

# 複数のサンプラー捕集による浮遊粉じん及び 多環芳香族炭化水素濃度の比較検討

Comparison of Concentrations of Particulate Matter and Polynuclear  
aromatic Hydrocarbons on Collecting Some Types Air Samplers

岩 渕 美 香	Mika	IWABUCHI
松 尾 清 孝	Kiyotaka	MATSUO
菊 地 美 加	Mika	KIKUCHI
高 橋 篤	Atsushi	TAKAHASHI
林 久 緒*	Hisao	HAYASHI

キーワード：ハイボリウム・エアサンプラー，多環芳香族炭化水素，浮遊粉じん，  
流量校正曲線

Key words: high volume air sampler, polynuclear aromatic hydrocarbons,  
particulate matter, calibration curve of flow

## 1 はじめに

ハイボリウム・エアサンプラー(HV)による大気浮遊粉じんを捕集する際、サンプリング期間中の大気の総吸引量は従来サンプリング開始時及び終了時の瞬時流量をもとに算出していた。

しかし、サンプリング中にろ紙の目詰まり等で吸引流量が低下した場合、総吸引量を正しく算出することができない恐れがある。そこで、1999年度からは市内5か所の測定地点で新たに定流量装置及び積算流量計を装備したHVを設置した。

この場合、従来型及び新規のサンプラーによって得られた浮遊粉じん濃度や粉じんに含まれる成分濃度データの連続性を確認することは、浮遊粉じん汚染を経年的に論ずる場合に重要である。

今回、両サンプラーを並行稼働させて試料採取を行い、浮遊粉じん濃度と浮遊粉じん中のベンゾ(a)ピレン(B(a)P)、ベンゾ(a)アントラセン(B(a)A)、ベンゾ(b)フルアンチレン(B(b)F)、ベンゾ(k)フルアンチレン(B(k)F)、ベンゾ(ghi)ペリレン(B(ghi)P)濃度を測定し、その測定結果を比較検討した。また、サイクロン・ロウボリウム・エアサンプラー(CLV)も並行稼働させ、サンプラーや捕集期間の違いによる粉じん濃度の差異についても検討したので併せて報告する。

## 2 調査方法

調査内容は定流量装置及び積算流量計付きHV(以下A型とする。)5台の並行稼働による精度試験、一般環境大気測定地点と自動車沿道測定地点でA型HVと定流量装置及び積算流量計未装備HV(従来型、以下B型とする。)各1台及びCLVの並行稼働試験である。

\*環境局環境企画室

## 2.1 調査期間と調査地点

### 2.1.1 A型5台による並行稼働

調査期間は次のとおりである。なお、Run No.24-1~3は24時間サンプリングの1回目~3回目、Run No.48-1は48時間サンプリングである。

Run No.24-1	: 1999年4月7~8日
24-2	: 4月8~9日
24-3	: 4月13~14日
48-1	: 4月14~16日

また、この期間に合わせてB型HV1台を並行稼働させた。調査地点は公害研究所屋上(以下田島とする。)である。

### 2.1.2 A型B型HV及びCLVの並行稼働試験

調査期間は次のとおりである。

Run No.1	: 1999年5月31~6月1日
2	: 6月1~2日
3	: 6月2~3日
4	: 6月3~4日
5	: 6月7~8日
6	: 6月8~9日
7	: 6月9~10日
8	: 6月10~11日

また、調査地点は池上自動車排出ガス測定所(以下池上とする。)及び公害研究所屋上である。

## 2.2 ろ紙の秤量及び試料採取

### 2.2.1 ろ紙の秤量

ろ紙は浮遊粉じんの捕集前及び捕集後に温度25℃、湿度50%の恒温恒湿室で48時間放置した後、電子天秤(METTLER製 AT261)で秤量した。

### 2.2.2 流量校正と試料採取

試料採取の前にA型HVの定流量装置の指示値が実流量を正しく指示しているかの確認を行った。

はじめに予め指示流量計（この場合はルーツメータ）とマノメータ指示値との関係から較正曲線が得られている標準オリフィス流量計を用い、A型HVの流量指示値とマノメータ指示値から各HVの較正曲線を求めた（図1）。

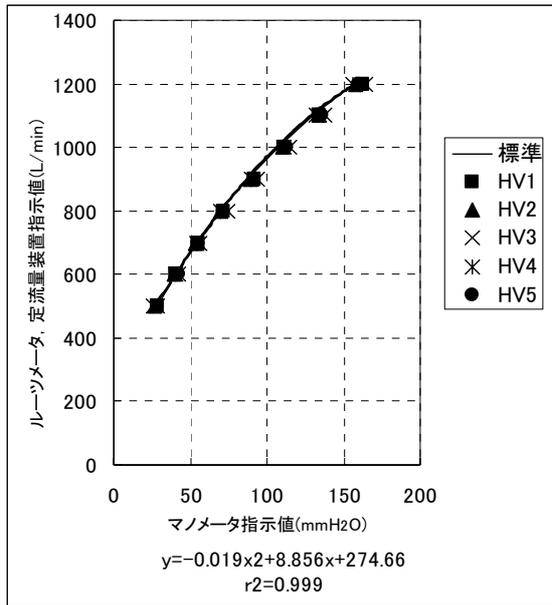


図1 マノメータの指示値と指示流量計，定流量装置指示値との関係

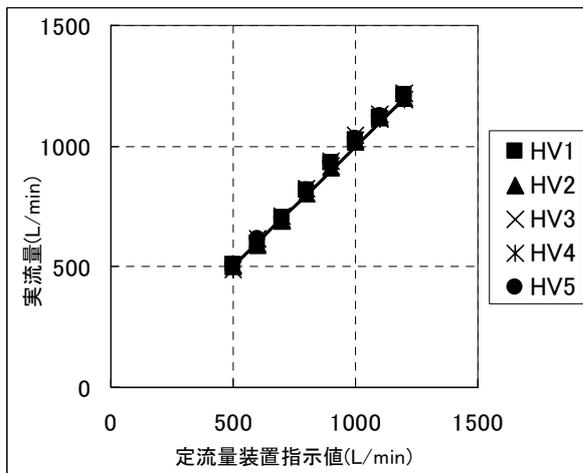


図2 定流量装置指示値と実流量の関係

これよりA型HVと標準オリフィス流量計の較正曲線が一致していることが確認できた。次に各A型HVの定流量装置の指示値に対する実流量を較正曲線の近似式 $y = -0.019x^2 + 8.856x + 274.66$ から求め図2に示した。この結果、定流量装置の指示値は正しく実流量を示していることが確認された。浮遊粉じんは、各調査地点においてHVに石英繊維ろ紙（Pallflex 2500QAT-UP）を装着し吸引流量 $1\text{ m}^3/\text{min}$ で24～48時間捕集した。

## 2.3 分析方法

### 2.3.1 分析方法

粉じん捕集ろ紙は重量を測定した後、直径30mmのベルトポンチで円形に切り抜き、共栓付き遠心管(10ml)に入れベンゼン：エタノール（3：1）溶液4mlを加えて20

分間超音波抽出した。その後、水酸化ナトリウム水溶液を加え激しく振とうし、3000rpmで5分間遠心分離し、ベンゼン層を分取し $\text{N}_2$ 気流下で乾固した。さらにアセトニトリルに再溶解し、これを分析用試料溶液として、HPLCで分析を行った。

### 2.3.2 分析項目

分析対象とした成分はBkF BaP BghiPの3成分である。

### 2.3.3 HPLCの条件

分離カラム：逆相分配型 SUPELCO SIL LC-PAH  
25cm×4.6mm ID

移動相：アセトニトリル：水(90:10,V/V)  
1mL/min

カラム温度：40

励起波長(Ex)：384nm，

蛍光波長(Em)：406nm

## 3 結果及び考察

### 3.1 同一機種によるばらつき試験

5台のA型HV（A-1～A-5とした）で得られた浮遊粉じん濃度を表1と図3に示した。変動係数の平均値は4.6%，24-3の変動係数は8.9%，24-3を除いた変動係数は3.0～3.2%の範囲であった。

また、A型HVの精度試験にあわせてB型HV1台を同時並行で稼働させたがA型の平均値との差は $-0.2\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～ $5.6\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$ と大きな差はみられなかった。24-3でA-3のHVで捕集した浮遊粉じん濃度が高くなった原因は不明であるが、変動係数の平均値が5%以内に入っていることからこれら5台のサンプラーは通常の使用に耐えられるものと考えられる。

表1 A型、B型HVで捕集された浮遊粉じん濃度（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）

	24-1	24-2	24-3	48-1
A-1	39.9	52.5	90.9	48.4
A-2	38.4	50.1	93.4	50.1
A-3	40.9	53.5	115.1	52.3
A-4	41.4	53.7	94.0	52.5
A-5	42.1	54.8	97.5	52.5
avg	40.5	52.9	98.2	51.2
SV	1.3	1.6	8.7	1.7
CV(%)	3.2	3.0	8.9	3.2
B型	40.7	53.3	92.6	49.2

次にこの期間の浮遊粉じん中の成分濃度を表2にまとめ、一例を図4に示した。

5台のA型HVで得られたB(k)F濃度の変動係数は4.3～11.1%の範囲で平均値は7.9%，B(a)P濃度の変動係数は5.0～12.5%の範囲で平均値は8.2% B(ghi)P濃度の変動係数は5.3～10.0%の範囲で平均値は7.9%であった。

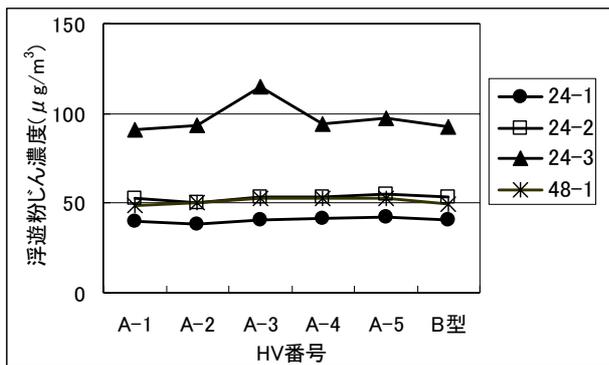


図3 A型, B型HVで捕集された浮遊粉じん濃度

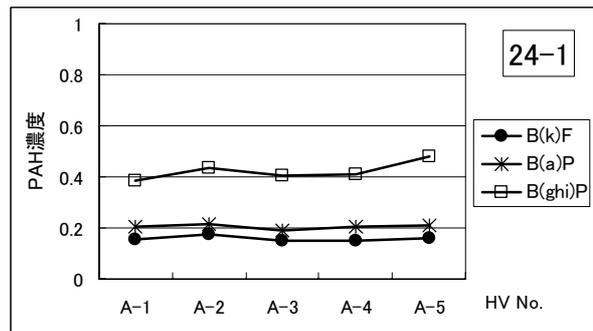


図4 期間24-1におけるPAH濃度

### 3.2 A型, B型HV及びCLVの並行稼働試験

#### 3.2.1 A型, B型HVの比較

A型, B型HVで捕集された地点別浮遊粉じん濃度を表3に示した。

田島ではA型, B型HVの浮遊粉じん濃度の差(A型-B型)は $0 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 5.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲であり, A型HVはB型HVよりも粉じん濃度が0~5.6%高めになっていた。

池上ではA型, B型HVの粉じん量の差は $-11.4 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim -0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 範囲であり, A型HVはB型HVよりも粉じん濃度がRun No. 5と6で2.9~3.9%高く, それ以外のRunでは0.6~10.2%低めであった。

池上のRun No. 1がA型HVに対してB型サンプラーで得られた浮遊粉じん濃度が約10%高い濃度を示したことは, 粉じんの捕集量にほとんど差がみられなかったことからB型HVの吸引流量の低下を考えたが, 吸引流量が大きく低下したRun No. 5では両者の浮遊粉じん濃度に大きな差がみられなかったことから原因は不明である。

A型, B型HVで捕集された粉じん濃度の関係を図5に示したが両者は互いに良い相関が認められた。

次に2つの方法が与える浮遊粉じん濃度に差がないことを確認するため対応のある値の平均値の差についてt検定を行ったところ, 1%の有意水準で差がないことが確認された。

表2 A型HVで捕集されたPAH濃度( $\text{ng}/\text{m}^3$ )

Run No.24-1	B(k)F	B(a)P	B(ghi)P	Run No.24-2	B(k)F	B(a)P	B(ghi)P
A-1	0.15	0.20	0.38	A-1	0.46	0.59	0.85
A-2	0.18	0.22	0.43	A-2	0.46	0.58	0.80
A-3	0.15	0.19	0.40	A-3	0.51	0.66	0.85
A-4	0.15	0.20	0.41	A-4	0.46	0.58	0.75
A-5	0.16	0.21	0.48	A-5	0.49	0.60	0.87
AVG	0.16	0.20	0.42	AVG	0.48	0.60	0.82
STD	0.01	0.01	0.03	STD	0.02	0.03	0.04
CV(%)	7.38	5.00	8.11	CV(%)	4.33	4.97	5.30

Run No.24-3	B(k)F	B(a)P	B(ghi)P	Run No.48-1	B(k)F	B(a)P	B(ghi)P
A-1	0.20	0.30	0.47	A-1	0.26	0.40	0.49
A-2	0.22	0.31	0.47	A-2	0.25	0.40	0.45
A-3	0.25	0.37	0.57	A-3	0.34	0.55	0.57
A-4	0.20	0.27	0.49	A-4	0.30	0.49	0.52
A-5	0.23	0.34	0.42	A-5	0.29	0.48	0.50
AVG	0.22	0.32	0.48	AVG	0.29	0.46	0.51
STD	0.02	0.03	0.05	STD	0.03	0.06	0.04
CV(%)	8.62	10.45	9.97	CV(%)	11.07	12.46	8.24

次にこの期間の浮遊粉じん中のB(a)P濃度を地点別に

表4にまとめ, 図6, 7にその例を示した。

表3 A型, B型HVで捕集された浮遊粉じん濃度 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

池上				田島			
Run No.	A型	B型	差	Run No.	A型	B型	差
1	111.8	123.2	-11.4	1	68.6	67.1	1.6
2	173.8	181.6	-7.8	2	116.8	115.0	1.8
3	172.1	182.9	-10.8	3	92.9	87.7	5.2
4	153.7	160.7	-7.0	4	87.7	85.6	2.1
5	127.4	122.4	5.0	5	64.9	64.9	0.0
6	102.3	99.3	3.0	6	49.8	47.2	2.6
7	102.8	103.4	-0.6	7	51.6	50.7	0.8
8	135.7	138.8	-3.2	8	59.3	56.2	3.1

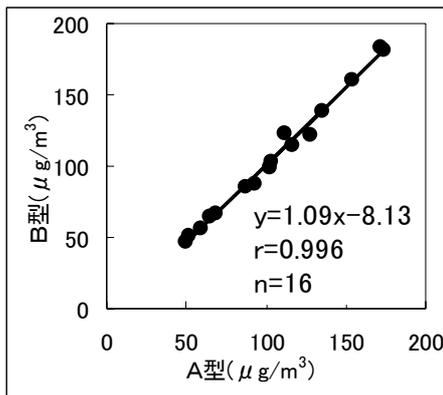


図5 浮遊粉じん濃度におけるA型とB型HVの関係

表4 A型, B型HVで捕集されたPAH濃度 ( $\text{ng}/\text{m}^3$ )

地点	Run	B(k)F		B(a)P		B(ghi)P	
		A型	B型	A型	B型	A型	B型
池上	1	0.63	0.66	1.04	1.15	1.38	1.69
	2	0.80	0.74	1.50	1.41	1.94	1.92
	3	3.28	4.47	8.15	11.01	8.24	11.15
	4	1.01	0.87	1.71	1.70	1.85	1.89
	5	0.82	0.92	1.43	1.58	1.58	1.76
	6	0.52	0.51	0.90	0.88	1.07	0.99
	7	0.42	0.45	0.77	0.84	1.12	1.06
	8	1.03	0.98	2.22	1.96	2.37	2.09
田島	1	0.30	0.30	0.41	0.47	0.61	0.61
	2	0.44	0.45	0.73	0.78	0.86	1.01
	3	0.38	0.37	0.67	0.67	0.76	0.68
	4	0.50	0.45	0.82	0.74	1.15	1.03
	5	0.75	0.70	1.03	0.98	1.56	1.46
	6	0.25	0.25	0.39	0.39	0.47	0.54
	7	0.29	0.31	0.48	0.54	0.62	0.67
	8	0.21	0.20	0.33	0.32	0.51	0.45

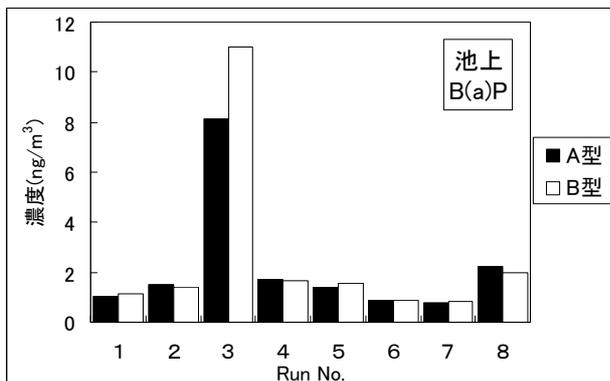


図6 A型, B型HVで捕集したB(a)P濃度 (池上)

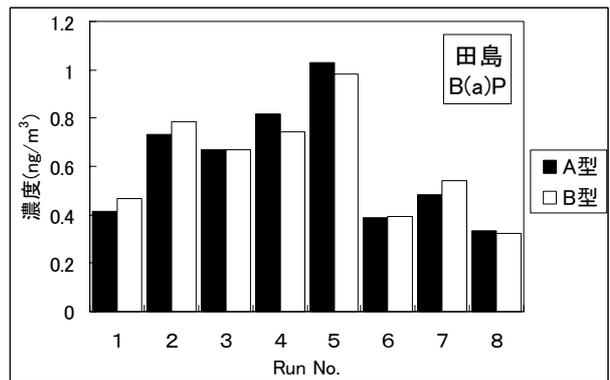


図7 A型, B型HVで捕集したB(a)P濃度 (田島)

2つの方法が与える各成分濃度に差がないことを確認するために対応のある値の平均値の差についてt検定を行ったところ、各PAH濃度について1%の有意水準で差がないことが確認された。

これらの結果から、(a) A型HVとB型HVで得られた浮遊粉じん濃度には差がみられず、また互いにほぼ1対1の関係があること、(b)浮遊粉じん濃度中の各成分濃度に対しても差がみられなかったことが確認され、今回のサンプラーの変更はこれまで行ってきた継続調査で得られたデータの連続性に影響を与えないことがわかった。

### 3.2.2 A型HVとCLVの比較

A型HVとCLVで捕集された粉じん中に含まれる成分のうちB(a)P濃度について地点別に図8, 9に示した。サンプラーが異なっても浮遊粉じん、B(a)Pの濃度変動は類似の傾向を示した。

次に、粉じん中に含まれるB(a)Pの割合を地点別に図10, 11に示した。田島ではRun No. 4を除いた全てのRunでCLVの方が粉じんに対するB(a)Pの割合が高くなっていた。

また池上ではRun No. 3を除いた全てのRunでCLVの方が粉じんに対するB(a)Pの割合が高くなっていた。

関東SPM検討会の平成9年度浮遊粒子状物質合同調査によれば、大気中の粒子状物質を2.1~11 $\mu\text{m}$ の粗大粒子と2.1 $\mu\text{m}$ 未満の微小粒子に分別捕集したところ、B(k)F, B(a)P, B(ghi)Pの3成分は夏期は70%以上、冬期は90%以上が微小粒子側に偏在したという結果<sup>1)</sup>が得られている。また松下<sup>2)</sup>は、東京都における大気浮遊粉じん中のB(a)Pのほとんどが3.7 $\mu\text{m}$ 以下の粒子に存在することを報告している。今回の結果も、10 $\mu\text{m}$ 未満の粒子のみを捕集するCLVがA型HVよりも粉じんに対するB(a)Pの割合が高くなる傾向が認められ、同様の結果が得られた。

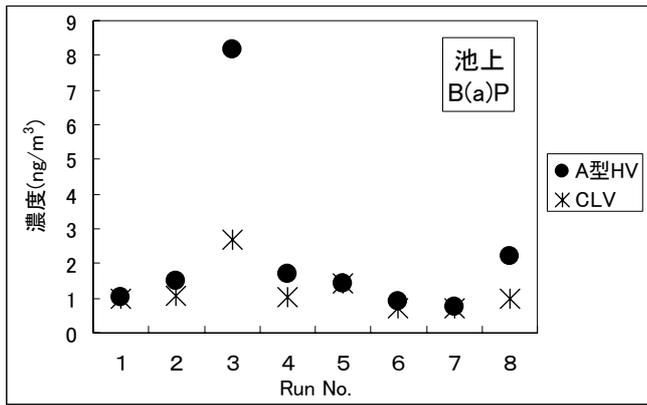


図8 粉じん中のB(a)P濃度(池上)

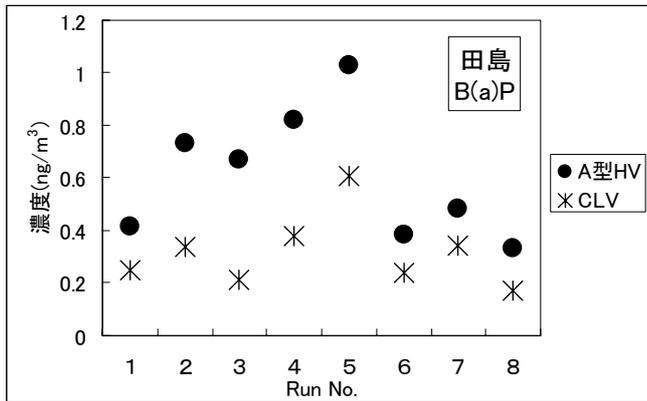


図9 粉じん中のB(a)P濃度(田島)

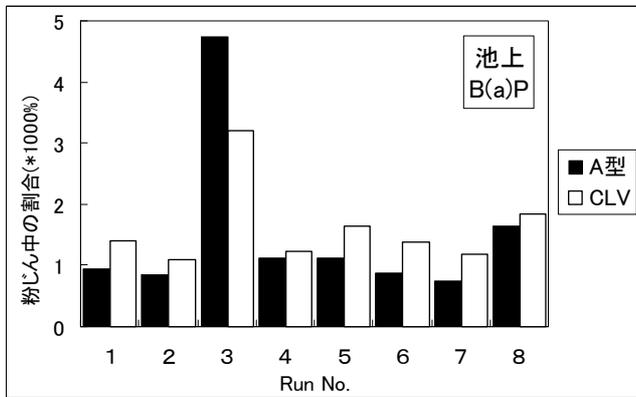


図10 粉じん中のB(a)Pの割合(池上)

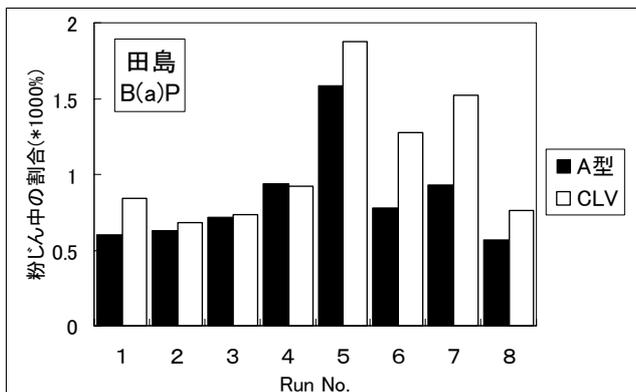


図11 粉じん中のB(a)Pの割合(田島)

#### 4 まとめ

新たに設置した定流量・積算流量計を装備したHV(A型)と従来使用していた定流量・積算流量計未装備であるHV(B型)と並行稼働させ、浮遊粉じん濃度、PAH濃度について検討を行ったところ、次のことが分かった。

(1) 5台のA型HVで捕集した浮遊粉じん濃度の変動係数は平均で4.6%と5%以内の範囲であることが分かった。また、B(k)F濃度の変動係数は平均で7.9%、B(a)P濃度の変動係数は平均で8.2%、B(ghi)P濃度の変動係数は平均で7.9%と全て10%未満であった。

(2) A型、B型HVで捕集した浮遊粉じん濃度、各成分濃度は1%の有意水準で差がないことが確認され、A型とB型における機種間のデータの連続性が確認された。

(3) A型HVとCLVで捕集した浮遊粉じん濃度、各成分濃度は互いに類似した変動を示した。また、浮遊粉じん中に含まれる各成分の割合は、池上のRun No. 3、田島のRun No. 4(いずれもB(a)P)を除いた全てのRunでCLVの方が高くなっており、従来からいわれているB(a)P等の成分の微小粒子への偏在が確認された。

#### 文献

- 1) 平成9年度関東浮遊粒子状物質合同調査結果報告書、一都三県公害防止協議会(1999)
- 2) 松下秀鶴, 嵐谷奎一, 朝来野国彦, 大平俊男: 東京空气中のベンゾ(a)ピレンの測定, 大気汚染研究, 8(3), 553(1973)