

塩素系難燃剤デクロラン類の大気粉塵粒径分布の解明

柿本 健作¹⁾, 東條 俊樹²⁾, 先山 孝則²⁾, 永吉 晴奈¹⁾, 小西 良昌¹⁾, 梶村 計志¹⁾,
中野 武³⁾, 畑 光彦⁴⁾, 古内 正美⁴⁾, 唐 寧⁵⁾, 早川 和一⁵⁾, 鳥羽 陽⁵⁾

¹⁾大阪府立公衆衛生研究所 (〒537-0025 大阪府大阪市東成区中道1-3-69)

²⁾大阪市立環境科学研究所 (〒543-0026 大阪府大阪市天王寺区東上町8-34)

³⁾大阪大学環境安全研究管理センター (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-4)

⁴⁾金沢大学理工研究域環境デザイン学系 (〒920-1192 石川県金沢市角間町)

⁵⁾金沢大学医薬保健研究域薬学系 (〒920-1192 石川県金沢市角間町)

[平成27年11月10日受付, 平成28年3月24日受理]

Size Distribution of Dechloranes in Particulate Matter

Kensaku KAKIMOTO¹⁾, Toshiki TOJO²⁾, Takanori SAKIYAMA²⁾, Haruna NAGAYOSHI¹⁾,
Yoshimasa KONISHI¹⁾, Keiji KAJIMURA¹⁾, Takeshi NAKANO³⁾, Mitsuhiko HATA⁴⁾,
Masami FURUUCHI⁴⁾, Ning TANG⁵⁾, Kazuichi HAYAKAWA⁵⁾ and Akira TORIBA⁵⁾

¹⁾Osaka Prefectural Institute of Public Health
(1-3-69 Nakamichi, Higashinari, Osaka, Osaka 537-0025)

²⁾Osaka City Institute of Public Health and Environmental Sciences
(8-34 Tojo, Tennoji, Osaka, Osaka 543-0026)

³⁾Research Center for Environmental Preservation, Osaka University
(2-4 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871)

⁴⁾Faculty of Environmental Design, Institute of Science and Engineering, Kanazawa University
(Kakuma, Kanazawa, Ishikawa 920-1192)

⁵⁾Institute of Medical, Pharmaceutical and Health Sciences, Kanazawa University
(Kakuma, Kanazawa, Ishikawa 920-1192)

[Received November 10, 2015; Accepted March 24, 2016]

Summary

The particle size distributions of dechloranes were determined. For collecting PM, an Andersen air sampler equipped with five-stage quartz fiber filters and a PM_{0.1} air sampler equipped with six-stage Teflon and inertial SUS fiber filters were used. Particulate matter (PM) was collected in April 2014 by Andersen air sampler and October 2014 and January 2015 by PM_{0.1} air sampler. The samples were analyzed for Dechlorane Plus (DP), Dechlorane602, Dechlorane603, and Dechlorane604 Component A using gas chromatography high-resolution mass spectrometry. The almost all nanoparticles smaller than 100 nm are reported to reach and deposit in lung periphery, so it is important to reveal the concentration of these dechloranes in nanoparticles. In our study, only DP was detected in PM. DP was detected from all the filter samples. In this study, the particle size distribution of DP was revealed for the first time and the approximately 70 % of DP exist in <2.5 μm fractions and 10 % of DP exist in <0.1 μm fractions of PM samples.

Key words: particulate matter, nanoparticle, chlorinated flame retardant

1. はじめに

塩素系難燃剤であるデクロラン・プラス (DP) は主に電気ケーブルやワイヤーの被膜, 家電製品プラスチックに用いられ, 主にポリマー樹脂に混合して使用される。DP は化審法で高濃縮性の判断基準となる3.5を大きく超える9.3という Log Kow 値を有することから環境, 生物中への蓄積が懸念される。DP が環境中から初めて検

出されたのは2006年, DP の製造所の存在する北米5大湖周辺からの試料であり¹⁾, それを皮切りとして以降環境および生物試料からの検出例が年々増加傾向となっている。また, 近年では中国においても DP の生産が確認されている²⁾。第20回環境化学討論会及び誌上において先山と中野が初めて日本の環境試料 (底質や土壌, 屋内のダストおよび屋外沈着物) 中 DP について発表した^{3,4)}。著者らは, 第21, 22回環境化学討論会において日本における食品や屋外大

気粉塵 (PM) から DP を検出し報告した^{5,6)}。その中で、PM 試料中 DP 濃度はポリ臭素化ジフェニルエーテル (PBDE) のおよそ 4 分の 3、食事試料においておよそ 100 分の 1 であることを明らかにし、我が国における環境中の DP 汚染が現在進行形であり、食品汚染が始まったばかりであることを示した。PBDE やヘキサブロモシクロドデカン (HBCD) といった臭素系難燃剤の規制が進む一方で、EU において DP が BDE-209 の代替物として提案される等⁷⁾、DP 需要は今後増加することが予想される。しかし、DP の生物濃縮性⁸⁾、肝臓への有害作用や代謝攪乱作用⁹⁾等の生体影響作用が最近明らかになってきたことから、DP 汚染状況を明らかにしていくことはヒトへのリスクを考える上で重要であると考えられる。

PM は 2013 年に国際がん研究機関 (IARC) によりグループ 1 (ヒトに対し発がん性がある) に追加された¹⁰⁾。日本国内においてもしばしば高濃度 PM_{2.5} に対する注意喚起がなされ近年問題となっており、その背景には PM_{2.5} による肺がんや心血管系疾患リスク上昇への影響がある^{11,12)}。粗大粒子はその大部分が気管に入る前に沈着するが、粒子径が 0.1 μm 以下の粒子は超微小粒子と呼ばれ、吸入した粒子の大部分が気管、肺に到達、沈着することが報告されている^{13,14)}。大気中の DP はほとんどが気相ではなく粉塵相に存在することが報告されているが¹⁵⁾、その超微小粒子を含む粒子分布挙動は未だ明らかになっていない。そこで今回、粒径別に採取した PM 中の DP を含むデクロラン類 (DP, Dechlorane602, Dechlorane603, Dechlorane604 Component A) 濃度を測定し、超微小粒子中のデクロラン類濃度及びその季節変動を初めて明らかにしたので報告する。

2. 方法

試料：大阪市内にて 2014 年 4 月アンダーセンエアサンプラー (AH-600, 柴田科学社) を使用し、566 L/min で石英繊維フィルターに PM を 5 段階 (>7.0 μm, 7.0 ~ 3.3 μm, 3.3 ~ 2.0 μm, 2.0 ~ 1.1 μm, <1.1 μm) の粒径に分けて 72, 168 時間採取した。また、2014 年 10 月 6, 7, 8, 9 日及び 2015 年 1 月 13, 16, 19, 22 日に PM_{0.1} 大気サンプラー (Fig. 1)¹⁵⁾ を使用し、40 L/min でテフロンフィルター (東京ダイレック社) 及び慣性フィルターに PM を 6 段階 (>10 μm, 10 ~ 2.5 μm, 2.5 ~ 1.0 μm, 1.0 ~ 0.5 μm, 0.5 ~ 0.1 μm, <0.1 μm) の粒径に分けて、24 時間採取した。

試薬：有機溶媒は残留農薬・PCB 試験用 (和光純薬工業社) を用いた。シリカゲル及び硫酸シリカゲルはダイオキシン類分析用 (和

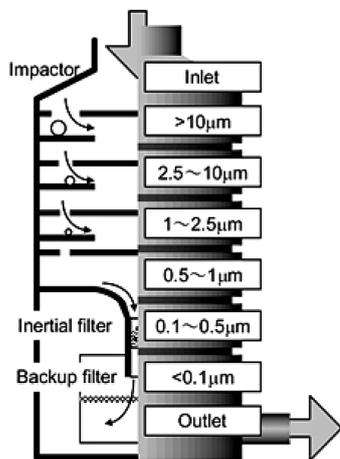


Fig. 1 PM_{0.1} air sampler

光純薬工業社) を用いた。*syn-* 及び *anti*-DP (トルエン溶液) は Wellington Laboratories 社製、¹³C₁₀-*syn-* 及び *anti*-DP (トルエン溶液) は Cambridge Isotope Laboratories 社製、その他デクロラン類は Toronto Research Chemicals 社製を用いた。

分析方法：既報^{16,17)}を一部変更した方法で操作を行った。PM を捕集したフィルターに対し内部標準スパイクとして¹³C₁₀-*syn-* 及び *anti*-DP をそれぞれ 0.25 ng 添加し、ジクロロメタン 50 mL で超音波抽出を行った。抽出液を 1 mL へ濃縮した後、シリカゲル 0.5 g に負荷しヘキサン/ジクロロメタン混液 (9 : 1) 10 mL で溶出した。溶出液を 1 mL へ濃縮したものを 44% 硫酸シリカゲル 0.5 g に負荷し、ヘキサン 10 mL で溶出させ、50 μL に濃縮したものを分析試料とした。測定にはガスクロマトグラフ (6890 シリーズ, アジレント社) - 高分解能質量分析計 (JMS-800D, 日本電子社) を使用した。分析に使用したモニタリングイオンを Table 1 に示した。イオン化法はポジティブ EI, イオン化エネルギー 38 eV, フィラメント電流 500 μA, イオン源温度 270°C, 分解能 10,000 に設定した。分析カラムには DB-1 (長さ 15 m, 内径 0.25 mm, 膜厚 0.1 μm, アジレント社) を使用した。注入口温度 250°C, ガス流量 1 mL/min, カラム温度は 100°C で 2 分間保持し、10°C/min で 330°C まで昇温し、5 分間保持した。キャリアーガスにはヘリウムを使用した。*syn-* 及び *anti*-DP の測定値はそれぞれ対応する¹³C₁₀-*syn-* 及び *anti*-DP で定量し、その他のデクロラン類は¹³C₁₀-*syn*-DP による定量を行った。

ブランクフィルターに対しデクロラン類 1 ng 及び¹³C₁₀-*syn-* 及び *anti*-DP をそれぞれ 0.25 ng 添加し回収試験を行った (n = 3) とし、内部標準補正回収率は 92 ~ 113%, 相対標準偏差は 1 ~ 14% の範囲であった。内部標準の絶対回収率は¹³C₁₀-*syn-* 及び *anti*-DP それぞれ 81%, 93% 以上であった。定量下限の設定濃度は、*syn-* 及び *anti*-DP については実試料、それ以外のデクロラン類については添加回収試料分析時におけるクロマトグラム上のピークの S/N 比が 10 に相当するピーク面積から求めた濃度とした結果、Dechlorane604 Component A は 1 pg/m³, それ以外のデクロラン類は 0.1 pg/m³ であった。また、操作ブランクからはいずれのデクロラン類も検出されなかった。

3. 結果

今回採取した全ての PM 試料から DP が定量下限値以上で検出された一方で、それ以外のデクロラン類はいずれの試料からも検出されなかった。アンダーセンサンプラーを用いて採取した PM 試料の総粒子中の *syn-* 及び *anti*-DP の合計 DP 濃度 (ΣDP) は 72 時間採取では 4.5 pg/m³, 168 時間採取では 3.0 pg/m³ であった。粒径別にみると、採取時間に関わらず最も大気試料量あたりの濃度が高かった

Table 1 Monitoring ions for GC-HRMS analysis

| Compounds | Quantification | Qualification |
|---|----------------|---------------|
| <i>syn</i> -DP | 271.8102 | 273.8072 |
| <i>anti</i> -DP | 271.8102 | 273.8072 |
| Dechlorane602 | 271.8102 | 273.8072 |
| Dechlorane603 | 262.8570 | 264.8540 |
| Dechlorane604 Component A | 339.7921 | 341.7901 |
| ¹³ C ₁₀ - <i>syn</i> -DP | 276.8269 | 278.8240 |
| ¹³ C ₁₀ - <i>anti</i> -DP | 276.8269 | 278.8240 |

のは<1.1 μmの画分であった (Fig. 2)。この結果は同じくアンダーセンサンプラーを用いたPM中POPs類の粒径分布と同様の傾向であった¹⁸⁾。また、採取時間に関わらず3.3~2.0 μm及び2.0~1.1 μmの画分は他の画分に比較しΣDP濃度が低い傾向がみられた。

PM_{0.1}大気サンプラーにて採取した各試料における総粒子中のPM

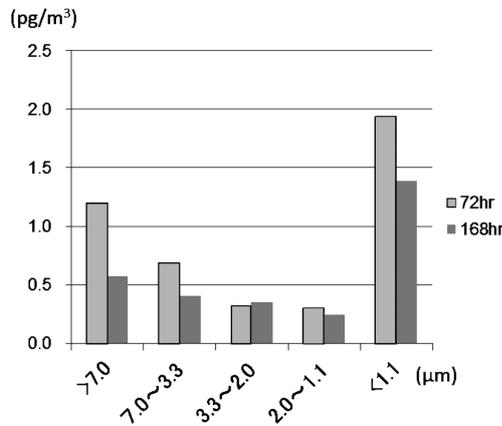


Fig. 2 DP in PM collected with Andersen air sampler

及びDPの濃度は採取日より特にΣDPが大きく変動し、10月でそれぞれ18.9~22.4 μg/m³及び2.5~11.3 pg/m³、1月でそれぞれ21.4~48.7 μg/m³及び3.3~30.4 pg/m³で、特に1月13日の試料において他の採取日に比べて高いDP濃度となった (Table 2)。これら総粒子中DPの濃度範囲は以前同地点でハイボリュームエアサンプラーにて採取したPM中の濃度 (7.1~15.4 pg/m³)¹⁶⁾と同等のレベルであった。PMはその粒子径により大きく3つ (粗大粒子、蓄積モード粒子、及び核形成モード粒子)に分けられ¹⁴⁾、主に0.1~1.0 μm付近に質量濃度分布を有する蓄積モード粒子は長距離移動性を有する。PM及びDPの粒径別濃度分布 (Fig. 3)は時期により異なる傾向がみられ、10月に採取したPMに比べ1月に採取した試料では10~2.5 μm画分においてPMの濃度分布割合が減少した一方、2.5~1.0 μm、1.0~0.5 μm、0.5~0.1 μmの主に蓄積モード粒子においてPMの濃度分布割合の上昇がみられた。DPも同様に1月に採取した試料では2.5~1.0 μm画分で濃度分布の上昇がみられた。超微小粒子画分 (<0.1 μm)は0.01~0.1 μm付近に質量濃度分布を有する核形成モード粒子に属するが、PM及びDPの濃度分布割合で採取時期による差はみられなかった。また、PM中ΣDPは全採取日平均で68%が2.5 μm以下の画分に存在し、13%が0.1 μm以下の画分に存在することが明らかとなった。また anti-DP

Table 2 DP concentrations (pg/m³) and *f_{anti}* values in PM

| | >10 μm | 10-2.5 μm | 2.5-1.0 μm | 1.0-0.5 μm | 0.5-0.1 μm | <0.1 μm | total |
|--------|--------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------|
| 6-Oct | 0.69 (0.67*) | 3.09 (0.78) | 0.75 (0.69) | 0.56 (0.74) | 0.81 (0.72) | 0.76 (0.71) | 6.7 |
| 7-Oct | N.D. | 0.69 (0.63) | 0.28 | 0.43 (0.63) | 0.56 (0.73) | 0.59 (0.58) | 2.5 |
| 8-Oct | 0.24 | 1.45 (0.82) | 1.05 (0.75) | 1.02 (0.77) | 4.79 (0.78) | 1.23 (0.76) | 9.8 |
| 9-Oct | 1.33 (0.83) | 3.46 (0.54) | 1.68 (0.80) | 1.56 (0.74) | 1.80 (0.76) | 1.46 (0.73) | 11.3 |
| 13-Jan | 0.52 (0.71) | 6.78 (0.58) | 9.47 (0.37) | 6.91 (0.38) | 4.36 (0.50) | 2.33 (0.52) | 30.4 |
| 16-Jan | 0.93 (0.79) | 4.93 (0.73) | 1.68 (0.76) | 1.56 (0.74) | 2.47 (0.74) | 1.14 (0.77) | 12.7 |
| 19-Jan | N.D. | 0.61 (0.83) | 0.67 (0.75) | 0.59 (0.61) | 0.89 (0.70) | 0.53 (0.74) | 3.3 |
| 22-Jan | 0.28 | 1.78 (0.78) | 1.89 (0.77) | 1.44 (0.74) | 1.95 (0.69) | 0.89 (0.76) | 8.2 |

* *f_{anti}*; value was shown only if both *syn*- and *anti*- were detected

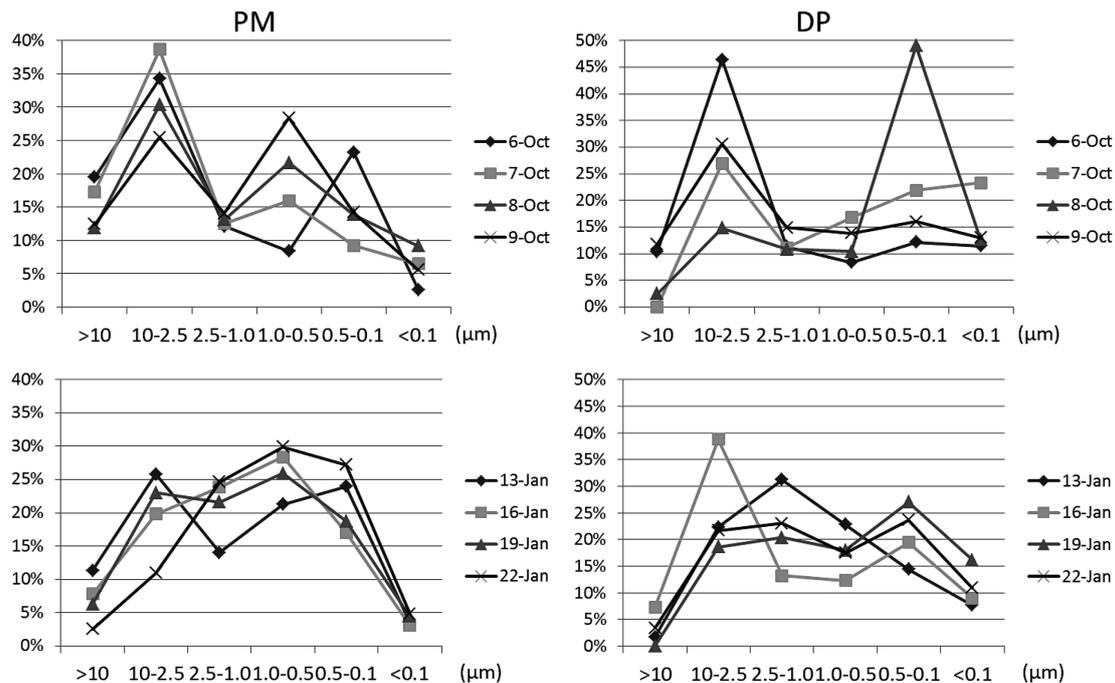


Fig. 3 Particle size distribution (%) of PM(μg/m³, left) and DP(pg/m³, right) concentrations with PM_{0.1} air sampler

濃度を *syn*- 及び *anti*-DP の合計濃度で除した f_{anti} 値の平均は10月の採取試料の各粒子径において0.69 ~ 0.75と概ね工業製品 (0.70 ~ 0.80) ^{1,19)}に近い値であった。一方、1月に採取した試料では高濃度のDPが観測された1月13日の試料の2.5 ~ 1.0 μm , 1.0 ~ 0.5 μm で特に低い f_{anti} 値となったがそれ以外の採取日では10月の採取試料と近い値となった。

4. 考察

アンダーセンサンプラーで採取した試料で、 $<1.1 \mu\text{m}$ の画分では他の画分に比べ高濃度のDPが観測された。一方で、PM₀₁大気サンプラーにて採取したPMにおいて $<1.0 \mu\text{m}$ の内訳を見るとDPの濃度は採取時期により異なるが概ね1.0 ~ 0.5 μm , 0.5 ~ 0.1 μm の画分に10 ~ 2.5 μm , 2.5 ~ 1.0 μm , と同程度のDPが存在していることが明らかとなった。また、 $<0.1 \mu\text{m}$ の画分には他の画分に比較的高い濃度ではないもののDPが存在していることが明らかとなった。このことは肺胞に到達し得る確率の高い画分 ($<0.1 \mu\text{m}$) ¹⁴⁾にDPが存在していることを示している。多環芳香族炭化水素類 (PAHs) は今回と同様のPM₀₁大気サンプラーで車道トンネルにて採取したPMにおいて粒子径が小さくなるほどPAHs濃度が上昇することが報告されている²⁰⁾が都市大気中DPにおいてはこのような傾向はみられず、主に1.0 μm 以上の粒径に質量濃度分布を有する粗大粒子モードにおいても蓄積モード粒子と同レベルのDPが確認された。これはPAHsが主に化石燃料の燃焼により生成する一方で、DPは主に人為的に製造された製品からの環境中への拡散が考えられることから、それら発生源の違いが粒径分布の違いに影響を与えていることが考えられた。

1月13日の試料では主に蓄積モード粒子画分において f_{anti} 値の減少がみられた。大気の長距離輸送 (LRAT) 中において紫外線の影響で *anti*-DP が特異的に減少することが報告されており^{21, 22)}、この

ことからLRATが f_{anti} 値の減少に影響を与えることが考えられたため、各採取日毎の後方流跡線解析 (HYSPLIT Trajectory Model, NOAA) ²³⁾を1300 mを出発高度として行った。その結果、10月に採取した大気には特徴的な傾向はみられなかった一方、1月に採取した大気は主にアジア大陸から流れ込んできており (Fig. 4)、このことが蓄積モード粒子画分におけるPM濃度分布割合の上昇に寄与している可能性が示唆された。ただ、1月13日に特徴的な変化はなく、1月13日の試料に見られた、高い ΣDP の濃度及び低い f_{anti} 値に対しLRATが関与しているのかどうかは不明である。北米と中国で生産されるDPの f_{anti} 値自体に差があり、中国で製造されるDPは北米産のものに比べ f_{anti} 値が低いという報告もあることから²⁾、このことも f_{anti} 値減少の原因と成り得るため、更なるデータの蓄積が必要であると考えられる。

謝 辞

本研究はJSPS 科研費26860452の助成を受けたものです。

要 約

大気粉塵 (PM) 中デクロラン類の粒径毎濃度分布を明らかにした。分析対象としたデクロラン類のうちデクロラン・プラス (DP) のみが検出された。10月に採取したPMに比べ1月に採取した試料では特に、2.5 ~ 1.0 μm , 1.0 ~ 0.5 μm , 0.5 ~ 0.1 μm の、大気中で長距離移動性を有する粒子においてPM濃度分布の上昇がみられ、DP濃度分布も2.5 ~ 1.0 μm において上昇がみられた。 $<0.1 \mu\text{m}$ の画分には他の画分に比較的高い濃度ではないもののDPが存在していることが明らかとなった。PM₀₁大気サンプラーにて採取したPM中のDPは平均で68%が2.5 μm 以下の画分に存在し、13%が0.1 μm 以下の画分に存在することが明らかとなった。

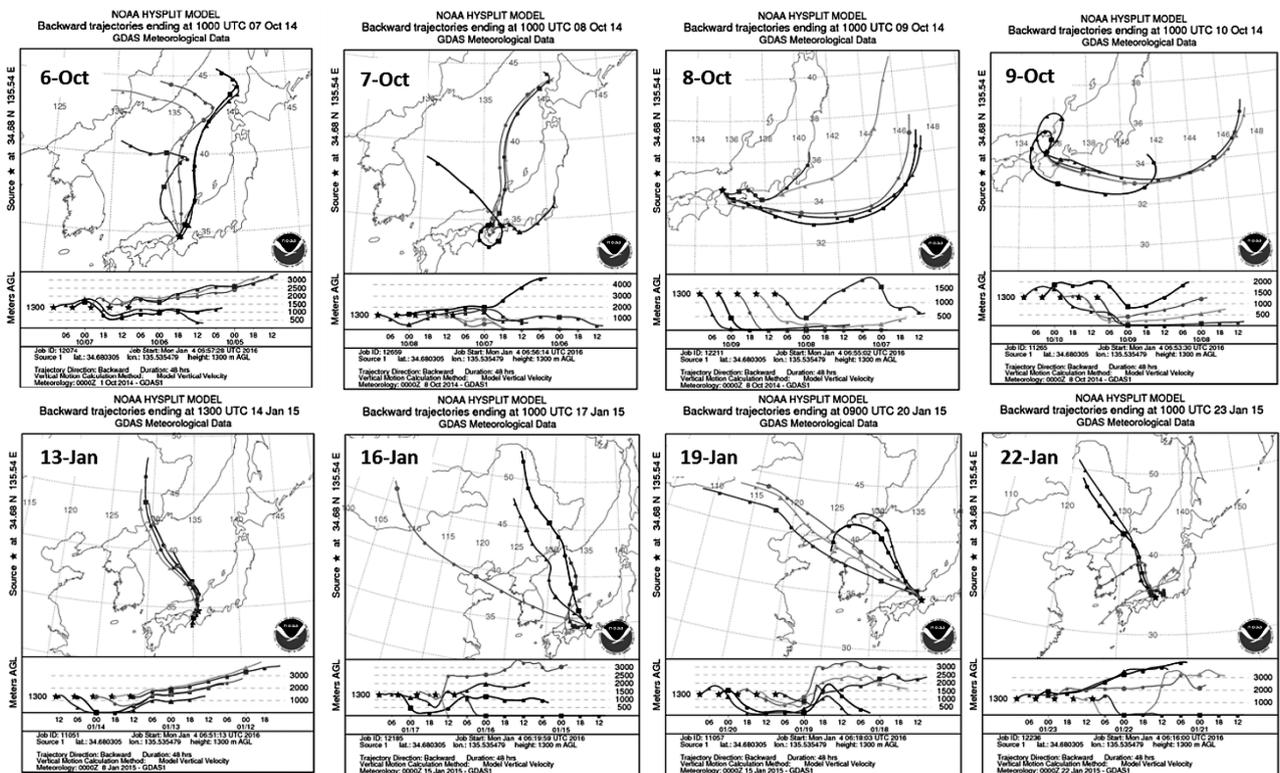


Fig. 4 Results of back trajectory analysis over the sampling period

文 献

- 1) Hoh, E., Zhu, L. and Hites, R.A.: Dechlorane plus, a chlorinated flame retardant, in the Great Lakes. *Environ. Sci. Technol.*, **40**, 1184-1189 (2006)
- 2) Wang, D.G., Yang, M., Qi, H., Sverko, E., Ma, W.L., Li, Y.F., Alaei, M., Reiner, E.J. and Shen, L.: An Asia-specific source of dechlorane plus: concentration, isomer profiles, and other related compounds. *Environ. Sci. Technol.*, **44**, 6608-6613 (2010)
- 3) 先山孝則, 中野 武: 環境中の塩素系難燃剤 Dechlorane Plus について, 第20回環境化学討論会講演要旨集, 548-549 (2011)
- 4) 先山孝則, 中野 武: 高分解能 GC/MS 法を用いる環境中の塩素系難燃剤 Dechlorane Plus の分析, 分析化学, **61**, 745-754 (2012)
- 5) 柿本健作, 永吉晴奈, 山口貴弘, 吉田 仁, 安達史恵, 高木総吉, 小西良昌: 食用魚中の塩素系難燃剤テクロラン・プラス, 第21回環境化学討論会講演要旨集, 633-634 (2012)
- 6) 柿本健作, 高木総吉, 阿久津和彦, 東條俊樹, 先山孝則, 小西良昌, 梶村計志, 鳥羽 陽, 早川和一: 大気および食品中ハロゲン系難燃剤の曝露量評価, 第22回環境化学討論会講演要旨集, 602-603 (2013)
- 7) Pakalin, S., Cole, T., Steinkellner, J., Nicolas, R., Tissier, C., Munn, S. and Eisenreich, S.: Document available at review on production processes of decabromodiphenyl ether (DecaBDE) used in polymeric applications in electrical and electronic equipment, and assessment of the availability of potential alternatives to DecaBDE. ISSN 1018-5593; EUR 22693 EN. European Commission (2007)
- 8) Wang, D.G., Guo, M.X., Pei, W., Byer, J.D. and Wang, Z.: Trophic magnification of chlorinated flame retardants and their dechlorinated analogs in a fresh water food web. *Chemosphere*, **118**, 293-300 (2015)
- 9) Wu, B., Liu, S., Guo, X., Zhang, Y., Zhang, X., Li, M. and Cheng, S.: Responses of mouse liver to dechlorane plus exposure by integrative transcriptomic and metabolomic studies. *Environ. Sci. Technol.*, **46**, 10758-10764 (2012)
- 10) Loomis, D., Grosse, Y., Lauby-Secretan, B., El Ghissassi, F., Bouvard, V., Benbrahim-Tallaa, L., Guha, N., Baan, R., Mattock, H. and Straif, K.: The carcinogenicity of outdoor air pollution. *Lancet Oncol.*, **14**, 1262-1263 (2013)
- 11) Krewski, D.: Evaluating the effects of ambient air pollution on life expectancy. *N. Engl. J. Med.*, **360**, 413-415 (2009)
- 12) Brook, R.D.: Cardiovascular effects of air pollution. *Clin. Sci.*, **115**, 175-187 (2008)
- 13) Möller, W., Felten, K., Sommerer, K., Scheuch, G., Meyer, G., Meyer, P., Häussinger, K. and Kreyling, W.G.: Deposition, retention, and translocation of ultrafine particles from the central airways and lung periphery. *Am. J. Respir. Crit. Care Med.*, **177**, 426-432 (2008)
- 14) Hinds, W.C.: Aerosol technology.. 2nd ed., Wiley-Interscience, New York. (1999)
- 15) Furuuchi, M., Eryu, K., Nagura, M., Hata, M., Kato, T., Tajima, N., Sekiguchi, K., Ehara, K., Seto, T. and Otani, Y.: Development and performance evaluation of air sampler with inertial filter for nanoparticle sampling. *Aerosol. Air Qual. Res.*, **10**, 185-192 (2010)
- 16) Kakimoto, K., Nagayoshi, H., Takagi, S., Akutsu, K., Konishi, Y., Kajimura, K., Hayakawa, K. and Toriba, A.: Inhalation and dietary exposure to dechlorane plus and polybrominated diphenyl ethers in Osaka, Japan. *Ecotoxicol. Environ. Saf.*, **99**, 69-73 (2014)
- 17) Kakimoto, K., Nagayoshi, H., Akutsu, K., Konishi, Y., Kajimura, K., Hayakawa, K. and Toriba, A.: Dechlorane plus and decabromodiphenyl ether in atmospheric particles of northeast Asian cities. *Environ. Sci. Pollut. R.*, **22**, 14600-14605 (2015)
- 18) Chrysikou, L.P. and Samara, C.A.: Seasonal variation of the size distribution of urban particulate matter and associated organic pollutants in the ambient air. *Atmos. Environ.*, **43**, 4557-4569 (2009)
- 19) Wu, J.P., Zhang, Y., Luo, X.J., Wang, J., Chen, S.J., Guan, Y.T. and Mai, B.X.: Isomer-specific bioaccumulation and trophic transfer of Dechlorane Plus in the freshwater food web from a highly contaminated site, South China. *Environ. Sci. Technol.*, **44**, 606-611 (2010)
- 20) Hata, M., Zhang, T., Bao, L., Otani, Y., Bai, Y. and Furuuchi, M.: Characteristics of the Nanoparticles in a Road Tunnel. *Aerosol. Air Qual. Res.*, **13**, 194-200 (2013)
- 21) Möller, A., Xie, Z., Sturm, R. and Ebinghaus, R.: Large-scale distribution of dechlorane plus in air and seawater from the Arctic to Antarctica. *Environ. Sci. Technol.*, **44**, 8977-8982 (2010)
- 22) Salamova, A. and Hites, R.A.: Dechlorane Plus in the atmosphere and precipitation near the Great Lakes. *Environ. Sci. Technol.*, **45**, 9924-9930 (2011)
- 23) Draxler, R.R. and Rolph, G.D. HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (<http://www.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>). NOAA Air Resources Laboratory, College Park, MD.