

## 第4章 街路樹の葉および簡易型捕集材を利用した 大気モニタリングの影響因子に関する考察

### 4.1 緒言

第2、3章では、多点における簡易的な大気モニタリング法について言及した。街路樹の葉またはマイクロ繊維シート捕集材を利用することで、大気中粒子状物質のモニタリングが可能であることが明らかとなった。モニタリング法として最も重要なことは、モニタリング値が実際の環境状態を反映し、大気環境指標として十分な精度を有するかという点である。これまでに述べたとおり、モニタリング期間や方法が異なるため、どの程度の精度で反映されていれば充分であるかの評価は難しい。特に、本研究で測定対象としているB(a)Pに関しては、現在のところWHOのガイドライン値である $0.11\text{ng}/\text{m}^3$ が参考値とされているが、環境省は未だにわが国における環境基準値を設定するには至っていない。B(a)Pは紫外線による分解<sup>1-4)</sup>や紫外線照射下で他の分子と高い反応性を示す<sup>5-9)</sup>ことが指摘されているため、比較的廉価で汎用性のある既存のエアサンプラーで捕集された大気中B(a)P測定値の信頼性について疑問視されている向きもあり、このことも環境基準値が設定されない一因であると思われる。既存の測定方法の良否が論議されている中、オリジナルなモニタリング法について評価・検証を行うとなると、そのモニタリング結果が異なった評価となった場合にどのモニタリング結果が実際の大気環境を的確に反映しているのか判断することは困難となる。

モニタリング結果が実際の大気環境状態を反映しているかどうかの判断材料として、発生源や気象条件との関連性、長期的な大気変動傾向の再現性等を統計的に評価する方法が上げられる。本研究で選定したモニタリング地点は、自動車排ガスが主たる発生源であるため、モニタリング結果は自動車交通に由来する何らかの因子に依存していると考えられる。また、第2、3章でも詳述したとおり本研究で採用しているパッシブサンプリングの場合には、降雨や風、温度、湿度、日射等の気象条件に左右されることが考えられる。

本章では、街路樹の葉による大気モニタリング結果とマイクロ繊維シートによるモニタリング結果を比較して、その整合度合いを検討した。そして、両者のモニタリング法に影響を及ぼす因子を抽出し、モニタリング結果への影響度合いを考察することで、両者の大気環境指標としての位置付けについて検討した。

## 4.2 ツツジの葉およびマイクロ繊維シートによる多点モニタリング結果の比較

### 4.2.1 モニタリング地点および期間

第2、3章で示したように、自動車交通以外の発生源からの影響を受けない道路沿道7箇所をモニタリング地点(図3.18参照)とし、ツツジの葉によるモニタリングとマイクロ繊維シートを利用したモニタリングを同時に行った。モニタリング地点は、幹線道路である国道4号線沿いの2車線直線道路(Hw.1: 1386 N/h)、4車線直線道路(Hw.2: 2444 N/h)、4車線交差点付近(Hw.3: 2133 N/h)の3箇所、盛岡市内の平均的な交通量である主要地方道路沿いの2車線直線道路(Lw.1: 889 N/h)と2車線交差点付近(Lw.2: 760 N/h)の2箇所、盛岡市の中心部で、周囲に比較的高層建築が多い商業地域の2車線直線道路(Ca.1: 590 N/h)と4車線交差点付近(Ca.3: 865 N/h)の2箇所の計7箇所である<sup>10)</sup>。それぞれのモニタリング期間が異なるため、なるべく同時期のモニタリング値で比較することを考慮し、各月の葉の採取は、原則としてマイクロ繊維シートの懸架期間7日間内で、明確な降水量が連続3日間観測されなかった日に行った。ただし、マイクロ繊維シート懸架期間内に上記の適合日がなかった場合は、懸架期間終了後の早い適合日に採取した。定期サンプリングは、ツツジの葉の採取可能な2001年4~12月、2002年4~12月の毎月1回行った。

### 4.2.2 結果および考察

図4.1にツツジの葉およびマイクロ繊維シートを用いたモニタリング法による粒子状物質量の経月変化を示す。なお、原因が明らかな異常値や人為ミスによる測定値は削除している。各モニタリングの粒子状物質量ともに、幹線道路で高い値を示す結果であった。また、2001年と2002年では、年による大きな違いは認められなかった。経月変化は、4、5月と10月以降に高い値となる両者ともほぼ同様の傾向を示した。両者の捕集粒子状物質量を比較すると、マイクロ繊維シートによる粒子状物質量は、ツツジの葉に吸着した粒子状物質量の約10倍の値を示す結果であった。モニタリング期間や捕集能力の差が結果に現れたと考察される。ツツジの葉は、粘性により粒子状物質を吸着する特徴を有しているが、粘性は生育状況や大気湿度変化によってその能力が低下する可能性がある。一方、マイクロ繊維シートは、元来、掃除用品として市販されている製品であるため捕集条件は一定であり、繊維内に取り込んだ粒子状物質は離脱せずに保持する性能を持つことから、高い捕集能力を示したと推察される。

図4.2にツツジの葉およびマイクロ繊維シートを用いたモニタリング法によるB(a)P含有量の経月変化を示す。B(a)P含有量は、粒子状物質量と同様に幹線道

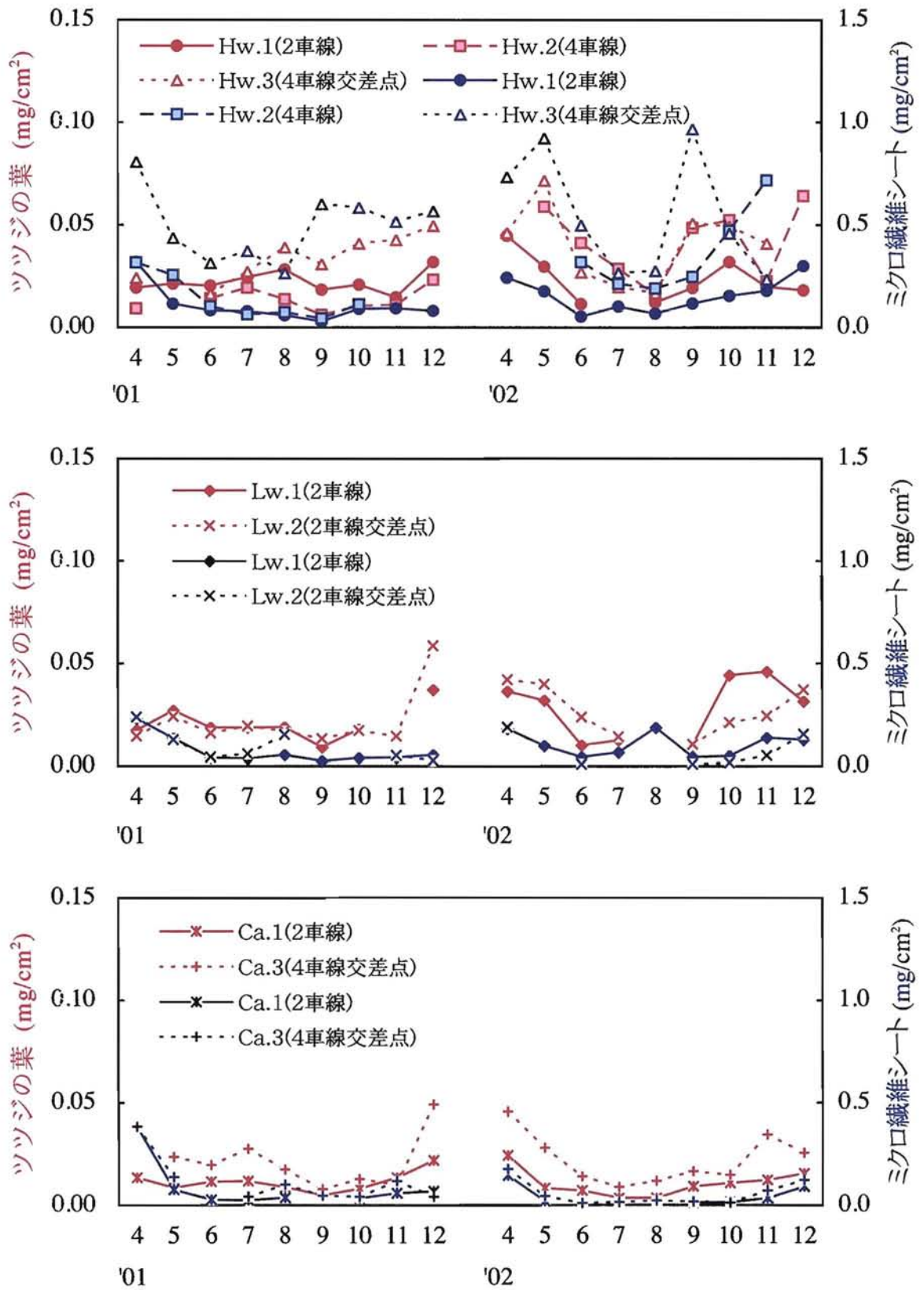


図 4.1 ツツジの葉およびマイクロ繊維シートを用いたモニタリング法による粒子状物質量の経月変化

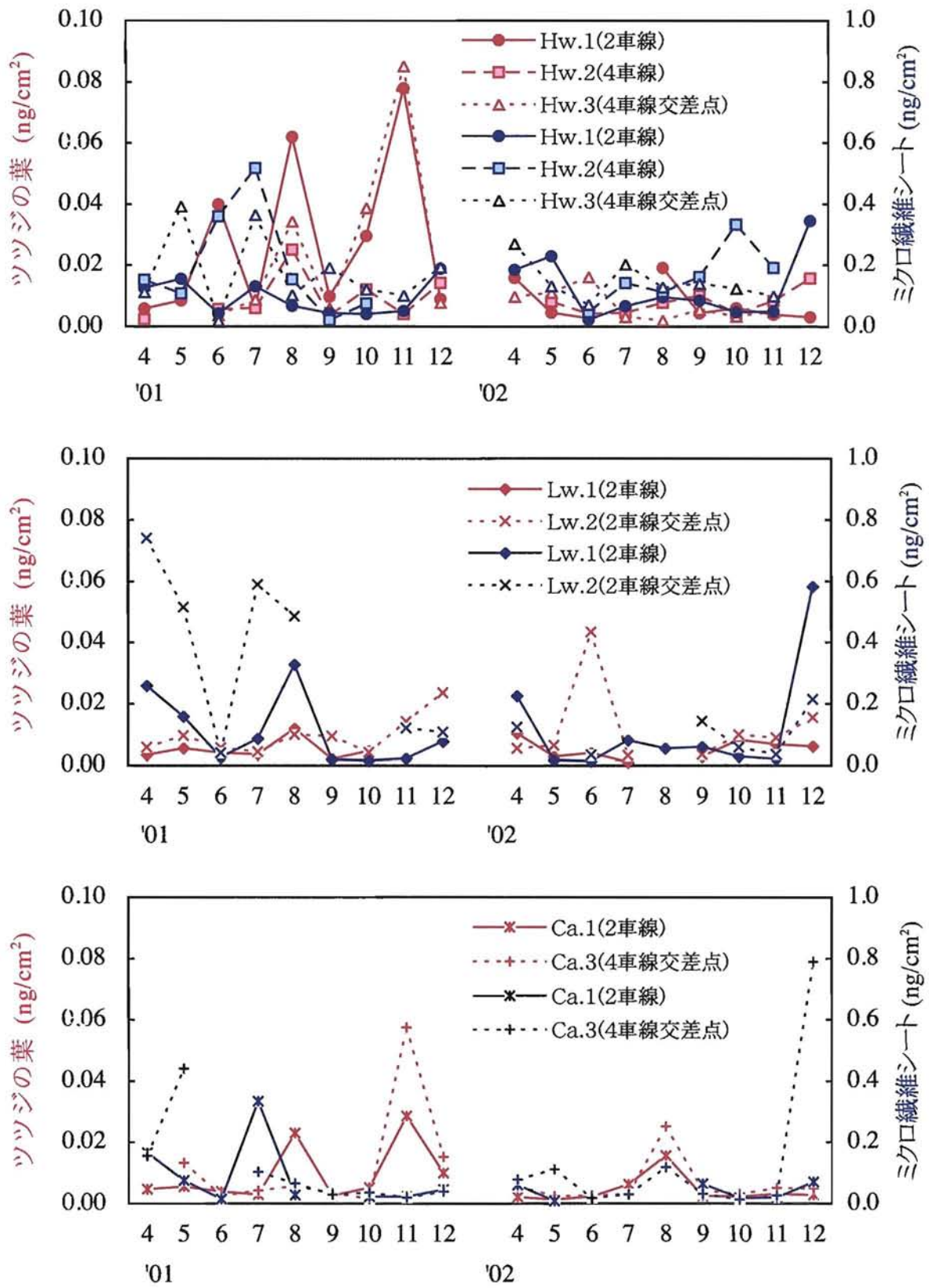


図 4.2 ツツジの葉およびマイクロ繊維シートを用いたモニタリング法による B(a)P 含有量の経月変化

路で高い値を示すという共通点はあるが、両者とも年による違いや月による違いが著しく、一様の傾向は確認されなかった。夏期は紫外線照射量が増加するため B(a)P の分解が進行し、B(a)P 含有量の減少が確認されると予想したが、夏期に突発的に高い値を示すなど紫外線による分解以外に B(a)P 含有量を左右する要因が示唆された。経月変化が異なるため年間を通した絶対量の比較は困難であるが、マイクロ繊維シートによる B(a)P 含有量は、ツツジの葉に吸着した B(a)P 含有量の約 10 倍の値を示す結果であった。

**図 4.3** にツツジの葉およびマイクロ繊維シートを用いたモニタリング法による捕集粒子状物質質量当たりの B(a)P 含有量の経月変化を示す。捕集粒子状物質質量当たりの B(a)P 含有量は、両者とも同程度の値であった。両者のモニタリング地点が同地点であることを考えると妥当な結果であり、捕集粒子状物質質量当たりの B(a)P 含有量は、発生源からの影響を反映した結果といえる。しかしながら、それぞれのモニタリング方法ともに突発的に高い値を示すなど、データの精度という点においては、やや信頼性に欠ける結果であった。

**図 4.4** にツツジの葉およびマイクロ繊維シートを用いたモニタリング結果の粒子状物質質量および B(a)P 含有量の関係を示す。粒子状物質質量の相関係数が 0.538、B(a)P 含有量が 0.115 であった。B(a)P 含有量に関しては、一方が高い値であれば、もう一方が低い値を示すような反比例の関係に類似しており、1 次回帰式の傾きがマイナスを示すなど両モニタリング結果の相関は全く見られない結果であった。

2 年間の定期的な多点モニタリングの結果、粒子状物質については、簡易的な大気環境指標として概ね評価できる段階といえるが、B(a)P 含有量については、年間を通した一様の傾向が認められず、大気環境指標として評価するのは早計といえる。多点モニタリング法としての確立を目指すためには、大気中および各モニタリング材の捕集面での粒子状物質および B(a)P の動態を解明する必要がある。

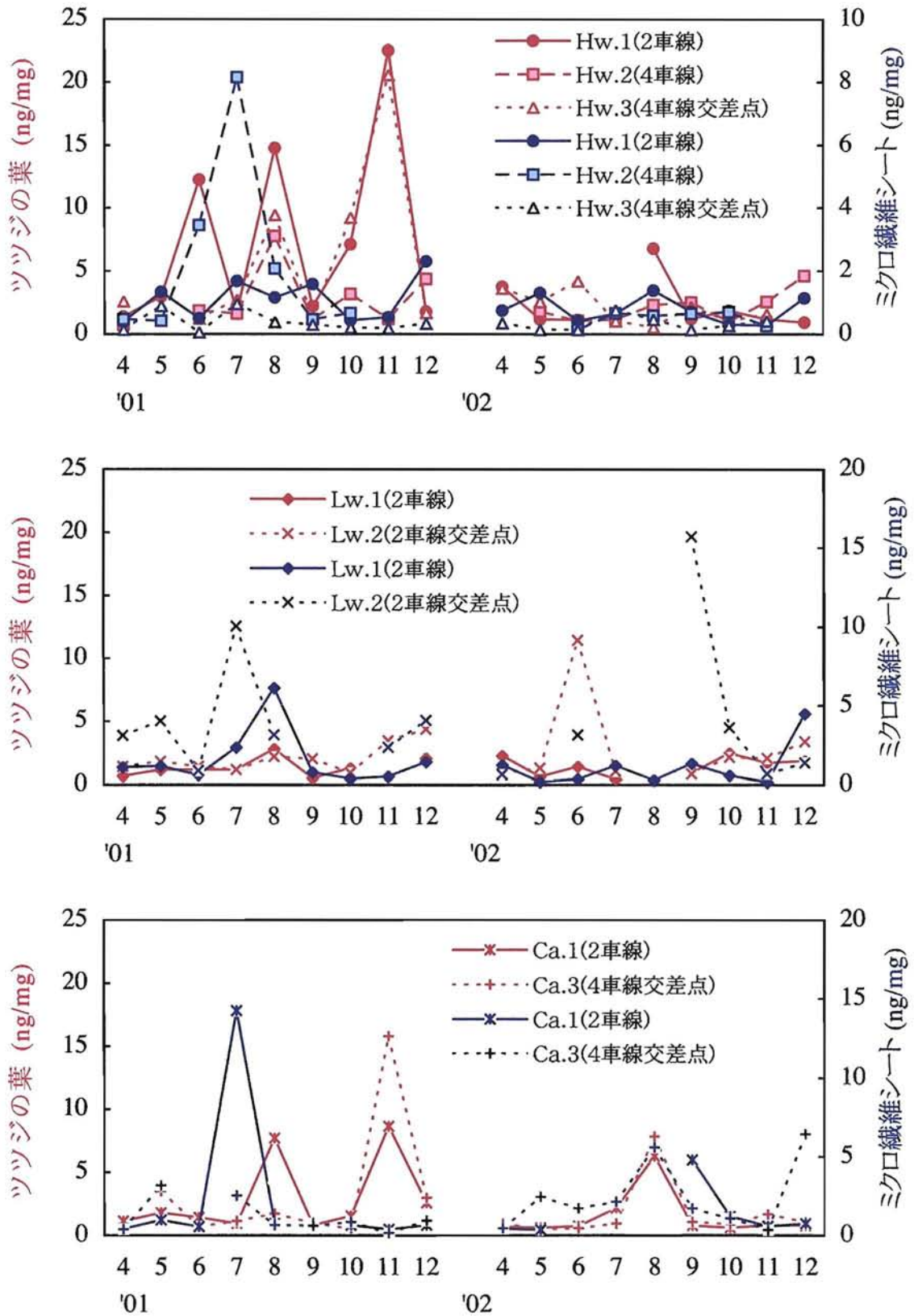


図 4.3 ツツジの葉およびマイクロ繊維シートを用いたモニタリング法による捕集粒子状物質質量当たりの B(a)P 含有量の経月変化

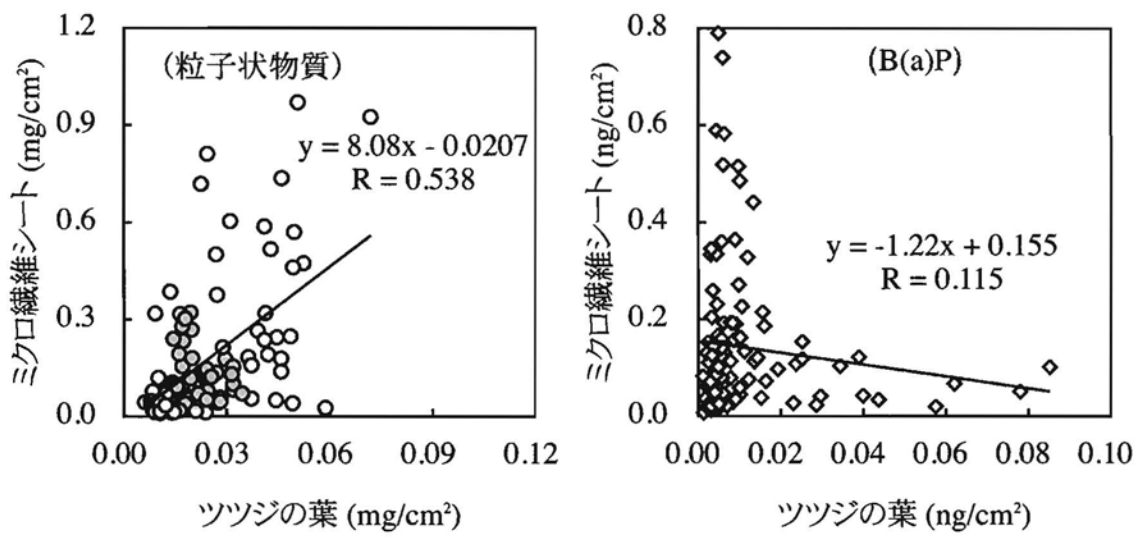


図 4.4 ツツジの葉およびマイクロ繊維シートを用いたモニタリング結果の粒子状物質量および B(a)P 含有量の関係

### 4.3 大気モニタリング法に影響を及ぼす因子の統計解析

#### 4.3.1 モニタリング地点および期間

多点モニタリングの結果から、捕集粒子状物質量および B(a)P 含有量は発生源の影響のみでは説明できず、捕集面での物質の動態やモニタリング期間中の気象条件により大きく影響されることが示唆された。第 2、3 章でも詳述したとおり、マイクロ繊維シートに捕集される粒子状物質量は、降雨などの気象条件に左右されることがわかっている。そこで、ツツジの葉およびマイクロ繊維シートに捕集される粒子状物質量および B(a)P 含有量に影響を及ぼす因子の抽出を行うため、限られた範囲の中で複数の影響因子についてのデータが入手可能な地点でモニタリングを試みることにした。調査地点は、リュウキュウツツジが多方向に面して植栽されており、同時にマイクロ繊維シートが懸架可能な地物が各路線にある盛岡市の国道 4 号線高松交差点とした。

図 4.5 にモニタリング地点の様子を示す。モニタリングは、国道 4 号線の上下線（4 箇所）、国道 46 号線の上下線（2 箇所）、市道高松一上田線の上下線（2 箇所）沿いに植栽されているツツジと各道路に面するように設置したマイクロ繊維シートを用いて、2002 年 4～12 月の毎月 1 回行った。

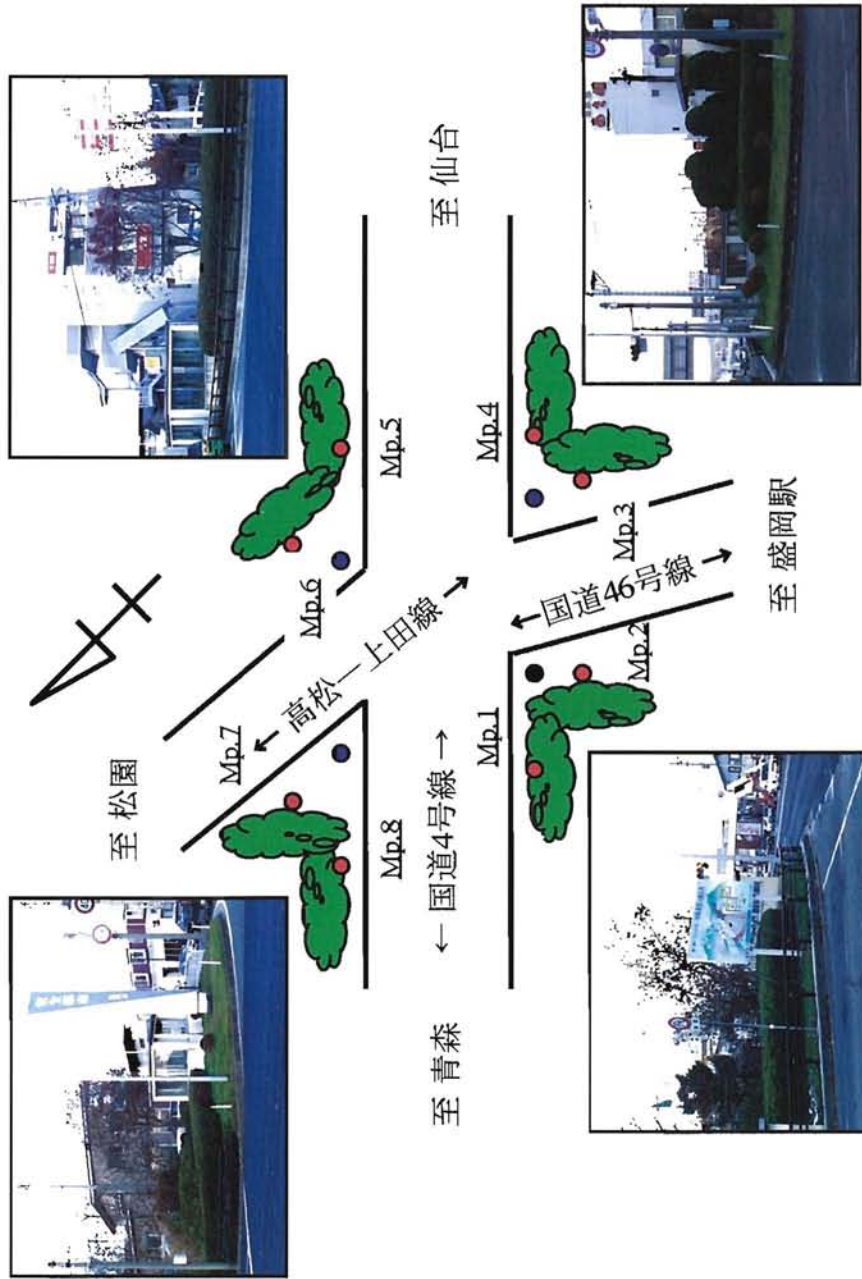
#### 4.3.2 影響因子の選定と調査方法

影響を及ぼすと予想される因子は、発生源である自動車走行に関する因子と気象因子、設置条件から選定した。表 4.1 に選定因子と測定項目を示す。交通因

表4.1 選定因子と測定項目

選定因子	測定項目
自動車総台数 ( $N_T$ )	各車線ごとの自動車（自動二輪車含む）総台数 (N/h)
大型車台数 ( $N_L$ )	各車線ごとの大型車台数 (N/h)
ディーゼル車台数 ( $N_D$ )	各車線ごとの小型ディーゼル車台数 (N/h)
大型車混入率 ( $R_L$ )	各車線ごとの大型車混入率 (%)
ディーゼル車混入率 ( $R_D$ )	各車線ごとの小型ディーゼル車混入率 (%)
風速 (V)	交差点各コーナーごとの風速 (m/s)
開角45° 風向 ( $W_{45}$ )	捕集面の向いた開角45° 方位からの風向頻度 (%)
開角90° 風向 ( $W_{90}$ )	捕集面の向いた開角90° 方位からの風向頻度 (%)
開角135° 風向 ( $W_{135}$ )	捕集面の向いた開角135° 方位からの風向頻度 (%)
開角180° 風向 ( $W_{180}$ )	捕集面の向いた開角180° 方位からの風向頻度 (%)
降水量 (P)	対象期間における盛岡市の平均降水量 (mm/day)
全天日射量 (S)	対象期間における盛岡市の平均全天日射量 (MJ/m <sup>2</sup> )
距離 (D)	道路端から捕集地点までの距離 (m)





- 交通量測定およびモニタリング地点
- 風向・風速測定地点

図4.5 モニタリング地点の様子

子としては、自動車総台数 (N/h) や大型車台数 (N/h) の他に、小型ディーゼル車台数 (N/h)、大型車混入率 (%)、小型ディーゼル車混入率 (%) の 5 因子を選定した。気象因子としては、第 3 章で影響が確認された風向頻度 (%) や降水量 (mm/day)、さらに風速 (m/s) や全天日射量 (MJ/m<sup>2</sup>) など 7 因子を選定した。それぞれの調査方法は次に示すとおりである。

交通量調査は、各モニタリング地点前を通過する大型車、小型ガソリン車、小型ディーゼル車台数を、土日を除く毎日 14:00~15:00 の間に 5 分間計測した。風向・風速調査は、交通量調査と同時間帯に交差点各コーナーで 10 分間観測した<sup>11)</sup>。風向は、携帯風向風速計を用いて 1 分ごとに計 10 回観測し、風速は、10 分間の総風量を時間で除して求めた。降水量と全天日射量は、気象庁月報<sup>12)</sup>により確認した。降水量は、モニタリング期間中の全日降水量の総量として求めた。また、全天日射量は、1m<sup>2</sup>あたりの水平面が受け取る 1 時間あたりの太陽光照射の熱量 (MJ/m<sup>2</sup>) で表され、降水量と同様にモニタリング期間中の全日測定量の総量として求めた。

#### 4.3.3 結果および考察

図 4.6 に各モニタリング地点の交通量および風向・風速の年平均値を示す。各月で多少のばらつきはあるが、大型車台数、小型ガソリン車台数、小型ディーゼル車台数ともに国道 4 号線沿いで高い値を示した。上下線での台数を比較すると、若干ではあるが上り線で大型車台数が高い傾向であった。各コーナーの卓越風向は、Mp.3、4 を除き、季節を問わず北西寄りの風であった。Mp.3、4 の卓越風向は季節ごとに変化し、春季は西寄り、夏季は南東寄り、秋冬季は南西寄りであった。年間平均風速は、国道 4 号線の南側で若干弱く Mp.1、2 で 0.57m/s、Mp.3、4 で 0.82m/s、北側では約 1.00m/s であった。各コーナーとも、春夏季で風速が大きく、秋冬季に小さくなる傾向が観測された。

図 4.7 にツツジの葉およびマイクロ繊維シートによる各モニタリング地点の粒子状物質量の経月変化を示す。粒子状物質量は、国道 4 号線沿いの 4 地点 (Mp.1、4、5、8) でいずれのモニタリング結果とも高い値を示した。これは、交通因子による影響が寄与した結果といえる。また、マイクロ繊維シートによる Mp.6 のモニタリング結果が年間を通して高い値で推移する結果であった。Mp.6 のマイクロ繊維シート設置地点が国道 4 号線に近い位置であったため、高松一上田線と国道 4 号線の両車線の影響を受けたためと推察される。また、卓越風の風下であったことも一つの要因であると推察される。

図 4.8 にツツジの葉およびマイクロ繊維シートによる各モニタリング地点の B(a)P 含有量の経月変化を示す。4.2 節で述べた多点モニタリング結果と同様に、両モニタリングによる B(a)P 含有量は一様の傾向は認められない結果であった。

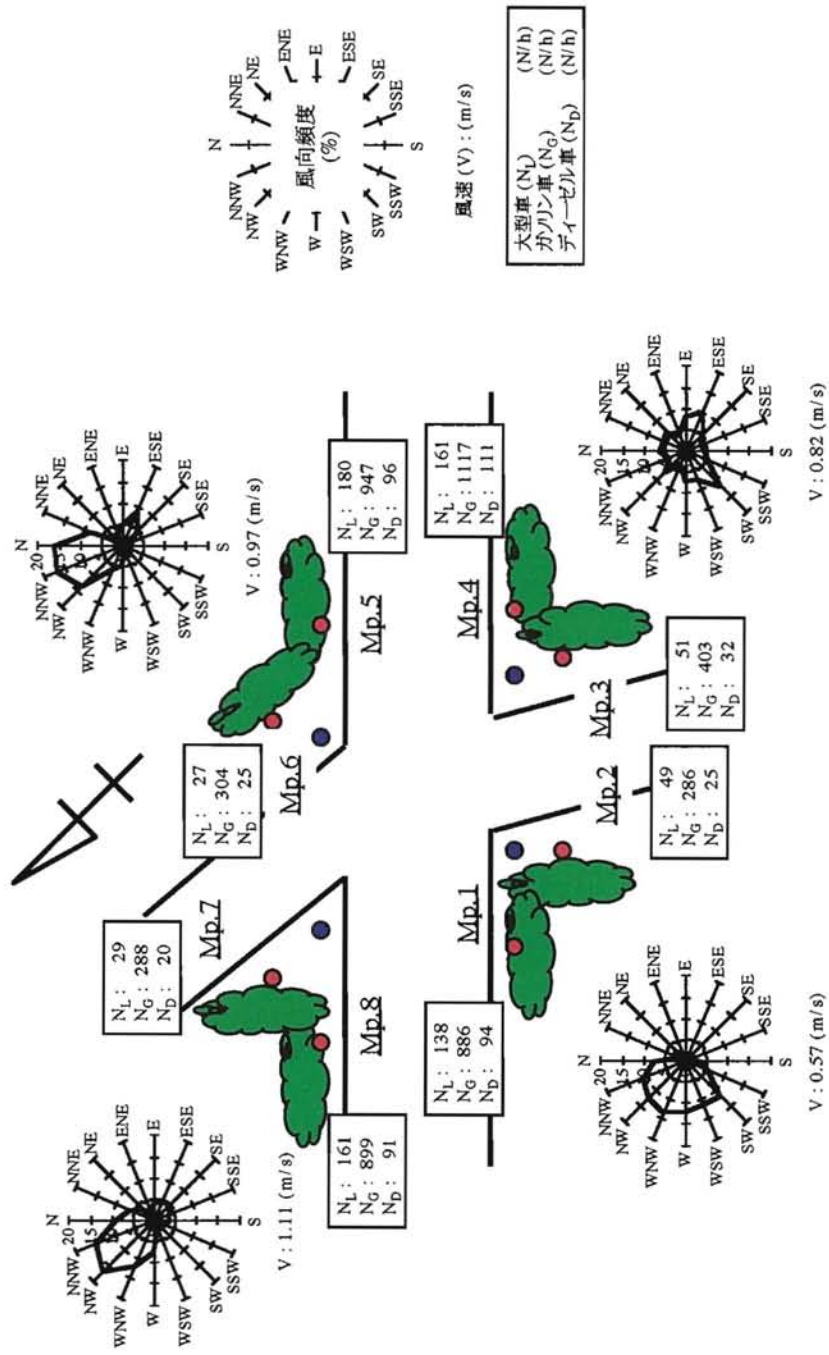


図4.6 モニタリング地点の交通量と風向・風速データ(年平均値)

大型車やディーゼル車の台数が多い国道4号線沿い（MP.1、4、5、8）で必ずしも高い値を示す結果は得られず、発生源以外に捕集量に影響を及ぼす因子の寄与が示唆された。

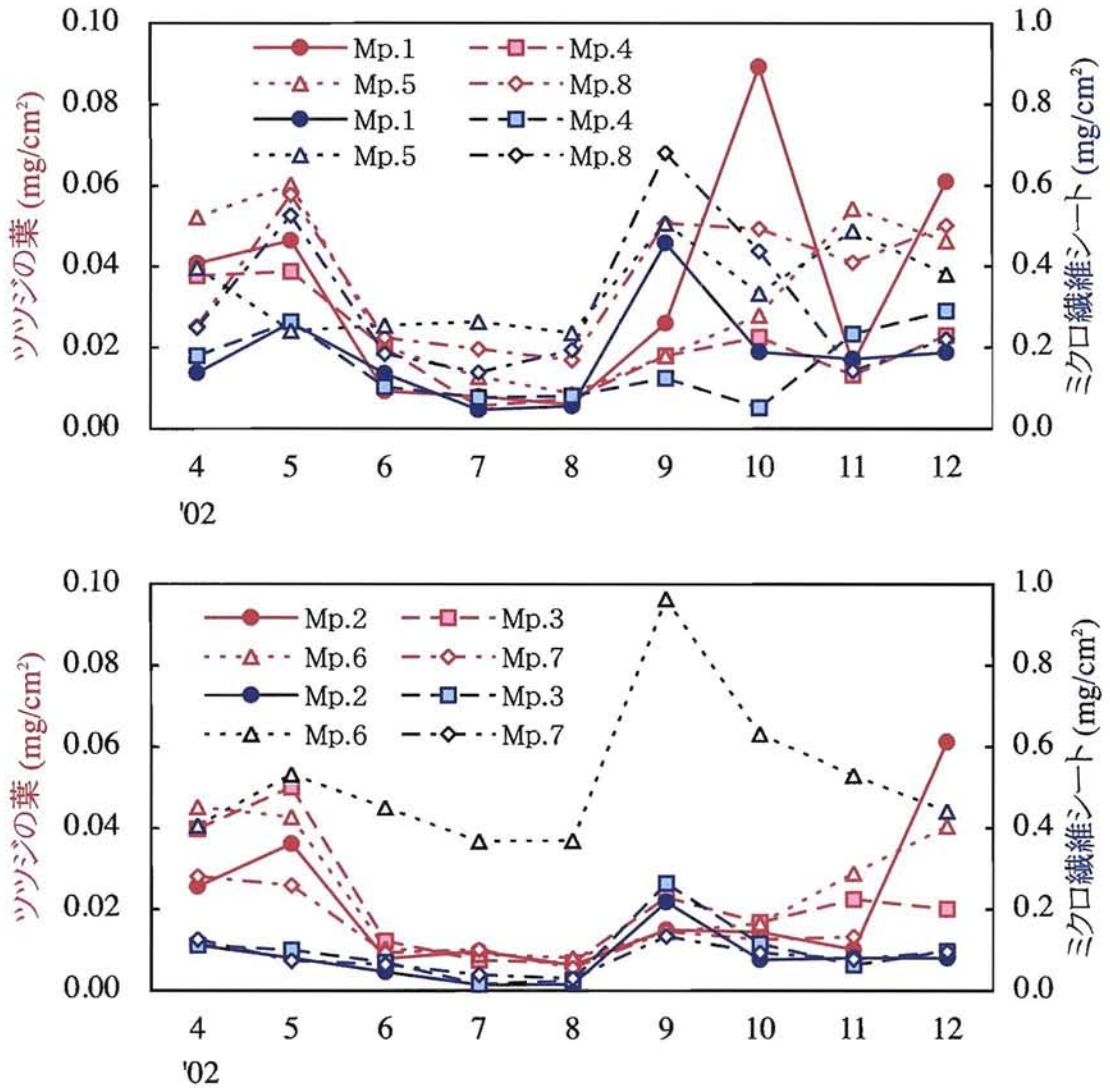


図 4.7 ツツジの葉およびマイクロ繊維シートによる各モニタリング地点の粒子状物質量の経月変化 (上: 国道4号線沿い、下: 高松-上田線沿い)

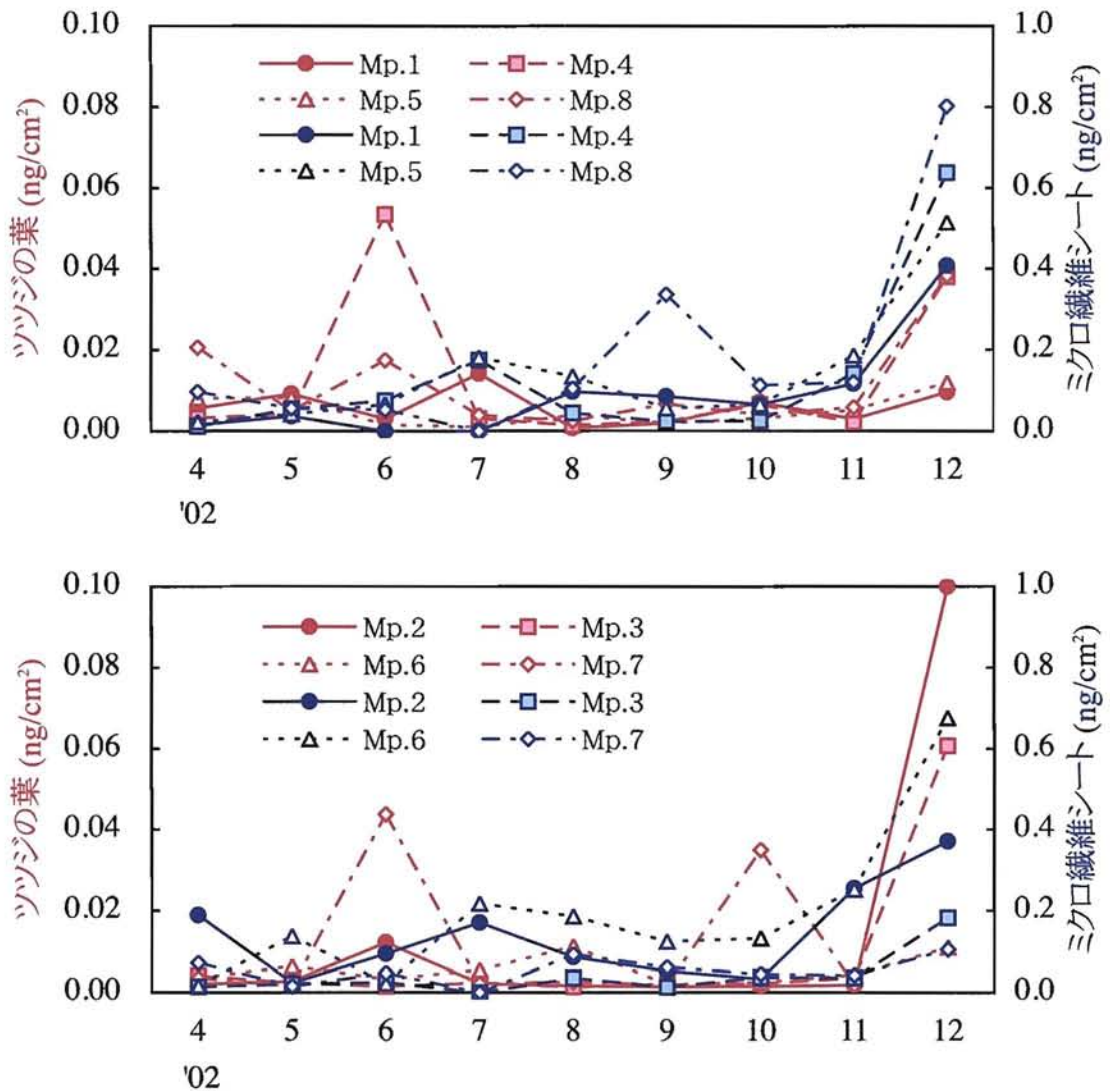


図 4.8 ツツジの葉およびマイクロ繊維シートによる各モニタリング地点の B(a)P 含有量の経月変化 (上：国道 4 号線沿い、下：高松－上田線沿い)

#### 4.3.4 影響因子の抽出

ツツジの葉およびマイクロ繊維シートの捕集粒子状物質量や B(a)P 含有量は、発生源である自動車走行に関する因子のみでは説明できないことが、多点モニタリングの結果から明らかである。ツツジの葉やマイクロ繊維シート捕集面に大気中粒子状物質を移動させる媒体となる風の影響、捕集面上の粒子状物質を流出させる降水の影響、B(a)P を分解させる日射の影響など様々な因子についての寄与度合いを評価するため、目的変数を粒子状物質量および B(a)P 含有量とし、説明変数を交通、気象、設置条件の各因子とした重回帰分析により影響因子の抽出を行った。説明変数の採択は、変数増減法 (F 値：0.01) で行った。

本研究のモニタリング方法がどの程度の期間の指標値として適切な評価が得ら

れるか定かではない。そのため、重回帰分析に用いる各説明変数データは、毎日のデータを用いればよいのか、それとも1ヶ月の算術平均値のデータを用いればよいのか決定することができない。そこで本分析では、第2、3章の結果を踏まえて、次に示す2通りのデータを用いて重回帰分析を行った。

① 各モニタリング期間の指標値を仮定したパターン

: ツツジの葉によるモニタリングではサンプリング前の3日間平均値、マイクロ繊維シートではモニタリング期間の7日間平均値を使用する。

② 各モニタリング月の指標値を仮定したパターン

: 両モニタリングともに1ヶ月間平均値を使用する。

**表4.2、表4.3**に全モニタリング地点におけるツツジの葉に吸着した粒子状物質質量の各パターンによる重回帰分析結果、**表4.4、表4.5**にマイクロ繊維シートに捕集された粒子状物質質量の各パターンによる重回帰分析結果を示す。両者ともに寄与度合いの大きい因子として『距離』が抽出された。それぞれの標準偏回帰係数は、ツツジの葉では“負”の値、マイクロ繊維シートでは“正”の値を示した。ツツジの葉が“負”の値を示した結果については、道路端から植栽地点まで

**表4.2** ツツジの葉の吸着粒子状物質質量の重回帰分析結果 (3日間平均)

説明変数名	偏回帰係数	標準 偏回帰係数	F値	有意差判定	偏相関	単相関
自動車総台数	5.34E-06	0.136	1.84		0.143	0.271
開角180° 風向	0.000140	0.199	4.40	*	0.217	0.168
降水量	0.00530	0.117	1.57		0.132	0.113
距離	-0.00312	-0.362	13.1	**	-0.358	-0.383
定数項	0.0286					

決定係数:  $R^2 = 0.222$

\*: 5% \*\* : 1%

重相関係数:  $R = 0.471$

**表4.3** ツツジの葉の吸着粒子状物質質量の重回帰分析結果 (1ヶ月間平均)

説明変数名	偏回帰係数	標準 偏回帰係数	F値	有意差判定	偏相関	単相関
大型車台数	4.36E-05	0.155	2.66		0.174	0.303
風速	0.00583	0.105	1.36		0.126	0.0595
開角90° 風向	-7.26E-05	-0.0453	0.199		-0.0483	-0.120
降水量	-0.00235	-0.482	32.8	**	-0.527	-0.473
距離	-0.00269	-0.312	8.85	**	-0.307	-0.393
定数項	0.0417					

決定係数:  $R^2 = 0.409$

\*: 5% \*\* : 1%

重相関係数:  $R = 0.640$

**表4.4** ミクロ繊維シートの捕集粒子状物質量の重回帰分析結果（7日間平均）

説明変数名	偏回帰係数	標準 偏回帰係数	F 値	有意差判定	偏相関	単相関
ディーゼル車台数	0.00127	0.249	6.84	*	0.304	0.0733
風速	0.0384	0.0603	0.360		0.0731	0.161
降水量	-0.00806	-0.114	1.30		-0.138	-0.125
距離	0.0506	0.658	47.5	**	0.644	0.599
定数項	0.0209					

決定係数： $R^2 = 0.436$

\*: 5% \*\*: 1%

重相関係数： $R = 0.660$

**表4.5** ミクロ繊維シートの捕集粒子状物質量の重回帰分析結果（1ヶ月間平均）

説明変数名	偏回帰係数	標準 偏回帰係数	F 値	有意差判定	偏相関	単相関
大型車台数	0.00122	0.407	15.5	**	0.434	0.110
ディーゼル車混入率	0.00900	0.0609	0.413		0.0783	0.235
降水量	-0.0111	-0.233	8.45	**	-0.335	-0.237
距離	0.0595	0.774	76.1	**	0.729	0.599
定数項	-0.0502					

決定係数： $R^2 = 0.578$

\*: 5% \*\*: 1%

重相関係数： $R = 0.760$

の距離が遠いほど捕集粒子状物質量が減少するため、発生源である自動車走行による影響が現れたものと考察される。ミクロ繊維シートが“正”でかつ高い値を示したことについては、道路端から設置場所までの距離が他の地点に比べて大きく異なる Mp.6（4.3.3 項参照）で測定された高い粒子状物質量の影響が考えられる。他の地点の道路端からの距離は 1.0～1.8m の間であるのに対して、Mp.6 は対象車線である高松－上田線の道路端から 8.7m 離れた場所に設置したことで、高松－上田線のみならず国道 4 号線からの影響も受けたと推察される。どこにでも設置可能な大気モニタリング材のミクロ繊維シートであるが、対象路線からの影響度合いを評価するためには、道路端からあまり距離を置かず、ある一定距離に設置地点を設けることが望ましいと推察される。

**表 4.6、表 4.7** に設置地点が大幅に異なる Mp.6 を除いた場合の重回帰分析結果を示す。『距離』の標準偏回帰係数が“負”の値を示した。対象路線からのみの影響として評価すると、ツツジの葉と同様にミクロ繊維シートにおいても距離が遠いほど捕集粒子状物質量が減少する傾向が示された。いずれのモニタリング期間の平均データにおいても『大型車台数』や『大型車混入率』の標準偏回帰係数が

**表4.6** Mp.6を削除したマイクロ繊維シートの捕集粒子状物質量の重回帰分析結果（7日間平均）

説明変数名	偏回帰係数	標準 偏回帰係数	F値	有意差判定	偏相関	単相関
大型車台数	0.0111	0.392	10.9	**	0.409	0.506
大型車混入率	0.0397	0.321	6.01	*	0.316	0.397
ディーゼル車混入率	0.0347	0.157	1.28		0.152	0.158
風速	0.0526	0.111	0.930		0.130	0.205
開角90° 風向	0.00152	0.158	1.63		0.171	0.0371
降水量	-0.00901	-0.166	2.08		-0.192	-0.163
全天日射量	-0.0108	-0.373	6.20	*	-0.321	-0.0408
距離	-0.112	-0.247	4.44	*	-0.276	-0.0661
定数項	0.114					

決定係数： $R^2 = 0.438$

\*: 5% \*\*: 1%

重相関係数： $R = 0.662$

**表4.7** Mp.6を削除したマイクロ繊維シートの捕集粒子状物質量の重回帰分析結果（1ヶ月間平均）

説明変数名	偏回帰係数	標準 偏回帰係数	F値	有意差判定	偏相関	単相関
大型車台数	0.0182	0.632	26.2	**	0.565	0.587
ディーゼル車混入率	-0.00437	-0.0365	0.0863		-0.0392	0.337
開角90° 風向	-0.000518	-0.0372	0.0881		-0.0396	-0.112
降水量	-0.0114	-0.311	9.89	**	-0.387	-0.298
全天日射量	0.000798	0.0262	0.0569		0.0318	-0.0284
距離	-0.0627	-0.138	1.35		-0.154	-0.0661
定数項	0.190					

決定係数： $R^2 = 0.464$

\*: 5% \*\*: 1%

重相関係数： $R = 0.681$

高い値を示し、大型車による因子の寄与が大きいことが確認された。

また、いずれのモニタリングともに『降水量』の因子が抽出され、それぞれのモニタリング期間の平均データで分析を行った標準偏回帰係数は、ツツジの葉（3日間平均）では“正”の値、マイクロ繊維シート（7日間平均）では“負”の値を示した。一方、1ヶ月間平均値で分析を行った標準偏回帰係数は、両者とも“負”の値を示した。7日間の設置期間中にまとまった降水量の確認されるマイクロ繊維シートでは、降雨により捕集粒子状物質が流出した結果と考察され、サンプリング前に連続して3日間はまとまった降水量がないツツジの葉では、捕集粒子状物質の流出がない結果と考察される。一方、1ヶ月間平均値を用いた場合は、モニ



タリング期間外に観測された多量の降水量データが加わるために両者とも“負”の値を示したものと考察される。いずれの重回帰分析結果から判断しても、捕集粒子状物質量にはまとまった降雨による流出が影響しているといえる。

分析精度の目安となる重相関係数は、1ヶ月間平均値を用いた場合のツツジの葉で0.640、マイクロ繊維シートでも0.681と良好な相関係数が得られたことから、ツツジの葉およびマイクロ繊維シートによる粒子状物質量のモニタリング結果は、各月の大気状況を把握するための指標値として有用であると考えられる。

**表4.8、表4.9**に全モニタリング地点におけるツツジの葉に吸着したB(a)P含有量の各パターンによる重回帰分析結果、**表4.10、表4.11**にMp.6を除いたマイクロ繊維シートに捕集されたB(a)P含有量の各パターンによる重回帰分析結果を示す。交通因子では『小型車台数』に比べ、『大型車台数』の標準偏回帰係数が高い値を示し、B(a)Pの発生源として大型車の寄与が大きいことを示唆する結果で

**表4.8** ツツジの葉の吸着B(a)P含有量の重回帰分析結果（3日間平均）

説明変数名	偏回帰係数	標準 偏回帰係数	F値	有意差判定	偏相関	単相関
大型車台数	2.30E-05	0.213	3.67		0.206	0.181
ディーゼル車混入率	-0.000557	-0.195	3.66		-0.205	-0.0919
風速	-0.00261	-0.153	1.70		-0.142	-0.118
開角90° 風向	0.000154	0.380	12.6	**	0.363	0.261
降水量	-0.00266	-0.148	2.18		-0.160	-0.177
全天日射量	-6.29E-05	-0.0614	0.302		-0.0602	-0.146
距離	-0.000573	-0.154	1.97		-0.152	-0.137
定数項	0.0105					

決定係数：R<sup>2</sup> = 0.230

\*: 5% \*\*: 1%

重相関係数：R = 0.480

**表4.9** ツツジの葉の吸着B(a)P含有量の重回帰分析結果（1ヶ月間平均）

説明変数名	偏回帰係数	標準 偏回帰係数	F値	有意差判定	偏相関	単相関
自動車総台数	2.23E-06	0.130	1.46		0.130	0.197
風速	0.00434	0.186	2.72		0.176	0.0627
降水量	-0.000493	-0.238	5.41	*	-0.245	-0.202
全天日射量	-0.000395	-0.272	5.61	*	-0.249	-0.164
距離	-0.000355	-0.0951	0.785		-0.0956	-0.137
定数項	0.00949					

決定係数：R<sup>2</sup> = 0.143

\*: 5% \*\*: 1%

重相関係数：R = 0.378

**表4.10** ミクロ繊維シートの捕集B(a)P含有量の重回帰分析結果（7日間平均）

説明変数名	偏回帰係数	標準 偏回帰係数	F値	有意差判定	偏相関	単相関
大型車台数	0.000595	0.211	3.54		0.260	0.164
大型車混入率	-0.0246	-0.169	1.86		-0.191	-0.279
ディーゼル車混入率	-0.0560	-0.218	2.30		-0.212	-0.529
風速	0.0912	0.164	2.12		0.204	0.139
開角90° 風向	-0.00226	-0.208	2.95		-0.238	-0.317
降水量	-0.0207	-0.337	9.09	**	-0.396	-0.250
全天日射量	-0.0107	-0.326	4.23	*	-0.282	-0.468
距離	-0.0249	-0.0474	0.176		-0.0599	-0.0974
定数項	0.486					

決定係数： $R^2 = 0.527$

\*: 5% \*\*: 1%

重相関係数： $R = 0.726$

**表4.11** ミクロ繊維シートの捕集B(a)P含有量の重回帰分析結果（1ヶ月間平均）

説明変数名	偏回帰係数	標準 偏回帰係数	F値	有意差判定	偏相関	単相関
大型車台数	0.000685	0.244	3.43		0.249	0.133
ディーゼル車混入率	-0.0229	-0.154	1.38		-0.161	-0.170
開角180° 風向	-0.00252	-0.228	3.78		-0.260	-0.365
降水量	-0.0107	-0.224	4.52	*	-0.283	-0.183
全天日射量	-0.0155	-0.443	14.1	**	-0.462	-0.555
定数項	0.594					

決定係数： $R^2 = 0.429$

\*: 5% \*\*: 1%

重相関係数： $R = 0.654$

あった。また、各モニタリング結果ともに『全天日射量』が抽出され、いずれの場合においても標準偏回帰係数が“負”の値を示し、特にミクロ繊維シートでは寄与度合いの大きい因子であった。『全天日射量』、言い換えると紫外線照射量が強いほど B(a)P の分解が進行することを示唆する結果と解釈される。さらに、『降水量』の標準偏回帰係数が、両者とも“負”の値を示す結果であった。B(a)P は粒子状物質に吸着した状態で存在しており、粒子状物質とともに降雨による流出が起こるとともに、降雨による B(a)P 分解の可能性を示唆する結果とも解釈される。

## 4.4 大気モニタリング法に影響を及ぼす因子の影響評価実験

### 4.4.1 降雨の影響についての検討

#### 4.4.1.1 実験方法

大気中汚染物質が降雨により地表や水中に降下し、地圏や水圏に環境影響を与えていることは既に報告されている<sup>13-16)</sup>。本研究で検討しているモニタリング材に関しても例外ではなく、4.3節の統計解析からも降雨による粒子状物質やB(a)Pの流失が示唆された。降雨には、霧雨や土砂降りと表現されるような様々な降り方がある。そこで、どのような降雨の状態がモニタリング材に捕集された粒子状物質量およびB(a)P含有量に影響を及ぼすか、自作の人工降雨装置を用いて検討した。降雨の状態を物理的に表現するものとして“降水量”や“降水強度”がある。降水量は、降り始めからの降雨の積算量を「mm」単位で表した量的な物理量であり、降水強度は、単位時間当たり降った瞬間的な降雨の量を「mm/h」単位で表した激しさの物理量である。

図 4.9 に人工降雨装置と実験の様子を示す。降水ノズルの開放度と降水高さ、

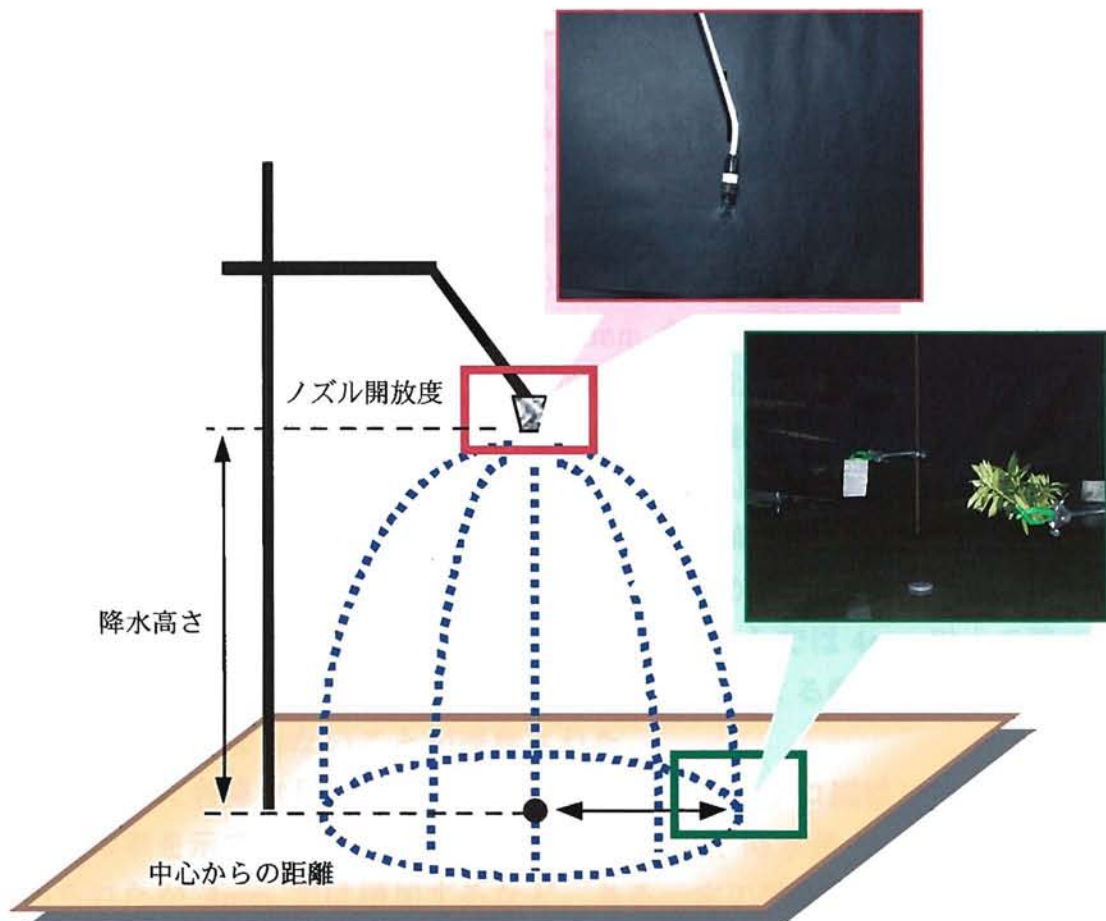


図4.9 人工降雨装置と実験の様子

モニタリング材の設置位置によって降水量および降雨強度を適宜調整して実験を行った。降水量の影響 (Run 1) は、1mm から第 2 章 2.5 節でまとめた降水量と定義された 6mm までの 1mm ごとで評価し、降雨強度の影響 (Run 2) は、降水量 6mm/day となるような 4 パターンで評価した。

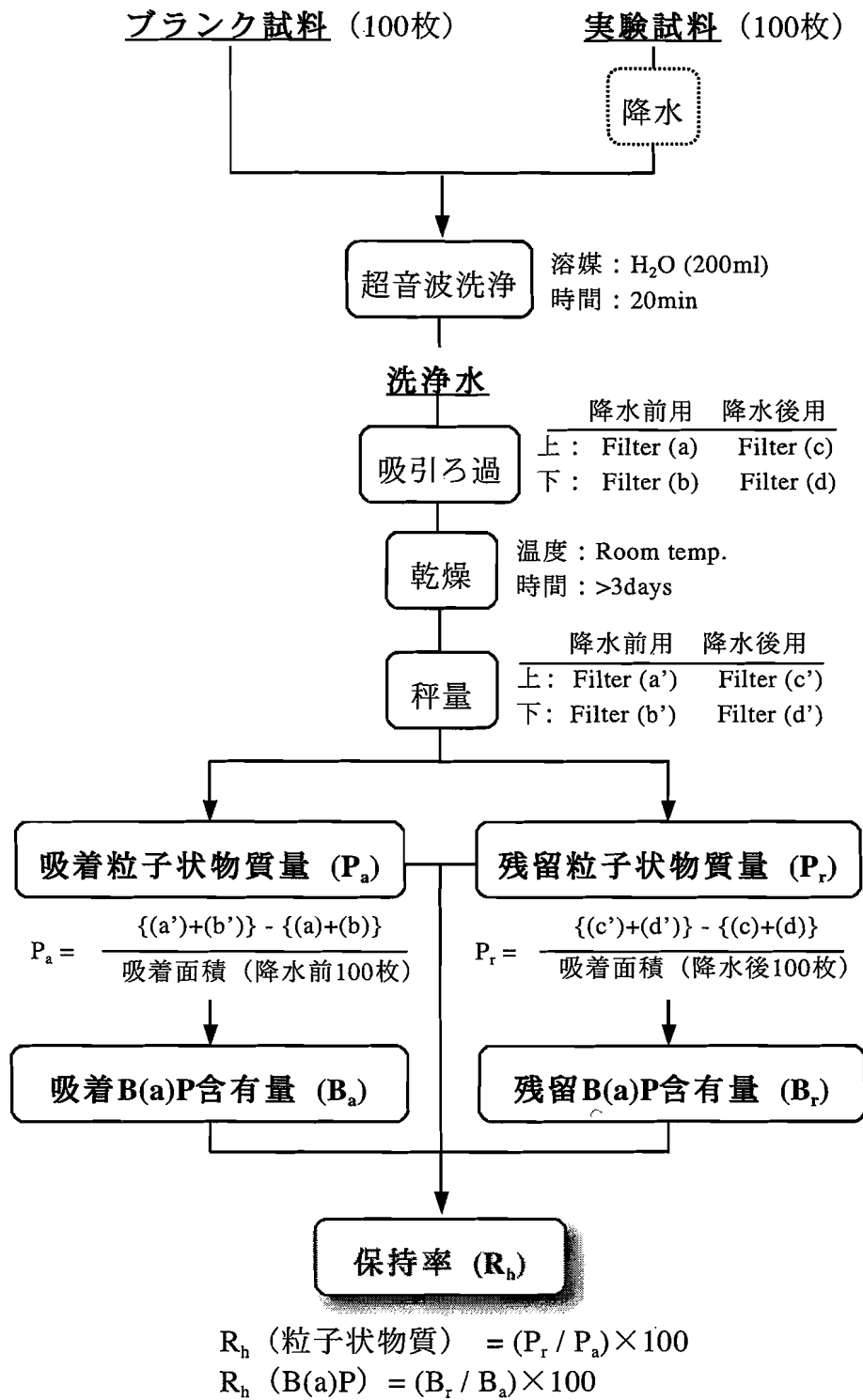
実験に用いたツツジの葉は、国道 46 号線沿いの岩手大学工学部敷地内に設置した鉢植えツツジから、実験用とブランク用の試料として葉の付いた小枝ごと採取した。マイクロ繊維シートは、平成 3 年式 2500cc ディーゼル自動車 (Mitsubishi Motors. co, エンジン型式: 4D56) の排気ガスを、排気筒の後方 30cm の位置で直接吹き付けた 200×140mm のマイクロ繊維シートを実験用とブランク用に 4 等分して試料とした。

図 4.10 にツツジの葉を用いた降水流失実験のフローチャート、図 4.11 にマイクロ繊維シートを用いた降水流失実験のフローチャートを示す。降水により流出する粒子状物質および B(a)P 量の定量は、直接的に秤量することができないため、降水前後での“保持率”という概念を用いて評価した。

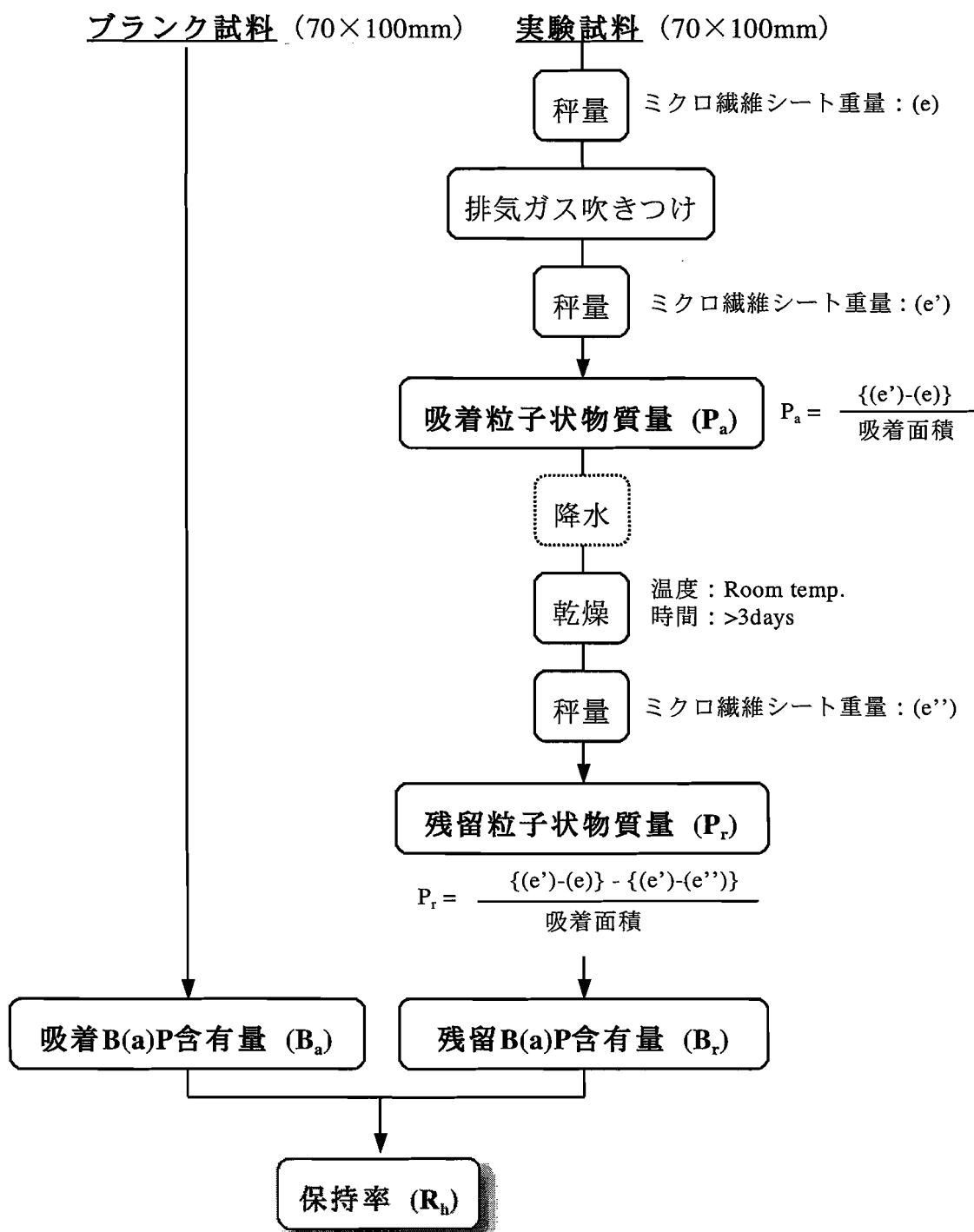
#### 4.4.1.2 結果および考察

図 4.12 に各降水量におけるツツジの葉およびマイクロ繊維シートの吸着粒子状物質質量の保持率を示す。保持率は、降水後の単位面積当たりの吸着粒子状物質質量を、降水前の単位面積当たりの吸着粒子状物質質量 (ブランク試料) で除した値で定義した。すなわち、保持率が 100% 以下であれば降水後の物質質量が減少し、ツツジの葉から粒子状物質が流失したことを意味する。ツツジの葉の吸着粒子状物質質量においては、降水量 4mm までは保持率が 100% 以上であり、測定誤差を考慮しても降水による流失はほとんど認められない結果であった。一方、マイクロ繊維シートの吸着粒子状物質質量は、降水量 1mm からわずかながら保持率の減少が確認され、4mm 以上では保持率がマイナス、つまりは吸着粒子状物質質量以上の減少が確認された。これは、第 3 章 3.3 節の降雨よけ設置の実験結果と同様に、シート素材に塗布されている流動パラフィンの流失によるものと考えられる。ミカンや茶の塩害防止対策に関する過去の報告<sup>17)</sup>では、葉に付着した海塩粒子の除去には 4mm/h 以上の水量を散水することで洗浄効果が得られるとの報告がなされており、ツツジの葉では 5mm 以上、マイクロ繊維シートでは 4mm 以上の降雨があった場合は、いずれのモニタリングにおいても降雨による吸着粒子状物質の流失を考慮しなければならないことが推察された。

図 4.13 に各降水量におけるツツジの葉およびマイクロ繊維シートの B(a)P 含有量の保持率を示す。ツツジの葉の B(a)P 含有量は、降水量 2mm で保持率の減少が認められたが 4mm では増加するなど、ある一定の降水量以上から流失し始めるといった傾向は示さなかった。また、マイクロ繊維シートでもツツジの葉と同様に、ある一定の降水量以上で流失される傾向は認められず、降水量 4mm では保



**図4.10** ツツジの葉を用いた降水流失実験のフローチャート



$$R_h (\text{粒子状物質}) = (P_r / P_a) \times 100$$

$$R_h (B(a)P) = (B_r / B_a) \times 100$$

図4.11 ミクロ繊維シートを用いた降水流失実験のフローチャート

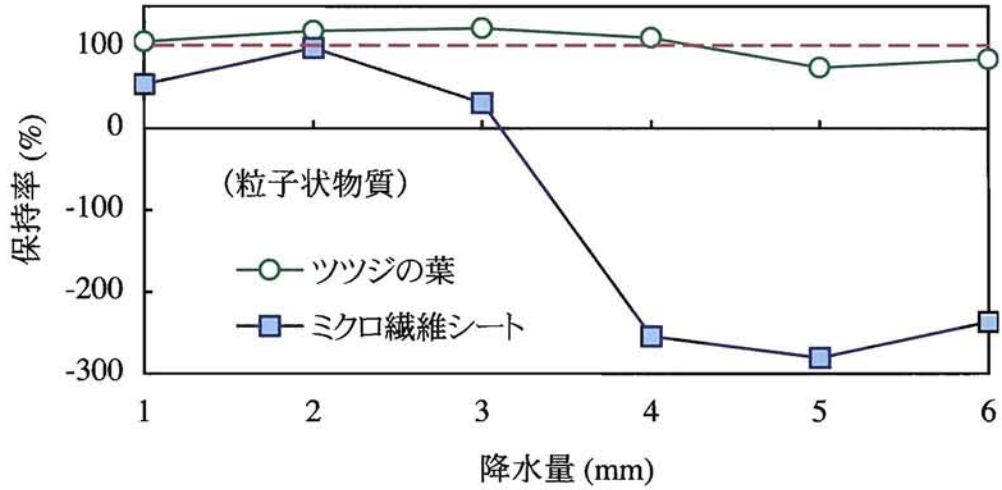


図 4.12 降水量変化による吸着粒子状物質量の保持率

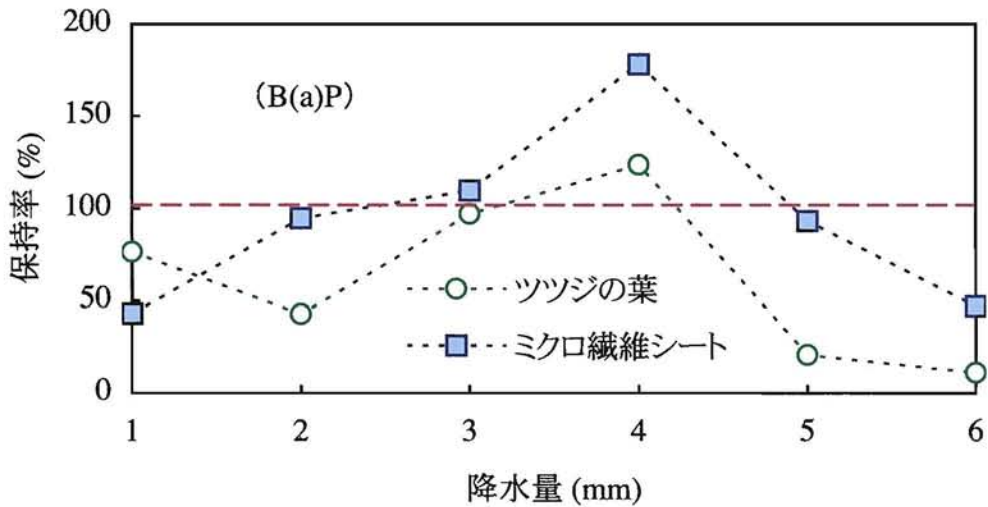


図 4.13 降水量変化による B(a)P 含有量の保持率

保持率が大幅に増加する結果となった。吸着粒子状物質量と B(a)P 含有量の降水による流失状態が異なる原因の 1 つに、流失される粒子の粒径が関与しているものと考えられる。流失した粒子の粒径分布は未確認であるが、マイクロ繊維シートの特性上、粒径の大きい粒子ほど降水により流失し易いと考えられ、粒径の細かい粒子に吸着している B(a)P はマイクロ繊維シートに保持された状態となり、粒子状物質の流失に比べて B(a)P の流失が少なかったことによる見掛け上の保持率の増加に現れたものと推察される。

図 4.14 に各降水強度におけるツツジの葉およびマイクロ繊維シートの吸着粒子状物質量の保持率を示す。ツツジの葉においては、降水強度 6mm/h で保持率が 100%以下となり、降水強度 1、2、3mm/h では降水による流失を受けない結果であ

った。マイクロ繊維シートでは、いずれの降水強度でも保持率がマイナスとなり、吸着粒子状物質を上回る流失が確認された。降水量 6mm ではどのような強さの降雨であっても粒子の流失が確認される結果であった。本実験条件で最も強い降水強度 6mm/h では明確な流失粒子の増大が確認された。同量の雨量であれば、継続的な弱い降雨よりも瞬間的な激しい降雨の方が、いずれのモニタリング材においても吸着した粒子状物質を流失させる能力が高く、モニタリング結果に大きな影響を及ぼすものと推察される。

図 4.15 に各降水強度におけるツツジの葉およびマイクロ繊維シートの B(a)P 含有量の保持率を示す。ツツジの葉では、全ての降水強度で粒子の流失が確認され、6mm/h ではほとんどの B(a)P が流失する結果となった。マイクロ繊維シートでは、

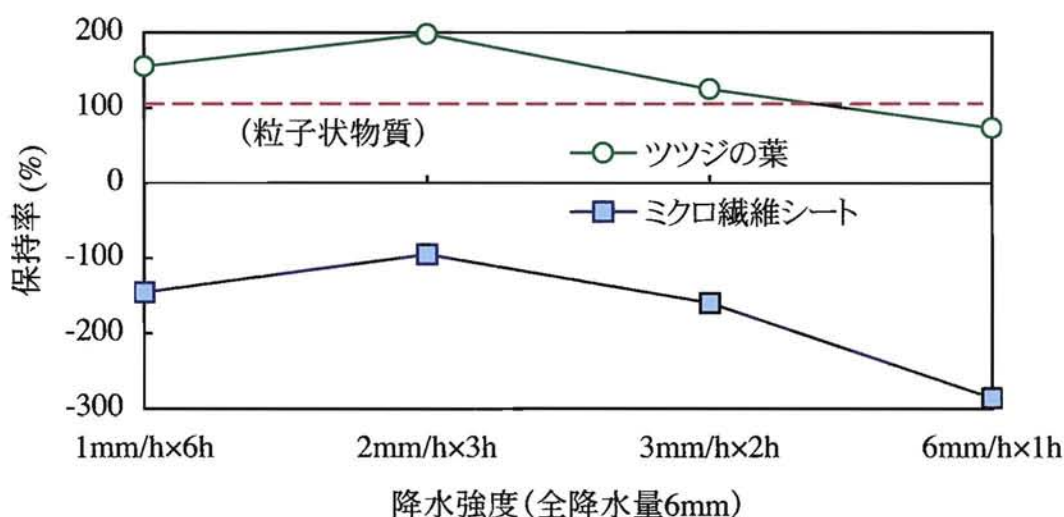


図 4.14 降水強度変化による吸着粒子状物質量の保持率

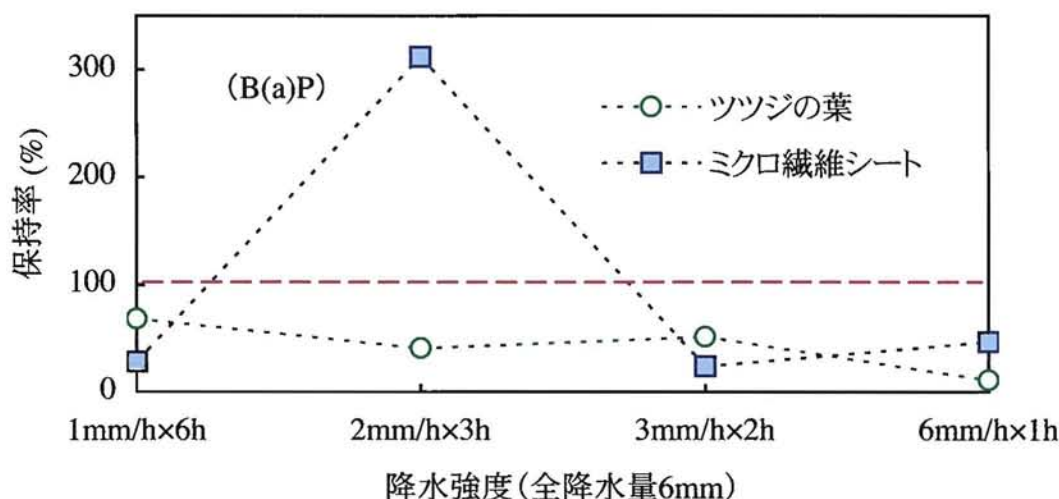


図 4.15 降水強度変化による B(a)P 含有量の保持率



2mm/h で保持率が 100%を上回ったが、その他の降水強度では、大きな B(a)P 含有量の低下が確認された。いずれのモニタリング材においても、6mm の降水量で B(a)P 含有量が低下することは確認されたが、降水強度の違いによる B(a)P 含有量の変化傾向は確認されなかった。また、Run 1 の結果と同様に、粒子状物質量と B(a)P 含有量の流失状態が異なる結果であった。

#### 4.4.2 日射の影響についての検討

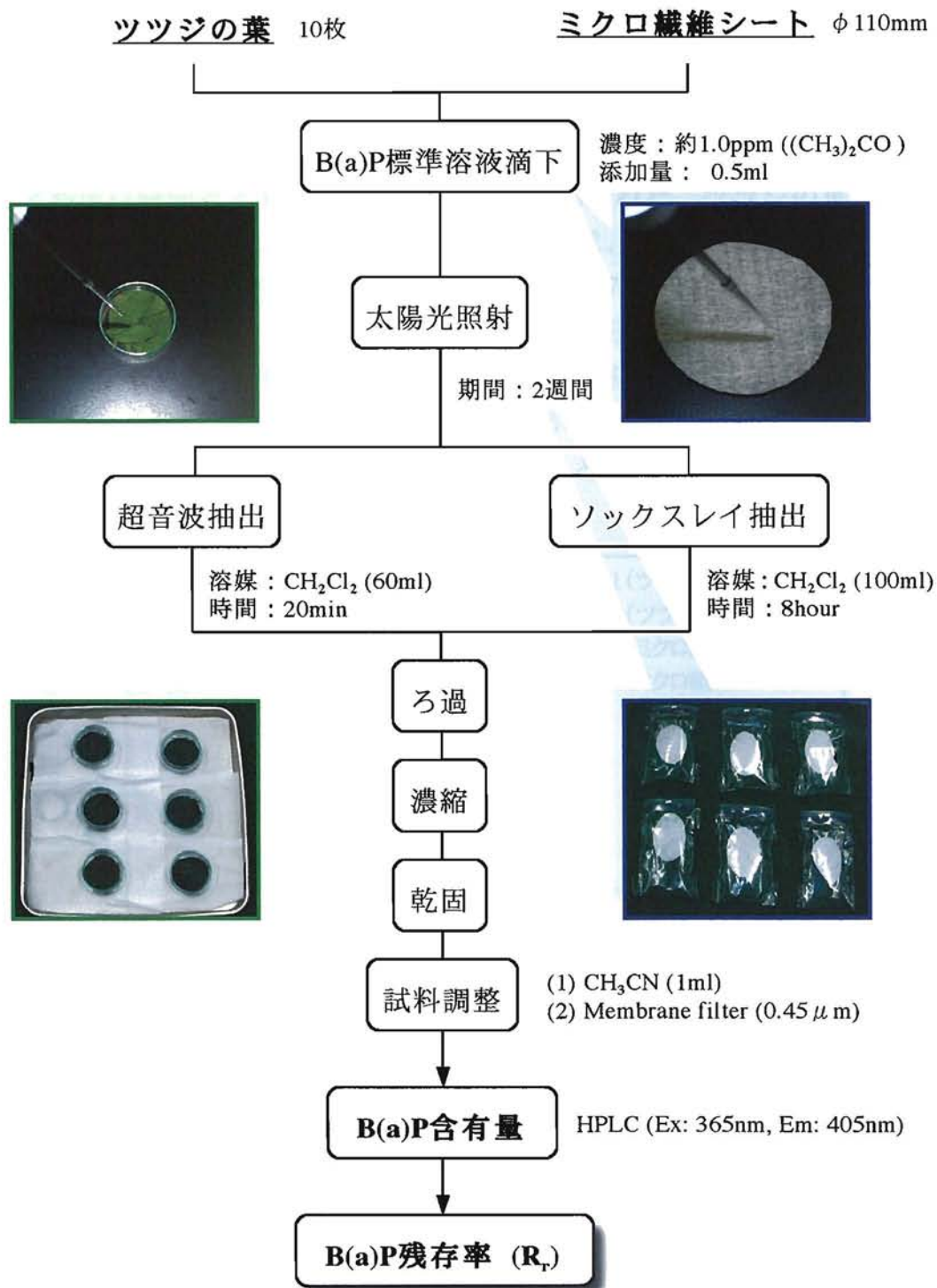
##### 4.4.2.1 実験方法

ツツジの葉およびマイクロ繊維シートに捕集される B(a)P 含有量には『全天日射量』の因子が大きく影響することが 4.3 節の統計解析から明らかとなった。O<sub>3</sub> や NO<sub>2</sub> などの光学活性ガス雰囲気下ではあるが、吸着媒体上における PAH 分解反応例<sup>18, 19)</sup>が報告されていることを考慮すると、B(a)P 含有量と『全天日射量』の偏回帰係数が“負”の値を示したことは、B(a)P の化学的性質の 1 つである光分解反応がモニタリング材表面で起こることを示唆する結果と推察される。そこで、B(a)P 含有量に影響を及ぼす光エネルギー、すなわち太陽光強度と光照射時間の影響程度について、各モニタリング材の B(a)P 含有量の減少傾向を追跡することで検討した。実験に用いたツツジの葉は、岩手大学工学部実験棟で生育した鉢植えツツジから採取した。また、マイクロ繊維シートは、3 章および 4.2 節の多点モニタリングで使用したものと同形のもので実験を行った。

実験試料は、アセトン (Kanto Chemical Co., Best Grade) を溶媒とした既知濃度 (約 1ppm) の B(a)P (Wako Pure Chemical Industries Ltd.) 標準溶液を作製し、10 枚のツツジの葉および円形のマイクロ繊維シートに B(a)P 標準溶液 0.5ml を均一に滴下した。溶媒が完全に蒸発するまで自然乾燥させ、ツツジの葉は透明なシャーレ内に隙間ができないように敷きつめて蓋をし、マイクロ繊維シートはチャック付ポリエチレン袋の中に封入した後に野外設置による太陽光照射を行った。

**図 4.16** に各モニタリング材を用いた太陽光照射実験のフローチャートを示す。

実験は、2003 年 10 月 5~18 日、10 月 25 日~11 月 7 日までの 2 週間ごとに 2 回 (Run 1, Run 2)、日の出から日の入りの時間帯に太陽光照射の妨げのない住宅の屋上で行った。実験試料は、1 回の実験期間につき 6~8 試料用意し、任意の照射時間ごとに 1 試料ずつ回収した。回収試料は、2.2.2 項および 3.2.2 項に記述した操作により B(a)P 濃度測定を行った。なお、太陽光未照射のブランク試料から B(a)P 回収率の確認を行い、その濃度を基準として各試料の B(a)P 濃度を比較検討した。



$$R_r = (\text{回収試料} / \text{ブランク試料}) \times 100$$

図4.16 各モニタリング材を用いた太陽光照射実験のフローチャート

#### 4.4.2.2 結果および考察

図 4.17 にツツジの葉およびマイクロ繊維シートの B(a)P 残存率の経時変化を示す。B(a)P 残存率は、太陽光未照射のブランク試料 B(a)P 濃度に対する、太陽光照射後の回収試料 B(a)P 濃度の比率で表している。それぞれの実験期間中での太陽光照射強度が異なるため、太陽光照射強度と B(a)P 減少率の関係を定量的に評価することは困難であるが、いずれのモニタリング材、いずれの実験期間においても、B(a)P 濃度は時間とともに減少することが確認された。ツツジの葉では、1 日で 50~80%の分解率を示し、マイクロ繊維シートでは、2 回の実験ともに 79%の分解率であった。マイクロ繊維シートの捕集期間である 7 日間では、ツツジの葉で 84~87%、マイクロ繊維シートで 97~99%とほとんどが分解する結果であった。この結果は、もし仮に単体の B(a)P がモニタリング初期段階に吸着されたとしたら、モニタリング材の回収時（ツツジの葉では降雨から 3 日目、マイクロ繊維シートでは 7 日目）では、そのほとんどが分解していることを意味する結果である。

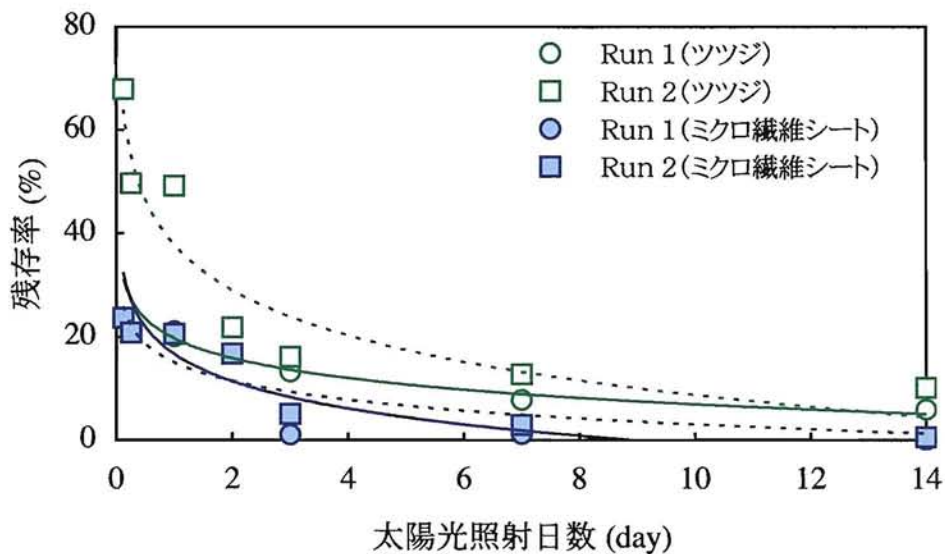


図 4.17 ツツジの葉およびマイクロ繊維シートの B(a)P 残存率の経時変化

モニタリング材の設置期間が長くなるほど太陽光照射量や照射時間は増加していくため、確実に B(a)P 光分解反応は進行する。しかしながら、ツツジの葉の実験結果から確認されたとおり、同じ設置期間でも太陽光照射強度や照射時間の違いによって B(a)P 分解能に差が生じるのは自明なことである。そこで、B(a)P の太陽光分解率を比較検討するため、設置期間中の積算全天日射量および積算日照時間を時間軸とした評価を行った。全天日射量と日照時間データは、気象月報<sup>20)</sup>により確認した。積算全天日射量は、4.3.2 項で記述した 1 時間当たりの太陽光照射の熱量を時間別に積算した値であり、積算日照時間は、1m<sup>2</sup> 当たりの直達日射が 120W 以上の時間を積算した値として定義した。

図 4.18 に積算全天日射量を時間軸とした各モニタリングの B(a)P 残存率変化、  
 図 4.19 に積算日照時間を時間軸とした各モニタリングの B(a)P 残存率変化を示す。

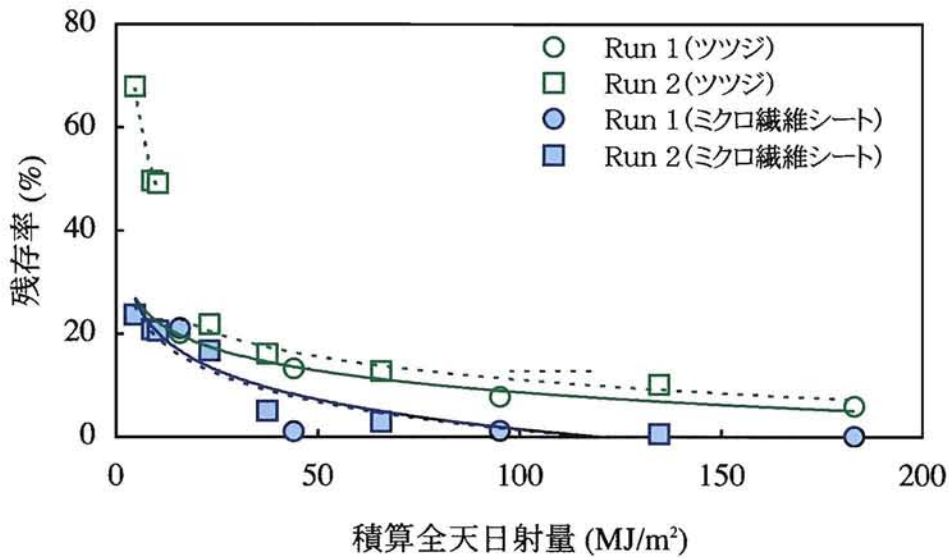


図 4.18 積算全天日射量を時間軸とした各モニタリングの B(a)P 残存率の経時変化

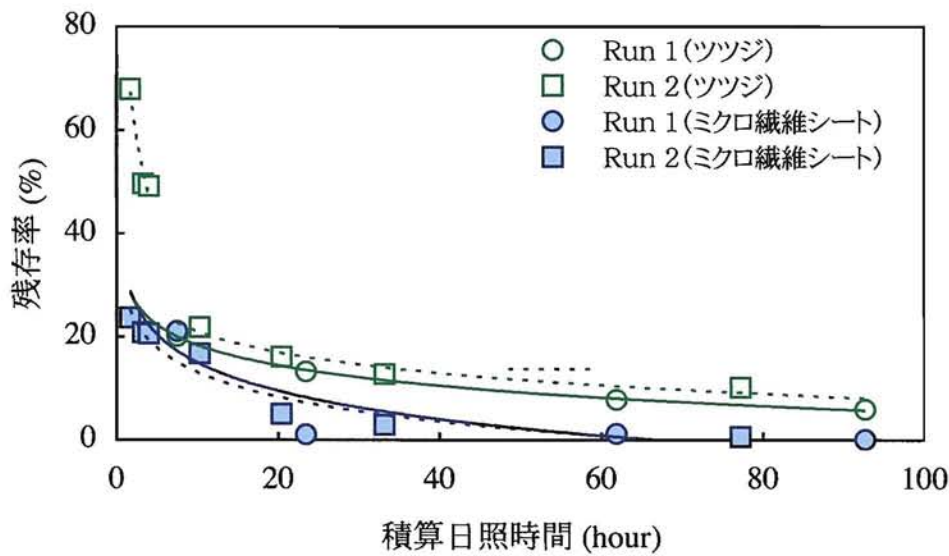


図 4.19 積算日照時間を時間軸とした各モニタリングの B(a)P 残存率の経時変化

ツツジの葉表面の B(a)P 残存率は、いずれの実験ともにそれぞれの時間軸において減少する傾向は認められたが、実験開始直後とそれ以降では明らかに異なった減少傾向を示した。実験開始時のツツジの葉の湿潤状態は、みずみずしい緑色を呈していたが、積算日照時間約 10 時間、積算全天日射量約 15MJ/m² を越えた

当たりから葉の色や乾燥状態に変化が見られ、B(a)P 残存率の推移に影響したものと考えられる。このことから、ツツジの葉表面での B(a)P 光分解反応は、全天日射量や日照時間といった太陽光照射条件以外に、植物そのものの生育状態にも影響されることが示唆された。

一方、マイクロ繊維シートの B(a)P 残存率は、いずれの実験ともにそれぞれの時間軸において対数関数的な類似の減少パターンが確認された。マイクロ繊維シート表面での B(a)P 光分解については、モニタリング材そのものの質が変化しないため、“積算全天日射量”や“積算日照時間”のような太陽光照射に関する因子を時間軸に定義したことで、B(a)P 残存率に差異がなくなったものと推察される。この結果は、B(a)P の光分解反応が太陽光照射条件に依存している結果と捉えることができるため、『全天日射量』や『日照時間』を確認することで B(a)P 光分解率の推測が可能となることを意味する。すなわち、マイクロ繊維シートを用いた実際の大气モニタリングにおいて、測定結果に B(a)P 光分解率の補正を加えることにより、モニタリング期間中に大气中に存在する B(a)P 量の把握が可能となり、年間を通した大气中 B(a)P 濃度の変遷を評価するうえで信頼性の向上に繋がるものと考えられる。

## 4.5 結言

本章では、ツツジの葉およびマイクロ繊維シートによる大気モニタリング結果を比較して、その整合度合いを検討した。さらには両者のモニタリング法に影響を及ぼす因子を抽出して、統計学のおよび実験的な見知からモニタリング結果への影響因子の程度を考察した。本章で得られた結果をまとめると以下のとおりである。

- (1) 同地点におけるツツジの葉およびマイクロ繊維シートによる多点モニタリングを行った結果、マイクロ繊維シートによる粒子状物質質量および B(a)P 含有量はともに、ツツジの葉に吸着したそれらの約 10 倍の値を示す結果であった。
- (2) ツツジの葉およびマイクロ繊維シートに捕集された粒子状物質質量当たりの B(a)P 含有量は、両者とも同程度の値であり、粒子状物質質量当たりの B(a)P 含有量は、自動車交通による同一発生源からの影響を反映していることが明らかとなった。
- (3) ツツジの葉およびマイクロ繊維シートによる捕集粒子状物質質量の重回帰分析を行った結果、『大型車』および『距離』の寄与が大きいことが確認された。また、まとまった降雨により捕集粒子が流出する可能性が示唆された。
- (4) ツツジの葉およびマイクロ繊維シートによる B(a)P 含有量の重回帰分析を行った結果、『大型車』および『全天日射量』の寄与が大きいことが確認された。また、捕集 B(a)P が粒子状物質とともに降雨により流出する可能性が示唆された。
- (5) ツツジの葉では 5mm 以上、マイクロ繊維シートでは 4mm 以上の降水量があった場合は、流失した粒子状物質質量を考慮してモニタリング結果を評価しなければならないことが推察された。
- (6) 同量の降水量であれば、瞬間的な激しい降水ほど吸着粒子状物質を流失させる能力が高いと推察された。
- (7) 6mm の降水量で B(a)P 含有量が低下することは確認されたが、降水強度の違いによる B(a)P 含有量に変化傾向は確認されなかった。
- (8) B(a)P 標準溶液を用いた太陽光照射実験の結果、7 日間の照射で、ツツジの葉では 84~87%、マイクロ繊維シートでは 97~99% の B(a)P が分解する結果が得られた。
- (9) マイクロ繊維シート表面での B(a)P 光分解は、“積算全天日射量”や“積算日照時間”のような太陽光照射に関する因子を時間軸に定義することで、モニタリング期間に関係なく一様の B(a)P 分解率を示すことが明らかとなった。

## 参考文献

- 1) H. L. Falk, I. Markul, P. Kotin and A. Miller: Aromatic Hydrocarbons IV. Their Fate Following Emission into the Atmosphere and Experimental Exposure to Washed Air and Synthetic Smog, *A.M.A. Arch. Ind. Health.*, **13**, 13-17 (1956)
- 2) Y. Matsuda and M. Kuratsune: Photochemical Oxidation of Benzo[a]pyrene, *Air & Wat. Pollut. Int. J.*, **10**, 805-811 (1966)
- 3) B. D. Tebbens, J. F. Thomas and M. Mukai: Fate of Arenes Incorporated with Airborne Soot, *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, **27**, 415-422 (1966)
- 4) J. F. Thomas, M. Mukai and B. D. Tebbens: Fate of Airborne Benzo[a]pyrene, *Environ. Sci. Tech.*, **2**, 33-39 (1968)
- 5) J. Suzuki, H. Okazaki, Y. Nishi and S. Suzuki: Formation of Mutagens by Photolysis of Aromatic Compounds in Aqueous Nitrate Solution, *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, **29**, 511-516 (1982)
- 6) J. Suzuki, T. Hagino, T. Ueki, Y. Nishi and S. Suzuki: Formation of Mutagen by Photolysis of Aromatic Compounds in Water Containing Nitrite Ion, *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, **31**, 79-84 (1983)
- 7) J. Suzuki, T. Hagino and S. Suzuki: Formation of 1-Nitropyrene by Photolysis of Pyrene in Water Containing Nitrite Ion, *Chemosphere.*, **16(4)**, 859-867 (1987)
- 8) D. A. Bell and R. M. Kamens: Photodegradation of Wood Smoke Mutagens under Low  $\text{NO}_x$  Conditions, *Atmospheric Environ.*, **20(2)**, 317-321 (1986)
- 9) R. M. Kamens, J. N. Fulcher and Z. Guo: Effects of Temperature on Wood Soot PAH Decay in Atmospheres with Sunlight and Low  $\text{NO}_x$ , *Atmospheric Environ.*, **20(8)**, 1579-1587 (1986)
- 10) M. Saito and N. Otsuka: Study on Simple Monitoring Method for Atmospheric Environment by Using Leaves of Roadside Trees, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, **38(1)**, 26-34 (2003)
- 11) 齊藤 貢・大塚尚寛：ミクロ繊維シートを用いた多点での簡易大気モニタリング法, *大気環境学会誌*, **38(3)**, 162-171 (2003)
- 12) 気象庁月報 CD-ROM (2002年4月～12月), (財)気象業務支援センター
- 13) 藤田慎一・寺田信之・千秋鋭夫：降雨による大気汚染物質の洗浄作用(I)―前線性降雨に伴う雨水組成の変動について―, *大気汚染学会誌*, **15(9)**, 359-366 (1980)
- 14) 藤田慎一・千秋鋭夫：降雨による大気汚染物質の洗浄作用(II)―都市地域における粒子状物質の洗浄モデル―, *大気汚染学会誌*, **15(9)**, 367-373 (1980)
- 15) P. C. M. van Noot and E. Wondergem: Scavenging of Airborne Polycyclic Aromatic

Hydrocarbons by Rain, *Environ. Sci. Technol.*, **19**, 1044-1048 (1985)

- 16) 浅田素之・大垣眞一郎：都市域における降雨初期雨水排水中のベンゾ(a)ピレンの挙動, *水環境学会誌*, **19(11)**, 904-909 (1996)
- 17) 竹中 肇：散水による茶樹の塩害防止について, *畑地かんがい施設の多目的利用と自動化に関する研究集録*; 畑地農業振興会, 10-13 (1973)
- 18) A. Alebic-Juretic, T. Cvitas, and L. Klasinc: Heterogeneous Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Degradation with Ozone on Silica Gel Carrier, *Environ. Sci. Technol.*, **24**, 62-66 (1990)
- 19) Z. Fan, R. M. Kamens, J. Zhang and J. Hu: Ozone-Nitrogen Dioxide-NPAH Heterogeneous Soot Particle Reactions and Modeling NPAH in the Atmosphere, *Environ. Sci. Technol.*, **30**, 2821-2827 (1996)
- 20) 気象庁月報 CD-ROM (2003 年 10~11 月), (財) 気象業務支援センター