

新潟平野中央部における浮遊粉じん中の 水溶性無機イオン成分の粒度分布

福崎 紀夫・大泉 毅

Particle-Size Distribution of Water-soluble Inorganic Ion Components
in Atmospheric Suspended Particles in Central Niigata Plain

Norio Fukuzaki, Tsuyoshi Ohizumi

Particle-size distribution and atmospheric concentration of inorganic ions (Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , NH_4^+ , SO_4^{2-} , NO_3^- and Cl^-) in atmospheric suspended particles (ASP) collected in central Niigata Plain were determined. Particles were size-fractionated in an Andersen impactor backed up by a Teflon filter over a 24-month period from April, 1990 to March, 1992. The water-soluble components in the sample were extracted in an ultrasonic bath and analyzed by ion chromatography, atomic absorption spectrophotometry and spectrophotometry. Seasonal variation in atmospheric concentrations and size distribution were investigated.

Particle-size distribution of ASP and each ionic component was roughly divided into four main patterns, (1) Distribution concentrated into fine particles over the year such as NH_4^+ and SO_4^{2-} , (2) Distribution predominated in coarse particles over the year such as Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , and Cl^- , (3) Distribution as a bimodal pattern over the year such as ASP and K^+ , and (4) Distribution differing in summer and in winter such as NO_3^- . Seasonal size-distribution patterns of Cl^- and NO_3^- remarkably differed from those reported for urban atmosphere.

1 はじめに

新潟県の1990年4月から1991年3月における大気中浮遊粒子状物質濃度は、長期的評価ではすべての測定局で環境基準を達成したものの、短期的評価では28有効測定局中18測定局で1時間値若しくは日平均値で定められた環境基準値を超過しており、その年平均値はこの数年横ばいの状況にある¹⁾。

大気中の浮遊粉じん(以下、「ASP」という.)は海塩粒子や土壌粒子のように発生源から粒子として直接放出される一次粒子と、ガス状物質として放出され大気中で粒子化した二次粒子とで構成される。このうち二次粒子は全地球規模の濃度として全粒子の40~50%程度を占め²⁾、大気中での光化学反応や熱化学反応で粒子状物質に変化した硝酸塩、硫酸ミスト及び有機エアロゾルが主要物質で、その粒子径は2 μm 以下の範囲、主として0.1~1 μm に存在する³⁾。これらの成分は降水の酸性化や視程の悪化など環境や人体に与える影響が大きいと考えられており、大気汚染対策を講ずるうえでその濃度及び粒度分布を把握することはきわめて重要なこととなっている。

ここでは新潟平野のほぼ中央部に位置し、新潟平野における大気汚染物質のバックグラウンド濃度レベルを監視する目的で設置されている国設新津測定局で、1990年4月から1992年3月までの2年間にわたってアンダーセンサンプラーを用いASPを粒度別に採取し、その水溶性無機イオン成分(NH_4^+ , Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^-)を測定し、その大気中濃度及び粒度分布の季節変化を調べた結果、 NO_3^- や Cl^- では都市域での調査例^{4~8)}とやや違った季節変化が見られたので報告する。

2 方 法

2.1 試料採取

試料採取地点の国設新津環境大気測定局の位置関係をFig.1に示す。同測定局は新津市古津字八幡腰の八幡山頂(標高約50m)に位置し、杉林・松林等に囲まれ、付近には大きな大気汚染物質発生源はない。最も近い海岸線までの距離は北西方向約20kmである。サンプリングは局舎の屋上で1990年4月から1992年3月まで各月おおむね11日から26日の15日間、アンダーセンサンプラー(ダイレック機AN-200)の各段及びバックアップにテフロ

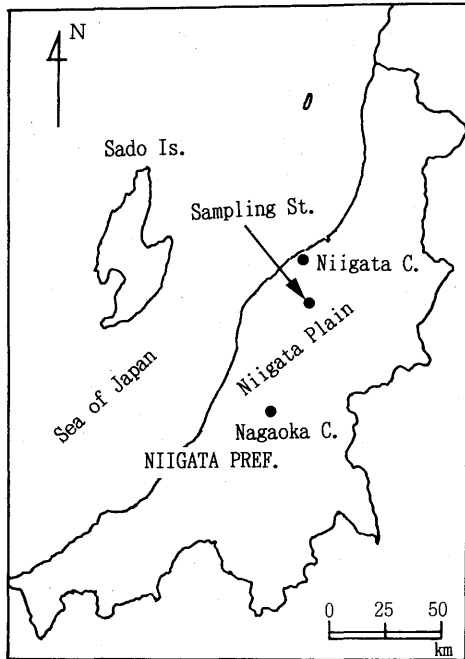


Fig.1 Sampling location

ンフィルター（住友電工社製，フルオロポア AP 07 P，直径80mm）を装着して行った。吸引流量は28.8 l/min.である。各段の50%分級径（空気力学的直径）は大きいほうから順に11.0，7.0，4.7，3.3，2.1，1.1，0.65，0.43 μmであり，バックアップフィルターで0.43 μm以下の微粒子が捕集される。採取したASP量は採取前後のろ紙の重量差より求めた。ろ紙重量は25℃，50%の恒温，恒湿の室に48時間以上放置した後に測定した。

2.2 成分分析

試料採取後のろ紙を300 mlピーカーに入れ，エタノール1 mlで湿らせた後，水30 mlを加え，ポリシートで覆いをした後，籠に入れ30分間超音波洗浄器（神明台工業㈱製 UO 600 FX）を用いて水溶性成分を抽出した。溶液部を30 mlポリエチレン製注射器（テルモ㈱製テルモシリンジ）で吸い取った後，注射針取り付け部にあらかじめ水で洗浄したメンブランフィルター（ミリポア工業㈱）マイルックスHA，0.45 μm，SLHA 025 OS）を取り付け，50 mlポリビン中に加圧ろ過注入し，分析用試料溶液とした。

各試料溶液についてNH₄⁺，Na⁺，K⁺，Ca²⁺，Mg²⁺，SO₄²⁻，NO₃⁻，Cl⁻の各イオン成分を測定した。陰イオン成分はイオンクロマトグラフィーで，NH₄⁺以外の陽イオンは原子吸光光度法で，NH₄⁺はインドフェノール法でそれぞれ測定した。なお，定量操作における標準溶液には試料溶液と同じ割合でエタノールを添加したものをを用いた。

2.3 粒度分布曲線の作成

ASP及び各成分の粒度分布曲線を作図するには，まず各月の測定値から，各粒度範囲の季節別（春季：3～5月，夏季：6～8月，秋季：9～11月，冬季：12～2月）平均大気中濃度を算出し，パソコンにより3次スプライン関数で補完した累積濃度曲線（log D_p - C, D_pは粒子直径，Cは大気中濃度）を作成した。この累積濃度曲線を数値微分することにより粒度分布曲線（log D_p - dC/dlog D_p）を作図した^{9,10}。

2.4 海塩粒子寄与分の補正

SO₄²⁻，K⁺，Ca²⁺は海塩粒子中にも含まれる。後に述べる粗大粒子中のNa⁺がすべて海塩粒子に由来すると仮定し，次式により各粒度範囲のNa⁺濃度（[Na]_{o.s.s.}）と海水中の濃度比から海塩粒子寄与分を差引き，海塩に由来しないそれぞれの成分の大気中濃度（ng/m³）を求めた。それらは非海塩性（nss：non-seasalt）成分として，nss-SO₄²⁻，nss-K⁺，nss-Ca²⁺で表した。

$$\text{nss-SO}_4^{2-} = \text{SO}_4^{2-} - 0.251 * [\text{Na}]_{\text{o.s.s.}}$$

$$\text{nss-K}^+ = \text{K}^+ - 0.036 * [\text{Na}]_{\text{o.s.s.}}$$

$$\text{nss-Ca}^{2+} = \text{Ca}^{2+} - 0.038 * [\text{Na}]_{\text{o.s.s.}}$$

3 結果及び考察

3.1 ASP及び各イオン成分の季節別粒度分布

ASP及び各イオン成分の粒度分布曲線をFig.2(1)及びFig.2(2)にそれぞれ示した。ASPの粒度分布は，Fig.2(1)からわかるように，0.7～1 μm付近と4～5 μm付近にピークを持ち2 μm付近を境に粒子が2つの集団に分かれる「二山型」を示した。これはこれまでの多くの調査結果と一致する。以下では，アンダーセンサンプラーの0～4段目で採取された部分（概ね粒子径2.1 μm以上）を「粗大粒子」（Coarse Fraction：CF）といい，5段目以降で採取された部分（概ね粒子径2.1 μm未満）を「微小粒子」（Fine Fraction：FF）という⁴⁻⁶。各イオン成分には「二山型」のもの，主に粗大粒子に偏って存在するもの，微小粒子に偏って存在するものが見られる。ASP及び各イオン成分の粗大，微小粒度別及び全粒子の季節別大気中濃度平均値をTable 1に，その微小粒子の割合（以下，「FFP」と記す。）をTable 2に示す。

これらから粒度分布には，①SO₄²⁻，NH₄⁺のように年間を通して微小粒子側に分布が集中しているもの（年平均FFPはそれぞれ83，95%），②Na⁺，Cl⁻，Mg²⁺，Ca²⁺のように年間を通して粗大粒子側に偏って分布しているもの（ただし，Na⁺，Mg²⁺は春季から夏季にややFFPが増加する。Na⁺，Cl⁻，Mg²⁺，Ca²⁺の年平均FFPはそれぞれ17，6，16，9%），③ASP，K⁺のように微小，粗大の両者に分布するもの，その割合は年間を通してほぼ一定であるもの（ただし，ASPは夏季に，K⁺は春から夏にやや微小粒子側の濃度増加が見られる。

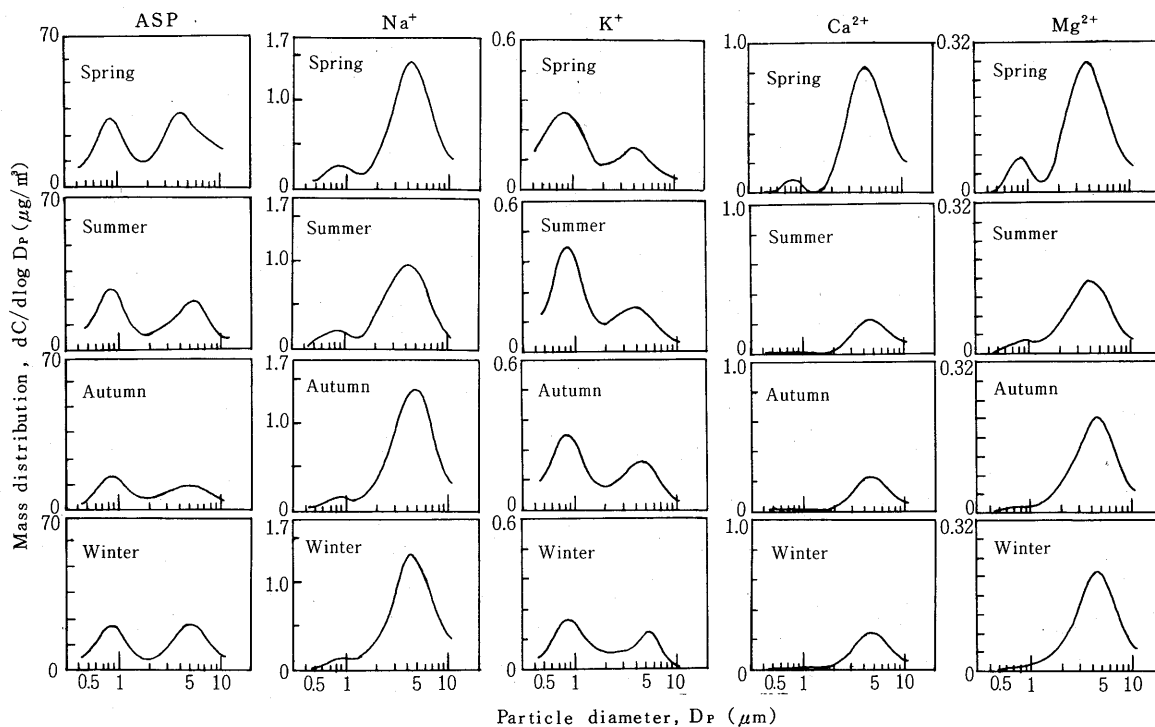


Fig.2(1) Particle - size distribution curves of ASP and ionic components in each season

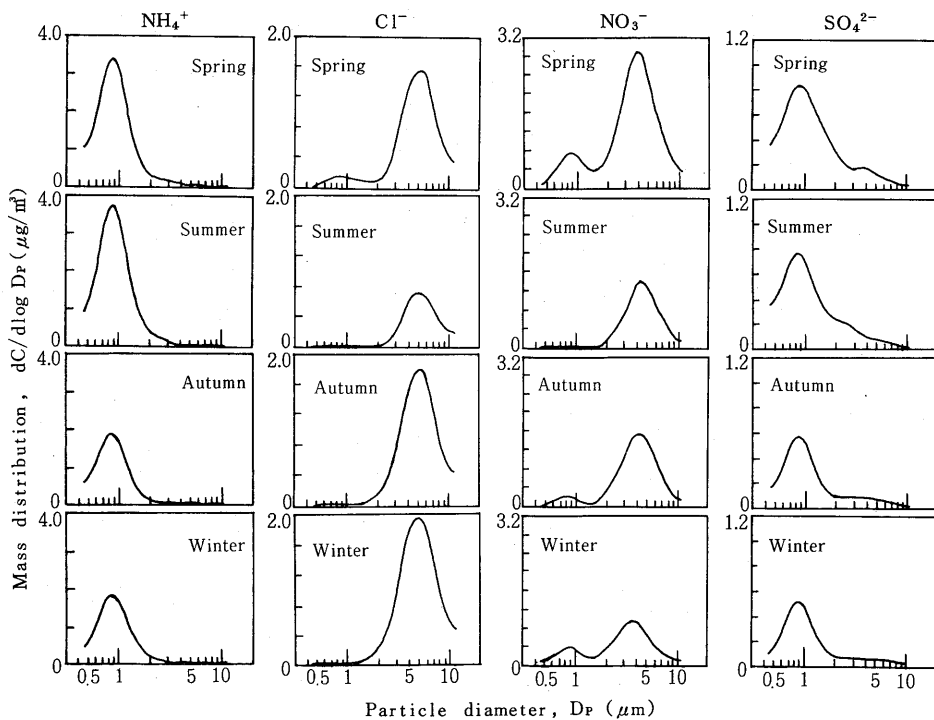


Fig.2(2) Particle - size distribution curves of ionic components in each season

Table 1 Seasonal and annual average atmospheric concentrations in fine and coarse fractions of ASP ion components

	Fraction	Spring	Summer	Autumn	Winter	Annual Av.
ASP ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	FF	16	14	12	9	13
	CF	24	14	13	9	15
	Total	41	28	25	18	28
SO_4^{2-} (nss- SO_4^{2-}) (ng/m^3)	FF	4,610	3,980	2,560	2,360	3,380
	CF	1,040 (860)	810 (690)	530 (350)	510 (340)	730 (570)
	Total	5,650	4,790	3,090	2,870	4,110
NO_3^- (ng/m^3)	FF	380	40	120	210	190
	CF	1,260	630	710	450	760
	Total	1,640	670	830	660	950
Cl^- (ng/m^3)	FF	90	10	40	70	50
	CF	740	360	880	990	740
	Total	830	370	920	1,060	790
NH_4^+ (ng/m^3)	FF	1,470	1,500	800	850	1,160
	CF	90	70	40	60	60
	Total	1,560	1,570	840	910	1,220
Na^+ (ng/m^3)	FF	170	140	120	110	140
	CF	710	480	710	690	650
	Total	880	620	830	800	790
K^+ (nss- K^+) (ng/m^3)	FF	210	210	160	100	170
	CF	110 (80)	100 (80)	100 (70)	70 (40)	100 (80)
	Total	320	310	260	170	270
Ca^{2+} (nss- Ca^{2+}) (ng/m^3)	FF	40	10	10	20	20
	CF	460 (430)	140 (120)	130 (100)	130 (100)	210 (190)
	Total	500	150	140	150	230
Mg^{2+} (ng/m^3)	FF	30	20	20	20	20
	CF	140	80	110	110	110
	Total	170	100	130	130	130

* FF: $< 2.1 \mu\text{m}$ Total: FF+CFCF: $\geq 2.1 \mu\text{m}$

ASP, K^+ の年平均FFPは47%, 64%), さらに④ NO_3^- のように両者にまたがって存在するものの季節による変動が大きく, 夏季には微小粒子がほとんどなくなるもの(季節別FFPは6~32%)に分類することができる。また, Table 1 からわかるように大気中濃度はASPをはじめ SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Ca^{2+} , K^+ では春季ないし夏季に高くなり, Na^+ , Cl^- , Mg^{2+} は夏季に低値を示すという季節変動を示している。

これまで都市大気中のASP及びその中の SO_4^{2-} , NH_4^+ , Cl^- , NO_3^- の粒度分布と季節変化については, はじめに述べたように比較的多くの地域で調査されているが, 田園地域や日本海側地域における報告例は少ない。今回得られた新潟平野中央部における調査結果はASP, SO_4^{2-} , NH_4^+ , Ca^{2+} などでは都市部での結果とほぼ同じ傾向を示したが Cl^- や NO_3^- の分布型・季節変化には違いが見られる。以下ではASP及び各成分別にこれらについて詳しく述べることにしたい。

3.2 ASP

ASPは年間を通して二山型の粒度分布を示し NH_4^+ ,

SO_4^{2-} と同様に春季から夏季に高く, 冬季に低くなる傾向が見られた。Table 2 からわかるように夏季, 秋季, 冬季では粗大粒子と微小粒子はほぼ同程度の濃度となっているが春季の粗大粒子濃度が高値となっている。これはのちに述べるように黄砂に代表されるようなアジア大陸からの土壌粒子の流入^{11, 12)}による影響と考えられる。

3.3 SO_4^{2-} 及び NH_4^+

SO_4^{2-} の粒度分布は前述したように年間を通じて微小

Table 2 Fine fraction percentages

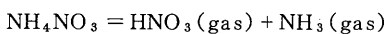
	Spring	Summer	Autumn	Winter	Annual Av.
ASP	40	50	47	51	47
SO_4^{2-}	82	83	83	82	83
NO_3^-	23	6	15	32	19
Cl^-	10	3	4	7	6
NH_4^+	94	96	95	93	95
Na^+	19	22	14	14	17
K^+	66	67	61	61	64
Ca^{2+}	8	9	10	10	9
Mg^{2+}	18	20	12	15	16

粒子側に集中しており、季節別FFPは82～83%と一定している。大気中濃度は2.87～5.65 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (年平均4.11 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) であり、春季から夏季に高く、秋季から冬季に低い。これは主に春季から夏季の微小粒子の濃度増加が原因している。微小粒子の SO_4^{2-} は SO_2 ガスから粒子への変換によるものと考えられており、新潟平野中央部においてもこの時期大気中の SO_2 ガスから SO_4^{2-} の生成が促進されるためと考えられる。その対イオンとしては NH_4^+ あるいは一部 H^+ が考えられる。一方、粗大粒子として海塩粒子中の SO_4^{2-} が考えられる。本調査における粗大粒子中の海塩起源 SO_4^{2-} の割合 $\{1 - (\text{nss} - \text{SO}_4^{2-} / \text{SO}_4^{2-})\} * 100$ (%)は、春季、夏季、秋季、冬季それぞれ、17, 15, 34, 33%と秋季から冬季にやや多いものの春季、夏季は10%台である。粗大粒子と微小粒子を合わせた全粒子では冬季でも7%、年平均値では5%と海塩の影響は大きくはない。これは後に述べるように、海塩粒子の主要成分である Na^+ などの大気中濃度も夏季に低値となるものの冬季に特に高値を示していないことから、北西方向の海岸線から約20km離れた本調査地点では海塩粒子の影響は北西季節風の卓越する冬季においてもさほど大きくはなっていないものと考えられる。

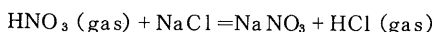
SO_4^{2-} の主な対イオンと考えられる NH_4^+ は SO_4^{2-} よりもさらに年間を通じて微小粒子側に偏在し(季節別FFPは93～96%)、 SO_4^{2-} と同様に春季から夏季にかけての微小粒子濃度の増加が著しい。粗大粒子の化学種は明らかではないが、微小粒子中では夏季には $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ などとして存在し、また、冬季には主に $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ と NH_4NO_3 として存在しているものと推定されている^{4,11)}。

3.4 NO_3^-

NO_3^- の粒度分布は冬季(FFP:32%)と夏季(FFP:6%)では大きな違いが見られたが、冬季の都市大気中で見られる⁵⁻⁹⁾ように微小粒子濃度が粗大粒子濃度よりも高くなることはなかった。角脇⁴⁾は、名古屋市における調査結果から微小粒子は HNO_3 ガスと NH_3 ガスの反応により生成した NH_4NO_3 より成り、粗大粒子は HNO_3 ガスと海塩粒子との反応による NaNO_3 であると報告している。季節変化から見ると冬季には NH_4NO_3 が増加しその他の季節では減少する。これは常温でも高い蒸気圧を持つ NH_4NO_3 が気温に依存してその存在量が規定されるためと説明されている。すなわち、気温が高いときには



の平衡により微小粒子からガス状の HNO_3 と NH_3 が生成し、この HNO_3 と海塩粒子との反応、



により粗大粒子濃度が増加する。しかし、気温の低いときには NH_4NO_3 が主に微小粒子として存在するとしている。

本調査においても夏季には微小粒子が少なく、冬季はこの割合が増えることは都市大気と類似しているが、前述したように冬季に微小粒子部分が粗大粒子よりも多くなることはなかった。これは NH_4NO_3 生成のもととなる NH_3 ガス濃度が低くガス状 HNO_3 から NH_4NO_3 を生成せず、比較的高濃度に存在する海塩粒子中の Na^+ と反応して NaNO_3 を生成するためと考えられる。また、本調査においては粗大粒子濃度は気温の高い夏季よりも春季の増加が著しかった。これは本調査地域では春季に大気中の O_3 濃度が年間を通して最も高濃度となる¹³⁾ことから、春季のガス状 HNO_3 生成量が多くなり、したがって粗大粒子の NaNO_3 が高濃度となるためと考えられる。

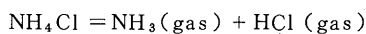
3.5 Na^+ , Mg^{2+}

Na^+ , Mg^{2+} の粒度分布は、春季から夏季にFFPがやや増加するものの、年間を通して粗大粒子側に偏在している(季節別FFPは Na^+ :14～22%, Mg^{2+} :12～20%)。 Na^+ , Mg^{2+} の粗大粒子濃度は夏季にやや低値となるものの年間を通じてほぼ一定しており、後に述べる Ca^{2+} のように春季に高値となることはなかった。従って、 Na^+ , Mg^{2+} には黄砂現象に代表されるような表層土壌の舞い上がりによる影響は少なく、主に海塩粒子起源と考えられる。なお、 Na^+ と Mg^{2+} は年間を通して10～20%が微小粒子として存在するがこれら微小粒子側の対イオンを含む化学種についての詳細は不明である。

3.6 Cl^-

Cl^- の粒度分布は、 Na^+ と Mg^{2+} と同様年間を通して粗大粒子側に偏在している(季節別FFPは3～10%)が、これらよりもさらに微小粒子の割合が小さく、また粗大粒子、微小粒子とも冬季から春季の濃度増加が見られた。

都市大気中では冬季と夏季で Cl^- の粒度分布には大きな違い⁵⁻⁷⁾が認められているが、本調査においてはこのような季節差は認められなかった。冬季の都市大気中においては、微小粒子割合が粗大粒子割合よりも高くなり、夏季にはその逆に粗大粒子割合が高くなる。これは、原ら⁵⁾が指摘しているように、 Cl^- 成分の主成分とされる NH_4Cl が前述した NH_4NO_3 と同様に



の平衡関係にあり、 NH_4Cl は気温の低い冬季には主に微小粒子として存在するが、気温の高い夏季には NH_3 ガスと HCl ガスに分解する方向に進んで微小粒子の NH_4Cl は減少するためと考えられる。一方、粗大粒子中の Cl^- は主に海塩粒子中の NaCl に由来するものと考えられている。今回調査した新潟平野中央部では冬季においても微小粒子側の Cl^- は5%程度であり、都市地域での調査結果と大きな違いを見せている。これは NH_4NO_3 の場合と同様に NH_4Cl が生成するための前駆物質である NH_3 ガスもしくは HCl ガス濃度が低いためと考えられる。この点都市大気と明確な違いを見せている。

粗大粒子部分における春季, 夏季, 秋季, 冬季における Cl^- と Na^+ の濃度比 (Cl^-/Na^+) は, それぞれ 1.04, 0.75, 1.24, 1.43 と海水組成 ($\text{Cl}^-/\text{Na}^+ = 1.8$) よりもいずれの季節でもこの値が低く特に夏季が低くなっている。粗大粒子の Cl^- が NaCl のみであると仮定すると前述した。

$\text{HNO}_3(\text{gas}) + \text{NaCl} = \text{NaNO}_3 + \text{HCl}(\text{gas})$ で示す Cl^- ロスがあることとなる。そこで Cl^- ロス量 ($\mu\text{eq}/\text{m}^3$) を次式¹⁴⁾により算出した。

$$\text{Cl}^- \text{ロス量} = 1.17 \times \text{Na}^+_{\text{CF}_{0.05}} - \text{Cl}^-_{\text{CF}_{0.05}}$$

ここで, $\text{Na}^+_{\text{CF}_{0.05}}$ および $\text{Cl}^-_{\text{CF}_{0.05}}$ は, Na^+ および Cl^- の粗大粒子中の濃度 ($\mu\text{eq}/\text{m}^3$) であり, 1.17 は $1.8 \times (23.0/35.5)$ から導かれる係数である。得られた Cl^- ロス量は春季: 15, 夏季: 14, 秋季: 11, 冬季: $7.2 \mu\text{eq}/\text{m}^3$ となり春季から夏季にかけての Cl^- ロス量は冬季の約 2 倍となっている。

3.6 Ca^{2+}

Ca^{2+} は年間を通して FFP が 8~10% と粗大粒子側に偏在しており, また, 春季の粗大粒子濃度の上昇が著しいという特徴がある。 Ca^{2+} は海塩粒子中にも含まれるが, 春季, 夏季, 秋季, 冬季の粗大粒子中の海塩粒子寄与率 [% , $\{1 - (\text{nss} - \text{Ca}^{2+}/\text{Ca}^{2+})\} \times 100$] はそれぞれ 7, 14, 23, 23% と濃度上昇の著しい春季の寄与率は低値となっており, 海塩以外の寄与が大きい。春季には黄砂現象に見られるように比較的粒度の大きな大陸起源土壌粒子の影響が報告されており^{11), 12)}, また黄砂中には方解石などとして Ca^{2+} が多量に存在する¹⁵⁾ ことから, こうした影響が本調査においても現れたものと考えられる。

3.7 K^+

K^+ は年間を通して FFP が 60% 台であり, 微小粒子側の存在割合が高いものの粗大粒子側の部分もかなりあり, 他成分との違いを見せている。大気中濃度は粗大粒子, 微小粒子とも春季から秋季は同程度であるが冬季には低くなっている。 K^+ は海塩粒子中にも含まれ, 粗大粒子中の海塩粒子寄与率 [% , $\{1 - (\text{nss} - \text{K}^+/\text{K}^+)\} \times 100$] は春季: 27%, 夏季: 20%, 秋季: 30%, 冬季: 43% と冬季にその影響は大きい, 春季から夏季の粗大粒子部分には海塩粒子起源以外の K^+ がかなりの部分を占める。大気中エアロゾル中の K は植物体由来部分が多い¹⁶⁾ とされ, 気相反応によるものは微小粒子部分に, 植物体腐食物などの舞上がったものは粗大粒子部分に存在するものと考えられる。本調査においても大気中濃度は植物活動の活発な夏季を中心として高値となり, 冬季には低値となっている。また, 調査地点の周辺は林に囲まれていることから, 夏季を中心とした時期には植物活動の影響があったものと考えられる。しかし, 微小及び粗大粒子中の K^+ 対イオン等に関しては今後の重要な検討課

題である。

4 ま と め

新潟平野中央部に位置する国設新津環境大気測定局において, 1990年4月から1992年3月までの2年間にわたって各月15日間ずつ大気中の浮遊粉じん (ASP) をアンダーセンサンプラーを用いて採取し, ASP量および無機イオン成分の大気中濃度及び粒度分布を測定しその季節変動を調べた。

ASP及び各イオン成分の粒度分布は, ① SO_4^{2-} , NH_4^+ のように年間を通して微小粒子側に分布が集中しているもの, ② Na^+ , Cl^- , Ca^{2+} , Mg^{2+} のように年間を通して粗大粒子側に偏って分布しているもの, ③ ASP, K^+ のように微小, 粗大の両者に分布するもののその割合は年間を通してほぼ一定であるもの, さらに④ NO_3^- のように両者にまたがって存在するものの季節による変動が大きく, 夏季には微小粒子の割合が少なくなるものの4種類に分類することができた。また大気中濃度はASPをはじめ SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Ca^{2+} , K^+ は春季ないし夏季に高く, Na^+ , Cl^- , Mg^{2+} は夏季に低値を示す季節変動を示した。

都市大気中においては冬季に NH_4Cl によるものと考えられる Cl^- の微小粒子割合の増加が見られるが本調査地域ではこのような傾向は見られなかった。また, NO_3^- も夏季には微小粒子が少なく, 冬季にはこの割合が増えることは都市大気と類似していたが, 冬季に微小粒子部分が粗大粒子よりも多くなることはなかった。

参 考 文 献

- 1) 新潟県環境保健部公害対策課: 平成2年度大気汚染測定結果報告, p.25 (1991).
- 2) 日本科学技術情報センター: 大気汚染物質レビュー, エーロゾル, p.59 (1984).
- 3) 植田洋匡: 公害と対策, 26, 157 (1990).
- 4) Kadowaki S.: Atmos. Environ., 10, 39 (1976).
- 5) 原 宏, 他: 日本化学会誌, 1983, 1221.
- 6) 松本光弘, 他: 大気汚染学会誌, 21, 501 (1986).
- 7) 内山茂久: 大気汚染学会誌, 25, 77 (1990).
- 8) 芳住邦雄, 他: 東京都公害研究所年報, 1985, 78.
- 9) 松本光弘, 他: 環境技術, 16, 339 (1987).
- 10) 藤村 満, 他: 分析化学, 24, 36 (1975).
- 11) 溝畑 朗, 他: 大気汚染学会誌, 13, 289 (1978).
- 12) 田中 茂, 他: 大気汚染学会誌, 18, 263 (1983).
- 13) 福崎紀夫: 大気汚染学会誌, 21, 296 (1986).
- 14) 角脇 怜: 日本化学会誌, 1980, 141.
- 15) 山本正和: 浮遊微粒子の計測・制御総合技術, p.288 (1987), R & Dプランニング.
- 16) 竹内丑雄: 地球化学, 14, 30 (1980).