個人サンプラー NWPS-254に用いるフッ素樹脂処理ガラス繊維 フィルターの粒子捕集効率

山 田 丸^{*1}, 鷹 屋 光 俊^{*1}

個人サンプラー NWPS-254 (柴田科学) で粉じんを捕集する際の、フッ素樹脂処理ガラス繊維フィルター 4 種類 (T60 A20, TF98, TX40 HI20 WW, PG60) の粒子捕集効率を評価した。実験では、エアロゾル発生部、フィルター (NWPS-254 にセットし 2.5 L/min でエアロゾルを通気)、および測定装置からなり、それぞれを導電性チューブで繋いだ評価システムを用いた。粒子捕集効率は、静電分級器で分級した塩化カリウムエアロゾル (30~500 nm の単分散 10 粒径) を用い、フィルター通過前後の粒子数濃度を凝縮核カウンターで測定することで求めた。その結果、いずれのフィルターも粒径 100 nm において捕集効率が最も低く T60 A20 が 87.0%, TF98 が 91.9%, TX40 HI20 WW が 99.6%, PG60 が 99.7% であった。一方、作業環境測定基準の、300 nm の粒子を 95% 以上捕集する性能を有するものに限定するという基準はすべてのフィルターで満たしていた。

キーワード: PTFE 処理ガラス繊維フィルター, 個人サンプラー, サブミクロンエアロゾル, 捕集効率

1 はじめに

有害物質による健康被害を防ぐためのばく露対策は、作業中のばく露の程度を正確に評価したうえで実施することが肝要である。我が国で実施されている作業環境測定ではサンプラーあるいは簡易計測装置 (例えば、粉じん計) を作業場に固定して測定を行う「場の測定」が基準となる。一方で、諸外国では、作業者の呼吸域にサンプラー等を取り付けて測定を行う「個人ばく露測定」が一般的であり¹⁻³⁾、この測定に用いるサンプラーを「個人サンプラー」という。

個人サンプラーは、海外では一般的な測定装置として用いられているが、我が国では法令等の事情もあり、現段階においては広く普及はしていない。しかし、平成 28 年 6 月 1 日に施行された化学物質のリスクアセスメントの義務化に、また厚生労働省「個人サンプラーを活用した作業環境管理のための専門家検討会」(平成 29~30 年開催)⁴⁾ においては作業環境測定への個人サンプラー導入が議論される等の背景により、今後、個人サンプラーの利用機会の増加が見込まれる。さらに、有害物質のばく露が原因と考えられる疾病の原因調査においては、原因物質の特定、原因物質のばく露濃度、高濃度作業の特定のために著者らはしばしば個人サンプラーを使用している⁵⁾。

粉じん質量濃度の一般的な測定方法であるろ過捕集法に用いるろ過材としては、湿度の秤量への影響が少なく、圧力損失が小さい「フッ素樹脂処理ガラス繊維フィルター (以下、PTFE 処理フィルターとする)」が推奨される。作業環境測定ガイドブック⁶⁾ においては PTFE 処理フィルターの一例として「T60 A20 (Pall)」の低吸湿、低圧損のデータが示されていたことから、作業環境測定にお

いては、事実上のスタンダードとして使用されてきた。しかし、T60 A20 が製造中止となり、それに代わる数種類のフィルターが代替品として提案されている。なお、T60 A20 製造中止後に改訂出版された前述のガイドブック第 6 版 (2018) では T60 A20 の記載が削除されている。

作業環境測定の際のろ過捕集法で用いるフィルターは、作業環境測定基準第一条五に記載されている 300 nm の粒子を 95% 以上捕集する性能を有するものに限定、という条件を満たす必要がある。このことから、フィルターメーカーは 300 nm の粒子に対する捕集効率を公表している。しかし 300 nm 前後の捕集効率のデータは公表されておらず、フィルターの選択や正確なばく露評価の観点から、最も捕集されにくい 300 nm 前後の粒子の捕集効率も把握する必要があると考える。

本研究では、個人サンプラーによる粉じん濃度測定を想定し、吸入性粉じん用個人サンプラー NWPS-254 (柴田科学) を用いた際の PTFE 処理フィルターの捕集効率と圧力損失を評価することを目的とする。また、粒径 30~500 nm の粒子に対するフィルターの特性把握に着目し、粒径毎に捕集効率を示す。評価したフィルターは、国内で購入可能な 3 種類のフィルターと現在製造中止となっているがこれまでの事実上のスタンダードであった T60 A20 であり、個人サンプラーによる粉じん濃度測定におけるフィルター選択の一助となると考える。

2 実験

1) フィルター

本研究では 4 種類の PTFE 処理フィルター、T60 A20 (Pall, 製造中止)、TX40 HI20 WW (Pall)、TF98 (柴田科学)、PG60 (アドバンテック東洋) を評価した。なお、TX40 HI20 WW と PG60 は長く販売されているフィルターであり、主に大気環境の分野におけるエアロゾル捕集材として使用されている^{7,8)}。表 1 は各フィルターの吸湿性、厚さ、重量、捕集効率、圧力損失に関してメーカー公表資料の値をまとめて一覧にしたものである。単位が異なるものもあるが、公表資料の値をそのままに示

原稿受付 2019 年 1 月 18 日 (Received date: January 18, 2019)

原稿受理 2019 年 5 月 21 日 (Accepted date: May 21, 2019)

J-STAGE Advance published date: June 25, 2019

^{*1} 労働安全衛生総合研究所作業環境研究グループ

連絡先: 〒214-8585 神奈川県川崎市多摩区長尾 6-21-1

労働安全衛生総合研究所作業環境研究グループ 山田 丸

E-mail: yamadam@h.jniosh.johas.go.jp

doi: 10.2486/josh.JOSH-2019-0007-TA

表1 フィルターの標準性能（メーカー公表資料に基づく）
および評価に用いたフィルターのロット

	T60 A20	TF98	TX40 HI20 WW	PG60
吸湿性 ^{*1}	0.04 mg	0.04 mg	0.03 mg	0.11 mg
厚さ	203 μm	0.12 ± 0.02 mm	178 μm	0.15 mm
重量	3.4 mg/cm ²	(4.1 mg/cm ²) ^{*2}	5.0 mg/cm ²	6.0 mg/cm ²
捕集効率	96.4% ^{*3}	97.5% ^{*3}	99.9% ^{*3}	99.95% ^{*4}
圧力損失 ^{*5}	—	0.15 kPa	—	0.44 kPa
ロット	T9153 A	73	T16036 DW	50516702
番号	T14940 A	81	T16334 FW	80406701
	T14942 A	87	T16334 EW	90204704

*1: JIS K0901の湿度90%雰囲気内で24時間後の吸湿量をφ47 mmフィルターで測定。ただしPG60は実測に基づく参考値。

*2: 本研究における実測値。

*3: ASTM D2986-95 A; 300 nm DOP, 32 LPM/100 cm² (面速5.3 cm/s)

*4: 300 nm DOP, 面速5 cm/s

*5: 面速5 cm/s

す。吸湿性に関しては、JIS K0901に従って湿度90%雰囲気内で24時間後の吸湿量を直径47 mmのフィルターで測定した値である。粒子捕集効率は、300 nmのDOP (dioctyl phthalate) エアロゾルを面速約5 cm/secで通気した際の結果である。

2) 評価試験

図1にフィルターの粒子捕集効率評価システムの概略を示す。本システムは、エアロゾル発生部、サンプラー (NWPS-254)、および測定装置からなる。配管には導電性シリコンチューブおよび金属製のコネクタを用い、可能な限り静電気の影響を抑制した。サンプラーには直径25 mmのフィルターをセットし、既定値の2.5 L/min (面速約13 cm/sec) で試料空気を吸引した。試験はサンプラーに衝突版を装着した状態で実施した。評価試験に用いたエアロゾル粒子は、アトマイザー (Model 3079, TSI Inc.) により発生した塩化カリウム (KCl) 液滴をディフュージョンドライヤーで乾燥させ固体粒子にした後、静電分級器 (DMA; Model 3080, TSI Inc.) によって分級した単分散粒子である。試験では、電気移動度径30, 50, 70, 100, 150, 200, 250, 300, 400, 500 nmの単分散KCl粒子を使用し、エアロゾル濃度は分級粒径によって異なるが500~1500個/cm³の範囲内で実施した。フィルター通過前と後の粒子濃度を比較するため配管に設置した三方コックで流路を切り替えてそれぞれの濃度を測定した。フィルターの粒子捕集効率は、フィルター通過前後の試料空気中の粒子数濃度を凝縮粒子カウンター (CPC; Model 3776, TSI Inc.) で測定し、その濃度比から評価した。各粒径に対する粒子捕集効率 (部分捕集効率) は、

$$E = 1 - (N_{out}/N_{in}) \quad (1)$$

で求めた。ここで、Eは各粒径粒子に対しての粒子捕集効率、 N_{out} と N_{in} はそれぞれフィルター前方と後方で測定した粒子数濃度 (粒子数/cm³) である。また、粒子の透過率Pは、

$$P = 1 - E \quad (2)$$

図1 実験システム

で表される。

なお、フィルター通過前後の粒子数濃度は各粒径で5回繰り返し測定を行い、さらにフィルターのロット間のばらつきを確認するために、異なるロットの製品から無作為に一枚抜き取ってN=3の測定を行った。

フィルターによる圧力損失は、サンプラーのインレットおよびアウトレットの配管部に接続したデジタル差圧計 (Testo 510) によりモニタリングした。

3 結果と考察

フィルターの捕集効率評価に先立ち、フィルターを装着しない状態、ただし捕集板は装着した状態でサンプラー通過前後の粒子数濃度を測定し、エアロゾルがサンプラーを通過する際のサンプラー内部での粒子損失率を評価した。粒子損失率は式(1)に従って計算した。図2は、各粒径におけるサンプラー内での粒子損失率を示す。粒径30 nmの粒子で10%、50 nmで5%程度がサンプラー自身によって捕獲された。これは、粒径が小さくなるにつれてブラウン拡散の影響が顕著になり、サンプラー内部の壁面や衝突板に衝突し付着する確率が高まるためと考えられる。粒径70~150 nmでは平均数%、200 nm以上ではサンプラーによる粒子損失は無視できることが確認された。

図3は各フィルターをサンプラーに装着して捕集効率を評価した結果である。現在市販されているPTFE処理フィルターは、T60 A20よりも捕集効率が高く、特にTX40 HI20 WWとPG60の捕集効率はいずれの粒径においても高い捕集効率を示した。粒径を詳しく見ると、いずれのフィルターも粒径100 nmにおいて捕集効率が最も低くT60 A20が87.0%、TF98が91.9%、TX40 HI20 WWが99.6%、PG60が99.7%であった。一方で、作業環境測定基準に定められている、300 nmで95%以上でなければならないという基準は、表1の公表値よりも面速が速い条件であるにもかかわらず、すべてのフィルターで満たしていた (図3)。各種フィルターのロット間のばらつきを調べたところ、変動計数 (CV) が最大値を示したのは、粒径100, 150 nmにおけるT60 A20の約1.3%であった。捕集効率が高い領域ではばらつきがほとんど見られなかった。

実験の結果、作業環境測定においてはいずれのフィルターを使用しても適切であることが示された。一方、粒径100 nm付近に高濃度をもつ粒子を測定する場合、T60 A20およびTF98では捕集開始直後の粉じん堆積がない状態において、捕集効率が95%未満となる可能性

図2 NWPS-254通過時の粒子損失率
エラーバーはN=5による標準偏差を示す。

図3 各フィルターの粒子捕集効率
捕集効率E=1を実線で示す。破線で囲った部分は作業環境測定基準の300 nmで95%以上の基準である。エラーバーはロット間の違いによるバラツキ (N=3の標準偏差) を示す。

が示された。ここで各フィルターの圧力損失の測定値をみると、T60 A20が 0.48 ± 0.02 kPaと最も低く、TF98が 0.56 ± 0.03 kPa、TX40 HI20 WWが 1.34 ± 0.13 kPa、PG60が 1.41 ± 0.05 kPaであった。ここで、各フィルターの捕集効率（あるいは粒子透過率）と圧力損失の関係を詳しく調べるため、100 nmと300 nmの粒子に対する全フィルターの粒子透過率P（式（2）による）と圧力損失 Δp の関係を散布図で示す（図4）。圧力損失が高いフィルターほど粒子透過率が低くなる負の相関が見られた。フィルターをセットしていない状態、すなわち圧力損失のない時（ $\Delta p=0$ kPa）の透過率を1として回帰分析を行い、 Δp とPの間に指数関数的な直性関係を得た（図4）。フィルターの性能を客観的に示す指標として用いられるQuality Factor（ Q_f 値）¹⁰⁾は、

$$Q_f = \ln(1/P) / \Delta p = \ln E / \Delta p \quad (3)$$

で表され、

$$P = \exp(-Q_f \Delta p) \quad (4)$$

と変形できる。したがって、図3で示された粒径100 nmと300 nmに対しての Q_f 値はそれぞれおおむね 4.23 kPa^{-1} と 5.97 kPa^{-1} であり、本研究で評価したフィルター

図4 各フィルターの粒子透過率と圧力損失の関係。
粒径300 nmと100 nmでの測定値に対する回帰分析の結果P300とP100をそれぞれ実線と破線で示す。

のクオリティー、すなわち圧力損失に対しての粒子捕集率は評価したフィルター間で大きな違いはないことが明らかになった。

本研究では、粉じん堆積がない状態での捕集効率を評価しているが、フィルターに粉じんが堆積するとフィルターの空隙率が低くなり、それにより捕集効率が高まる。例えば、Kittelsonら⁷⁾は、T60 A20に粒子が捕集され繊維上に堆積すると急速にフィルター捕集効率が高まることを確認し、初期の粒子透過率が高くても、測定への影響が小さくなることを示した。TF98はT60 A20に次いで圧力損失が低く、また捕集効率も低かった。TF98も粉じんの負荷量が増えるに従って捕集効率が高まると考えられるが、粉じん負荷に伴う圧力損失および捕集効率の変化を詳細に把握するためにはさらなる実験が必要である。

フィルターの圧力損失はポンプの選択において重要な情報となる。圧力損失はT60 A20が最も低く、圧力損失の高いTX40 HI20 WWとPG60とは約3倍の開きがあるが、現行の個人サンプラー用ポンプでは問題なく使用できる値であった。ただし高濃度の粉じん環境で長時間サンプリングを実施する場合はフィルターの目詰まりの影響により圧力損失が高くなると考えられる。したがって、そのような環境においては単純に捕集効率の高低によるだけでなく、フィルター捕集時の目詰まりの起こりにくさも選択の指標として考慮すべきである。

T60 A20から他の3種類のPTFE処理フィルターに変更しても、NWPS-254を使用して粉じん濃度を測定する場合には、濃度の過小評価にはつながらないことが示唆された。しかし、異なるサンプラーで測定を行う場合、粒子捕集時の面速が異なってくるため、粒子とフィルター繊維間での拡散、衝突、さえぎりの影響による捕集効率が変わり、図2に示した捕集効率および効率曲線が異なることを留意する必要がある。

4 まとめ

粉じんの濃度を正確に評価するための要素の一つとしてフィルターの捕集効率を把握することは必須である。

また、我が国において個人サンプラーを用いて測定を実施する機会が増えてきた。そのため本研究では、粉じん濃度を測定する際のろ過材として推奨されている PTFE 処理フィルターに関して、国内で購入可能な3種類および現在は製造中止となっているがこれまでの事実上のスタンダードであった T60 A20 について吸入性粉じん用個人サンプラー NWPS-254 に装着した際の粒子捕集効率を評価した。その結果、いずれのフィルターも個人サンプラーに取り付けて粉じん濃度を測定するのに十分な捕集効率であった。一方で、粒径が 300 nm 以下、特に 100 nm 程度の粒子に対して最大 10% 以上の透過率を持つものがあることが確認された。

本研究では未使用のフィルターを個人サンプラーに取り付けてフィルターの粒子捕集効率評価を実施したが、実際の測定ではフィルターの吸湿影響、粉じんがフィルター上に捕集されることによる圧力損失・捕集効率の変化、フィルターのハンドリング（ピンセットでの取り扱い、フィルターの強度等）等の影響も重要な要因であることも考慮する必要がある。

文 献

- 1) Leidel, N.A., Busch, K.A., Lynch, J.R. Occupational Exposure Sampling Strategy Manual (NIOSH Publication No. 77-173). Washington, D.C.: US Government Printing Office; 1977.
- 2) American Industrial Hygiene Association. A Strategy for Assessing and Managing Occupational Exposure. Bullock WH, Ignacio JS, ed. 3rd ed. Fairfax, VA: AIHA Press; 2006.
- 3) CEN. European Standard EN689:1995. Workplace atmospheres—Guidance for the assessment of exposure by inhalation to chemical agents for comparison with limit values and measurement Strategy. Brussels: Comité Européen de Normalisation; 1995.
- 4) 厚生労働省労働基準局安全衛生部. 個人サンプラーを活用した作業環境管理のための専門家検討会報告書. 平成30年11月6日. 2018. [<https://www.mhlw.go.jp/content/11305000/000378671.pdf>]
- 5) 労働安全衛生総合研究所. 災害調査報告書「福井県内の化学工場で発生した膀胱がんに関する災害調査」A-2015-07 (一般公開版). 2016. [https://www.jniosh.johas.go.jp/publication/pdf/saigai_houkoku_2016_01.pdf]
- 6) 日本作業環境測定協会編. 作業環境測定ガイドブック1 鉱物性粉じん・石綿 (第5版). 2014: 32-33.
- 7) Kittelson, D.B., Moon, K.C., Liu, B.Y.H. Filtration of diesel particles, Sci. Total Environ. 1984; 36: 153-158.
- 8) 功刀正行, 土器屋由紀子. 大気中の微量ガスおよび粒子状物質の分析. ふんせき. 1990; 1: 40-50.
- 9) Hinds, W.C. Aerosol Technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles, 2nd ed. New York, NY: Wiley-Interscience; 1999: 182-205.

Collection efficiencies of PTFE-coated glass fiber filters used for NWPS-254 personal dust sampler

by

Maromu YAMADA^{*1} and Mitsutoshi TAKAYA^{*1}

We evaluated the particle collection efficiencies of four types of polytetrafluoroethylene (PTFE)-coated glass fiber filters. The efficiencies were tested with 10 sizes of monodispersed aerosols from 30 to 500 nm. The efficiencies corresponding to each particle size were obtained by measuring particle number concentrations upward and downward of the filter set in the NWPS-254 sampler. The results showed that each filter satisfied the efficiency of more than 95% for particle size of 300 nm under *the Working Environment Measurement Standards* of Japan. On the other hand, the efficiencies ranged from 87.0% to 99.7% when particle size was approximately 100 nm.

Key Words: PTFE-coated glass fiber filter, Collection efficiency, Submicron aerosols, Personal sampler.

^{*1} Work Environment Research Group, National Institute of Occupational Safety and Health, Japan.