

## 多環芳香族炭化水素大気降下量の時空間変動特性

富山県立大学短期大学部専攻科 学生会員 丹羽和也  
 富山県立大学短期大学部 正会員 奥川光治  
 富山県立大学短期大学部 平林純一

### 1. はじめに

多環芳香族炭化水素(PAHs)はおもに石油、石炭など化石燃料や木材、廃棄物の燃焼等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、土壌などから検出される物質である。しかも、その一部には発ガン性や内分泌攪乱性があることが指摘されているものがあり、環境中での動態を評価することが重要な課題となっている。著者らは、ここ数年、富山県中央部で調査を実施し、降水と乾性降下物に分けて PAHs の降下量の季節変動を解明したが、冬季における降下量の顕著な増大が特徴であった。その原因として冬季における化石燃料消費量の増加と東アジア諸国からの長距離輸送、夏季における PAHs の光変換による減少などが考えられた。本報告は大気降下物中の PAHs に関して、北陸から東海地方における降下量と組成の経月変動と地域変動を解明することにより、冬季における降下量の増大の原因を明らかにしようとするものである。

### 2. 調査・分析方法

調査地点は石川県の富来町と金沢市、富山県の小矢部市、小杉町、富山市、黒部市、岐阜県的美並村(2004年3月より郡上市)に7ヶ所設けた。富来は能登半島西岸にあり、都市部の影響をあまり受けない地点として選定した。金沢と富山は都市部として、小杉は都市近郊部として、小矢部と黒部は農村部として選定した。また、美並は都市部の影響をあまり受けない、東海地方の地点として選定した。大気降下物の採取は直径39cmのステンレス製ロートとタンクから製作したデポジットゲージを使用し、降水と乾性降下物を区別なく採取した。雪は凍結防止用ヒーターで融かして採取した。設置高さは設置面から約1.2mである。採取期間は地点により多少異なるが、2003年11月上旬～中旬、11月下旬～12月上旬、12月上旬～中旬、12月下旬～2004年1月中旬、1月下旬～2月中旬、2月中旬～3月中旬、3月中旬～4月上旬の連続した7期間であり、原則として同一の降水が同じ採取期間に入るようにした。

サンプルとして降水を回収した後、ロートとタンクの内面に付着した粒子状物質をグラスファイバーフィルター(ADVANTEC製, GB140)で拭き取るとともに蒸留水で洗浄し、洗浄水もサンプルに加えた。分析項目はPAHsの他にpH、電気伝導率、粒子状物質量等である。サンプルはグラスファイバーフィルターで濾過して溶存態ならびに粒子態に分離し、それぞれ固相抽出とソックスレー抽出をした後PAHsの分析を行なった。以下で示すPAHs量の評価は溶存態と粒子態を合わせた総量で行なった。PAHsはGC/MS-SIM法によりNaphthalene, Acenaphthylene, Acenaphthene, Fluorene, Anthracene, Phenanthrene, FluorantheneとPyreneを、また蛍光検出HPLC法によりBenzo[a]anthracene, Chrysene, Benzo[e]acephenanthrylene, Benzo[k]fluoranthene, Benzo[a]pyrene, Benzo[e]pyrene, Benzo[ghi]perylene, Indeno[1,2,3-cd]pyrene, Dibenz[a,h]anthracene, Coroneneを分析した。

### 3. 調査結果および考察

#### 3.1 PAHsの降下量

12月から2月までは冬型の気圧配置の影響で、東海地方の美並の降水量が北陸に比べ顕著に少なかった。北陸地方もこの期間ずっと降水量が多いわけではなく、12月下旬～1月中旬は前後の期間の半分程度であった。北陸地方の中では富来の降水量が少ない傾向にあった。これは富来が他の地点より、立山連峰、白山連峰などの脊梁山脈から離れているためである。まず、PAHsの降下量に関して北陸地方の6地点について比較してみると、全体として都市部の富山の降下量がやや大きい傾向にあり、同じく都市・都市近郊部の金沢、小杉も、化石燃料消費量が増加し、降下量が増大する12月上旬から2月中旬まで、農村部より大きい傾向にあった。農村部の小矢部、黒部は11月上旬から12月中旬まで調査を実施したが、降下量が増大する前の11月においては都市部と同程度の降下量であった。降下量が増大した12月上旬～中旬は都市部の方が高い傾向にあった。また、富来の降下量が12月上旬から2

月中旬まで小さい傾向にあった。しかし、富来では降水量が少なかったため、降水量 1mm あたりの降下量で見ると、富山に次いで富来が高くなった。すなわち、富来では降水量が少なかったため 1 日あたりの降下量は小さかったが、都市部と同程度に濃度の高い降水、降下物であったと言える。このように北陸地方では化石燃料消費量が増加し降下量が増大する 12 月上旬から 2 月中旬まで、都市部における PAHs 降下量がやや大きい傾向にあったが、農村部においても都市部と同程度の降下量が認められたとすることができる。次に、北陸地方と美並とを比較してみると、12 月上旬から 2 月中旬まで美並における 1 日あたり降下量は増加せず、極めて小さいことが認められた。これは美並の降水量が少なかったのが原因の一つである。さらに、濃度に相当する降水量 1mm あたりの降下量でもこの期間、とくに 12 月下旬～1 月中旬は美並の値が低いままである。しかし、冬型の気圧配置が崩れる 2 月中旬以降は美並における降下量が北陸地方と同程度となった。以上のように、12 月から 2 月にかけて北陸地方では PAHs 降下量が増大した。しかし、都市部の影響が少ないと考えられる富来でも降水量 1mm あたりの降下量は北陸の他地点と同程度であり、また東海地方の美並では冬季の増加が認められず、北陸の諸地点よりかなり低かった。これらのことは、東アジア諸国から長距離輸送されてきた PAHs が脊梁山脈の日本海側で降水により降下し、東海地方へはあまり到達しないことを示していると思われる。しかしながら、12 月上旬から 2 月中旬まで、北陸地方では都市部において降下量がやや大きい傾向があるので、国内の都市活動の影響も無視できない可能性がある。国内起源と大陸起源の寄与率については今後の課題である。

### 3.2 PAHs の組成

分析した PAHs 18 成分を 2～3 環(分子量 128～178)、4 環(202～228)、5 環(252)、5～7 環(276～300)の 4 つのグループに整理した。1 例として小杉における PAHs 組成の季節変化を図 1 に示す。全体として、同一調査期間ではそれぞれの地点で類似した傾向がみられたが、地点による相違もみられた。以下、調査期間ごとに検討する。11 月上旬～中旬では全ての地点で 2～4 環の低分子のものが多く、63～85%を占めていた。11 月中旬～12 月上旬では 11 月上旬～中旬と類似した結果だったが、4 環の PAHs の減少と 5 環の増加がわずかにみられた。12 月上旬～下旬では富山、美並では認められなかったが、他の地点で 2～3 環の PAHs の減少が認められた。またそれに伴い、4～7 環は増加した。12 月下旬～1 月中旬では富山、美並を除いた地点で 2～3 環がさらに減少した。また、5～7 環は増加がみられ、特に 5 環に関しては 4 つのグループで最大になる地点もあった。次に 1 月中旬～2 月中旬では 12 月下旬～1 月中旬と類似していた。しかし、富山では 2～3 環が多くを占めていた。2 月中旬～3 月中旬でも同じような傾向を示した。最後に 3 月中旬～4 月上旬ではどの地点でも 2～3 環や 4 環といった低分子の増加がみられ、2～3 環と 4 環で 60%以上となった。それに伴い、5～7 環は大きく減少した。以上のように、全体として、同一調査期間ではそれぞれの地点で類似した傾向がみられたが、地点による相違もみられた。美並では 2～4 環、富山では 2～3 環の PAHs が多い傾向にあった。経月変化に関しては、降下量の多くなる 12 月下旬～2 月中旬に 5～7 環の PAHs の割合が多くなり、11 月と 3～4 月では 2～4 環の割合が多いことが認められた。

