

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2023年10月5日(05.10.2023)



(10) 国際公開番号

WO 2023/190089 A1

(51) 国際特許分類:

B01D 39/16 (2006.01) **D04H 3/16** (2006.01)
H01G 7/02 (2006.01) **B03C 3/28** (2006.01)
D04H 3/11 (2012.01)

ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2023/011659

(22) 国際出願日: 2023年3月23日(23.03.2023)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:

特願 2022-056990 2022年3月30日(30.03.2022) JP

(71) 出願人: 東洋紡株式会社(TOYOBO CO., LTD.)
[JP/JP]; 〒5300001 大阪府大阪市北区梅田一丁目13番1号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 中島 瑞貴(NAKAJIMA Mizuki);
〒5200292 滋賀県大津市堅田二丁目1番1号 東洋紡株式会社内 Shiga (JP). 増森 忠雄(MASUMORI Tadao); 〒5200292 滋賀県大津市堅田二丁目1番1号 東洋紡株式会社内 Shiga (JP). 北川 義幸(KITAGAWA Yoshiyuki); 〒5200292 滋賀県大津市堅田二丁目1番1号 東洋紡株式会社内 Shiga (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO(BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG,

添付公開書類:

— 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) Title: ELECTRET AND ELECTRET FILTER

(54) 発明の名称: エレクトレット、及びエレクトレットフィルター

(57) Abstract: An electret according to the present invention contains at least 90 mass% of a polyolefin resin, 0.1-5 mass% of a hindered phenol compound having an amide bond, and 0.1-5 mass% of a nitrogen-containing compound having a hydroxylamine structure.

(57) 要約: 本発明のエレクトレットは、ポリオレフィン樹脂を90質量%以上、アミド結合を有するヒンダードフェノール化合物を0.1~5質量%、及びヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物を0.1~5質量%含有する。



WO 2023/190089 A1

明 細 書

発明の名称：エレクトレット、及びエレクトレットフィルター 技術分野

[0001] 本発明はエレクトレット、及びエレクトレットフィルターに関する。

背景技術

[0002] 従来エレクトレットと称される材料が広く用いられている。エレクトレットとは各種誘電材料を種々操作することで、継続的に外部エネルギーを与えることなしに静電力の維持及び利用が可能な一連の材料である。エレクトレットは、外部に対する静電力を利用して、マイクロホン、センサー、発電機、各種保護、分離用途に用いられる。

[0003] 上記の分離、保護用途においてはフィルム等の面状で用いるほか、多孔質材料そのものが有する分離、濾過用途などと組み合わせて機能性を高める方法が知られている。たとえば、繊維状物を用いたフィルターは高い空隙率を持ち長寿命、低通気抵抗という利点を有しているため幅広く用いられている。これら繊維状物からなるフィルターは、さえぎり、拡散、慣性衝突などの機械的捕集機構により繊維上に粒子を捕捉するが、実用的な使用環境において捕捉する粒子の空気力学相当径が $0.1 \sim 1.0 \mu\text{m}$ 程度の場合にフィルター捕集効率の極小値をもつことが知られており、その弱点を補うためのエレクトレットの静電引力を利用したエレクトレットフィルターが用いられる。

[0004] エレクトレットフィルターの捕集効率を向上させるために、繊維状物に対して液体を接触又は衝突させる方法（液体接触荷電法）により繊維状物に静電電荷を付与してエレクトレットとすることが好ましいことが知られている。例えば、コストと性能とを両立したエレクトレットとして、ポリオレフィン樹脂を主成分とする樹脂にヒンダードアミン系化合物などの含窒素化合物を添加した混合物から形成された繊維状物に水などの液体と接触させることにより静電電荷を付与したエレクトレットが知られている。

[0005] ポリオレフィン樹脂を主成分とする繊維状物に対して液体接触荷電法により帯電されたエレクトレットウェブとして以下の特許文献1～3が開示されている。特許文献1には、熱可塑性高分子材から製造される繊維を含む不織エレクトレットウェブが開示されており、前記熱可塑性高分子材は、ポリマーと、極性液体での処理によって前記繊維に生成される電荷をトラップする第1の添加剤(a)と、29～50の炭素原子を有するカルボン酸及び1個もしくは2個の第一級及び／または第二級アミノ基を有するとともに脂肪族基中に1～6の炭素原子を有する脂肪族アミンに由来する有機アミドを含む第2の添加剤(b)とを含んでいる。特許文献2には、静電電荷が付与されフッ素を担持している担体に補強材が積層されたエレクトレット材料が開示されている。また、特許文献3には、熱可塑性樹脂と所定の帯電強化添加剤とを含むエレクトレットウェブが開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：日本国特許第6346640号

特許文献2：日本国公開特許公報「特開2018-202369号」

特許文献3：国際公開公報「WO2017/007675」

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] しかしながら、従来公知のエレクトレットに広く添加されているヒンダードアミン系化合物は、熱分解生成物による異臭やフライ発生などによる品位低下などの課題がある。また、エレクトレットは加工時などの熱処理によって、維持している静電力、すなわち電荷が減衰することがあり、それを抑制するために酸化防止剤が含有されることがあるが、抑制が十分でないことがある。

[0008] そこで、本発明は、従来公知のエレクトレットでは達成できなかった生産性と電荷安定性を両立した新規なエレクトレットおよびエレクトレットフィ

ルターを提供するものである。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者らが鋭意検討した結果、特定の化合物を組み合わせるポリオレフィン樹脂に添加し、液体接触法により荷電することにより、加工性及び電荷安定性に優れたエレクトレット及びエレクトレットフィルターが得られることを見だし本発明に到達した。

すなわち本発明は以下の構成を有する。

1. ポリオレフィン樹脂を90質量%以上、アミド結合を有するヒンダードフェノール化合物を0.1～5質量%、及びヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物を0.1～5質量%含有することを特徴とするエレクトレット。
2. 100℃における性能維持率が0.8以上であることを特徴とする上記1に記載のエレクトレット。
3. メルトブロー法により製造されたシート状物であることを特徴とする上記1または2に記載のエレクトレット。
4. 液体接触により荷電されたことを特徴とする上記1～3のいずれか1に記載のエレクトレット。
5. 上記1～4のいずれか1に記載のエレクトレットを用いたエレクトレットフィルター。

発明の効果

[0010] 本発明により、不織布の細繊維度化や緻密さを得る際の紡糸温度上昇によるショットの発生を抑制することができる。また、多くの酸化防止剤にみられるエステル結合ではないアミド結合を有する酸化防止剤を使用することにより、熱による静電電荷の減衰を抑制することができる。したがって、本発明により、生産性及び電荷安定性に優れたエレクトレット及びエレクトレットフィルターを得ることができる。

発明を実施するための形態

[0011] 以下、本発明に関して具体的に説明するが、本発明は下記に限定される訳

ではなく前・後記の趣旨に適合し得る範囲で適当に変更を加えて実施することも可能であり、それらはいずれも本発明の技術的範囲に包含される。

[0012] <ポリオレフィン樹脂>

本発明のエレクトレットは、形状の自由度及びエレクトレットの電荷安定性の観点から、疎水性かつ電気抵抗の高いポリオレフィン樹脂を用いている。ポリオレフィン樹脂としては、例えば、エチレン、プロピレン、ブチレン、ヘキセン、オクテン、ブタジエン、イソプレン、クロロプレン、メチルー１－ペンテン、環状オレフィンなどのオレフィンの単独重合体や２種類以上の上記オレフィンからなる共重合体が挙げられる。ポリオレフィン樹脂は１種を選択して単独で使用してもよいし、２種以上を選択して組み合わせて使用してもよい。ポリオレフィン樹脂は、ポリエチレン、ポリプロピレン及びポリメチルペンテンから選ばれる少なくとも１種が含まれることが好ましく、ポリプロピレンを含むことがより好ましい。エレクトレット１００質量部中におけるポリオレフィン樹脂の含有割合が８０質量％以上であることが好ましく、８５質量％以上であることがより好ましく、９０質量％以上であることがさらに好ましく、９５質量％以上であることがなお好ましく、９７質量％以上であることが特に好ましい。ポリオレフィン樹脂の含有割合の上限は特に限定されず、例えば９９．５質量％以下であり、９９質量％以下であることが好ましい。なお、シースコア繊維やサイドバイサイド繊維など繊維の左右や芯鞘で含有している樹脂を変えている場合には、ポリオレフィン樹脂が含まれている部分のみを本発明のエレクトレットとする。

[0013] 本発明に用いられるポリプロピレン樹脂においては、立体規則性度が８５％以上であることが好ましく、より好ましくは９０％以上であり、更に好ましくは９０％以上であり、特に好ましくは９５％以上である。この場合、アイソタクチック、シンジオタクチックいずれでも好ましく用いることができる。２種以上のポリプロピレンを用いる場合には、含有されるポリオレフィン中に１種以上含まれることが好ましい。

[0014] <アミド結合を有するヒンダードフェノール化合物>

本発明のエレクトレットは、ポリオレフィン樹脂中に、分子内に少なくとも1つのアミド結合を有するヒンダードフェノール化合物を1種以上含んでいる。ポリオレフィン樹脂の熱による酸化分解を抑制する特性が得られるものであれば特に制限されず、前記のヒンダード構造はフェノール性水酸基の両側に立体障害基を有する両ヒンダード、一方にのみ立体障害基を有する片ヒンダードいずれでも好ましく、メチル、エチル、プロピル、ブチル及び各異性体のいずれであっても好ましく用いることができる。フェノール部位は分子末端部に少なくとも1つ存在していることが好ましく、2個以上であることも好ましい。

[0015] 本発明に用いられるヒンダードフェノール化合物は、分子構造中に少なくとも1つのアミド結合を有してなることが特徴であり、アミド結合の窒素原子、炭素原子各々の両端における結合部位は脂肪族炭素と結合していることが好ましい。また、分子中に含まれるアミド結合の数としては2個含まれるビスアミド、3個含まれるトリスアミド、それ以上であることもできる。直鎖及び分岐構造を有するものいずれも好ましく用いることができる。2以上有する場合には、アミド基からアミド基までの間に含まれる炭素数は2～50の範囲にあることが好ましく、より好ましくは2～30、更に好ましくは2～20である。

炭素数が少なすぎる場合には樹脂との相溶性低下や薬剤自体の高融点化のために取り扱いが困難となり、大きすぎる場合には多量の配合が必要となる。

[0016] 本発明に用いられるアミド結合を有するヒンダードフェノール化合物は、融点が60℃から300℃の範囲であることが好ましく、より好ましくは80℃から280℃の範囲であり、最も好ましくは100℃から250℃である。融点が低すぎる場合にはべたつきや散逸が生じやすく、高すぎる場合には加工性に劣る場合がある。熱分解温度としては、150℃以上が好ましく、より好ましくは200℃以上であり、さらに好ましくは250℃以上であり、特に好ましくは300℃以上である。熱分解温度が低い場合には成型加工条件や使用環境に制約を受ける場合がある。

[0017] 本発明に用いるアミド結合を有するヒンダードフェノール化合物に関しては、自家合成、試薬、工業原料としての入手などいずれであっても好ましく、化合物単体もしくは混合物であってもよい。市販試薬もしくは工業用原料として入手可能な化合物の一つとしてN, N' -ビス3 - (3' 5' ジー t - ブチル - 4' - ヒドロキシフェニル) プロピオニルヘキサメチレンジアミンを例示することができる。例えば、I r g a n o x (登録商標) 1 0 9 8 (B A S F ジャパン社製) としてポリアミド、ナイロン、ポリウレタンなどの含窒素極性樹脂における酸化防止剤用途として販売されている。しかし、本発明においては一般的に推奨のないポリプロピレンに添加することで、ポリオレフィンのエレクトレットにおける電荷量及び濾過性能の向上に優れた特性が得られることがわかった。よって、エステル基を主体としたヒンダードフェノール系酸化防止剤の添加とは異なる特性を発現するものである。また、入手できるアミド結合を有するヒンダードフェノール化合物として、B A S F 社製 I r g a n o x (登録商標) M D 1 0 2 4 がある。

[0018] 本発明のエレクトレットは、ポリオレフィン樹脂の含有量が90質量%以上に対して、対するアミド結合を有するヒンダードフェノール化合物の含有量は0.1~5質量%であることが好ましく、0.2~3質量%であること更に好ましく、0.3~1.5質量%であることが特に好ましい。なお、エレクトレットにおいて2種類以上の繊維を混ぜている場合や一つの繊維に2種類以上の樹脂を混ぜている場合にはポリオレフィン樹脂に含まれているアミド結合を有するヒンダードフェノールの割合のことを指す。エレクトレット中にポリオレフィン以外の樹脂が含まれている場合であっても、ポリオレフィン以外の樹脂は溶媒・酸塩基に溶解したり、染色性が異なったりするため、判別可能であり、D S C や N M R などの定量法でもポリオレフィン樹脂を判別可能である。含有割合が0.1質量%よりも小さい場合には電荷量が低くなるため濾過特性が低下してしまい、5質量%よりも高い場合には親水性増大によりエレクトレットとしての安定性が失われる。

[0019] 本発明におけるエレクトレットは、ポリオレフィン樹脂中に、上記のアミ

ド結合を有するヒンダードフェノール化合物に加え、ヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物を含有してなることを特徴とする。本発明においては、アミド結合を有するヒンダードフェノール化合物とヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物とは明確に区別される。

[0020] <ヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物>

本発明に用いるヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物に関しては、ポリオレフィン樹脂の熱による酸化分解を抑制する特性を有するものであれば、自家合成、試薬、工業原料としての入手などいずれであっても好ましく、化合物単体もしくは混合物であってもよい。市販試薬もしくは工業用原料として入手可能な化合物の一つとしてN, N-ジアルキルヒドロキシルアミンを例示することができる。例えば、Irgastab（登録商標）FSO42（BASFジャパン社製）としてポリオレフィン樹脂における酸化防止剤用途として販売されている。

[0021] 本発明のエレクトレットは、ポリオレフィン樹脂の含有量が90質量%以上に対して、ヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物の含有割合は0.1～5質量%であることが好ましく、0.1～3質量%であること更に好ましく、0.3～1.0質量%であることが特に好ましい。なお、エレクトレットにおいて2種類以上の繊維を混ぜている場合や一つの繊維に2種類以上の樹脂を混ぜている場合にはポリオレフィン樹脂に含まれているヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物の割合のことを指す。エレクトレット中にポリオレフィン以外の樹脂が含まれている場合であっても、ポリオレフィン以外の樹脂は溶媒・酸塩基に溶解したり、染色性が異なったりするため、判別可能であり、DSCやNMRなどの定量法でもポリオレフィン樹脂を判別可能である。含有割合が0.1質量%よりも小さい場合には電荷量が低くなるため濾過特性が低下してしまい、5質量%よりも高い場合には親水性増大によりエレクトレットとしての安定性が失われる。

[0022] アミド結合を有するヒンダードフェノール化合物とヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物の比率は、所望の特性が得られるものであれば特に

制限されないが、50 : 1 ~ 1 : 50の質量比であることが好ましく、より好ましくは20 : 1 ~ 1 : 20であり、更に好ましくは10 : 1 ~ 1 : 10であり、特に好ましくは5 : 1 ~ 1 : 5の質量比である。

[0023] アミド結合を有するヒンダードフェノール化合物とヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物の含有割合は所望の特性が得られるものであれば特に制限されないが、両者を合計してポリオレフィン樹脂素材に対し0.2から10質量%含まれてなることが好ましく、より好ましくは0.3から5質量%であり、更に好ましくは0.4から4質量%であり、最も好ましくは0.5から3質量%である。

[0024] 本発明において用いられるアミド結合を有するヒンダードフェノール化合物及びヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物は少なくともエレクトレットの成型体表面に存在していればよく、成型体表面への溶液塗布、粉末付着、ポリオレフィンへの溶液混合、重合時混合、溶融混合などにより導入することができる。

[0025] 上記のうち、均質性や加工性の観点から溶融混合法が優れており、最終形状への溶融成型時に樹脂とともに直接混合する方法もしくは、予め作成された添加剤含有樹脂コンパウンドとしてそのまま、あるいは希釈して用いることができる。

[0026] <エレクトレットの形状>

本発明のエレクトレットは必要とされる必要なあらゆる形状として用いることができるが、例えば繊維状物、フィルム、押出成形材、多孔膜、粉末、他材料への表面コート層などとしてエレクトレットの機能を利用することができる。このうち、フィルター用途としては繊維状物が特に好ましく用いられる。

[0027] 上記繊維状物は繊維集合体であることが好ましく、繊維集合体としては、例えば、長繊維または短繊維からなる織編物、不織布、綿状物等の繊維状物や延伸フィルムから得られる繊維状物などが挙げられる。繊維集合体とは、エレクトレットを走査型電子顕微鏡、光学顕微鏡などの装置で表面観察した

際に繊維状の形態であることが認められ、かつ、繊維集合体を構成する繊維同士の少なくとも一部が溶融もしくは繊維間の交絡により一体化している状態のことを指す。

[0028] エレクトレットをフィルター用途として利用する場合は、上記繊維集合体は不織布であることが好ましい。不織布を得る方法としては、単成分繊維、芯鞘繊維やサイドバイサイド繊維といった複合繊維、分割繊維等の短繊維をカーディング、エアレイド、湿式抄紙法などによりシート化する方法、連続繊維よりなるスパンボンド法、メルトブローン法、エレクトロスピニング法、フォーススピニング法を用いてシート化する方法など、従来公知の方法を用いることが可能である。残溶剤の処理ならびに表面に付着する紡績油剤の処理などを必要としない観点からスパンボンド法、メルトブローン法、溶融エレクトロスピニング法、又は溶融フォーススピニング法で得られる不織布がより好ましく、スパンボンド法又はメルトブローン法で得られる不織布が特に好ましい。

[0029] 本発明のエレクトレットが繊維状物である場合、繊維状物に用いられる繊維の平均繊維直径は、 $0.001 \sim 100 \mu\text{m}$ であることが好ましく、 $0.05 \sim 50 \mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $0.1 \sim 30 \mu\text{m}$ であることがさらに好ましく、 $0.3 \sim 25 \mu\text{m}$ であることが特に好ましく、 $0.5 \sim 20 \mu\text{m}$ であることが最も好ましい。繊維の平均繊維直径が $100 \mu\text{m}$ よりも太い場合には実用的な捕集効率を得ることが困難であり、電荷減衰時の効率低下が大きい。繊維の平均繊維直径が $0.001 \mu\text{m}$ よりも細い場合には電荷を付与したエレクトレットを作製することが困難である。上記繊維度は、走査型電子顕微鏡を使用し、同一視野で繊維の重複が無いように50本の繊維径を計測し幾何平均にて算出する。

[0030] 本発明のエレクトレット材料が繊維状物である場合、繊維状物は単独の製法、素材からなる均一物であってもよく、製法、素材及び繊維径の異なる2種以上の素材を用いてなる混合物であってもよい。

[0031] 本発明におけるエレクトレット化法はエレクトレットの使用時に所望の特

性が得られるものであれば特に制限されないが、本発明のエレクトレットが繊維状物である場合、繊維状物に液体を接触又は衝突させる方法（液体接触荷電法）が好ましく、液体接触荷電法により高い濾過特性を有するエレクトレットを得ることができる。より具体的には、繊維状物に吸引、加圧、噴出などの方法により液体を接触又は衝突させる方法であることが好ましい。

[0032] 液体接触荷電法において接触又は衝突させる液体は所望の特性が得られるものであれば特に制限されないが、取扱い性ならびに性能面から鑑みて水であることが好ましい。水に代えて水に副成分（水以外の成分）を添加した液体を用いてもよく、該液体の導電率及びpHは、添加する副成分の種類や添加量等で調整可能である。

[0033] 液体接触荷電法において接触又は衝突させる液体は、pHが1～11であることが好ましく、pHが3～9であることがより好ましく、pHが5～7であることがさらに好ましい。また、液体接触荷電法において接触又は衝突させる液体は、導電率が $100\mu\text{S}/\text{cm}$ 以下であることが好ましく、 $10\mu\text{S}/\text{cm}$ 以下であることがより好ましく、 $3\mu\text{S}/\text{cm}$ 以下であることがさらに好ましい。

[0034] 本発明のエレクトレットを用いたフィルターも本発明の範疇に含まれる。本発明のエレクトレットをフィルターとして用いた場合、後述するQF値は 1.0mmAq^{-1} 以上であり、 1.1mmAq^{-1} 以上であることが好ましく、 1.2mmAq^{-1} 以上であることがより好ましく、 1.3mmAq^{-1} 以上であることが更に好ましく、 1.4mmAq^{-1} 以上であることが最も好ましい。とりわけ、メルトブロー法により製造された平均繊維径 $0.5\sim 5\mu\text{m}$ のエレクトレットフィルターにて上記のQF値を上回ることが特に好ましい。 1.0mmAq^{-1} を下回るとエレクトレットによって粒子が十分に捕捉されておらずフィルターとしての性能が不十分となる。本明細書におけるQF値は風速 $10\text{cm}/\text{s}$ にてフィルター厚み方向に通気させた場合における通気抵抗及びレーザーパーティクルカウンターの粒子径区分 $0.3\sim 0.5\mu\text{m}$ での個数計数値を基に計算される。

[0035] 本発明のエレクトレットをフィルターとして用いた場合、風速 10 cm/s における粒子捕集効率は必要特性に応じて種々調整することができるが、 50% 以上であることが好ましく、 70% 以上であることがより好ましく、 90% 以上であることがさらに好ましく、 95% 以上であることが特に好ましい。本明細書における粒子捕集効率は、風速 10 cm/s にてフィルターの厚み方向に通気させた場合における、フィルター通過前後におけるレーザーパーティクルカウンターの粒子径区分 $0.3\sim 0.5\text{ }\mu\text{m}$ での個数計数値を基に計算される。

[0036] 本発明のエレクトレットをフィルターとして用いた場合、風速 10 cm/s における通気抵抗は $0.05\sim 50\text{ mmAq}$ の範囲であることが好ましく、より好ましくは $0.2\sim 30\text{ mmAq}$ であり、特に好ましくは $0.5\sim 20\text{ mmAq}$ である。通気抵抗が小さすぎる場合にはフィルターとしての性能が不十分となり、通気抵抗が大きすぎる場合にはエレクトレットフィルターとしての利点が失われる。

[0037] <その他>

本発明のエレクトレット及びエレクトレットフィルターは必要に応じて他の構成部材と併用して用いることができる。すなわち、本発明のエレクトレットはプレフィルター層、繊維保護層、補強部材、機能性繊維層などと組み合わせ用いることができる。

[0038] プレフィルター層及び繊維保護層としては、例えばスパンボンド不織布、サーマルボンド不織布、発泡ウレタンなどであり、補強部材としては、例えばサーマルボンド不織布、各種ネットを例示することができる。また、機能性繊維層としては例えば抗菌、抗ウイルス及び識別や意匠を目的とした着色繊維層などを例示することができる。

[0039] 本発明のエレクトレットは幅広い用途に用いることができる。特に保護、通気、防汚、防水などを目的として、防塵マスク、防塵衣、各種空調用エレメント、空気清浄機、キャビンフィルター、各種装置の保護を目的としたフィルターとして好適に用いることができる。

実施例

[0040] 以下、本発明の実施例及び比較例について説明する。まず、試験／評価方法を下記に示す。

(1) 通気抵抗

72 mm ϕ に打ち抜いたサンプルを有効通気径 50 mm ϕ アダプターに装着し、微差圧計を接続した内径 50 mm の配管を上下に連結、サンプル厚さ方向に風速 10 cm/s にて通風し、絞りの無い状態でのサンプル上下の差圧を通気抵抗（圧力損失）として計測した。

[0041] (2) 粒子捕集効率・粒子透過率

72 mm ϕ に打ち抜いたサンプルを有効通気径 50 mm ϕ のアダプターに装着し、サンプル厚さ方向に風速 10 cm/s にて通風し、光散乱式粒子計数装置リオン社製 KC-01E を用いて以下の方法にて粒子捕集効率を計測した。

評価粒子：大気塵粒子

風速 : 10 cm/s

粒子捕集効率[%] = (1 - (サンプル透過後の粒径 0.3 ~ 0.5 μ m の粒子個数濃度 ÷ サンプル透過前の粒径 0.3 ~ 0.5 μ m の粒子個数濃度)) × 100

粒子透過率 = (サンプル透過後の粒径 0.3 ~ 0.5 μ m の粒子個数濃度 ÷ サンプル透過前の粒径 0.3 ~ 0.5 μ m の粒子個数濃度)

[0042] (3) 濾材品質係数 (QF)

上記 (2) で測定した通気抵抗及び上記 (3) で測定した粒子透過率の値を用いて、以下の式より QF 値を求めた。

$$QF [mm Aq^{-1}] = -[\ln (1 - (粒子捕集効率 (\%) / 100))] / [通気抵抗 (mm Aq)]$$

[0043] (4) 目付

直径 72 mm ϕ の試料を 3 点採取して、各試料の重量を測定し、得られた値を単位面積当たりに換算後、それらの算術平均値の小数点第 1 位以下を四

捨五入して求めた。

(5) 平均繊維径

シート試料の任意の場所5点を選び、電子顕微鏡を用いて単繊維の直径を $n = 20$ で測定し、算術平均にて平均繊維径を求めた。

(6) 電荷安定性

上記(2)にて使用したサンプルをアルミホイルに包んだのち、 80°C に設定した乾燥機にて30分静置した。その後上記(2)と同様の方法にて粒子透過率を計測した。同様の作業を 100°C 、 120°C の順で続けて実施した。

(7) ショットの発生

シート試料の任意の場所5点を選び、光学顕微鏡を用いて繊維形状ではない樹脂の塊状物(ショット)の有無を観察した。

[0044] <実施例1>

メルトフローレート(MFR) $1300\text{ g}/10\text{分}$ のポリプロピレンホモポリマー98.5質量%に対し、アミド結合を有するヒンダードフェノール化合物としてBASF社製Irganox(登録商標)1098を1質量%、及びヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物としてN,N-ジアルキルヒドロキシルアミンを0.5質量%添加したものを、メルトブローン装置を用い、ノズル温度 300°C 、空気温度 280°C にて紡糸し目付 $30\text{ g}/\text{m}^2$ の繊維シートを得た。得られた繊維シートに対して、電気伝導度 $0.7\text{ }\mu\text{ S}/\text{cm}$ 、pH6.8の水を表層から背面に通過させることで荷電を行った後に 25°C にて風乾することでエレクトレットシートを得た。通気抵抗及び粒子透過率よりフィルターとしての特性を評価した。

[0045] <比較例1>

メルトフローレート(MFR) $1300\text{ g}/10\text{分}$ のポリプロピレンホモポリマー99.5質量%に対し、ヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物としてN,N-ジアルキルヒドロキシルアミンを0.5質量%のみを添加した他は実施例1と同様にして比較例1のエレクトレットシートを得た。

。

[0046] <比較例 2>

メルトフローレート (MFR) 1300 g / 10 分のポリプロピレンホモポリマー 99 質量% に対し、ヒンダードアミン化合物である BASF 社製 Chimassorb (登録商標) 944 を 1 質量% のみを添加した他は実施例 1 と同様にして比較例 2 のエレクトレットシートを得た。

[0047] <比較例 3>

メルトフローレート (MFR) 1300 g / 10 分のポリプロピレンホモポリマー 98.5 質量% に対し、ヒンダードアミン化合物である BASF 社製 Chimassorb (登録商標) 944 を 1 質量%、N, N-ジアルキルヒドロキシルアミンを 0.5 質量% 添加した他は実施例 1 と同様にして比較例 3 のエレクトレットシートを得た。

[0048] <比較例 4>

メルトフローレート (MFR) 1300 g / 10 分のポリプロピレンホモポリマー 98.5 質量% に対し、ヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物として N, N-ジアルキルヒドロキシルアミンを 0.5 質量%、アミド結合を含まないヒンダードフェノール化合物として BASF 社製 Irganox (登録商標) 1010 を 1.0 質量% 添加した他は実施例 1 と同様にして比較例 4 のエレクトレットシートを得た。

[0049] <比較例 5>

メルトフローレート (MFR) 1300 g / 10 分のポリプロピレンホモポリマー 98.5 質量% に対し、ヒンダードアミン化合物である BASF 社製 Chimassorb (登録商標) 944 を 1 質量%、アミド結合を有するヒンダードフェノール化合物として BASF 社製 Irganox (登録商標) 1098 を 0.5 質量% 添加した他は実施例 1 と同様にして比較例 5 のエレクトレットシートを得た。

[0050] <比較例 6>

メルトフローレート (MFR) 1300 g / 10 分のポリプロピレンホモ

ポリマー 98.5 質量%に対し、ヒンダードアミン化合物である BASF 社製 Chimassorb（登録商標）944 を 1 質量%、アミド結合を有しないヒンダードフェノール化合物である BASF 社製 Irganox（登録商標）1010 を 0.5 質量%添加した他は実施例 1 と同様にして比較例 6 のエレクトレットシートを得た。

[0051] 実施例 1 並びに比較例 1 ～ 6 の評価計測値を表 1 に示す。

[0052]

[表1]

	実施例 1	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6
配合	l r g a s t a b F S 0 4 2 [質量%]	0.5	0.5	—	0.5	—	—
	l r g a n o x 1 0 9 8 [質量%]	1	—	—	—	0.5	—
	C h i m a s s o r b 9 4 4 [質量%]	—	—	1	—	1	1
	l r g a n o x 1 0 1 0 [質量%]	—	—	—	1	—	0.5
特性値	目付[g/m ²]	30	30	30	30	30	30
	粒子捕集効率[%]	99.8	98.9	96.1	99.9	98.6	98.5
	Ln(透過率)比	1.0	0.7	0.5	1.0	0.7	0.7
	QF値[mm A q - 1]	1.86	1.45	1.30	1.93	1.63	1.46
	QF比	1.0	0.8	0.7	1.0	0.9	0.8
	平均繊維径[μm]	3.62	3.69	3.00	3.32	2.97	2.83
電荷安定性	80°C×30min	0.9	0.7	0.8	0.8	0.9	0.9
	100°C×30min	0.8	0.5	0.6	0.6	0.7	0.7
	120°C×30min	0.5	0.3	0.5	0.4	0.5	0.5
外観	シヨットの発生	無	無	有	有	有	有

[0053] 表には、濾過特性を比較しやすくするため、透過率の自然対数（L n）値及び実施例 1 との数値比である L n（透過率）比（実施例 1 を 1 とする）、Q F 値の数値比である Q F 比（実施例 1 を 1 とする）を算出したものを記載

している。また、表には、電荷安定性を比較するため、熱処理前と各温度での熱処理後における粒子透過率の自然対数（ L_n ）値の数値比（熱処理前の値を1とする）を算出したものも記載している。

[0054] 実施例1及び比較例1～6の結果より、 QF 比、 L_n （透過率）比ともに、実施例1のアミド結合を有するヒンダードフェノール化合物およびヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物を含有するエレクトレットが高い捕集性能を示していることがわかる。また、平均繊維径においても実施例1は比較例と同等もしくは大であることから、電荷量及び電荷密度が大であることがわかる。さらに、実施例1は捕集性能が同等である比較例3および比較例4に比べて、 100°C の熱処理後の捕集性能が優れていることから、電荷安定性が高いことがわかる。ヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物を含有したエレクトレットは、ヒンダードアミン化合物を含有しないものに限って、ショットの発生が見られなかった。以上のことから、アミド結合を有するヒンダードフェノール化合物とヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物を含む繊維シートを液体接触荷電法にてエレクトレット化させることにより、生産性及び電荷安定性に優れることがわかる。

産業上の利用可能性

[0055] 本発明のエレクトレットは生産性及び電荷安定性に優れ、例えば、防塵衣、防塵マスク、空気清浄機等のフィルター用途として好適に用いることができる。

請求の範囲

- [請求項1] ポリオレフィン樹脂を90質量%以上、アミド結合を有するヒンダードフェノール化合物を0.1～5質量%、及びヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物を0.1～5質量%、含有することを特徴とするエレクトレット。
- [請求項2] 100℃における性能維持率が0.8以上であることを特徴とする請求項1に記載のエレクトレット。
- [請求項3] メルトブロー法により製造されたシート状物であることを特徴とする請求項1に記載のエレクトレット。
- [請求項4] 液体接触により荷電されてなることを特徴とする請求項1に記載のエレクトレット。
- [請求項5] 請求項1に記載のエレクトレットを用いたエレクトレットフィルター。
- [請求項6] ポリオレフィン樹脂90質量%以上、アミド結合を有するヒンダードフェノール化合物を0.1～5質量%、及びヒドロキシルアミン構造を有する含窒素化合物を0.1～5質量%を熔融混合する工程を含むことを特徴とするエレクトレットの製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/011659

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**B01D 39/16**(2006.01)i; **H01G 7/02**(2006.01)i; **D04H 3/11**(2012.01)i; **D04H 3/16**(2006.01)i; **B03C 3/28**(2006.01)i

FI: H01G7/02 A; B01D39/16 A; B03C3/28; D04H3/11; D04H3/16

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

B01D39/16; H01G7/02; D04H3/11; D04H3/16; B03C3/28

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023
 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023
 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 1-287914 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 20 November 1989 (1989-11-20) p. 2, upper right column, lines 2-15	1-6
A	JP 2022-45847 A (TOYOBO CO., LTD.) 22 March 2022 (2022-03-22) paragraphs [0021]-[0024]	1-6
A	WO 2018/123418 A1 (PANASONIC INTELLECTUAL PROPERTY MANAGEMENT CO., LTD.) 05 July 2018 (2018-07-05) paragraphs [0022], [0029], [0030], fig. 1	1-6



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 “E” earlier application or patent but published on or after the international filing date
 “L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 “O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 “P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 “X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 “Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 “&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

09 May 2023

Date of mailing of the international search report

16 May 2023

Name and mailing address of the ISA/JP

Japan Patent Office (ISA/JP)
 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
 Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2023/011659

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	1-287914	A	20 November 1989	US 5057710 A	
				column 2, lines 39-53	
				WO 1989/011156 A1	
				EP 375781 A1	
				KR 10-1990-0702549 A	

JP	2022-45847	A	22 March 2022	(Family: none)	

WO	2018/123418	A1	05 July 2018	CN 110072603 A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） B01D 39/16(2006.01)i; H01G 7/02(2006.01)i; D04H 3/11(2012.01)i; D04H 3/16(2006.01)i; B03C 3/28(2006.01)i FI: H01G7/02 A; B01D39/16 A; B03C3/28; D04H3/11; D04H3/16														
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） B01D39/16; H01G7/02; D04H3/11; D04H3/16; B03C3/28 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2023年</td> </tr> </table> 国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2023年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2023年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2023年				
日本国実用新案公報	1922 - 1996年													
日本国公開実用新案公報	1971 - 2023年													
日本国実用新案登録公報	1996 - 2023年													
日本国登録実用新案公報	1994 - 2023年													
C. 関連すると認められる文献 <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>A</td> <td>JP 1-287914 A（東レ株式会社）20.11.1989（1989 - 11 - 20） 第2頁右上欄第2-15行</td> <td>1-6</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2022-45847 A（東洋紡株式会社）22.03.2022（2022 - 03 - 22） 段落0021-0024</td> <td>1-6</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>WO 2018/123418 A1（パナソニックIPマネジメント株式会社）05.07.2018（2018 - 07 - 05） 段落0022, 0029-0030, 図1</td> <td>1-6</td> </tr> </tbody> </table>			引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号	A	JP 1-287914 A（東レ株式会社）20.11.1989（1989 - 11 - 20） 第2頁右上欄第2-15行	1-6	A	JP 2022-45847 A（東洋紡株式会社）22.03.2022（2022 - 03 - 22） 段落0021-0024	1-6	A	WO 2018/123418 A1（パナソニックIPマネジメント株式会社）05.07.2018（2018 - 07 - 05） 段落0022, 0029-0030, 図1	1-6
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号												
A	JP 1-287914 A（東レ株式会社）20.11.1989（1989 - 11 - 20） 第2頁右上欄第2-15行	1-6												
A	JP 2022-45847 A（東洋紡株式会社）22.03.2022（2022 - 03 - 22） 段落0021-0024	1-6												
A	WO 2018/123418 A1（パナソニックIPマネジメント株式会社）05.07.2018（2018 - 07 - 05） 段落0022, 0029-0030, 図1	1-6												
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。														
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献														
国際調査を完了した日 09.05.2023		国際調査報告の発送日 16.05.2023												
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 木下 直哉 5D 3858 電話番号 03-3581-1101 内線 3551												

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2023/011659

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	1-287914	A	20.11.1989	US	5057710	A	
				第2欄第39-53行			
				WO	1989/011156	A1	
				EP	375781	A1	
				KR	10-1990-0702549	A	
JP	2022-45847	A	22.03.2022	(ファミリーなし)			
WO	2018/123418	A1	05.07.2018	CN	110072603	A	