

東大阪市における大気中の多環芳香族炭化水素類の動態に関する研究

近畿大学大学院 総合理工学研究科 学生員 ○タイ 偉航
 近畿大学大学院 総合理工学研究科 正会員 嶋津 治希

1. はじめに

多環芳香族炭化水素類(以下 PAHs と略す)はベンゼン環二つ以上持つ炭化水素化合物の総称であり、100 種類以上するとされる、PAHs には多くの物質が発がん性や変異性を有し、特にベンゾ[a]ピレンは近年国際がん研究機関(IARC)に発がん性レベル 1 に認定された。

PAHs は主に石油や石炭などの化石燃料の不完全燃焼により生成し、環境中に放出される。大気中の PAHs ではガス態と粒子態(粒子状物質に吸着)で存在する。本研究では東大阪市を研究対象地として、大気中の PAHs の動態を研究するために、PAHs のガス態や粒子態の分配について考察を行った。

2. 実験方法

本研究で取り扱った PAHs は、ナフタレン(Nap), アセナフチレン(Acy), アセナフテン(Ace), フルオレン(Fl), フェナントレン(Phe), アントラセン(Ant), フルオランテン(Flu), ピレン(Pyr), ベンゾ[a]アントラセン(BaA), クリセン(Chr), ベンゾ[b]フルオランテン(BbF), ベンゾ[k]フルオランテン(BkF), ベンゾ[a]ピレン(BaP), インデノ[1,2,3 - cd]ピレン(IP), ジベンゾ[ah]アントラセン(DBA), ベンゾ[ghi]ペリレン(BghiP)の 16 物質である。

大気実験試料の採集及び処理

近畿大学東大阪キャンパス 33 号館屋上で 3 時間おきに大気サンプリングを行った。2016 年 7 月 1 日～4 日, 9 月 24 日～26 日, 12 月 9 日～11 日, 2017 年 3 月 10 日～13 日, 計 4 回実施した。ハイボリュームエアサンプラーを用いて、先端に石英繊維ろ紙やポリウレタンフォーム(PUF)を取り付けた。ハイボリュームエアサンプラーで 400L/min で大気を吸引し、粒子態とガス態の PAHs を捕集した。前処理はヘキサンを用いる超音波抽出で行い、内部標準法により GC/MS で分析した。

3. 結果及び考察

3.1 東大阪市大気中の PAHs の測定結果

表 1 PAHs のガス態及び粒子態の測定結果(単位 : ng/m³)

物質名	環数	ガス態				粒子態			
		7月	9月	12月	3月	7月	9月	12月	3月
Nap	2	2.84	2.22	7.28	5.94	0.29	0.15	0.18	0.23
Acy	3	0.52	0.22	1.06	0.65	N.D.	N.D.	N.D.	0.001
Ace	3	0.63	0.62	1.51	1.08	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
Fl	3	3.14	2.05	3.60	2.50	N.D.	N.D.	0.010	0.001
Phe	3	11.97	7.32	6.71	4.22	0.02	0.005	0.12	0.07
Ant	3	N.D.	N.D.	0.02	N.D.	N.D.	N.D.	0.01	0.003
Flu	4	2.54	1.17	0.90	0.58	0.13	0.03	0.27	0.17
Pyr	4	2.39	0.80	0.75	0.57	0.12	0.03	0.25	0.21
BaA	4	0.01	0.40	N.D.	N.D.	0.07	0.02	0.09	0.06
Chr	4	0.01	N.D.	N.D.	N.D.	0.06	0.01	0.05	0.09
BbF	5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.19	N.D.	0.23	0.15
BkF	5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.10	0.12
BaP	5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.17	0.11
DBA	5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.01	0.02
IP	6	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.03	0.06	0.16	0.10
BghiP	6	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.03	0.07	0.18	0.10
Σ 16PAHs		24.04	14.80	21.83	15.54	0.95	0.37	1.84	1.45

キーワード 多環芳香族炭化水素 粒子態物質 ガス態物質 分配係数

連絡先 Email taiweihang@gmail.com

表 1 に示すように、ガス態の PAHs は主に 2-4 環の物質に検出され、5, 6 環の物質は今回の実験で検出されなかった。粒子態の PAHs では主に 2, 4, 5, 6 環の物質が検出され、3 環の物質の頻度に検出された。気温が低い時期 12 月と 3 月において、4, 5, 6 環の粒子態 PAHs が 7 月や 9 月時より濃度が高い傾向が見られた。

3.2 ガス態/粒子態の分配

Pankow1987 からガス/粒子の分配係数 $K_p(m^3/\mu g)$ の概念を書いた。 $K_p=(F/TSP)/A$ 、F と A それぞれは物質の粒子態とガス態の濃度(ng/m^3)、TSP は浮遊粒子状物質の濃度($\mu g/m^3$)。さらに、大気を実際に分析し得られる K_p と過冷却液体状態の蒸気圧 P_L の間に、 $\log K_p=m_r \times \log P_L+b_r$ の線形関係が成立する報告されている。

排出源の不確実性が高い Nap を除き、考察の結果は図 1 に示すように、東大阪市において 4 回実験により、PAHs の $\log K_p$ 対 $\log P_{Lp}(25^\circ C)$ の線形関係プロットである。傾き m_r は -0.725 であり、他の研究者の報告と比較し、傾き m_r が -1~-0.6 の範囲内に含まれた(表 2)。違う時期ごとに、各月における $\log K_p$ 対 $\log P_{Lp}$ の線形関係を考察し、7 月から 3 月までの傾き m_r はそれぞれは -0.989, -0.01, -1.085, -1.011 となった。9 月は、BaA の $\log K_p$ が低いことによって、他の時期と変わった結果になる原因と分かった。Nap を含めて、月ごとの $\log K_p$ 対 $\log P_{Lp}$ の傾き m_r は -0.009, 0.141, -0.301, -0.23 であった。

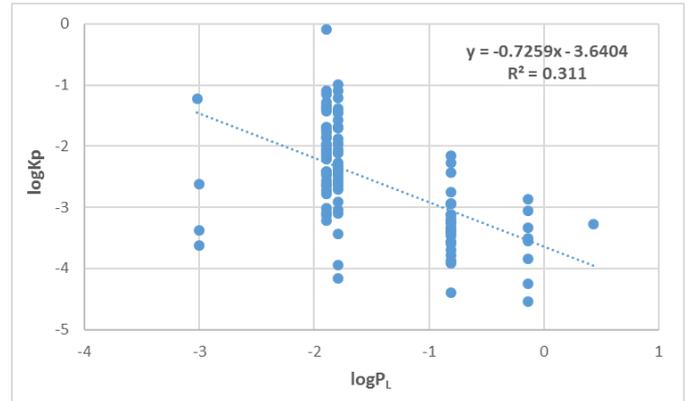


図 1 $\log K_p$ 対 $\log P_{Lp}(25^\circ C)$ のプロット

表 2 都市域 PAHs の $\log K_p$ 対 $\log P_{Lp}(25^\circ C)$ の線形関係

方程式	地域	出典
$\log K_p = -1.00 \log P_L - 5.47$	University of Wisconsin at Green Bay	Cotham and Bidleman(1995)
$\log K_p = -0.694 \log P_L - 4.61$	Chicago	Cotham and Bidleman(1995)
$\log K_p = -0.814 \log P_L - 4.61$	Brazzaville(congo)	Ngabe and Bidleman(1992)
$\log K_p = -0.989 \log P_L - 4.33$	東大阪市	本研究2016年7月
$\log K_p = -0.01 \log P_L - 2.97$	東大阪市	本研究2016年9月
$\log K_p = -1.085 \log P_L - 3.96$	東大阪市	本研究2016年12月
$\log K_p = -1.011 \log P_L - 3.79$	東大阪市	本研究2017年3月

4. 終わりに

東大阪市において、大気中のガス態 PAHs が主に 2, 3, 4 環の物質が存在し、粒子態では 2 環と 4-6 環の物質となった。温度が低い時期 12 月と 3 月において、4, 5, 6 環の粒子態 PAHs が 7 月や 9 月時より濃度が高い傾向が見られた。PAHs の $\log K_p$ 対 $\log P_{Lp}(25^\circ C)$ の線形関係において、(Nap 除き)傾き m_r は -0.725 であり、他の研究者の報告した傾き m_r が -1~-0.6 の範囲と一致した。Nap は大気環境において、検出された PAHs のデータ数が少ない場合には $\log K_p$ 対 $\log P_{Lp}(25^\circ C)$ の線形関係に影響が大きい(7 月と 9 月)と分かった。

参考文献

- 1) Pankow, J. F. (1987): Review and comparative analysis of the theories on partitioning between the gas and aerosol particulate phases in the atmosphere. Atmospheric Environment. 21: 2275-2283.
- 2) Cotham, W. E. and Bidleman, T.F. (1995) Polycyclic aromatic hydrocarbons and polychlorinated biphenyls in air at an urban and rural site near Lake Michigan. Envir. Sci. Technol. 29, 2782-2789.
- 3) Ngabe, B. and Bidleman, T. F. (1992) Occurrence and vapor particle partitioning of heavy organic compounds in ambient air in Brazzaville, Congo. Envir. Pollut. 76, 147-156.
- 4) Joris J.H. Haftka, John R. Parsons, Harrie A.J. Govers. Supercooled liquid vapour pressures and related thermodynamic properties of polycyclic aromatic hydrocarbons determined by gas chromatography. J. Chromatogr. A1135(2006) 91-100.