[Jpn. J. Toxicol. Environ. Health]
衛生 化学
39 (1) 37-43 (1993)]

大気中の低沸点芳香族炭化水素類濃度

川田邦明, 藤枝義丸

新潟県衛生公害研究所

Volatile Aromatic Hydrocarbons in Ambient Air

KUNIAKI KAWATA and YOSHIMARU FUJIEDA

*Niigata Prefectural Research Laboratory for Health and Environment, 314-1, Sowa,
Niigata 950-21, Japan*

(Received August 10, 1992)

Concentrations of six volatile aromatic hydrocarbons (VAHs), *i.e.* benzene, toluene, ethylbenzene and three kinds of xylene, in the ambient air at the rural, suburban and urban sites were monitored. Twenty-four h measurements of VAHs were carried out during 8 consecutive days in June, August, October and December, 1991, and in February and April, 1992. Mean concentrations at all sites of benzene, toluene, ethylbenzene, *o*-xylene, *m*-xylene and *p*-xylene were 1.7 ppb, 2.3 ppb, 0.39 ppb, 0.29 ppb, 0.70 ppb and 0.29 ppb, respectively. Concentrations of all VAHs were most elevated at the urban site compared with those at the rural and suburban sites.

The VAH concentrations decreased on Sunday; the relative ratios of VAH to benzene in air at the investigated sites were similar to those in exhaust gas from vehicles and to those in air from automobile tunnels. These facts suggest that the VAHs in these sites are mainly originated from vehicle emissions and also suggest that the VAH concentrations reflect traffic of each area. An excursion in toluene measured at the suburban site was related to the usage of solvent for painting. All the VAH concentrations were higher in winter season than in summer season. This seems to be caused by meteorological factors. Cancer risk calculations for inhalation of benzene in the ambient air were from 30×10^{-6} (rural) to 70×10^{-6} (urban).

Keywords — volatile aromatic hydrocarbon; air; risk; benzene; toluene; xylene

緒 言

代表的な低沸点芳香族炭化水素 (VAH) であるベンゼン, トルエン, エチルベンゼン, *o*-, *m*-及び *p*-キシレンの6化合物は, ガソリン,¹⁻³⁾ 自動車排ガス³⁻⁸⁾ 等に含まれており, 環境大気中⁸⁻²²⁾ や室内空気中²²⁻²⁴⁾ にも微量ながら存在することが知られている。これらの化合物には, ベンゼンの発ガン性など, 有害性が指摘されているものもあることから, 長期的な吸入摂取による健康影響が懸念されている。²⁵⁻²⁷⁾

これら VAH の大気中濃度についての報告値では, 数秒から数時間程度の短時間における測定値が大部分を占める。^{8-10,12-19)} しかし, これらの濃度は

測定時間帯や曜日により大きく変動するものと考えられる。^{8,10,17)} したがって, 健康影響を評価するにはこれらの変動を考慮した調査が必要と考えられるが, このような調査例は極めて少ない。^{11,16,21)}

著者らは, VAH 濃度の24時間値を測定するための簡便な方法を開発した。²⁸⁾ 本報では, この方法を用いて大気中の VAH 濃度 (24時間値) を測定し, 測定地点, 季節, 曜日などの違いによる濃度の変動について得られた知見を報告する。さらに, ベンゼンについて過剰発ガンリスクの推定を試みた。

実 験

1. 調査方法 試料採取地点は, 新潟市及びその近郊に位置する田園地帯 (St. 1), 郊外 (St. 2) 及

Fig. 1. Sampling Sites

St. 1: rural site, St. 2: suburban site, St. 3: urban site.

び市街部 (St. 3) の 3 地点とした (Fig. 1). 調査期間は 1991 年 6 月, 8 月, 10 月, 12 月, 1992 年 2 月及び 4 月の連続する 8 日間とし, 月曜日の 8:00 から 24 時間ずつ大気を採取した.

St. 3 における大気中 SO_2 濃度, 浮遊粒子状物質濃度 (SPM), NO , NO_2 , CO 及び非メタン炭化水素 (HC), 並びに St. 3 から南南東に約 30 km 離れた地点における気温, 全天日射量, 降水量, 風速及び大気安定度 (日本式パスキル安定度階級分類法による) は, いずれも新潟県環境保健部公害対策課が測定した結果を用いた.²⁹⁾

2. VAH の捕集と分析 VAH 類は既報に従い, Carbosieve S-III で捕集後, 二硫化炭素で超音波抽出し, GC で定量した.²⁸⁾

3. 重回帰分析による解析 St. 3 における全測定結果から, 大気中の 6 化合物濃度の総和 Σ VAH (ppb) を基準変数とし, SO_2 (ppb), SPM ($\mu\text{g}/\text{m}^3$), NO (ppb), NO_2 (ppb), CO (ppb), HC (ppb), 気温 ($^{\circ}\text{C}$), 全天日射量 (MJ/m^2), 降水量 (mm) 及び風速 v (m/s) を説明変数として重回帰分析を行った. 重回帰分析における説明変数の選択には F 検定を基準とする変数増減法を用い, 変数選択の基準値 F_{in} と変数除去の基準値 F_{out} とをいずれも 2.0 とした.³⁰⁾

結果と考察

各測定地点における大気中のベンゼン, トルエン, エチルベンゼン, *o*-, *m*-, 及び *p*-キシレンの平均濃度を Table I に示す.

大気中 VAH 濃度の 24 時間値については米国における測定例がある. Liroy らは,¹¹⁾ New Jersey 州の 3 地点において, ベンゼンは 1.25–3.48 ppb, トルエンは 2.25–11.39 ppb, キシレン類は 0.65–2.8 ppb であると報告している. Edgerton らは,²¹⁾ 9 都市における濃度 (中央値) を, ベンゼンは 1.3–5.9 ppb, トルエンは 2.1–16.6 ppb, エチルベンゼンは 0.3–2.3 ppb, *o*-キシレンは 0.3–3.1 ppb, *m*-及び *p*-キシレンは 0.7–8.6 ppb と報告している. また Fung らは,¹⁶⁾ California 州南部におけるベンゼン濃度を 4.0–9.2 ppb と報告している. 本研究の調査地点における VAH 濃度は, これら報告値のうちの比較的低濃度の地点とほぼ同じ値であることがわかった.

なお, 最も測定例が多いベンゼンについては, 千葉県内で 0.5–10.6 ppb,¹⁴⁾ Oslo (ノルウェー) 中心

TABLE I. VAH Concentrations in the Atmosphere

	<i>n</i>	Mean concentration (ppb)					
		Benzene	Toluene	Ethylbenzene	<i>o</i> -Xylene	<i>m</i> -Xylene	<i>p</i> -Xylene
St. 1	48	1.1 (0.90)	1.5 (1.2)	0.25 (0.21)	0.19 (0.16)	0.42 (0.35)	0.17 (0.13)
St. 2	48	1.3 (1.2)	2.0 (1.7)	0.32 (0.25)	0.23 (0.19)	0.55 (0.46)	0.22 (0.18)
St. 3	48	2.6 (2.4)	3.5 (3.2)	0.59 (0.52)	0.46 (0.41)	1.1 (1.0)	0.48 (0.42)
<i>M</i> ^{a)}	144	1.7 (1.3)	2.3 (1.9)	0.39 (0.30)	0.29 (0.23)	0.70 (0.54)	0.29 (0.22)

a) Mean of St. 1–3. Parenthesis: geometric mean.

部で $4-114 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ($1.2-35.1 \text{ ppb}$),¹⁰⁾ 岡山県倉敷市で $1.4-6.9 \text{ ppb}$,¹⁵⁾ Oakland (米国) で $1.6 \pm 1.2 \text{ ppb}$,⁹⁾ Silwood Park (英国) で $1.64 \pm 0.80 \text{ ppb}$,¹³⁾ 東京都上空 300 m で $2.36 \pm 1.52-9.60 \pm 5.52 \text{ ppb}$,¹⁸⁾ 高速道路付近の Toddington (英国) で $2.6 \pm 2.02 \text{ ppb}$,¹³⁾ Phoenix (米国) で $4.7 \pm 6.8 \text{ ppb}$,⁹⁾ Los Angeles (米国) で $6.0 \pm 4.5 \text{ ppb}$,⁹⁾ London (英国) で $6.96 \pm 5.41 \text{ ppb}$ ¹³⁾ 等の報告がある。これらの値については、本研究の結果と比べて高濃度となっているものも多い。この理由として、測定地点周辺の状況が異なること以外に、測定における差異、すなわち、試料の採取時間が短く、しかも、濃度の高い昼間や週日に測定が集中していることなども影響していると考えられる。^{8,10,17)}

各地点における月別の平均濃度を Fig. 2 に示す。おおむね冬季間に高い傾向が見られた。季節による濃度差が見られる例として、1-2 月には 7-8 月よりも濃度が高いという New Jersey 州における報告や、¹¹⁾ 逆に 8-9 月には 3 月より濃度が高いという Oslo における報告等がある。¹⁰⁾ 本研究における結果は New Jersey 州における報告とよく一致していた。

VAH は光化学反応で分解されることが知られて

Fig. 2. Monthly Variations of VAH Concentrations in Ambient Air

■: benzene, ▨: toluene, ■: ethylbenzene, ▩: o-xylene, ▨: m-xylene, ▨: p-xylene. M: mean at each site.

いる。^{19,31)} 例えば、田中は、¹⁹⁾ 時間経過にともない、ベンゼンに比べて OH ラジカルとの反応性の高いキシレンの減少が認められたと報告している。気温が高く日射量が多い夏季では、この反応が進行しやすいため、夏季には ΣVAH が低くなる可能性が考えられる。しかし、Fig. 2 に示すように、夏季にはいずれの VAH 濃度も減少しており、相互の相対比には明確な違いが認められないことから、光化学反応は必ずしも季節変動の主たる原因とは考えられなかった。

St. 1-3 のうち、もっとも VAH 濃度が高く、しかも他の大気汚染物質の測定データが入手できた St. 3 について、以下に、さらに解析を加える。

St. 3 における ΣVAH と大気安定度との関係を Fig. 3 に示す。あわせて、大気汚染の指標となる項目と大気安定度との関係も示す。なお、大気安定度 C, D, 及び E は、各々、弱不安定、中立、及び弱安定を意味する。大気が安定なほど ΣVAH や他の大気汚染指標の濃度が高い傾向が見られた。そして、冬季間では、大気は夏季間より安定な場合が多いことから、冬季間において ΣVAH が高いことが考えられる。

St. 3 において対象とした 6 種の VAH の濃度相互間には高い正の相関が認められた (Table II)。このような関係は他の地点でも報告されている。⁸⁾ しかし、後述するように、トルエンがベンゼンやキシレンと相関関係に無い例も報告されている。¹¹⁾

Fig. 3. Relation between Pollutant Concentrations and Stability of the Atmosphere

●: ΣVAH , ■: SO_2 , □: $\text{CO} \times 10^{-2}$, ▲: $\text{NO} \times 10^{-1}$, △: $(\text{nonmethane hydrocarbons}) \times 10^{-2}$, ○: $\text{NO}_2 \times 10^{-1}$.

TABLE II. Coefficients of Correlations Among VAH Concentrations at St. 3

	Benzene	Toluene	Ethylbenzene	<i>o</i> -Xylene	<i>m</i> -Xylene	<i>p</i> -Xylene
Toluene	0.82					
Ethylbenzene	0.82	0.80				
<i>o</i> -Xylene	0.85	0.90	0.89			
<i>m</i> -Xylene	0.78	0.83	0.91	0.94		
<i>p</i> -Xylene	0.79	0.83	0.90	0.95	0.90	
ΣVAH	0.92	0.96	0.90	0.96	0.91	0.91

ΣVAH: total amounts of the 6 VAHs.

TABLE III. Coefficients of Correlations between ΣVAH and Another Items

SO ₂	0.16	HC ^{b)}	0.35*
SPM ^{a)}	-0.10	Temperature	-0.23
NO	0.46**	SR ^{c)}	-0.21
NO ₂	0.32*	Presipitation	-0.05
NO+NO ₂	0.43**	Wind speed	-0.31*
CO	0.36*		

a) Suspended particulate matter.

b) Nonmethane hydrocarbons.

c) Flux of global solar radiation.

*: $p < 0.05$, **: $p < 0.01$.

St. 3におけるΣVAHと大気汚染や気象状況の指標となる項目との相関関係を Table III に示す。VAH 相互間でみられたような特に高い相関は認められなかったが、ΣVAH は、主に自動車排ガスに由来する一酸化窒素、二酸化窒素、一酸化炭素、及び非メタン炭化水素、^{3,32)} 並びに風速と有意な相関関係にあった。

St. 3におけるΣVAHの濃度は重回帰分析により、(1)式で回帰された。

$$[\Sigma \text{VAH}] = 0.178 \times [\text{NO}] - 1.17 \times v - 0.278 \times [\text{NO}_2] + 13.06 \quad (1)$$

St. 3におけるΣVAHと(1)式による推定値ΣVAH_E (ppb)を Fig. 4 に示す。(1)式による寄与率はやや低いものの ($r^2 = 0.35$), ΣVAH とΣVAH_E とは同様の変動を示していることから、ΣVAH は(1)式によりおおむね良好に回帰されることが考えられた。また、大気汚染の指標となる項目との月別平均濃度の変動をあわせて示す。SO₂ をのぞき、おおむねΣVAHと同様の濃度変動を示した。

各地点におけるVAH濃度のベンゼンに対する相対比を Table IV に示す。また、大気、排ガス及びガソリン蒸気中のVAHの報告値から算出した相対比を Table IV にあわせて示す。大気中の相対比が他に比べてかなり異なる地点もあり、発生源が地点により異なることを示している。^{8,11,21)} 田中らは、⁸⁾ 固

Fig. 4. Variations of ΣVAH Observed, ΣVAH Estimated and the Other Pollutants at St. 3

●: ΣVAH observed, ◆: ΣVAH estimated by the following equation derived from multiple regression analysis:

$$[\Sigma \text{VAH} (\text{ppb})] = 0.178 \times [\text{NO} (\text{ppb})] - 1.17 \times v - 0.278 \times [\text{NO}_2 (\text{ppb})] + 13.06$$

where v (m/s) is wind speed. The other symbols: refer to the caption of Fig. 3.

定発生源の無いつくば市において、C₆—C₈炭化水素の濃度比について、大気中と自動車排ガス中との類似性が高いと報告している。本研究でも、測定地点により相対比がやや異なる場合もあるが、St. 1—St. 3とも、おおむね自動車排ガスの影響を強く受ける自動車専用トンネル中¹⁸⁾における相対比と類似している。

以上のことから、St. 1—St. 3とも大気中のVAHは主に自動車排ガスに由来すると考えられた。そして、VAH濃度は St. 1 ≤ St. 2 < St. 3 の順に高いこと

TABLE IV. Relative VAH Ratio to Benzene (Benzene=1.0)

	Toluene	Ethylbenzene	<i>o</i> -Xylene	<i>m</i> -Xylene	<i>p</i> -Xylene
Atmosphere					
St. 1 ^{a)}	1.4	0.25	0.19	0.41	0.16
St. 2 ^{a)}	1.5	0.23	0.17	0.42	0.17
St. 3 ^{a)}	1.4	0.22	0.17	0.42	0.17
<i>M</i> ^{a)}	1.4	0.23	0.17	0.41	0.16
Phoenix, AZ, USA ^{b)}	2.8	0.39	0.53	1.5 ^{m)}	
Chicago, IL, USA ^{b)}	2.1	0.31	0.30	0.69 ^{m)}	
Houston, TX, USA ^{b)}	1.8	0.26	0.41	0.93 ^{m)}	
Philadelphia, PA, USA ^{b)}	2.2	0.40	1.0	1.3 ^{m)}	
Pittsburgh, PA, USA ^{b)}	0.81	0.12	0.12	0.27 ^{m)}	
CA and AZ, USA ^{c)}	1.9	0.40	0.40	0.87 ^{m)}	
Silwood Park, UK ^{d)}	0.79	0.088	0.13	0.31 ^{m)}	
Toddinton, UK ^{d)}	1.0	0.065	0.10	0.29 ^{m)}	
London, UK ^{d)}	2.23	0.11	0.11	0.33 ^{m)}	
Oslo, Norway ^{e)}	1.9	—	0.26	0.52	0.25
Tsukuba, Ibaraki ^{f)}	2.14	0.31	0.18	0.51 ^{m)}	
Ichihara, Chiba ^{g)}	2.7	0.25	0.13	0.23	0.12
Automobile Tunnel ^{h)}	1.5	0.38	0.28	0.67	0.30
Vehicle exhaust					
A ⁱ⁾	0.92	0.14	0.15	0.30	0.14
B ^{j)}	1.5 ⁿ⁾	0.21 ^{o)}	0.41 ^{p)}	0.61 ^{m)}	
C ^{k)}	1.97	0.20	0.18	0.55 ^{m)}	
Gasoline vapor ^{l)}	0.92	0.09	0.09	0.21 ^{m)}	

a) This work. b) Data calculated from ref. 21). c) Data calculated from ref. 9). d) Data calculated from ref. 13). e) Data calculated from ref. 10). f) Data cited from ref. 8). g) Data calculated from ref. 12). h) Data calculated from ref. 18). i) A 76' emission controlled vehicle: data calculated from ref. 4). j) Mean of 46 vehicles: data calculated from ref. 3). k) Mean of 6 vehicles: cited from ref. 8). l) Data calculated from ref. 2). m) Total amount of *m*- and *p*-xylene. n) Benzene and/or cyclohexane. o) Toluene and/or 2,3-dimethylhexane. p) *o*-Xylene and/or C₉ paraffin.

から、測定地点における交通量を反映しているものと考えられる。

各測定地点における VAH 濃度の曜日毎の平均濃度を Fig. 5 に示す。測定地点や測定時によりやや異なるが、交通量が比較的減少すると考えられる日曜日には、VAH 濃度の減少する傾向が見られ、やはり交通量との関連性が示された。

ところで、St. 2 における 6 月の調査では、他の VAH 類に比べてトルエンの相対比がやや高かった (Fig. 2)。この原因として、測定地点から約 20 m 離れた家屋における塗装作業で使用された溶剤の影響によるものと考えられた。なお、トルエン濃度が他に比べて高いという同様な傾向は、New Jersey 州における調査でも報告されており、その理由として、測定地点付近に立地する塗装工場の影響が指摘されている。¹¹⁾

対象とした VAH のうち、ベンゼンについては発ガン性を有することが知られており、米国環境保護庁は大気中のベンゼンによる発ガンのユニットリス

Fig. 5. Weekly Variations of VAH Concentrations in Ambient Air

Symbols: refer to the caption of Fig. 2.

クを $8.3 \times 10^{-6} (\mu\text{g}/\text{m}^3)^{-1}$ としている。²⁷⁾ そこで、この値を用いて、St. 1—St. 3における大気中ベンゼン濃度の平均値(C , ppb)による過剰発ガンリスク(生涯期間を70年とした場合におけるガン発症人口の増加数, Rc)を(2)式で試算した。

$$Rc = C \times Mw / (R \times T) \times 8.3 \times 10^{-6} \quad (2)$$

ただし、 Mw , R 及び T は、各々、ベンゼンの分子量 (78.11), ガス定数 ($0.082058 \text{ dm}^3 \text{ atm K}^{-1} \text{ mol}^{-1}$) 及び温度 (293.15 K) である。その結果、大気中のベンゼンによる Rc は、St. 1 では 30×10^{-6} , St. 2 では 35×10^{-6} , St. 3 では 70×10^{-6} , また、全測定地点の平均では 46×10^{-6} であった。

三浦らは、²⁵⁾ 日本国内における大気中のベンゼンによる平均 Rc を 66×10^{-6} と推定している。また、

米国におけるベンゼン濃度の24時間値の報告値から、^{11,16,21)} (2)式で Rc を算出すると、 34×10^{-6} — 248×10^{-6} となる。これらの値と比較すると、St. 3における Rc は、ベンゼンの平均的レベルに、また、St. 1 及び 2 では低いレベルにあるものと考えられる。なお、三浦らは、²⁵⁾ 代表的な発ガン性化合物である四塩化炭素及びベンゾ[a]ピレンによる平均 Rc についても、各々、 16×10^{-6} 及び 3×10^{-6} と推定している。また、斎藤らは、³³⁾ 岩手県内における大気中1-ニトロピレンによる $Rc/70$ を 0.0076×10^{-6} — 0.242×10^{-6} と報告している。これらの値と比較すると、ベンゼンによるリスクはこれらの化合物よりも大きいものと推定された。

引用文献

- 1) V.R. Roe, M.L. Lacy, J.D. Stuart, G.A. Robbins, *Anal. Chem.*, **61**, 2584 (1989).
- 2) 樫村弘秋, 須山芳明, 才木義夫, 山本明夫, 永見康二, 大気汚染学会誌, **18**, 432 (1983).
- 3) J.E. Sigsby, Jr., S. Tejada, W. Ray, J.M. Lage, J.W. Duncan, *Environ. Sci. Technol.*, **21**, 466 (1987).
- 4) 須山芳明, 中沢 誠, 片桐佳夫, 神奈川県公害センター研究報告, **1**, 1 (1980).
- 5) C.V. Hampton, W.R. Pierson, T.M. Harvey, W.S. Updegrave, R.S. Marano, *Environ. Sci. Technol.*, **16**, 287 (1982).
- 6) C.V. Hampton, W.R. Pierson, D. Schuetzle, T.M. Harvey, *Environ. Sci. Technol.*, **17**, 699 (1983).
- 7) 若松伸司, 鶴野伊津志, R.A. Wadden, 国立公害研究所報告, **61**, 7 (1984).
- 8) 田中敏之, 今井 隆, 小林 悟, 日化, **1990**, 312.
- 9) H.B. Singh, L.J. Salas, A. Smith, H. Shigeihi, "Atmospheric Measurment of Selected Toxic Organic Chemicals," National Technical Information Service, Springfield, VA, 1980.
- 10) B.M. Wathne, *Atmos. Environ.*, **17**, 1713 (1983).
- 11) P.J. Liroy, J.M. Daisey, *J. Air Pollut. Control Assoc.*, **33**, 649 (1983).
- 12) 中西基晴, 吉成晴彦, 松浦章良, 千葉県公害研究所研究報告, **14**, 109 (1983).
- 13) A.I. Clark, A.E. McIntyre, J.N. Lester, R. Perry, *Sci. Total Environ.*, **39**, 265 (1984).
- 14) 中西基晴, 千葉県公害研究所研究報告, **17**, 19 (1985).
- 15) 前田 泉, 小田淳子, 豊沢澄治, 市川省吾, 石井邦彦, 岡山県環境保健センター年報, **9**, 80 (1985).
- 16) K.K. Fung, B.J. Wright, *J. Air Pollut. Control Assoc.*, **36**, 819 (1986).
- 17) Y. Yokouchi, Y. Ambe, T. Maeda, *Anal. Sci.*, **2**, 571 (1986).
- 18) 早福正孝, 宇田川満, 伊藤政志, 東京都環境科学研究所年報, **1991**, 48.
- 19) 田中敏之, 大気汚染学会誌, **26**, 340 (1991).
- 20) J.J. Shah, H.B. Singh, *Environ. Sci. Technol.*, **22**, 1381 (1988).
- 21) S.A. Edgerton, M.W. Holdren, D.L. Smith, J.J. Shah, *J. Air Waste Manage. Assoc.*, **39**, 729 (1989).
- 22) M.A. Cohen, P.B. Ryan, Y. Yanagisawa, J.D. Spengler, H. Özkaynak, P.S. Epstein, *J. Air Waste Manage. Assoc.*, **39**, 1086 (1989).
- 23) 田中敏之, 公害, **19**, 121 (1984).
- 24) A.T. Hodgson, J.M. Daisey, R.A. Grot, *J. Air Waste Manage. Assoc.*, **41**, 1461 (1991).
- 25) 三浦 卓, 田辺 潔, 相馬悠子, 日本リスク研究学会第4回研究発表会論文集, 1991, pp.1—5.
- 26) R. Harkov, "Toxic Air Pollution," ed. by P.J. Liroy, Lewis Pub., Chelsea, MI., 1987, pp.251—283.
- 27) D.J. Paustenbach, J.D. Jernigan, B.L. Finley, S.R. Ripple, R.E. Keenan, *J. Air Waste Manage. Assoc.*, **40**, 1620 (1990).
- 28) 川田邦明, 藤枝義丸, 衛生化学, **38**, 355 (1992).

-
- 29) 新潟県環境保健部公害対策課, 新潟県大気汚染監視テレメータシステムデータ, 1992.
 - 30) 柳井晴夫, 高木廣文, “多変量解析ハンドブック,” 現代数学社, 東京, 1986, pp.18—69.
 - 31) K. Nojima, K. Fukaya, S. Fukui, S. Kanno, *Chemosphere*, **5**, 247 (1974).
 - 32) T. Godish, “Air Quality,” 2nd ed., Lewis Pub., Chelsea, MI., 1991, Chapter 8.
 - 33) 斎藤憲光, 和田安彦, 小泉昭夫, 加美山茂利, 日本衛生学雑誌, **45**, 873 (1990).