

- 市におけるPM_{2.5}の成分濃度と発生源寄与率について、
名古屋市環境科学研究所報, 32, 13-17
- 西井祐子, 西村理恵, 水間健二, 久保田圭 (2007) 微小粒子状物質 (PM_{2.5}) に関する国内外の調査の現状及び測定
の課題について, 第48回大気環境学会年会講演要旨
集, p.120-121
- Pakkanen, T.A., Kerminen, V.-M., Ojanen, C.H., Hillamo, R.T.,
Aarnio, P., Koskentalo, T. (2000) Atmospheric black
carbon in Helsinki, Atmospheric Environment, 34,
1497-1506
- Slimn, W.G (1982) Predictions for particle deposition to vegetative
canopies, Atmospheric Environment, 16, 1785-1794
- 若松伸司 (2006) 米国の粒子状物質に係る環境基準の改訂,
大気環境学会誌, 41(6), A69-A71
- 山神真紀子, 中島寛則, 北瀬勝, 酒井哲男 (2003) 名古屋
市内における大気中PM_{2.5}調査結果, 名古屋市環境科学
研究所報, 33, 21-28
- 米持真一, 梅沢夏実, 松本利恵 (2007) 埼玉県北部のPM_{2.5}
濃度の化学組成の5年間の観測結果, 大気環境学会誌,
42(2), 129-142
- 財団法人道路環境研究所 (2000) 道路環境影響評価の技術
手法第2巻, p.20-43

PM_{2.5}中元素状炭素の自動車排出係数の推計と一般環境における大気中濃度の変動

山神真紀子*, 鈴木秀男**, 長谷川就一***, 中島寛則*, 平生進吾*, 若松伸司****

*名古屋市環境科学研究所 〒457-0841 名古屋市南区豊田 5-16-8

** ㈱システム設計 環境解析研究所 〒140-0015 東京都品川区西大井 5-24-19

*** 独立行政法人国立環境研究所 〒305-8506 茨城県つくば市小野川 16-2

**** 愛媛大学 〒790-8566 愛媛県松山市榊味 3-5-7

名古屋市における国道23号沿道において, PM_{2.5}およびoptical black carbon (OBC)の測定を2003年9月30日から10月10日まで行った。その結果, PM_{2.5}の平均濃度は76.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (n=234), OBCの平均濃度は15.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (n=241)であった。OBCがPM_{2.5}に占める割合は平均22.3%であった。OBC濃度と大型車交通量との間には正の相関があり, 特に道路に対して風下, 風速3m/s以上の条件では強い相関関係が見られた。また, 同時にelemental carbon (EC)も測定し, OBCとECとの間には直線関係が見られた。これらの関係とNO_x濃度を用いてECの排出係数を推定したところ大型車に対して368 mg/km・台という値が得られた。また, 拡散計算を用いてECの排出係数を推定した結果は大型車に対して261 mg/km・台であった。

また, 一般環境中における一日ごとのPM_{2.5}とECの測定を2005年1月から2006年12月まで行った。その結果, PM_{2.5}の2005年の平均濃度は23.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (n=193), 2006年は24.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (n=182)であった。ECは2005年, 2006年ともに平均濃度が3.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となり, ECがPM_{2.5}に占める割合は, 2005年が15%, 2006年は14%であった。また, EC濃度は月曜日から金曜日までの平日は濃度が高く3.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であるのに対し, 日曜日には2.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となり, 平日よりも約40%濃度が低下していた。求めた排出係数を用いてADMER (産総研一曝露・リスク評価大気拡散モデル)を用いて2005年の大気中濃度を月別に推計したところ, 計算値のEC濃度変動は実測値の変動と類似したものとなった。

固定発生源煙道内 PM₁₀/PM_{2.5} 質量濃度測定用 multi-stage VIS impactor の分級特性

Separation Characteristics of a Multi-stage VIS Impactor for
PM₁₀/PM_{2.5} Mass Concentration Measurement in a Stack of a Stationary Source

和田 匡司^a, 塚田 まゆみ^b, 近藤 光^c, 小暮 信之^d, W. Lenggoro^b,

Masashi Wada, Mayumi Tsukada, Akira Kondo, Nobuyuki Kogure, W. Lenggoro

W. W. Szymanski^e, 内藤 牧男^c, 金岡 千嘉男^a, 神谷 秀博^b

W. W. Szymanski, Makio Naito, Chikao Kanaoka, Hidehiro Kamiya

Received 27 January 2009; Accepted 24 March 2009

A multi-stage virtual impaction surface impactor (VIS impactor), which was originally developed by Szymanski for ambient air sampling, was modified to conduct an in-stack measurement of particulates from a stationary source. We carried out separation experiments using model aerosol which was composed of coal fly ash and air, and the classification performance of VIS impactor was evaluated. The separation data using a conventional cascade impactor and a cyclone were also compared and the applicability of these three devices for in-stack measurements of PM₁₀/PM_{2.5} mass concentration in flue gas from stationary sources was investigated. The conventional cascade impactor overestimated PM_{2.5} concentrations owing to the occurrence of particle bounce-off at the collection plates. VIS impactor clearly showed good classification performance over the wide range of dust concentration (1~25 mg/m³) being independent of the mass of collected dust.

Keywords: Aerosol, Cascade impactor, Grease, Separation efficiency, Virtual impactor

1. 緒 言

大気中に浮遊する粒子状物質 (SPM) の中で粒子径 (空気動力学径) が 2.5 μm 以下の微粒子 (PM_{2.5}) は、肺胞部まで侵入可能であるため喘息や肺癌など呼吸器系疾患の原因物質として指摘され、その粒子濃度と健康影響の高い関連性が報告されている^{1~4}。ISO7708

では、呼吸により人体へ侵入する粒子の割合を粒子径ごとに規定しており⁵、50%咽頭通過性粒子 (Thoracic convention) の粒子径が 10 μm、50%肺胞到達性粒子 (Respirable convention) の粒子径が健康な成人で 4 μm、非健康者の High risk グループでは 2.5 μm としている。今後、浮遊粒子状物質である PM₁₀ (粒子径 10 μm 以下の粒子) に加え、PM_{2.5} の排出実態・健康影響を把

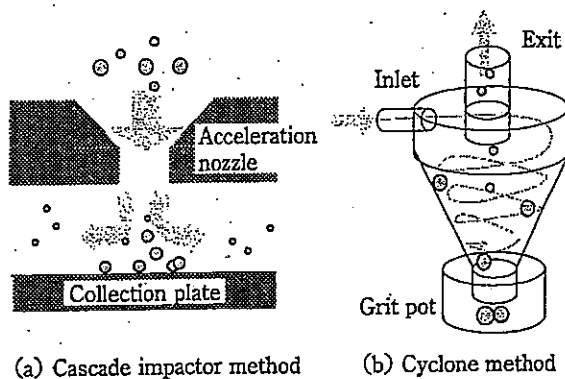
a 石川工業高等専門学校
(〒929-0342 石川県河北郡津幡町北中条)
TEL 076-288-8161
Ishikawa National College of Technology
(Kitachujyo, Tubata, Kahoku-gun, Isikawa 929-0342, Japan)

b 東京農工大学
(〒184-8588 東京都小金井市中町2-24-16)
TEL 042-388-7068
Tokyo University of Agriculture and Technology
(2-24-16, Naka-machi, Koganei, Tokyo 184-8588, Japan)

c 大阪大学 接合科学研究所
(〒567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘11-1)
TEL 06-6879-8660
Joining and Welding Research Institute, Osaka University
(11-1, Mihogaoka, Ibaraki, Osaka 567-0047, Japan)

d 独立行政法人 産業総合技術研究所
(〒305-8569 茨城県つくば市小野川16-1)
TEL 029-861-8284
National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
(16-1, Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8569, Japan)

e ヴィーン大学
University of Vienna
(5, Boltzmannngasse, Vienna, A-1090, Austria)



(a) Cascade impactor method (b) Cyclone method
 Fig. 1 Concept of classification by cascade impactor and cyclone methods

握する必要性が強まるものと予想される。これら微粒子状物質の発生源は、ディーゼル車等の移動発生源と、廃棄物焼却場、発電所等の固定発生源に大別される。そのうち、固定発生源については測定評価手法が確立されておらず排出実態に関する研究も少ない^{6,7)}。

ISO/TC146 "Air quality"/SC1 "Stationary source" では、WG20 "PM₁₀/PM_{2.5} mass concentration in flue gas" が設けられ、固定発生源煙道中 (in-stack) での PM₁₀/PM_{2.5} の質量濃度測定法の標準化に関して審議されている。主な検討項目には、10 μm カットステージが ISO7708 で規定される咽頭通過性粒子の通過率、2.5 μm カットステージが肺胞到達性粒子 (High risk グループ) の通過率に相当する分級性能を有しているか、分級性能が粉じん濃度や時間によらず安定しているか、また、高い温度や腐食性のガスなど煙道内の環境下で測定が可能であるかが挙げられている。これらの項目は、燃料の種類や燃焼方式、集塵装置形式等の異なる様々なプラントにおいても、正確な測定をするために重要となる。

当初、ISO の審議にはカスケードインパクト法、サイクロン法が分離捕集法の候補として挙がっていた。カスケードインパクト法は、高速ガス流で捕集板に粗粒子を衝突させ分級する手法である (Fig. 1 (a))。その原理から、捕集板上での粒子の跳ね返り¹⁰⁾ や再飛散¹¹⁾ が起こりやすいことが指摘されており、高い粉じん濃度での測定には不向きと考えられる。サイクロン法は、旋回気流による遠心力で壁面に粗粒子を移動させて分級する手法である (Fig. 1 (b))。PM_{2.5} を分級するにはかなり小型にせざるを得ず、捕集量が多いと微粒子搬送ガスへの粗粒子のまき込みがはげしくなる¹²⁾。さらに、分級された粗粒子は壁面やダストポットに付着するため、微粒子の質量しか正確には測れない。したがって、PM₁₀/PM_{2.5} の質量濃度を 2 段直列のサイク

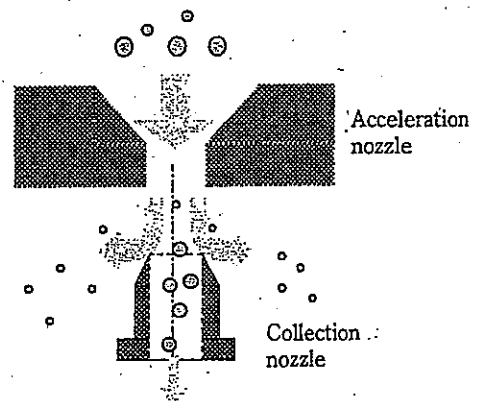


Fig. 2 Concept of classification by virtual impactor method

ロンで同時に測定するのは困難で、別々に設置して分級する必要がある。

一方、バーチャルインパクト法は、カスケードインパクト法で問題となる粒子の跳ね返りや再飛散を防止するために、捕集板を使わず吸引ノズルで粗粒子を吸引する形式とした手法である (Fig. 2)。Conner¹³⁾ により考案されて以来、様々な改良型の装置が開発され¹⁴⁻¹⁷⁾、最近では Szymanski ら¹⁸⁾ によって直列で多段階の分級捕集ができるマルチノズルタイプの装置が開発された。環境大気中でのその分級性能や汎用性は実証されており、煙道中での PM₁₀/PM_{2.5} 質量濃度計測用としても有力視できる。しかし、これまでにバーチャルインパクト法を固定発生源の排ガス中で使用した報告は見あたらず、排ガス中の PM₁₀/PM_{2.5} 質量濃度計測手法としての適用性について検討・実証することはきわめて重要である。

本研究では、バーチャルインパクト法の排ガス中の PM₁₀/PM_{2.5} 質量濃度計測手法としての適用性について検討・実証を行うため、Szymanski ら¹⁸⁾ の環境大気用マルチノズル型マルチステージバーチャルインパクトの設計をもとに、固定発生源煙道内での PM₁₀/PM_{2.5} 質量濃度計測を対象としたバーチャルインパクト (multi-stage virtual impaction surface impactor 以下 VIS impactor と呼ぶ) を製作した。製作した装置について、実験室モデル粉じんを用いた分級性能試験、および、ISO の審議に挙がったカスケードインパクト、サイクロンとの分級特性の比較を行うことによってその分級特性を評価した。

2. 実験装置および方法

2.1 分級捕集装置

2.1.1 VIS impactor

固定発生源煙道内測定用に、Fig. 3 に示すマルチノ

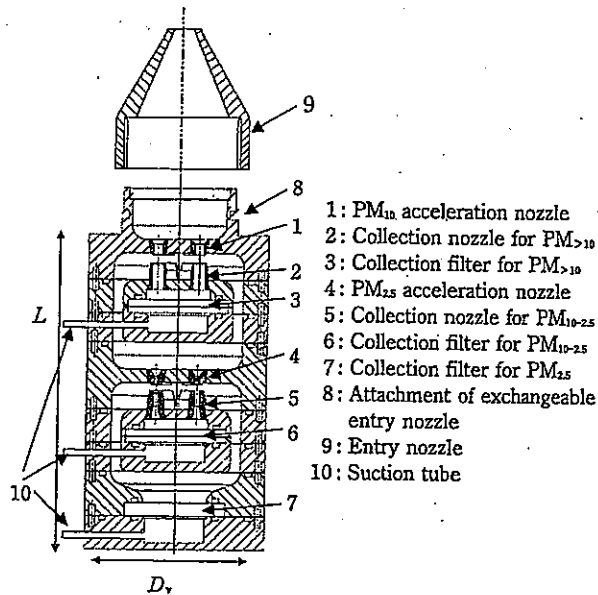


Fig. 3 Cross-section diagram of VIS impactor for PM₁₀/PM_{2.5} sampling in stack of stationary sources

ズル型マルチステージバーチャルインパクト (VIS impactor) を試作した。本装置は Szymanski らによる大気環境用の 3 段式で、カットオフ径 (空気動力学径) が 10, 2.5, 1.0 μm の仕様¹⁰⁾ を、固定発生源煙道中で PM₁₀/PM_{2.5} を分級捕集できるよう改造したものである。上流から順に、1 段目が PM₁₀ 分級部で 10 μm 以上の粗大粒子を、2 段目が PM_{2.5} 分級部で 2.5~10 μm の粒子 (PM_{10-2.5}) を、その後 PM_{2.5} 捕集部で PM_{2.5} をそれぞれフィルタにより捕集する。以下、捕集部については、1 段目を PM_{>10} 捕集ステージ、2 段目を PM_{10-2.5} 捕集ステージ、3 段目を PM_{2.5} 捕集ステージと呼ぶことにする。分級部は同軸上に配置された加速ノズルと捕集ノズルで構成されている (Fig. 4)。加速ノズル通過流量の約 1 割を捕集ノズルで吸引する形式にすることで、含じん気流は捕集ノズル手前で方向を変えて次段

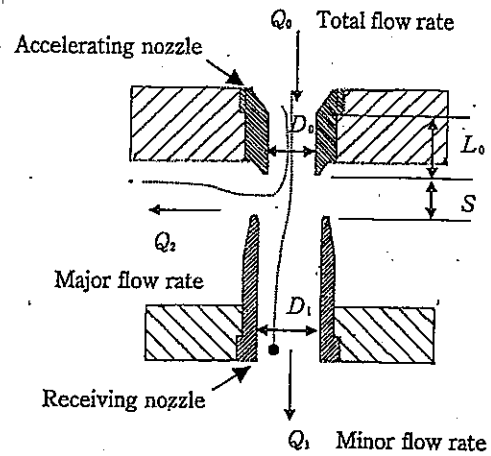


Fig. 4 Schematic diagram of enlarged-impaction part of VIS impactor

へと流れ、カットオフ径以上の粒子は主流を外れて捕集ノズルを通りフィルタで捕集される。

なお、バーチャルインパクトの分級特性は通常、粒子の停止距離とノズル径との比率であるストークス数によって支配される。

$$S_{ik} = \frac{\rho_p d_p^2 U C_c}{9\eta D_0} \quad (1)$$

ここで、 ρ_p 、 d_p 、 U 、 C_c 、 η 、 D_0 はそれぞれ、粒子の密度、粒子径、加速ノズルのガス流速、カニングムの補正係数、気体の粘性係数、加速ノズル径である。主要設計パラメータを Table 1 に示す。部分分離効率が 50% となるストークス数の値 (本装置では 0.22¹⁰⁾)、および、 $\rho_p = 1000 \text{ kg/m}^3$ を Eq(1) に代入し、各分級ステージのカットオフ径が 2.5 μm、10 μm となるように U 、 D_0 が決定されている。環境大気吸引時には、1 段目の吸引管で PM₁₀ 分級部の 2 次流である 1.0 l/min を吸引し、PM_{2.5} 分級部に流れる 11.5 l/min のうち 2 次流として 1.2 l/min を 2 段目の吸引管で吸引し、残りの 10.3 l/min を 3 段目の吸引管から吸引

Table 1 Major characteristics of VIS impactor

	PM ₁₀ separation part	PM _{2.5} separation part
Number of nozzles	6	6
Acceleration nozzle diameter, D_0	3.9 mm	1.5 mm
Collection nozzle diameter, D_1	5.1 mm	2.0 mm
Separation distance, S	3.5 mm	2.5 mm
Length of acceleration nozzle's throat, L_0	5 mm	4 mm
Total flow rate, Q_0 (ambient condition)	12.5 l/min	11.5 l/min
Minor flow rate, Q_1 (ambient condition)	1.0 l/min	1.2 l/min
Diameter, $D_0 \times$ Length, L	72 mm \times 148 mm	

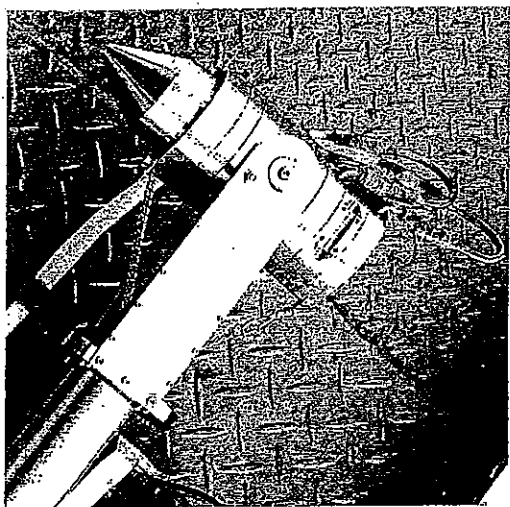


Fig. 5 Picture of VIS impactor for $PM_{10}/PM_{2.5}$ sampling in stack of stationary sources

することで良好な分級性能が実証されている。

このパーティクルインパクトを煙道で使用する際には、同一カットオフ径を得るために、温度、圧力やガス組成を考慮し、ストークス数をそろえた分級操作が必要である。また、煙道排ガス中の粉じんをサンプリングするには、等速吸引をする必要がある。パーティクルインパクト法では、設計のカットオフ径となる所定の吸引流量のまま等速吸引に近い条件を実現するため、入り口ノズル(Fig. 3中の(9))を取替え可能とし、適切な口径の入り口ノズルを選択して用いることとした。なお、現ISO案ではノズル部のガス流速が煙道内の流速の90~130%までを許容範囲としている。この点については、カスケードインパクトやサイクロンも同様である。

Fig. 5に、今回製作したVIS impactorの写真を示す。VIS impactorには、支持部で回転できる構造の固定用器具を取り付け、比較的容易に煙道内への挿入、設置(排ガス流れと平行に)を容易にした。写真は上部を90°回転させた状態である。また、高温・腐食性雰囲気での使用を前提として素材をステンレスとした。

2. 1. 2 カスケードインパクト

ISOで審議されている市販のカスケードインパクト(Paul Gothe Bochum製のGMU-Cascade impactor Johnas II)を用いた。本装置は2段の分級ステージがあり、上流から順に1段目のカットオフ径は10 μ m、2段目は2.5 μ mである。ノズル数は1段目、2段目それぞれ6、12で、吸引流量はともに環境大気吸引時で39.5 l/minである。10 μ m以上の粒子、 $PM_{10-2.5}$ は

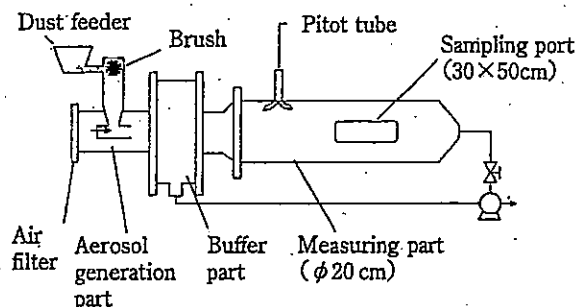


Fig. 6 Schematic of laboratory scale dust ducting type dust generation system

各段の捕集板上に捕集し、 $PM_{2.5}$ は最終段のバックアップフィルタで捕集する。なお、ISOへの提案では、各捕集ステージでの粉じん捕集限度量は、製造者の推奨値に従うこととなっている。本装置では2段目捕集量：3mg以下、最終段捕集量：20mg以下を推奨している。なお、カスケードインパクト法では捕集板にグリースを塗布する方法がよく採用されるが、煙道内は高温で反応性のガスを含むことが多く、付着性変化や質量変化が起こる可能性があるため、本研究では高温でも使用可能なシリカ繊維フィルタを用いる方法^{19,20)}で試験を実施した。また、VIS impactorと同様に、インパクト部を90°回転できる固定用の器具を作製して取付けた。

2. 1. 3 サイクロン

ISOで審議されている市販のサイクロン(Thermo Electron Co製SCC PM-2.5 inlet)を用いた。吸引流量は環境大気吸引時で16.8 l/minである。前述のように、多段直列接続を行っても $PM_{2.5-10}$ 濃度の測定は困難なため、 $PM_{2.5}$ のみの分級を行い上部出口管からフィルタで捕集した。2.5 μ m以上の粒子は壁面および下部捕集箱に堆積する。

2. 2 試験方法・条件

分級試験には、Fig. 6に示す模擬煙道型粉じん発生装置で発生させたモデル粉じんを用いた。モデル粉じんは、JIS Z 8901試験用粉体1の10種²¹⁾(フライアッシュ、中位径5.2 μ m、幾何標準偏差1.2、粒子密度2.0~2.3 g/cm³)をスクリーフィーダにより供給し、分散用ブラシおよび圧縮空気により分散させて煙道内に発生させた。発生粉じんの粒子径分布(以下、特に断らない限り、粒子径は空気動力学径を意味することとする)をFig. 7に示す。測定にはアンダーセンスタックサンプラ(東京ダイレック製:AS-500型)を用いた²²⁾。中位径は約6.0 μ mで $PM_{2.5}$ が質量基準で約10%含まれていた。

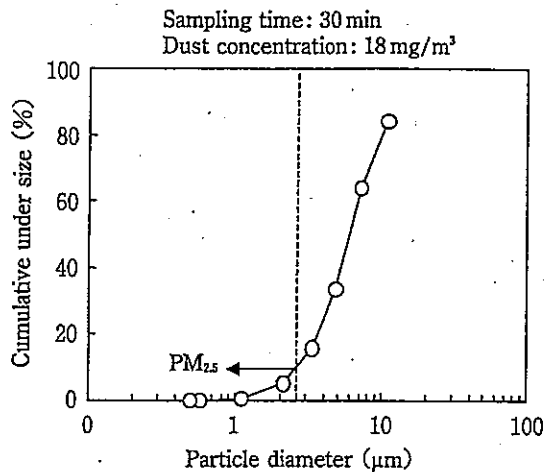


Fig. 7 Particle size distribution of model dust measured by 8-stage Andersen's Stack Sampler (mass base distribution)

分級試験では、前述の固定用器具を用い、分級捕集装置を測定窓 (30×50 cm) から挿入、煙道の中心に固定して行った。なお、等速吸引で粉じんを吸引するための入り口ノズル径は、煙道内流速、圧力、温度、水分量を予め測定し、VIS impactor、カスケードインパクト、サイクロンで、それぞれ4.6mm、6.0mm、4.0mmとした。粉じん濃度はスクリーフィーダーの回転数で調節した。雰囲気条件は23±2℃、R.H. 50±5%で行い、煙道内の流速は16.5m/sとし、ピトー管により常時監視した。試験条件は、サンプリング時間30min、粒子濃度18mg/m³を基準に、それぞれ、1~60min、1~25mg/m³の範囲で変化させた。

2.3 PM_{2.5} 分級性能の評価

VIS impactor の分級性能を測定し、カスケードインパクト、サイクロンと比較するために、各分級装置について試験後の捕集粒子 (PM_{10-2.5}, PM_{2.5}) の観察を行った。観察には電子顕微鏡 (憫エリオニクス製 FE-SEM: ERA8800FE) を用いた。撮影した SEM 画像から200個以上の粒子の体積球相当径を画像解析で求め、粒子径 (空気動力学径) に換算し、ロジック・ラムラー分布で近似し、粒度分布曲線とした。なお、カスケードインパクトでは、捕集粒子が主に堆積しているノズル近傍部について観察を行い、捕集粒子の代表径とした。さらに、Eq. (2) で示される部分分離効率曲線を PM_{2.5} 分級ステージについて算出し、分級性能の評価に用いた。

$$\eta(d_p) = 1 - \frac{q_i(d_p)}{q_0(d_p)} \quad (2)$$

ここで、 d_p は粒子径、 q_i は分級された微粒子の捕集率による重みをつけた質量基準頻度分布、 q_0 は供給

粉じんの質量基準頻度分布である。なお、 q_0 には、VIS impactor、カスケードインパクトでは粗粒子と微粒子の重みをつけた質量基準頻度分布の和を用い、サイクロンでは PM_{2.5} のみの捕集であるので、Fig. 7 の発生粉じんの粒度分布測定結果をロジック・ラムラー分布により近似した値を用いて算出した質量基準頻度分布を用いた。得られた部分分離効率曲線より、50% 分離粒子径 d_{p50} と Eq. (3) で示される分級の鋭さ χ を求め、分級性能の評価に用いた。

$$\chi = \frac{d_{p75}}{d_{p25}} \quad (3)$$

ここで、 d_{p75} 、 d_{p25} はそれぞれ部分分離効率75%、25%の粒子径である。なお、一般に $\chi=1$ (理想)、 $\chi \geq 0.7$ (非常によい)、 $\chi=0.7 \sim 0.5$ (よい)、 $\chi \leq 0.5$ (悪い) とされている。

3. 結果

3.1 PM_{2.5} 分級性能

分級試験後の捕集粒子 (PM_{10-2.5}, PM_{2.5}) の SEM 画像 (3000倍) の一例を Table 2 に示す。なお、サイクロンについては分級後の微粒子側しか捕集できないので PM_{2.5} の画像のみを示した。VIS impactor では、PM_{10-2.5} 捕集ステージの捕集粒子の大部分が2.5μmより大きく、PM_{2.5} 捕集ステージの捕集粒子には2.5μm以上の粒子はほとんど観察されなかった。カスケードインパクトについては PM_{10-2.5} 捕集ステージの捕集粒子の大部分が2.5μmより大きかったものの、PM_{2.5} 捕集ステージの捕集粒子に2.5μm以上の粒子が数多く観察された。これらの粗粒子は、跳ね返りや再飛散により混入したものと考えられる。サイクロンでは、PM_{2.5} 捕集粒子がほぼ2.5μmより小さく、2.5μm以上の粒子はほとんど観察されなかった。

サンプリング時間30min、粉じん濃度18mg/m³試験後の捕集粒子の画像解析より求めた粒子径の質量基準頻度分布を Fig. 8 に示す。なお、それぞれの頻度分布は、捕集率の重みをつけたものである。VIS impactor では、微粒子の頻度分布のピークが約2.0μmであり、粗粒子の頻度分布と交差する点が約2.5μmであった。サイクロンでは微粒子の頻度分布のピークが VIS impactor と同様に約2.0μmであったが、4μm以上の頻度はほとんど表れず、粗粒子の分級が良好であった。一方、カスケードインパクトでは微粒子の頻度分布のピークが約5μmと非常に大きかった。これらの質量基準頻度分布から部分分離効率を算出した結果を Fig. 9 に示す。また、 d_{p50} 、 χ を求めた結果、VIS

Table 2 SEM images of particles collected on PM_{10-2.5} and PM_{2.5} collection stage.

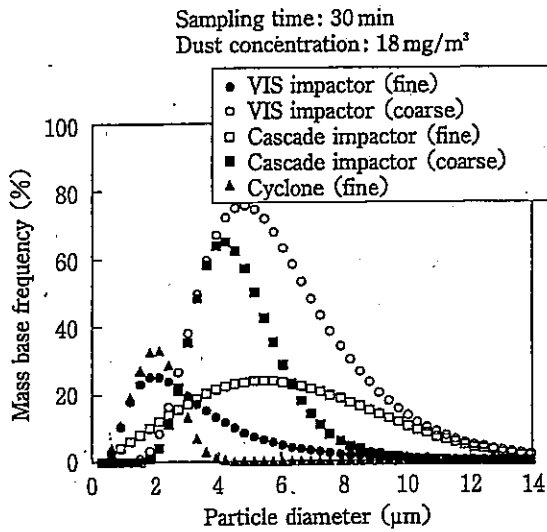
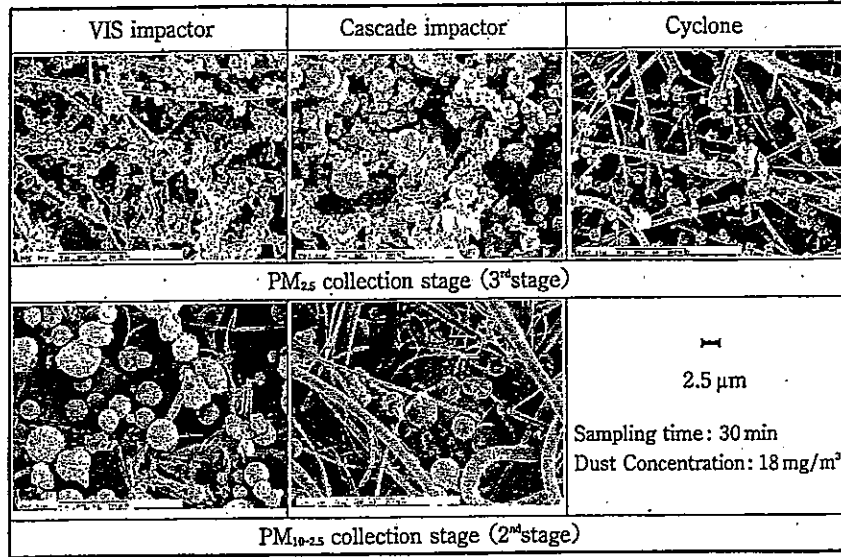


Fig. 8 Mass base frequency distributions of particles collected by VIS impactor, cascade impactor and cyclone

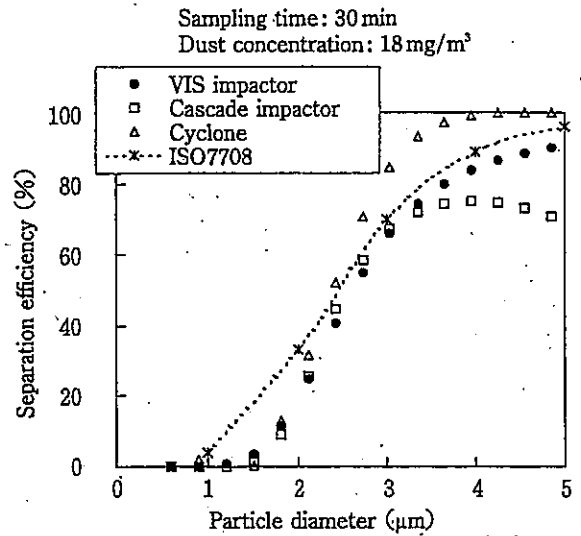


Fig. 9 Separation efficiency of PM_{2.5} separation part
 (VIS impactor: $d_{p50}=2.6 \mu\text{m}$, $\chi=0.64$
 Cascade impactor: $d_{p50}=2.7 \mu\text{m}$, $\chi=0.54$
 Cyclone: $d_{p50}=2.4 \mu\text{m}$, $\chi=0.72$)

impactor では $d_{p50}=2.6 \mu\text{m}$, $\chi=0.64$ (分級性能:よい), カスケードインパクトでは $d_{p50}=2.7 \mu\text{m}$, $\chi=0.54$ (よい), サイクロンでは $d_{p50}=2.4 \mu\text{m}$, $\chi=0.72$ (非常によい)であった。また、参考のため、ISO7708に規定される肺胞到達性粒子 (High risk グループ) の通過率を示す。

微粒子側の分離効率は、3種類の分級捕集装置ともほぼ同等であった。VIS impactorの部分分離効率曲線はサイクロンのもの比べて粗粒子側の効率で10~20%程度低い、ISO7708の肺胞到達性粒子 (High risk グループ) の通過率に近い分布をとっていた。サイクロンの分級の鋭さは高く、今回の試験濃度範囲で

は良好な分級性能が得られていた。一方、カスケードインパクトでは分級の鋭さは低く、粒子径が3μm以上の範囲で分級効率が75%を下回る結果となった。これは、前述のSEMで観察された粗粒子によるもので、捕集板での跳ね返りや再飛散に起因するものと考えられる。ただし、分級効率が25%低下することによるPM_{2.5}測定濃度の誤差は、流入粉じんに含まれる2.5μm以上の粒子の割合が多ければ多いほど膨大な値に達する。今回のように2.5μm以上の粒子が90%の粉じんの場合、本来10%であるべきPM_{2.5}の質量分率が、 $10+90 \times 0.25=32.5\%$ と、PM_{2.5}濃度が3倍以上

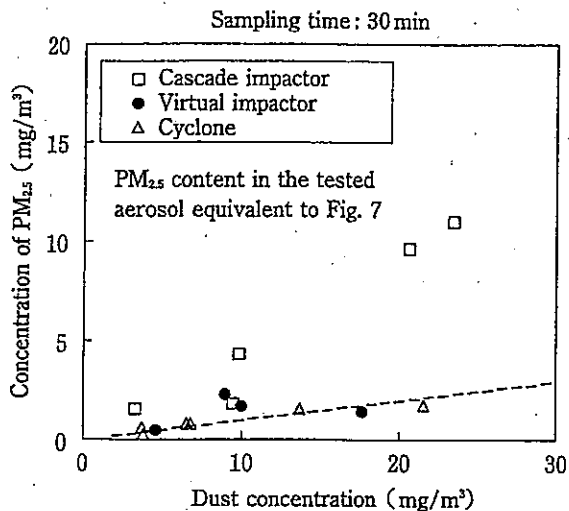


Fig. 10 Relationship between dust concentration and $PM_{2.5}$ concentrations measured by VIS impactor, cascade impactor and cyclone

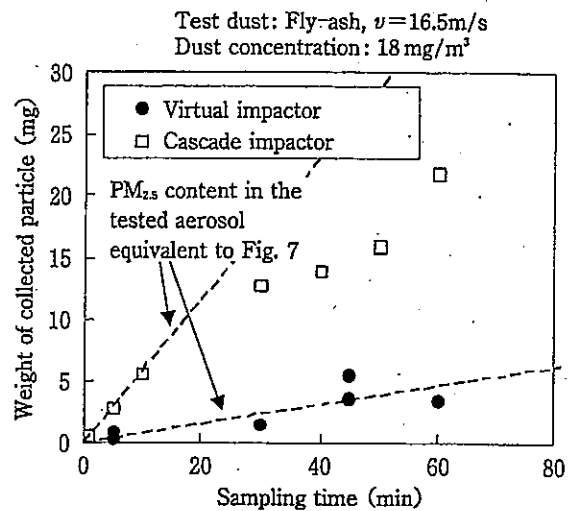


Fig. 12 Relationship between sampling time and particle weight collected on $PM_{10-2.5}$ collection stage of VIS impactor and cascade impactor

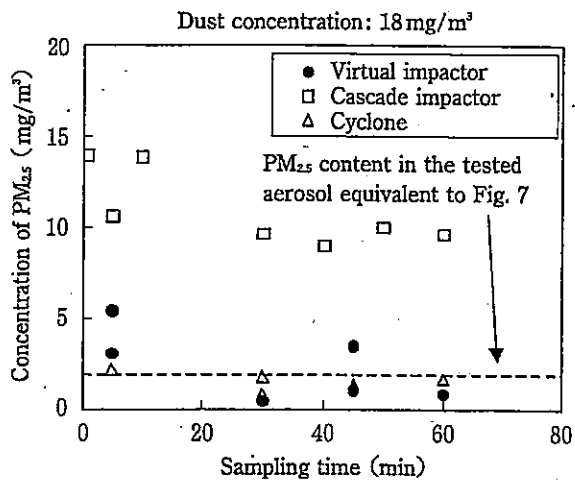


Fig. 11 Relationship between sampling time and $PM_{2.5}$ concentrations measured by VIS impactor, cascade impactor and cyclone

の値となって測定されてしまうことが懸念される。

3. 2 分級性能の粉じん濃度およびサンプリング時間依存性

分級性能の粉じん濃度およびサンプリング時間依存性について比較検討のために、サンプリング時間 30 min で粉じん濃度を变化させた場合の $PM_{2.5}$ 濃度の測定結果を Fig. 10 に、粉じん濃度 $18\text{mg}/\text{m}^3$ でサンプリング時間を变化させた場合の結果を Fig. 11 にそれぞれ示す。なお、粉じん濃度は、Fig. 10 では分級試験で測定された総捕集量（サイクロンの場合は、粗粒子量を前述のように推定）から求めた値、Fig. 11 では粉じん濃度を变化させていないので、予め円筒ろ紙

で捕集した粉じん量より求めた値とした。なお、両粉じん濃度の差は、サンプリング時間 30 min、円筒ろ紙で求めた粉じん濃度 $18\text{mg}/\text{m}^3$ の場合で、10%程度であった。なお、図中の破線は Fig. 7 で得られている $PM_{2.5}$ の含有率が粉じん濃度によらず一定と仮定して計算した $PM_{2.5}$ 濃度に相当する値（ここでは推定値と呼ぶ）である。

VIS impactor では、試験範囲内で粉じん濃度、サンプリング時間によらず、実測 $PM_{2.5}$ 濃度が推定値とほぼ一致している。サイクロンについても同様であった。サイクロンでは、粗粒子の捕集量を実測できなかったが、良好な分級ができていたことより、本試験条件の範囲では、微粒子搬送ガスへの粗粒子のまき込みによる精度悪化は起こらず、許容捕集量を超過していなかったと予想される。一方、カスケードインパクトでは、全ての粉じん濃度、サンプリング時間で $PM_{2.5}$ 濃度が推定値よりも高い値を示した。捕集量が多いのが原因で再飛散等が起こっているためではないかと考えられる。そこで、Fig. 12 に、カスケードインパクトでの $PM_{10-2.5}$ 捕集ステージの捕集量の経時変化を、VIS impactor での結果とともに示す。なお、図中の破線は Fig. 7 の結果から求めたそれぞれの捕集量の推定値である。VIS impactor では、サンプリング時間にかかわらず捕集量が推定値とよく一致している。カスケードインパクトではサンプリング時間が短いと推定値と一致したが、長くなるにつれ推定値よりも小さくなった。この推定値直線と捕集量との差は、 $PM_{2.5}$ 捕集ステージへ流入した粗粒子によるものと考えられる。直

線から逸脱し始める時間がおおむね10minであり、それに対応する捕集量5mg以上になると再飛散による影響が顕著にあらわれている。この値は、2. 1. 2で述べたメーカーが推奨したPM_{10-2.5}捕集ステージの捕集限度量である3mgと同程度である。この結果から、カスケードインパクト法では捕集量が多くなると再飛散が顕著になり、分級操作を終えた気流にカットオフ径よりも大きい粒子が混入するため、PM₁₀/PM_{2.5}の質量濃度を過大評価する恐れがあり、測定が捕集限度量の小さい狭い範囲に限られる。カスケードインパクトの1~5minの測定で、PM_{10-2.5}捕集ステージの捕集量が妥当な値であるにも拘わらず、PM_{2.5}濃度が過大になってしまった原因を考えるために、カスケードインパクトで測定した粉じん濃度を求めると、1min:34.8mg/m³、5min:25.4mg/m³、10min:29.7mg/m³と円筒ろ紙による測定値の18mg/m³から40%以上大きくなっていった。このことは、短時間測定では、操作上、十分な精度を得ることが難しいことを示している。

カスケードインパクトで捕集限度量を増加させる方法として、捕集板にグリースなどの粘着剤を塗布し捕捉性を増加させることで再飛散等の対策をとることができる⁹⁾。しかし、煙道中は大気環境より高温で反応性のガスを含む場合が多く、グリースの揮発や分解、反応等による質量変化が生じる恐れがあるため、やはり、正確なPM₁₀/PM_{2.5}の質量濃度計測が困難と考えられる。

一方、バーチャルインパクト法では分級後の粗粒子は捕集ノズルから吸引されるため、粒子の跳ね返りや再飛散が起こらない。したがって、捕集量によらず分級性能は安定しており、PM_{2.5}濃度を過大評価することはない。VIS impactorはグリース等を使用する必要が無く、固定発生源の煙道内における測定に適する可能性が高い。

なお、本論文では常温常圧下の空気を媒体とした粉じんについての性能試験に限られたため、実際の排ガスに比べ温度、ガス組成、特に水分量が大きく異なる。これらの影響については今後、実燃焼を伴う模擬排ガスや実排ガスで検討していく必要がある。

4. 結 論

本研究では、バーチャルインパクト法の煙道排ガス中のPM₁₀/PM_{2.5}質量濃度計測手法としての適用性について検討・実証するため、VIS impactorを製作し、実験室煙道でモデル粉じんを用いた分級性能試験を行い、カスケードインパクト、サイクロンとの比較を行うことによってその分級特性を評価し、以下の結論を得た。

- 1) VIS impactorの部分分離効率曲線は、ISO7708に規定される肺胞到達性粒子(High riskグループ)の通過率に近い分布を示した。また、50%分離粒子径や分級の鋭さを検討した結果、良好な分級性能を有することが確認された。
- 2) VIS impactorでは、本研究で行った試験範囲では粉じん濃度(1~25mg/m³)、サンプリング時間(5~60min)にかかわらず、サイクロンと同等に安定した分級性能が得られた。
- 3) カスケードインパクト法では、捕集板に高温測定に対応できるフィルタを用いたが、再飛散等によりPM_{2.5}を過大評価してしまった。また、捕集限度量を超えない条件でもサンプリング時間が短いと、十分な精度で測定するのは困難だった。捕集板にグリースなどを塗布すると再飛散等防止の効果が見込まれるが、煙道用にはグリースの高温での安定性を確保する必要がある。

以上より、VIS impactorではPM_{2.5}捕集ステージへの粗粒子の混入はみられず、捕集量に関係なく安定した分級性能が得られ、グリースなどを用いなくても再飛散が起きない構造であるため、高温・反応性雰囲気でのPM_{2.5}/PM₁₀排出挙動評価法に有効な分級捕集法として期待できるものと考えられる。

〔謝辞〕本研究は平成17-19年度NEDO「知的基盤創成・利用促進研究開発事業」、平成20年度NEDO「標準化調査研究事業」、平成20年度科学研究費補助金若手研究(B)(20710028)、平成20年度科学研究費補助金新学術領域の助成を受けて行った。記して謝意を表す。

Nomenclature

C_c : Cunningham's correction factor	(-)	d_{p50} : equiprobable cut size	(m)
D_0 : acceleration nozzle diameter	(mm)	d_{p75} : particle size at partial separation efficiency is 75%	(m)
D_1 : collection nozzle diameter	(mm)	d_{p25} : particle size at partial separation efficiency is 25%	(m)
D_v : diameter of VIS impactor	(mm)		
d_p : particle diameter	(m)		

L : length of VIS impactor	(mm)	S : separation distance	(mm)
L_0 : length of the acceleration nozzle's throat	(mm)	S_k : Stokes' number	(-)
Q_0 : total flow at ambient condition	(l/min)	U : velocity through acceleration nozzle	(m/s)
Q_1 : minor flow at ambient condition	(l/min)	η : viscosity	(Pa·s)
Q_2 : major flow at ambient condition	(l/min)	η_{ω} : partial separation efficiency	(-)
q_t : mass base distribution of fine particle	(-)	ρ_p : particle density	(kg/m ³)
q_0 : mass base distribution of collected particle	(-)	χ : sharpness of classification	(-)

References

- 1) Okuda, T., M. Katsuno, S. Tanaka, Y. Kondo, N. Takegawa and Y. Komazaki: "Measurement and source identification of trace metals in PM2.5 and PM1 collected by multi-nozzle cascade impactor in Tokyo metropolitan area, Japan", *Eurozoru Kenkyu*, **22**, 126-134 (2007)
- 2) Manoli, E., D. Voutsas and C. Samara: "Chemical characterization and source identification/apportionment of fine and coarse air particles in Thessaloniki, Greece", *Atmos. Environ.*, **36**, 949-961 (2002)
- 3) Querol, X., A. Alastuey, S. Rodriguez, F. Plana, C. R. Ruiz, N. Cots, G. Massagué and O. Puig: "PM10 and PM2.5 source apportionment in the Barcelona metropolitan area, Catalonia, Spain", *Atmos. Environ.*, **35**, 6407-6419 (2001)
- 4) Dockery, D. W., C. A. Pope, III, X. Xu, et al.: "An association between air pollution and mortality in six U. S. cities", *N. Engl. J. Med.*, **329**, 1753-1759 (1993)
- 5) ISO 7708: Air quality—particle size fraction definitions for health-related sampling (1995)
- 6) Senior, C. L., J. J. Helble and A. F. Sarofim: "Emissions of mercury, trace elements, and fine particles from stationary combustion sources", *Fuel Process. Technol.*, **65-66**, 263-288 (2000)
- 7) Maguhn, J., E. Karg, A. Kettrup and R. Zimmermann: "On-line analysis of the size distribution of fine and ultrafine aerosol particles in flue and stack gas of a municipal waste incineration plant: effects of dynamic process control measures and emission reduction devices", *Environ. Sci. Technol.*, **37**, 4761-4770 (2003)
- 8) Dzubay, T. G., L. E. Hines and R. K. Stevens: "Particle Bounce Error in Cascade Impactor", *Atmos. Environ.*, **10**, 229-234 (1976)
- 9) May, K. R.: "The cascade impactor: An instrument for sampling coarse particles", *J. Sci. Instrum.*, **22**, 187-195 (1945)
- 10) Lundgren, D. A.: "An aerosol sampler for determination of particle concentration as a function of size and time", *JAPCA*, **17**, 225-229 (1967)
- 11) Iinoya, K., S. Yuu, K. Makino and K. Nakano: "On measurement of particle size distribution by cascade impactor—In case of setting the clearance ratio three for round nozzle", *Kagaku Kogaku*, **33**, 689-698 (1969)
- 12) Kenny, L. C., T. Merrifield, D. Mark, R. Gussman and A. Thorpe: "The development and designation testing of a new USEPA-approved fine particle inlet: A study of the USEPA designation process", *J. Aerosol Sci.*, **32**, 338-358 (2000)
- 13) Conner, W. D.: "An inertial-type particle separator for collecting large samples", *Air Pollut. Control Assoc. J.*, **16**, 35-38 (1966)
- 14) Yoshida, H., K. Fujii, Y. Yonemoto, H. Masuda and K. Iinoya: "Classification performance of virtual impactor", *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **4**, 419-424 (1978)
- 15) Masuda, H. and T. Motooka: "Classification performance of a two-stage virtual impactor", *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **8**, 717-721 (1982)
- 16) Gotoh, K., Y. Miyawaki and H. Masuda: "Effect of acceleration distance on the classification performance of improved rectangular jet virtual impactor", *Eurozoru Kenkyu*, **3**, 212-220 (1988)
- 17) Lee, P., D. R. Chen and D. Y. H. Pui: "Experimental study of a nanoparticle virtual impactor", *J. Nanoparticle Res.*, **5**, 269-280 (2003)
- 18) Prasserttachat, T., A. Podgorski, J. H. Luckner, M. Furuuchi, L. Gradon, S. Suvachittanont and W. W. Szymanski: "Sampling and characterization of PM-fractions of ambient particulate matter in Bangkok utilizing a cascade virtual impactor", *Aerosol and Air Quality Research*, **6**(1), 67-81 (2006)
- 19) Hu, J. N. H.: "An improved impactor for aerosol studies—modified Andersen sampler", *Environ. Sci. Technol.*, **5**, 251-253 (1971)
- 20) Burton, R. M., J. N. Howard, R. L. Penley, P. A. Ramsay and T. A. Clark: "Field evaluation of the high volume particle fractioning cascade impactor", *JAPCA*, **23**, 227-281 (1973)
- 21) JIS Z 8901-1995: "Test powders and test particles"
- 22) JIS K 0302-1995: "Measuring methods for particle—size distribution of dust in flue gas"