エアロゾル粒子の沈着により形成された粒子層の表面形状および内部の構造[†]

生 三 俊 哉・森 晴 彦
増 田 弘 昭

広島大学工学部 化学工学教室^{††}

円管流路内を流れるエアロゾル粒子は内壁面に沈着し、充填率の小さい粒子層を形成する。この粒子層の表面形状と内部構造を、単極荷電された粒子および非帯電粒子に対して検討した。粒子層の表面粗さは単位面積あたりに沈着した粒子の質量（粉塵負荷）とともに増加した。この表面粗さは非帯電粒子よりも単極荷電された粒子の方が大きい。走査型電顕写真により、粒子層は凝集粒子から形成されており、非帯電粒子よりも帯電粒子の方がより疎に充填されていることがわかった。これら粒子層の充填率は粉塵負荷の増加につれて大きくなり、次第にそれぞれの最大値に近づく。さらに、粒子層の構造の相違は、帯電粒子の電気的分極を考慮した簡単な計算機シミュレーションにより定性的に説明できることがわかった。

緒 言

微粒子の集塵操作では、捕集粒子の粒径がミクロンオーダー以下となると粒子間付着力が重力に比べ非常に大きくなるため、気流による再飛散は考慮されない場合が多い。しかし、実際の工業用電気集塵装置では1~2 m/s程度の低流速においても流体力学的な再飛散を生じ、捕集効率の推定に影響を与えるだけでなく、再飛散を避けるため大きな流路断面積を必要とする。また、微粒子の風力分級操作においては、壁面へ付着した凝集粒子が飛散すると、1個の粗粒子として挙動するため分級効率が低下する。

Basset ら¹⁾は実験室規模の電気集塵装置を使用した実験を行い、再飛散は印加電圧に関係なくほぼ一定の流速、1.5 m/s 程度において開始すると報告している。しかし、なぜこのような低い流速で再飛散が生ずるのかは明らかでない。また増田ら⁴⁾は表面をナイフでカットした種々の充填率の粒子層について気流による再飛散実験を行い、粒子層引張破断強さと飛散開始気流剪断力の関係を求めているが、実際の集塵極板上で起こるような充填率の小さい粒子層からの低流速での飛散は気流による剪断力のみでは十分に説明できない。これは捕集粒子層の充填率だけでなく、表面形状あるいは内部構造などが飛散に対して影響を与えているためと考えられる。

著者らは、これまで帯電微粒子の静電拡散による円管内壁³⁾および矩形流路内壁²⁾への沈着実験を行ってきたが、沈着粒子層の表面形状および内部構造に関する検討は不十分であった。そこで本研究では、荷電した、ある

いは非荷電のフライアッシュを円管内壁面へ沈着させて充填率の小さい粒子層をつくり、その構造および表面形状を検討した。

1. 実験装置および方法

実験装置の概略を Fig. 1 に示す。試料粉体には試験用ダスト 10 種 (JIS Z-8901, フライアッシュ, 密度 $2.39 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$, 面積基準調平均径 $D_{ps}=1.8 \mu\text{m}$, 幾何標準偏差 2.18) を使用した。テーブルフィーダ (三協電業製) から定量供給されるフライアッシュをミキサー型分散機 (三協電業製) により分散し、試験エアロゾルを発生させた。エアロゾルは粒子単極荷電装置 (三協電業製) によって荷電された後、テスト円管部へ吸引されて一部は円管内壁面へ沈着し粒子層を形成する。このとき、粒子層表面形状の変化の様子は、テスト円管部に設けたのぞき窓から実体顕微鏡により観察した。テスト部を通過した粒子はサイクロンおよびバグフィルタにより分離捕集した。また Fig. 1 に示した装置から荷電装置を取り除いた実験も行った。この場合、粒子の帯電量は荷電した粒子のそれに比べ 1/100~1/1000 程度で無視小であった。以下、帯電粒子との比較のため荷電しない場合の粒子を非帯電粒子と略記する。

Fig. 2 にテスト円管部の詳細を示す。テスト部は内径 52 mm, 長さ 200 mm の鉄製円管であり、上流側 40 mm の位置に粒子層をサンプリングするためのテストピースを取り付けてある。テストピースは装着時に円管内壁面と同一円筒面を形成しており、粒子沈着操作の後これを取りはずすことにより粒子層をサンプリングした。

光学顕微鏡下でサンプル粒子層表面に焦点を合わせることで、粒子層表面の凹部と凸部の間のレンズ高さの移動距離を微動目盛 (1 目盛=1.6 μm) から求めた。

[†] 1985 年 10 月 7 日受理; 第 3 回エアロゾル科学・技術研究討論会 (東京, 1985 年 8 月), 化学工学協会第 18 回秋季大会 (福岡, 1984 年 10 月) にて一部発表

^{††} 〒724 広島市西条町下見

Fig. 1 Experimental apparatus

Fig. 2 Details of the test section

この測定を粒子層表面に沿って行うことにより凹凸の差が求まり、この測定の算術平均値を表面粗さ ϵ_s とした。さらにテストピースに沈着した粒子層の質量と平均厚さから充填率 ϕ が、テストピース面積と粒子層質量から円筒内壁面の単位面積当りの粒子沈着量すなわち粉塵負荷 m が算出される。また、粒子層表面のより詳細な構造を検討するため、走査型電子顕微鏡（明石製作所製、ISI-40）による写真撮影を行った。この際、粒子層表面の立体的形状を知るため、テストピースは粒子層表面を約 40° の角度で観察できるように電子顕微鏡鏡筒内へ取り付けた。

2. 実験結果および考察

エアロゾル粒子の流路壁面への沈着では、均一な粒子層が生ずると仮定されることが多い。しかし実際には粒子層表面に凝集粒子の成長による凹凸が生じ、粒子の帯電、非帯電によって凹凸の形状あるいは粒子層の充填構造に違いが生ずる。

Fig. 3 に実体顕微鏡により観察した粒子層表面の経過時間による変化を示す。Fig. 3 (a) は非帯電粒子、Fig. 3 (b) は帯電粒子の結果である。粒子沈着量が少ない場合 (Fig. 3 (a) 5 min, Fig. 3 (b) 2 min), 円筒内壁面には斑点状に微細な凝集粒子が生じているが、全面にはほぼ一様に沈着している。しかし沈着量が増加するにつれて凝集粒子は成長し、粒子層表面には凹凸が生ずる

(a) Non-charged particles (b) Charged particles

Fig. 3 Photomicrographs of deposited particles

(Fig. 3 (a) 10 min, Fig. 3 (b) 6 min). その後飛来する粒子は、すでに沈着している粒子によって選択的に捕集され、その結果粒子層表面は凝集粒子塊の連なった構造となる (Fig. 3 (a) 40 min, Fig. 3 (b) 20 min). このような凝集粒子が成長する経過は帯電粒子、非帯電粒子いずれの場合もほぼ同様であるが、成長の速度は帯電粒子の方が大きい。

Fig. 4 に沈着粒子層の表面形状を光学顕微鏡を用いて測定した結果を示す。帯電粒子、非帯電粒子とも粉塵負荷 m の増加とともに凹凸の差 ϵ_s は大きくなるが、帯電粒子の方が非帯電粒子に比べ変化が著しく、大きな凹凸が生じていることがわかる。

Fig. 5 に粒子層表面の電子顕微鏡写真の一例を示す。粒子層表面には多数の凝集粒子塊が存在している。Fig. 4 に示した表面の凹凸は粒子層を真上から観察したもので、凸部がこの凝集粒子塊に対応しているものと思われる。帯電粒子、非帯電粒子とも写真での粉塵負荷 m は同程度であるが、帯電粒子による凝集粒子の粒径は非帯電粒子のそれに比べて大きい。また帯電粒子の沈着粒子層は、非帯電粒子の場合に比べかなり粗な充填構造となっている。これは帯電粒子に働く静電的な効果により

Fig. 4 Surface profile of deposited particle bed

Fig. 5 Scanning electron micrographs of deposited particles

鎖状の沈着が起こりやすくなるためと考えられ、後に簡単なシミュレーションを行って検討する。

Fig. 6 に粉塵負荷 m と表面粗さ ϵ_s の関係を示す。帯電粒子、非帯電粒子とも粉塵負荷が増加するにしたがって表面粗さは増加している。特に帯電粒子では粉塵負荷が 0.1 kg/m^2 を超えるとその変化は著しく、表面粗さは急に増加する。

Fig. 7 に粉塵負荷 m と充填率 ϕ の関係を示す。充填率は粉塵負荷とともに増加するが、その割合はしだいにゆるやかになり、帯電粒子、非帯電粒子いずれの場合

も一定値に漸近する。また帯電粒子では非帯電粒子に比べ充填率は小さく、その差は **Fig. 6** の表面粗さ ϵ_s の場合と同様、粉塵負荷 m が 0.1 kg/m^2 程度以上で生ずる。なお、さらに低流速 ($\bar{u} = 1.6 \text{ m/s}$) での沈着実験による粒子層は、流速 4.0 m/s の場合に比べ充填率 ϕ は小さく、表面粗さ ϵ_s は大きくなる。これは沈着操作において、設定流速以下の流速では飛散しない粒子層構造に成長するためと考えられる。したがって沈着時の気流速度が大きくなると、粒子層は飛散し難い構造となるものと思われる。

Fig. 6 Surface roughness as a function of dust load

Fig. 7 Packing fraction as a function of dust load

以上のように、エアロゾル粒子の円管内壁面への沈着によって生ずる粒子層について種々の測定を行った結果、粒子が帯電している場合と、そうでない場合とでは表面粗さ、充填率など沈着粒子層の構造が異なることがわかった。これらの測定結果を説明するために帯電粒子に働く分極凝集力に着目し、計算機による簡単なモデルシミュレーションを行った。

外部静電界の作用下で、誘電体の粒子は電界方向に誘電分極を起こし、粒子の周囲には電気双極子による電界が生ずる。本実験において壁面へ沈着した粒子は電荷を失った後、帯電エアロゾルのつくり出す空間電界によって分極を起こすと推定されるので、Fig. 8 のような二次元モデルを考える。ここで、壁面近くまで移動した帯電粒子と分極粒子の間に働く力を静電気力のみと仮定すると、帯電粒子の軌跡は帯電量によらず、Appendix に示すように一意的に定まる。計算を単純化するために、静電気力の働く領域を帯電粒子の直前に沈着した粒子の周囲の一定半径 R_e 内、すなわち Fig. 8 の破線の内部に限定する。領域 R_e の大きさは分極凝集力を表すパラメータであり、 R_e が大きいほど静電気力の影響が大きい

Fig. 8 Simulation model for the deposition of charged particles

Fig. 9 Simulated particle bed

ことを示す。粒子は壁面から十分離れた垂直上方の空間に乱数発生し、壁面へ向かって自然沈降させる。静電気力を加えた場合、粒子は破線の内部では静電気力の作用により分極粒子へ向かって運動する。この結果、帯電粒子は分極粒子との間に働く静電的相互作用によって分極粒子の先端部へ捕集されやすくなる。一方、破線の外部および静電気力を考慮しない場合、粒子は自然沈降し、さざぎり効果によって沈着する。なお沈着粒子は単分散とし、本シミュレーションでは気流の影響および粒子の慣性は考慮しなかった。

Fig. 9 (a), (b) は、それぞれ静電気力を加えない場合と加えた場合のシミュレーションによる沈着粒子層モデルの一例である。いずれも粒子層の表面部分を示しており、縦軸は粒子径 D_p により無次元化した粒子層高さである。また n は沈着粒子数、 $r_e (=R_e/D_p)$ は静電気力の働く領域 R_e を粒子径 D_p で無次元化したものである。パラメータ r_e が大きくなると、静電気力を考慮しない場合に比べて粒子層の構造が次第に異なってくる。Fig. 9 には $r_e=10$ の場合を示すが、静電気力を加えた場合、粒子層は一次粒子の鎖状の沈着により形成され、静電気

Fig. 10 Simulated surface profile of particle bed

力を加えない場合に比べ粒子の充填は著しく疎となり、粒子層高さも大きくなっている。 r_e は帯電量によって変化するべきものであるが、実際の帯電量との定量的関係は本研究の範囲では得られない。

Fig. 10 は沈着粒子数による粒子層表面の変化を示したものである。Fig. 9 と同じく (a) は静電気力を加えない場合、(b) は静電気力を加えた場合のシミュレーション結果で、計算条件は図中に示す。(a)、(b) いずれの場合も沈着粒子数が増加するとともに粒子層は成長し表面の凹凸は大きくなっているが、その変化の割合は静電気力を加えた場合の方が大きい。

Figs. 9, 10 に示したシミュレーションの結果は、実験による帯電粒子と非帯電粒子の沈着特性の違いを定性的ではあるが、よく表しており、沈着粒子層の形成に対する粒子帯電の影響は、粒子間に働く分極凝集力を考慮することによりある程度説明できることがわかる。

結 言

フライアッシュエアロゾル粒子の沈着により形成される粒子層の構造について実験的検討を行い、次のような結論が得られた。

1) 帯電粒子、非帯電粒子とも沈着粒子層は凝集粒子から成っており、帯電粒子の方が凝集粒子径は大きく形状も複雑である。また帯電粒子では鎖状の沈着が見ら

れ、一次粒子が疎に充填された構造となっているが、非帯電粒子では充填は密であり粒子層表面は比較的なめらかである。

2) 沈着粒子層の表面粗さは粉塵負荷とともに増加し、とくに帯電粒子は非帯電粒子に比べ増加の割合が著しい。また粒子充填率も粉塵負荷とともに増加するが、非帯電粒子の方が充填率は大きい。なお帯電粒子、非帯電粒子いずれの場合も充填率は粉塵負荷の増加とともに一定値に漸近する。

3) 帯電粒子と非帯電粒子の沈着の違いは、電気的分極による効果を考慮したシミュレーションによってある程度説明できる。

Appendix

Fig. 8 のように外部電界により y 方向に分極した沈着粒子 O の電気双極子と帯電粒子 Q の相互作用を考える。いま外部電界は無視し、帯電粒子 Q を点電荷 q_2 とすると座標 $Q(x, y)$ で帯電粒子の受ける力は Eqs. (a), (b) により与えられる。

x 成分について

$$F_x = \frac{q_1 q_2 D_p}{4\pi\epsilon_0} \frac{3xy}{(x^2 + y^2)^{5/2}} \quad (a)$$

y 成分について

$$F_y = \frac{q_1 q_2 D_p}{4\pi\epsilon_0} \frac{(2y^2 - x^2)}{(x^2 + y^2)^{5/2}} \quad (b)$$

Fig. 8 のモデルでは、気流の影響および粒子慣性は無視

しており、帯電粒子の移動速度は静電気力とストークスの流体抵抗力のつり合いによって決まる。すなわち

$$v_x = F_x / 3\pi\mu D_p = dx/dt \quad (c)$$

$$v_y = F_y / 3\pi\mu D_p = dy/dt \quad (d)$$

Eqs. (a)~(d) より粒子軌跡は次式で与えられる。

$$y^2 = cx^{4/3} - x^2 \quad (e)$$

ただし c は粒子の自然沈降軌跡と Fig. 8 の破線の交点から求まる定数である。

【付 記】 本研究の一部は文部省科学研究費「環境科学」特別研究「環境改善技術の工学的手法」によることを付記し謝意を表します。

Nomenclature

c	= constant in Eq. (e)	[—]
c_0	= aerosol concentration	[kg·m ⁻³]
D_p	= particle diameter (primary particle)	[m]
E	= electric field	[V·m ⁻¹]
F	= coulombic force	[N]
h	= height of deposited particle bed	[m]
m	= dust load	[kg·m ⁻²]
n	= deposited particle number in simulation	[—]
q_1	= polarization charge	[C]
q_2	= particle charge	[C]

$\hat{q}_{av}$	= specific average charge of particles	[C·kg ⁻¹]
R_e	= critical radius where coulombic force affects (Fig. 8)	[m]
r_e	= (R_e/D_p), dimensionless critical radius where coulombic force affects	[—]
t	= time	[s]
u	= air velocity	[m·s ⁻¹]
v	= particle velocity	[m·s ⁻¹]
x, y	= coordinates, Fig. 8	[m]

ϵ_0	= dielectric constant of air	[F·m ⁻¹]
ϵ_s	= surface roughness	[m]
μ	= air viscosity	[kg·m ⁻¹ ·s ⁻¹]
ϕ	= packing fraction	[—]
<Subscripts>		
x	= x -component	
y	= y -component	

Literature cited

- 1) Basset, J. D., K. Akutsu and S. Masuda: *J. Electrostatics*, 3, 311 (1977)
- 2) Ikumi, S., T. Ito and H. Masuda: *J. Soc. Powder Tech. Japan*, 20, 670 (1983)
- 3) Masuda, H. and S. Ikumi: *ibid.*, 867 (1981)
- 4) Masuda, H., S. Matsusaka and S. Ikumi: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 11, 48 (1985)

Surface Profile and Internal Structure of Particle Bed Formed by Deposition of Aerosol Particles

Shunya Ikumi, Haruhiko Mori and Hiroaki Masuda

Dept. of Chem. Eng., Hiroshima Univ., Higashi-Hiroshima 724

Key Words: Aerosol, Dust Collection, Particle Deposition, Reentrainment, Fly Ash

Aerosol particles flowing in a circular duct deposit on the inside wall and form a loosely packed particle bed. These particle beds have been investigated for both unipolarly charged and uncharged aerosol particles, with particular attention to surface profile and internal structure. It was found that the surface roughness of the particle bed increased with the mass of particles deposited per unit area (dust load). The roughness was greater for unipolarly charged particles than for uncharged particles. Scanning electron micrographs revealed that the particle bed was formed by aggregates, and was packed more loosely for charged particles than for uncharged particles. Packing fractions of these particle beds increased with increasing dust loads and gradually approached their respective maximum values. Differences in the structure of the particle beds were qualitatively explained by a simple computer simulation where the electrical polarization of charged particles was taken into consideration.