

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 11 日現在

機関番号：82101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24710017

研究課題名(和文) 農作物残渣の野焼きが大気粒子に与える影響評価

研究課題名(英文) Impact assessment of open burning of crop residues on the atmospheric particles

研究代表者

伏見 暁洋(Fushimi, Akihiro)

独立行政法人国立環境研究所・環境計測研究センター・主任研究員

研究者番号：30391155

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：稲わらなど農作物残渣の屋外焼却(野焼き)が大気微小粒子(PM2.5)濃度に与える影響を評価するため、以下の研究を行った。野焼きの指標となるレボグルコサンを含む有機指標成分を対象とした測定法を確立し、大気試料に適用した。関東郊外で、毎週PM2.5試料を採取し、粒子重量と炭素成分(元素状炭素、有機炭素)濃度を測定した。水田エリア2箇所における野焼きの実態を調査した。野焼き実験で採取した粒子試料について、粒子重量、炭素成分、元素、イオンを測定し、その排出係数や組成を明らかにした。炭素分析の際のキャリアーガスに窒素を用いてもヘリウムの場合と同等の結果が得られることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：To assess the impact of open burning of crop residues on the atmospheric fine particles (PM2.5), we have conducted the following studies. The analytical method was developed for some organic markers including levoglucosan as a marker of open burning. The method was applied to the atmospheric particles. PM2.5 were sampled every week at suburban area of Kanto, and their concentrations of particle mass and carbonaceous compounds (elemental carbon and organic carbon) were measured. Actual conditions of open burning were investigated at two paddy fields. Particle mass, carbonaceous compounds, elements, and ions in particulate samples collected from open burning experiments were measured, and their emission factors and compositions were determined. We have revealed that equivalent results can be obtained when nitrogen is used as a carrier gas as substitute for helium in carbon analysis.

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：有機指標成分 誘導体化GC/MS PM2.5 大気環境影響 微小粒子 化学組成

1. 研究開始当初の背景

大気中には様々な発生源に由来する微小粒子が存在し、それによる健康影響が懸念されている。2009年9月には大気中の粒径2.5 μm以下の粒子(PM2.5)に対する環境基準が告示された(年平均15 μg/m³, 日平均35 μg/m³)。しかし、都市部を中心にPM2.5の環境基準の達成は容易ではなく、その実態を把握して効果的な対策を講じることが必要とされている(伏見ら, 大気環境学会誌, 2011)。

大気汚染防止の観点から、工場などの固定発生源や自動車排ガスへの各種対策が進んだため、近年では稲藁などの農作物残渣の屋外焼却(野焼き)も無視できない寄与をもつと推定されている。例えば萩野ら(エアロゾル研究, 2006)は、野焼きの指標となり得る有機成分(レボグルコサン)の測定結果に基づき、冬季の関東郊外(埼玉)における野焼きの寄与率を12~55(平均31)%と推定している。また、我々は、放射性炭素(14C)の測定、大気観測に基づく統計解析(元素を主体としたケミカルマスバランス法=CMB)、3次元化学輸送モデルによる解析の結果、野焼きが比較的少ない夏季でも、関東郊外(群馬県前橋)において、野焼き粒子がPM2.5重量の最大25%程度を占めること、大気中に粒子状で排出される有機物に対しては野焼きが平均で28~40%寄与していることを示した(Morino, Fushimi et al., Environ Sci Technol 2010; 高橋・伏見ら, 大気環境学会誌 2011; Fushimi et al., Environ Sci Technol 2011)。また実際、例えば関東郊外では、野焼きが盛んな時期には、住宅街でも窓を開けられないほどの臭いと刺激に襲われることがしばしばあり、野焼きはとても身近な問題である。このように、環境基準を達成するレベルにまで大気中のPM2.5濃度を下げするためには、野焼きのように、これまでほとんど注目されてこなかった発生源についても、その排出実態を正確に把握し、排出低減の可能性を探ることが重要である。

野焼きの影響を定量的に把握するためには、野焼きによる粒子排出量に基づく順解析的なアプローチと、大気観測に基づく統計解析などの逆解析的なアプローチが考えられるが、いずれの場合も野焼きによる排出粒子の特性に関する情報が必須である。野焼きによる粒子の排出係数は残渣の種類や燃焼条件(水分含有量や着火位置等)によって変わる。例えば稲藁は日本では日常的に燃やされており、我々の予備実験の結果、その排出係数や組成が稲藁とは大きく異なることが明らかになっている。よって、日本では欧米諸国とは組成や排出の状況が異なることが予想されるが、我が国における野焼きの測定例は非常に少なく、排出量推計にも海外で測定された排出係数(農作物残渣1kgあたりの粒子発生量)が用いられている。また、籾殻の測定例は報告がなく、排出量推計において藁

との違いは考慮されていない。よって、排出量推計の際には、日本の実態にあった残渣や実験条件での値を用いることが重要である。

観測結果に基づく発生源寄与率の推定には、これまで元素を主体としたCMBがよく用いられてきた(例えば、高橋・伏見ら, 大気環境学会誌 2011)。野焼きに関しては、カリウムが重要な指標元素であるが、カリウムはゴミ焼却など他の燃焼発生源からも排出されるため、元素だけを用いたCMBでは推定精度に限界がある。そこで、野焼きのように、有機物が主体である発生源(他に調理、植物破片、花粉など)を精度よく推定するためには、有機指標成分を使った推定が望ましい。また、レボグルコサンのみを使って野焼きの寄与率を求める例が報告されているが、レボグルコサンの大気中での寿命が当初考えられていたよりも大分短い可能性が指摘されており、レボグルコサン単独ではなく、複数の有機指標成分を用いたCMBの方がより信頼できると思われる。

2. 研究の目的

稲藁などの農作物残渣の野焼きが大気環境に与える影響は、年々増加してきていると考えられる。そこで本研究では、野焼きが大気粒子に与える影響を定量的に評価することを目的とした。

具体的な研究項目は、以下のようである。

- (1) 野焼きなど各種発生源の指標となる有機指標成分の測定法の確立
- (2) 現場を模擬した野焼き実験に基づく粒子状物質の成分別排出係数の取得
- (3) 関東郊外での大気試料の通年採取と組成分析による野焼きの寄与率推定
- (4) 野焼きの実態調査
- (5) 窒素をキャリアーガスに用いた炭素分析の検討

3. 研究の方法

(1) 有機指標成分の測定法の確立

野焼きなど各種の発生源の指標となる有機指標成分を一斉に測定できる手法を確立する。検討対象成分は、バイオマス燃焼の指標となるレボグルコサンをはじめ、16種程度の発生源の指標となる合計約80成分とする。このうち、n-アルカン、多環芳香族炭化水素、ホパンについては、高感度測定ができる加熱脱着GC/MS(伏見ら, エアロゾル研究 2008)を適用する。また、他の熱に安定と思われる成分についても同法の適用を検討する。GC/MSによる直接測定が困難な極性成分(レボグルコサン、ピン酸など)に関しては、溶媒で抽出した後、誘導体化してGC/MSで測定することを検討する。標準試薬を用いた予備検討の結果、BSTFA/TMCS/ピリジンを用いたトリメチルシリル誘導体化法が多くの対象成分に適用できる見込みが得られたことから、同法の検証・最適化を進める。具体的には、標準試薬でクロマトグラムのピーク形

状,検量線の直線性,感度などを検討した後,大気試料や野焼き試料で添加回収率を確認し,分析条件を最適化する。

(2)野焼き実験に基づく粒子状物質の成分別排出係数の取得

日本における現場の状況を模擬した野焼き実験を行い,粒子状物質の成分別排出係数を求める。

野焼き試料の採取(平成24年度)

圃場の土壌表面に0.3 m³のステンレス製チャンバー(製作済)をかぶせ,その中で日本における代表的な農作物残渣5種(稲藁,小麦藁,稲籾殻,大麦藁,小豆茎葉)を燃焼させる。残渣は約200gを土壌表面に薄く敷き,チャンバー内に屋外空気を約6 m³/minで供給し,風下側に着火する。排気ダクトにインパクター(AN-200,28.3 L/min)を2台接続し,除粒子空気で約8倍に希釈した後,排気粒子を粒径別(>7.0 μm,2.1~7.0 μm,<2.1 μm)に石英繊維(Qz)フィルターとポリカーボネートフィルター(バックアップフィルターはテフロンフィルター;PC/T)上に採取する。風量と残渣含水率を変えた試験も行う。

成分分析と排出係数の算出

Qz試料は,秤量による粒子重量,光学補正・熱分離炭素分析計による炭素成分(元素状炭素EC,有機炭素OC),GC/MSによる有機指標成分の測定を行う。PC/T試料は秤量,PIXE(Particle Induced X-ray Emission)法による元素分析,イオンクロマトグラフィーによるイオン成分の測定を行う。これにより,残渣の種類や燃焼条件による排出係数や組成の違いを明らかにする。

(3)大気試料の通年採取と組成分析による野焼きの寄与率推定

大気粒子への野焼きの影響を把握するため,関東郊外で大気試料を通年で採取し組成分析を行い,有機指標成分を用いたCMB実施のためのデータを得る。

試料採取

対象地点は,周囲に田畑が多くある茨城県つくば市内の1地点(国立環境研究所)とする。アンダーセン分級器を装着したハイポリウムエアサンプラーを用いて,大気微小粒子(粒径2.0 μm以下)を1~2週間ごとに通年で石英繊維フィルター上に採取する。

組成分析と寄与率推定

採取したフィルター試料中のEC/OCと有機指標成分を測定する。

(4)野焼きの実態調査

どんな種類の農作物残渣がいつどこでの位燃やされているかといった野焼きの実態は,地域や対象年などにより大きく異なると言われている。そこで,大気観測地点周辺における野焼きの実態を把握するため,現地調査を行う。具体的には,2~3箇所程度の水田エリアを選定し,定期的に現地を視察し,農作物(特に水稲)の作付けの様子や野焼きの実態(場所,作付面積,残渣種類,時期,

期間,焼却率,燃焼方法等)を調査する。

(5)窒素をキャリアガスに用いた炭素分析の検討

昨今のヘリウムガスの不安定供給や価格高騰に対応するため,熱分離・光学補正式炭素分析におけるキャリアガスをヘリウムから窒素に変更することが可能かどうか検討した。具体的には,大気粒子やディーゼル排気粒子など20種のフィルター試料と粒子標準試料を対象に,キャリアガスがヘリウムの場合と窒素の場合とで,ピーク強度や形状,定量結果等を比較し,その傾向を把握する。

4.研究成果

稲わらなど農作物残渣の屋外焼却(野焼き)が大気環境(微小粒子濃度)に与える影響を定量的に評価するため,以下の研究を行った。

(1)野焼きなど各種発生源の指標となる有機指標成分の測定法を確立するため,稲わら等のバイオマス燃焼の指標となるレボグルコサンをはじめ,17種の発生源の指標となり得る35成分を対象に,標準物質を誘導体化した場合,しない場合の各々についてGC/MSで測定し,クロマトグラム形状や強度等を確認した。種々の試薬を用いて誘導体化の検討を行った結果,BSTFA(N,O-Bis(trimethylsilyl)trifluoroacetamide)とTMCS(trimethylchlorosilane)を用いた反応によって,大半の対象成分をうまく誘導体化できることが明らかになった。

野焼きの指標となるレボグルコサンを含む有機指標成分6種を対象に,BSTFAとTMCSを用いた誘導体化GC/MSによる測定法を検討し,レボグルコサンを精度よく測定できることが確認できた。同法により,関東地方で夏季と冬季に採取した大気微小粒子を測定した結果,レボグルコサンの大気中濃度は他の成分より高く,3.2~440 ng/m³であった。

(2)大気微小粒子(PM_{2.5})への野焼きの影響を把握するため,関東郊外(つくば市)で,1年余(2012年7月11日~2013年8月27日),毎週ハイポリウムサンプラーによりPM_{2.5}試料を採取し,秤量による粒子重量,光学補正・熱分離炭素分析計による炭素成分(元素状炭素,有機炭素)分析を行った。

(3)つくば市内(国立環境研究所周辺)の水田エリアを2箇所選定し,1~2週間おきに現地を視察し,農作物(特に水稲)の作付けの様子や野焼きの実態(場所,広さ,残渣種類,時期,期間,焼却率,焼却方法等)を調査した。

(4)国産の稲わら,小麦わら,大麦わら,籾殻,小豆茎葉を対象に,現場を模擬した野焼き実験により採取した粒子試料について,秤量による粒子重量,光学補正・熱分離炭素分析計による炭素成分(元素状炭素EC,有機炭素OC),PIXE(Particle Induced X-ray Emission)法による元素分析,イオンクロマ

トグラフィーによるイオン成分の測定を行い、残渣の種類や燃焼条件による排出係数や組成の違いを明らかにした。国産穀物の排出係数データは非常に少なく、これだけ多くの成分を測定したのは本研究が初めてであり、籾殻の組成は世界初のデータである。

(5) 最近のヘリウムガスの供給不足に対応するため、窒素をキャリアガスに用いた炭素分析の可能性を大気試料など約 20 試料を対象に検討した。その結果、低濃度域ではやや値が異なるものの、窒素を用いてもヘリウムの場合と同等の測定結果が得られることを確認できた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計1件)

伏見暁洋, 齊藤勝美, 林健太郎, 須藤重人, 小野圭介, 梶浦雅子, 藤谷雄二, 世良耕一郎, 高見昭憲, 田邊潔 (2011) 農作物残渣の野焼きで排出される粒子の化学組成, NMCC 共同利用研究成果報文集 18, 179-182, 査読無し
www.jrias.or.jp/report/pdf/2011_J1.2.19.pdf

〔学会発表〕(計4件)

伏見暁洋, 千葉真紀, 田邊潔 (2013年9月18-20日, 新潟) 窒素をキャリアガスに用いた熱分離・光学補正式炭素分析法の検討, 第54回大気環境学会年会, 講演要旨集, 211.

伏見暁洋, 齊藤勝美, 林健太郎, 須藤重人, 小野圭介, 梶浦雅子, 藤谷雄二, 世良耕一郎, 高見昭憲, 田邊潔 (2012年9月12-14日, 横浜) 農作物残渣の野焼きで排出される粒子の排出係数と化学組成, 第53回大気環境学会年会, 517.

林健太郎, 小野圭介, 梶浦雅子, 須藤重人, 伏見暁洋, 齊藤勝美, 藤谷雄二, 田邊潔 (2012年9月12-14日, 横浜) 作物残渣の焼却に伴うガス・無機エアロゾルの発生: 残渣の含水率の影響, 第53回大気環境学会年会, 516.

伏見暁洋, 齊藤勝美, 林健太郎, 須藤重人, 小野圭介, 常田雅子, 藤谷雄二, 世良耕一郎, 高見昭憲, 田邊潔 (2012年5月11-12日, 盛岡) 農作物残渣の野焼きで排出される粒子の化学組成, 第17&18回 NMCC 共同利用研究成果発表会, 17.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

伏見 暁洋 (FUSHIMI, Akihiro)

独立行政法人国立環境研究所・環境計測研究センター・主任研究員

研究者番号: 30391155

(2) 研究協力者

林 健太郎 (HAYASHI, Kentaro)

独立行政法人農業環境技術研究所・物質循環研究領域・主任研究員

齊藤 勝美 (SAITOH, Katsumi)

独立行政法人国立環境研究所・客員研究員