

令和 5 年 6 月 21 日現在

機関番号：13301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2021～2022

課題番号：21K18846

研究課題名（和文）単一繊維ろ過理論の限界を超えたナノファイバエアフィルタの新展開

研究課題名（英文）New development of nanofiber air filter beyond single fiber theory

研究代表者

瀬戸 章文（Seto, Takafumi）

金沢大学・フロンティア工学系・教授

研究者番号：40344155

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,700,000円

研究成果の概要（和文）：ナノファイバを用いたエアフィルタにおいて、粒子種を変えた性能評価の測定値と単一繊維捕集理論による推定値の比較から、粗大粒子に対して付着力の低下によって捕集効率が低下していることがわかった。捕集状態を走査型電子顕微鏡で観察することにより、繊維径が粒子径よりも相対的に小さい値をもつ繊維において、複数の繊維による捕集が優位になることが確認された。また、安定捕集される位置において、粒子が繊維表面で凝集体を形成することがわかった。これらの結果は、従来の理論の限界をナノファイバ表面における微粒子捕集機構を明らかにするものであり、工業的に使用されるエアフィルタの設計指針を与えるものとして意義がある。

研究成果の学術的意義や社会的意義

新型コロナウイルス感染症の出現により、その感染予防手段としてマスクや空気浄化装置等に使用されるエアフィルタへの需要が世界的に急増し、その性能向上が急務となっている。単一繊維捕集（SFC）理論によれば、繊維が微細化すると、さえぎりによる捕集効率が向上するとともに、流体の滑り効果による圧力損失の低減により、フィルタ性能の大幅な向上が予測される。本研究で得られた成果は、「SFC理論の限界」を明らかにして、新たなエアフィルタ理論を構築するものであり、ナノ領域における新たなエアフィルタの設計指針を与えるものである。

研究成果の概要（英文）：In air filters using nanofibers, a comparison of the experimentally measured filtration efficiencies for different particle types and the estimated values based on the single fiber collection theory showed that the collection efficiency was reduced for coarse particles due to a decrease in adhesion force. By observing the collection state with a scanning electron microscope, it was confirmed that collection by multiple fibers is predominant for fibers with a fiber diameter relatively smaller than the particle diameter. It was also found that particles form aggregates on the fiber surface at the position of stable collection. These results clarify the particle collection mechanism on the surface of nanofibers beyond the limits of conventional theory, and are significant because they provide design guidelines for air filters used in industrial applications.

研究分野：化学工学

キーワード：エアフィルタ エアロゾル ナノファイバ 集塵

1. 研究開始当初の背景

新型コロナウイルス感染症 (COVID-19) の出現により、その感染予防手段としてマスクや空気浄化装置等に使用される「エアフィルタ」への需要が世界的に急増し、その性能向上が急務となっている。単一繊維捕集理論 (SFC 理論; Kirsch and Stechkina, 1978) によれば、繊維が微細化すると、さえぎりによる捕集効率が向上するとともに、流体の滑り効果による圧力損失の低減により、フィルタ性能の大幅な向上が予測される。近年のナノメートルオーダーの微細繊維 (ナノファイバ: NF) の製造技術の進歩とともに、そのエアフィルタへの応用研究が進められている。本研究の目的は、繊維径 200nm 以下の NF を含むエアフィルタ (NFAF) における「SFC 理論の限界」を明らかにして、新たなエアフィルタ理論を構築することである。本研究ではその重要な第一歩となる、NF と単一粒子の相互作用を追究する。

2. 研究の目的

図 1 は、我々が独自の湿式抄紙法により作製した繊維径 200nm の NFAF に捕捉された直径 200nm のポリスチレンラテックス (PSL) 粒子の走査型電子顕微鏡像 (SEM 像) である (Omori et al., Aerosol Sci. Tech. 2018)。この写真から我々が発見したことは、粒子は、必ずしも単一繊維 (1 本の繊維) 表面にファンデルワールス力によって固定化されている訳でない、ということである。つまり、多くの粒子は複数の繊維間からなる繊維束 (バンドル) や、交錯点 (クロスポイント) において、安定化された状態で固定化されている。これに加えて、さらに微細な繊維径 200nm 以下の NF の繊維表面では、流体の不連続性が顕在化し、さらに、SFC 理論では考慮されていない様々な捕集機構の発現が期待される。

本研究ではこのような物理現象の解明のために、繊維径 200nm 以下の NFAF 作製技術の確立と単一粒子の挙動・付着確率に着目した実験系の構築ならびに、単一粒子と単一繊維の相互作用に関する分子論的解析を行う。

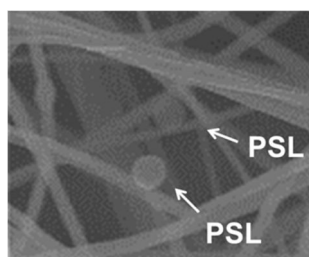


図 1 ナノファイバに捕捉された粒子の SEM 像

3. 研究の方法

エアフィルタの性能は圧力損失 Δp と捕集効率 E によって評価される。圧力損失は繊維充填層内の抵抗より、以下の式で表される。

$$\Delta p^f = F\mu uL$$

ここで F は無次元効力、 μ は流体の粘度、 u はろ過速度、 L はフィルタの単位面積あたりの繊維径を表す。つぎに、エアフィルタの捕集効率は単一繊維捕集理論によってよく説明できることが知られている。図 2 は単一繊維の断面に向けて左側からエアロゾル粒子が流入し、重力、慣性、拡散、さえぎり等の物理現象によって気体流線から逸脱し繊維表面に接触し固定化され、捕集される様子を表している。ここでは、粒子は繊維よりも十分に小さく、十分な付着性を持っていると仮定している。

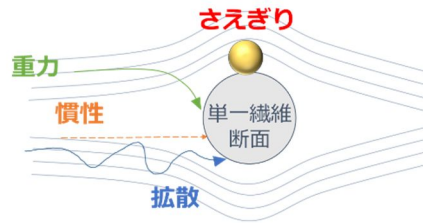


図2 単一繊維まわりの流体の流れと粒子の捕捉

捕集機構としてさえぎりと拡散を考慮すると、以下の式で単一繊維捕集効率 η が求められる。

$$\eta = \eta_R + \eta_D$$

これを以下の対数透過式に代入することで理論捕集効率 E が求められる。

$$\ln P = \ln(1 - E) = -\frac{4\eta\alpha L}{\pi(1 - \alpha)D_f}$$

ここで、 L は繊維層の厚みを表す。

また、実験的にエアフィルタの透過率は、流入粒子個数濃度と流出粒子個数濃度の比で表すことができる。

$$E = 1 - P = 1 - \frac{C_{out}}{C_{in}}$$

本研究では、上式で求められる捕集効率と、理論捕集効率を比較することで、ナノファイバを用いたエアフィルタにおける粒子捕集効率の変化を評価するとともに、さらに電子顕微鏡により、繊維表面での粒子の捕捉状態を直接評価した。

実験系を図3に示す。実験系は大きく分けて、粒子発生部・分級部・測定部の3部から構成している。まず粒子発生部では、定出力アトマイザーで試験粒子を発生させた。今回、透過率の測定を行うための試験粒子は NaCl を用いた。次に分級部では、発生粒子をアメリカウムに荷電中和し、微分型静電分級機 (DMA) にて粒径 30~300nm に分級した後、再びアメリカウムで荷電中和し、任意の粒径をもつ単分散粒子を生成した。最後測定部にて、試験粒子を試験フィルタに 4.0L/min の定量で流入し、試験フィルタ前後での粒子個数濃度と圧力損失を測定した。粒子個数濃度は凝縮粒子計数器 (CPC) で測定し、圧力損失はマノメーターにて測定した。

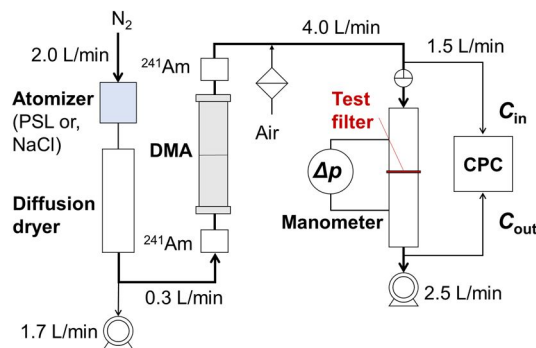


図3 実験経路図

4. 研究成果

本実験では連携企業から提供されたた PTFE ナノファイバを用いた。繊維系は、75 ~ 114nm である。図4に 300nm の PSL を一定時間負荷した後の繊維表面の SEM 像を示す。図より、

ナノファイバーがある程度配向して繊維層を形成しており、繊維表面において微粒子は均一に捕捉されているわけではなく、繊維同士の交差する箇所などに集中して堆積し、凝集体を構成していることが確認された。

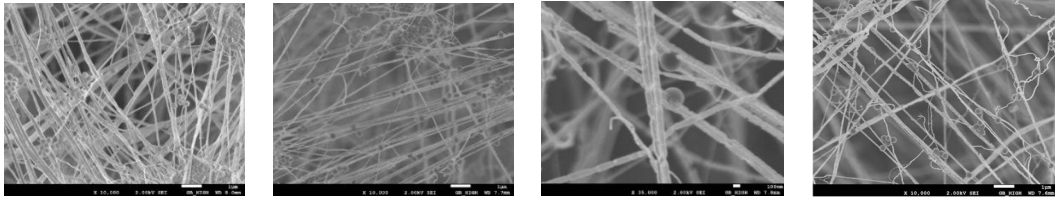


図4 300nmPSL 粒子を負荷後の繊維表面の SEM 像

つぎにエアフィルタ捕集効率の測定結果を図5に示す。色塗りのプロットは NaCl (固体粒子) についての透過率を示しており、白抜きのプロットは PAO (油滴) を用いた結果をそれぞれ示している。圧力損失についてはそれぞれグラフプロットエリア内左上に記載している。また、理論と比較を行うために、ここでは先に述べた単一繊維捕集理論からさえぎり と拡散の捕集機構を考慮し、単一繊維捕集効率を求め対数透過率を算出し理論値として用いた。これを実線で示す。

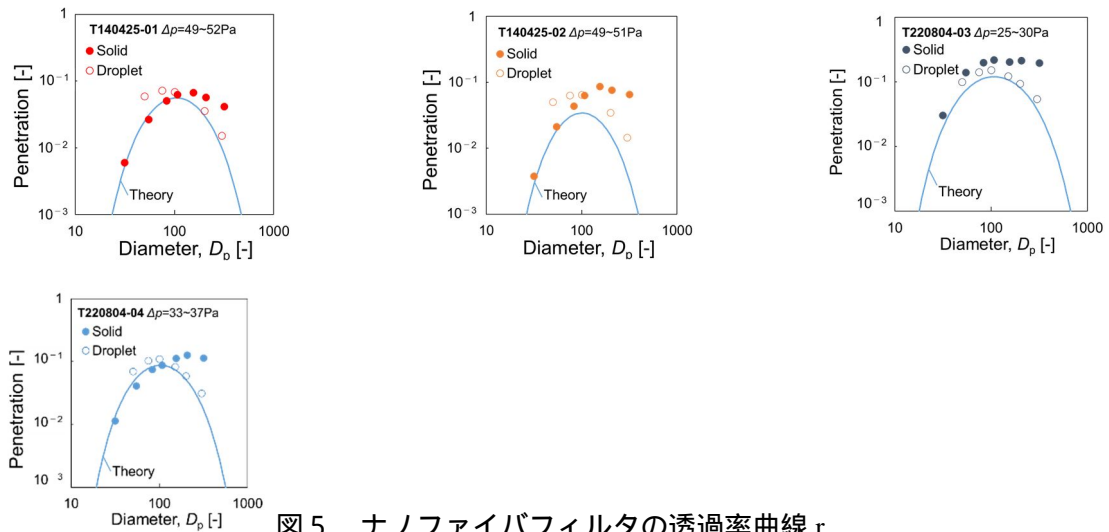


図5 ナノファイバフィルタの透過率曲線 r

まず、粒子種による透過率の相違に着目すると、どのフィルタについても繊維径よりも大きな粒子径の範囲において、固体粒子の透過率が同条件の液滴の透過率よりも高く、捕集効率が低下していることがわかる。また、理論値と粒子種別の透過率を比較すると液滴の透過率は理論とほぼ同様であるが、固体粒子の透過率は理論値からはずれ、捕集効率が低下している。これは PTFE ナノファイバ表面において繊維径よりも大きな粒子径をもつ固体粒子の保持力が低下していることが考えられる。

PTFE ナノファイバ繊維上での捕集状態についてより詳細に検討するために、負荷する粒子数を増加させて、粒子の積層状態を観察した結果を図6に示す。図6より、時間の経過とともに粒子の凝集は進行し、また同時に粒子が付着しない繊維の部分も認められた。

まず、負荷時間が1時間のフィルタ表面の SEM 像では、多くの粒子が孤立した状態で捕集されていることから、粒子はエアロゾル状態では孤立していることが確認できる(複数の繊維によって捕集されている粒子や、すでに凝集している粒子もいくつかみられる。)

次に負荷時間が2、3時間のフィルタ表面の SEM 像では、凝集した捕集状態にある粒子

数が増えていることがわかる。また、より大きい凝集体の割合が増加していることがわかる。これらの結果を総合的に判断すると、ナノファイバ表面において、一度繊維に衝突、接触した粒子は、付着力の低下によって固定、捕集されずに再飛散あるいは繊維表面を転がり、フィルタ内部下流側において、より安定な構造上にて固定、捕集されたものと考えられる。

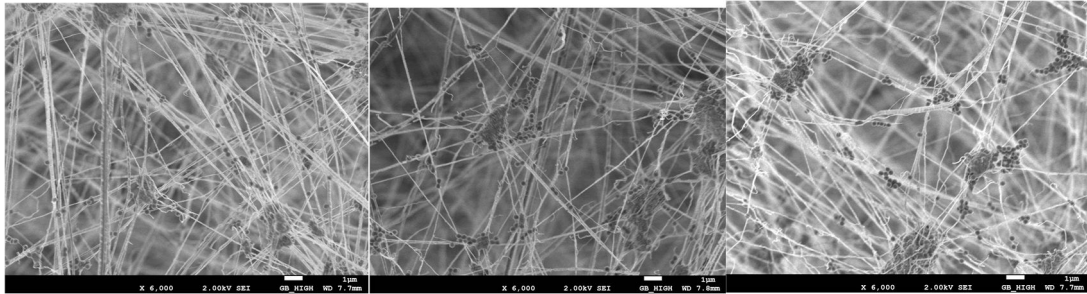


図6 負荷時間を増加させたときの繊維表面での凝集状態の変化
(左から1、2、3時間経過後)

最後に、フィルタ内部での微粒子の移動を追跡することを目的として、共焦点蛍光顕微鏡を用いた可視化を試みた。図7は、直径200nmの蛍光PSLを1時間負荷したサンプルを蛍光顕微鏡で観察した結果である。青い点がフィルタ内に積層した蛍光粒子であり、粒子はフィルタ内部にわたって、ある程度均一に分散して捕集されていることがわかる。すなわち、ナノファイバ表面における固体粒子の捕集効率の低下と繊維表面での移動により、エアフィルタの性能に限界がみられるということが明らかとなった。

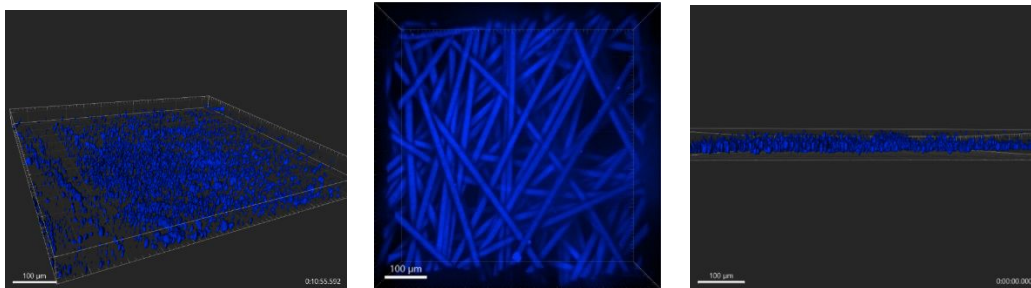


図8 共焦点蛍光顕微鏡によるフィルタ内部の粒子の可視化

以上より、性能向上が課題となっているナノファイバを用いたエアフィルタにおけるエアロゾル捕集状態の解析を行った。ナノオーダーの超微細繊維において、粒子種を変えた性能評価の測定値と単一繊維捕集理論による推定値の比較から、粗大粒子に対して付着力の低下により、捕集性能が低下していることがわかった。捕集状態を走査型電子顕微鏡で観察することにより、繊維径が粒子径よりも相対的に小さい値をもつ繊維において、単一粒子の捕集よりも複数の繊維による捕集が優位になることが確認された。また、安定捕集される位置において、粒子が繊維表面で凝集体を形成することがわかった。これらの結果は、従来の理論の限界をナノファイバ表面における接触面積と付着力の低下が微粒子捕集に与える影響を明らかにするものであり、工業的に使用されるエアフィルタの設計指針を与えるものとして意義があると考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Nishimura Makoto, Liu, Yajiao, Gen, Masao, Seto, Takafumi, Otani, Yoshio	4. 巻 56
2. 論文標題 Filtration of aerosol particles by parallel and staggered filter arrays	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Aerosol Science and Technology	6. 最初と最後の頁 767 - 774
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/02786826.2022.2080042	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 瀬戸 章文
2. 発表標題 安全で快適な空間創出のためのエアロゾルテクノロジー
3. 学会等名 日本粉体工業技術協会クリーン化分科会（招待講演）
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------