ニュクリポァ・フィルタ表面上へのエアロゾル粒子の堆積成長過程[†]

高橋武士^{*}・久保 広・金川 昭

名古屋大学工学部 原子核工学科^{††}

ニュクリポァ・フィルタの捕集性能に対する粒子堆積の影響を、慣性およびさえぎり捕集機構について、理論的、実験的に考察した。粒子の沈着過程を、Pichによって提案された毛細管フィルタモデルに基づき、モンテ・カルロ法を使用して個々の粒子運動のシミュレーションにより求めた。

シミュレーションの結果より求められた捕集効率および粒子の沈着形態を、ニュクリポァ・フィルタの実験結果と比較検討した。

理論捕集効率は、慣性捕集機構が支配的な場合になる場合に、実験値と一致した。

緒 言

充填層フィルタによるエアロゾル通過は、フィルタ層に粒子が連続的に沈着する非定常過程であり、フィルタ特性としての捕集効率および圧損は、粒子堆積量の増加に伴い変化することになる。したがって、エアロゾル通過の動的過程を説明するためには、粒子堆積量に対する捕集効率および圧損の変化を調べる必要がある。

この動的過程の研究は、空隙率の高い繊維層フィルタに関しては¹⁻⁶⁾、かなり行われているものの、空隙率の低いメンブレン・フィルタに関しては、Spurnyら^{8,9)}による実験的研究がある程度である。しかし、メンブレン・フィルタのように低空隙率のフィルタでは、堆積粒子によるフィルタ性能への影響が、繊維層フィルタよりもむしろ大きく現れると考えられることから、堆積粒子によってフィルタ性能がどのように変わるかを知ることが重要である。

そこで、本報では、メンブレン・フィルタのうち構造が比較的簡単なニュクリポァ・フィルタ(NPFと略記)について、慣性およびさえぎり効果による粒子沈着過程の計算機シミュレーションを行い、実験と比較検討した。

1. フィルタ・モデル

ニュクリポァ・フィルタは、ポリカーボネイトの薄膜に孔径のよく揃った細孔を開いたスクリーンタイプのメンブレン・フィルタであり、エアロゾルの通過や粒子の

サンプリングに使用されている。

このNPFによる粒子捕集のシミュレーションには、メンブレン・フィルタのフィルタ・モデルとして古くから用いられ、後にPich⁷⁾によって改良された毛細管モデルを使用した。このモデルは、孔径の等しい円柱状の細孔が互いに平行、かつ等間隔でフィルタ面に垂直に開いているとしたものである。このようなモデル化によって、個々の孔を通る流れは、すべての孔について同一と見做し得ることから、単一孔についての流れ中での粒子の運動を解析することによって、NPFによるエアロゾル通過の動的過程を知ることが可能となる。

この単一孔を通る流れの領域は、フィルタの孔径が D_f 、空隙率が ϵ の場合、直径 $D_0 = D_f / \sqrt{\epsilon}$ のフィルタ孔と同軸の円柱状領域として与えられる。Fig. 1に、モデルの概要を示す。

2. シミュレーション

2.1 粒子軌跡

毛細管モデルを用いると、NPFにおける粒子沈着の様子は、フィルタを通る気流中での個々の粒子の運動軌跡を求めることによって知ることができる。いま、粒子に働く外力が無視できる時、粒子の運動方程式は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} 2\psi \frac{d^2 r}{dt^2} &= -\frac{dr}{dt} + u_r \\ 2\psi \frac{d^2 z}{dt^2} &= -\frac{dz}{dt} + u_z \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、 ψ は、 $\psi = C \rho_p d_p^2 u_0 / 18 \mu D_0$ で与えられる慣性パラメータ、 u_r 、 u_z は無次元気流速度成分である。なお、流れは、流線関数と渦度を用いて表したNavier-Stokes

[†] 1988年2月25日受理；第4回エアロゾル科学・技術研究討論会(名古屋、1988年8月)にて一部発表

^{††} 〒464 名古屋市千種区不老町

^{*} 動力炉・核燃料開発事業団

Fig. 1 Coordinates system for capillary model

方程式の数値解析によって求めた¹⁰⁾。この流れの解析においては、堆積粒子の影響を無視した。

2.2 粒子の初期位置および捕集条件

Eq. (1)を解く場合、初期値として、粒子が流入してくるフィルタ無限前方における粒子の位置座標を与えなければならない。そこで、粒子がフィルタにランダムに流入してくるものと仮定し、区間 $(0, 1)$ の疑似一様乱数を使用して初期値を決定した。なお、この場合、面積要素 $r d\theta \cdot dr$ に粒子のはいる確率が等しくなるようにする必要がある。このため、 r および θ それぞれに対して、 X_r および X_θ の乱数が得られたとすると、初期値は、 $X_{in} = \sqrt{X_r}$ 、 $\theta_{in} = 2\pi X_\theta$ で与えられる。なお乱数の発生には、名古屋大学大型計算機センターのライブラリー・プログラム (DRANDM) を使用した。

粒子沈着の仕方としては、1) フィルタ面上への沈着、2) すでに捕集されている粒子上への沈着、が考えられる。これらは、フィルタに接近して来た粒子軌跡が、フィルタ表面あるいは、堆積粒子表面から粒子半径以内に到達することを表す、次の条件を満たすことによって与えられる。

- 1) $|z| \leq d_p/D_a$ at $R_f \leq r \leq 1$
 $\{(r-R_f)^2 + z^2\}^{1/2} \leq d_p/D_a$
at $R_f - d_p/D_a \leq r < R_f$
- 2) $\{(r \cos \theta - r_i \cos \theta_i)^2 + (r \sin \theta - r_i \sin \theta_i)^2 + (z - z_i)^2\}^{1/2} \leq (d_p + d_{pi})/D_a$
 $(i = 1, 2, 3 \dots)$ (2)

ここで (r_i, θ_i, z_i) は、 i 番目に沈着した粒子の中心座標である。

なお、計算では流入粒子はフィルタ面およびすでに捕集されている粒子に接触した位置で完全に付着するものとした。

2.3 捕集効率の算定

シミュレーション計算により、単一孔への流入粒子数 N_{in} に対する沈着粒子数 N_c の関係が得られると、捕集効率は、次式により求められる。

Fig. 2 Fitting of simulation results with polynomial of degree three

$$E = \frac{dN_c}{dN_{in}} \quad (3)$$

Fig. 2 に、空率率 $\varepsilon = 0.08$ のフィルタに対するさきりパラメータ $R = 0.2$ 、慣性パラメータ $\Psi = 0$ の単分散粒子の場合のシミュレーション結果を、 N_{in} 対 N_c の関係として示す。図中の実線は、 N_c を次式で与えられる N_{in} の 3 次多項式で近似したものである。

$$N_c = aN_{in}^3 + bN_{in}^2 + cN_{in} \quad (4)$$

ここに、 $N_{in} = 0$ の時、 $N_c = 0$ なので、定数項は、無視した。

なお、Eq. (4) は、 $N_{in} = 0$ から流入粒子がすべて捕集される完全捕集の状態までの範囲について、シミュレーションによる N_{in} 対 N_c の関係を良く表現し得たので、捕集効率の算定には、Eq. (4) を Eq. (3) に代入して得られる次式を用いた。

$$E = 3aN_{in}^2 + 2bN_{in} + c \quad (5)$$

ここで、定数 a, b, c は、最小二乗法により決定した。

さて、シミュレーション計算においては、流入粒子の初期値を決めた乱数の組によって、計算結果に差異が生じるものと考えられる。そこで、使用する乱数の組を変えて計算した結果の一例を Fig. 3 に示す。図から明らかなごとく、使用する乱数の組による影響は、かなり大きいと言える。しかし、この差異は、Fig. 4 に示したように、完全捕集に達するまでに要する粒子数が多くなると、小さくなる。この乱数による差異は、NPF の通過の場合、流入粒子位置の統計的なランダム性により起こる個々の孔での沈着粒子数の差異に対応しているものと考えられる。いま、流入粒子数が個々の孔について等しいものとすれば、フィルタの代表沈着粒子数は、個々の事象の平均値として与えられるはずである。したがって、本計算では、フィルタの沈着粒子数および捕集効率を 5 組の異なる乱数組を使用して得られた値の平均値として求めた。なお、試行計算の回数を 5 回以上に増しても、平均値は、

Fig. 3 Stochastic variability of simulation results, $R=0.2$

Fig. 4 Stochastic variability of simulation results, $R=0.096$

ほとんど変わらなかった。

一般に、粒子負荷による捕集効率の変化は、フィルタ単位面積に堆積した粒子量 m_p によって評価される。そこで、シミュレーション計算により求められた沈着粒子数 N_c から次式により m_p を求めた。

$$m_p = V_p \cdot N_c / S \quad (6)$$

ここで、 $V_p = \pi d_p^3 / 6$, $S = \pi (D_a / 2)^2$ である。

Fig. 5 に、Fig. 3 に示した試行計算の平均値として整理した E 対 m_p の関係を示した。捕集効率は、堆積粒子量の増加につれて、S 字状に変化して完全捕集 ($E=1$) 状態に達することがわかる。

3. 実 験

試験フィルタとしては、直径が 47 mm で孔径が $5 \mu\text{m}$ ($\varepsilon=0.08$, $\sigma=0.35 \mu\text{m}$) の NPF を使用した。

一方、試験エアロゾルとしては、噴霧乾燥式発生器を用いて発生させた単分散ポリスチレン・ラテックス (PSL) エアロゾル粒子を使用した。なお、粒子の沈着に対する静電気力の影響を取り除くために、エアロゾルを ^{241}Am α 線電荷中和装置に通して除電した。エアロゾル粒径は、 $0.481 \mu\text{m}$ および $1.091 \mu\text{m}$ であり、粒子濃度は、 $0.481 \mu\text{m}$ 粒子の場合 $10^8 \sim 2 \times 10^9 \text{ particles/m}^3$, $1.091 \mu\text{m}$ 粒子の場合 $2 \times 10^7 \sim 2 \times 10^8 \text{ particles/m}^3$ とした。

このような粒子濃度範囲を選んだのは、流速が異なる場合においても、時間当たりの粒子負荷が等しくなるようにするためである。したがって、本実験では流速にかかわらず、おおよそ 6 時間ではほぼ完全捕集の状態に達した。なお、粒子濃度の調整は、市販の PSL 粒子懸濁液および発生エアロゾルを希釈することにより行った。

フィルタの捕集効率は、光散乱粒子カウンタを用いて計数した流入粒子濃度 C_{in} および流出濃度 C_{eff} から次式により求めた。

$$E = (C_{in} - C_{eff}) / C_{in} \quad (7)$$

Fig. 5 Relationship between collection efficiency and volume of particles collected per unit filter surface

さらに、堆積粒子量は次式により求めた。

$$m_p = \frac{\pi d_p^3}{6} \int_0^t (C_{in} - C_{eff}) u_0 dt \quad (8)$$

なお、粒子濃度の測定は、20 分間隔で行い、粒子濃度が $10^8 \text{ particles/m}^3$ を越えた時には、コインシデンスロスを防ぐために、サンプリング・エアロゾルを 30 倍に希釈したのち計数した。

4. シミュレーションと実験との比較

シミュレーションから得られる重要な情報の一つは、フィルタ面上での粒子の沈着形態に関するものである。Fig. 6 は、孔径 $5 \mu\text{m}$ の NPF に堆積した粒径 $1.091 \mu\text{m}$ の粒子の走査型電子顕微鏡による観察結果とシミュレーション結果とを、エアロゾル流速 $u_0 = 0.133, 0.400, 1.33 \text{ m/s}$ について比較したものである。

これらの比較から、流速が増すにつれて沈着粒子が孔周辺からフィルタ面全体に広がっていく様子が、シミュレーション結果により良く説明され得ることがわかる。また、低流速でさえぎり効果が支配的になる場合には、粒子が孔縁付近に集中して沈着していることから、フィルタ性能は、ごく少ない堆積量でも堆積粒子の影響を大

Fig. 6 Comparison of deposit pattern between simulations and experiments

きくうけることが推察される。したがって、粒子負荷の無い清浄フィルタの理論捕集効率が適用されるのは、汙過のごく初期に限られるであろう。

次に、シミュレーションによって、NPFの捕集効率がどの程度説明し得るか見るために、シミュレーション結果（実線）とNPFの実験結果との比較を、Figs. 7, 8, 9に示す。Fig. 7は、粒径 $d_p = 0.481 \mu\text{m}$ 流速 $u_0 = 0.133 \text{ m/s}$ の場合であり、Fig. 8は、Fig. 7と同じ粒径の流速 $u_0 = 0.400 \text{ m/s}$ の場合である。さらに、Fig. 9は、粒径 $d_p = 1.091 \mu\text{m}$ で流速 $u_0 = 0.400 \text{ m/s}$ の場合である。

これらの図において、堆積量の少ない汙過の初期では、シミュレーション結果とNPFの実験結果とがほぼ一致している。これに対して、堆積量が $m_p \approx 0.1 \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^2$ において、シミュレーション結果と実験結果との比較的良好一致を見たのは、Fig. 9のみである。これは、粒子慣性効果が大さいために粒子の直進性が保たれ、粒子がフィルタ全面に沈着する結果、堆積粒子量が増加した場合

Fig. 7 Comparison between simulation and experiments for $d_p = 0.481 \mu\text{m}$, $u_0 = 0.133 \text{ m/s}$

Fig. 8 Comparison between simulation and experiments for $d_p = 0.481 \mu\text{m}$, $u_0 = 0.40 \text{ m/s}$

Fig. 9 Comparison between simulation and experiments for $d_p = 1.091 \mu\text{m}$, $u_0 = 0.40 \text{ m/s}$

でもフィルタを通る流れが、堆積粒子によってあまり影響されないためと考えられる。

一般に、繊維層フィルタのような空隙率の大きいフィルタでは、流れに堆積粒子の影響を考慮しない場合のシミュレーション結果は、実際のフィルタよりも高い捕集効率推算値を与えることが知られている^{2,3)}。本研究のNPFの場合には、これとは逆に、シミュレーションの方が低い値を与えている。この原因を調べるために、粒子の堆積過程の観察を行った。その一例として、Fig. 7と同じ実験条件での、堆積粒子量による沈着状態の変化の

Fig.10 Variation of deposit pattern with amount of particles,
 $d_p = 0.481 \mu\text{m}$, $u_0 = 0.133 \text{ m/s}$

様子を Fig. 10 に示す。これより、汙過の初期では、粒子が孔縁のフィルタ面上に沈着するが、汙過が進むにつれて、孔縁から孔中心部に向かって堆積していくことがわかる。また、孔内部での沈着も見られる。そして、流入粒子が完全に捕集される状態では、粒子は、孔中心部に最も多く堆積していることがわかる。この実験に対応するシミュレーションから得られた沈着粒子の中心位置座標を、沈着粒子数 500 個までについて、Fig. 11 に示す。シミュレーションでは、粒子は、孔縁において最も多く堆積することがわかる。なお、この場合、沈着粒子数が約 2000 個でようやく孔の中心部まで粒子が堆積するに至った。この値は、Fig. 10 に示した c) の堆積粒子量の約 2.5 倍である。

この結果、堆積粒子の影響を無視した流れを用いたシミュレーションでは、粒子の堆積成長が実験ほど開孔部に進まないために、低い捕集効率を与えていることがわかった。

以上より、本シミュレーション計算では、流れの解析において、堆積粒子の影響を無視したために、シミュレーション結果の適用できる範囲は、堆積粒子量の少ない場合および、粒子の沈着がフィルタ全面で起こる粒子慣性効果の大きい場合に限られると言える。

なお、さえぎり効果の大きい場合や堆積粒子量の多い場合について、今後は、堆積粒子による流れの変化を考慮した厳密な計算が必要となろう。このような堆積粒子による影響を考慮した場合の流れも、本計算と同様、Navier-Stokes の方程式で記述されるが、境界条件が非常に複雑になるものと推察される。したがって、堆積粒子の形状を単純化した粒子堆積モデルの開発が必要となろう。

結 言

粒子慣性効果およびさえぎり効果が支配的となる場合

Fig.11 Distribution of particles deposited on filter surface, $d_p = 0.481 \mu\text{m}$, $u_0 = 0.133 \text{ m/s}$

の NPF 汙過の動的過程を、粒子沈着のシミュレーションと実験との比較により検討した。

フィルタ上での粒子堆積の捕集機構による形態の変化は、シミュレーションにより良く説明することができた。また、理論捕集効率は、堆積粒子量が少ない場合および粒子慣性効果が大きい場合において、NPF の捕集効率を説明し得ることがわかった。

Nomenclature

C	Cunningham's correction factor	[-]
C_{eff}	effluent aerosol concentration	[m^{-3}]
C_{in}	influent aerosol concentration	[m^{-3}]
D_a	diameter of assumed cylinder ($= D_f / \sqrt{\varepsilon}$)	[m]
D_f	pore diameter	[m]

d_p = particle diameter [m]
 E = collection efficiency of filter [-]
 N_c = number of particles collected per single pore [-]
 N_{in} = number of entering particles in assumed cylinder [-]
 m_p = volume of deposited particles per unit filter surface [m^3/m^2]
 R = interception parameter ($=d_p/D_f$) [-]
 Re = Reynolds number ($=D_a u_0 \rho / \mu$) [-]
 R_f = dimensionless pore radius ($=2R_f^*/D_a$) [-]
 r, z = dimensionless radial and axial coordinates ($r=2r^*/D_a, z=2z^*/D_a$) [-]
 t = dimensionless time ($=2u_0 t^*/D_a$) [-]
 u_0 = superficial velocity [m/s]
 u_r, u_z = dimensionless velocity components of fluid ($u_r=u_r^*/u_0, u_z=u_z^*/u_0$) [-]
 ε = filter porosity [-]
 θ = angular cylindrical coordinate [rad]
 μ = gas viscosity [kg/m·s]
 ρ_p = particle density [kg/m³]

ψ = inertia parameter ($=C \rho_p d_p^2 u_0 / 18 \mu D_a$) [-]
 <Superscript>
 + = dimensional value

Literature cited

- 1) Bahners, T. and E. Schollmeyer: *J. Aerosol Sci.*, **17**, 191 (1986)
- 2) Bhutra, S. and A.C. Payatakes: *J. Aerosol Sci.*, **10**, 445 (1979)
- 3) Kanaoka, C., H. Emi and T. Myojo: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **4**, 535 (1978)
- 4) Kanaoka, C., H. Emi and T. Myojo: *J. Aerosol Sci.*, **1**, 377 (1980)
- 5) Kimura, N. and K. Iinoya: *Kagaku Kogaku*, **23**, 792 (1959)
- 6) Payatakes, A.C. and C. Tien: *J. Aerosol Sci.*, **7**, 85 (1976)
- 7) Pich, J.: *Coll. Czech. Chem. Commun.*, **29**, 2223 (1964)
- 8) Spurny, K.R., J. Havlova, J.P. Lodge, E.R. Ackerman, D.C. Sheesley and B. Wilder: *Environ. Sci. Technol.*, **8**, 758 (1974)
- 9) Spurny, K.R. and J.P. Lodge: *Staub*, **35**, 77 (1975)
- 10) Takahashi, T. and A. Kanagawa: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **7**, 517 (1981)

Process of Deposition and Growth of Aerosol Particles on Nuclepore Filters

Takeshi Takahashi*, Hiroshi Kubo and Akira Kanagawa

Dept. of Nuclear Eng., Nagoya Univ., Nagoya 464

Key Words: Aerosol, Filtration, Nuclepore Filter, Simulation, Collection Efficiency

The effects of deposited particles on performance of the Nuclepore filter were studied theoretically and experimentally under conditions of the collection mechanisms of inertia and interception. A capillary filter model given by Pich was chosen as a model of the Nuclepore filter. The process of particle deposition was calculated by simulating the motion of particles using the Monte Carlo simulation method.

The simulation results were used to estimate the collection efficiency and to find the morphology of deposited particles. A comparison between the simulation and experimental results was presented. The theoretically predicted collection efficiency was in agreement with experiments for the collection mechanism of inertia predominance.

* Power Reactor & Nuclear Fuel Dev. Corp.