

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 8 月 25 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26289286

研究課題名 (和文) PM2.5除去用エアフィルタ試験法の開発

研究課題名 (英文) Development of filter testing methods for PM2.5 removal

研究代表者

大谷 吉生 (Otani, Yoshio)

金沢大学・自然システム学系・教授

研究者番号：10152175

交付決定額 (研究期間全体) : (直接経費) 10,600,000 円

研究成果の概要 (和文) : PM2.5捕集用のエアフィルタの性能評価法について検討するとともに、ナノ粒子に対するフィルタ捕集効率データの健全性に関する検討した。その結果、大気塵と比較的近い試験粉塵を用い、スーパージェットミルを用いて一次粒子にまで完全に分散すると、大気塵を負荷した場合を同じフィルタ寿命が求められることを明らかにした。また、ナノ粒子に対するフィルタ捕集効率データの健全性について、その評価法を提案し、粒子透過率の対数をペクレ数に対してプロットすることにより、そのデータのバラツキからデータの健全性を示せることを明らかにした。

研究成果の概要 (英文) : Present work studied the testing methods of air filters for PM2.5 and the consistency of collection efficiency data for nanoparticles. As a result, it was found that the filter life can be well predicted by using polydispersed particles which have the same size distribution as that of atmospheric aerosols when they are dispersed completely to primary particles by using the superjet mill. Moreover, we found that the log-log plot of particle penetration against Peclet number gives a good criteria for testing the consistency of penetration data.

研究分野：化学工学

キーワード：エアフィルタ フィルタ寿命 性能評価法 データの健全性

1. 研究開始当初の背景

研究代表者が国内委員長を務めるISO/TC142「空気および他のガスの清浄化装置」では長年にわたり、フィルタの分類と試験法について議論してきている。しかし、フィルタの分類、および性能試験法についてなかなか各国の合意が得られず、規格作りに支障をきたしている。規格作成段階で頻繁に陥る議論は、「フィルタの分類が先か、試験法が先か」という、卵が先か、鶏が先かという議論である。「まず、フィルタの分類(ランク)を決めて、分類を可能にする試験法を決める」という意見と、「試験法を決め、それに従ってフィルタ試験を行い、その結果に基づいてフィルタを分類(ランク分け)する」というものである。なぜこのような議論に陥るかという点、格付けされたフィルタは実際に使用したときにその格付けに相当する性能を示さなければならない、しかし、これは正に今我々が直面しているフィルタ試験法の問題、すなわちフィルタ性能試験結果が現場の性能を表わさないという試験法の根本的な問題なのである。

フィルタの性能には様々な要素が求められるが、その中で最も重要なものが捕集効率と圧力損失である。すなわち、長期間フィルタを使用した場合に、「初期の捕集効率と圧力損失を、どれだけ長い間保つことができるか」ということである。これさえフィルタメーカーが保証できれば、ユーザは安心してはフィルタを購入することができる。しかし、これを保証できる試験法がない。その理由は、フィルタが捕集対象とする粒子が多種多様(粒子の状態(固体、液体)、粒子径分布、濃度など)であること、ろ過条件(ろ過速度、フィルタ構造)が広範であることに帰着する。だから、一つの試験粒子、かつ高濃度の粒子を用いて加速試験を行うと、現場での試験結果を表わせない。

捕集効率のうち、初期効率については、粒子の種類、濃度に関係なく、ある濃度のある粒子を用いて、ろ過速度を変化させて粒径別捕集効率さえ測定すれば、その結果は様々な粒子に適用できる。しかし、粉じん負荷時の性能となると、粒子が同じであっても、濃度、ろ過条件が異なれば捕集効率、圧力損失の経時変化は全く異なる結果となり、現状ではその予測はお手上げ状態である。

2. 研究の目的

「フィルタの性能試験結果が実際の使用時に適用できる」を実現するためには、短時間の性能試験におけるフィルタ内部の粒子の堆積状態が、実環境で使用した場合のフィルタ内部の粒子堆積状態と等しい、あるいは一定の相関を示す必要がある。本研究では、一般換気用エアフィルタ(HVAC用フィルタとも呼ばれる、JIS B 9908の形式2で規定される、粒径 $0.4\ \mu\text{m}$ の粒子に対する初期捕集率が99%未満の中高性能フィルタユニ

ット用材)を対象に、フィルタ性能試験法を開発する。このフィルタの捕集対象は、主に大気塵である。大気塵の粒度分布は、図1に示すように、おおそ $5\ \mu\text{m}$ と $0.5\ \mu\text{m}$ にピークを持つ2峰分布であるが、地域によって濃度は大きく異なり、大気塵を構成する粒子の性状も大きく異なる。そこで、本研究では、

(1)各地域で使用されたフィルタを回収し、その地域の大気塵の性状と、フィルタ内部の粒子堆積状態の関係を明らかにする。

(2)大気塵粒子の性状とフィルタ内部の粒子堆積状態の関係を、フィルタろ過理論を用いてモデル化し、フィルタ性能(捕集効率と圧力損失)の経時変化予測法を確立する。

(3)大気塵とほぼ等しい粒度分布を有するJIS-11種粉体(JIS Z 8901に規定される試験用粉体1の11種、関東ローム粉)を用いた、フィルタ寿命の加速試験の妥当性を検討する。

(4)JIS-11種粉体を用いたフィルタ性能試験法における、試験環境(温度、湿度など)の影響を明らかにする。

(5)実環境使用時のフィルタ内部粒子堆積状態を模擬できる、試験用粉体と試験条件(ろ過速度、濃度など)を決定し、フィルタ性能試験法を確立する。

3. 研究の方法

平成26年度では、まず、上記(1)の大気塵の捕集に使用されたフィルタ内部の粒子堆積状態と大気塵の性状の関係を明らかにする調査研究に取り組んだ。

HVAC用フィルタは、ビルや工場の空気取り入れ口に設置され、通常、プレフィルタと呼ばれる粗塵用フィルタの下流に設置される。このため、HVACフィルタに流入する粒子は、大気塵の内PM2.5がその大部分を占め、その寿命は1年~2年程度である。申請者らがこれまで共同研究を実施してきたフィルタメーカー(日本無機㈱、ニッタ㈱、日本バイリーン㈱、日本ケンブリッジフィルター㈱など)の協力を得て、日本各地で使用されたフィルタを回収し、フィルタ内部の粒子堆積状態をSEMにより観察するとともに、その捕集効率と圧力損失を現有設備であるエアフィルタ捕集試験装置を用いて測定した。また、フィルタが設置された地域の大気塵データを協力企業あるいは地方自治体から入手することにより、その地域の大気質の性状と、フィルタに堆積した粒子堆積構造の関係を明らかにした。これにより、各地域で特徴的な大気塵の性状と、フィルタ寿命予測に必要な因子を抽出した。

これまで上記のフィルタ回収による調査研究と並行して、金沢大学キャンパスにおいて、大気塵を用いたフィルタ寿命加速試験について検討した。通常、大気塵を用いたフィルタ寿命加速試験では、ろ過速度を大きくとることによってフィルタ負荷粉塵量を大

大きくして、圧力損失と捕集効率の経時変化を測定する方法が取られる。本研究では、代表的な HVAC フィルタを試験フィルタとして採用し、異なった過速度で同時に大気塵を複数個のフィルタで捕集し、温度、湿度、大気塵濃度を常時モニタリングした。これらの結果より、捕集粒子量と圧力損失の関係に及ぼす過速度の影響、捕集粒子量と圧力損失の関係に及ぼす環境因子（温度、湿度、大気塵濃度など）を明らかにした。

また、ナノ粒子に対するフィルタの捕集効率は極めて高くなるため、そのデータの信頼性が問題となる。そこで、ナノ粒子のように拡散捕集が支配的になる場合の粒子捕集効率の精度を評価する方法についても検討した。

4. 研究成果

(1) 各地域の大気塵の性状と、フィルタ内部の粒子堆積状態の関係

約1年間大気塵を捕集して回収された HVAC フィルタ（初期圧力損失 87 Pa から、最終圧力損失は 380 Pa に増加）の粒子堆積状態を観察したところ、大気塵は固体粒子というよりタール状の堆積物を形成し、粒子はフィルタ裏面まで透過してフィルタ全体が黒色になるまで変色していた。このように、大気塵の性状はフィルタ設置場所・地域によって大きく異なり、本調査研究により、フィルタ設置場所、地域による大気塵の性状の違いが明らかになった。今後、このような情報は、その地域の大気塵の捕集に最適なフィルタを選定するための大きな指針になると考えられる。

(2) JIS-11 種粉体によるフィルタ寿命の加速試験の妥当性

中高性能フィルタユニットの寿命を評価する際には、JIS B 9908 形式 2 (0.4 μm に対する初期捕集率が 99 %未満) に基づいた試験を行う必要がある。JIS B 9908 に基づいた試験において、粒径別粒子捕集率、試験粉塵供給量、圧力損失の経時変化は、いずれも試験粒子として JIS Z 8901 に規定に規定されている試験用粉体 1 の 11 種（関東ローム、通称 JIS-11 粉体）が採用されている。そして、この規格の試験粉塵供給量の測定では、試験粉塵濃度 $70 \pm 30 \text{ mg/m}^3$ で、粒子は、一次粒子まで安定して分散供給でき、再凝集しないものを用いなければならない。しかし、実際の試験において、粒子濃度が高濃度で帯電しているため、粒子の分散が不完全で凝集粒子が存在し、試験粉塵供給量が変化している可能性がある。さらに、試験粒子を用いたフィルタの加速試験で得られた粉塵負荷特性は、実際の使用環境での性能を再現できないことも、大きな問題となっている。この原因として、試験に用いた JIS-11 粉体に凝集粒子が多く存在し、大気塵の粒度分布と異なっていることがあげられる。図 1 は、JIS B

9908 に採用されているエジェクタより大きな分散力が得られる流動層（流動槽式粒子発生器、日本カノマックス）粉砕に使用されるスーパージェットミル（日清エンジニアリング）により試験粒子を発生させて、減圧インパクター（ELPI, Dekati）で測定した JIS-11 粉体の粒度分布を、一次粒子（SEM により測定し空気力学径に換算）と大気塵の粒度分布と比較して示す。図より、スーパージェットミルで発生させた場合、エジェクタよりも中位径は小さく、大気塵と近い粒径となっていることがわかる。このことから、大気塵に近い粒度分布を持つ粉塵負荷試験用 JIS-11 粒子を発生させるには、エジェクタよりも分散力の強いスーパージェットミル等が必要といえる。

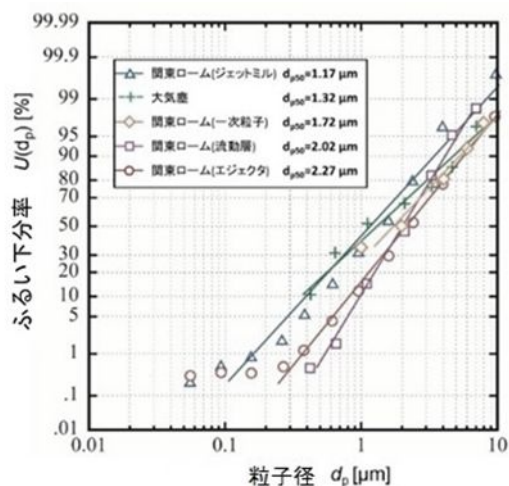


図 1 発生器による JIS11 種粉体の粒度分布の違い

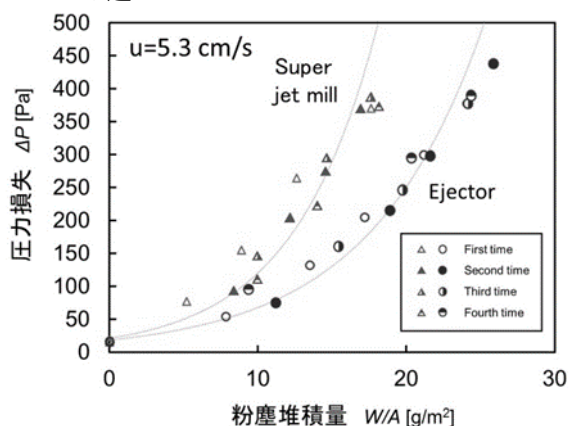


図 2 JIS-11 種粉塵負荷による圧力損失の経時変化

図 2 に、エジェクタおよびスーパージェットミルによって JIS-11 粉体を分散し、中性能フィルタに負荷した場合の圧力損失の経時変化を示す。同図において、同じ形状のキーで、黒塗り、半塗り、白抜きの違いは、繰り返し試験の回数の違いを示している。同図より、いずれの粒子発生器を使用しても、JIS-11 試験粉体では、比較的良好な再現性が得られることがわかる。また、スーパージェ

ットミルにより試験粉体を分散したほうが、エジェクタを用いた場合よりも圧力損失の増加速度は大きく、最終圧力損失（375 Pa）に達する粉塵堆積量はエジェクタよりも50%以上小さくなっている。このように、試験粒子の分散状態は、粉塵負荷時の圧力損失に大きく影響する。したがって、図2に示したように一次粒子径が大気塵と比較的近いJIS-11種粉体であっても、分散が不十分であれば大気塵負荷時と全く異なった粉塵保持容量を与えらると言える。

(3) ナノ粒子に対するフィルタ捕集効率の健全性に関する検討

対数透過則に基づく透過率実験データ健全性について検討した。一般にフィルタの透過率は、対数透過則を用いて、以下の式で表される

$$P = \exp \left\{ -\frac{4}{\pi} \frac{\alpha}{1-\alpha} \frac{L}{d_f} \eta \right\} \quad (1)$$

式(1)を変形すると

$$-\ln P = \frac{4}{\pi} \frac{\alpha}{1-\alpha} \frac{L}{d_f} \eta \quad (2)$$

フィルタ物性が既知の時、 $\frac{4}{\pi} \frac{\alpha}{1-\alpha} \frac{L}{d_f}$ は定数なので

$$-\log P \propto \eta \quad (3)$$

拡散支配域では $\eta \propto Pe^{-2/3}$ であるから

$$-\log P \propto Pe^{-2/3} \quad (4)$$

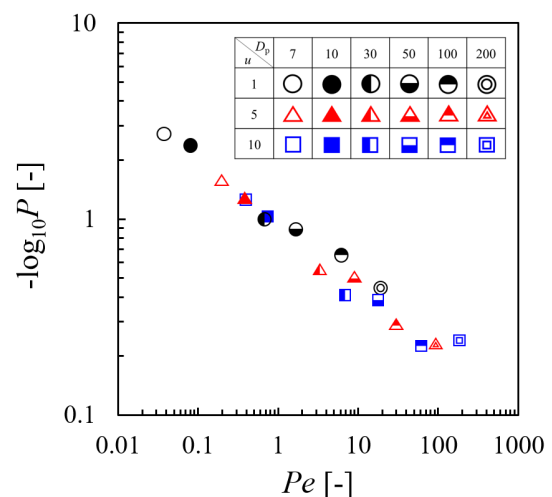
以上より、 $-\log P$ を Pe 数に対して両対数グラフにプロットすると全ての実験値はろ過速度、粒径に関わらず傾きが $-2/3$ の一本の直線上にプロットされるはずである。実験値を用い、 $-\log P$ を Pe 数に対してプロットした際、ろ過速度、粒径を変化させたデータが一本の直線にまとまらない場合、実験条件として設定したろ過速度、粒子径に問題があると考えられ、粒子発生法、粒子分級法、ろ過速度の設定方法を見直す必要があると言える。

繊維径、充填率、フィルタ厚みなどのフィルタ物性は、これらを精度よく測定することは困難であるが、本手法は、これらの物性に関係なくデータの健全性を検証できるというメリットがある。また、 $-\log P$ は、捕集効率が99.9%ならスリーナイン、99.99%ならフォーナインという、フィルタの捕集効率で9がいくつ並ぶかということを示すため、フィルタ捕集効率とデータの信頼性の関係をもみの上で、有効な指標と考えられる。

図3に $-\log_{10} P$ を Pe 数に対して両対数グ

ラフにプロットしたものを示す。ここでは、ろ過速度は $u = 1 \sim 10$ cm、粒径は $D_p = 7 \sim 200$ nmで変化させてある。同図において、 $Pe=1$ 以下で、ろ過速度、粒径に関わらず、データは傾き $-2/3$ の一本の線にまとまっている。この図より、 $-\log_{10} P$ を Pe 数に対して両対数グラフにプロットしたとき、 Pe 数が1以下で、ろ過速度、粒径に関わらずほぼ一本の直線にまとまっていることから、 $Pe < 1$ で粒子の捕集は拡散支配になり、データはほぼ健全といえる。なお、いずれの図においても、 Pe 数が1以上で、粒子径が大きいほど $-\log P$ が大きくなっているが、これは拡散に加えてさえぎりによる捕集が効いているためである。

図3 拡散域でのフィルタ捕集効率の健全性



5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計14件)

1. Kawara, N., Kumita, M., Kurachi, H., Seto, T., Kondo, T., Otani, Y.: Sieving of aerosol particles with metal screens, *Aerosol Sci. & Technol.*, 50, 100-107, DOI:10.1080/02786826.2016.1167275 (2016)査読有
2. Bao, L., Niinuma, H., Otani, Y., Balgis, R., Ogi, T., Gradon, L., Okuyama, K.: Verification of slip flow in nanofiber media through pressure drop measurement at low-pressure condition, *Separation and Purification Technol.*, 159, 100-107, DOI:10.1016/j.seppur.2015.12.045 (2016)査読有
3. Nakajima, S., Kumita, M., Matsuhashi, H., Higashi, H., Seto, T., Otani, Y.: Centrifugal Filter for Aerosol Collection, *Aerosol Science and Technology*, 49:959 - 965, DOI:10.1080/02786826.2015.1086481 (2015) 査

- 読有
4. Maekawa, T., Tokumi, T., Higashi, H., Seto, T., Otani, Y.: Effect of solute concentration on the breakdown of droplets and ion emission by electrospray, *Kagaku Kogaku Ronbunshuu*, 40(1), 5-11, DOI: 10.1252/kakoronbunshu.40.5 (2015) 査読有
 5. Yuasa, H., Kumita, M., Honda, T., Otani, Y.: Breathing simulator of workers for respirator performance test, *Industrial Health*, 53:124-131, DOI:10.2486/indhealth.2014-0079 (2015) 査読有
 6. Thongyen, T., Hata, M., Toriba, A., Furuuchi, M., Otani, Y.: Development of PM0.1 personal sampler for evaluation of personal exposure to aerosol nanoparticles: Aerosol and Air Quality Research, 15:180-187, DOI: 10.4209/aaqr.2014.05.0102 (2015) 査読有
 7. Kim, S., Iida, K., Kuromiya, Y., Seto, T., Otani, Y.: Effect of nucleation temperature on detecting molecular ions and charged nanoparticles with a diethylene glycol-based particle size magnifier, *Aerosol Science and Technology*, 49:35-44, DOI: 10.1080/02786826.2014.989954 (2015) 査読有
 8. Fukumori, K., Higashi, H., Naito, T., Seto, T., Otani, Y.: Focused deposition of nanoparticles on polymer film with an improved TSI-nanoparticle sampler (Model 3089), *Aerosol Science and Technology*, 49:363-370, DOI: 10.1080/02786826.2015.1031725 (2015) 査読有
 9. Higashi, H.; Tokumi, T.; Hogan, C.J., Seto, T., Otani, Y.: Simultaneous ion and neutral evaporation in aqueous nanodrops: Experiment, theory, and molecular dynamics simulations, *Physical Chemistry Chemical Physics*, 17:15746-15755, DOI: 10.1039/c5cp01730k (2015) 査読有
 10. Hata, M., Chomanee, J., Thongyen, T., Bao, L., Tekasakul, S., Tekasakul, P., Otani, Y., Furuuchi, M.: Characteristics of nanoparticles emitted from burning of biomass fuels, *Journal of Environmental Sciences (China)*, 26:1913-1920, DOI: 10.1016/j.jes.2014.07.005 (2014)
 11. Abdelaziz, A.A., Seto, T., Abdel-Salam, M., Otani, Y.: Influence of N₂/O₂ Mixtures on Decomposition of Naphthalene in Surface Dielectric Barrier Discharge Based Reactor, *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, DOI 10.1007/s11090-014-9578-5 (2014) 査読有
 12. Seto, T., Inoue, A., Higashi, H., Otani, Y., Kohno, M., Hirasawa, M.: Phase transition and restructuring of carbon nanoparticles induced by aerosol laser irradiation, *Carbon*, 70:224-232, DOI:10.1016/j.carbon.2013.12.111 (2014) 査読有
 13. Tanaka, Y., Higashi, H., Manirakiza, E., Seto, T., Otani, Y., Hirasawa, M.: Charge neutralization of aerosol carbon nanofibers, *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 40:5-11, DOI: 10.1252/jcej.14we010 (2014) 査読有
 14. Higashi, H., Fujioka, T., Endo, T., Kitayama, C., Seto, T., Otani, Y.: New apparatus of single particle trap system for aerosol visualization, *Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering*, 9232, 92320Q, DOI: 10.1117/12.2063618 (2014) 査読有
- 〔学会発表〕(計8件)
1. Choi, H.J., Hiruma, Y., Seto, T., Kumita, M., Sano, Y., Okamoto, T., Ikeda, T., Otani, Y.: Effect of inhomogeneity on the performance of nanofiber filter, 日本空気清浄協会、早稲田、東京、2016年4月20日
 2. 大谷吉生: エアフィルタの将来の展望, 日本空気清浄協会、早稲田、東京、2016年4月20日
 3. 大谷吉生、タンヤボン P., 田中豊、汲田幹夫、瀬戸章文、包理、関和也: Effect of media properties on collection performance of centrifugal filter, 日本空気清浄協会、早稲田、東京、2016年4月20日
 4. 大谷吉生: 一般換気用エアフィルタ加速試験法の妥当性、日本空気清浄協会、早稲田、東京、2015年4月20日
 5. Seki, K., Bao, L., Kobayashi, M., Otani, Y., Seto, T.: Performance evaluation of HEPA filtes made of new fluororesin nanofiber, 9th Asian Aerosol Conference, Kanazawa, June 7 2015
 6. Nakajima, S., Kumita, M., Matsuhashi, H., Higashi, H., Seto, T., Otani, Y.: Improvement and evaluation of centrifugal filter, 9th Asian Aerosol Conference, Kanazawa, June 8, 2015
 7. Otani, Y.: Air filters - Present status and innovation, International Aerosol Conference 2014, Invited lecture, BEXCO, Pusan, Korea, Aug.30, 2014
 8. Otani, Y.: Present status and new

application of air filters,
International Symposium on
Contamination Control, Invited
lecture, COEX, Seoul, Korea, Oct. 15,
2014

〔産業財産権〕

出願状況（計1件）

名称：微粒子捕集装置
発明者：大谷 吉生、瀬戸 章文
権利者：金沢大学
種類：特許
番号：特開 2015-20242
出願年月日：2015年6月
国内外の別：国内

取得状況（計0件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

金沢大学 微粒子プロセス研究室
<http://aerosol.w3.kanazawa-u.ac.jp/index.html>

6. 研究組織

- (1) 研究代表者：大谷 吉生 (Yoshio Otani)
理工研究域・自然システム学系・教授
研究者番号：10152175
- (2) 研究分担者：瀬戸 章文 (Takafumi Seto)
理工研究域・自然システム学系・教授
研究者番号：40344155
- (3) 研究分担者：汲田 幹夫 (Mikio Kumita)
理工研究域・自然システム学系・准教授
研究者番号：60262557
- (4) 研究分担者：東 秀憲 (Hidenori Higashi)
理工研究域・自然システム学系・准教授
研究者番号：40294889