

公害計測における粒子状物質の測定

Measurement of Suspended Particulate Matter for Air Pollution Analysis

Environmental and exhaust criteria regarding suspended particulate matter have been established to control and prevent air pollution. Measurement methods and equipment are regulated by the Japan Industrial Standard (JIS-Z8813 and JIS-Z8808), but these regulations require further investigation because standardized methods still leave room for improvement in accurately measuring the level of pollution in terms of mass loading and particle size distribution.

In particular, to measure exhaust particulate matter requires several steps and special techniques. More detailed experimental research and development is needed for a continuous, effective measurement system which will control and monitor the condition of boilers and dust collectors.

Hitachi has developed a light-scattered dust monitoring system (HITACHI DUST MONITOR AN-101, and HITACHI STACK DUST MONITOR AN-100) for continuous measurement of mass loading and particle size distribution of suspended particulate matter.

大塚馨象* Keizô Ôtsuka
辻 省吾** Shôgo Tsuji

1 緒 言

近年における公害問題は、多様化、複雑化するとともに、ますます深刻化する傾向にある。なかでも大気汚染に関する問題は最も大きく、その汚染因子を代表するものはイオウ酸化物(SO_x)、窒素酸化物(NO_x)及び粒子状物質である。

このうち、粒子状物質については、古くから視程障害や洗濯物の汚れなどのため問題視されてはいたものの、人体に対する影響の程度が不明確であったことや、有害ガス成分に注意が向けられていたこと、更に、その取り扱いが非常に困難であることなどにより、連続計測、オンライン制御に関して目立った動きはみられず、粉体の化学的、物理的性質に対する検討が地道に継続されていた。

ところが、排出される粒子状物質それ自体が有害であるば

かりでなく、イオウ酸化物などの有害ガス成分と共存することにより人体への影響が大きいことなどが明らかにされるに伴い、粒子状物質の成分もさることながら、その重量濃度(質量濃度ともいう)が問題視されるようになり、浮遊粉塵(10 μ m以下の浮遊粒子状物質)に対する環境基準及びばい塵(燃焼排ガス中の粒子状物質)に対する排出基準が制定され、計測、制御の必要性が認識されるようになった。

これら粒子状物質の重量濃度の測定に関しては、従来フィルタを用いて浮遊粒子状物質を捕集し、秤量して重量濃度を求める絶対重量濃度測定方法が採られてきたが、かなりの時間と人手を要し、しかも間欠測定であるため、環境や排出源の汚染度を把握し対策を進めるうえには不向きであった。このため、連続自動計測器の出現が必要不可欠となってきた。

以下、このような背景のもとに日立製作所が開発した光散乱方式粒子状物質測定器を中心に粒子状物質の計測について述べる。

表 I 浮遊測定方法による測定器の種類 光を利用した環境浮遊粉塵相対濃度測定方法(JIS Z 8813-1969)を示すものである。
Table I Measurement Method of Suspended Porticulate Matter (JIS-Z 8813-1969)

測定原理	測定器の種類	測定方法の説明	濃度表示値と測定値との関係
粉塵による散乱光を測定	光度計式	散乱光を光度計で測定	相対値から求める
	光度比色計式	散乱光と標準光を比較し測定	"
	光量積算計式	散乱光量を積算し、単位時間当たりの量から測定	"
	粒子計数計式	粒子を散乱光により測定	直接測定
粉塵による吸光光度を測定	吸光光度計式	透過光を吸光光度計で測定	相対値から求める

2 環境基準とその測定方法

大気中には、自然現象及び人間生活に伴う種々の粒子状物質が発生、浮遊、沈降している。これらはその発生の履歴により化学的及び物理的性質を異にすると同時に、地域、季節、時刻、気象などにより影響を受けて、粒子状物質の数(個数濃度又は重量濃度)及び大きさ(粒径分布)が複雑に変動する。

「公害対策基本法」(法律第132号)の基本的施策の一つとして定められた浮遊粒子状物質に係る環境基準(昭和47年1月11日、環境庁告示第一号)では、特に人間の健康に影響を及ぼすといわれている粒径10 μ m(ミクロン)以下の粒子(これを浮遊粒子状物質と称し、10 μ m以上のものは降下ばい塵として区別している)について、

(1) 連続する24時間における1時間値の平均値が、大気1m³

* 日立製作所日立研究所 ** 日立製作所那珂工場

につき0.10mg以下であること。

(2) いずれの1時間値にあっても大気1 m³につき0.20mg以下であること。

と定め、また、その測定方法として、
「浮遊粒子状物質の測定は、浮遊粒子状物質に係る大気の大気汚染の状況を的確に把握することができると認められる場所において、標準粒子により校正された測定器により、原則として地上3 m以上10 m未満の高さにおいて採気して行なうものとする」と定められている。但し、この環境基準は、都市計画法に規定する工業専用地域については適用除外されている。

一方、「大気汚染防止法施行令第六條第二号」(昭和49年3月26日政令第62号による改正)では、大気汚染の限度を、「大気中における量の年間平均値……1 m³につき0.15mg」とし、その算定の方法については、「大気汚染防止法施行規則第六條第四号」(昭和49年3月26日総理府令第10号により改正)により、
「大気中における量の年間平均値の算定は、ハイボリウム エアサンプラー又はローボリウム エアサンプラーを用いる場合にあっては原則として1 回当たり連続して24時間以上吸引して行なう測定を月1 回以上行なって得た測定値の、光散乱法による測定器を用いる場合にあっては総有効測定時間(当該総有効測定時間数が6000時間以上である場合に限る。)の測定値の算術平均によること」と定めている。

従って、この環境浮遊粒子状物質測定装置として具備すべき条件は、

- (1) 連続測定(1時間値表示)が可能であること。
 - (2) 粒径10μm以下の粒子が選択測定できること。
 - (3) 重量濃度で表示すること(他の用途では粒子数濃度で表示する場合もあるが、大気汚染に関する指標としては重量濃度が用いられている)。
 - (4) 標準粒子により校正された測定器であること。
- などが挙げられる。

J I S Z 8813-1969(浮遊粉じん濃度測定方法通則)による測定方法は、次の2種類に大別される。

- (1) 浮遊測定方法……空気中に浮遊する粉塵を浮遊状態のまま、その濃度を測定する方法
- (2) 捕集測定方法……空気中に浮遊する粉塵を捕集して、その濃度を測定する方法

表1は浮遊測定方法(連続測定)の種類を示すものである。
なお、昭和49年9月1日にJIS B 7954-1974(大気中の浮遊粒子状物質自動計測器)が制定され、質量濃度に比例する相対濃度を自動的に連続測定するための自動計測器の具備すべき特性、性能が規定され、測定原理から散乱光形、吸光形、それ以外のものに分類されている。
ここに述べる日立ダストモニタは、散乱光形の粒子計数計式に属し連続測定を可能ならしめるものである。

3 排出基準とその測定方法

上述の浮遊粒子状物質による大気汚染を防止するために、表2に示すように、その発生源に対してその施設と容量別に厳しい排出基準が定められ、その基準に反したものは「大気汚染防止法」により罰則が科せられることになっている。

ところで、これらの規制値は各排出源での排出濃度を規制するもので、一つの地域に大容量のばい塵発生施設が集中している工業地域では汚染度が悪化の傾向にあるため、それぞれの地方自治体と企業間で、いわゆる「総量規制」の考えを採

表2 ばい塵排出基準 新設のものは、施設を問わず0.05g/Nm³を目標にする場合が多い。

Table 2 Criteria of Exhausted Particulate Matter

施 設 名	一 般 排 出 基 準			特 別 排 出 基 準		
	規模の大		規模の小	規模の大		規模の小
重油燃焼ボイラ	0.1	0.2	0.3	0.05	0.05	0.2
石炭燃焼ボイラ	0.4			0.2		
溶鉱炉(高 炉)	0.1			0.05		
転 炉(燃焼炉) 平 炉, 焙焼炉	0.3	0.4		0.2		
加熱炉, 溶解炉 セメント焼成炉 製鋼用電気炉	0.2	0.4		0.1	0.2	
キューボラ	〃	0.8		〃	0.4	
廃棄物焼却炉(連 続) (その他)	〃	0.7		〃	0.2	
	0.7			0.4		

注: 1. 規模の大, 小は排出ガス量40,000Nm³/hで分ける。
但し、重油ボイラでは、20,000Nm³/h, 40,000Nm³/hで分け3段階とする。
2. 単位 (g/Nm³)

り入れた新しい規制値が締結される機運にある。
既に、新設の大容量火力発電所などでは、これまでの排出基準0.05g/Nm³以下に対し、0.02g/Nm³以下とすることが公害防止協定書に盛り込まれているところもある。実際に、燃料が原油やナフサ焚きになり、また、燃焼方法などの改良や高性能集塵装置の設置などによって、排出ばい塵濃度はかなり低減され、排出濃度が0.02g/Nm³以下のところも多い。
煙道排ガス中のばい塵量測定方法は、J I S Z 8808に規定されている。この方法は周知のとおり、ダスト チューブやろ紙を用いて排ガスをサンプリングし、ばい塵をろ過捕集してその捕集量を秤量し、吸引ガス量で除してばい塵濃度を算出する。従って、捕集ばい塵量が秤量誤差とならない程度に吸引ガス量と吸引時間を設定する必要があるが、上述のように低濃度のばい塵を高精度で測定するためには、相当の熟練と時間を必要とし、しかも、測定時間中のばい塵濃度の瞬時的変動は見ることはできないため、排出源へのフィードバック、オンライン制御は不可能である。
更に、集塵性能を把握し最適運転状態を維持させることや、排出ばい塵による大気汚染を防止するためにも、連続自動測定装置の開発が急務であるが、環境浮遊粒子状物質の測定に比べて多くの問題を抱えている。すなわち、
(1) 排ガス温度が一般に120~150℃程度以上の高温であり、施設により異なること。
(2) 排ガス中に水分を含み、その水分量が様々であること。重油燃焼排ガスでは10~15vol%程度である。
(3) 排ガス中に無水硫酸(SO₃)を含む場合には、その濃度により定まる酸露点のため、思わぬ部分で結露、腐食が発生するので注意を要する。
(4) 排ガス流速が様々であり、また変動すること。ばい塵濃度測定では、煙道排ガス流速と等しい速度でサンプリングを実施する、いわゆる「等速吸引」を行なう必要がある。連続測定器では必ず必要であろう。
(5) 煙道内の静圧が変動すること。これは負荷の変動のみでなく、周囲気象条件例えば風速、気温などによっても変わる。
これらの難問を克服した発生源用ばい塵連続測定器の開発

が進められ、実用に供されつつある。日立製作所は環境浮遊粉塵測定と同じ原理の光散乱粒子計数計式を採用し、これに温度、水分及びばい塵濃度を考慮した前処理装置(高濃度の場合、清浄空気による希釈装置を具備、低濃度の場合は温度とドレン対策を実施)を開発し、ばい塵連続測定器への適用を可能ならしめた。

4 日立光散乱粒子計数計式ダストモニタの特長

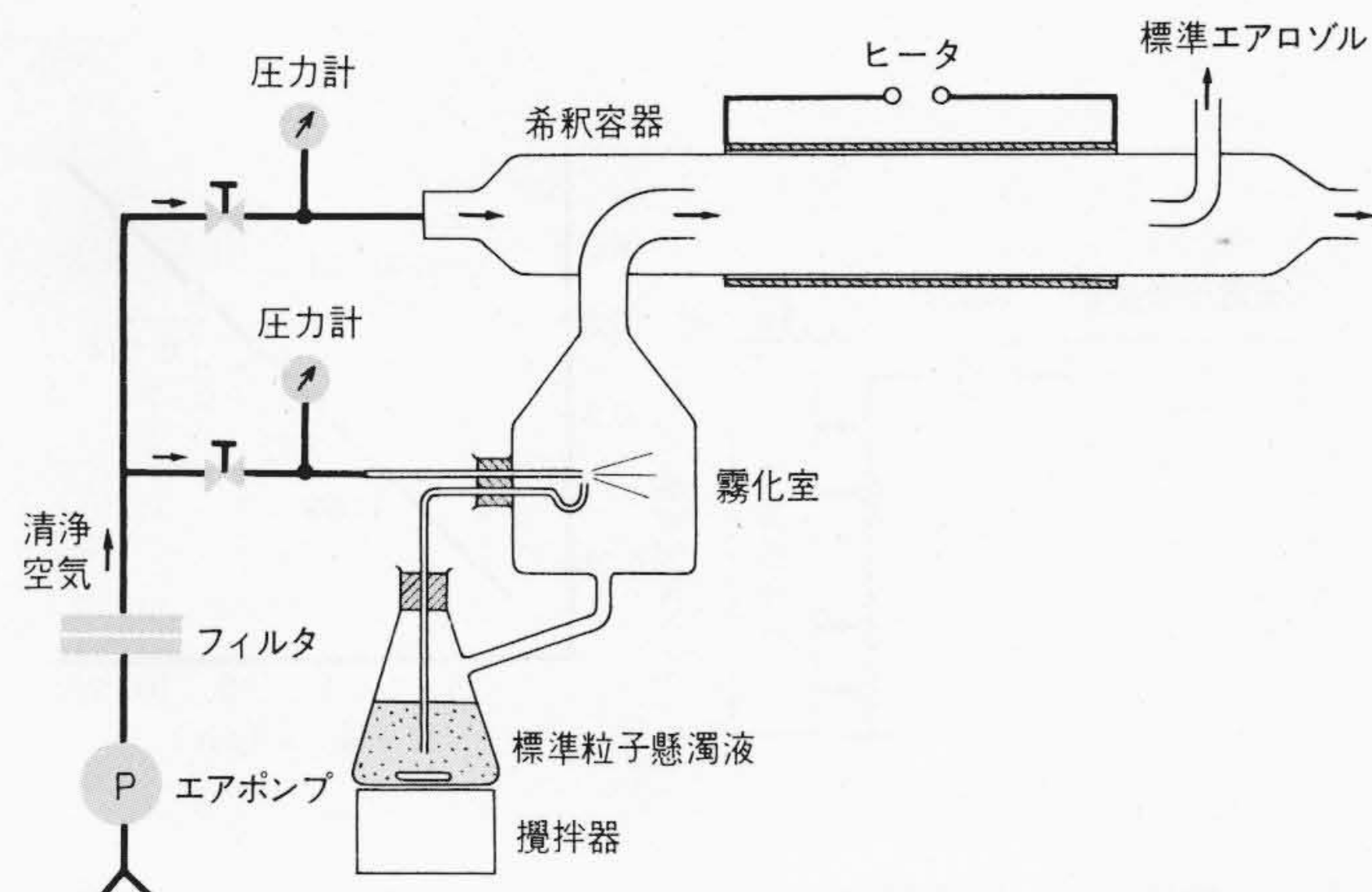
光散乱法は、粒子状物質が光を散乱する性質を利用するもので、この方法は、(1)いわゆるチンダル光を利用する全粒子散乱方式と(2)単一粒子からの散乱光を測定する粒子計数計式とに大別できる。これらの方法には、それぞれに特長及び欠点を有しているが、我々は浮遊状態での粒子状物質の粒子の大きさの測定を特に考慮したために、光散乱粒子計数計式を採用している。

すなわち、光散乱粒子計数計式は、浮遊粒子状物質による光散乱現象を利用して、個々の粒子の散乱光を個別に光電子増倍管で受けて電気パルス信号とし、パルスの波高値と頻度から粒子の粒径分布及び個数濃度を浮遊状態のまま連続して測定することができる。

4.1 測定原理と構成

図1は光学系の構成を示すものである。光散乱粒子計数計式では、1個の粒子がセンサ焦点部を通過するとき、その粒径に比例した波高値をもつ1個の散乱光パルスが得られ、光電子増倍管で電気信号に変換される。電気信号に変換されたパルス波高値 e と粒径 d との間に $e = kd^\alpha$ (k, α :定数)の関係が得られる。

図2は、光散乱粒子計数計式の粒径校正に用いられるダウケミカル社(アメリカ)製のポリスチレン ラテックス球標準粒子を用いた標準粒子エアロゾル発生装置を、図3は、この標準粒子に対する粒径対出力パルス波高値特性を示すものである。この結果、粒径 d とパルス波高値 e は、ほとんど一乗で比例していることが明らかである。これは、日立方式の前方散乱形光学系により定まる特長の一つである。



標準粒子

ポリスチレン ラテックス球
密度 1.05g/cm³
屈折率 1.592(20°C)

粒径 (μm)	0.500	1.099	2.02	3.9~7	6~14
偏差 (μm)	0.0027	0.0054	0.0070	—	—

注: 清浄液中に懸濁

図2 標準エアロゾル発生器(標準粒子発生器) 清浄液体中に懸濁されている均一粒径から成る標準粒子を霧化、分散する装置である。

Fig. 2 Dispersion System of Standard Particulate Matter

4.2 個数濃度の重量濃度換算

日立光散乱粒子計数計式ダストモニタでは、環境浮遊粉塵について0.5~10μm発生源用スタックダストモニタの場合は0.5~100μmをその測定対象粒径範囲とし、この範囲を幾つかの粒径区分に分け、パルス波高値より粒径分析を行なって、各粒径区分を定める粒径以上の粒子の累積個数濃度を連続して測定している。更に、個数濃度を重量濃度に換算し、相対重量濃度として測定値を求めている。

個数濃度の重量濃度への換算は次のように行なわれている。すなわち、粒径 $d_1 \sim d_n$ (0.5~10, 又は0.5~100μm)の測定範囲を区分する各粒径 $d_1, d_2, \dots, d_n$ 以上の単位時間当たりの累

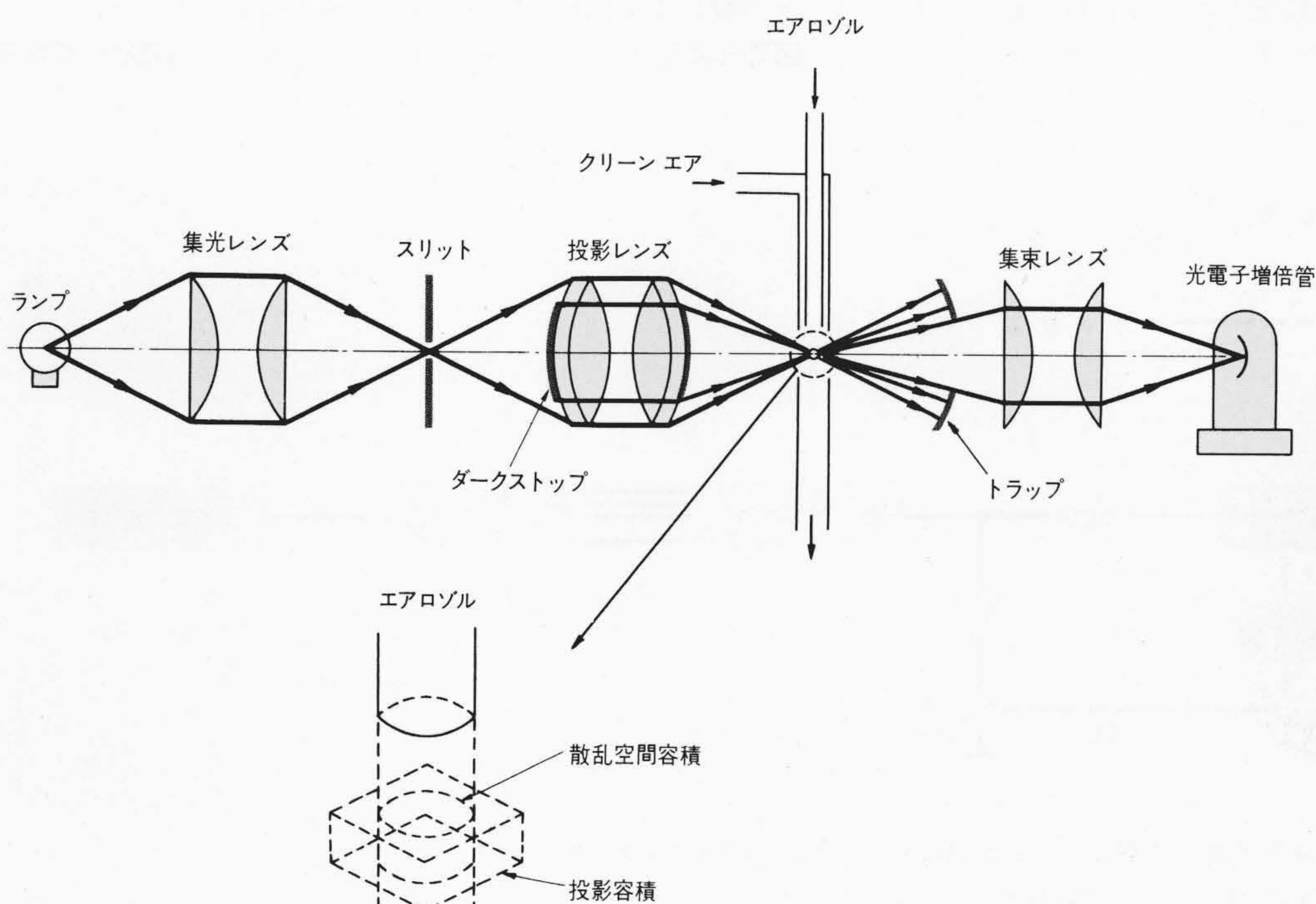


図1 センサ光学系の構成

前方光散乱形を採用した日立ダストモニタの光学系の構成を示す。

Fig. 1 Construction of Light Sensor by Hitachi Dust Monitor

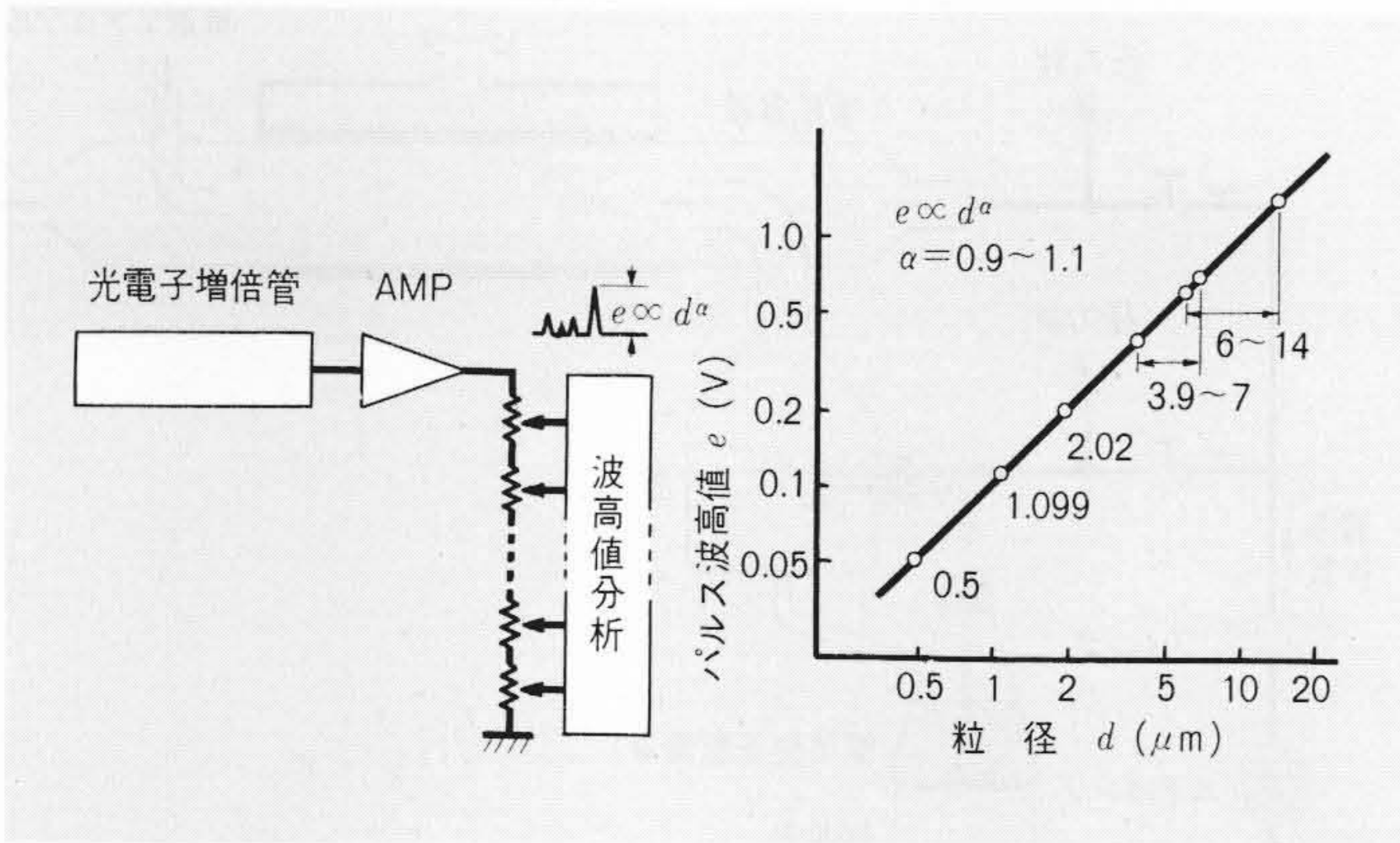


図3 標準粒子-出力特性 粒径のほぼ一乗に比例したパルス波高値が得られる。

Fig. 3 Calibration Curve for Hitachi-Light-scattered Dust Monitor

積個数頻度を $f_1, f_2, \dots, f_n$ (cps) とし、各粒径区分 $d_1 \sim d_2, d_2 \sim d_3, \dots, d_{n-1} \sim d_n$ の平均粒径を $\bar{d}_1, \bar{d}_2, \dots, \bar{d}_{n-1}$ とする。また、単位時間に吸引するエアロゾル量を q (m^3/s)、粒子の平均比重量を $\bar{\rho}$ とすると、 $d_1 \sim d_n$ の範囲の重量濃度 W は、

$$W = \frac{\pi \bar{\rho}}{\sigma} \left\{ \bar{d}_1^3 (f_1 - f_2) + \bar{d}_2^3 (f_2 - f_3) + \dots + \bar{d}_{n-1}^3 (f_{n-1} - f_n) \right\} / q$$

$$= \frac{\pi \bar{\rho}}{\sigma q} \left\{ \bar{d}_1^3 f_1 + (\bar{d}_2^3 - \bar{d}_1^3) f_2 + \dots + (\bar{d}_{n-1}^3 - \bar{d}_{n-2}^3) f_{n-1} - \bar{d}_{n-1}^3 f_n \right\}$$

となり、 $f_1, f_2, \dots, f_n$ 以外は定数であるから、

$$W = k_1 f_1 + k_2 f_2 + \dots + k_{n-1} f_{n-1} - k_n f_n$$

但し、 $k_1, k_2, \dots, k_n$: 定数

で表わすことができる。日立光散乱粒子計数計式ダストモニタでは電気回路によりこの演算を実施している。

4.3 ダストモニタ、スタックダストモニタの構成

図4は、光散乱粒子計数計式による本モニタの構成を示すものである。同図中、破線で示す希釈器及び希釈装置は、高濃度粒子状物質測定を実施するスタックダストモニタに用いられる。

光散乱粒子計数計式では、測定対象であるエアロゾル中の粒子数濃度が高くなると、2個以上の粒子を1個の粒子として検出するため、同時計数誤差が増してくる。ポアソンの分

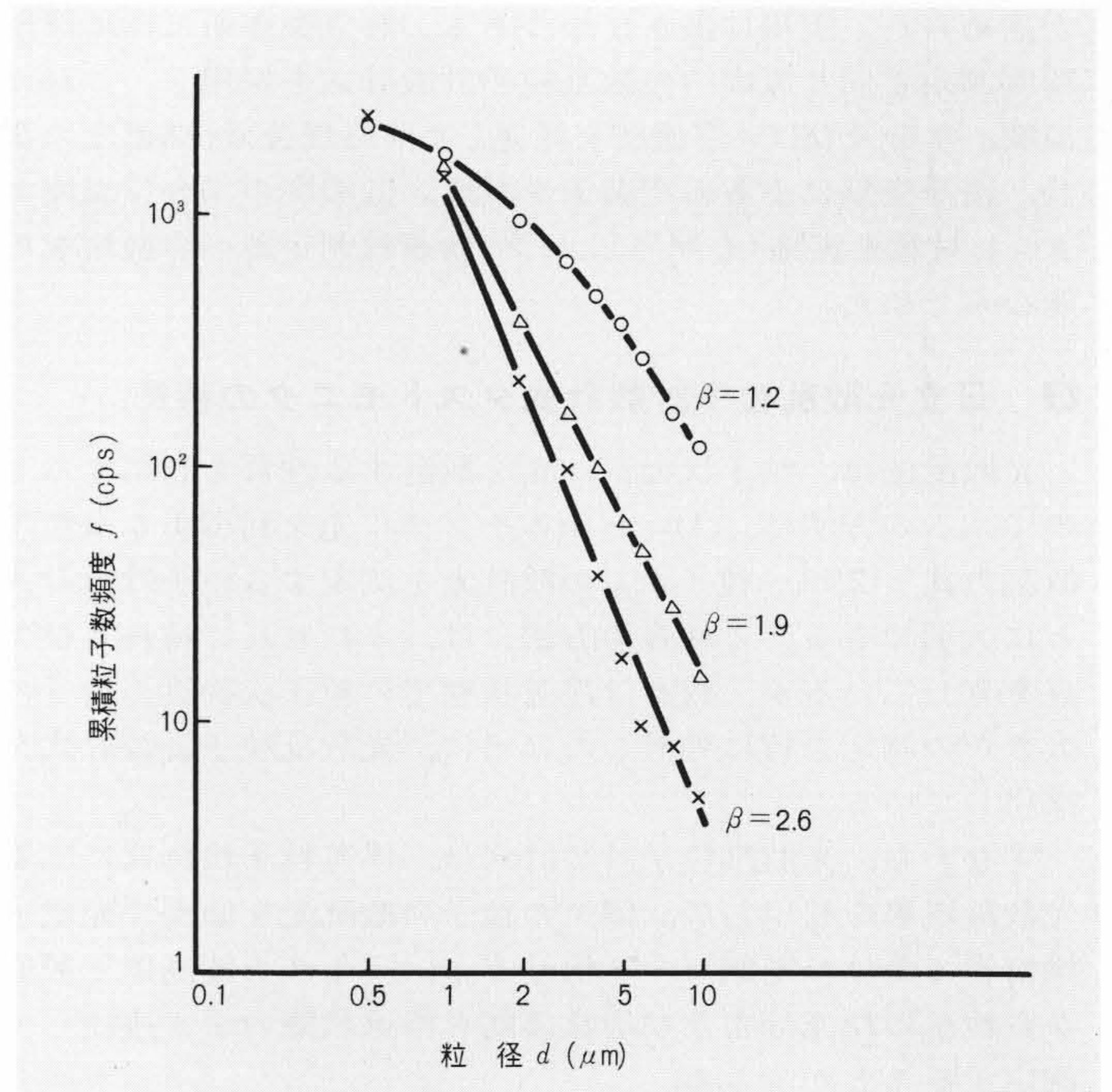


図5 環境浮遊粉塵の粒径分布 日立光散乱粒子計数計式ダストモニタで測定した環境浮遊粉塵の粒径分布の一例で、ほぼJungeの指数分布則を満足する。

Fig. 5 Environmental Particle Size Distribution by Hitachi Dust Monitor

布に従っているとすれば、 3.2×10^8 個/ m^3 以下であれば同時計数をしない確率が95%以上となる。これを重量濃度に換算してみると、比重量 1.8 g/cm^3 で $1 \mu\text{m}$ の場合は 0.3 mg/Nm^3 、 $5 \mu\text{m}$ では 37 mg/Nm^3 となる。従って、粒径と重量濃度によって希釈率を選定し、適当な個数濃度で測定をする必要がある。

4.4 測定例

図5は、環境浮遊粉塵の粒径分布を本モニタで測定した例である。一般に大気エアロゾル粒子の粒度分布は、Jungeの指数分布則にあてはまるとされており、粒径と累積粒子数を両対数方眼紙にプロットするとほぼ直線関係が得られ、比例定数は一般に1~3.5程度とされている。

図7の測定例もこのJungeの指数分布則をほぼ満足している。

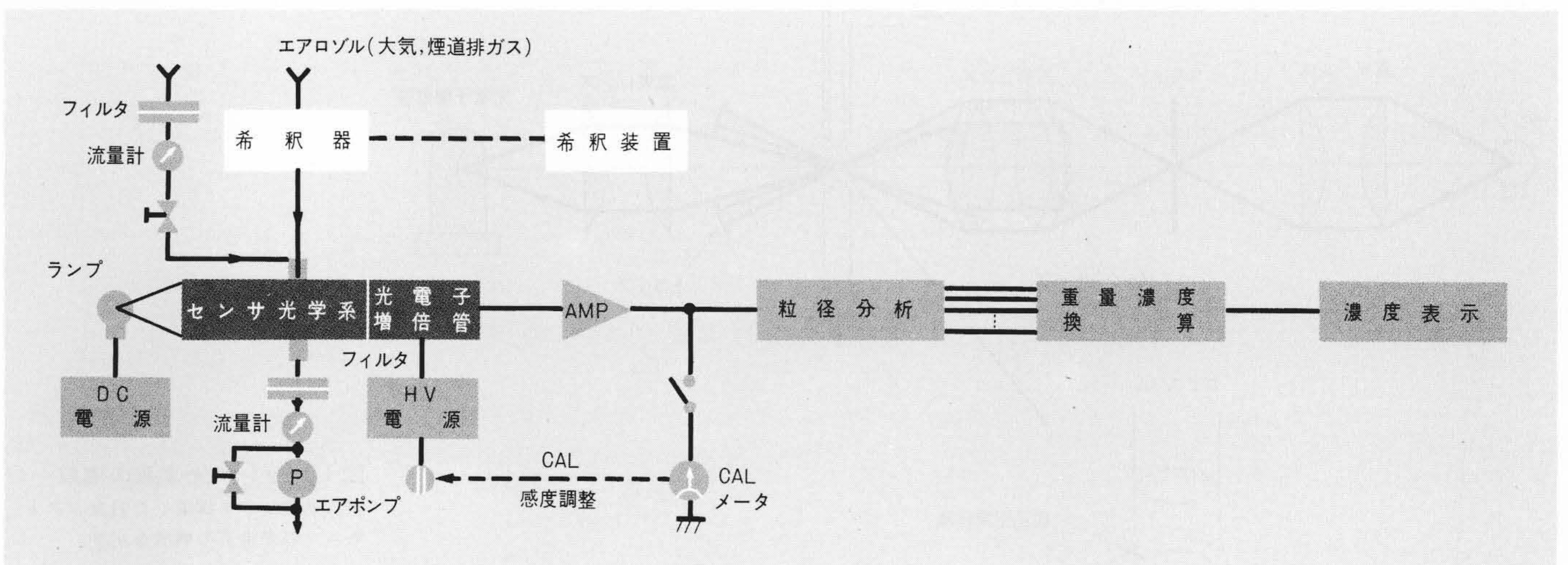


図4 ダストモニタ、スタックダストモニタの構成 日立光散乱粒子計数計式ダストモニタの構成を示す。

Fig. 4 Hitachi Light-Scattered Dust Monitoring System

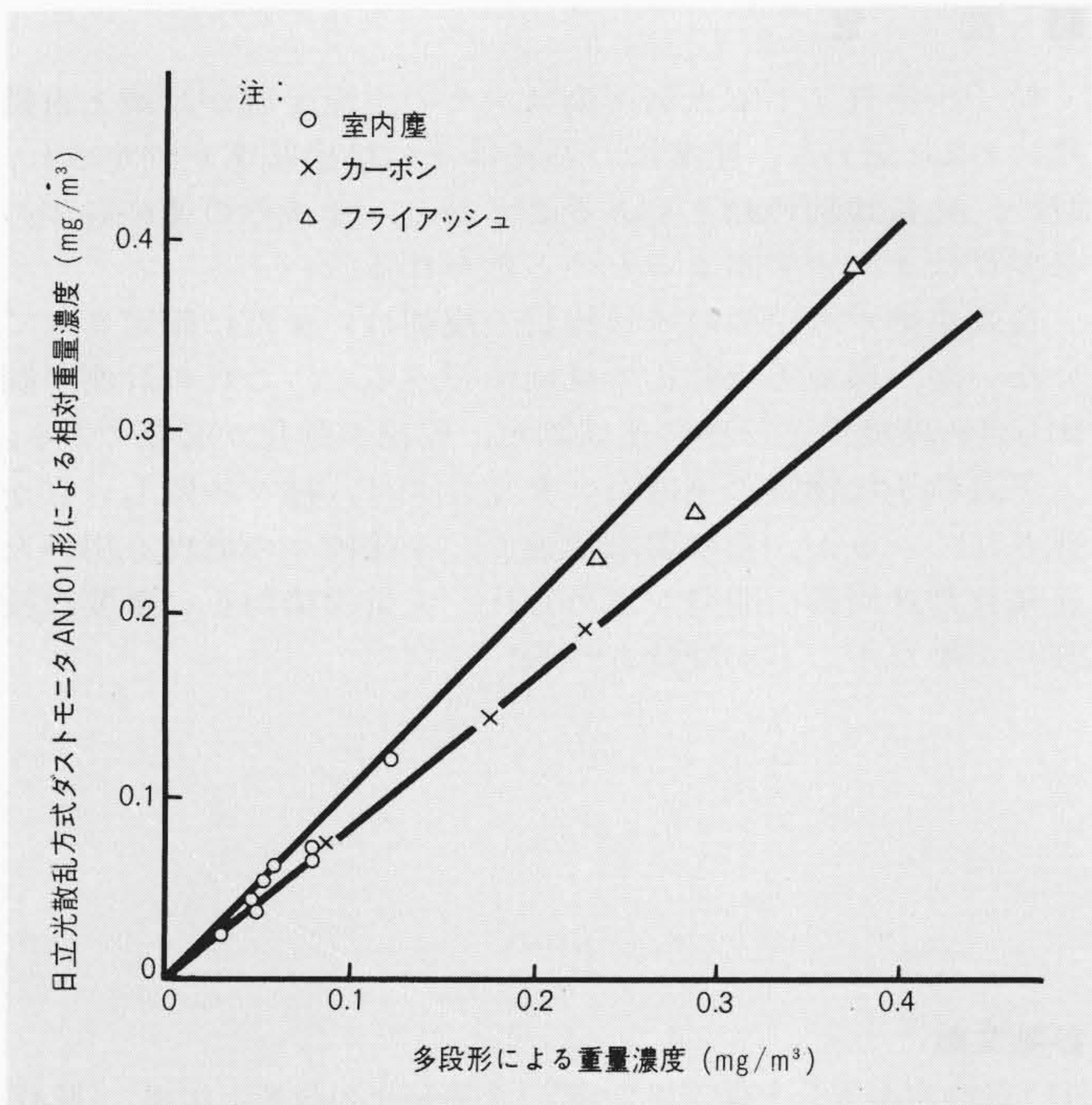
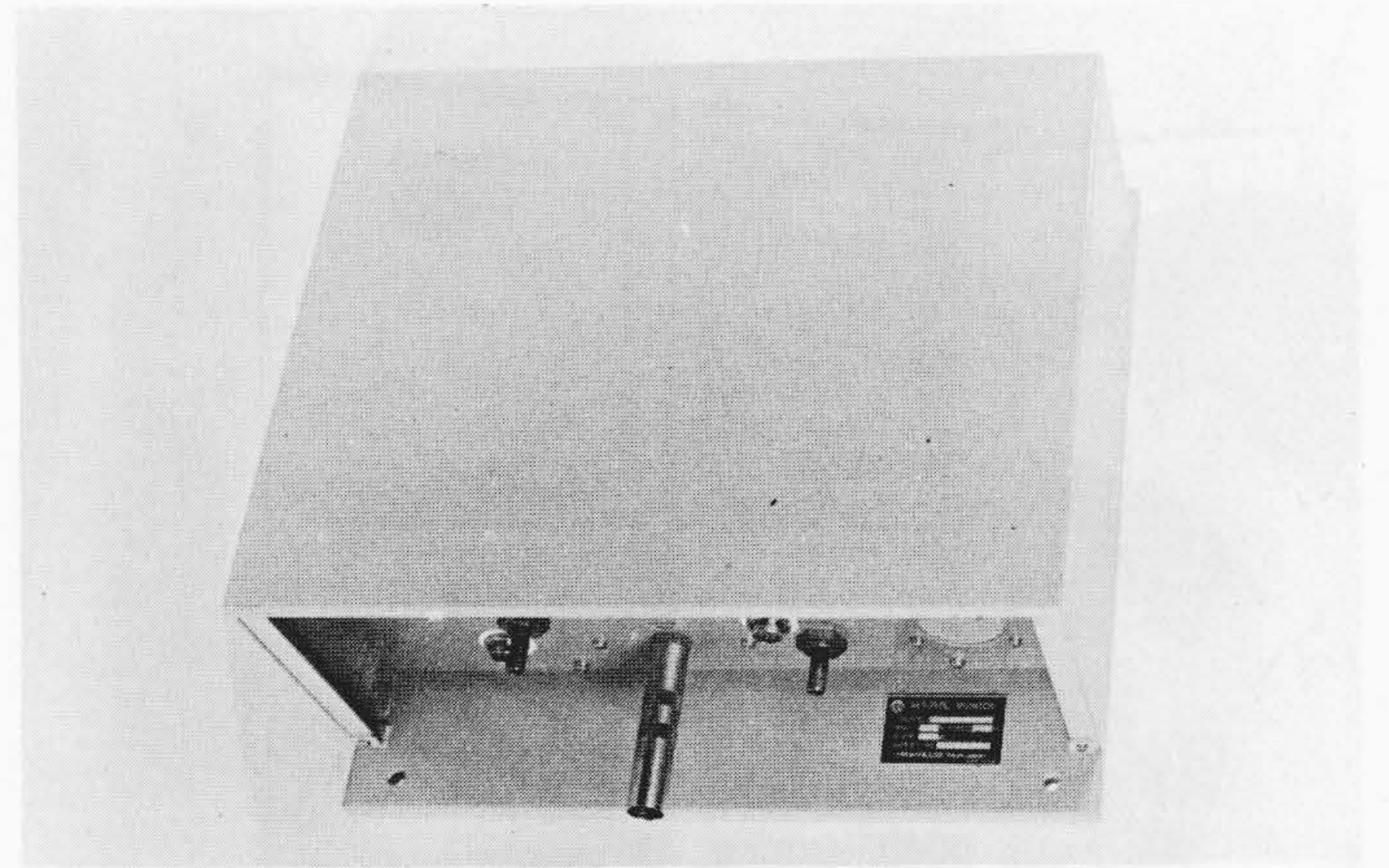


図6 多段形分粒装置付ローリウムエアサンプラとAN101形日立ダストモニタとの比較 日立光散乱方式ダストモニタとJIS法との相関を示すものである。

Fig. 6 Comparison with J.I.S. Method and Hitachi Dust Monitor

粒子数濃度が異なる場合には、粒径分布も変化する場合が多く同図の測定例では、重量濃度が高いほど直線の傾斜が緩やかになっている。

図6は、JIS法に規定されている環境浮遊粉塵測定用多段形分粒装置付ローリウムエアサンプラと本モニタとの比較データを示すもので、室内塵、カーボンダスト、フライアッシュのいずれともかなり良い一致がみられる。なお、日立光散乱粒子計数計式モニタは、環境用の場合、ポリスチレンラテックス球標準粒子で $10\mu\text{m}$ 相当径以上の粒子によるパルス波高値は電氣的にカットされ、 $10\mu\text{m}$ 相当径以下の粒子に対する測定を実施している。従って、特別な前処理分粒装置を必要としないで $10\mu\text{m}$ カットが実施できる特長を持っている。



(a) センサユニット (奥行440×幅460×高さ200(mm), 約15kg)



(b) 計数ユニット (奥行435×幅265×高さ450(mm), 約30kg)

図8 AN101形日立ダストモニタ 環境浮遊粉塵連続測定用に開発された光散乱方式ダストモニタを示す。

Fig. 8 Dust Monitor AN-101

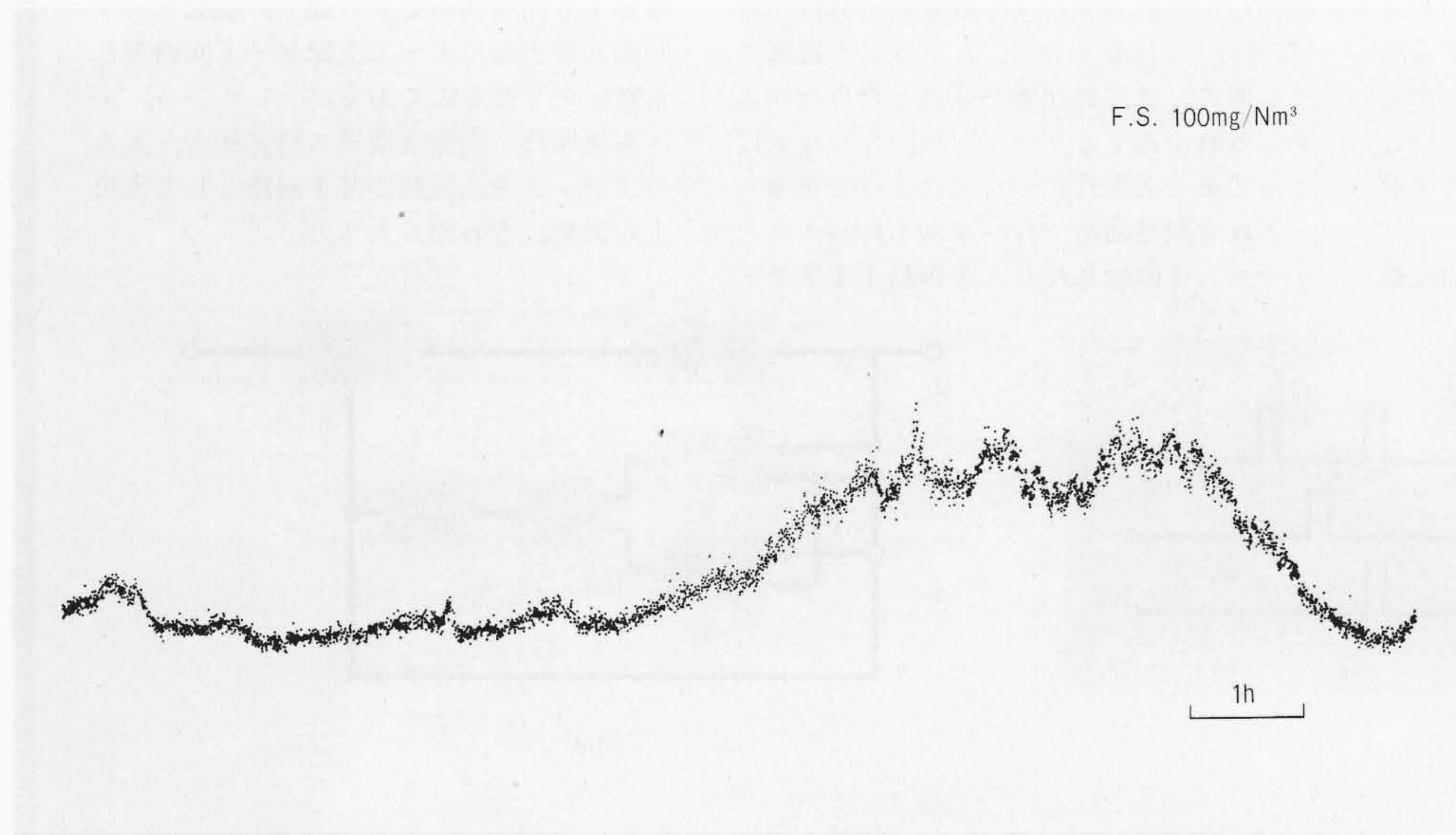


図7 AN100形日立スタックダストモニタによるばい塵濃度測定例 重油燃焼ボイラ排ガス中のばい塵濃度の連続測定の一例を示すものである。

Fig. 7 Operating Data of Stack Dust Monitor

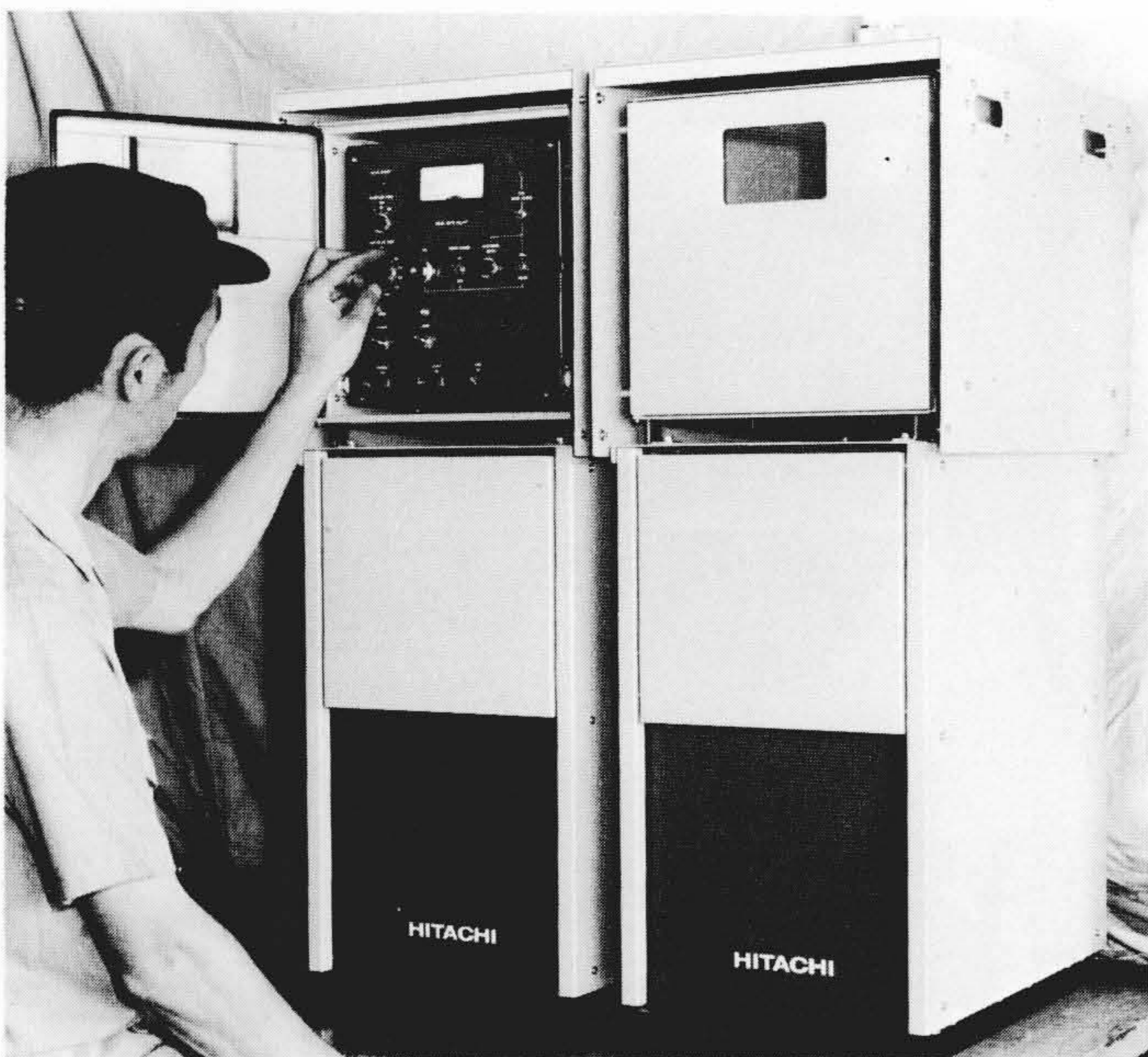


図9 ANI100形日立スタックダストモニタ 機能分割によるビルディングブロック化を実施した可搬形日立スタックダストモニタを示す。

Fig. 9 Stuck Dust Monitor AN-100

図7は、重油専焼ボイラ排ガスのばい塵濃度測定結果の一例を示すもので、JIS重量法との相関もあり、また連続運転も可能であることを確認している。

図8、9は、環境用ダストモニタ及び排出源用スタックダストモニタの外観図である。

5 結 言

粒子状物質による大気汚染は、その主発生源が産業と自動車にあると言われ、産業についてはその排出基準が制定され、且つ、総量規制の動きもあることから、今後その連続計測の必要性はますます高まるものと思われる。

自動車排ガス中の粒子状物質の規制はいまだに確定されていないが、環境汚染防止の見地からみると、これの計測・制御も含め環境浮遊粉塵の連続測定、監視の強化が必要である。

浮遊粒子状物質の連続モニタリングは、種々の難しい点が残されているが、その要求は強く、今後種々の原理を用いた連続自動計測器の開発が進められ、大気汚染防止に重要な役割りを果たすことが期待される。

参考文献

- (1) 通商産業省公害保安局監修、「公害防止の技術と法規」(昭47 産業公害防止協会)
- (2) 竹内嘉巳監修、「資料大気保全」(昭47 山海堂)
- (3) 大気汚染研究全国協議会第二小委員会編、「大気汚染ハンドブック(1)測定編」(昭46 コロナ社)
- (4) 高橋、「基礎エアロゾル工学」(昭47 養賢堂)
- (5) 今上、「最近の粒子状物質の計測技術について」環境技術 1, 2, 105 (昭47-2)
- (6) 本間、「大気汚染粒子状物質の粒度分布測定」公害と対策 9, 8, 69-78 (昭48-8)

特許の紹介

パルス周波数引算回路

鈴木敏孝・菅原 徹

特許 第609778号 (特公昭45-5577号)

本発明は、図1に示すような二つのパルス周波数の差を確実に求めることができるパルス周波数引算回路に関するものである。

本発明は要するに f_1 パルス列から f_2 パルスが加わるごとに次に加わる f_1 なるパルス信号の伝送を1回だけ断せんとする思想を骨子とし、 f_1 パルスと f_2 パルスとが重なって到来したときにも確実に引算を行なうことができるようにするために工夫を凝らしている。

したがって、従来この種のパルス周波数

引算回路にはない動作の確実性と安定性の高い装置とすることができる。

図2の回路は本発明の一実施例である。周波数が f_1 なる第1のパルス信号と、周波数が f_2 なる第2のパルス信号の引算 $f_1 - f_2$ ($f_1 \geq f_2$)を行なうのに、 f_1 パルスを遅延させる回路、該遅延回路を通過した f_1 パルスを断断伝送するゲート回路、 f_2 パルスによってセットされ f_1 パルスによってリセットされる記憶回路、 f_1 パルスと f_2 パルスとが一致して印加されたとき作動するアンド

回路、上記記憶回路出力あるいはアンド回路出力によって一定時間幅のパルスを発生するゲート制御回路および上記ゲート制御回路出力を上記記憶回路のリセット端子に帰還する帰還回路とから成り、上記ゲート制御回路出力によって上記ゲート回路を断断伝送させるのである。

本発明は、回転速度差の精密制御、あるいはデジタル回路の基本回路として実用上の効果はきわめて大きい。

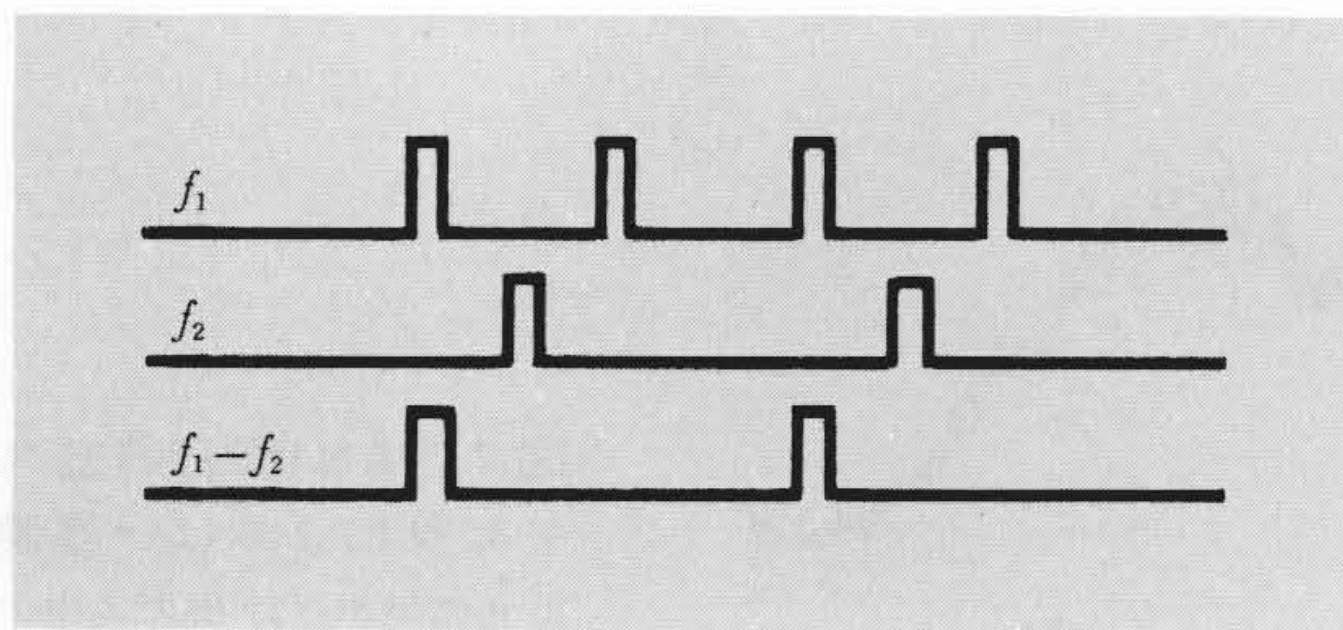


図1

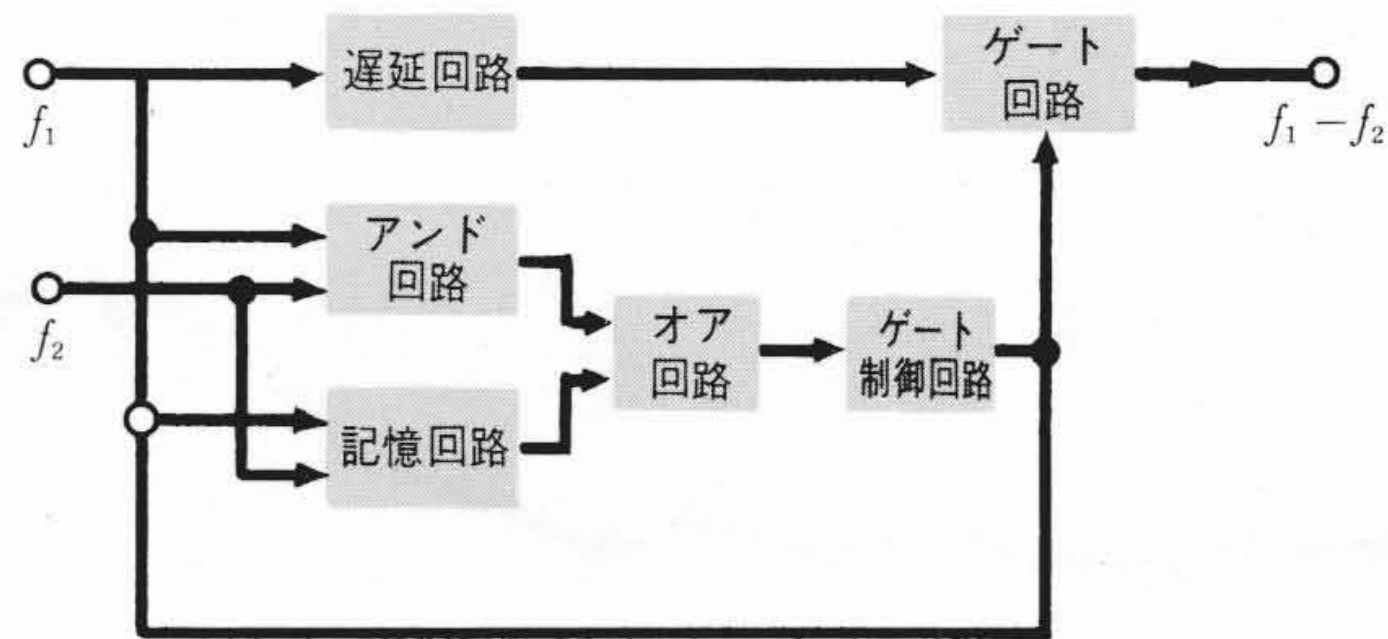


図2