

大気環境中における多環芳香族炭化水素 (PAH) の挙動

関本順之、吉村博文* (*現鳥栖保健福祉事務所)

要 旨

多環芳香族炭化水素 (PAH) の大気環境中における挙動を明らかにするため、一般環境及び沿道環境のそれぞれ1地点で PAH 15 物質の大気環境調査を実施した結果、以下のことが明らかとなった。

① PAH は、大気環境中においてガス態及び粒子吸着態の両形態で存在し、その分配は分子量や構造及び気候等の条件に依存する。② 3 環の PAH は夏期に比べ冬期が 2~100 倍程度高い傾向にあったが、4 環以上では有意な季節変動はみられなかった。③ 沿道環境では、朝及び夕方の通勤時間帯にピークが見られたが、一般環境では、大きな日内変動はみられなかった。④ 各 PAH と NO、CO 等常時監視項目との相関の傾向は季節により異なっており、それぞれの発生及び拡散の過程が異なる可能性が示唆された。

キーワード：多環芳香族炭化水素

はじめに

多環芳香族炭化水素 (PAH) は、芳香環を二つ以上持つ炭化水素化合物の総称であり、その中には発癌性や変異原性といった有害性を示す物質が多く含まれ^{1)、2)、3)}、中央環境審議会により選定された「有害大気汚染物質に該当する可能性がある物質」に 10 種類以上の PAH が挙げられている。

PAH は、自動車排ガスや石油、石炭等の化石燃料、木材、紙類等の炭素と水素を含む化合物が不完全燃焼した際に発生する煙の中に含まれており、主に大気中に放出されている³⁾。放出された PAH の環境中での挙動は複雑であり、それぞれの PAH の発生の過程により環境大気中における PAH の組成は異なってくるため、その動態を明らかにすることは、効果的な PAH 対策を立案する上で重要である。

そこで、一般環境と沿道環境において、PAH 15 物質の大気中濃度を調査した。また、発生源との関連を明らかにするため、それぞれの地点で、季節変動、日内変動の検討を行った。

調査方法

調査時期：2004 年 8 月 26 日~27 日及び
2005 年 1 月 17 日~18 日。

調査地点：大気常時監視局佐賀局 (一般環境)
及び佐賀警察署 (沿道環境)。

採取方法：ハイボリュームエアサンプラー
HV-700F (SIBATA 製) を用いて、
700L/min の 3 時間採取を 8 回繰り返
し、24 時間を 8 時間帯に分割し
て採取した。

分析方法：粒子状物質を捕集したろ紙及びガ
ス状物質を捕集したポリウレタン
フォーム (PUF) をそれぞれ高速溶
媒抽出装置 ASE-300 (DIONEX 製) を
用いてアセトン：ジクロロメタン
(1:1) の混合溶媒で抽出し、濃縮後、
d₁₂-benzo (a) pyrene を添加し、高
分解能ガスクロマトグラフ質量分
析計 JMS-700 (JEOL 製) を用いて
SIM 測定を行った。

なお、キャピラリカラムは BPX-50

(長さ 30m、内径 0.32mm、膜厚 0.25 μm) を用いた。

測定物質：3 環；acenaphthylene、
acenaphthene、
fluorene、
phenanthrene、
anthracene
4 環；fluoranthene、
pyrene、

benzo(a) anthracene、
chrysene
5 環；benzo(b) fluoranthene、
benzo(k) fluoranthene、
benzo(a) pyrene、
dibenzo(a, h) anthracene
6 環；indeno(123-cd) pyrene、
benzo(g, h, i) perylene
これらの構造式を図-1 に示す。

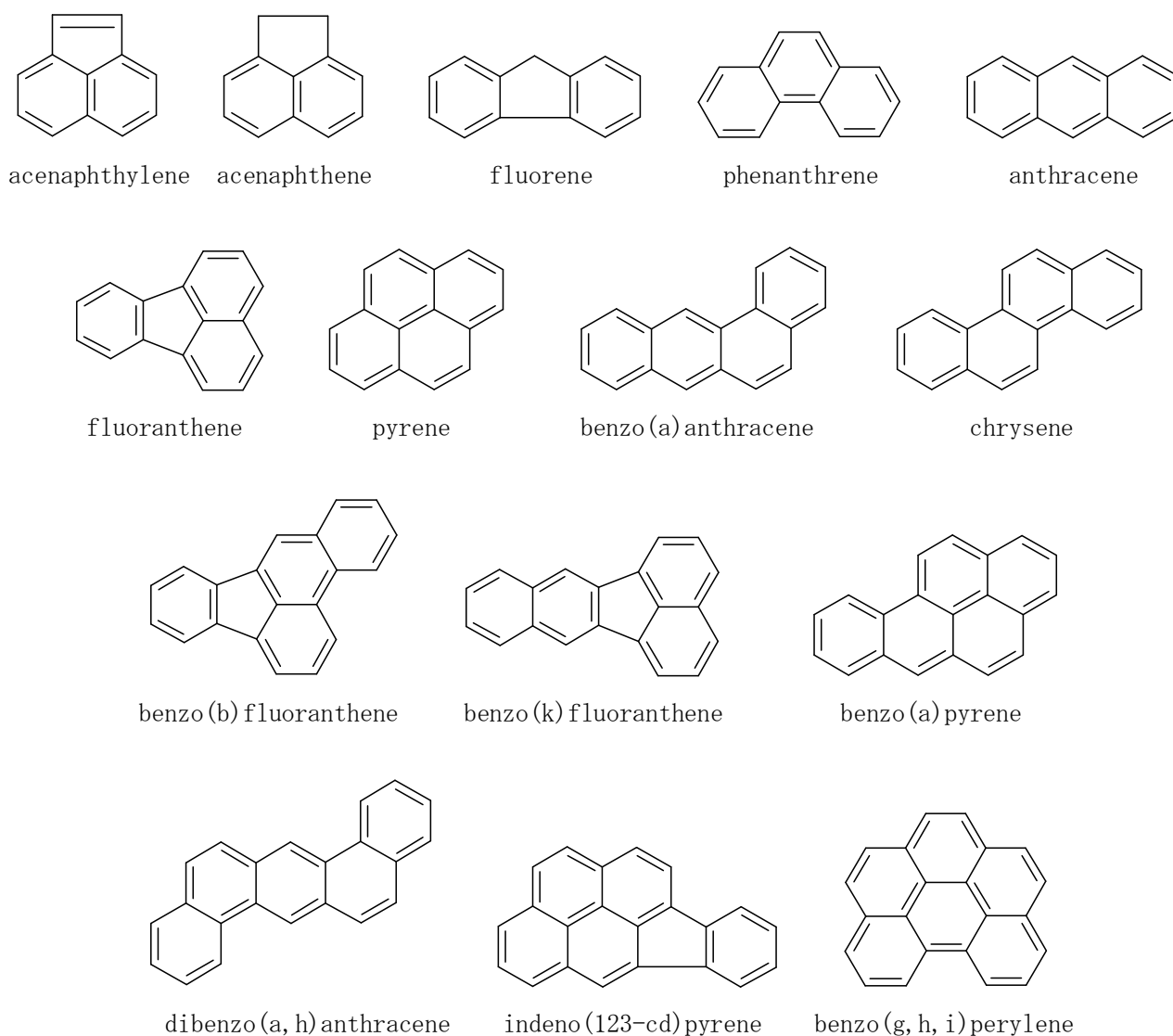


図-1 多環芳香族炭化水素 (PAH) の構造式

結果及び考察

(1) 大気環境中における存在形態

大気環境中における各 PAH の粒子吸着態及びガス態の分配を表-1 に示す。なお、分配率は、ろ紙及び PUF のそれぞれ

の調査結果から、大気中濃度に対するろ紙中濃度(粒子吸着態中濃度)の割合(%)で表した。

環境大気中において、3環のPAHはそのほとんどがガス態で、5環及び6環のPAHは粒子状物質に吸着した状態(粒子吸着態)で存在していることが明らかになった。

4環のPAHのうちbenzo(a)anthracene及びchryseneはそのほとんどが粒子吸着態で存在していたが、fluoranthene及びpyreneは両形態で存在しているもののガス態の比率が高く、また、その分配は、気候等の条件に影響を受けることが示唆された。

表-1 大気中PAHの粒子吸着態：ガス態分配
filter濃度 / (filter濃度 + PUF濃度) × 100 (%)

		夏季		冬季		環数
		沿道	一般	沿道	一般	
C12H8	acenaphthylene	2	8	0	0	3環
C12H10	acenaphthene	2	1	0	0	
C13H10	fluorene	1	1	0	0	
C14H10	phenanthrene	2	2	0	1	
	anthracene	4	5	0	1	
C16H10	fluoranthene	21	13	5	6	4環
	pyrene	25	15	6	6	
C18H12	benzo(a)anthracene	99	88	99	98	
	chrysene	98	75	98	97	
C20H12	benzo(b)fluoranthene	100	99	100	100	5環
	benzo(k)fluoranthene	100	100	100	100	
	benzo(a)pyrene	100	100	100	100	
C22H12	indeno(123-cd)pyrene	100	100	100	100	6環
	benzo(ghi)perylene	100	99	100	100	
C22H14	dibenzo(a,h)anthracene	100	100	100	100	5環

(2) 各PAH濃度及び季節変動

大気環境中における各PAH濃度の日平均値を表-2に示す。

PAHの総濃度は、沿道では夏期27ng/m³N、冬期81ng/m³N、一般環境では夏期16ng/m³N、冬期59ng/m³Nであった。

各PAHでは、夏期では、3環のphenanthrene及び4環のfluoranthene、pyreneが他のPAHに比べ、比較的高濃度であったのに対し、冬期では前述の3物質に加え、3環のPAH全てが高濃度であった。

夏期及び冬期における各PAH濃度を比

較すると、3環のPAHは夏期に比べ冬期が2~100倍程度高い傾向にあったが、4環以上では有意な季節変動はみられなかった。

表-2 大気中PAH濃度の日平均値

		(ng/m ³ N)							
		夏季		冬季		冬/夏		沿道/一般	
		沿道	一般	沿道	一般	沿道	一般	夏季	冬季
C12H8	acenaphthylene	0.83	0.12	18.92	13.96	22.7	113.9	6.8	1.4
C12H10	acenaphthene	0.50	0.52	8.25	7.33	16.6	14.2	1.0	1.1
C13H10	fluorene	1.81	1.51	13.07	9.03	7.2	6.0	1.2	1.4
C14H10	phenanthrene	13.28	8.29	28.45	18.89	2.1	2.3	1.6	1.5
	anthracene	1.14	0.29	3.46	2.52	3.0	8.7	4.0	1.4
C16H10	fluoranthene	2.99	1.93	3.60	2.56	1.2	1.3	1.5	1.4
	pyrene	2.96	1.35	3.36	2.18	1.1	1.6	2.2	1.5
C18H12	benzo(a)anthracene	0.25	0.12	0.26	0.22	1.1	1.8	2.0	1.2
	chrysene	0.57	0.39	0.42	0.36	0.7	0.9	1.4	1.2
C20H12	benzo(b)fluoranthene	0.55	0.39	0.37	0.37	0.7	1.0	1.4	1.0
	benzo(k)fluoranthene	0.17	0.13	0.16	0.18	0.9	1.4	1.3	0.9
	benzo(a)pyrene	0.32	0.22	0.33	0.36	1.0	1.6	1.4	0.9
C22H12	indeno(123-cd)pyrene	0.41	0.37	0.36	0.39	0.9	1.1	1.1	0.9
	benzo(ghi)perylene	0.70	0.40	0.45	0.35	0.6	0.9	1.7	1.3
C22H14	dibenzo(a,h)anthracene	0.05	0.06	0.04	0.05	0.8	0.9	0.8	0.7
total PAHs		27	16	81	59	3.1	3.6	1.6	1.4

(3) 日内変動

一般環境における各PAHの日内変動を図-2に、沿道環境における日内変動を図-3に示す。なお、日内変動は、各PAHの全時間帯の合計濃度に対する各時間帯の濃度の割合(%)として表した。

沿道環境では、ほとんどのPAHが朝及び夕方通勤時間帯にピークを持ち、自動車排ガスの影響を受けていることが示唆された。

また、一般環境では、冬期の朝にすべてのPAHが高い値を示した以外では、若干の通勤時間帯のピークはあるものの、事業場等固定発生源に特有の昼間のピークもみられず、大きな日内変動はみられなかった。

(4) 大気常時監視項目との相関

各PAHと大気常時監視項目との相関を表-3及び表-4に示す。

沿道環境では、夏期は粒子状PAHとNO₂

及びCOとの相関が高く、冬期はガス状PAHとNO及びCOの相関が高かった。PAHとNO、CO等は、ともに自動車排ガスに起因するものではあるが、それぞれの発生及び拡散の過程が異なること、並びに、異なる別の発生源の影響を受けている可能性が考えられた。

また、一般環境では、冬期にPAHとNO及びSPMとの相関が高かった。

参考文献

- 1) 久松由東 大気環境中の発癌物質：大気環境学会誌 34(6)A43-A52(1999)
- 2) 常磐寛 芳香族炭化水素ニトロ誘導体の変位原性、発がん性とその危険度：大気環境学会誌 27(2)73-84(1992)
- 3) 環境保健クライテリアNo.202(1998) 世界保健機関

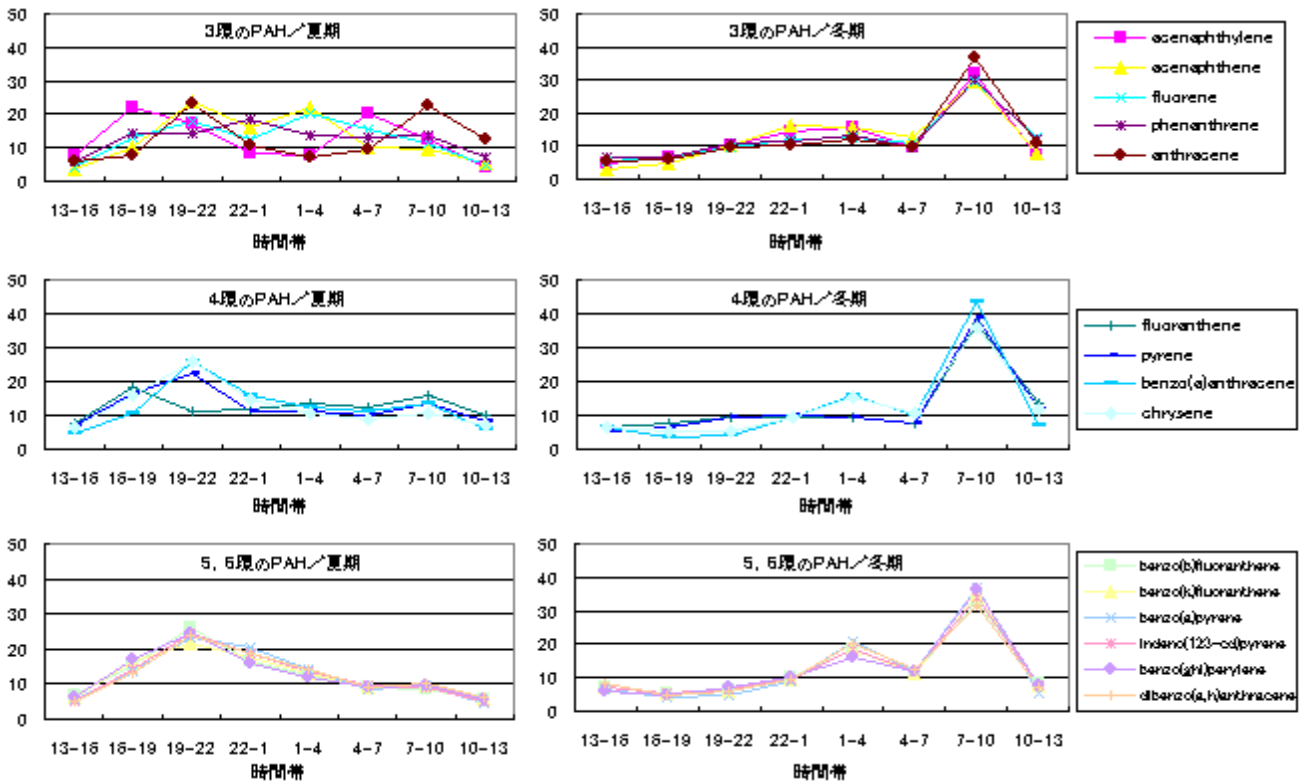


図-2 一般環境における PAH 濃度の日内変動 (%)

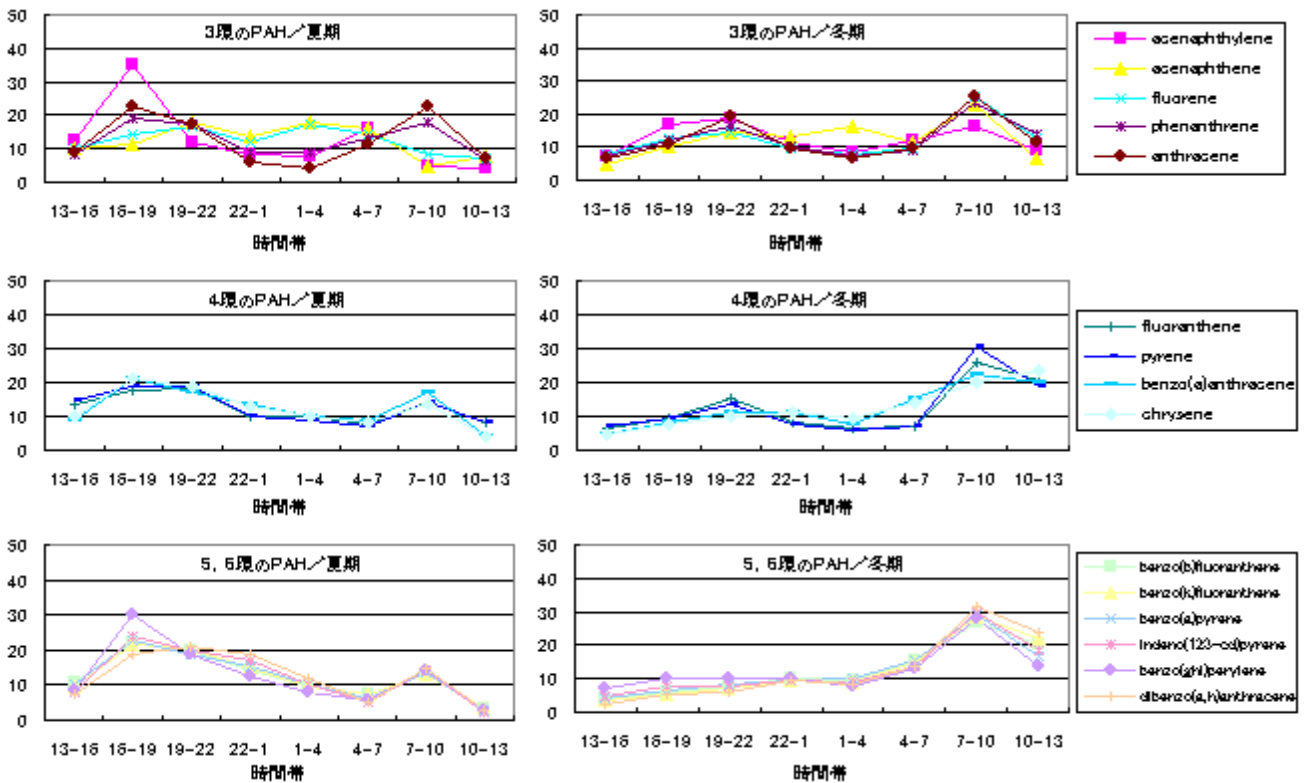



図-3 沿道環境における PAH 濃度の日内変動 (%)


表-3 夏期におけるPAH濃度と大気汚染物質濃度の相関係数

compound		沿道					一般			
		NO	NO ₂	NO _x	SPM	CO	NO	NO ₂	NO _x	SPM
C12H8	acenaphthylene	0.19	0.64	0.58	0.60	0.61	0.02	0.24	0.21	0.58
C12H10	acenaphthene	-0.13	0.08	-0.03	0.61	0.02	-0.07	0.68	0.57	0.74
C13H10	fluorene	0.08	0.24	0.22	0.67	0.25	-0.03	0.50	0.43	0.72
C14H10	anthracene	0.83	0.42	0.84	0.45	0.69	0.22	0.84	0.79	0.55
	phenanthrene	0.77	0.47	0.83	0.28	0.70	0.73	0.54	0.71	0.27
C16H10	fluoranthene	0.41	0.83	0.86	0.45	0.94	0.40	0.14	0.25	0.42
	pyrene	0.37	0.87	0.86	0.43	0.95	0.19	0.64	0.61	0.89
C18H12	benzo(a)anthracene	0.66	0.60	0.85	0.58	0.83	0.21	0.88	0.82	0.74
	chrysene	0.53	0.75	0.88	0.72	0.91	-0.01	0.76	0.66	0.86
C20H12	benzo(b)fluoranthene	0.46	0.81	0.87	0.74	0.93	-0.15	0.79	0.64	0.87
	benzo(k)fluoranthene	0.47	0.77	0.85	0.76	0.91	-0.10	0.83	0.68	0.87
	benzo(a)pyrene	0.46	0.75	0.83	0.69	0.90	-0.05	0.90	0.76	0.80
C22H12	indeno(123-cd)pyrene	0.42	0.72	0.78	0.71	0.86	-0.07	0.87	0.73	0.82
	benzo(ghi)perylene	0.44	0.77	0.83	0.64	0.89	-0.07	0.79	0.66	0.90
C22H14	dibenzo(a,h)anthracene	0.44	0.58	0.70	0.69	0.76	-0.01	0.88	0.76	0.79

表-4 冬期におけるPAH濃度と大気汚染物質濃度の相関係数

compound		沿道					一般			
		NO	NO ₂	NO _x	SPM	CO	NO	NO ₂	NO _x	SPM
C12H8	acenaphthylene	0.76	0.35	0.77	0.40	0.85	0.87	0.45	0.83	0.69
C12H10	acenaphthene	0.64	-0.42	0.52	0.82	0.46	0.86	0.56	0.87	0.72
C13H10	fluorene	0.92	0.22	0.90	0.84	0.85	0.97	0.48	0.92	0.81
C14H10	anthracene	0.87	0.30	0.87	0.80	0.86	0.95	0.47	0.90	0.78
	phenanthrene	0.90	0.18	0.87	0.82	0.84	0.94	0.40	0.87	0.77
C16H10	fluoranthene	0.68	0.31	0.69	0.77	0.68	0.93	0.35	0.85	0.74
	pyrene	0.77	0.26	0.77	0.82	0.71	0.93	0.36	0.85	0.73
C18H12	benzo(a)anthracene	0.46	-0.07	0.42	0.81	0.35	0.91	0.25	0.80	0.78
	chrysene	0.22	-0.05	0.20	0.67	0.16	0.95	0.32	0.86	0.84
C20H12	benzo(b)fluoranthene	0.46	-0.17	0.40	0.85	0.28	0.88	0.30	0.80	0.80
	benzo(k)fluoranthene	0.47	-0.12	0.42	0.84	0.31	0.88	0.29	0.79	0.80
	benzo(a)pyrene	0.59	-0.21	0.51	0.91	0.38	0.84	0.25	0.75	0.78
C22H12	indeno(123-cd)pyrene	0.62	-0.07	0.56	0.88	0.45	0.88	0.30	0.80	0.81
	benzo(ghi)perylene	0.80	-0.01	0.75	0.89	0.62	0.91	0.33	0.83	0.79
C22H14	dibenzo(a,h)anthracene	0.49	-0.07	0.44	0.83	0.35	0.83	0.24	0.74	0.79

 : 相関係数 > 0.834 (危険率 1%未満で相関があると言える)

 : 相関係数 > 0.707 (危険率 5%未満で相関があると言える)