

環境大気における多環芳香族炭化水素の濃度推移と挙動 (第5報)

—ベンゾ(a)ピレンの経年変化—

吉岡 秀俊 秋山 薫 鎌滝 裕輝

要 旨

発ガン物質であるベンゾ(a)ピレン (BaP) の25年間に及ぶ環境大気中濃度の経年変化について検討した。区部のBaP濃度は概ね緩やかな減少傾向にあるが、区部西側から多摩地域の立川、さらに山間部の小河内と西に向かうにしたがって、横ばいから増加傾向を示している。都西側での増加傾向は、粒子状物質当りのBaP量にも見られ、主にディーゼル走行が増加したことに起因するものと思われる。さらに、季節別濃度と月別濃度を検討し、BaP濃度を削減するためには、11月～1月にかけての排出抑制対策が有効であることを示した。また、高度別調査と小笠原における調査結果から、BaPの挙動の解明に関する問題点等について若干の考察をおこなった。

キーワード：多環芳香族炭化水素、ベンゾ(a)ピレン、経年変化、東京都

Yearly Variation and Behavior of Polynuclear Aromatic Hydrocarbons in Ambient Particulate Matter (5)

—Yearly Variation of Benzo[a]pyrene—

Hidetoshi Yoshioka, Kaoru Akiyama and Hiroki Kamataki

Summary

We have investigated the atmospheric concentration of carcinogenic Benzo[a]pyrene (BaP) in the Tokyo area over the last twenty-five years. Generally, BaP concentration in the whole wards in Tokyo has decreased slowly. However, in the western wards and in Tachikawa in Tama area, BaP concentration has remained almost unchanged. Meanwhile, in the ravine at Ogouchi it has increased. In addition, increasing levels of BaP in particulate matter are noted west of Tokyo. The increase is probably due to emissions from diesel vehicles.

Based on our studies of seasonal and monthly variations of BaP concentrations, vehicle emission controls from November through January have proved the most effective means to limit BaP concentration. Also the concentration of BaP in the middle of Tokyo Tower and Ogasawara Islands were measured and discussed.

Keywords : polynuclear aromatic hydrocarbons, benzo[a]pyrene, yearly variation, Tokyo area

1 はじめに

ベンゾ(a)ピレン (BaP) は有機物が不完全燃焼したときに生ずる非意図的物質であり、発ガン性を有することから、1996年10月の中央環境審議会答申において有害大気汚染物質に該当する可能性があり、かつ健康リスクが高く優先的な排出抑制の取組みが必要な物質(優先取組物質)に指定された。東京都においては、これを受けて、

有害大気汚染物質にBaPを加えて、1998年度からモニタリングを開始したところである。また、BaPは1998年5月に環境庁により内分泌攪乱作用を有する疑いのある物質としてリストアップされる等新たな注目を集めている。

当研究所では、環境大気中の発ガン物質等による汚染状況を把握する目的で、1973年度から環境大気中のBaP

等のモニタリングを行い、順次「浮遊粒子状物質等データ集」^{2)~11)}として公表してきたが、大気保全部がモニタリングを開始したことにより、1998年度からその規模を半減した。

筆者らは、これまで発ガン及び変異原性物質を多く含むBaP等多環芳香族炭化水素についての知見を蓄積してきた^{12)~16)}。ここでは多環芳香族炭化水素のうちBaPを取り上げ、当研究所において同規模で行ってきた1973~1997年度の25年間に及ぶ調査結果を経年変化ならびに季節変動を中心に取りまとめたので報告する。

2 調査・分析方法の沿革等

BaPの捕集は、ハイボリウム・エアサンプラーにろ紙を装着し、原則として同一日に1.5m³/minで吸引して行った。

(1) 調査地点

1973年度に11地点（うち東京タワーでは高度別に3測定点）で開始され、1977年度から小河内を加え12地点14測定点となり、1997年度まで同地点数で継続された。調査地点を図1に示した。なお、25年間の調査期間中に諸事情により近傍に移転した地点もあるため、本報では「浮遊粒子状物質等データ集」に記載した地点名ではなく、区市名等を用いた。

(2) 捕集頻度と時間

1973~1978年度までが全地点2回/月（24時間/回）で、1979年度からは小河内と小笠原を1回/月（72時間/回）にした。1980年度には、東京タワーを1回/月（24時間/回）にした。1988年度からは、全地点1回/月（小河内と小笠原は72時間/回、その他の地点は24時間/回）とし、1997年度まで同規模で継続した。ただし4月は流量校正等の機器調整を行うため測定していない。

(3) 分析方法

分析方法の進歩に伴い、分析方法も変化し、①真空昇華・薄層クロマトグラフ・分光蛍光光度法、②ベンゼン超音波抽出・薄層クロマトグラフ・分光蛍光光度法、③簡易分析法、④アセトニトリル超音波抽出・高速液体クロマトグラフ・分光蛍光光度法、⑤ベンゼン-エタノール超音波抽出・高速液体クロマトグラフ・分光蛍光光度法の5種を用いた。その詳細は以下のとおりである。

1973年度および1974年度の全地点は①の真空昇華法で分析した。1975年度の一部について簡易測定法を用い、その残りの一部と1977年度の全地点については②のベンゼン超音波抽出法で分析した。1978年度~1986年度は、小河内・小笠原については①の真空昇華法で、その他の地点は④のアセトニトリル超音波抽出法で分析した。1986~1995年11月までの全試料は④のアセトニトリル超

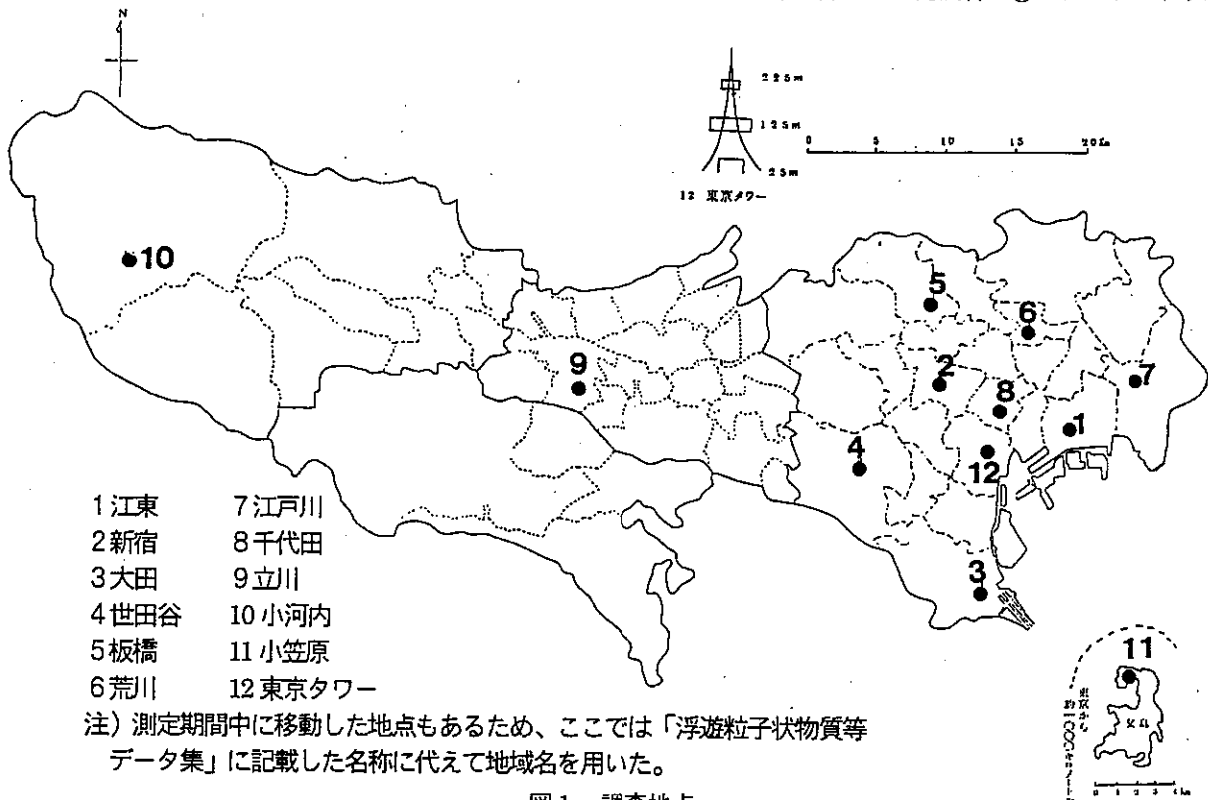


図1 調査地点

音波抽出法で分析した。それ以降は⑤のベンゼン-エタノール超音波抽出法で分析した。

3 結果と考察

(1) ベンゾ(a)ピレン濃度の経年変化

4月を除き、5月～翌年3月までを1年度として、地点毎の算術平均濃度を求め、さらに東京タワーを除く23区内8地点の年度平均濃度の平均を求めた(区部8地点

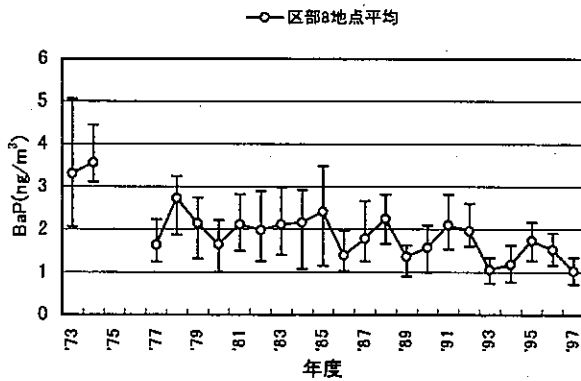


図2 区部8地点におけるBaP算術平均濃度と最大最小

平均濃度という)。これを年度毎に並べた経年変化を図2に示した。図2には各年度の地点別平均濃度の最高値と最低値も図示した。なお、1975年度は秋冬季の試料保存に問題があったため除外し、また1976年度は欠側である。

BaPの区部8地点平均濃度は、1974年度の3.6ng/m³を最高値として、大きく減少した。この減少は東京都だけではなく、札幌、仙台、横浜、川崎、大阪等でも観測されている^{19) 20)}。1970年代に見られた濃度低下の原因としては、燃料の良質化、燃焼管理の改善、排ガスおよびばいじん処理装置の整備等主に固定発生源の諸対策の効果によるものと推察される。実際、測定開始当初では、工業地域に属する梶谷が高濃度であり、住宅地域の世田谷、さらに立川が低濃度であるなど地点間差が認められるが、その後地点間差は少なくなった。

1973年度以前では、東京都内でも最高28ng/m³、最低5ng/m³、平均15.1ng/m³という値が坂部らによって1965年に報告されており、70年代より高濃度であったと推察

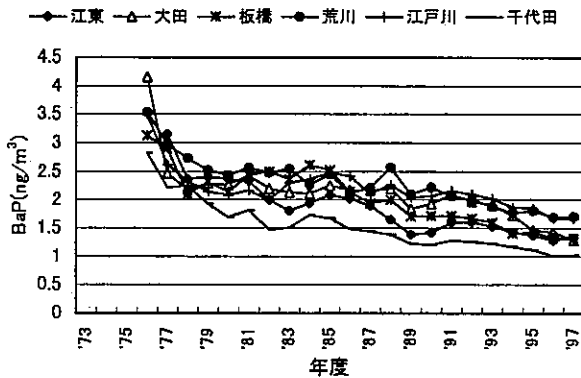


図3-1 BaP濃度(移動平均)(1)

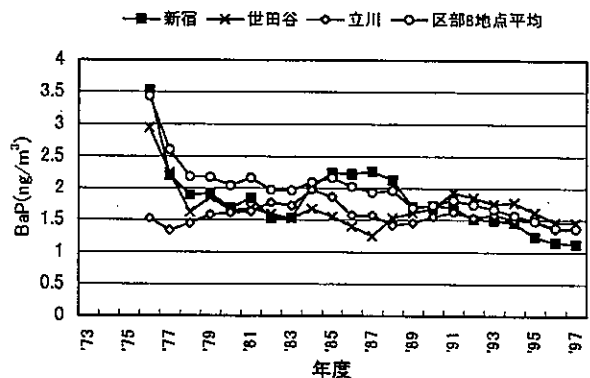


図3-2 BaP濃度(移動平均)(2)

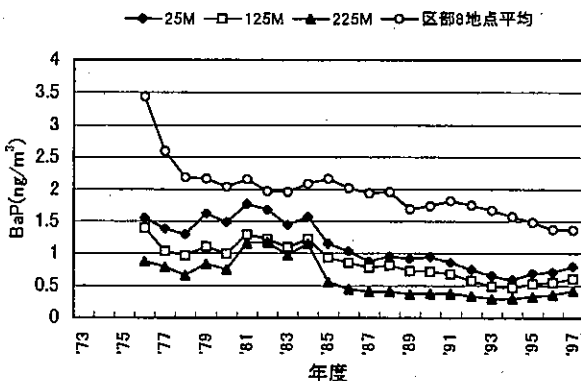


図3-3 BaP濃度(移動平均)(3) 東京タワー

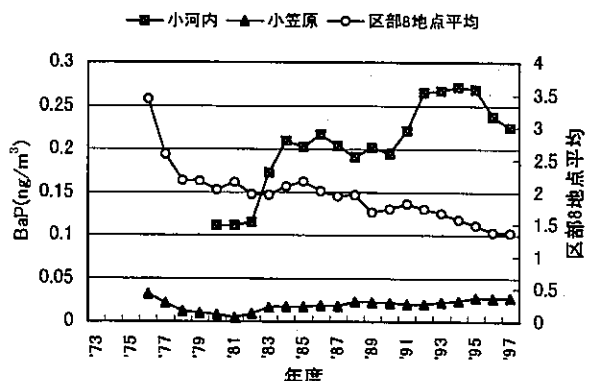


図3-4 BaP濃度(移動平均)(4)

される²⁾。

区部8地点平均濃度は、80年代になると大きな減少が見られなくなり、概ね2 ng/m³前後で上下し、90年代には1～2 ng/m³の範囲にあり、これらを全体的にみれば緩やかな減少傾向にあるようである。BaP濃度は変動が激しいので、年間何回の測定数をもって年平均値とするのか、また、算術平均で評価するのか幾何平均でか、などの問題があるが、単純にオランダの基準である年平均値1 ng/m³ (Limit value:最低限の目標値)と比較すると、これまでの測定結果で区部8地点平均濃度が1 ng/m³を下回ったことはない現状にある。

(2) 移動平均による経年変化

BaP濃度の変動が非常に大きいことは一連の本年報で述べてきた。年平均濃度8個をさらに平均して示した図2をみても類推できるように、月1～2回程度の測定では、無視できない偶然変動が混在するので、これを軽減するために移動平均濃度を求めた。地点間の差を見やすくするために4年ごとの移動平均をとった結果を図3—1～図3—4に示した。

図3—1には区部8地点のうち、80年代以降の減少傾向が明らかに読み取れる地点を示した。これら6地点では、都北東部の荒川、江戸川などが高濃度である。工業地域の例として取り上げられることが多い大田は、測定開始当初こそ高濃度であったが、その後は区部8地点平均濃度程度となり、近年では区部8地点平均濃度を下回る傾向が見られる。その他江東、板橋と工場が多いとされる地点はいずれも減少傾向にある。都心部の千代田は常に比較的低濃度であり、これも減少している。

図3—2には、図3—1に示した地点ほどの減少がないか、あるいはほぼ横ばいである地点を区部8地点平均濃度と共に示した。これらの地点は区部西側に位置する新宿と世田谷及び多摩地域に属する立川であり、西に行くほど横ばい傾向が明確となる。区部8地点平均濃度は減少傾向にあるので、世田谷は、90年代になると区部8地点平均濃度を上回り、立川は区部8地点平均濃度と同程度となっている。

図3—4には、増加傾向にある小河内と小笠原を示した。小河内は、立川からさらに西に位置する山間部にあり、その濃度は区部より1オーダー低い、測定開始当初の2倍以上に増加している。

このように、BaP濃度は、区部では北東部で高く都心

部で低く、概ね減少傾向にあるが、区部西側以西では、横ばいから増加傾向を示すようになり、面的な広がりを見せているようである。BaPの発生源種は多々考えられ、発生量の知見も多くはなく確証はないが、この面的な広がりは、固定発生源が郊外に移転したこと以上に、むしろ道路整備の拡充が多摩西部にまで及び、それに伴い多摩西部での自動車走行量が増加し、面的にも広がっていることを示すものであろう。

小笠原については別項で述べる。

(3) 粒子状物質当りのBaP量の移動平均

環境大気中のBaPは都市域では年間を通じて粒子として捕集される¹⁾から、粒子状物質当りのBaP量の平均を求め、区部8地点算術平均を図4に、4年ごとにとった移動平均を図5—1～図5—4に示した。

BaP濃度が減少している区部6地点と新宿については概ね同じ形状を示し、70年代途中に減少したが再び増加して、近年15年間では横ばいか若干の減少傾向にある。これらの地点の西側に位置する世田谷、立川及び小河内の粒子状物質当りのBaP量は増加しており、増加傾向は世田谷が顕著であり、さらに小河内は一層著しい。すなわち、世田谷以西では、粒子状物質に対するBaPの寄与は増加していると思われる。粒子状物質の主成分のひとつであり、かつディーゼル排気粒子の指標である元素状炭素と、BaP等多環芳香族炭化水素は高い相関関係にあること¹⁾、さらに、粒子状物質の主要燃焼系発生源がディーゼル自動車であることを考え合わせると、東京都東部に対して西部に見られる相対的なBaPの増加傾向は、主にディーゼル走行が東京都西側で増加し、面的にも広がっていることを示しているものと思われる。

(4) 季節別平均濃度と月別平均

BaP濃度は夏季に低く、秋冬季に高くなる季節変化がある。区部8地点のBaP濃度について季節別に4年ごとに移動平均をとった結果を図6に示した。粒子状物質濃度は夏季にも高くなることもあるが、BaP濃度は常に夏<春<秋<冬の順に高くなっている。特に冬季の減少と変動が目立ち、主に冬季のBaP濃度の減少が区部のBaP濃度の減少をもたらしていることがわかる。一方、夏季濃度は若干の減少傾向が認められるが常に低く、これはBaPの性質として気温が高く、日射が強い時期に分解するためであろう。

BaP濃度にはこのように明確な季節変化があるのだ

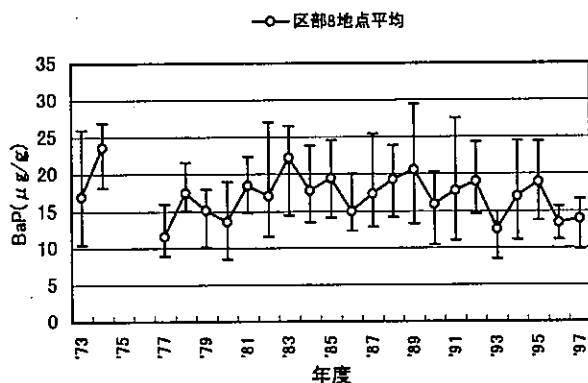


図4 区部8地点における粒子状物質当りのBaP量の算術平均と最大最小

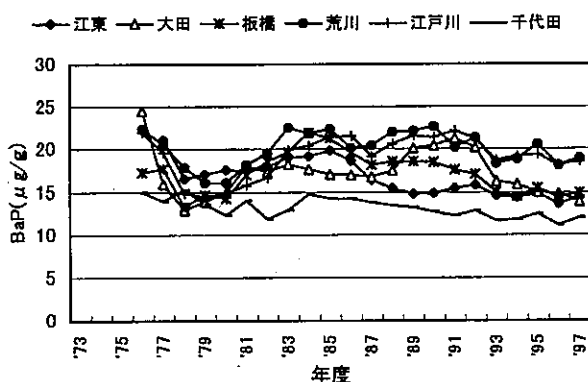


図5-1 粒子状物質当りのBaP量 (移動平均) (1)

房等の影響によるものかもしれない。

(5) 東京タワー

サンプリングの制約上、他地点と捕集時期が異なる場合が多いため一概には比較できないかもしれないが、二階建てビル屋上に設けた海拔25m地点のBaP濃度は、区部8地点平均濃度を常に下回っている(図3-3)。先に区部8地点の中で低濃度であると指摘した千代田に近く、海よりの高台にあるこの地点は、初期には立川と同程度の濃度であり、80年代半ば頃からは減少傾向を示し、千代田よりも低濃度となり山間部や小笠原を除いて、測

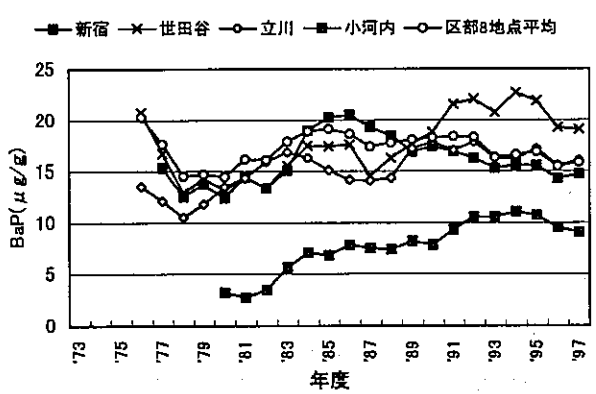


図5-2 粒子状物質当りのBaP量 (移動平均) (2)

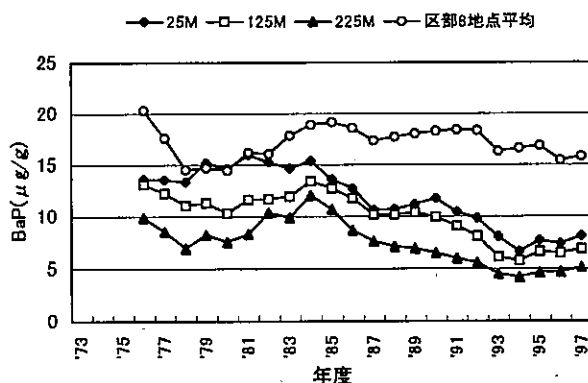


図5-3 粒子状物質当りのBaP量 (移動平均) (3) 東京タワー

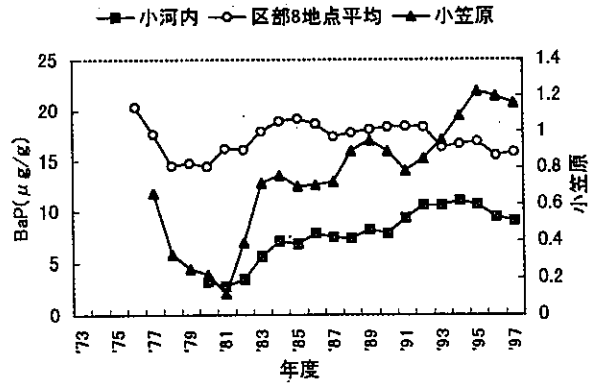


図5-4 粒子状物質当りのBaP量 (移動平均) (4)

が、急激な濃度上昇は、通常11月に起こる。そこで、後述する東京タワーを除く地点の近年10年間の月別算術平均濃度を図7に示した。区部8地点に立川も加えた平均濃度は、11月~1月に特に高濃度になっている。わが国には、BaP濃度の環境濃度指針値等はまだないが、例えばオランダの値(年平均値で1 ng/m³)を下回るためには、この時期のBaPの排出抑制対策が有効である。なお、季節風が強い日が多い2月になっても、小河内のBaP濃度が低下しないのは、気温の低い山間部近傍における暖

定地点の中では最も低濃度となった。25m地点を粒子状物質に対するBaP量でも(図5-3)、濃度低下と同時期から減少傾向を示しており、ディーゼル自動車等の寄与が小さくなったことを窺わせるが、近年若干の増加傾向を示している。125mと225mの経年的な傾向は、一時増加した時期もあるが25mと概ね同様である。

高度別に見ると、常に25m>125m>225mと上方になるほど濃度が下がっている。この濃度低下は、上方左右への拡散に加えて、拡散中に紫外線によってBaPが分解す

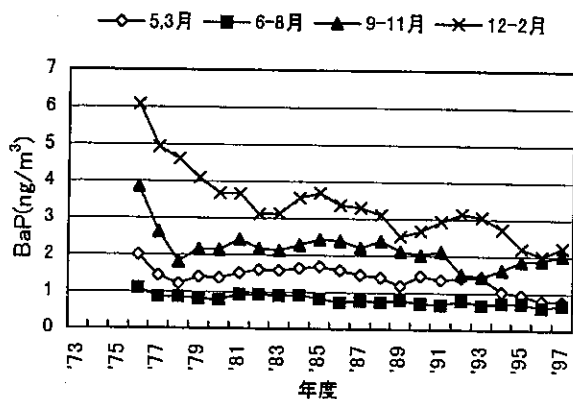


図6 BaPの季節別移動平均濃度 (区部8地点平均)

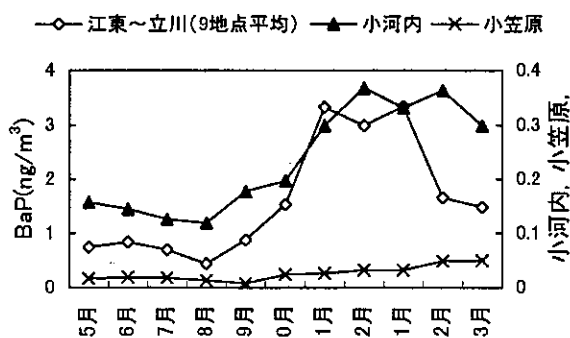


図7 BaPの月別算術平均濃度 ('88～'97)

るために起こるものと思われる。しかしながら、実際の環境大気中におけるBaPの分解度は不明であり、高度による濃度低下について考察するには、さらに知見を蓄積していく必要がある。

(6) 小笠原

南方1000kmの海洋上に位置する小笠原では、BaP濃度、粒子状物質当りのBaP量共に増加傾向にある(図3-4、図5-4)。筆者らは既報で、小笠原諸島父島内においても多環芳香族炭化水素は局地的に発生していると思われること、一方、図7にみられる濃度上昇と上空の風ベクトル等から、局地的発生を上回って、北方の大陸から小笠原への移流の可能性があることを指摘した¹⁴⁾。BaPの経年的な増加傾向が、島内発生に起因するものか、移流に起因するものかは定かではないが、例えば中華人民共和国におけるエネルギー消費量をみると、1980年の6千万トンから1995年には1億3千万トンと飛躍的に伸びており、その内訳は石炭が常に72%~76%を占めている²⁰⁾。BaPは石炭燃焼によって多く排出されるため、中国大陸などの燃焼過程で生じたBaPが、上空が低温であり、

風ベクトルが小笠原に向かう12月~3月に小笠原にまで運ばれ、その結果、その時期に小笠原のBaP濃度が増加する可能性がある。この地球規模の移流の可能性については、今後も検討していかなければならない。

謝 辞

BaPを含めた粒子状物質モニタリングを継続できましたのは、世田谷区、板橋区、荒川区、江戸川区の各公害関係の皆様や小笠原支庁ならびに多摩環境保全事務所をはじめとする関係各位の御協力によるものです。皆様に深謝致します。また、筆者がBaPの分析をしたのは、1986年度分からです。当研究所におけるBaPの研究は、広野富雄(現大気保全部)によって先駆的に開始され、つづいて菅邦子がこれを発展させました。両氏に感謝致します。

引用文献

- 1) 外因性内分泌攪乱化学物質問題への環境庁の対応方針について—環境ホルモン戦略計画SPEED'98—環境庁, 平成10年5月.
- 2) 浮遊粒子状物質等調査報告書, 公害研究所資料1-2-4, 昭和53年3月.
- 3) 浮遊粒子状物質等調査報告書, 公害研究所資料1-2-5, 昭和54年3月.
- 4) 浮遊粒子状物質等測定データ集, 公害研究所資料1-2-7, 昭和57年2月.
- 5) 浮遊粒子状物質等測定データ集, 公害研究所資料1-2-8, 昭和59年3月.
- 6) 浮遊粒子状物質等測定データ集, 公害研究所資料1-2-10, 昭和62年3月.
- 7) 浮遊粒子状物質等測定データ集, 公害研究所資料1-2-11, 昭和63年8月.
- 8) 浮遊粒子状物質等測定データ集, 環境科学研究所資料1-2-13, 平成4年3月.
- 9) 浮遊粒子状物質等測定データ集, 環境科学研究所資料1-2-13, 平成6年3月.
- 10) 浮遊粒子状物質等測定データ集, 環境資料第07109号, 平成8年3月.
- 11) 浮遊粒子状物質等測定データ集, 環境資料第10079号, 平成10年12月.
- 12) 吉岡秀俊ら: 環境大気における多環芳香族炭化水素

- の濃度推移と挙動, 東京都環境科学研究所年報1992-1, p.89.
- 13) 吉岡秀俊ら: 環境大気における多環芳香族炭化水素の濃度推移と挙動 (第2報) —経年推移と粒径分布—, 東京都環境科学研究所年報1993, p.53.
 - 14) 吉岡秀俊ら: 環境大気における多環芳香族炭化水素の濃度推移と挙動 (第3報) —小笠原における3種PAHs—, 東京都環境科学研究所年報1994, p.3.
 - 15) 吉岡秀俊ら: 環境大気における多環芳香族炭化水素の濃度推移と挙動 (第4報) —ガス粒子分配および元素状炭素との関係について—, 東京都環境科学研究所年報1996, p.9.
 - 16) 吉岡秀俊ら: 環境大気中の1-ニトロピレンについて, 東京都環境科学研究所年報1997, p.3.
 - 17) 吉岡秀俊ら: 固定発生源から排出される多環芳香族炭化水素の測定, 東京都環境科学研究所年報1998, p.155.
 - 18) 吉岡秀俊: 環境大気中のベンゾ(a)ピレンについて, 東京都環境行政交流会誌第21号, p.9, 平成10年1月.
 - 19) 第25回大気汚染学会講演要旨集 p.173~186, (1984).
 - 20) 横浜市環境科学研究所: 多環芳香族炭化水素 (PAHs)に関する調査研究報告書, 1996年3月.
 - 21) 児玉泰, 石西伸: 大気中のBenzo(a)pyrene分布, 大気汚染研究, 10,p.732(1976).
 - 22) 海外電気事業統計1996, (社)海外電気事業調査会ほか.