenggoro: Deposition of nanostructures derived from electrostatically stabilised TiO<sub>2</sub> aqueous suspension onto a biocomposite, *Advanced Powder Technology*, 査読有, 2015, 26(2):362-367. DOI: 10.1016/j.apt.2014.11.006

13) K. Kusdianto, M. Gen, M. Tsukada, I.W. Lenggoro: エアロゾル法によるハニカム型多孔質体細孔内への粒子沈着, *粉体工学会誌*, 査読有, 2014. DOI: 10.4164/sptj.51.759

### 【学会発表】(計 26 件)

1) F. Faizal, M.P. Khairunnisa, I. W. Lenggoro: Utilization of Ultrasonic Cavitation Bubble for Particle Detachment in Liquid Medium, 1st International Conference and Exhibition on Powder Technology, Indonesia (ICePTi-2017) Jatininggor (near Bandung) Indonesia. 2017/08/08

2) M. P. Khairunnisa, F. Faizal, E. Miyazawa, K. Masuda, M. Tsukada, I. W. Lenggoro: 超音波処理による固体表面からのサブミクロン粒子の脱離, *日本エアロゾル学会第 34 回エアロゾル科学・技術研究討論会 (東京都)* 2017/08/02

3) F. Faizal, M. Wada, S. Koike, I. W. Lenggoro: Effect of Buoyancy on Thermal Decomposition of Solution Droplets over a Heated Horizontal Plate, 7th Asian Particle Technology Symposium (APT 2017) (Taoyuan, Taiwan) 2017/7/30

4) F. Faizal, M.P. Khairunnisa, S. Yokote, I. W. Lenggoro: Direct and Electrospray Depositions of Particles Derived from Burning Candles, 2017 Asian Aerosol Conference (Jeju, Korea) 2017/07/03.

5) 石本淳視, 新倉 舞, 吉田 誠, 濱 尚矢, Lenggoro Wuled, 腐朽処理木材の低温燃焼における生成粒子の計測, *化学工学会 第 82 年会 (東京都)* 2017/03/06

6) M.P. Khairunnisa, F. Faizal, Y. Yamada, M. Gen, N. Hama, I. W. Lenggoro: Collection of submicron aerosols by a passive sampler system using corona-charged resin surfaces, *European Aerosol Conference EAC 2016 (Tours, France)* 2016/09/04

7) 渡邊 有理愛, Wuled Lenggoro: 大気中粒子用パッシブ型捕集器の開発, *第 18 回化学工学会学生大会 (浜松大会)* 2016/03/04

8) 服部 慧・ Lenggoro Wuled: 水サンプル中の ppb レベル不溶性微粒子の計測に関する実験的検討, *第 18 回化学工学会学生大会 (浜松大会)* 2016/03/04

9) M.P. Khairunnisa, F. Faizal, H. Fukushima, M. Gen, P. Widiatmoko, I. W. Lenggoro: Development of a battery-driven passive sampling system for electrostatically trapping atmospheric particles, 2nd International Conference on Purity, Utility Reaction and Environmental Research (Kuala Lumpur, Malaysia) 2015/11/09. **(Best Paper Award 受賞)**

10) M.P. Khairunnisa, F. Faizal, H. Fukushima, M. Gen, P. Widiatmoko, I. W. Lenggoro: A battery- and electrostatic-driven system for sampling suspended particles on a substrate *第 12 回エアロゾル学会・若手会フォーラム* 2015/10/14 **(Best Poster Design Award 受賞)**

11) K. Kusdianto, M. Gen, S. Winardi, W. Lenggoro: Deposition of Ultrasonic Nebulized Aerosols onto a Hydrophilic Surface, 2nd International Conference on Chemical and Material Engineering 2015 (Semarang, Indonesia) 2015/09/29

12) A. Takagi, F. Faizal, W. Lenggoro: 気中微粒子の異素材表面への沈着量計測システムの構築, *化学工学会第 47 回秋季大会 (北海道)*, 2015/09/10

13) Wuled Lenggoro: Transport and Assembly of Particles and a Research Network at University **(招待講演)** 2nd Padjadjaran International Physics Symposium : PIPS 2015 3rd Japan Powder Technology Forum in Indonesia. 2015/09/03

14) K. Kusdianto, M. Gen, M. Tsukada, I.W. Lenggoro: Insertion of colloidal particles in the pores of a honeycomb by aerosol route, 9th Asian Aerosol Conference (Kanazawa), 2015/06/26. **(Best Poster Award 受賞)**,

15) Y. Takematsu, W. Lenggoro: Aerosol generation via pump-less electrostatic atomization using capillary action, 9th Asian Aerosol Conference (Kanazawa), 2015/06/26

16) S. Saallah, M. N. Naim, M. N. Mokhtar, N. F. A. Bakar, M. Gen, I. W. Lenggoro: 静電噴霧法による糖転移酵素の微粒化, *粉体工学会 2015 年度 春期研究発表会*, 2015/05/20

17) 山口真弘、矢崎健一、野口享太郎、Wuled Lenggoro、石田 厚、伊豆田 猛、樹木に対

する微小粒子状物質(PM2.5)の影響に関する実験的研究,第 126 回日本森林学会大会 (北海道) 2015/03/26

18) K. Kusdianto, M. N. Naim, K. Sasaki, Wuled Lenggoro: 電界を用いた多孔質体細孔内への浮遊微粒子の固定, 化学工学会 第 80 年会(東京都)2015/03/20

19) 石本 淳視, Wuled Lenggoro: 燃焼による微粒子排出量の低減に向けた実験的検討, 化学工学会第 17 回学生発表会 (八戸大会) 2015/03/07

20) 竹松 佑介, Wuled Lenggoro: 毛細管現象を利用した Pumpless 静電微粒化に関する研究, 第23回微粒化シンポジウム(青森県) 2014/12/18

21) W. Lenggoro: Assembly of nanoparticles synthesized from the gas-phase (**招待講演**) The 1st International Conference & Exhibition for Nanopia (NANOPIA 2014, Changwon, South Korea), 2014/11/13

22) W. Lenggoro: Assembly of Fine Particles Synthesized from the Gas-Phase (**基調講演**), International Seminar Chemical Engineering in Minerals and Materials Processing 2014 (Bandung, Indonesia), 2014/10/30

23) 竹松 佑介, Wuled Lenggoro: 毛細管現象と電界を推進力とした液体微粒化装置の開発, 化学工学会 第46回秋季大会(福岡県) 2014/09/17

24) 玄 大雄, Wuled Lenggoro: Optical visualization of nanoparticles deposited on a substrate by Raman scattering and fluorescence emission, 2014 International Aerosol Conference (Busan, South Korea), 2014/08/29

25) K. Kusdianto, W. Lenggoro: Deposition of charged aerosols on to a hydrophilic patterned surface, 2014 International Aerosol Conference (Busan, South Korea) 2014/08/29

26) K. Kusdianto, 玄 大雄, Wuled Lenggoro: 親水性が異なる表面への帯電エアロゾルの選択的沈着, 第 31 回エアロゾル科学・技術研究討論会, 2014/08/06

#### 【産業財産権】

出願状況(計1件)

名称: 膜の製造方法

発明者: ウレット・レンゴロ、フェリ・フアイザル

権利者: 東京農工大学、日本エアロジル(株)

種類: 特許

番号: 特許願 2018-20507

出願年月日: 2018年2月8日

国内外の別: 国内

#### 【関連ホームページ】

<https://empatlab.net/>

<http://goo.gl/TcJY6t>

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者

レンゴロ ウレット (LENGGORO, Wuled)

東京農工大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号: 10304403