

## 大気粉じん中のベンゾ(a)ピレン濃度とその推定 (第3報)

昆野 信也 江角 光典

### Benzo(a)Pyrene Concentration of Airborne Particulates and its Estimation (III)

Shinya Konno and Mitsunori Ezumi

#### Abstract

Particles less than  $1\mu\text{m}$  of aerodynamic equivalent diameter in Suspended Particulate Matter (SPM) are defined as Lung Accumulatable Particles (LAP) in a viewpoint of that the urban particles are carcinogen carrier. In this paper, the application of linear multiple regression analysis for estimating atmospheric concentrations of benzo(a) pyrene in LAP stage with particle mass, temperature and oxidant parameters have been investigated. It is found that the SPM monitored values by  $\beta$ -ray absorption (SPM- $\beta$ ) in the Air-pollution Monitoring Network are frequently coincided with LAP mass observation values. Substitution of SPM- $\beta$  for LAP mass in the regression analysis have also been discussed for epidemiological application.

Results of discussion have indicated that the regression equation is suitable for secondary particles, and the constitution of equation is explained theoretically by secondary particle formation mechanisms. Therefore, the situations of that the practical size distribution of LAP or SPM- $\beta$  fall on the secondary particle stage give good correlation. The intercept and each partial correlation coefficients of equation have been determined by use of selected data that were regarded as the representatives of secondary particles.

Estimation have been verified by the past observation data that were carried out 11 years ago, the estimates almost agree with the observed values.

Key words : Lung Accumulatable Particles, Atmospheric Benzo(a)Pyrene, Multiple Regression Analysis, Secondary Particles.

#### 1 緒 言

環境大気中の浮遊粒子状物質(SPM)には多種類の多環芳香族炭化水素(PAH)が存在しているが、そのうちの数成分は強力な発癌物質として知られ、特にベンゾ(a)ピレン(BaP)の大気中濃度と肺癌発症との関係にはかねてより注意が払われてきた<sup>1)</sup>。

このためSPMに関する疫学的アセスメントの研究においては、大気中のPAH濃度の適切な予測データが必要であって、Butlerら<sup>2)</sup>は大気粒子中の重金属

の予測手法を応用して、線形重回帰分析でPAH各成分濃度についての予測を行っている。しかしながら、この回帰式による予測値は我が国におけるBaP濃度の測定結果との整合性があまりよくない。BaPについては各地で長期的に測定されており、その濃度変動幅は非常に大きいことが知られている<sup>3-5)</sup>。従って、回帰予測には重金属の場合とは違ったパラメータ構成を必要とするが、著者らは大気中におけるPAHの存在形態を粒子表面への凝固と考え、本研究の第1報<sup>6)</sup>

でSPM濃度、気温、オキシダント濃度をパラメータとするBaP濃度の三重回帰予測式を提案した。そして第2報<sup>7)</sup>においては、BaP濃度に影響をあたえる気象要素、汚染質要素について、因子分析の手法を用いて検討した。

一方、SPMによる呼吸器障害について論ずる場合、粒径範囲によって肺内到達深度に違いがあることに言及した報告は多いが、SPMは発癌物質を呼吸器に到達せしめるキャリアーであって、肺胞まで侵入しうる粒径範囲のものが、最も危険なものとして検討対象になるはずである。このことはKertesz-Saringerら<sup>8)</sup>によって既に指摘されているが、この観点から粒径分布を分析した報告は少ない。そこで著者らは呼吸器に係る健康障害を定量的に論ずる必要性から、微小粒子の肺内沈着性に注目し、SPMのうち1 μm以下の粒子をLung Accumulatable Particles(LAP)と定義することとした。また、大気汚染常時監視に広く使用されるようになってきたβ線吸収型SPM自動測定器による測定値(SPM-β)は、通年ではLAPを代替すると見なせることがわかったので、本報においてはLAPに運ばれるBaPについて、第1報で提案した予測式を用いて、測定されていない濃度レベルを都道府県や政令市の大気汚染常時監視データを用いて推定する方法を検討する。

## 2 方 法

### 2・1 PAHの存在形態についての仮説

松下<sup>9)</sup>はSPM中のBaP含有量が他の各PAH含有量と強い相関のあることを指摘し、また他の論文<sup>10)</sup>で、SPM中の各PAHと重金属との相関関係の検討結果として、強い相関のある群が必ずしも同一発生源に由来するとは限らないことを明らかにした。そしてPittsら<sup>11)</sup>が大気中でのO<sub>3</sub>によるBaPのエポキシド形成を発見してより、粒子表面でのPAHの酸化反応が注目されはじめ、Königら<sup>12)</sup>は大気粒子の抽出物から38種のPAH酸化物を検出しているし、Wuら<sup>13)</sup>はペリレンおよびBaPのO<sub>3</sub>による分解反応機構を実験により明らかにしている。

著者らは以上の業績をふまえ、大気中でのPAHの存在形態の基本は粒子表面での凝固・昇華平衡であるという仮説を導いた。この平衡は温度によって保たれ、他のガス状汚染質との反応によって破られる。従って、装置に捕集される各PAHの濃度は大気中における存

在条件の方を強く反映し、発生源の特徴は止どめていないと考えるわけである。

### 2・2 回帰予測式

#### 2・2・1 概 要

前節での仮説によれば、SPMに担持されるBaP量は、まずSPM総表面積と、凝固・昇華平衡の関数としての温度に依存しており、次いでこの平衡を破るO<sub>3</sub>濃度等の影響をうけることになる。従って回帰式のパラメータは粒子表面積、温度、O<sub>3</sub>濃度とすれば良いが、粒子表面積のような見積りの困難な量をパラメータとすることは得策ではない。回帰予測の目的は、現実に入手しうるデータに基づいて妥当な推定を行うことにあるので、できれば常設の大気汚染監視網からのデータを使用したい。

そこで回帰予測式はまず(1)式<sup>6)</sup>の構成をとる。

$$C_{BaP} = a_0 + a_1 P - a_2 T - a_3 O_x \quad \dots \dots (1)$$

即ち、粒子表面積を代替するものとして粒径範囲を限定した粒子重量濃度(P)を、O<sub>3</sub>濃度を代替するものとしてオキシダント濃度(O<sub>x</sub>)を、温度にはそのまま気温(T)を使用して、その粒径範囲の粒子に担持されたBaPの大気中重量濃度(C<sub>BaP</sub>)の回帰予測を試みる。そしてP項に常時監視のSPM値を代入できれば、大気汚染常時監視データだけを用いての推定が可能となる。

#### 2・2・2 適用の経緯

本研究の初期にはSPM値の代入過程で、SPMの定義に最も近い実測値として7 μm以下の粒子の重量とこれに担持されたBaP重量を、そして代入するSPM値としては、光散乱型ダストカウンターからのF値換算値(SPM-Lscat)を用いた。しかしながらその推定値は、通年の傾向としては実測値と整合するものの、冬季から春季にかけて不整合を生じる<sup>6)</sup>。そこでSPM値そのものの検討として、粉じん試料の確保されているβ線吸収型SPM自動測定器の測定値(SPM-β)をとりあげた。これはSPM-β計測後の捕集粉じんからPAHを抽出して分析し、BaP濃度の時間値を集積して(1)式による回帰を行うものであるが、ここで冬季には時間値レベルでも(1)式は有意性を持つことが確認されている<sup>7)</sup>。従ってP項にSPM-βを代入するとすれば、その実質的代表粒径範囲と粒子の履歴の問題が残っている。

### 2・3 使用データ

本報(第3報)に於いては、第1報で報告した埼玉県公害センター構内における1983年~1985年の測定データおよび大気汚染常時監視データを引用し、特に $1.1\mu\text{m}$ 以下の粒径範囲について解析する。

また1980年の松下らの報告<sup>10)</sup>から、川崎市公害研究所構内における1975年~1976年の $1.1\mu\text{m}$ 以下の粒子に係るデータを引用すると共に、これに関連して川崎市公害監視センターより提供された同測定期間の気温及び $\text{O}_x$ 濃度を用いて検討を行う。

## 3 検 討

### 3・1 測定データの再検討

本研究では大気粉じんを分級採取し、各ステージにおけるBaP含有量の測定を、短期的変動を観測するものとして1983年12月および1984年7月にそれぞれ連

続120時間で、長期的変動を観測するものとして1984年3月から月1回24時間で1985年2月まで実施した。その概要については既に第1報で報告したが、本章はこのデータの再検討から始める。

#### 3・1・1 分級採取粉じん量とSPM値

再検討における第一の視点はSPM値の実質的代表粒径範囲についてである。Fig.1に全データからの分級採取粉じん濃度と、大気汚染常時監視に使用されている二種類の粉じん測定器からのSPM値を、それぞれ24時間値で対比した。

SPMの定義は $10\mu\text{m}$ 以下の浮遊粒子ということであって、大気汚染常時監視に用いられる装置もこの定義を満たすべく設計されているはずである。従って常時監視のSPM値は、分級採取粉じんの $7\mu\text{m}$ 以下の粒子濃度に対し、若干高い程度で整合するものと予想されていた。しかるに、Fig.1の直線回帰が示すように、常時監視のSPM値は通年では $7\mu\text{m}$ 以下の粒子

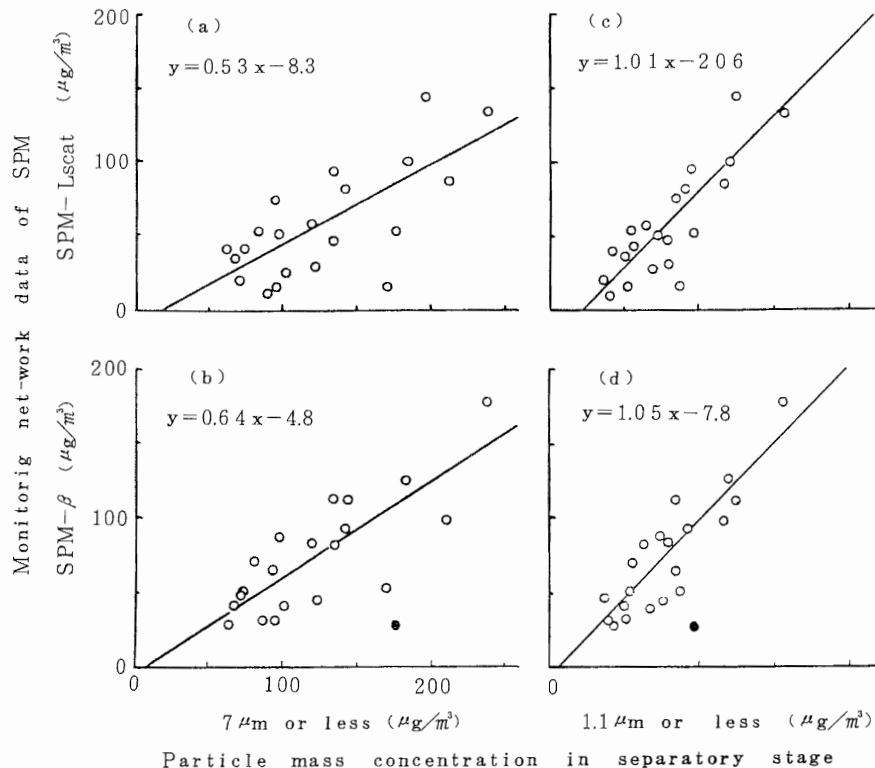


Fig.1. Comparison in 24h mean of SPM monitoring data from Airpollution Monitoring Network with particle mass measurements under aerodynamically separation : one way SPM monitoring have been carried out by light scattering (SPM-Lscat) and another way by  $\beta$ -ray absorption (SPM- $\beta$ )

濃度に対し60%程度でしかない。そして光散乱を用いようと(SPM-Lscat),  $\beta$ 線吸収を用いようと(SPM- $\beta$ )、SPM値は $1.1\mu\text{m}$ 以下の粒子濃度にほぼ整合している。このことからSPM値は $1.1\mu\text{m}$ 以下の粒子濃度を実質的に代表していると思わせるが、光散乱による測定は湿度の影響を強く受ける場合があるので<sup>14)</sup>、一律のF値換算を行うと、直線回帰は大きな負の切片を与えてしまうものと思われる。従ってSPM- $\beta$ の方に、 $1.1\mu\text{m}$ 以下の粒子濃度についての代替機能を認めることができる。

### 3・1・2 粒径 $1\mu\text{m}$ 以下の粒子

大気粒子の粒径分布への関心は歴史的に呼吸器障害との関連であって、我が国におけるSPMの定義も呼吸器に吸入される粒径範囲を考慮してのことであるが、 $10\mu\text{m}$ 以下の粒径に対して疫学的根拠が明確なわけではない。EPAでは、1978年より $15\mu\text{m}$ 以下の粒子をInhaled Particulates(IP)と定義して<sup>15)</sup>、全国的な観測ネットワークを設置し、 $3\mu\text{m}$ 以下の粒子をRespirable Particles(RP)と定義している研究者が多い<sup>16)</sup>。著者らは大気粒子を発癌物質のキャリアと考えているので、肺癌発症との関連では、肺の局部に発癌物質が長期間滞留するための条件を考慮する必要があり、肺胞に沈積する粒子に付着したPAHを考察の対象とする。そこで沈積し得る粒子の粒径範囲であるが、SPMでも比較的大きな粒子は呼吸器の各部位で異物として捕捉され、やがて排除される。そしてsubmicron粒子のみが肺胞を自由に入出りできることから、SPMのうち特に $1\mu\text{m}$ 以下の粒子をLung Accumulatable Particles(LAP)と定義したい。本報においては以後 $1.1\mu\text{m}$ 以下の粒子もLAPと

して扱う。

一方最近においては、大気中で二次的に生成される微小粒子が注目されているが、角脇<sup>17)</sup>は都市大気中での二次粒子の生成モデルを提案している。このモデルはWhitbyら<sup>18)</sup>の指摘している大気粒子の一般的粒径分布、即ち粒径 $1\sim 2\mu\text{m}$ を谷とする微小粒子と粗大粒子の二山型の分布について、粗大側の山が一次粒子の分布であり、微小側の山が二次粒子の分布であるというものである。そして二次粒子の核には燃焼由来の微細炭素粒が想定されている。

このモデルによるなら、大気中のPAHは微小粒子に偏って会合しており、その起源は燃焼であるという多くの研究者の指摘<sup>19)</sup>を矛盾なく説明するし、大気中でのPAHの存在形態について、著者らの仮説を二次粒子の生成過程として説明できる。即ち、PAHの発生源とそのキャリアの発生源を同一機構とすれば、凝結・昇華平衡の前提となる凝結の契機がここに存在するし、二次粒子の生長は、PAH等の高沸点有機化合物が水滴に含まれる各種イオン等と共に微細炭素粒の表面で凝縮と気化を繰り返す結果である、と考えられるからである。

### 3・1・3 LAPに担持されたBaP

測定データ再検討の第二の視点はLAPを生成途上の二次粒子と考え、これに担持されたBaP量について(1)式を支える規則性の端緒を探ることである。第2報において、SPM- $\beta$ の計測値と被計測粒子中のBaP量には冬季に強い相関の見いだされることを報告した。そこでLAPステージにおけるBaP担持比率の変化を、冬季および夏季の短期連続観測データから抽出してFig. 2に示す。

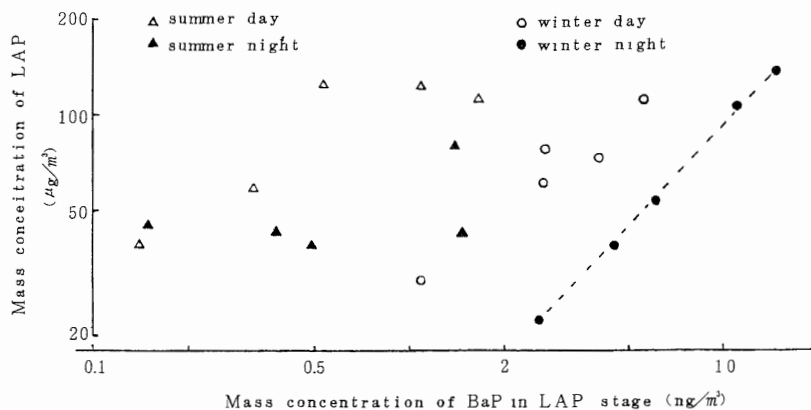


Fig.2. Night and day variation in both seasons of BaP carrying ratio in LAP stage.

LAPステージのBaP担持比率を夜間と昼間の別で見ると、まず冬季の夜間に、LAP10 $\mu\text{g}$ が約1.1 ngのBaPを運んでいるという関係が見いだされる。冬季の昼間にはBaP担持比率は夜間の1/2~1/3に減少するが、夜間には再び元の担持比率に戻る。試料採取は雨および霧の無い連続した120時間に12時間値として10件で構成されているので、これは冬季における基本パターンと考えて良いであろう。そして夜間に一定比率に戻るという事実は、観測期間中の夜間の平均気温が5日間で5 $^{\circ}\text{C}$ ±1.5 $^{\circ}\text{C}$ の範囲ではほぼ変わらないことから、凝結・昇華平衡の顕在化と見ることもできる。

一方、夏季の観測からはこのような規則性は見いだされず、LAP量の変動範囲は冬季と変わらないが、BaP担持比率はほぼ一桁下の範囲で、LAP量とは無関係に推移している。これは冬季に比べて環境中のBaP量が著しく減少していることによると考えられるが、BaPの発生量そのものが桁違いに減少しているとは考えにくい。むしろ光化学反応生成物との関係を考慮すべきであろう。Wuら<sup>13)</sup>は0.2ppmのO<sub>3</sub>に暴露されたBaPの半減期を2.6minと計算しており、O<sub>3</sub>による急速な分解を想定するだけでBaP量の桁違いの減少は説明される。

### 3・2 BaP濃度予測

測定データ再検討の結果は、(1)式は二次粒子に対して適用可能と考えられ、疫学的意味をもつLAPと常時監視におけるSPM- $\beta$ がいずれも1 $\mu\text{m}$ 以下の粒

径範囲に収束することによって、二次粒子の分布に重なることを明らかにしている。即ちSPM- $\beta$ が二次粒子についての代表性を持つ場合には、LAPに担持されたBaPの大気中濃度を、SPM- $\beta$ を用いて間接的に予測することができるわけである。

#### 3・2・1 全データを用いた予測式

短期観測と長期観測の全データについて、LAP濃度( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、LAPに担持されたBaPの大気中濃度( $\text{ng}/\text{m}^3$ )、気温( $^{\circ}\text{C}$ )、Ox濃度(ppb)のそれぞれを24時間値としてまとめ、(1)式の構成で回帰を行って(2)式を得た。

$$C_{\text{BaP}} = 1.69 + 0.054P - 0.155T - 0.038Ox \quad \dots\dots (2)$$

自由度修正係数:  $R=0.81$

そしてLAP濃度に代えてSPM- $\beta$ の24時間値を用いて同様の回帰を行った結果が(3)式である。

$$C_{\text{BaP}} = 3.63 + 0.037P - 0.072T - 0.098Ox \quad \dots\dots (3)$$

自由度修正係数:  $R=0.75$

Fig. 3 に実測値に対する(2)式および(3)式による推定値の経年傾向を示す。

(2)式と(3)式は因子寄与の構造が違っており、それぞれの与える推定値も食い違って、SPM- $\beta$ はそのままではLAP濃度を代替できない。LAP濃度に対してSPM- $\beta$ が分散しているため、回帰の結果として両式の因子寄与が異なるわけであるが、両式ともP項の寄与は大きく、実際に推定値の食い違う原因は、入力した粒子重量濃度の数値が違うことによる。そして実

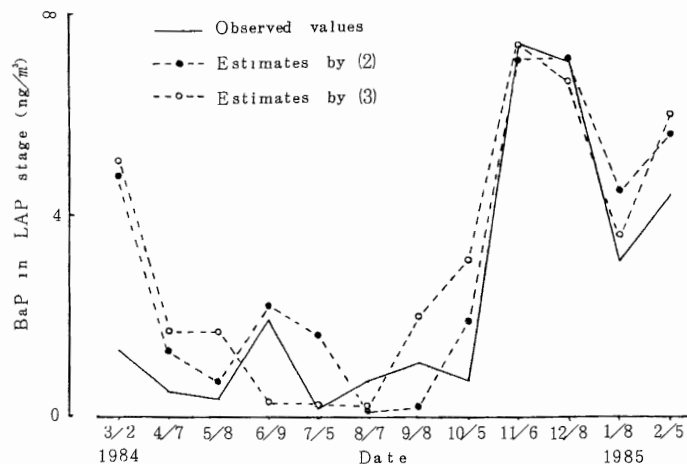


Fig. 3. Yearly trends of estimation by equation (2) and (3): estimates were calculated as 24h mean atmospheric concentrations of BaP in LAP stage.

測値と離れた推定値を与える原因も、粒子重量濃度の数値と考えられるので、使用した粒子重量の二次粒子代表性が問題となる。そこで検討を必要とするのは、粒子の大気中での履歴、測定誤差を生ずる原因、そしてその対策である。

### 3・2・2 粒子の移送履歴

(1)式の構成からその適用が可能と考えられる粒子は、発生から捕集に至る間に温度条件や汚染質条件が急激には変化しない環境を浮遊している必要がある。つまり対流圏低層を浮遊しながら、発生から1～3日以内に装置に捕集されるか、呼吸器に吸入される粒子が想定され、その移送範囲は概ね100km以内と考えて良いであろう。即ちmeso-scale空間<sup>20)</sup>での移送履歴の粒子に限定されるわけであるが、二次粒子もこの条件を満足する。

一方日本列島では毎年3月～5月は「黄砂」の季節である<sup>21)</sup>。黄砂はアジア大陸内陸部のゴビ砂漠あるいはオルドス砂漠の土壌粒子を起源として、偏西風帯を2000～3000km移送されて日本列島各地に達し、さらに7000km離れたハワイ諸島でも観測される<sup>22)</sup>という、対流圏上層における大規模な粒子移送現象である。角脇<sup>23)</sup>は黄砂由来の土壌粒子の粒径分布として4μmを中心とする対数正規分布を明らかにしており、田中ら<sup>24)</sup>は日本列島各地での黄砂沈降量の推定を行って、黄砂由来の土壌粒子として10～20μg/m<sup>3</sup>が通常のSPM濃度に上積みされることを明らかにした。即ち、SPMの観測では発生から沈降がmeso-scale空間内で完結するSPMと、regional-scale<sup>20)</sup>以上の大規模移送から地上まで沈降して来るSPMを区別するわけではない。この問題はLAPの分級採取においても考慮しなければならないが、SPM-βの場合は特に、設計上の分級点がより粗大粒子側にあるため、黄砂の観測され得る期間中は全く履歴の異なる粒子を計り込むはずで、二次粒子を代表すると見なすわけにはいなくなる。

### 3・2・3 近似的二次粒子代表性

Fig.1(d)にLAP濃度対SPM-βの分散の状況が示されているが、この分散の原因がSPM自動測定器の方にあると考えた方が合理的な場合がしばしばある。例えばFig.1の黒丸は1984年6月9日の値で、SPM-βはLAP濃度の36%しかなく、異常値と見なしてFig.1の集計からは外してあるが、Fig.3で(3)式による6月9日の推定値が実測値とかけ離れるのはこのためである。β線吸収型SPM自動測定器には現在のと

ころ校正方法が確立しておらず、誤差を生じたとしても、それを誤差として確認することはできない。しかしながら、無校正であることが、SPM自動測定器を定義の違うLAP自動測定器として機能させていると考えられ、ここに積極的な利用価値を見いだしているわけであるから、そのまま利用すべきであろう。

一方LAPはその粒径範囲を根拠に、二次粒子代表性は高いものと考えられるが、代表性を喪失したデータがあっても、それを確認する術は無い。つまり厳密には近似的に二次粒子代表性を想定し得るにすぎない。いずれの粒子重量濃度を採用しても、個々のデータのレベルでは二次粒子代表性を喪失する危険を抱えているのであれば、予測式の方で代表性を確保するような対策が必要である。そこで、データレベルにおける代表性喪失の危険を、SPM-βとLAPとに分散させることにすれば、偶然確保されていた代表性は希薄になるが、回帰の結果として、近似的二次粒子代表性が予測式の方に統計的に確保される。

### 3・2・4 選択データを用いた予測式

近似的二次粒子代表性を予測式に確保する場合、入力データの選択基準が問題になるが、SPM-βを用いる予測の目的を考慮すれば、長期観測データの方からのSPM-βを使用したい。そしてこれに短期観測のLAPを重ねて互いの代表性喪失の危険を分散させる。但し、ここまでの検討において、明らかに二次粒子を代表してはいないと判断されるSPM-βのデータがあり(1984年3、4、5、6月)これについてはLAPが二次粒子を代表しているとする根拠はないが、代表性喪失の危険を小さくするためLAPで代替させる。

以上の方法に基づく選択データを用いて回帰を行った結果が(4)式である。

$$C_{\text{Bap}} = 2.09 + 0.050P - 0.178T - 0.033O_x \quad \dots\dots (4)$$

自由度修正済相関係数: R=0.83

Fig. 4に(4)式による推定値と実測値の経年傾向を示す。

(4)式は(2)式に比べ相関係数は若干上昇し、実測値と推定値の整合も概ね良好である。但し、3月の推定値は(4)式に限らず、(2)式でも(3)式でも実測値の3.8倍前後となり、SPM-βばかりでなくLAPも一次粒子を多く計り込んでいたことが原因と考えられる。

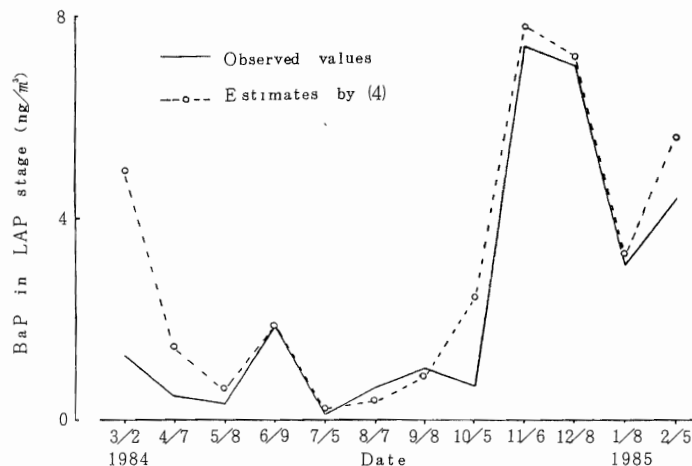


Fig.4. Yearly trend of estimation by equation (4): estimates were calculated as 24h mean atmospheric concentrations of BaP in LAP stage.

### 3・3 予測の検証

#### 3・3・1 検証に用いる観測例

過去の実測データとして、大気粒子中のBaPを詳細な粒径別で捉えた例は余り多くはないが、1975年～1976年に松下ら<sup>10)</sup>により川崎市公害研究所構内で観測された例がある。この観測はSPMの連続72時間採取23件で構成されており、5段階の粒径別に粒子重量、8種の重金属量、6種のPAH担持量が詳細に測定されている。そこでこのデータを利用して(4)式による予測について検証することとする。

(4)式は近似的二次粒子代表性を保持するよう構成されているので、入力する粒子重量濃度はSPM-βでもLAPでもよいが、1976年当時にSPM-βの記録は無い。従ってLAPとして1.1μm以下の粒子重量と、これに担持されたBaP重量は松下らの報告より引用する。そして別途に川崎市公害監視センターより、観測点近傍の川崎市田島測定局における観測日の気温とOx濃度についての一連の常時監視データを提供して貰ったので、SPM採取時間に整合させた72時間平均値に編集して適用する。

#### 3・3・2 原データの補正と棄却

1976年当時のOx常時監視は現在と同型式の自動測定器によるが、吸収液が10%KIであり、等価液による静的較正で運用されていた。しかしながらこの条件ではNO<sub>2</sub>の正の干渉を受けることが判明したため、1978年以降、吸収液は2%KIを用いO<sub>3</sub>による動的較正で運用するよう改められている。そしてそれ以前の

Ox常時監視データはNO<sub>2</sub>干渉分の略式補正として、一律に係数0.8を乗ずることとされている(昭和52年環境庁大気保全局長通達)。

このことから予測式に入力するOx72時間値は、原データに一律に0.8を乗じて用いることになるが、Ox測定が実際より高い指示を出す原因はNO<sub>2</sub>の干渉ばかりではない。向流吸気管の汚染によって希に高い指示を出し続ける場合のあることは、1976年当時は知られておらず、現在のような防護措置はとられていない。これは原データの検討の際に夜間に不自然に高い数値が並ぶことから、容易に見分けられるが、補正の術はないので欠測相当として棄却する。

#### 3・3・3 過去の観測値を使用した推定

1975年～1976年の川崎における実測値に対応する常時監視データに、72時間平均値としては棄却せざるを得ないものが4件あったので、19件について推定を行った。実測値に対する(4)式による推定傾向をFig.5に示す。

## 4 結 語

大気中におけるBaP濃度の推定を行うに、統計処理上の経験により作成した回帰予測式があって、この適用範囲を微小粒子に限定すると、推定値と実測値の整合性が良く、微小粒子を二次粒子とすると予測式の理論的根拠が明確になった。この濃度予測を疫学的研究に応用すべく検討した結果を報告したが、大気汚染常時監視におけるSPM-βが二次粒子代表性を失う

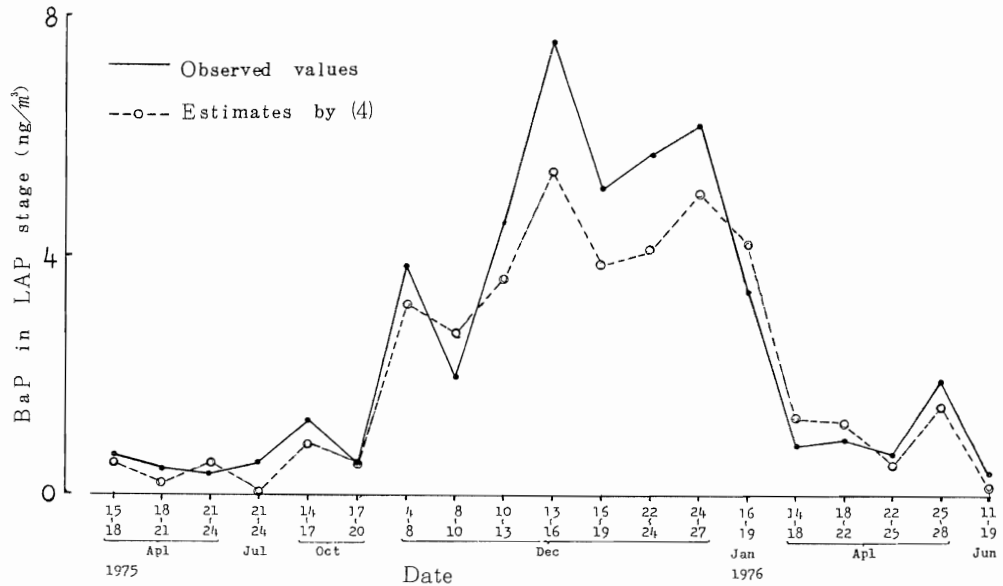


Fig.5. Estimation of atmospheric BaP concentrations in Kawasaki, 1975-1976 : estimates were calculated by equation (4) as 72h mean concentrations in LAP stage.

場合がかなりあるため、予測式は近似的二次粒子代表性を保持する、という形でまとめられた。

この予測式を用いて11年前に実施された観測結果に対して推定を行ったところ、実測値との整合性はかなり良好なものが得られている。但し粒子重量濃度にLAPを用いており、LAPによる予測の検証はできたが、SPM-βによる検証は今後の課題となった。

現在実施されているSPM常時監視が、LAPなり、RPのような、疫学的に利用できる粒径範囲の定義で、あるいは二次粒子監視というような都市汚染質本位の常時監視に改められ場合、本方式による予測はより明確な形で利用できるものと考えられる。

最後に、本研究に対し過去の常時監視データの提供について御尽力下さった、川崎市公害監視センターの方々に感謝いたします。

## 文 献

- 1) 石西伸ら：Benzo(a)Pyreneと肺がん，大気汚染研究，**10**(6)，770～777，1976.
- 2) J.D.Butler et.al.：Predicting Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Concentrations in Urban Aerosols by Linear Multiple Regression Analysis，*Environ.Pollut.Ser.B*，**3**，109～123，1982.
- 3) 富田絹子：大阪市の大気中多環炭化水素量，大気汚染研究，**10**(6)，742～746，1976.
- 4) 児玉泰・石西伸：大気中のBenzo(a)Pyrene分布，大気汚染研究，**10**(6)，732～741，1976.
- 5) R.B.Faoro and J.A.Manning：Trends in Benzo(a)Pyrene，1966-77，*J.Air Pollut. Control Assoc.*，**31**(1)，62～64，1981.
- 6) 江角光典：大気粉じん中のベンゾ(a)ピレン濃度とその推定（第1報），埼玉県公害センター年報，〔12〕，30～37，1985.
- 7) 江角光典：大気粉じん中のベンゾ(a)ピレン濃度とその推定（第2報），埼玉県公害センター年報，〔13〕，34～39，1986.
- 8) M.Kertesz-Saringer et.al.：On the Size Distribution of Benzo(a)Pyrene Containing Particles in Urban Air，*Atmos.Environ.*，**5**，429～431，1971.
- 9) 松下秀鶴：環境空気中の多環芳香族炭化水素の分析法，大気汚染研究，**10**(6)，723-731，1976.
- 10) 松下秀鶴ら：大気浮遊粒子に含まれる多環芳香族炭化水素と重金属の粒径別組成分布，大気汚染学会誌，**15**(2)，45～52，1980.
- 11) J.N.Pitts, Jr. et.al.：Atmospheric Epoxida-



- tion of Benzo(a)Pyrene by Ozone, *Science*, **210**, 1347~1349, 1980.
- 12) J.Kong et.al. : Determination of Oxygenated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Airborne Particulate Matter by Capillary Gas Chromatography and Gas Chromatography / Mass Spectrometry, *Anal.Chem.*, **55**(4), 599~603, 1983.
- 13) C.H.Wu et.al. : Fluorescence Spectroscopic Study of Reactions between Gaseous Ozone and Surface-Adsorbed Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, *Environ.Sci.Technol.*, **18** (8), 603~607, 1984.
- 14) 環境庁：浮遊粒子状物質測定法等検討委員会資料，浮遊粒子状物質の測定方法について，1981.
- 15) S.S.Miller : Inhaled Particulates, *Environ. Sci.Technol.*, **12**(13), 1353-1355, 1978.
- 16) G.Broddin et.al. : On the Size Distribution of Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Containing Particles from a Coke Oven Emission Sources, *Atmos.Environ.*, **11**, 1061~1064, 1977.
- 17) 角脇 怜：都市大気中における二次粒子の挙動と生成機構の推定，愛知県公害調査センター所報，〔9〕，1~7,1981.
- 18) K.T.Whitby et.al. : The Size of Suspended Particulate Matter in Air, *Science*, **183**, 1098~1099, 1974.
- 19) 松下秀鶴：多環芳香族炭化水素，化学の領域増刊，**129**,115~134,1980.
- 20) 竹内清秀・木村富士男：化学反応を伴う大気拡散の数値シュミレーション，第21回大気汚染学会講演要旨集，70~73,1980.
- 21) 轟畑朗・真室哲雄：黄砂エアロゾルに関する二，三の知見，大気汚染学会誌，**13**(7), 289~297,1980.
- 22) J.R.Parrington et.al. : Asian Dust : Seasonal Transport to the Hawaiian Islands, *Science*, **220**, 195~197, 1983.
- 23) S.Kadowaki : Silicon and Aluminum in Urban Aerosols for Characterization of Atmospheric Soil Particles in Nagoya Area, *Environ.Sci.Technol.*, **13**, 1130~1133, 1979.
- 24) 田中茂ら：黄砂現象によるアジア大陸からの土壌粒子の移動とわが国に及ぼす影響，大気汚染学会誌，**18**(3), 263~270,1983.