

大気沈着物の分析による PCB の挙動解析

Analysis of Atmospheric Behavior of PCBs Based on Atmospheric Deposition Measurement

環境マネジメント専攻 リスクマネジメントコース 責任指導教官：益永茂樹

副専攻：環境生命学

仲地史裕 (Fumihiko NAKAJI)

ABSTRACT

In order to investigate the removal process of polychlorinated biphenyls (PCBs) from the atmosphere, dry and wet deposition were collected in Yokohama during '02-'03. Dry deposition was collected with water as surrogate surface. Dry deposition velocities of particle phase were higher than gas phase and tended to be higher for low chlorinated biphenyls. Washout ratio of particle phase was higher than gas phase and increased with decreasing chlorination. Atmospheric removal coefficient of particle phase was more predominant than that of gas phase for each homologue. In particle phase, dry and wet deposition coefficients differed among homologues, suggesting that size distribution of atmospheric particles differed among homologues.

1. はじめに

ポリ塩化ビフェニル(PCB)の生産と新たな使用は1970年代初頭に禁止されたにも関わらず、現在のPCBの環境汚染が十分に低下しているとは言い難い。これは、保管中/使用中のPCBからの漏れ、あるいは過去のPCB汚染からの揮発による大気への流入が続いているためと考えられる。そこで、現在のPCB汚染の収支を解明するための第一段階として、本研究では、大気中でのPCBの挙動を明らかにすることを目的とし、最終的に現在の大気中濃度を構成するために必要な大気へのPCB流入量を明らかにするための手段として、大気からのPCBの除去機構を定量的に示すことを目的とした。

2. 実験

乾性・湿性沈着物の採取は横浜国立大学構内建物屋上で行い、自動雨水採取サンプラーで選別した。湿性沈着物試料は'02年7、10、11月、'03年4、5、6月、乾性沈着物試料は'02年10、11月、'03年4、5、6、7、8月に採取した。湿性沈着物は1回のまとまった雨を1サンプルとし、乾性沈着物はステンレスポットを用い、代理表面を水として、1週間中の降雨の無い期間で採取した。これらの沈着試料は、GFFと固相抽出ディスクを用いてる過後、内部標準物質を添加し、トルエンによりソックスレー抽出を行い、硫酸及び活性炭分散シリカゲルカラムで精製した。定量については高分解能GC/MSにより分解能10000以上で行った。

3. 結果及び考察

ガス態と粒子結合態の形態の違いによる大気沈着の効果は、乾性沈着速度及び洗浄比として、それぞれ (1) 式及び (2) 式によって表される。

$$F = V_p \times C_p + V_g \times C_g \quad (1)$$

$$C = W_p \times C_p + W_g \times C_g \quad (2)$$

F : 乾性沈着量 [pg/m²/s]、 V_g : 粒子結合態の沈着速度 [m/s]、 V_p : ガス態の沈着速度 [m/s]、 C_p : 大気中粒子結合態濃度 [pg/m³]、 C_g : 大気中ガス態濃度 [pg/m³]、 C : 雨水中濃度 [pg/m³]、 W_p : 粒子結合態の洗浄比[-]、 W_g : ガス態の洗浄比[-]

F 及び C は実測値、 C_p 及び C_g は同地点による大気濃度のデータ [1]を用いた。ただし、乾性沈着では'03年4、5、6月の3サンプル及び湿性沈着では'03年4、5、6、7、8月の5サンプルについては前年同月の大気濃度を用いた。 V_g はガス態による沈着が水中で平衡に達していると仮定し、ヘンリー定数 [2]を基に推定し、さらに求めた

V_g から V_p を算出した。また、 W_g はヘンリー定数を用いて (3) 式より求め、 W_p は(2)式及び(3)式より推定した。

$$W_g = R \times T / H \quad (3)$$

H : ヘンリー定数 [Pa m³/mol]、 R : 気体定数 [Pa m³/mol/K]、 T : 気温 [K]

V_g 及び W_g (25°Cの値)、 V_p 及び W_p の幾何平均値をTable 1 に示す。乾性沈着速度及び洗浄比はともにガス態よりも粒子結合態の方が大きい傾向を示し、粒子結合態の乾性沈着速度及び洗浄比が支配的であることが分かった。また、乾性沈着速度及び洗浄比ともに低塩素化物で大きくなる傾向を示すことが分かった。

一般に、大気中粒子結合態の乾性沈着速度及び雨滴の除去効率は粒子径に大きく依存しているため、各粒子径で異なることが報告されている [3, 4]。従って、本研究における V_p 及び W_p が示した低塩素化物ほど大気沈着の効率が上昇する傾向から、粒子径別に各同族体の存在割合が異なることが示唆される。

Table 1 Estimated dry deposition velocity and washout ratio for PCB homologues

同族体	沈着速度 [cm/s]		洗浄比 [-]	
	$V_g \times 10^4$	V_p	W_g	W_p
4CB	4.5	5.2	85	1400000
5CB	5.4	1.6	100	210000
6CB	6.3	0.48	120	86000
7CB	7.2	0.76	140	34000
8CB	8.1	0.62	150	49000
9CB	9.6	0.19	180	20000
10CB	11	0.24	210	26000

参考文献

- [1] 金曝洙: 大気中 PCB の挙動及び Mass Balance に関する研究, 横浜国立大学博士論文, 2004
- [2] F. M. Dunnivant, A. W. Elzerman: Quantitative Structure-Property Relationships For Aqueous Solubilities And Henry's Law Constants Of Polychlorinated Biphenyls, Environmental Science & Technology, Vol. 26, pp. 1567-1573, 1992
- [3] 浮遊粒子状物質対策検討会: 浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル, 東洋館出版社, pp.64, 1997
- [4] G. A. Sehmel: Particle And Gas Dry Deposition: A Review, Atmospheric Environment, Vol. 14, pp. 983-1011, 1980