

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 (第2報)
 - 経年推移と粒径分布 -

吉岡秀俊 泉川碩雄 秋山 薫
 渡邊武春 鎌滝裕輝 早福正孝
 清宮隆治(現環境管理部) 菅 邦子
 朝来野国彦

要 旨

発ガン性物質であるベンゾ(a)ピレンの1973年5月～1992年3月までの測定結果について、幾何平均濃度による経年推移をみた。経年推移は前報で示した算術平均濃度によるそれと比較すると明瞭となり、指数関数的に低下していた。地点別の幾何平均濃度推移を概括的にみると、1973～1974年度は地点間差が大きかったものの、その後地点間差は小さくなっていった。1980年代以降は、23区内年平均濃度を越えるのは、糞谷保健所、江戸川、荒川区役所の3地点であり、23区内年平均濃度程度の地点は、板橋、江東の2地点であった。

アンダーセン・ローボリウム・エアサンプラーを用いて3種の多環芳香族炭化水素(PAHs)の粒径分布を調べた結果、地点・季節を問わず、3種PAHsの粒径分布はほぼ同型であり、PAHsは肺内沈着率が高いといわれる $2\mu\text{m}$ 以下の微小粒径側に80%以上遍在していた。これにより、継続モニタリングにおける3種PAHsの濃度は、微小粒径側のピーク面積の大小に依存することが確認された。また、3種PAHsの粗大粒径側の含有量は、道路堆積物等の含有量の報告値の上限と同程度か更に高く、道路堆積物等の舞い上がりによる影響は少ないと考えられた。

1 はじめに

前報¹⁾では、多環芳香族炭化水素(以下PAHsという)のうち、ろ紙で採取できるといわれている5環以上のもので²⁾、発ガン性を有するベンゾ(a)ピレン(BaP)を中心に、BaPと同じ条件で分析可能なベンゾ(k)フルオランテン(BkF:発ガン性は無いといわれる)及びベンゾ(ghi)ペリレン(BghiP:発ガン促進物質であるといわれる)の3種PAHsについて概観した。

その結果は以下の5点に要約される。①従来から行われてきた算術平均を用いてBaP濃度の経年推移を見ると、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ない。②3種PAHs濃度には、春夏期に低く、秋冬期に高くなる季節変動があり、季節変動が大きいといわれる粉じん濃度のそれより遙かに大きく、その上日変動も、粉じん濃度のそれより大きい。③23区内8地点における近年4年間の3種PAHs濃度の分布型は対数正規であった。④3種PAHs濃度は $\text{BkF} < \text{BaP} \leq \text{BghiP}$ の順に高くなり、それらの相関も高いが、発生源の変化に対応すると考えられているPAHs組成比である BkF/BaP 比と BghiP/BaP 比にも、PAHsが低濃度になる春夏期に大きく、秋冬期に小さくなる季節変動があり、特に

BghiP/BaP 比において顕著であった。⑤1973年度の BkF/BaP 比と BghiP/BaP 比を推定し、近年4年間のそれと比較した結果、それらの比が僅かではあるが、減少していた。

本報では、主として上記①②③に基づき、①従来から行われてきた算術平均に変えて、幾何平均を用いた経年推移について調べると共に、②アンダーセン・ローボリウム・エアサンプラーを用いて調査した3種PAHsの地点別・季節別粒径分布について考察したので報告する。

2 測定方法

(1) 試料採取

ア. 継続モニタリング

12地点14測定点において、5月から翌年3月までを1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ハイボリウム・エアサンプラーで採取した。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。

測定地点は、下記のとおりである。なお、測定地点の位置的關係は前報¹⁾を、詳細は「浮遊粒子状物質等データ集」²⁾を参照されたい。

- 1. 有楽町 (都庁旧第二本庁舎)
- 2. 都立衛生研究所 (旧国設東京)
- 3. 江東 (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 (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 25m、125m、225m

イ. アンダーセン・ローボリウム・エアサンプラーによる採取

9段全部に、あるいは4段目とバックアップに石英繊維ろ紙を装着して、所定流量28.3ℓ/min.で一定期間採取した。採取地点は、東京都環境科学研究所、都立衛生研究所 (旧国設東京)、清瀬市役所 (清瀬市中里) 及び一之瀬 (山梨県塩山市一之瀬高橋) である。

(2) 抽出

ア. 継続モニタリング

1×3.5インチに切り出したろ紙を細切し、アセトニトリルで20分間超音波抽出した後、ポアサイズ0.45μm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。なお、小笠原の試料も前報¹⁾と同じく、松本ら⁴⁾の方法に準じ、アセトニトリル抽出後、移動相と同じ割合になるようイオン交換水を加え、数分間超音波にかけたものを、同様に処理して供した。なお、継続モニタリング中に分析法が変わっているため、その詳細は「浮遊粒子状物質等データ集」²⁾を参照されたい。

イ. 粒径分布

ろ紙の1/4あるいは1/2を細切し、上記小笠原試料と同様に処理して、高速液体クロマトグラフに供した。

(3) 高速液体クロマトグラフィ

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 (以上ウオーターズ社製) 及びインテグレーター島津 C-R3A (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 SIL LC-PAH (4.6mm×25cm、細孔径300Å スペルコ社製)、カラム温度35℃ 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 結果および考察

(1) 幾何平均によるBaP濃度の経年推移

前報¹⁾では、1986年5月~1990年3月までの23区内8地点での測定値について、BaP等3種PAHs濃度が対数正規分布していることを報告した。これと同様に、測定開始当初の1973年5月~1975年3月までの23区内8地点でのBaP濃度について調べた結果、測定開始当初においてもBaP濃度は対数正規分布していたので、一年度の平均値として幾何平均を採用し、1973年5月~1992年3月までの測定値について、各測定地点のBaPの年平均値 (幾何) を算出してみた。その結果を図1-1~14に示した。図中の点は、各測定地点のBaP濃度の年平均値 (幾何) であり、実線は、23区内8地点 (東京タワーは除く) の各地点の年平均値 (幾何) をさらに算術平均した濃度 (以下23区内年平均濃度という) である。このうち、1973年度は、江東での測定が5月~10月までが欠測であり、BaP高濃度時期の秋期・冬期のみを平均化したものでは、濃度を高く見積りすぎるので、江東を除く7地点の平均濃度を用いた。また、1979年度~1981年度については、世田谷、板橋、荒川、江東の4地点では、季節別にまとめて分析されていたため、四季の測定値を幾何平均した。

なお、1973年度以前の東京都内におけるBaPの測定値としては、1965年に発表された坂部らの値がある。これによれば、最高28ng/m³、最低5ng/m³、平均15.1ng/m³であり、本調査開始時より更に高濃度であったと思われる。これらの値と共に世界各地のBaP量の報告値をまとめたものに児玉ら⁵⁾の報告がある。

ア 23区内年平均濃度の推移

表1に算術平均と幾何平均による23区内年平均濃度の比較を示した。23区内年平均濃度 (幾何) は、2.28ng/m³ (1974年度) ~1.01ng/m³ (1989年度) の範囲にあった。なお、1977年度のそれは0.80ng/m³と低濃度で、各測定値をみても前後の年度に比べて低い値であるため、特異的な年度であったと思われるので、評価の対象外とした。

幾何平均によるBaP濃度の経年推移は前報¹⁾で示した算術平均によるそれと比較すると明瞭となり、指数関数的に低下していた。筆者が分析している1986年度以降については、横ばい状態のようにみえる。

表1 23区内8測定点(東京タワーは除く)の算術平均値と幾何平均値による年平均濃度の比較

単位 ng/m ³		'73	'74	'75	'76	'77	'78	'79	'80	'81	'82	'83	'84	'85	'86	'87	'88	'89	'90	'91
算術平均		3.29	3.56			1.82	2.70	2.12	1.55	2.08	1.88	2.12	2.14	2.41	1.39	1.80	2.24	1.35	1.57	2.08
幾何平均		2.34	2.28			0.83	1.08	1.72	1.27	1.70	1.34	1.42	1.29	1.44	1.06	1.10	1.49	1.01	1.08	1.31

イ 各測定地点の年平均濃度の推移

概括的にみると、初期は測定地点間の濃度差が大きかったが、しだいに地点間差は小さくなっていった。1986年度以降では、23区内年平均濃度を越える地点は、糀谷保健所、江戸川、荒川区役所の3地点で、23区内年平均濃度程度の地点は板橋、江東の2地点であり、その他の地点は下回っていた。よって、区部についていうと、東京タワーを除いて、中心部よりも周辺部の方が濃度が高い傾向にあった。

次に測定地点毎に述べる。ここでは、①やむを得ず測定地点を移動した場合があること、②前報で述べたように、BaP濃度は日変動・季節変動が大きいために、欠測のある場合や採取日の違う測定値を比較する場合には注意を要するため、①測定地点の移動があった場合には、その沿革を述べ、②欠測等が値に影響を与えていると思われる場合には、それらの情報も併せて述べる。

1) 有楽町 (図1-1)

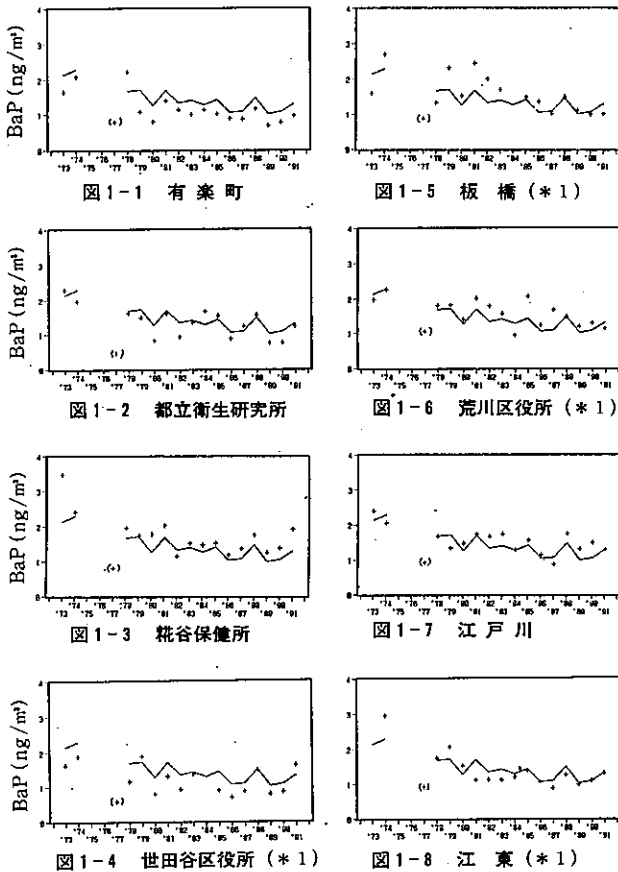
旧公害研究所で測定が開始され、1981年度の単年度、そして1985年度からは約350m離れた旧都庁第二本庁舎で試料採取した。1978年度を除いて、23区内年平均濃度を下回っており、かつそれに追従して濃度が上下していた。

2) 都立衛生研究所 (旧国設東京 図1-2)

23区内年平均濃度程度の年と以下の年があり、有楽町に比べて23区内年平均濃度に対するバラツキが大きかった。このようなバラツキは、測定地点の近傍に、たとえば小型のごみ焼却施設のような独自の発生源が存在することを示唆していると考えられる。

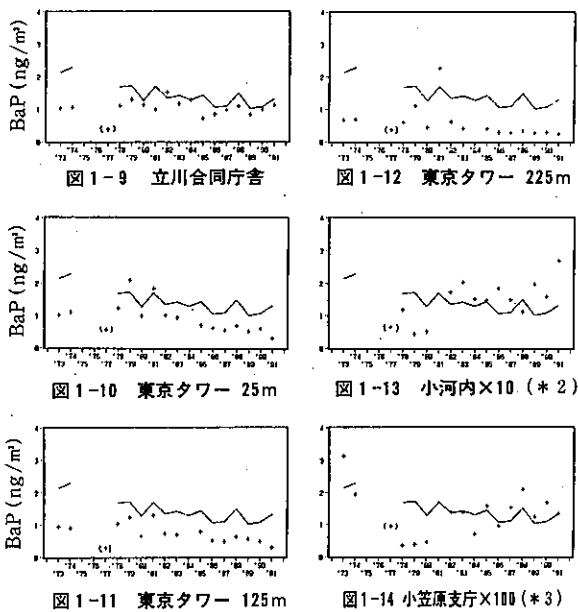
3) 糀谷保健所 (図1-3)

1973年度の年平均濃度は、3.47ng/m³と最も高濃度であった。それ以後は平均濃度に近づいてきたが、なお平均濃度を上回っていた。また、測定開始当初を除くと、濃度低下は僅かであった。なお、1979年の10月~12月上旬が欠測であるため、この年度は濃度が低く見積られて



(*1) 世田谷、板橋、荒川および江東の4地点の'79~'81年度については、季節別平均値を幾何平均

図1 幾何平均によるBaPの23区内年平均濃度と地点別濃度の経年推移



(*2) 小河内の年平均濃度は10倍してプロットした。
(*3) 小笠原支庁の年平均濃度は100倍してプロットした。

図1 幾何平均によるBaPの23区内年平均濃度と地点別濃度の経年推移(つづき)

いる。

4) 世田谷区役所 (図1-4)

1985年度の10月～1月上旬にかけて欠測である。測定開始当初から比較的濃度は低く、その後も概ね23区内年平均濃度以下であった。また、衛研同様23区内年平均濃度に対するバラツキが大きい。

5) 板橋 (図1-5)

板橋区役所で測定が開始され、1977年度～1979年度は板橋区立産業文化会館で、1980年度からは板橋保健所で採取している。1973年度が低いのは12月15日～16日の高濃度日が欠測であるためであり、同様に1978年度も11月中旬と2月中旬が欠測であるため23区内年平均濃度を下回っていると思われる。したがって、1987年以前は23区内年平均濃度を上回り、それ以降は同程度である。なお、1991年度は、他の6地点では12月17日～18日にかけて $5.22\text{ng}/\text{m}^3 \sim 9.18\text{ng}/\text{m}^3$ と高濃度であったが、この測定地点は採取日が18日～19日と異なっていたために $0.53\text{ng}/\text{m}^3$ であり、濃度が低く見積られている。

6) 荒川区役所 (図1-6)

1984年度は10月中旬～3月にかけて欠測であるため、低濃度に見積られている。これを除くと23区内年平均濃度を上回っているが、低濃度になってきてはいる。

7) 江戸川 (図1-7)

1986年1月まで江戸川区役所で、同年2月からは、約200m離れた江戸川区環境測定分析室で採取している。1984年度は秋冬期に欠測があった。23区内年平均濃度を上回ることが多く、測定開始当初を除くと、濃度低下は明瞭でない。1991年度は、板橋と同様に12月の採取日が18日～19日と異なっていたために $0.45\text{ng}/\text{m}^3$ であり、濃度が低く見積られている。

8) 江東 (図1-8)

1985年度に江東区役所から、約850m離れた東京都環境科学研究所に測定地点を移設した。前測定地点では、濃度低下がみられ、1981年度頃から23区内年平均値を下回った。移設後、23区内年平均濃度程度で推移している。

9) 東京都立川合同庁舎 (図1-9)

1973年度のみ都立農業試験場での採取であり、以後は東京都立川合同庁舎で採取している。1985年度は11月～3月まで欠測であるので、低濃度に見積られている。これまで述べてきた測定地点と比べて、測定開始当初から低濃度であり、その後も明瞭な濃度低下が見られない

ため、相対的に23区内年平均濃度に近づいてきている。

10) 東京タワー (図1-10～12)

東京タワーでは高度別に25m、125m、225mで採取している。ここは、月曜日が休日であるために、いままで述べてきた測定点とは、採取日が違うことが多い。

25mでは、1973年度と1974年度が立川と同程度の濃度であるが、近年10年間をみると濃度低下が見られ、23区内年平均濃度の1/2強の濃度になってきている。125mでは、25mより若干低濃度になり、225mになると25mの概ね半分の濃度に低下する。1981年度の225mの年平均値が高い理由は不明である。

また、1973年度～1974年度は、23区内にありながら低濃度であり、測定点間の濃度差が近年よりも大きかったといえる一方、低濃度過ぎるとも思われるが、その理由はわからない。

11) 小河内貯水池管理事務所 (図1-13)

1977年度から採取が開始された。初期を除いて、1回の採取時間は74時間である。23区内年平均濃度の概ね1/10の濃度で推移していた。初期が未測定であり、次に述べる小笠原支庁と同様に1979年度～1980年度が低濃度であり過ぎるのかも知れず確かなことはいえないが、図からは1980年代から濃度が増加傾向にあるように見える。このことは、佐々木ら¹⁷⁾が、小河内の粉じん当りの変異原性が区内とあまり変わらない(23区内の70～90%)ことから汚染が広域的になってきていると推定していること、また、立川合同庁舎が23区内年平均濃度に近づいていることと一致し、今後もモニタリングを継続していく必要がある。

12) 小笠原支庁 (図1-14)

この測定地点は、東京から南方に約1000km離れた亜熱帯に位置し、気温の変化が少ない海洋性気候の離島である小笠原諸島の父島にあり、支庁は父島で唯一集落が集中している地域にある。小河内と同じく、初期を除いて72時間採取である。23区内年平均濃度の概ね1/100、小河内の1/10の濃度で推移していた。1978年度～1980年度が低濃度であるため、一度濃度低下があった後増加しているように見え、不可解である。

(3) 粒径分布

PAHsは、有機物の不完全燃焼によって生成されるといわれるので、微小粒径側に存在すると考えられる。広野ら¹⁸⁾は、5段のアンダーセン・ハイボリウム・エアサン

プラーを用いてトンネル内や交差点でのPAHsの粒径別濃度を測定し、BaP等が微小粒径側に多く存在していることを報告した。本報では、9段のアンダーセン・ローボリウム・エアサンプラーを用いて、冬期に都内3地点で、また東京都環境科学研究所（環研）で暖房の有無が粒径分布に影響を与えるかどうかを見るために季節ごとに採取した試料について3種PAHsの粒径分布をとった結果を報告する。また、アンダーセンを4段とバックアップの2段構成にして、粒径 $2.1\mu\text{m}$ で分けた場合の結果も若干加えた。

ア. 粒径分布

図2に、1991年2月25日～28日の期間、環研屋上、都立衛生研究所（旧国設東京：衛研）と清瀬市役所屋上（清瀬）で採取した試料の粒径分布を示した。環研のBaPとBghiPを除いて、いずれも $1.1\sim 0.65\mu\text{m}$ にピークをもつ一山型であり、3種PAHsの粒径分布は同型であった。また、地点別にみると、都心部に近い環研と衛研では、若干衛研のピークが低いがほぼ同程度であり、都北部の埼玉県境に近い多摩地域に位置する清瀬が、先の2地点に比べて3種PAHsともピークが高かった。これは、継続モニタリングの多摩地域の測定地点は立川と小河内の2地点しかなく、他は23区内の地点であるが、継続モニタリングにおいて、都北部に位置する荒川、板橋と江戸川が秋冬期に高濃度になることが多い事実と一致する。清瀬市役所周辺は、急速に宅地化されているものの、交通量が少ない田園風景の中にあり、発生源とし

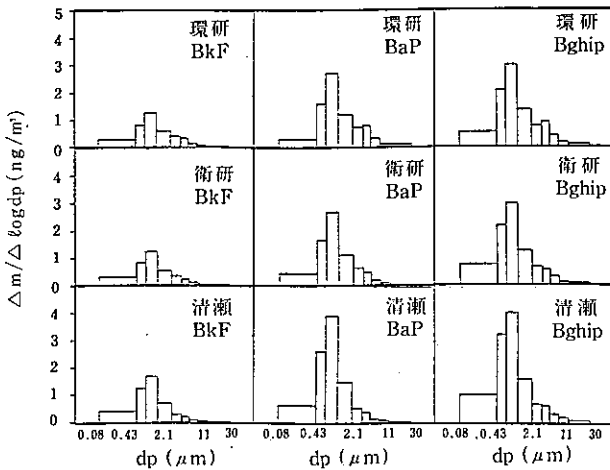


図2 3種PAHsの粒径分布(地点別)
(1991年2月25日～28日)

ては近接した北東部に銭湯がある。銭湯の局地的な影響でないとすれば、北風が卓越する時期であるので、より北方の発生源の影響を受けていると考えられる。

なお、環研のBaPとBghiPの $4.7\sim 3.3\mu\text{m}$ にも極小さなピークがある。これは自動車走行に伴う道路堆積物の巻き上げの影響とも考えられるが、BkFに同様のピークが見られず、また次に述べるように、他の採取期間では、このようなピークが見られないことから、その理由は不明である。

図3に、環研で1991年8月26日～9月13日、同年11月15日～22日、1992年2月24日～28日と同年5月8日～22日の期間採取した試料についての粒径分布を示した。いずれの季節とも先と同じ $1.1\sim 0.65\mu\text{m}$ にピークをもつ一山型であり、3種PAHsとも同型である。季節別にみると、秋・冬期にはこのピークが上昇し、夏・春期には下降している。

以上の結果から、地点・季節を問わず、3種PAHsの粒径分布はほぼ同型であり、PAHsは肺内沈着率が高いといわれる $2\mu\text{m}$ 以下の微小粒径側に遍在するといえる。これにより、継続モニタリングにおける3種PAHsの濃度変動は、微小粒径側のピーク面積の大小に依存することが確認された。

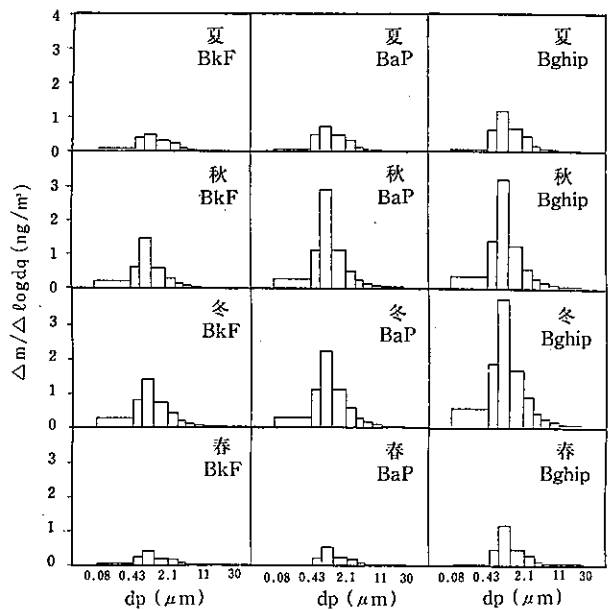


図3 3種PAHsの粒径分布(季節別)
(東京都環境科学研究所)

イ 3種PAHsの微小粒径側の割合

上記の粒径分布測定値に基づいて、2 μ mを境にしてそれ以下を微小粒子として、3種PAHsの微小粒径側の存在割合を調べた結果を、表2に示した。これによると、80%以上が微小粒径側に偏り、3種PAHsの存在割合は、同地点同時期においては、互いに同じであった。地点別・季節別にみると、環研の春・夏期の微小粒子側の存在割合が低いが、2段アンダーセンの結果(表3)では、環研の春期においても88%以上の存在割合を示し、3地点のうち環研が特に低くはなっておらず、また晩夏でも環研は88%であった。よって、存在割合の地域的・季節的な違いは明確ではない。また、2回の測定結果しかないので確かなことはいえないが、山間部に位置する一之瀬では、微小粒径側の存在割合が相対的に低くなっていた。

表2-1 3種PAHsの微小粒径側の割合 (地点別、9段アンダーセン)

測定地点	採取月日	BkF	BaP	BghiP
環研	'91 2/25-28	81%	80%	81%
衛研	'91 2/25-28	86	86	87
清瀬	'91 2/25-28	90	91	88

表2-2 3種PAHsの微小粒径側の割合 (季節別、9段アンダーセン)

測定地点	採取月日	BkF	BaP	BghiP
環研	'91 8/26-9/13	82%	81%	82%
環研	'91 11/15-22	88	88	87
環研	'92 2/24-28	86	86	86
環研	'92 5/8-22	80	79	82

表3 3種PAHsの微小粒径側の割合(2段アンダーセン)

測定地点	採取月日	BkF	BaP	BghiP
環研	'91 5/27-29	93%	94%	93%
衛研	'91 5/27-29	93	90	93
清瀬	'91 5/27-29	92	92	92
環研	'91 5/29-31	89	88	89
一之瀬	'91 5/29-31	77	77	80
環研	'91 9/10-12	90	88	86
一之瀬	'91 9/10-12	75	54	57

ウ 粗大粒径側の含有量

粒子中にしめるBaP含有量を粒径範囲ごとにまとめ、さらに粗大粒子中のBaP含有量を計算した結果を表4に示した。菅ら⁹⁾は、大和町交差点周辺と有楽町の道路堆積粉じん等のBaP含有量を調べた結果、0.149~0.310 μ g/g (n=6)であったと報告している。また、泉川ら¹⁰⁾は、都内で採取した土壤中のBaP含有量について0.0005~6.3 μ g/g (n=63)の範囲にあったと報告している。粗大粒径側のBaP含有量は、これらの報告値の上限と同程度か更に高く、BaPの場合は、道路堆積物等の舞い上がりの影響は少ないといえる。

表4 粒径別の粒子中BaP含有量(ろ紙重量補正無し)

粒径範囲	単位 μ g/g						
	環研	衛研	清瀬	環研	環研	環研	環研
30 - 11 μ m	1.8	0.7	0.2	0.7	0.9	0.6	0.4
11 - 7	1.4	1.5	0.5	0.7	0.9	0.7	0.4
7 - 4.7	4.0	3.2	1.3	0.9	1.4	1.2	0.5
4.7 - 3.3	10.1	8.4	4.4	1.7	2.4	2.2	0.8
3.3 - 2.1	16.3	17.3	13.4	8.6	7.1	7.5	3.2
2.1 - 1.1	35.8	44.2	47.2	16.4	20.3	19.5	5.7
1.1 - 0.65	44.4	52.6	59.3	15.3	30.5	23.1	7.9
0.65 - 0.43	29.4	37.3	50.2	10.5	14.7	13.3	3.5
0.43 - 0.08	13.8	22.5	33.6	2.7	11.6	11.4	1.3
> 2 μ m	5.3	5.1	1.3	2.4	2.3	2.0	1.0
採取期間	'91 2/25-28			*1	*2	*3	*4

*1) '91 8/26-9/13 *2) '91 11/15-22 *3) '92 2/24-28
*4) '92 5/8-22

4 まとめ

(1) 幾何平均によるBaP濃度の経年推移は前報で示した算術平均によるそれと比較すると明瞭となり、指数関数的に低下していた。

概括的にみると、初期は測定地点間の濃度差が大きかったが、しだいに地点間差は小さくなっていった。1980年代以降では、23区内年平均濃度を越える地点は、糞谷保健所、江戸川、荒川区役所の3地点であり、23区内年平均濃度程度の地点は板橋、江東の2地点であった。

- (2) 地点・季節を問わず、3種PAHsの粒径分布はほぼ同型であり、PAHsは肺内沈着率が高いといわれる。2 μ m以下の微小粒径側に偏在するといえる。これにより、継続モニタリングにおける3種PAHsの濃度は、微小粒径側のピーク面積の大小に依存することが確認された。
- (3) 3種PAHsの微小粒径側の存在割合は80%以上であり、地域的・季節的な違いは明確ではなかった。
- (4) 3種PAHsの粗大粒径側の含有量は、道路堆積物等の含有量の報告値の上限と同程度か更に高く、道路堆積物等の舞い上がりによる影響は少ないといえる。
- 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ました。御礼申し上げます。

参考文献

- 1) 吉岡秀俊ら：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、東京都環境科学研究所年報1991-2、P.89
- 2) H.Yamasaki et al. : Effects of Ambient Tem-

- perature on Aspects of Airborne Polycyclic Aromatic Hydrocarbons、Environ. Sci. Technol.; 16, P.189 (1982)
- 3) 東京都環境科学研究所：浮遊粒子状物質等データ集、環境科学研究所資料1-2-13 (平成4年3月)
- 4) 松本光弘：大量注入—高速液体クロマトグラフィーによる微量浮遊粉塵中の多環芳香族炭化水素の分析、大気汚染学会誌、24, P.21 (1989)
- 5) 児玉 泰、石西 伸：大気中のBenzo(a)pyrene分布、大気汚染研究、10, P.732 (1976)
- 6) 佐々木裕子ら：環境大気の変異原性に関する研究—都内12地点の浮遊粉じん調査II—、東京都環境科学研究所年報1987、p.213
- 7) 大山謙一ら：環境汚染物質の変異原活性に関する研究、東京都環境科学研究所年報1991、P.231
- 8) 広野富雄ら：東京都のベンゾ(a)ピレン等の汚染について、東京都公害研究所年報1975、P.1
- 9) 菅邦子ら：沿道地域における浮遊粉じん中の多環芳香族炭化水素の分布について、東京都環境科学研究所年報1988、p.61
- 10) 泉川碩雄ら：東京都における土壌中の化学物質の分布(1)—多環芳香族炭化水素—、東京都環境科学研究所年報1991-2、P81

Yearly Variation and Behavior of Polynuclear Aromatic Hydrocarbons in Ambient Particulate Matter(2). -Yearly Variation and Size Distribution-

Hidetoshi Yoshioka, Sekio Izumikawa, Kaoru Akiyama
Takeharu Watanabe, Hiroki Kamataki, Masataka Soufuku
Takaharu Kiyomiya *, Kuniko Suga and Kunihiko Asakuno
(* Environmental Management Division)

Yearly geometric average concentrations of Benzo(a)pyrene which is a carcinogen, has decreased exponentially in the Tokyo area. The difference in concentrations among the sampling points had been large in the early years of monitoring, but thereafter was small. In recent years the sampling points where were over the yearly average concentrations were Koujiya, Edogawa and Arakawa, and the sampling points where were almost same were Itabashi and Kouto.

The size distributions of PAHs (BaP, Benzo(k)fluoranthene and Benzo(ghi)perylene) in the particulate matter were measured. PAHs gave same mono-modal size distributions and were contained above 80% in the

fine particle range ($<2\mu\text{m}$). Therefore fluctuations in PAHs concentrations depend on peak area of the fine particle range.