

大気浮遊粒子状物質に含まれる多環芳香族炭化水素の粒径分布特性

富山県立大学短期大学部 黒田吉宏・(正)奥川光治・鎌谷綾乃・(正)川上智規

1. はじめに

有機化合物は微量でも生物の体内に蓄積され、毒性を発現する可能性があるため、有害な有機微量汚染物質による人の健康への影響と生態系への影響が懸念されている。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、その一部や誘導体には発ガン性や変異原性(常盤, 1992)、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。著者らはここ数年北陸・東海において大気降下物中の PAHs に焦点をあて、その含有特性と降下量について解明し、長距離輸送の可能性を示唆してきた(奥川, 2007)。本研究の目的は、粒子径で分級して採取した大気浮遊粒子状物質(SPM)に含まれる3環から7環の PAHs の分布特性を明らかにし、長距離輸送を考察するための基礎資料を得ることである。

2. 方法

調査地点は富山県中央部の都市近郊にある富山県立大学であり、4階建ての短大部棟屋上にアンダーセンサンプラー(柴田科学 AN-200)を設置し、SPM を粒子径で8段階に分級して採取した。調査は2007年10月末から原則として月1回、合計4回実施した。以下では11月、12月、1月および3月の調査と称する。吸引流量は 28.3 L min^{-1} で、各回の吸引日数は10日ないし14日程度である。濾紙には、純水中での超音波洗浄後 600°C で強熱処理した石英フィルター(東京ダイレック 2500QAT-UP)を使用した。

SPM を採取した石英フィルターは、ジクロロメタン(DCM)でソックスレー抽出した。抽出液は硫酸ナトリウムのカラムで脱水後、ロータリーエバポレータを使用し 45°C で減圧せずに濃縮し、アセトンにより4mLに定容した。そのうち2mLは揮散防止剤として $50 \mu\text{L}$ のジメチルスルホキシド(DMSO)を加えて、窒素気流下 $40\sim 50^\circ\text{C}$ でアセトンを蒸発させたのち、アセトニトリルで2mLとした。このようにして得られたアセトン溶液、アセトニトリル溶液をそれぞれ GC/MS、HPLC の分析に供した。なお、アセトン、DCM、硫酸ナトリウムは残留農薬分析用を使用した。また、アセトニトリルは HPLC 用を、DMSO は生化学用を使用した。SPM を採取した石英フィルターと前処理後の濃縮サンプルは -20°C の冷凍庫で保存した。

PAHs は GC/MS-SIM 法により低分子量の4成分(Anthracene, Phenanthrene, Fluoranthene, Pyrene)を、また蛍光検出 HPLC を用いてアセトニトリル-水によるグラディエント法で高分子量の10成分(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, Dibenzo[a,h]anthracene, Coronene)を分析した。以下ではそれぞれ ANT, PNT, FLRT, PRN, BaA, CRS, BeAP, BkF, BaP, BeP, BghiPRL, I123cdP, DBahA, CRN と略記する。なお、ANT と PNT はピークの分離が不十分だったため、合計量で扱った。使用した GC/MS は島津製作所製の GCMS-5050A、キャピラリーカラムは

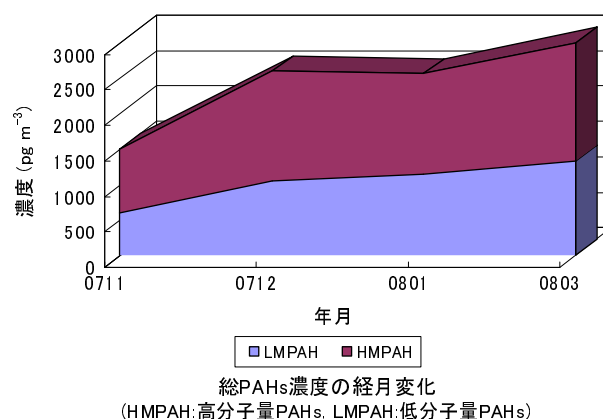


図1 総 PAHs 濃度の経月変化。

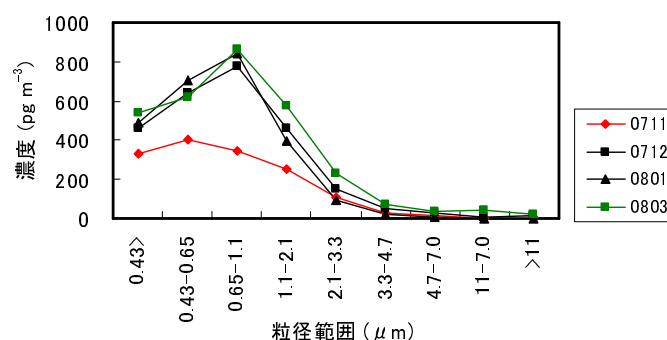


図2 総 PAHs 濃度の粒径分布の経月変化。

J&W Scientific 製の DB-5(長さ 30m×内径 0.249 mm), HPLC は島津製作所製の LC-VP シリーズ, 分析カラムは Vydac 製の 201TP54(長さ 250mm×直径 4.6mm)である.

3. 結果および考察

図 1 に総 PAHs 濃度の経月変化を, 図2には総 PAHs 濃度の粒径分布の経月変化を, さらに図3~8 に全粒径区分ならびに粒径区分毎(一部省略)の PAHs 組成の経月変化を示した. 図中の 0711 等は調査年月である. 以下, 特徴点を挙げる.

(1)総 PAHs 濃度は 11 月 1500 pg m^{-3} , 12 月 2590 pg m^{-3} , 1 月 2560 pg m^{-3} , 3 月 3000 pg m^{-3} であった. 既往の研究でも冬期に大気や降水中の PAHs 濃度が高くなると指摘されている. 3 月が最も高かったのは降水の頻度が小さく, 降水による大気の洗浄があまりなかったためと考えられる.

(2)PAHs 濃度が高くなる粒径区分は, どの月も $2.1 \sim 3.3 \mu\text{m}$ 以下の粒径区分であり, PM2.5 と対応する. 最も濃度の高い粒径区分は 11 月では $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$, 12~3 月では $0.65 \sim 1.1 \mu\text{m}$ の粒径区分であった.

(3)PAHs 成分に注目すると, 11 月他は他の月と傾向が異なり, BeAP, BghiPRL, PRN, BeP, FLRT の順に多かった. 12~3 月では BeP, BeAP, ANT+PNT, FLRT, PRN などが多かった. その中でも 3 月は低分子量の PAHs が多くなる傾向にあった.

(4)自動車の排気ガス起源が多いと言われる BghiPRL と CRN の比率は, 11 月に比べ, 12~3 月に減少した. これは 12~3 月は暖房起源の成分が多くなるためと思われる.

参考文献

奥川光治(2007)環境工学研究論文集, 44.

常盤寛(1992)大気汚染学会誌, 27(1).

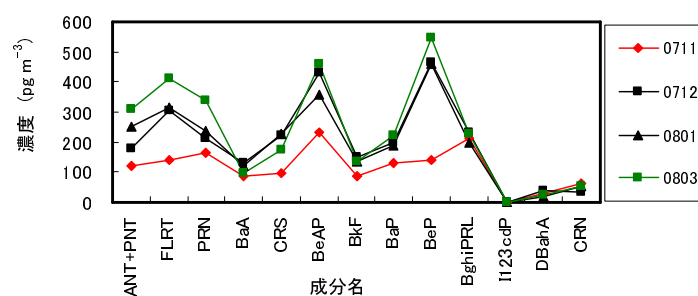


図3 PAHs 組成の経月変化(全粒径区分).

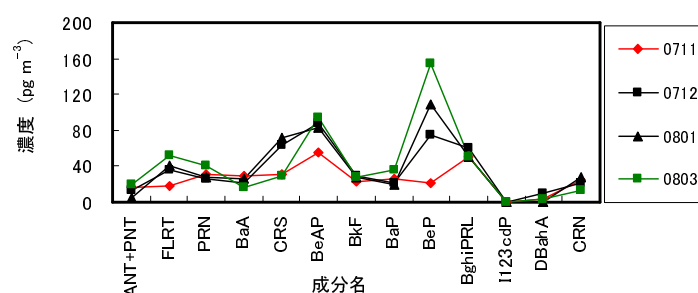


図4 PAHs 組成の経月変化(粒径区分8, $0.43 \mu\text{m}$ 以下).

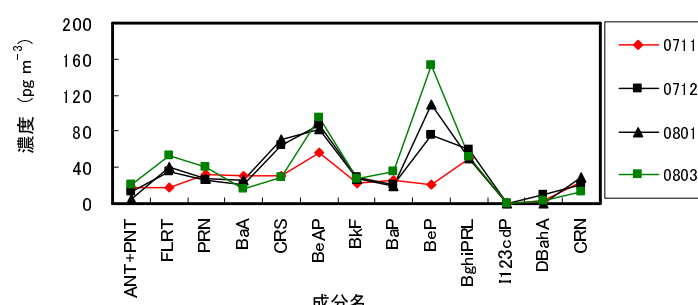


図5 PAHs 組成の経月変化(粒径区分7, $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$).

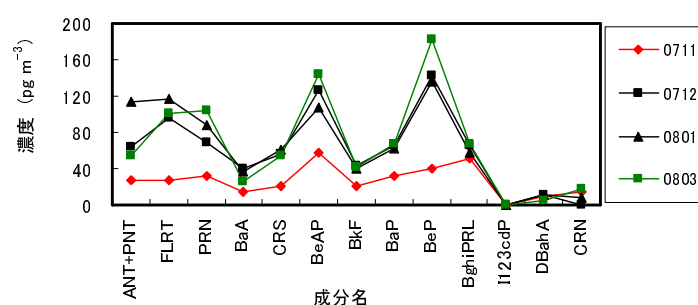


図6 PAHs 組成の経月変化(粒径区分5, $0.65 \sim 1.1 \mu\text{m}$).

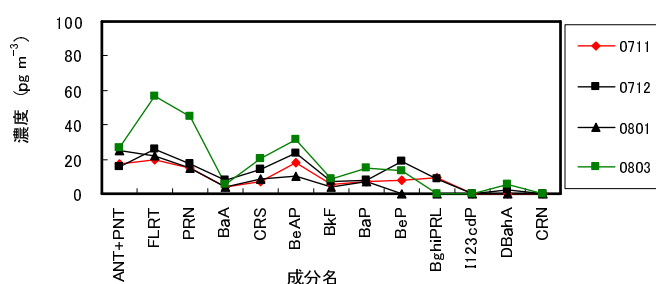


図8 PAHs 組成の経月変化(粒径区分5, $2.1 \sim 3.3 \mu\text{m}$).

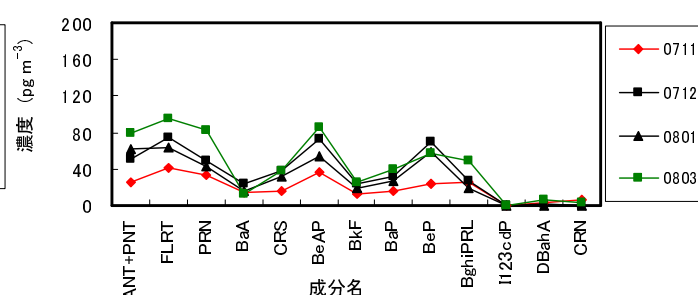


図7 PAHs 組成の経月変化(粒径区分5, $1.1 \sim 2.1 \mu\text{m}$).