学位論文要旨

学位請求論文 (Dissertation)

マスク用エアフィルタの高性能化と評価技術に関する研究

Study on collection performance improvement and evaluation techniques for respirator filters

金沢大学大学院自然科学研究科 専攻:物質科学 学籍番号:1223132010 氏名:湯浅 久史 主任指導教員:大谷 吉生

マスク用エアフィルタの高性能化と評価技術に関する研究

Study on collection performance improvement and evaluation techniques for respirator filters

物質科学専攻 生産プロセス講座 湯浅 久史 主任指導教員 大谷 吉生

Abstract

This work is aimed at enhancing the collection performance and establishing new evaluation techniques for respirator filters. The first chapter reviewed previous research and summarized the current issues in terms of three factors, "filter structure", "particle size" and "breathing pattern", which determine the respirator filter performance. The second chapter described the effect of nanofiber lamination on filter collection performance, as an issue of "filter structure". The theoretical and experimental results obtained by the present work showed that uniform packing and three-dimensional lamination are the key parameters in enhancing the filtration efficiency with nanofiber filters. In the third chapter, as the issue of "particle size", the threshold size at which thermal rebound of particles occurs like gas molecules was measured by using monodispersed single macromolecular ions of polyethylene glycol. The generation of monodispersed sub-10 nm test particles and the detection method were established. The experimental data obtained with the nanosized particles test showed that the thermal rebound would not occur for the particle down to 1.8 nm. The forth chapter described the study on "breathing pattern" for testing respirator filters. A breathing simulator, which automatically corrected the piston position for generating actually-measured breathing patterns, was developed and applied for evaluating protective performance of respirators. Then the collection mechanisms of air filter under unsteady flow condition were studied using the newly-developed breathing simulator. The experimental results suggested that the change in airflow velocity through a mechanical filter would not affect the collection efficiency but it may vary the collection efficiency of electret filters.

博士論文要旨

マスクは空気中に浮遊する有害な微粒子の吸入を防止する目的で広く利用されている。 その性能への要求は、呼吸負担の低減、防護性能の向上、有効性の実証データの取得など多 岐にわたり、時代とともに高度化している。本論文では、マスクの性能を決定する主因子で あるフィルタに関して、「フィルタの構成」、「粒子サイズ」及び「呼吸」という3つの観点 から課題を見出し、上記の要求事項を解決するための研究の方向性について第 1 章で議論 した。その結果、「フィルタの構成」の課題としてフィルタの低圧力損失と高捕集効率を達 成可能なナノファイバフィルタに着目し、ナノファイバ積層フィルタにおける繊維充填の 不均一性と性能の関係について理論的及び実験的検証を行うこととした。次に、「粒子サイ ズ」に関しては、ナノリスクの懸念から粒子 - ガス分子の境界を求めるための研究に焦点を 当てた。防じんマスクで対応可能な粒子サイズを決定することは呼吸保護の観点からも重 要である。特に、既報研究では繊維表面からの跳ね返りが起きる粒子サイズとして矛盾した 結果が報告されていたため、本論文ではサブ 10nm 領域の粒子発生と制御技術、実験装置 の信頼性の評価方法にも注力する必要があることを示した。最後に「呼吸」に関しては、マ スクを装着する人の呼吸を記録し、その呼吸を忠実に模擬できる装置に関する既報論文が ないことから、開発した呼吸シミュレータの制御方法と新規に考案したストローク位置補 正プログラムの有効性を検証したデータをまとめた。さらに呼吸シミュレータの応用実験 と非定常流れにおけるろ過の理論的、実験的検証を行うこととした。

本章で示した課題を基にテーマを決定し、第2章~第4章の研究を実施した。

第2章は、ナノファイバフィルタの繊維充填の不均一性が捕集性能に及ぼす影響を実験的・理論的に解明し、ナノファイバフィルタの性能向上の資を得ることを目的とした。本研究では、ナノファイバの積層量を調節したサンプルを液ろ過法及び重力沈降法の2通りの 積層方法で作製して繊維充填の不均一性と捕集性能の関係を検証した。繊維充填の不均一 性の評価は、試験サンプルの圧力損失の理論値 ΔP^{th} と実測値 ΔP^{exp} より Eq.(1)のように不 均一性因子 δ [-]として算出した。

 $\delta = \Delta P^{\text{th}} / \Delta P^{\text{exp}}$

(1)

これは、フィルタの圧力損失の実測値が理論値よりも低い要因が、繊維充填の不均一性に よるものとして考慮されている。本研究で作成した試験サンプルの δ を Table1 に示した。 また、各積層方法におけるフィルタの理論透過率と実験値を Fig.1 に示した。ここで、理論 透過率は、単一繊維捕集効率 η を Eq.(2)のように不均一性因子 δ で補正して算出した。

(2)

 $\eta^{
m r}=~\eta$ / δ

ここで、η^rは補正後の単一繊維捕集効率である。

Liquid filtration		Gravitational settling		
Sample	δ(-)	Sample	δ(-)	
Base filter	2.9	Base filter	2.9	
Sample A	7.2	Sample E	3.7	
Sample B	6.5	Sample F	2.5	
Sample C	7.3	Sample G	2.9	
Sample D	10.5	Sample H	5.2	

Table 1. Inhomogeneity factor (δ) of test samples



Fig.1. Measured and predicted penetrations of sample filters (u = 0.05 m/s). Left: Liquid filtration, Right: Gravitational settling.

結果より、重力沈降法は繊維充填の不均一性が小さく捕集効率が高いことがわかった。ナ ノファイバフィルタの性能予測において、不均一性因子で単一繊維捕集効率を補正するこ とで実際の性能を推定できることを示した。さらに既報の PAN フィルタの試験データと比 べたところ、今回作成したサンプルは不均一性因子が小さく、低圧力損失、高捕集効率であ ることがわかった。本研究の成果として、ナノファイバの積層において繊維の均一充填及び 3次元的な積層がフィルタの高捕集効率化に有効であること実証した。 第3章では、エアフィルタによるサブ 10nm 領域の粒子の捕集について、マクロ分子イオ ンを用いた捕集効率測定法の構築、ならびに粒子用フィルタで捕集できる下限サイズを実 証することを目的とした。まずエレクトロスプレー(ES)を用いて発生した PEG 分子イオン の電気移動度分布を基に、その発生特性の解明と荷電状態の制御を試みた。結果として、ES で発生したエアロゾルを DMA 入口で荷電中和した場合としない場合では、得られる電気 移動度分布が異なった。荷電中和をしない場合では 2 峰性の分布を示し、最大ピークにお ける電気移動度 Z_pより粒子の荷電数 *p*を1 価として Eq.(3) を用いて求めた粒子径 *d_p*は、 PEG 分子量 2000~75200 g/mol に対し 2.2~2.4nm となった。

 $d_p/C_c = pe/3\pi\mu Z_p$ (3) ここで、 C_C は Cunningham の補正係数、 μ は空気 の粘度、e は電気素量、 Z_r は電機移動度を示す。 一方で、DMA 入口で荷電中和した場合には単 峰性の電気移動度分布なった。その粒子径 d_p は、 2.2~6.9nm となり、理論値と良い一致を示した。 これらの結果より、ES で発生した PEG 粒子中 に多価に帯電した粗大粒子が存在すると考え、タ ンデム DMA 法で発生粒子の粒子径と荷電数を 求めたところ、電気移動度分布のピーク中に粗大 粒子が含まれていること、及び PEG 分子量 2000g/mol と 4600 g/mol の単分子イオンはそれ ぞれ 1 価及び 4 価に帯電していることを明らかに した (Fig.2)。

帯電状態を制御した PEG 試験粒子に対する SUS およびナイロンメッシュの捕集実験より、 単一荷電及び平衡荷電状態の PEG 分子の単一 繊維捕集効率は拡散理論と一致したが、粗大粒 子を含む多重荷電エアロゾルを用いると、得ら れる単一繊維捕集効率は拡散理論線から外れ、 あたかも跳ね返りが起きているようにみられ た。なお、分子量 1000g/mol の PEG 単分子イ オンの電気移動度径は 1.8nm となり、このサイ ズにおいても跳ね返りは観測されなかった

(Fig.3)。本研究により、跳ね返り現象の解明 までは至らなかったが、PEG 分子イオンを用い たフィルタの捕集性能評価法を確立した。



Fig.2 Particle size distributions of PEG2000 aerosol measured by tandem DMA method.



Fig.3. Single fiber collection efficiency of each PEG (singly charged) through SUS wire screen.

第4章では、外部より入力した呼吸データを忠実に再生することができ、さらに呼吸を 記録した際の吸気量と呼気量の差による気流再生時の課題を解消することのできる呼吸シ ミュレータの開発を目的とした。開発した呼吸シミュレータの構成を Fig.4 に示した。

呼吸データの再生精度について検証したところ、10~40L/min の元呼吸に対して-5%以 内の測定誤差となり、高い精度で呼吸を再生可能であることを確認した。また位置補正プロ グラムの搭載により、ストロークの位置ずれによる再生精度の低下を解消した(Fig.5)。



Fig.4. Basic concept of breathing flow reproduction system

さらに、呼吸シミュレータを用いて電動 ファン付き呼吸用保護具の評価を行った。 実際の呼吸波形を再生することで、人の呼 吸量とピーク流量がマスクの防護性能と 使用時間に密接に関わっていることを実 証した。このような評価は従来の試験では 困難であり、呼吸シミュレータの有用性を 確認した。

また、呼吸は吸気と呼気を繰り返すこと からマスクを通過する空気の流れは非定 常流れとなる。従来の捕集理論は定常場の 仮定のもとで構築されており、非定常流れ



Fig. 5. Comparison of reproduced breathing patterns with and with the null position correction with the one measured by the breath recording device.

における圧力損失と捕集効率への適応性は不明であった。そこで脈動流通気における圧力 損失とフィルタ下流側の粒子濃度をリアルタイム計測して透過率と通気流速の関係を求め、 定常流で求めた圧力損失及び透過率と比較した。結果より、圧力損失はガラス繊維フィルタ 及び pp フィルタともに、定常流と脈動流のデータが一致し、定常流のデータから脈動流の 圧力損失を推定できることがわかった。さらにガラス繊維フィルタ及び除電した pp フィル タは、定常流と脈動流の透過率がほぼ一致した(Fig.6 及び Fig.7)。一方で帯電 pp フィル タの透過率は、呼吸回数が多くなるほど高い透過率を示した(Fig.8)。この現象は従来の捕 集理論とは異なることから、非定常流れにおける静電フィルタの捕集挙動に対し、瞬間的な



Fig.6. Relationship between flow rate and 0.1μ m particle penetration of glass fiber filter measured at cyclic and constant flow condition.



Fig.7. Relationship between flow rate and 0.1µm particle penetration of discharged pp filter measured at cyclic and constant flow condition.



Fig.8. Relationship between flow rate and 0.1µm particle penetration of pp filter measured at cyclic and constant flow condition.

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。)

マスク用エアフィルタの高性能化と評価技術に関する研究

2. 論文提出	者(1)所	属	物質科学	専攻
	(2) 氏	がな	ゆぁさ ひきし 湯浅 久史	

3. 審査結果の要旨(600~650字)

平成27年7月10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。そして、8月3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。

本論文では、マスクの性能を決定するエアフィルタに関し、(1)低圧力損失・高捕集効率のフィ ルタの開発のため、ナノファイバ積層フィルタにおける繊維充填の不均一性と集塵性能の関係の解 明、(2)粒子 - ガス分子の境界サイズであるサブ 10 nm 領域の単分散粒子発生技術と計測技術の確 立、およびこれらを用いたフィルタ性能試験法の提案、(3)マスクを装着する人の呼吸を記録し、 その呼吸を忠実に模擬して、フィルタの性能を評価できる装置の開発、に関する研究を行った。そ の結果、(1)ナノファイバの積層において繊維の均一充填及び 3 次元的な積層がフィルタの高性能 化に有効である、(2) PEG 分子イオンを用いたフィルタの捕集性能評価法を確立し 1.8 nm 粒子でも 跳ね返りは起こらないこと、(3) 実測した呼吸データを忠実に再生ができる呼吸シミュレータの開 発し、それを用いたフィルタ性能評価装置を提案した。

以上のように、本論文は、マスク用の高性能フィルタの提案、粒子とガスの境界サイズの粒子径 に対するフィルタ捕集効率測定法、呼吸パターンのフィルタ性能への影響評価法を提案しており、 その工学的な価値は極めて高いと考えられ、博士(工学)の学位に相当すると判断する。

4. 審査結果 (1) 判 定 (いずれかに〇印) (合格) ・ 不合格

(2) 授与学位 <u>博士(工学)</u>