

論文

環境大気における多環芳香族炭化水素の濃度推移と挙動

吉岡秀俊 泉川穎雄 清宮隆治
菅邦子

要旨

発ガン物質であるベンゾ(a)ピレン(BaP)について、1973年5月～1990年3月までの測定値を用いて、経年的及び季節的濃度推移をみた。経年推移については、測定開始当初を除いて、非常に小さな減少傾向しか見られず、ここ10年間では若干の減少傾向を示しながら $1.4\sim2.4\text{ng/m}^3$ の幅で変動していた。春夏期に低く、秋冬期に高いBaP濃度の季節変動は、季節変動が大きいといわれる粒子状物質(TSP)濃度のそれより大きい。これは、大気安定度等の気象条件に加えて、春夏期にはBaPの損失が生じ、このためTSPに比べて大きな季節変動を示すものと考えられた。また、日変動もTSPのそれより大きく、複雑な挙動を示している。

BaPと共に、ベンゾ(k)フルオランテン及びベンゾ(ghi)ペリレン(それぞれBkF, BghiP)の1986年5月～1990年3月までの測定値を用いて、検討した結果、3種の多環芳香族炭化水素(PAHs)濃度は対数正規分布をしており、 $\text{BkF} < \text{BaP} \leq \text{BghiP}$ の順に高くなり、季節変動を繰り返していた。また、 BkF/BaP 及び BghiP/BaP 比にも季節変動がみられ、特に後者の比において顕著であった。さらに、この期間のPAHs間の関係を1973年のそれと比較した結果、北九州市八幡西区ではPAHsの濃度低下と共に組成変化が顕著に生じているとの報告があるが、東京都においては、そのように顕著ではないが、八幡西区とは傾向の異なる組成変化があった可能性が示唆された。

1 はじめに

多環芳香族炭化水素(以下、PAHsという)は化石燃料に代表される有機物の不完全燃焼過程で生成される。したがって、都市域におけるPAHsの発生源は移動及び固定発生源である。PAHsは発ガン及び発ガン促進物質を多く含み、中でもベンゾ(a)ピレン(以下、BaPという)は発ガン性が強く、またPAHsに対する指標性を有するため、環境庁をはじめ各調査研究機関の調査対象物質になることが多い。²⁾

東京都においては、国やほとんどの自治体に先駆けて、1973年からハイボリュームエアサンプラー(以下、Hi-Volという)で採取した粒子状物質(以下、TSPという)中のBaPの測定を続けている。この間、測定点の増設・移設、分析方法の迅速化、分析者の交代等の変遷を経ながら現在に至っている。

また、近年では、発生源の変化に対応すると考えられるPAHs組成変化を監視する意味から、BaPと同じ条件

で分析可能なベンゾ(k)フルオランテン及びベンゾ(ghi)ペリレン(以下それぞれBkF, BghiPという)もBaPと共に分析している。発ガン性に関して言えば、BkFは発ガン性はないといわれ、BghiPはそれ自身発ガン性はないが発ガン促進物質であるといわれている。PAHs組成については、北九州市八幡西区において、本報と同じ3種のPAHsを測定した結果、BaPの濃度低下と時を同じくしてPAHsの組成比に変化が起こり、PAHsに対する発生源の寄与率に変化が生じた、との報告が嵐谷らによってなされている。³⁾

本報では、①1973～1989年度までのBaP濃度の経年的及び季節的推移、②1986～1989年度のPAHs測定結果の概要、③1986～1989年度のPAHs組成と1973年度のそれとの比較による発生源寄与の顕著な変化の有無、④その他PAHsの挙動についての若干の知見、以上4点について報告する。

2 測定方法

1986年5月～1990年3月までの試料の分析では、分析対象PAHsの分離に優れていると思われる高速液体クロマトグラフィー用カラムを用いた他は、アセトニトリル超音波抽出～高速液体クロマトグラフィーによる従来の方法に準じて行った。

(1) 試料採取

12地点14測定点(図1)において、5月から翌年3月までを一年度とし、各月、9地点では24時間採取で月初めと月半ばの2回、東京タワーでは高度別に25, 125, 225mの3測定点にて24時間採取で月半ば1回そして小河内・小笠原では72時間採取で月半ば1回、石英繊維ろ紙を装着したHi-Vo ℓ で採取した。なお、1988年度からは、すべての測定点で月半ば1回の採取になっている。

図1の地点は、下記のとおりである。なお、詳細は「データ集」³⁾を参照されたい。

1. 都庁旧第二本庁舎
2. 都立衛生研究所
3. 東京都環境科学研究所
4. 大田区糀谷保健所
5. 世田谷区役所
6. 板橋保健所
7. 荒川区役所
8. 江戸川区環境測定分析室
9. 東京都立川合同庁舎
10. 小河内貯水池管理事務所
11. 小笠原支庁
12. 東京タワー

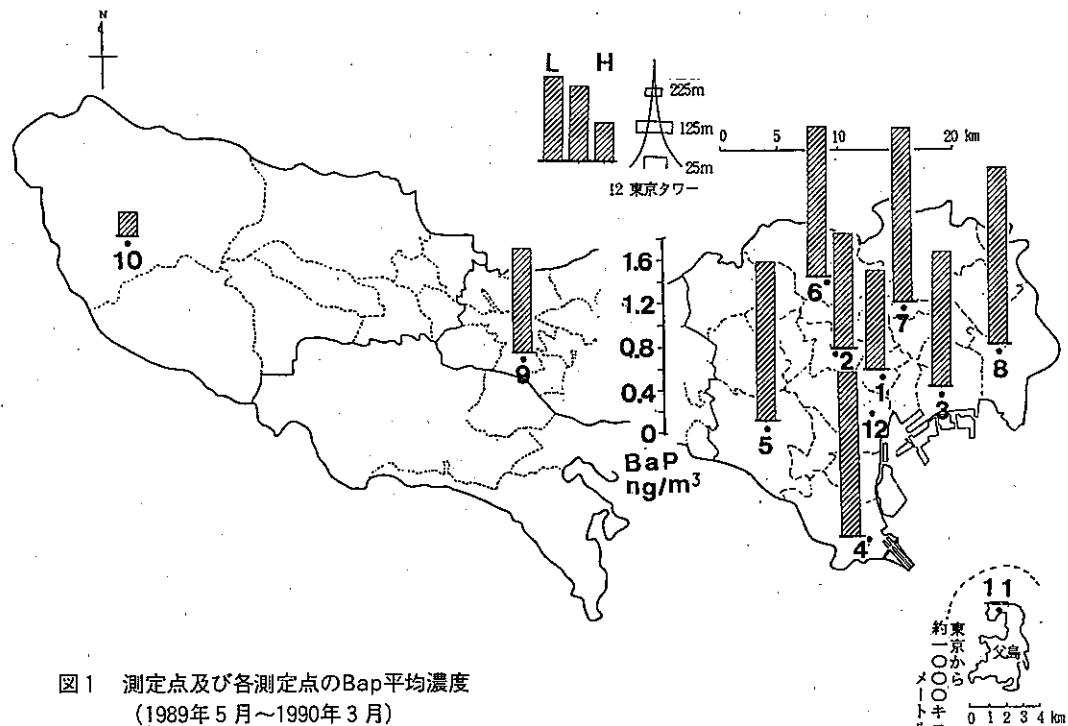


図1 測定点及び各測定点のBap平均濃度
(1989年5月～1990年3月)

25m, 125m, 225m

(2) 分析対象PAHs

BkF, BaP及びBgHP

(3) PAHs標準

National Bureau of Standards (Standard Reference Material 1647a Priority Pollutant Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (in Acetonitrile)) を用いた。

(4) 抽出

1×3.5インチに切り出したろ紙を細切りし、アセトニトリル5 mLで20分間超音波抽出した後、ポアサイズ0.45 μmのフィルター（クロマトディスク13P クラボウ製）を通したろ液を高速液体クロマトグラフに供した。

(5) 高速液体クロマトグラフィー分析条件

マルチソルベント送液システムWaters 600に、オートインジェクターWaters 712wisp, 蛍光検出器Waters 470 (以上ウォーターズ社製) 及びインテグレーター島津C-R 3 A (島津製作所製) を接続して用いた。その他の条件は下記のとおりである。

カラム: Supelco LC-PAH (4.6mm×25cm, スペルコ社製), カラム温度35°C

移動相：アセトニトリル；水 (82/18 v/v%), 流量 1 mL/min
測定波長：励起 295nm, 蛍光 410nm

3 結果及び考察

(1) BaP濃度の推移

ア 経年推移 (23区内 8 測定点)

東京都における, Hi-Vo ℓ 採取によるTSP及びTSP中の金属成分の継続的測定は1969年から行っており, BaPの測定は1973年に開始された。図2に, BaP濃度の「年平均値」の経年推移を示した。TSPがどの様な状態の時からBaPの測定が開始されたのかを見るために, 1969年に遡ってTSP及び鉛濃度もプロットしてある。なお, 後述するようにBaPはTSPやTSP中の重金属類に比べても日変動や季節変動の大きい物質ではあるが, ここで用いた「年平均値」とは, 従来から行われてきたとおり, 東京タワーを除く23区内の各測定点の年平均値(算術)をさらに算術平均した値である。図2によれば, 1969年からTSP, 鉛共に濃度が急激に減少し, BaPの継続的測定が開始された1973年は, TSP及び鉛濃度の減少傾向が緩やかになる時点に相当する。この傾向は特に, 1969年に開始されたガソリンの低鉛化対策及び無鉛化対策(1974年9月通産省決定)の結果を反映して, 鉛濃度において顕著である。

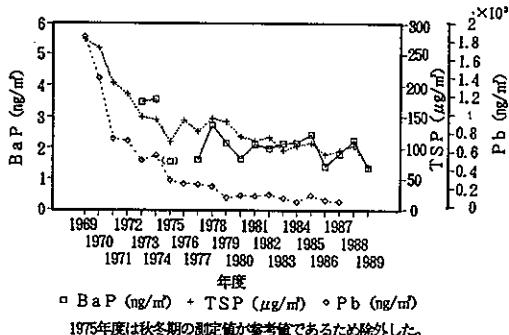


図2 BaP, TSP及びPb濃度の経年推移
(23区内 8 測定点の平均)

TSP及び鉛濃度はその後も僅かではあるが、減少傾向を示している。また、鉛以外の金属類も鉛ほどではないが、総じて減少傾向は読み取れる。これらに比べて、BaP濃度には、測定開始当初を除いて、非常に小さな減少傾

向しか見られず、1980～1989年度の10年間では若干の減少傾向を示しながら1.4(1989年度)～2.4 ng/m³(1985年度)の幅で変動している。また、測定点ごとの経年推移をみても顕著な減少または増加傾向を読み取れない。

嵐谷らは、北九州市八幡西区の1測定点で、1980年から本報と同じBaP等3種のPAHsを測定した結果、1985年より顕著に減少傾向を示し、BaPは1 ng/m³以下となつた、と報告しているが、今まで述べたように、東京都においては、そうした傾向はない。

イ 季節変動と日変動

春夏期に低く、秋冬期に高いBaP濃度の季節変動についてはよく言われるところであるが、平均値にならしても季節変動は明瞭である。

23区内8測定点について、6月～8月を夏期、12月～2月を冬期として、BaPとTSP濃度の経年的季節変動をみた結果を図3に示した。夏期に対する冬期の値は、TSPでは1～2.6倍の範囲(平均1.5倍)にあるのに対し、BaPでは1.8～7.3倍(平均4.4倍)の範囲にあり、TSPも季節変動が大きいといわれるが、BaPの変動はさらに大

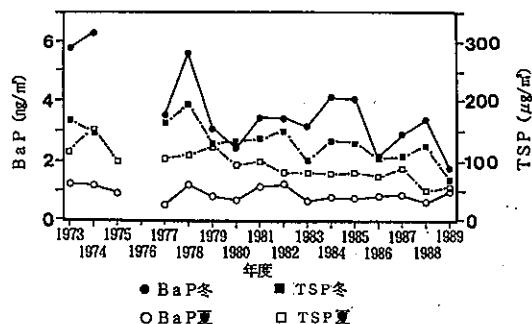


図3 23区内8測定点の平均値の季節別経年推移

きいことがわかる。

TSPは、大気安定度等の気象条件に左右されて、夏期には低く秋冬期に高濃度になることが多い、BaP濃度も同様の挙動を示すが、BaPについては、これら気象条件に加えて、春夏期には日射による分解やオキシダントとの反応あるいは採取中のろ紙上の反応等による損失が^{7,8,9)}指摘されており、このため、TSPに比べて大きな季節変動を示すものと考えられる。

PAHs濃度は、採取日が一日異なっても大きく変わら

ことが多く、地域差よりも日変動が大きく影響することは推定できるところである。日変動については、太田の詳細な調査結果¹⁰⁾があるので図4に紹介した。横浜市磯子区の1測定点で1986年8月から毎日24時間TSPを採取し、本報と同じ3種のPAHsとTSP濃度を測定した結果である。なお、図中の点は幾何平均値であり、各月の最大値並びに最小値も示してある。各月の日変動はTSPが大略10のオーダーの範囲にあるのに対して、PAHsは大略100のオーダーで変動している。また、各月のPAHsの変動幅は秋冬期に比べ、春夏期に大きくなっている。TSPの発生源が自然起源と人為起源の両者であるのに對し、PAHsは不完全燃焼による人為起源が大部分をしめること、また、先に述べたPAHsの損失を考えても、その挙動には不明な点が多い。

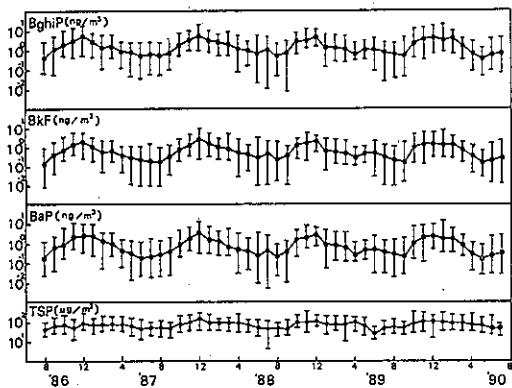
図4 PAHsの日変動と経月推移 (太田による)¹⁰⁾

表1 1986年5月～1990年3月の測定結果(概要)

		'86. 5 - '87. 3 TSP PAHs濃度 (ng/m³) μg/m³ BkF BaP BghiP				'87. 5 - '88. 3 TSP PAHs濃度 (ng/m³) μg/m³ BkF BaP BghiP				'88. 5 - '89. 3 TSP PAHs濃度 (ng/m³) μg/m³ BkF BaP BghiP				'89. 5 - '90. 3 TSP PAHs濃度 (ng/m³) μg/m³ BkF BaP BghiP			
23区内 8測定点	平均	89	0.74	1.39	1.97	94	0.84	1.78	2.42	103	1.03	2.24	2.84	70	0.67	1.35	1.69
	最高	241	4.16	6.86	10.23	375	4.77	11.67	12.02	254	3.33	8.49	8.98	137	2.66	6.70	6.18
	6*	8	8	6	8	2	7	7	4	5	5	5	5	5	5	5	
	最低	27	0.07	0.16	0.33	13	0.03	0.04	0.13	27	0.11	0.23	0.43	19	0.07	0.06	0.15
立川	平均	76	0.54	1.19	1.61	83	0.67	1.63	2.28	113	0.93	2.04	2.74	58	0.49	0.96	1.32
	最高	164	1.33	3.48	3.94	162	2.17	5.79	6.57	237	3.53	8.49	8.96	114	0.86	2.31	2.42
	最低	21	0.10	0.19	0.44	18	0.04	0.10	0.35	20	0.16	0.27	0.61	20	0.15	0.31	0.53
	小河内	平均	24	0.13	0.24	0.33	28	0.11	0.20	0.35	24	0.09	0.14	0.25	40	0.15	0.22
小笠原	最高	37	0.34	0.64	0.79	51	0.35	0.61	1.02	40	0.21	0.34	0.57	148	0.24	0.36	0.57
	最低	12	0.03	0.07	0.12	13	0.02	0.04	0.08	7	0.01	0.03	0.05	5	0.05	0.08	0.12
	平均	26	0.013	0.023	0.050	(22)	(0.01)	(0.02)	(0.04)	(30)	(0.02)	(0.03)	(0.08)	24	0.010	0.015	0.029
東京タワー 25m	最高	51	0.060	0.108	0.152									60	0.036	0.042	0.130
	最低	13	0.000	0.000	0.010									5	0.003	0.004	0.010
	平均	71	0.47	0.82	1.30	77	0.45	0.86	1.35	93	0.68	1.20	1.91	65	0.47	0.78	1.14
東京タワー 125m	最高	102	1.12	2.34	3.15	122	1.47	3.45	4.38	167	1.53	3.08	4.22	138	0.88	2.06	2.07
	最低	38	0.19	0.15	0.43	35	0.09	0.11	0.38	36	0.11	0.10	0.36	26	0.08	0.04	0.22
	平均	71	0.36	0.69	1.02	75	0.35	0.59	1.02	82	0.56	0.94	1.57	64	0.42	0.69	1.01
東京タワー 225m	最高	145	0.86	1.79	2.32	144	0.88	1.81	2.82	147	1.36	2.79	3.83	124	0.74	1.69	1.90
	最低	35	0.10	0.09	0.18	27	0.08	0.14	0.29	29	0.09	0.14	0.26	25	0.11	0.16	0.29
	平均	46	0.22	0.39	0.61	55	0.19	0.33	0.60	72	0.31	0.41	0.87	56	0.25	0.35	0.58
NASN	最高	68	0.41	0.84	1.07	106	0.39	0.71	1.26	115	0.66	0.88	1.84	116	0.51	0.78	1.32
	最低	23	0.04	0.05	0.09	24	0.04	0.08	0.16	36	0.09	0.12	0.23	11	0.08	0.10	0.17
	平均	66	1.15			67	0.88			57	0.63			71	1.41		

注* 23区内8測定点の最高値及び最低値の下の数字は、それぞれに対応する図1における測定点番号である。

'87. 5 - '88. 3の小笠原は、5月～8月欠測のため、参考値

'88. 5 - '89. 3の小笠原は、11月～1月欠測のため、参考値

(2) 1986年5月～1990年3月までの測定結果について
ア 平均値等

23区内8測定点の平均から求めた算術平均値、最高値、最低値並びに立川、小河内、小笠原及び東京タワーの値は表1のとおりであった。BaPは日変動が大きいため、採取日が違う値の比較は注意を要するが、国設大気測定網(NASN)におけるBaP及びTSPの全測定所の算術平均濃度も全国レベルとの比較のために参考として載せた。

イ 濃度分布

23区内8測定点のTSP及びBaP濃度のひん度分布($n=526$)を図5に示した。なお、BkF及びBghiPもBaPに類似した挙動を示している。TSPについては、80%が $120\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$ までの濃度範囲にあり、PAHsについては、BaPは74%が $2\text{ ng}/\text{m}^3$ まで、BkFは75%が $1\text{ ng}/\text{m}^3$ まで、及びBghiPは78%が $3\text{ ng}/\text{m}^3$ までの濃度範囲にあった。

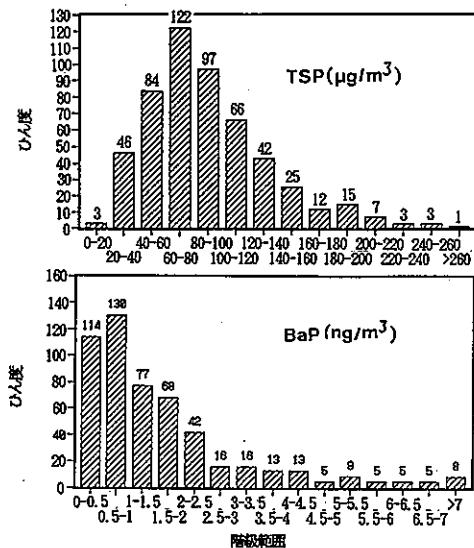


図5 BaPとTSP濃度のひん度分布
(1986年5月～1990年3月, 23区内8測定点)

さらに、濃度とそれの相対累積度数を対数確率紙にプロットしてみると、TSP及び各PAHsには直線関係が成立することから、これらは対数正規分布することが確認された(図6)。なお、TSP濃度の相対標準偏差が0.50であるのに対して、BaPのそれは1.01であり、BkFは0.88及びBghiPは0.84であることからも、PAHsはTSPよりも変

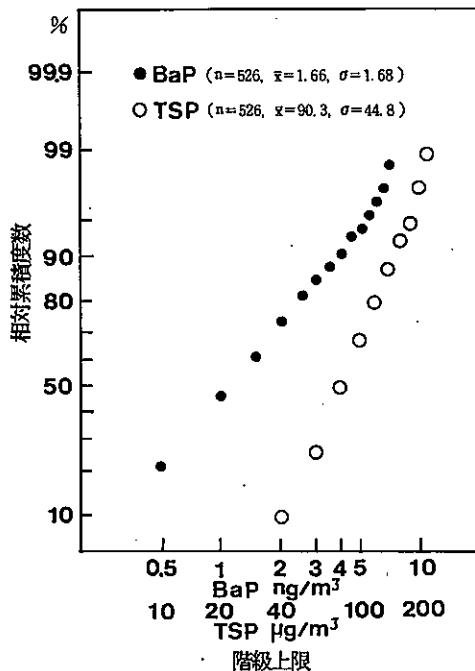


図6 BaPとTSPの相対累積度数分布
(1986年5月～1990年3月, 23区内8測定点)

動が大きいといえる。

ウ PAHs濃度及び組成比の経月推移例

各測定点の個々の測定値について詳しく述べている余裕はないので、都立衛生研究所における測定結果を図7に示した。この測定点は、測定開始当初から現在に至るまで移設がない。PAHsは春夏期に低濃度であり、秋冬期に高濃度になっていることがわかる。また各PAHs間の濃度変動もBaP濃度に合わせて上下している。4年間のBaP濃度は $n=64$ で、 $0.14\sim10.4\text{ ng}/\text{m}^3$ の範囲(平均 $1.68\text{ ng}/\text{m}^3$ 、標準偏差 $1.92\text{ ng}/\text{m}^3$)にあった。同様に、BkFは $0.07\sim4.77\text{ ng}/\text{m}^3$ の範囲(平均 $0.77\text{ ng}/\text{m}^3$ 、標準偏差 $0.79\text{ ng}/\text{m}^3$)にあり、BghiPは $0.29\sim9.91\text{ ng}/\text{m}^3$ の範囲(平均 $2.16\text{ ng}/\text{m}^3$ 、標準偏差 $1.91\text{ ng}/\text{m}^3$)にあった。TSPは $30\sim208\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲(平均 $94\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、標準偏差 $46\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$)にあった。また、最高濃度を示したのは、PAHsについては、いずれも1987年12月16日～17日であり、TSPについては、1987年3月8日～9日であった。なお、Hi-Vo ℓ 故障により1987年10月が欠測であり、またHi-Vo ℓ 定期点検のため4月の測定値はない。

BaPを基準にしてPAHs間の組成比を取った結果も図7に示した。BkF/BaP及びBghiP/BaP比にも、PAHsが低濃度になる春夏期に高く、PAHsが高濃度になる秋冬期に低くなる季節変動があり、BghiP/BaP比において顕著である。これは、5環構造であるBaPに比べて6環のBghiPの方が、春夏期において損失が少ないことも一因であると考える。なお、BkF/BaP比は0.33～0.98の範囲（平均0.53、標準偏差0.12）にあり、BghiP/BaP比は0.77～2.6の範囲（平均1.57、標準偏差0.43）にあった。

エ PAHsの相関

先述の嵐谷らによれば、北九州市八幡西区では、BaP濃度の減少と時を同じくしてPAHsの組成変化が起こり、

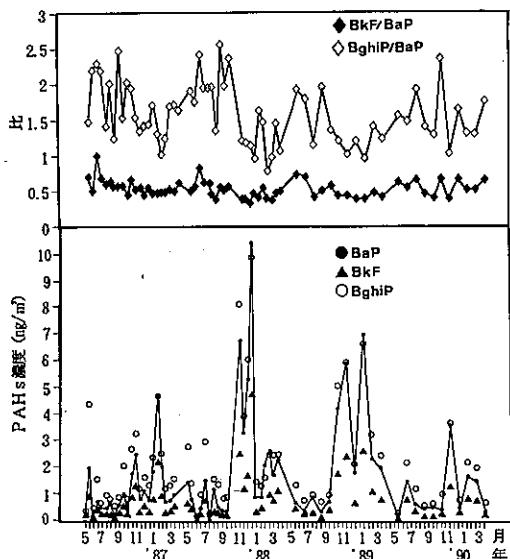


図7 PAHs濃度と組成比の推移
(1986年5月～1990年3月) 都立衛生研究所

特にBghiP/BaP比において顕著であり、1984年まではBaP濃度とBghiP濃度はほぼ同程度であったものが、1985年以降は、BaPはBghiPのほぼ1/2となり、発生源の寄与率が近年変化してきていることが示唆されると述べている。¹¹⁾

松下らによって報告された1973年度の東京都内のPAHsの相関と対比するために、BaPを基準にして、各年度の全測定値を用いて得た、1986～1989年度の期間のBaPとBkF及びBaPとBghiPとの相関は表2のとおりであった。また、1989年5月～1990年3月までのPAHs濃度の散布図を図8に示した。

1986～1989年度の結果はほとんど変わらず、PAHs間の相関も高い。さらに、これらと1973年度の結果における傾きは、BaPとBkFに違いはあるが2倍までは変わらず、BaPとBghiPはほぼ同じであった。しかし、1973年

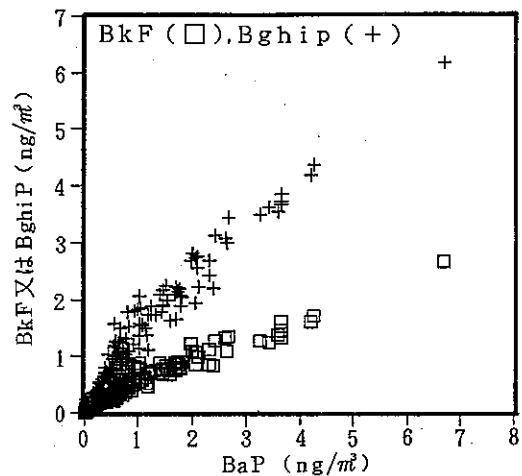


図8 BaPとBkF及びBghiPの関係
(1989年5月～1990年3月、全測定値)

表2 BaPとBkF及びBghiPとの相関、比

年度	BkF (Y) - BaP (X)	BghiP (Y) - BaP (X)	BkF/BaP ⁽¹⁾	BghiP/BaP ⁽¹⁾
1986	Y=0.49X+0.04 r=0.933 n=250	Y=1.2X+0.25 r=0.934 n=250	0.557	1.56
1987	Y=0.40X+0.10 r=0.977 n=247	Y=1.1X+0.46 r=0.974 n=247	0.566	1.74
1988	Y=0.40X+0.13 r=0.988 n=148	Y=1.1X+0.41 r=0.985 n=148	0.520	1.46
1989	Y=0.40X+0.12 r=0.964 n=153	Y=0.97X+0.30 r=0.970 n=153	0.563	1.42
11) 1973	Y=0.65X+0.27 r=0.96 n=44	Y=0.98X+3.03 r=0.95 n=30	0.73 ⁽²⁾	1.9 ⁽²⁾

注 (1) 23区内8測定点の平均

(2) 推定値

度のBaP-BghiPの切片は非常に大きく、不可解であるが、測定点間の組成の差や季節的な差が近年よりも大きかったとも考えられる。

回帰式とBaP平均濃度から推定すると、1973年度のBghiP/BaP比は1.9となった。1986～1989年度の比は単純計算では、それぞれ1.6、1.7、1.5及び1.4であった(表2)。同様にBkF/BaP比については、1973年度は0.73と推定され、1986～1989年度は、0.56、0.57、0.52及び0.56であった。したがって、東京都のPAHs組成は1973年当時と比べて、推定比から考えると、BghiP/BaP比がほぼ2倍になったという八幡西区の変化とは逆に、比が小さくなる変化があったと推察される。

4 まとめ

以上をまとめると、

(1) BaP濃度は測定開始当初を除いて非常に小さな減少傾向しか見られず、1980～1989年度の10年間では若干の減少傾向を示しながら1.4(1989年度)～2.4ng/m³(1985年度)の幅で変動していた。

(2) 春夏期に低く、秋冬期に高いBaP濃度の季節変動は、季節変動が大きいといわれるTSP濃度のそれより大きい。これは、大気安定度等の気象条件に加えて、春夏期にはBaPの損失が生じ、このため、TSPに比べて大きな季節変動を示すものと考えられた。また、3種のPAHs濃度の日変動も、TSPの日変動より大きく、複雑な挙動を示している。

(3) 23区内8測定点における4年間のPAHsの濃度分布(n=526)は、BaPについては74%が2ng/m³までの範囲にあり、ほぼ同じ割合でBkFは0.5ng/m³まで、BghiPは3ng/m³までの濃度範囲にあった。また、TSP中のこれらPAHsは、対数正規分布していた。

(4) 3種のPAHs濃度はBkF<BaP≤BghiPの順に高くなり、季節変動を繰り返していた。

また、BkF/BaP及びBghiP/BaP比にも、PAHsが低濃度になる春夏期に高く、PAHsが高濃度になる秋冬期に低くなる季節変動があり、BghiP/BaP比において顕著であった。これは、5環のBaPに比べて6環のBghiPが春夏期において損失が少ないことも一因であると考えた。

(5) 北九州八幡西区ではPAHsの濃度低下と共に組成変化が顕著に生じているという報告があるが、東京都に

おいては、1973年度と比べてそのように顕著ではないが、八幡西区とは傾向の異なる組成変化があった可能性が示唆された。

BaPを中心とするPAHsの概略について述べた。挙動については、充分でなく、たとえば、測定点別の比較、粒径分布特性、大気中あるいは採取中の損失の事実の有無等については述べていない。また、3種PAHsのみの測定によって、発生源のさらに微妙な変化を監視し得るかという問題も残っている。

おわりに、試料採取にあたり、長年に渡って協力いただいている関係各位をはじめとする多くの方々の御努力により、PAHs測定は継続されてきた。記して御礼申し上げる。

参考文献

- 1) 日本環境衛生センター：環境庁委託業務結果報告書(国設大気測定網(NASN)浮遊粉じんおよび浮遊粒子状物質分析結果報告書)，昭和62年3月、昭和63年3月、平成元年3月、平成2年3月。
- 2) 日本環境衛生センター：昭和63年度環境庁委託業務結果報告書窒素酸化物個人暴露量等調査(発癌関連物質の大気濃度データの収集・整理)，平成元年3月。
- 3) 東京都公害研究所：浮遊粒子状物質等調査報告書、昭和53年3月、昭和54年3月。
東京都環境科学(公害)研究所：浮遊粒子状物質等データ集、昭和55年3月、昭和57年2月、昭和59年3月、昭和61年3月、昭和62年3月、昭和63年8月、平成2年3月。
- 4) 菅邦子ら：高速液体クロマトグラフィーを用いた多環芳香族炭化水素の迅速分析とその測定例、東京都公害研究所年報1981, p.106. 等
- 5) 日本科学技術情報センター：大気汚染物質レビュー 多環芳香族炭化水素、昭和59年11月。
- 6) 嵐谷奎一ら：北九州地区の多環芳香族炭化水素濃度推移、大気汚染学会誌、26, 23 (1991).
- 7) J.Peters,B.Seifert:Losses of Benzo (A) Pyrene under the Conditions of High-Volume Sampling, Atmos Environ., 14, 117 (1980).
- 8) J.N.Pitts,et.al.:Atmospheric Reactions of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons : Facile Formation of Mutagenic Nitro Derivatives,

- Science, 202, 515 (1978).
- 9) 菅邦子ら：ガス状多環芳香族炭化水素の測定について、東京都公害研究所年報1982, P.44.
- 10) 太田正雄、一都三県二市南関東SPM検討会：横浜市におけるPAHsの経年変化と南関東のPAHs濃度、第32回大気汚染学会講演要旨集, p.195 (1991).
- 11) 松下秀鶴ら：ベンゾ(a)ピレン等による東京都の大気汚染状況について、大気汚染研究, 9, 602 (1974).