

<報文>

大分県におけるレボグルコサン濃度の特徴について*

甲斐 太郎**・河野 友彰***・道野 慎吾****

キーワード ①微小粒子状物質(PM_{2.5}) ②レボグルコサン ③バイオマス燃焼

要 旨

大分県では、PM_{2.5}の発生源解析を目的として2015年度より県内各地点でPM_{2.5}の採取及び成分分析を実施している。過去の調査研究において県内で硫酸塩に次いでバイオマス燃焼の寄与が高かった事を受け、2021年度よりバイオマス燃焼指標のレボグルコサンの分析を開始した。分析の結果、沿岸部の佐伯市より内陸部の由布市、日田市で濃度が高くなる傾向にあり、特に秋季に濃度が高くなることが分かった。また、日田市で高濃度を観測する日が多かった。日田市の高濃度日について後方流跡線解析による発生源位置の推定を行った結果、秋季では南～南西の方角から、冬季は西～北西の方角から影響を受けていることが分かった。総じてバックグラウンド地点より一般環境の濃度が高いことから、レボグルコサン濃度は国内発生源による地域内汚染により上昇する傾向があることが推察される。

1. はじめに

PM_{2.5}とは、大気中に浮遊している2.5μm(1μmは1mmの千分の1)以下の小さな粒子のことである。PM_{2.5}は非常に小さいため(髪の毛の太さの1/30程度)、肺の奥深くまで入りやすく、呼吸器系への影響に加え、循環器系への影響が心配されている¹⁾。2009年9月にPM_{2.5}の環境基準が設定(平成21年9月9日環境省告示)され、2011年7月に微小粒子状物質(PM_{2.5})の「成分分析ガイドライン(平成23年7月環境省水・大気環境局)」が作成された。ガイドラインではPM_{2.5}の成分分析における地方自治体の役割として特定の発生源への対策等、地域独自の対策の検討を実施することとされている²⁾。大分県では、PM_{2.5}の常時監視を日田市において2013年2月末から、中津市及び佐伯市において2013年4月末から、別府市、臼杵市、津久見市、豊後大野市、由布市、国東市、日出町において2014年12月中旬から現在まで実施している。2022年度時点で大分市設置分を含め県内17局でPM_{2.5}の連続濃度測定を実施しており³⁾、PM_{2.5}の成分分析に関しては2015年10月から現在まで毎年2地点で4期間(春季、夏季、秋期、冬季)PM_{2.5}のサンプリングを行い、分析を実施している。

大分県衛生環境研究センターでは過去の年報で2015年度から2017年度にかけてPM_{2.5}成分の調査結果を報告した^{4)・5)・6)}。2015年度から2017年度の調査では、県内2地点で発生源解析を実施した結果、2地点とも越境汚染の影響が大きく、1地点でバイオマス燃焼の影響が大きいことが推察された。当該結果を受け、当県におけるPM_{2.5}の環境基準超過の要因等を考察するためには、バイオマス燃焼等の発生源からの影響を詳細に検討することが不可欠だと考えた。そこで2021年度までにバイオマス燃焼の指標成分のレボグルコサンを新たな指標成分として測定することを目的として分析方法を検討し測定できる体制を整えた⁷⁾。また、2022年度の年報においても大分県内4地点の成分分析結果を集約し発生源解析を実施した結果、地点毎に寄与率が異なり、大分県内全体では越境汚染由来の硫酸塩及びバイオマス燃焼由来の寄与が大きいことを報告している⁸⁾。

本報では大分県内におけるPM_{2.5}のバイオマス燃焼の影響等について、レボグルコサン濃度の解析結果をもとに考察を実施した結果を述べる。なお、レボグルコサンとはバイオマス燃焼の指標成分で、植物を構成するセルロースが熱分解するときに生成される成分のことである⁹⁾。

*Characteristics of Levoglucosan concentrations in Oita Prefecture

**Taro KAI (大分県衛生環境研究センター) Oita Prefectural Institute of Health and Environment

***Tomoaki KONO (大分県西部保健所(元大分県衛生環境研究センター)) Oita Prefectural Seibu Public Health Center

****Shingo DONO (大分県立病院(元大分県衛生環境研究センター)) Oita Prefectural Hospital

2. 調査期間及び分析方法

大気試料のサンプリング及び分析は、環境省が定める「微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の成分分析ガイドライン」²⁾ 及び「大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 成分測定マニュアル」¹⁰⁾に従って実施した。採取期間は全国統一日程とし、各季節 (春季, 夏季, 秋季, 冬季) に環境省が示したコア期間を中心とした14日間にわたって、1試料につき23時間30分かけて大気中のPM_{2.5}をろ紙上に吸引捕集し、吸引流量は30L/minとした。図1に調査地点を表1に採取年月日を示す。

本報では、由布市(2017, 2018, 2021, 2022年度), 日田市(2017年度, 2021年度), 佐伯市(2021, 2022年度)で採取, 分析した結果について報告する。なお, 2017, 2018年度に採取した試料のレボグルコサン分析結果について, 冷凍保存した試料を2021年度に分析したため環境省への報告は行っていない。

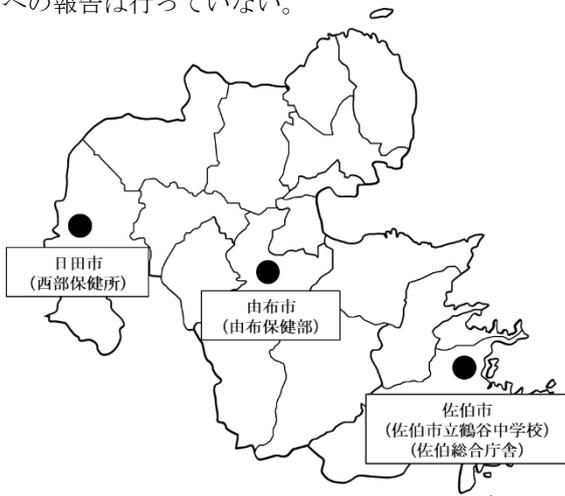


図1 調査地点

表1 PM_{2.5}採取地点と採取年月日

地点		採取年月日					
市町村	採取地点	春季	夏季	秋季	冬季		
由布市	由布保健部	2017/5/10 ~5/23	2017/7/20 ~8/2	2017/10/19, 10/25~10/26, 11/1~11/4,	2018/1/18, 1/20, 1/25~1/31,		
		2018/5/9 ~5/22	2018/7/18 ~7/26	11/8~11/14	2/4~2/8		
		2021/5/13 ~5/26	8/2~8/6	2018/10/17 ~10/30	2019/1/18 ~2/2		
		2022/5/12 ~5/25	2021/7/24 ~8/6	2021/10/21 ~11/3	2022/1/20 ~2/2		
			2022/7/21 ~8/3	2022/10/20 ~11/2	2023/1/19 ~2/1, 2/7		
				2017/10/19, 10/25, 10/26,	2018/1/18, 1/19, 1/23		
		日田市	西部保健所	2017/5/10 ~5/23	2017/7/20 ~8/2	11/1, 11/2, 11/6~11/14	~1/31, 2/3~2/5
				2021/10/21		~11/3	2022/1/20 ~2/2
		佐伯市	佐伯総合庁舎 (2022)	2021/5/13 ~5/26	2021/7/23 ~8/5	2021/10/21 ~11/3	2022/1/20 ~2/2
				2022/5/12 ~5/25	2022/7/21 ~8/3	2022/10/20 ~11/2	2023/1/19 ~2/1

3. 結果

3.1 経年変化

図2に大分県内で最も長く分析を実施している由布市のレボグルコサン濃度の解析結果を示す。

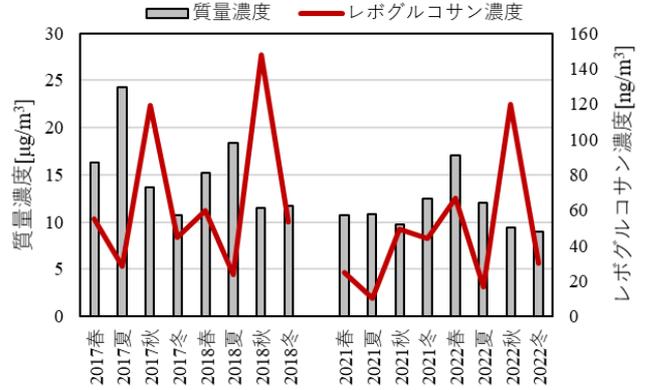


図2 レボグルコサン濃度の経年変化 (由布市)

図2より, 由布市ではレボグルコサンは秋季に濃度が一番高くなり, 夏季に濃度が下がる傾向にあることが分かる。また, 春季や冬季においても年度によっては濃度が高くなることもある。レボグルコサンは大気中のOHラジカルとの反応により分解消滅する¹¹⁾ため光化学反応が活性化される夏季に濃度が減少したと考えられる。

3.2 2017年度採取試料の分析結果比較

2017年度に由布市及び日田市で採取した試料についてレボグルコサン濃度を測定し, 全国のレボグルコサンを分析している地点と比較を行った。結果を表2に示す。表2の全国データは公表データ¹²⁾を参考にし, 一般環境で各季節14試料以上測定している地点と九州・沖縄地方のバックグラウンド (BG) 地点を採用した。

表2 全国のレボグルコサン測定結果 (2017年度)

調査地点		レボグルコサン濃度 [ng/m ³]					
都道府県	地点名	分類	年度平均	春季	夏季	秋季	冬季
群馬県	衛生環境研究所	一般	50	22	28	79	70
千葉県	千城台北小学校	一般	91	29	12	150	180
三重県	川越南小学校	一般	33	12	9.4	75	36
大阪府	藤井寺市役所	一般	49	34	9.3	85	69
大分県	由布保健部	一般	67	58	26	134	49
大分県	西部保健所	一般	110	48	46	243	104
長崎県	五島	BG	14	5.5	2.7	18	31
大分県	大分久住	BG	23	36	9.2	18	28

表2より2017年度について, 大分県は採取時期が他地点と異なっていたため同一採取日での比較はできないが, 大分県は全国の地点と比較してレボグルコサン濃度が高く, 特に西部保健所のある日田市では秋季に高濃度のレボグルコサンを観測していることが分かる。また, BG地点と比較すると特に秋季, 冬季は一般環境とBG地点の差が大きくなる傾向にあることから, レボグルコサン濃度の上昇は地域汚染の影響を強く受けていると考えられる。

3.3 3地点同時採取・分析結果(2021年度)

2021年度、レボグルコサン濃度が上昇しやすい秋季、冬季に由布市、佐伯市、日田市の3地点で同時にPM_{2.5}を捕集し同一日における大分県内の地点毎のレボグルコサン、質量濃度、有機炭素、カリウムイオンの比較を行った。また、九州のBG地点との比較を行うため長崎県五島での測定結果とも比較を行った。結果を図3~6に示す。

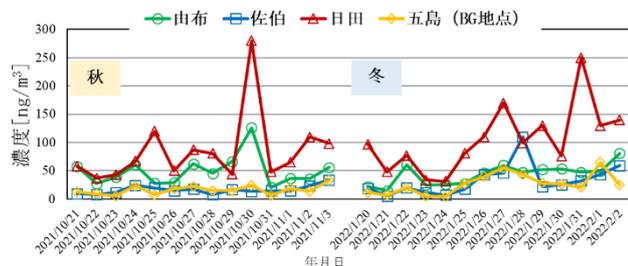


図3 レボグルコサン測定結果(2021年度秋冬)

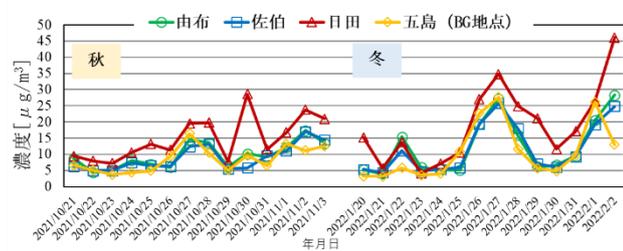


図4 質量濃度測定結果(2021年度秋冬)

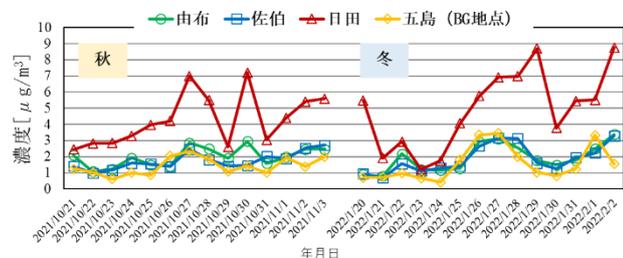


図5 有機炭素測定結果(2021年度秋冬)

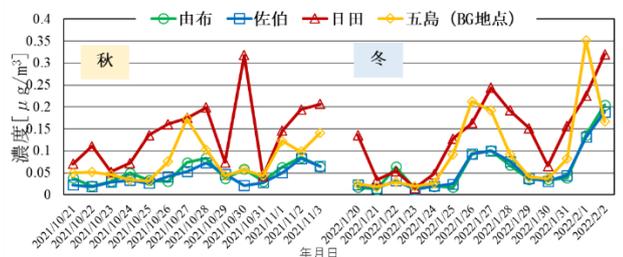


図6 カリウムイオン測定結果(2021年度秋冬)

図3より、レボグルコサン濃度については日田>由布>佐伯の順に濃度が高くなっており、沿岸部の佐伯より内陸部の由布、日田で濃度が高くなっていった。また、佐伯は五島とほとんど同じ濃度であった。図4、5より、質量

濃度及び有機炭素は佐伯、由布、五島が同程度であるのに対し、日田は他3地点よりも濃度が高かった。図6よりカリウムイオンは日田が一番高く、次いで五島が高いという結果となった。日田について、レボグルコサンが高濃度の日(2021/10/30, 2022/1/27)は質量濃度、有機炭素、カリウムイオンも高濃度となっていた。

2021年度の分析結果について全国地点と比較した結果を表3に示す。全国データは公表データ¹²⁾を参考にした。

表3 全国のレボグルコサン測定結果(2021年度)

調査地点		レボグルコサン濃度[ng/m ³]					
都道府県	地点	分類	年度平均	春季	夏季	秋季	冬季
群馬県	衛生環境研究所	一般	37	16	17	71	43
埼玉県	さいたま市役所測定局	一般	46	16	7.8	100	59
千葉県	千城台わかば小学校測定局	一般	75	21	24	130	120
東京都	館町測定室	一般	28	16	10	43	41
滋賀県	長浜	一般	22	9.8	2.7	36	41
大分県	佐伯市立鶴谷中学校	一般	18	16	4.4	16	33
大分県	由布保健部	一般	32	25	10	49	44
大分県	西部保健所	一般	-	-	-	85	105
長崎県	五島	BG	13	4.8	3.1	16	27

表3より全国データと比較して2021年度は大分県内の濃度は2017年度ほど高濃度ではなかった。しかしながら、西部保健所のある日田市は冬季に他県と比べて高濃度となっていた。

3.4 レボグルコサンと他成分との相関

レボグルコサンと他成分、気象条件との関係を調べるために各項目間の相関係数を求め、有意性の検定(有意水準5%)を行った。相関係数はデータの正規性を考慮してSpearmanの順位相関係数とした。結果を表4に示す。風速は大気常時監視測定局のデータを用いた。解析にはRソフトを用いた。

表4 レボグルコサンと他項目との相関係数

地点(季節)	試料数	質量濃度	Cl ⁻	K ⁺	OC	風速
由布(春)	54	0.46*	-0.04	0.62*	0.68*	-0.27*
由布(秋)	56	0.45*	0.41*	0.36*	0.84*	-0.40*
由布(冬)	55	0.30*	0.08	0.31	0.44*	-0.18
日田(秋)	27	0.82*	0.77*	0.68*	0.83*	0.40
日田(冬)	28	0.80*	0.27*	0.80*	0.82*	-0.39*

*p<0.05

表4より、日田(秋)、日田(冬)は質量濃度、カリウムイオン(K⁺)、有機炭素(OC)と正の相関があることが分かった。また、秋季は2地点ともOCと強い正の相関があること

が分かった。また、風速はレボグルコサンと強い相関は確認されなかった。

3.5 レボグルコサンと風速との関係

レボグルコサン濃度と風速との関係をさらに調べるために図7, 8にレボグルコサン濃度と風速の関係を散布図で示した。

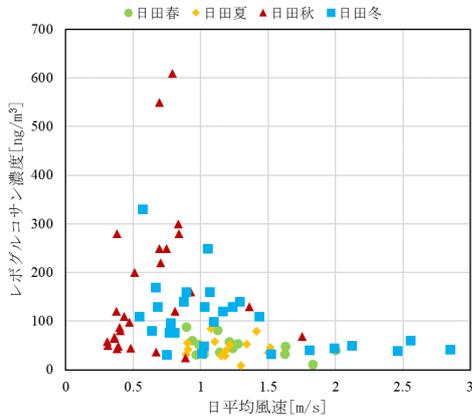


図7 レボグルコサンと日平均風速との関係（日田市）

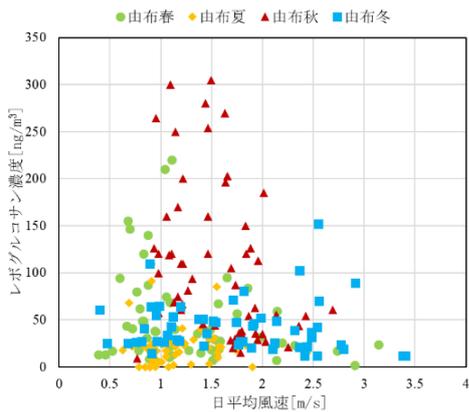


図8 レボグルコサンと日平均風速との関係（由布市）

図7, 8を見ると両地点で比較的風速の小さい日に高濃度になっていることが分かる。図7の日田市では秋季、冬季において風速0.5~1.0[m/s]のときに濃度が上昇する傾向にあることが分かる。また、由布市では春季は風速0.5~1.5[m/s], 秋季は風速1.0~2.0[m/s]の範囲で高濃度となりやすい傾向にあることが分かる。表4ではレボグルコサンと風速の間に強い負の相関は見られなかったが、散布図で見ると弱風時に高濃度になりやすい傾向にあることが分かる。

3.6 レボグルコサンと風向との関係

レボグルコサンと風向との関係性についてCPF解析¹³⁾及び風向別成分濃度を用いて発生源のおおよその方向を推定した。CPF解析は(1)式を使用して行った。

$$CPF = m_{\Delta\theta} / n_{\Delta\theta} \dots (1)$$

ここで $m_{\Delta\theta}$ はレボグルコサン濃度が上位25%の場合の風向 θ の数, $n_{\Delta\theta}$ は風向 θ の総数を意味する。風向は大気常時監視測定局の16方位データを使用した。図9, 10に結果を示す。

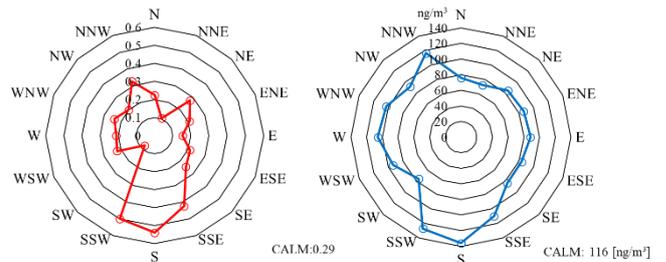


図9 日田市におけるレボグルコサン濃度のCPFプロット（左図）と風向別平均濃度（右図）

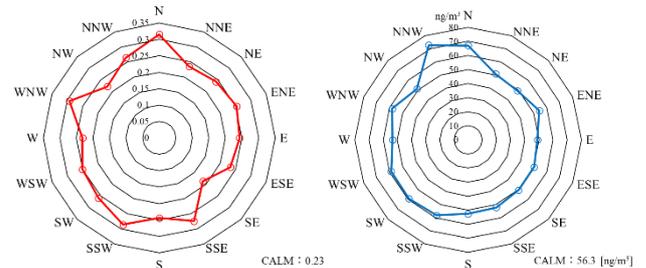


図10 由布市におけるレボグルコサン濃度のCPFプロット（左図）と風向別平均濃度（右図）

図9より日田市では南の方角の寄与が大きいという結果となった。対して由布市は図10より、若干北側の方角が大きいという結果が得られたが、日田市のように特定の方角の寄与が著しく高いという傾向は見られなかった。

3.7 レボグルコサン高濃度時の風向について

日田市においてレボグルコサンが高濃度となった日について、おおよその発生源位置を推定するため米国海洋大気庁(NOAA)のHYSPLIT trajectory Model¹⁴⁾を使用して後方流跡線解析を行った。日田市にある大分県西部保健所の上空1000m, 1500m, 2000mを起点に計算時間は24, 72時間の2パターンで実施した。解析を実施した高濃度日と濃度について表5に、後方流跡線解析結果を図11~14に示す。

表5 レボグルコサン高濃度時の日付と濃度（日田市）

季節	年月日	濃度[ng/m ³]
秋	2017/11/6	610
秋	2021/10/30	280
冬	2018/1/28	330
冬	2022/1/31	250

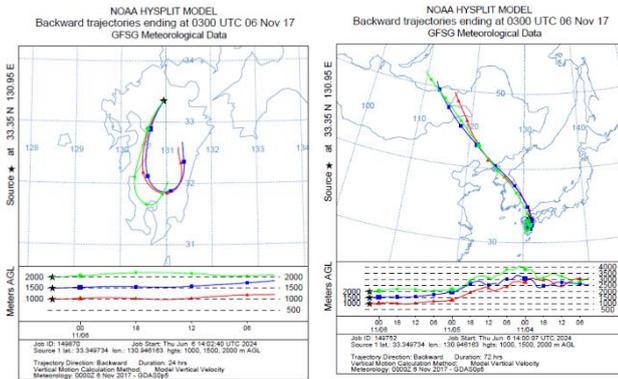


図11 後方流跡線解析結果（2017年11月6日）
（左図：24時間 右図：72時間）

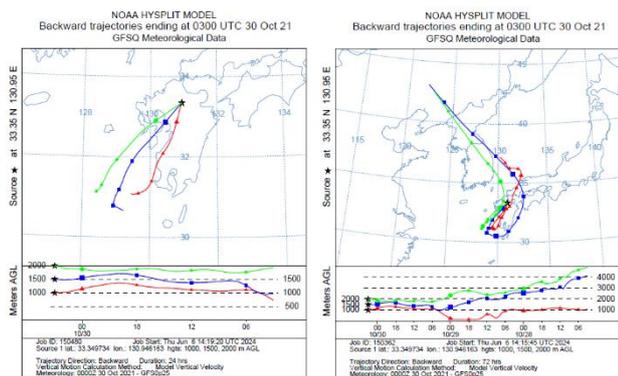


図12 後方流跡線解析結果（2021年10月30日）
（左図：24時間 右図：72時間）

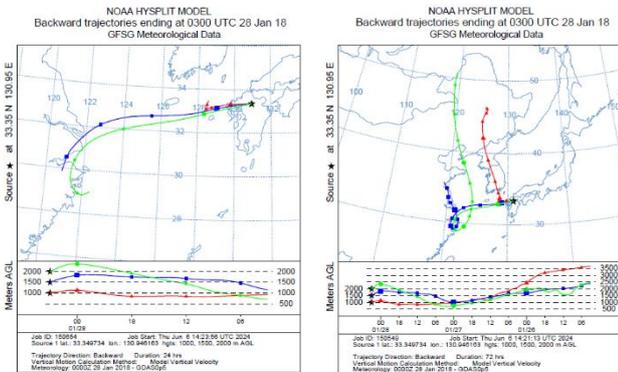


図13 後方流跡線解析結果（2018年1月28日）
（左図：24時間 右図：72時間）

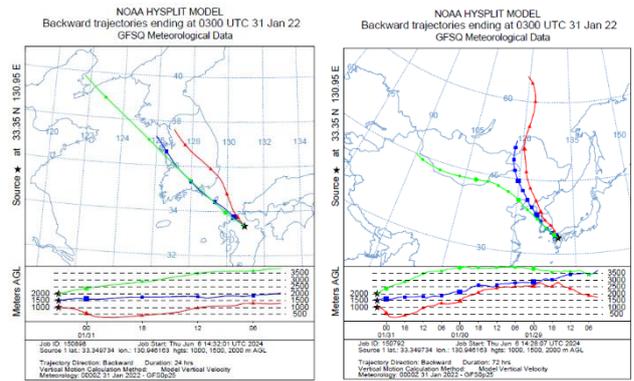


図14 後方流跡線解析結果（2022年1月31日）
（左図：24時間 右図：72時間）

図11, 12より秋季の高濃度日においては南～南西方向から気塊が流入していることを確認した。この方角は図9のCPF値及び平均濃度が高い方角とほぼ一致した。

図13, 14より冬季の高濃度日においては主に西側から気塊が流入していることを確認した。また、図13の2018年1月28日の流跡線解析では五島付近を通過した気塊が日田に到達しているため、五島でレボグルコサンが高濃度となれば国外からの越境汚染の可能性があると考え、該当日のBG地点の五島や久住のレボグルコサン濃度及び質量濃度と比較を行った。結果を図15, 16に示す。



図15 レボグルコサン分析結果(2018年1月25日～31日)

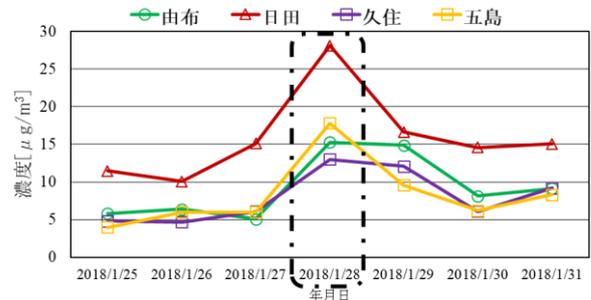


図16 質量濃度分析結果(2018年1月25日～31日)

図16より、質量濃度は全地点で該当日に濃度が上がっていたことからPM_{2.5}は越境してきたと考えられるが、図15のレボグルコサン濃度は日田でのみ大きな濃度上昇が確認されたことからレボグルコサンは越境しておらず国内で発生したと思われる。

4. 考察, まとめ

大分県内のレボグルコサンについて解析を実施した結果, 全国的な特徴として五島や久住などのBG地点と比べて由布や日田等の一般環境で濃度が高かったことから, レボグルコサンは国内発生源による地域汚染により濃度が増加している可能性が考えられる。大分県内でのレボグルコサン濃度の特徴としてはまず, 佐伯等の沿岸部より由布や日田といった内陸部で濃度が高くなり, 特に野焼きの多い秋季に濃度が高くなりやすい傾向にあることが分かった。また, 由布と日田を比べると日田で特に高濃度を観測する日が多い傾向にあった。日田でレボグルコサンや質量濃度が比較的高い傾向にある理由として, 日田は盆地になっており大気が滞留しやすいのと, 日田は林業や木材産業が盛んで木材を燃料とした発電所やボイラー等が県内の他地域と比べて多く設置されているためであると考えられる。また, 秋季は由布, 日田両地点で有機炭素と大きな正の相関を示していたことから, 秋季は有機炭素のバイオマス燃焼による寄与が高くなっていることが推察される。日田の高濃度日について後方流跡線解析を実施した結果, 秋季は南～南西の方角から気塊が流入していたことから, 国外からの移流の可能性は低いと思われる。また, 冬季は西の方角から気塊が流入しており, 国外からの越境汚染の可能性も考えられるが, 図15よりレボグルコサンについてはBG地点より日田で高い濃度を示していたことから, 国内で発生した可能性が高いと思われる。高濃度日の特徴として図7, 8より由布は春季, 秋季の弱風時, 日田では秋季の南の方角からの弱風時が考えられる。また, 日田においてCPF値及び風向別平均濃度の高い方角(南)と高濃度日の後方流跡線解析での気塊の流入方向がある程度一致した。従って日田について秋季は南方向から高濃度のバイオマス燃焼起源のPM_{2.5}が移流した可能性が考えられる。しかしながら, 九州県内の一般環境にてレボグルコサンを分析している地点は環境省報告¹²⁾を確認すると2021年度時点で大分県のみであり, 他県の状況は分からないため地域内発生だけでなく, 県外移流の可能性も考えられる。より正確にレボグルコサンの発生源を推定するためには隣県のレボグルコサン濃度の状況を把握する必要があると考える。

5. 謝辞

本調査の推進にあたりPM_{2.5}サンプラーの設置, サンプルング等で多大なるご協力を賜りました大分県生活環境部環境保全課, 保健所等関係職員の皆様に深謝いたします。

6. 引用文献

- 1) 環境省: 微小粒子状物質 (PM_{2.5})に関する情報, <https://www.env.go.jp/air/osen/pm/info.html#ABOUT>. (2024. 6. 7アクセス)
- 2) 平成23年7月 環境省 水・大気環境局: 微小粒子状物質 (PM_{2.5})の成分分析ガイドライン
- 3) 大分県: 令和4年度大気環境調査報告書, <https://www.pref.oita.jp/soshiki/13350/taiki-kankyo-r04.html>. (2024. 6. 7アクセス)
- 4) 松田貴志 他: 大分県における微小粒子状物質成分の調査(2015). 大分県衛生環境研究センター年報, **43**, 55-64, 2015
- 5) 松田貴志 他: 大分県における微小粒子状物質成分の調査(2016). 大分県衛生環境研究センター年報, **44**, 45-55, 2016
- 6) 松田貴志 他: 大分県における微小粒子状物質成分の調査(2017). 大分県衛生環境研究センター年報, **45**, 52-68, 2017
- 7) 末松久枝 他: PM_{2.5}発生源推定のための指標成分に係る測定方法の検討. 大分県衛生環境研究センター年報, **48**, 36-42, 2020
- 8) 甲斐太郎 他: 大分県におけるPM_{2.5}成分の解析と発生源由来等の調査. 大分県衛生環境研究センター年報, **50**, 65-83, 2022
- 9) Simoneit B. R. T., Schauer J. J., Nolte C. G., Oros D. R., Elias V. O., Fraser M. P., Rogge W. F., Cass G. R.: Levoglucosan, a tracer for cellulose in biomass burning and atmospheric particles. *Atmospheric Environment*, **33**, 173-182, 1999
- 10) 環境省: 大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5})成分測定マニュアル
- 11) Hennigan, C. J., Sullivan A. P., Collet J. L., Robinson A. L.: Levoglucosan stability in biomass burning particles exposed to hydroxyl radicals. *Geophysical Research Letters*, **37**, L09806, doi:10.1029/2010GL043088, 2010
- 12) 環境省: 微小粒子状物質 (PM_{2.5})の質量濃度及び成分測定(手分析)結果, <https://www.env.go.jp/air/osen/pm/monitoring.html>. (2024. 6. 7アクセス)
- 13) Kim, E., Hopke, P. K.: Source apportionment of fine particles in Washington, D. C., utilizing temperature-resolved carbon fractions. *Journal of the Air & Waste Management Association*, **54**, 773-785, 2004
- 14) HYSPLIT - Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model, https://www.ready.noaa.gov/HYSPLIT_traj.php. (2024. 6. 7アクセス)