

C-3 東アジアにおける酸性雨原因物質排出制御手法の開発と環境への影響評価に関する研究

(1) 酸性雨原因物質の排出制御手法の開発に関する研究

③ 民生用燃焼器具からの酸性雨原因物質の排出制御技術の実用化に関する研究

研究代表者、 厚生省 国立公衆衛生院 渡辺征夫

厚生省 国立公衆衛生院

地域環境衛生学部 環境評価室 渡辺征夫
環境健康影響室 後藤純雄

平成 9-11 年度合計予算額 14,178千円
(平成11年度予算額 4,765千円)

[要旨]

中国西南部（重慶，成都）や中国の他の地域（北京，西安，長沙）あるいは日本国内で用いられている各種焔炉や燃料などを用いた燃焼実験を行い，いくつかの代表的な燃料についての排出係数を算出した。いずれの燃料でもガス状汚染物ではCOがもっとも排出量が多く（40-150mg/g-燃料），NO_xやSO₂は燃焼状況や含有量に応じた排出をしていた。SO₂では，重慶産の練炭（硫黄含量；2.6%）の場合に，煙道濃度が200ppmを超える高濃度を示した。

いくつかの代表的な燃料について，その低減化技術を検討した。ガス状汚染物の中でもっとも排出が問題となるCOでは，ディスク状の磁製板を1-2cmの空隙で練炭上に設置することで，50%以上の低減効果が認められた。また，SO₂では，①ディスク状に成型した生石灰を練炭上に置いた場合では，顕著な低減効果は認められなかったが，②粒状の生石灰，③練って固めた粒状の粉状消石灰を燃焼中の練炭の約1cm上の金網の上に置いたときに，排出が40-55%に低減化する効果が認められた。さらに④材料に消石灰を2-10%混入することで，元の10%以下のレベルにSO₂を低減化することができた。

すなわち，練炭の燃焼焔炉の改善でCOの排出を，また製造過程を幾分変えることでSO₂の排出を90%程度カットできることが判明した。

[キーワード] 練炭，中国，排出係数，脱硫，一酸化炭素低減化，焔炉

1. はじめに

石炭を主原料としている練炭やブリケット（豆炭）は，安価で燃焼管理が比較的容易で，簡単な装置（コンロ）で長期間（10-50時間），安定した少量の熱量を得ることができ，民生用として，極めて優れた特性を有している。しかし，一般には，排煙処理がなされないため，酸性雨や地域汚染の基となる硫黄酸化物，窒素酸化物，あるいは一酸化炭素などのガス状物質やスモッグの基になる粒子状物質を大量に排出する。また，排煙設備も取り付けられていない例が多く，深刻な室内汚染招く危険を有している。

本研究では、現在、1人当たりでも世界でもっとも多く練炭・豆炭を使用している隣国の中国を対象に、現地化が容易な簡易な装置の改造や技術開発により、汚染物質の排出量の抑制をめざす。また、併せて、その効果を定量的に評価し、排出総量の抑制にどの程度寄与できるかも推定するために、現状の排出実態の解明も行う。また、練炭や豆炭の燃焼機構を解明し、技術開発の裏付けとする。

本研究では、中国西南部（重慶、成都）や中国の他の地域（北京、西安、長沙）あるいは日本国内で用いられている各種焔炉や燃料などの資材を調達し、それらを用いた燃焼実験を行い、いくつかの代表的な燃料についての排出係数を算出した。ガス状汚染物では、COがもっとも排出量が多く（40–150mg/g-燃料）、NO_xやSO₂は燃焼状況や含有量に応じた排出をしていた。SO₂では、重慶産の練炭（硫黄含量；2.6%）の場合に、煙道濃度が200ppmを超える高濃度を示した。

また、ディスク状の磁製板を練炭上に設置することで、深刻な室内汚染を引き起こすCOは、約85%に低減し、また、SO₂では燃料に消石灰を混入することで約90%の低減が実現できるなど、顕著な効果は認められた。

2. 実験・解析法

実験から解析に至る過程として、およそ、①種々の燃料を用いて、条件を変えながら燃焼実験を繰り返して、②各燃料と燃焼実験に応じた各汚染物の妥当な排出係数を推定する、③各種条件での排出係数の解析から、排出低減のための技術開発を考察、実証する、④その排出係数を用いて、ある地域や国、さらに世界的な総排出量を推定し、さらに低減可能な量を推定する---といった段階をとった。

2.1 燃焼実験材料

燃料としては、日本で製造販売されている①木炭、②バイオブリケット（“ホットコール”SS進和商事KK（札幌市白石区））、③練炭3種（“ふつうレンタン”、“着火レンタン”、“いっぽつレンタン”の商標、シナネン（東京都港区）製造販売）、それに④中国の北京、西安、長沙、重慶、成都の都市や地域で売られている市販の練炭---などを用いた。それらの元素分析値を表1および表2に示すが、それぞれの分析法は、燃焼性の炭素/水素/窒素；CHNコーダ、全硫黄；JIS M 8813（酸素燃焼-中和滴定法）、灰分；JIS M 8812（800℃強熱、重量法）で、外部に委託した（環境管理センター（東京都八王子）および中外テクノス（千葉市））。

また、脱硫実験用の生石灰は、岐阜県瑞浪産の粒体（粒径0.3–0.7mm）のもの、消石灰は四川龍塑膠制品有限公司（成都市西外犀浦鎮）産の粉末であった。

なお、中国産の練炭は、輸送中に砕けてそのままでは使えないものが多く、これらは水を加えて練ってから70–100g程度の扁平な円形（豆炭）に成形し乾燥後、実験に用いた。脱硫試験で消石灰を加えた時も同様に作業した。

2.2 燃焼実験

燃焼ガスは、燃焼用のコンロの真上に設けた四角錐状のフードで受け、図1のように、その下流のダクト部から分析用試料ガスを吸引し測定できるようにした。排ガス成分は主に、N₂、O₂、CO₂、CO、CH₄、N₂Oをマイクロセンサ・ガス分析計（200型日本タイラン製）を用いた。この分析条件は、AからM;Molec. S. 5A・PL0T10m, 90℃, 20psi, BからM;PoraQ・PL0T8m, 40℃, 20psiとして、

キャリアにはHeガス (0.99999以上)を用いた。本方法でのCH₄、CO、N₂Oの検出限界は、それぞれ約1.0、0.5、0.3ppmであった。

またSO₂をガス分析計 (43C型,サモエレクトロ社製), NO, NO₂, NO_xをNO_x・O₂ GAS ANALYZER (NOA-7000型, 島津製作所製) により連続測定した。排ガスの流速測定はピトー管 (理化精機工業K.K, 6x280) の圧変化を精密差圧計 (柴田科学器械工業K.K製, ISP-3-5S) で読みとり, 連続的に記録計 (東亜電波INR-6061) でモニターした。また燃焼温度や排ガス温度はK型熱電対で計測し, それぞれ連続的に記録した。なお, この際, 排ガスがフード外に出ないようにコンロの周りに金属製の囲いを置いた。

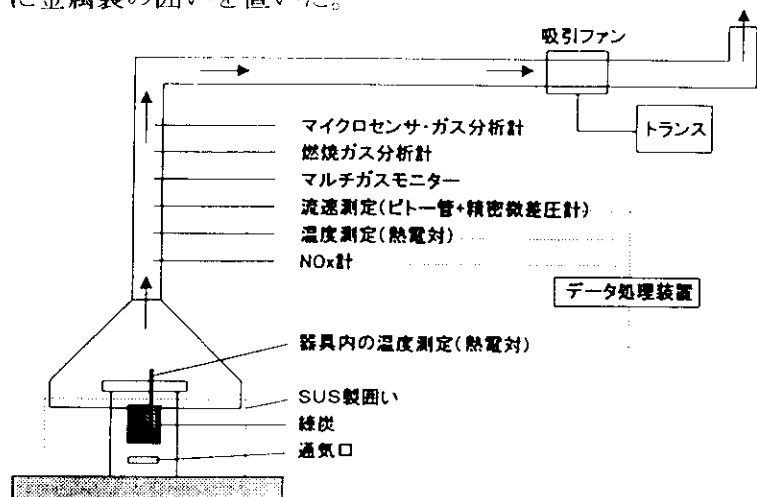


図1 燃焼試験装置

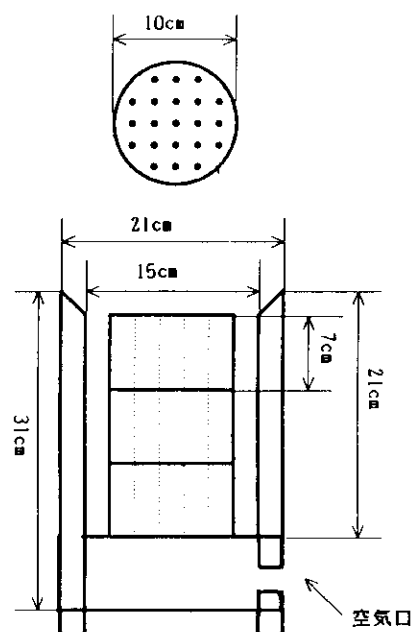


図2 中国製の練炭コンロ

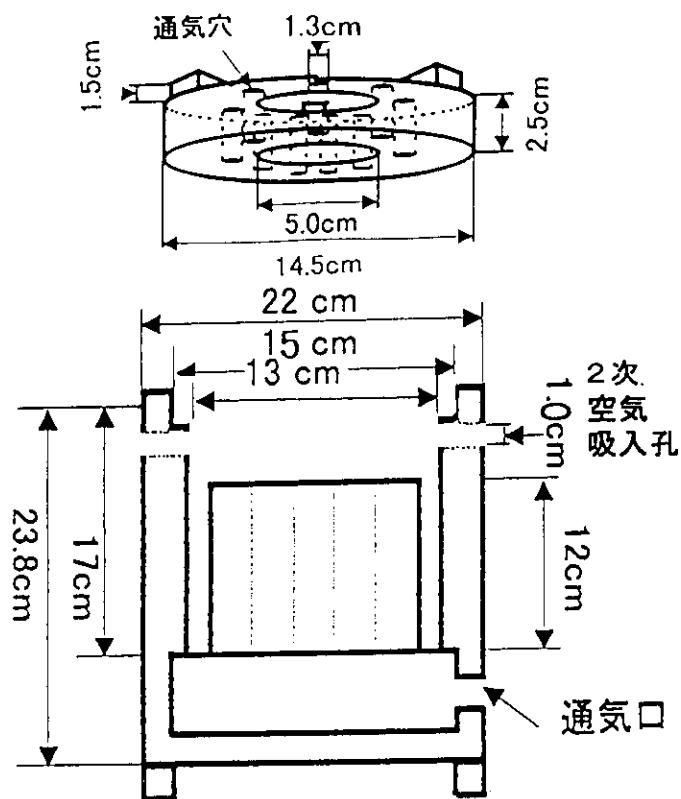


図3 日本製の上つけ練炭コンロ

表 1-1 実験に用いた燃料(国内入手)の元素分析値, 単位;%

燃料*	燃焼性			全硫黄	灰分	備考
	炭素	水素	窒素			
木炭-1	84.60	2.12	0.15	0.01	*	
木炭-2	79.60	2.14	0.22	<0.01	*	
木炭-3	81.90	1.43	0.45	0.01	*	
木炭-4	81.90	1.59	0.52	<0.01	5.2	
Mean=	82.00	1.82	0.34	*	*	
SD=	1.77	0.32	0.15	*	*	
バイオブリケット	67.40	4.15	0.57	0.14	12.8	
普通練炭	47.10	1.55	0.95	0.45	27.5	
着火練炭-1, 上部	62.50	2.60	0.73	0.22	14.0	) 同一練炭
着火練炭-1, 下部	52.70	1.59	0.58	0.45	26.5	
着火練炭-2, 中心部	67.40	1.45	0.80	0.59	25.1	) 同一練炭
着火練炭-2, 周辺部	70.80	1.93	0.81	0.33	17.8	
一発練炭, 点火部	54.70	1.99	4.08	<0.01	28.7	) 同一練炭
一発練炭, 本体	48.60	1.58	0.48	0.42	25.0	

* 着火練炭; 着火しやすいように練炭の上部の配合に工夫した練炭。
一発練炭; マッチなどで簡単に着火するように点火部を有する練炭。

表 1-2 実験に用いた燃料(中国産)の元素分析値, 単位;%

燃料	燃焼性			全硫黄	灰分	備考
	炭素	水素	窒素			
西安練炭-1	43.20	0.42	0.48	0.38	*	
西安練炭-2	63.90	1.84	0.80	0.53	32.3	
北京練炭-1	59.30	<0.01	0.25	0.24	*	
北京練炭-2	61.40	<0.01	0.22	0.19	35.1	
長沙練炭	44.00	0.88	0.63	0.60	48.8	
重慶練炭	46.80	2.07	0.68	2.60	43.5	
原炭; 天府炭鉍	59.20	*	*	2.40	22.1	) 参照; 文献1)
南桐炭鉍	49.70	*	*	3.30	30.2	
松藻炭鉍	69.80	*	*	2.50	14.4	
成都練炭						
練炭-1	53.8	2.3	0.6	0.31	37.3	
練炭-2	49.7	2.4	0.4	0.3	40.3	
練炭-3	50.2	2.9	0.6	0.31	39.1	
練炭-4	49.5	2.3	0.5	0.27	41.2	
練炭-5	44.2	2.1	0.87	0.43	43.0	
Mean=	49.48	2.4	0.59	0.32	40.2	
SD=	3.07	0.27	0.16	0.05	1.9	

今回用いたコンロは、練炭用が品川燃料KKから販売されている上つけ型コンロ4号用（参照；図3，イソライト建材製および太成コンロ（石川県，七尾市）製），および中国武漢黄合炉具廠HBW-92W型コンロ（参照；図2），他中国製2種，また炭火用には木炭コンロ（三河特撰）である。図2のタイプは最大3個の練炭を同時に入れておくことができ，最低部の練炭が燃え終わり火が次に移るとそれを除いて，上部に新しいものを補うことができるようになっている。

また，このほかに燃焼機構を解明する一助として，練炭内部の小空間の燃焼ガスを直接分析することも試みた。測定は，マイクロセンサ・ガス分析計の試料吸入口に，長さ50cm，外径1/16インチのSUS管を付けて，それを直接燃焼中の練炭部に差込，内部を底部から上部，さらにその上部の“2次燃焼部”まで9カ所を移動して，それぞれの部分のガスを取り込めるようにした。その際，同時に熱電対により試料採取部分の温度もモニターした。

2.3 排出係数の推定手法

排出係数は以下の計算式(1)～(4)で求めた。

$$EF1 = [\sum (T \cdot C_n \cdot F) \cdot Mnw] / [V \cdot Wt] \quad \text{----- (1)}$$

$$EF2 = [\sum (T \cdot C_n \cdot F) \cdot Mnw] / [V \cdot Wb] \quad \text{----- (2)}$$

$$EF4 = [\sum (T \cdot C_n \cdot F) \cdot Mnw] / [V \cdot Wc] \quad \text{----- (3)}$$

$$EF3n = [C_n \cdot Mnw] / [CCO2 \cdot 12] \quad \text{----- (4)}$$

ここで，

T ; 持続時間 C_n ; 排ガス中のn成分の濃度

CCO₂ ; 排ガス中のCO₂濃度 F ; 排ガス流量

Mnw ; n成分の分子量 V ; 1モル量の体積

Wt ; 木炭or練炭or豆炭の乾燥重量

Wb ; 木炭or練炭or豆炭が燃焼して変化した量

Wc ; 排出二酸化炭素濃度から推定した燃焼した炭素量

このように，ここでは，4種の排出係数を求める式を示す。それらは，燃焼の開始から終了までに排出されたそれぞれの排ガス総量を燃料の乾燥重量で割る方式→(1)式，燃焼して減少した量で割る方式→(2)式，燃焼炭素量で割る方式→(3)式，排ガス中のCO₂濃度から求めた炭素分に対する排出係数をそのときどきで求める方式→(4)，などである。

1回の燃焼実験を通じて，濃度測定間隔および排ガス吸引速度を一定に保つと，(1)～(4)式は，たとえば(5)の様に簡単となる。

$$EF1 = Ta \cdot F \cdot Mnw \cdot \Delta v / [V \cdot Wt] \quad \text{----- (5)}$$

ここで， Ta ; 燃焼の開始から終了までの時間，

Δv ; 成分nの平均濃度

2.4 排出係数から総排出量の推定

これには，その時に得られるデータの種類によって，燃料重量基準と発熱量基準の2種類が考えられ，目的や状況で使い分ける。

(1) 燃料重量基準；これに必要な数値としては，燃料（重量）基準の排出係数，燃料使用量（乾燥基準），燃料中の灰分量，燃料（練炭）中に加えた粘土などの量。

(2) 発熱量基準；これに必要な数値としては，発熱量基準の排出係数，発熱量換算の燃料使用量（乾燥基準）。

ここで，(2)に方式の方が，必要な数値は少なく済むが，発熱量推定の際，総計数値そのもの

に大きな誤差を含むのが問題となる。(2)の場合に、燃料の発熱量を炭素量から推定する式が提案されているので、それで推定した数値を代わりに用いると便利である。すなわち経験式として(6)式が提案されている(日鉄化学工業カタログ, NITERON 1) ;

$$\text{発熱量 (Hv, cal/g)} = 112.1 \times \text{炭素量 (C, \%)} - 837 \quad \text{---- (6)}$$

[ただし, C (%) が85%より少ない場合のみ]

3. 結果と考察

3.1 使用した燃料の量と質

表1および表2に国内および中国で入手した燃料の元素分析値を、燃焼前後の重量の差を表3に示す。元素分析値の合計は100%にならないが、このほとんどは水分と見られる。しかし、シリカゲル・デシケータで乾燥しても、最大3%程度の重量減少が認められるだけであった。

燃焼性炭素の量は木炭が多く、灰分は練炭、バイオコーク、木炭の順であった。練炭の比較では、中国産の練炭は灰分を日本の2倍近く含んでいて、燃焼性の炭素が少ないことが注目された。そのことは、表3に示す燃焼後の灰の量でも裏付けられる。木炭では、灰量は燃料の4%以下でほとんどが燃焼してしまうのに対し、日本練炭では約25%、西安練炭では約35%、北京練炭では47%が灰として残る。特に、練炭が輸送中に崩れたものをねって扁平の豆炭状に固めたものでは、もとの練炭よりも燃焼率はさらに低下した。これは、練炭に較べて燃焼部分の伝播が阻害されるため、「豆炭」の表面部分はよく燃焼するが中心部は不燃分が多く残ってしまうためである。

中国製の練炭の灰分や燃焼灰が多いのは、中国でそれらを製造する際に、石炭粒を練炭に成形する粘結剤に粘土を用いるためである。これにより、中国では練炭の製品や燃焼灰の処理や輸送にそれだけ余分なエネルギーや空間を消費することになる。なお、日本では練炭の成形はパルプ黒液などを加えて強圧で押し固めるので、粘土はほとんど用いられていない。

また、日本では目的の応じて種々の練炭を製造している。メーカーの話では、7,8種の物質を層状あるいは混合して用いて、着火性や熱量の調節をしているとのことである。表1に国内製の3種の練炭の元素分析値を示すが、燃焼性炭素や灰分の量は種類や部分により差が見られた。

汚染との関係で問題となる燃焼性硫黄の量は、木炭が著しく低く、重慶の練炭や原炭が2%を越える量であった以外は、0.2-0.6%の範囲であった。

燃焼性の水素量は、バイオコークが4.15%で他の1.5-3倍と多かったが、これは燃焼性を高めるために生物繊維(ここでは広葉樹バール材)を加えているためであろう。

中国の練炭でもっとも詳細に検討できたのは、輸送中の振動などに耐えて形が維持されたままのものが、比較的多く確保できた成都市内で製造販売されている練炭である。この石炭は、重慶産の練炭のような高い硫黄含量は示さず、表1の元素分析値で分かるように、中国の他の地域のものに類似した元素組成を有していた。この硫黄含量であっても、無処理のまま排ガスが大気に放出されれば深刻な大気汚染を引き起こし得る。

成都練炭の5検体の元素組成はかなり安定しており、添加剤や燃焼条件を変えて比較するのに適していると考えられた。西安練炭は、表2で見られるようにかなり不均一であった。

表3から各練炭の大きさを比較すると、日本製は重量がありその変動も少ないが、中国製は一般に小さく、変動が大きいといった差があった。なお、豆炭は特別に注意して作成しなかったもので1個ごとの変動は大きくなった。

3.2 燃焼灰の量と元素組成

表2の燃焼灰の元素組成をみると、木炭の灰に燃焼性の炭素（未燃炭素量）が多く認められた。これは、灰の全体量が少ないので、わずかな炭の粉が灰に混じっただけでも比率が多くなるためである。また、日本の練炭の灰は、未燃炭素量が0.4-1.6%と低レベルで安定していたが、中国の練炭の灰は、燃焼が不十分となるため、未燃炭素量が一般に多く、かつ大きく変動した。

このことは、燃料として利用できる部分を廃棄物にしてしまうことになり、燃焼効率の低下と廃棄物量の増大という2重の問題を含んでいる。

表 2-1 燃料実験で生じた焼却灰(残渣)の元素分析値, 単位;%

燃料		燃焼性			全硫黄	灰分
		炭素	水素	窒素		
日本木炭	灰-1	7.96	0.20	<0.01	0.63	59.4
	灰-2	12.40	<0.01	<0.01	0.61	*
	灰-3	22.00	<0.01	0.01	0.24	*
日本製ハイブリット		1.24	0.13	<0.01	0.72	95.4
日本練炭	灰-1	1.16	<0.01	<0.01	0.95	98.5
	灰-2	1.62	<0.01	<0.01	1.12	97.3
	灰-3	1.14	<0.01	<0.01	1.02	97.4
	灰-4	0.99	0.10	<0.01	1.09	97.4
	灰-5	0.82	<0.01	<0.01	0.98	*
	灰-6	0.28	<0.01	<0.01	0.44	*
	灰-7	0.41	<0.01	<0.01	1.07	*
	Mean=	0.92	*	*	0.95	97.7
	SD=	0.43	*	*	0.22	0.5
西安練炭	灰-1	1.00	<0.01	<0.01	0.10	*
	灰-2	1.14	<0.01	<0.01	0.60	*
	灰-3	13.70	<0.01	0.05	0.16	*
	灰-4	5.40	<0.01	<0.01	0.40	*
	灰-5	13.70	0.05	0.05	0.46	81.2
	灰-6-1	2.06	<0.01	<0.01	0.24	90.7
	灰-6-2	4.63	<0.01	<0.01	0.37	89.8
	灰-6-3	5.62	<0.01	<0.01	0.12	89.7
	Mean=	5.91	*	*	0.31	87.9
	SD=	4.81	*	*	0.17	3.9
北京練炭	灰-1	7.51	<0.01	<0.01	0.34	*
	灰-2	2.57	<0.01	<0.01	0.26	92.2
	灰-3-1	9.15	<0.01	<0.01	0.15	84.3
	灰-3-2	14.20	<0.01	<0.01	0.33	76.8
	Mean=	8.36	*	*	0.27	84.4
	SD=	4.15	*	*	0.08	6.3
長沙豆炭	表面灰	2.60	<0.01	<0.01	0.23	*
重慶練炭	灰	15.80	0.02	0.10	0.58	85.5

表 2-2 消石灰混入の成形豆炭の焼却灰の元素分析値, 単位; %

燃料*	燃焼性			全硫黄	灰分
	炭素	水素	窒素		
消石灰混入率, %					
0	8.80	0.30	0.05	0.21	88.9
2	7.20	0.20	0.05	0.67	89.8
5	5.10	0.10	0.05	0.84	91.8
10	6.20	0.10	0.05	0.97	89.6

注 ; 成形豆炭 : 都練炭を粒状に砕いて所定量の消石灰 (重量割合) を加えて直径5cm程度の扁平円形に成形したもの。

表 3 燃焼実験の際の各種燃料の元重量と燃焼後の灰重量

		元重量, g	灰重量, g	燃焼量, g	燃焼比率, %	試料数
木炭	平均=	463.4	16.6	446.8	96.2	5
	偏差=	256.4	8.8	248.9	0.9	
日本練炭 (イッパツ)	平均=	1286.0	322.8	963.2	74.9	9
	偏差=	15.7	15.7	15.1	1.1	
西安練炭	平均=	615.0	217.3	397.7	64.4	6
	偏差=	31.3	21.7	50.3	5.5	
北京練炭	平均=	976.5	455.0	521.5	52.7	2
	偏差=	97.5	19.0	116.5	6.7	
北京練炭 (豆炭)	平均=	81.6	61.1	20.5	25.5	8
	偏差=	16.7	13.8	3.2	2.3	
長沙練炭 (豆炭)	平均=	103.2	66.1	37.1	36.1	17
	偏差=	13.1	10.9	6.3	5.2	

燃焼性の水素や窒素はいずれも僅かであった。全硫黄の値は、日本製の練炭では、燃焼で消失する量を入れると燃料の中の全硫黄はほぼ灰に残留すると見られるが、中国製の北京、西安、長沙、成都、重慶のいずれの場合も、50%以上の硫黄分が大気に放出されているように見られる。特に、重慶の練炭では顕著であった。なお、表2-2の消石灰を混入した結果は、3.5節で詳述する。

3.3 汚染成分の排出状態

国内産の練炭を用いて、コンロの通気口を開放および閉鎖した場合の燃焼に伴い排出される CO_2 、 CO 、 NO_x の時間変化を見た。燃焼時間は、通気口を開放した場合には閉鎖したときの約3分の1と短くなった。両者の比較から：通気口が開放の状態での最大 CO 濃度は約1700ppmであるが通気口が閉鎖の状態での最大 CO 濃度は約500ppmに減少した、全燃焼時間を通して条件が異なっても CO 総排出量はほぼ同じであった、通気口開放の場合、燃焼の初期に CO_2 に比較し

て相対的にCOの排出量が多くなる、NO_xの変化は通気口閉鎖の方が総排出量が多くなる、SO₂では総排出量・最大濃度とも両者の差はあまりみられなかった、などの現象が観測された。

中国、北京付近で使用されている練炭についての点火から燃焼終了までの排ガス成分の変化の例では、排ガス成分の排出パターンには、COやCH₄のように燃焼の初期や追加の練炭を加えたときに高濃度を示すものと、SO₂やNO_xのように燃焼の進行（CO₂の排出）と比較的よい相関を持って変動するものとの2種がみられた。

また、比較のために行った木炭では、通気口を開放して測定を行った結果、COの変化は練炭と同様、燃焼初期に高濃度のピーク(1600ppm)が観測された。しかし、SO₂とCH₄は木炭の燃焼では観測されなかった。

3.4 排出係数の推定

表4の排出係数は、測定数も少なく確定的なものではないが、空気を取り込み状態が最もよい条件の例でも汚染物のうちでCOの排出が最も量的に多かった。特に中国で一般的となっている燃焼中の練炭の上に、新しいものを継続的に加えていく方式であると、加えた直後に汚染物(特にCO)の急激に増加するのが観測された。

SO₂、NO_x、CH₄はおよそ同程度で、20mg/g以下であった。SO₂は、脱硫剤を混入しない限り燃料中の硫黄分からの推算値と一致すると予測され、上記例では、北京練炭、日本練炭とも、燃焼率を勘案するとおよそ一致していた。

また、日本製バケツ炭“HOT COAL”では、幾分COの排出が少なく、CH₄の排出は約2倍であることが分かった。これは、植物繊維素を加えたことで、燃焼性が増したことに起因すると推定された。また重慶で使用されている円形練炭の2種の結果では、従来の10倍程度のSO₂の排出係数が観測された。

表 4 各汚染成分の排出係数 (EF1) [mg/(g・燃料)]

燃料	空気 供給量	汚染ガス			
		CO	NO _x	SO ₂	CH ₄
日本木炭	少	92	0.76	1.2	0.55
	多	103-322	0.64-1.4	0.67-0.89	0.42
日本練炭	少	61-141	0.17-8.0	1.1-5.0	0.80-2.5
	多	46-120	0.41-2.0	2.4-7.2	0.46-6.2
日本製バケツ	多	40	0.4	2.4	1.2
		70	0.2	3.5	2.2
中国練炭 (北京, 西安, 成都)	多	74-93	2.4-2.6	5.3-9.3	0.13-7.8
重慶練炭	多	87	2.2	59	1.0

3.5 練炭内部のCO濃度の変動

練炭内部の燃焼ガスの分析結果は図4のようになった。なお、図4の採取位置とは練炭の上面を0 cmとし、その面から何cmだけ深さ方向で採取したかということを表し、負の値は練炭の上面からの距離を示している。

すでに、我々は練炭の内部ではCO₂よりもCOの方が多く、濃度も10%近くになることもあり、練炭上面から4～5 cm内部では約4倍となっており、燃焼は、まずCOが生成してそれがCO₂に変換されることにより成立していることを認めている（これまでの成果の1)）。今回、その詳細を時間を追って解析した例を示したが、点火して約1時間後（図4, a）では最大CO濃度は比較的底部にあるが、時間と共に上方に移動してくるのが分かる。これは温度で見たときの燃焼層と密接に関係していると思われるが、温度の最大値よりもCO最大値は幾分上方にあった。このことは、COの生成は燃焼部と共に、その上部でも生成していることを示唆していた。

また、燃焼部で生成した%オーダーのCOは、練炭部から出ると直ちに周囲の酸素と化合し、CO₂に変化することも判った。しかし、一部のCOが酸化されないでCOのまま放出され、ppmオーダーの排ガス濃度として観測された。

3.6 中国に於ける総排出量の一次推定

広大で使用量も多い練炭や豆炭の総使用量を正確に求めることは困難であるが、概要を知ることが可能である。橋本氏が入手した資料³⁾によれば、中国の1990年と2000年の生産目標として、民生用石炭総量、成型炭総量、練炭量、豆炭量は、それぞれ、16700, 3700, 3200, 350 ; 15400, 8000-9500, 6900-8200, 760-900万トンとなっていて、石炭の総使用量は少なくするが、練炭などの成型炭を増加させ、その比率を22%から50-60%に上げることを考えている。

それで、90年代の末の練炭使用量を約6000万トンとすれば、それに伴うCO（排出係数；50-100mg/g）、NO_x（1-3）、CH₄（0.2-5）の排出量は、およそ3-6Tg/年、0.06-0.18、0.01-0.3となる。NO_x排出量で比較すると中国全体（6.7Tg/年⁴⁾）の3%と程度と少ない。SO₂については脱硫の効果が無視できる限り燃料使用量から推定でき、総SO₂排出量；21Tg/年³⁾）の約90%が石炭で、練炭がその5%とすれば、総発生量の4.5%（約0.9Tg/年）となる。これは、我々の排出係数で15mg/gに相当し、逆に我々の実験の妥当性が検証できたと言える。

また、COについては全世界で人為的な発生総量は、約500Tg/年と言われており（WM0, 1986）中国の練炭だけでその約1%をしめるほど重大な発生源であることが分かった。

3.7 COおよびSO₂の低減技術の探索

3.7.1 コンロ上部に磁製円盤ディスクを設置した場合

ディスク板を設置するとNO_x, CH₄, SO₂, CO₂には濃度変化は見られなかったが、CO濃度は減少した。それは一時的でも有効であったし（参照、図5）、また、継続的に設置すると燃焼を通して有効なことが、経時的な排出係数でも、全体の排出係数でも実証され、もディスク板の無いときの約50%減少した（参照、図6）。これらのことからCO排出を低減するには、ディスクを設置することが有効であることが分かった。

ディスク板の設置により練炭上面とディスク板の間で、二次燃焼室とも言うべき保温効果を持つ空間ができ、その部分でCOがO₂と化合しCO₂に成り、結果としてCOの低減化につながっ

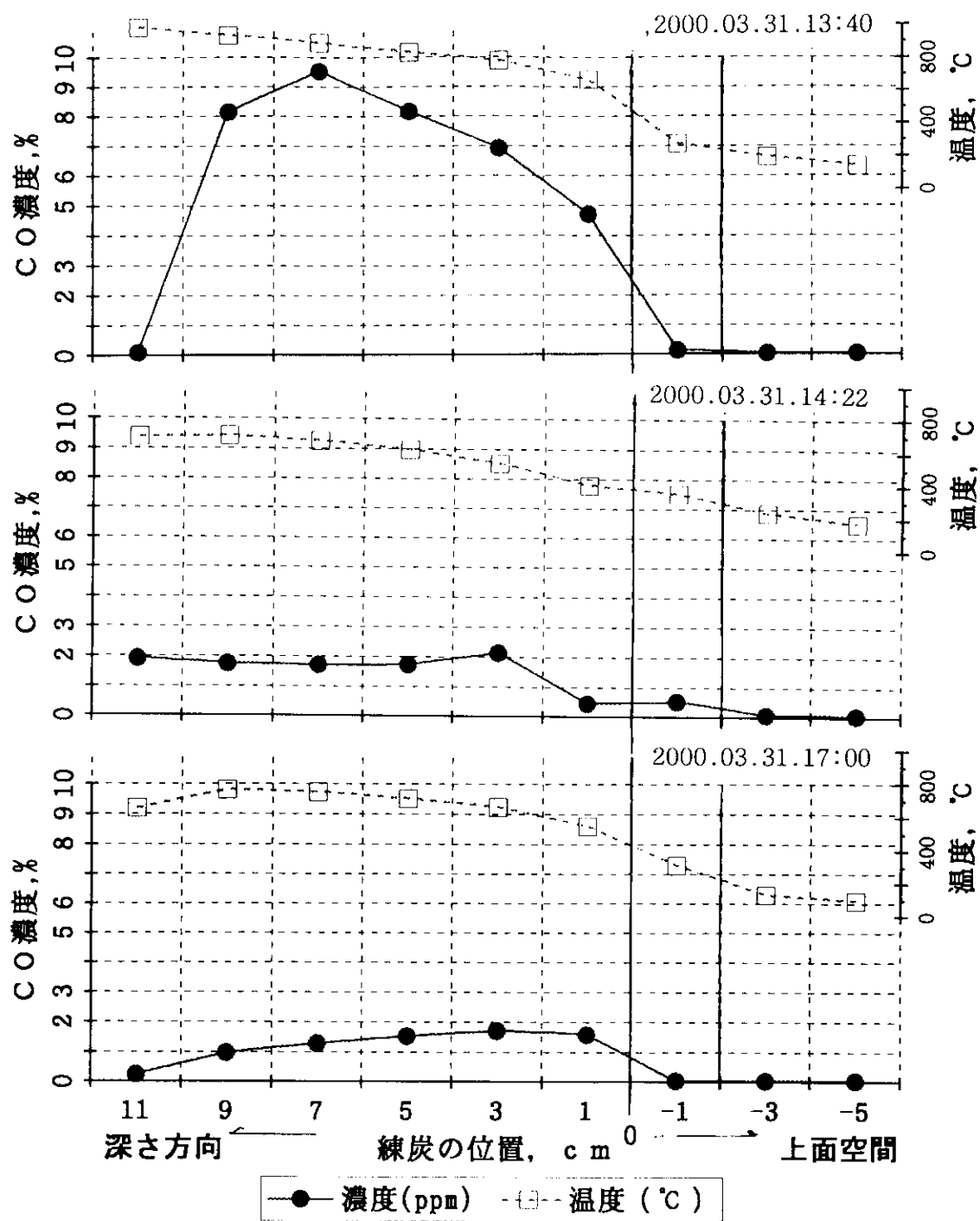


図4 練炭燃焼時の温度とCO濃度の変動

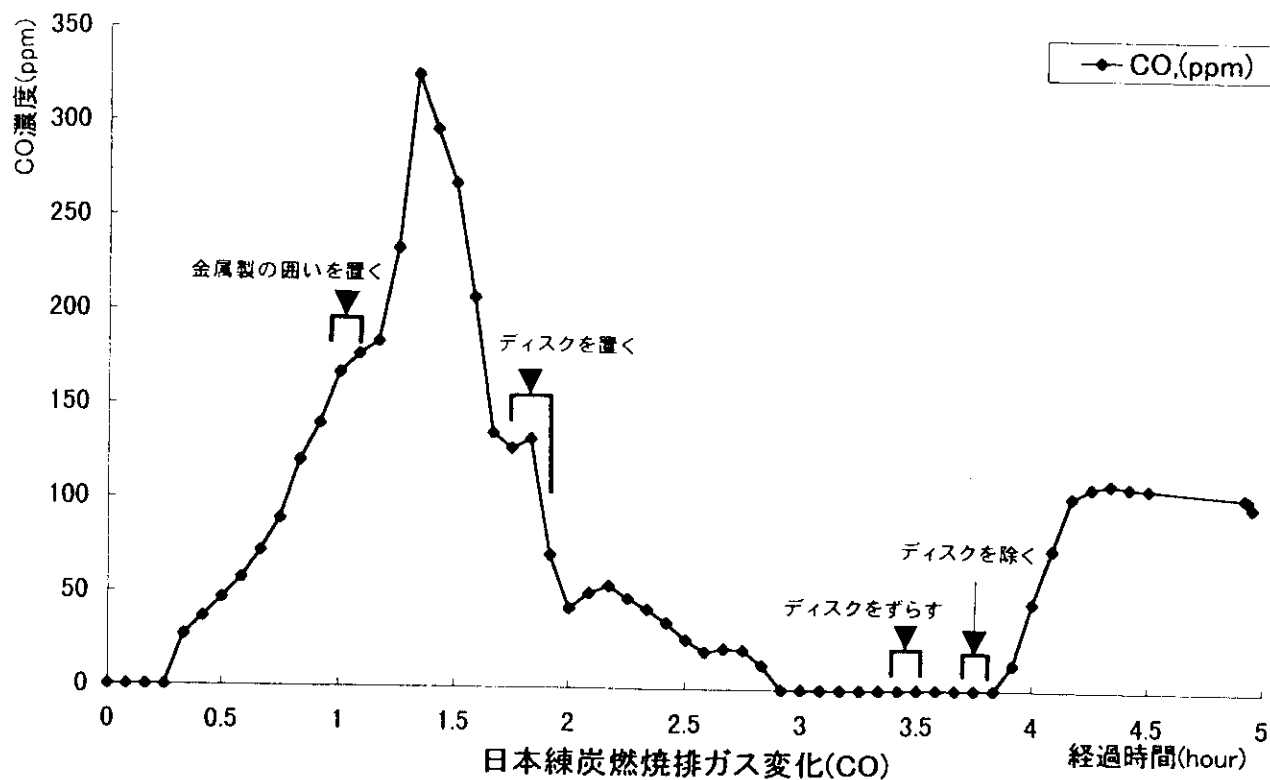
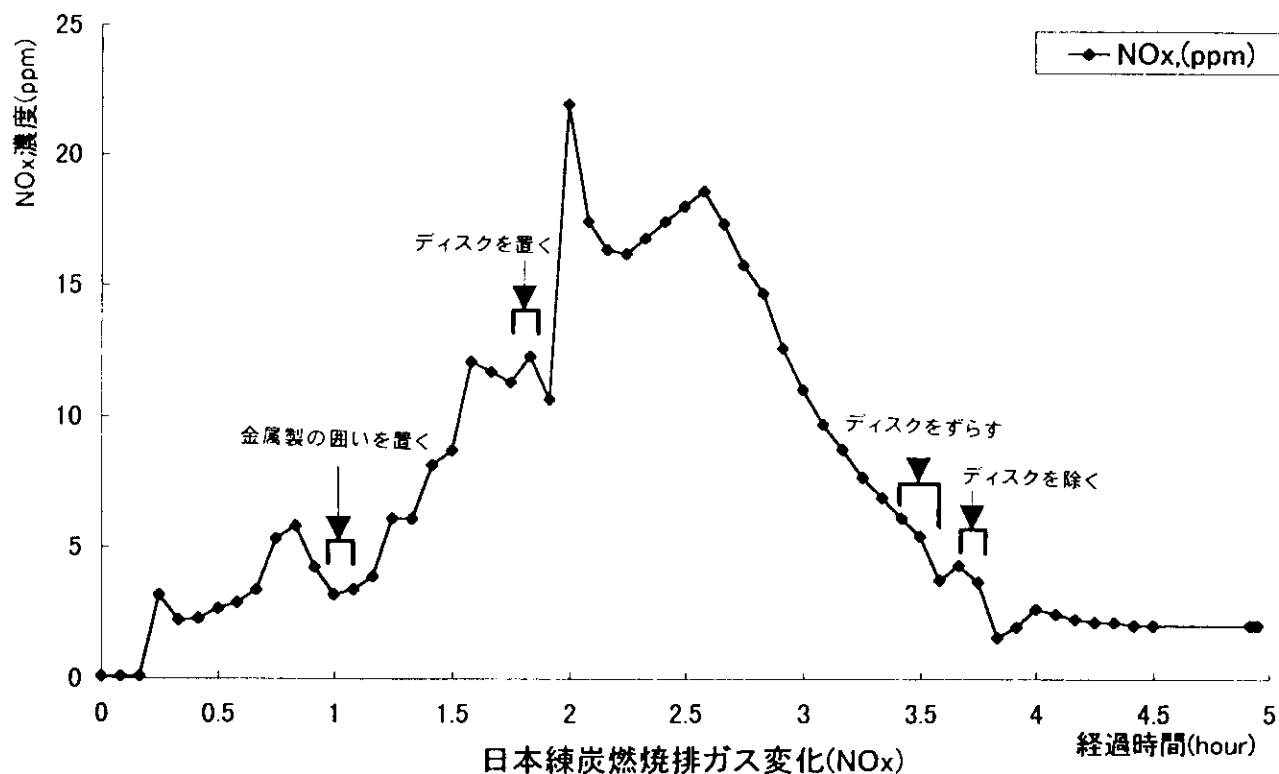


図5 磁製ディスク板をコンロ上面に設置したときのCOおよびNO_x排出濃度の変化

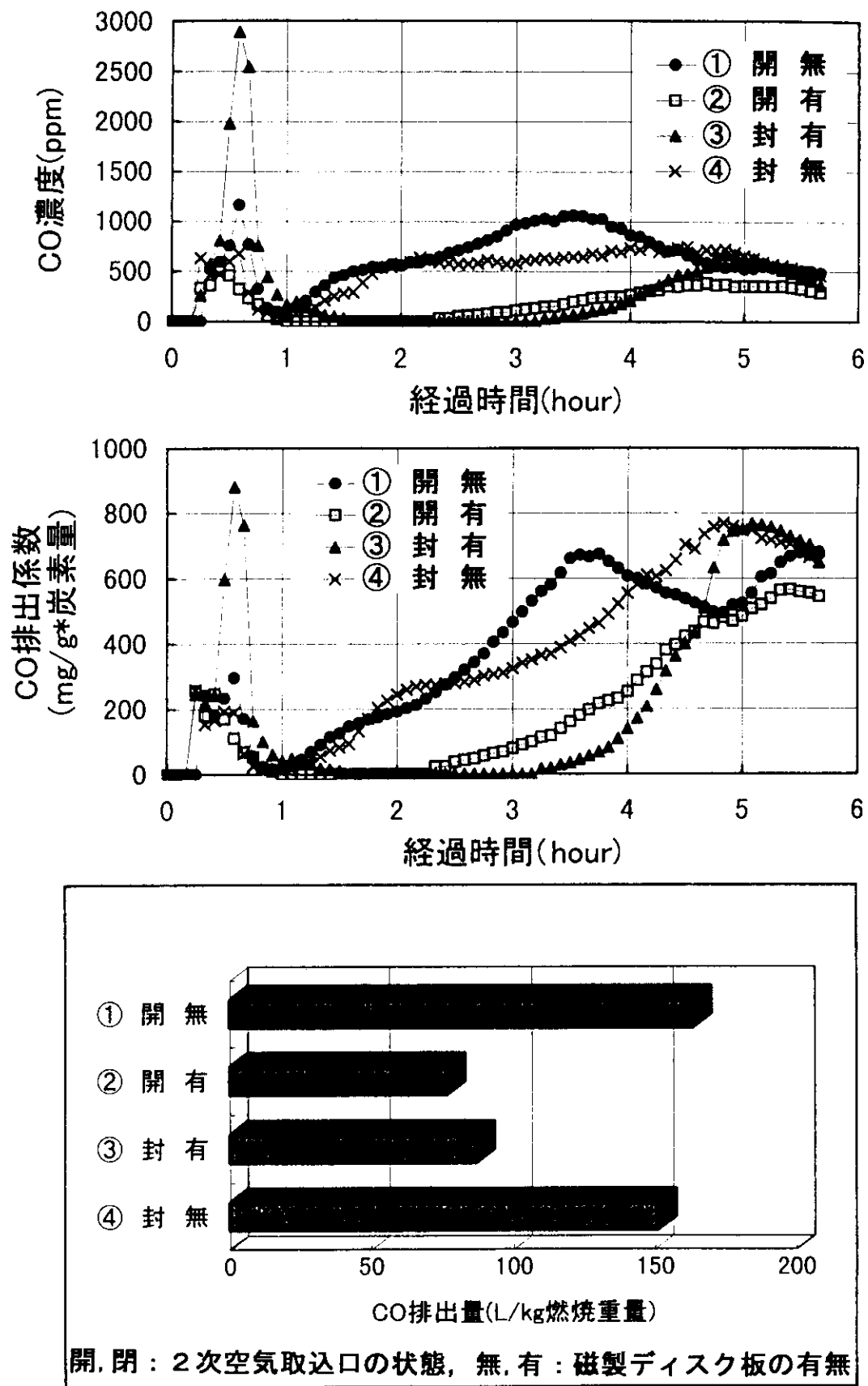


図6 日本製コンロでの磁製ディスク板および2次空気取込口の状態とCO排出との関係

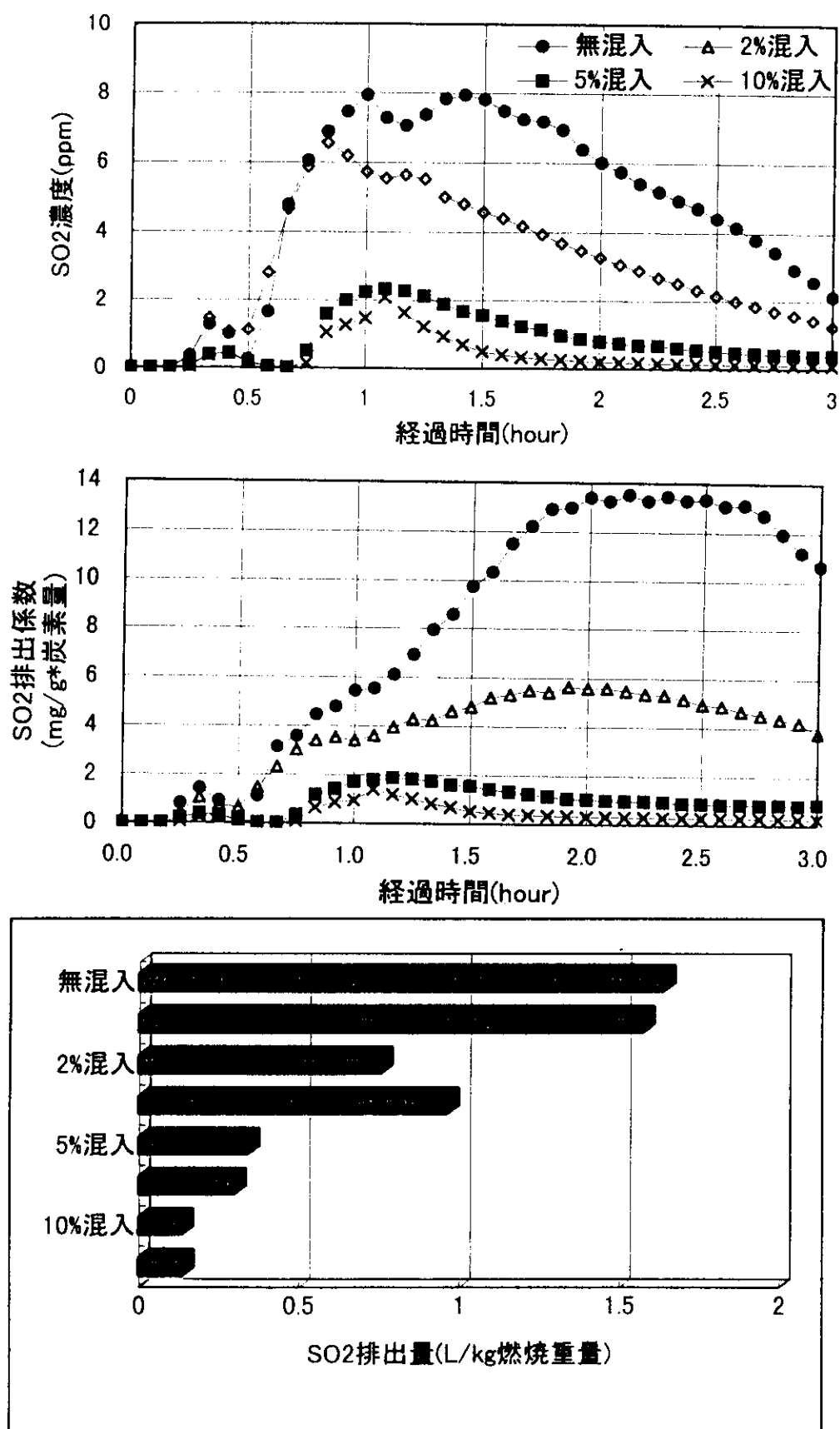


図7 消石灰混入率とSO₂排出との関係

たものと推定される。しかし、その低減の度合いは、燃焼時期により大きく異なり、図6に見られるように、初期と晩期には余り効果が無いが、中期に著しい差が生じることが分かった。

3.7.2 コンロ上部に消石灰層及び生石灰層を置いた場合

石灰を設置するとNOX, CH₄には濃度及び排出係数変化は見られなかったが、SO₂濃度及び排出係数は減少し、排出係数でみると生石灰設置時では40%、消石灰設置時では55%減少した。これは石灰がSO₂と化合してCaSO₄（セッコウ）に変化するため、結果としてSO₂排出の低減化につながったものと推定される。以上のことからSO₂排出を低減するには、石灰が有効であることが解った。また、消石灰の方が生石灰より硫黄固定効果が大きいことも確認した。

また、SO₂排出係数変化の表から、燃焼後期に多量のSO₂が排出されていることが解った。これは初期の燃焼により練炭下部で生成したSO₂が練炭上部に吸着され、それが燃焼後期に脱離してくるためと推定される。

3.7.3 粉末練炭に消石灰を混入し豆炭に成型した場合

消石灰を混入してもNOX, CH₄, CO, CO₂濃度及び排出係数に大きな変化は観られなかったが、SO₂では2%の重量比の石灰を加えると約55%、5%以上の重量比の石灰を加えると約85%のSO₂の排出を低減化できることが分かった（参照、図7）。燃焼時期で見ると、全般に消石灰混入の効果が認められるが、極初期、中期から晩期により効果的に作用していることが分かる。SO₂排出係数の経時変化から、消石灰を混入しないと、練炭と同様に豆炭の場合も燃焼後期（焔炉の上層で燃焼）にSO₂の排出係数が増大するが、混入によりこの時期の放出が低減化されていた。これら低減化されたSO₂は灰に固定されていると推定されるが、表2-2の焼却灰の元素分析値の結果はそれを裏付けていた。

謝辞

この研究を進めるに当たって東洋大学工学部応用化学科、七里玄吾君および牧岡愛美さんに助力いただいた。また、資源環境技術総合研究所の鈴木善三氏および華西医科大学公共衛生学院の孫成均氏からは、生石灰あるいは消石灰の供与と貴重な助言をいただいた。協力をいただいた皆様に深く感謝いたします。

4. 参考文献

- 1) 渡辺征夫，後藤純雄，溝口次夫，後藤康男，王青躍，北村必勝．中国西南部の酸性雨原因物質の排出制御のための総合対策立案手法に関する研究．地球環境研究総合推進費平成8年度終了研究成果報告書（Ⅱ），環境庁地球環境部研究調査室発行，1997;35-51
- 2) 燃料協会 編； 最新燃料便覧，コロナ社，p. 99-125，1984
- 3) 橋本吉昭；中国環境ハンドブック（定方正毅 編），p. 224-247，1997.
- 4) 東野晴行，外岡豊，柳沢幸雄，池田有光：東アジア地域を対象とした大気汚染物質の排出量推計—中国における硫黄酸化物の人為起源排出量推定，大気環境学会誌，30，374-390，1995
- 5) 東野晴行，外岡豊，柳沢幸雄，池田有光：東アジア地域を対象とした大気汚染物質の排出

量推計（Ⅱ）－中国におけるNO_x、CO₂排出量推計を中心とした検討，大気環境学会誌，31，262-281，1996

5. 研究成果の発表状況

(1) 原著論文

- ① I.Watanabe, M.Nakanishi, J.Tomita, S.Hatakeyama, K.Murano, H.Mukai and H.Bandou.
Atmospheric peroxyacyl nitrates in urban/remote sites and the lower troposphere
around Japan, *Environmental Pollution*, **102** (S1), 253-261 (1998).

(2) 口頭発表

- ① I.Watanabe, H.Tanaka, K.Aiuchi, T.Ishii; Emission of gaseous pollutants from the combustion of briquet at cooking stove, Abstract fo 7th Asian Chemical Congress, Hiroshima, p.108 1997.
- ② 渡辺征夫，七里玄吾，谷口正訓，田中弘充，石井忠浩；練炭などの家庭用燃料からの汚染物の排出機構解明および中国における排出総量の一次推定，第39回大気環境学会講演要旨集，札幌．1998.9；p. 249
- ③ 渡辺征夫，七里玄吾，牧岡愛美，泉 克幸，鈴木善三；練炭燃焼により排出されるガス状汚染物質の低減化対策，第40回大気環境学会講演要旨集，津．1999.9；p. 331