

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 16 日現在

機関番号：23401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2016

課題番号：26870241

研究課題名(和文)生物指標を用いた越境大気汚染モニタリングシステムの開発

研究課題名(英文)Use of bioindicators to evaluate transboundary pollution

研究代表者

大石 善隆(Oishi, Yoshitaka)

福井県立大学・学術教養センター・講師

研究者番号：80578138

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：多環芳香族炭化水素(PAHs)による越境大気汚染の影響を検討するため、本州中部の沿岸部から高山帯を含む14か所の地点で、マツ葉・コケ植物を採取し、植物内のPAHsの分析を行った。この結果に基づいて、PAHsによる越境大気汚染の影響を評価するとともに、生物指標を利用したモニタリング手法について検討した。その結果、(1)日本海沿岸部と高山帯において、東アジアに由来するPAHsの強い影響がみられること、(2)この越境大気汚染の指標としてコケ植物が適していること、(3)その一方、マツ葉は国内由来のPAHsを評価する際に有用であること、が明らかになった。

研究成果の概要(英文)：Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) are widespread environmental pollutants that have become a serious global problem due to their toxicity and long-range transportation. In this study, the characteristics of PAH pollution was investigated using pine needles and mosses as bioindicators. In addition, the effective use of these bioindicators was examined. The study sites were alpine regions and their surrounding urban areas across central Japan. The results of this study revealed that (1) a stronger influence of transboundary PAH pollution from other East Asian countries on the northern coastal cities and alpine regions, (2) mosses can be good indicators for the assessment of transboundary PAH pollution, and (3) in contrast to mosses, pine needles strongly reflected the influence of domestic PAH pollution. These results demonstrate that pine needles and mosses can function as bioindicators and facilitate the assessment of PAH pollution from a different perspective.

研究分野：環境影響評価

キーワード：生物指標 越境大気汚染 高山帯 コケ植物 マツ類 多環芳香族炭化水素

1. 研究開始当初の背景

人間活動の規模の拡大に伴い、国境を越えたグローバルな環境汚染が深刻になりつつある。特に近年は大陸からの微小粒子状物質 (PM2.5) による越境大気汚染がクローズアップされ、人々の注目が高まっている。

PM2.5 には様々な汚染物質が含まれるが、中でもベンゼン環をもつことを特徴とする多環芳香族炭化水素 (PAHs) には、強い発がん性や環境ホルモン作用があり、その動態が注視されている。PAHs は化石燃料や木材等の燃焼によって発生し、100 種類以上の化合物が含まれている。興味深いことに、発生源ごとに PAHs の組成が異なるため、PAHs の異性体比を分析することで、発生源をたどることが可能である。

越境大気汚染の影響の評価には、国内の大都市からも離れ、その影響が小さい山岳地帯が適している。しかし、厳しい山岳環境下に大気汚染計測機器を設置することは容易ではなく、計測データは限られている。

こうした厳しい条件下にある地域の環境を評価するために、広く利用されているのが生物指標である。生物指標とは、生物の環境条件に対する反応や、生物内に蓄積された物質を分析して、環境を評価する方法で、物理的観測が難しい地域の環境を評価することができる。なお、ここで使われる生物は「指標生物」と呼ばれる。

既存の研究からマツ葉・コケ植物は PAHs を効率的に吸収することが明らかになっている。そこで、これらの生物の PAHs 吸収特性を明らかにし、指標生物として利用することで、越境大気汚染 (PAHs) の影響を評価できると期待される。

2. 研究の目的

以上の背景から、本研究では以下の4項目を検討し、PAHs による大気汚染の評価に優れた指標生物を用いることで、低コストで広範囲に応用可能な越境大気汚染モニタリングシステムを提案することを目指す。

- (a) 指標生物の PAHs の吸収特性の把握
- (b) PAHs による越境大気汚染の評価に適した生物の検討
- (c) 越境大気汚染の実態評価
- (d) 生物指標を用いた越境大気汚染モニタリングシステムの提案

3. 研究の方法

(1) 調査地

調査地は、都市部から離れ、越境大気汚染の影響が反映されやすいと予想された本州中部の高山帯6地点と、国内に由来する汚染の影響が強いと考えられた隣接する8都市 (人口10万人以上) とした (図1)。本研究では、北アルプスに2地点 (白馬岳・唐松岳)、中央アルプスに1地点 (木曾駒ヶ岳)、南アルプスに2地点 (間ノ岳、奥聖岳) に調査地を設置した。都市域では日本海沿岸部 (金沢、

富山) 山麓都市 (北部; 長野、中部; 松本・佐久、南部; 甲府・飯田) ならびに太平洋沿岸部 (浜松) に調査地を設置した。

次に各調査地において、生物指標として広く使用され、かつ都市部から高山帯にわたって分布するマツ葉・コケ植物を採取し、各植物内の PAHs を分析した。しかし、調査地間の環境が大きく異なるため、全調査地を通して同一種のマツ葉・コケ植物を採取することができなかった。そのため、マツ葉サンプルについては、高山帯ではハイマツ、都市部ではアカマツを、コケについては、高山帯ではシモフリゴケ、都市部ではエゾスナゴケを採取した。

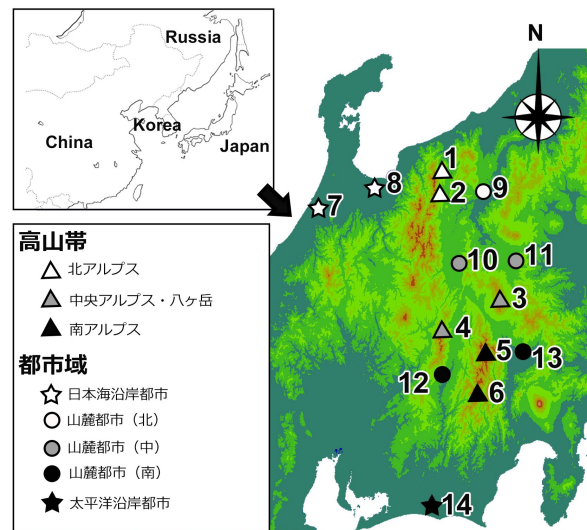


図1 調査地 (1-14) の位置
調査地は中部山岳地域の高山帯 (6 地点) とその周辺の山麓都市 (5 地点)、沿岸部の都市 (3 地点)

(2) 分析・解析

PAHs 分析には、マツ葉・コケとも伸長開始から2年目のもの (葉・シュート) を用いた。本研究では HR GC/MS によって植物内に含まれる以下の16種類のPAHsを分析した (ナフタレン、アセナフチレン、アセナフテン、9H-フルオレン、アントラセン、フェナントレン、ピレン、フルオランテン、ベンズ [a] アントラセン、クリセン、ベンゾ [b] フルオランテン、ベンゾ [k] フルオランテン、ベンズ [a] ピレン、ベンゾ [g, h, i] ペリレン、インデノ [1,2,3-cd] ピレン、ジベンゾ [a, h] アントラセン)。

次に各植物に含まれる PAHs の特性と調査地の環境条件との関係を検討した。本研究で用いた PAHs 特性は、(1) PAHs 濃度、(2) LMW・MMW・HMW PAHs の組成比 (LMW PAHs: 2-3 個のベンゼン環をもつ PAHs、MMW PAHs: 4 個のベンゼン環をもつ PAHs、HMW PAHs: 5-6 個のベンゼン環をもつ高 PAHs)、(3) PAHs 異性体比である。異性体比については、フルオランテン (FLR)、ピレン (PYR)、アントラセン (ANT)、フェナントレン (PHE)、クリセン

(CHR)、ベンズ[a]アントラセン(BaA)の異性体を利用し、FLR/(FLA + PYR)、ANT/(ANT + PHE)、およびCHR/(CHR + BaA)を算出した。さらに、山岳地域(高山帯・山麓都市)のPAHs汚染の特徴を検討するため、植物内のLMW・MMW・HMW PAHsの濃度と標高との関係について、Pearsonの相関係数も算出した。

4. 研究成果

(1) 生物種のPAHsの吸収特性の把握

まず、調査地におけるPAHs汚染の実態を把握するため、各植物内のPAHsを分析した。この結果を図2、図3に示す。PAHsの組成比については表1に示した。

この結果から、マツ葉・コケともに高山帯と比べて都市域では有意に高い濃度でPAHsが蓄積されていることが明らかになった(マツ葉; $t = 3.25, df = 12, p < 0.01$, コケ; $t = 2.70, df = 12, p = 0.019$)。これは都市域のマツ葉やコケは周囲から排出されるPAHsの影響を強く受けているためであると考えられる。さらに、山麓都市と高山帯のPAHsを比較したところ、マツ葉では山麓都市で有意に高い値が得られたが($t = 3.04, df = 9, p = 0.01$)、コケでは有意な差がみられなかった($t = 2.21, df = 9, p = 0.054$)。この理由については4.(3)にて検討する。

次に、PAHsの組成に着目すると、コケと異なり、マツ葉はHMW PAHsをほとんど蓄積していないことが示唆された(図2・表1)。これは、分子量の大きな粒子状のPAHsはマツ葉の表面を覆うクチクラ(ワックス)に強く付着して容易に通過できず、植物内に吸収されにくいからだと考えられる。しかし、分子量の小さなガス状のLMW PAHsは、クチクラから取り込まれやすく、また気孔からも吸収されやすい。その結果、マツ葉にはLMW PAHsが主に吸収されていたと推察される。その一方、マツ葉と異なり、コケの葉にはクチクラが発達しないため、HMWPAHsが高い濃度で蓄積されていた(図3)と考えられる。

(2) 越境大気汚染評価に適した生物の検討

既存の研究より、日本に飛来するPAHsは冬季にHMW PAHsが高濃度になることで特徴づけられる。これは東アジア北部では冬季に石炭などを利用した暖房器具が広く使用され、PAHsが大量に排出されるようになること、さらに、HMW PAHsは気塊によって運ばれやすく、偏西風によって日本に飛来しやすくなること、で説明される。

この特徴を考慮すれば、PAHsによる越境大気汚染の評価には、HMW PAHsを蓄積しやすい生物が適している。さらに、越境大気汚染の影響が反映されやすい高山帯等にも広く分布する生物が望ましい。「4.(1)」の結果を考慮すると、HMW PAHsを蓄積しやすく、かつ高山帯に優占するコケは、PAHsによる越境大気汚染を評価する際の指標生物として最適なものの一つであろう。

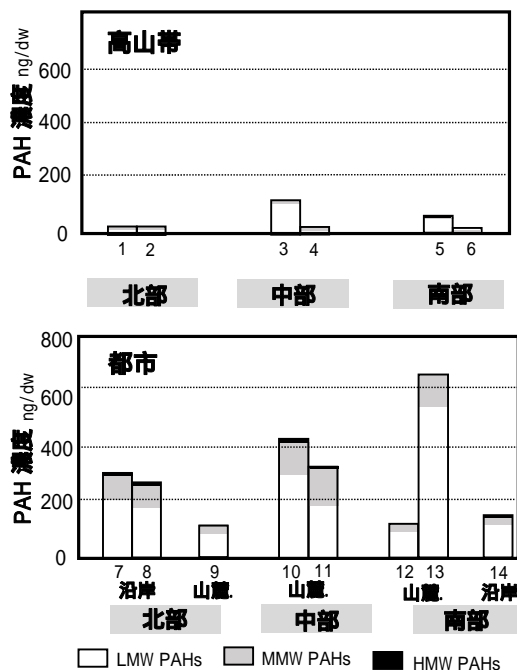


図2 マツに含まれるPAHsの比較
高山帯と比べ、都市ではPAHs濃度が有意に高い($t = 3.25, df = 12, p < 0.01$)。また、高山帯と山麓都市間の比較でも、山麓都市でPAHs濃度が有意に高い($t = 3.04, df = 9, p = 0.01$)。

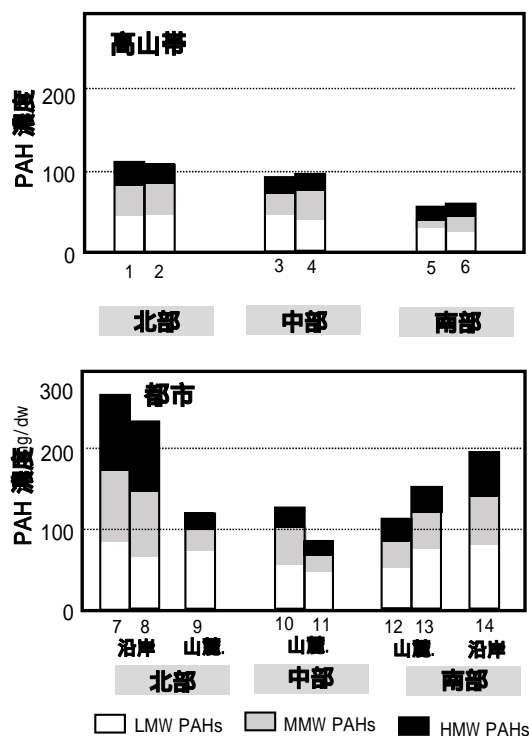


図3 コケに含まれるPAHsの比較
高山帯と比べ、都市ではPAHs濃度が有意に高い($t = 3.04, df = 9, p = 0.01$)。しかし、山麓都市・高山帯間においてはPAHs濃度に有意な差はみられなかった($t = 2.21, df = 9, p = 0.054$)。

表1 マツ葉・コケに含まれる PAHs 割合
 調査地 1 - 14 は図 1 を参照
 LMW PAHs : 低分子量の PAHs
 MMW PAHs : 中程度の分子量の PAHs
 HMW PAHs : 高分子量の PAHs

調査地	マツ類			コケ		
	LMW	MMW	HMW	LMW	MMW	HMW
1	0.729	0.183	0.088	0.381	0.338	0.281
2	0.848	0.123	0.028	0.53	0.245	0.224
3	0.91	0.07	0.02	0.489	0.249	0.262
4	0.862	0.103	0.036	0.409	0.319	0.272
5	0.912	0.07	0.018	0.424	0.275	0.301
6	0.849	0.114	0.036	0.407	0.316	0.277
7	0.684	0.282	0.034	0.32	0.327	0.354
8	0.658	0.275	0.067	0.275	0.356	0.369
9	0.713	0.263	0.024	0.548	0.263	0.189
10	0.716	0.265	0.019	0.427	0.355	0.218
11	0.594	0.385	0.021	0.552	0.254	0.194
12	0.745	0.224	0.031	0.429	0.316	0.255
13	0.83	0.16	0.01	0.495	0.302	0.203
14	0.823	0.156	0.021	0.402	0.303	0.295

(3) 山岳地域の越境大気汚染評価

「4.(2)」の結果より、PAHs による越境大気汚染の評価にコケが適していると考えられた。そこで、指標生物に含まれる PAHs の組成比(表1) 異性体比を比較し(図4、5) マツ葉とコケに含まれる PAHs と越境大気汚染との関係を検討した。

PAHs の組成比を比較した結果、日本海沿岸部・高山帯では、HMW PAHs が高い割合で含まれていることが明らかになった(表1)。さらに、PAHs の異性体比から、コケに含まれている PAHs の起源は日本海沿岸部・高山帯と山麓都市・太平洋沿岸部で大きく二分されることも示された(図5)。PAHs による越境大気汚染の特徴も考慮すると、これらの結果は日本海沿岸部や高山帯では東アジア由来の PAHs の影響を強く受けていることを示唆している。

以上の結果について、日本海沿岸部は他の東アジア諸国に近いため、その地理的特性から、越境大気汚染の影響を受けやすいと推察される。しかし、こうした地理的特性だけでは、高山帯における越境大気汚染の強い影響を説明するには十分ではない。

そこで、高山帯の PAHs 汚染について理解を深めるため、山岳地域(高山帯/山麓都市)を対象を絞り、マツ類・コケに含まれる LMW・MMW・HMW PAHs と標高との関係について、Pearson の相関係数を算出した。

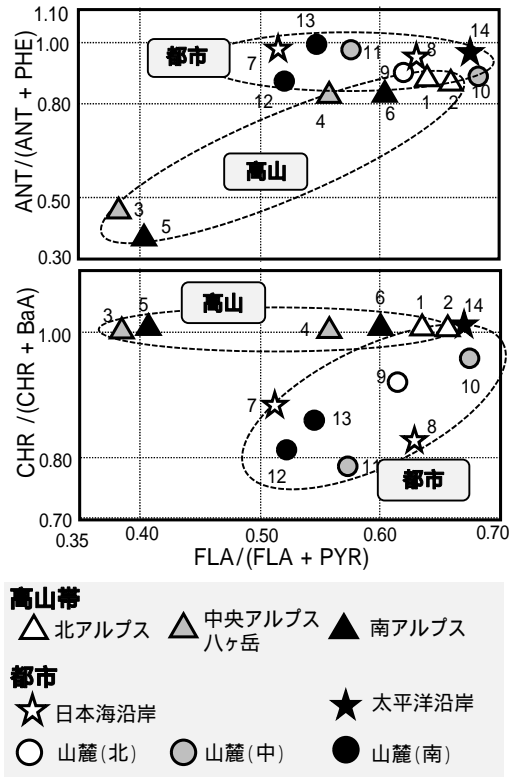


図4 PAHs 異性体比の散布図(マツ葉)
 都市 高山帯で二分される

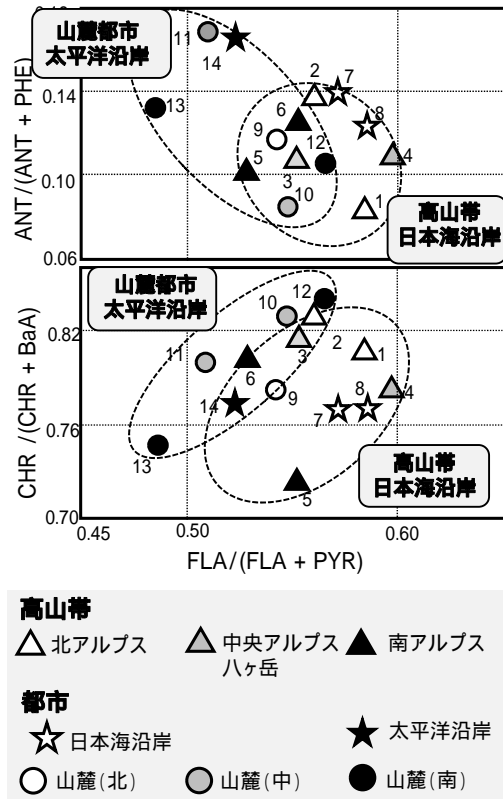


図5 PAHs 異性体比の散布図(コケ)
 高山帯・日本海沿岸部 山麓都市・太平洋沿岸部で二分される

その結果、標高とコケ内の HMW PAHs との間には有意な相関は得られなかったが ($r = -0.35 : p > 0.05$)、それ以外の PAHs については、標高との間に有意な負の相関が得られた (図 6)。

一般に PAHs の発生源に近いほど、生物内に蓄積される PAHs の濃度は高くなる。調査地では、低地に立地する都市が主な PAHs の発生源になっていることから、標高が下がるほど、都市から排出される PAHs の影響が強くなり、マツの LMW・MMW・HMW PAHs・コケの LMW・MMW PAHs 濃度も上昇した、と考えられる。では、なぜ、コケの HMW PAHs と標高との間には有意な負の相関が得られなかったのだろうか。この理由については、まず、(1) 高木層 亜高木層が発達しない高山帯では、大気汚染物質が地上に届きやすいこと、(2) 東アジア由来の大気汚染物質には HMW PAHs が高い濃度で含まれており、かつ、高山帯を含む調査地全域に広く降下していること、(3) 高標高域では雨や霧が発生しやすい。そのため、大気汚染物質を湿性沈着によって主に吸収するコケは、PAHs を高い効率で吸収できること、が挙げられる。

このように、高山帯ではコケに PAHs (特に HMW PAHs) が吸収されやいため、山麓都市と高山帯との間でコケ内の PAH 濃度に有意な差がみられなかったと考えられる (図 3)。

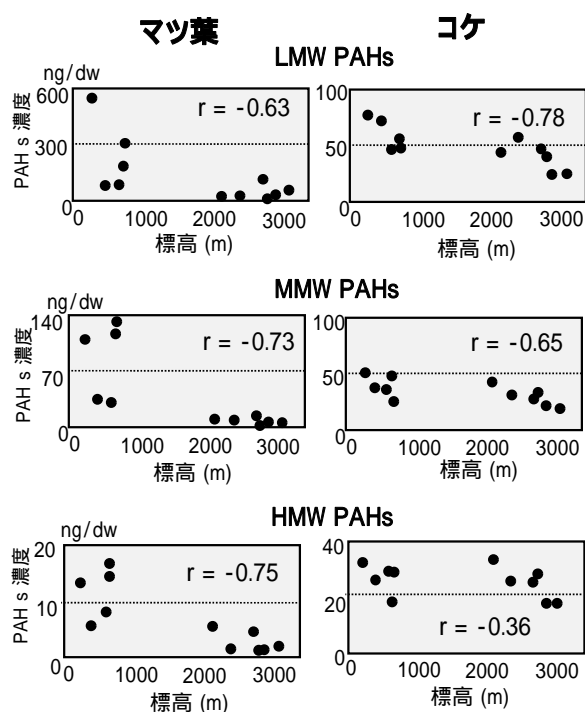


図 6 PAHs の分子量と標高傾度との関係

LMW、MMW、HMW PAHs は表 1 参照
標高とコケの HMW PAHs との間には有意な相関はなかったが、標高 その他の PAHs 濃度間には有意な負の相関がみられた。

その一方、マツ葉の PAHs 異性体比の比較結果からは、コケで確認されたような PAHs による越境大気汚染の影響はみられなかった (図 4)。その代わりに、マツ葉に含まれる PAHs の発生源は、都市域と高山帯の間で大きく異なることが明らかになった。PAHs は都市から高山帯に向かう間に、光分解などの影響を受けて組成比が変化することを考慮すれば、この結果は、マツ葉には国内由来の PAHs が主に蓄積されていることを示唆している。

なお、LMW PAHs は運ばれやすいことから、風向きなどの条件で、山麓の都市から PAHs が局所的に蓄積されやすくなっている可能性もある。高山帯の一部で比較的高濃度の LMW PAHs が確認されたのは (図 2)、この影響かもしれない

(4) 生物指標を用いた越境大気汚染モニタリングシステムの提案

「4.(3)」の考察から、日本海沿岸部や高山帯では PAHs による越境大気汚染の影響が強くみられることが明らかになった。さらに、PAHs による越境大気汚染を評価するための指標生物として、コケが適していることも本研究によって示された。コケには強い発がん性のある HMW PAHs が蓄積されやすかったことから、コケを介した食物連鎖によって濃縮された PAHs が生態系に与える影響についても研究を進めていく必要があるだろう。

また、本研究結果からはマツ葉は国内由来の LMW PAHs の指標として有用であることが示唆された。分子量に差がある LMW PAHs と HMW PAHs は化学的性質や大気中における挙動が異なる。そこで、マツ葉を利用した PAHs 評価を利用することで、コケのみでは得られなかった PAHs 汚染に関する情報を得られると考えられる。

以上の結果・考察に基づき、生物指標を利用した PAHs による越境大気汚染のモニタリングについてまとめる。PAHs の蓄積特性はマツ葉・コケで大きく異なり、これらの指標生物には PAHs 汚染の異なる側面が反映されている。そこで、マツ葉・コケを同時に利用してモニタリングを行うことで、越境/国内由来の PAHs 汚染の影響を評価することが可能になる。さらに、マツ葉・コケは海岸から高山に至るまで広く分布していることから、この両生物を指標とした PAHs 汚染モニタリングの汎用性も高い。PAHs 汚染の実態を把握することは、効果的な対策を講じる上で極めて重要である。この観点から、本研究成果は環境・生態系の保全に大きく貢献すると期待される。

5. 主な発表論文等

【学会発表】(計 2 件)

大石善隆 (2017 年 7 月 10 日) コケで環境を分析する～コケにできないコケ. 生体機能関連化学部会若手の会 第 29 回サマースクール. 松江ニューアーバンホテル

ル(島根県松江市): 招待講演
太田民久・**大石善隆** (2016年5月24日)
大気降下物の起源および蓄積量をコケの
ストロンチウムおよび鉛同位体比から推
定する試み. 日本地球惑星科学連合 2016
年大会. 幕張メッセ(千葉県千葉市)

〔図書〕(計 1 件)

Oishi, Y. (2016) Mechanisms of plant
pollutant uptake as related to
effective biomonitoring (Eds.
Kulshrestha U & Saxena P). Plant
Response to Air Pollution, pp. 33-44,
Springer (Germany).

〔その他〕

ホームページ

大石善隆 コケの生態学
<http://www.moss-ecology.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大石 善隆 (Oishi, Yoshitaka)
福井県立大学・学術教養センター・講師
研究者番号: 80578138