れた方々から種々ご意見をいただいたことに対して深く感謝申し上げます。また実験中原子炉の運転にご尽力いただいた JRR-4 管理課および関連部署の皆様へ厚く御礼申し上げます。

— 参 考 文 献 —

- (1) ROCKWELL, T., III: "Reactor Shielding Design Manual", (1956), McGraw-Hill, New York.
- (2) BLIZARD, E.P.: "Reactor Handbook", Vol. II. Part B, (1962), Intersci. Publ., New York.
- (3) 宮坂駿一, 他: 第3回日本アイソトープ会議報文集, 524, (1960).
- (4) 酒井利夫, 他: 日立造船技報, 25, 270 (1964).
- (5) 玉井輝雄, 安藤恵成: 石川島播磨技報, 6 [27], 5 (1966).
- (6) 宮坂駿一, 金森善彦, 福島 稔, 山田 毅: 本誌, 9 [10], 597 (1967).
- (7) 宮坂駿一, 金森善彦, 福島 稔, 山田 毅: 本誌, 10 [9], 488 (1967).
- (8) 宮坂駿一: JAERI 6016, (1965).
- (9) FURUTA, Y., KINBARA, S.: Rev. Sci. Instrum., 37, 176 (1966).
- (10) PEEBLES, G.H.: R-240, (1952).

研究論文

484. 空気中の微小粒子に対するフィルターの捕集効率の測定法

関 川 俊 男*

(1967年 10月16日 受 理)

(1968年 2月21日 再受理)

On the Measurement of Collecting Efficiency of Filters for Submicron Aerosol Particles

By Toshio SEKIKAWA

The author has developed a new method of measuring the collecting efficiency of a mechanical filter for submicron aerosol particles.

The principle of the method lies in observing the method is based on mobility spectra of ions artificially brought to charge equilibrium by means of the uncharged aerosols.

From these measurements, it has been found that even a high efficiency filter made of non-woven cloth has an average collecting efficiency of only 50% for submicron aerosol particles with radii of the order of 10^{-6} cm. It was also revealed that the efficiency such filters was lowest when collecting particles of $4 \sim 5 \times 10^{-6}$ cm radius.

I. 序 論

大気中のサブミクロン・エアロゾル粒子に対するフィルターの捕集効率を測定することは、充分な空気浄化の効果を知らるためには重要なことである。従来、フィルターの効率を求める場合、単一粒径の粒子を空気中に混入した試験粉体のフィルター前後の濃度差より効率を決定するのが通例である⁽¹⁾。しかし、このような粒子

は大気中に存在するエアロゾル粒子と性状が相違することがあり、捕集の機構もエアロゾルの種類で多少は相違するので、試験粉体による効率の測定は大気中に自然の状態で存在しているエアロゾル粒子に対する捕集効率と必ずしも一致するものではない。著者はフィルターの効率を測定するに当りこの点に留意し、試験粉

* 東京理科大学 理学部 (Dept. of Phys., Science Univ. of Tokyo)

体として大気中のエアロゾル粒子を用い、しかもその粒径が 10^{-6} cm の範囲に存在する粒子に対する捕集効率を測定する方法を考案した。粒径が特に 10^{-6} cm の位のものを対象とした理由は、大気中に拡散した放射性物質が付着するであろう粒子の大部分はこの領域にあり⁽²⁾、また、この粒径の粒子は熱拡散や重力沈降を受けにくく空気中の滞在時間が長く、したがって、空気中の濃度が高いためである⁽³⁾。

大気にあるエアロゾル粒子の何%かは荷電して、いわゆる“大気イオン”を形成している。その易動度*は温度・気圧などが同一条件であれば粒子の粒径に依存する値となるから、イオンの易動度別の濃度分布を求めることができれば、粒子の粒径別の濃度を見積ることが可能となる。大気イオンの易動度スペクトラムの測定法は多くの研究者により高い精度で測定することができるようになってきている⁽⁴⁾。この方法を応用して、もっとも測定が困難とされている 10^{-6} cm の範囲にある大気中のエアロゾルの粒径別濃度分布の測定法およびその測定法を利用してフィルタのサブミクロン・エアロゾル粒子に対する捕集効率を測定した1例について報告する。

大気イオンの易動度別濃度分布よりエアロゾル粒子の粒径別濃度分布を推定する場合には、エアロゾル粒子の付着・凝縮に関する理論が用いられ⁽⁵⁾、種々の仮定が導入されてくる。この場合、最も基本となるものは空気中のエアロゾル粒子の色々な粒径で、粒子の荷電率が平衡になっていることである。エアロゾル粒子の荷電率の平衡に関しては著者らがすでに報告しているが⁽¹¹⁾、その方法を用いて大気イオンの易動度スペクトラムよりフィルタの捕集効率を推定する方法を示したものが本報である。

1. 測定法

1. 大気イオンの易動度スペクトラムの測定法

大気イオンの易動度スペクトラムの測定法はJunge, Blockwood, Whipple, Misaki らにより研究されている。その原理は Fig. 1 の示すように同軸円筒型をした外側電極と内側電極との間に電位差を与え、内側電極に流れ込むイオン電流より測定するものである。現在ではその精度をあげるため内側電極を2分して後段に流れ込む電流を測定する、いわゆる、2段電極方式のイオン・カウンタが用いられている。実際に用いられたイオン・カウンタは大イオン測定用のもので、そのディメンションは Fig. 2 のとおりである。分布の解析方法は Masaki⁽⁴⁾ が考案した方法を引用する。

Fig. 1 Schematic diagram of double electrode ion counter

Fig. 2 Ion counter dimension

いま、 e : 素電荷、 k : イオンの易動度

$f(k)$: イオンの易動度分布関数

k_e : 前段電極に入るイオンの限界易動度

k_a : 後段電極に入るイオンの限界易動度

U : カウンタ内の平均流量

C_1 : 前段電極の電気容量

C_2 : 後段電極の電気容量

V : 電極間の電位差

とすると、後段電極に流れ込むイオン電流 I_2 は

$$I_2 = eU \left[\int_{k_e}^{k_a} f(k) dk + \frac{1}{k_a} \int_0^{k_a} k f(k) dk - \frac{1}{k_e} \int_0^{k_e} k f(k) dk \right] \quad (1)$$

ここに、

$$k_e = \frac{U}{4\pi C_1 V}, \quad k_a = \frac{U}{4\pi (C_1 + C_2) V} \quad (2)$$

である。易動度が k_e と k_a との間 ($k_a - k_e \equiv \Delta k$) にあるイオンの数を Δn とすると、

$$\Delta n = \frac{1}{4\pi C_1 e} \cdot \frac{\Delta \left(\frac{I_2}{V} \right)}{\Delta k} \quad (3)$$

となり、 Δk に対応する Δn が求められる。(2)式で示されるように k は U を一定に保てば V の関数となり、 V を変化させることにより k_e, k_a が変化し、したがって異った易動度における Δk に対する Δn を求めることができる。 V を指数等間隔で変化させると対数目盛で等間隔の Δk に対する Δn のヒストグラムが得

* 易動度とは荷電粒子が電界内でその電気力により動く速度を指す。本報では電界強度 1 V/cm のところで電界方向に速度 1 cm/sec で動くものを単位とし $k = 1 \text{ cm}^2/\text{V sec}$ とする。

られる。実際には Δn を流量 U で除した値、すなわち単位体積中の粒子数(濃度 ΔN)で示すこととする。

2. イオンの易動度スペクトラムより粒径

スペクトラムへの変換

イオン・カウンタを用いれば Δk に対する ΔN のヒストグラムを求めることができるが、このときエアロゾル粒子の荷電率が平衡でなければならぬ。エアロゾル粒子の荷電率が時間的に変動しないとき、すなわち、荷電が平衡状態にあるときはエアロゾルの各粒径につき荷電量は Boltzmann 分布をする⁽⁶⁾⁽⁸⁾。すなわち、粒子半径(r)のエアロゾル粒子のうち、無荷電粒子の濃度を $N_0^{(r)}$ とするならば p 個荷電した粒子の濃度 $N_p^{(r)}$ は、

$$N_p^{(r)} = N_0^{(r)} \exp\left(-\frac{e^2 p^2}{2rKT}\right) \equiv N_0^{(r)} X^{p^2} \quad (4)$$

ここで、 $X = \exp\left(-\frac{e^2}{2rKT}\right)$

p : 粒子の荷電数

e : 素電荷

r : 粒子半径

K : Boltzmann 定数

で示される。粒子半径 r の全核濃度を $Z^{(r)}$ とすると、

$$Z^{(r)} = N_0^{(r)} + 2N_1^{(r)}X + 2N_2^{(r)}X^4 + 2N_3^{(r)}X^9 + \dots \quad (5)$$

ただし、正負イオン濃度は各荷電ごとに等しいものとする。 $r \approx 10^{-6}$ cm では $N_4^{(r)}$ 以上は非常に少ないので省略すると、

$$Z^{(r)} = N_0^{(r)} (1 + 2X + 2X^4 + 2X^9) \quad (6)$$

よって、エアロゾル粒子の荷電率 F は

$$F^{(r)} = \frac{\sum_{p=1}^3 N_p^{(r)}}{Z^{(r)}} = \frac{2X + 2X^4 + 2X^9}{1 + 2X + 2X^4 + 2X^9} \quad (7)$$

温度が変化しないものと仮定すると、荷電率は粒子半径 r のみに依存し、核濃度には無関係な値となる。したがって、荷電核数を測定すればその粒径の全核数を見積ることができる。

この理論を実証するため、人工的に発生した単一粒径の核につき、その濃度を变化させて人工的に荷電を平衡にして濃度と荷電率との関係を調べる。実験装置の概略は Fig. 3 のとおりである。核発生は図の左側 T 字型石英管内の NaCl をニクロム線で加熱し NaCl 蒸気を発生させる。蒸気は N_2 ボンベから圧入される N_2 ガスにより送り出され、一方の回路からガラスウールおよび粒状活性炭でエアロゾル粒子が取り除かれ

た⁽¹¹⁾空气中に混入される。核発生部は耐火煉瓦で保温されており、核を送り出す速度により温度勾配が変わる。NaCl 核の大きさはこの温度勾配により決まるので⁽⁹⁾、温度勾配を一定に保てば単一粒径の凝結核を作ることができる。このような単一粒径のエロゾルを含んだ空气に、さらに汚過空气を加えつつミクシングチェンバに送り込む。容器内では、核濃度が一樣にしかも濃度を変えられるようになっている。ある設定濃度になった試料空气は容器より取出され ^{210}Po 200 μCi による照射を受けてエアロゾル粒子の荷電率は平衡状態となり、イオン除去装置を通してポラック・カウンタで核濃度の測定が行われる⁽¹¹⁾。測定結果は Fig. 4 のとおりで、発生条件の相違する 2 例について行なった結果は、核濃度が $10^3 \sim 10^5 \text{ cm}^{-3}$ の範囲で荷電率は濃度には無関係であることが示された。

Fig. 3 Schematic diagram of aerosol generator

Fig. 4 Charge fraction to different density of monodisperse aerosols (O, x was different radius particles due to different conditions.)

易動度スペクトラムから粒径スペクトラムに変換するには、Stokes-Cunningham の式に粒子の荷電を考慮した Millikan の補正を加えた式を用いればよい⁽¹⁰⁾。しかしここで問題となるのは、イオンの多重荷電に対する補正がある。イオン・カウンタで測定される ΔN はイオンがすべて単一荷電をしているとして求められるもので、実際には 2 重、3 重荷電粒子が存在するこ

とは(5)式で示されている。したがって、易動度スペクトラムを粒径スペクトラムに引きなおす場合には、これらの多重荷電粒子を考えに入れなければならない。しかし、荷電粒子と無荷電粒子との間の荷電率が平衡になっている場合には、その比率は粒径によって一定の値となる。もし空気が気象的に同一条件で荷電が平衡であるようにしながら測定すれば $N_p^{(+)}/N_p^{(0)} = \text{const.}$ となり、フィルタの効率測定の場合、フィルタ前後段の ΔN をイオン・カウンタで測定してその相対値より効率を求めるのであるから、試料空気が同一条件*で荷電が平衡である限り多重荷電の補正は消去され、前後段の ΔN の比のみで、ある易動度範囲に相当する粒径範囲に存在する全エアロゾルに対する捕集効率としてさしつかえない。

3. エアロゾル粒子の荷電率の平衡

イオンの易動度スペクトラムより粒径スペクトラムに変換するためには、荷電粒子と無荷電粒子との間の荷電率が平衡になっていなければならないが、一般に粒子濃度が高くその変動が大きい自然気中では荷電率は平衡になっていない場合が多い⁽¹¹⁾。

荷電率を平衡状態にする方法として、イオン・カウンタの前に試料空気を一時、貯めることができるようにし、その部分で ^{210}Po 200 μCi の α 線の照射を受けてからイオン・カウンタに送り込まれる。この方法による荷電率の平衡状態や粒径が 10^{-6}cm の範囲(大イオン領域で易動度では $10^{-2} \sim 10^{-4}\text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{sec}$)に対する電離核の影響などについてはすでに報じているが⁽¹¹⁾、 α 線照射により試料空気に小イオンが発生することは当然である。このイオンがエアロゾル粒子の荷電にどの程度影響するかを調べてみた。実験方法はイオン・カウンタの前段容器中(Fig. 2 左先端部)の ^{210}Po の位置を流れの方向に前後に変化させ一定流量で空気を流すと α 線の照射を受けてからイオン・カウンタで計測されるまでの時間が変化する。内電極に流れこむ電流と照射後の時間との関係は Fig. 5 のグラフに示される。

Fig. 5 Time variation of small ion density after irradiated ^{210}Po

放射線照射により発生した電離粒子は急速に再結合して照射後 5 sec くらいで平衡荷電状態にもどることが判明し、大イオン領域のエアロゾルに対する影響がないとの結論を得た。

4. 測定装置

測定装置の概略は Fig. 6 のとおりである。外気は窓に取付けた空気取入口(地上約 7 m)よりダクトにより空気調和機に入る。ここで温湿度が調整されてから送風機によりダクトを通してフィルタに送られる。フィルタ前後段の温湿度は通風湿度計で測られる。またフィルタ面での湿度は電気湿度計で常時測定されている⁽⁸⁾。風速はピトー管で測定されるとともにサーミスタの風速計で随時比較測定できるようになっている。通気抵抗はフィルタ前後段の圧力差をマンオメータの水水位差より求められる。フィルタを通った空気は直ちに密閉された部屋(容積 15.6 m^3 、木造、断熱材で保温、内側は亜鉛引鉄板張り)に導入されて一時貯えられた後再びダクトにより屋外に放出される。したがって回路は常に空気が流れている状態にあり、しかも回路(密閉室も含め)は常に正圧に保たれているため、回路の外側からの空気の流入はない。密閉室内には大イオン領域を測定するイオン・カウンタが置かれ、カウンタの空気流入口の前段にはイオンと核との間の荷電率の平衡を取るための ^{210}Po 200 μCi が取り付けられてい

Fig. 6 Schematic diagram of test circuit (Filter site was A or B, in compliance with different of sampling air temperature to room temperature, when both equal, filter site was A, and when different temperature of open air to in door, filter site was B.)

* ここでいう同一条件とは、試料空気の温湿度が同一で含まれているエアロゾル粒子の濃度に極端な変動がないことをいう。

る。フィルタを通過した空気は室内でゆるやかな流れとなり、しかも室内は外部より圧力が幾分高くなっている(密閉室以降のダクトの通気抵抗の分だけ)ので室内に発塵源がない限り室内空気はフィルタを通過した直後の空気と同質の空気である。

試料空気は、東京都心部の空気であるため当然汚染された粒子濃度の高い空気であり、その濃度は常に変動しているものであるが荷電率は粒子濃度に関係であることは(7)式で示されている。しかし実際には、汚染源近傍では粒子の粒径の変動が激しいので、なるべく空気が安定している状態で測定するように努めた。

Ⅲ. 測定例

フィルタの効率測定法の1例として、合成繊維で作られた高性能フィルタのサブミクロン・エアロゾル粒子に対する捕集効率を測定した結果について報告する。

送風速度はダクト内で1.0 m/sec ダクト断面積と汚材表面積との面積比は1:6.5であるので、フィルタ内の通気速度は平均0.15 m/sec くらいとなる。このときの通気抵抗は18 mmAqであった(実際の使用では通気速度はもっと高い。したがってフィルタの捕集効率は多少低下すると思う)。

測定はダクト末端の密閉室内にフィルタを取り付けた場合と、それを外した場合との室内空気を大イオン領域についての易動度スペクトラムを交互に測定する。イオン・カウンタの測定範囲は $k=2.5 \times 10^{-8} \sim 7.9 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{sec}$ の範囲で正負1回の測定に約50 minを要する。したがって、1回の実験に要する時間は約2 hrである。

測定は1966年11月28日～67年1月14日に行われたが、外気条件の比較的安定したものについて14例の測定値の平均は第1表のとおりである。

測定中の湿度の幅は相対湿度で30～70%の変動があったが、効率に対して顕著な対応は見出せなかった。加湿を必要とするときはダクト内に水を含んだ布をおいてその表面を試料空気を通るようにした。しかし実際の測定にはなるべく自然の状態に近いエアロゾルで測定するため、空気調和機の稼動も加湿も行わなかった。

結果をまとめると Fig. 7 のとおりになる。

高性能フィルタの捕集効率は 0.3μ の粒径の粒子で99%以上といわれているが、 0.1μ 以下の粒子に対しては平均50%くらいの捕集効率という結果となった。

第1表 易動度別捕集効率

易動度範囲 (k) ($\text{cm}^2/\text{V} \cdot \text{sec}$)	相当半径 (r) (cm)	捕集効率 (%)	確率誤差 (%)
$2.5 \sim 1.7 \times 10^{-8}$	1.7×10^{-6}	50	± 3
$1.7 \sim 1.2$	2.0	54	± 3
$1.2 \sim 0.84$	2.4	49	± 2
$8.4 \sim 5.4 \times 10^{-4}$	3.0	46	± 2
$5.4 \sim 4.0$	3.5	45	± 3
$4.0 \sim 2.8$	4.2	42	± 3
$2.8 \sim 1.9$	5.0	44	± 3
$1.9 \sim 1.3$	6.2	47	± 3
$1.3 \sim 0.96$	7.8	43	± 4
$9.6 \sim 7.9 \times 10^{-5}$	9.5	40	± 6

Fig. 7 Collecting efficiency classified by electric mobility (In figure the white dots was mean values and horizontal width was probable error of the measurement values, and dotted line was estimated on the assumption that collecting efficiency at particle radius 0.3μ was 99%.)

これは粒径が 10^{-6} cm の範囲になると捕集に対して不活性であるという従来の推論を裏付けるような結果となった。しかしその効率は粒径の小さい方に移行するほど上昇する。粒径が 10^{-7} cm の範囲になると熱拡散によりフィルタ通過中に汚材に付着する確率が高くなるためであろう。逆に粒径の大きな方は捕集効率が上昇するのは当然であるが、実験結果では粒径が 0.1μ より大きくなるとその効率が低下してしまうような結果となったが、この領域になると、測定のパラッキが大きくなって測定値に対して確率誤差が15%の大きさ

になり測定精度の低下を示している。これは外気条件が 0.1μ 以上の粒子の変動が激しいことも原因するかもしれないが、 10^{-7}cm 以上の粒子に対しては他に直接測定する方法があり、イオンを使つての測定はこの範囲が限度であると考えられる。

もしこのフィルタが粒径 0.3μ で99%の効率をもつとするならば、Fig. 7の効率曲線は点線のように結ぶのが妥当であると思われる。

本実験の結果、効率の最小値は易動度で $3 \times 10^{-4}\text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{sec}$ (粒子半径約 $5 \times 10^{-8}\text{cm}$)のところにある。これは従来、予想されていた効率の曲線⁽⁹⁾(Fig. 8中鎖線で示されている曲線)にはほぼ一致する結果が得られた。

Fig. 8 Comparison with the collecting efficiency to the Jacobi's assumption value

IV. 結 論

フィルタのサブミクロン粒子に対する捕集効率を求める1つの手段としてイオンの易動度分布を利用する方法について説明してきた。

本測定法の特徴とするところは、フィルタの捕集効率を求めるのに空気中にある自然のエ어로ゾル粒子を試験粉体として使用した点にある。その理由は粒径 0.3μ くらい以上の粒子の大部分を占める、いわゆる塵埃は物質が力学的な力により分裂または散乱によって発生した、いわゆる分裂核であるのに対し、粒径が $10^{-7}\sim 10^{-8}\text{cm}$ のいわゆる Aitken 核の大部分は燃焼または気体反応で発生した蒸気の凝結・昇華によってできた、凝結核であるため、粒子の性状も相違しており、付着の機構も塵埃と異なる場合がある。したがって、

効率を求める場合、なるべく自然に近い状態の空気を試料として用いることが必要である。

この事柄は本研究において一貫して注意を向けたところである。大気中のエアロゾル粒子をそのまま試験粉体として使用したこと、放射線照射により 10^{-6}cm の粒径のエ어로ゾル粒子が変質しないことを種々の方法により実証し、易動度を粒径に換算する場合の補正を省略しうる測定方法を示した。

しかし、本研究で最も主要とするエアロゾル粒子の荷電率の平衡に関しては Fuchs の理論を用いているが、これと相違する理論がないわけではない。この点、さらに検討を要する問題点は残る。しかし、従来、最も測定が困難とされていた 10^{-6}cm の範囲にあるエアロゾル粒子に対する捕集効率を間接的ではあるが実測可能になり、しかも、その測定結果が従来予想されていた捕集効率とはほぼ一致する結果となったことは、本測定法がある程度の精度をもち、一步の前進であると思う。

本報の結びに当り、研究のご指導、ご助言を頂いた名古屋大学教授川野 実博士、気象研究所技官三崎方郎博士に深甚の謝意を表わす次第である。

測定、データ整理などは東京理科大学関川研究室の助手・研究生諸君の労に負うところ多大である。

— 参 考 文 献 —

- (1) 大気汚染研究全国協議会第5委員会編: “除塵埃装置ハンドブック”, (1958), コロナ社.
- (2) *Ann. Rept. Minist. Educ.* 1965: Radiation Effect-Coop. Res.
- (3) JUNGE, C.E.: *Ber. Deut. Wetterd. U.S. Zone*, Nr. 35, 261 (1952).
- (4) MISAKI, M.: *Pap. Meteorol. Geophys. Tokyo*, **12**, 247, 261 (1966).
- (5) FLANAGAN, V.P.U., O'CONNER, T.C.: *Geofis. Pur. Appl.*, **51**, 148 (1962).
- (6) POLLAK, L.W., METNIEKS, A.L.: *ibid.*, **51**, 225 (1962).
- (7) 三崎方郎: 気象研究ノート, **16**[3], 395 (1966).
- (8) RUSKIN, R.E.: “*Humidity and Moisture*”, (1966), Reinhold.
- (9) JACOBI, W., SCHRAUB, A., AURAND, K., MUTH, H.: *Beitr. Z. Phys. Atm.*, **31**, 244 (1959).
- (10) DAVIES, C.N.: “*Aerosol Science*”, (1966) Academic Press.
- (11) 関川俊男・藤原 紘: 本誌, **10**[10], 554 (1968).