

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 9 日現在

機関番号：12605

研究種目：基盤研究(B) (海外学術調査)

研究期間：2013～2015

課題番号：25303027

研究課題名(和文) 固定発生源からの微粒子状物質排出挙動の国際的調査

研究課題名(英文) International research for fine particle emission behavior from stationary sources

研究代表者

神谷 秀博 (Kamiya, Hidehiro)

東京農工大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：20183783

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,900,000円

研究成果の概要(和文)：工場、廃棄物処理場等の固定発生源を対象に、国内では困難である実際の工場等を対象とした発生源別の環境中へのPM2.5などの微粒子の排出挙動を国際的な共同研究による調査研究に基づいて解明した。測定は、マレーシア及び中国の共同研究者との協力により、各国の廃棄物焼却場、及び石炭燃焼プラントにより実施した。両国のプラントとも集じん装置は設置されているため、PM2.5の濃度は1.0 mg/m³程度であることが確認され、微粒子中に揮発性成分が多く含まれることが分析により求められた。また、同じ基本構造のPM2.5分離捕集装置でもノズル加工精度等によりPM2.5の分級性能に影響が現れることが示唆された。

研究成果の概要(英文)：In order to measure and analyze fine particle emission behavior, such as PM2.5, from stationary sources, such as waste incinerators and factories, fine particles emission behaviors from different sources including a waste incinerator plant in Malaysia and a coal combustion plant in China were investigated by international collaboration with China, Malaysia and Austria. Because of dust collector installation, the mean mass based concentration of PM2.5 emission from each source was about 1.0 mg/m³, it was confirmed that the volatile matter concentration in PM2.5 was much higher than that in coarse particles, such as PM10 and total dust. In spite of the same design of virtual impactors based on ISO 13271, the working accuracy at the head of nozzles to collect coarse particles affected on the sharpness of PM2.5 and PM10 separation by using fluid dynamic analysis.

研究分野：微粒子工学

キーワード：PM2.5 Virtual impactor 固定発生源 廃棄物焼却 石炭燃焼

1. 研究開始当初の背景

大気中の浮遊粒子状物質の中で空気力学径が $2.5\mu\text{m}$ 以下の粒子(PM_{2.5}と定義される)は、肺胞まで侵入可能であり、呼吸器系疾患の原因物質とされ、わが国でも2009年に大気環境基準が疫学データ等に基づいて設定された。しかし、都市部等でこの環境基準値を上回る濃度が検出されており、発生源規制も議論されている。ディーゼルなど移動発生源については、対策が進み、大気環境への寄与率が実測値に基づくシミュレーションにより相対的に低下していることが報告されている。一方、工場、発電所など固定発生源を起源とした微粒子排出挙動に関する研究は、その計測が様々な理由で困難なため著しく少ない状況にあった。固定発生源からの微粒子排出機構は大別して3種類の経路が考えられる。第一は、集じん機を通過して煙道から排出される経路で、粒子径数10～数100nmの粒子は集じん装置の原理によらず透過率が高く、かつ肺胞への沈着率が高いことが報告されている。第二の排出機構は、温度150～250程度の集じん機では気化して通過するが、大気放散時の冷却過程で粒子化する凝縮性粒子がある。第三の過程は、集じん機を経ずに工場建屋から排出される粒子で、密閉化や集じん設備の設置が遅れている発生源ではこの機構による排出が大きいと考えられる。

各経路からの微粒子排出量の計測法は、独自の標準的測定法の確立が必要である。集じん機通過による粒子については煙道内で微粒子のみを分離捕集し、質量濃度を測定する方法が検討されてきた。現在の大気環境基準が質量濃度で規定されるため、相対的に質量が大きく健康影響の低い粒子径の大きな粒子を分離し、微粒子のみを捕集・質量を計測する。欧州では大粒子を捕集板に衝突させ分離するインパクト法が推奨され、ISO化されたが、申請者らは、この方法は衝突板で粒子が反発し、大粒子を完全に分離できないため、PM_{2.5}濃度を過大評価することを明らかにした。この弱点を補うためオーストリア・ウィーン大学のSzymanski教授との共同研究により開発したVirtual impactor法が優れていることを立証し、わが国主導により2012年6月ISO13271として策定、公表された。この方法の優位性はISO TC146/SC1/WG20での審議を通じ理解された。

第二の機構である凝縮性粒子は、大気放散状態を模擬するため希釈器を用いた質量濃度測定法も同じTC146/SC1のWG21で審議され、北米の研究機関との共同により、測定法の標準化が進められてきたが、基礎研究が進まず、どの程度凝縮性粒子が環境濃度に影響しているかも明らかにならなかった。さらに、第三の機構は、一般の環境中計測とは異なり、対象とする固定発生源起源か、他の起源によるものか、分離評価することが極めて困難で、特に国内では社会的影響が大き

いため、計測自体の理解が得られず、ほとんど研究が進んでいなかった。

2. 研究の目的

工場、廃棄物処理場、発電所等の固定発生源を対象に、国内では困難である実際の発電所等を対象とした発生源別のナノからミクロまで無機、有機成分の粒子生成及び環境中への排出機構を国際的な調査研究に基づいて解明する。固定発生源からの微粒子状物質計測法としてわが国主導で2012年6月に確定したISO13271の手法等を用い、平成24年度までの5年間で実施した新学術領域科学研究費「東アジアにおけるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト」実施期間中に構築した中国・清華大学、マレーシア工科大学など東アジア域、及びオーストリア・ウィーン大学、フィンランド・Aalto大学との連携で東アジア及び欧州での発電所、ごみ焼却場などの実プラントでの微粒子状物質排出挙動の計測調査及び情報収集を行い、発生源の燃焼方式、規模、環境保全装置のレベルに対応した発生、排出機構を各国との共同研究により解明する。

本研究では、これまで構築してきた東アジア及び欧米との連携関係に基づいて、発生源の環境保全設備が発展途上である東アジア域、及び発生源対策が進んでいる欧州を対象に、煙道中、及び大気放散時の微粒子状浮遊性物質、吸引力微粒子であるPM_{2.5}や、肺胞への浸入率の高いナノ粒子の生成・排出挙動を、各国のプラントで直接測定、あるいは情報収集を行い、燃料種、燃焼状態、環境保全設備のレベルによる排出挙動の変化を体系的に解明することを目的とする。特に、中国、マレーシアでの微粒子状物質の排出挙動測定、及びサンプリングを行い、多様な燃料種、異なる環境保全設備レベルで、第一、第二の排出機構での排出挙動を捕集した粒子の分析結果に基づいて解析する。

3. 研究の方法

測定法としての標準化されたVirtual impactorを用いた分離計測法、またこれらの分離装置を用いて粗大粒子を分離後の排ガスを希釈器に導入して冷却後、粒子捕集、粒度分布測定法を対象に、中国・清華大学、マレーシア工科大学やベルギーの公共研究期間等の協力により海外の工場、焼却場など商用プラントで微粒子のサンプリング、計測を行った。捕集したサンプルは、幾何形状の電子顕微鏡観察、有機・無機組成分析を行い、実験室で実施したモデル実験との比較により燃料種による生成機構を考察する。

(1) 調査研究実施国・地域及びプラント

海外での実燃焼排ガスを用いた測定は、マレーシア最大規模の廃棄物焼却場、及び中国の石炭を燃料とした比較的大規模の工場での測定を実施した。マレーシアの廃棄物燃焼プラントは、首都クアラルンプールの郊外にあり、予備調査と下見を実施した上で、期間

中2度のサンプリングを行った。プラントの排ガス処理設備と、実際に計測、サンプリングを行ったプラントとサンプリング箇所を写真1,2に示した。



写真1 廃棄物処理プラントの集塵装置



写真2 煙道のサンプリングポートと使用した希釈器

建設当初に下見した段階では、このプラントは比較的最新版のプラントであったが、処理する廃棄物量が大量で、集じん装置などへの負荷が大きい状況であった。マレーシア工科大学 M. Rashid 教授の研究室及びこの処理場には同教授の卒業生が幹部として勤務しており全面的な協力を得て測定できた。

中国の固定発生源での測定を実施したプラントと測定の様子を写真3,4に示した。このプラントは比較的大型の設備で、複数のサンプリングポートがあるため、中国・清華大学・蔣准教授の研究室で、ISO13271に基づいて試作した Virtual impactor とわが国で製造・販売している市販品でのPM2.5捕集性能の比較を同じ排ガスを用いて行った。



写真3 中国の固定発生源の集じん機



写真4 Virtual impactor によるサンプリング

海外測定は、この二カ国とベルギー（現地研究者が指導を受けて測定）の他、タイ、オーストリアでの測定のため、現地調査を行った。しかし、タイは政情不安のためチームとしての出張は断念、オーストリアは発電所での測定は許可が下りず、海外共同研究者のウイーン大学 Szymanski 教授らとの議論や共著論文の執筆打合せなどの実施に留まった。

(2) 計測内容と分析法

煙道中で機構1により大気中に排出される粒子の中からPM2.5、PM10のみを捕集する Virtual impactor は、ノズルを対向させ、大きい粒子は慣性力で下部ノズルに捕集、小さい粒子は、気流に同伴されて次のノズル、またはフィルターに捕集される原理である。尚、中国の固定発生源のサンプリングポートの口径は、日本が100 mmが標準に対し、80 mmと小さく、かつ、腐食等により口径が小さくなっているため、Virtual impactor の最大径を77 mmまで小さくした構造に改造した。この構造等に関し、写真5の商品化を行い、特許出願も行った。（特開2015-073934）

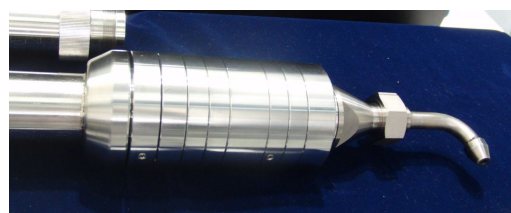


写真5 製品化した Virtual impactor

フィルタ捕集したPM2.5やPM10の粒子は、国内に持ち帰り電界放出型電子顕微鏡(FE-SEM)を用いてPM2.5とPM10の分離精度の確認、エネルギー分散型X線分析(EDS)や蛍光X線分析(XRF)を用いて組成分析を行い、粒子径との関係を考察した。さらに熱力学平衡計算やモデル排ガスを用いた実験を行うことにより、プラントの燃料種・環境保全設備と排出粒子の形態・組成の関連性および粒子の生成機構について考察した。

機構2の凝縮性粒子の測定は、PM2.5を含む排ガスを外に保温しながら希釈器に導入、清浄空気と混合することで、凝縮性粒子を生成させ、フィルターに捕集して、走査型静電

分級器 (Differential mobility analyzer, DMA) 等を用い個数基準の粒子径分布を測定を試みた。海外での測定は、共同研究先の所有する装置が作動せず、高度な計測器の持込が困難でフィルター捕集による粒子濃度測定に留まった。

4. 研究成果

(1) マレーシアでの研究成果

マレーシアの廃棄物燃焼プラント (写真 1,2) における PM2.5/PM10 質量濃度測定結果の一例を図 1 に示す。1 日の運転での 4 回の測定を行った結果であるが、PM2.5 の質量濃度は、数 mg/m³ の total のダスト濃度の変動とは必ずしも対応せず、1.0 mg/m³ 前後で変動している。同様に、PM10 濃度 (PM2.5 と PM10-PM2.5 の和) の変動も大きい。これは、廃棄物処理場の場合、廃棄物の炉内供給は、バッチ投入であるためプラント運転状態が大きく変動するためと考えられる。わが国の廃棄物焼却場での排出濃度に比べ、排出濃度は高い。また、得られた捕集サンプルの元素分析、EC, OC 分析等を行ったが、PM2.5 に揮発性成分や OC の存在割合が高いことを確認した。

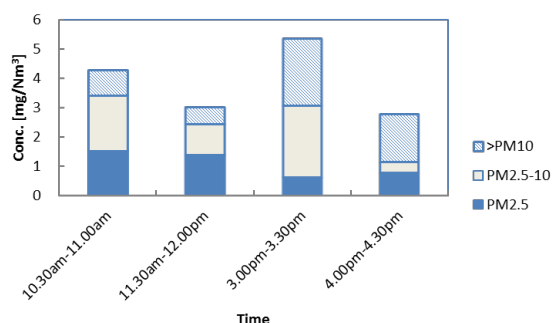


図 1 マレーシアの廃棄物燃焼プラントでの排出 PM2.5/PM10 質量濃度の 1 日変動

(2) 中国での測定結果と考察

中国の固定発生源 (写真 3,4) で測定した PM2.5/PM10 質量濃度を図 2 に示す。プラント規模は、マレーシアに比べ大きく、また、石炭燃焼による工業設備のため、total のダスト濃度の変動は、一つの測定条件を除き、小さい。また、総ダスト量に対する PM2.5 の質量濃度も低い結果となっている。

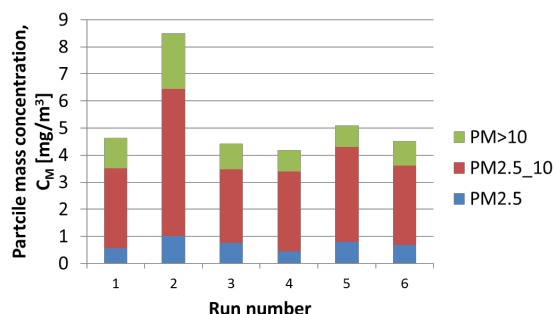
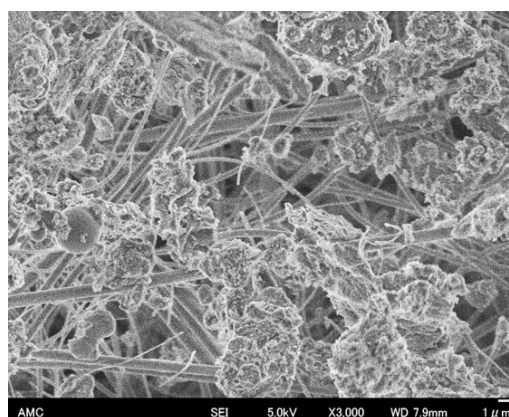
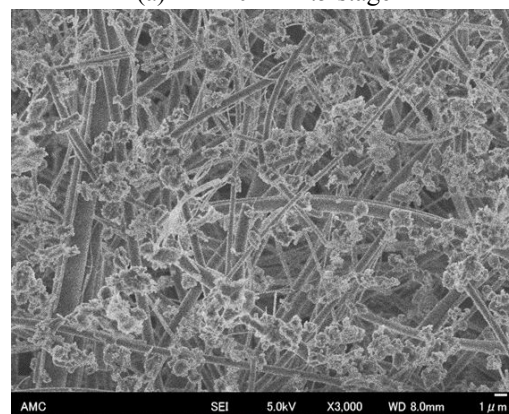


図 2 中国の固定発生源排出 PM2.5/PM10 質量濃度の時間変化の測定例

図 3 に、PM10 及び PM2.5 の捕集フィルターの SEM 観察結果を示した。PM2.5 捕集フィルターには微粒子のみしか観察されず、分級性能が高いことが確認され、図 1, 2 の PM2.5 質量濃度が高いことが確認された。また、同時に実施した中国で試作した Virtual impactor での測定結果との比較を行った結果、PM2.5 の測定濃度は、図 3 の 3 倍程度の数値であった。原因を考察のため、図 4 に示すようにノズル先端の流体解析を行った結果、ノズル先端の加工状態によっては不規則な渦が生じ、本来下部のノズルに捕集される粗大粒子が、捕集できず、下流に流れ PM2.5 として捕集されるため、計測された PM2.5 濃度が高くなる可能性が示唆された。

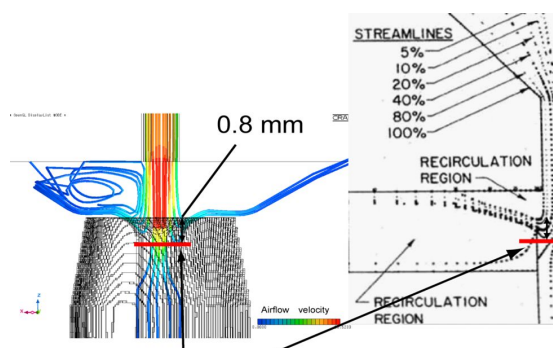


(a) PM10-PM2.5 stage



(b) PM2.5 stage

図 3 中国の固定発生源測定時のフィルターの SEM 写真



Virtual impaction surface

図 4 ノズル先端の流体解析結果例

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計8件)

Masashi Wada, Mayumi Tsukada, Norikazu Namiki, Wladyslaw W. Szymanski, Naoki Noda, Hisao Makino, Chikao Kanaoka, Hidehiro Kamiya, A Two-Stage Virtual Impactor for In-Stack Sampling of PM2.5 and PM10 in Flue Gas of Stationary Sources, *Aerosol and Air Quality Research*, 査読有, Vol.16, 2016, 36-45, 10.4209/aaqr.2015.06.0383

Yingjuan Shao, Nanami Aoki, Zhenbo Tong, Wenqi Zhong, Aibing Yu, Hidehiro Kamiya, Numerical and experimental study of tensile stresses of biomass combustion ash with temperature variation, *Advanced Powder Technology*, 査読有, Vol.27, 2016, 215-222, 10.1016/j.apt.2015.12.007

S.J. Flynn, Z.B. Tong, R.Y. Yang, H. Kamiya, A.B. Yu, H.K. Chan, Computational fluid dynamics (CFD) investigation of the gas-solid flow and performance of Andersen cascade impactor, *Powder Technology*, 査読有, Vol.285, 2015, 128-137, 10.1016/j.powtec.2015.03.039

Motoyuki Iijima, Hidehiro Kamiya, Non-aqueous colloidal processing route for fabrication of highly dispersed aramid nanofibers attached with Ag nanoparticles and their stability in epoxy matrixes, *Colloids and Surfaces A*, 査読有, Vol.482, 2015, 195-202, 10.1016/j.colsurfa.2015.05.007

Zhenbo Tong, Hidehiro Kamiya, Aibing Yu, Hak-Kim Chan, Runyu Yang, Multi-Scale Modelling of Powder Dispersion in a Carrier-Based Inhalation System, *Pharmaceutical Research*, 査読有, Vol.32(6), 2015, 2086-96, 10.1007/s11095-014-1601-2

神谷秀博, PM2.5 をめぐる動向と排出挙動の評価および抑制技術, *粉体技術*, 査読無, Vol.7, 2015, 113-118

前田洋輔, 江島達弥, 塚田まゆみ, Wuled Lenggoro, 野田直希, 牧野尚夫, 神谷秀博, ホウ素含有モデル燃焼排ガスを用いた凝縮性ナノ粒子生成挙動, *粉体工学会誌*, 査読有, Vol.51(5), 2014, 363-367, 10.4164/sptj.51.363

神谷秀博, 並木則和, 塚田まゆみ, Wuled Lenggoro, 和田匡司, 野田直希, 牧野尚夫, 峰島知芳, W. W.Szymanski, 固定発生源におけるエアロゾルの生成と排出挙動, *エアロゾル研究*, 査読有, Vol.29, 2014, S27 - S37, 10.11203/jar.29.s27

〔学会発表〕(計17件)

Sho Okamoto, Norikazu Namiki, Hidehiro Kamiya, Mayumi Tsukada, Improvement in Particle Classification Performance of a Virtual Impactor for PM2.5/10 Mass Concentration Measurements in Stacks and Its Application to Field Surveys, 14th International Symposium on Advanced Technology (ISAT-14), Nov. 2, 2016, Kogakuin University, Hachioji, Tokyo

岡本頌, 並木則和, 神谷秀博, 塚田まゆみ, CFD 解析による煙道内 PM2.5/PM10 測定用バーチャルインパクトの分級性能評価と性能向上, 第33回空気清浄とコンタミネーションコントロール研究大会, 2016年4月19-20日, 早稲田大学(東京都新宿区)

Hidehiro Kamiya, Nano and fine ceramic powder processing for application of various energy devices, ACTSEA 2015 (Invited), Nov. 8 - 11, 2015, Tainan, Taiwan
Hidehiro Kamiya, Nano and Fine Particles Aggregation and Adhesion Behavior Control for Applications in Various Fields, 6th Asian Particle Technology Symposium, APT2015 (Invited), Sep. 15-18, 2015, Seoul Korea

塚田まゆみ, 前田洋輔, 菊地主隆, 石本淳視, 岡田洋平, Wuled Lenggoro, 神谷秀博, 固定発生源排出凝縮性微粒子計測における排ガス希釈条件が生成粒子特性に及ぼす影響, 化学工学会第47回秋季大会, 2015年9月9-11日, 北海道大学(札幌市)

Hidehiro Kamiya, Tatsuya Ejima, Tomoya Sekizawa, Yosuke Maeda, Masao Gen, Mayumi Tsukada and Wuled Lenggoro, Characterization of Condensable Nanoparticles Formed at Stationary Sources by Using Dilution Samplers, Asian Aerosol Conference (AAC2015) Jun. 24-26, 2015, Kanazawa Tokyu Hotel, Kanazawa

菊地主隆, 前田洋輔, 塚田まゆみ, 岡田洋平, Wuled Lenggoro, 神谷秀博, 凝縮性微粒子の生成挙動に及ぼす固相粒子の表面構造の影響, 化学工学会第80年会, 2015年3月19-21日, 芝浦工業大学(東京)

Hidehiro Kamiya, Zhenbo Tong, Multi-scale modelling of dispersion of a carrier-based dry powder inhalation system, *Pharmaceutical Industry IV 2014* (Invited), Sep. 14-16, 2014, Potsdam, Germany

Zhenbo Tong, Hidehiro Kamiya, Aibing Yu, Numerical and experimental study of effect of inhaler designs on the aerosolisation, *粉体工学会 第50回夏期シンポジウム*, 2014年8月6-7日, 大阪アカデミア(大阪市)

Bergmans, B., Idczak, F., Petitjean, S.,

Kamiya, H., Tsukada, M., Mertens, J., Faniel, N., and Dyakov, I. (2014). Particles sizing in stack: A Review on techniques available for PM and UFP, Proceedings of 11th International Conference and Exhibition on Emissions Monitoring (CEM 2014), May 14-16, 2014, Istanbul, Turkey
佐藤慎也, 江島達弥, 前田洋輔, 塚田まゆみ, 飯島志行, Wuled Lenggoro, 神谷秀博, ナノ細孔を有するモデルエアロゾルを用いた拡散荷電型表面積濃度計の評価, 化学工学会第79年会, 2014年3月18 - 20日, 岐阜大学(岐阜市)

Kamiya, H. and Tong, Z. B., Numerical and Experimental Study of the Correlation between Bulk Stresses and Interparticle Force in the Biomass Combustion Ash, AIChE, 2013 Annual Meeting, Nov. 3 - 8, 2013, San Francisco, USA

神谷秀博, 固定発生源からのPM2.5、ナノ粒子の排出挙動と排出抑制技術, 静電気学会 - エアロゾル学会合同シンポジウム「大気汚染物質の除去に関する特別講演会」, 2013年10月21日, 大阪府立大学(大阪府堺市)

前田洋輔, 江島達弥, 塚田まゆみ, Wuled Lenggoro, 神谷秀博, 野田直希, 牧野尚夫, 固定発生源からの凝縮性SPM生成挙動のモデル燃焼排ガスを用いた考察, 粉体工学会2013年度秋期研究発表会, 2013年10月8-9日, 大阪南港ATC(大阪市)

前田洋輔, 江島達弥, 塚田まゆみ, Wuled Lenggoro, 神谷秀博, 野田直希, 牧野尚夫, 固定発生源からの凝縮性SPM生成挙動のモデル燃焼排ガスを用いた考察, 第30回エアロゾル科学・技術研究討論会, 2013年8月27-29日, 京都大学(京都市)

並木則和, 江島達也, 塚田まゆみ, 神谷秀博, W.W. Szymanski, 蔣靖坤, 姚宇平, パーチャルインパクトを用いた海外の固定発生源における粒子排出に関する実測調査, 第30回エアロゾル科学・技術研究討論会, 2013年8月27-29日, 京都大学(京都市)

Kamiya, H., Sekizawa, T., Hada, K., Ejima, T., Lenggoro, W., and Tsukada, M., Characterization of condensable nanoparticles formation behavior from stationary sources by using dilution method, The 9th Asia Pacific Conference on Sustainable Energy & Environmental Technologies (APCSEET 2013), July5-8, 2013, Narita, Japan

〔図書〕(計2件)

神谷秀博 他, 日本規格協会, JIS Z 7152:2013 (ISO 13271:2012) パーチャルインパクトによる排ガス中の

PM10/PM2.5 質量濃度測定方法, 2013, 42(pp.38-42)

日高重助, 神谷秀博 編著, 日刊工業新聞社, 基礎粉体工学, 2014, 301(pp2-11, pp174-180, pp224-229, pp258-269)

〔産業財産権〕

出願状況(計1件)

名称: 分級装置

発明者: 神谷秀博、並木則和、笹辺修二

種類: 特許

番号: 特開2015-73934

出願年月日: 2013年10月8日

国内外の別: 国内

取得状況(計0件)

〔その他〕

ホームページ等

研究者プロフィール 工学研究院 応用化学部門 神谷秀博

<http://kenkyu-web.tuat.ac.jp/Profiles/7/0000636/profile.html>

東京農工大学 神谷研究室

<http://web.tuat.ac.jp/kamihide/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

神谷 秀博 (KAMIYA Hidehiro)

東京農工大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号: 20183783

(2)研究分担者

並木 則和 (NAMIKI Norikazu)

工学院大学・工学部・教授

研究者番号: 40262555

(3)研究分担者

塚田 まゆみ (TSUKADA Mayumi)

東京農工大学・大学院工学府・技術専門員

研究者番号: 70376870