

B-15 降水中の多環芳香族炭化水素および基礎的水質成分の時間変動特性

富山県立大学短期大学部 奥川光治

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。その中で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り、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、降水の変異原性や降水中のPAHsについて、季節変化や地域変動を解明してきた(奥川・天野, 1998; 奥川ら, 1999)。本論文では、降水中のPAHsおよび基礎的水質成分に焦点をあて、降り始めから降り終わりまでの時間変動特性を明らかにし、その影響要因を解析することを目的とした。

2. 調査・分析方法

調査期間は1998年8月12～16日, 11月9～10日, 11月16～18日であり、それぞれ調査98A, 調査98B, 調査98Cとする。降水の採取地点は富山県射水郡小杉町にある富山県立大学内の2階建て建物の屋上である。降水の採取には直径39cmのステンレス製ボールまたは90cm×60cmのステンレス板から製作した採取装置を使用した。採取場所にはビニールシートを敷き、雨滴の跳ね返りによる堆積物の混入を防いだ。

分析項目はpH, 電気伝導率(EC), 懸濁性物質質量(SS), 紫外部吸光度(E_{260}), 化学的酸素要求量(COD_{Cr}), 各種陰イオン・陽イオン, PAHs等である。PAHsはGC/MS-SIM法によりフルオランテンとピレンを分析した。PAHsの分析ではグラスファイバーフィルター(ADVA NTEC製, GB140)で濾過して分画した溶存態(Sol)ならびに懸濁態(Part)のサンプルについて、前処理をしたのち分析を行なった(奥川, 1999)。

3. 調査結果および考察

3.1 調査98A

1998年8月12～16日の降雨に対して5つのサンプルを採取した(表1～2)。図1にフルオランテン濃度の時間変化を、また図2に Sample 1 を1としたときの相対濃度と相対降水量の逆数を示した。相対降水量の逆数は Sample

表1 降水サンプルの採取日時

サンプル番号	開始年月日	開始時刻	終了年月日	終了時刻
98/08/12-1	98/08/12	08 35	98/08/12	11 10
98/08/12-2	98/08/12	11 10	98/08/12	18 00
98/08/12-3	98/08/12	18 00	98/08/13	10 55
98/08/12-4	98/08/13	17 30	98/08/14	09 00
98/08/12-5	98/08/15	13 30	98/08/16	10 40
98/11/09-1	98/11/09	19 15	98/11/09	20 45
98/11/09-2	98/11/09	20 45	98/11/10	05 50
98/11/16-1	98/11/16	21 00	98/11/17	03 30
98/11/16-2	98/11/17	03 30	98/11/17	11 30
98/11/16-3	98/11/17	14 30	98/11/18	10 50

表2 調査時の降水条件

調査開始日 サンプル番号	採取した 降水量 mm	降り始めから 採取開始まで の降水量 mm	先行無降雨 時間	先行降雨			先行降水量 mm	
				月日	降水量 mm	最大降雨 強度 mm/h	5日間	10日間
98/08/12-1	85	22	4 d 17 h	8/7	107	55	98	196
98/08/12-2	7	107						
98/08/12-3	67	114						
98/08/12-4	22	211						
98/08/12-5	17	0	1 d 23 h	8/12-14	233	55	232	339
98/11/09-1	12 5	0 5	6 d 14 h	11/3	3 0	3 0	0 0	3 0
98/11/09-2	5 0	13 0						
98/11/16-1	12 0	0 5	4 d 15 h	11/11-12 *	7 0	2 0	1 5	27 0
98/11/16-2	5 0	12 5						
98/11/16-3	32 5	17 5						

* 11/13に0.5mmの降雨あり

1の降水量に対して何分の1かを表わしている。降水を採取した継続時間やその他の要因の影響もあるので単純にはいえないが、一般に、採取した降水量が少ないと降水中の物質濃度は高くなると考えられる。単純

に降水量が少ないためにその分高濃度になるとしたときのその倍率の目安として相対降水量の逆数を考えた。溶存態(S-FI)では時間の経過とともに減少する傾向が認められた。降水量も Sample 2 を除き減少傾向であったことを考えると、一様な降雨であれば降り始めでさらに濃度が高くなり、その後の減少傾向も大きくなるといえる。懸濁態(P-FI)では Sample 2, 5 で濃度が上昇した。これは Sample 2, 5 で降水量が少なかったこと、またさらに Sample 5 では一旦雨があがり47時間の無降雨時間後のサンプルであることが原因と思われる。しかし、Sample 2 では相対降水量の逆数が12.1なのに対し、P-FIの相対濃度は1.25になっているにすぎず、溶存態と同じように降り始めで濃度が高くなるといえる。同様に Sample 5 では相対降水量の逆数が5であるのに対し、P-FIの相対濃度は1.89になっているにすぎない。これには Sample 5 の先行無降雨時間が Sample 1 に比べ短いことも関係していると考えられる。いずれにしても溶存態に比べ懸濁態では降水量の多少の影響が大きかった。これは懸濁態の場合、乾性降下物の寄与があるためと考えられる。図には示さないが、ピレンについても同様の結果が得られた。また、多くの基礎的水質項目でもPAHsと同様に Sample 2, 5 で高くなる傾向を示した(図3)。

3.2 調査98B

1998年11月9日から10日にかけて2サンプルを採取した(表1~2)。図4にフルオランテンの相対濃度と相対降水量の逆数の時間変化を示した。溶存態も懸濁態も Sample 1 より 2 の方が濃度が上昇した。ピレンも同様の結果であった。しかし、これは Sample 1 より Sample 2

の方が降水量が少ないためである。すなわち、Sample 2 の相対濃度はS-FIで1.45、P-FIで1.17であった。しかし、相対降水量の逆数は2.5であり、調査98Aと同様に一様な降雨であれば降り始めの方が濃度が高くなるといえる。また、基礎的水質項目について見ると、多くの項目でPAHsと類似の傾向を示した。しかし、 Cl^- と Na^+ では冬型の気圧配置の影響のため Sample 2 での増加が顕著であった。

3.3 調査98C

1998年11月16日から18日の間に3サンプルを採取した(表1~2)。フルオランテンの時間変化(図5)を見ると、溶存態では Sample 2 で少し増加し、Sample 3 で Sample 1 のレベルまで戻ったことがわかる。懸濁態では Sample 2 で大きく増加し、Sample 3 で Sample 1 のレベル以下まで減少した。この調査のときも Samp

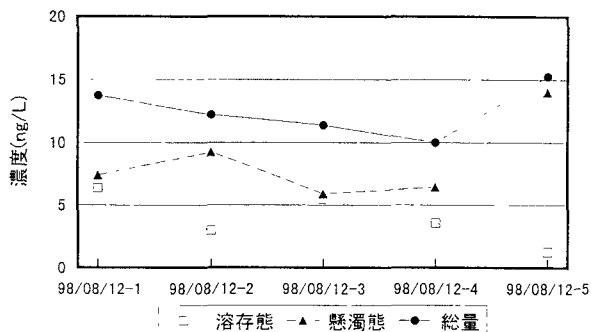


図1 Fluoranthene濃度の時間変化 (1998/8/12-16)

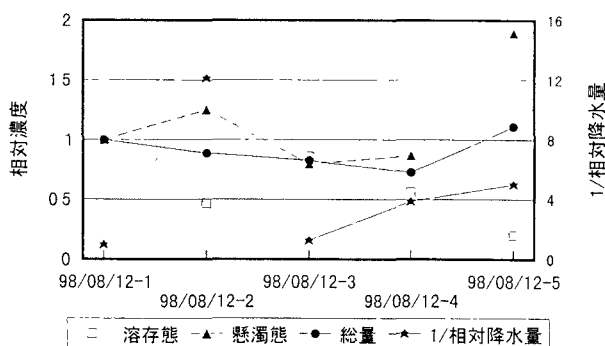


図2 Fluoranthene相対濃度の時間変化 (1998/8/12-16)

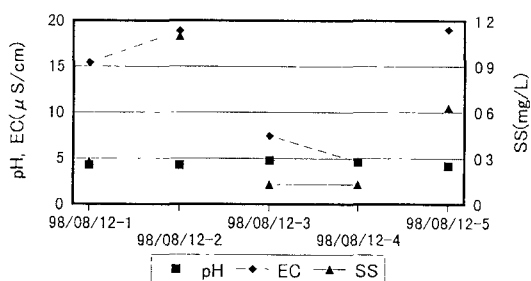


図3 降水水質の時間変化(pH, EC, SS).

le 2 で降水量が少なかったのが原因であり、溶存態では降雨強度が一樣であれば降り始めが高くなるであろう。しかし、懸濁態では Sample 2 で相対降水量の逆数が2.4に対し相対濃度は5.48であり、降水量の多少の影響以外の原因があると思われる。また同様に、Sample 3 では相対降水量の逆数が0.37に対し、相対濃度はS-FIで1.08、P-FIで0.62となっており、降水量の多少の影響以外の原因があると考えられる。Sample 2 から3にかけて風が強く、粒子状物質の混入が多くなったのが原因と思われる。また冬型の気圧配置になり、北西の季節風により大陸諸国からの大気汚染物質の影響を受けたことも原因の一つである可能性もある。なお、調査98A、98Bと同じように、ピレンについても同様の結果が得られた。また、多くの基礎的水質項目ではPAHsと類似の傾向を示した。しかし、 Cl^- と Na^+ では調査98Bと同様に北西の季節風の影響のため Sample 3 でも顕著な増加となった。

4. おわりに

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、本論文では降水中のPAHsおよび基礎的水質成分に焦点をあて、降り始めから降り終わりまでの時間変化特性を、3回の調査結果から明らかにした。

得られた結論は以下のとおりである。(1)降水中の汚染物質の濃度は一般に採取した降水量の多少の影響を受け、降水量が多いと希釈効果により濃度が低下し、降水量が少ないと濃度が上昇する。このことを考慮すると、PAHsおよび多くの基礎的水質成分の濃度は降り始めで高くなり、降雨の継続とともに低下する傾向にあった。(2)採取した降水量の多少の影響は溶存態よりも懸濁態で大きかった。これは懸濁態の場合、乾性降下物の寄与があるためと考えられる。(3)降水中のPAHsおよび多くの基礎的水質成分の濃度は、降雨の断続状態の影響を受け、雨が一旦あがった後再び降った場合、上昇した。また、風が強いと堆積していた粒子状物質の混入により懸濁態の濃度が上昇した。(4)冬型の気圧配置になり、北西の季節風が強まると、大陸諸国からの大気汚染物質の影響を受け、降水中のPAHsの濃度が上昇する可能性が示唆された。

以上のように降水中の汚染物質の時間変化特性は降雨継続時間、採取した降水量の多少、降雨の断続状態、風向・風速など多くの要因の影響を受けている。有機微量汚染物質の分析では大量のサンプルが必要なので、より単純な条件での降雨の採取は困難であるが、一定の降水量ごとのサンプリング、より大量のサンプリングが可能な採取装置の開発など調査上の工夫が必要である。また、降水中の汚染物質の季節変動や地域変動を解明する場合、時間変動を考慮したサンプリングが必要であるといえる。

本研究の遂行にあたり、1998年度ゼミ生(高橋幸栄さん、野澤智琴さん、日野原奈緒さん、吉井真理子さん)の協力を得た。記して深甚なる謝意を表したい。

5. 参考文献

- 奥川光治、天野智順(1998)環境衛生工学研究, Vol.12, No.3, pp.186~191.
- 奥川光治、井城慶子、長澤ひとみ、石田博子(1999)第33回日本水環境学会年会講演集, p.388.
- 奥川光治(1999)環境衛生工学研究, Vol.13, No.3, pp.144~149.

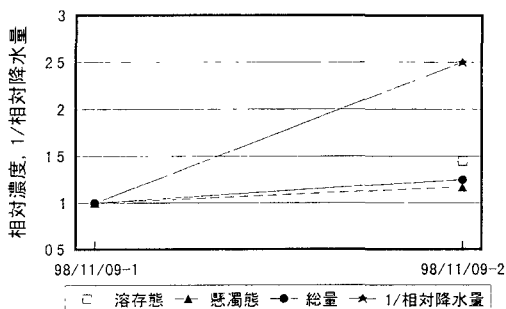


図4 Fluoranthene相対濃度の時間変化(1998/11/9-10).

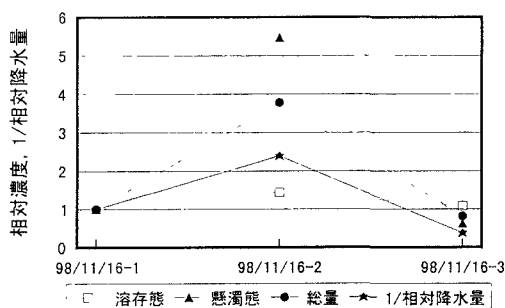


図5 Fluoranthene相対濃度の時間変化(1998/11/16-18).