

[21042]

大気中微粒子化学形態分析技術の開発と 越境大気汚染分析への応用

Development of chemical composition analysis for fine air-particulate matters and application to transboundary air pollution analysis

加田 渉^{#1,A)}, 臼井 洗貴^{A)}, 菊池 涼太^{A)}, 今吉 剛宏^{A)}, 中津 颯太^{A)},
熊谷 貴美代^{B)}, 田子 博^{B)}, 佐藤 隆博^{C)}, 石井 保行^{C)} 花泉 修^{A)}

[○]Wataru Kada^{#,A)}, Koki Usui^{A)}, Ryota Kikuchi^{A)}, Takahiro Imayoshi^{A)}, Sota Nakatsu^{A)},
Kimiyo Kumagai^{B)}, Hiroshi Tago^{B)}, Takahiro Satoh^{C)}, Yasuyuki Ishii^{C)}, and Osamu Hanaizumi^{A)}

^{A)} Faculty of Science and Technology, Gunma University

^{B)} Gunma Prefectural Institute of Public Health and Environmental Sciences

^{C)} Takasaki Advanced Radiation Research Institute, National Institutes for Quantum Science and Technology

Abstract

Transboundary pollution is not limited to inorganics but also organic materials (recognized as bioaerosols). The elemental composition of the particles themselves is not easily affected by the surrounding environment or the differences in chemical composition. Still, there are technical issues with the analysis of organic matter in PM samples collected in a short period. To address this issue, we investigated the use of Ion Beam Induced Luminescence (IBIL) analysis, one of the analytical methods that could be combined with particle-induced X-ray emission (PIXE) method, well known elemental composition analysis technique. In earlier research, we have reported the application of IBIL to analyze organic compounds such as NADH and riboflavin as indicators of bioaerosols. This study investigated whether it is possible to analyze and evaluate PM (bioaerosol) collected from the general atmosphere in a unit of time by using IBIL analysis for PM samples collected from the general atmosphere.

Keyword: ion beam induced luminescence (IBIL), bioaerosol, particle matters (PM)

1. はじめに

大気中微粒子(Particulate Matters: PM)の濃度や元素組成は、国内外の大気汚染 や越境大気汚染の指標としてしばしば用いられる[1]。本邦における PM の濃度変化は、季節風などの影響により、1 時間程度の短時間のタイムドメインにおいて変化する可能性が高い。このような短時間で捕集される PM 濃度は極めて微量であるため、ICP-MS 等の汎用的な元素組成分析手法では感度の面において、十分ではないと推定されている[2]。

これに対し、優れた多元素同時分析法である粒子励起 X/γ 線放出 (Particle Induced X/γ-ray Emission, PIXE/PIGE) 分析では、1 時間を単位時間間隔とする PM 捕集試料の無機元素の組成分析に対応が可能であることが実験的に示されている[3]。しかしながら、大気汚染は無機物等に限定されておらず、バイオエアロゾルに代表される有機物の輸送も問題視されている。残念ながら PIXE 法では、特性 X 線を介して元素組成を分析する計測体系の都合上、一般的に有機物の分析には対応できない。特に短時間ごとに捕集された PM 試料中の有機物については、その濃度はその濃度がさらに限定的となることが予想され、一般的に分析は極めて困難とされている。

この課題に対し、我々は、PIXE 法と併用可能な分析法 の一つである荷電粒子誘起発光(Ion Beam Induced Luminescence: IBIL)分析法の利用を検討した。これまでに、IBIL を用いることで、NADH やリボフラビンといったバイオエアロゾルの指標となる有機物の分析例を報告している[4]。さらに特定の波長帯域 (400-600 nm)を活用することで、PM 試料からバイオエアロゾルの弁別が可能と想定される。

そこで、本研究では、高崎量子応用研究所に構築された優れた元素組成分析システムであるマイクロ PIXE システムに、荷電粒子誘起発光 (Ion beam induced luminescence: IBIL) を複合化し、極短時間に捕集された大気中微粒子(Particle Matter: PM)の化学形態分析を可能とすることを目指す。PIXE,PIGE による微量な元素組成に加えて、それらの元素が構成する化合物を IBIL の信号分析により実現する。

これらのシステム開発と並行し、群馬県内の特定地域で一時間ごとに捕集される実環境からの大気中微粒子を捕集し、マイクロ PIXE/IBIL 分析体系において分析した。一般大気中から捕集された PM 試料に対して、IBIL 分析を用いることで、一般大気中から単位時間で捕集された PM(バイオエアロゾル)の分析や評価が可能かを検討した。

[21042]

2. 実験手法

2.1 IBIL 顕微分光システム

量研機構高崎研施設 (TIARA) に設置された 3 MV シングルエンド加速器ならびに軽イオンマイクロビームラインを活用し、IBIL 顕微分光実験体系の構築を進めた。Fig. 1 に示すように小型 CCD 分光器と光子計数型検出器を用いた IBIL 分析体系について、PM フィルタに適した構成で構築した。

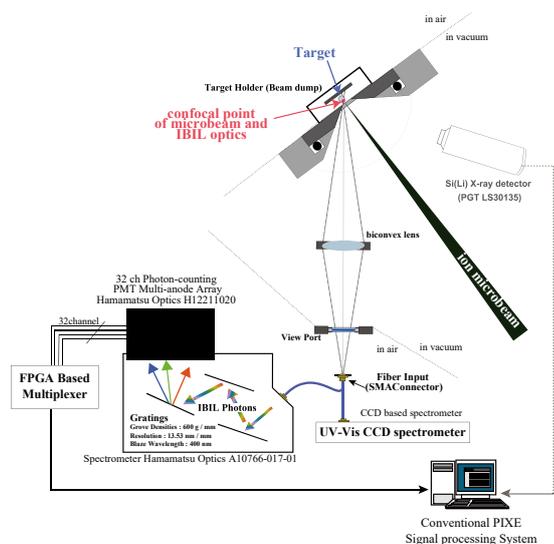


Figure 1. Schematic illustration of experimental setup for ion beam induced luminescence (IBIL) analysis

2.2 PM 捕集試料

群馬県衛生環境研究所が管轄する群馬県内の一般大気環境測定局 (PM_{2.5} 自動測定器) で捕集された一時間ごとの PM 捕集試料を分析に利用した。PM フィルタテープを単位時間ごと、PM_{2.5}、PM_{2.5-10} 粒径分離捕集スポットごとに切り取った。次いで、捕集 PM フィルタ上の 1 スポットの 1/4 片を約 7 μm 厚程度のポリカーボネート薄膜(大気取り出し窓)上に固定し、1-3 MeV H⁺ プローブによる分析に供した。2 枚のポリカーボネート薄膜に挟み込むことにより、大気中に PM 試料を設置したまま、ガス性の分解や脱離、試料変質等を抑圧しつつ、IBIL の分光分析を実現した。

3. 結果

リボフラビン等のバイオエアロゾルマーカについて濃度が既知の標準試料を作成し、発光スペクトルを取得した。Fig. 2 は、PM 試料からの IBIL スペクトルの例である。400 - 600 nm の波長帯は

しばしばバイオエアロゾルの有無を評価する波長として用いられる。本分析例では、自然から捕集された単時間当たりの試料の一部において、当該波長帯域における顕著な IBIL の発生を確認することができた。これらの IBIL について、Fig. 2 に示すように、スペクトルとして計測することが可能であった。連続的な陽子線の照射により、顕著に減衰する 400-600 nm 近傍のブロードな波長成分と、300nm 近傍の比較的放射線照射耐性の高い発光の 2 種類を確認することができた。

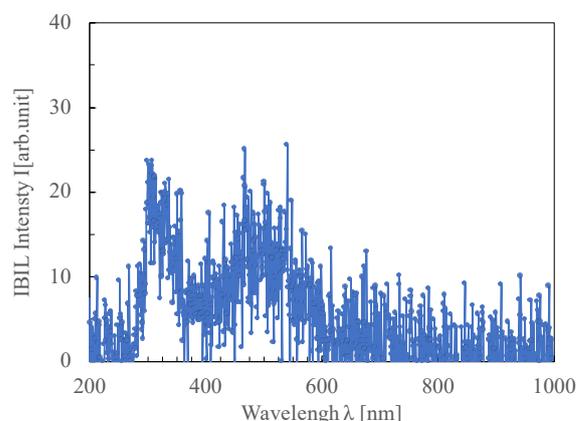


Figure 2. Examples of IBIL spectra of hourly collected PM samples.

4. まとめ

本技術開発により、IBIL を利用した時分割捕集 PM 試料からの有機物固着物の検出可能性が示された。今後本分析法を展開していくことで、対応関係が明らかでないバイオエアロゾルと越境大気汚染の関係性や、起源対応元素組成因子、未解明である固着メカニズムに対応する情報が得られると想定される。本応用を通じ、IBIL 分析技術として化学形態評価を実現するための新たな IBA プロトコル確立を目指す。

謝辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 (JP26706025, JP20H04450) の助成を受け開発した装置を利用した。

参考文献

- [1] D. Cohen, et al., *Atmospheric Pollution Research*, **2**, 182-189, (2011).
- [2] 斎藤勝美ら、NMCC 共同利用研究成果報文集 **13**, 381, (2005).
- [3] W. Kada et al., *Nucl. Instr. and Meth. Sec. B*, **477**, 133-137, (2020).
- [4] W. Kada, et al., *Nucl. Instr. and Meth. Sec. B*, **332**, 42-45, (2014).