

# 長崎県大村市における 2012 年春季大気浮遊粉じん中の 多環芳香族炭化水素類について

中村 心一、田村 圭、山本 重一<sup>1</sup>、山内 康生

2012 年春季に九州の北西部に位置する長崎県の大村市において大気中の微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 及び総浮遊粒子状物質 (TSP) をそれぞれ捕集し、16 種類の多環芳香族炭化水素 (PAH) を HPLC-蛍光法で分析した。4 環構造以上の 11 種類の PAHs (fluoranthene, pyrene, benzo[a]anthracene, chrysene, benzo[e]pyrene, benzo[b]fluoranthene, benzo[k]fluorantene, benzo[a]pyrene, dibenzo[a,h]anthracene, benzo[g,h,i]perylene, indeno[1,2,3-c,d]pyrene) について、PM<sub>2.5</sub> 及び TSP 中の総濃度平均はそれぞれ 1.22 及び 1.58 ng/m<sup>3</sup> であった。また、TSP 中の PAHs 濃度に対する PM<sub>2.5</sub> 中の PAHs 濃度は約 70%とその多くが微小粒子である PM<sub>2.5</sub> 中に存在することがわかった。気塊のエイジングの指標として用いられる benzo[a]pyrene/benzo[e]pyrene 比が 0.48 と低い値であったことから、調査期間中の気塊はエイジングを受けていることが考えられ、長距離輸送されてきたことが示唆された。また、PAHs の発生源を推定する指標として用いられる fluoranthene/pyrene 比及び indeno[1,2,3-c,d]pyrene/(indeno[1,2,3-c,d]pyrene+benzo[g,h,i]perylene) 比から、調査期間中の PAHs は主に植物あるいは石炭燃焼を起源とするものであることが示唆された。

キーワード: 多環芳香族炭化水素、微小粒子状物質、高速液体クロマトグラフィー、長崎

## はじめに

大気中には様々な化学物質が混在しており、中には発がん性、内分泌かく乱作用など有害な作用に寄与するものが多数存在する。そのひとつに多環芳香族炭化水素 (polycyclic aromatic hydrocarbon: PAH) がある。PAH は主に石油、石炭などの化石燃料の不完全燃焼や有機物の熱分解の過程で生成する物質で、Benzo[a]pyrene (BaP) に代表される一部の物質には強い発がん性や変異原性を有するものが存在する<sup>1)</sup>。世界保健機構の下部組織である国際がん研究機関 (International Agency for Research on Cancer: IARC) は様々な化学物質について発がんリスクを評価し、その危険度から表 1 に示すグループ分類をまとめている。その中で PAHs 及びその関連物質の多くはグループ 2B 以上に分類され、本調査で対象とした BaP はグループ 1、Dibenzo[a,h]anthracene (DBA) はグループ 2A、Benzo[k]fluorantene (BkF)、Chrysene (Chr) 及び Indeno[1,2,3-c,d]pyrene (IDP) はグループ 2B に分類されている。日本においては、BaP が大気汚染防止法における「有害大気汚染物質」のうち特に優先的に対策に取り組むべき物質「優先取組物質」のひとつに指定されている。このようなことから、大

気中 PAHs については、多くの地域でその実態調査が行われるとともに、PAHs をマーカーとした発生源の推定やリスク評価などの研究が報告されている<sup>2,3)</sup>。

大気中粒子状物質に関する環境基準は、これまでその粒径が 10 µm 以下のもの (SPM) について定められていた。近年、SPM の中でも粒径が 2.5 µm 以下のより微細な粒子 (PM<sub>2.5</sub>) が肺胞までの到達率が高く、ヒトへの健康影響が懸念されたため、米国では 1997 年に、日本では 2009 年に新たに環境基準が導入され、関心が高まっている。しかし、この基準は主に重量濃度に関するものであり、その中に含まれる成分の実態に関する情報が少ない。PAHs は、大気中では縮合環の数が多いほど粒子相、特に PM<sub>2.5</sub> のような微小粒子画分に多く分布しているとの報告<sup>4)</sup>もあることから、大気中有害物質が引き起こすヒトへの健康影響などを評価していく上でも PM<sub>2.5</sub> の中に存在する成

表 1 IARC Classification

Group	
1	Carcinogenic to humans
2A	Probably carcinogenic to humans
2B	Possibly carcinogenic to humans
3	Not classifiable as to its carcinogenicity to humans
4	Probably not carcinogenic to humans

1 福岡県保健環境研究所

分について実態を把握することは重要である。

一方、長崎県は九州の北西部に位置することから、東アジア域からの大気の流れとともに長距離輸送される大気汚染物質や黄砂の影響を受けやすい環境にあり、それらによる健康への影響が懸念されている。また最近では、PM<sub>2.5</sub> が高濃度となる事例が確認されるなど大気環境に対する住民の関心も高くなっている。

そこで本調査では、大気汚染物質である PAHs を対象として、県内における PAHs の実態の基礎資料とするため、その分析法を検討するとともに、PM<sub>2.5</sub> 及び総大気浮遊粒子状物質 (TSP) の 2 形態別に大気浮遊粉じんを捕集し、評価を行った。

### 調査方法

#### 1. 調査地点及び調査期間

調査は、長崎県大村市の中央部に立地する長崎県環境保健研究センターの屋上 (海拔 160 m) で行った(図 1)。

調査期間は、2012 年 3 月 7 日から 4 月 24 日とした。ただし、3 月 11 日、13 日、21 日、22 日、4 月 5 日及び 19 日は欠測とした。調査期間中の気象イベントとして、煙霧が 3 月 7-11 日、15-16 日、24 日、28-29 日、4 月 3 日、5 日、11 日、23-24 日に観測され、黄砂が 3 月 24 日、4 月 2-3 日、23-24 日に観測された。

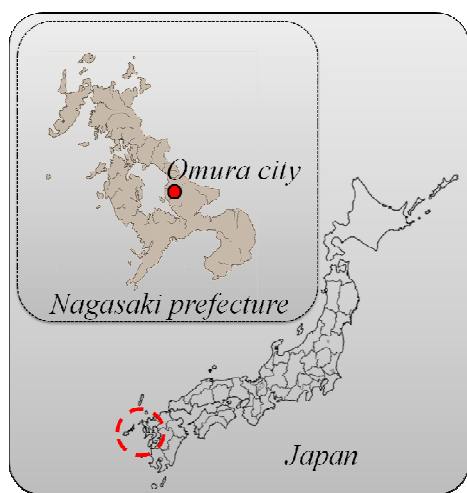


図 1 Sampling site

#### 2. サンプリング

大気浮遊粉じんは、TSP 及び PM<sub>2.5</sub> を石英繊維フィルタ (2500QAT-UP、8x10 inch、PALLFLEX) に捕集した。TSP はハイボリウムエアサンプラ (SHIBATA HV-1000F) を使い、捕集流量は 1000 L/min とした。PM<sub>2.5</sub> はハイボリウムエアサンプラ (SHIBATA HV-

1000R) に PM<sub>2.5</sub> 捕集用の HVI-2.5 を取り付け、捕集流量は 740 L/min とした。なお、フィルタは 24 時間ごとに交換し、捕集後は分析に供するまで冷凍 (-20℃) 保存した。

#### 3. 分析対象 PAHs

分析対象 PAHs は、Naphthalene (Nap)、Acenaphthene (Ace)、Anthracene (Ant)、Fluorene (Fle)、Phenanthrene (Phe)、Fluoranthene (Flu)、Pyrene (Pyr)、Benzo[a]anthracene (BaA)、Chr、Benzo[b]fluoranthene (BbF)、BkF、BaP、Benzo[e]pyrene (BeP)、DBA、Benzo[g,h,i]perylene (BgPe)、IDP の 16 種類とした。PAHs の構造式を図 2 に示す。

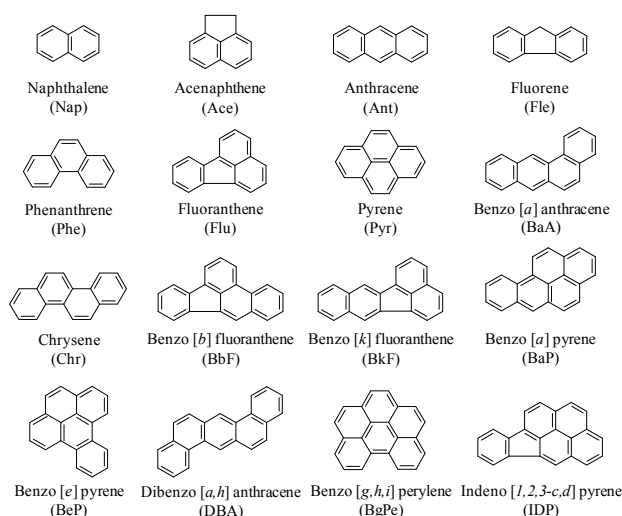


図 2 Chemical structures of analytes

#### 4. 試料の前処理

大気浮遊粉じんを捕集したフィルタは、捕集面の中央部 (12 x 12 cm) を切り取り、さらに 4 等分 (6 x 6 cm) したものを分析試料とした。試料の前処理は、捕集後のフィルタを細片し、抽出溶媒としてベンゼン:エタノール (3:1、v/v%) 混液を 10 mL 加えて、超音波抽出を 20 分間 (10 分間、2 回) 行った。得られた抽出液 8 mL を室温で 10 分間遠心分離 (600 g) した後、7 mL を分取し、洗浄を目的として 5 %水酸化ナトリウムを 3 mL 加え、1 分間攪拌し、室温で 10 分間遠心分離 (600 g) した。有機層 5 mL を窒素気流下で乾固し、アセトニトリル 0.5 mL に再溶解後、HPLC 分析に供した。

#### 5. HPLC システム及び条件

分析は、測定波長が可変できる蛍光検出器を用いた HPLC-蛍光法で行った。分析システムは島津製作

所製のポンプ 2 台 (LC-10AD)、カラムオーブン (CTO-10A)、蛍光検出器 (RF-20A) 及びシステムコントローラー (SCL-10A) 及びエル・エイソフト社製のクロマトデータシステム (CDS-Lite, Ver. 5.0) で構成した。分離にはジーエルサイエンス社製の Inertsil ODS-P (250 x 4.6 mm i.d., 5 µm) を用いた。移動相はメタノール及び水のグラジエント溶出を用い、流速は 1.0 mL/min とした。蛍光検出器は溶出してくる PAH ごとに測定波長を切り替えた。グラジエント条件及び測定波長条件を表 2 及び表 3 に示す。

## 結果及び考察

### 1. PAHs の分析

大気浮遊粉じんを捕集したフィルタ中の PAHs を HPLC-蛍光法で測定した。今回 2 種類のポリメリック結合 C18 カラムについて PAHs 分離の検討を行った。その結果、BeP と BbF を良好に分離可能であったことから分離カラムとして Inertsil ODS-P を選択した。その他の HPLC 条件及び前処理条件は既報を参考に検討した<sup>5,6)</sup>。

本法を用いて PAHs 標準液 (10 ng/mL) 及び 2012 年 3 月 7 日に捕集した PM<sub>2.5</sub> 試料を測定した際のクロマトグラムを図 3 に示す。16 成分の PAHs を 40 分で分離することができた。検量線は 1-200 ng/mL の濃度範囲でいずれの PAHs も相関係数 0.999 と良好な直線性が得られ、シグナル/ノイズ比が 3 における検出下限は  $0.2 \times 10^{-2}$ - $2.6 \times 10^{-2}$  ng/mL (0.04-0.51 pg/on column) であった。

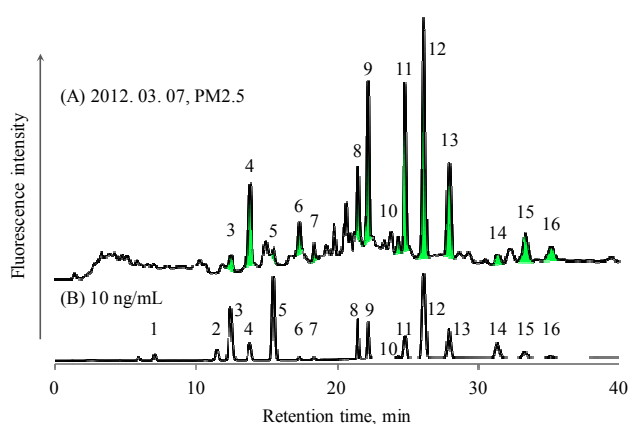


図 3 Chromatograms of (A) airborne particle extracts collected on Mar. 7, 2012 (PM<sub>2.5</sub>) and (B) PAHs standard, 10 ng/mL.

Peak: 1; Nap, 2; Ace, 3; Fle, 4; Phe, 5; Ant, 6; Flu, 7; Pyr, 8; BaA, 9; Chr, 10; BeP, 11; BbF, 12; BkF, 13; BaP, 14; DBA, 15; BgPe, 16; IDP

表 2 Gradient condition for measurement of PAHs

Time min	Methanol Conc. %	Water Conc. %
0-7	80	20
7-17 (Linear)	80→100	20→0
17-40	100	0
40-45 (Linear)	100→80	0→20

表 3 Detection wavelength program for measurement of PAHs

Time min	Ex nm	Em nm	Analyte
0.0-13.1	270	330	Nap, Ace, Fle
13.1-14.5	250	370	Phe
14.5-19.0	250	410	Ant, Flu, Pyr
19.0-22.8	270	390	BaA, Chr
22.8-29.0	290	430	BeP, BbF, BkF, BaP
29.0-34.0	295	410	DBA, BgPe
34.0-40.0	300	500	IDP

### 2. PAHs 濃度及び粒径別存在割合

TSP 及び PM<sub>2.5</sub> における PAHs 濃度の平均値及び総濃度を表 4 に、経日変化及び PAHs 濃度の PM<sub>2.5</sub>/TSP 比を図 4 に示す。なお、大気中の PAH は蒸気圧に依存してガス相と粒子相に分布することが知られており、常温では Nap や Ant などの 2 及び 3 環構造の PAH は主にガス相に、BaP など 5 環以上の PAH は主に粒子相に存在することから<sup>3)</sup>、ここでは 4 環以上の 11 種類の PAHs について示した。各 PAHs 濃度で比較した場合、Flu が最も高い値を示し、続いて BbF、BeP、IDP、Pyr の順であった。また、TSP と PM<sub>2.5</sub> における PAHs の組成はほぼ同じであった。11 PAHs の総濃度 ( $\Sigma^{11}$  PAHs) は観測を開始した 3 月 7 日を最大にその後は徐々に減少した。また、煙霧あるいは黄砂を観測した日には、その前後の観測日と比較して PAHs 濃度の増加が認められた。 $\Sigma^{11}$  PAHs の平均値は、TSP で 1.58 (0.04-6.75) ng/m<sup>3</sup>、PM<sub>2.5</sub> で 1.22 (0.03x10<sup>-1</sup>-5.90) ng/m<sup>3</sup> であった。この値は、表 5 に示す 2009 年春季に沖縄県辺戸岬、長崎県福江島及び福岡県福岡市の 3 地点において TSP 中の PAHs を調査した結果<sup>7)</sup>と比較してローカルな汚染がほとんどないと考

表 4 Atmospheric concentration of PAHs in Omura

Analyte	PAHs concentration, ng/m <sup>3</sup>			
	TSP		PM <sub>2.5</sub>	
	Mean (n=49)	Range	Mean (n=49)	Range
Flu	0.26	0.05 x10 <sup>-1</sup> -1.04	0.20	ND-0.96
Pyr	0.19	0.01 x10 <sup>-1</sup> -0.81	0.14	ND-0.75
BaA	0.05	ND-0.29	0.03	ND-0.25
Chr	0.13	ND-0.51	0.09	ND-0.43
BeP	0.20	0.01-0.92	0.16	ND-0.80
BbF	0.22	0.04x10 <sup>-1</sup> -0.98	0.17	ND-0.85
BkF	0.08	0.02 x10 <sup>-1</sup> -0.37	0.06	ND-0.32
BaP	0.10	0.01 x10 <sup>-1</sup> -0.46	0.07	ND-0.39
DBA	0.02	ND-0.07	0.01	ND-0.07
BgPe	0.14	0.01-0.63	0.11	ND-0.55
IDP	0.19	0.01-0.83	0.15	ND-0.73
Total	1.58	0.04-6.75	1.22	0.03x10 <sup>-1</sup> -5.90

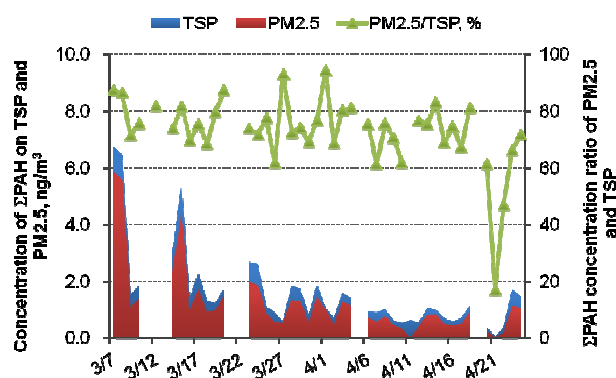


図 4 Time course of Σ<sup>11</sup> PAHs concentration and Σ<sup>11</sup> PAHs concentration ratio of PM<sub>2.5</sub> and TSP

えられる辺戸岬 (0.44) よりも高く、ローカルな汚染の寄与も考えられる福岡 (1.78) よりも低い値を示し、福江島 (1.46) と同程度であった。また、同県の長崎市内で PAHs の発生源となる自動車排ガスの影響が強い沿道環境で調査を行った Wada らの報告<sup>5)</sup>と比較するとその 1/6 であり、また近年、大気汚染が問題となっている北京市における 2005 年の調査報告<sup>8)</sup>と比較するとその 1/60 の値であった。

本調査では、大気浮遊粉じんを TSP 及び PM<sub>2.5</sub> の 2 種類の形態で捕集し、PAHs が PM<sub>2.5</sub> 中に含ま

表 5 Comparison of Total concentration of 11 PAHs in Omura and 5 other cities

Site	Period	Σ <sup>11</sup> PAHs, ng/m <sup>3</sup>	Reference
Omura, Nagasaki	Mar.-Apr., 2012	1.58	This work
Hedo, Okinawa	Mar.-Apr., 2009	0.44	Ref. 10
Fukue, Nagasaki	Mar.-Apr., 2009	1.46	Ref. 10
Fukuoka	Apr., 2009	1.78	Ref. 10
Nagasaki	Jul., 1997	9.77 <sup>*1</sup>	Ref. 8
(street side)	-Jun., 1998		
Beijing, China	Apr., 2005	26.93 <sup>*1</sup>	Ref. 11

\*1: except for BeP

れる割合を調査した。その結果、図 4 に示すように PAHs は微小粒子である PM<sub>2.5</sub> 側にその大部分が存在していることがわかり、その平均は 73%であった。これは、2006 年に京都市において調査を行った山田らが報告している、粒径 4 μm 以下に 86-100%存在したという結果<sup>9)</sup>及び 2010 年に中国の瀋陽、上海及び福州の 3 都市で調査を行った唐らが報告した粒径 2.1 μm 以下に 80%以上が存在したという結果<sup>4)</sup>と同様な結果が得られた。

### 3. PAHs 濃度比

大気中 PAHs の発生源推定や光化学的分解による気塊のエイジング推定を行うために、PAHs 間の濃度比が指標として用いられている。Lima らは Flu/Pyr 比を指標として、その値が <0.6 で石油由来、0.6-1.0 で石油燃焼由来、>1.0 で樹木燃焼由来、石炭燃焼由来で 1.4 と報告している<sup>10)</sup>。Yunker らは IDP/(IDP+BgPe) 比を指標として、その値が <0.2 で石油由来、0.2-0.5 で石油燃焼由来、>0.5 で植物及び石炭燃焼由来と報告している<sup>11)</sup>。本調査における Flu/Pyr 比及び IDP/(IDP+BgPe) 比はそれぞれ 1.4 及び 0.6 であったことから、本調査期間の大気中 PAHs の発生源は植物あるいは石炭燃焼由来であったことが推定される。一方、BaP/BeP 比は気塊のエイジングを推定する指標として用いられている。BaP 及び BeP は発生源からほぼ 1:1 の割合で排出される。また、BeP は PAHs の中でも大気中における光化学反応性が低く安定性が高い性質を持つが、BaP は大気中での寿命が BeP の約 1/10 とされている。この光化学反応による分解性の違いから、発生源に近い場所では BaP/BeP 比が 1 に近い値を示し、発生源から遠い場所で時間が経過した場合には 0 に近づくことになる。このことから、気塊のエイジングを評価し、さらには大気の長距離輸送の可能性を推測することができる。小川らは、2009 年の春季に辺戸岬、福江島及び福岡で同期観測した結果と他の調査報告から辺戸岬及び福江島で観測した PAHs はエイジングされていた可能性を示唆しており<sup>7)</sup>、佐藤らは同様に辺戸岬で観測した PAHs は長距離輸送されたものであると報告している<sup>12)</sup>。本調査における BaP/BeP 比の平均は 0.48 であった。この値は、小川らが報告した辺戸岬で 0.63、福江島で 0.73、Okuda ら<sup>13)</sup> 及び Wang ら<sup>14)</sup> による中国北京における報告値 0.85 及び 1.17 よりも低い値であったことから今回観測した大気はエイジングされていた可能性があり、長距離輸送されたものと考えられた。

### 4. TEF 評価

PAHs のように異性体によって毒性が異なり、同時に複数存在する物質の毒性を評価する手法として、毒性等価係数 (Toxicity Equivalency Factors; TEF) を用いた方法がある。ここでは、Nisbet ら<sup>15)</sup> が報告した BaP を基準とした TEF を用いて評価を行った。またここでは、BeP を除く 4 環以上の 10 PAHs を対象とした。結果を表 6 に示す。TEF から求めた 10 PAHs

の総毒性等量は TSP で 0.25、PM<sub>2.5</sub> で 0.16 ng/m<sup>3</sup> であった。各 PAH で見た場合、BaP 及び大気中濃度が最も低かった DBA の寄与が最も高く、それぞれ総毒性等量の 40%を占めていた。長崎市の沿道環境で調査した Wada らの報告では、10 PAHs の総毒性等量は 2.32 ng/m<sup>3</sup> と本調査の約 10 倍であった<sup>5)</sup>。各 PAH でみると、本調査と同様に BaP 及び DBA による寄与が高く、この 2 物質で 84%を占めていた。

### まとめ

長崎県大村市において 2012 年春季に大気浮遊粉じん中 PAHs の調査を行った。その結果、PAHs の約 70%が PM<sub>2.5</sub> に存在していた。また、PAH 成分の濃度比から、本調査期間における大気はエイジング受けていることが考えられ、観測された PAHs は長距離輸送されてきたことが示唆され、その発生源は主に植物あるいは石炭の燃焼由来であることが考えられた。

表 6 Total equivalency factors (TEF) adjusted concentrations of PAHs

Analyte	TEF	Concentration,	TEF adjusted
		ng/m <sup>3</sup>	concentration, ng/m <sup>3</sup>
		TSP (PM <sub>2.5</sub> )	TSP (PM <sub>2.5</sub> )
Flu	0.001	0.26 (0.20)	0.26x10 <sup>-3</sup> (0.20x10 <sup>-3</sup> )
Pyr	0.001	0.19 (0.14)	0.19x10 <sup>-3</sup> (0.14x10 <sup>-3</sup> )
BaA	0.1	0.05 (0.03)	0.05x10 <sup>-3</sup> (0.03x10 <sup>-3</sup> )
Chr	0.01	0.13 (0.09)	0.13x10 <sup>-2</sup> (0.09x10 <sup>-2</sup> )
BbF	0.1	0.22 (0.17)	0.22x10 <sup>-1</sup> (0.17x10 <sup>-1</sup> )
BkF	0.1	0.08 (0.06)	0.08x10 <sup>-1</sup> (0.06x10 <sup>-1</sup> )
BaP	1	0.10 (0.07)	0.10 (0.07)
DBA	5	0.02 (0.01)	0.10 (0.05)
BgPe	0.01	0.14 (0.11)	0.14x10 <sup>-2</sup> (0.11x10 <sup>-2</sup> )
IDP	0.1	0.19 (0.15)	0.19x10 <sup>-1</sup> (0.15x10 <sup>-1</sup> )
Total	-	1.38 (1.03)	0.25 (0.16)

### 参考文献

- 1) K. Hayakawa : Atmospheric Pollution and Its Countermeasure in East Asia from the Viewpoint of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, Journal of Health Science, **55**(6), (2009)
- 2) 熊田 英峰, 他: 韓国済州島ハルラ山における燃焼起源分子マーカーの季節変動、地球化学、**41**, (2007)

- 3) 早川 和一:多環芳香族炭化水素類の挙動と毒性に関する研究－東アジアを中心に－、大気環境学会誌、**47**(3)、(2012)
- 4) 唐 寧、他:中国の瀋陽、上海及び福州における大気中多環芳香族炭化水素類の地域間差、BUNSEKI KAGAKU、**62**(4)、(2013)
- 5) M. Wada、他:Assessment of air pollution in Nagasaki city: determination of polycyclic aromatic hydrocarbons and their nitrated derivatives, and some metals、Environmental Pollution、**115**、(2001)
- 6) N. Tang、他:Polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in urban air particulates and their relationship to emission sources in the Pan-Japan Sea countries、Atmospheric Environment、**39**、(2005)
- 7) 小川 佳美、他:長距離輸送された多環芳香族炭化水素と n-アルカン－2009 年春季および秋季の沖縄辺戸岬、福江島、福岡での測定から－、大気環境学会誌、**47**(1)、(2012)
- 8) L.B. Liu、他: Determination of Particle-associated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Urban Air of Beijing by GC/MS、ANALYTICAL SCIENCES、**23**、(2007)
- 9) 山田 悦、他:京都における大気粒子状物質中多環芳香族炭化水素の動態解析、BUNSEKI KAGAKU、**62**(4)、(2013)
- 10) A.L.C. Lima、他:Combustion-derived polycyclic aromatic hydrocarbons in the environment - a review、Environmental Forensics、**6**、(2005)
- 11) M.B. Yunker、他:PAHs in the Fraser River basin: a critical appraisal of PAHs ratios as indicators of PAH source and composition、Organic Geochemistry、**33**、(2002)
- 12) 佐藤 圭、他:沖縄辺戸岬における有機エアロゾルの組成と季節変化:2005~2006 年に観測された多環芳香族炭化水素、地球科学、**41**、(2007)
- 13) T. Okuda、他:Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the aerosol in Beijing, China, measured by aminopropylsilane chemically-bonded stationary-phase column chromatography and HPLC/fluorescence detection、Chemosphere、**65**、(2006)
- 14) G. Wang、他:Molecular, Seasonal, and Spatial Distributions of Organic Aerosols from Fourteen Chinese Cities、Environmental Science and Technology、**40**、(2006)
- 15) Nisbet、他:Toxic equivalency factors (TEFs) for polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs)、Regulatory Toxicology and Pharmacology、**16**、(1992)

## Characteristics of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Airborne Particulates collected in Omura city, Nagasaki, in the Spring of 2012

Shinichi NAKAMURA, Kei TAMURA and Yasuo YAMAUCHI

*Key words:* polycyclic aromatic hydrocarbon, PM<sub>2.5</sub>, HPLC, Nagasaki

The polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in airborne particulates smaller than 2.5  $\mu\text{m}$  (PM<sub>2.5</sub>) and total suspended particles (TSP) were collected in Omura city, Nagasaki, in the spring of 2012 were determined by HPLC with fluorescence detection. The mean concentration of 11 PAHs (fluoranthene, pyrene, benzo[*a*]anthracene, chrysene, benzo[*e*]pyrene, benzo[*b*]fluoranthene, benzo[*k*]fluoranthene, benzo[*a*]pyrene, dibenzo[*a,h*]anthracene, benzo[*g,h,i*]perylene, indeno[*1,2,3-c,d*]pyrene) in PM<sub>2.5</sub> and TSP were 1.22 and 1.58 ng/m<sup>3</sup>, respectively. About 70% of the total PAHs were found in PM<sub>2.5</sub>. The benzo[*a*]pyrene/benzo[*e*]pyrene ratio was 0.48 in this study and was lower than that measured in East Asia cities, showing that PAHs observed at Omura were aged by the photochemical reactions proceeding during long-range transport. The fluoranthene/pyrene ratio and indeno[*1,2,3-c,d*]pyrene/(indeno[*1,2,3-c,d*]pyrene +benzo[*g,h,i*]perylene) ratio, which are a suitable indicator to estimate the origins types, were close to those of particulates released from grass, wood or coal combustion.