技術論文

改良型放射性エアロゾルサンプリング用セルロース・ ガラス繊維濾紙の特性

木内伸幸^{*1,*}, 小野寺淳一^{*1}, 吉野敏明^{*1}, 村田幹生^{*2}, 山崎敏克^{*3}

(1994 年 6 月 14 日受理)

(1995 年 7 月 11 日再受理)

Performance of Improved Cellulose-glass Fiber Filter Paper for Radioactive Aerosol Sampling

Nobuyuki KINOUCHI,^{*1,*} Junichi ONODERA,^{*1} Toshiaki YOSHINO,^{*1}
Mikio MURATA^{*2} and Toshikatsu YAMAZAKI^{*3}

A new cellulose-glass fiber filter paper (HE-40TA) was produced on a trial basis to improve the collection efficiency of Toyo HE-40T filter paper, which is widely used for sampling of radioactive aerosols at nuclear facilities in Japan. HE-40TA filter paper was tested for collection efficiency, pressure drop and mechanical strength.

It was observed that the collection efficiency of HE-40TA was more than 87%, under the conditions of this study: the face velocity from 20 to 130 cm/s, the size of DOP aerosol from 0.07 to 1.0 μm in diameter. The pressure drop of HE-40TA filter paper was about 1.2 times higher than that of HE-40T. And the mechanical strength of HE-40TA filter paper was sufficient for practical use.

KEY WORDS: cellulose-glass fiber filter, collection efficiency, pressure drop, mechanical strength

I はじめに

代表的な放射性エアロゾルサンプリング用濾紙である HE-40T 濾紙(東洋濾紙製)は, その捕集効率, 圧力損失あるいは機械的強度等に優れており¹⁾, 20 年近く原子力関連事業所の空气中放射性物質濃度測定に使用されてきた。しかし, エアロゾル計測技術の向上により, 粒子径 0.1 μm 以下での捕集効率が必ずしも十分でないことが指摘された²⁾。このため, サブミクロン領域での捕集効率を向上させる目的で, HE-40T 濾紙をベースにして, 新たに改良型の濾紙(以下, この濾紙を HE-40TA 濾紙と呼ぶ)が東洋濾紙(株)において試作された。

本報告は, HE-40TA 濾紙のエアロゾル捕集効率, 圧力損失および機械的強度を実用の観点から調べた結果を従来の HE-40T 濾紙と比較してまとめたものである。

^{*1} 日本原子力研究所保健物理部; 茨城県那珂郡東海村 (〒319-11)

Department of Health Physics, Japan Atomic Energy Research Institute; Tokai-mura, Nakagun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

^{*2} 日本原子力研究所燃料サイクル安全工学部; 茨城県那珂郡東海村 (〒319-11)

Department of Fuel Cycle Safety Research, Japan Atomic Energy Research Institute; Tokai-mura, Nakagun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

^{*3} 東洋濾紙(株)宇都宮工場; 栃木県宇都宮市泉町 (〒320)

Utsunomiya Plant, Toyo Roshi Kaisha, Ltd.; Izumi-cho, Utsunomiya-shi, Tochigi-ken 320, Japan.

* 現在: 日本原子力研究所安全管理室; 東京都千代田区内幸町 2-2-2 (〒100)

Present Address: Office of Safety and Control, Japan Atomic Energy Research Institute; 2-2-2 Uchisaiwai-cho, Chiyoda-ku, Tokyo 100, Japan.

Table 1 Physical parameters of HE-40T and HE-40TA type filter papers.

Filter type		HE-40T (ref.1)	HE-40T	HE-40TA
Fiber material				
Glass	diameter	0.3 μm	0.8 μm	0.6 μm
	content	20%	20%	30%
Cellulose	diameter	20-30 μm	20-25 μm	20-25 μm
	content	80%	80%	70%
Thickness		0.4 mm	0.41 mm	0.40 mm
Weight		145 g/m ²	145 g/m ²	120 g/m ²
Tensile strength		2 kg/15 mm	4.5 kg/15 mm	3.0 kg/15 mm
Air permeability		14 s/cm ϕ	12 s/cm ϕ	19 s/cm ϕ
Max. working temperature		130°C	130°C	130°C

Fig. 1 Schematic diagram of filter testing system.

II 濾紙の組成と物理特性

Table 1 に 1976 年当時および現在市販されている HE-40T 濾紙ならびに HE-40TA 濾紙の組成と代表的な物理特性値を示す。HE-40TA 濾紙の成分は、HE-40T 濾紙と同様にセルロースとガラス繊維から構成されているが、捕集効率を改善するため、ガラス繊維含有率は 20% から 30% に増加している。HE-40T 濾紙および HE-40TA 濾紙は、それぞれ少量のアクリル酸エステル、メラミン+シリコン樹脂を用いて浸漬加工による撥水処理がなされている。また、両濾紙とも、機械的強度を増すために、寒冷紗によって裏打ちされている。

III 試験方法

濾紙を実際に使用する上で重要な 3 項目、①エアロゾル粒子径と捕集効率の関係、②面速度と圧力損失の関係、および③実用的な強度について試験を実施した。以下にその試験方法を述べる。

1. 捕集効率の測定

Fig. 1 に捕集効率測定装置の概略図を示す。エアロゾル発生器により発生した試験エアロゾルは、希釈空気とともにチェンバ内 (2.1 m³) に連続供給される。ポンプを用いてこのチェンバ内エアロゾルを試験濾紙を通して吸引し、試験濾紙の上流および下流のエアロゾル濃度測定から、以下の式により透過率および捕集効率を計算

した。

$$\text{透過率} = \frac{C_o}{C_i} \quad (1)$$

$$\text{捕集効率 (\%)} = \left(1 - \frac{C_o}{C_i}\right) \times 100 \quad (2)$$

ここで、 C_i は上流側エアロゾル個数濃度、 C_o は下流側エアロゾル個数濃度である。

試験エアロゾルとして、DOP 粒子あるいは NaCl 粒子を用いた。エアロゾル濃度の測定には、DOP 粒子に対してはレーザー・エアロゾルスpektロメータ (PMS 社製: $\mu\text{LPS-32}$) を、NaCl 粒子に対しては静電式エアロゾル粒径分析器 (TSI 社製: MODEL 3030) を用いた。エアロゾル粒子径の測定範囲は、レーザースpektロメータの場合は $0.065 \sim 1.0 \mu\text{m}$ 、静電式エアロゾル粒径分析器の場合は $0.0032 \sim 1.0 \mu\text{m}$ であるが、装置の安定性、試験エアロゾルの粒径分布による制約等の理由により、透過率測定に利用した測定範囲は、レーザースpektロメータは $0.07 \sim 1.0 \mu\text{m}$ 、静電式エアロゾル粒径分析器は $0.0237 \sim 0.237 \mu\text{m}$ である。透過率等のプロットには、各チャンネルの幾何平均径を用いた。エアロゾルの発生は次の方法によって行った。シリンジポンプを用いてアトマイザ (TSI 社製: MODEL 3076) に供給した DOP 液体あるいは NaCl 水溶液を加圧噴霧し、希釈空気と混合することによってエアロゾルを発生させた。DOP 粒子の幾何平均径は $0.22 \mu\text{m}$ 、幾何標準偏差は 1.7、測定範囲内での個数濃度は、 $3 \sim 4 \times 10^3 \text{ particles/cm}^3$ 、NaCl 粒子の幾何平均径は $0.035 \mu\text{m}$ 、幾何標準偏差は 2.0、測定範囲内での個数濃度は、 $1 \sim 1.5 \times 10^6 \text{ particles/cm}^3$ であった。

試験用濾紙の直径は 60 mm で、内径 30 mm または 40 mm のオリフィスにより、濾過面積を制限した。捕集効率は、DOP 粒子の場合、面速度 20 cm/s から 130 cm/s の間で、NaCl 粒子の場合、面速度 20 cm/s から 70 cm/s の間で測定した。

2. 圧力損失の測定

Fig. 1 に示すように、水銀マンノメータの両端を試験ホルダの上流と下流に接続し、その差圧 (圧力損失) を測定した。圧力損失は、両速度 25 cm/s から 135 cm/s の間で測定した。

3. 実施施設での実用的強度試験

HE-40TA 濾紙を原研の実際の施設スタックの排気サンプリングおよび環境モニタリング設備のダストサンプリングに使用し、濾紙の変化を観察して、その実用性を検討した。

Fig. 2 DOP aerosol penetration curves for HE-40T filters.

Fig. 3 DOP aerosol penetration curves for HE-40TA filters.

IV 試験結果と考察

1. 試験濾紙の捕集効率特性

(1) DOP 粒子による測定結果

HE-40T 濾紙および HE-40TA 濾紙の各面速度における透過率曲線をそれぞれ Fig. 2 と Fig. 3 に示す。図

Fig. 4 DOP aerosol penetration curves for HE-40T and HE-40TA filters as a function of face velocity.

中にプロットされた各点の値は、HE-40TA 濾紙は3種類の製品ロットから各1枚、合計3枚の平均値で、HE-40T 濾紙は2種類の製品ロットから各1枚、合計2枚の平均値で示されている。各濾紙ごとの測定値のばらつきは、ほぼ平均値の25%以内であった。

両濾紙とも、今回の試験条件範囲において、粒子径 $0.1 \mu\text{m}$ 付近までは粒子径が小さくなるにつれて透過率は急激に増加した。粒径 $0.07 \mu\text{m}$ より小さい範囲のデータがないため明確をことはいえないが、 $0.07 \mu\text{m}$ 前後で最大値に到達する傾向がみられた。また、両濾紙ともよく似た透過率曲線の形を有しているが、HE-40TA 濾紙のほうが、粒子径の増大に伴う透過率の減少割合が大きい。HE-40T 濾紙では、粒子径 $0.07 \mu\text{m}$ における捕集効率は、試験面速度の範囲において、43~57%であるのに対し、HE-40TA 濾紙は、87~92%と高い捕集効率であった。

Fig. 4 に、HE-40T 濾紙と HE-40TA 濾紙の各粒径における透過率の面速度依存性を示す。両濾紙とも、粒子径 $0.2 \mu\text{m}$ より大きい範囲では、面速度の上昇とともに透過率は減少すること、一方、粒子径 0.07 から $0.1 \mu\text{m}$ の範囲では、面速度の影響が小さく、また面速度 $40 \sim 70 \text{ cm/s}$ 付近において、最も透過率が大きくなる面速度が存在していることがわかった。

Fig. 5 NaCl aerosol penetration curves for HE-40T filters.

Fig. 6 NaCl aerosol penetration curves for HE-40TA filters.

(2) NaCl 粒子による測定結果

透過率が最大であると推定される粒子径 $0.07 \mu\text{m}$ 前後の透過率曲線の形がレーザースペクトロメータによる測定では不明確であった。そこで、粒子径 $0.07 \mu\text{m}$ 前後の両濾紙の透過率を NaCl 粒子と静電式エアロゾル粒

径分析器を用いて測定した。HE-40T 濾紙および HE-40TA 濾紙の各面速度における透過率曲線をそれぞれ Fig. 5 と Fig. 6 に示す。図中にプロットされた各点の値は、両濾紙とも 3 種類の製品ロットから各 1 枚、合計 3 枚の平均値で示されている。各濾紙毎の測定値のばらつきは、ほぼ平均値の 30% 以内であった。

どちらの場合も、面速度 20~70 cm/s の試験条件範囲において、透過率のピークが見られた。HE-40T 濾紙では、最大透過率は、 $0.075\ \mu\text{m}$ 付近で約 0.3 (面速度 40~60 cm/s) であった。小泉ら²⁾ は、NaCl 粒子を用いて HE-40T 濾紙の捕集効率特性を面速度 1.06~105 cm/s の範囲で調べ、透過率は、面速度 58.9 cm/s のとき、粒子径 $0.075\ \mu\text{m}$ で最も高い 0.35 であったことを報告しており、今回の測定結果はこれとほぼ一致した。一方、HE-40TA 濾紙では、 $0.075\ \mu\text{m}$ 付近で透過率は約 0.07 (面速度 40~60 cm/s)、捕集効率では約 93% となった。なお、上述のレーザースペクトロメータによる測定結果と比べてこれらの捕集効率は大きめの値であるが、これは試験エアロゾル形状、密度等が異なることおよび測定機器の違い等によるものと考えられる。

Fig. 7 に、HE-40T 濾紙と HE-40TA 濾紙の各粒子径における透過率の面速度依存性を示す。HE-40TA 濾紙の場合、粒子径 $0.133\ \mu\text{m}$ および $0.237\ \mu\text{m}$ では、面速度の上昇に伴い透過率が減少している。しかし、粒子径 $0.075\ \mu\text{m}$ 以下では、面速度の上昇に伴い透過率は増加している。

(3) 考察

以上の結果から、従来の HE-40T 濾紙に比べて、HE-40TA 濾紙の粒子径 $0.1\ \mu\text{m}$ 以下での捕集効率はかなり改善されていること、および HE-40TA 濾紙においても $0.07\ \mu\text{m}$ 付近を境にして粒子径が小さくなるにつれて再び透過率は減少することがわかった。

村田ら¹⁾ は、HE-40T の捕集効率特性を $0.09\sim0.80\ \mu\text{m}$ の単分散ポリスチレンラテックス (PSL) 粒子を用いて面速度 55~135 cm/s で測定しており、 $0.09\ \mu\text{m}$ および $0.31\ \mu\text{m}$ については、今回の捕集効率の測定結果および小泉ら²⁾ の測定結果と大きく異なる。測定結果の相違の原因としては、Table 1 に示したように、1976 年当時村田らが用いた HE-40T と現在市販されている HE-40T では、ガラス繊維およびセルロース繊維の直径が異なることから、フィルタの捕集性能が変化している可能性がある。また、小泉ら²⁾ は原因として、測定器の差異、試験粒子の電荷の影響を指摘している。

ところで、HE-40T 濾紙の最大透過率が 50% 前後であることから、HE-40T 濾紙を用いて空气中放射性物質

Fig. 7 NaCl aerosol penetration curves for HE-40T and HE-40TA filters as a function of face velocity.

濃度測定を行う場合、サブミクロン領域の塵埃が多い場合には、濾紙の捕集効率を考慮して測定結果を評価する必要がある。このため、HE-40T 濾紙を用いて多分散の塵埃を捕集した場合の捕集割合を測定結果に基づき計算した。Fig. 2 および Fig. 3 に示したように、兩対数でプロットした透過率は、ほぼ、放物線となることから、これを 2 次関数で近似するとともに、塵埃の粒径分布については、対数正規分布を仮定した。この透過率の近似関数と粒径分布関数の積を粒子径範囲について数値積分することにより濾紙に捕集される塵埃の割合を評価した。この結果、幾何平均径 $0.3\ \mu\text{m}$ 以上の塵埃に対しては幾何標準偏差によらず、ほぼ 80% 以上の捕集割合が得られることが分かった。

2. 圧力損失

HE-40T 濾紙および HE-40TA 濾紙の 3 種類の製品ロットにつき各 3 枚、それぞれ合計 9 枚について測定した面速度と圧力損失との関係を Fig. 8 に示す。圧力損失は、面速度の増加に伴って兩対数グラフ上で直線的に上昇している。HE-40TA 濾紙の圧力損失は、HE-40T 濾紙の圧力損失の平均で 1.2 倍程度であった。

3. 実施設での実用的強度

HE-40TA 濾紙を実際の施設スタックの排気サンプリングおよび環境モニタリング設備のダストサンプリングに使用した。その結果、100~200 l/min (有効径 50 mm

Fig. 8 Relationship of pressure drop to face velocity for HE-40T and HE-40TA filters.

ϕ で、面速度 85~170 cm/s) の条件で連続 168 時間のサンプリングを行ったところでは、濾紙は健全であることが確認できた。また、移動濾紙式サンプラーの濾紙の巻取り等に伴う機械的負荷に対しても、HE-40TA 濾紙は十分な強度を有していることが確認された。また、繊維の剝離等による捕集塵埃の脱落もなく放射能測定上の問題もなかった。さらに、エアロゾルの質量濃度が高く

なる作業環境モニタリングに利用した場合においても、HE-40T 濾紙と比較して短いサンプリング時間での目詰まり、サンプリング流量の低下という問題は生じなかった。

V ま と め

HE-40TA 濾紙の捕集効率、圧力損失および実施設での実用的強度試験によって次のことが明らかになった。

- 1) 捕集効率は、従来の HE-40T 濾紙に比べてかなりの向上がみられた。DOP 粒子に対してレーザースペクトロメータで計測した場合、粒子径 $0.07 \sim 1.0 \mu\text{m}$ 、面速度 $20 \sim 130 \text{ cm/s}$ の試験条件範囲において、87% 以上 (HE-40T 濾紙では、43% 以上) の効率を有していた。
- 2) 圧力損失は、HE-40T 濾紙に比べて平均で 1.2 倍程度であった。
- 3) 実施設のサンプリングに使用した結果、濾紙には何らの変化も観測されず、機械的強度は実用上十分であることがわかった。

参 考 文 献

- 1) 村田幹生, 秋山 勇, 浅野善江, 池沢芳夫, 吉田 芳和, 松本昌志; 保健物理, **11**, 207 (1976).
- 2) 小泉 彰, 山田裕司, 宮本勝宏; 保健物理, **24**, 123 (1989).