

Net Flux を用いた PAHs 及び PM の乾性沈着測定

広島大学大学院工学研究科 学生会員 ○小島啓輔

正会員 尾崎則篤

正会員 金田一智規

1. はじめに

多環芳香族炭化水素類(PAHs)は、発がん性、変異原性を有しており、非特定汚染源からの汚染物質として水環境を汚染している。PAHs は主に自動車排ガスなどの燃焼過程により生成し、粒子状物質(PM)に付着した状態で排出され、乾性沈着、湿性沈着により地表面に降下・堆積し降雨時に水域に流出する。水環境への影響を評価する手法として、地表面への降下量を測定し、水域への流出負荷を算定する手法がある。地表面への降下負荷を算定するには、一般的に地表面からある程度はなれた所に捕集容器を設置して、堆積した量から降下 Flux を算出する方法が用いられている。しかし、大気中での粒子は、自重により沈降するのみではなく、拡散によっても上昇、下降しており、両者はバランスをしていると考えられるが、一般の捕集容器は、待従に加えて拡散による沈降も測定しており、そのため過大評価になっている可能性がある。そこで、本研究では、この影響の程度を見積もるための基礎的な知見を得ることを目的とし、PM、PAHs の降下 Flux(Downward Flux)と上昇 Flux(Upward Flux)を測定した。そして、Downward Flux から Upward Flux を差し引いた量を Net Flux として算定した。

2. 測定方法

粘着性のプレートを用いて PM 及び PAHs の Downward Flux、Upward Flux を測定した。サンプリング地点は広島大学 A2 棟屋上とし、測定時間は原則として無降雨時の 3 日間(2~4 日)とした。測定面は屋上の地面より高さ 1.5m の位置に設置した。この他に降下粉塵に影響する因子として PM・PAHs 大気中濃度、風向、風速、温度、湿度、降水量、日射量の経時変化を調べた。なお、粘着性のプレートを用いた捕集方法については、従来の測定法である容器による捕集量と比較し、Downward Flux についてはおおむね一致していることを確認した¹⁾。

PAHs の分析は、Dichloromethane で超音波抽出をした抽出液を GC/MS(島津製作所製 GC-17A/MS-QP5050)を用いて測定した。以下で報告した PAHs は 16 種類の PAHs(*)の合計値で表したものである。

3. 測定結果

PM、PAHs の乾性沈着 Flux を 2004 年 10 月~2005 年 3 月にかけて測定を行った。その測定結果を図 1 に示す。

【PM Flux】 PM の Downward, Upward, Net Flux は、それぞれ 11.0 ± 9.3 , 6.0 ± 5.9 , 5.1 ± 9.0 [$\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$] (平均値±標準偏差)となった。Upward Flux は Downward Flux に比べていくつか例外的に大きな値になったのはあるものの、Downward Flux の 0.2~0.6 倍程度で推移した。Downward, Upward Flux の相関を考える際に、例外的に大きな値を除くと相関($R^2=0.49$)が良くなる。よって、何らかの影響により Upward Flux が例外的に大きくなったと考えられる。

【PAHs Flux】 PAHs の Downward, Upward, Net Flux は、それぞれ 180 ± 143 , 196 ± 194 , 14 ± 134 [$\text{ng} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$]となった。Upward Flux は Downward Flux とほぼ同程度になり、0.5~1.3 倍程度の範囲で推移した。Downward, Upward Flux で相関($R^2=0.52$)が見られた。

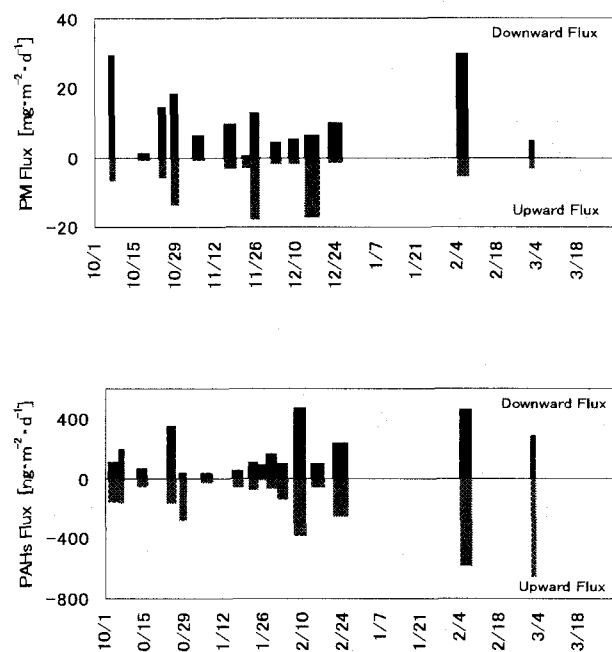


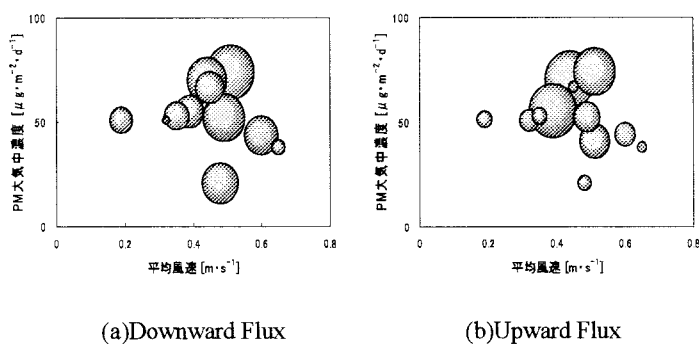
図1 PM Flux(上)及び PAHs Flux(下)の経日変化
(各棒の幅の違いは測定期間の違いを表している)

【環境因子】 本測定では、さまざまな環境因子を測定し、PM、PAHs Flux に与える影響を考察した。しかし、多くの環境因子で明確な関係を得ることができなかった。その中で、風速、PM 大気中濃度には PM Flux に対して以下のような傾向がみられた。一般に PM 大気中濃度は風速が大きくなれば小さくなる傾向がある。よって、PM Flux は風速及び風速の影響を受けている大気中濃度の両者からの複雑な影響を受けていることになる。本測定では、風速が $0.4 \sim 0.5[\text{m} \cdot \text{s}^{-1}]$ のときに PM Flux の大きい値が集中しているのが分かる(図 2)。また、図 3 は測定期間中の風速と PM Upward Flux の相関図である。平均風速と Upward Flux には相関がみられなかったが、最大風速と Upward Flux には相関($R^2=0.49$)がみられた。よって、拡散による上昇分である Upward Flux は一瞬でも強い風が生じると PM は激しく拡散され測定面に付着すると考えられる。また、Upward Flux が例外的に大きくなったのは、風により一旦地表面に堆積していた PM が巻き上げられ、測定面に付着したのではないかと考えられる。平均風速及び最大風速と Downward Flux には明確な相関がみられなかった。このことから自重により沈降する PM、つまり Net Flux は風速と相関がなく影響を受けていると推測される。次に大気中濃度の及ぼす影響を考察した。PM Flux では Downward Flux でやや比例関係の傾向がみられるが明らかな相関は得られなかった。Upward Flux では相関($R^2=0.30$) がみられた。よって、大気中濃度が大きいほど拡散の影響を受けやすいと考えられる。

4. 考察

本研究で測定された Net Flux を地表面への降下負荷の真値と見なすと、真値は従来の測定法(Downward Flux)に対して PM で半分程度、PAHs で 2 割程度まで少ないことになる。いわゆる降下煤塵(PM)に関しては、それほど解離が大きいとは言えないが PAHs ではその差は大きい。この妥当性を検討するには、まず、空気力学的にさまざまな因子が Downward、Upward に影響を与えていると考えられ、その程度を検討することが重要である。しかしながらいずれの方法であっても Flux へ与える測定上の歪みを完全に排除することは困難であり、別な観点からの検討も必要になってくる。

直接的な検討方法としては地表面への堆積そのものを回収することが適当であるが、地表面上は材質、形状ともに場ごとの不均一性が高く、平均的な値を得ることは困難である。もうひとつの場としては雨天時流出の最終的な行き先となる海洋の底泥がある。堆積から水域への流出にはさまざまなパスがあり直接的な関連をとらえることは簡単ではないが時空間的に平均化された情報を得やすく、安定的な評価を行いやすいという利点がある。今後、こういった部分での比較により妥当性を評価していきたいと考えている。また、PM 大気中濃度は季節ごとに値が変化し、PM Flux に対してそれぞれ異なった影響を与える可能性が考えられる。したがって、通年を通しての測定を行い、季節ごとの Net Flux を把握することが必要とされる。



(a)Downward Flux (b)Upward Flux
図 2 平均風速と PM 大気中濃度、PM Flux の関係
(円の大きさが PM Flux の量を示している)

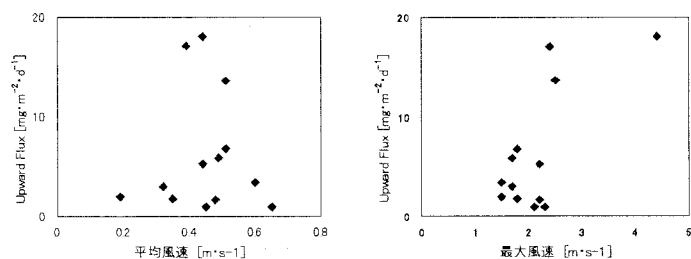


図 3 平均風速(左)及び最大風速(右)と PM Upward Flux の相関図

1) 徳光ら, (2005) 第 39 回日本水環境学会年会講演集, 454

* Acenaphthene, Acenaphthylene, Anthracene, Benzo(a)anthracene, Benzo(a)pyrene, Benzo(b)fluoranthene, Benzo(e)pyrene, Benzo(ghi)perylene, Benzo(k)fluoranthene, Chrysene, Dibenzo(a,h)anthracene, Fluoranthene, Fluorene, Indeno(1,2,3-cd)pyrene, Phenanthrene, Pyrene