

粒子状物質の有害性評価のための気中粒子操作分析技術の応用

慶應義塾大学理工学部応用化学科

教授 奥田 知明

1. はじめに

大気中を浮遊する微小な粒子（エアロゾル）は健康影響、視程障害、気候変動などの環境影響がある。呼吸により体内に取り込まれたエアロゾルは、粒径の小さいものほど体の奥深くまで入り込みやすく、特に PM_{2.5}（空気動学的 50%カットオフ粒径が 2.5 μm 以下の大気粒子）に代表される微小粒子状物質は、気管支や肺胞までたどり着き、喘息や肺がんなどになるリスクを高めている。粒子状物質の有害性を評価するためには、粒子状物質そのものを用いた細胞・動物曝露実験を行うことが重要である。実環境中の粒子状物質を分析するために、一般的にはフィルターを用いてサンプリングが行われるが、その方法では曝露実験に必要な量の粒子状物質をフィルターから取り出すことが困難であった。そのため、フィルターに捕集された粒子状物質から水または有機溶媒により抽出された成分を曝露している例も多く見られるが、粒子中の成分のみを曝露することは、これらの成分を含んだ粒子そのものが曝露されているという現実の系を再現できていない、という本質的な問題がある。そこで当研究室では、曝露実験に供することができる比較的大量（数十 mg～数百 mg のオーダー）の粒子状物質をフィルターを用いずに採取することができる、インパクターとサイクロンを組み合わせた大流量粒子サンプラーを開発した。

2022 年度は、当研究室で開発された小型開閉型サイクロンを天野工業技術研究所でも作製し、さらに必要に応じて改良を加えることを可能にした。さらに、得られた大気粒子の化学・生物学的分析手法を概ね確立した。これをふまえて 2023 年度では、以下の項目につき研究を進めた。

1. 小型可搬開閉型サイクロン装置の共同製作により得られた粉体の化学分析
2. 小型開閉型サイクロンを用いた粒子状物質捕集装置のスケールアップ
3. 小型開閉型サイクロン内部の CFD 解析

2. 研究成果

2.1. 小型可搬開閉型サイクロン装置の共同製作により得られた粉体の化学分析

2022 年度までに、慶應大奥田研にて開発実用化済の小型可搬開閉型サイクロン装置の製作図面一式を天野工技研に提供し、天野工技研により同型機の製作を行った。2023 年度までの研究経過を以下に示す。

2023/ 2/28 天野工技研にて作製の小型可搬開閉型サイクロン装置の試運転開始

2023/ 5/ 9 第 1 回サンプリングによる粒子回収（奥田+学生 2 名）、第 2 回サンプリング開始
（23HM01K、回収粉体量：サイクロン内壁 26.3 mg、ビン 15.6 mg）

2023/ 8/ 9 第 2 回サンプリングによる粒子回収（奥田+学生 3 名）、第 3 回サンプリング開始
（23HM02K、回収粉体量：サイクロン上部内壁 23.1 mg、下部内壁 21.2 mg）

2023/ 9/ 9 天野工技研・半田研究員およびアマノ（株）・中川課長が慶應大訪問見学、情報交換

- 2023/10/11 第4回サイクロン勉強会、奥田とアイマン研究員がサイクロンシミュレーションの解説
- 2023/12/14 第3回サンプリングによる粒子回収（天野工技研のみで実施）、第4回サンプリング開始
（23HM03K、回収粉体量：サイクロン内壁 50 mg）
- 2024/ 1/18 天野工技研よりインパクター設計についての質問、奥田より回答と資料送付
- 2024/ 3/28 第4回サンプリングによる粒子回収（天野工技研のみで実施）、第5回サンプリング開始
（23HM04K 回収粉体量：サイクロン内壁 18 mg）

天野工業技術研究所における共同研究の実施風景として、小型可搬開閉型サイクロン装置の稼働およびサイクロンにより得られた粉体の回収の様子を Fig. 1 に示した。得られた粉体のうち、23HM01K および 23HM02K の化学分析を行った。23HM01K は、インパクター、サイクロン内壁、サイクロンビン、の3カ所において採取された粒子の分析をそれぞれ行った。採取した粒子状物質を約 2 mg 量り取り、超純水（比抵抗 18.2 M Ω ・cm）により水溶性成分の抽出を行い、イオンクロマトグラフ（Dionex ICS-2100/1100, Thermo Fisher Scientific）システムにより水溶性無機イオン成分を測定した（Fig. 2）。その結果、インパクターではナトリウムイオンや塩化物イオンおよび硝酸イオンが多く含まれていたのに対し、サイクロン内壁では硫酸イオンが多かった。前者は比較的粗大な粒子の特徴を有し、後者は比較的微小な粒子の特徴を有していた。サイクロンビンにて採取された粒子の化学組成は両者の中間的な特徴を示したが、比較的サイクロン内壁により近い特徴を有していた。この結果をほぼ同時期に横浜市の慶應義塾大学矢上キャンパス 25 棟屋上にて採取された大気粒子（JP-PM2.5-32k, 2024/2/21～5/16）と比較した。今回の結果では、浜松のサイクロン装置におけるサイクロン内壁およびビンに捕集された大気粒子の特徴が、横浜のサイクロン装置内壁に捕集された大気粒子の特徴と類似していた。23HM02K ではいずれもサイクロン内壁の、インレット直下およびサイクロン下部において採取された粒子の化学的特徴の比較を行った。水溶性イオン成分分析の結果、いずれの粒子も硫酸イオンを多く含み、これは 23HM01K のサイクロン内壁において採取された粒子の化学的特徴と類似しており、比較的微小な粒子の特徴を有していた。



Fig. 1 天野工業技術研究所（浜松市）における共同研究の実施の様子。

（左）小型可搬開閉型サイクロン装置の稼働 （右）サイクロンにより得られた粉体の回収

浜松: 23HM01K

2023/2/28~5/9

横浜: JP-PM2.5-32k

2023/2/21~2023/5/16

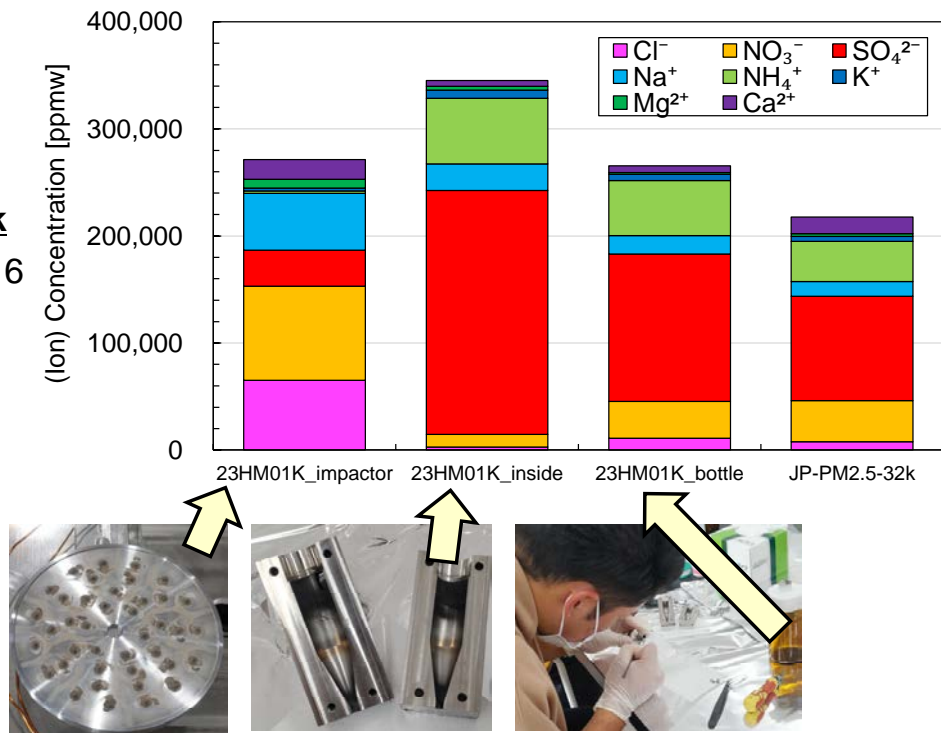


Fig. 2 粒子中水溶性イオン成分の分析結果

浜松: 23HM01K (捕集箇所: 左からインパクター、サイクロン内壁、ビン) 横浜: JP-PM2.5-32k

次いで、大気粒子中の金属成分および炭素成分の分析を行った。金属成分は酸分解・誘導結合プラズマ質量分析法 (Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry: ICP-MS, Agilent 7700x) によって分析を行った。炭素成分は熱分離法を用い、昇温プログラムは IMPROVE (Interagency Monitoring of Protected Visual Environments) プロトコルに準じた。なお有機炭素の炭化画分に対する光学補正は行わず、タイムプログラムにて全試料共通とした。金属成分の分析結果より、インパクターではマグネシウムやアルミニウムおよびカルシウムが多く含まれており比較的粗大な粒子の特徴を有していたのに対し、サイクロン内壁ではカリウムや銅および亜鉛が比較的多く含まれており微小な粒子の特徴を有していた。この傾向は水溶性イオン成分の分析結果より導かれる考察と整合的であった。炭素成分の分析結果より、浜松の炭素成分含有量は横浜よりも少なかった。これは、横浜と比較して浜松では大気粒子中炭素成分の発生源となる人為的な燃焼活動 (例えば自動車排気ガスや工場排気など) が少ないことによるものと考えられた。

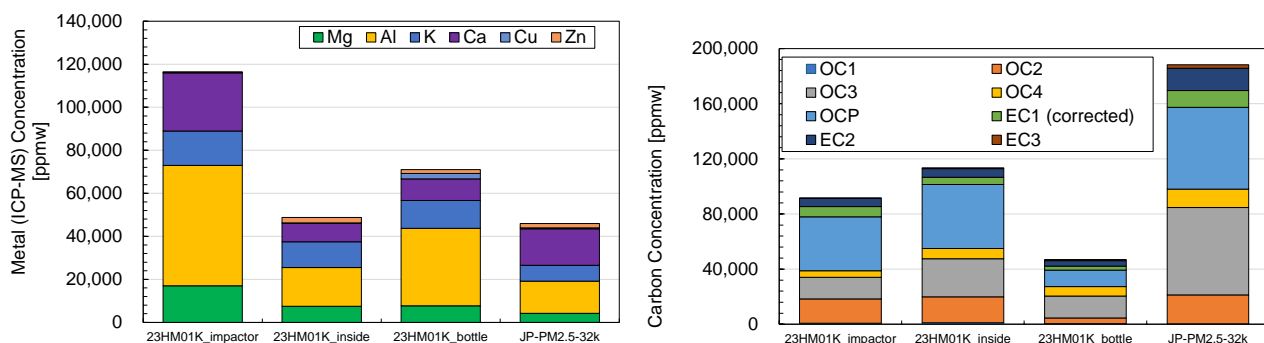


Fig. 3 粒子中金属成分および炭素成分の分析結果

2.2. 小型開閉型サイクロンを用いた粒子状物質捕集装置のスケールアップ

小型サイクロン装置の大気粒子捕集性能が高いことは慶應大にて実証済み（Alimov et al., 2022, AJAE 16, 103-121, Nishita-Hara et al., 2024, AST 58, 681-693）であるが、その一方でサイクロンが小型かつ大流量であり圧力損失が大きくなるため、空気を吸引するためには強力なポンプが必要であった。今後装置をスケールアップして粒子捕集量を増やしていくにあたり、複数個のサイクロンを大型ポンプで吸引させた際の実証データが必要である。2022年度では、従来よりも大型のポンプ（オリオン KCPH30-V-01A-50）を選定し、本学校舎屋上にてサイクロンを接続して稼働を開始したが、予想よりも運転流量が低かった。そこで2023年度は、その原因の調査と実験系の改善を実施した。具体的には、装置を構成するインパクター、サイクロン、フィルター（流量計およびポンプ保護用）、そしてそれらを繋ぐ配管（導電性チューブ）により発生する圧力損失をパーツごとに調べた（Fig. 4）。その結果、内径が細い配管において最も圧力損失が大きかったため、可能な限り内径の大きい配管（8 mm または 11 mm）に交換したところ、1台のポンプで3個の小型開閉型サイクロンを接続して90 L/minの流量で数ヶ月間運転することに成功した。これにより、同一のサンプリング期間で約3倍の粒子量を得ることが可能となった。

3流路に設置された小型開閉型サイクロンよりそれぞれ得られた粒子中の水溶性イオン成分を分析した（Fig. 5）。その結果、3つのサンプルそれぞれの粒子中イオン成分濃度はほぼ一致していた。さらにそのイオン成分組成は、過去の同時期に横浜市において採取された大気粒子中イオン成分組成と類似していた。これらの結果より、小型開閉型サイクロンを用いた粒子状物質捕集装置の3倍のスケールアップに成功したと言える。

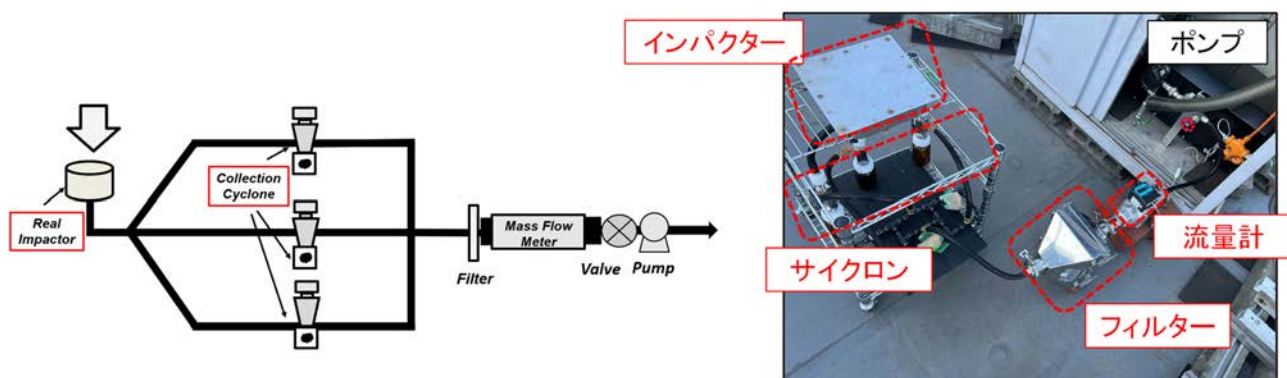


Fig. 4 多連小型サイクロン装置の概略図（左）と実験中の様子（右）
（長期運転時は右に見えるシェルター内に格納した）

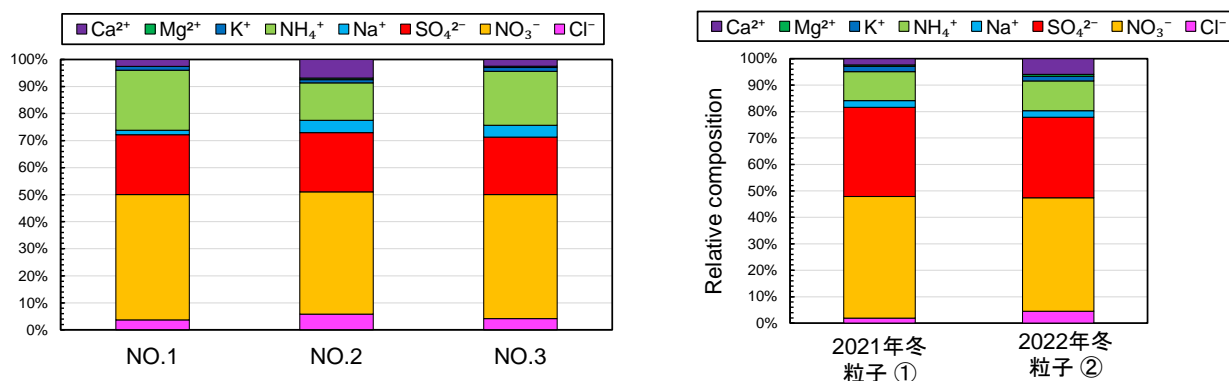


Fig. 5 3つのサイクロンより得られた粒子中の水溶性イオン成分と過去の同季節における結果との比較

2.3. 小型開閉型サイクロン内部の CFD 解析

小型サイクロン装置の主要デバイスであるサイクロン本体の内部諸元は市販品（URG-2000-30EHB, 50%分粒径 $1\ \mu\text{m}$ @16.7 L/min）に基づいているが、本装置のように想定よりも大流量（約 100 L/min）を通気させる際には、諸元に最適化の余地がある。そこで 2022 年度は、サイクロン本体内部の流れ特性を解析するため CFD シミュレーションを構築して流れ場データを解析したところ、流量を 80, 90, 100 L/min と変化させると渦構造が明らかに変化することを示した。2023 年度はさらに Fig. 6 の条件において解析を進め、流量 90 L/min における流れ場の解析では、インレット直後において流体の圧縮性が表れ始めるマッハ数 0.3 を超える領域があることが示唆された（Fig. 7）。

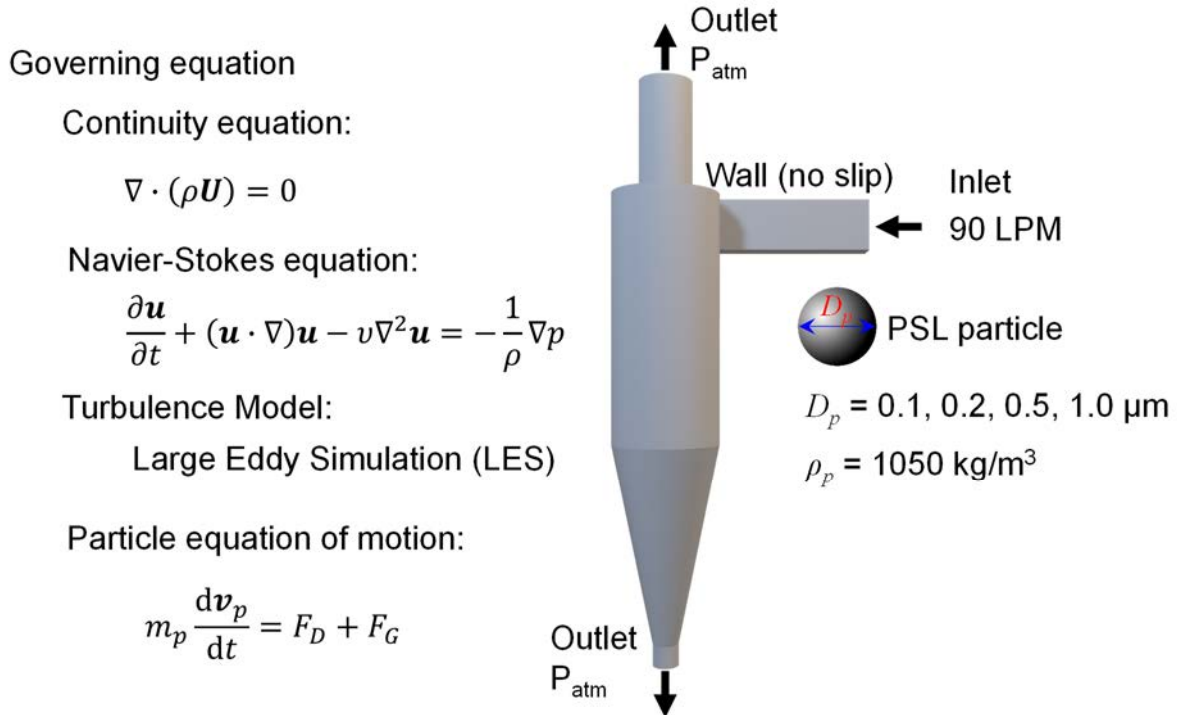


Fig. 6 小型開閉型サイクロン内部の粒子挙動の数値解析条件

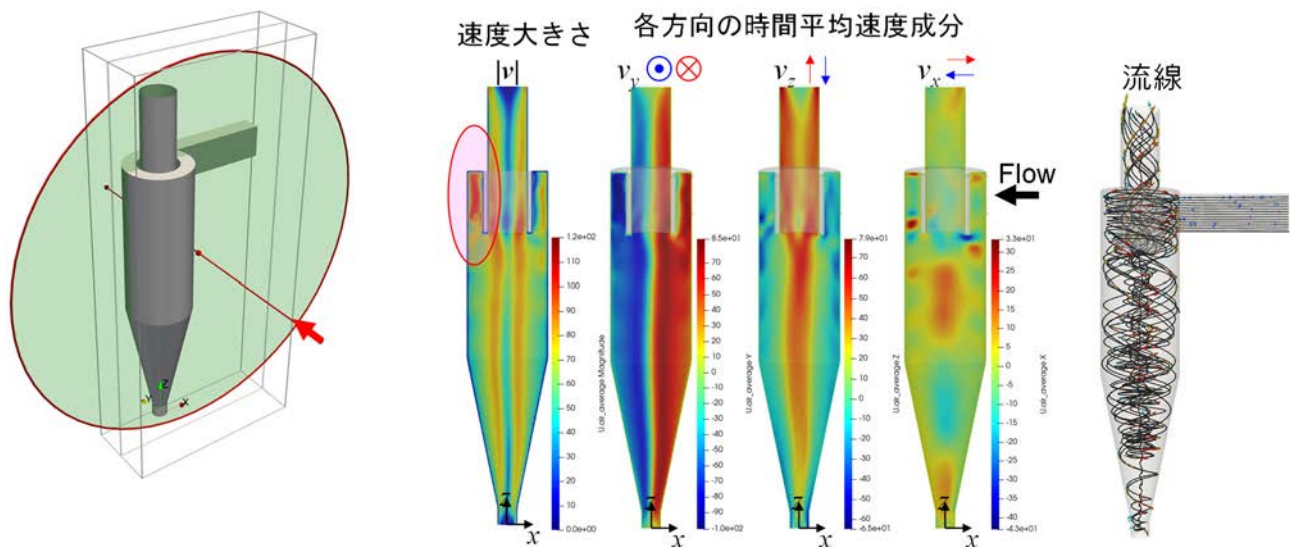


Fig. 7 小型開閉型サイクロン内部の粒子挙動の数値解析結果
 (左上の丸囲み箇所はインレット直後で流体の圧縮性が発生している可能性を示す)

次に、4つの粒径 (0.1 μm , 0.2 μm , 0.5 μm , 1.0 μm) を対象としてサイクロン内部の粒子挙動シミュレーションを実施した。その結果、粒径 0.1 μm という極微小粒子であってもインレット直後の壁面に多く沈着することが示された。次に、このシミュレーション結果について、3種類の手法によりそれぞれ実現象との比較を行った (Fig. 8, 計算途中のスナップショットは Fig. 9)。

第一に、90 L/min で約3ヶ月間大気粒子を捕集した小型開閉型サイクロンの内部を開け、サイクロン壁面に付着した粒子を目視で観察した。その結果、粒子はサイクロン内壁のインレット直後および下部の円錐部分に多く付着しており、シミュレーション結果より予測される現象と実現象が整合していた。

第二に、サイクロンのインレット直下の壁面に付着した粒子と円錐部分の付着粒子を別々に回収し、それぞれ化学成分分析を行った。その結果、両者のイオン成分組成は類似していたが、インレット直下の壁面に付着した粒子の方が、円錐部分に付着した粒子と比較して、硫酸イオン含有量がやや高かった。また、硝酸イオンについては、逆に円錐部分の粒子の方がやや高かった。実環境大気中では硫酸イオン成分が比較的微小側の粒子に存在し、硝酸イオンは比較的粗大側の粒子に存在することを合わせて考えると、この結果はシミュレーション結果より予測される現象と実現象が整合していることを示している。

第三に、実験室内において2つの粒径 (0.2 μm , 1.0 μm) の蛍光ポリスチレンラテックス粒子(Fluorescent PSL sphere particles, Polysciences) の懸濁液をアトマイザーにより噴霧しシリカゲル充填カラムを通して乾燥させることによって気中に粒子を発生させ、それを小型開閉型サイクロンに 90 L/min で導入し、実験後にサイクロン内部を開けて目視にて壁面の状況を確認した。その結果、0.2 μm の蛍光 PSL 粒子の痕跡はインレット直下のサイクロン壁面で明らかに確認できた一方で円錐部ではあまり確認できなかったのに対し、1.0 μm の蛍光 PSL 粒子の痕跡は円錐部においても明らかに確認することができた。これは、インレット直下のサイクロン上部では粒径 0.2 μm といった微小粒子も壁面において捕集される一方で、円錐部分においてはインレット直下ほど微小粒子が壁面に付着しないことを示しており、やはりシミュレーション結果より予測される現象と実現象が整合していた。

上述の通り、3種類の方法でシミュレーション結果を実現象と比較を行った結果、両者は良好に整合していた。従って、本研究において実施したシミュレーションは実現象を予測する上で極めて有用であることが示された。

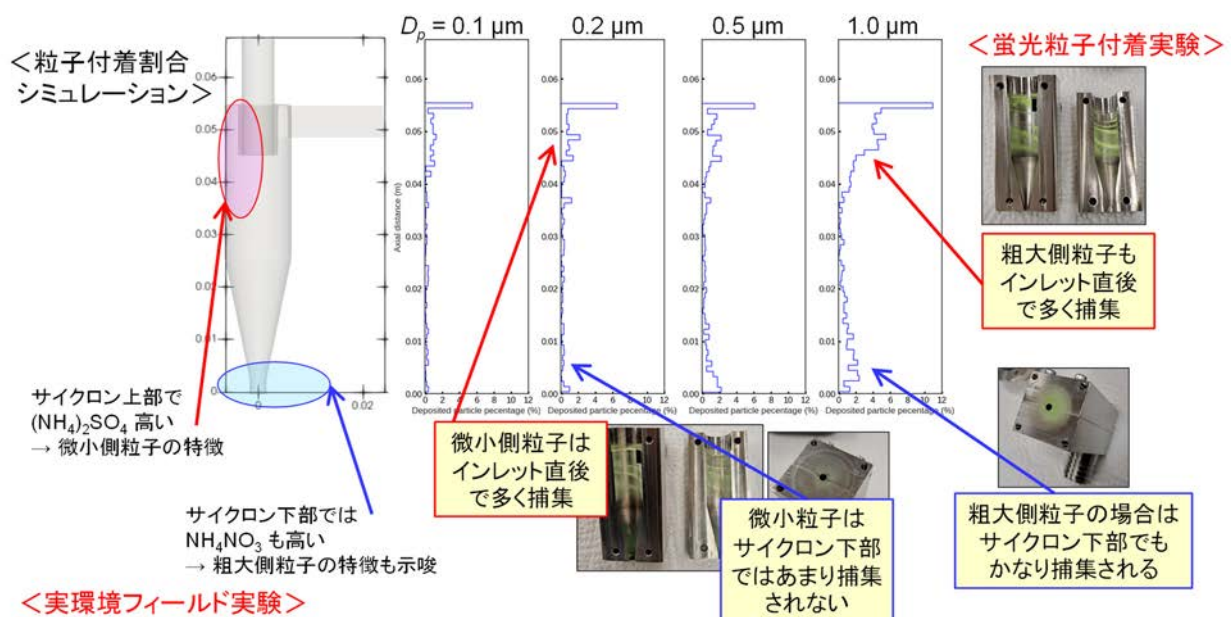


Fig. 8 小型開閉型サイクロン内部の粒子挙動の数値解析結果と実現象との比較結果

Time: 0.016024 s

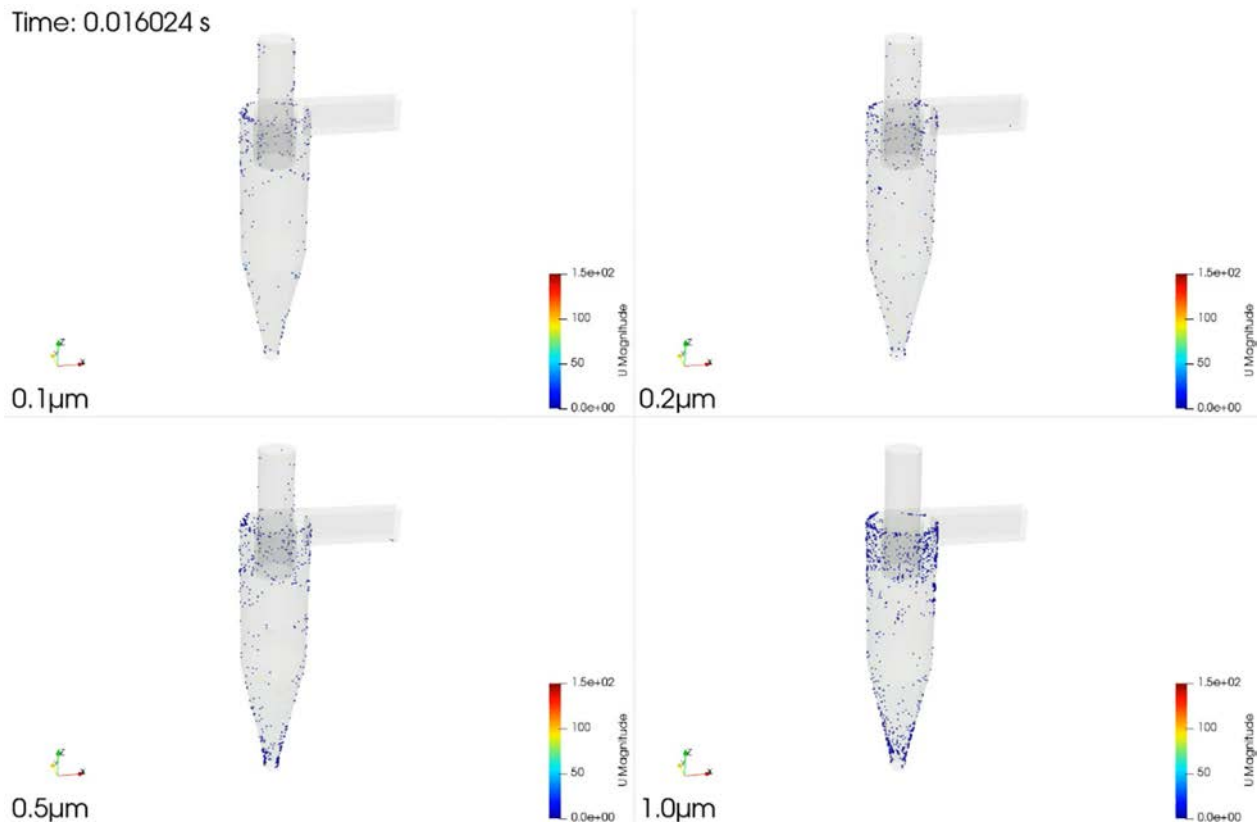


Fig. 9 小型開閉型サイクロン内部の粒子挙動の数値解析のスナップショット

2.4. 小型開閉型サイクロン内部の CFD 解析における流体の圧縮性の詳細な検討

2.3 項に示した通り、流体の圧縮性により小型開閉型サイクロン内部の粒子挙動の特異性が説明できる可能性が示された。そこで、流体の圧縮性が及ぼす効果についてさらに詳細な検討を行った (Fig. 10)。

Ansys Fluent version 2024

ワークステーション: CPU (16コア), RAM (128 GB)

計算手法とスキーム

Pressure and velocity coupling	SIMPLE
Time discretization	Euler
Gradient discretization	Gauss Linear
Divergence discretization	Gauss Linear based
Laplacian discretization	Gauss Linear Corrected
Interpolation	Linear

収束判定

Velocities	10^{-4}
Pressure	10^{-3}
Turbulent parameters	10^{-4}

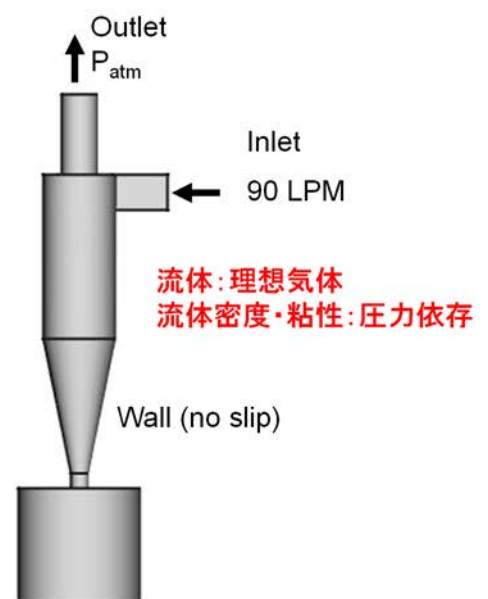


Fig. 10 流体の圧縮性を考慮した小型開閉型サイクロン内部の流体挙動の数値解析条件

計算の結果、流体の圧縮性を考慮すると流速が速くなり、高速流体の領域が広がった (Fig. 11)。この効果により、粒子に作用する遠心力も上昇することで、粒子の壁面への付着が促進された可能性が示された。さらにサイクロンの Vortex Finder 外面に沿った二次下向き軸流を解析したところ、圧縮性流体を考慮した際に速度が増加することが示された (Fig. 12)。このことは、サイクロンの分級性能を悪くさせるショートサーキット (インレットよりサイクロン内に導入された粒子が壁面に到達する前にそのまま Vortex Finder から排出されてしまう現象) を回避させ、結果的にサイクロンの性能を向上させる可能性があることが示された。

本研究により構築されたシミュレーション技術を用いることで、今後は形状の異なるサイクロン (ドーム型等) の性能評価も円滑に実施できることが期待される。

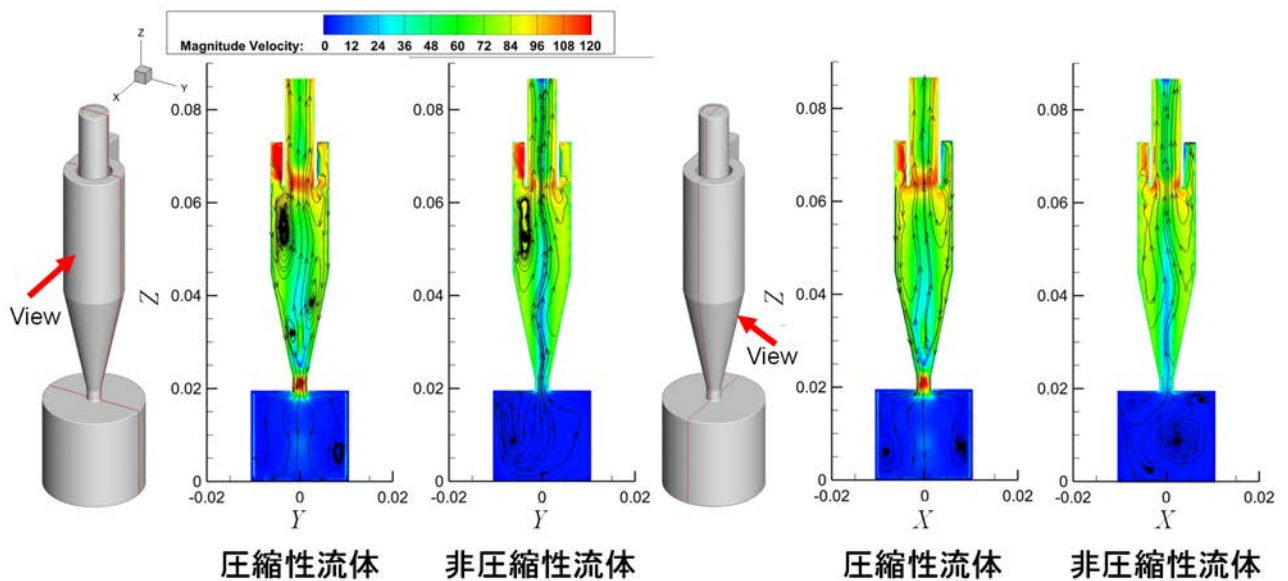


Fig. 11 流体の圧縮性を考慮した小型開閉型サイクロン内部の流体挙動の数値解析結果

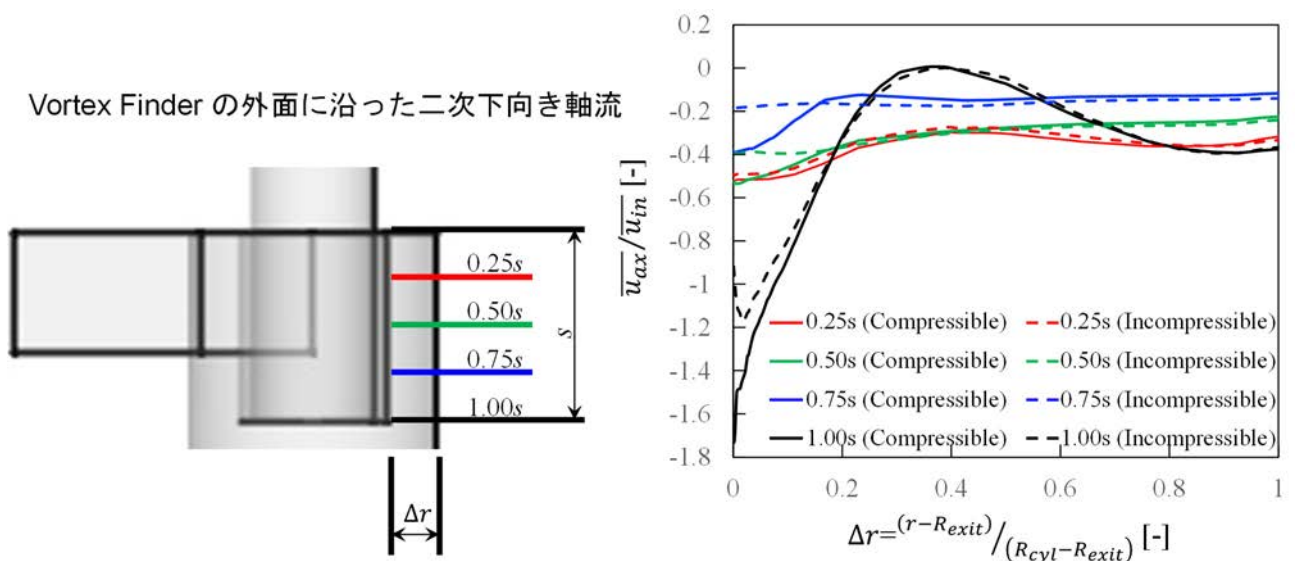


Fig. 12 流体の圧縮性による Vortex Finder の外面に沿った二次下向き軸流の違い

以上