

Application of centrifugal filter to aerosol size distribution measurement

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2017-09-26 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/2297/00049560

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-ShareAlike 3.0 International License.



学 位 論 文 要 旨

回転フィルタのエアロゾル粒子径分布測定への応用

Application of centrifugal filter to aerosol size distribution measurement

金沢大学大学院自然科学研究科

Graduate School of Natural Science and Technology,

Kanazawa University

専攻 (Division) : 自然システム学

学籍番号 (Student ID Number) : 1424062016

氏名 (Name) : 田中 豊

回転フィルタのエアロゾル粒子径分布測定への応用

Application of centrifugal filter to aerosol size distribution measurement

自然システム学専攻 田中 豊
主任指導教員 大谷 吉生

ABSTRACT : In the present work, the centrifugal filter proposed by the authors was applied to classify aerosol particles followed by the detection of total mass or number concentrations so as to measure the size distribution of aerosol particles. The structure and operating condition of the centrifugal filter were optimized in order to attain sharp separation curves with various cut-off sizes between 0.3 and 10 μm . The aerosol penetrating the centrifugal filter at various rotation speeds was measured with a photometer to determine the total mass concentration. The virtue of this system is that the cut-off size is varied just by scanning the rotation speed of filter and that it can be applied to the measurement of high concentration aerosols without dilution by choosing an appropriate filter medium. As a result, the centrifugal filter was successfully applied to measure the size distribution of solid particles in size ranging from 0.3 to 10 μm .

1. 緒論

Nakajima et al. (2015) は、流れに対して平行な軸を中心として円筒状フィルタが回転する回転フィルタを提案した。回転フィルタは、圧力損失を変化させることなく、回転数を変化させることによって捕集効率を変化できることに特徴がある。これに加え、回転フィルタでは、粒子に対し遠心力は流れに対して直角に作用するため、粒子が再飛散してもろ過ぎた空気に混入しないというメリットがある。これらの回転フィルタの長所は、回転フィルタの高濃度エアロゾル粒子の分離への適用を可能にする。粒子径範囲 0.3~10 μm の粒子に対して、光散乱式粒子計数器 (OPC)、アンダーセンエアサンブラ (AAS)、空気学的粒子径測定器 (APS) などが開発されている (Baron, 1986; Cheng et al. 1993; Sachweh et al. 1998; Hinds, 1999; Dunbar et al. 2005; McMurry 2000; Binnig et al. 2007)。OPC は低濃度エアロゾル (通常 1000 cm^{-3} 以下) に対して光散乱相当径と個数濃度の測定が可能で、粒子が高濃度になるとコインシデンスロスによって測定誤差が大きくなる (Hinds 1999; Sachweh et al. 1998; Binnig et al. 2007)。AAS は多孔板オリフィス多段式インパクトで、空気力学径に基づく質量基準の粒子径分布測定が可能であり、インパクト各段に捕集された粒子質量の測定が必要で、リアルタイムでの計測は困難である。

APS は、粒子径範囲 0.1~20 μm の空気力学径基準の粒子径測定が可能である。APS も、OPS 同様、コインシデンスロスが問題となるため、低濃度のエアロゾル粒子の測定に限定される。以上のことから、粒子径 0.3~10 μm の範囲の高濃度エアロゾル粒子に対し、リアルタイムで空気力学径を測定する装置が欠如していると言える。

回転フィルタは、フィルタの回転数を変化させるだけで捕集効率が可変であるため、分離径を変化させることが可能である。このため、粒子径識別能を持たない粒子検出器と組み合わせることにより、新たな高濃度エアロゾル粒子径分布測定装置を構築することができると考えられる。すなわち、回転フィルタの回転数を走査してフィルタを透過した粒子濃度を測定し、測定された粒子透過率に対して適切な粒子径分布を求める逆変換アルゴリズムを適用することにより、粒子径分布を求めることができる。これは、印加電圧を走査して粒子径分布を測定する走査型電気移動度解析装置 (SMPS) と同様に、リアルタイム空気力学径分布測定装置となる可能性を示唆している。

本研究では、粒子径 0.3~10 μm の範囲の粒子の分級装置として、シャープな分級性能が得られるように回転フィルタの構造を最適化し、試作した回転フィルタによってその分級性能を評価した。その後、

本回転フィルタとフォトメータを組み合わせた粒度分布測定装置を多分散粒子の粒度分布測定に適用した。

2. 装置としての回転フィルタの最適化

Nakajima et al. (2015)によって提案された回転フィルタの構造を Fig.1 に示す。円筒状のフィルタあるいは多孔質体をフィルタホルダに装填し、ホルダの出入りに接続されたロータリジョイントを介して、ベルトあるいはギアにより外部モータによって回転する構造になっている。回転フィルタの捕集効率、捕集機構として慣性、さえぎり、重力、ブラウン拡散、遠心力を考慮した古典的な過理論によって予測できることが報告されている (Nakajima et al. 2015)。

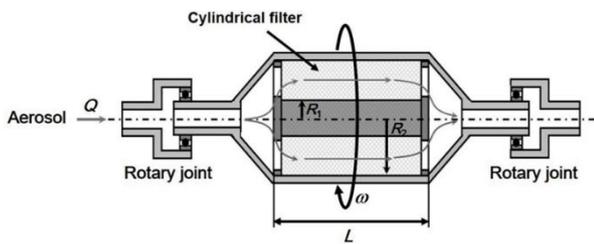


Figure 1. Structure of centrifugal filter

Table 1. Design parameters of centrifugal filter for aerosol classification.

Parameter	Unit	Value
Volumetric flow rate of aerosol, Q	[L/min]	7
Inner radius of filter, R_1	[mm]	10
Outer radius of filter, R_2	[mm]	40
Filter depth, L	[mm]	40
Maximum rotation speed, ω	[rpm]	3000
Particle size range measured, D_p	[μm]	0.3 – 10

回転フィルタを分級器として設計する際の設計変数を Table 1 に示す。分級対象とする粒子径範囲 PM2.5 を測定する際の重要な粒子径範囲である、光散乱粒子計数器 (OPC) と同じ 0.3~10 μm の粒子径範囲である。Table 1 に示した設計変数の制約の下、回転フィルタの構造を、フィルタ物性 (繊維径と充填率)、ろ過速度の関数として最適化する。Fig.2 に、繊維径が 100, 200, 300 μm の場合について、回転数をパラメータとして粒子径別捕集効率 (分級曲線) の推定結果を示す。Fig.2 に示すように、フィルタが回転していない場合の分級曲線の傾きは繊維径によって異なるものの、フィルタを回転させた場合の分級曲線の傾きは繊維径によって変化していない。これは、遠心力による単一繊維捕集効率が、単純に粒子の終末遠心沈降速度 v_c とろ過速

度 (層内速度) u_0 の比として与えられるためである。

$$\eta_c = \frac{v_c}{u_0} \quad (1)$$

$$v_c = v_t \left(\frac{r\omega^2}{g} \right) = \frac{C_c \rho_p D_p^2 r \omega^2}{18\mu} \quad (2)$$

ここで、 v_t は重力による終末沈降速度、 r は回転半径で円筒状フィルタの外径 R_2 と内径 R_1 の算術平均である。遠心力が粒子の捕集において支配的な場合 (遠心力による粒子の分級はこの場合に相当する)、遠心力による単一繊維捕集効率を次の対数透過則に代入することによって捕集効率が求められる。

$$E(D_p) = 1 - \exp \left(-\frac{4}{\pi} \frac{\alpha}{1 - \alpha} \frac{L}{D_f} \eta \right) \quad (3)$$

ここで、 α は充填率、 L はフィルタ厚さ、 D_f は繊維径、 η は各捕集機構による単一繊維捕集効率の和であるが、遠心力が支配的な場合は $\eta = \eta_c$ である。(2) 式を (3) 式に代入すると、分級曲線の傾きを決定する指数は、充填率 α が小さい場合、 α 、 L 、 ω^2 に比例し、 D_f と u_0 に反比例する。このことから、 α 、 L 、 D_f と u_0 の値が任意の値をとっても、 ω^2 を変化させれば同じ指数の値を得ることができる。すなわち、Fig.2 の分級曲線の傾きは D_p^2 のみによって決定され、 $\alpha L \omega^2 / (D_f u_0)$ の値によって分級曲線は左右に移動する。したがって、回転数が一定の場合、分級曲線の傾きは一定で、 α 、 L が小さいほど、 D_f と u_0 が大きいほど、分級曲線は大粒子径側へシフトし、大きな粒子を分級できることになる。このことは、フィルタ物性、ろ過条件を適切に選ぶことによってシャープな分級曲線が得られるのではと期待していた我々にとって大きな落胆であり、回転フィルタの欠点ともいえる。すなわち、フィルタ物性、ろ過条件をどのように変化させてもシャープな分級曲線が得られないということである。

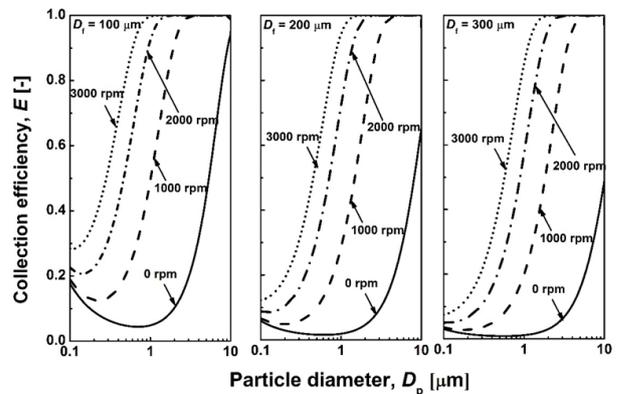
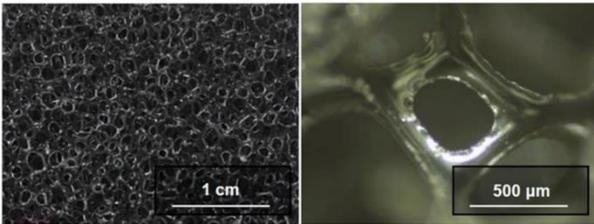


Figure 2. Separation curves of centrifugal filter for various fiber sizes of filter ($u_0 D = 2.5 \text{ cm/s}$; $Q = 7 \text{ L/min}$).

3. 回転フィルタの分級性能評価

回転数が一定であれば分級曲線の傾きは同じではあるが、回転数を可変することによる分級器の機能は有効である。Fig.2に示すように、繊維径が100~300 μm のフィルタを使用し、回転速度を0~3000rpmに可変することで、50%カットオフ径を0.5 μm ~1 μm に設定することが可能である。フィルタ条件を選定するにあたり、0.3 μm の捕集効率が十分に低く、均一に充填できる素材として、ポリウレタン多孔体媒体(Fig.3 および Table2.)を選定し、単分散粒子である PSL 粒子を用いて、分離特性の評価を行った。

$\alpha = 0.03, D_f = 140 \mu\text{m}$



$\alpha = 0.03, D_f = 240 \mu\text{m}$

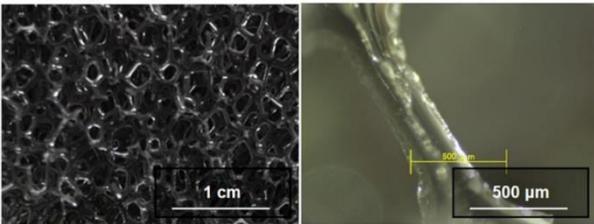
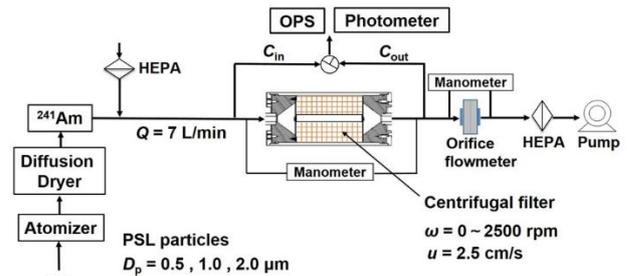


Figure 3. Polyurethane porous media for centrifugal filter.

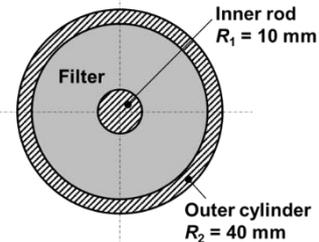
Table 2. Physical properties of polyurethane foam filters.

		Filter 1	Filter 2
Fiber diameter, D_f	[μm]	140	240
Thickness, L	[mm]		40
Area density, W	[g/m^2]		132
Packing density, α	[-]		0.03

Fig4.に単分散 PSL 粒子を用いた遠心分離フィルタの分級性能試験の実験構成を示す。PSL 粒子の懸濁液を噴霧し、続いて拡散ドライヤで乾燥することにより、0.5,1.0 および 2.0 μm の単分散 PSL を生成した。試験粒子を Am^{241} 中和器で帯電中和し、清浄な空気と混合して 7L/min に調整した。PSL 粒子の入口および出口濃度を、回転フィルタの回転数を可変させ、パーティクルカウンタ (OPS、Model 3330、TSI) を用いて測定した。



(a)



(b)

Figure 4. Experimental setup for: (a) classification performance test of centrifugal filter and (b) cross-sectional image of filter.

Fig5.は回転フィルタの捕集効率をプロットしたものである。左側がファイバ直径が140 μm のもの(D_{f1})、右側が240 μm のもの(D_{f2})である。グラフ内の線は回転フィルタの捕集効率理論(Nakajima et al. 2015)によって予測される線である。これらの図からわかるように、回転速度を変化させたときの捕集効率は理論線とよく一致し、回転フィルタのろ過理論によって推定することが可能であることが示された。

Fig6.はグラフの横軸を $\omega_2 = (D_{f2}/D_{f1})^{1/2}\omega_1$ に従って変換することにより、ファイバ直径が140 μm と240 μm のフィルタの分離曲を比較したものである。この図からわかるとおり、2つの分離曲線はよく一致し、分離曲線はファイバ直径に依存しないことを明確に示している。この図より2つのフィルタ(140 μm ,240 μm)の0.5,1.0 および 2.0 μm 粒子の50%カットオフサイズを与える回転速度がわかり、これをプロットしたものをFig7.に示す。この図からわかるように、回転速度を3000rpmまで上げることにより、50%カットオフサイズを10 μm から0.3 μm に変更することが可能である。

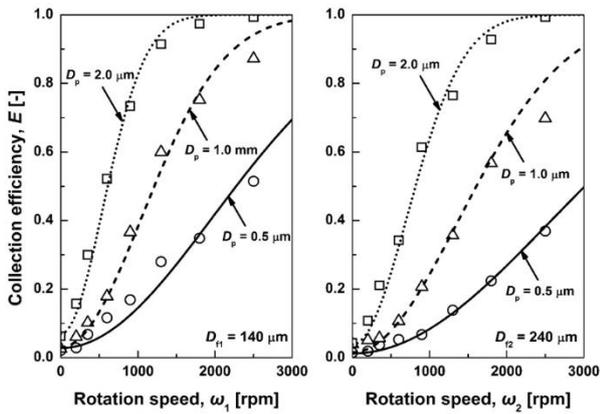


Figure 5. Collection efficiency of monodispersed PSL particles through centrifugal filter as a function of rotation speed at u_0 D 2.5 cm/s.

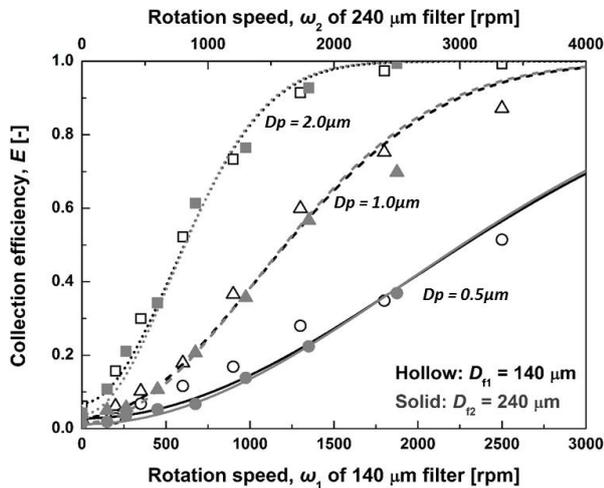


Figure 6. Comparison of collection efficiency of centrifugal filter consisting of 140 mm and 240 mm fibers.

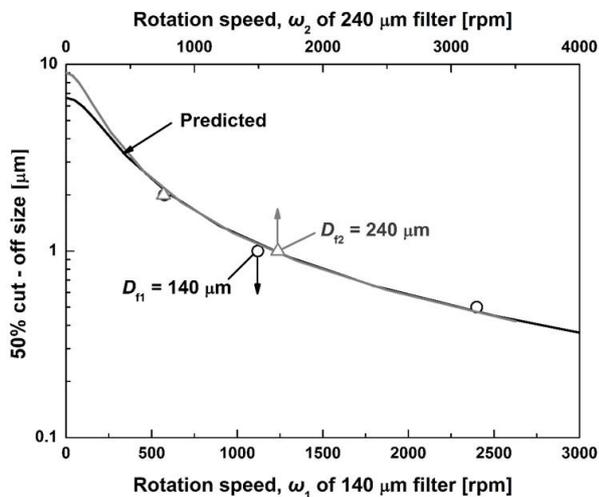


Figure 7. 50% cut-off size of centrifugal filter as a function of rotation speed.

4. 多分散粒子の計測

単分散の PSL 粒子を用いて回転フィルタの分級性能の評価を行い、基本理論通りであることを確認したので、多分散粒子の粒径分布の測定に適用した。実験装置は Fig4. と同じものを使用した。多分散粒子発生のために、アトマイザおよび拡散ドライヤを流動床式発生器(Model 3211, Kanomax Inc) に置き換えた。粒子検出器にはフォトメータ(Dusttrack Model 8530, TSI Inc) で総質量濃度を、光散乱式パーティクルカウンタ(OPS Model 3330, TSI Inc) にて個数濃度と粒子径分布を測定した。試験エアロゾルは空気力学的質量中央径が約 $2\mu\text{m}$ 、幾何標準偏差が 2.0 である関東ローム試験ダスト(JIS Z8901 :No.11 以後 JIS-11 と呼ぶ)を使用した。試験粒子を流動床式発生器より分散発生させ、 Am^{241} 中和器にて帯電平衡状態とし試験装置に導入した。また、入口側の粒子径分布を比較するために空気動径評価が可能な AAS(AN-200 Tokyo Dylec corp.)を用いて JIS-11 種の粒子径分布を測定した。

Fig8. は回転フィルタにさまざま濃度のエアロゾルを負荷したときの回転数に対して捕集効率をプロットしたものである。この図から回転フィルタはエアロゾルの濃度は回転フィルタの捕集効率に影響せず、データ再現性も高いことがわかる。これは分級装置として高濃度計測への適応を示すものである。次いで、回転フィルタに堆積した粒子の捕集効率への影響と再飛散の検証を行った。堆積状態を再現するためにフィルタに JIS-11 を塗布した。実際のフィルタは上流部から粒子堆積がおこるため、フィルタを 2 層とし、上流側に塗布したフィルタ、下流側に塗布していないフィルタを充填した。塗布したフィルタの状態と装置へ装着した様子を Fig9. に示す。

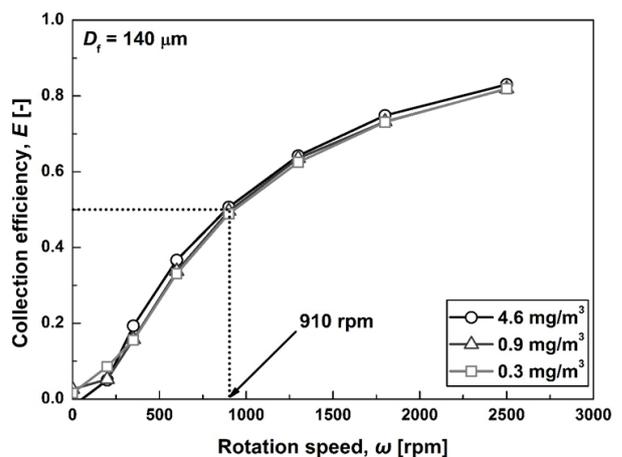


Figure 8. Collection efficiency of JIS-11 particles as a function of rotation speed at various aerosol concentrations.

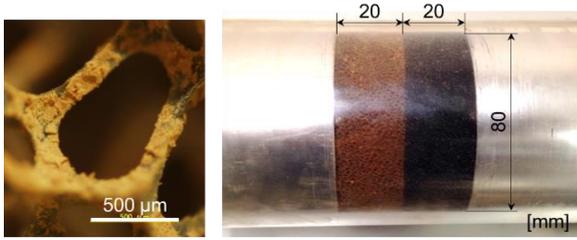


Figure 9. Picture of loaded filter with JIS-11 and the placement of loaded filter upstream of clean filter for particle reentrainment measurement

Fig10.はフィルタが 2.65kg/m^3 で負荷されたときにろ過速度の変化とフィルタの出口濃度をプロットしたものである。(負荷質量は Fig9.の左側の粒子が塗布されたフィルタを秤量して換算した) フィルタの回転数が 0rpm のときにろ過速度が変化すると粒子の再飛散が見られた。しかしながら、回転数が 500rpm 、 1000rpm の場合は再飛散の量は著しく減少し、しかも短時間である。これは一度フィルタに捕集された粒子が凝集したものが再飛散しているため、下流側で容易に捕集されていると推察できる。つぎにろ過速度は一定のまま、回転速度を変化させて同様の実験を行った。(結果は図示せず) この場合、回転速度を変化させても再飛散は見られなかった。 Fig11.は回転フィルタにおける粉塵負荷を伴う粒子の捕集効率の変化を示したものである。捕集効率は式 1 に示す通り、繊維径による関数ではないため、Fig10.に示すように 16kg/m^3 まで粉塵負荷を行っても一定のままである。これらの結果から、回転フィルタは再飛散はほとんど発生せず、また粒子堆積により捕集効率も変化しないことが確認された。

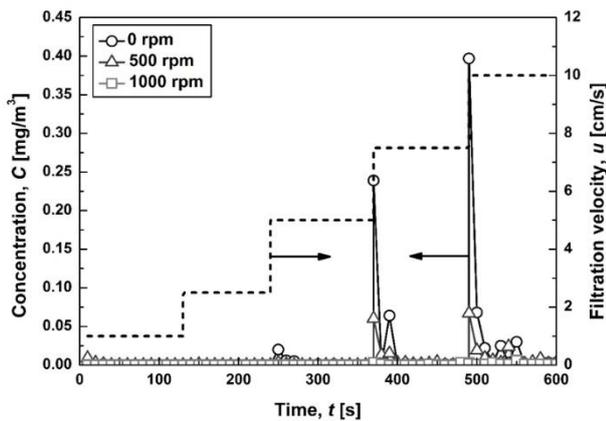


Figure 10. Reentrainment of particles from dust loaded filter with the change in filtration velocity.

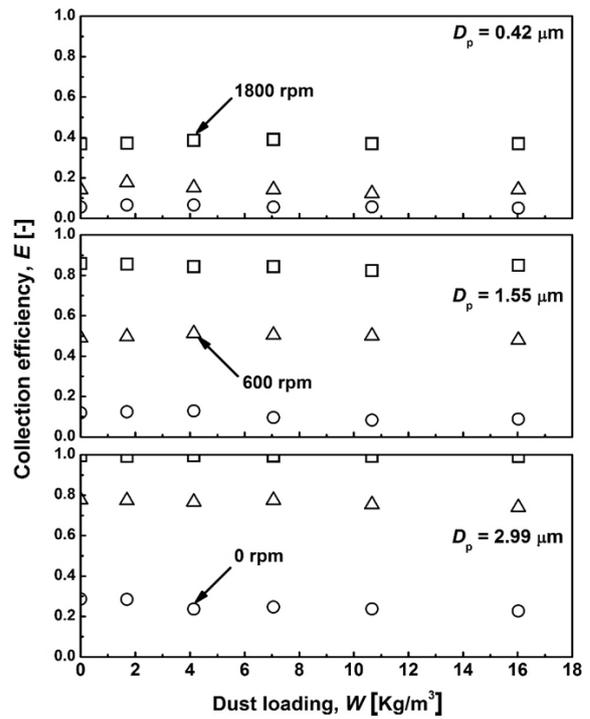


Figure 11. Change in fractional collection efficiency with dust load.

Fig8.より、繊維径が $140\mu\text{m}$ のフィルタを用いたとき、質量捕集効率 50% となる回転数が 910rpm であることがわかり、Fig7.よりカットオフ粒子径は $1.35\mu\text{m}$ がわかる。JIS-11 で推定される捕集効率曲線と単分散粒子から得られた予測曲線には差異があり、多分散粒子の偏差を考慮する必要がある。

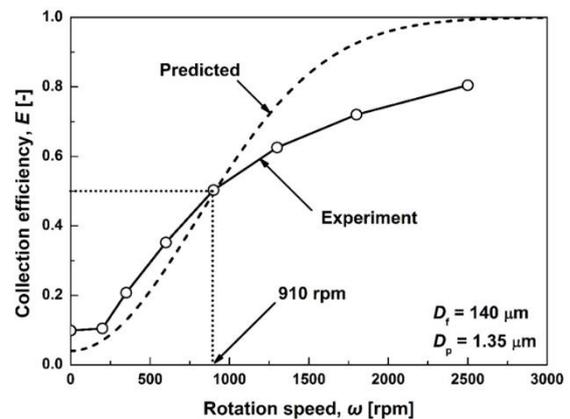


Figure 12. Comparison of collection efficiency of JIS-11 with the one predicted for monodispersed particles of $1.35\mu\text{m}$.

Fig12.に示した効率データから適切な逆換算方式を採用することにより、JIS-11の粒径分布を取り出すことを試みた。換算を簡単にするために、エアロゾルが対数正規分布と仮定し、幾何平均直径、 D_{pg} 、及び幾何標準偏差、 σ_g は、最小二乗法を用いて算出した。

$$f(\ln D_p) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_g} \exp \left\{ -\frac{(\ln D_p - \ln D_{pg})^2}{2 \ln^2 \sigma_g} \right\} \quad (4)$$

フォトメータによって測定された粒子の透過率はフォトメータの応答が粒子の全投影面積に比例すると仮定したとき、次の式によって与えられる。

$$P(D_p) = 1 - E(D_p) = \frac{\int_0^\infty D_p^2 f(\ln D_p, D_{pg}, \sigma_g) P(D_p, \omega) d \ln D_p}{\int_0^\infty D_p^2 f(\ln D_p, D_{pg}, \sigma_g) d \ln D_p} \quad (5)$$

ここでは、粒子の透過率の代わりに回転速度の影響を抽出するために、回転速度に関する粒子透過の導関数を使用した。

$$\frac{\partial P}{\partial \omega} = \frac{1}{\int_0^\infty D_p^2 f(\ln D_p, D_{pg}, \sigma_g) d \ln D_p} \int_0^\infty D_p^2 f(\ln D_p, D_{pg}, \sigma_g) \frac{\partial P(D_p, \omega)}{\partial \omega} d \ln D_p$$

・・・(6)

効率曲線の正接は Fig8.から得られ、実験 1 と式 6 によって予測されたものとの間の差の二乗和を最小にして、幾何平均直径 D_{pg} および幾何標準偏差 σ_g を決定した。

$$s^2 = \sum_{i=1}^n \left\{ \left(\frac{\partial P}{\partial \omega} \right)_i^{\text{exp}} - \left(\frac{\partial P}{\partial \omega} \right)_i^{\text{pred}} \right\}^2 \quad (7)$$

幾何平均直径 D_{pg} および幾何標準偏差 σ_g は粒子数に基づいているので、それらは以下のハッチの式を使用することによって質量に変換した。

$$\begin{aligned} \ln D'_{pg} &= \ln D_{pg} + 3 \ln^2 \sigma_g \\ \sigma'_g &= \sigma_g \end{aligned} \quad (8)$$

Fig13.は回転フィルタ、AAS および OPS で測定した JIS-11 粒子のサイズ分布を比較したものである。回転フィルタによって測定されたものと OPS

の測定結果に良好な一致が見られ、AAS は同じ幾何平均直径を与えるが、少し小さい勾配、すなわち大きな幾何標準偏差を与える。したがって回転フィルタによって測定された幾何平均直径 D_{pg} は $1.8 \mu\text{m}$ に等しく、幾何標準偏差 σ_g は 2.0 である。ちなみに、OPS は光学径を測定し、AAS および回転フィルタは空気動力学径を測定する。しかし、JIS-11 の粒子は褐色で密度が 2400kg/m^3 であるため、光学的な大きさと空気力学的な大きさが一致することがあり、JIS-11 粒子を試験エアロゾルとして使用するメリットの一つである。

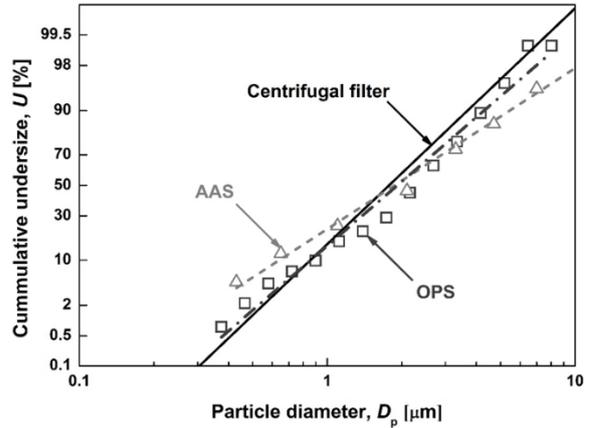
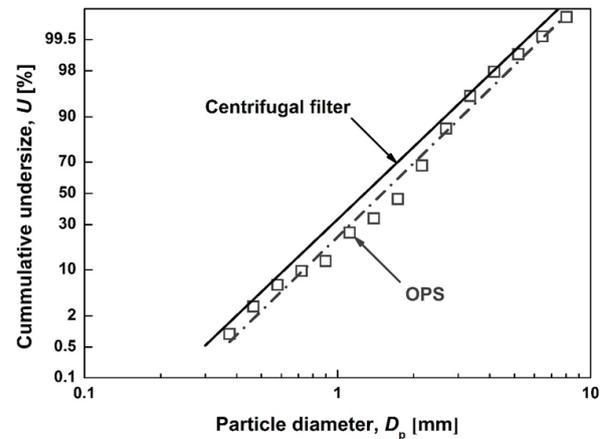


Figure 13. Comparison of size distributions of JIS-11 measured by centrifugal filter, AAS, and OPS.

Fig14.は、低効率フィルタで濾過した後の JIS-11 粒子を回転フィルタと OPS で測定したサイズ分布を比較しています。回転フィルタと OPS で測定したものと OPS と幾何平均直径 D_{pg} との間に良好な一致が得られ、幾何標準偏差 σ_g はそれぞれ $1.5 \mu\text{m}$ と $1.6 \mu\text{m}$ である。



走査速度を有する回転フィルタのメリットは、回転速度に対する透過曲線の導関数とり、回転フィル

タの構成および動作条件を適切に選択することによって、所定のエアロゾルの回転速度に対するフォトメータ応答の依存性を抽出することができる。さらに測定装置内の粗大粒子の堆積によって測定の誤差が通常生じるが、回転フィルタとフォトメータのシステムでは粗大な粒子は回転フィルタによって容易に捕捉され、粗大粒子による誤差を最小にすることができる。

5. 結論

本研究では、エアロゾル粒子を分級し、フォトメータで検出してエアロゾル粒子の粒子径分布測定する機構として回転フィルタを適用した。回転フィルターの構造と動作条件は、 $0.5\sim 10\mu\text{m}$ の様々なカットオフサイズを有する鋭い分離曲線を得るために最適化されるように試みたが、分離曲線はフィルタ物性によらないことが判明した。フォトメータと回転フィルターを組み合わせると多分散粒子の粒子径分布を測定したところ、回転フィルターからの粒子の再飛散は無く、また、捕集効率は粉塵負荷によって変化しないことがわかった。その結果、回転フィルターは、光散乱式粒子計数器によって測定されたものとよく一致する、高濃度エアロゾルの粒子径分布測定に適用できることがわかった。

学位論文審査報告書（甲）

1. 学位論文題目（外国語の場合は和訳を付けること。）

.....回転フィルタのエアロゾル粒子径分布測定への応用.....

2. 論文提出者 (1) 所属 自然システム 専攻

(2) 氏名 ふり がな たなか ゆたか
田中 豊

3. 審査結果の要旨（600～650字）

平成29年7月12日に学位論文予備審査会を開催して、提出された博士論文および研究業績を精査した。8月1日に口頭発表と質疑応答を行い、その後開催した論文審査委員会において、以下のように決定した。

回転フィルタは回転数を変化させるだけで捕集効率を変化できる新たなフィルタである。本論文では、回転フィルタをエアロゾルの分級装置として用い、回転数を変化させて回転フィルタを透過した粒子濃度を光散乱計（フォトメータ）によって測定し、エアロゾル粒子径分布を測定する装置を開発した。まず、PM_{2.5}の測定で最も重要な粒径範囲である粒子径 0.3μm～10μm の粒子を計測するためにフィルタ構造を最適化して回転フィルタを試作し、単分散粒子 PSL 標準粒子を用いて性能評価試験を行い、理論通り粒子を分級できることを明らかにした。そして、試作回転フィルタとフォトメータを組わせて粒子径分布測定装置を製作し、多分散粒子である JIS-11 種粉体（関東ローム粉）の測定に適用した。その結果、光散乱式パーティクルカウンター、慣性を利用したアンダーセンエアサンプラーとほぼ同じ測定結果が得られることを示した。さらに、フィルタに粉塵が堆積しても回転フィルタの捕集効率は一定で、粒子の再飛散は起こらないことを示した。

以上のように、本論文は、回転フィルタを用いた粒子計測システムを提案し、その計測システムの実用性を確認しており、博士（工学）の学位に相応しいと判断する。

4. 審査結果 (1) 判定（いずれかに○印） 合格 ・ 不合格

(2) 授与学位 博士（工学）