

環境ナノ粒子高速捕集技術の開発と動態解析への応用

著者	張 瞳
著者別表示	Zhang Tong
雑誌名	博士論文要旨Abstractおよび要約Outline
学位授与番号	13301甲第4484号
学位名	博士（学術）
学位授与年月日	2016-09-26
URL	http://hdl.handle.net/2297/46607

doi: 10.4209/aaqr.2016.07.0293



環境ナノ粒子高速捕集技術の開発と動態解析への応用

Development of High Speed Sampling Technology for Environmental Aerosol Nanoparticles and
Application to Environmental Dynamic Analysis

金沢大学自然科学研究科

環境科学専攻

張 瞳

平成 28 年 6 月

Abstract

In order to improve the separation performance of the layered mesh inertial filter, a hybrid structure of the layered mesh inertial filter and an impactor, which has the separation performance curve overlapped to that of the inertial filter, was tested for a single nozzle type layered mesh inertial filter. The hybrid type inertial filter was found to show a better performance, or, steeper performance curve with a less pressure drop than those of a combination of webbed stainless steel fibers and the layered mesh inertial filter. A high volume $PM_{0.1}$ separator based on the inertial filter technology, which uses the multi nozzle layered mesh geometry with a combined impactor, was developed as a $PM_{0.1}$ separation unit for a commercial portable air sampler operated at a flow rate of 400L/min. The hybrid structure of a single nozzle layered mesh inertial filter and an impactor was scaled up by multi-nozzle geometry and its separation performance was experimentally investigated. The developed $PM_{0.1}$ unit was successfully confirmed to show $PM_{0.13}$ cutoff size with acceptable steepness of separation performance curve and a pressure loss as well as good consistency with other samplers.

第1章 積層メッシュ慣性フィルタの性能改善

はじめに

大気中に浮遊する「環境ナノ粒子」は、健康リスクの高さが懸念されるが、その特性や発生源に関する情報は必ずしも十分ではない。様々な環境中でその存在状態を大きく変えることなく捉え、種々の観点で特性評価を可能にする方法が確立されていないこともその一因である。著者らの考案による慣性フィルタ技術は、10～15kPa程度の圧損でナノ粒子の分離・捕集が可能で粒子中揮発成分の揮発損失を抑制できるだけでなく、その携帯型エアサンプラへの適合性の高さを利用して、様々な環境中での簡便なナノ粒子フィールド観測を実現してきた(Otani *et al.*, 2007; Hata *et al.*, 2009; Furuuchi *et al.*, 2010)。分級特性のシャープさや大流量化、耐粉塵負荷性に関して、より優れたものが実現できればその適用範囲・条件がより広がると考えられる。

本章は、大流量化のひとつの方法として著者らが提案しているメッシュ積層型マルチノズル慣性フィルタ(Hata *et al.*, 2013)の分級特性の改良を試みたものである。ここでは、分級径が接近し分級特性曲線が重複する前段インパクトとメッシュ積層慣性フィルタを複合させた「複合型慣性フィルタ」を、圧損増加を抑制しながらシャープさを改善する手法のひとつとして提案し (Fig.1-1 参照)、マルチノズルの構成単位であるシングルノズルについて、その分級特性と圧力損失を検討した結果について報告する。

実験装置および方法

既報(Hata *et al.*, 2013)と同様のワイヤメッシュスクリーン (ϕ 47mm, 繊維径 14.7 μ m, 目開き 52.8 μ m, 開口率 62%, 5枚, ASADA mesh SHS-380/14) と中心に円孔 (ϕ 3.5mm) を有するステンレス製円形スペーサー (6枚) を交互に重ねてフィルタホルダーで保持したシングルノズル・メッシュ積層タイプの慣性フィルタを評価用慣性フィルタとした。慣性フィルタの上流に市販のスリット型インパクト (SKC, Siutas Impactor Stage-D, スリット幅 $W=0.15$ mm ($S/W=10$: S はノズルの出口から衝突板

までの距離), スリット長 20mm) を組み合わせた。インパクトの分級径は, スリットの一部をマスキングして長さ (断面積) を変えて調整した。

分級特性評価装置の概略を Fig.1-2 に示す。加熱・凝縮法による発生粒子および大気塵を DMA で分級して試験粒子とし, CPC (TSI, Model 3785) と LAS (TSI, Model 3340) で分級前後の個数濃度を測定した。また, 分級部の圧力損失をデジタルマンメータで評価した。慣性フィルタの性能評価は主に塩化亜鉛粒子と CPC, 前段インパクトについては大気塵粒子と LAS の組み合わせで測定した。

結果と考察

分級特性の評価結果を Fig.1-3 に示す。図中には, 前段インパクト (分級径約 200 μ m) とメッシュ積層慣性フィルタ (分級径約 150nm) を複合したインパクト複合型慣性フィルタの分級径 $d_{p50} = 100$ nm の場合の分級曲線を示した。また, 比較のため, 粗粒側の反発抑制を目的としてステンレス繊維の不織布層 (SUS-Web) をメッシュ積層慣性フィルタ前に重ねた場合 (既報⁵⁾の方法) の結果も合わせて示した。SUS-Web/メッシュ積層慣性フィルタの組み合わせでは, $d_{p50} = 100$ nm に対応する濾過速度と圧力損失はそれぞれ 40.7m/s, 15.9kPa であるのに対し, インパクト複合型メッシュ積層慣性フィルタは, それぞれ 24.6 m/s, 11.8 kPa であり, より低ろ過速度・低圧損化されている。また, 捕集曲線の立ち上がり (シャープさ) $\sigma = (d_{p84}/d_{p16})^{1/2}$ の値は, SUS-Web 複合型とインパクト複合型慣性フィルタに対してそれぞれ 2.4 と 1.7 であり, インパクトと複合させることで分級曲線の立ち上がりもかなり改善されることが分かる。

まとめ

分級特性が接近した全段インパクトとメッシュ積層型慣性フィルタを複合させることで, 数百 nm 超の粒子の反撥による分級効率低下が抑制されるとともに, 既存の SUS-Web による反発抑制では得られない分級特性のシャープさが, 相対的に低圧損で実現できることを示した。また, シングルノズルについて得られた結果に基づいて複合型慣性フィルタのマルチノズル化し, 市販のハイボリュームエアサンブラ用分級装置も試作した。この結果については次の章で紹介する。

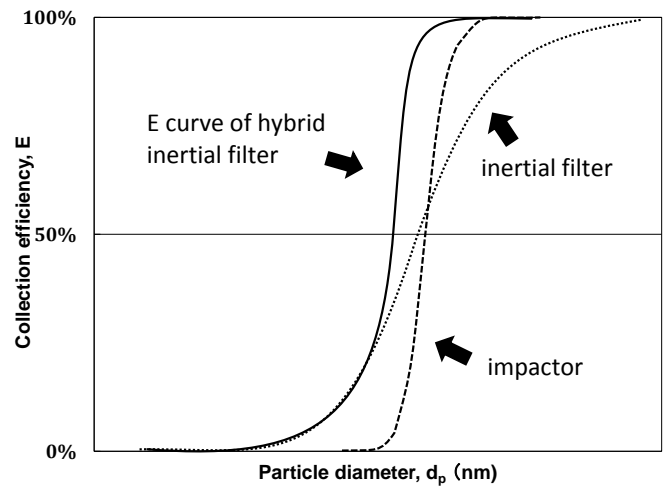


Fig. 1-1 Idea of “Hybrid (combined) type” inertial filter

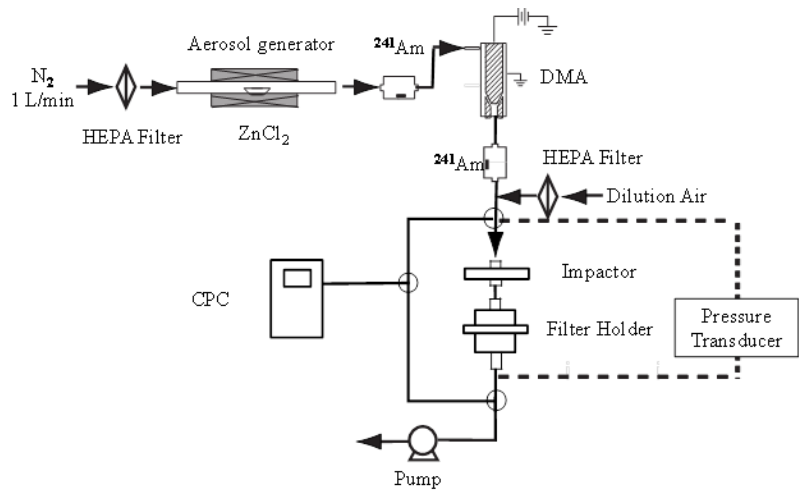


Fig. 1-2 Schematic diagram of the experimental setup.

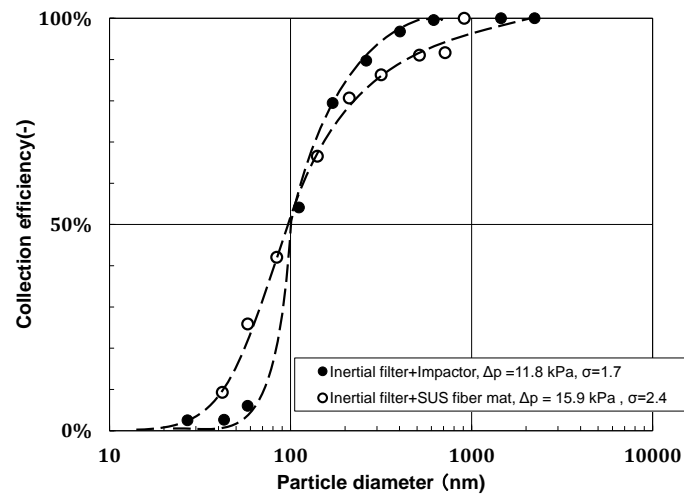


Fig. 1-3 Collection efficiency of the inertial filter with an impactor and with a SUS fiber mat

第2章 マルチノズル化による装置の試作はじめに

はじめに

本章では、検証されたナノ粒子複合分級技術をスケールアップして市販の携帯型ハイボリウムエアサンプラに装着可能なナノ粒子分級装置を試作・評価した結果を紹介する。

実験装置及び評価方法

試作サンプラは、粗粒除去用サイクロン（分級約 $1\ \mu\text{m}$ ）および分級径が接近したインパクト（スリット長 25mm ，幅 0.25mm ，20本， $S/W=10$ ，分級径約 $0.25\ \mu\text{m}$ ）とメッシュ積層慣性フィルタ（分級径約 150nm ）を連結したインパクト複合型慣性フィルタ，ナノ粒子捕集用バックアップフィルタとそのホルダで構成される（Fig.2-1 参照）。メッシュ積層慣性フィルタは，シングルノズル型をマルチノズル化してスケールアップしたもので，ステンレス製メッシュスクリーン（繊維系 $14.7\ \mu\text{m}$ ，目開き $52.8\ \mu\text{m}$ ，開口率 62%，ASADA mesh SHS-380/14）5枚とステンレス製多孔スペーサー（円孔 $\phi 3.5\ \text{mm} \times 28$ 個，厚さ $100\ \mu\text{m}$ ）6枚を，円孔中心が揃うように交互に積層してホルダに固定した。既報の分級特性評価装置を用いて，各分級段の分級特性および「インパクト複合型マルチノズル慣性フィルタ」の分級特性および圧損を評価した。ここで，分級特性の目標を，市販の携帯型ハイボリウムエアサンプラ（SHIBATA HV-500R）に装着して $400\text{L}/\text{min}$ の流量で連続運転が可能な圧損（ 15kPa 前後），可能な限りシャープな分級曲線（ $\sigma = (d_{p84}/d_{p16})^{1/2} < 1.8$ ）と 100nm に近い分級径を実現することに置いた。

試作装置による粒子濃度評価の妥当性を検証するため，大気塵を既存のエアサンプラと同時に捕集して濃度を比較した（使用フィルタ：Pallflex 2500QAT-UP）。試作装置以外の使用機材は，粒子径別多段サンプラ（ $\text{PM}_{0.1/0.5/1/2.5/10}$ ）（以下 NS）とハイボリウムエアサンプラ（SHIBATA HV-500R，以下 HV）と，減圧インパクト（以下 LPI）である。金沢大学

角間キャンパス内（自然科学研究科 B 棟 6F バルコニー）に観測点を設置し、Table2-1 に示す観測期間で捕集した。試作装置については、粒子負荷による圧損増加を確認するため、起動時、サンプリング中及び停止時に圧力損失を測定・記録した。

結果と考察

Fig.2-2 に各分級段の分級性能曲線とインパクト複合型慣性フィルタのトータル分級性能を示す。ここで、携帯型エアサンプラの性能を考慮し、分級径を約 130nm (PM_{0.13}) とした。図中には示していないがシングルノズルとマルチノズルの分級特性はほぼ一致しており、マルチノズル化によるスケールアップの妥当性が確認された。また分級性能曲線が重複するインパクトと慣性フィルタの複合化で、ステンレス繊維層による粗粒の反発抑制⁵⁾等を行わずに、既存サンプラに適用可能な現実的圧損（～13kPa）で比較的シャープな分級特性 ($\sigma \sim 1.7$) が得られることが分かる。

試作装置、粒子径別多段サンプラ、LPI による大気塵の同時捕集結果から推定される PM_{0.13} の質量濃度はそれぞれ、6.0、6.3 および 6.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、本試作装置によるナノ粒子捕集性能は妥当と考えられる。捕集期間中の圧力損失の増加は 1.5kPa と少なく、少なくとも大気塵を対象にするサンプリングでは十分に実用的な性能を持つと判断される。

まとめ

試作した大流量エアサンプラは、耐粉塵負荷性と従来の慣性フィルタよりもシャープな分級特性を持ち、様々な環境で粒子中半揮発性成分の揮発損失を抑制しながら短時間にナノ粒子を大量捕集できるツールとして十分な可能性を持つと考えられる。分級径は、メッシュ繊維のさらなる細繊維化、複合させるインパクトの改良による圧損抑制で、市販携帯型エアサンプラに装着する場合でも 100nm の分級径と実用的な圧力損失を実現できると考えられる。

Table 2-1 Sampling periods of air samplers used for validation of a developed sampler

Sampler	Sampling period
HV with hybrid inertial filter prototype	May 27th~30th
	May 30th~Jun 2th
NS	May 27th~30th
	May 30th~Jun 2th
LPI	May 27th~31th

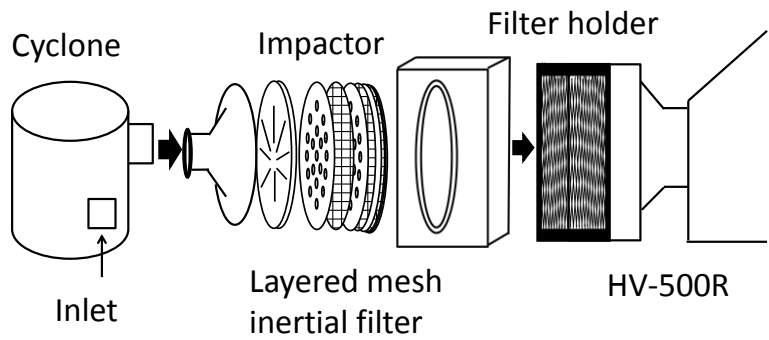


Fig. 2-1 Structure of a prototype high volume air sampler using an impactor combined layered mesh inertial filter

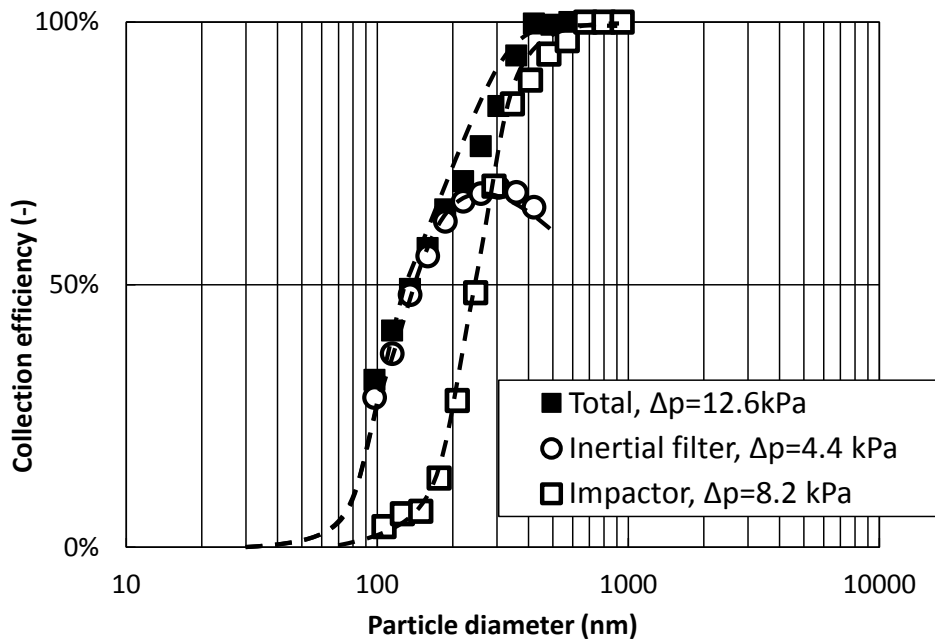


Fig. 2-2 Separation performances of inertial filter, impactor and the impactor combined inertial filter

第3章 試作装置を環境ナノ粒子動態解析への応用

はじめに

試作装置を利用し、発生源状況が比較的単純な道路トンネルで二時間ごとの観測をした。そして、採集したサンプルに対して成分分析も行った。その結果を本章で報告する。

実験方法

環境ナノ粒子とその発生源の特性を解明するには、比較的単純な環境でのサンプリングを行い、単一な発生源から発生するナノ粒子への動態解析も重要である。そのため、天気の影響をあまり受けず、発生源が比較的単純（背景としての大気以外は道路交通だけ）な道路トンネルを対象にし、フィールド観測を行う。そして、採集したサンプルに対して化学分析を行う。

道路端の観測点は、片側2車線の地域高規格道路である金沢外環状道路山側幹線「崎浦・涌波トンネル海側本坑」（全長667 m、二車線道路幅7 m、歩道幅3.5 m、断面積90.0 m²、換気設備なし）内の中間出口寄りの地点（出口から120m）の歩道上である。観測期間と利用した装置をTable 3-1に示す。

最終したサンプルは、温度20°Cと相対湿度35%の条件で48時間恒量した後、石英繊維フィルタ(Pallflex 2500QAT-UP)に捕集した粒子質量を秤量し、Sunset社製カーボンエアロゾル分析装置を使用し、IMPROVE法に従って炭素成分の分析も行った。ここで、トンネルで入手したPM_{0.13}粒子の情報を紹介し、交通との関係を論議する。

結果と考察

本研究の試作装置で、日中に2時間一回での測定が実現された。TSP・PM_{0.13}粒子濃度と大型車・トータル交通量の時間変化をFig. 3-1に示す。TSP濃度は全交通量と似

た傾向を示しているが、PM_{0.13}濃度は、大型車交通量と似た傾向を示している。

PM_{0.13}粒子中の全炭素 TC 濃度の時間変化と交通量の時間変化の傾向と一致しないが、主に化石燃料の燃焼によって排出される soot-EC の濃度の時間変化は大型車交通量の時間変化の傾向と一致している(Fig. 3-2 に示す)。

まとめ

試作装置により、道路トンネル環境（観測中平均 PM_{0.13}濃度= 19.9 μ g/m³）の PM_{0.13}質量濃度を最短二時間毎に評価できることを示した。PM_{0.13}濃度と大型車（トラック、バス）の交通量は、比較的良い相関性をしめした。今までなかった高時間解像度（2時間単位で）のナノ粒子炭素成分データを手に入れた。Soot-EC 濃度の時間変化は大型車交通量とある程度相関性を示した。

Table.4-1 Equipment and sampling period

Measurement	Equipment	Period
Size distribution and mass concentration	LPI	Jun 22th 14:00-24th 14:00
Mass concentration and chemical component in PM _{0.13}	HVNS	Jun 22th 14:00-24th Every 2 hours in day time and 1 or 2 times in night
Mass concentration and chemical component in total suspended particles	LV	Jun 22th 14:00-24th 14:00 The same time with HVNS
Traffic amount	Video camera	Jun 22th 14:00-24th 14:00

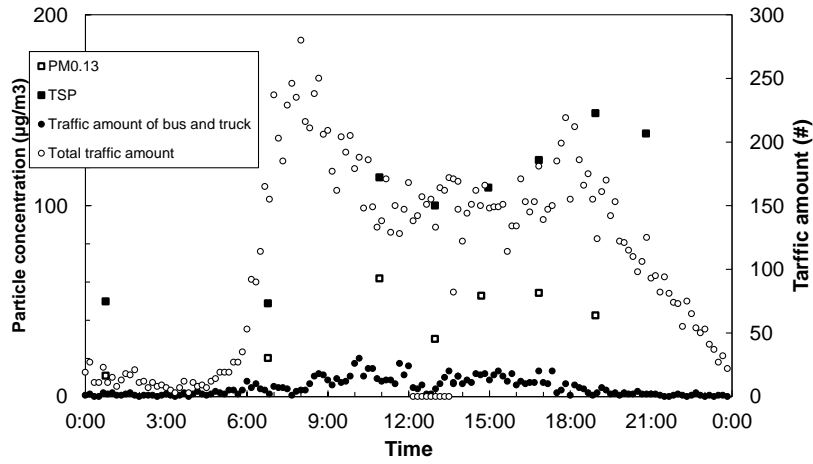


Fig. 3-1. Concentration of TSP and PM_{0.13} and traffic amount

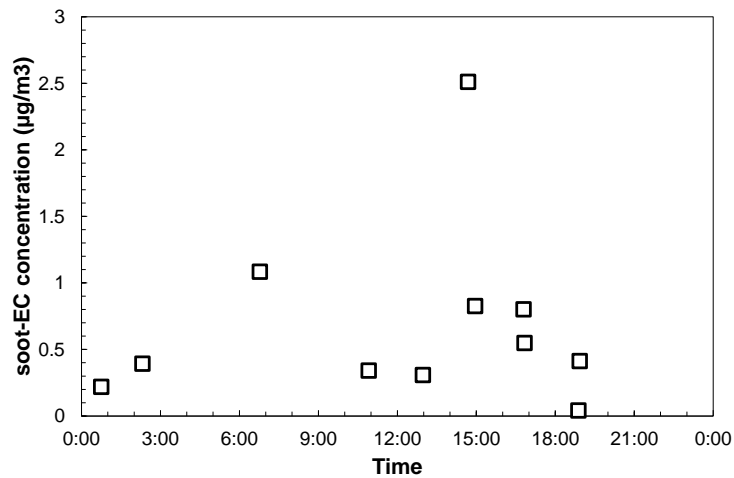


Fig. 3-2. Concentration of TC and soot-EC in PM_{0.13}

References

- Furuuchi, M., K. Eryu, M. Nagura, M. Hata, T. Kato, N. Tajima, K. Sekiguchi, K. Ehara, T. Seto and Y. Otani; “Development and Performance Evaluation of Air Sampler with Inertial Filter for Nanoparticle Sampling,” *Aerosol Air Qual. Res.*, 10, 185–192 (2010)
- Hata, M., Bai, Y., Furuuchi, M., Fukumoto, M., Otani, Y., Sekiguchi, K., Tajima, N;” Status and Characteristics of Ambient Aerosol Nanoparticles in Kakuma, Kanazawa and Comparison between Sampling Characteristics of Air Samplers for Aerosol Particle Separation.” *Bulletin of the Japan Sea Res. Inst.*, 40, 135-140(2009).
- Hata, M., Thongyen, T., Bao, L., Hoshino, A., Otani, Y., Ikeda, T., & Furuuchi, M;” Development of a high-volume air sampler for nanoparticles,” *Environ Sci. Processes Impacts*, 15(2), 454-462(2013)
- Otani, Y., K. Eryu, M. Furuuchi, N. Tajima and P. Tekasakul; “Inertial Classification of Nanoparticles with Fibrous Filters,” *Aerosol Air Qual. Res.*, 7, 343–352 (2007)