

草木の燃焼に伴う PCDD/Fs の 発生評価に関する研究

樋口隆哉 (社会建設工学科) 浮田正夫 (山口大学名誉教授)
関根雅彦 (社会建設工学科) 今井 剛 (社会建設工学科)

Evaluation of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans emission from the combustion of wood chips and leaves

Takaya HIGUCHI (Department of Civil and Environmental Engineering)
Masao UKITA (Emeritus Professor of Yamaguchi University)
Masahiko SEKINE (Department of Civil and Environmental Engineering)
Tsuyoshi IMAI (Department of Civil and Environmental Engineering)

Emission of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans (PCDD/Fs) from open burning of fallen leaves, grass and wood chips was estimated. Combustion temperature of fallen leaves reached around 500-700 °C in open burning. The amount of PCDD/Fs extracted from bottom ash after open burning was 0.0087 pg-TEQ/g and 0.31 pg-TEQ/g for fallen leaves and grass, respectively. Combustion experiments using small-sized electric furnace indicated that PCDD/Fs emission at 500-750 °C was lower, and reached 0.052 ng-TEQ/g and 0.65 ng-TEQ/g for combustion of fallen leaves and co-combustion of wood chips and NaCl at 850 °C, respectively. PCDD/Fs emission from open burning was calculated and resulted in less emission compared to incineration of municipal solid waste.

Key Words: *polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins, polychlorinated dibenzofurans, wood chips, leaves*

1. はじめに

ダイオキシンとは、有機塩素系化合物の一種であるポリ塩化ジベンゾ-パラ-ジオキシン (polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins、略称 PCDDs) のことであり、環境中で分解されにくく生体中に蓄積されやすい環境汚染、人体汚染を引き起こす毒性物質として知られている。ダイオキシンとよく似た毒性作用を示す化学物質にポリ塩化ジベンゾフラン (polychlorinated dibenzofurans、略称 PCDFs) やコプラナーPCB (coplanar polychlorinated biphenyl、略称 Co-PCB)

があり、これらを合わせて一般的にダイオキシン類と称している。

我が国では、1990年代にダイオキシン類による環境汚染についての社会的関心が大いに高まり、排出実態調査や法的枠組みの検討などが積極的に行われ、1999年にはダイオキシン類対策特別措置法が制定され、大気、水質、底質、土壤に係る環境基準も定められた。その後、廃棄物焼却に係るダイオキシン類の排出基準が厳しくなるなどの影響で、排出量は大きく減少してきている¹⁾。一方、ダイオキシン類は物の燃焼過

程から発生するとのことから、落ち葉や枯れ草の野外焼却の自粛までも行われるなど、少々行きすぎた面があると考えられる。落ち葉を焼却した際のダイオキシン類発生量の評価に関しては過去にも検討事例^{2) 3)}があるが、未だに悪臭苦情の発生源として野外焼却が最上位に位置する⁴⁾など、社会へ向けての更なる科学的情報の提供が必要であると考えられる。

そこで本研究では、我々にとって身近な焼却行為である焚き火に注目し、実際に焚き火を行った際の焼却灰由来のダイオキシン類発生量の測定を行うとともに、小型電気炉を用いた燃焼実験も行い、草木の燃焼に伴うダイオキシン類の発生危険性について評価した。なお、本研究では PCDDs および PCDFs を測定対象としており、これらを合わせて PCDD/Fs と表記することとする。

2. 実験方法

2.1 焚き火実験

実際に落ち葉と芝についてそれぞれ焚き火を行い、燃焼中に熱電対を用いて燃焼温度の測定を行った。落ち葉、芝ともに山口大学工学部構内で 2001 年 10 月に採取したものをを用いた。落ち葉の種類については、大部分がサクラであった。採取後は、天日で一日乾燥させてから実験に用いた。着火材としては新聞紙 (10cm×10cm) を用いた。また、大学側によると、芝については通常春と夏に除草剤を散布しているとのことであったが、試料採取前の 6 ヶ月間は散布していないとのことであった。

続いて、焚き火実験を行った後の灰を 10g 採取して抽出液を作製し、塩素イオン濃度の測定を行った。ここで、塩素イオンの抽出は環境庁告示第 13 号に準じて行い、硝酸第二水銀法によって分析した。

さらに、焚き火実験の灰から PCDD/Fs を高速溶媒抽出装置によってトルエンを用いて抽出し、定量分析を行った。抽出および定量分析の詳細については既報⁵⁾と同様であった。

2.2 小型電気炉を用いた燃焼実験

焚き火実験では排ガスとして排出される成分や飛散してしまう微量の灰が評価できないことから、小型電気炉を用いて燃焼実

験を行い、PCDD/Fs 発生量全体の評価を試みた。本実験では、焚き火実験で用いた落ち葉と同じ試料をミキサーで十分破碎して 2mm 以下に調製した後、3g を蒸発皿に入れて小型電気炉を用いて燃焼した。ここで、排ガス中の成分や飛散した灰も活性炭カラムにおいて捕集し、電気炉内に残った焼却灰と合わせて PCDD/Fs 発生量全体を測定した。また、比較のために、木くず (市販のチップ状のマツ材を 2mm 以下に調製したもの) と塩素源である NaCl の混合試料についても同様の実験を行った。木くずを用いた燃焼実験では、Fe₂O₃ を灰の付着剤として加えた。実験装置、燃焼方法および分析方法は既報⁵⁾と同様であった。本実験における焼却物量および設定温度を Table 1 に示す。

3. 実験結果および考察

3.1 焚き火実験

焚き火実験における燃焼条件および実際の燃焼時の状況を Table 2 に示す。実験は落ち葉と芝それぞれについて 2 回ずつ行った。まず、落ち葉については、焼却物自体の含水率などによって多少差はあるものの、炎部分は 600~650°C、焼却物自体も赤く燃えている際には 500~650°C であり、燃え終わったように見える灰も一時は 700°C 程度まで上昇することを確認した。芝については、炎部分は 600~650°C であり、落ち葉の時と同様にあまり変化はなかったが、焼却物自体の温度が赤く燃えている部分で 700°C 程度になった時もあり、最高 1072°C に達する地点もあった。今回の実験結果から、実際の焚き火の温度は 500~700°C 程度であり、燃やすものや燃やし方によっては 800~1000°C にも達することが確認された。

焚き火実験を行った後の灰について抽出液を作製し、塩素イオン濃度の測定を行った結果、燃焼試料の乾燥重量 1g あたりで示

Table 1 Sample weight and combustion temperature

Run	Temperature (°C)	Sample and its weight (g)
I	500	Fallen leaves (3.00)
II	600	
III	750	
IV	850	
V	500	
VI	600	Wood chips (0.50) + NaCl (0.50) + Fe ₂ O ₃ (0.05)
VII	750	
VIII	850	

Table 2 Combustion conditions and situations

Sample	Run	Sample weight (kg)	Temperature (°C)	Situation of combustion
Fallen leaves	1st	1.50	16.7	After ignition flame temperature reached around 600 °C. Ash temperature after combustion was 300-450 °C. Combustion finished after around 8 minutes.
	2nd	1.52	18.8	As Run 1 flame temperature reached 600-650 °C. Ash temperature after combustion was 250-450 °C. Combustion finished after around 20 minutes.
Grass	1st	1.18	21.8	Temperature of central part was around 600 °C during combustion. Temperature of red colored burning part reached the maximum of 1008 °C. Combustion finished after around 10 minutes.
	2nd	0.63	15.0	Temperature of red colored burning part was around 700 °C. The maximum temperature reached 1072 °C. Combustion finished after around 5 minutes.

Table 3 PCDD/Fs extracted from combustion ash of fallen leaves and grass

Sample	T4CDDs (ng/g)	P5CDDs (ng/g)	H6CDDs (ng/g)	H7CDDs (ng/g)	O8CDD (ng/g)	T4CDFs (ng/g)	P5CDFs (ng/g)	H6CDFs (ng/g)	H7CDFs (ng/g)	O8CDF (ng/g)
Fallen leaves	N.D.	0.0015	N.D.	0.0007	0.0014	0.0019	0.0013	N.D.	0.0013	0.00057
Grass	N.D.	0.003	N.D.	0.013	0.0067	0.013	0.014	0.0094	0.013	0.0034

Sample	PCDDs (ng/g)	PCDFs (ng/g)	PCDDs (pg-TEQ/g)	PCDFs (pg-TEQ/g)	PCDD/Fs (pg-TEQ/g)
Fallen leaves	0.0037	0.0051	0.00014	0.0086	0.0087
Grass	0.023	0.053	0.073	0.23	0.31

すと、落ち葉と芝でそれぞれ 0.15mg/g、0.37mg/g であった。Table 3 には焚き火実験の灰から抽出した PCDD/Fs の測定結果を示す。結果は燃焼試料の乾燥重量 1g あたりの発生量として示している。燃え終わった後の灰のみを分析に用いたということもあって発生量は少なく、TEQ 換算値で落ち葉は 0.0087pg-TEQ/g、芝は 0.31pg-TEQ/g であった。煙や煙とともに飛散した微量の灰にはこれ以上の PCDD/Fs が含まれている可能性があると考えられる。落ち葉よりも芝の方で発生量が多い傾向にあるが、芝を燃やした灰から作製した抽出液の塩素イオン濃度が落ち葉よりも高かったことから、芝に含まれていた塩素量が多く、それが PCDD/Fs 生成の際の塩素源となったことがその原因の一つとして示唆される。

3.2 小型電気炉を用いた燃焼実験

小型電気炉を用いた燃焼実験における PCDD/Fs 発生量の測定結果を Table 4 に示

す。また、これらの結果のうち、PCDD/Fs 発生量と TEQ 換算値を落ち葉および木くず+NaCl についてそれぞれ Figure 1 および Figure 2 に示す。Table 3 の結果と比較すると発生量が多い傾向がみられるが、焚き火実験では排ガス成分や飛散する灰を分析できなかったために低濃度であったと考えられる。しかし、PVC などのプラスチック類を同様の条件で焼却したとき⁵⁾ よりも発生量が少ない傾向がある。燃焼温度 500～750°C では発生量は微量であるが、850°C では増加しており、TEQ 換算後の値で落ち葉および木くず+NaCl について、それぞれ 0.052ng-TEQ/g および 0.65ng-TEQ/g であった。落ち葉を焼却した際の PCDD/Fs 発生量は、平均毒性等価量で比較すると木くず+NaCl の 6 分の 1 程度であった。以上のように、落ち葉の焼却については、いずれの設定温度についても発生量、毒性等価量ともに少ないことがわかった。

Table 4 PCDD/Fs emission from combustion of fallen leaves and co-combustion of wood chips and NaCl

Run	Temperature (°C)	Sample	T4CDDs (ng/g)	P5CDDs (ng/g)	H6CDDs (ng/g)	H7CDDs (ng/g)	O8CDD (ng/g)	T4CDFs (ng/g)	P5CDFs (ng/g)	H6CDFs (ng/g)	H7CDFs (ng/g)	O8CDF (ng/g)
I	500	Fallen leaves	0.048	N.D.	N.D.	0.013	N.D.	0.11	0.079	0.30	0.026	N.D.
II	600		0.068	0.035	N.D.	0.032	0.022	0.060	0.083	0.36	0.073	0.014
III	750		N.D.	0.046	N.D.	N.D.	0.020	0.066	0.040	N.D.	0.028	N.D.
IV	850		N.D.	0.037	N.D.	0.048	N.D.	2.2	0.54	0.38	0.094	0.024
V	500	Wood chips + NaCl	1.1	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.53	N.D.	0.75	N.D.	N.D.
VI	600		1.6	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.31	1.1	0.44	N.D.	N.D.
VII	750		N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.71	1.7	N.D.	N.D.	N.D.
VIII	850		0.92	N.D.	9.9	2.2	1.2	1.1	7.7	4.3	5.0	2.2

Run	Temperature (°C)	Sample	PCDDs (ng/g)	PCDFs (ng/g)	PCDDs (ng-TEQ/g)	PCDFs (ng-TEQ/g)	PCDD/Fs (ng-TEQ/g)
I	500	Fallen leaves	0.061	0.52	0.00013	0.021	0.021
II	600		0.16	0.59	0.00010	0.015	0.015
III	750		0.066	0.13	0.029	0.00028	0.030
IV	850		0.085	3.2	0.00018	0.052	0.052
V	500	Wood chips + NaCl	1.1	1.3	0.0	0.075	0.075
VI	600		1.6	1.8	0.0	0.044	0.044
VII	750		0.0	2.4	0.0	0.0	0.0
VIII	850		14	20	0.14	0.50	0.65

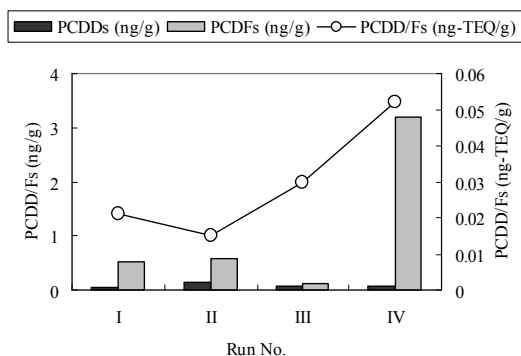


Figure 1 PCDD/Fs emission from combustion of fallen leaves

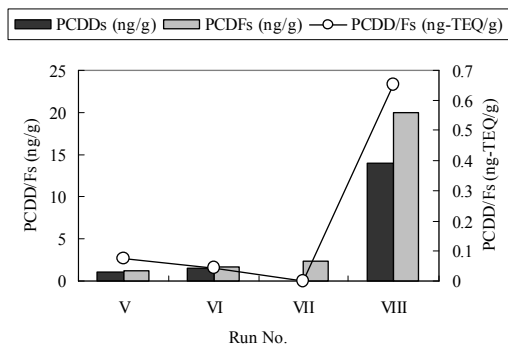


Figure 2 PCDD/Fs emission from co-combustion of wood chips and NaCl

3.3 焚き火の環境負荷に関する考察

焚き火に由来する PCDD/Fs の発生に関して、さらに焚き火がどれほどの環境負荷を与えているのかを試算した。まず、本研究における小型電気炉を用いた落ち葉の燃焼実験結果を参考にして、落ち葉 1g の燃焼によって 0.020ng-TEQ の PCDD/Fs が発生すると仮定した。また、焚き火の温度測定実験を行った経験上、体積 30L 程度の落ち葉 1kg について、2 人で落ち葉焚きを行ったことから、1 人あたり 500g の落ち葉を焚き火に使用したとする。また、その落ち葉焚きを年 1 回行ったと仮定する。そのときの 1 日あたりの環境への負荷を試算すると、0.027ng-TEQ/人/日となる。

また、我々住民が廃棄した可燃ごみは一般廃棄物焼却場で焼却処理されているが、その処理において発生するダイオキシン類の環境負荷について評価を行う。まず、住民 1 人が 1 日に 0.6kg の可燃ごみを排出すると仮定する。また、ごみの発熱量は 1500~2000kcal/kg であり、1000kcal 燃焼させるのに 1m³ の空気が必要とされていること、新設の廃棄物焼却炉におけるダイオキシン類の排出基準値が最も厳しい値（焼却能力 4t/h 以上）で 0.1ng-TEQ/m³N であること

を考慮すると、可燃ごみが焼却処理されることによって、排ガスに由来するものだけで 0.1ng-TEQ/人/日のダイオキシン類を排出しているということになる。以上の計算は多くの仮定の上での概算であり、また本研究では Co-PCB の測定を行っていないために詳細な評価にはなお慎重な検討が必要ではあるが、概略的に可燃ごみからの排出量と落ち葉焚きからの排出量を比較すると、落ち葉焚きに由来する PCDD/Fs の発生量はそれほど高くないことが伺われる。

4. まとめ

本研究では、我々にとって身近な焼却行為である焚き火に注目し、草木の燃焼に伴う PCDD/Fs の発生危険性について評価した。得られた知見は以下の通りである。

- 1) 落ち葉を用いて焚き火をした際の燃焼温度は 500~700°C 程度であった。
- 2) 焚き火実験を行った後の灰から抽出した PCDD/Fs は、燃焼試料の乾燥重量 1g あたりの発生量として示すと、TEQ 換算値で落ち葉は 0.0087pg-TEQ/g、芝は 0.31pg-TEQ/g であった。
- 3) 小型電気炉を用いた燃焼実験の結果、燃焼温度 500~750°C では PCDD/Fs の発生量は微量であるが、850°C では増加しており、TEQ 換算後の値で落ち葉および木くず+NaCl について、それぞれ 0.052ng-TEQ/g および 0.65ng-TEQ/g であった。
- 4) 焚き火に由来する PCDD/Fs の発生量を試算した結果、可燃ごみの焼却と比較して高くない値であることが示唆さ

れた。

ダイオキシン類をはじめとして有害化学物質に対する社会的関心は高く、今後もそれらの危険性について科学的情報を積極的に発信していくことが不可欠であると考えられる。

参考文献

- 1) 環境省：ダイオキシン類の排出量の目録（排出インベントリ）（2007）
- 2) 辰市祐久，早福正孝，古明地哲人，岩崎好陽：家庭用焼却炉からのダイオキシン類の生成要因の考察—ごみ中のポリ塩化ビニル比とダイオキシン類濃度の関係について—，大気環境学会誌，36 (1)，13-21 (2001)
- 3) 早福正孝，辰市祐久，古明地哲人，岩崎好陽：落ち葉の焼却から生成するダイオキシン類に関する考察，大気環境学会誌，37 (2)，122-130 (2002)
- 4) 環境省水・大気環境局大気生活環境室：平成 18 年度悪臭防止法施行状況調査について (2007)
- 5) Jugal Bhurtel, Takaya Higuchi, Akiko Kubota, Masao Ukita: Formation of PCDD/Fs during co-combustion of non-chlorinated plastics with PVC and NaCl, Journal of Environmental Systems and Engineering, Japan Society of Civil Engineers (JSCE), 678/VII-19, 123-132 (2001)

(平成 19 年 12 月 27 日受理)