

## 大規模固定煙源調査（追加解析結果）

### 1. 背景

本検討会において、大規模固定煙源の排出ガス中のばいじん、PM<sub>2.5</sub>及び凝縮性粒子等の排出実態を把握するため、それらの濃度を測定し、既存調査結果とともに結果を整理し、考察を行ったところである。

凝縮性粒子（燃焼直後は高温のため気体であるが、放出された大気中で冷却され粒子となる物質）については、煙源からの排出量が多いとされているが、排出インベントリには組み込まれていない。本検討会では、PM<sub>2.5</sub>及び凝縮性粒子等に係る既存の発生源調査結果を整理し、排出濃度について比較を行った。凝縮性粒子の排出量推計については、既往研究による検討事例があり、従来推計の5～7倍程度の有機粒子排出が報告されている（Morino et al., (2018)<sup>1</sup>、速水ら, (2012)<sup>2</sup>）。そこで、過去の推計事例等を参考にすることで、本調査結果を基に都内における凝縮性粒子の排出量推計の試算を行った。

また、本検討会において、本調査結果を基にPM<sub>2.5</sub>/TSP比を算出し、環境省インベントリで用いられているPM<sub>2.5</sub>/TSP比の値との比較を業種・燃原料別に行った。現行のインベントリで用いられている業種・燃原料別のPM<sub>2.5</sub>/TSP比は文献値により設定しており、その文献値は施設別にロジン・ラムラー分布により粒径割合を整理している<sup>3</sup>。そこで、本調査結果で整理したPM<sub>2.5</sub>/TSP比について、施設別燃原料別に整理し、文献値との比較を試みた。

### 2. 凝縮性粒子を考慮した排出量の試算

#### 2.1. 既往研究の推計手法

凝縮性粒子を考慮した排出量推計について、既往研究の推計方法を整理した。

Morino et al., (2018)は、2008年度から2013年度までの発生源調査結果を基に、凝縮性粒子（FCPM: Filterable Condensable Particulate Matter）を考慮した有機粒子（OA: Organic Aerosol）の排出量の推計結果を報告している。煙道中のPM<sub>2.5</sub>質量濃度（C<sub>PM2.5(FPM)</sub>）と凝縮性粒子中のOA質量濃度（C<sub>OA(FCPM)</sub>）の比率を燃焼起源別（heavy oil combustion, coal combustion, gas combustion, wood burning, , waste burning, waste burning-sewage sludge）に整理し、排出量を推計した。

$$E_{OA(FCPM)} = E_{PM2.5(FPM)} \times \frac{E_{OA(FCPM)}}{E_{PM2.5(FPM)}} = E_{PM2.5(FPM)} \times \frac{C_{OA(FCPM)}}{C_{PM2.5(FPM)}}$$

※煙道上のPM<sub>2.5</sub>中のOAは非常に低濃度の試料が存在するため、凝縮性粒子中のOA濃度と煙道中のPM<sub>2.5</sub>質量濃度の比率をPM<sub>2.5</sub>の排出量に乗じて算出。

※OC×1.2をOAとして算出。

推計の結果、凝縮性粒子を考慮した場合、従来推計よりもPM<sub>2.5</sub>のOAは約7倍に増加し、産業群や発電所の固定発生源の排出寄与割合が拡大した。

<sup>1</sup> Y. Morino, D. Chatani, K. Tanabe, Y. Fujitani, T. Morikawa, K. Takahashi, K. Sato, S. Sugata; Contributions of Condensable Particulate Matter to Atmospheric Organic Aerosol over Japan, Environ. Sci. Technol (2018)

<sup>2</sup> 環境省研究総合推進費「C-1001」「我が国都市部のPM<sub>2.5</sub>に対する大気質モデルの妥当性と予測誤差の評価（平成22年度から平成24年度）研究代表者：速水洋（電力中央研究所）」

<sup>3</sup> 粒子状物質の挙動に関する調査研究 拡散シミュレーション（産業公害防止協会、昭和60年3月）

また、速水ら、(2012)は、凝縮性粒子を考慮した有機炭素（OC：Organic Carbon）の排出量推計結果を報告している。燃焼起源（ガス燃焼、液体燃料、木材、固体燃料、電気炉、廃棄物、船舶、建機、野焼き、たばこ）に応じた発生源調査結果を基に、PM<sub>2.5</sub>に対する凝縮性粒子のOC比率を算出し、大規模固定煙源からのPM<sub>2.5</sub>排出量から凝縮性粒子を考慮した排出量を推計した。推計の結果、凝縮性粒子を考慮したPM<sub>2.5</sub>排出量では、OC排出量は従来の推計よりも5~6倍に増加し、シミュレーションモデルによる計算を実施したところ、OAの過小評価は大幅に解消された。

## 2.2. 本調査における推計方法

既往研究結果を基に、都内排出量におけるPM<sub>2.5</sub>排出量について、凝縮性粒子を考慮した排出量の試算を行った。収集した発生源調査は主に大規模固定煙源での測定結果であり、既往研究においても大規模煙源の排出量の寄与の増大が報告されていることから、推計対象は、大規模固定煙源とした。現状の都内PM<sub>2.5</sub>排出量は、大規模固定煙源について「一般事業所」、「下水処理場」、「一般工場」、「清掃工場」、「発電所」の業態別に排出量を推計しており、PM<sub>2.5</sub>中の成分は、施設別、燃原料別に配分している<sup>4</sup>。既往研究を踏まえ、大規模固定煙源について、燃焼起源区分別に凝縮性粒子と煙道中のPM<sub>2.5</sub>に係る比率を算出した。

表 1 凝縮性粒子を考慮した排出量推計における燃原料区分

推計手法	推計項目	燃焼起源区分	参考文献
A方式	OA排出量	① heavy oil combustion（重油） ② coal combustion（石炭） ③ gas combustion（都市ガス） ④ wood burning（木材） ⑤ waste burning（一般廃棄物・産業廃棄物） ⑥ waste burning-sewage sludge（下水汚泥）	Morino et al., (2018)
B方式	OC排出量	① ガス燃料（都市ガス） ② 液体燃料（重油） ③ 木材 ④ 固体燃料 ⑤ 電気炉（電力） ⑥ 廃棄物（一般廃棄物・産業廃棄物）	速水ら，(2010)

本調査による発生源調査結果を基に、煙道中のPM<sub>2.5</sub>と凝縮性粒子について有機粒子に係る比率を整理し、燃焼起源毎に、OA排出量、OC排出量に、それぞれの比率を乗じることで、凝縮性粒子を考慮した排出量を試算した。

<sup>4</sup> 「東京都微小粒子状物質検討会 資料集（東京都微小粒子状物質検討会、平成23年7月）「微小粒子状物質（PM<sub>2.5</sub>）等排出インベントリ報告書（東京都環境局環境改善部・財団法人東京都環境整備公社東京都環境科学研究所）」

## 2.3. 結果及び考察

### (1) 凝縮性粒子と煙道中の PM<sub>2.5</sub> 濃度の比率

#### ① A 方式による推計

既往研究の結果と比較すると、「gas combustion」や「heavy oil combustion」についてデータ数が多く確認され、いずれの燃焼起源においても凝縮性粒子の OA と遠藤中の PM<sub>2.5</sub> 質量濃度 (EOA(FCPM)/EPM<sub>2.5</sub>(FPM)) は、本調査集計値が既往研究の結果よりも低い結果となった。「waste burning-sewage sludge」では、本調査集計値が低い結果であった。その他についてはおおむね同程度であった。データ数の違い集計した発生源データの違い等が主な要因と考えられる。

表 2 A 方式による凝縮性粒子と煙道中 PM<sub>2.5</sub> の OA 比率

本調査集計値	number	temperature (exhaust)	temperature (after dilution)	$E_{OA}(FPM)$ / $E_{PM2.5}(FPM)$	$E_{OA}(FCPM)$ / $E_{PM2.5}(FPM)$	SD
01 heavy oil combustion	20	196.3	18.5	0.23	1.34	1.51
02 coal combustion	1	147.0	25.5	0.01	1.08	
03 gas combustion	6	132.8	26.3	0.41	12.75	7.72
04 wood burning	5	153.8	16.7	0.75	0.40	0.38
05 waste burning	6	183.3	17.1	0.12	7.34	13.74
06 waste burning-sewage sludge	5	174.8	17.5	0.04	2.41	3.00

※ 凝縮性粒子の OA と煙道中の PM<sub>2.5</sub> の比率について、凝縮性粒子の濃度が煙道中の PM<sub>2.5</sub> 濃度よりも大幅に高い値については異常値として、本集計から除外した (100 以上)。

※ 下水汚泥以外の産業廃棄物は “waste burning” に含めた。

表 3 Morino et al., (2018)による結果

Morino et al., (2018)	number	temperature (exhaust)	temperature (after dilution)	EOA(FPM) /EPM <sub>2.5</sub> (FPM)	EOA(FCPM) /EPM <sub>2.5</sub> (FPM)	SD
01 heavy oil combustion	8	208.2	21.2	0.08	2.13	1.58
02 coal combustion	1	147	22.7	0.01	0.96	
03 gas combustion	3	142.1	29.7	0.37	18.27	2.58
04 wood burning	2	84.5	21	0.12	0.77	0.5
05 waste burning	5	179	19.6	0.1	1.25	1.11
06 waste burning-sewage sludge	5	192.6	18.3		6.01	1.35

※ 出典 : Morino et al., (2018)

② B方式による推計

B方式による集計結果では、既往研究の結果と比較すると、「ガス燃料」、「液体燃料」、「木材」、「廃棄物」について、データ数が多く確認された。「ガス燃料」及び「液体燃料」では、本調査集計値が既往研究の結果よりも低かったが、「廃棄物」では、高い結果となった。「木材」では、おおむね同程度の値となった。

表 4 B方式による凝縮性粒子と煙道中 PM<sub>2.5</sub> の OC 比率

本調査集計値	number	OCの倍率
01 ガス燃料	6	37.4
02 液体燃料	18	9.4
03 木材	5	0.8
04 固体燃料		
05 電気炉	1	29.9
06 廃棄物	11	42.5

※ 凝縮性粒子の OC と煙道中の PM<sub>2.5</sub> の比率について、凝縮性粒子の濃度が煙道中の PM<sub>2.5</sub> 濃度よりも大幅に高い値については異常値として、本集計から除外した (100 以上)。

表 5 既往研究による OC 比率

速水ら (2012) ※	number	OCの倍率
01 ガス燃料	4	48
02 液体燃料	2	30
03 木材	1	1
04 固体燃料		1
05 電気炉	1	30
06 廃棄物	4	48

※出典：速水ら,(2010-2012)

## (2) 凝縮性粒子を考慮した排出量推計結果

大規模固定煙源における凝縮性粒子の排出量推計結果を図 1 に示す。推計に当たっては、凝縮性粒子を考慮した PM<sub>2.5</sub> 排出量（A 方式は OA 排出量、B 方式は OC 排出量）について、業態別に整理した（発電所、清掃工場、一般工場、下水処理場、一般事業所）。推計の結果、凝縮性粒子を考慮した排出量は、A 方式では従来推計の約 9 倍の PM<sub>2.5</sub>OA 排出量（従来推計：18 t、A 方式：162 t）、B 方式では従来推計の約 28 倍の PM<sub>2.5</sub>OC 排出量が推計された（従来推計：15 t、B 方式：431 t）。煙道の PM<sub>2.5</sub> 中の OC は非常に低濃度の試料が存在するため、凝縮性粒子中の OC 濃度と煙道中の PM<sub>2.5</sub>OC 濃度の比率による比較では、凝縮性粒子の排出量を過大評価している可能性がある。

東京都における大規模固定煙源では、ガス燃料の排出量が多く、ガス燃料は A 方式及び B 方式の比率においても非常に高い値を示した。ガス燃料等では低濃度の測定結果が多く、凝縮性粒子に係る現状の測定方法では、低濃度の排出ガス試料の場合、希釈倍率によって測定を正確に実施することが困難であるという課題がある。現在、測定時の温度やガス成分の濃度の影響を受けずに凝縮性粒子の排出実態を把握する手法として、有機物の揮発性分布を測定する研究が進められており、研究段階ではあるが、新たな測定方法も提案された<sup>5</sup>。今後、発生源情報を充実させるには新たな測定方法による排出源の実態把握を行うとともに、凝縮性粒子を考慮した排出量の適切な推計が望まれる。

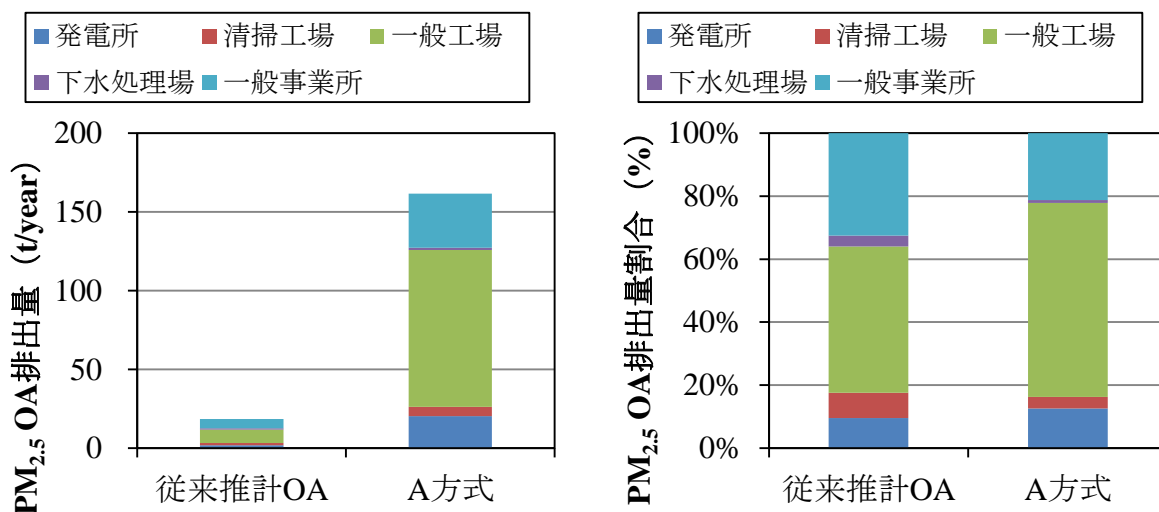


図 1 都内における従来推計の PM<sub>2.5</sub>OA 排出量と A 方式による凝縮性粒子を考慮した PM<sub>2.5</sub>OA 排出量（左図：排出量、右図：割合）

<sup>5</sup> 環境省研究総合推進費「5-1506」「燃焼発生源における希釈法による凝縮性一次粒子揮発性特性の評価法の確立（平成 27 年度から平成 29 年度）研究代表者：藤谷雄二（国立環境研究所）

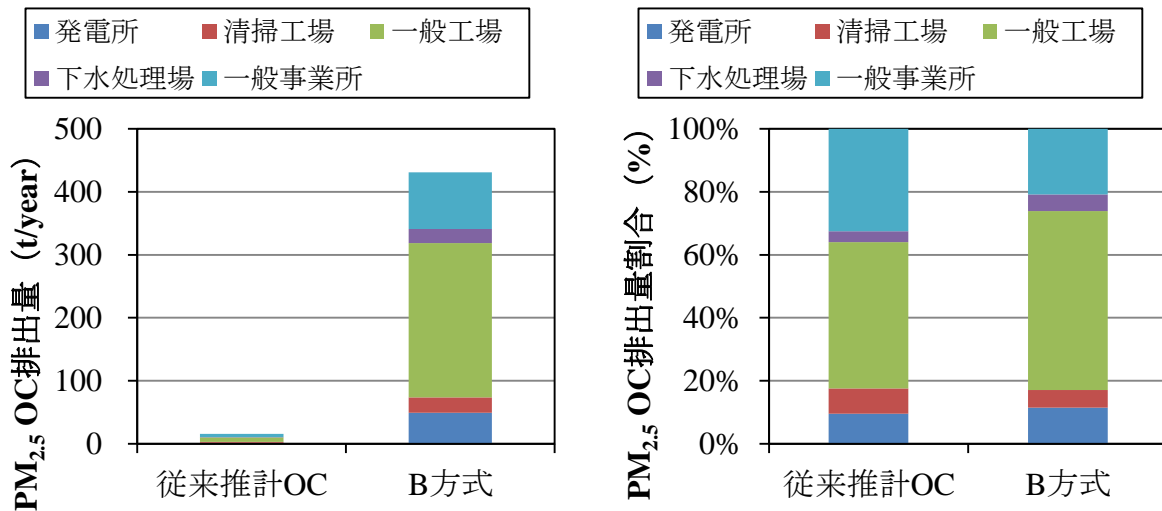


図 2 都内における従来推計の PM<sub>2.5</sub>OC 排出量と B 方式による凝縮性粒子を考慮した PM<sub>2.5</sub>OC 排出量 (左図：排出量、右図：割合)

### 3. PM<sub>2.5</sub>/TSP 比

#### 3.1. 施設・燃原料別の PM<sub>2.5</sub>/TSP 比の算出

環境省インベントリでは、大気汚染物質排出量総合調査（以下、MAP 調査という）によるばいじん濃度（以下、「TSP」という）から PM<sub>2.5</sub> 排出量を算出する際、排出係数である業種・燃原料別の PM<sub>2.5</sub>/TSP 比は文献値により設定している。しかし、算出に用いる文献値は、1985 年の報告書から用いたものが多く、必ずしも現状の実態を反映しきれていない可能性がある。

平成 30 年度第 2 回検討会では、本調査結果を基に、業種・燃原料別に PM<sub>2.5</sub>/TSP 比を算出し、現行のインベントリで用いられている PM<sub>2.5</sub>/TSP 比の値との比較を行った(図 3)。

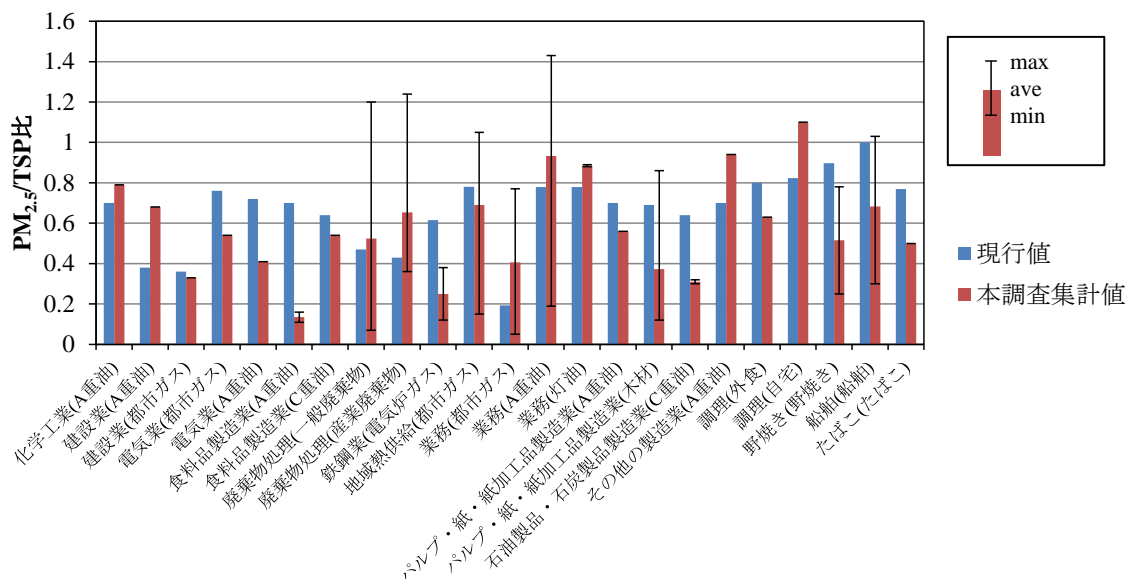


図 3 本調査結果から集計した PM<sub>2.5</sub>/TSP 比と現行のインベントリで用いる PM<sub>2.5</sub>/TSP 比

※ 本調査集計値のエラーバーは最大値と最小値を示す。

※ 同一施設について TSP、PM<sub>2.5</sub>(CI)、PM<sub>2.5</sub>(VI)、総粉じん(VI)がある場合には、優先順位を付けて集計した (PM<sub>2.5</sub>(VI)/TSP > PM<sub>2.5</sub>(VI)/TOTAL > PM<sub>2.5</sub>(CI)/TSP)。

PM<sub>2.5</sub>/TSP 比に係る文献値は、施設・燃原料別にロジン・ラムラー分布により粒径割合を整理している。そこで、本調査結果で整理した PM<sub>2.5</sub>/TSP 比について、施設別燃原料別に整理し、文献値との比較を行った。

PM<sub>2.5</sub>/TSP 比の算出に当たっては、平成 30 年度第二回検討会で報告した方法と同様の手法を用いた。PM<sub>2.5</sub>については、カスケードインパクト（以下、「CI」という）とバーチャルインパクト（以下、「VI」という）の結果を同じ PM<sub>2.5</sub>として統合し、同一施設において両測定方法が確認される場合には、VI の結果を用いた<sup>6</sup>。また、TSP の結果がない施設については、VI で捕集された総粉じん量を TSP と仮定し、同一施設において両測定方法が確認された場合は、TSP の結果を優先した。本来、TSP は PM<sub>2.5</sub> よりも濃度が高いはずであることから、算出した値において、PM<sub>2.5</sub> 濃度が TSP 濃度を大きく上回った結果については本算出からは除外した（ここでは、PM<sub>2.5</sub>/TSP が 2 以上とした）。

### 3.2. 施設別燃原料別の PM<sub>2.5</sub>/TSP 比の算出結果

本調査結果から集計した施設別・燃原料別の PM<sub>2.5</sub>/TSP 比を図 4 に示す。

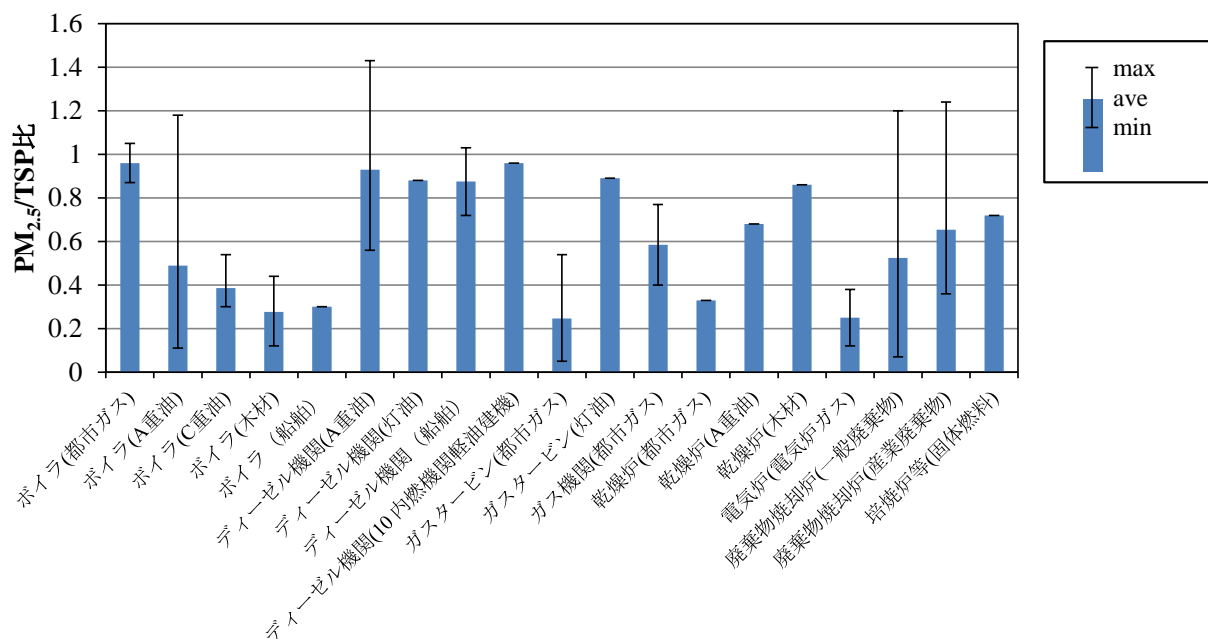


図 4 本調査結果から集計した集計した PM<sub>2.5</sub>/TSP 比

- ※ 本調査集計値のエラーバーは最大値と最小値を示す。
- ※ 同一施設について TSP、PM<sub>2.5</sub>(CI)、PM<sub>2.5</sub>(VI)、総粉じん(VI)がある場合には、優先順位を付けて集計した (PM<sub>2.5</sub>(VI)/TSP > PM<sub>2.5</sub>(VI)/TOTAL > PM<sub>2.5</sub>(CI)/TSP)。

<sup>6</sup> CI と VI は、煙道中の PM<sub>2.5</sub> 濃度の異なる測定方法であり、CI の測定機器内の捕集板で捕集した粒子が反発や再飛散等の影響を受けることで、VI よりも排出ガス濃度が高い値を示すことがある。ここでは、発生源情報が少ないことから、両結果を合わせて集計を実施しているため、必ずしも同手法による PM<sub>2.5</sub> 濃度ではないことに留意する必要がある。

文献値では、その当時収集された発生源調査結果について、施設、集塵装置の有無、必要に応じて燃原料毎にロジン・ラムラー分布を作成し、粒径分布を求めている。文献の分布指数、粒度特性係数を基に、ダストの粒径分布を表すロジン・ラムラー分布について、次式から  $2.5\mu\text{m}$  以下の粒子割合を算出することで文献値の  $\text{PM}_{2.5}/\text{TSP}$  比を求めた。

$$R = 100 \times \exp(-\beta dp^n)$$

dp：粒子径、 $\beta$ ：粒度特性係数、n：分布指数

本調査結果による施設・燃原料別の  $\text{PM}_{2.5}/\text{TSP}$  比と文献値により求めた  $\text{PM}_{2.5}/\text{TSP}$  比の比較を行った（図 5）。業種別・燃原料別の比較結果と同様に、一部かい離している施設もあるものの、おおむね一致している傾向が確認された。ただし、事例の少ない施設も多く、事例が多い施設では、平均値は文献値に比較的近いものの、最大最小幅は大きい結果となった。

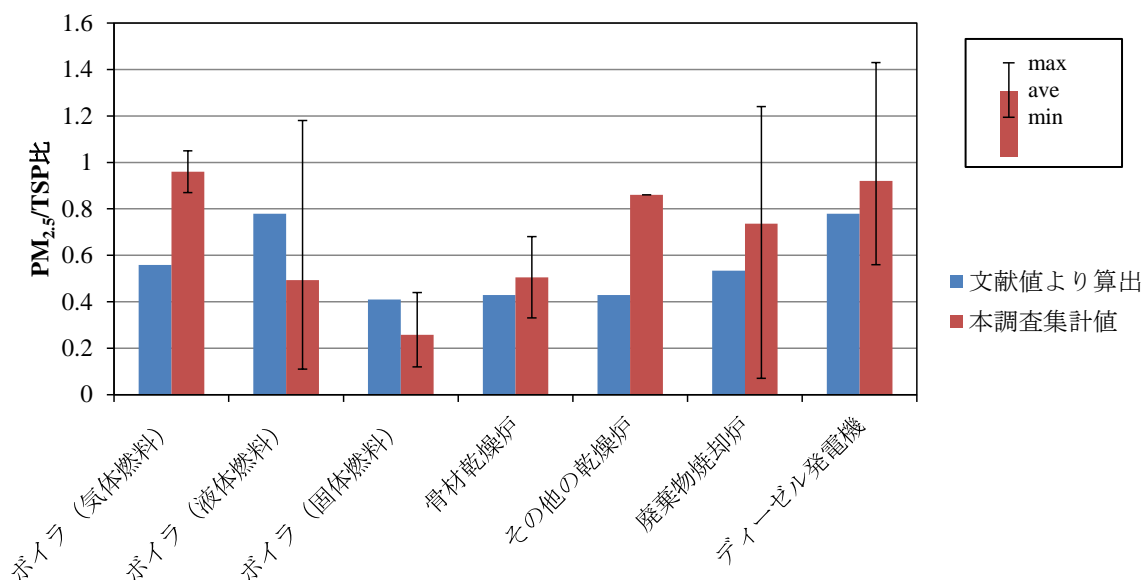


図 5 本調査結果から算出した施設・燃原料別の  $\text{PM}_{2.5}/\text{TSP}$  比と文献値から求めた  $\text{PM}_{2.5}/\text{TSP}$  比

- ※ 文献値と比較可能な施設を対象とした。「粒子状物質の挙動に関する調査研究 拡散シミュレーション（産業公害防止協会、昭和 60 年 3 月）」の分布指数、粒度特性係数を基に、ダストの粒径分布を表すロジン・ラムラー分布から  $\text{PM}_{2.5}/\text{TSP}$  比を算出した。
- ※ 本調査集計値のエラーバーは最大値と最小値を示す。
- ※ 同一施設について TSP、 $\text{PM}_{2.5}(\text{CI})$ 、 $\text{PM}_{2.5}(\text{VI})$ 、総粉じん(VI)がある場合には、優先順位を付けて集計した ( $\text{PM}_{2.5}(\text{VI})/\text{TSP} > \text{PM}_{2.5}(\text{VI})/\text{TOTAL} > \text{PM}_{2.5}(\text{CI})/\text{TSP}$ )。



#### 4. まとめ

本調査における追加解析結果のまとめを以下に示す。

- ・凝縮性粒子を考慮した排出量を試算した結果、東京都における大規模固定淵源の  $PM_{2.5}$  の OA 排出量では、従来の推計方法と比べて 7 倍程度の増加が見込まれる結果となった。ただし、現状の凝縮性粒子の測定方法では、都市ガス等の低濃度の排出ガス試料の場合、希釈倍率によって測定を正確に実施することが困難であるという課題がある。現在、測定時の温度やガス成分の濃度の影響を受けずに凝縮性粒子の排出実態を把握する手法として、有機物の揮発性分布を測定する研究が進められ、研究レベルではあるが、新たな測定方法も提案された。今後、新たな測定方法を含めた発生源情報のデータの拡充・整備により、凝縮性粒子の影響を考慮した排出源の実態を把握し、固定発生源の  $PM_{2.5}$  濃度影響を評価していくことが望ましい。
- ・  $PM_{2.5}/TSP$  比について、本調査結果集計値と文献値から求めた施設・燃原料別の数値と比較したところ、業種別で比較した場合と同様に、概ね一致している傾向が確認できたが、最大最小幅は大きい施設や一部乖離している施設も確認された。
- ・本調査は、限られた発生源情報を基に取りまとめた結果であり、業種、施設、燃原料によってバラつきが多く確認されたことから、現状の発生源情報は必ずしも十分であるとは言えず、引き続きより多くの施設における測定結果の情報収集やデータの拡充が求められることを踏まえた上での考察であることに留意する必要がある。