

環境中における多環芳香族炭化水素類の光変換性

広島大学大学院 学生会員 ○竹内 真也
 広島大学 正会員 尾崎 則篤
 広島大学 正会員 福島 武彦

1. 研究の背景と目的

多環芳香族炭化水素類 (PAHs) は、化石燃料の燃焼によって粉塵に付着する形で大気中に放出される。PAHsには発癌性等の毒性を持つものや、それ自体は毒性のないものでも環境中で光変換することによって毒性を持つ誘導体を生じるものもあり、その影響が懸念されている。そこで、浮遊粉塵および地表面堆積粉塵の地表面上における PAHs の光変換性を測定し、解析することを目的として研究を行った。

2. 実験方法

1) 浮遊粉塵、堆積粉塵のサンプリング及び光変換

広島大学工学部 A・2 棟屋上にエアサンプラーを設置し、粒径 $7 \mu\text{m}$ 以下の粉塵 (小径粉塵) と粒径 $7 \mu\text{m}$ 以上の粉塵 (大径粉塵) を区別してサンプリングした。小径粉塵、大径粉塵をそれぞれ 2 系列サンプリングし、一方を採取後すぐに PAHs を測定し、もう一方は光変換容器内で 3 日間太陽光下で光変換させた後に測定した。また、堆積粉塵は地表面から 1m の高さに採取容器を 3 日間設置し採取した。採取容器は 2 系列用意し、片方の粉塵を光変換させた。光変換は、地表面を模擬した装置で 3 日間行った。装置は外気との交換はある程度生じさせつつ、新たな粉塵の流入は生じない様な容器である。

2) PAHs の抽出および測定

以上のサンプルは必要に応じて水で洗い流し、暗所風乾後、ジクロロメタンによる超音波抽出、 N_2 の吹き付け濃縮を経て、GC/MS (SHIMADZU GC17A/QP5050) で定量した。各 PAHs の光変換性の評価には一次反応を仮定し、反応速度係数 k (1/d) を用いた。

3. 結果と考察

1) 小径粉塵・大径粉塵・堆積粉塵の反応性の経日変化

小径粉塵に含まれる PAHs の光変換前後における含有量の変化の例を図-1 に示す。これら各 PAHs の反応速度係数 k (1/d) の全種類の中央値をそのサンプルの代表値として、PAHs の反応性の季節変化を表したものが図-2 である。

反応性を比較すると (表-1)、夏期においては小径粉塵>大径粉塵>堆積粉塵となり、冬期には全体として値は低く、明確な違いは確認されなかった。また、大径粉塵に関しては夏期に k 値が低くなるもの (8/14、8/28 の 2 点) も見られた。

小径粉塵の反応性が高いことの原因として、粉塵の起源の違いが考えられる。大径粉塵は土粒子などの自然起源の粒子であり、一方、小径粉塵は燃焼起源の粒子であり主に有機物によって構成されていると考えられる。有機物に付着した PAHs は光反応が促進されるという報告¹⁾があり、このような粒子特性の違いが反応性に影響を与えたために、小径粉塵で特に反応が見られたものと考えられる。また、堆積粉塵は特に夏期において小径・大径いずれの浮遊粉塵よりも k の値が低い。堆積粉塵は浮遊粉塵を起源としていると考えられ、小径・大径の混合比に応じた中間的な値になるものと予想されたが、予想とは異なる結果を得た。これは浮遊粉塵と比較して、既に捕集時に変換が進行し (エイジング)、変換しにくい状態の PAHs が残っているためと考えられる。

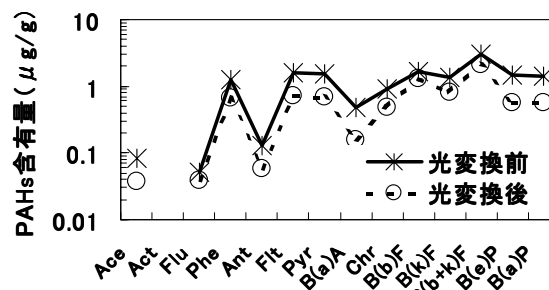


図-1 光変換前後の PAHs 含有量 ($\mu\text{g/g}$)
 (光変換日程: 2000/8/25 ~ 28)

キーワード: 多環芳香族炭化水素類、PAHs、光変換、光分解、粉塵

連絡先: 〒739-8527 東広島市鏡山 1 丁目 4-1 広島大学工学部

2) k と気温・日照強度との関係

PAHs の光変換に影響を及ぼす因子としては気温及び日照強度が考えられる²⁾。そこで、全サンプルの k とそれらの関係を図 3～6 に示す (気温、日照強度は変換実験日の平均値を使用)。その結果、小径・大径粉塵においてはある程度 ($R^2=0.17 \sim 0.62$) の相関が得られた。一方、堆積粉塵に関しては相関は見られなかった。堆積粉塵は 1) で示したように、捕集時に既に反応が進行していたために年間を通じて反応性が低く、相関が得られなかったためと考えられる。また、小径粉塵 (図 4) において、日照強度 15 (MJ/m^2) 以下では相関が高かったものの ($R^2=0.7656$, $n=12$)、それ以上の部分では k の値が低い。この原因として①日照強度がある値を超えると反応が横ばいになる、②日照強度の影響を過大評価した、などが推察される。大径粉塵 (図 3、4) においても小径粉塵と同様、気温・日照強度が高いにもかかわらず k 値が低くなる点が見られた。データは小径粉塵の場合よりもばらついており、また特に夏期において k の値が低いときに、堆積粉塵と同程度になっているという特徴がある。この原因も堆積粉塵と同様にエイジングが示唆されたが詳細は不明であった。

4. 結論

- 1) 大気環境中のサンプルでは、小径粉塵の反応性が最も高いことが確認された。これは、粒子の起源の違いが原因であると考えられる。
- 2) 浮遊粉塵の k と気温・日照強度には相関関係が見られ、光変換は季節を通じて気温・日照強度に影響を受けていることが確認された。一方、堆積粉塵に関しては相関は見られなかった。

5. 参考文献

- 1) McDow, S.R. et al. : Atmospheric Environment Vol.29, No7, pp.791-797, 1995
- 2) 尾崎則篤 : 環境工学研究論文集、第 36 巻、pp.73-80、1999

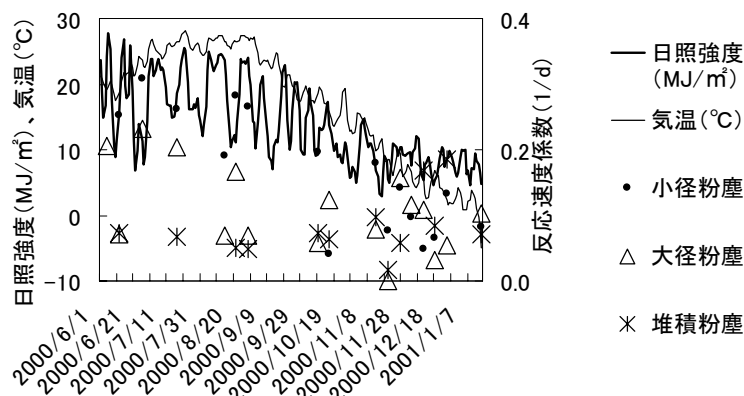


図-2 各粉塵の k (1/d) の経日変化

表-1 k (1/d) の平均値 (±バール:標準偏差)

	夏期 (2000/6~2000/8)	冬期 (2000/10~2001/1)
小径粒子	0.24 ± 0.06	0.11 ± 0.05
大径粒子	0.10 ± 0.15	0.08 ± 0.05
堆積粉塵	0.04 ± 0.05	0.09 ± 0.05

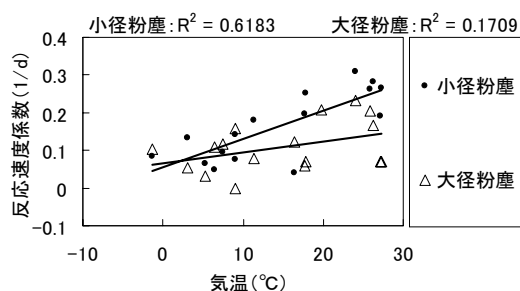


図-3 気温 - k (小径粉塵、大径粉塵)

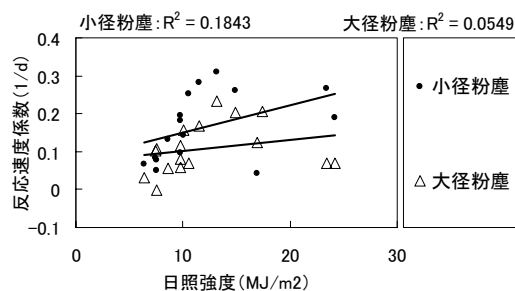


図-4 日照強度 - k (小径粉塵、大径粉塵)

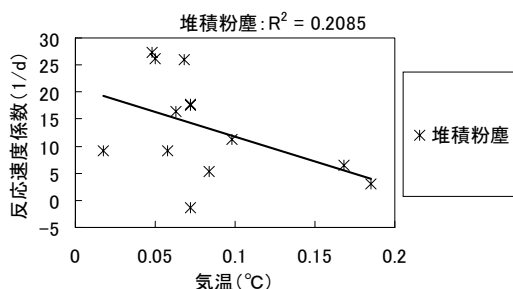


図-5 気温 - k (堆積粉塵)

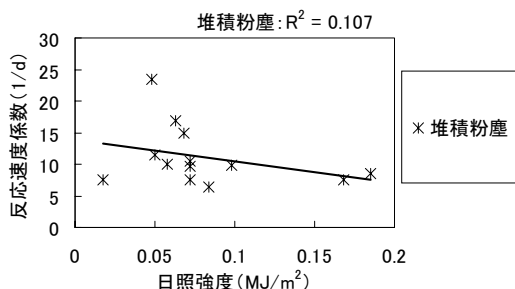


図-6 日照強度 - k (堆積粉塵)