

## P-06: 富士山における大気中 PAHs の観測

小野一樹<sup>1)</sup>, 大河内博<sup>1)</sup>, 緒方裕子<sup>1)</sup>, 皆巳幸也<sup>2)</sup>, 米持真一<sup>3)</sup>, 竹内政樹<sup>4)</sup>, 名古屋俊士<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>早稲田大学, <sup>2)</sup>石川県立大学, <sup>3)</sup>埼玉県環境科学国際センター, <sup>4)</sup>徳島大学

### 1. はじめに

多環芳香族炭化水素(PAHs)は有機物の不完全燃焼や熱分解過程で生成する。PAHs は大気中に偏在しており、発がん性、変異原性を有する。日本では PAHs とその類縁物質十数種が有害大気汚染物質としてリストアップされ、優先取組物質としてベンゾ[a]ピレンが指定されているが、環境基準はいまだに制定されておらず、大気圏動態には不明な点が多い。

本研究では、東アジアにおける大気エアロゾル中 PAHs のバックグラウンド濃度の解明と越境大気汚染の実態解明を目的として、富士山頂および富士山麓で大気エアロゾルの観測を行った。また、東京都心部(新宿)と郊外森林域(多摩)においても大気中 PAHs の同時観測を行い、越境大気汚染の健康リスク評価を行った。地上大気では国内汚染の影響が大きい、富士山頂では大気境界層の影響を受けにくく、空気塊の流入により越境汚染の影響を評価できるかどうか試行した。

### 2. 実験方法

サンプリングは新宿(早稲田大学西早稲田キャンパス)、富士山麓(南東麓太郎坊)、富士山頂、多摩(東京農工大学 FM 多摩丘陵)で行った。2013 年~2015 年の新宿、富士山麓、多摩ではハイボリウムエアサンプラーを用いて 700 もしくは 1000 L/min で 12 時間毎もしくは 24 時間毎に大気を吸引し、石英繊維フィルターに浮遊粒子状物質(SPM)を捕集した。

富士山頂では、2013 年にハイボリウムエアサンプラーに PM<sub>2.5</sub> インパクター(東京ダイレック)を装着して 700 L/min で 12 時間毎に大気を吸引し、石英繊維フィルターに PM<sub>2.5</sub> を捕集するとともに、2014 年も富士山頂で同様に観測を行ったが、観測期間中は雲に覆われており、雲水を吸引したことにより故障した。2015 年には、2014 年の経験をもとにハイボリウムエアサンプラーでの観測を行わず、ローボリウムエアサンプラーで 30 L/min で 6 時~18 時、18 時~6 時に分けて 1 週間毎に大気を吸引し、石英繊維フィルターに全浮遊粒子状物質(TSP)を捕集した。

捕集フィルターは分析まで冷凍保存し、ジクロロメタンを用いて超音波抽出を行ったのち、減圧濃縮、除粒、窒素気流下で濃縮を行い、最後に 500  $\mu$ L アセトニトリルに転溶して HPLC-FLD 法により定量した。本研究の分析対象物質は、3 環のアセナフテン(Ace)、フルオレン(Flu)、アントラセン(Ant)、フェナントレン(Phe)、フルオランテン(Flt)、4 環のピレン(Pyr)、クリセン(Chr)、ベンゾ[a]アントラセン(BaA)、5 環のベンゾ[e]ピレン(BeP)、ベンゾ[b]フルオランテン(BbF)、ベンゾ[k]フルオランテン(BkF)、ベンゾ[a]ピレン(BaP)、ジベンゾ[a,h]アントラセン(DBA)、6 環のベンゾ[g,h,i]ペリレン(BgP)、インデノ[1,2,3-cd]ピレン(InP)の 15 種類の PAHs である。

### 3. 結果・考察

#### 1) 富士山頂における大気中 PAHs の動態:越境輸送と桜島噴火の影響

図 1 には、2013 年 8 月 14 日から 22 日における富士山頂の大気エアロゾル中総 PAHs 濃度( $\Sigma$ PAHs)とその組成を、気象因子、PM<sub>2.5</sub>、CO、O<sub>3</sub>、SO<sub>2</sub> 濃度とともに示す。8 月 15 日から 16 日にかけて  $\Sigma$ PAHs は高いが、後方流跡線解析によると、この時には大陸から空気塊が流入しており、CO 濃度の増加を伴っていた。CO は燃焼由来の指標物質であることから、大陸からの汚染空気塊の流入により  $\Sigma$ PAHs が増加したことを示している。また、6 環のインデ

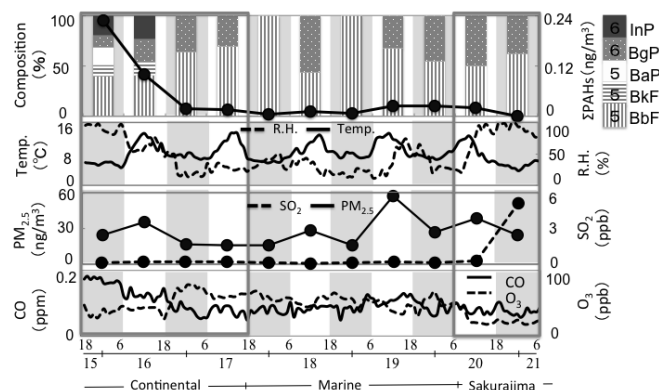


Fig.1 Temporal variation of the concentration of particulate total PAHs ( $\Sigma$ PAHs) and their composition in the ambient air along with meteorological factors and some air pollutants at the top of Mt. Fuji during 15-21 August in 2013.

ノピレン(InP)の割合が高かった。8月18日16時31分に桜島の過去最大の大規模噴火が観測され、後方流跡線解析により8月20日夜に富士山頂に桜島噴煙が到達していた。このときにはHClとSO<sub>2</sub>が高濃度であったが、ΣPAHs、COおよびO<sub>3</sub>には濃度増加は認められなかった。

## 2) 富士山南東麓における大気中 PAHs の動態

図2には、2014年7月13日から20日における富士山南東麓の大気エアロゾル中総PAHs濃度

(ΣPAHs)とその組成を、SO<sub>2</sub>濃度、上海におけるPM<sub>2.5</sub>濃度とともに示す。ガス態濃度は昼夜変動を示しており、昼間の濃度が高く、夜間の濃度が低かった。また、ガス態組成は3環が9割を占めていた。7月16日から17日にかけて粒子態およびガス態ΣPAHsは高いが、後方流跡線解析によると、この時には大陸から空気塊が流入しており、SO<sub>2</sub>濃度の増加を伴っていた。このときの富士山南東麓におけるSO<sub>2</sub>濃度は新宿における同期間の平均濃度(56.7 nmol/m<sup>3</sup>)よりも高く、空気塊は上海のPM<sub>2.5</sub>濃度の増加傾向時と重なる。これらのことから、夏季であっても、大陸からの汚染空気塊の流入によりΣPAHsが増加した可能性を示している。

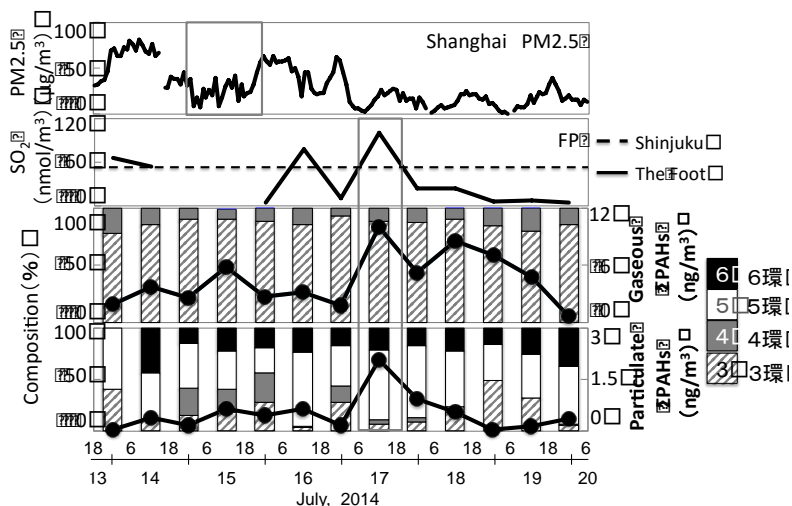


Fig.2 Temporal variation of the concentration of particulate and gaseous total PAHs (ΣPAHs) and their composition in the ambient air along with SO<sub>2</sub> at the foot of Mt. Fuji during 13-20 July in 2014.

## 3) 富士山頂での大気観測結果を用いた越境大気汚染のリスク評価

図3には、2013年の夏季における4地点のΣPAHsとガン過剰発生率(リスク)を示す。ガン過剰発生率は各PAHs濃度からBaP等価濃度を求めて合計を算出し、BaPのユニットリスクを乗じて算出した。ΣPAHs、ガン過剰発生率ともに都市部の新宿で高く、多摩では両者ともに新宿の2/3、富士山麓ではΣPAHsが1/5、ガン過剰発生率が1/7、富士山頂ではΣPAHsが1/70、ガン過剰発生率が1/80であった。富士山頂では低濃度ではあるものの、ΣPAHsに比してガン過剰発生率が高く、有害性の高いPAHsの割合が高かった。後方流跡線解析の結果、富士山頂に大陸由来の空気塊が到達したときに、ΣPAHs、ガン過剰発生率ともに海洋由来時の6倍、16倍で高いことが分かった。BkF、BaP、InPは大陸由来の空気塊でのみ検出されており、これらは有害性の高いことからガン過剰発生率が高くなったものと考えられる。

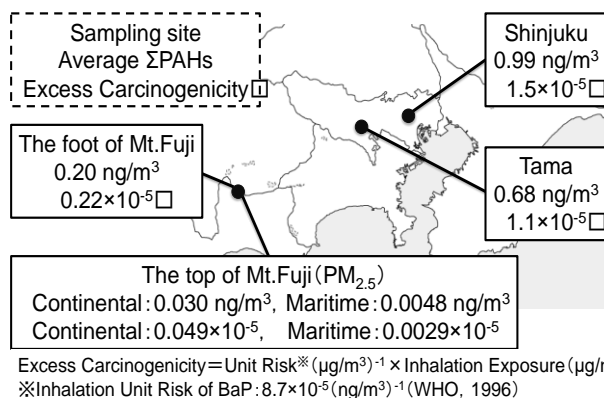


Fig.3 Regional comparison of the concentrations of particulate total PAHs (P-ΣPAHs) in the ambient air in summer, 2013 and carcinogenicity based on the product of the sum of BaP equivalent concentration (ΣBaPeq) and Unit Risk of BaP.

連絡先: 小野 一樹(Kazuki ONO), [k-makemyfuture@asagi.waseda.jp](mailto:k-makemyfuture@asagi.waseda.jp)