

## 2. 調 査 研 究 報 告

調査研究報告の概要  
本報告は、調査対象の現状と課題を明らかにし、今後の対応策を提言するものである。



# 1. 環境大気中の未規制物質に関する調査研究(第5報)

## —ベンゾ(a)ピレンについて—

植山洋一 山田寿寛 吉川昌範 高田敏夫  
 正通寛治 内田利勝 有賀 紀

### I 緒 言

ベンゾ(a)ピレンなどの多環芳香族炭化水素(Polycyclic Aromatic Hydrocarbons PAHs)は、ガソリン、重油、石炭等の化石燃料の不完全燃焼に伴って発生し、大気中では主として浮遊粉じんに着して存在すると言われ、これらが発がん作用あるいは発がん促進作用を示すことから、その生体影響が問題となっており、各地で調査が行われている。<sup>2)~5)</sup>

ベンゾ(a)ピレンは、都市大気中で6~200ng/m<sup>3</sup>、自動車の排気ガスで10<sup>3</sup>~10<sup>4</sup>ng/m<sup>3</sup>、タバコの煙で10<sup>5</sup>ng/m<sup>3</sup>程度存在し、<sup>1)</sup>他のPAHsと相関が良く、またその中でも大きい値を示す。<sup>5)</sup>

当所ではそのベンゾ(a)ピレンについて、昭和57年度夏期・冬期(環境庁委託「有害物質全国総点検調査」)および昭和58年度秋期の3回、県内各地で調査を行った。昭和59・60年度も継続して調査を行う予定であるが、今回昭和57・58年度の調査で得られたデータを用いて、経日変化、季節変化、NOxや重金属との関係および気象要因との関係等について、中間的にとりまとめを行ったので、以下その結果について報告する。

### II 調査方法

#### 1. 調査期日および調査地点

図-1に調査地点を示す。

a. 昭和57年7月26日(月)~31日(土) 連続5日間

①三国 三国町三国西小学校屋上

④福井 福井市福井保健所屋上

⑤敦賀 敦賀市気比公民館屋上

b. 昭和57年12月6日(月)~11日(土)

連続5日間 調査地はaに同じ。

c. 昭和58年10月24日(月)~11月7日(月)

連続14日間

調査地点はaに加えて

②芦原 芦原町芦原小学校屋上

③春江 春江町大石小学校屋上

#### 2. 測定方法

(1) 使用した主な機器、試薬等

i) ハイポリウムエアサンプラー(10μmカット装置付 愛知時計電機製)

ii) 遠心分離機 iii) 超音波発生装置

iv) ロータリーエバポレーター v) 高

速液体クロマトグラフ(TRI ROTAR

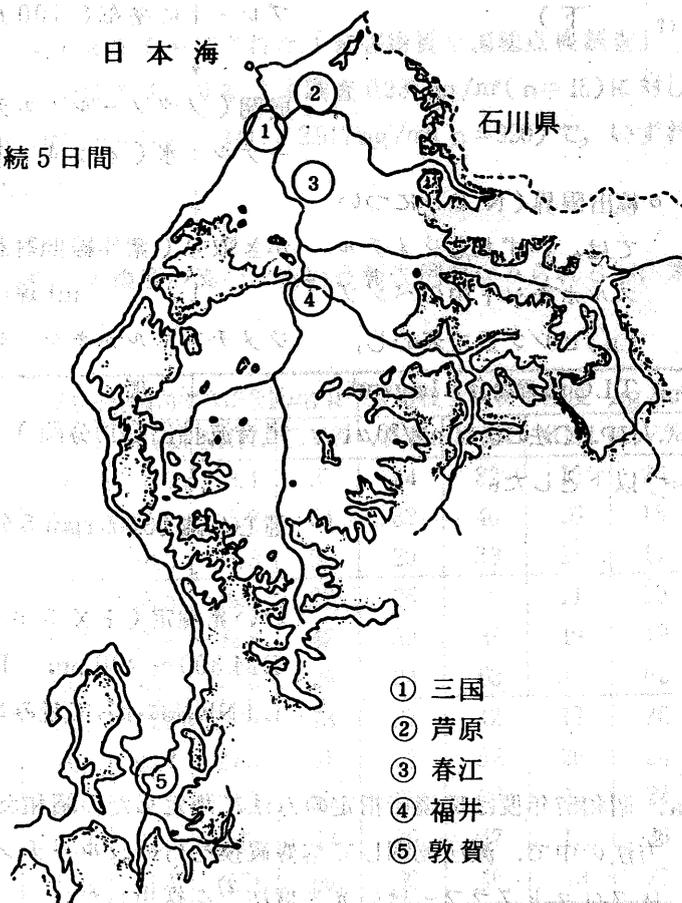
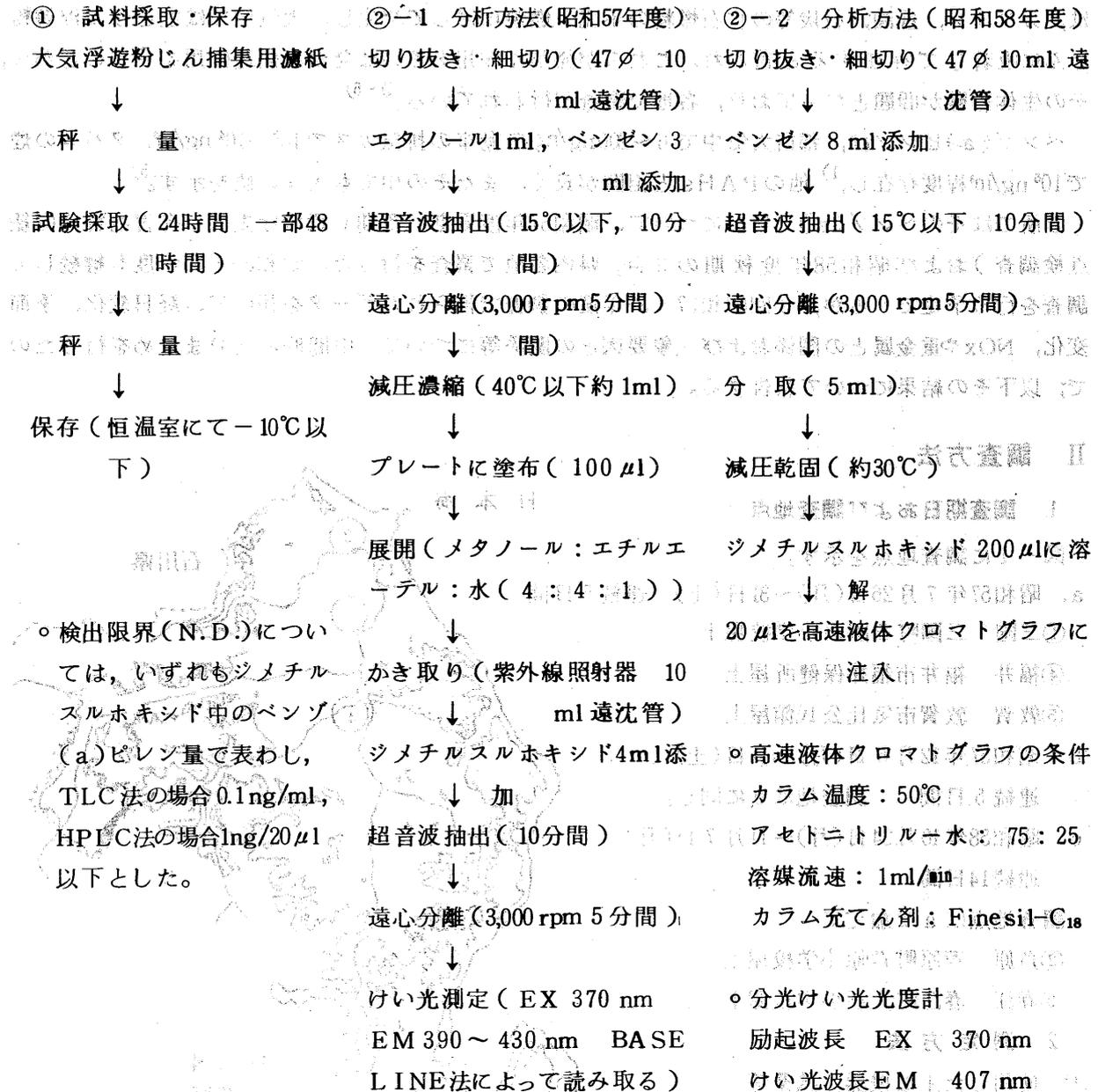


図-1 調査地点

Ⅲ 日本分光製) vi) データ処理器 (DP-L220 日本分光製) vii) 分光けい光光度計 (FP-550 A 日本分光製) viii) 多層式アプリケーション (三田村理研製) ix) 紫外線照射器 x) 恒温室 (-40°C ~ +40°C SANYO製) xi) 大気浮遊粉じん捕集用濾紙 (石英繊維 8×10 inch PALLFLEX製) xii) アセチル化セルロース (国産化学社製) xiii) セルロース (フナコシ薬品製) xiv) キーゼルグール G (メルク社製) xv) エタノール, メタノール, エチルエーテル (残留農業試験用 和光純薬製) xvi) ベンゼン, ジメチルスルホキシド (無けい光溶媒 同仁化学研究所製) xvii) アセトニトリル (高速液体クロマトグラフ用溶媒 半井化学薬品製) xviii) ベンゾ (a)ピレン (和光純薬製)

(2) 測定方法



a. 昭和57年度は環境庁指定の方法で測定した。昭和58年度については, 種々提案されている分析方法の中で, 減圧乾固して溶媒置換を行い, ルーチン分析に適し, 分離・同定に優れた, 高速液体クロマトグラフ-けい光光度法<sup>2)</sup>を採用した。

b. 検量線の例を図2に示す。薄層クロマトグラフ (TLC)-けい光光度法の場合 BASE LINE

法、高速液体クロマトグラフ(HPLC)一けい光光度法の場合、ピーク高さによって測定値を求めた。

c. 分光けい光光度計の測定波長について、EX 300 nm, EX 370 nmの両方で、強度を求めた結果、後者の方が1.5倍程感度が良好であったので、後者の波長で測定した。

d. HPLC一けい光光度法において、ピーク面積法は、ピーク高さ法に比較し

てやや強度のバラツキがみられたので、ピーク高さ法により値を求めた。

また保持時間の変動率は、サンプルの場合1%以下、スタンダードの場合0.2%程度であった。

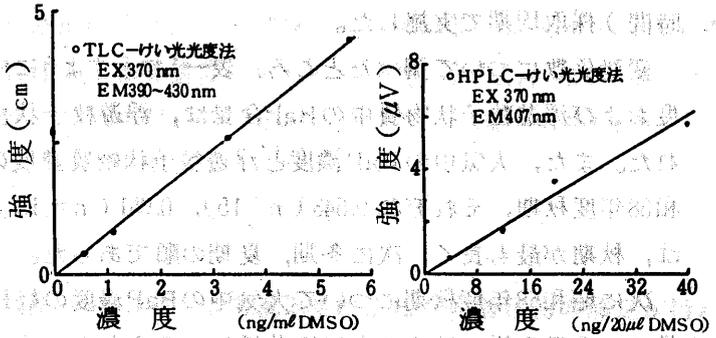


図-2 検量線

### III 結果および考察

別表に全測定値を、別図に大気中のベンゾ(a)ピレン(以下BaPと略する)濃度、浮遊粒子状物質中のBaP含量および浮遊粒子状物質濃度の経日変化を示す。またその統計値を表-1に示す。

#### 1. 大気中のBaP濃度等

##### (1) 濃度レベル

表-1に示すように、大気中のBaP濃度、浮遊粒子状物質中のBaP含量および浮遊粒子状物質濃度の全測定値の最高値は、それぞれ3.40 ng/m<sup>3</sup>、95.8 µg/g、89 µg/m<sup>3</sup>であり、いずれも福井において出現し、季節は冬期あるいは秋期であった。

本調査結果を、昭和57年度夏期・冬期に全国規模で実施された「有害物質全国総点検調査」<sup>7)</sup>の結果と比較すると、大気中のBaP濃度の平均値では、夏期は本調査0.237 ng/m<sup>3</sup>(n=15)に対し、0.581 ng/m<sup>3</sup>(n=919)、冬期は本調査1.36 ng/m<sup>3</sup>(n=15)に対し、2.917 ng/m<sup>3</sup>(n=920)で、いずれも全国の濃度レベルよりも低い値であった。

##### (2) 経日変化

PAHsは夏期・冬期共夜間の方が日中の約2倍濃度が高い、という報告例<sup>3)</sup>がみられるが、本

表-1 測定結果

調査月	項目 地点 統計値	大気中のBaP濃度 ng/m <sup>3</sup>				浮遊粒子状物質中のBaP含量 µg/g				浮遊粒子状物質濃度 µg/m <sup>3</sup>			
		AVE.	MAX.	MIN.	C.V.%	AVE.	MAX.	MIN.	C.V.%	AVE.	MAX.	MIN.	C.V.%
昭57・7 n=5	三国	0.10	0.13	0.09	10	4.7	6.7	3.4	25	24	32	15	26
	福井	0.35	0.52	0.17	43	10.7	14.9	5.8	34	32	40	26	15
	敦賀	0.25	0.43	0.12	47	9.2	18.3	4.3	55	29	33	23	11
昭57・12 n=5	三国	0.71	1.00	0.29	33	28.3	38.5	19.8	22	26	39	11	39
	福井	2.32	3.11	1.15	30	55.7	95.8	22.8	42	50	89	19	49
	敦賀	1.03	2.31	0.46	64	33.7	43.5	17.2	29	34	63	16	62
昭58・10 11	三国	0.72	1.54	N.D.	70	28.4	74.3	N.D.	78	27	42	17	26
	福井	1.85	3.40	0.83	40	53.1	94.7	27.8	31	35	52	26	24
	敦賀	0.57	1.17	0.11	55	20.6	35.3	4.3	50	28	36	14	22
* n=11	芦原	0.40	1.22	N.D.	93	14.2	37.7	N.D.	97	26	47	15	36
	春江	0.74	2.79	N.D.	97	22.6	61.1	N.D.	69	30	46	18	27

\* 芦原については n = 9

調査では区別せずに、午前10時から、翌日（または翌々日）の午前10時までの24時間（または48時間）採取周期で実施した。

変動係数について調べたところ、表-1に示すように秋期には全地点において、大気中のBaP濃度および浮遊粒子状物質中のBaP含量は、浮遊粒子状物質濃度に比べて変動が大きい傾向がみられた。また、大気中のBaP濃度と浮遊粒子状物質濃度の相関係数は、昭和57年度夏期、冬期、昭和58年度秋期、それぞれ0.543（n=15）、0.651（n=15）、0.580（n=53）であり、相関の有意程度は、秋期が最も良く、次に冬期、夏期の順であった。

次に昭和58年度秋期について大気中のBaP濃度の経日変化を調べると、10月25～26日および11月4～5日の極大は全地点ほぼ共通してみられた。また、10月31日～11月1日の極大は三国、福井および敦賀の地点に共通していた。このように地点間で共通した経日変化が現われることから、気象（風速、日射量等）の要因が、大気中のBaP濃度に対して影響を及ぼしていると考えられる。

### (3) 季節変化

昭和57年度夏期・冬期、昭和58年度秋期と継続して調査を行った三国、福井および敦賀の3地点について、各期の平均値を用いて、季節変化を調べた（図-3）。

三国では冬期・秋期がほぼ同じ値であったが、福井および敦賀では、冬期>秋期>夏期の順となった。その比は、

$\frac{\text{冬期}}{\text{夏期}}$  : 三国 7.1 福井 6.6 敦賀 4.1

$\frac{\text{秋期}}{\text{夏期}}$  : 三国 7.2 福井 5.3 敦賀 2.3

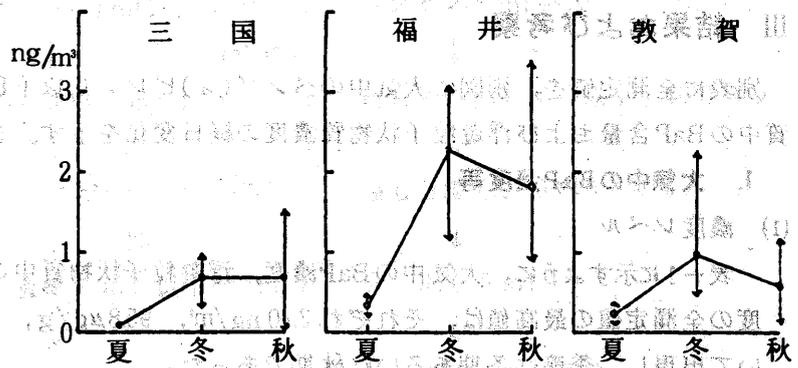


図-3 季節変化

であった。このBaPの濃度が冬期に高く、夏期に低い季節変化を示すことは、他県の調査でも報告されており<sup>3)5)</sup>その理由として次のことが指摘されている。<sup>2)3)</sup>第1に冬期は大気安定度が一般に夏期より高く、汚染質が滞留しやすい。第2に夏期に冬期より紫外線・オゾン等による光化学反応に伴う分解の度合いが大きい。第3に冬期には暖房によるPAHsの排出量増加がある。

### (4) 地点間の比較

表-2に5地点間の濃度の比較を示す。項目・季節を問わず、福井市の市街地に位置する福井

表-2 地点間の比較

項目	季節	昭和57年度夏期					昭和57年度冬期					昭和58年度秋期					
		福井	敦賀	三国	春江	芦原	福井	敦賀	三国	春江	芦原	福井	敦賀	三国	春江	芦原	
大気中のBaP濃度 ng/m³		0.35	0.25	0.10	1.85	0.74	0.72	0.57	0.40	2.32	1.03	0.71	1.85	0.74	0.72	0.57	0.40
浮遊粒子状物質中の BaP含量 μg/g		10.7	9.2	4.7	53.1	28.4	22.6	20.3	14.2	55.7	33.7	28.3	53.1	28.4	22.6	20.3	14.2
浮遊粒子状物質濃度 μg/m³		32	29	24	35	30	28	27	26	50	34	26	35	30	28	27	26

注) 下欄の数値はそれぞれの平均値

が最も大きい値を示していた。

昭和58年度秋期について、福井と最も濃度の小さかった芦原の比を求めると、大気中のBaP濃度、浮遊粒子状物質中のBaP含量、浮遊粒子状物質濃度はそれぞれ、約4.6, 3.7, 1.3であった。

また、大気中のBaP濃度について、地点間の相関係数を求めたところ、三国-福井(n=21, r=0.800)、芦原-春江(n=9, r=0.864)に良い相関が認められた。

2. NOxおよび重金属との関係

(1) NOx

各調査地点近くの大気汚染常時監視観測局において、自動測定機による窒素酸化物の測定が行われている。そのBaP試料採取時間に対応する24時間(または48時間)平均値と、大気中のBaP濃度との相関係数を表-3に、相関図の例を図-4に示した。

芦原を除く4地点では相関が認められた。このことから、NOxとBaPの濃度変動要因、すなわち大気安定

表-3 NO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>との相関

地点 項目	三国	福井	敦賀	芦原	春江
データ数	21	21	21	7	11
NO <sub>2</sub>	*** 0.784	*** 0.795	*** 0.648	-0.077	** 0.601
NO <sub>x</sub>	*** 0.784	*** 0.854	*** 0.598	0.099	* 0.509

有意水準 \*\*\* 1% \*\* 5% \* 10%

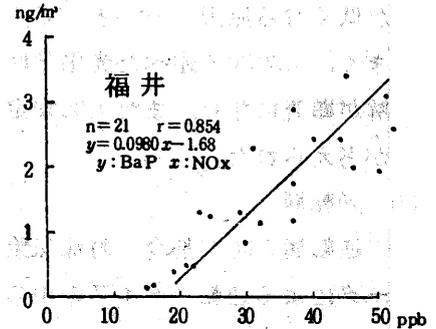


図-4 NOxとの相関

度などの気象要因あるいは冬期の暖房による排出等の発生源要因が、共通していることが推測された。

(2) 重金属

図-5に大気中のBaP濃度と重金属濃度の相関関係を示す。

7種の重金属との関係を調べたが、敦賀では6種の重金属と良い相関がみられたのに対し、三国では1種だけしかみられず、地点によって差異が現われた。

一方重金属の種類でみると、Niは全地点共相関が良くなかったが、Zn, PbおよびCdは、相関の良い地点が多くみられた。この理由として、BaPおよびZn, Pb, Cdは、粒径の小さい側に分布しているという報告<sup>3)5)6)</sup>があり、発生源として、燃焼起源が考えられることから、これらが相関が良くなったのではないかと考えられた。

	三国	芦原	春江	福井	敦賀
Fe					
Ni					
Zn					
Mn					
Pb					
Cd					
V					

有意水準 ■ 1% ▨ 2% ▩ 5%

図-5 重金属との相関

3. 気象要因との関係

大気安定度を構成する風速・日射量および逆転層について、大気中のBaP濃度との関係を調べた。なお風速は、各調査地点近くの大気汚染常時監視観測局のデータを、日射量および逆転層は、特殊気象観測局(三国町新保)のデータを用いた。

(1) 風速

昭和58年度秋期について、大気中のBaP濃度との相関関係を調べたところ、風速が小さい程、濃度が高い傾向が認められた。その一例を図-6に示す。このことからBaPが、

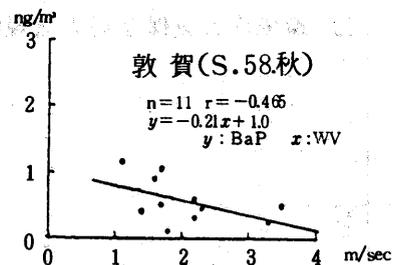


図-6 風速との相関

風速が小さい程滞留され、濃度が高くなるという1.(3)で述べた変動要因が考えられた。

(2) 日射量

日射量(試料採取時間全体の平均値)の経日変化の例を図-7に示す。1.(2)で述べた大気中のBaP濃度の極大と良く一致していた。

両者の相関係数は、三国-0.647(n=21), 福井-0.652(n=21), 敦賀-0.561(n=21), 芦原-0.301(n=9), 春江-0.346(n=11)の全地点共ほぼ負の相関関係にあった。この結果から、夏期に濃度が低くなる原因の一つとして、夏期は日射量が大きく、1.(3)で述べた光化学反応に伴うBaPの分解が顕著になり、また大気安定度が低くなることが考えられた。

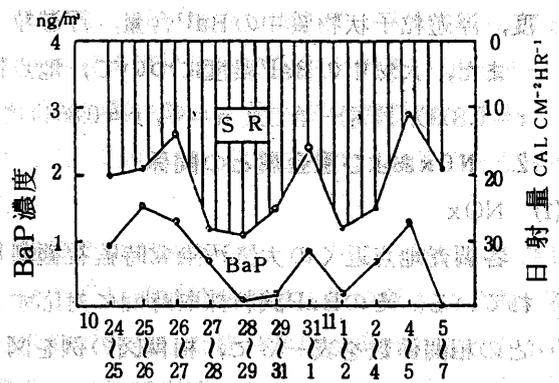


図-7 BaPと日射量の日変動(三国)

(3) 逆転層

逆転層の時間割合(特殊気象観測局の温度温度差計のデータによる逆転層タイプの中く地上よりも95m, 144m, 185mの気温が高いタイプ)の出現時間数と試料採取時間の割合(<%>)と大気中のBaP濃度間に有意な相関が認められ(図-8), 秋・冬期の濃度上昇の一因と考えられた。

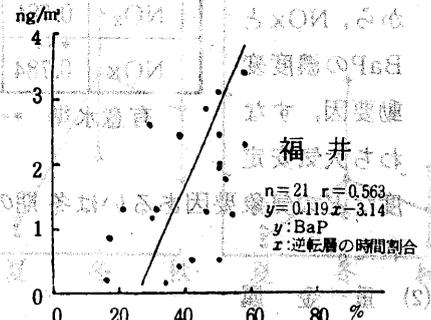


図-8 逆転層との関係

IV 結 語

昭和57年度夏期・冬期県内3地点, 昭和58年度県内5地点において, BaP濃度の調査を行った。昭和59・60年度も継続して調査を行う予定であり, その結果と合わせて更に詳しく検討したい。

参 考 文 献

- 1) 田村善藏他 LC-けい光分析 107(1978) 講談社
- 2) 山崎裕康他: 大気汚染学会誌 18(1), 8(1983)
- 3) 菅 邦子他: 大気汚染学会誌 17(2), 117(1982)
- 4) 坂本和彦他: 第24回大気汚染学会講演要旨集, 352(1983)
- 5) 斎藤みさ子他: 第24回大気汚染学会講演要旨集, 416(1983)
- 6) 吉川昌範他: 本報, 12, 86(1982)
- 7) 環境庁大気保全局大気規制課: 有害物質全国総点検調査結果報告書(昭和59年3月)

別 表

地点	三 国			福 井			敦 賀			芦 原			春 江					
	吸 引 流 量 m <sup>3</sup>	捕 集 粉 じ ん 量 ㏍	B a P 濃 度 ng/m <sup>3</sup>	大 気 中 の B a P 濃 度 ng/m <sup>3</sup>	浮 遊 粒 子 状 物 質 濃 度 μg/g	中 の B a P 含 量 %	吸 引 流 量 m <sup>3</sup>	捕 集 粉 じ ん 量 ㏍	B a P 濃 度 ng/m <sup>3</sup>	大 気 中 の B a P 濃 度 ng/m <sup>3</sup>	浮 遊 粒 子 状 物 質 濃 度 μg/g	中 の B a P 含 量 %	吸 引 流 量 m <sup>3</sup>	捕 集 粉 じ ん 量 ㏍	B a P 濃 度 ng/m <sup>3</sup>	大 気 中 の B a P 濃 度 ng/m <sup>3</sup>	浮 遊 粒 子 状 物 質 濃 度 μg/g	中 の B a P 含 量 %
昭57.7 26~27	1,635	46.1	211	0.13	4.6	28	1,651	57.7	859	0.52	14.9	35	1,501	43.2	184	0.12	4.3	29
27~28	1,658	52.9	178	0.11	3.4	32	1,678	67.3	833	0.50	12.4	40	1,453	43.2	188	0.13	4.4	30
28~29	1,663	42.9	153	0.09	3.6	26	1,658	48.2	647	0.39	13.4	29	1,475	42.1	394	0.27	9.4	29
29~30	1,614	29.9	152	0.09	5.1	19	1,538	45.7	263	0.17	5.8	30	1,474	49.3	463	0.31	9.4	33
30~31	1,627	23.8	159	0.10	6.7	15	1,436	37.8	268	0.19	7.1	26	1,479	34.5	631	0.43	18.3	23
昭57.12 6~7	1,876	21.0	535	0.29	25.5	11	2,417	45.6	2,780	1.15	60.9	19	1,575	29.5	1,280	0.81	43.5	19
7~8	1,792	33.0	1,270	0.71	38.5	18	2,281	68.2	6,540	2.87	95.8	30	1,505	23.6	688	0.46	29.2	16
8~9	1,810	71.3	1,410	0.78	19.8	39	2,307	204.4	4,660	2.02	22.8	89	1,526	23.6	984	0.64	41.7	16
9~10	1,729	50.6	1,370	0.79	27.0	29	2,108	103.7	5,190	2.46	50.0	49	1,487	93.6	3,430	2.31	36.7	63
10~11	1,787	58.6	1,790	1.00	30.5	33	1,930	122.0	6,010	3.11	49.2	63	1,456	80.3	1,380	0.95	17.2	55
昭58.10 24~25	1,603	27.3	1,550	0.97	56.7	17	1,689	44.8	2,240	1.32	49.9	27	1,588	39.5	168	0.11	4.3	25
25~26	1,614	33.5	2,490	1.54	74.3	21	1,766	63.4	6,000	3.40	94.7	36	1,514	34.0	482	0.32	14.2	22
26~27	1,587	45.4	2,030	1.28	44.7	29	1,800	74.5	4,700	2.61	63.0	41	1,543	46.5	413	0.27	8.9	30
27~28	1,634	35.7	1,170	0.72	32.8	22	1,852	49.8	2,210	1.20	44.4	27	1,523	42.2	690	0.45	16.4	28
28~29	1,622	47.9	186	0.12	3.9	30	1,881	67.2	4,370	2.32	65.0	36	1,509	54.8	780	0.52	14.2	36
29~31	3,276	106.8	719	0.22	6.7	33	3,539	96.7	4,560	1.29	47.1	27	2,980	42.3	1,480	0.50	34.9	14
昭58.11 31~1	1,549	52.6	1,340	0.87	25.5	34	1,815	93.6	3,530	1.95	37.8	52	1,448	46.0	1,290	0.89	28.1	32
1~2	1,622	35.6	365	0.23	10.3	22	1,814	47.2	3,250	1.24	47.6	26	1,459	33.3	557	0.38	16.7	23
2~4	3,044	82.1	2,110	0.71	26.2	27	3,683	115.7	6,480	1.76	56.0	31	2,863	83.2	2,940	1.03	35.3	29
4~5	1,487	62.1	1,970	1.32	31.7	42	1,859	88.8	4,440	2.44	51.1	48	1,454	49.4	1,700	1.17	34.4	34
5~7	3,038	70.1	N.D.	N.D.	23	3,800	113.0	3,140	0.83	27.8	30	2,863	92.5	1,730	0.60	18.7	32	24

別 図

