

降水に含まれる多環芳香族炭化水素の濃度、組成について

富山県立大学短期大学部

正会員 奥川光治

田嶋寛史

蒲生優子

正会員 能登勇二

1. はじめに

降水は大気汚染物質の水環境への流入経路であり、種々の物質を含んでいる。多環芳香族炭化水素(PAHs)はおもに石油や石炭の燃焼に伴って大気中に放出されるため、有機微量汚染物質の中でも広く大気や降水から検出される物質である。しかも、その一部は発ガン性や内分泌攪乱性があることが指摘されたり、疑われたりしている。著者らはここ数年、水環境中における有機微量汚染物質の動態を解明する一環として、降水や屋根流出雨水に注目して、変異原性やPAHsについて、時間変化、季節変化や地域変動を解明してきた。本報では、降水中のPAHsに関して2001年8月から2002年5月にかけて実施した詳細調査の結果から、おもに濃度と組成に関する季節変動特性について報告する。

2. 調査・分析方法

調査地点は富山県射水郡小杉町の住宅団地内にある富山県立大学内に設けた。小杉町は富山市と高岡市の中間にあたり都市近郊の地域である。降水の採取には直径39cmのステンレス製ボールまたはステンレス板から製作した採取装置を使用した。設置高さは地面からそれぞれ1m, 1.5mであり、降水の開始時に設置した。雪の場合は約23℃の恒温室内で自然に融解した。調査は2001年8月から実施しており、現在も継続中である。分析項目はPAHsの他に、pH、電気伝導率(EC)、懸濁性物質質量(SS)、260nmの紫外線による吸光度(E_{260})、全有機炭素量(TOC)、各種陰イオン・陽イオン、変異原性(Ames test)等である。

PAHsの分析(奥川,2002)ではグラスファイバーフィルターで濾過して分画した溶存態ならびに懸濁態のサンプルについて、固相抽出またはソックスレー抽出などの前処理をしたのち分析を行なった。PAHsはGC/MS-SIM法によりNaphthalene, Acenaphthylene, Acenaphthene, Fluorene, Phenanthrene, Anthracene, FluorantheneとPyreneを、また蛍光検出HPLC法によりBenzo[a]anthracene, Chrysene, Benzo[e]pyrene, Benzo[e]acephenanthrylene, Benzo[k]fluoranthene, Benzo[a]pyrene, Dibenzo[a,h]anthracene, Benzo[ghi]perylene, Indeno[1,2,3-cd]pyrene, Coroneneを分析した。以下ではそれぞれNPT, ACNL, ACNT, FLRN, PNT, ANT, FLRT, PRN, BaA, CRS, BeP, BeAP, BkF, BaP, DBahA, BghiPRL, I123cd P, CRNと略記する。

3. 調査結果および考察

3. 1 PAHsの濃度

各月2～4回の降水を採取し、PAHsの分析を行なった。各サンプルの採取量を考慮して重加平均をとり、PAHs濃度の月平均値を求めた。Fig. 1 にPAHs全成分の月平均濃度の季節変動を示した。溶存態で23～270 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 、懸濁態で14～470 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 、総量で42～700 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ と変動が大きく、11月から3月の冬季に高くなった。冬季にPAHs濃度が高くなるのは過去の調査でも認められており、これは化石燃料消費量の増大や夏季におけるPAHsの光変換、大気塊の移動経路などが関連していると思われる。図中のS/Tは溶存態の総量に対する比率であり、0.18～0.67の範囲で変化した。冬季(とくに12月と3月)における懸濁態PAHsの増加が溶存態の増加よりも大きいのに対応して、S/T比は冬季に低下した。代表的な成分のS/T比を見ると(Fig. 2)、水溶解度を反映して低分子ほど大きくなった。S/T比の全期間平均値はNPT 0.79, PNT 0.64, FLRT 0.50, CRS 0.18, BaP 0.05, CRN 0.01な

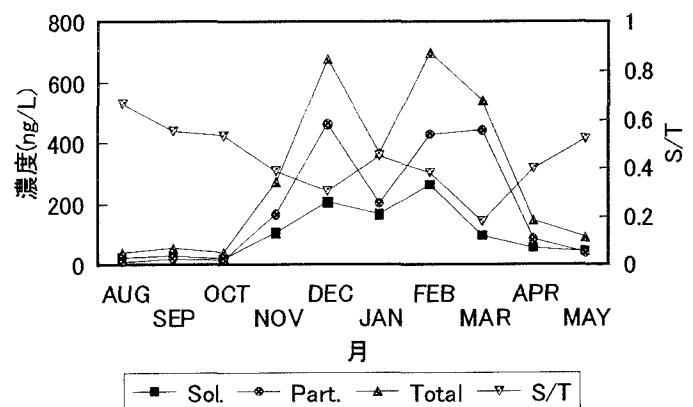


Fig. 1 降水中PAHs濃度の季節変動(2001-2002)
(全成分)

図中のS/Tは溶存態の総量に対する比率であり、0.18～0.67の範囲で変化した。冬季(とくに12月と3月)における懸濁態PAHsの増加が溶存態の増加よりも大きいのに対応して、S/T比は冬季に低下した。代表的な成分のS/T比を見ると(Fig. 2)、水溶解度を反映して低分子ほど大きくなった。S/T比の全期間平均値はNPT 0.79, PNT 0.64, FLRT 0.50, CRS 0.18, BaP 0.05, CRN 0.01な

どとなった。

3. 2 PAHsの組成

PAHsの組成について言うと、溶存態(Fig. 3)ではNP Tが14~62%(平均28%)で最も多く、次いでPNT 12~29%(24%), PRN 3.6~19%(14%), FLRT 5.3~17%(12%)が多く、5環以上のものは少なかった。NPTが冬季に減少したのに対し、PNT, FLRT, PRNは冬季に増加した。NPTが夏季に多いのは気温の上昇に伴う蒸発量の増加によると考えられる。懸濁態(Fig. 4)ではBeAP 5.1~19%(15%), I123cdP 0~15%(11%), B eP 4.6~16%(11%), PRN 8.0~20%(11%)などとなっ

ており、他のPAHsもNPTからCRNまで無視できない程度に含まれていた。しかし、NPTを除くFLRNまでの低分子の比率は小さかった。PAHsの発生源はおもにディーゼル車など自動車排ガスや工場、家庭などから排出される燃焼排ガスであると考えられ、ガス状および粒子状で排出されており、粒子状のものは不完全燃焼で生成した黒煙(炭素)粒子の表面に吸着されている。以上の結果は、低分子のPAHsではガス状で排出されたり、粒子状で排出された後気化し、降水に取り込まれる比率も一定量あること、高分子のPAHsでは粒子状で排出され、降水に取り込まれる比率が多いことを示している。

4. おわりに

2001年8月から2002年5月にかけて実施した降水中のPAHsに関する詳細調査の結果から季節変動特性について解明した。得られた結論は以下のとおりである。(1)PAHs全成分の月平均濃度は溶存態で $23\sim 270\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 、懸濁態で $14\sim 470\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 、総量で $42\sim 700\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ と大きく変動し、11月から3月の冬季に高くなった。(2)溶存態の総量に対する

比率(S/T)を見ると、PAHs全成分では0.18~0.67の範囲で変化し、冬季(とくに12月と3月)に低下した。(3)溶存態PAHsの組成ではNPT, PNT, PRN, FLRTが多く、5環以上のものは少なかった。(4)懸濁態PAHsではBeAP, I123cdP, BeP, PRNなどが多く、他のPAHsも無視できない程度に含まれていた。

[参考文献]

奥川(2002)水環境学会誌, 25(1)。

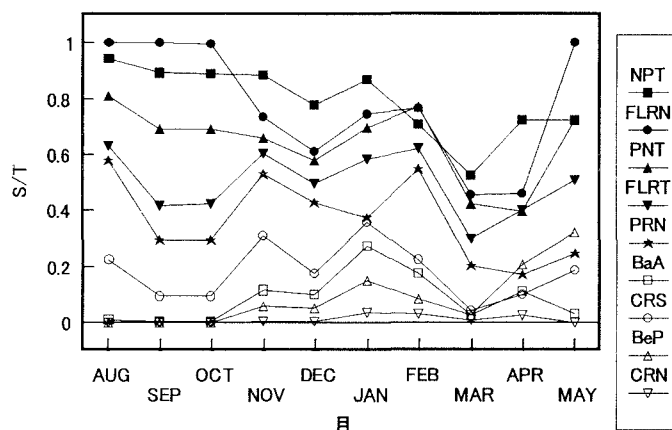


Fig. 2 各PAHのS/Tの季節変動(2001-2002)

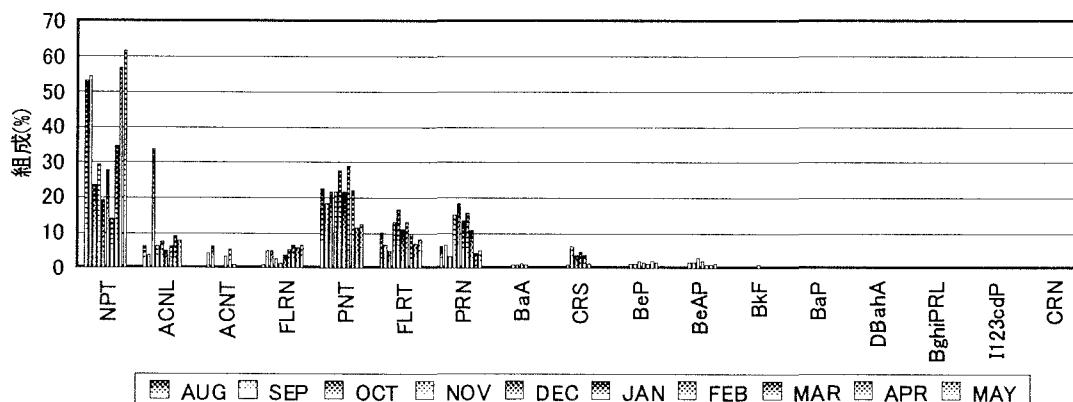


Fig. 3 降水中のSol-PAHsの組成(2001-2002)

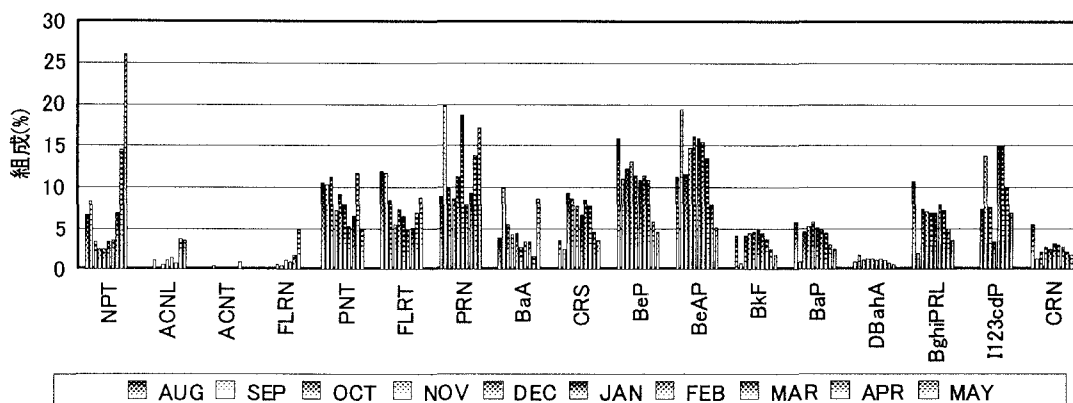


Fig. 4 降水中のPart-PAHsの組成(2001-2002)