



Title	フィルターを監（み）る
Author(s)	山形, 定; 吉舗, 大; 村尾, 直人 他
Description	第10回衛生工学シンポジウム（平成14年10月31日（木）-11月1日（金） 北海道大学学術交流会館） . 4 環境計測 . P4-8
Citation	衛生工学シンポジウム論文集, 10, 129-132
Issue Date	2002-10-31
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/7118">https://hdl.handle.net/2115/7118</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	10-4-8_p129-132.pdf



## 4-8

# フィルターを監(み)る

山形 定、吉舗 大、村尾直人、太田幸雄(北海道大学大学院工学研究科)

### 1. はじめに

フィルターを用いた分離技術は、従来より固液、固気分離に広く用いられており、最近の応用範囲は気体同士の分離にまで広がっている。環境に関連した分野でも、浄水、高純度水の製造などの固液分離、排ガス処理、クリーンルーム用清浄空気の製造などの固気分離で利用されている。フィルターによる固液、固気分離では、フィルターの使用に伴い目づまりが起き、ろ過速度が低下するため、適宜フィルター交換が必要となる。フィルター交換時期の適切な判断は、適当なる過効率を維持するとともに、フィルター交換にかかる費用を低減させることになるため重要である。

わたしたちの研究室ではこれまで、さまざまな材質のフィルター上に大気中に浮遊する微粒子(大気エアロゾル)を捕集、化学分析し、その組成および環境影響を検討してきた。このようなモニタリングにおいても、いつフィルターを交換すべきか、すなわちどの程度の期間大気エアロゾルをサンプリングするかは、対象とする成分との関わりで本質的問題となっている。

大気エアロゾルの主要な成分には、海塩などの水溶性塩類、硫酸などの酸性成分、土壌粒子などの鉱物、燃焼によって生じるエレメンタルカーボン(すす、以下EC)、さらに自然起源、人為起源のさまざまな有機物がある。これらの成分は、その化学的特性が大きく異なるため各成分毎に定量し、エアロゾル全体像を把握するためには、捕集から分析まで周到な計画が必要である。例えば塩類の分析を行なうためにはイオンクロマトグラフィーが用いられるが、このためのサンプルはテフロンフィルターなどに捕集されている。これは、石英など吸着性の大きなフィルターを用いると空気中のガス成分が吸着し、エアロゾルを過大評価してしまうためである。一方、ECや有機物の分析には石英フィルターが用いられている。これらの成分は燃焼でCO<sub>2</sub>に変換後、ガス分析により炭素量として定量する方法が一般的なためである。テフロンをはじめとする有機物からなるフ

ィルターを用いたのでは、フィルターに含まれる炭素が大きなバックグラウンドとなり定量は事実上不可能となる。

フィルターを用いた大気エアロゾルの捕集・分析では、分析対象成分の大気中濃度と測定方法の検出限界でサンプリング時間が規定される。したがって、時間変動が激しい成分であっても、短時間で十分な対象成分を捕集できない場合には、一定時間以上の平均濃度しか測定できない。

一方、フィルターを用い大気エアロゾルの量的評価のみをおこなうものには、捕集後にβ線吸収を測定する方法やサンプリングと同時に光学的吸収の測定をおこない連続的にエアロゾル量を計測する方法がある。これらは質的情報が得られないものの、高い時間分解能でエアロゾルの変動を把握することができる。光学的な方法としては、1950年代に開発された'Coefficient Of Haze'tape法(Hemeon et al. 1953)があり、この改良としてParticle Soot/Absorption Photometer(以下PSAP)やAethalometerなどがある。これらの方法では、使用するフィルターが特定されており、サンプリング後のフィルター分析は、先述した理由により、その対象が著しく制限されている。

そこで、フィルターを用いて大気エアロゾルの質的・量的評価を高い時間分解能で行なうために、化学分析が可能なフィルター上に捕集されつつあるエアロゾルを光学的に連続モニターすることが可能な装置、サンプリングフォトメーター(以下SP)を開発し、評価した。これは、従来使用してきたエアロゾルサンプラーのフィルター保持部分に光ファイバー光学センサーを設置し、フィルターを監視する装置である。

### 2. 実験方法

**装置の構成** 図1にSPの構成を示す。試料空気は外部接続のポンプによって、2μm以上の粒子をカットするサイクロンにより粗大粒子を除去された後、マニホールドを経由してフィルターホ

ルダ（FH）#1を通過する。このフィルターホルダには反射型の光ファイバーセンサー（Keyence FS-V10、 $\lambda=667\text{nm}$ ）が取り付けられており、サンプリング中フィルター表面の反射光強度を連続測定している。このセンサーはプログラマブルコントローラ（PLC）によって制御されており、フィルターの反射光強度が一定値（閾値）に達すると、下流の電磁弁が開閉しフィルターホルダ#2でのサンプリングが開始される。電磁弁の下流には参照光測定用のリファレンスフィルターホルダ、流量計が設置してあり、これらの測定値は反射光強度からエアロゾルの光学的吸収係数を算出するのに用いられる。

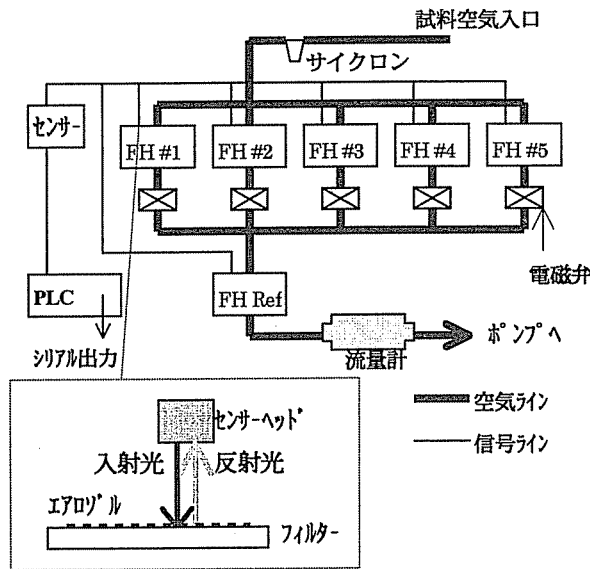


図1 サンプリングフォトメーター（SP）の構成およびセンシング部分の拡大

**PSAP との比較** SPは大気エアロゾルをサンプリングする装置であり、反射光強度を測定するのはフィルター交換時期を判断するためである。しかし、この反射光強度はフィルター上に蓄積されていくエアロゾル量によって変化するため、この情報からサンプリング中の短い時間におけるエアロゾル特性を導き出すことが期待できる。このようなフィルター上に捕集したエアロゾルの光学的測定を行なうものとして、エアロゾルの光学的吸収係数を測定する装置 PSAP がある。そこで、SP の反射光強度と PSAP の透過光強度を比較するために、両装置の並行測定を実験室およびフィールド（奄美大島）で行なった。

**捕集されたエアロゾルの分析** 従来エアロゾル

のサンプリングは、一定時間毎にフィルターを交換していた。SP によって捕集されたエアロゾルは、基本的には従来のエアロゾルサンプルと同じものである。しかし、反射光強度が同じサンプルであるためサンプル中に含まれるエアロゾル量もほぼ同一のものとなることが期待される。両方法で捕集されたエアロゾル中の主成分であるイオン性成分を分析し、その結果を比較した。

**反射光強度と EC 量との比較** エアロゾルには先に述べたように様々な成分が含まれている。SP の測定している反射光強度がエアロゾル中のどのような成分と関わりがあるのかを明らかにするため、エアロゾル成分中で最も光吸収性の大きい EC を、SP にセットした石英フィルター上にサンプリング後に測定し、結果を検討した。

### 3. 実験結果および考察

**PSAP との比較** 図2に SP の反射率 ( $R_f(\text{SP})$ )、PSAP の透過率 ( $Tr(\text{PSAP})$ ) とそれぞれから求めた吸収係数 ( $\sigma_{\text{abs}}(\text{SP}, \text{PSAP})$ ) を示す。SP と PSAP では捕集面積、試料空気流量が異なるため、フィルターの色が変化する速度は同じ試料空気であっても同一にはならない。そこでフィルター単位面積あたりの試料空気量を同程度にし、SP 反射率と PSAP 透過率が比較可能な条件下でサンプリングを行なった。図より明らかなように5回の測定いずれにおいてもフィルターの SP 反射率、PSAP 透過率はほぼ同じ時間変化をしており、SP 反射率は PSAP 透過率に代るものと考えられる。

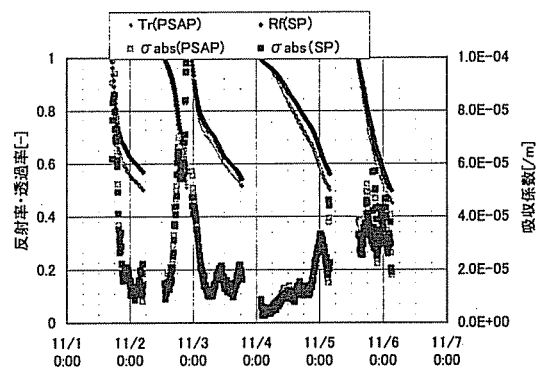


図2 SP 反射率 ( $R_f(\text{SP})$ )・PSAP 透過率 ( $Tr(\text{PSAP})$ ) と吸収係数  $\sigma_{\text{abs}}(\text{SP})$ 、 $\sigma_{\text{abs}}(\text{PSAP})$

そこで、PSAP 透過率から吸収係数を求めるための実験式(1) (Bond et al. 1999) の PSAP 透過率の項に SP 反射率を代入し、吸収係数  $\sigma_{\text{abs}}(\text{SP})$  を

求めた (図 2)。SP 反射率と PSAP 透過率が類似した時間変化をしたことから予想されるように、両装置から求めた光学的吸収係数は高い相関を持っていた (図 3)。したがって SP はエアロゾルの光学的吸収を測定する PSAP の代替品として使用可能と考えられる。

$$\sigma_{\text{abs}}(\text{SP}) = \frac{A / (V_i - V_{i-1}) \times \ln(Rf_{i-1} / Rf_i)}{2 \times (0.5398Rf_i + 0.355)} \quad (1)$$

$\sigma_{\text{abs}}(\text{SP})$ : SP による光学的吸収係数 [ $\text{m}^{-1}$ ],  
 A: フィルターの捕集面積 [ $\text{m}^2$ ]  
 $V_i, V_{i-1}$ :  $i, i-1$  番目の測定における積算採気量 [ $\text{m}^3$ ]  
 $Rf_{i-1}, Rf_i$ :  $i, i-1$  番目の測定フィルター反射率 [-]

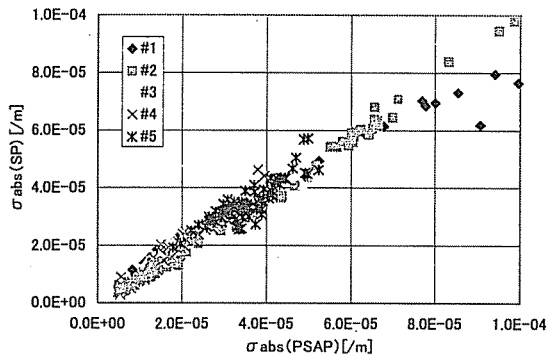


図 3 各フィルターでの吸収係数の相関

これまで、エアロゾル観測地点では光学的吸収係数を求める PSAP と化学分析を行なうためのフィルターサンプリングは全く別の装置として設置されていたため、配管、電源、データ収集を別系統のものとして準備していた。SP の使用により、装置数を 1 つ削減することが可能となった。さらに、SP は自動でサンプリングフィルターの切り替えを行なうため、サンプリング地点でのフィルター交換が不要となった。SP のフィルターホルダー部分 (FHU) は交換可能になっている。これにより、観測中に新しいフィルターをセットした次の FHU を事前に郵送すれば、観測者自身が実験室において遠隔地モニタリングのフィルター交換を行なうことが可能となった。

図 4 に鹿児島県奄美大島で行なった集中観測時の SP, PSAP の結果を示す。本来 SP は長期に無人運転が可能のように設計されているため、奄美大島のような清浄地域ではフィルター交換は 1 週間以上不要である。しかし、ここでは、複数の

フィルターについて化学分析可能な量のサンプルを 1 週間の滞在期間中に得る必要があったため、電磁弁の切り替えが起きる閾値を高めに設定してある。SP 反射率からわかるようにフィルターの交換は 3 回起きている。一方、PSAP は 1 日 1 回のフィルター交換を行なっている。両装置から得られた吸収係数は実験室で行なった場合と同様に良好な一致を見た。

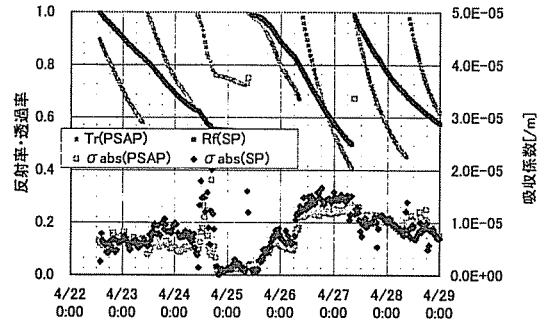


図 4 奄美大島でのフィールド観測における吸収係数の比較

**捕集されたエアロゾルの分析** 図 4 の SP で得られたフィルターおよび、従来の一定時間毎にフィルター交換を行なうサンプリングで得られたフィルター上のイオン分量を図 5 に示す。従来法では、サンプリングで得られたフィルター複数枚分のエアロゾル濃度を平均し、SP のサンプリング期間にあわせて比較している。

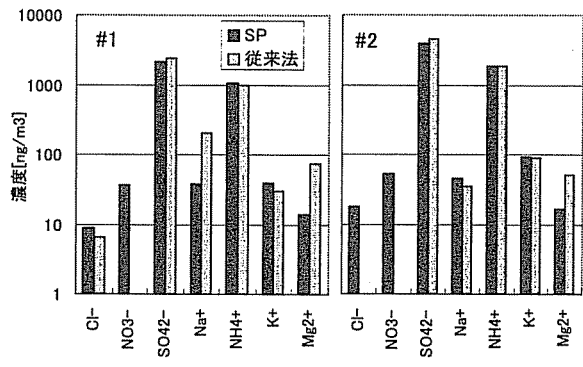


図 5 SP 及び従来法で捕集されたフィルターの分析結果

両サンプルの分析結果で特徴的なのは一部の成分 (#1 フィルターの  $\text{NO}_3^-$ 、#2 フィルターの  $\text{Cl}^-$  と  $\text{NO}_3^-$ ) で、SP フィルターでは分析値が出ているのに対し、従来法では検出限界以下となるものが見られる点である。1 日 1 回のフィルター交換では検出限界以下の量しか捕集できないような低濃度が継続した場合、複数のフィルターを分析

してもそれらの合計は0のままである。一方、SPでは、このような低濃度条件下では、フィルターの色が変化する、すなわち一定程度のエアロゾルが蓄積されるまでフィルター交換を行なわないため、サンプルの分析値が求められる。この点でSPはフィルター利用の重要なポイント「フィルター交換時期の適切な判断」を実現する装置といえる。

**反射光強度とEC量との比較** 図6に石英フィルター上へのサンプリング終了後、エアロゾル中に含まれる単位面積当たりのEC濃度とフィルター反射率との関係を示す。

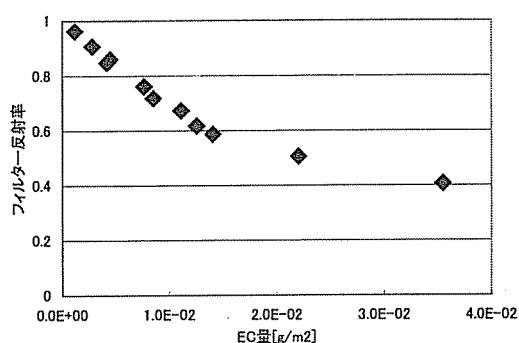


図6 フィルター上のECとフィルター反射率

フィルター上の単位面積あたりのEC濃度が高くなると反射率も低下するという予想通りの結果が得られた。図2から図4に表示した吸収係数が、サンプリング中の各時刻におけるエアロゾルの特性を表していたのに対し、図6の結果はフィルター上に堆積したエアロゾル総量に対する表現になっており、1枚のフィルターから1つの点を得られる。サンプリング開始時から終了時のサンプリング期間全体の平均吸収係数と積算採気量の積で与えられる吸収断面積と各フィルター上のEC量をプロットしたのが図7である。

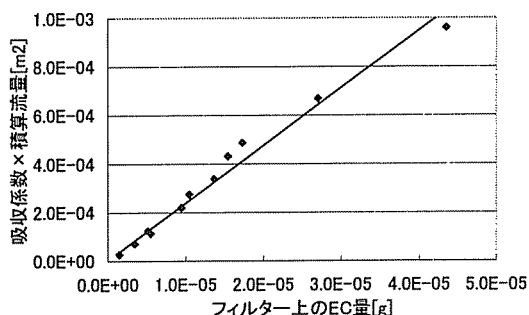


図7 質量吸収係数とEC量

これより得られた傾き  $23 \text{ [m}^2/\text{g]}$  の原点を通る直線は、ECを1g含むエアロゾルの光学的吸収断面積が  $23 \text{ m}^2$  であることを意味している。この値は既報告値 (20 前後) と一致している。

エアロゾル中の吸収を支配しているのは通常ECであると考えられるが、土壌粒子など他の光吸収性物質が含まれる場合には、それらのエアロゾルも光反射率の低下に寄与するため、この直線の傾きは観測を行った地域および時間に依存するものであることに注意しなければならない。

#### 4. まとめ

フィルター利用の際に必要なフィルター交換時期を適切に行なう方法を、大気エアロゾルを対象として開発した。フィルターの光学的反射率を測定し、エアロゾル堆積で反射光強度が低下するとフィルター交換する自動サンプリング装置、SPは以下の特徴を持つ。

1. 得られた反射率はこれまでPSAPで測定された光学的吸収係数とよい相関を持ち、本装置はPSAPの代替品となる。
2. サンプリング後のフィルターはこれまで市販されている吸収係数測定装置と異なり、化学分析をすることが可能である。
3. テフロン、石英など材質の異なるフィルターが利用できるため、サンプリング後に分析可能なエアロゾル成分対象が広い。
4. 反射光強度が閾値以下になるまでエアロゾルのサンプリングを継続して行うため、検出限界以下のサンプルをなくせる。
5. 反射率を支配しているフィルター上のEC量と吸収断面積との関係が得られ、その傾きは既報告値の範囲内であった。

本装置は現在、長崎県福江島、鹿児島県奄美大島、沖縄県宮古島、長野県(北アルプス)乗鞍岳、南極観測船の「しらせ」、中国などに配置されデータが蓄積されつつある。

#### 5. 参考文献

- Bond, T.C., et al. (1999), "Calibration and intercomparison of filter-based measurements of visible light absorption by aerosols", *Aerosol Sci. Technol.*, **30**, 582-600.
- Hemeon, W.C.L., et al. (1953), "Determination of haze and smoke concentrations by filter paper samples." *Air Repair* **3**, 22-28.