

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・粒子分配及び元素状炭素との関係について—

吉岡秀俊 秋山 薫 泉川碩雄

要　旨

ろ紙とポリウレタンフォームにより、環境大気中のガスと粒子両状態の多環芳香族炭化水素(PAH_s)を捕集し、3～6環構造の PAH_s のうちの10成分について、見かけ上のガス・粒子分配、 PAH_s 相互の相関及び自動車排気粒子との関係を考察した。5環以上の PAH_s は、ろ紙でほぼ捕集できるが、4環の PAH_s は、気温の影響を受けながらガス・粒子分配していた。3環になると、ほとんどがガス状で捕集され、特にフェナントレンは、冬期を除いて、本捕集法でも捕集しきれなかった。粒子、ガス双方の PAH_s の合計濃度には、2例を除いて、 $P < 0.001$ で有意の相関が認められた。また、 PAH_s と元素状炭素との間にも同様の高い相関が認められた。ディーゼル自動車排気粒子の指標とされる元素状炭素に対する各 PAH_s の比と気温との関係をみると、低温期にその比が大きく、気温の上昇に伴い、比が小さくなっていた。この結果は、 PAH_s 濃度の大きな季節変動に対して、冬期には自動車走行の他に暖房による PAH_s の発生が加わり、春夏期には、日射やオキシダントによる PAH_s の分解が生じるとする従来の説明を裏付けるものである。一方、4環のフルオランテンとピレンの場合は、元素状炭素に対する比が概ね一定であるが、高温期に大きくなる傾向を示した。

Yearly Variation and Behavior of Polynuclear Aromatic Hydrocarbons in Ambient Particulate Matter (4) — Vapor-Particle Partitioning and Relationship between Polynuclear Aromatic Hydrocarbons and Elemental Carbon —

Hidetoshi Yoshioka, Kaoru Akiyama and Sekio Izumikawa

Summary

Three- to six- ring ten compounds of polynuclear aromatic hydrocarbons (PAHs) in the vapor phase and in the particulate phase were collected by using a combination of filter and polyurethane foam plugs attached to a high- volume air sampler and were determined by high pressure liquid chromatography. Apparent vapor- particle partitioning, correlation between ten PAHs, and relationship between PAHs and elemental carbon (Cae) are discussed. The results obtained are as follows: (1) Five- to six- ring PAHs were almost found in the particulate phase. Four-ring PAHs were partitioned between the vapor phase and the particulate phase depending on ambient temperature. Substantial amounts of three- ring PAHs were found in the vapor phase. (2) A high correlation was obtained between concentrations of PAHs ($P < 0.001$, except for two combinations) and so between PAHs and Cae which is an indicator of diesel exhaust particulate matter ($P < 0.001$). (3) The ratio of each PAHs to Cae (PAHs/Cae) is large in winter, and with the increasing of temperature the ratio becomes smaller. This result supports the usual suggestion that

PAHs are generated by heating in addition to PAHs in automotive exhausts in winter, and PAHs are decomposed by sunlight and oxidant in spring and summer. On the other hand as to fluoranthene and pyrene, the ratios of those to Cae are generally constant, but become larger above 25°C.

1 はじめに

化石燃料の不完全燃焼によって生成されるといわれている多環芳香族炭化水素 (PAH_s) は、発ガン性物質が多いことから¹⁾、環境大気中の測定データが蓄積されてきた^{2,3)}。しかし、それらの多くは、粒子状物質中のPAH_sであり、通常は、ベンゾ (a) ピレン (BaP: ヒトに発ガン性があると予測される。) と同条件で分析可能なベンゾ (k) フルオランテン (BkF: 動物に対する発ガン性があると証明されている。) とベンゾ (ghi) ペリレン (BghiP: 発ガン促進物質といわれる。) 等限られたPAH_sについてのものである。環境大気中の多くのPAH_sは、ガスと粒子の2つの状態で存在し、温度やおそらくは粒子の性状によってガス・粒子分配するものと考えられる⁴⁾。したがって、環境中のPAH_sの挙動を考察するためには、粒子だけではなくガスも捕集する必要がある。しかし、見かけ上であるにしろ、ガス・粒子分配をも考慮したPAH_sのデータは少ない現状にある。

見かけ上のガス・粒子分配を考慮した捕集は、当所でも菅ら⁵⁾によってなされ、ピレン、BaP、BghiPの3成分についての夏期の報告例がある。菅らはろ紙とTenax-GCで捕集した。一方、本報で用いた捕集法は、ろ紙とポリウレタンフォームであり、前報⁶⁾で用いた方法と同じである。この捕集法は、菅らも指摘しているとおり、捕集後の分析操作に時間がかかる等非常に煩雑であり、多量の有機溶媒を使用しなければならないが、大容量の捕集ができるために、多くのPAH_sの測定が可能である。

ところで、本捕集法を提唱したYamasakiらの報告^{6,7)}では、充填カラムガスクロマトグラフィーの分離が不十分であったために、いくつかのPAH_sをグループ化した情報はあるが、個々のPAH_sについての結果は得られていない。本報では、高速液体クロマトグラフィーにより3～6縮合環のPAH_s10成分の測定を試みた。このうち、3環のフェナントレン、アントラセン、4環のフルオランテン、ピレン、クリセン、6環のBghiPの6成分は、単独では非発ガン物質であるが、その混合物をマウスに塗布したところ腫瘍が認められている¹⁾。このように、

多くのPAH_sを測定することは、有害性の観点からも重要であると共に、現在もモニタリングを継続している3成分 (BkF、BaP及びBghiP) の指標性も明らかになるであろう。また、PAH_sの発生源については、明確とはいえない。ここでは、PAH_sの挙動の把握の一環として、①ろ紙とPUFの捕集率②PAH_sの相関③ディーゼル排気粒子との関係について検討したので報告する。

2 調査方法

(1) 捕集

1994年8月～1995年7月までの各月1回、当研究所屋上で、石英繊維ろ紙とその後部にポリウレタンフォーム (PUF: 密度0.02 g/cm³, 直径10cm, 厚さ5cm) 2枚を装着したハイポリウムサンプラーを流量800 l/minで24時間稼働して、環境大気を捕集し、12組の試料を得た。PUFは捕集に先立ってアセトン洗浄した。試料は、ろ紙の粒子状物質秤量時以外は、ポリエチレン袋に密封して冷凍庫に保存し、速やかに分析に供した。

(2) 多環芳香族炭化水素の分析

ア 抽出

ろ紙はその半分をアセトン50mLで、PUFは各1枚を300mLで超音波抽出した。

イ 分取

抽出試料を、ロータリーエバポレーターで濃縮し、室温で窒素ガスを吹き付けながら乾固した。これに直ちにn-ヘキサン:ジクロロメタン(9:1) 0.5mLと無水硫酸ナトリウムを加え密栓して、超音波洗浄器で壁面を洗い落としながら転溶した。転溶液の0.25mLをシリカゲルカラム (Megapak SIL-10 内径10mm×長さ25cm: 日本分光社製) を取り付けた分取液体クロマトグラフに供した。n-ヘキサンを移動相として流量4 mL/minで流し、3つのフラクションに分画した。第1フラクションは夾雑物であり、第2フラクションにはフェナントレン、アントラセン、フルオランテン及びピレンが含まれ、第3フラクションにはベンゾ (a) アントラセン (BaA), クリセン、ベンゾ (b) フルオランテン (BbF), BkF, BaP及びBghiPが含まれている。なお、

分画時間は、あらかじめ標準液を注入し、紫外検出器でモニターして決定しておいた。

第2、第3フラクションをそれぞれロータリーエバボレーターで濃縮し、室温で窒素ガスを吹き付けながら乾固し、アセトニトリルに転溶して、分析試料とした。

ウ 定量

分析試料溶液を逆相分配カラム (LC-PAH 内径4.6mm×長さ25cm: スペルコ社製) を取り付けた高速液体クロマトグラフに注入した。移動相はアセトニトリル+水 (90:10) 1mL/minである。検出波長は物質によって変えた。すなわち、フェナントレン、アントラゼン、

表1 測定結果

捕集年月日	捕集材料	TSP μg/m ³	Phe ng/m ³	Ant ng/m ³	Fu1 ng/m ³	Pyr ng/m ³	BaA ng/m ³	Chr ng/m ³	BbF ng/m ³	BkF ng/m ³	BaP ng/m ³	BghiP ng/m ³	Cao μg/m ³	Cae μg/m ³	気温 ℃
1994年 8/16-17	ろ紙 PUF1 PUF2	30.5	0.0917 4.50 0.386 4.35	0.0098 0.107	0.132 0.10	0.156 6.50 0.103 0.12	0.142 0.218 0.002 <0.001	0.213 0.010 <0.003	0.504 0.003 <0.001	0.186 0.001 <0.001	0.267 0.001 <0.001	0.300 0.003 <0.002	1.00	5.21	29.1
9/19-20	ろ紙 PUF1 PUF2	76.8	0.199 13.0 8.1	0.024 0.909 0.182	0.460 8.98 0.22	0.538 12.1 0.1	0.373 0.173 0.004	0.662 0.272 0.005	1.15 0.013 <0.003	0.420 0.007 <0.001	0.599 0.001 <0.001	0.811 <0.002 <0.002	6.21	18.9	23.8
10/17-18	ろ紙 PUF1 PUF2	60.4	0.141 11.8 6.1	0.022 0.831 0.082	0.867 6.88 0.05	0.920 8.27 0.07	0.686 0.201 <0.001	0.850 0.510 <0.001	1.38 0.004 <0.003	0.601 0.006 <0.001	1.02 <0.001 <0.001	1.12 <0.002 <0.002	5.41	13.9	20.4
11/10-11	ろ紙 PUF1 PUF2	216	0.544 50.1 19.2	0.092 3.09 0.33	1.27 24.3 0.3	1.85 25.8 0.4	2.72 0.580 0.03	4.21 1.09 0.004	4.72 0.006 <0.003	2.24 <0.001 <0.001	4.74 <0.001 <0.001	4.25 <0.002 <0.002	26.5	47.7	15.7
12/15-16	ろ紙 PUF1 PUF2	68.6	0.260 13.5 0.6	0.033 0.609 0.021	0.867 5.57 0.01	1.14 4.94 0.02	0.921 0.009 <0.001	1.29 0.050 <0.001	1.39 <0.003 <0.003	0.579 <0.001 <0.001	0.903 <0.001 <0.001	1.28 <0.002 <0.002	5.51	11.7	9.6
1995年 1/17-18	ろ紙 PUF1 PUF2	49.8	0.273 17.0 0.02	0.042 1.40 0.002	1.04 6.08 0.005	1.62 6.17 0.05	1.38 <0.001 <0.001	1.66 0.072 <0.001	1.54 <0.003 <0.003	0.727 <0.001 <0.001	1.34 <0.001 <0.001	1.58 <0.002 <0.002	4.75	11.1	4.0
2/16-17	ろ紙 PUF1 PUF2	58.2	0.261 12.8 1.2	0.031 0.290 0.018	0.809 4.36 0.16	0.993 3.44 0.02	0.535 0.003 <0.001	0.808 0.049 <0.001	0.851 <0.003 <0.003	0.370 <0.001 <0.001	0.583 <0.001 <0.001	0.855 <0.002 <0.002	3.86	10.0	5.9
3/15-16	ろ紙 PUF1 PUF2	75.4	0.623 24.5 0.8	0.062 1.59 0.01	2.27 8.86 0.03	2.60 9.07 0.08	1.34 0.011 <0.001	2.43 0.093 <0.001	2.30 <0.003 <0.003	1.16 <0.001 <0.001	2.23 <0.001 <0.001	1.81 <0.002 <0.002	6.80	16.2	9.1
4/17-18	ろ紙 PUF1 PUF2	70.8	0.319 6.84 2.84	0.027 0.509 0.001	0.789 4.15 0.02	0.823 3.44 0.04	0.396 0.022 <0.001	0.622 0.107 <0.001	0.677 0.008 <0.003	0.265 0.001 <0.001	0.389 0.001 <0.001	0.417 <0.002 <0.002	5.01	12.3	17.3
5/17-18	ろ紙 PUF1 PUF2	52.3	0.385 9.62 3.51	0.039 0.454 0.012	1.03 4.60 0.02	0.991 4.45 0.02	0.499 0.015 <0.001	0.804 0.133 <0.001	0.891 0.009 <0.003	0.377 0.001 <0.001	0.597 0.001 <0.001	0.603 0.002 <0.002	4.99	11.5	17.0
6/15-16	ろ紙 PUF1 PUF2	76.3	0.188 17.4 10.4	0.022 0.819 0.082	0.379 10.7 0.03	0.514 10.6 0.03	0.615 0.266 <0.001	0.705 0.602 <0.001	1.04 0.017 <0.003	0.467 0.002 <0.001	0.719 0.001 <0.001	0.993 0.002 <0.002	4.04	12.5	20.7
7/13-14	ろ紙 PUF1 PUF2	90.9	0.246 16.1 11.7	0.028 1.03 0.22	0.624 15.0 0.2	0.746 17.2 0.2	0.484 0.398 <0.001	0.792 0.972 <0.001	1.31 0.038 <0.003	0.556 0.012 <0.001	0.898 0.002 <0.001	1.27 0.002 <0.002	5.93	16.4	26.1

注1) TSP: 粒子状物質, Phe: フェナントレン, Ant: アントラゼン, Fu1: フルオランテン, Pyr: ピレン, BaA: ベンゾ(a)アントラゼン, Chr: クリセン, BbF: ベンゾ(b)フルオランテン, BkF: ベンゾ(k)フルオランテン, BaP: ベンゾ(a)ピレン, BghiP: ベンゾ(ghi)ペリレン, Cao: 有機炭素, Cae: 元素状炭素, 気温: 平均気温

注2) PUF1: ポリウレタンフォーム上段, PUF2: ポリウレタンフォーム下段

注3) PUFの定量下限は次のとおり(単位: ng/m³)。

BaA・Chr・BkF・BaP: 0.001, BbF: 0.003, BghiP: 0.002

注4) 数値の取り扱いに際して、定量下限未満の場合は、ゼロとした。

ビレン及びクリセンには励起360nm、蛍光390nm、BaA, BkF, BaP, BghiPには励起295nm、蛍光410nm、フルオランテンとBbFには励起290nm、蛍光447nmを使用した。

(3) 元素状炭素と有機炭素の分析

熱的方法によった⁸⁾。ろ紙試料を酸素存在下窒素気流中に挿入し、設定温度350°Cで5分間に生成した二酸化炭素の量から求めた炭素量を有機炭素、続いて900°C以上に設定して得られた炭素成分を元素状炭素とした。

3 結果と考察

測定結果を、ろ紙、ポリウレタンフォーム(PUF)上段及び下段に分けて表1に示した。また、ろ紙とPUFに捕集されたPAH_sの合計濃度と元素状炭素濃度の関係を図1に示した。PAH_s10成分のうちの主成分は3環のフェナントレン、次いで4環のビレンそして4環のフルオランテンであり、この3成分で8~9割を占めていた。

(1) PAH_sの構造と捕集率

5環構造であるベンゾ(b)フルオランテン(BbF:動物に対して発ガン性があると証明されている。), BkF及びBaPと6環構造であるBghiPの4成分は通常の

気温下ではろ紙上に捕集され、PUFからはほとんど検出されず、ろ紙捕集率はほぼ100%であった。したがって、当研究所で継続モニタリングしているBkF、BaP、BghiPの3成分は、都市域においてはろ紙捕集のみでよいことが確認された。なお、この結果は、微小粒子(2μm以下の粒子状物質)が極端に少ない小笠原のろ紙捕集率より高い⁹⁾。すなわち、ろ紙捕集率は、温度だけではなく、粒子の性状にも依存していると推定される。

4環構造のPAH_sの場合は、ろ紙捕集率が高いベンゾ(a)アントラセン(BaA)とクリセン(Chr)のグループと、ろ紙捕集率が低いフルオランテン(Flu)とビレン(Pyr)のグループに別れた。そして、これらの捕集率は温度に依存していた(図2)。すなわち、前グループの場合、BaAでは、平均気温10°Cまではろ紙捕集率100%であったが、20°Cでは70~80%程度であり、30°Cになると60%弱であった。クリセンは、BaAより捕集率が若干低く、気温10°Cまではろ紙捕集率はほぼ100%であるが、15°Cで80%程度、30°C近くになると50%弱であった。一方、後者のグループの場合、ビレンは10°Cまでは20%、フルオランテンは15%程度しかなく、しかも15°C前後からは10%以下になった(図2)。また、ろ紙を通過した4環構造のPAH_sは上段のPUFに止まり、

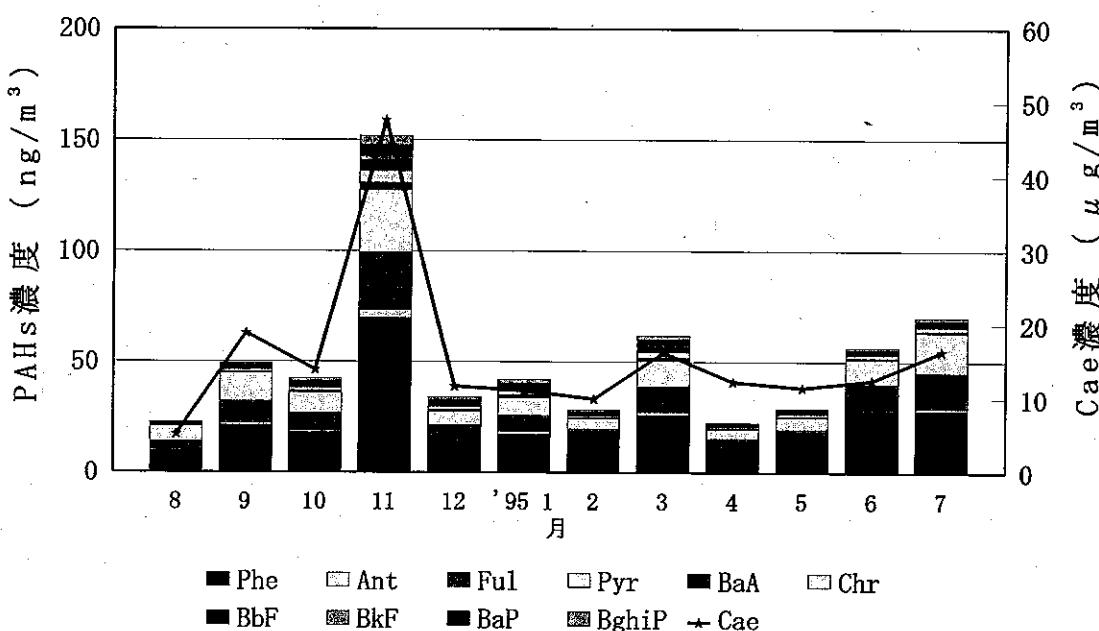


図1 多環芳香族炭化水素10成分(ガスと粒子の合計)と元素状炭素の月別濃度

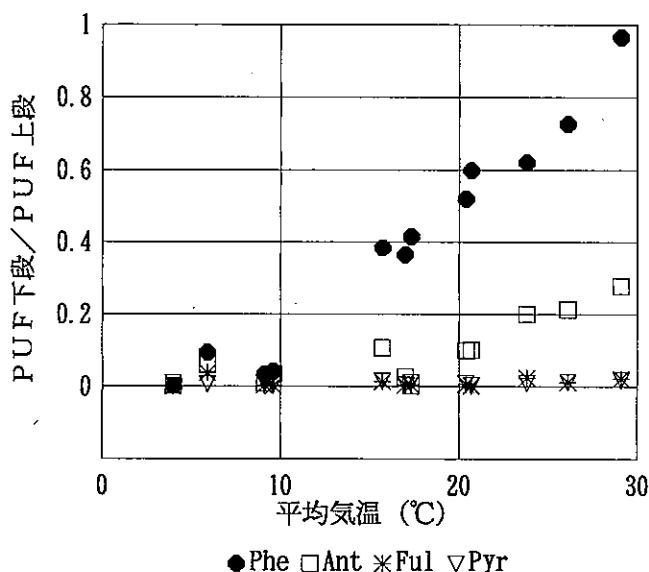
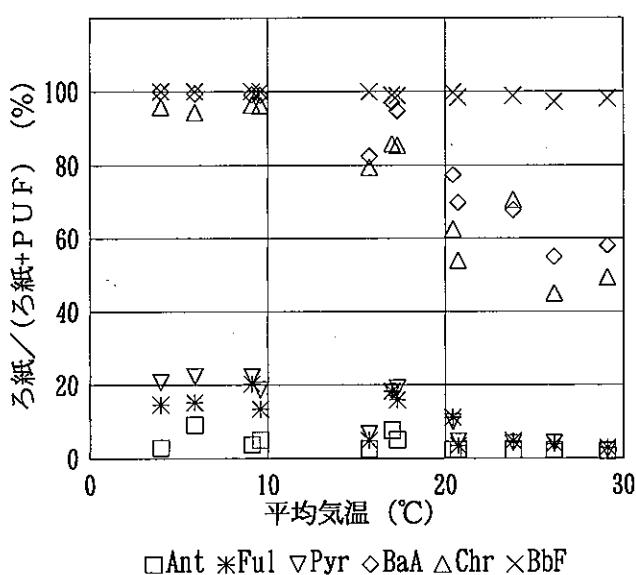


図2 ろ紙捕集率

図3 上段のポリウレタンフォーム上の多環芳香族炭化水素に対する下段の割合

表2 多環芳香族炭化水素等の相関（ろ紙のみ）

	TSP	Phe	Ant	Flu	Pyr	BaA	Chr	BbF	BkF	BaP	BghiP	Cao	Cae
TSP	1												
Phe	0.558	1											
Ant	0.807	0.882	1										
Flu	0.282	0.888	0.729	1									
Pyr	0.400	0.878	0.823	0.963	1								
BaA	0.816	0.696	0.937	0.589	0.749	1							
Chr	0.840	0.787	0.973	0.662	0.789	0.982	1						
BbF	0.914	0.687	0.927	0.537	0.666	0.958	0.975	1					
BkF	0.893	0.718	0.940	0.581	0.706	0.966	0.984	0.997	1				
BaP	0.894	0.715	0.940	0.566	0.693	0.964	0.983	0.995	0.998	1			
BghiP	0.908	0.638	0.910	0.492	0.647	0.969	0.966	0.989	0.987	0.983	1		
Cao	0.975	0.605	0.870	0.360	0.481	0.882	0.898	0.953	0.935	0.940	0.940	1	
Cae	0.982	0.572	0.830	0.324	0.437	0.836	0.861	0.936	0.914	0.916	0.918	0.987	1

表3 多環芳香族炭化水素等の相関（ろ紙とPUFの合計濃度）

	TSP	Phe	Ant	Flu	Pyr	BaA	Chr	BbF	BkF	BaP	BghiP	Cao	Cae
TSP	1												
Phe	0.963	1											
Ant	0.896	0.943	1										
Flu	0.934	0.973	0.920	1									
Pyr	0.892	0.943	0.908	0.985	1								
BaA	0.895	0.928	0.962	0.868	0.822	1							
Chr	0.921	0.950	0.971	0.911	0.867	0.985	1						
BbF	0.916	0.937	0.967	0.885	0.848	0.982	0.992	1					
BkF	0.894	0.923	0.963	0.868	0.827	0.981	0.993	0.997	1				
BaP	0.895	0.922	0.961	0.860	0.818	0.980	0.990	0.995	0.998	1			
BghiP	0.908	0.936	0.960	0.886	0.842	0.994	0.990	0.990	0.987	0.983	1		
Cao	0.975	0.941	0.918	0.883	0.845	0.933	0.944	0.954	0.936	0.941	0.939	1	
Cae	0.982	0.957	0.926	0.919	0.895	0.906	0.928	0.938	0.915	0.916	0.918	0.987	1

下段からはほとんど検出されなかった(図3)。

3環構造のフェナントレン(Phe)とアントラセン(Ant)は10°C以下でも、ろ紙捕集率は数%にすぎず、ほとんどがろ紙を通過して、PUFから検出された。PUFに捕集されたこれら2成分の結果は、次のとおりであった。アントラセンは上下2枚のPUFでほぼ捕集された。一方、フェナントレンは、15°C付近では上段に對して下段からも40%程度検出され、30°C近くになると、上段と下段から同量が検出され、2枚のPUFでも捕集は不完全であった(図3)。

なお、捕集中にも、PAH_sのガス・粒子分配は起こっているであろうから、これらの結果はあくまでも見かけ上のガス・粒子分配についてのものである。

(2) PAH_sの相関

ろ紙のみに捕集された各PAH_s濃度等についての単相関係数を表2に示した。PAH_s相互間では、4環のBaA, クリセン(Chr)と5環以上のPAH_sは互いに $P < 0.001$ ($n=12$) で有意の相関が認められた。その他 $P < 0.001$ で有意の相関が認められるのは、3環どうしのフェナントレン(Phe)とアントラセン(Ant)、3環のフェナントレンと4環のフルオランテン(Flu), ピレン(Pyr)間、3環のアントラセンと4環のBaA, クリ

セン及び5環6環のPAH_s、そして4環どうしのフルオランテンとピレン間の10例であった。したがって、ろ紙捕集率が高いものほど高い相関を示し、また、総合構造が似たものも高い相関を示す。

ろ紙とPUFに捕集された各PAH_sの合計濃度(全PAH_sと言う。)等についての単相関係数を表3に示した。各PAH_s間には、ピレン-BaA, ピレン-BaP間の2例を除いて、いずれも $P < 0.001$ ($n=12$) で有意の相関が認められ、従来行われているろ紙だけの捕集の場合より高い相関であった。これにより、4環以下の構造の場合、ろ紙捕集での相関が低い理由は、ガス・粒子の両状態で存在するためであることが確認された。全PAH_sについて個々をみると、ピレンとフルオランテンが、お互い同士では相関が高いものの、他のPAH_sとは相対的に低い。

継続モニタリングとの関連でいえば、モニタリング対象である3成分は、今回測定したPAH_s10成分を概ね代表していることが確認された。

(3) ディーゼル排気粒子との関係

PAH_sは不完全燃焼によって生成するといわれており、都市域において考えられる発生源は、主に自動車と推定される。

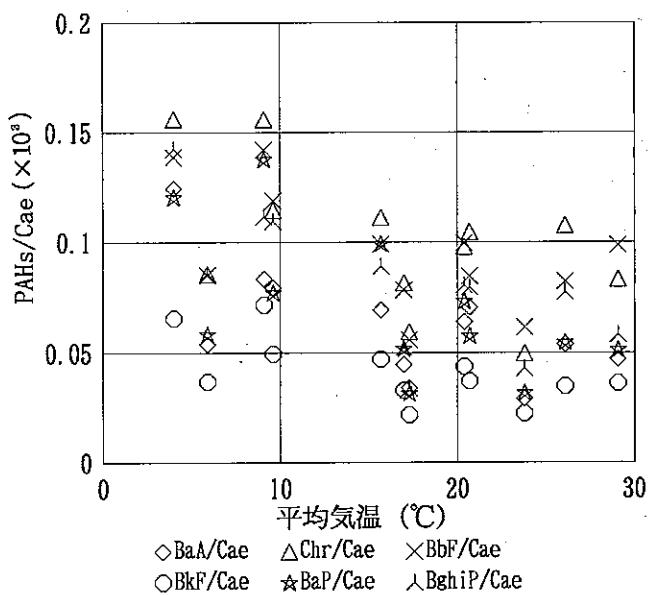


図4 元素状炭素に対する多環芳香族
炭火水素6成分の比と気温との関係

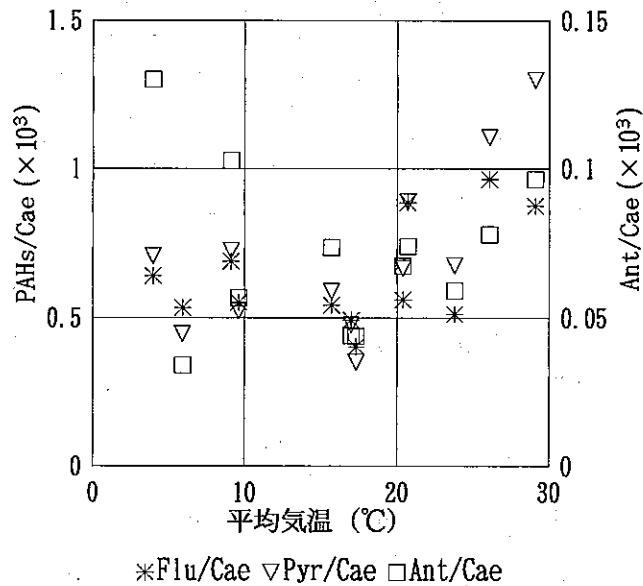


図5 元素状炭素に対するフルオランテンと
ピレン及びアントラセンの比と気温との関係

表3から、全PAH_sと粒子状物質や有機炭素、そして元素状炭素にも、 $P < 0.001$ ($n=12$) で有意の相関があることがわかる。また、図1から全PAH_sと元素状炭素の濃度変化のパターンが概ね同様であることがわかる。ここでは、ディーゼル自動車排気粒子の指標とされ、発生源が明らかである元素状炭素との関係を考察する。

PAH_sの主な発生源がディーゼル自動車であり、自動車走行がほぼ一定であれば、元素状炭素 (Cae) とPAH_sの比は、気温とは無関係にほぼ一定になるであろう。そこで、PAH_sとCaeとの比と捕集温度の関係を図4、図5に示した。4環構造のクリセンとBaA及び5環～6環構造のPAH_sでは、PAH_s/Caeは低温で大きく、高温で小さい傾向にあるという、概ね同様の結果であった(図4)。この結果は、PAH_s濃度が低温期に高く、高温期に低くなる極端な季節変動¹⁰⁾の理由として從来からいわれている、冬期には自動車走行の他に暖房によるPAH_sの発生の影響が加わること、春夏期になると日射やオキシダントによるPAH_sの分解が生じることとする説明を裏付けるものである。ただし、今回の結果では、15°C以上でのPAH_s/Cae比の減少は、僅かであった。

一方、これらと比較して各PAH_sとの相関が相対的に低かった4環構造のフルオランテンとピレンは、図5のごとくPAH_s/Cae比が概ね一定であるが、約25°Cを越えるとその比が大きくなっていた。また、この2成分より分子量が小さい3環のアントラセンについても、カラム分離が悪い等、定量性に問題があるが、同様に図5にプロットしてみると、比の大きい10°C以下の2点(1月と3月)を除くと、フルオランテンやピレンに似た傾向を示した。この2点のアントラセン濃度は、他のPAH_sに対する組成比が2～3倍高くなっている、分析上に問題があったとも考えられる。したがって、ガス状で存在する割合が高いこれら3成分と、粒子状物質に吸着されて存在するかその割合の高い他のPAH_sとの挙動は異なる可能性がある。なお、気温が高くなると元素状炭素との比が大きくなる理由については、熱的分析方法による元素状炭素の組成の実態やPAH_sの分解生成物等未解明要素が残っており、不明である。

4 おわりに

PAH_sについて、ガス・粒子分配と、元素状炭素との

関係を中心に述べた。

しかし、ここで用いた捕集法を含め、従来の捕集法では、粒子状でろ紙に捕集された半揮発性有機物質が、吸引によって気化してガス化する、いわゆるblow-off losses、逆にガス状のものがろ紙または粒子状物質に吸着するadsorption gainsが生じる、あるいはその恐れがあるために、見かけ上のガス・粒子分配を測定しているといわれている¹¹⁾。近年こうした影響を極力避ける目的で、有機物捕集用の拡散デニューダが検討されている^{12,13)}が、まだ実用段階に至らず、早急な開発が望まれる。

引用文献

- 1) 常盤寛：大気中のがん原物質、大気汚染学会誌、27, p.A8～A15(1992).
- 2) 日本環境衛生センター：昭和63年度環境庁委託業務結果報告書窒素酸化物個人暴露量等調査（発癌関連物質の大気濃度データの収集・整理），平成元年3月.
- 3) 東京都環境科学研究所：浮遊粒子状物質等測定データ集，平成8年3月.
- 4) C. Pupp *et al.* : EQUILIBRIUM VAPOR CONCENTRATIONS OF SOME POLYCYCLIC AROMATIC HYDROCARBONS, As₂O₃ AND SeO₂, AND THE COLLECTION EFFICIENCIES OF THESE AIR POLLUTANTS, Atmos. Environ., 8, p.915～925(1974).
- 5) 菅邦子ら：ガス状多環芳香族炭化水素の測定について、東京都公害研究所年報1982, p.44～48.
- 6) 山崎裕康ら：ポリウレタンフォームプラグによる大気中の多環芳香族炭化水素の捕集、分析化学、27, p.317～321(1978).
- 7) H. Yamasaki *et al.* : Effects of Ambient Temperature on Aspects of Airbone Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, Environ. Sci. Technol., 16, p.189～194(1982).
- 8) 秋山薰ら：東京都における浮遊粒子状物質中の炭素成分の粒径分布と発生源寄与の推定、東京都環境科学研究所年報1991, p.71～77.
- 9) 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）－小笠原諸島父島における3種PAH_s－、東京都環境科学研究所年報1994, p.3～11.

- 10) 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1991-2，p.89~96.
- 11) T.F. Bidleman : Wet and dry deposition of organic compounds are controlled by their vapor - particle partitioning, Environ. Sci. Technol., **22**, p.361~367(1988).
- 12) D.A. Lane *et al.* : Development and Evaluation of a Novel Gas and Particle Sampler for Semivolatile Chlorinated Organic Compounds in Ambient Air, Environ. Sci. Technol., **22**, p. 941~947(1988).
- 13) M.S. Krieger and R.A. Rites : Diffusion Denuder for the Collection of Semivolatile Organic Compounds, Environ. Sci. Technol., **26**, p.1551~1555(1992).