

終了課題成果報告書

研究テーマ名	微小有機成分粒子の一次排出および二次生成の寄与割合推定に関する基礎的研究
研究担当者(共同研究者含む)	○長谷川就一、米持真一、梅沢夏実、松本利恵、佐坂公規 城裕樹
実施期間	平成23年度 ～ 平成26年度 (4か年)
研究区分	自主研究事業 (共同研究機関名: さいたま市健康科学研究センター)
環境基本計画上の位置付	(目標) I 環境負荷の少ない安心・安全な循環型社会づくり (施策) 1 大気環境の保全
背景と目的(目標設定)	<p>微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の環境基準達成率は低い状況であり、埼玉県では短期基準 (日平均 35$\mu\text{g}/\text{m}^3$) 超過が多い傾向がある。PM_{2.5} の主要成分のうち、有機炭素 (OC) の発生源は多様で、化石燃料やバイオマスの燃焼による一次排出、及び大気中で気体反応により粒子となる二次生成があり、大変複雑である。その中で、野焼き等のバイオマス燃焼起源に関する動態解明や寄与、二次生成の寄与の把握がまだ不十分である。埼玉県は、都市化した県南部と農業地帯が多い県北部とでは環境が異なること、また、光化学スモッグが頻発し、光化学オキシダント (Ox) 濃度が高くなることから、こうした地域性も踏まえて調べる必要がある。</p> <p>そこで、本研究では、加須での継続的観測及び県内各地での成分調査を主として、バイオマス燃焼起源や二次生成の指標となる成分を測定するとともに、バイオマス燃焼発生源の粒子組成を分析することで、PM_{2.5} の有機成分の一次排出及び二次生成の寄与割合を適切に推定するための手法を検討し、必要となるデータ収集などの基礎的な研究を行った。</p>
研究内容(緊急性・必要性、新規性・独創性)	<p>PM_{2.5}濃度のモニタリングは大気常時監視測定局で行われており、県内の有効測定局数は平成23年度の3から平成26年度には35まで増加した。一方、PM_{2.5}の成分については、平成23年度から3地点で測定されているが、測定期間は四季各2週間に限られている。そこで、加須においてPM_{2.5}の日単位の試料採取を継続的に行った。これを用いて、バイオマス燃焼が顕著となる秋季と光化学二次生成が顕著となる夏季の元素状炭素 (EC)、有機炭素 (OC)、また、二次生成の指標とされる水溶性有機炭素 (WSOC) を測定し、季節間の比較を行った。</p> <p>一方、バイオマス燃焼起源の指標であるレボグルコサンを測定するとともに、発生源寄与解析を行うのに必要となる発生源粒子の化学組成を調べるため、バイオマス (農作物残渣) の燃焼実験や燃焼現場近傍において試料を採取し分析した。</p> <p>PM_{2.5}が短期基準 (日平均値 35$\mu\text{g}/\text{m}^3$) を大きく超過する高濃度事例は、秋季や冬季に比較的多く起きており、こうした高濃度事例について、化学組成や指標成分を比較し、バイオマス燃焼や二次生成の影響を考察した。また、こうした秋季・冬季の高濃度事例と夏季の平常事例について、バイオマス燃焼粒子の化学組成を基に発生源寄与解析を行い、一次排出や二次生成の影響を比較した。</p>
成果の概要(目標達成度)	<p>秋季と夏季のECとOCはいずれも秋季の方が高く、また、ECの中でもバイオマス燃焼の寄与が大きいとされるchar-ECが夏季よりも秋季の方が特に高かった。このため、秋季はバイオマス燃焼の寄与増大によってPM_{2.5}の濃度が高くなることが示唆された。OCに占めるWSOCの割合は秋季と夏季で同程度だったが、WSOC濃度は秋季の方が2倍近く高かったため、WSOCがバイオマス燃焼から発生している可能性が考えられた。</p> <p>秋季・冬季の高濃度事例 (4例) の比較では、いずれも主要成分ではOCと硝酸塩 (NO₃⁻) が高かったが、レボグルコサン・char-ECが高くバイオマス燃焼の影響が大きかった事例、その中でもWSOCやシュウ酸が高くエイジングの進行が示唆された事例、バイオマス燃焼の影響が中程度だった事例、硫酸塩</p>

(SO₄²⁻)が高く広域移流の影響が大きかった事例が見られ、それぞれの高濃度要因を推定できた。

バイオマス燃焼の発生源における化学組成については、農作物残渣(大麦・小麦・稲わら、籾殻)によってOC中のレボグルコサンの割合やEC中のchar-ECの割合が異なること、一方、OCに占めるWSOCの割合はいずれも4~6割程度であることがわかった。

これらを基に、秋季・冬季の高濃度事例と夏季の平常事例について、OC、char-EC、およびsoot-ECのうちのバイオマス燃焼分を推定し、残りを化石燃料燃焼分(OCはさらに一次排出と二次生成に分別)として推定した。その結果、秋季・冬季の高濃度時はOC・ECはバイオマス燃焼の寄与が支配的だが、低濃度時や広域移流の影響が大きい時は化石燃料燃焼の寄与がある程度存在した。夏季については、化石燃料燃焼の寄与が大きい、そのうち二次生成の寄与は年によって異なる傾向が見られた。

以上のことから、今後、WSOCは一次排出を考慮する必要性、二次生成を把握する有機酸などの成分データを蓄積する必要性、バイオマスの燃焼物による発生源組成の違いも含めた発生源情報の重要性などが示された。

成果の公表(発表・投稿、講演会の開催、報道機関の活用、特許取得等)

【論文】

長谷川就一、米持真一、山田大介、鈴木義浩、石井克巳、齊藤伸治、鴨志田元喜、熊谷貴美代、城裕樹：
2011年11月に関東で観測されたPM_{2.5}高濃度の解析、大気環境学会誌、Vol. 49, No. 6, pp242-251, 2014

【解説】

長谷川就一、米持真一：埼玉県におけるPM_{2.5}の実態、安全工学、Vol.52、No.6、2013

【口頭発表】

長谷川就一、米持真一、山田大介、鈴木義浩、石井克巳、齊藤伸治、鴨志田元喜、熊谷貴美代、国立環境研究所・Ⅱ型共同研究グループ観測グループ(関東甲信静グループ)：2011年11月に関東で観測されたPM_{2.5}高濃度の解析、大気環境学会第53回年会、横浜、2012年9月

長谷川就一、米持真一：埼玉県におけるPM_{2.5}炭素成分の季節比較とその要因、大気環境学会第54回年会、新潟、2013年9月

熊谷貴美代、山神真紀子、橋本貴世、野口邦雅、木下誠、長谷川就一、菅田 誠治：2014年2月におけるPM_{2.5}高濃度事例の解析、大気環境学会第55回年会、松山、2014年9月

城裕樹、長谷川就一、米持真一：レボグルコサン分析方法の検討、大気環境学会第55回年会、松山、2014年9月

長谷川就一、城裕樹、米持真一：炭素成分に着目した埼玉県におけるPM_{2.5}の季節比較と高濃度日の特徴、大気環境学会第56回年会、東京、2015年9月

【講演】

長谷川就一：関東地方におけるPM_{2.5}の高濃度事例の解析について、関東地方大気環境対策推進連絡会浮遊粒子状物質調査会議講演会、静岡、2015年3月

成果の発展性(埼玉県(行政・地域)への貢献、技術発展・実用化、課題等)

短期基準超過が秋季・冬季に比較的多く、その要因の1つとしてバイオマス燃焼の影響が推測されたことから、大気環境課と協力し、関係機関への周知や連携、注意喚起時の呼びかけなど、バイオマス燃焼の影響を低減させる方策の検討に生かしていく。また、環境省ではバイオマス燃焼等の野焼きの影響の把握が中・長期的な課題として挙げられていることから、本研究の成果を発信し、国全体での知見の集積に貢献していく。今後は、本研究で得られた知見を踏まえ、地域汚染の発生源寄与をより定量的に推定することを目指していく。