

バイオモニタリングによる道路近傍の環境濃度測定

近藤 明¹、三原幸恵²、村重陽志¹、北島育美¹、嶋寺 光¹、
重吉実和²、原井信明²、松井敏彦²、世良耕一郎³

¹大阪大学

565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1

²中央復建コンサルタンツ株式会社

533-0033 大阪府東淀川区東中島 4-11-10

³岩手医科大学サイクロトロンセンター

020-0603 岩手県滝沢市留が森 348-58

1 はじめに

大気中の浮遊粒子 Particulate Matter (PM) の大きさは、直径で数 nm から数十 μm まで、様々である。PM は様々な発生源起源（自然起源や人為起源）を持ち、主に炭素、イオン、元素成分から構成されている。

大気中の微小粒子状物質 (PM_{2.5})、粒径 2.5 μm 以上の粒子を 50%カットした粒子) は、人間へ健康被害を引き起こす^{1,2}。日本では PM を原因とした大気汚染の健康影響が懸念されており、特に大都市における沿道では問題視されている。浮遊粒子状物質 Suspended Particulate Matter (SPM、粒径 10 μm 以上の粒子を 100%カットした粒子) と PM_{2.5} の大気環境基準はそれぞれ 1973 年と 2009 年に定められた。SPM の大気環境基準がほぼ達成されているのに対し、PM_{2.5} の達成率は、2014 年における自動車排出ガス測定局（以下、自排局）の有効測定局 198 局のうち 25.8%であり³、大阪市では全ての測定局で未達成であった。

大気汚染濃度は、大気汚染観測地点で自動測定装置を用いて測定されている。しかし、測定局数は限られており、沿道の大気汚染状況を把握できていない地点が存在している可能性が高い。そこで、本研究では沿道の樹木の葉に着目し、イチヨウの葉をバイオモニターとして利用^{4,5,6}することにより、大気汚染濃度状況把握の可能性を検討した。イチヨウは、落葉樹であり、日本の沿道では多く植樹されている。対象地域は、日本で 3 番目に大きい都市である大阪市にある沿道とした。イチヨウの葉の表面に付着した粒子の元素分析は公益社団法人日本アイソトープ協会岩手県仁科記念サイクロトロンセンターの Particle Induced X-ray Emission (PIXE) システムにより行った。2014 年度の調査では、(1)分析用試料作製条件の検討、(2)春、夏、秋の分析結果から大型車交通密度と交通由来の元素との相関がみられたこと、(3)粒子中に含まれる道路粉塵の元素の割合がプロファイルデータ¹¹の割合と概ね一致したことなどの知見が得られた。本報告では、(1)2014 年のデータに 2015 年のデータを加えた春、夏、秋の分析結果による元素量の季節変動の検討、(2)道路粉塵とブレーキ粉塵のプロファイルデータとの比較、(3)調査地点近傍の自排局の SPM 計のフィルターに捕集された粒子中の元素との比較結果を示した。

2 測定地点

測定地点は、イチョウが植樹されている主要幹線道路（御堂筋、新なにわ筋）とした（図1）。

御堂筋は、大阪市内の中心部を南北に走る大阪を代表する6車線の幹線道路であり、沿道には中高層の建物が連担し、約970本のイチョウが植えられている。平成22年度（2010年度）道路交通センサス⁷によると、日交通量は、A-2～A-3区間は約5万2千台、A-4～A-5区間は約3万8千台であり、大型車混入率は両区間とも6～7%である。A-1地点では御堂筋の本線は高架となり、A-1地点はその側道（平面道路）の沿道地点である（図2）。2014年12月に実施した調査では、直近の側道（平面道路）の日交通量は約9千2百台、大型車混入率は約11%であった（表1）。

新なにわ筋は、大阪市内の西方を南北に走る6車線の幹線道路であり、沿道にはイチョウやクスノキ等が植えられている。平成22年度（2010年度）道路交通センサス⁷によると、日交通量はB-1～B-5区間で約2万8千台、大型車混入率は13%である。B-1～B-3区間は、新なにわ筋の上を阪神高速道路が高架道路として走っている（図2）。B-6～B-7区間の日交通量は約4万2千台、大型車混入率は約29%と測定地点中で最も大型車が多い区間となっている（表1）。

A-2及びB-6地点の近傍には大阪市の自動車排出ガス測定局（自排局）がある。A-2地点近傍の梅田新道局では、平成26年度（2014年度）のSPMの年平均濃度は0.026 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、二酸化窒素（NO₂）の年平均濃度は0.026ppmである。B-6地点の近傍の住之江交差点局ではSPMの観測は実施されていないが、二酸化窒素の年平均値は0.029ppmと梅田新道局より高く、自動車の排気ガスによる影響がより大きい地点となっている。両自排局ともにPM2.5の観測は実施されていないが、大阪市内では全測定局（一般局、自排局）でPM2.5の環境基準を超過していることから、本調査の測定地点でもPM2.5の環境基準を超過しているものと推測される。

採取したイチョウの葉は地上から約3～5m高さの葉とし、採取は、2014年5月13日（春）、7月25日（夏）、10月10日（秋）、2015年5月14日（春）、7月31日（夏）、10月6日（秋）に行った。

表1 採取地点近傍の交通量⁷

地点	A-1	A-2 - A-3	A-4 - A-5	B-1 - B-5	B-6 - B-7
交通量[台/日]	9,150	51,750	37,620	28,480	42,070
大型車混入率[%]	10.7	5.8	6.5	13.2	28.7

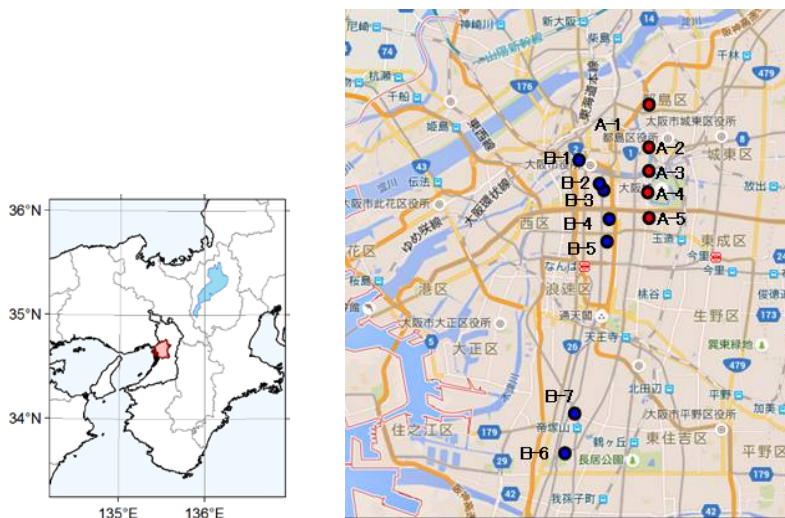


図1 採取地点

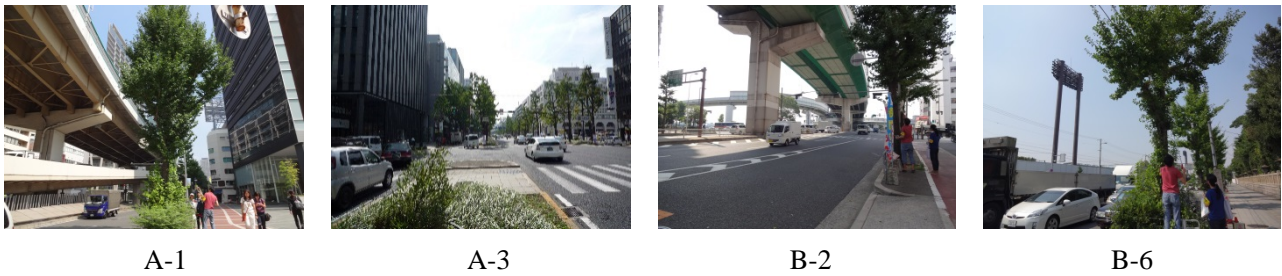


図2 A-1、A-3、B-2、B-6 地点の様子

3 方法

PIXE 分析用試料作製手順を図 3 に示す。採取した葉を 300mL のエタノール溶液に浸し、超音波洗浄器（本多電子、W-103T）にかけて、葉表面に付着した粒子をエタノール溶液の中に取り除いた。超音波洗浄後、エタノール溶液から取り出した葉をスキャナにかけてスキャンし、画像処理を行うことで葉面積を測定した。また、葉を取り除いた後のエタノールは吸引装置（アズワン、DAS-01）を用いて吸引ろ過（アドバンテック、KGS-04）にかけ、PTFE フィルター（堀場製作所、TFH-25R）に粒子を捕集した。吸引装置は 0.02MPa の条件で行った。ろ過後のフィルターは自然乾燥により乾燥させた。また、フィルターはろ過前後で電子天秤（ザルトリウス、BP211D）により質量の測定を行い、これを粒子総量とした。PIXE 分析用試料は各地点 3 サンプルずつ作製を行った。作製した試料は公益社団法人日本アイソトープ協会岩手県仁科記念サイクロترونセンター（NMCC）保有の PIXE 分析装置にて元素分析を行った。世良ら⁸に従い、小型のサイクロترونから 2.9MeV のプロトンビーム（6mm φ）を試料に照射し、発生した特性 X 線を低エネルギー用と高エネルギー用の Si (Li) 検出器で同時に検出することでスペクトルを得た。X 線吸収装置として、厚さ 300μm の Mylar 吸収体を利用した。スペクトルからピーク面積を解析するため、PIXE 用スペクトル解析プログラム SAPIX(Spectrum Analysis for PIXE)を利用した。また、ピーク面積から定量値を求める方法は、外部標準法⁹を利用した。本研究では、PIXE 分析で測定した 28 元素のうち自動車由来の 14 元素¹⁰ (Na、Mg、Al、K、Ca、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Ni、Cu、Zn、Pb) を対象に解析した。また、葉面積当たりの元素の質量[ng] :

m_i は PIXE 分析で測定された有効面積当たりの質量[ng/cm²] : m_{pi} 、フィルターの有効面積[cm²] : A_{ef} 、葉面積[cm²] : A_{leaf} を用いて(1)の式で算出した。

$$m_i = \frac{m_{pi} A_{ef}}{A_{leaf}} \quad (1)$$

4 結果

4.1 イチョウの葉に付着した金属元素の年・季節別の変動

イチョウの葉に付着した金属元素の単位葉面積当たりの質量（総元素量）の年・季節別の変動を図 3 に金属元素の単位葉面積当たりの質量（元素別）の年・季節別の変動を図 4 に示す。対象とした元素は、Fe、Al、Cr、V であり、道路粉塵もしくはブレーキ粉塵の主要元素である。

2014 年と 2015 年のそれぞれについてみると、いずれの元素（Fe、Al、Cr、V）も概ね単位葉面積当たりの元素量は、春季<夏季<秋季となっていた。金属元素の単位面積当たりの質量（総元素量）は、大型車交通量が最も少ない A-1 地点が最も小さくなっていた。他の地点をみると、大型車交通量が最も多い B-6 地点は、2015 年の夏季と秋季の一部の地点を除くと、明確な差は確認できないが、単位葉面積当たりの質量（総元素量）はやや大きかった。

なお、2014 年度の研究では、葉に付着した粒子の重量（春季の 12 元素合計量）と大型車の日交通量との関係を調べた。その関係を図 5 に示す。大型車の日交通量は、最も大型車の台数が少ない A-1 地点と最も大

型車の台数が多い B-6 地点をみると、正の相関がみられた。他の地点については、12 元素合計量と大型車の日交通量の関係は明らかではない。ここで、道路からの距離の影響を考慮するために、道路端から採取した樹木までの距離の逆数と、12 元素合計量の関係について検討した(図 6)。この結果から、道路からの距離の違いから生じる拡散希釈の影響が、A-2~A-5 地点と B-1~B-5 地点における 12 元素合計量の違いが原因の 1 つであることが示唆された¹¹⁾。

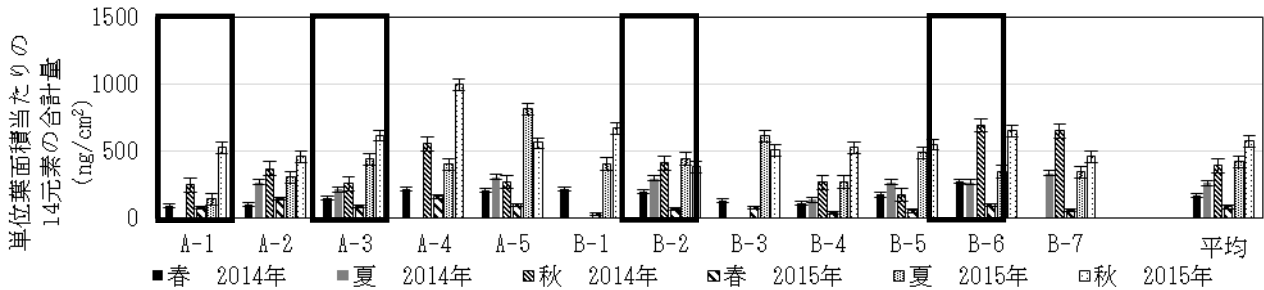


図 3 地点別の単位葉面積当たりの総元素量の比較 (2014~2015 年)

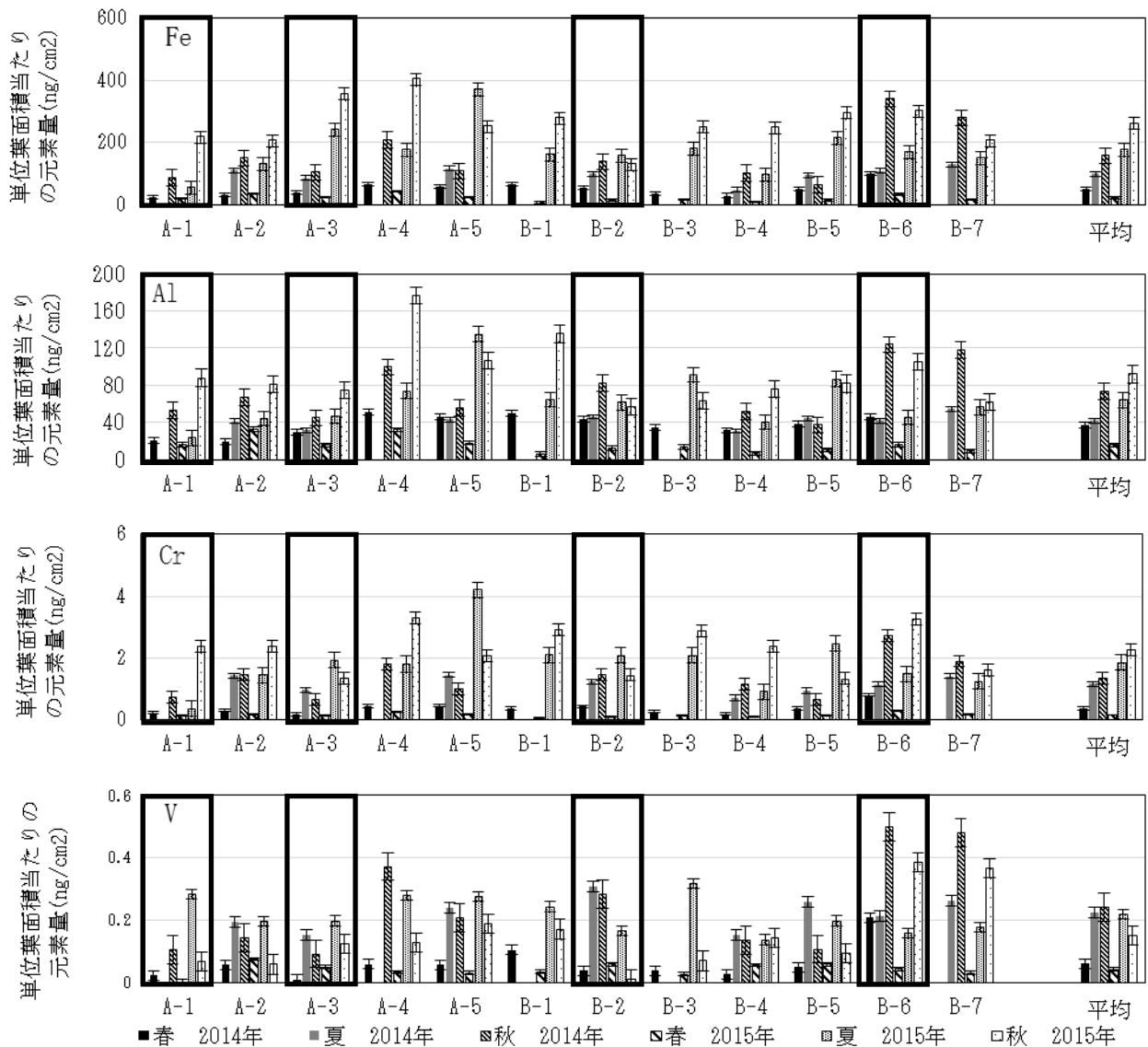


図 4 地点別の単位葉面積当たりの元素量の比較 (2014~2015 年)

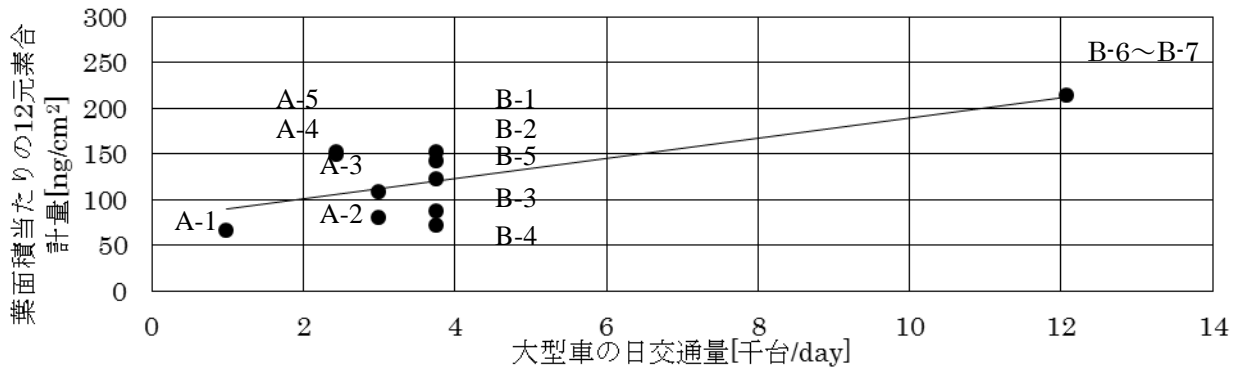


図5 2014年春の測定結果から得た12元素合計量と大型車日交通量の関係

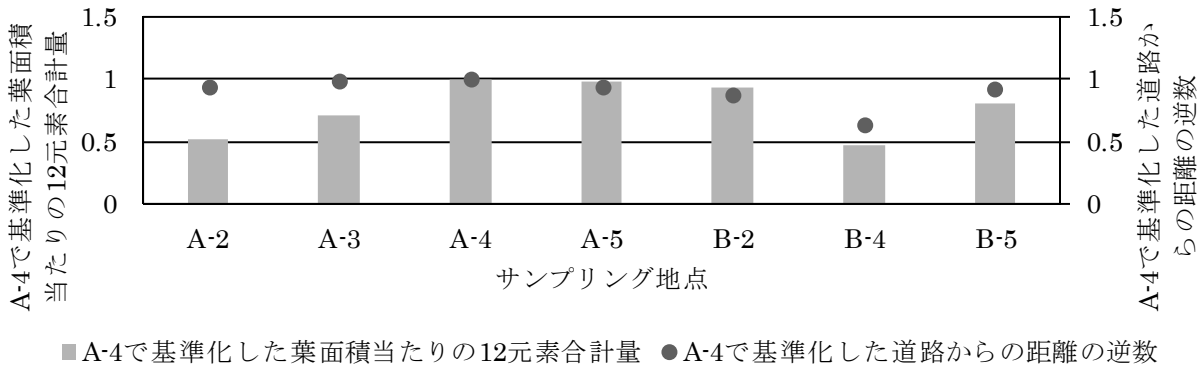


図6 2014年春の測定結果から得た道路端から採取した葉までの距離の逆数と12元素合計量の比較

4.2 道路粉塵とブレーキ粉塵由来の元素のプロファイルデータとの比較

12ヶ所の測定地点の中から、大型車交通量が最も少ないA-1地点、大型車交通量が最も多いB-6地点、御堂筋の代表地点としてA-3地点、新たにわ筋の代表地点としてB-2地点の計4地点を対象に、元素の構成比（元素量/フィルターに捕集された粒子の質量）を比較した（図7）。2014年と2015年の6回の元素の構成比は、ほぼ同じであった。2014年と2015年の6回の元素の構成比は、概ね同程度であり、構成比が高い順に、Fe、Ca、Al、K、Mg、Ti、Na、Zn、Mn、Cu、Cr、Pb、Ni、Vであった。この結果から、葉に付着した粒子中の元素量の構成比は、道路の沿道であれば交通量に関係なくほぼ同じ特徴を示すことが示唆された。

また、同じ4地点における道路粉塵とブレーキ粉塵に関連する元素Fe、Ca、Al、K、Zn、Na、Mn、Cr、Vについて、国立環境研究所が提案しているプロファイルデータ¹²とバイオモニタリングの結果を単位質量あたりの元素量で比較し、図8に示した。両者はZn以外については、概ね一致したことから、葉の表面に付着した粒子は、主として道路粉塵とブレーキ粉塵由来である可能性が示唆された。

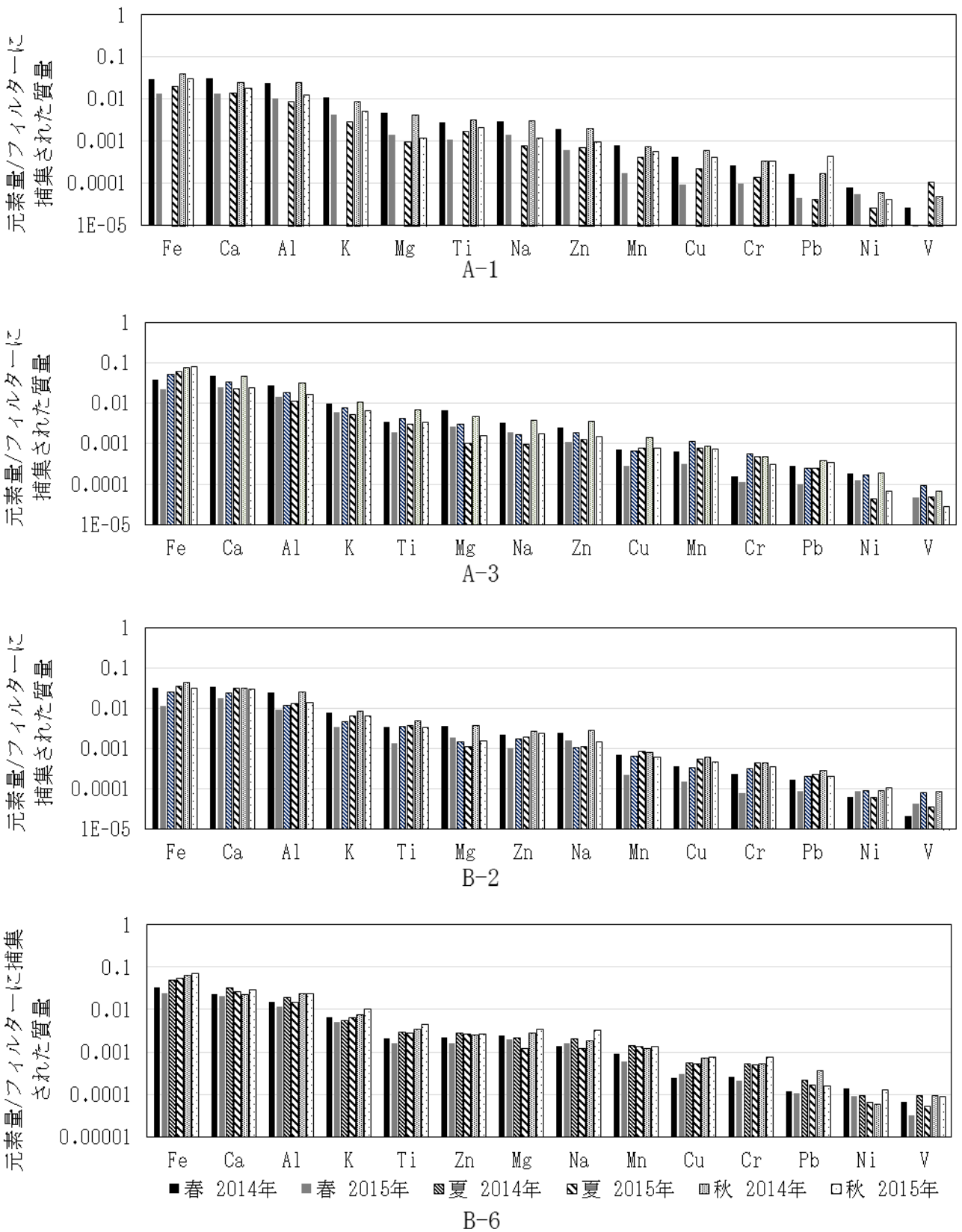


図7 フィルターに捕集された粒子の質量と元素量の比

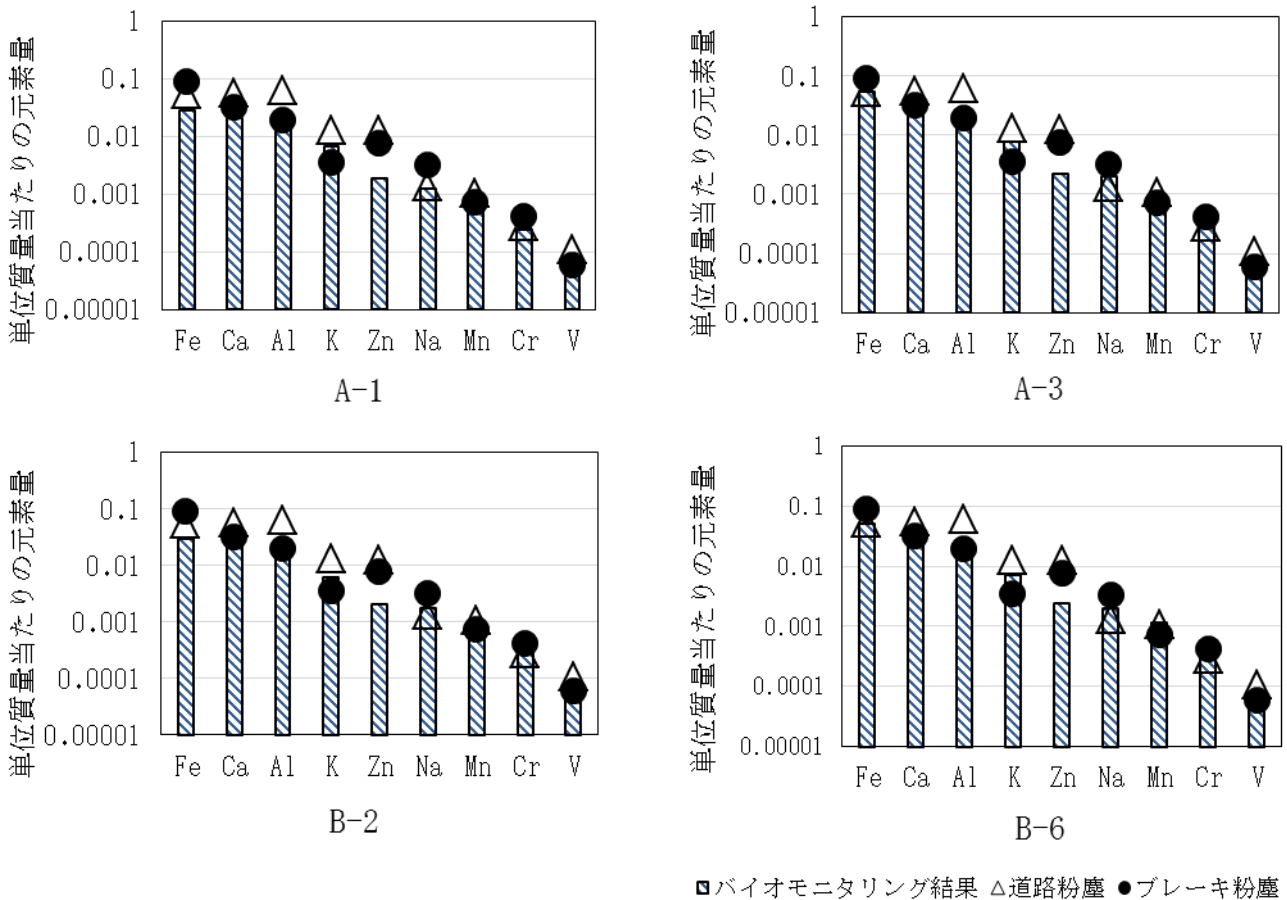


図8 バイオモニタリング結果と道路粉塵・ブレーキ粉塵のプロファイルデータとの比較

4.3 SPM 計のフィルターに捕集された元素との比較

大気中の粒子の元素成分と街路樹の葉の表面に付着した粒子の元素成分を比較するために、自排局（梅田新道局）の SPM 計のフィルターに捕集された粒子を分析した。梅田新道局は A-2 地点から北に約 70m の地点にあり、大気の採取口は道路端より 10m、地上約 3m の高さにある。

SPM 計のフィルターは、葉のサンプリングを実施した日を対象とし、春は 2014 年 5 月 13 日、夏は 2014 年 7 月 25 日のフィルター（それぞれ 24 個のスポット）であり、元素分析は葉の表面に付着した粒子の元素分析と同手法である。

A-2 地点のバイオモニタリングの結果（葉の表面に付着した粒子の分析結果）と SPM 計のフィルターに捕集された元素との比較結果は、図 9 に示すとおりである。なお、図の横軸は今回解析の対象とした 14 元素であり、縦軸は葉の表面もしくはフィルターに捕集された粒子中の各元素の構成比を表している。比較した 14 元素のうち、Na、Pb、V についてはバイオモニタリング結果の方が小さく、Ca、Ti についてはバイオモニタリング結果の方が大きくなっているものの、他の元素（Fe、Al、K、Mg、Zn、Mn、Cu、Cr、Ni）の構成比率は概ね一致している。

葉表面の付着粒子は葉表面への付着と降雨などによる脱離を繰り返し、葉に付着している粒子の数や粒子の種類などが、空気中の粒子と異なる可能性がある。また、SPM は、空気動学的粒径 10 μ m 以上の粒子を 100% カットしたものであり、葉の表面に付着した粒子と粒径が異なる。これについては、次年度の調査の課題の 1 つである。

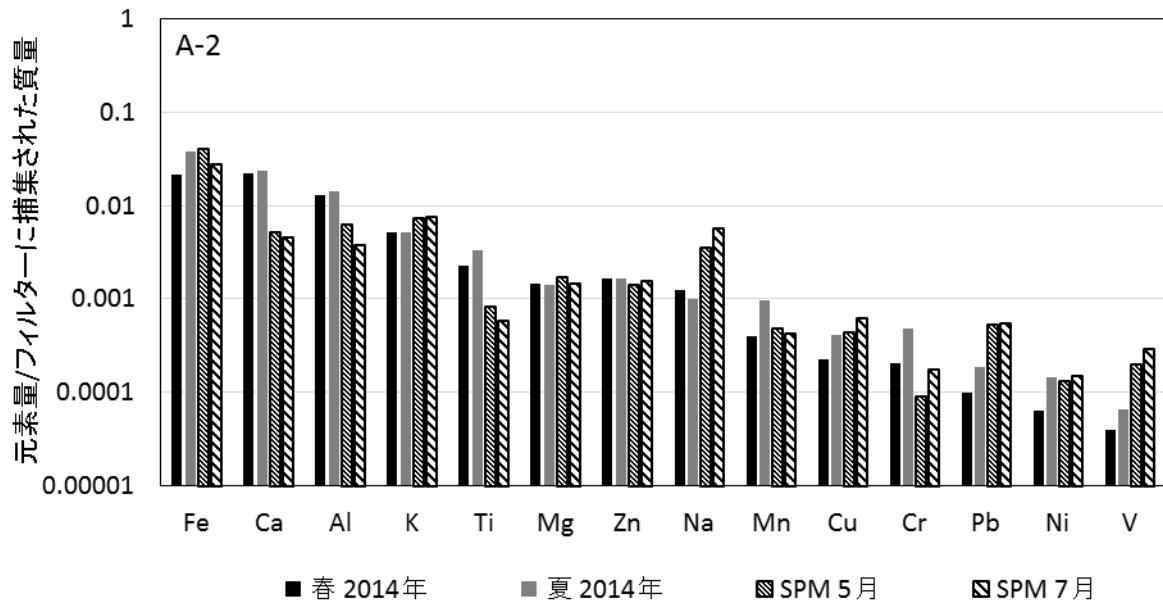


図9 A-2地点のバイオモニタリングの結果とSPM計のフィルターに捕集された元素との比較

5 結論

大阪市の主要幹線道路において、落葉広葉樹であるイチョウの葉を2014年から2015年の春、夏、秋の計6回採取し、葉に付着した元素をPIXEシステムを用いて分析した。分析結果から、地点別元素量やフィルターに捕集された粒子の質量と元素量の比について年・季節変動の解析を行い、道路粉塵とブレーキ粉塵との関係について解析した。

- (1) 単位葉面積当たりの14元素合計量や各元素量は、時間の経過とともに増加することが示唆された。
- (2) 同地点における計6回の各元素量の値は同程度であったことから、葉に付着した粒子中の元素の構成比が示唆された。
- (3) 葉の表面に付着した粒子の道路粉塵とブレーキ粉塵に関する元素の単位質量あたりの元素量は、プロファイルデータの値と概ね一致した。
- (4) 自動車沿道測定局におけるSPM中の元素量とバイオモニタリング結果は概ね同程度であったが、NaとPbはバイオモニタリング結果の方が比較的小さな値を示した。

以上の結果から、沿道のイチョウを用いたバイオモニタリングは、まだいくつかの課題はあるが、沿道大気汚染のうち自動車由来の粒子の影響を評価するのに適していることが示唆された。

参考文献

1. Krewski, D, Burnett, R.T., Goldberg, M.S., Hoover, K., Siemiatycki, J., Jerrett, M., Abrahamowicz, M. & White, W.H., "Reanalysis of the Harvard Six Cities study and the American Cancer Society study of particulate air pollution and mortality", MA: Health Effects Institute, Environmental Quality Standards (2000)
2. Pope, C.A., 3rd., Burnett, R.T., Thun, M.J., Calle, E.E., Krewski, D., Ito, K. & Thurston, G.D., "Lung cancer, cardiopulmonary mortality and long-term exposure to fine particulate air pollution" JAMA, 287, pp. 1132-1141 (2002)

3. 環境省, “平成 26 年度大気汚染状況 微小粒子状物質(PM2.5),
URL: http://www.env.go.jp/air/osen/jokyo_h26/rep07_h26.pdf
4. K. Szczepaniak and M. Biziuk, “Aspects of the biomonitoring studies using mosses and lichens as indicators of metal pollution”, *Environmental Research*, 93, pp. 221–230(2003)
5. M. Tomašević, Z. Vukmirović, “Characterization of trace metal particles deposited on some deciduous tree leaves in an urban area”, *Chemosphere*, 61, pp. 753–760 (2005)
6. Material like a minute particle examination working group “Consideration report about receptor model” pp.372 (2011)
7. Ministry of Land, Infrastructure, Transport and Tourism “Fiscal year 2010 average weekday 24-hour traffic volume” General Traffic Volume Survey, (Road Traffic Census) (2010)
8. K. Sera, T. Yanagisawa, H. Tsunoda, S. Hutatukawa, Y. Saitoh, S. Suzuki, H. Orihara, “Bio-PIXE at the Takizawa facility (Bio-PIXE with a baby cyclotron)”, *Int. J. PIXE*, 2, pp.325–330 (1992)
9. Sera, K., Futatsugawa, S. and Saitoh, K., “Method of Quantitative Analysis Making Use of Bromine in a Nuclepore Filter”, *Int'l Journal of PIXE*, 7-1,2, pp. 71-85 (1997),
10. 王 青躍, 坂本 和彦, “大気浮遊粒子状物質発生源寄与の解析手法について”, pp.15(2002)
11. 北島 育美ら, “バイオモニタリングによる道路近傍の環境濃度測定”, NMCC 共同利用研究成果報文集 21, pp.89-100 (2014)
12. N.Fukuzaki, T.Yanaka, “A fundamental examination of air pollution by roadway dust (Part 1) (A research of indicator elements by multielement analysis Annual Report of Niigata Prefectural Research Laboratory)”, *Health and Environment*, 8, pp.18-23 (1983)

Measurement of roadside air pollution with a biomonitoring method

A. Kondo¹, Y. Mihara², H. Murashige¹, I. Kitajima¹, H. Shimadera¹,
M. Shigeyoshi², N. Harai², T. Matsui² and K. Sera³

¹Osaka University
2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871, Japan

²Chuo Fukken Consultants Co., Ltd.
4-11-10 Higashi-nakajima, Higashi-yodogawa, Osaka 533-0033, Japan

³Cyclotron Research Center, Iwate Medical University
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

Abstract

Though air pollution due to atmospheric particulate matter has been a serious problem in Japan, it is difficult to measure atmospheric particulate matter in widely roadside areas with the limited number of the stations. Therefore we focused on biomonitoring technique with ginkgo leaves. Ginkgo leaves were collected along major arterial roads in spring, summer and autumn in 2014 and 2015. The particles retained on leaves were removed by ultrasonic cleaning into ethanol solution. The ethanol solution including particles was suctioned by an aspirator. Particles were collected on PTFE filter. Particles on filter were quantified by Particle Induced X-ray Emission (PIXE) analysis. The total mass and the traffic-related element mass (Fe, Al, Cr and V) on leaves increased in turn on autumn, summer and spring. It suggested that atmospheric particulate matter accumulated on leaves day by day. The weight percentile of elements of both road and brake wear dust were nearly equal to those of particles on leaves in all seasons and at all locations except for Zn. The weight percentile of elements of particle on leaves were nearly equal to those of SPM measured by roadside monitoring station except for Na and Pb, which were relatively smaller than those in SPM. Though some uncertainties should be solved, these results suggested that biomonitoring technique is the effective method to assess roadside air pollution.