

エアロゾル排出係数に関する研究

ーバイオマス燃焼による排出粒子(ECとOC)の測定についてー

Investigation on Emission Factor of EC and OC from Biomass Combustion

坂本 和彦^{1*}、王 青躍¹、大須賀 肇太¹、薫 旭輝²、陳 岩²、王 偉³
Kazuhiko Sakamoto¹, Qingyue Wang¹, Keita Osuga¹, Xuhui Dong², Yan Chen², Wei Wang³

¹ 埼玉大学大学院理工学研究科

Graduate School of Science and Engineering, Saitama University

² 中日環境保護中心

Sino-Japan Friendship Center for Environmental Protection

³ 中国環境科学研究院

Chinese Research Academy of Environmental Sciences

Abstract

For the purpose of comprehensive evaluation of not only CO₂ but all GHGs and aerosols and air pollutants through complicate chemical reaction and physical process in the global atmosphere, and co-benefit of air pollution controls, we would carry out emission factor analysis from cooking stoves in rural housing in China as a typical small combustion source, however by the budget constraint we promoted preparation of experimental laboratory work only in this first year of the project as shown the experimental design of BC emissions in the text. In the next year we would promote the emission factor experiment observation on Black carbon (BC : a kind of aerosols having green house effect) and observation of ambient levoglucosan concentration to analyze accurate influence of BC and policy effect.

Key Words: Greenhouse Effect, Black Carbon, Levoglucosan

1. はじめに

アジア地域の人口・エネルギー消費は年々増加しており、それに伴い大気汚染物質排出量も著しく増大しており、アジア地域におけるその排出動向が今後の地球環境に大きく影響する。これまで、当研究室では中国における民生用燃料のクリーン化(低品位

石炭からのバイオブリケット(BB)への燃料転換による硫黄酸化物の排出抑制、粒子状物質の排出抑制、二酸化炭素の排出抑制)を目指して、低品位石炭とバイオマス廃棄物に硫黄固定材として消石灰を添加して、高圧成型して得られるBBの燃焼特性^[1,2]、現地農村の家庭における利用時の課題、普及策に取り組んできた^[3,4]。一方、中国国内における天然ガスなど新たな資源の開発が進んでいる。しかし、広大な中国においては物流の未発達な地域が多いこと、ま

* 〒338-8570 さいたま市桜区下大久保2-5-5
電話 : 048-858-3519 FAX : 048-858-9542
Email : sakakazu@env.gse.saitama-u.ac.jp

た社会的なインフラ整備に多大な費用が必要とされることなどから、各種のクリーン燃料への転換はあまり進んでおらず、特に農村部においてはその転換は遅い。そのため、今後も石炭やバイオマスなどそれぞれの地域で自給可能な安価で低品質な固形燃料が利用されて行く可能性が高い。地球温暖化の進展とともに、カーボンニュートラルなバイオマス利用による温暖化ガスの排出抑制が世界各地で検討され、実施されつつある。しかし、バイオマス燃焼であっても、排出される燃焼排ガス組成により、地球温暖化への影響の仕方は大きく異なる。例えば、燃焼時に大量の スス (EC) が排出されれば、太陽光を吸収し対流圏大気を暖めるため、温暖化を助長することになる¹⁰。また、バイオマス燃焼時には地球冷却化に寄与する有機粒子(炭素として考えた場合は OC)も排出されている。とくに、吸湿性・水溶性の高い極性有機粒子(水溶性有機炭素: WSOC)は雲粒ともなり得る¹⁰ため、バイオマス燃焼により排出される EC、OC、WSOC の排出実態の把握、ならびに BB のようなクリーン燃料からの同様な排出実態の把握が必要である。これらの燃料種別の排出粒子の組成が把握されて始めて、バイオマス利用による温暖化ガス排出抑制効果が正しく評価されることになる。特に、中国農村部でまだ多くのバイオマス(農業廃棄物等)が民生用燃料として利用されており、それらの燃焼時に排出される粒子状物質の特性把握は、今後の地球環境変化の予測に不可欠の情報となっている。中国農村部の住宅からの EC、OC 排出は大きく、バイオマス燃焼だからカーボンニュートラルとは言えない状況が推定されている。したがって、バイオマス利用による温暖化ガス排出抑制効果の正確な予測には、バイオマス燃焼による排出ガス組成の正確な把握が不可欠である。

本年度の本研究の目的は、中国におけるトウモロコシの茎、葉、芯、麦わら等の農業廃棄物であるバイオマス利用による温暖化ガス排出抑制効果の正確な予測に、不可欠なそれらの燃焼による EC、OC、WSOC の排出係数の整備ならび大気粒子へのバイ

オマス燃焼の寄与を推定するために、大気粒子中のバイオマス燃焼指標物質レボグルコサン測定法の確立ならびに、次年度のバイオマス燃焼時の OC と EC の排出係数把握のためのモデル実験装置の検討を行うことである。

2. 研究方法

(1) 炭素成分分析

炭素成分の分析は、フィルターの一部を 8 mm ϕ のポンチを用いてくり抜き、Carbon analyzer (DRI Model 2001 OC/EC Carbon Analyzer) を用いて行った。昇温プログラムは improve 法を用いた。Carbon analyzer の分析条件を Table 1 に示す。

Table 1. Analytical conditions of Carbon analysis

Carbon analyzer (DRI Model 2001 OC/EC Carbon Analyzer)	
Furnace	Temperature; 120, 250, 450, 550°C (OC) He-1 + He-2 Temperature; 550, 700, 800°C (EC, TC) He-1 + 10% O ₂ / 90% He (2% O ₂ /98% He)
Flow rates	He-1; 40 mL/min, He-2; 10 mL/min, He-3; 50 mL/min, 2% O ₂ / 98% He; 10mL/min, Air; 350 mL/min, H ₂ ; 35 mL/min
Catalyst	MnO ₂
Detector	Flame ionization detector

(2) レボグルコサンの分析

レボグルコサン 50、100、300、500、700、1000 ng を含む標準溶液を乾燥室素流通下で濃縮し、最終的に溶媒を完全に揮発させた。そこに、BSTFA 溶液 50 μ L、ヘキサン/ジクロロメタン (1:1) 50 μ L および内部標準溶液 10 μ L を加え、75 °C で 2 時間 30 分加熱し、誘導体化を行い、その後、サンプルを GC/MS にて分析した。レボグルコサンおよび内部標準のピークエリアの比 (レボグルコサン/内部標準) を縦軸に取り、横軸に質量を取ったグラフを Fig. 1 に示す。

レボグルコサンの定量分析用の試料は Fig. 2 に示す手順で調整した。

47mm ϕ フィルターサンプルを 4 等分し、その 1 つをレボグルコサンの分析に用いた。フィルター片

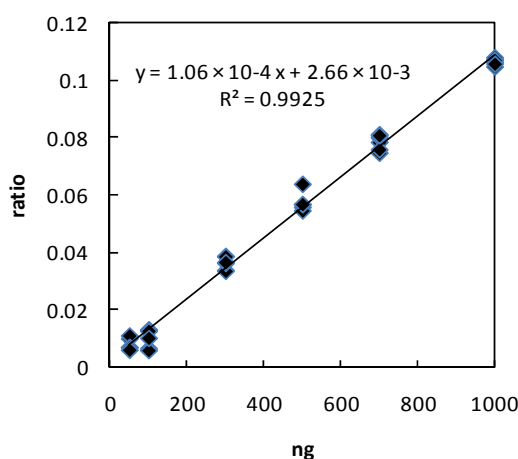


Fig. 1. Calibration curve for levoglucosan.

にジクロロメタン 5 mL を加え、超音波洗浄機にて 25 分間超音波抽出を行った。抽出後、抽出液を濾過し、乾燥室素流通下で濃縮し、最終的に溶媒を完全に揮発させた。そこに、ベンゼンスルホン酸トリフルオロアセトアミド(BSTFA)溶液 50 μ L、ヘキサン/ジクロロメタン (1:1) 50 μ L および内部標準溶液 10 μ L を加え、75 $^{\circ}$ C で 2 時間 30 分加熱し、誘導体化を行った。誘導体化後、GC/MS にて各サンプルを 2 回分析した。レボグルコサンの GC/MS 分析条件を Table 2 に示す。

Table 2. Analytical conditions of GC/MS analysis

GC/MS (GCMS-OP5050)	
Column	Fused silica capillary column DB-5 (0.32 mm i.d. \times 30 m \times 0.32 μ m)
Temperature	Column; 60 $^{\circ}$ C (2 min) to 250 $^{\circ}$ C at 10 $^{\circ}$ C/min, then to 300 $^{\circ}$ C at 5 $^{\circ}$ C/min Injection; 300 $^{\circ}$ C
Carrier gas	He; 50 mL/min
Ion source	230 $^{\circ}$ C for EI mode (400 mA, 70 eV)
Mass range	45-550 amu

3. 結果と考察

(1) レボグルコサンのGC/MS測定法の確立と応用

研究方法に示した手法の実行可能性を確認するために、夏季の関東地方の数地点で採取された大気粒子状物質中のレボグルコサン分析に本法を応用した。測定された平均濃度を Table 3 に示したように、本法は実試料に応用可能であることが確認された。

Table 3 に示したように、レボグルコサン濃度は、郊外地域(騎西、つくば、首都大(八王子))において、浦安、九段および埼玉大学といった都市部、都市近郊における地域よりも高い値を示していた。これはわが国の都市郊外においてもゴミ焼却や稲わらなどのバイオマスの燃焼が影響していることを示唆している。

Table 3. Atmospheric concentrations of levoglucosan

Sampling area	Levoglucosan (ng/m ³)
Urayasu	3.08
Kudan	4.14
Saitama Univ.	8.16
Kisai	45.5
Tsukuba	39.0
Tokyo Metropolitan Univ.	24.3
Yoyogi Park	13.4

また、微小粒子(PM_{2.5})の濃度推移においても騎西、つくば、首都大はレボグルコサン濃度と同様な濃度変化を示しており、バイオマス燃焼が EC、OC へのかなりの寄与が推定された。また、レボグルコサン濃度が高いつくばにおいて、Fig. 3 に示すようにレボグルコサンと水溶性 K⁺、OC、EC の相関関係を調べたところ、いずれも高い正の相関が見出され、バイオマス燃焼との関係が確認された。

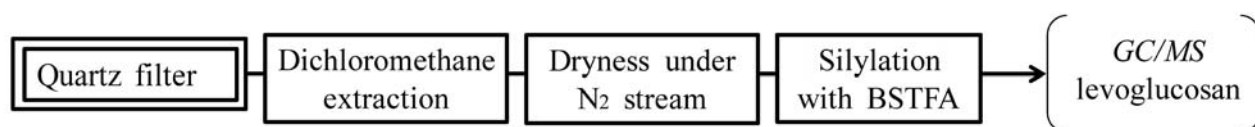


Fig. 2. Flow chart of levoglucosan analysis for filter samples.

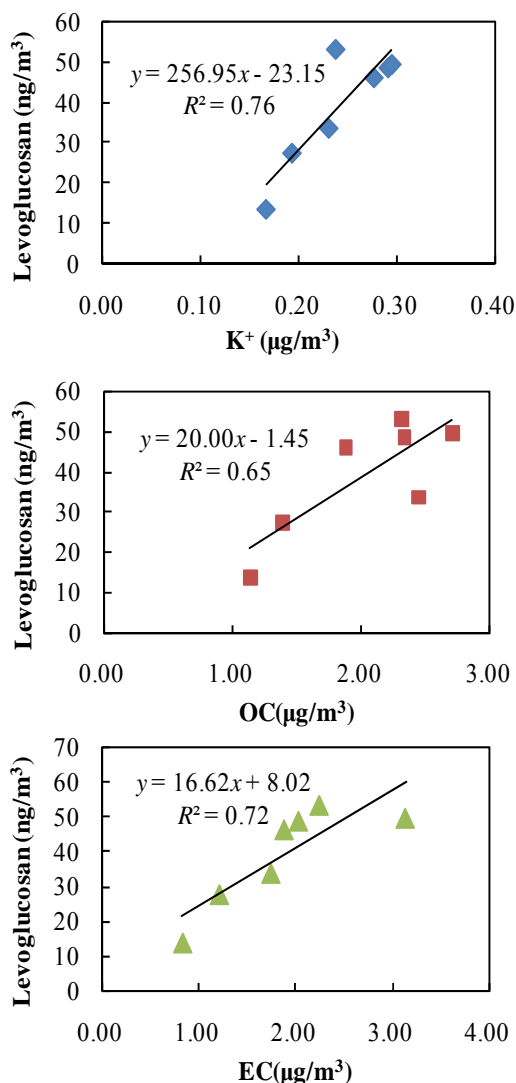


Fig. 3. Correlation of levoglucosan concentration with (a) K⁺, (b) OC and (c) EC at Tsukuba.

なお、以前に測定されている分析結果からは、夏季に比べて冬季の濃度が圧倒的に高いことが報告されており^[7]、中国農村部においても季節別試料採取についてのバイオマス起源粒子の測定が望まれる。

(2) 農業廃棄物であるバイオマス燃焼装置の設計

中国大同市農村部におけるカンの利用状況を調査するとともに、これまでに研究に利用されている Zhang ら(2007)^[8]の燃焼実験装置を参考にして、現時点で必ずしも制約条件の考慮は十分とは言えないが、Fig. 4 に示すようなバイオマス排出係数測定用の燃焼装置を設計しつつある。

Fig. 4 における希釈トンネル内の滞留時間は、5 min は、希釈空気と燃焼物質を十分に混合させるために乱流条件とし、5 min となっている。トンネル、サンプラー部に使用する材質は、耐熱性に優れ、コンタミネーションを抑えるために、ステンレスおよびテフロンなどが考えられる。

現在の装置構成では、燃焼排ガスは 10 倍希釈となるが、Fig. 4 の燃焼オープン後のサイクロンの代わりに排ガス希釈装置 MS19-2DE を用いれば、さらに高希釈が可能となる。この方法を用いれば、さまざまな希釈倍率の燃焼排ガスと別流路からの粒子をあらかじめ除去した希釈ガスを混合することも可能となり、さらに 10 倍高い希釈倍率の実験ガスを適切な滞留時間を稼いで、Residence Time Chamber に供給することも可能となる。

参考文献

- [1] 山田公子, 王青躍, 坂本和彦 (2008) 家庭用ストーブの模擬燃焼条件におけるバイオブリケットの硫黄固定効果. 大気環境学会誌, **43**, 264-272.
- [2] Hanazawa, A., Gao, S., Sakamoto, K. (2008) Study on emission control for precursors causing acid rain (VI): Suitability of aquatic plant biomass as a co-combustion material with coal. *Asian Journal of Atmospheric Environment*, **2**, 102-108.
- [3] Isobe, Y., Yamada, K., Wang, Q., Sakamoto, K., Uchiyama, I., Mizoguchi, T., Zhou, Y. (2005) Measurement of the reduction ratio of indoor acidic gases from coal-biomass briquette, *Water Air Soil Pollut.*, **163**, 341-353.
- [4] Yamada, K., Sorimachi, A., Wang, Q., Yi, J., Cheng, S., Zhou, Y., Sakamoto, K. (2008) Abatement of indoor air pollution achieved with coal-biomass briquettes in a household in Chongqing, China. *Atmospheric Environment*, **42**, 7924-1930.
- [5] Jacobson, M.Z. (2001) Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols. *Nature*, **409**, 695-697.

- [6] Novakov, T., Penner, J.E. (1993) Large contribution of organic aerosols to cloud-condensation-nuclei concentrations. *Nature*, **365**, 823-826.
- [7] 萩野浩之, 小瀧美里, 坂本和彦 (2006) さいたま市における初冬季の微小粒子中のレボグルコサンと炭素成分, エアロゾル研究, **21**, 38-44.
- [8] Zhang, Y., Shao, Min, Z., Zeng, L., He L., Zhu Bin, Wei Y., Zhu, X. (2007) Source profiles of particulate organic matters emitted from cereal straw burnings. *Journal of Environmental Sciences*, **19**, 167-175.

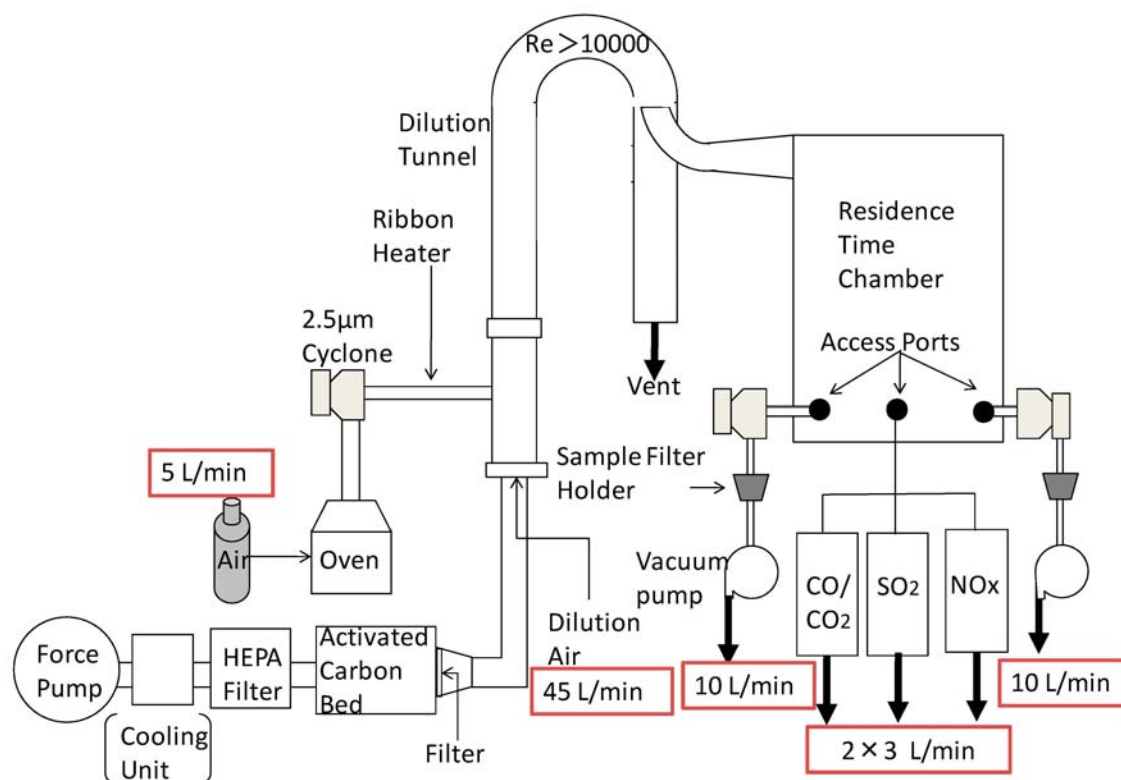


Fig. 4. Combustion instrument and sampler design.