

環境大気中における多環芳香族炭化水素の 粒径別濃度分布と季節変動

環境保全部 杉山英俊、齋藤 剛

1 はじめに

中央環境審議会では健康影響の未然防止の観点から「有害大気汚染物質に該当する可能性がある物質」を選定しており、その中には10種類以上の多環芳香族炭化水素(PAHs)が含まれている。PAHsは主に化石燃料の不完全燃焼などで生成する化学物質で、発ガン性や変異原性といった有害性を示す物質が多い。大気中に存在している浮遊粒子状物質(SPM)は粒径が $10\mu\text{m}$ 以下の微粒子である。近年、SPMの中でも粒径が $2.5\sim 10\mu\text{m}$ の粗大粒子側[PM(2.5-10)]よりも、 $2.5\mu\text{m}$ 以下の微小粒子側(PM2.5)のほうが肺胞ないし下気道に沈着する割合が多いと言われはじめ、健康影響に対する懸念からPM2.5に関心が集まるようになってきた。PAHsはSPM中に多く含まれるため、SPM中PAHsの環境大気中での挙動を把握することは、化学物質による環境リスクを評価するうえで非常に重要であると考えられる。

2 目的

秋冬春夏の四季にわたり平塚市内12地点で採取したPM2.5及びPM(2.5-10)中の13種類のPAHsを分析することにより、粒径別濃度分布と季節変動を明らかにし、環境大気中における挙動を把握することを目的とする。

3 方法

3.1 調査地点

環境科学センター(平塚市四之宮1-3-39)を含む平塚市内 $3\text{km}\times 4\text{km}$ の範囲で、約 1km 四方のメッシュに区切った12地点を選定した。調査地点名は本文中M1、M2、M3、M4、M5、M6、M7、M8、M9、M10、M11及びM12として示した。これら12地点について2002年11月、2003年2月、2003年5月、2003年8月の秋冬春夏の四季に調査を行った。

3.2 試料採取

試料採取装置である分粒型ローボリュームエアサンプラーの上段にPM(2.5-10)試料採取用ろ紙、下段にPM2.5試料採取用ろ紙をセットした。このサンプラーを $20\text{L}/\text{分}$ の速度で連続した3日間、24時間ごとにくろ紙を変えて試料の採取を行った。

3.3 対象物質

1: ベンゾ(a)アントラセン[B(a)A]、2: トリフェンレン、3: クリセン、4: ベンゾ(j)フルオランテン+ベンゾ(b)フルオランテン[B(j)F+B(b)F]、5: ベンゾ(k)フルオランテン[B(k)F]、6: ベンゾ(e)ピレン[B(e)P]、7: ベンゾ(a)ピレン[B(a)P]、8: ペリレン、9: インデノ(1,2,3-cd)ピレン[I(1,2,3-cd)P]、10: ジベンゾ(a,h)アントラセン[DB(a,h)A]、11: ベンゾ(ghi)ペリレン[B(ghi)ペリレン]、12: コロネン、13: ジベンゾ(a,e)ピレン[DB(a,e)P]。ここで、B(j)FとB(b)Fは分析時に分離できなかったため、分析結果は2物質の合計値として扱うこととした。

3.4 分析方法

連続して3日間採取したろ紙試料各半分を使い、合計1.5枚分を1試料とした。これらの試料中に含まれているPAHsをジクロロメタンで抽出し、分析の妨害となる物質を除去したのちガスクロマトグラフ・質量分析計(GC/MS)で分析を行った。

4 結果と考察

4.1 SPMの粒径別濃度分布と季節変動

PM_{2.5}の濃度とPM(2.5-10)の濃度との合計をSPMとして示し、12地点におけるPM_{2.5}の濃度とSPMの濃度との関係を調べた。各季節毎のデータ(n=12)により、PM_{2.5}の濃度とSPMの濃度との比を求めたところ、秋季、冬季、春季、夏季それぞれ0.70、0.83、0.76、0.66であった。これらの値から、健康影響が懸念されるPM_{2.5}がSPM中の大きな部分を占めており、特に冬季に高く夏季に低い割合を示すことがわかった。また、粗大粒子であるPM(2.5-10)の濃度は冬季、夏季でほとんど変化がなかったため、冬季に濃度比が大きいのはPM_{2.5}の増加によるものであることがわかった。

4.2 PAHsの濃度分布

4.2.1 PM_{2.5}中PAHsの濃度と季節変動

PM_{2.5}中PAHsの季節別濃度分布を図1に示した。四季を通して、B(j)F+B(b)Fの濃度が高く、特に秋季では1.01-1.92ng/m³、平均1.55ng/m³と一番高い値を示した。その他B(a)A、クリセン、B(e)P、B(a)P、I(1,2,3-cd)P、B(ghi)ペリレン、コロネンが比較的高い濃度で検出されトリフェニレン、ペリレン、DB(a,h)A、DB(a,e)Pが比較的低い濃度で検出された。季節別ではすべての物質で秋季、冬季が高く、春季、夏季が低い傾向がみられた。濃度の一番高かった秋季と一番低かった夏季を、各物質ごとに12地点の平均値で比較すると、秋季のほうが4.7-8.2倍高い値を示した。

4.2.2 PM(2.5-10)中PAHsの濃度と季節変動

PM_{2.5}中と同様に季節別では秋季、冬季が高く、春季、夏季が低い傾向を示し、四季を通してB(j)F+B(b)Fの濃度が高かった。13物質の中で12地点すべての測定値が得られたのはB(a)A、クリセン、B(j)F+B(b)F、B(k)F、B(e)P、B(a)P、I(1,2,3-cd)P及びB(ghi)ペリレンの8物質であったため、これら8物質について測定値の比較を行った。各季節ごとにPAHsの12地点における測定値の平均値を求めたところ、測定値の一番高い秋季は測定値の一番低い夏季に比べて1.2-5.7倍高い値を示した。

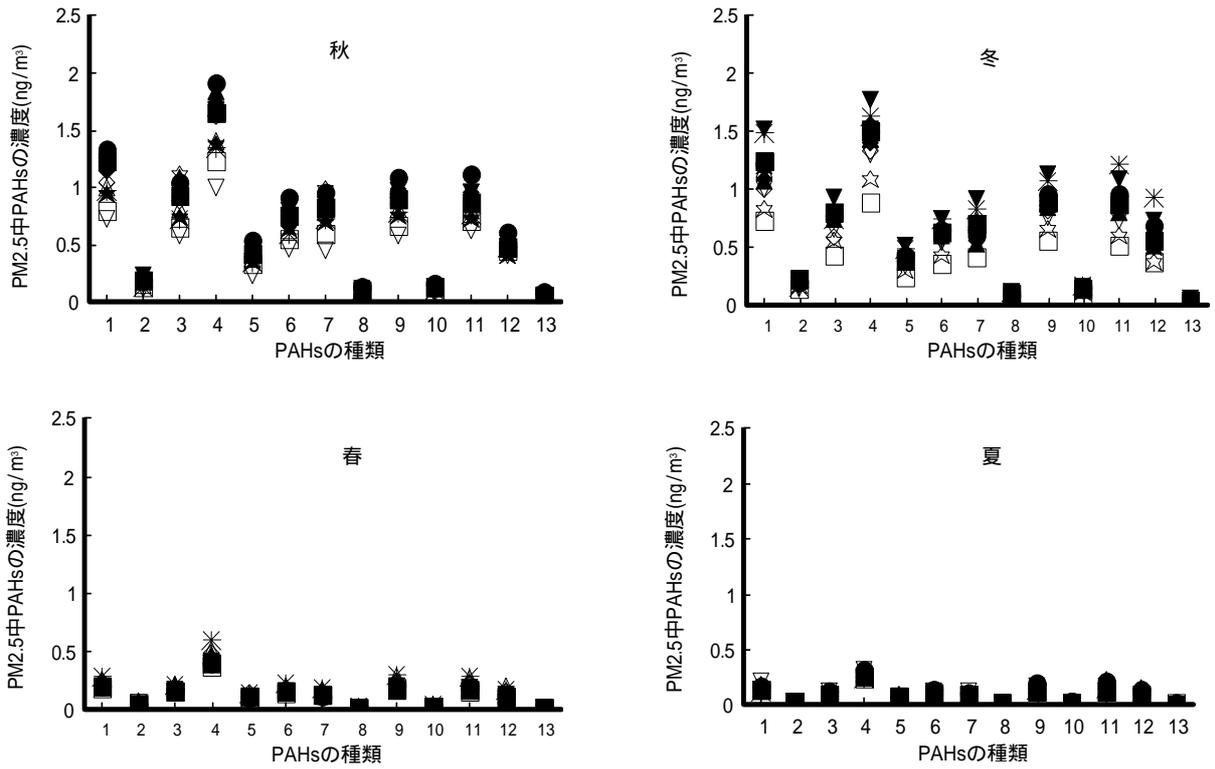


図1 PM2.5中PAHsの濃度分布

:M1、 :M2、 :M3、 :M4、 :M5、 :M6、 :M7、 *:M8、 :M9、 :M10、 :M11、 :M12
 1: B(a)A、 2: トリフェニレン、 3: クリセン、 4: B(j)F+B(b)F、 5: B(k)F、 6: B(e)P、 7: B(a)P、 8: ベリレン、
 9: インデノ(1,2,3-cd)P、 10: DB(a,h)A、 11: B(g,h,i)ペリレン、 12: コロネン、 13: DB(a,e)P

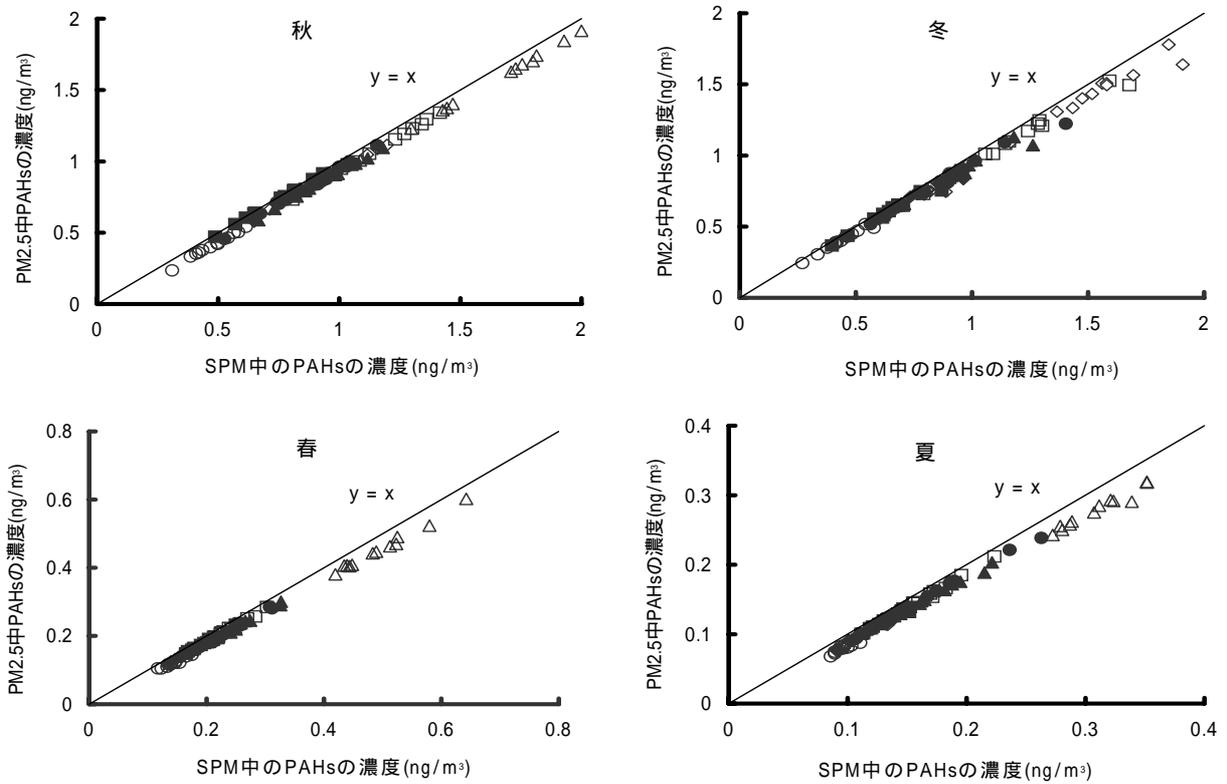


図2 PM2.5中PAHsの濃度とSPM中PAHsの濃度との関係

: B(a)A、 : クリセン、 : B(j)F+B(b)F、 : B(k)F、 : B(e)P、 : B(a)P、 : I(1,2,3-cd)P、 : B(ghi)ペリレン

4.2.3 PM2.5中及びSPM中PAHsの濃度分布と季節変動

上記8物質におけるPM2.5中PAHsの濃度とSPM中PAHsの濃度との関係を図2に示した。PM2.5中PAHsの濃度とPM(2.5-10)中PAHsの濃度を合計したものをSPM中PAHsの濃度とした。SPM中のPAHsを12地点の平均値と比較すると8物質すべてが秋季が一番高く、ついで冬季、春季の順で、夏季が一番低かった。四季における12地点の測定値の各物質の傾き、すなわちSPM中PAHsに占めるPM2.5中PAHsの割合は、秋季ではB(k)Fの0.86からB(e)Pの0.98、冬季ではB(k)Fの0.92からB(e)Pの0.94、春季ではB(k)Fの0.85からB(a)Aの0.93、夏季ではB(k)Fの0.83からB(a)Aの0.93の範囲であった。従って、SPM中のPAHsの大部分はPM2.5中に存在していることがわかった。秋季及び冬季にPM2.5及びPM(2.5-10)中のPAHs濃度が高いのは暖房等化石燃料の燃焼が多くなることや大気安定性が増すこと、また夏季に少ないのはこれらの燃焼が少ないこと、光化学反応等による分解が進むこと、蒸気圧の上昇によるSPMからの気相への移動等が考えられた。

5 まとめ

環境科学センターを含む平塚市内3km×4kmの範囲で、一般環境の12地点を選び、秋冬春夏の四季別にPM2.5とPM(2.5-10)の試料を採取し13種類のPAHsの環境濃度を測定したところ、以下の結果が得られた。

SPMの濃度は秋季及び冬季が高く、夏季が低かった。PM(2.5-10)の濃度は冬季及び夏季でほとんど変化はないため、冬季においてPM2.5の濃度比が大きいのはPM2.5の濃度の増加によるものであることがわかった。

PM2.5中PAHsの濃度は秋季が一番高く、一番低かった夏季と比較して4.7～8.2倍高い値を示し、PM(2.5-10)中においてもPM2.5と同様に秋季が高く、夏季が低い傾向を示した。SPM中PAHsに占めるPM2.5中PAHsの割合は四季を通じ0.83～0.98であり、大部分のPAHsはPM2.5中に存在していることがわかった。このように、健康影響が大きいと考えられるPM2.5はSPMの中でも多くの割合を占めており、また測定を行ったPAHsのほとんどがPM2.5中に含まれていた。PAHsの発ガン性、変異原性等の有害性を考慮すると、わが国においても排ガス規制等によるPM2.5に対する対策に伴うPAHsの低減効果が期待される。

引用文献

- ・神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会(2001)神奈川県臨海地区大気汚染調査報告書
- ・神奈川県(2003)地域環境管理モデル構築事業
- ・神奈川県(2004)地域環境管理モデル構築事業