Jpn. J. Toxicol. Environ. Health
衛生 化学 学
38 (5) 443-451 (1992)

新潟県における環境中の多環芳香族炭化水素の分布

川田邦明, 森山 登, 藤枝義丸

新潟県衛生公害研究所

Distribution of Polynuclear Aromatic Hydrocarbons in Environment at Niigata Area

KUNIAKI KAWATA, NOBORU MORIYAMA and YOSHIMARU FUJIEDA

Niigata Prefectural Research Laboratory for Health and Environment, 314-1, Sowa,
Niigata 950-21 Japan

(Received March 23, 1992)

Distribution patterns of 8 polynuclear aromatic hydrocarbons (PAHs), *i.e.* pyrene (Py), fluorantene (Fl), benzo[*a*]anthracene (B[*a*]A), benzo[*k*]fluorantene (B[*k*]F), benzo[*b*]fluorantene (B[*b*]F), benzo[*a*]pyrene (B[*a*]P), benzo[*ghi*]perylene (B[*ghi*]P) and perylene (Per), in environmental samples from the Niigata area were examined. The total concentrations of 8 PAHs in sediments from the mouth area of rivers, airborne dusts, street dusts and surface soils ranged from <1.6 to 16600, 4700-263000, 210-1770 and 46-170 ng/g dry weight, respectively. The concentrations of B[*a*]P in the street dusts and soils, 12-138 and 4.8-15 ng/g dry weight, respectively, were highly correlated ($r > 0.9$) to those of other 7 PAHs. The concentration of B[*a*]P in the airborne dusts, 590-35000 ng/g dry weight, was highly correlated to those of other 5 PAHs except for Py and Fl which were collected at lower efficiencies by the collection materials. The PAHs in the airborne dusts, the street dusts and the soils were derived from artificial sources, especially from automobile. The concentration of B[*a*]P in the river sediments, 0.1-937 ng/g dry weight, was highly correlated to those of other 6 PAHs except for Per; this showed a similar distribution of PAHs in another rivers reported previously. A part of Per in the sediment seems to be derived from natural sources.

Keywords — polynuclear aromatic hydrocarbon; river sediment; airborne dust; street dust; surface soil

結 言

多環芳香族炭化水素 (PAH) は, 化石燃料の燃焼をはじめとする人為的活動等により環境中に放出され, 微量ながら広く分布している. PAH にはベンゾ[*a*]ピレン (B[*a*]P) など発ガン性のある化合物も数多くあり, 大気,¹⁾ 水圏²⁻⁴⁾ や生物圏⁵⁾ における分布や挙動について, 多くの報告がある.

このうち, 水圏, 特に底質中における PAH 類の分布については, 河川,²⁾ 湖沼,³⁾ 海⁴⁾ において報告例も多い. 著者らは, B[*a*]P を含む 8 種の PAH について, 報告例が比較的少ない中小河川⁶⁾ や河口付近沿岸部⁷⁾ における底質中の分布を報告した. すなわち, ペリレン (Per) を除く 7 種の PAH については, 人

為的起源のものが雨水や道路粉塵により供給されたこと, 工場排水から供給される場合もあるが, 生活排水からの供給量は必ずしも多くないこと, 河口付近沿岸部には河川からの供給が多いことなどを明らかにした. また, Per についてはその一部が自然由来であることを推定した.

このように供給源と関係あると思われる地点の PAH 濃度を調査することは各 PAH の挙動を知る上で重要である.

そこで, 33 の河川の河口部における底質中の PAH の分布状況を把握するために, ピレン (Py), フルオランテン (Fl), ベンゾ[*a*]アントラセン (B[*a*]A), ベンゾ[*b*]フルオランテン (B[*b*]F), ベンゾ[*k*]フルオランテン (B[*k*]F), B[*a*]P, ベンゾ

[ghi]ペリレン (B[ghi]P) 及び Per の計 8 種の PAH の分析を行った。また、浮遊粉塵、道路粉塵及び土壌中における PAH の存在量についても調査し、考察を加えたので報告する。

実験方法

1. 試料採取 試料採取地点を Fig. 1 に示す。河川底質は新潟県内の代表的な 33 河川の河口付近 (St. 1—33) で 1988 年 9—10 月に採取した。浮遊粉塵は新潟県内 4 地点 (St. 34—37) で 1989 年 4 月から 1990 年 3 月までの間に、毎月 1—2 回ずつ、ハイボリュームエアサンプラーを用いて吸引流量 1.2 m³/min で 24 時間、石英繊維ろ紙 (PALFLEX 2500 QAT-UP) 上に採取した。道路粉塵及び表層土壌 (St. 34—37) は、1990 年 5—6 月及び 10 月に採取した。道路粉塵は、浮遊粉塵を採取した地点から 5—8 m 離れた道路表面上を小型掃除機で吸引することによ

り採取した。また、表層土壌は、浮遊粉塵採取地点から道路の反対側に 1—3 m 離れた地点 (道路粉塵採取地点から 6—11 m 離れた地点) で、地表面から深さ 0.5 cm までのものを採取した。

2. 分析方法 底質、道路粉塵及び土壌は、冷暗所で風乾後 32 メッシュのふるいを通して粗大粒子を除いた。そして、既報に従って処理後、高速液体クロマトグラフ (HPLC) で PAH を定量し、乾重量あたりの濃度を求めた。⁶⁾

浮遊粉塵中の PAH は塩崎らの方法⁸⁾により処理後、HPLC で定量した。分離カラムには GL サイエンス製 Inertsil ODC (150 mm) を用いた。⁶⁾ なお、浮遊粉塵を採取した石英繊維ろ紙に、8 種の標準品 PAH をベンゼン溶液として各々 100—1000 ng 添加し、風乾したものの回収率は、いずれも平均 91.9—102% と良好であった ($n=5$)。また、塩崎らが検討していない B[a]A 及び B[b]F の回収率も、各々 $102 \pm 7.89\%$ 及び $99.6 \pm 6.87\%$ と良好であった。

結果と考察

1. 底質中の PAH の分布

St. 1—33 における底質中の 8 種の PAH 濃度と強熱減量を Table I に示す。PAH の分布量は河川により大きく異なった。各 PAH のうち、最も分布量が多かったのは Fl で 0.2—9200 ng/g、逆に最も少なかったのは Per で 0.1—141 ng/g の範囲にあった。

最も報告例の多い B[a]P は 0.1—937 ng/g の範囲にあった。河口部付近における B[a]P については、多摩川で 86.2—88.8 ng/g、^{2a)} 鶴見川で 198 ng/g、^{2b)} Yarra 川 (オーストラリア, Melbourne) で 800—850 ng/g 等の報告がある。^{2c)} これらの報告値と比べて、大部分の河川では B[a]P の分布量は比較的少ないが、St. 9 及び 12 では比較的高い濃度レベルであった。この原因として、両地点とも流入する工場排水からの PAH の供給が考えられた。^{6,7)}

次に、8 種の PAH 濃度の相関関係について検討した。地点により PAH 濃度には大きな差があったことから、PAH 濃度を対数変換し、その結果を Fig. 2 に示す。Per を除く 7 種の PAH 濃度は相互に有意な ($p < 0.01$) 高い正の相関関係にあった ($r > 0.9$)。一方、Per と他の PAH との相関係数は 0.81 以下であり、濃度が最も高い St. 9 及び St. 12 の 2 地点を除くと 0.44 (Per と B[b]F) —0.74 (Per と Py) とさらに小さかった。このような傾向は中小河川や関川水系等においても認められており、^{6,7)} その理由とし

Fig. 1. Sampling Sites of the Environmental Samples

1—33: Sediment from river mouth; 34—37: airborne dust, street dust and soil; 1: Okawa R.; 2: Budo R.; 3: Miomote R.; 4: Iwafune R.; 5: Ara R.; 6: Tainai R.; 7: Ochibori R.; 8: Kaji R.; 9: Niigata East Port; 10: Niigo R.; 11: Agano R.; 12: Kurinoki R.; 13: Shinano R.; 14: Sekiya Floodway; 15: Shin R.; 16: Okozu Floodway; 17: Shinshimazaki R.; 18: Gomoto R.; 19: Shimazaki R.; 20: Sabaishi R.; 21: Ugawa R.; 22: Kakizaki R.; 23: Shinbori R.; 24: Hokura R.; 25: Seki R.; 26: Nadachi R.; 27: Nou R.; 28: Haya R.; 29: Umi R.; 30: Hime R.; 31: Toumi R.; 32: Oumi R.; 33: Kokufu R.; 34: Toyosaka C.; 35: Kurasaki T.; 36: Nagaoka C.; 37: Muikamachi T.

TABLE I. PAH Concentrations in Sediment

Sample site	Concentration (ng/g dry wt.)								IL ^{a)}	
	Py	Fl	B[a]A	B[b]F	B[k]F	B[a]P	B[ghi]P	Per	T-PAH ^{b)}	(%)
1	0.7	1.7	0.3	<0.5	0.2	0.4	0.4	0.4	4.1	0.75
2	12	27	6.8	9.8	4.5	7.7	6.8	1.9	76	8.5
3	2.2	2.0	1.6	2.4	0.8	1.8	1.9	2.6	15	1.1
4	15	21	6.5	9.8	3.5	7.7	8.0	13	84	3.2
5	38	33	20	20	13	21	18	3.9	167	5.8
6	0.4	0.5	0.2	<0.5	<0.1	0.2	0.2	0.3	1.8	0.86
7	64	83	17	22	21	34	49	29	319	12
8	0.2	0.3	0.2	<0.5	0.1	0.2	0.2	0.7	1.9	1.1
9	385	963	338	144	128	329	333	75	2 695	14
10	1.4	1.3	0.5	1.1	0.7	1.1	1.5	6.4	14	1.5
11	0.2	0.2	<0.2	<0.5	<0.1	0.1	<0.1	0.7	<1.6	0.78
12	3 570	9 200	817	624	420	937	842	141	16 551	33
13	60	82	24	33	26	35	27	62	349	15
14	35	60	17	20	13	19	13	16	193	4.8
15	17	48	11	17	9.1	16	14	29	161	12
16	1.8	1.7	0.2	<0.5	0.1	0.7	0.9	4.4	9.8	0.99
17	11	24	9.0	9.6	8.6	9.9	14	8.4	94	2.2
18	0.6	1.0	0.3	<0.5	0.3	0.4	0.4	0.6	3.6	1.2
19	5.7	7.9	3.8	4.2	3.2	5.5	4.8	4.6	40	1.3
20	20	68	9.8	8.5	7.1	10	8.6	13	145	5.8
21	34	25	5.1	8.0	6.5	7.3	6.8	12	105	4.4
22	5.6	16	2.5	3.6	2.9	4.6	4.0	5.4	45	1.5
23	4.0	10	1.3	2.1	1.2	2.1	1.9	3.6	26	1.6
24	1.3	4.8	0.3	<0.5	0.5	0.6	0.7	7.0	15	1.6
25	7.8	19	3.0	3.7	2.1	4.1	3.1	22	65	6.5
26	3.6	2.0	0.5	<0.5	0.5	0.7	0.9	2.8	11	1.6
27	7.4	10	0.7	1.6	1.0	1.5	1.1	2.8	26	2.4
28	1.0	1.6	0.7	<0.5	0.5	0.8	0.5	0.1	5.2	1.2
29	12	14	7.1	9.0	4.4	8.8	9.4	2.9	68	2.1
30	0.9	1.6	0.5	<0.5	0.3	0.6	0.5	1.3	5.7	1.4
31	15	51	6.0	8.0	8.6	12	10	1.2	112	1.0
32	14	34	9.8	9.5	7.4	12	12	1.5	101	0.95
33	1.7	1.3	0.4	<0.5	0.5	0.6	0.5	1.5	6.5	2.1
Geo. M ^{c)}	6.5	11	3.0	9.9	2.7	4.8	3.9	4.2	670	
Min	0.2	0.2	<0.2	<0.5	<0.2	0.1	<0.1	0.1	<1.6	
Max	3 570	9 200	817	624	420	937	842	141	16 551	

a) Ignition loss, b) Total amount of the 8 PAHs, c) Geometrical mean.

て、Per が他の PAH と同様の人為的起源を有する以外に、非人為的起源も有するためと考えられる。⁹⁾

2. 浮遊粉塵中の PAH

St. 34—37 における浮遊粉塵中の PAH 濃度の幾何平均値、最小値及び最大値を Table II に示す。このうち、最も報告例の多い B[a]P については、Mexico City で定量下限値未満—520 ng/g,^{1a)} Christchurch (ニュージーランド) で 760—5240 ng/g,^{1b)} Western Washington (米国) で 4300—13000 ng/g,^{1c)} 大津市で 440—45700 ng/g 等の報告がある。^{1d)}

また、国設大気測定網 (NASN) における 1989 年 4 月—1990 年 3 月の測定結果から算出した平均濃度は、¹⁰⁾ 大牟田市で 8300 ng/g、仙台市で 11000 ng/g、鹿島市で 14000 ng/g、札幌市で 18000 ng/g、名古屋市で 23000 ng/g、大阪市で 24000 ng/g、東京都内で 26000 ng/g、川崎市で 31000 ng/g、市原市で 36000 ng/g、北九州市で 41000 ng/g であった。これらの値と比較して、St. 34—37 では NASN の多くの測定地点における分布量と同レベルにあることがわかった。

Fig. 2. Correlations among PAH Concentrations in Sediment
Except St.9 and St.12.

TABLE II. PAH Concentrations in Dusts and Soil

Sample		Concentration (ng/g dry wt.)								T-PAH
		Py	Fl	B[a]A	B[b]F	B[k]F	B[a]P	B[ghi]P	Per	
Airborne dust at St.34 (n=12)	Mean	4 500	2 900	4 800	6 400	5 300	6 500	9 400	780	40 600
	Min	360	320	270	820	590	590	1 200	65	4 700
	Max	13 200	8 100	16 600	15 400	11 600	17 600	21 500	2 400	100 000
Airborne dust at St.35 (n=24)	Mean	6 500	5 000	5 100	6 400	5 000	6 500	10 200	940	45 600
	Min	1 600	1 800	1 400	2 000	2 100	2 100	3 100	280	17 700
	Max	16 200	14 500	12 700	12 200	14 100	13 900	21 000	2 100	93 000
Airborne dust at St.36 (n=12)	Mean	7 400	5 800	4 800	11 100	9 000	9 500	17 100	1 500	66 200
	Min	1 300	640	480	3 800	2 800	2 800	6 700	470	20 200
	Max	43 900	35 600	16 800	38 800	33 100	35 000	61 100	6 800	263 300
Airborne dust at St.37 (n=12)	Mean	7 700	8 200	5 700	10 600	7 900	10 800	17 100	1 500	69 500
	Min	2 600	1 600	1 100	4 200	3 500	3 800	6 300	470	24 500
	Max	23 800	34 600	16 000	22 200	15 900	27 500	39 000	4 800	168 200
Airborne dust	Mean ^{a)}	6 500	5 400	5 100	8 200	6 400	8 000	13 000	1 100	53 500
Street dust (n=4)	Mean	184	181	36	55	32	57	115	21	679
	Min	74	59	5.4	8.1	8.7	12	25	3.7	215
	Max	407	484	97	133	76	138	425	67	1 768
Soil (n=4)	Mean	21	23	5.9	13	8.8	9.9	15	2.8	100
	Min	12	10	2.3	4.9	3.9	4.8	5.8	1.1	46
	Max	45	49	13	26	14	15	32	6.1	173

a) Mean of St.34—37 (n=60).

Fig. 3. Correlations among PAH Concentrations in Airborne Dust

8種のPAH濃度(対数値)の相関関係について検討した。その結果、Fig. 3に示すように8種のPAHは相互に有意な($p < 0.01$)高い正の相関関係にあり、PyとPerの関係を除き、 $r > 0.8$ であった。そして、PyとFl間、並びにB[b]F、B[k]F、B[a]P、B[ghi]P及びPer相互間にはいずれも $r > 0.9$ と極めて高い正の相関関係があった。この原因については後述する。

PAHのうち、B[a]P濃度の変動をFig. 4に示す。B[a]P濃度は地点及び測定月により異なったが、おおむね夏期に低い傾向があった。そして、他のPAHも同様の濃度変動を示した。この理由として、夏期にはろ紙上に捕集された粒子からのPAHの揮散や光化学反応等によるPAHの変化が起こり易いことが指摘されている。¹⁰⁾

3. 道路粉塵及び土壌中のPAH

道路粉塵及び土壌中のPAH濃度の平均値、最小値及び最大値をTable IIに示す。地点により濃度が異なったが、道路粉塵中のPAH濃度の平均値は土壌中の3.6倍(B[k]F)から8.8倍(Py)高い値であった。道路堆積物中のPAH量が多いのは、PAHを含む自動車排ガスの影響を受けるためと考えられる。¹¹⁾

Fig. 4. Variation of B[a]P in Airborne Dust

●: St. 34, ■: St. 35, ▲: St. 36, ▼: St. 37.

このうち、B[a]Pについては、道路粉塵では川崎市で11.1–182.3 ng/g,^{12a)} 仙台市で<4–1216 ng/g等の報告がある。^{12b)} また、土壌では国内の山岳地

帯や山林で 0.07–11 ng/g,^{13c)} 英国 Wales 地方で 3.5–370 ng/g,^{13a,b)} 横浜市で 4.5–920 ng/g,^{2a)} 北九州市で 7–1790 ng/g,^{13d)} 京都市で 85–220 ng/g, 名古屋市で 1340–2300 ng/g, 大阪市で 1190–4930 ng/g, 川崎市で 940–22100 ng/g 等の報告がある。^{13c)} これらの報告値と比較して, St. 34–37 では道路粉塵は川崎市における調査結果とほぼ同じであり, また, 土壌は比較的低いレベルにあった。一般道路付近の土壌中の PAH 量は間接的に大気汚染状況を反映しているものと考えられるが,^{13c),13d)} 本調査では地点数や試料数が少なく, 浮遊粉塵中の PAH 量とは明確な関係は明らかにできなかった。

8 種の PAH 濃度(対数値)の相関関係について検討した(Fig. 5)。その結果, Per を含む 8 種の PAH は相互に有意な ($p < 0.01$) 極めて高い正の相関関係にあった ($r > 0.9$)。

4. 環境中における PAH の分布の特徴

底質, 浮遊粉塵, 道路粉塵及び土壌について, B[a]P に対する各 PAH の相対比を Table III に示す。8 種の PAH のうち, B[a]A, B[b]F 及び B[k]F の相対比は比較的類似した値であった。これに対し, Py では道路粉塵 > 土壌 > 底質 > 浮遊粉塵, Fl では道路

粉塵 > 底質 > 土壌 > 浮遊粉塵, また, B[ghi]P では底質のみが小さく, Per では底質 > 道路粉塵 > 土壌 > 浮遊粉塵であった。以下に, 相対比が異なるものについて考察する。

まず, Py と Fl であるが, 浮遊粉塵中における Py と Fl の相対比は道路粉塵, 土壌及び底質に比べて特に小さかった。そして, Table III に示すように, 気温が高い 4–9 月における相対比は気温が低い 10–3 月に比べて小さかった。

この結果は, PAH の浮遊粉塵への吸着は物理吸着であり, 過冷却状態での液体の蒸気圧が高い PAH では粉塵からの脱離が生じやすく,¹⁴⁾ 蒸気圧が 10^{-7} mmHg より低い PAH は比較的揮散しにくいことで説明される。^{14c)} すなわち, 25°C における蒸気圧 (mmHg) は, Py では 3.34×10^{-5} , Fl では 5.21×10^{-5} , B[a]A では 1.88×10^{-6} , B[b]F では 1.56×10^{-7} , B[k]F では 1.58×10^{-7} , また B[a]P では 9.03×10^{-8} と報告されている。^{14b)} B[ghi]P と Per の蒸気圧は報告されていないが, 両化合物の分子量が B[a]P より大きいことなどから, 10^{-7} mmHg より低いものと推定される。したがって, 蒸気圧の比較的高い Py と Fl は石英繊維ろ紙上に捕集された粉塵からの揮散が起こり易く,^{14b,c)} B[a]P

Fig. 5. Correlations among PAH Concentrations in Street Dust and Soil

TABLE III. Relative PAH ratio to B[a]P in the Environmental Samples

Sample		Py	Fl	B[a]A	B[b]F	B[k]F	B[a]P	B[ghi]P	Per
Sediment (n=33)	Mean	2.0	3.3	0.74	0.93	0.62	1.0	0.98	2.2
	Min	1.0	1.1	0.29	0.44	0.14	1.0	0.63	0.10
	Max	5.1	9.8	1.0	1.3	0.89	1.0	1.4	12
Airborne dust (n=60)	Mean	0.84	0.65	0.64	1.1	0.86	1.0	1.7	0.14
	Min	0.23	0.20	0.36	0.60	1.7	1.0	1.0	0.08
	Max	2.3	1.5	1.1	1.9	0.45	1.0	2.8	0.19
	[Mean ^{a)}	0.73 ^{c)}	0.56 ^{c)}	0.56 ^{c)}	1.2	0.87	1.0	1.8	0.14]
	[Mean ^{b)}	0.95 ^{c)}	0.74 ^{c)}	0.72 ^{c)}	1.0	0.85	1.0	1.6	0.14]
Street dust (n=8)	Mean	3.9	3.6	0.55	0.97	0.64	1.0	1.8	0.31
	Min	2.5	2.2	0.38	0.69	0.42	1.0	1.1	0.18
	Max	6.3	6.7	0.74	1.1	0.80	1.0	3.2	0.49
Soil (n=8)	Mean	2.2	2.3	0.57	1.2	0.87	1.0	1.5	0.28
	Min	1.6	1.7	0.46	0.68	0.66	1.0	1.1	0.20
	Max	3.1	3.4	0.84	1.8	1.0	1.0	2.1	0.42

a) Mean during April to September (n=30).

b) Mean during October to March (n=30).

c) Significant difference in means ($p < 0.05$).

に対する相対比が小さくなるものと考えられる。同様の傾向は、ハイボリュームエアサンプラーを用いて採取した他の地域の浮遊粉塵でも認められた。¹⁴⁾ また、これらのことから、浮遊粉塵中の Py 及び Fl の有効な測定法の開発が必要と考えられ、今後、検討する予定である。

道路粉塵中の Py と Fl の相対比は底質や土壌に比べて高いが、この理由として、道路粉塵には自動車排ガスなどから PAH が供給されていることと、環数の少ない Py と Fl の分解性が他の PAH に比べて大きいことが考えられる。¹⁸⁾ また、底質では、河川によって相対比が大きく異なることから、河川により PAH の供給源や供給状況が異なるものと考えられる。

次に、B[ghi]P の相対比が底質のみで小さかった理由であるが、Sawicki らは、燃焼により生成する B[a]P と B[ghi]P の比が燃料によって異なり、浮遊粉塵中の B[ghi]P に対する B[a]P の相対比が 0.6 以下であれば自動車由来であり、0.8—1.5 であれば石炭など個体燃料の燃焼に由来すると報告している。¹⁶⁾ そこで、Table III から B[a]P/B[ghi]P の平均値を求めたところ、底質では 1.0(0.71—1.6)、浮遊粉塵では 0.59、道路粉塵では 0.56、土壌では 0.67 であったことから、底質以外では主に自動車に由来する可能性があるのに対して、底質では地点によって由来が異なることが考えられ

る。

Per の相対比については、底質以外ではほぼ類似した値であり、道路粉塵と土壌ではほぼ等しく、浮遊粉塵ではやや小さかった。これは、道路粉塵、土壌及び浮遊粉塵中に存在する Per が、人為的起源と考えられる B[a]P 等他の 7 種の PAH と相関関係にあること、また、Per が石油等の燃焼によって生成し、¹⁷⁾ ディーゼル排ガス中の粒子やごみ焼却施設の排ガス中にも存在すると報告されていることなどから、¹⁵⁾ 人為的起源由来のものと考えられる。しかし、浮遊粉塵中の存在比がやや低い理由は解明できな

Fig. 6. Relationship between Per/B[a]P and B[a]P in Sediment

かった。

底質中では地点により値が大きく異なった (Table III)。これは、既に述べたように、底質中の Per が他の PAH と同様の人為的起源由来のものであること以外に、非人為的起源由来の可能性もあることに起因するものと考えられる。河川底質におけ

る B[a]P に対する Per の相対比を Fig. 6 に示す。

B[a]P 濃度が高いことから、人為的汚染を受けていると考えられる河川ほど Per の相対比が小さく、浮遊粉塵等の存在比に近い値となることから、自然由来の Per の割合が小さくなる傾向が認められた。

引用文献

- 1) a) S. Salazar, G. Diaz-Gonzalez, A.V. Botello, *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, **46**, 690 (1991); b) J.R. Cretney, H.K. Lee, G.J. Wright, W.H. Swallow, M.S. Taylor, *Environ. Sci. Technol.*, **19**, 397 (1985); c) F.G. Prahl, E. Creclius, R. Carpenter, *ibid.*, **18**, 687 (1984); d) 喜多義邦, 日本衛生学雑誌, **44**, 673 (1989); e) 嵐谷奎一, 吉田正博, 李 忠民, 児玉 泰, 大気汚染学会誌, **26**, 23 (1991); f) 田畑哲一, 末田新太郎, 重森伸廉, *ibid.*, **14**, 143 (1979); g) T. Handa, Y. Kato, T. Yamamura, T. Ishii, K. Suda, *Environ. Sci. Technol.*, **14**, 416 (1980); W.E. May, S.A. Wise, *Anal. Chem.*, **56**, 225 (1984); H. Matsumoto, T. Kashimoto, *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, **34**, 17 (1985).
- 2) a) 有賀孝成, 押出裕子, 栃本 博, 中村 弘, 坂井千三, 東京都衛生研究所年報, **35**, 371 (1984); b) 吉見 洋, 神奈川県公害センター報告, **4**, 24 (1982); c) J. Begg, J.D. Smith, W.A. Maher, *Aust. J. Mar. Freshwater Res.*, **32**, 65 (1981); d) R.A. Hites, R.E. Laflamme, J.G. Windsor, Jr., J.W. Farrington, W.G. Deuser, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **44**, 873 (1980); J.J. Black, *Arch. Environ. Contam. Toxicol.*, **11**, 912 (1982); T. Sato, T. Momma, Y. Ose, T. Ishikawa, K. Kato, *Mutat. Res.*, **118**, 257 (1983); 嵐谷奎一, 吉田正博, 児玉 泰, 衛生化学, **31**, 24 (1985).
- 3) G. Müller, G. Grimmer, H. Böhnke, *Naturwissenschaften*, **64**, 427 (1977); M. Heit, Y. Tan, C. Klusek, J.C. Burke, *Water Air Soil Pollut.*, **15**, 441 (1981); M. Heit, *ibid.*, **24**, 41 (1985); B.J. Eadie, W. Faust, W.S. Gardner, T. Nalepas, *Chemosphere*, **11**, 847 (1982); B.J. Eadie, P.F. Landrum, W. Faust, *ibid.*, **11**, 847 (1982).
- 4) P.M. Gschwend, R.A. Hites, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **45**, 2359 (1981); G. Mille, J.Y. Chen, H. J.M. Dou, *Intern. J. Environ. Anal. Chem.*, **11**, 295 (1982); H. Matsushima, *Agric. Biol. Chem.*, **46**, 1489 (1982); F.G. Prahl, R. Carpenter, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **47**, 1013 (1983). K. Ohta, N. Handa, E. Matsumoto, *ibid.*, **47**, 415 (1983); T.S. Bates, S.E. Hamilton, J.D. Cline, *Environ. Sci. Technol.*, **18**, 299 (1984); 松島 肇, 医学と生物学, **103**, 309 (1981); *Idem*, *ibid.*, **103**, 267 (1981); 尹 順子, 石渡良志, 塩谷 真, 松本英二, 地球化学, **17**, 53 (1982); 半田暢彦, 大田啓一, 地球化学, **16**, 60 (1983); 松島 肇, 医学と生物学, **111**, 141 (1985); 花田喜文, 石川精一, 末田新太郎, 城戸浩三, 衛生化学, **36**, 8 (1990).
- 5) A. Bjørseth, J. Knutzen, J. Skei, *Sci. Total Environ.*, **13**, 71 (1979); K. Raino, R.R. Linko, L. Ruotsila, *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, **37**, 337 (1986); 松島 肇, 医学と生物学, **111**, 105 (1985); 松島 肇, 日本公衆衛生学雑誌, **33**, 91 (1986).
- 6) 川田邦明, 横山ひろみ, 森山 登, 白井文雄, 衛生化学, **34**, 248 (1988).
- 7) 川田邦明, 横山ひろみ, 森山 登, 白井文雄, 衛生化学, **36**, 117 (1990).
- 8) 塩崎卓哉, 田辺 潔, 松下秀鶴, 大気汚染学会誌, **19**, 300 (1984).
- 9) R.E. Laflamme, R.A. Hites, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **42**, 289 (1978); F.G. Prahl, R. Carpenter, *ibid.*, **43**, 1959 (1979).
- 10) 環境庁大気保全局大気規制課, 国設大気測定網 (NASN) 測定結果 (1991).
- 11) H. Takada, T. Onda, N. Ogura, *Environ. Sci. Technol.*, **24**, 1179 (1990).
- 12) a) 山根昌子, 長崎一郎, 岡田光正, 村上昭彦, 泉川碩雄, 水質汚濁学会講演集, 東京, 1990年2月, p.197; b) 玉川勝美, 相原良之, 三島靖子, 関 俊彦, 角田 行, 公害と対策, **23**, 1367 (1987).
- 13) a) K.C. Jones, J.A. Stratford, K.S. Waterhouse, E.T. Furlong, W. Giger, R.A. Hites, C. Schaffner, A.E. Johnson, *Environ. Sci. Technol.*, **23**, 95 (1989); b) K.C. Jones, J.A. Stratford, K.S. Waterhouse, N.B. Vogt, *ibid.*, **23**, 540 (1989); c) 松下秀鶴, 嵐谷奎一, 小谷野道子, 大気汚染研究, **11**, 352 (1977); d) 嵐谷奎一, 吉川正博, 児玉 泰, 日本衛生学雑誌, **42**, 170 (1987).

- 14) a) W.J. Sonnefeld, W.H. Zoller, W.E. May, *Anal. Chem.*, **55**, 275 (1983); b) 山崎裕康, 桑田一弘, 久下芳生, 日化, **1984**, 1324; c) *Idem, ibid.*, **1985**, 1632.
- 15) W.E. May, S.A. Wise, *Anal. Chem.*, **56**, 225 (1984); 古原大司, 橋場常雄, 尹 順子, 田中 勝, 大気汚染学会講演要旨集, 仙台, 1988年11月, p.602.
- 16) E. Sawicki, T.R. Hauser, W.C. Elbert, F.T. Fox, J.E. Meeker, *Ind. Hygiene J.*, **1962**, 137.
- 17) B.A. Benner, Jr., N.P. Bryner, S.A. Wise, G.W. Mulholland, R.C. Lao, M.F. Fingas, *Environ. Sci. Technol.*, **24**, 1418 (1990).
- 18) 松島 肇, 医学と生物学, **103**, 273 (1981); I.D. Bossert, R. Bartha, *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, **37**, 490 (1986).