

国立環境研究所研究プロジェクト報告 第137号
NIES Research Project Report, No.137

SR-137-2020

大気中の有機粒子の各種毒性に対する発生源別寄与の解明 (所内公募型提案研究)

Source apportionment of various toxicities by
atmospheric organic aerosols

平成29～令和元年度
FY2017～2019

NIES



国立研究開発法人 国立環境研究所
NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES
<https://www.nies.go.jp/>

国立環境研究所研究プロジェクト報告 第137号

NIES Research Project Report, No.137

SR-137-2020

大気中の有機粒子の各種毒性に対する発生源別寄与の解明 (所内公募型提案研究)

Source apportionment of various toxicities by
atmospheric organic aerosols

平成29～令和元年度
FY2017～2019

所内公募型提案研究「大気中の有機粒子の各種毒性に対する発生源別寄与の解明」
(期間：平成 29 ～令和元年度)

課題代表者：伏見暁洋

執 筆 者：伏見暁洋、中島大介、古山昭子、鈴木 剛、伊藤智彦、藤谷雄二、
佐藤 圭、近藤美則、吉野彩子

編 者：伏見暁洋

序

本報告書は、2017～2019年度の3年間にわたって実施した所内公募型提案研究A「大気中の有機粒子の各種毒性に対する発生源別寄与の解明」（課題代表者：伏見 暁洋）の研究成果をとりまとめたものです。

大気中に浮遊する直径2.5 μm以下の微小粒子状物質（PM_{2.5}）は、呼吸の際に肺や気管などに沈着しやすく、人の健康に悪影響を及ぼすおそれがあるため、大気環境の保全を考えるうえで非常に重要な物質です。日本においては、PM_{2.5}の環境基準達成率は近年80%以上と良好なレベルで推移していますが、世界保健機関によると、PM_{2.5}は健康にリスクをもたらす環境要因の中で最も大きなものであり、世界中で毎年約300万人が亡くなっていると推定されています。大気中のPM_{2.5}による健康リスクを低減するためには、その発生源や環境中の動態を理解することが重要です。また、PM_{2.5}の化学組成はその発生源や採取地点によって異なることが知られていることから、その毒性や健康影響の違いについても検討する必要があると考えられます。

本研究では、これらの点に着目し、大気中のPM_{2.5}の毒性に対して寄与の大きい発生源を推定するための手法を構築することを目標としました。具体的には、PM_{2.5}の毒性に大きく関与していると考えられる有機物の毒性に着目し、有機物を主体とする粒子（有機粒子）の主要な発生源（ガス状物質が大気中で粒子化した二次有機粒子、自動車排気、野焼き排気、調理排気）を対象に、化学組成と毒性（酸化能、炎症能、アリル炭化水素受容体（AhR）アゴニスト活性、DNA損傷性）を実験的に評価しました。また、大気中のPM_{2.5}試料も採取し、同様の方法で化学組成と毒性を評価しました。そして、発生源と大気試料の分析結果を組み合わせた解析によって、大気PM_{2.5}中の有機物が示す毒性に、どの発生源がどの程度寄与しているかを定量的に推定しました。その結果、PM_{2.5}有機物の毒性に対して寄与の大きい発生源やその順位は、現在の環境基準の基礎となっている粒子質量に寄与の大きい発生源やその順位とは大きく異なることが明らかになりました。本研究の結果から、大気中のPM_{2.5}へのより効果的な対策を検討する際には、粒子の質量だけでなく、その化学組成や健康影響・毒性も考慮することが望ましいと考えられます。

最後に、本研究を進めるにあたり、研究所内外の多くの方々にご協力とご支援をいただきました。ここに深く感謝いたします。

2021年3月

国立研究開発法人 国立環境研究所

理事長 渡 辺 知 保

目 次

1	研究の概要	1
1.1	研究全体の目的、目標、構成	1
1.2	研究の概要	2
1.2.1	大気・発生源試料の採取・化学分析・発生源寄与推定	2
1.2.2	大気・発生源試料の毒性評価	3
1.2.3	各毒性に対する発生源別寄与推定	3
2	研究の成果	4
2.1	本研究で提案した有機粒子の毒性に対する発生源寄与推定法	4
2.2	サブテーマ1：大気・発生源試料の採取・化学分析・発生源寄与推定	7
2.2.1	目的	7
2.2.2	方法	7
2.2.3	結果と考察	19
2.3	サブテーマ2：大気・発生源試料の毒性評価	23
2.3.1	目的	23
2.3.2	方法	23
2.3.3	結果と考察	26
2.4	サブテーマ3：各毒性に対する発生源別寄与推定	42
2.4.1	目的	42
2.4.2	方法	42
2.4.3	結果と考察	42
2.5	まとめ	43
【資料】		
1	研究の組織と研究課題の構成	51
1.1	研究の組織	51
1.2	研究課題と担当者	52
2	研究成果発表一覧	53
2.1	誌上発表	53
2.2	口頭発表	56

1 研究の概要

1.1 研究全体の目的、目標、構成

大気中の粒径 2.5 μm 以下の微小粒子 ($\text{PM}_{2.5}$) は人の健康に悪影響を及ぼすため、大気環境を保全する上で優先的に対策されるべき重要な物質である¹⁻⁹⁾。しかし、 $\text{PM}_{2.5}$ の起源、生成プロセス及び環境中での挙動は複雑で完全には解明されていない^{10,11)}。 $\text{PM}_{2.5}$ の発生源に対して効果的な対策を立案するためには、 $\text{PM}_{2.5}$ の起源を明らかにする必要がある。大気中の $\text{PM}_{2.5}$ の発生源推定には、シミュレーションモデルのほか、ケミカルマスバランス (CMB) 法や PMF (Positive Matrix Factorization) 法等のレセプターモデルが世界中で用いられてきた¹²⁻¹⁴⁾。金属元素等を用いた CMB 法 (元素 CMB 法) は、自動車排気やゴミ焼却、重油燃焼、土壌等の発生源の寄与率を推定できるが、農作物残渣等の屋外焼却 (野焼き) や、調理等有機物を主成分とする発生源については推定精度が低い^{14,15)}。一方、米国等では、主な PM 発生源についての化学組成 (発生源プロファイル) が網羅的に調べられ¹⁶⁻²²⁾、有機成分等を用いた CMB 法 (有機 CMB 法) も実施され多くの知見を提供してきた^{12,23,24)}。

PM の環境基準値は粒子の質量に基づいて定義されており、排出規制も粒子の質量あるいは個数に基づいて定められている。したがって、粒子の質量濃度に対する発生源の寄与を推定する従来の発生源推定法は、粒子質量あたりの健康影響や毒性が発生源によって異なる場合には十分であると思われる。しかし、粒子質量あたりの酸化ストレス (毒性指標の 1 つ) の強さが、採取する大気の場合や発生源 (自動車排気ガスや多くの種類の二次有機粒子: SOA) によって大きく異なることが近年明らかになってきている^{25,8)}。粒子の化学組成は大気の場合や季節、発生源ごとに大きく異なるため、粒子の質量あたりの毒性強度が異なることは不思議ではない。粒子のサイズや化学組成、そして発生源を考慮して大気粒子の健康影響を評価することの重要性も指摘されているが¹⁾、発生源ごとの毒性の違いを直接評価に組み込んだ例は少ない^{26,27)}。

そこで、本研究では、種々の大気 $\text{PM}_{2.5}$ 中の有機物による各種毒性に対する発生源別の寄与を明らかにすることを目的とした。本研究では、この目的のため、有機 CMB 法と毒性評価を組み合わせた方法を提案した。図 1 に研究の全体構成を、以下に本研究の目標を示す。

- (目標 1) 有機粒子発生源 4 種 (SOA、自動車、野焼き、調理) の発生源プロファイル (粒子質量に占める有機成分、元素状炭素 EC、有機炭素 OC、元素、イオン成分の比率) の作成。
- (目標 2) 有機 CMB 法により各種の大気有機粒子の質量に対する発生源別寄与を明らかにする。
- (目標 3) 発生源及び大気中の微小粒子に含まれる有機物による毒性 (酸化能、炎症能、AhR 活性、DNA 損傷性) の強さを明らかにする。そして、発生源ごとの毒性強度を毒性の種類別に比較する。さらに、化学物質や発生源 PM 試料を用いて毒性の相加性の程度を検証する。
- (目標 4) 大気有機粒子の各種毒性に対する発生源別寄与を明らかにする。

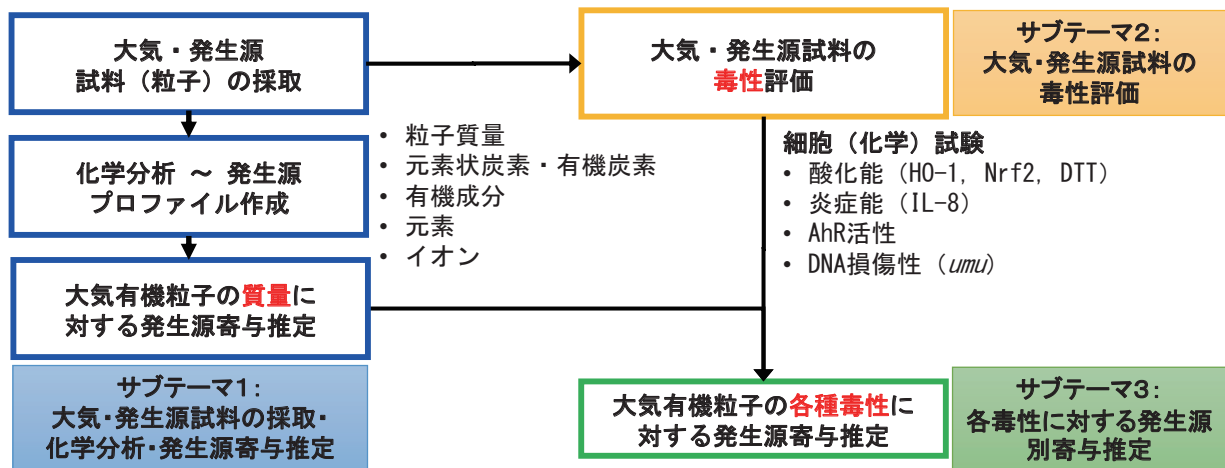


図1 研究の全体構成

1.2 研究の概要

1.2.1 大気・発生源試料の採取・化学分析・発生源寄与推定

SOA、自動車、野焼き、調理の4種有機粒子発生源、及び寄与率の高い発生源が大きく異なると予想される7種類の大気PM_{2.5}試料を、国立環境研究所(NIES: National Institute for Environmental Studies)の施設等において、テフロンフィルター及び石英繊維フィルターに採取した。発生源試料としてSOAは植物起源SOA(BSOA)3種類、人為起源SOA(ASOA)3種類、自動車はディーゼル車2台で計4種類(DEP)、野焼き4種類、調理4種類の計18種類(各試料n=2)を採取した。大気試料は、7種類(夏季・冬季東京両国、冬季川崎市沿道、秋季つくば、夏季辺戸岬、夏季富士北麓、冬季中国北京市)の試料を各n=7程度採取した。採取・入手した大気試料と発生源試料に関して、粒子質量、EC/OC、有機成分、元素、イオンの分析を行い、CMBに使用可能な発生源プロファイルを作成した。採取・測定した発生源と大気PM_{2.5}の組成を用い、有機成分を用いたCMB法による起源推定を行った。発生源プロファイルは、本研究で測定した発生源に関してはそのプロファイルを用い、それ以外の発生源については文献値を用いた。CMB解析には主な一次粒子発生源のみを含め、OC濃度に対する各発生源の寄与率を推定した。SOAに関しては、SOA中の特徴的な有機成分とSOA質量との比(トレーサー法)を用いて、ピネン起源SOA、イソプレン起源SOA(植物起源)、トルエン起源SOA(TolSOA)及びナフタレン起源SOA(NapSOA)(人為起源)の4種類の寄与濃度を推定した。

採取した試料を分析した結果、発生源試料と大気試料は、いずれも概ね期待した濃度や化学的特徴を持っていた。有機CMBの結果、予想通り、大気試料の採取地点や季節によって、主たる発生源が異なることが示された。例えば、秋の郊外(つくば)では、野焼きの寄与が突出して大きく、OC濃度の約50%を占めると推定された。つくばでは、農作物残渣の野焼きが秋に頻繁に行われるため、妥当な結果だと思われる。夏の都心(両国)では、調理とナフタレン起源SOAの寄与が高かった。一方、冬の都心(両国)では、夏に比べると、調理とナフタレン起源SOAの寄与がやや下が

り、野焼き、石炭燃焼、自動車排気の寄与が増えた。東京は自動車の交通量が多いほか、人為的排出が多様で大きいため、妥当な結果だと思われる。冬の沿道（川崎）では、OC濃度の約20%が自動車排気起因と推定された。この他、野焼き、調理、石炭燃焼の寄与が高かった。なお、同じ場所で行われた他の研究でも、調理排気の寄与は本研究によるものと同レベルと推定されている。

1.2.2 大気・発生源試料の毒性評価

テフロンフィルターに捕集した大気中及び発生源の粒子試料を有機溶媒（ジクロロメタンとアセトン）で抽出・ろ過した後、ジメチルスルホキシド（DMSO）に転溶し、毒性を評価した。毒性評価は、細胞を用いたバイオアッセイ及び化学アッセイにより行った。HO-1、Nrf2、DTTにより酸化能を、IL-8により炎症能を、PAH-CALUXによりAhR結合活性を、そして*umu*試験によりDNA損傷性（遺伝毒性）を評価した。毒性評価に際しては、まず毒性の定量性と定量方法を検討し決定した。また、標準物質と発生源試料を用いて、毒性の相加性の検証試験を行った。

PM試料のOC質量あたりの毒性応答は、発生源ごとに大きく異なることが確認された。酸化能（HO-1、Nrf2、DTT）と炎症能（IL-8）の傾向は互いに類似していた。酸化能と炎症能に対しては、興味深いことに、NapSOAが一貫して最も強い応答を示し、次いで、野焼き、DEP、TolSOAであった。BSOAと調理は一貫して非常に低い応答を示した。AhR活性とDNA損傷性（*umu* + S9）の傾向は、酸化能や炎症能とは大きく異なっていた。AhR活性は、野焼きが非常に強く、次いで、DEP、調理、NapSOAであった。TolSOAとBSOAの応答は非常に弱かった。DNA損傷性（*umu* + S9）はDEPサンプルで顕著に高く、BSOAとTolSOAが次に高かった。NapSOA、野焼き、調理のPM試料は不検出であった。このように、調理の排気粒子の毒性応答は、全ての評価項目において一貫して低いという興味深い結果であった。

大気微小粒子の毒性応答は、北京のAhR活性を除くと、概して発生源PM試料の中程度かそれ以下のレベルであった。酸化能（HO-1、Nrf2、DTT）の傾向は互いに類似していた。炎症能（IL-8）の傾向は、酸化能とは少し異なっていた。大気微小粒子試料の中では、都市部と沿道の試料が、概して強い毒性応答を示した。夏季のリモート地域（辺戸）の試料の毒性応答は一貫して極めて低かったことは興味深い。この結果は、夏季に長時間（例えば1週間程度以上）大気中でエイジング（酸化反応）を受けると、大気粒子の毒性が下がることを示している可能性がある。大気有機粒子の毒性の推定値と実測値の比較結果も、この仮説を支持するものであった。夏季の森林内のPM試料そして実験的に生成させたBSOAの毒性応答は概して低いことから、植物起源の一次粒子と二次粒子の毒性が比較的弱いことが示唆される。

1.2.3 各毒性に対する発生源別寄与推定

有機CMB法により得られた発生源別寄与率に発生源の毒性強度を乗じ、大気有機粒子の各種毒性に対する発生源別の寄与率を推定した。この結果に基づき、種々の大気有機粒子の毒性に対して寄与の大きい発生源を考察した。

その結果、まず、酸化能（HO-1、Nrf2、DTT）と炎症能（IL-8）については、NapSOAの寄与が支配的であり、次いで野焼き、自動車排気、TolSOAの順であった。AhR活性は、野焼きの寄与が支配的で、次いでNapSOA、自動車排気、調理の順であった。DNA損傷性（*umu* + S9）は、自動車排気の寄与が支配的で、次いで野焼き、TolSOAの順であった。これらの結果から、本研究で評価対象とした発生源の中では、NapSOA、野焼き及び自動車排気が、酸化能と炎症能に対して重要な発生源だと推定された。一方、調理とBSOAの重要性は相対的に低いと推定された。

本研究では、有機成分を用いたCMB法と毒性データを用いて、大気有機粒子の様々な毒性に対する発生源寄与を推定する新しいアプローチを提案した。その結果、有機炭素質質量あたりの毒性応答は、発生源の種類や大気の地点・季節によって大きく異なることが確認された。毒性応答に対する相対的な発生源寄与率は、粒子質量に対する寄与率とは著しく異なった。さらに、それぞれの毒性応答に対して寄与の大きい発生源やその順位は、粒子質量に対するものとは異なった。これらの結果から、大気粒子の環境基準や排出規制に従来用いられてきた、粒子質量のみに基づく評価方法では、粒子の健康影響・毒性を適切に評価できない可能性があると思われる。そして、本研究で提案した手法や結果は、PM_{2.5}対策を検討する際に一定の指針を与えると思われる。

2 研究の成果

2.1 本研究で提案した有機粒子の毒性に対する発生源寄与推定法

本研究で提案した、大気有機粒子の毒性に対する発生源寄与を推定するためのアプローチの概念を図2に示す。まず、従来法として有機CMB法を用いて、大気有機粒子の質量に対する発生源の寄与率を推定する(図2a)。次に、それら発生源からの有機粒子の毒性を評価する(図2b)。最後に、これらの情報を掛け合わせ、大気有機粒子の各種毒性に対する発生源別寄与率を推定する(図2c)。

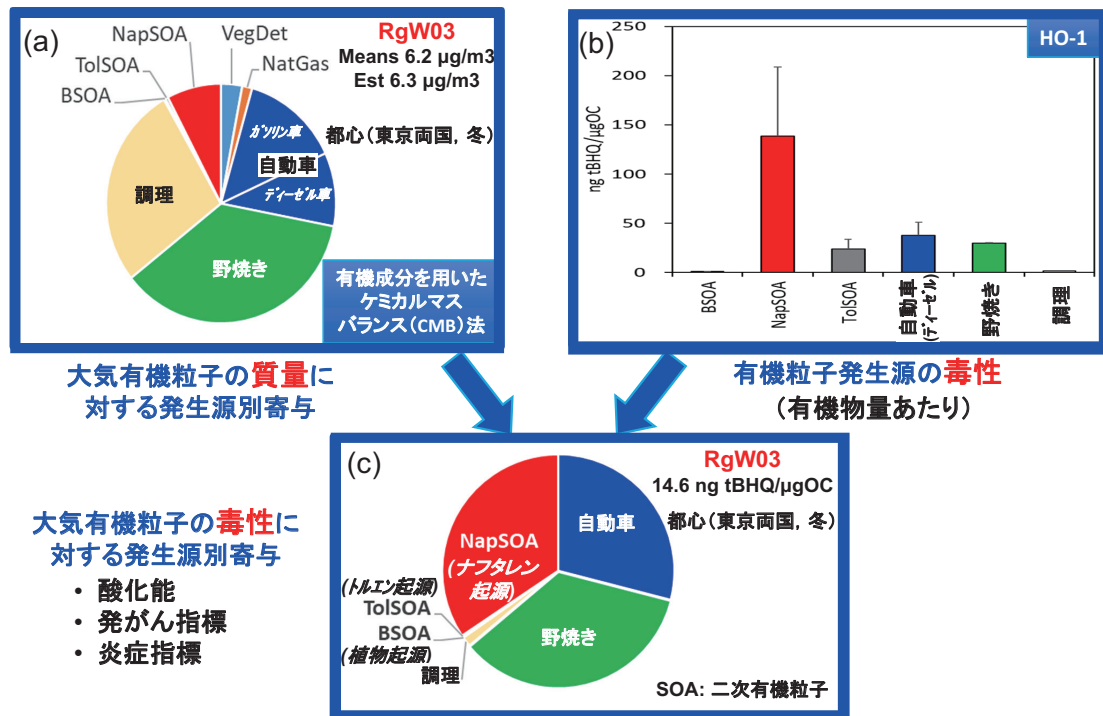


図2 大気有機粒子の各種毒性に対する発生源別寄与の解明

具体的な研究内容は次のとおりである。最初に、発生源解析に含めるべき主要な有機粒子発生源として、4種類の発生源(SOA、自動車排気、野焼き、調理)を選択した(表1)。これらの発生源は、有機CMB法によって郊外(茨城県つくば市、2012～2013年の年平均)の大気有機粒子に対して寄与率が最も大きかった4種である²⁸⁾。第2に、これらの発生源から実験的に粒子を発生させ、微小粒子試料を捕集した。また、我々のアプローチを検証するため、主に関与している発生源が異なると予想される場所・季節において大気中のPM_{2.5}試料を捕集した(表2)。第3に、発生源と大気中の微小粒子試料の化学組成(元素炭素:EC、有機炭素:OC、イオン成分、無機元素及び有機成分)を分析した。そして、有機CMB法のための発生源プロファイル(OCに対する有機成分とECの比率)を作成した。第4に、大気有機粒子の質量に対する発生源寄与率を有機CMB法で推定した。第5に、発生源及び大気中の有機粒子試料の毒性試験を行った。本研究で実施した毒性試験と人の健康影響とのあり得る関連性のイメージ図を図3に示す。さらに、毒性強度(細胞・化学試験の応答)の相加性についても実験的な検討を行った。最後に、大気有機粒子の各種の毒性に対する発生源別寄与率を推定した。

表 1 対象とした発生源微小粒子試料

発生源	詳細	ID
BSOA	α -Pinene + O ₃	BSOA1
	α -Pinene + O ₃ + OH	BSOA2
	Isoprene + O ₃	BSOA3
ASOA	Toluene + NO ₂ + CH ₃ ONO + h ν	ASOA1
	TMB + NO ₂ + CH ₃ ONO + h ν	ASOA2
	Naphthalene + NO ₂ + CH ₃ ONO + h ν	ASOA3
自動車 (DEP)	DEP (8L, JE05 hot)	DEP_8L-J
	DEP (8L, 2000 rpm x 0 Nm)	DEP_8L-2
	DEP (3L, JE05 hot)	DEP_3L-J
	DEP (3L, 2000 rpm x 0 Nm)	DEP_3L-2
野焼き	籾殻 (乾燥)	BB01
	稲藁 (乾燥)	BB04
	稲藁 (加湿)	BB05
	桜の小枝 (乾燥)	BB08
	バックグラウンド空気	BB09
調理	野菜炒め (ガスコンロ)	Cook02
	焼肉 (牛・豚・鶏; ガスコンロ)	Cook04
	焼肉 (牛・豚・鶏; 炭火)	Cook06
	炭火バックグラウンド	Cook08

表2 対象とした大気微小粒子試料

サンプリング場所 (種類、季節)	詳細	ID	サンプリング日時
辺戸 / 沖縄 (リモート、夏)	NIES 辺戸大気・エアロゾル 観測ステーション (沖縄本島北端辺戸岬)	Hd01-03	2017/7/3 12:00 - 7/5 11:00 2017/7/5 12:00 - 7/7 11:00 2017/7/7 12:00 - 7/10 11:00
		Hd04-05	2017/7/10 12:00 - 7/12 11:00 2017/7/12 13:00 - 7/14 11:00
		Fuji01	2017/8/18 15:00 - 8/21 13:00
		Fuji02	2017/8/21 15:00 - 8/23 14:00
		Fuji03	2017/8/23 16:15 - 8/25 13:00
富士北麓 (森林、夏)	NIES 富士北麓フラックス 観測サイト (地上 5m、海拔 1,050m)	Fuji05	2017/8/28 14:00 - 9/1 14:00
		Fuji06	2017/9/1 15:00 - 9/4 12:00
		Tk01	2017/10/26 12:00 - 10/27 11:00
つくば / 茨城 (郊外、秋)	NIES つくば大気観測・実験 施設(大気モニター棟)	Tk03	2017/10/31 12:00 - 11/1 11:00
		Tk04	2017/11/1 12:00 - 11/2 11:00
		Tk06	2017/11/6 12:00 - 11/7 11:00
		Tk07	2017/11/9 12:00 - 11/10 11:00
両国 / 東京 (都心、夏)	JR 両国駅近く 8階建てビル屋上 (両国 4-38-3 第8高島ビル)	RgS01	2017/7/3 14:00 - 7/4 14:00
		RgS02	2017/7/5 10:00 - 7/6 10:00
		RgS05	2017/8/3 10:00 - 8/4 10:00
		RgS06	2017/8/8 14:00 - 8/9 14:00
		RgS07	2017/8/22 12:00 - 8/23 12:00
両国 / 東京 (都心、冬)		RgW03	2018/1/16 12:00 - 1/17 12:00
		RgW04	2018/1/18 10:00 - 1/19 10:00
		RgW05	2018/1/23 11:00 - 1/24 11:00
		RgW06	2018/2/6 10:00 - 2/7 10:00
川崎 / 神奈川 (沿道、冬)	池上新町交差点 (臨港警察署前)	RgW08	2018/2/15 16:00 - 2/16 16:00
		Ks02	2017/12/18 12:00 - 12/19 11:00
		Ks03	2017/12/19 12:00 - 12/20 11:00
		Ks04	2017/12/20 12:00 - 12/21 11:00
		Ks05	2017/12/21 12:00 - 12/22 11:00
北京 / 中国 (高濃度、冬)	中国北京市中国科学院 大気物理研究所 2階建ビル屋上	Ks06	2017/12/25 12:00 - 12/26 11:00
		Pek01	2018/1/24 08:25 - 1/25 07:25
		Pek03	2018/1/26 08:34 - 1/27 07:34
		Pek04	2018/2/4 08:50 - 2/5 07:50
		Pek06	2018/2/8 08:51 - 2/9 07:51
Pek07	2018/2/17 08:52 - 2/18 07:52		

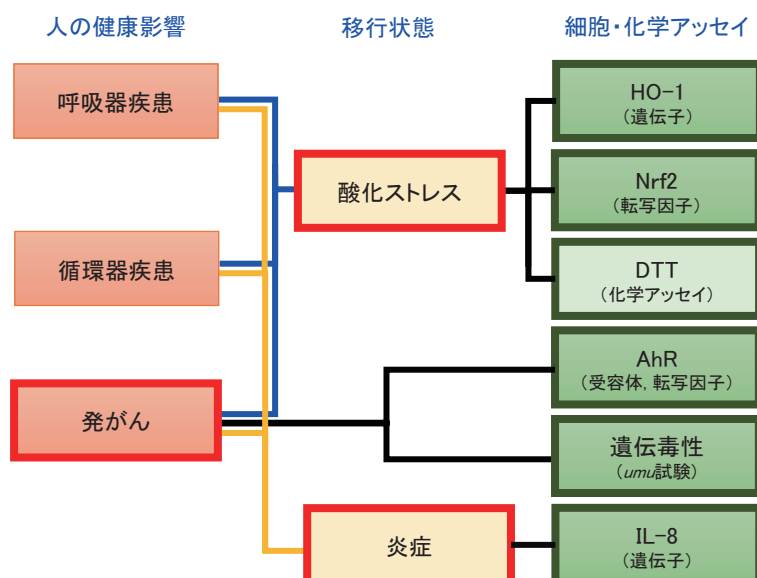


図3 本研究で行った毒性評価（細胞・化学アッセイ）と人の健康影響との関係に関するイメージ図

2.2 サブテーマ1：大気・発生源試料の採取・化学分析・発生源寄与推定

2.2.1 目的

本サブテーマでは、大気と発生源試料を採取し、化学分析と有機粒子（OA）質量に対する発生源寄与推定を行うことを目的とした。具体的な目標は以下のとおりである。

（目標1）大気・発生源試料の採取

（目標2）有機粒子発生源4種（SOA、自動車、野焼き、調理）の粒子の組成分析。発生源プロファイル（OCに対する有機成分とECの比率）の作成。

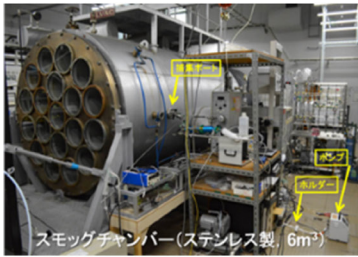
（目標3）大気粒子の組成分析

（目標4）OA質量に対する発生源別寄与率の推定

2.2.2 方法

(1) 発生源の微小粒子試料の採取

4種類の発生源において、典型的な条件（ $n \approx 2$ ）で実験を行い、そこから発生した微小粒子をテフロンフィルター及び石英繊維フィルターで同時に採取した（表1）。対象とした主な発生源試料は、植物起源SOA（BSOA）3種類、人為起源SOA（ASOA）3種類、ディーゼル排気粒子（DEP）4種類、野焼き5種類及び調理4種類、計19種類である。各発生源における試料採取時の様子を図4に示す。



SOA(スモッグチャンバー)



8Lディーゼルエンジン



3Lディーゼル貨物車



野焼き実験セットアップ



野焼き(稻藁)



野焼き(小枝)



調理実験セットアップ



調理(ポテトフライ)



調理(焼肉、炭火)

図4 発生源試料採取の様子

発生源粒子及び大気粒子を採取したテフロンフィルター（以下、「HVT フィルター」）試料は、特に明記しない限り、住友電気工業（株）製テフロンフィルター（Poreflon、WP-500-50、203 × 254 mm、孔径：5.0 μm）、柴田科学（株）製ハイボリウムエアサンプラー（HV-1000R、流量：580 L min⁻¹）及びHVI_{2.5}インパクター²⁹⁾（オイルを塗布しない石英繊維フィルター：Pallflex、HV-SF タイプ、130 mmΦ、PALL、East Hills、NY、USA を装着）を用いて採取した。サンプリング後、HVT フィルターは試料表面を内側にして2つ折りにし、アルミホイルで包んだ後ユニパックに入れて密封し、分析に供するまで、-80℃の冷凍庫内で保管した。

発生源粒子及び大気粒子を採取した石英繊維フィルター（以下、「47Qz フィルター」）試料は、特に明記しない限り、PALL 社製の石英繊維フィルター（Pallflex、2500QAT-UP、47 mmΦ、350℃で1時間空焼き処理）と WINS PM_{2.5} インパクター（オイル塗布なし石英繊維フィルター：Pallflex、2500AO、37 mmΦ、PALL を装着）を付けた Rupprecht&Patashnick 社製ローボリウムエアサンプラー（FRM 2000、流量：16.7 L min⁻¹）を使用して採取した。サンプリング後、47Qz フィルターは、内面をアルミホイルで覆ったペトリディッシュに入れた後ユニパックに入れて密封し、分析に供するまで、-80℃の冷凍庫で保管した。

4種類の発生源の発生やサンプリングの条件の概要を以下に示す。

二次有機エアロゾル（SOA、Secondary Organic Aerosol）の粒子は国立環境研究所の光化学スモッグチャンバー（図5）を用いて発生させた。光化学スモッグチャンバーの内壁は PFA コートされたステンレス製で、内容積は 6 m³ であり、

チャンバー内を真空排気することにより内部を清浄に保つことが可能になっている^{30,31)}。各実験の前にチャンバー内を空気精製器（堀場エステック製）によって発生させた精製空気で満たし、その後必要量の反応物のガスをチャンバー内に注入した。チャンバーの温度、全圧及び相対湿度は、それぞれ 298 ± 2 K、 1019 ± 10 hPa 及び $< 1\%$ に制御した。光照射実験では、キセノンアークランプ（1 kW × 19 灯）の光から Pyrex ガラスにより短波長紫外線（ < 290 nm）をカットしたものを模擬太陽光として照射した。反応物のガスの濃度は光路長 221.5 m の多重反射鏡と組み合わせたフーリエ変換赤外分光光度計（FTIR、日本分光製 FT/IR-6800）によって測定された。SOA 粒子の全有機物量の全有機炭素量に対する比率（OM/OC）は、飛行時間型エアロゾル質量分析計（ToF-AMS; Aerodyne Research 製、V-モード）³²⁾ を用いて測定した。標準型 ToF-AMS データ解析ソフトウェア（SQUIRREL）及び高分解能質量スペクトルデータ解析ソフトウェア（PIKA）を用いて ToF-AMS のデータ解析を行った。

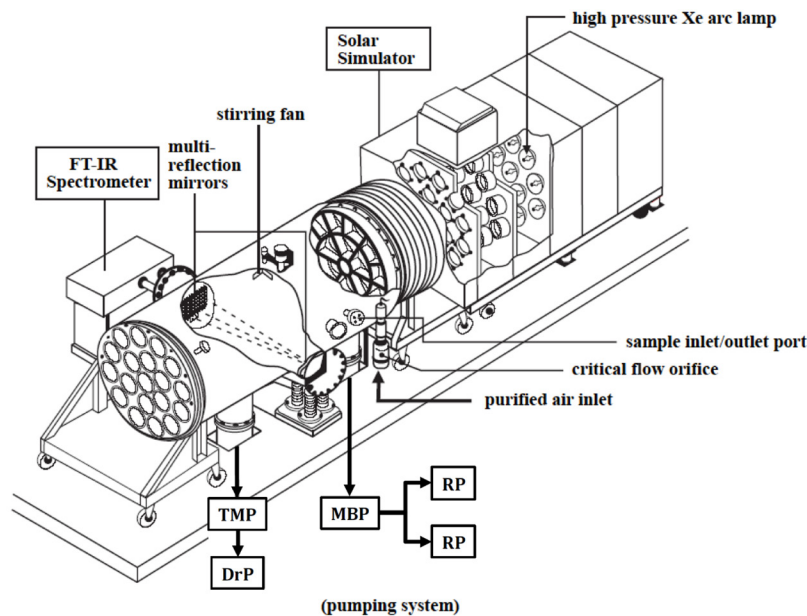


図5 NIES 光化学スモッグチャンバーシステムの概略図³³⁾

実験条件についてまとめたものを表3に示す。本研究の毒性試験には数ミリグラム～数十ミリグラムの粒子サンプルを必要とするため、チャンバー実験は高濃度条件のもとで行った。生物起源 SOA (BSOA) の前駆物質として α -ピネンとイソプレンを³⁴⁾、また人為起源 SOA (ASOA) の前駆物質としてトルエン、1,3,5-トリメチルベンゼン (TMB) 及びナフタレンを用いた³⁵⁾。BSOA 粒子は低 NO_x 条件のオゾン分解によって生成させた。この条件における生物起源有機物の主な酸化剤はオゾン及び二次的に生成する OH ラジカルである。SOA 粒子の光化学的変質（エイジング）の効果について調べるため、 α -ピネン由来の SOA に過剰な OH ラジカルを曝露する実験も行った。エイジング実験ではオゾン分解の開始から 1 時間後に 1 ppm の亜硝酸メチルを反応混合気体に添加し、その後に模擬太陽光を照射して亜硝酸メチルの光分解により OH ラジカルを生成した。ASOA 粒子は NO₂ 存在下の光酸化によって生成させた。SOA 生成を促進するため、初期に添加する NO_x として NO ではなく NO₂ を用い³⁶⁾、反応開始前に亜硝酸メチルを反応混合物に添加した。

表3 SOA生成のチャンバー実験に用いた化学反応、初期反応物濃度、捕集されたSOAの質量、空気の捕集体積及び計算によって求められたチャンバー内で生成したSOA濃度

実験No. 実験で用いた化学反応	[HC] ⁰ (ppm)	[O ₃] ⁰ (ppm)	[NO ₂] ⁰ (ppm)	[CH ₃ ON O] ⁰ (ppm)	フィルターNo.	捕集した SOA (mg)	捕集した 空気(m ³)	SOA 濃度 ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)
170626 α -ピネン/O ₃	0.97	1.96	SOA201706-01	1.444	0.595	2427
					SOA201706-02	1.300	0.665	1955
					SOA201706-03	1.503	0.991	1517
170627 α -ピネン/O ₃	0.85	1.87	SOA201706-04	1.124	0.548	2051
					SOA201706-05	1.461	1.000	1461
					SOA201706-06	1.214	1.000	1214
170629 α -ピネン/O ₃ + エイジング ^a	1.01	2.05	SOA201706-07	1.119	0.378	2960
					SOA201706-08	1.000	0.422	2370
					SOA201706-09	1.007	0.517	1948
170630 α -ピネン/O ₃ + エイジング ^a	1.00	2.40	SOA201706-10	1.086	0.500	2172
					SOA201706-11	1.092	0.501	2180
					SOA201706-12	1.259	0.859	1466
170703 イソプレン/O ₃	3.66	4.90	SOA201706-13	0.524	3.825	137
170704 イソプレン/O ₃	3.72	7.66	SOA201706-14	0.598	3.840	156
170705 イソプレン/O ₃	3.72	4.73	SOA201706-15	0.404	3.840	105
170706 イソプレン/O ₃	3.73	5.74	SOA201706-BK04	0.501	3.840	130
170707 イソプレン/O ₃	3.70	4.61	SOA201706-BK05	0.460	3.840	120
180105 トルエン/NO ₂ /CH ₃ ONO + 光	3.75	...	0.22	0.52	SOA201801-01	1.549	3.000	516
					SOA201801-02	0.694	3.000	231
180109 トルエン/NO ₂ /CH ₃ ONO + 光	3.74	...	0.26	0.53	SOA201801-03	1.710	3.000	570
					SOA201801-04	0.325	1.000	325
180110 トルエン/NO ₂ /CH ₃ ONO + 光 ^b	3.80	...	0.51	0.51	SOA201801-05	1.987	3.020	658
					SOA201801-06	0.365	1.000	365
180111 トルエン/NO ₂ /CH ₃ ONO + 光	3.84	...	0.2	1.02	SOA201801-07	2.805	3.000	935
					SOA201801-08	1.245	3.000	415
180112 トルエン/NO ₂ /CH ₃ ONO + 光	2.83	...	0.21	0.89	SOA201801-09	2.337	3.200	730
					SOA201801-10	0.907	3.000	302
180115 TMB/NO ₂ /CH ₃ ONO + 光 ^b	3.64	...	0.19	0.96	SOA201801-11	1.056	3.000	352
180116 TMB/NO ₂ /CH ₃ ONO + 光	3.43	...	0.51	1.08	SOA201801-12	1.682	3.000	561
					SOA201801-13	0.757	3.000	252
180117 TMB/NO ₂ /CH ₃ ONO + 光	1.89	...	0.51	1.14	SOA201801-14	1.337	3.000	446
					SOA201801-15	0.549	3.000	183
180118 TMB/NO ₂ /CH ₃ ONO + 光	1.89	...	0.51	1.56	SOA201801-16	1.786	3.000	595
					SOA201801-17	0.956	3.000	319
180119 TMB/NO ₂ /CH ₃ ONO + 光	1.89	...	0.52	1.59	SOA201801-18	1.805	3.000	602
					SOA201801-19	0.717	3.000	239
180123 ナフタレン/NO ₂ /CH ₃ ONO + 光	0.90	...	0.2	1.04	SOA201801-20	3.272	1.000	3272
					SOA201801-21	5.534	3.000	1845
180124 ナフタレン/NO ₂ /CH ₃ ONO + 光	0.92	...	0.14	1.03	SOA201801-22	7.709	3.000	2570
					SOA201801-23	1.987	1.600	1242
180125 ナフタレン/NO ₂ /CH ₃ ONO + 光	0.91	...	0.21	1.03	SOA201801-24	7.477	3.100	2412
					SOA201801-25	2.159	2.000	1079

^a エイジングを調べるため、オゾン分解開始後1時間経過したとき1 ppmの亜硝酸メチルを系に添加し光照射を開始した。

^b 実験180110および180115の光照射開始後1時間経過したとき、それぞれ0.2および0.5 ppmのNO₂を系に添加した。

AMSによる測定結果から、本研究で生成したSOAの平均OM/OC比を決定した。 α -ピネン、イソプレン、トルエン、TMB及びナフタレン由来のSOAのOM/OC比は、それぞれ1.5、2.1、2.1、1.9及び1.9と決定された。OM/OC比の測定誤差はいずれの場合も ± 0.03 程度であった。なお、 α -ピネン由来SOAのOM/OC比は、エイジングしても変化しなかった。

SOA粒子はテフロンフィルター（フロロポア、直径=47 mm、孔径=2 μm 、住友電工、「47Tフィルター」）に流量16.7 L min⁻¹で捕集した。1枚のフィルターには0.378～3.840 m³の体積の試料空気を通気し、1回の実験につき1～3枚のフィルターを交換しながら用いた。フィルター捕集の間、チャンバー内に精製空気を流量16.7 L min⁻¹で注入する

ことで、チャンバー内を大気圧に保った。SOA を捕集した各フィルターは、捕集前後に電子天秤を用いて秤量し、その質量差から捕集された SOA 質量を求めた。各フィルターの捕集期間におけるチャンバー内の SOA 質量濃度は、捕集された SOA 質量と捕集された空気の体積から $137 \sim 3272 \mu\text{g m}^{-3}$ と算出された。SOA フィルターサンプルの毒性試験のための前処理は、他のエアロゾル試料と同様の方法で行った。毒性評価と化学分析に十分な量とするため、同じ前駆物質から生成した SOA のフィルター試料を 5 ～ 10 枚まとめて抽出した。 α -ピネン、 α -ピネン (エイジング)、イソプレン、トルエン、TMB 及びナフタレンを用いた実験で得られた SOA サンプルの全質量は、それぞれ 8.0、6.6、2.5、13.9、10.6 及び 28.1 mg であった。

2017 年 7 月～ 8 月に、酸化触媒付 3 L ディーゼル車と排気後処理装置を装着されていない 8 L ディーゼルエンジンを使用して、ディーゼル排気試験を行った(表 4)。ディーゼル車とディーゼルエンジンの両方に、市販の軽油(JIS 第 2 号、硫黄分 <10 ppm) と市販のディーゼル潤滑油 (10W-30) を使用した。3L ディーゼル車は、NIES 低公害車実験施設^{37,38)}内のシャシーダイナモメーター (明電舎製、東京) で試験した。車両は、4WD モードで半積載条件で JE-05 モード (日本の排出ガス規制で使用される過渡運転モード、希釈空気流量: $24 \text{ m}^3/\text{分}$ 、希釈率: 30、「DEP_3L-J」) と、ニュートラルギアでの無負荷モード ($2000 \text{ rpm} \times 0 \text{ N m}$ 、希釈空気流量: $15 \text{ m}^3/\text{分}$ 、希釈率: 8.7、「DEP_3L-2」) で掘場製作所の制御システムを用いて試験した。希釈前後の排気ガス中のガス状化合物 (一酸化炭素、二酸化炭素、酸素、窒素酸化物、全炭化水素) 及び希釈トンネル内の流量と温度を MEXA 7000D システム (掘場製作所) で連続測定した。

表 4 試験に用いたディーゼル車とディーゼルエンジンの主要諸元

	3L車	8Lエンジン
燃焼システム	直噴	直噴
排気量(L)	2.95 (ターボチャージャー付)	8.0 (ターボチャージャー付)
排出ガス処理システム	酸化触媒	なし
排出ガス規制基準	2003年度規制(日本)	1997年度規制(日本)
乾燥重量 (kg)	1,990	—
最大積載量(kg)	1,000	—
車両総重量(kg)	3,155	—
総走行距離(km)	16,300	—
総運転時間(h)	—	>2,300 ^{a)}

^{a)}NIES 使用前の総運転時間は含まない。

8 L ディーゼルエンジンは、NIES ナノ粒子健康影響実験棟³⁹⁾のエンジンダイナモメーター (明電舎製) を用いて試験した。エンジンは、掘場製作所の制御システムを用い、JE-05 モード (希釈空気流量: $63 \text{ m}^3/\text{分}$ 、希釈率: 13、「DEP_8L-J」) 及び無負荷モード ($2000 \text{ rpm} \times 0 \text{ N m}$ 、希釈空気流量: $66 \text{ m}^3/\text{分}$ 、希釈率: 8.4、「DEP_8L-2」) で運転した。掘場製作所製 MEXA 7400D システムを使用し、希釈前後の排気ガス中のガス状化合物及び希釈トンネル内の流量と温度を連続測定した。3 L ディーゼル車と 8 L ディーゼルエンジンの排気を、希釈トンネルから HVT フィルター (流量: $580 \text{ L}/\text{分}$) と 47Qz フィルター (流量: 3 L ディーゼル車は $90 \text{ L}/\text{分}$ 、8 L ディーゼルエンジンは $16.7 \text{ L}/\text{分}$) に同時に採取した。DEP の試料リストを表 5、6 に示す。

表5 ディーゼル排気粒子サンプル (3 L ディーゼル車)

サンプル ID	サンプリング 実施日	運転条件	サンプリング 時間 (s)	サンプリング 量 (m ³)	希釈トンネル内 PM 濃度 ($\mu\text{g m}^{-3}$)	捕集 PM 重量 (mg HVT ⁻¹)
3LD-HVI2.5T 2017S-01	2017/7/3	JE05 hot	1,828	17.6	861	15.2
3LD-HVI2.5T 2017S-02	2017/7/3	2000 rpm x 0 Nm	900	8.6	1,125	9.7
3LD-HVI2.5T 2017S-03	2017/7/4	JE05 hot	1,843	17.7	851	15.1
3LD-HVI2.5T 2017S-04	2017/7/4	JE05 hot	1,842	17.7	838	14.9
3LD-HVI2.5T 2017S-05	2017/7/4	JE05 hot	1,844	17.7	837	14.9
3LD-HVI2.5T 2017S-06	2017/7/4	JE05 hot	1,841	17.7	835	14.8
3LD-HVI2.5T 2017S-07	2017/7/5	2000 rpm x 0 Nm	1,200	11.5	1,371	15.8
3LD-HVI2.5T 2017S-08	2017/7/5	2000 rpm x 0 Nm	1,200	11.5	1,532	17.6
3LD-HVI2.5T 2017S-09	2017/7/5	2000 rpm x 0 Nm	1,200	11.5	1,675	19.3
3LD-HVI2.5T 2017S-10	2017/7/5	2000 rpm x 0 Nm	1,200	11.5	1,711	19.7
3LD-HVI2.5T 2017S-11	2017/7/5	トンネル ブランク	1,200	11.5	-	0.2

表6 ディーゼル排気粒子サンプル (8 L ディーゼルエンジン)

サンプル ID	サンプリング 実施日	運転条件	サンプリング 時間 (s)	サンプリング 量 (m ³)	希釈トンネル内 PM 濃度 ($\mu\text{g m}^{-3}$)	捕集 PM 重量 (mg HVT ⁻¹)
8LD-HVI2.5T 2017S-01	2017/8/16	JE05 hot	1,830	17.6	2,634	46.4
8LD-HVI2.5T 2017S-02	2017/8/16	JE05 hot	1,830	17.6	1,682	29.6
8LD-HVI2.5T 2017S-03	2017/8/16	JE05 hot	1,830	17.6	1,392	24.5
8LD-HVI2.5T 2017S-04	2017/8/17	JE05 hot	1,830	17.6	1,841	32.4
8LD-HVI2.5T 2017S-05	2017/8/17	JE05 hot	1,830	17.6	1,460	25.7
8LD-HVI2.5T 2017S-06	2017/8/17	JE05 hot	1,830	17.6	1,250	22.0
8LD-HVI2.5T 2017S-07	2017/8/17	JE05 hot	1,830	17.6	1,108	19.5
8LD-HVI2.5T 2017S-08	2017/8/18	JE05 hot	1,830	17.6	1,577	27.7
8LD-HVI2.5T 2017S-09	2017/8/18	JE05 hot	1,830	17.6	1,116	19.6
8LD-HVI2.5T 2017S-10	2017/8/18	JE05 hot	1,830	17.6	1,028	18.1
8LD-HVI2.5T 2017S-11	2017/8/15	2000 rpm x 0 Nm	1,800	17.3	1,413	24.5
8LD-HVI2.5T 2017S-12	2017/8/15	2000 rpm x 0 Nm	1,800	17.3	1,543	26.7
8LD-HVI2.5T 2017S-13	2017/8/15	2000 rpm x 0 Nm	1,800	17.3	1,454	25.2
8LD-HVI2.5T 2017S-14	2017/8/16	2000 rpm x 0 Nm	1,800	17.3	1,581	27.4
8LD-HVI2.5T 2017S-15	2017/8/16	2000 rpm x 0 Nm	1,800	17.3	1,662	28.7
8LD-HVI2.5T 2017S-18	2017/8/15	トンネル ブランク	1,800	17.3	ND	-

野焼き実験は、2018年7月にNIES低公害車実験施設周辺の屋外で、ステンレス製立方体型燃焼フード（体積：0.13 m³）を用いて行った。燃焼フードの底面はほぼ完全に開いているため、フード内に底面から流れ込む外気を燃焼用空気として利用した。実験の器材や条件、対象とするバイオマスは、強制換気式燃焼フード^{22,40)}を使用した我々の以前の野焼き実験を参考に決めた。対象バイオマスは、農業残渣（籾殻、稲藁）と桜の小枝とした（表7）。籾殻と稲藁は2017年に国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・農業環境変動研究センター（つくば市）の水田で生産された水稻から採取したものを、同センターの林健太郎博士より提供を受けた。桜の木の小枝は、2017～2018年にNIES構内の土や草の上に落ちていたものを収集した。

表7 野焼き試料リスト

No	サンプリング 日時 (時間)	サンプル (初期 湿重量:g)	サンプルの 乾燥度(水分 含有量 %)	燃焼 ホルダー (助燃材)	捕集 PM 質量 (mgHVT ⁻¹)	PM _{2.5} 平均濃度 ($\mu\text{g m}^{-3}$)	希釈率 (平均)	MCE (平均)	PM _{2.5} 排出係数 (g kg DM ⁻¹)
1	2017/7/2 13:21-13:42 (21分00秒)	籾殻 (75)	風乾 (8.7)	SUSトレイ +網+皿 (稲藁: 95 g)	14.7	1,220	36.5	0.907	7.5
2	2017/7/2 14:44-15:10 (26分30秒)	籾殻 (100)	風乾 (8.7)	SUSトレイ +網+皿 (稲藁: 78 g)	140	9,150	11.0	0.875	17
3	2017/7/3 9:42-9:52 (10分00秒)	稲藁 (150)	風乾 (8.5)	SUSトレイ +網+皿	83.0	14,600	37.2	0.895	22
4	2017/7/3 11:08-11:11 (3分00秒)	稲藁 (150)	風乾(8.5)	SUSトレイ +土台	34.8	21,800	19.7	0.909	4.9
5	2017/7/3 13:14-13:42 (28分00秒)	稲藁 (150)	加湿 (20)	SUSトレイ +網+皿	54.0	3,350	92.1	0.814	49
6	2017/7/3 14:34-14:42 (8分00秒)	稲藁 (150)	加湿 (20)	SUSトレイ +土台	12.7	2,750	61.0	0.945	6.1
7	2017/7/3 15:34-15:57 (23分00秒)	桜の小枝 (150)	風乾 (8.4)	Solo stove	6.6	502	67.9	0.977	2.9
8	2017/7/5 9:47-10:12 (25分00秒)	桜の小枝 (150)	風乾 (8.4)	Solo stove	12.6	877	31.4	0.970	2.7
9	2017/7/2 10:22-10:52 (30分00秒)	バック グラウンド 空気*	—	—	0.7	39	—	—	—

DM: 乾燥物。* 燃焼用フードと排気ダクトへは接続せず。

籾殻 (75 ~ 100 g、風乾) と稲藁 (150 g、風乾物と加湿物) をステンレス製トレイの上に置き、前方から点火した。籾殻の燃焼実験の際、籾殻だけでは着火しにくいいため、燃焼促進剤として稲藁 (80 ~ 100 g) を籾殻の下に敷いた。そして、稲藁に点火し、稲藁から出た煙が消えてから、PM 試料のサンプリングを開始した。稲藁の燃焼実験の際には、屋外で自然に観察される風速 (約 0.6 m/s)^{22,40)} を再現するよう構築した過去の実験の際と似た燃焼状態 (燃焼時間、炎の出方や煙の色等) になるよう、小さなステンレス材を藁の下に置くことで燃焼空気供給量を調節した。桜の小枝 (長さ: 約 100 ~ 200 mm、外径: 約 10 mm) は、ステンレス製円筒型キャンプストーブ (外径: 178 mm、Campfire; Solo Stove, Southlake, TX, USA) 内で燃焼させた。

野焼き実験の際、燃焼フード内で発生した燃焼排気は、燃焼フード天板の丸い穴 (直径 110 mm) から大気中に排出された。ステンレス製の排気ダクト (外径: 103 mm、内径: 101 mm、長さ: 3 m) の先端を、燃焼フード天板の排気口から 0.7 m (籾殻実験 No.2 の際は 0.4 m) 上に設置した。排気ダクトの末端には特注ステンレス製アダプターを取り付け HVL₅ サンプラーに接続した。着火してから煙が出なくなるまで、野焼き実験で発生した粒子を連続的にサンプリングした。表 7 に PM サンプル一覧とサンプリング条件を示す。HV サンプリングが開始されると、燃焼排気ガスが排気ダクト先端から外気で希釈されながら吸引され、その希釈された燃焼排気粒子が HVT フィルターに捕集された。同時に、47Qz フィルターサンプルも、排気ダクトの途中に差し込んだ銅管 (OD: 8 mm、ID: 6 mm、長さ: 1.4 m) を通じて FRM で捕集した。比較対象用に、バックグラウンド大気もサンプリングした。希釈排気ガス中の二酸化炭素 (CO₂) と一酸化炭素 (CO) は、それぞれ VA3001CO2 (サンプリングユニット: VS3001、ともに堀場製作所製) と 48iTLE-JCPAA (Thermo Scientific 製) を使用し、連続測定した。燃焼フード内の CO₂ 濃度を、もう一組の VA3001CO2

及び VS3001（どちらも堀場製作所製）を使用し連続測定した。屋外大気による燃焼排気の希釈率は、希釈及び未希釈の CO₂ 濃度から算出した。燃焼効率（Modified Combustion Efficiency: MCE）は、次の式、 $\Delta\text{CO}_2 / (\Delta\text{CO}_2 + \Delta\text{CO})$ に基づいて、希釈された CO₂ 濃度及び CO 濃度のモル比から求めた。

調理実験は、野焼き実験に用いたものと同じ機材・場所で、2018年7月に NIES 屋外で行った。表 8 に PM サンプル一覧とサンプリング条件を示す。対象とした調理実験は次のとおりである。(1) 野菜炒め（カセット式ガスコンロ）、(2) フライドポテト（カセット式ガスコンロ）、(3) 焼肉（牛肉・豚肉・鶏肉、カセット式ガスコンロ）、(4) 焼肉（牛肉・豚肉・鶏肉、炭火）。調理排気中の微小粒子の主な起源として予想されるのは、(1) (2) の場合は調理油、(3) (4) の場合は食材（肉）である。調理油にはキャノーラ油（日清キャノーラ油、コレステロールフリー、飽和脂肪酸含有量：7%、日清オイリオ社製）を使用した。カセット式ガスコンロの燃料には液化石油ガス（液化ブタン）を用いた。炭火燃料には、備長炭とヤシガラ成型炭を用いた。調理実験 (1) (2) では、排気ダクトの先端を燃焼フード天板の排気口に接続した。調理実験 (3) (4) では、排気ダクトの先端を、燃焼フード天板の排気口の上部 0～0.36 m の高さに設置した。比較対象として、バックグラウンド空気、炭火バックグラウンドをそれぞれ捕集した。

表 8 調理試料リスト

No	サンプリング 日時(時間)	材料と調理法 (初期湿重量: g)	燃料 器具	捕集 PM 質量 (mgHVT ⁻¹)	PM _{2.5} 平均濃度 ($\mu\text{g m}^{-3}$)	希釈率 (平均)	MCE (平均)	PM _{2.5} 排出係数 (g kg DM ⁻¹)
1	2017/7/9 9:45-10:15 (30分)	バックグラウンド 空気 ^{a)}	—	0.7	43	—	—	—
2	2017/7/9 11:12-11:42 (30分)	野菜炒め: 玉ねぎ+キャベツ+ 人参(合計1,500g)	ガスコンロ +フライ パン	21.0	1,260	1.5	0.995	0.020
3	2017/7/9 14:00-14:33 (33分)	ポテトフライ (1,100g)	ガスコンロ +フライ パン	2.3	120	1.5	0.996	0.002
4	2017/7/9 15:30-16:01 (31分)	焼肉: 牛+豚+鶏 (合計: 300g)	ガスコンロ +SUS網 (直火)	47.5	2,650	5.4	0.995	0.85
5	2017/7/10 9:48-10:26 (38分)	焼肉: 牛+豚+鶏 (合計: 360g)	ガスコンロ +SUS網 (直火)	225	10,300	2.0	0.992	1.3
6	2017/7/10 11:24-12:03 (39分)	焼肉: 牛+豚+鶏 (合計: 320g)	木炭+ SUS網直 火)	78.8	3,500	6.3	0.851	1.5 ^{b)}
7	2017/7/10 13:48-14:21 (33分)	焼肉: 牛+豚+鶏 (合計: 380g)	木炭+ SUS網直 火)	249	13,100	2.3	0.839	8.6 ^{b)}
8	2017/7/10 15:12-15:42 (30分)	炭火バックグラウンド 空気	炭火	8.9	513	1.7	0.875	0.022 ^{c)}

a)洗淨済燃焼用フードと排気ダクトを使用し測定。b)炭火から発生した粒子の寄与分は差し引いていない。c)消費された木炭重量から排出係数を算出。

(2) 大気中の微小粒子 (PM_{2.5}) サンプリング

発生源解析に用いるため、7種類の大気中の PM_{2.5} サンプル（各地点 n≈7）を採取した（表 2、図 6）。両国の観測地点は東京都心にあるため、冬季には人為起源一次有機粒子（APOA）が比較的大きく寄与する可能性があり、夏季には人為起源二次有機粒子（ASOA）の寄与が相対的に高くなると予想された。両国の観測地点にはサンプリング上の制約があったため、両国での HVT サンプリングと同じ日に、東京都江東区にある東京都環境科学研究所の屋上で

FRM2025i (Thermo Scientific 社製) を用いて採取された、石英繊維フィルター試料の提供を受けた。川崎の観測地点は、大型車の交通量が多い交差点^{41,42)}に面しているため、冬季には自動車(自動車排気、ブレーキダスト、タイヤ摩耗粉、道路巻き上げ粉じん等)が相対的に大きな影響を及ぼしていると思われる。つくばの観測地点は、東京郊外に位置し、米や野菜等の農地が周囲に沢山あるため⁴³⁾、秋季には野焼きの寄与が相対的に高いと予想された。辺戸の観測地点は、森と海に囲まれた人里離れた場所にあるため、夏季には、長時間エイジング(酸化)された粒子の寄与が相対的に大きいと予想された。富士北麓の観測地点は、富士山頂から北へ15キロのところであり、カラマツの深い森の中にあるため、BSOAとBPOAの寄与が相対的に大きいと予想された。北京の観測地点は、中国北京市にあり、PM_{2.5}の濃度が高く、人為起源の寄与が相対的に大きいと予想された。両国でのHVT試料の採取には、ハイボリウムエアサンプラー(HV-700R、柴田科学)にPM_{2.5}分級装置(700 L/min用、特注品、柴田科学)と粗大粒子捕集用フィルター(石英繊維スリットフィルター、QR-100、ADVANTEC)を装着して用いた。スリットフィルターは450℃で2時間加熱処理した後、恒湿化後に秤量してから試料採取に用いた。

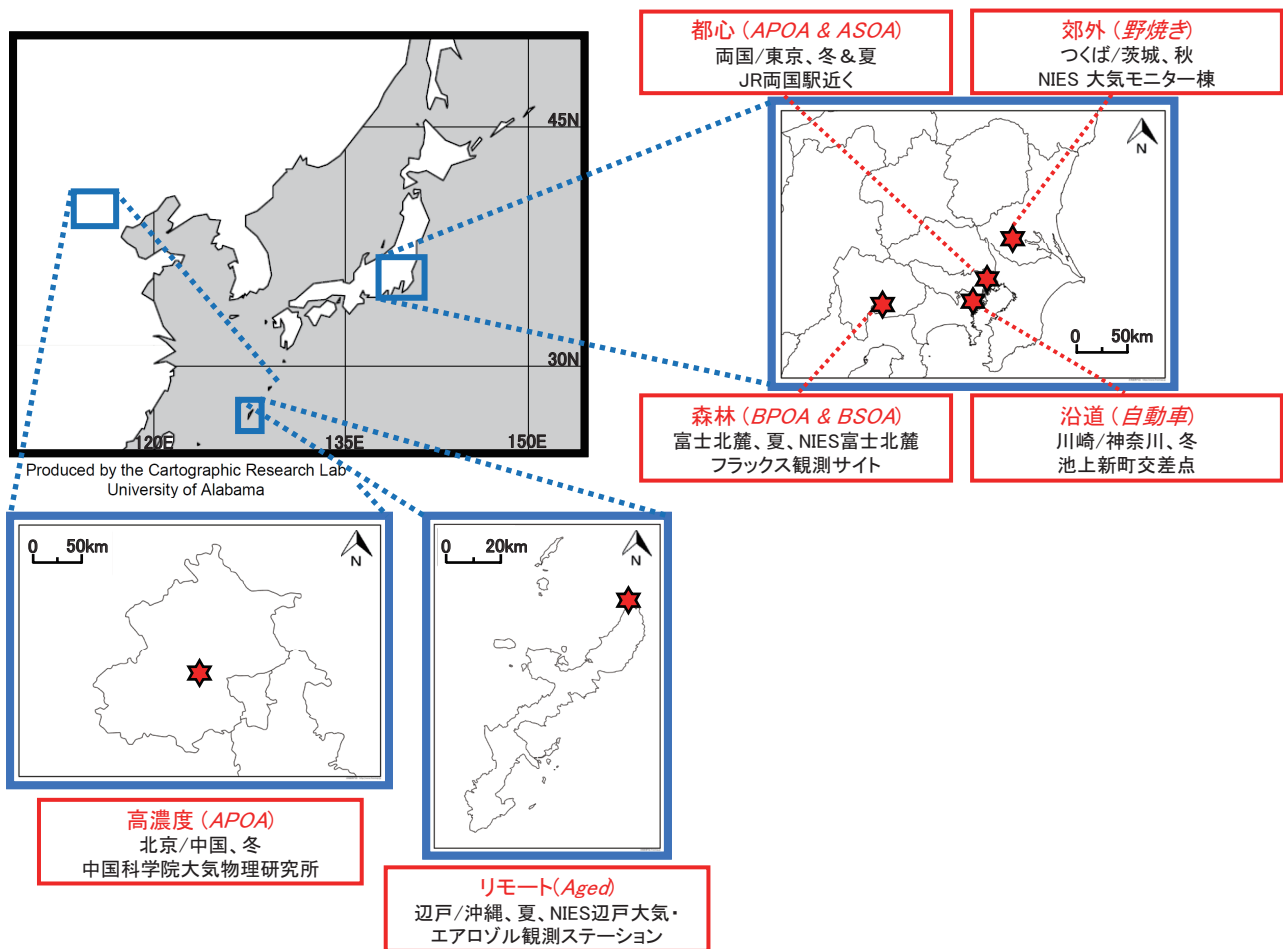


図6 大気中微小粒子の採取地点の地図

(3) PM 質量と化学組成

HVT フィルターと 47T フィルターで捕集した発生源と大気中の微小粒子試料を用いて、PM 質量、無機元素、イオン種及び有機化合物を測定した。47Qz フィルター試料を用いて、EC、OC 及び TC を測定した。空焼きした石英繊維フィルターは、大気中の水分を大量に吸収し、フィルター重量を安定させることが難しいため、石英繊維フィルター試料の PM 質量は測定しなかった。

HVT フィルターサンプルの PM 質量は、読取限度 0.1 mg の電子マイクロ天秤 (LA130S-F、ザルトリウス AG 社、Göttingen, Germany) を用いて秤量した。47T フィルター試料の PM 質量は、読取限度 0.1µg の電子マイクロ天秤

(UMX2, Mettler Toledo, Columbus, OH, USA) を用いて秤量した。これらのフィルターは、イオンバランサー (TAS-182 NWM, TRINC 社、静岡、日本、または Electrode small, PRX U small SET、メトラートレド社) を使用し静電気を除去した後に秤量した。二つ折りにしたテフロンフィルター試料は、温度 21.5℃、相対湿度 35% に保たれたチャンバー (CHAM-1000、堀場製作所) 内に 24 時間以上放置した後、秤量した。テフロンフィルター試料は、0.5 mg (HVT フィルター) または 3 µg (47T フィルター) の許容誤差で繰り返し 2 回秤量し、それらの平均を測定値とした。フィルター秤量結果に基づき得られたつくば、両国、川崎での大気中 PM_{2.5} の濃度は、同じ場所または近くの場所で大気中 PM_{2.5} 自動測定機により測定された値よりも常に 20% 以上高かった。これは、テフロンフィルターのサンプル捕集面を開かずに恒量と秤量を行ったため、大気粒子の乾燥が不十分であったためと考えられた。そこで、これらのサンプルについては自動測定機によって得られた値を PM_{2.5} 濃度とした。

無機元素 (Be, Na, Mg, Al, Si, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Sr, Mo, Ag, Cd, Sb, Ba, Tl, Pb, Th, U) は誘導結合プラズマ/質量分析 (ICP/MS) により測定した。HVT フィルター試料は、中心から放射状に 16 分の 1 の大きさにカットした後、超音波ヒートブロック法で処理した。超音波ヒートブロック法は圧力容器酸分解法とは異なり、サンプルフィルターは分解せず、フィルターから粒子を脱着させ粒子のみを分解する方法である。一部分解されずに溶液中に残った粒子は、ICP/MS 内で分解され、イオン化される。使用した ICP/MS はアジレント・テクノロジー社製 7700x であり、測定手順は以下の通りである。(1) ヒートブロック容器にサンプルフィルターを入れる。(2) 10 mL の 1% HNO₃ を加える。(3) 超音波脱離 (20 分間)。(4) ヒートブロック分解 (80℃、1 時間)。(5) 超音波脱離 (20 分間)。(6) ICP/MS へのサンプル注入。この分析法の分析精度は、アメリカ国立標準技術研究所 (NIST) の標準物質 2783 (フィルター上の空気粒子) を使用して検証済である。

イオン成分 (F⁻, Cl⁻, NO₂⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, C₂O₄²⁻ (シュウ酸)、Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺ 及び Ca²⁺) は、以前の我々の研究³⁷⁾ と同様の方法でイオンクロマトグラフィーにより測定した。HVT フィルター試料は、中心から放射状に 16 分の 1 の大きさにカットした後、10 mL の超純水 (Milli-Q Labo システム、ミリポア社、Billerica, MA, USA) で 20 分間超音波処理した。メトローム社のイオンクロマトグラフ (IC850) と昭和電工社のカラム (Shodex IC SI-90 及び Shodex IC YK-421) を使用した。

有機化合物は、我々の以前の研究²²⁾ と同様の方法で、ガスクロマトグラフィー/質量分析法 (GC/MS) で分析した。HVT フィルターは、300 ~ 900 µg の OC が含まれるような大きさに放射状にカットし、分析に用いた。分析に十分なサンプル量を確保するため、SOA 試料と辺戸試料は各々複数のフィルター試料を合わせて抽出・前処理して分析した (表 1、2)。フィルターサンプルは、同位体標識標準溶液をスパイクした後、ジクロロメタンとアセトンで交互に 20 分間を 2 回ずつ超音波処理して粒子試料を抽出 (計 4 回抽出) した後、ロータリーエバポレーターで溶媒を蒸発させた。この抽出物を、親水性 PTFE シリンジフィルター (ポアサイズ: 0.2 µm, Millex-LG, Millipore 社) でろ過した後、超高純度窒素ガスを吹き付け、抽出物の容量を減らした。抽出物は 2 つに分け、そのうちの 1 つは 10% トリメチルクロロシラン (TMCS) 入り N,O-ビス-(トリメチルシリル) トリフルオロアセトアミド (BSTFA) (Fluka, Ronkonkoma, NY, USA) を使用し、70℃、2 時間で誘導体化した。これにより、ヒドロキシ基とカルボキシ基がトリメチルシリルエーテルとトリメチルシリルエステルにそれぞれ誘導体化される。この方法により、*n*-アルカン、多環芳香族炭化水素 (PAHs)、ホパン、ステラン、糖、ステロール等、91 の有機化合物を定量した。残りの抽出物は予備分析用に保存した。分析計には 6890GC (Agilent Technologies) と二重集束型質量分析計 (GC-Mate II, 日本電子) を使用した。GC の注入口温度は 275℃ でスプリットレスモードとした。GC カラムには DB-5MS (長さ: 30 m, 内径: 0.25 mm, 膜厚: 0.25 µm, Agilent Technologies) を使用し、キャリアガスとしてヘリウムガスを 1.0 ml/分 で流した。GC オープンは 80℃ で 3 分間保持したのち、5℃/分 で 300℃ まで昇温し、25 分間保持した。GC/MS インターフェース部の温度は 320℃ で、電子イオン化法 (イオン化電圧: 70V, イオン化電流: 300 µA, イオン源温度: 280℃) によりサンプルをイオン化させた。質量分析計は、質量分解能 1000、スキャンモード (*m/z* 35-500) で測定した。検出率を上げるため、*n*-アルカン、PAHs、ホパン及びステランは、選択イオンモニタリング (SIM) モードでも分析し、その測定値を採用した。フィルターブランクの測定値の標準偏差から、測定値の不確かさを求めた。

炭素成分 (EC、OC 及び全炭素: TC=EC+OC) は、熱分離・光学補正式炭素分析装置 (Model 2001、Desert Research Institute、Las Vegas、NV、USA) を用いて IMPROVE プロトコル⁴⁴⁾ で分析した。直径 8 mm に打ち抜いた石英繊維フィルター試料を分析し、反射光を用いて分析中の OC の炭化を補正した。

(4) 大気有機粒子の質量に対する発生源別寄与の推定

大気中の有機粒子の質量濃度 (OC 濃度) に対する一次粒子発生源の寄与を、EC と有機化合物の測定値に基づく CMB レセプターモデルを用いて推定した。米国環境保護庁が開発したソフトウェア (CMB v8.2)⁴⁵⁾ を使用した。指標物質 (分子マーカー) には、発生源からレセプター (大気観測地点) へ輸送される間、安定で、反応や揮発が生じない有機化合物を選択した。良好な結果を得るため、主要な発生源を全てモデルに含めた¹³⁾。指標物質として選択したのは、EC、ベンゾ (b) フルオランテン、ベンゾ (e) ピレン、インデノ (1,2,3-cd) ピレン、ベンゾ (ghi) ペリレン、ピセン、17 α (H)-22,29,30- トリスノルホパン、17 α (H)-21 β (H)-30- ノルホパン、17 α (H)-21 β (H)- ホパン、炭素数 29 及び 31 の *n*- アルカン、レボグルコサン及びコレステロールの計 13 種類である。先行研究に基づき^{12,23,24,46,47)}、7つの発生源プロファイルを選択した。すなわち、ディーゼル車排気 (DEP_3L-J、本研究)、ガソリン車排気¹⁶⁾、野焼き (BB01、粉殻、本研究)、調理 (Cook04、焼肉×ガスコンロ、本研究)、植物片¹⁸⁾、天然ガス¹⁷⁾、石炭燃焼 (工業用の瀝青炭と褐炭)⁴⁸⁾ である。一般的に、各成分の計算濃度が実測濃度と 25% 以内で一致していれば、CMB の結果は許容できると考えられる。もし複数の発生源が多重共線性を示す場合には、感度解析を行い、適切な発生源を選択した。我々が作成した発生源プロファイルに関しては、各発生源の中で、予備的な解析において、統計的に最も良い結果を示した発生源プロファイルを採用した。ガソリン車 (有煙)¹⁶⁾ と残渣油燃焼は、予備解析において、その寄与が無視できるほど小さかったため、その後の解析から省いた。大気試料については、各地点の 5 日分 (辺戸は 2 コンボジット分) の測定値を平均化し、CMB 解析した。サンプルから検出されなかったフィッティング成分は、CMB 解析から除外した。また、除外された成分が発生源の主要な排出成分である場合には、その発生源も解析から除外した。CMB 解析の結果、負の寄与を持つ発生源があった場合、その発生源を解析から省いて再計算した。今回使用した発生源プロファイルは、比較的古い発生源を対象に作成されたものが多い。例えば、最近の自動車からの PM 排出係数は、主に排気後処理装置の影響で、旧式車両に比べて格段に低くなっている。しかし、粒子の化学組成は新型車両も旧型車両と大きくは異ならないと考えられる。なお、北京の大気粒子試料については、推定された OC 濃度が実測 OC 濃度の 110% を超えたため、石炭 (家庭での瀝青炭) 燃焼⁴⁸⁾ の発生源プロファイルも CMB 解析に含めた。

CMB による一次粒子発生源の寄与率推定に加え、トレーサー化合物と SOA の質量比 (トレーサー法)⁴⁹⁾ を用いて、4 種類の SOA の濃度を推定した。4 種の SOA とは、ナフタレン起源 SOA (NapSOA)、トルエン起源 SOA (TolSOA)、 α -ピネン起源 SOA (Pin-SOA) 及びイソプレン起源 SOA (Iso-SOA) である。NapSOA と TolSOA は、ASOA の一種であると仮定している。Pin-SOA と Iso-SOA は原則、合計して BSOA として示す。NapSOA のトレーサーには、フタル酸を用いた^{50,51)}。フタル酸/SOA 比には、本研究によって NO₂ 存在下で光酸化して得られた値 0.00822 を使用した。TolSOA のトレーサーには、2,3-ジヒドロキシ-4-オキソペンタトン酸 (DHOPA) を用いた^{49,51)}。DHOPA/SOA 比には、本研究によって NO₂ 存在下で光酸化して得られた値 0.00435 を使用した。Pin-SOA のトレーサーには、ピン酸と 3-メチル-1,2,3-ブタントリカルボン酸 (MBTCA) を選択し^{52,53)}、本研究で低 NO_x 条件下でのオゾン分解と光化学エイジングによって得られた値、(ピン酸+MBTCA)/SOA 比 0.179 を用いた。Iso-SOA のトレーサーには、2-メチルテトラロール (2-メチルスレイトールと 2-メチルエリスリトールの和) を用いた^{49,54)}。2-メチルテトラロール/SOA 比には、NO_x 非存在下での OH 反応によって得られた値 0.141⁵⁵⁾ を使用した。

2.2.3 結果と考察

(1) PM 質量と化学組成

発生源 PM 試料と大気 PM 試料の主成分組成を図 7 に示す。発生源試料と大気試料の両方について、十分な PM 量 (HVT フィルターあたり 10 mg 以上) を捕集できた。ただし、SOA 試料についてはチャンバー容積の制約から一枚のフィルターに大量の試料を採取することはできないため、同じ条件で採取した複数の試料を同時に抽出して化学分析と毒性評価を行うこととした。また、辺戸の大気試料は PM_{2.5} 濃度が平均約 3 μg/m³ 以下と極めて低かったため、フィルターへの捕集量も少なかった。このため、複数の試料をまとめて抽出して化学分析と毒性評価を行うこととした。いずれの試料も、概ね期待した濃度や化学的特徴を持っていた。本研究で得られた分析結果に基づき、新たに作成した発生源プロフィールとして、代表的な有機成分の例を図 8 に示す。以下に、各発生源試料の概要を述べる。

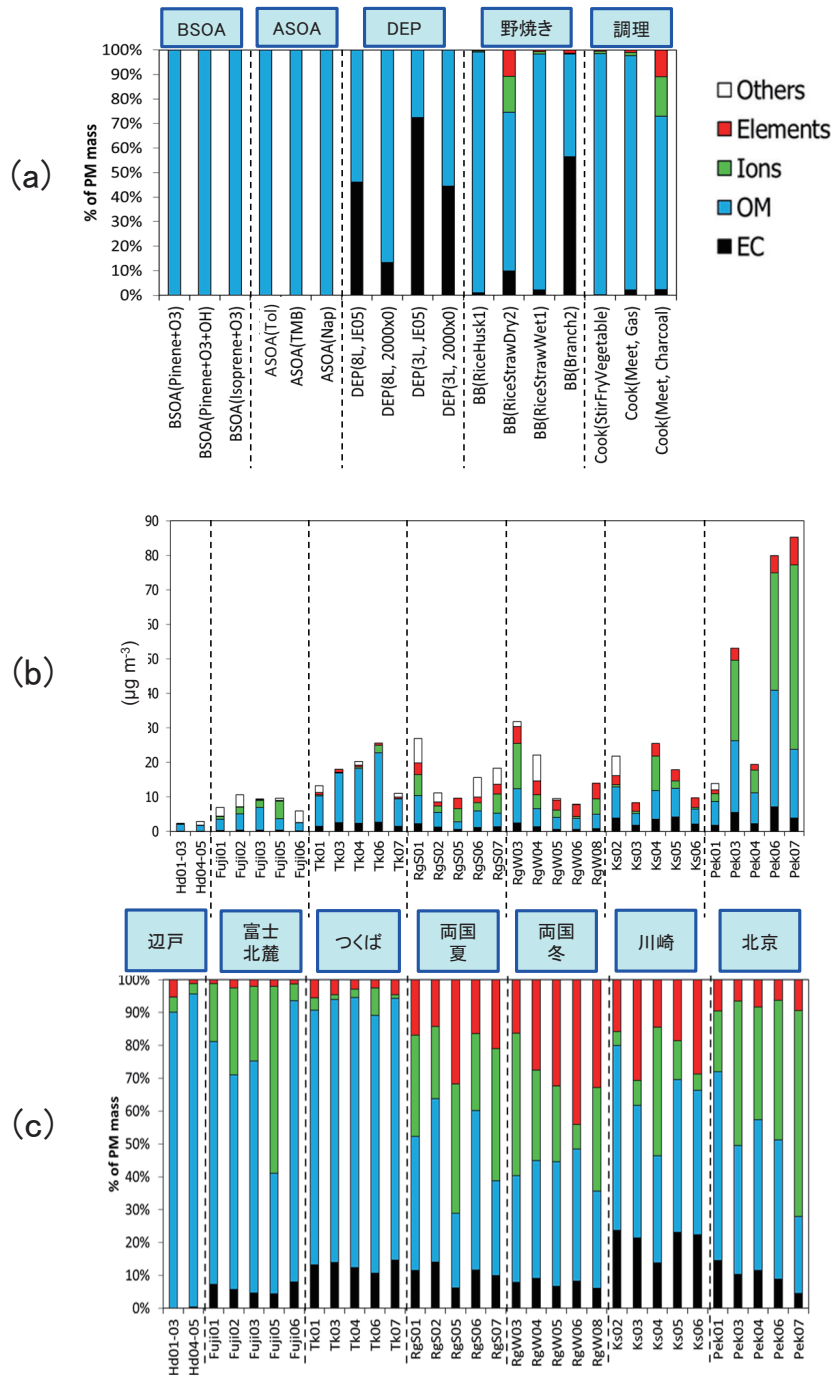


図 7 発生源と大気粒子の主成分濃度と組成

(a) 発生源微小粒子の主成分組成、(b) 大気微小粒子の質量と主成分の濃度、(c) 大気微小粒子の主成分の組成

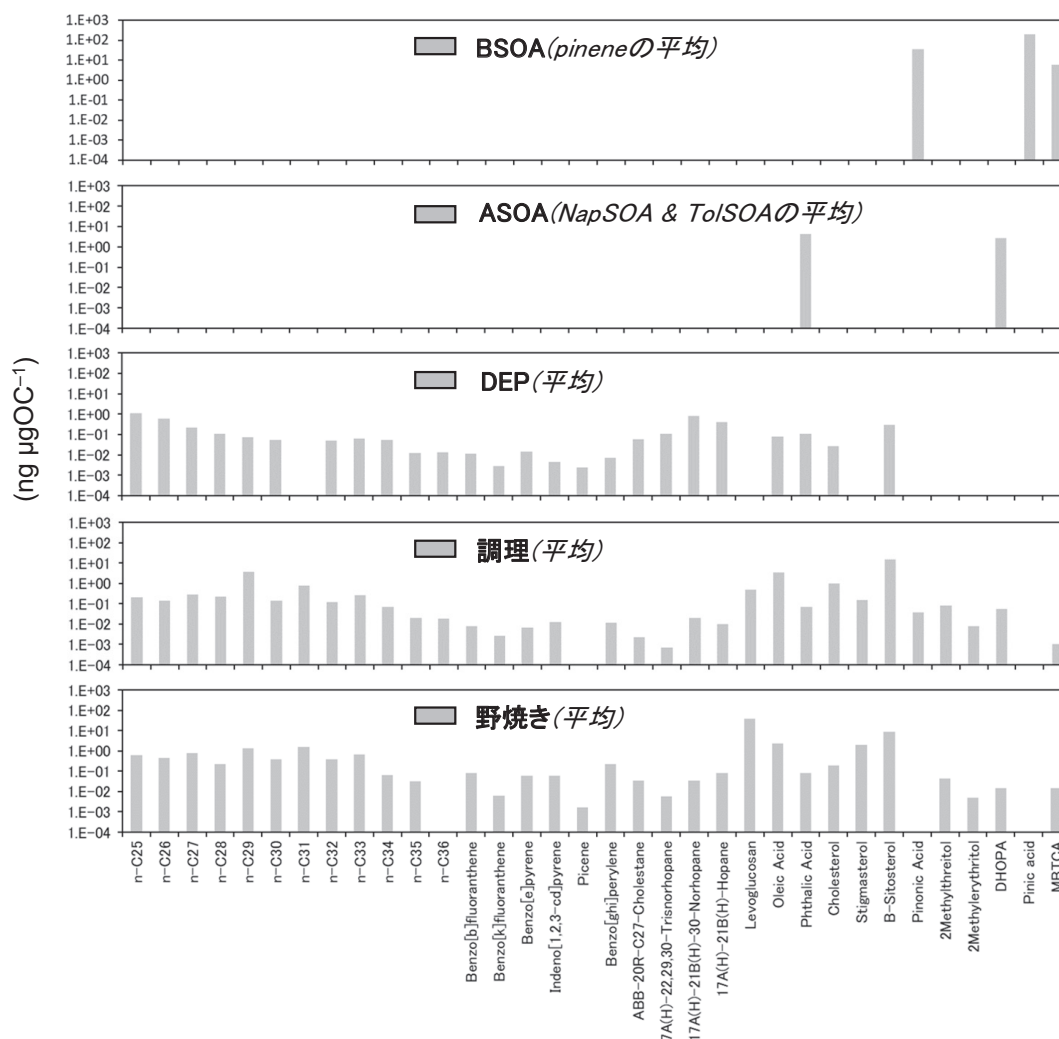


図8 新たに作成した発生源プロファイル (有機成分の例)

(1.1) 発生源 PM 試料

α -ピネン、 α -ピネン (+エイジング)、イソプレン、トルエン、TMB 及びナフタレン起源 SOA の総質量は、それぞれ 8.0、6.6、2.5、13.9、10.6 及び 28.1 mg だった (表 3)。有機分析の結果、植物起源 SOA (BSOA) 試料ではピノン酸や MBTCA 等の特徴的な成分が高濃度であり、人為起源 SOA (ASOA) 試料ではフタル酸や DHOPA の濃度が高かった (図 8)。

3L ディーゼル車の試験において、HVT フィルターに捕集された PM 質量は、JE05 モード ($n=5$) は 15 mg、2000 rpm \times 0 Nm モード ($n=5$) は 9.7 ~ 20 mg であった (表 5)。8L ディーゼルエンジンの試験において、HVT フィルターに捕集された PM 質量は、JE05 モード ($n=10$) は 18 ~ 46 mg、2000 rpm \times 0 Nm モード ($n=5$) は 25 ~ 29 mg であった (表 6)。同一条件でも捕集された粒子質量が大きく異なる運転条件 (3L ディーゼル車の 2000 rpm \times 0 Nm モードと 8L ディーゼルエンジンの JE05 モード) の場合、PM 質量が平均値に近い試料を化学分析及び毒性アッセイに使用した。DEP 試料のうち、8L エンジンの定常運転時 (DEP_8L-2) は有機物が 80% 以上を占め、他の 3 条件では元素状炭素が約 50% 以上を占めた (図 3)。DEP 試料からは、ホパン、多環芳香族炭化水素 (PAHs)、 n -アルカンが高濃度に検出された (図 8)。

野焼き排出 PM 試料のうち、小枝の焼却時は元素状炭素が主体であったが、稲藁と籾殻の焼却時は有機物が主体であった (図 3)。予想通り、レボグルコサンは全ての野焼き試料から高濃度に検出された。

調理の排気粒子はいずれも有機物の比率が高い (最大 98%) ことがわかった (図 3)。調理排気 PM 試料からはコレステロールとオレイン酸が高濃度に検出された。

(1.2) 大気 PM_{2.5} 試料

各地点の大気 PM_{2.5} 試料中の主な有機化合物の平均組成を図9に示す。秋の郊外(つくば)では、野焼きのトレーサーであるレボグルコサンの濃度が高い。夏の都心(両国)では、人為起源 SOA (ASOA) のトレーサーであるフタル酸や DHOPA の濃度が高い。冬の沿道(川崎)では、自動車排気のトレーサーであるホパンの濃度が高い。



図9 大気中 PM_{2.5} 試料中の有機化合物の平均組成

(2) 大気有機粒子の質量に対する発生源寄与と推定

有機 CMB 法によって推定した大気有機粒子の質量濃度 ($\mu\text{gOC}/\text{m}^3$) に対する発生源別寄与と濃度を図10に、寄与率を図11に示す。予想された通り、測定地点や季節によって主たる発生源が異なることが示された。例えば、秋の郊外(つくば)では、野焼きの寄与が突出して大きく、OC濃度の約50%を占めると推定された。つくばでは、農作物残渣の野焼きが秋に頻繁に行われるため、妥当な結果だと思われる^{22,40,43})。夏の都心(両国)では、調理とナフタレン起源 SOA の寄与が高かった。一方、冬の都心(両国)では、夏に比べると、調理とナフタレン起源 SOA の寄与がやや下がり、野焼き、石炭燃焼、自動車排気の寄与が増えた。東京は自動車の交通量が多いほか、人為的排出が多様で大きいので、妥当な結果だと思われる。冬の沿道(川崎)では、OC濃度の約20%が自動車排気起因と推定された。この他、野焼き、調理、石炭燃焼の寄与が高かった。なお、同じ場所で行われた他の研究でも、調理排気の寄与は本研究によるものと同レベルと推定されている(Fujitani et al., in preparation)。

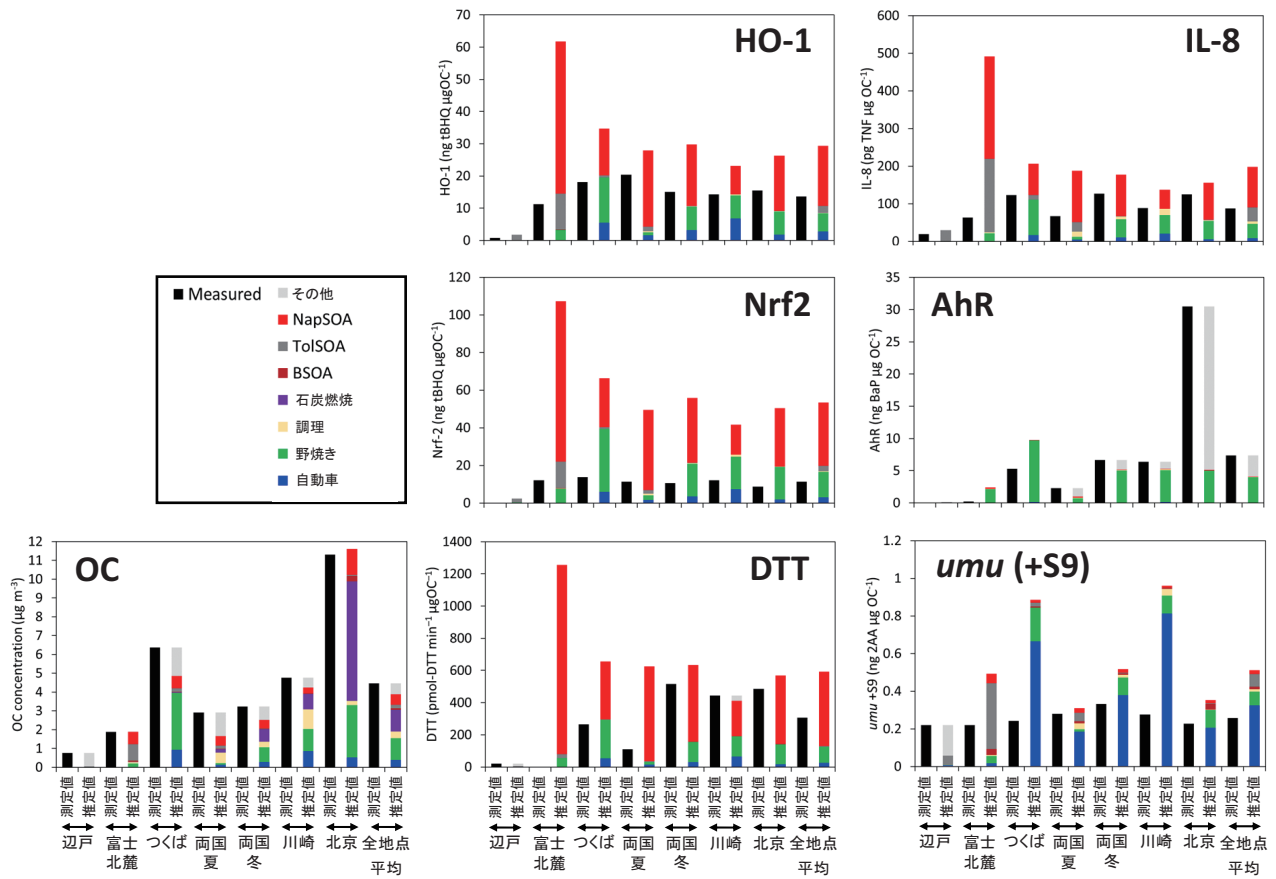


図 10 大気有機粒子の質量濃度 ($\mu\text{gOC}/\text{m}^3$) と毒性応答 (μgOC あたり) の実測値及び発生源別寄与推定値

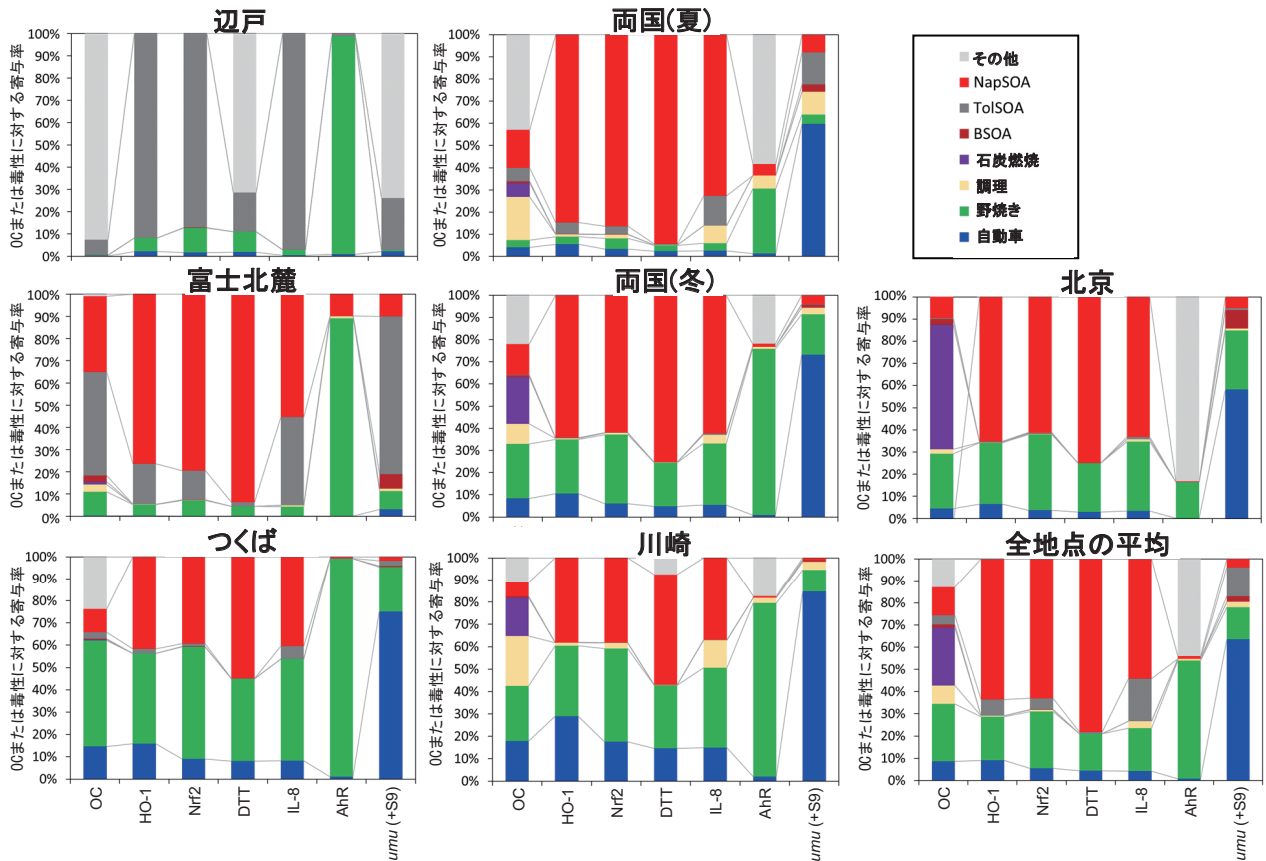


図 11 大気有機粒子の質量濃度 ($\mu\text{gOC}/\text{m}^3$) と毒性応答 (μgOC あたり) に対する発生源寄与率推定値

2.3 サブテーマ2：大気・発生源試料の毒性評価

2.3.1 目的

本サブテーマの目的は、発生源及び大気中の微小粒子に含まれる有機物による毒性（酸化能、炎症能、AhR 活性、DNA 損傷性）の強さを明らかにすることである。そして、発生源ごとの毒性強度を毒性の種類別に比較する。さらに、化学物質や発生源 PM 試料を用いて毒性の相加性の程度を検証することを目指した。

2.3.2 方法

疫学研究によると、大気中の PM_{2.5} は、人の健康に、循環器や呼吸器への影響、がん、死亡等の悪影響を及ぼす^{6,9)}。酸化ストレスと炎症は、これらの疾病への移行状態であると考えられている⁸⁾。本研究では、人の健康影響に関連し得る毒性を評価するため、6つの細胞アッセイと非細胞（化学）アッセイを選択した（図3）。具体的には、発生源及び大気中の微小粒子試料を対象に、ヘムオキシゲナーゼ-1（HO-1）の遺伝子発現、Nrf2 レポーター遺伝子アッセイ、及び DTT 化学アッセイによる酸化能の評価、インターロイキン-8（IL-8）遺伝子発現による炎症能の評価、アリル炭化水素受容体（AhR）アゴニスト活性、そして、umu 試験による DNA 損傷性評価を行うこととした（図3）。

PM 試料中の有機物による毒性応答を評価するため、毒性評価用にも、内標準物質を添加しないという点以外は、有機分析で使ったのと同じ抽出・前処理法を用いた。すなわち、テフロンフィルター試料をジクロロメタンとアセトンで抽出し、ろ過する方法である。その後、抽出液をジメチルスルホキシド（DMSO）に再溶解してアッセイした。また、全ての毒性評価アッセイを同一溶液で実施することで、試料前処理やフィルターごとの誤差が含まれることを避けた。全ての PM 試料について、複数段階に希釈してアッセイすることで、用量応答曲線（Dose-response curve）を作成し、適切な濃度範囲内で毒性応答を定量した。検討の結果、いずれの毒性アッセイにおいても、適切な曝露濃度範囲で実験することで、濃度依存的な妥当な用量応答曲線が得られることが確認された。また、化学物質または PM 抽出物がポジティブコントロール（陽性対照物質）と同様の用量応答曲線を示す場合、毒性をポジティブコントロール等量として表すことで、曝露濃度と毒性は比例関係にあると考えられる。したがって、本研究では、毒性応答を全てポジティブコントロール等量として表現することとした。以下に各毒性アッセイの評価方法を示す。

(1) HO-1 遺伝子発現解析

酸化ストレス応答遺伝子発現アッセイには、アニック・クレモント教授（パリ第6大学アーマンクレソー病院）が Sprague-Dawley 系ラットから採取した肺胞 II 型上皮細胞を SV40 により形質転換して樹立したラット肺胞上皮細胞株（SV40-T2）を用いた⁵⁶⁾。細胞は、10% 牛胎児血清（FBS）と penicillin と streptomycin を含む DMEM 培地を用いて、37℃、5%CO₂ の CO₂ インキュベーター中で継代培養し、細胞をプラスチックディッシュに播種して 24 時間培養後に実験に供した。細胞傷害の指標となる細胞増殖抑制は、PM_{2.5} 有機抽出物を DMSO 濃度が 0.1% になるように各濃度に調整した DMEM 培地で 24 時間曝露後、Cell Counting Kit-8（DOJINDO）に置換し、マイクロプレートリーダー（POLARstar OPTIMA）で吸光度を測定して求めた。遺伝子発現解析は、細胞毒性を示さない濃度の PM_{2.5} 有機抽出物を 3 時間曝露した細胞から RNA を抽出し、Thermal Cycler Dice RT system（TakaRa）を用いて定量 RT-PCR を行い、内部標準遺伝子の発現で補正して比較 Ct 法で相対定量評価した。酸化ストレスは循環器疾患やがん等の様々な疾病の発症や進行に関与している。Keap1-Nrf2 系は酸化ストレス応答系であり、Nrf2 が核移行して、HO-1 等の抗酸化酵素や NAD(P)H quinone dehydrogenase-1（NQO1）等の第 II 相解毒代謝酵素を誘導することで酸化ストレスによる細胞損傷を防御する。本研究では PM_{2.5} 有機抽出物の生体内での酸化能を示す指標として HO-1 遺伝子発現誘導を解析した。HO-1（*Hmox1*）のプライマーの配列は、5'-AGGTGCACATCCGTGCAGAG-3'（Forward: F）と 5'-TCCAGGGCCGTATAGATATGGTACA-3'（Reverse: R）を、NQO1（*Nqo1*）は 5'-TGGAAGCTGCAGACCTGGTG-3'（F）と 5'-TTGTCATACATGGTGGCATACTG-3'（R）を用いた。内部標準遺伝子 Glyceraldehyde-3-phosphate dehydrogenase（*Gapdh: Gapdh*）は 5'-GGCACAGTCAAGGCTGAGAATG-3'（F）と 5'-ATGGTGGTGAAGACGCCAGTA-3'（R）を用いた。各 PM_{2.5} 有機抽出物の遺伝子発現誘導は、陽性対照として *tert*-butylhydroquinone（*t*BHQ）を曝露して得られた用量応答

曲線の直線部分に各試料曝露による遺伝子発現を内挿し、*t*BHQ 等量 (ng *t*BHQ/ μ g OC) として示した。また、HO-1 タンパク生成は、6 時間曝露した細胞試料について、抗 HO-1 抗体 (Oncogene Research Products) と抗 α -tubulin 抗体を用いて、ウェスタンブロットを行い、半定量的に誘導を確認した。

(2) Nrf2 レポーター遺伝子アッセイ

本研究では、Nrf2 酸化ストレス応答性組換え細胞 U2OS-luc (ヒト骨肉腫細胞 U2OS 由来) を用いるレポーター遺伝子アッセイ法の Nrf2-CALUX アッセイを使用した⁵⁷⁾。この細胞は、酸化ストレスや親電子性物質に曝されると、Keap1 によって抑制されていた Nrf2 が活性化されて核内へ移行し、エンハンサー領域に存在する抗酸化剤応答配列 (ARE, antioxidant response element) に結合して、レポーター遺伝子であるルシフェラーゼ遺伝子を含む下流遺伝子転写の結果、ルシフェラーゼを産出する。これにルシフェラーゼの基質であるルシフェリンを加えると、酸素存在下でルシフェリンが酸化され、オキシルシフェリンと二酸化炭素になる際に生物発光を生じる。Nrf2-CALUX アッセイ法は、一連の曝露試験を通じて生じる生物発光をルシフェラーゼ活性として測定して、酸化ストレス誘導物質や親電子性物質といった Nrf2 活性化物質の定量を行う測定法である。

Nrf2-CALUX アッセイ法における曝露試験は、細胞培養、播種、曝露及び測定の順に実施した。U2OS-luc 細胞は、培養用培地を用いて、37℃ 及び 5%CO₂ の条件で培養した。曝露試験を実施する際には、96well マイクロプレートに播種して 24 時間培養した。*t*-butylhydroquinone (*t*BHQ) 及び PM_{2.5} 抽出物の細胞への曝露は、DMSO 溶液を培養用培地に添加して調製した曝露用培地を、well 内で増殖した U2OS-luc 細胞に添加して実施した。曝露試験時の培地中 DMSO の最終濃度は、1.0% になるように調製した。曝露 22 ~ 24 時間後、96well マイクロプレートから培地を取り除き、界面活性剤を含む緩衝液で well 内の U2OS-luc 細胞を溶解した。*t*BHQ 或いは PM_{2.5} 抽出物によって誘導されたルシフェラーゼを含む細胞溶解液に、ルシフェリンを添加して、ルミノメーターを用いてルシフェラーゼによる発光を測定した。

本研究では、*t*BHQ の曝露試験で得られたルシフェラーゼ活性を対象として、二次曲線フィッティング (SigmaPlot 14.0; Systat Software Inc, CA, USA) によって用量応答曲線を描いて検量線とした。PM_{2.5} 抽出物の *t*BHQ 等量は、*t*BHQ の検量線に PM_{2.5} 抽出物のルシフェラーゼ活性を内挿して算出した。*t*BHQ 検量線の濃度範囲は、Nrf2-CALUX アッセイで 0.020、0.040、0.060、0.20、0.40、0.60、2.0 μ M/ マイクロプレート well とした。*t*BHQ 等量を算出する際の PM_{2.5} 抽出物のルシフェラーゼ活性値は、用量応答性を示す PM_{2.5} 抽出物を対象として、PM_{2.5} 抽出物のルシフェラーゼ活性を DMSO 溶媒コントロールのルシフェラーゼ活性で除して得られるインダクションが 1.5 以上のルシフェラーゼ活性値 (細胞毒性を示さない) を採用した。

PM_{2.5} 抽出物の曝露試験は、独立した実験を少なくとも 2 回実施して、その平均値を採用した。上述の手順で試験を実施した結果、操作ブランクは不検出であり、NIST SRM 1650b (ディーゼル粒子) 抽出物の *t*BHQ 等量 ($n=2$) は 53 及び 47 μ g/mg-OC であった。

(3) DTT 化学アッセイ

Dithiothreitol (DTT) アッセイは二つのチオール基をもつ DTT を還元剤として用いて、溶液中に懸濁あるいは溶解した粒子と反応させることにより粒子の持つ酸化能を評価する無細胞アッセイの一つである⁵⁸⁾。DMSO 溶液を Tris-HCl バッファー (Trizma base, pH 8.9, Sigma) で 200-80000 倍 (OC 溶液濃度として 0.625 μ g/ml ~ 0.25 mg/ml) に希釈して DTT アッセイに供した。その溶液に DTT (FUJIFILM Wako Pure Chemical Corporation) を 160 μ M となるように添加した。この溶液を 37℃ の雰囲気中で 15 分間反応させ、反応液を遠心分離し、その遠心上清 1 ml に 5,5'-ジチオビス-2-ニトロ安息香酸 (DTNB: FUJIFILM Wako Pure Chemical Corporation) を 320 μ M となるように添加して反応を止めた。各試料を 200 μ l ずつ 3 つにとりわけ、96 ウェルプレートに分注し、414 nm における吸光度をプレートリーダー (POLARstar OPTIMA, BMG LABTECH) で測定した。3 つの溶液試料の吸光度の値を平均し、DTT 濃度と吸光度の検量線から残存 DTT 濃度に換算した。200 μ l 中にはもともと 32 nmol-DTT 含まれていることになるが、残存 DTT 量を差し引いて消費 DTT 量を算出した。さらにブランク試料値を差し引いた後、含有 OC 量で割って単位 OC 量あたりの DTT 消費量を

算出した。これらの測定を各試料について二度行った。なお消費速度が速く 15 分以内で DTT を消費してしまう場合は結果が過小評価になることを防ぐため、試料溶液の希釈倍率はブランク値を引く前の消費 DTT 量が概ね 28 nmol 以下になるように調整した。

(4) IL-8 遺伝子発現解析

PM 試料の炎症誘導能はヒト由来マクロファージ系細胞株の U937 細胞を用い、炎症性遺伝子のインターロイキン 8 (IL-8) 遺伝子の発現誘導を指標に解析した。細胞は JCRB 細胞バンク (国立研究開発法人医薬基盤・健康・栄養研究所) から得て、10% 胎児牛血清 (FBS) 含有 RPMI-1640 培地で培養した。U937 細胞を 48 well plate に 1×10^5 cells/well で播種し、翌日、各濃度の試料抽出物を添加した。対照は DMSO を使用し、DMSO の最終濃度は 0.1% になるようにした。3 時間曝露後、細胞を回収し、NucleoSpin RNA (MACHEREY-NAGEL GmbH & Co. KG) を用いて total RNA を抽出した。Total RNA は PrimeScript™ RT reagent Kit (Perfect Real Time) (TaKaRa バイオ) を用いて逆転写した後、リアルタイム PCR 法で IL-8 及び GAPDH 遺伝子の発現量を測定し、IL-8/GAPDH 値を算出した。試料の IL-8 遺伝子誘導能は、IL-8 誘導の陽性対照である TNF α 相当に置き換えた後、OC 重量当たりで換算して求めた (pg TNF/ μ g OC)。細胞毒性については、96 well plate に細胞を 3.3×10^4 cells/well で播種し、IL-8 遺伝子測定系と同じ条件で曝露後、Cell Counting Kit-8 (同仁化学研究所) で測定した。

(5) AhR 結合レポーター遺伝子アッセイ

本研究では、AhR リガンド応答性組換え細胞 H4IIE-luc (ラット肝がん細胞 U2OS 由来) を用いるレポーター遺伝子アッセイ法の PAH-CALUX アッセイを使用した⁹⁾。この細胞は、ベンゾ [a] ピレン (BaP) や 2,3,7,8-TCDD 等の AhR リガンドを曝露すると、細胞内に取り込まれたリガンドが AhR と結合して Arnt と複合体を形成し、エンハンサー領域に存在するダイオキシン類応答配列 (DRE, dioxin responsive element) に結合して、レポーター遺伝子であるルシフェラーゼ遺伝子を含む下流遺伝子転写の結果、ルシフェラーゼを産出する。これにルシフェラーゼの基質であるルシフェリンを加えると、酸素存在下でルシフェリンが酸化され、オキシルシフェリンと二酸化炭素になる際に生物発光を生じる。PAH-CALUX アッセイ法は、一連の曝露試験を通じて生じる生物発光をルシフェラーゼ活性として測定して、BaP 等の AhR リガンドの定量を行う測定法である。

PAH-CALUX アッセイ法における曝露試験は、細胞培養、播種、曝露及び測定の順に実施した。H4IIE-luc 細胞は、培養用培地を用いて、37℃ 及び 5%CO₂ の条件で培養した。曝露試験を実施する際には、96well マイクロプレートに播種して 24 時間培養した。この時、細胞培養に使用した培養用培地を BaP 及び PM_{2.5} 抽出物の細胞への曝露は、DMSO 溶液を培養用培地に添加して調製した曝露用培地を、well 内で増殖した H4IIE-luc 細胞に添加して実施した。曝露試験時の培地中 DMSO の最終濃度は、0.8% になるように調製した。曝露 4 時間後、96well マイクロプレートから培地を取り除き、界面活性剤を含む緩衝液で well 内の H4IIE-luc 細胞を溶解した。BaP あるいは PM_{2.5} 抽出物によって誘導されたルシフェラーゼを含む細胞溶解液に、ルシフェリンを添加して、ルミノメーターを用いてルシフェラーゼによる発光を測定した。

本研究では、BaP の曝露試験で得られたルシフェラーゼ活性を対象として、二次曲線フィッティング (SigmaPlot 14.0; Systat Software, Inc., CA, USA) によって用量応答曲線を描いて検量線とした。PM_{2.5} 抽出物の BaP 等量は、BaP の検量線に PM_{2.5} 抽出物のルシフェラーゼ活性を内挿して算出した。BaP 検量線の濃度範囲は、PAH-CALUX アッセイで 0.010、0.10、1.0、10 nM/ マイクロプレート well とした。BaP 等量を算出する際の PM_{2.5} 抽出物のルシフェラーゼ活性値は、用量応答性を示す PM_{2.5} 抽出物を対象として、BaP 10 μ M/ マイクロプレート well のルシフェラーゼ活性に対する百分率 (ルシフェラーゼ・インダクション) が 5 ~ 25% になるルシフェラーゼ活性値 (細胞毒性を示さない) を採用した。

PM_{2.5} 抽出物の曝露試験は、独立した実験を少なくとも 2 回実施して、その平均値を採用した。上述の手順で試験を実施した結果、操作ブランクは不検出であり、NIST SRM 1650b (ディーゼル粒子) 抽出物の BaP 等量 ($n=2$) は 1,600

及び 2,400 µg/mg-OC であった。

(6) *umu* 試験による DNA 損傷性試験

吸光 *umu* 試験は *S. typhimurium* TA1535/pSK1002 株を用い、基質にクロロフェノールレッド-β-D-ガラクトピラノシド (CPRG) を用いて実施した^{60,61)}。すなわち、凍結保存菌液を速やかに融解し、アンピシリン (最終濃度 50 µg/mL) を添加した LB 培地 (1 % Bacto-tryptone、0.5 % Bacto-yeast extract and 0.5 % NaCl) に摂取して 37℃、120rpm で 12 時間前培養した。この培養液を TGA 培地 (1% Bact-tripton、0.5% NaCl、0.2% glucose、アンピシリン (最終濃度 20 µg/mL)) で 100 倍希釈し、さらに 2 時間振とう培養した。得られた菌液と被験物質をマイクロプレートに入れてシールし、プレート用ミキサーでよく攪拌した後、37℃で 4 時間、900rpm で振とう培養後、OD₅₉₅ で菌懸濁液の生菌数を見積り、OD₅₉₅=0.1 になるよう、同培地で希釈し、さらに体積比 17% の 0.1 M リン酸緩衝液 (pH 7.0) を添加した。S9 mix による代謝活性化試験においては、OD₅₉₅=0.2 に調整し、17% の S9 mix を添加して菌懸濁液とした。

この菌懸濁液と DMSO にヨウ化した披験試料を 96 穴マイクロプレート中で混合し、37℃ 900 rpm で 2 時間培養した後、OD₅₉₅ を測定した。その後、各ウェル中の試験液 10 µl を別の 96 穴マイクロプレートに移し、Z 緩衝液 (0.06M Na₂HPO₄、0.04 M NaH₂PO₄、0.01M KCl、0.001M MgSO₄、1% SDS 及び 0.05 M 2-メルカプトエタノール) 140 µl を加え、0.1 M のリン酸緩衝液に溶解した CPRG 10 µl (4 mg/ml) を加え、37℃で 30 分間反応させた。これに 1M Na₂CO₃ 100 µl を添加して発色を停止させ、OD₅₇₀ を測定し、β-ガラクトシダーゼ活性 (*umu unit* = OD₅₇₀/OD₅₉₅) を算出した。各試料は 3 連で実施した。

DNA 損傷性の判定は、用量依存性があり、溶媒対照の 1.5 倍から 2.0 倍までのものを疑陽性、2.0 以上のものを陽性とした。試料に細菌毒性がある場合、高濃度区で *umu unit* が低下することがあり、そのような場合は適宜試料を希釈して再試験した。環境試料の活性値は、同時に測定した 4-ニトロキノリン-N-オキシド (4NQO)、フリルフラマイド (AF-2) 当量に換算して表記した。

(7) 毒性の相加性試験

本研究では、大気中の OA の毒性に対する発生源別寄与を推定する手法を提案した。この方法は、特に、様々な発生源に由来する OA の毒性応答が相加的であれば、よい結果をもたらすと思われる。そこで、我々は、大気中 OA の毒性の相加性を、以下に述べる方法で実験的に評価した。第 1 に、全ての発生源試料、環境大気試料、及びポジティブコントロール等の標準試薬の用量応答曲線を作成した。第 2 に、2 つの標準試薬とディーゼル排気粒子 (SRM1650b、NIST) の抽出液と標準試薬の混合物の相加性を評価した。最後に、2 種類の発生源 PM 抽出物の混合物と 4 種類の発生源 PM 抽出物の混合物の相加性を評価した。この最後の相加性試験に用いた発生源試料は、SOA 試料 (NapSOA: ASOA3)、DEP 試料 (DEP_8L-J: S04)、野焼き試料 (粉殻: BB02)、調理試料 (炭火焼肉: Cook06) である。相加性試験のため、発生源 PM フィルター試料をそれぞれ有機溶媒で抽出した後、抽出液を混合した。2 種の発生源 PM 試料を用いた相加性試験では、同量の OC を含む 2 つの抽出液同士を混合した。対象とした発生源の組み合わせは、DEP+SOA、DEP+野焼き、DEP+調理である。4 種の発生源 PM 試料を用いた相加性試験では、各発生源 PM の抽出液を、つくばの大気粒子中の OC に対する各発生源の寄与率の相対比 (SOA: DEP: BB: 調理 =45:30:15:10)⁶²⁾ で混合して評価した。実験操作に起因する日間変動を避けるため、フィルター試料の抽出は全て同時に行い、各毒性試験において、全ての抽出物 (単一発生源試料と混合発生源試料) を同時にアッセイした。

2.3.3 結果と考察

(1) 各種毒性の評価結果の全体像

発生源と大気中微小粒子の各種の毒性応答 (µgOC あたり) を図 12 に示す。PM 試料の OC 質量あたりの毒性応答は、発生源ごとに大きく異なることが確認された。酸化能 (HO-1、Nrf2、DTT) と炎症能 (IL-8) の傾向は互いに類似していた。複数の細胞・非細胞アッセイによる酸化能の測定結果の傾向が類似していることから、発生源の PM 試料には

keap1 に直接反応する求電子剤が含まれることが示唆される。酸化能と炎症能に対しては、興味深いことに、NapSOA が一貫して最も強い応答を示し、次いで、野焼き、DEP、ToISOA であった。BSOA と調理は一貫して非常に低い応答を示した。AhR 活性と DNA 損傷性 (*umu +S9*) の傾向は、酸化能や炎症能とは大きく異なっていた (図 12)。AhR 活性は、野焼きが非常に強く、次いで、DEP、調理、NapSOA であった。ToISOA と BSOA の応答は非常に弱かった。DNA 損傷性 (*umu +S9*) は DEP サンプルで顕著に高く、BSOA と ToISOA が次に高かった。NapSOA、野焼き、調理の PM 試料は不検出であった。このように、調理の排気粒子の毒性応答は、全ての評価項目において一貫して低いという興味深い結果であった。

大気微小粒子の毒性応答は、北京の AhR 活性を除くと、概して発生源 PM 試料の中程度かそれ以下のレベルであった (図 12)。酸化能 (HO-1、Nrf2、DTT) の傾向は互いに類似していた。炎症能 (IL-8) の傾向は、酸化能とは少し異なっていた。大気微小粒子試料の中では、都市部と沿道の試料が、概して強い毒性応答を示した。夏季のリモート地域 (辺戸) の試料の毒性応答は一貫して極めて低かったことは興味深い。この結果は、夏季に長時間 (例えば 1 週間程度以上) 大気中でエイジング (酸化反応) を受けると、大気粒子の毒性が下がることを示している可能性がある。夏季の森林内の PM 試料そして実験的に生成させた BSOA の毒性応答は概して低いことから、植物起源の一次粒子と二次粒子の毒性が比較的弱いことが示唆される。

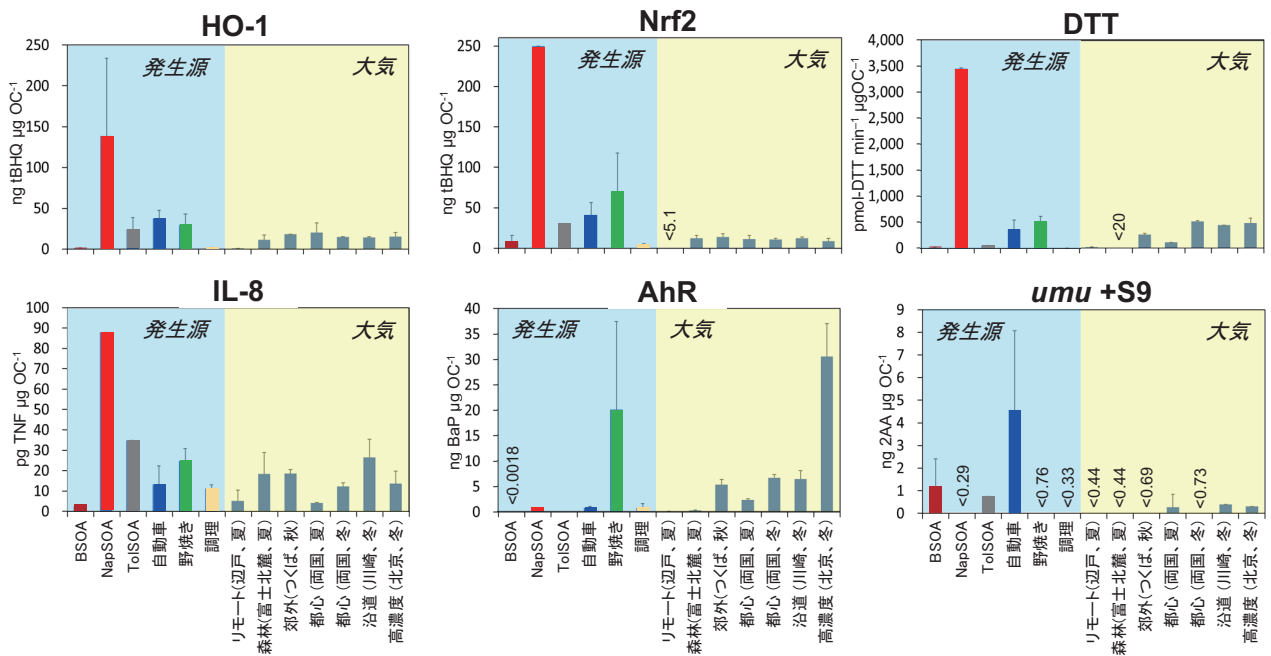


図 12 発生源と大気中微小粒子の毒性応答 (μgOC あたり)

(2) HO-1 遺伝子発現解析

各 PM_{2.5} 有機抽出物を 24 時間曝露した SV40-T2 の細胞増殖抑制 EC₅₀ と 3 時間曝露時の酸化ストレス応答遺伝子 (HO-1 と NQO-1 遺伝子) の発現誘導の tBHQ 等量を表 9 に示す。tBHQ 曝露による HO-1 遺伝子発現により、HO-1 タンパク合成が誘導されることはウェスタンブロットにて確認した (図 13)。細胞増殖抑制測定の有機抽出物の最高曝露濃度は 100 μgOC/mL であったため、この濃度までで EC₅₀ 値が得られなかった細胞増殖阻害の低い試料の EC₅₀ 値は 100 μgOC/mL 以上とした (表 9)。発生源試料では α ピネン由来 SOA と調理由来粒子の有機抽出物の細胞増殖阻害活性は低く、酸化ストレス応答遺伝子発現誘導能も弱い傾向が認められた。一方、人為起源 SOA と野焼き粒子は細胞増殖阻害活性が高く、酸化ストレス応答遺伝子発現誘導能も高い傾向であった。ディーゼル排気粒子は、細胞増殖阻害活性は低いが、高い酸化ストレス応答遺伝子発現誘導能を示した。

大気環境試料では、植物起源 SOA やエイジングが進んだ粒子が多いと思われる辺戸岬や富士北麓試料の細胞増殖阻害活性は低く、酸化ストレス応答遺伝子発現誘導能も弱い傾向が認められた。都市部大気試料は、地点による違いはあ

るが、概ね中程度の細胞増殖阻害活性と酸化ストレス応答遺伝子発現誘導能を示した。

細胞は、毒性が強い活性酸素や生体内過酸化脂質等の代謝生成物に対する生体防御反応として酸化ストレス応答を示すが、この生体応答制御に重要な役割を果たしているのが Keap1(Kelch-like ECH-associated protein)-Nrf2(NF-E2-related factor 2) システムである。Keap1 は分子内のシステイン残基のチオール基が活性酸素や親電子物質のセンサーとして働き、Nrf2 を活性化する⁶³⁾。活性化した Nrf2 は核移行して HO-1 や Peroxiredoxin 等の抗酸化酵素や NQO-1 や Glutathione-S-transferase 等の第 II 相解毒酵素を誘導する。発生源及び環境大気各 PM_{2.5} 有機抽出物がほぼ全て HO-1 遺伝子発現を誘導したことは、大気粒子に親電子物質が含まれる事を示すものであり、粒子の酸化ストレス応答遺伝子発現誘導能は親電子物質の種類と量を反映していると考えられる。さらに、各粒子に酸化ストレス応答遺伝子誘導能が認められ、それが細胞障害性と同様の傾向を示すことは、この解析が細胞への影響を評価する指標として有用であることを示している。

表9 酸化ストレス応答遺伝子の発現誘導

試料	ID	細胞生存率 EC ₅₀ (μ gOC/mL)	HO-1 遺伝子誘導 (ng tBHQ/ μ gOC)	NQO-1 遺伝子誘導 (ng tBHQ/ μ gOC)
発生源				
BSOA(Pinene+O ₃)	BSOA1	>100	0.32	
BSOA(Pinene+O ₃ +OH)	BSOA2	>100	2.8	
BSOA(Isoprene+O ₃)	BSOA3	37.3	(-)	
ASOA(Tol)	ASOA1	23.3	24.0	33.3
ASOA(TMB)	ASOA2	24.3	10.6	11.5
ASOA(Nap)	ASOA3	4.4	138.5	259
DEP(3L, JE05)	DEP_3L-J	66.9	22.98	
DEP(3L, 2000x0)	DEP_3L-2	68.1	42.8	
DEP(8L, JE05)	DEP_8L-J	46.8	41.45	
DEP(8L, 2000x0)	DEP_8L-2	38.3	43.53	
DEP(SRM1650b)1	SRM1650b1	25	40.24	
DEP(SRM1650b)2	SRM1650b2	10.9	28.4	23.5
野焼き(籾殻)	野焼き 01	18.7	46.4	87.1
野焼き(稲藁ドライ)	野焼き 04	10.2	29.2	64.35
野焼き(稲藁ウェット)	野焼き 05	24.4	29.4	43
野焼き(枝)	野焼き 08	19.7	13.2	23.95
野焼き(BG 大気)	野焼き 09	>100	0.0	1.5
調理(野菜炒め)	調理 02	>100	1.6	4.5
調理(肉×ガス)	調理 04	>100	1.1	2.8
調理(肉×炭火)	調理 06	>100	2.0	6.1
調理(炭火 BG)	調理 08	>100	0.4	2
大気				
辺戸岬 01-03	辺戸 01-03	>100	0.73	
辺戸岬 04-05	辺戸 04-05	>100	0.8	
富士北麓 02	富士 02	>100	5.2	
富士北麓 03	富士 03	73.5	17.2	
つくば 04	つくば 04	25.1	17.8	37.3
つくば 06	つくば 06	26.5	18.4	39.25
両国(夏)S01	両国(夏)01	73.5	32.1	
両国(夏)S06	両国(夏)06	>100	8.7	
両国(冬)03	両国(冬)03	18.8	14.6	34.5
両国(冬)04	両国(冬)04	27.3	15.4	34.65
川崎 02	川崎 02	26.6	15.5	31.4
川崎 04	川崎 04	27.3	13.0	21.4
北京 06	北京 06	21.6	20.4	29
北京 07	北京 07	25.3	10.7	18.7

BG:バックグラウンド

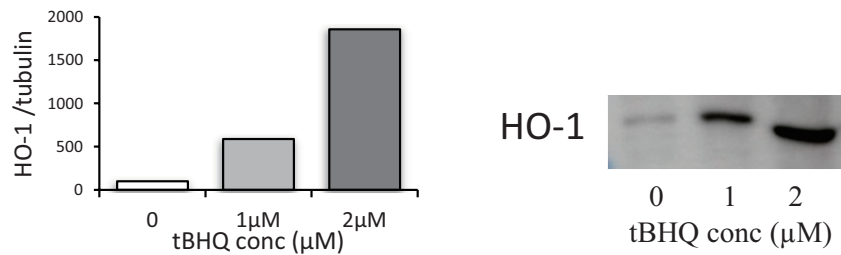


図 13 tBHQ 曝露による HO-1 タンパク合成誘導

(3) Nrf2 レポーター遺伝子アッセイ

Nrf2 レポーター遺伝子アッセイにおける PM_{2.5} 抽出物の tBHQ 等量を表 10 に示す。本研究の曝露濃度では、33 試料の PM_{2.5} 抽出物うち、BSOA3、調理 08、辺戸岬 01-03 及び辺戸岬 04-05 を除く 29 試料で顕著な用量応答が示された。対象試料の中では、発生源試料の ASOA3 (NapSOA)、野焼き 01 (籾殻) 及び野焼き 04 (稲藁ドライ) のルシフェラーゼ活性誘導能が強かった。発生源試料の tBHQ 等量は、中央値が 30 μg/mg-OC、データ範囲が <1.8 ~ 250 μg/mg-OC であった。大気環境試料の tBHQ 等量は、中央値が 9.9 μg/mg-OC、データ範囲が <5.1 ~ 18 μg/mg-OC であった。発生源試料では ASOA3 が、大気環境試料ではつくば 04 が、それぞれ最も高い tBHQ 等量であった。発生源試料の tBHQ 等量は、種類別の平均値で比較すると、ASOA (112 μg/mg-OC) > 野焼き (57 μg/mg-OC) > DEP (41 μg/mg-OC) > BSOA (9.7 μg/mg-OC) > 調理 (3.9 μg/mg-OC) であり、ASOA、野焼き及び DEP で高い傾向であり、発生源によって tBHQ 等量が大きく異なることが確認された。大気環境試料の tBHQ 等量は、つくば (13.9 μg/mg-OC) > 富士 (12.1 μg/mg-OC) > 川崎 (12.0 μg/mg-OC) > 両国 (夏・冬、10.9 μg/mg-OC) > 北京 (8.7 μg/mg-OC) > 辺戸 (<5.1 μg/mg-OC) であり、発生源試料間の違いに比べると、大気試料の採取地点や季節による tBHQ 等量の差は小さかった。

表 10 発生源試料及び大気環境試料の Nrf2 活性 (tBHQ 等量) 及び AhR 活性 (BaP 等量)

試料	ID	Nrf2-CALUX µg tBHQ/mg-OC	PAH-CALUX ng BaP/mg-OC
発生源試料			
BSOA (Pinene+O ₃)	BSOA1	9.1	<1.8
BSOA (Pinene+O ₃ +OH)	BSOA2	15	<1.8
BSOA (Isoprene+O ₃)	BSOA3	<5.1	<1.8
ASOA (Tol)	ASOA1	30	12
ASOA (TMB)	ASOA2	56	<2.2
ASOA (Nap)	ASOA3	250	690
DEP (3L, JE05)	DEP_3L-J	32	360
DEP (3L, 2000x0)	DEP_3L-2	34	590
DEP (8L, JE05)	DEP_8L-J	34	1,100
DEP (8L, 2000x0)	DEP_8L-2	64	870
野焼き (籾殻)	野焼き 01	110	5900
野焼き (稲藁ドライ)	野焼き 04	110	43,000
野焼き (稲藁ウェット)	野焼き 05	46	7,600
野焼き (枝)	野焼き 08	15	24,000
野焼き (BG 大気)	野焼き 09	1.8	34
調理 (野菜炒め)	調理 02	5.6	150
調理 (肉×ガス)	調理 04	3.8	260
調理 (肉×炭火)	調理 06	4.5	1,700
調理 (炭火 BG)	調理 08	<1.8	600
大気環境試料			
辺戸岬 01-03	辺戸 01-03	<5.1	19
辺戸岬 04-05	辺戸 04-05	<5.1	47
富士北麓 02	富士 02	8.2	280
富士北麓 03	富士 03	16	150
つくば 04	つくば 04	18	4,300
つくば 06	つくば 06	9.7	6,300
両国 (夏) S01	両国 (夏) 01	16	2,500
両国 (夏) S06	両国 (夏) 06	6.5	2,100
両国 (冬) 03	両国 (冬) 03	12	7,300
両国 (冬) 04	両国 (冬) 04	9.0	6,000
川崎 02	川崎 02	10	8,100
川崎 04	川崎 04	14	4,700
北京 06	北京 06	12	37,000
北京 07	北京 07	5.3	24,000

BG:バックグラウンド

(4) DTT 化学アッセイ

図 14 に DTT アッセイの結果を示す。ASOA3 (NapSOA) が最も高い結果となったが、他の VOC 由来の SOA は低かった。燃烧発生源は、調理粒子以外は概ね同程度であり、SRM (DEP) も近いレベルであった。環境大気粒子は都市で高い傾向にあり、燃烧発生源と同程度であった。Fujitani et al. (2017)⁶⁴ と比較すると、抽出法 (バッファー抽出) や規格化した単位 (PM ベース) が、今回の系と異なるが、BSOA1 (α ピネンとオゾンの反応) の活性値は同程度であった。SOA 粒子は PM の主成分が有機物であることに加えて、SOA は水溶性有機物が多く含まれており、バッファーで抽出される成分がジクロロメタン-アセトンで抽出される成分と同様であるからと考えられる。DEP_8L-2 に関しては、今回のジクロロメタン-アセトン抽出による活性値の方が 7 倍程度高い。OC/PM=0.66 を考慮しても、ジクロロメタン-アセトンで抽出された成分が DTT 消費に強く関与していることが示唆された。

図 15 に相加性試験の結果を示す。左の列が 2.5 $\mu\text{g-OC/mL}$ (一部 10 $\mu\text{g-OC/mL}$) となるように溶液を混合した試料のアッセイ結果 (実測値) であり、右の列は各種試料の混合比と図 14 に示した結果をもとに計算した結果 (理論値) である。実測値は理論値と 30% 以下の誤差で一致し、桁が異なる等、著しく異なる結果にはならないことが確認できた。4 つのケースのうち、特に SOA と DEP を混合した溶液の DTT 消費量が、個別に評価して足し合わせた場合と比較して大きくなる結果となった。このことから、試料を混合することで相乗的な効果が出ている可能性は否定できない (例えば DEP に含まれる金属成分と SOA に含まれる有機成分の相乗効果等)。今後、試薬等を用いて単純な系で検証する必要がある。

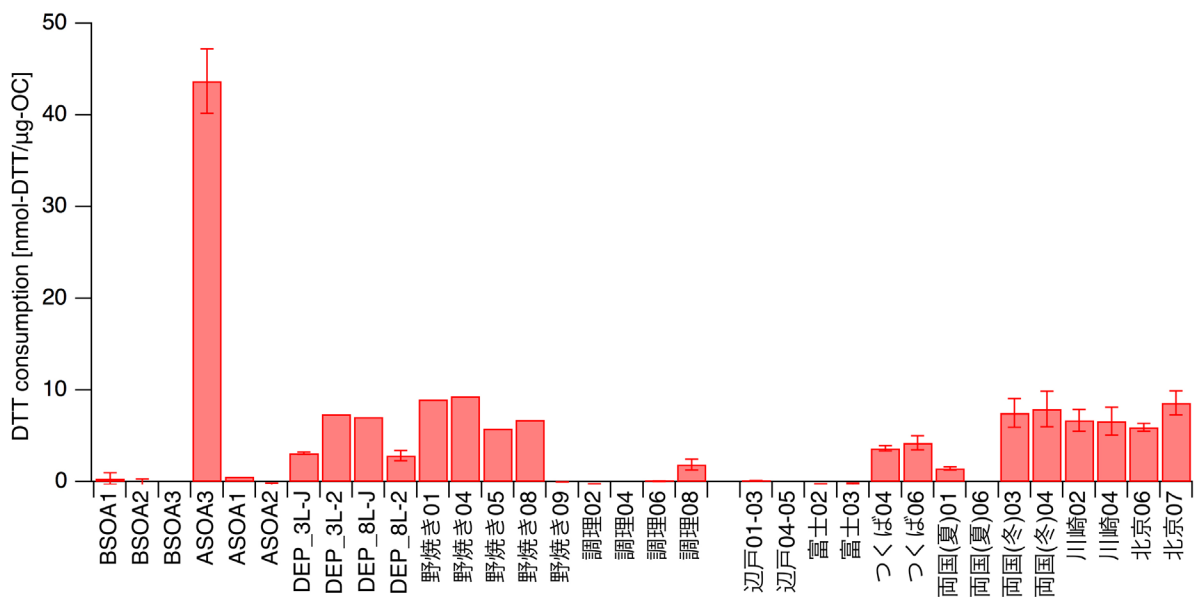


図 14 DTT アッセイの結果
エラーバーは繰り返し測定標準偏差。SD が無いものは $n=1$ の実験結果

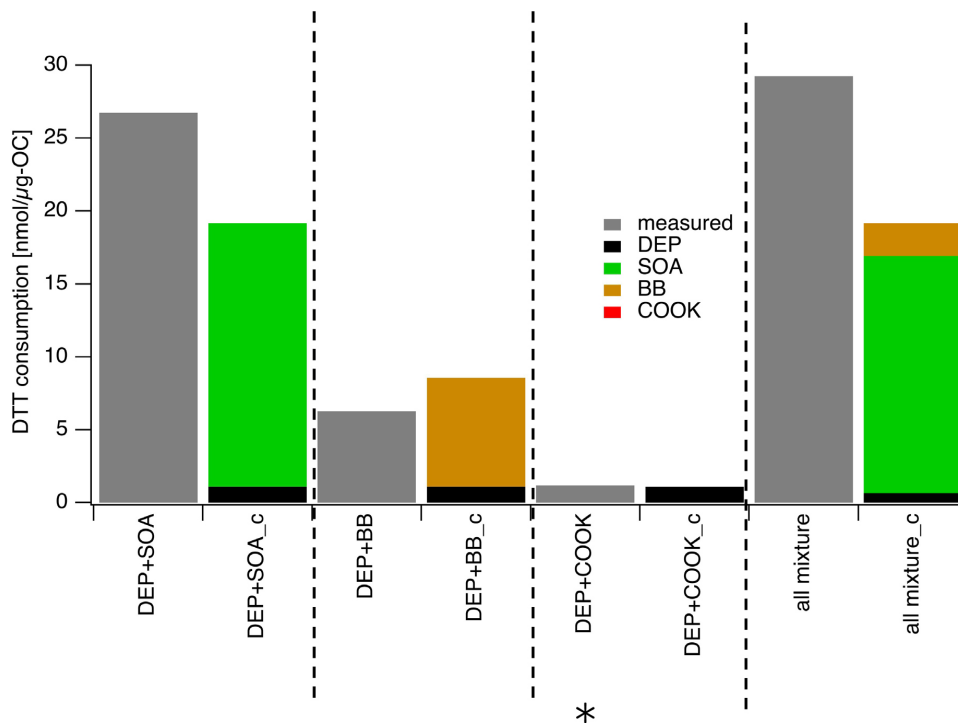


図 15 DTT アッセイの相加性試験の結果 (試料濃度 2.5 μgOC/mL)

*印は 10 μgOC/mL。左：混合試料のアッセイ結果 (実測値)。右：単一試料評価時の結果と混合比に基づき算出 (理論値)

(5) IL-8 遺伝子発現解析

炎症反応の指標として、様々な炎症性遺伝子の測定があり得るが、最初に U937 細胞に SRM1650b 抽出物 (DEP、10 μgOC/ml) を曝露して幾つかの炎症性遺伝子を測定したところ、IL-8 遺伝子が強い誘導を示したことから、本研究では IL-8 遺伝子を指標に炎症反応を測定することにした。また、長時間の曝露は様々な二次的、三次的な反応が起きて複雑になってしまうことが予想され、試料間の比較が困難になることも予想されたため、初期応答が期待できる 3 時間に設定した。

まず、今回の研究で用いる様々な試料の IL-8 遺伝子誘導性が、どのような濃度依存的な変化を示すかが不明であったため、全試料の抽出物について IL-8 遺伝子発現の濃度依存性 (5、10、25、50 μgOC/ml) を調べた (図 16、17)。その結果、ほとんどの試料について濃度依存的な IL-8 遺伝子の発現誘導が認められた。これらは高濃度域まで増加していくもの、10 μgOC/ml を境にプラトーあるいは増加率が弱くなる傾向が見られた。例外的に、Toluene 及び Naphthalene 由来の人為起源 SOA (ASOA1、ASOA3) では、10 μgOC/ml 以上では IL-8 遺伝子の発現誘導が減少した。なお、これと同条件で細胞毒性を調べた結果、一部の試料において 50 μgOC/ml で細胞毒性が見られたが、それ以外で大きな細胞毒性は認められなかった (図 18)。以上の結果から、低濃度域と比べ、高濃度域では細胞毒性はそれほど高くはないものの細胞反応性がプラトーに達していると思われ、10 μgOC/ml 以下の低濃度域では細胞毒性もなく試料の炎症誘導能を評価するのに適していると考えられた。

以上をふまえ、本研究では 5 μgOC/ml での曝露における IL-8 遺伝子発現誘導の値を、陽性対照である TNF 相当で換算し、最終的に OC 重量当たりで算出した (図 19)。発生源試料については、突出した IL-8 遺伝子誘導能を示したのが人為起源 SOA で、特に Naphthalene 及び Toluene 由来 SOA で非常に高い活性が認められた。それ以外の発生源別の試料では、野焼き試料が平均的に高く、次いで DEP、調理の順であった。一方、植物起源 SOA は非常に活性が低かった。

次に、環境大気試料について解析した。大きく夏季と冬季で分けて見た場合、全体的に冬季に採取された試料の方が夏季よりも高い傾向にあった。両季節において同一地点で解析したのは両国のみであったが、冬季の両国の方が夏季に比べて活性は高かった。その他、冬季の川崎と北京、秋季のつくばでやや高めに出る一方、夏季の辺戸や富士の試料は低い値であった。

(自然起因SOA)

(人為起源SOA)

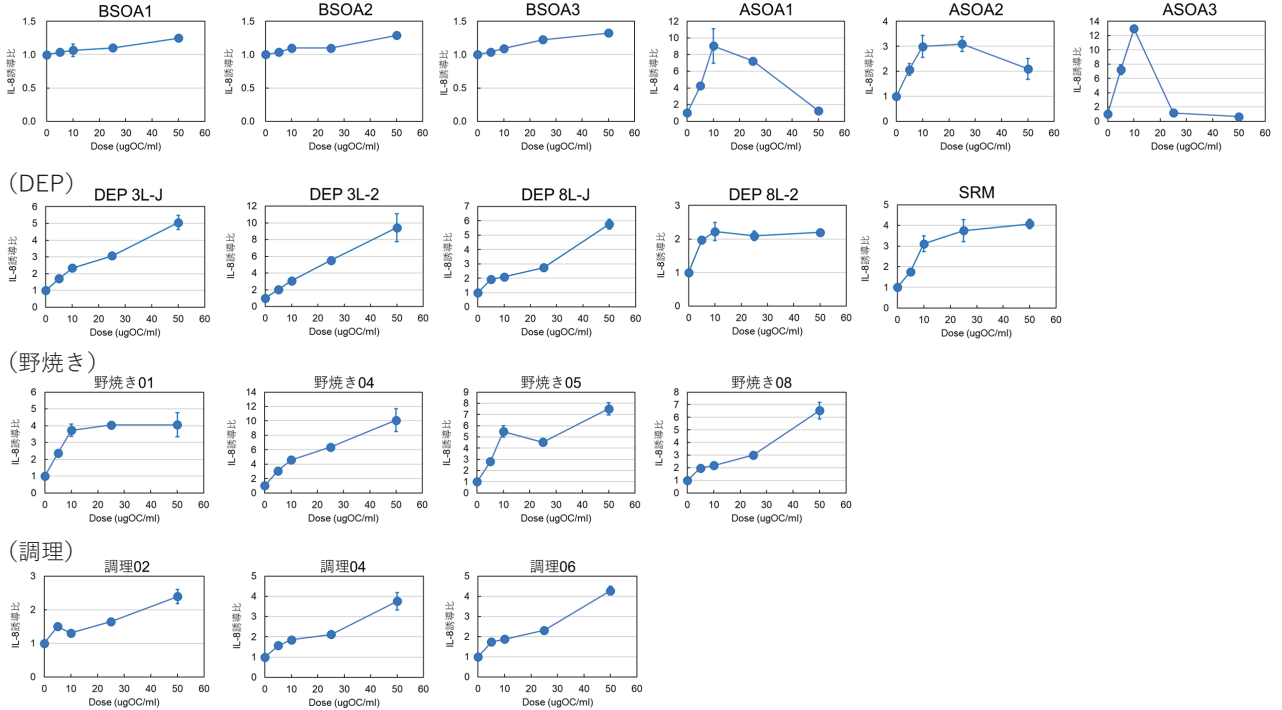
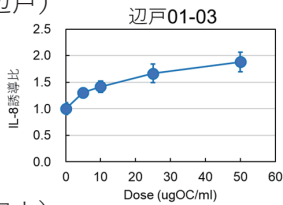


図 16 発生源試料抽出物による IL-8 遺伝子発現誘導の濃度依存性

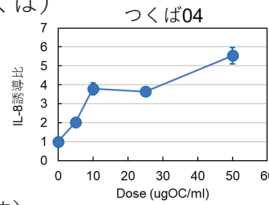
-----夏季-----

-----冬季-----

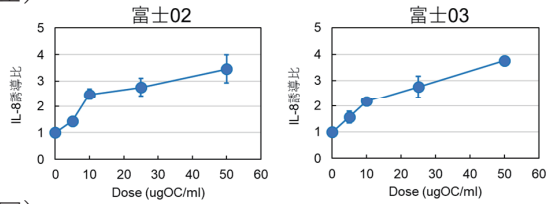
(辺戸)



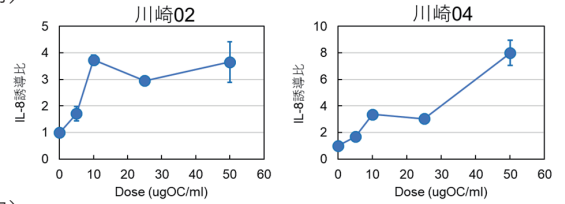
(つくば)



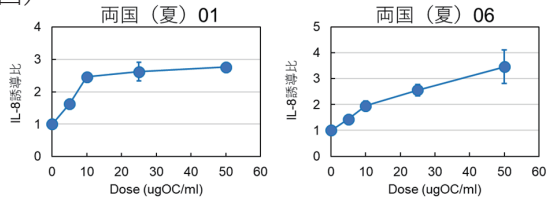
(富士)



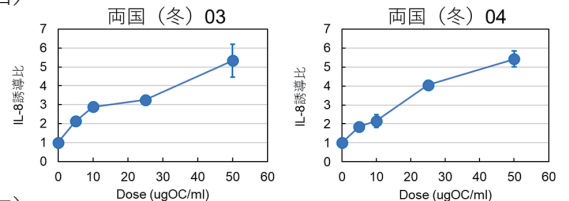
(川崎)



(両国)



(両国)



(北京)

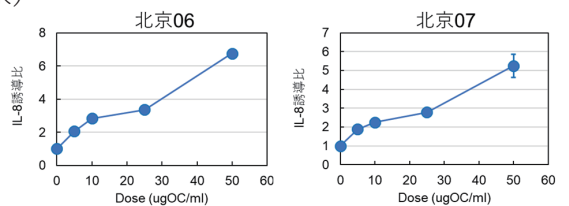


図 17 大気試料抽出物による IL-8 遺伝子発現誘導の濃度依存性

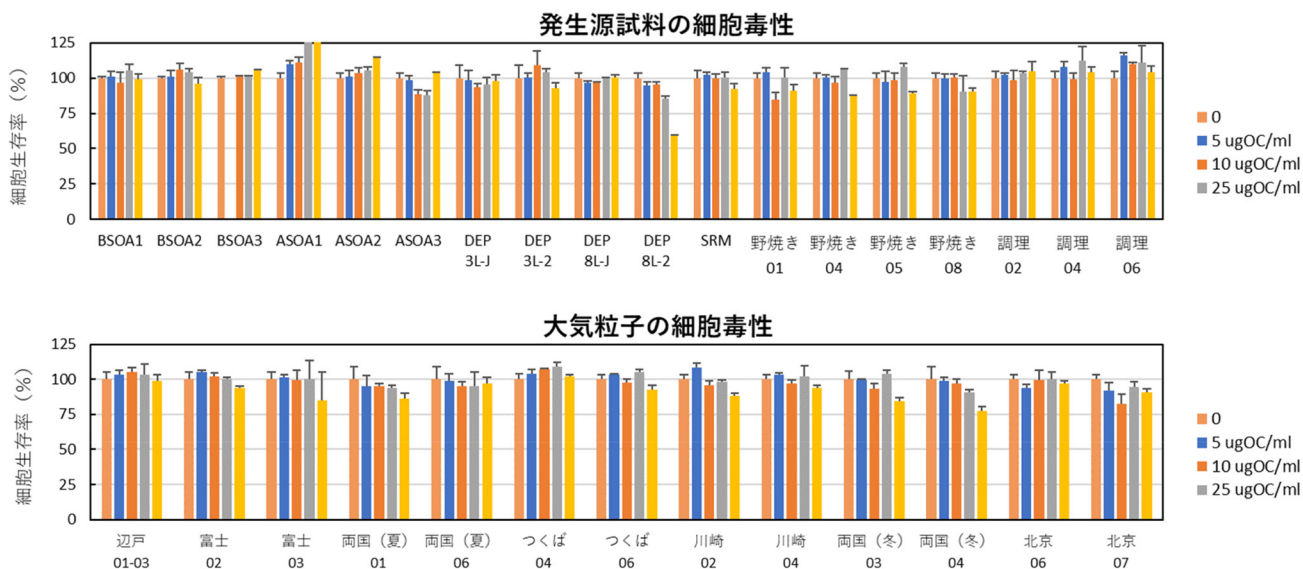


図 18 各試料抽出物による細胞毒性
縦軸は、溶媒対照の値を 100% とした時の細胞生存率

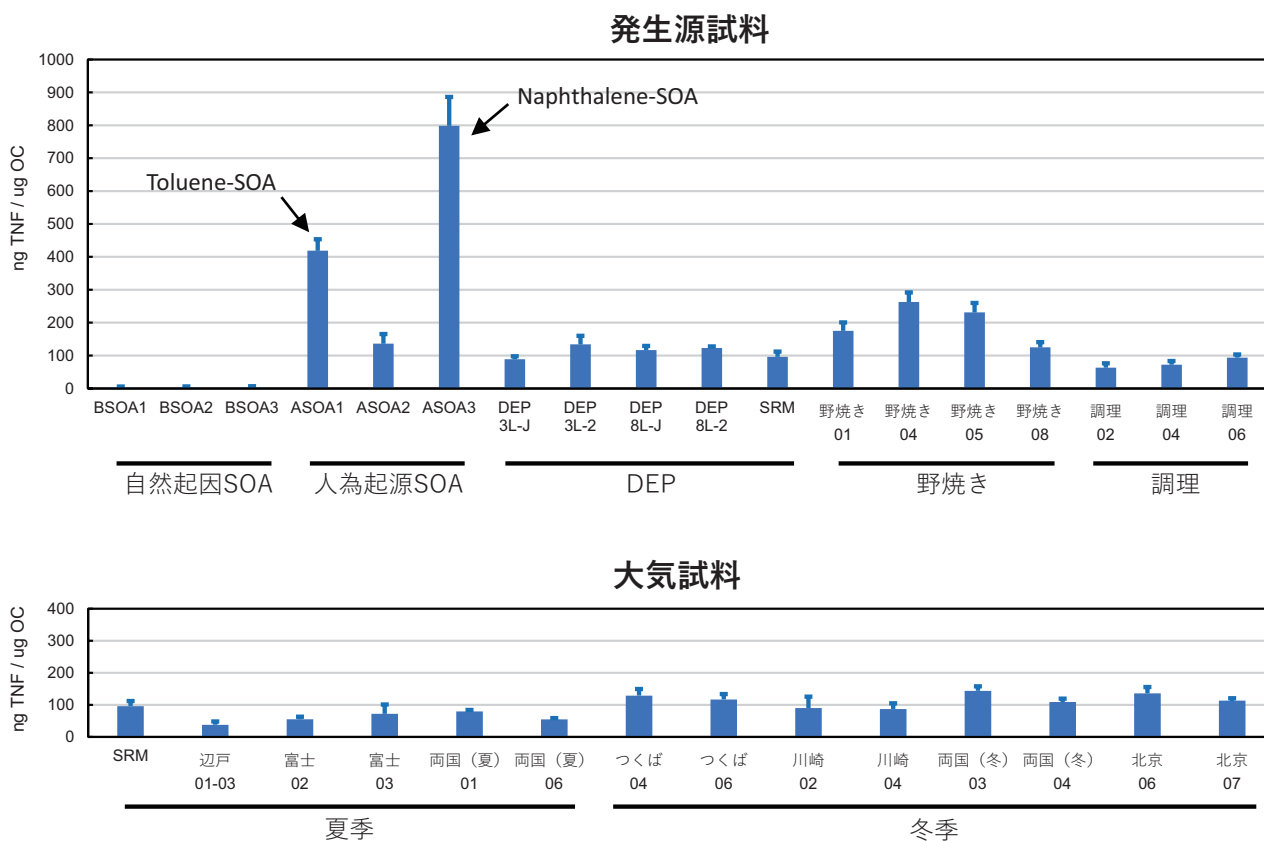


図 19 各試料抽出物による IL-8 遺伝子誘導能

(6) AhR 結合レポーター遺伝子アッセイ

PAH-CALUX アッセイにおける PM_{2.5} 抽出物の AhR 活性 (BaP 等量) を表 10 に示す。本研究の曝露濃度では、33 試料の PM_{2.5} 抽出物のうち、BSOA1 ~ 3 及び ASOA2 を除く 29 試料で顕著な用量応答が示された。対象試料の中では、発生源試料の野焼き 04 (稲藁、乾燥)、野焼き 08 (枝)、そして大気試料の北京 06 及び北京 07 の AhR 活性が強かった。発生源試料の BaP 等量は、中央値が 590 μg/mg-OC、データ範囲が <1.8 ~ 43,000 ng/mg-OC であった。大気環境試料の BaP 等量は、中央値が 4,500 ng/mg-OC、データ範囲が 19 ~ 37,000 ng/mg-OC であった。発生源試料と大気環境試料と

もに、試料間で最大1,000倍以上の差が示された。発生源試料のAhR活性(BaP等量)は、種類別の平均値で比較すると、野焼き(16,100 ng/mg-OC) > DEP(730 ng/mg-OC) > 調理(678 ng/mg-OC) > ASOA(235 ng/mg-OC) > BSOA(<1.8 ng/mg-OC)であった。野焼きが、その他試料と比較して非常に高い傾向であり、発生源によってAhR活性が著しく異なることを確認された。大気環境試料のAhR活性(BaP等量)についても、北京(30,500 ng/mg-OC) > 川崎(6,400 ng/mg-OC) > つくば(5,300 ng/mg-OC) > 両国(4,480 ng/mg-OC) > 富士(215 ng/mg-OC) > 辺戸(33 ng/mg-OC)であり、採取場所によって活性が著しく大きく異なった。

(7) umu 試験による DNA 損傷性試験

吸光 umu 試験による DNA 損傷試験結果の用量依存性の例を図 20 に示す。左図は非代謝活性(-S9)系における陽性対照である。右図のような実試料の比活性は、陽性対照の傾きと実試料における傾きの比から、陽性対象物質換算として表記する。代謝活性(+S9)系では、2-アミノアントラセン換算している。このような換算に基づき、各種実試料を測定・定量した結果を表 11 及び表 12 に示す。発生源別試料で最も強い活性を示したのは-S9系、+S9系のいずれもディーゼル排気粒子であった。特に DEP_3L-2、SRM1650b(NIST 標準試料)が強い値を示した。二次粒子では、-S9系では強い活性は認められず、+S9系ではいずれの試料でも陽性を示した。野焼き試料は-S9系でのみ陽性となるものがあり、調理試料からは DNA 損傷性は検出されなかった。大気試料では、北京の PM_{2.5} が高い活性を示し、次いで沿道(川崎)と続いた。辺戸及び富士北麓試料からは DNA 損傷性は検出されなかった。

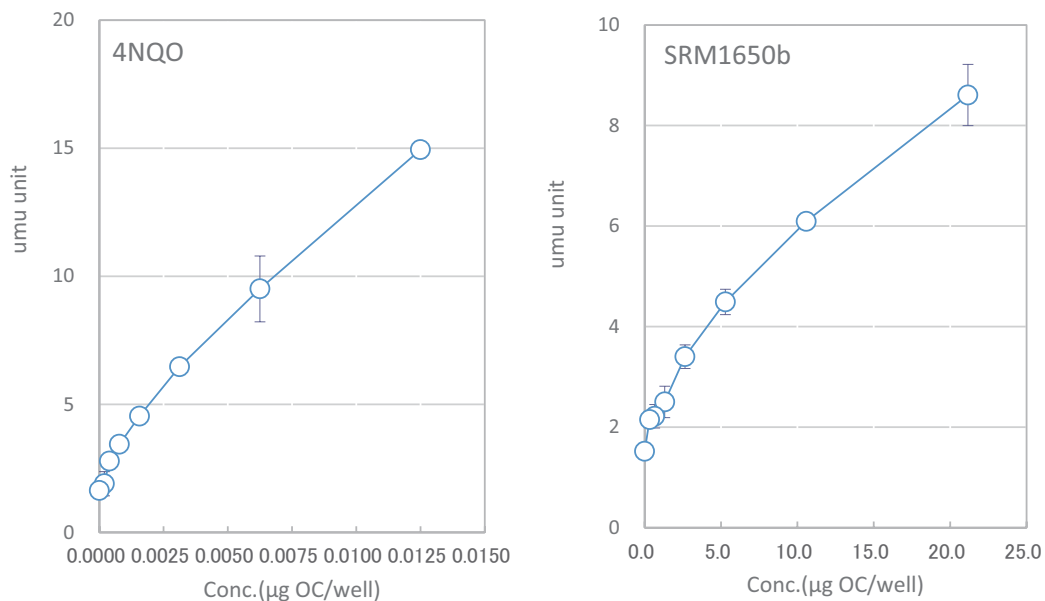


図 20 umu 試験結果の例：-S9mix、左 4NQO、右 SRM1650b (DEP) の有機溶媒抽出物

表 11 発生源試料抽出物の *umu* 試験結果 (有機炭素質量あたり)

分類	試料ID	<i>umu</i> 試験	
		(-S9) ng as 4NQO/μg OC	(+S9) ng as 2AA/μg OC
SOA	BSOA1	(0.013)	0.48
	BSOA2	< 0.03	0.46
	BSOA3	< 0.25	2.6
	ASOA1	<0.10	0.75
	ASOA2	<0.09	0.37
	ASOA3	<0.10	<0.29
DEP	DEP_3L-J	0.98	4.7
	DEP_3L-2	4.6	9.3
	DEP_8L-J	0.49	3.3
	DEP_8L-2	0.22	0.98
	SRM1650b1	1.7	5.5
	SRM1650b2	1.9	4.4
野焼き	BB01	<0.02	<0.74
	BB04	0.23	<0.34
	BB05	<0.02	<0.76
	BB08	0.18	<0.32
	BB09	<0.03	<0.69
調理	Cook02	<0.09	<0.33
	Cook04	<0.09	<0.32
	Cook06	<0.11	<0.32
	Cook08	<0.11	<0.33

表 12 大気試料抽出物の *umu* 試験結果 (有機炭素質量あたり)

分類	試料ID	<i>umu</i> 試験	
		(-S9) ng as 4NQO/μg OC	(+S9) ng as 2AA/μg OC
辺戸岬	Hd01-03	< 0.02	< 0.44
	Hd04-05	< 0.05	< 0.43
富士北麓	Fuji02	< 0.02	< 0.44
	Fuji03	< 0.02	< 0.44
郊外 (つくば)	Tk04	0.18	<0.28
	Tk06	0.12	<0.69
東京両国 (夏)	RgS01	0.03	(0.27)
	RgS06	0.04	(0.29)
東京両国 (冬)	RgW03	0.15	<0.73
	RgW04	<0.15	<0.60
沿道 (川崎)	Ks02	0.14	0.4
	Ks04	<0.11	<0.30
北京 (中国)	Pek06	0.39	<0.31
	Pek07	0.3	0.3
溶媒BL	Sol_Bk1	< 0.21	NA
	Sol_Bk2	< 0.20	NA
	Sol_Bk3	<0.03	<0.74
フィルターBL	HVTbk1	< 0.22	NA
	HVTbk2	<0.03	<0.75
	47Tbk1	< 0.22	NA
	47Tbk2	<0.03	<0.71

DNA 損傷性を調べる *umu* 試験では、発生源試料のうち調理試料は全て不検出となった。一方、DTT アッセイ等による酸化能や炎症能が ASOA は高い。酸化ストレスは、DNA 損傷にも影響を与えることから、ASOA の DNA 損傷性も高くなると予想されたが、異なる傾向を示した。図 21 に、ASOA3 (NapSOA) の用量応答曲線を示す。高用量側では *umu unit* の低下 (毒性の発現) が見られた。そこで本試料については、さらに低濃度で再試験を実施したが DNA 損傷性は検出されなかった。

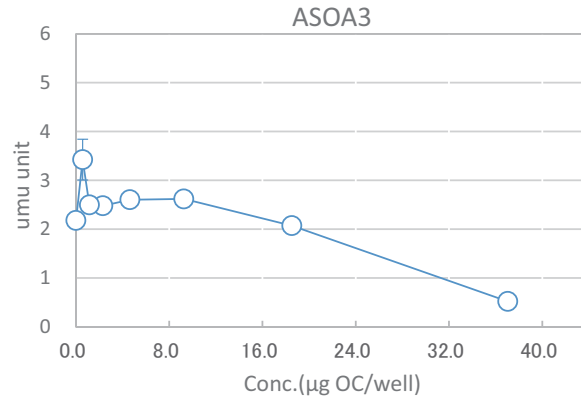


図 21 ASOA3 の用量応答曲線

比較のため、BSOA3 (イソブレン +O₃) 試料の用量応答曲線を図 22 に示す。この試料では、陽性と判断するほど傾きは大きくないものの、むしろ高用量でも *umu unit* の低下が起こらず、おだやかに上昇する傾向が認められている。

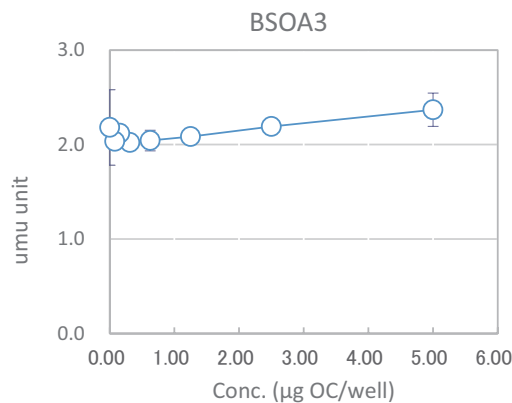


図 22 BSOA3 の用量応答曲線

このように、BSOA と比較して ASOA は試験菌に対する毒性が強い傾向にあった。今回の報告では、ASOA 試料の -S9 系についてはいずれも陰性と整理してあるが、夾雑物の影響により DNA 損傷性を過小評価している可能性もあり、引き続き検討する必要がある。

ここまでの結果は、各試料の活性を抽出物の有機炭素質量あたりで示してある。これを PM 質量あたりで表した場合を表 13 に示す。発生源試料ごとの強弱については、-S9 系において DEP_3L-J と DEP_3L-2 の順序が逆転したほかは、ほぼ同様の傾向であった。

表 13 発生源試料抽出物の umu 試験結果 (PM 質量あたり)

分類	試料ID	umu試験	
		(-S9) ng as 4NQO/μg PM	(+S9) ng as 2AA/μg PM
SOA	BSOA1	(0.0087)	0.32
	BSOA2	<0.019	0.30
	BSOA3	<0.12	1.23
	ASOA1	<0.048	0.36
	ASOA2	<0.048	0.20
	ASOA3	<0.053	<0.15
DEP	DEP_3L-J	0.23	1.1
	DEP_3L-2	2.3	4.7
	DEP_8L-J	0.13	0.88
	DEP_8L-2	0.16	0.71
	SRM1650b1	0.39	1.3
	SRM1650b2		
野焼き	BB01	<0.012	<0.46
	BB04	0.11	<0.16
	BB05	<0.012	<0.46
	BB08	0.058	<0.10
	BB09	<0.011	<0.26
調理	Cook02	<0.041	<0.15
	Cook04	<0.069	<0.24
	Cook06	<0.073	<0.21
	Cook08	<0.036	<0.11

一方、大気試料では東京両国よりもつくばの方が若干高くなる等の違いがあった (表 14)。なお、この表から、大気中の PM_{2.5} は、同じ質量であっても、DNA 損傷に対するポテンシャルが採取地点や採取時期によって大きく異なることが明らかである。

表 14 大気中 PM_{2.5} の DNA 損傷ポテンシャルの地域差 (PM 質量あたり)

分類	試料ID	umu試験	
		(-S9) ng as 4NQO/μg PM	(+S9) ng as 2AA/μg PM
辺戸岬	Hd01-03	<0.0072	<0.16
	Hd04-05	<0.012	<0.10
富士北麓	Fuji02	<0.0042	<0.093
	Fuji03	<0.0065	<0.14
郊外 (つくば)	Tk04	0.045	<0.07
	Tk06	0.034	<0.19
東京両国 (夏)	RgS01	0.0051	(0.046)
	RgS06	0.0060	(0.044)
東京両国 (冬)	RgW03	0.021	<0.10
	RgW04	<0.015	<0.06
沿道 (川崎)	Ks02	0.019	0.055
	Ks04	<0.013	<0.03
北京 (中国)	Pek06	0.11	<0.09
	Pek07	0.0	0.1
溶媒BL	Sol_Bk1	< 0.21	NA
	Sol_Bk2	< 0.20	NA
	Sol_Bk3	<0.03	<0.74
フィルターBL	HVTbk1	< 0.22	NA
	HVTbk2	<0.03	<0.75
	47Tbk1	< 0.22	NA
	47Tbk2	<0.03	<0.71

一方、PM_{2.5}の環境基準は、大気中PMの質量濃度で規定されている。そこで、大気中質量濃度(μg/m³)あたりの遺伝毒性(変異原性)について、別途調べた。2012年夏季及び2014年冬季に国内4地点(前橋、つくば、名古屋及び福岡)においてインパクト付きハイボリウムエアサンプラーで採取し、-80℃で冷凍保存したPM_{2.5}試料を用い、TA98株及びTA100株によるAmesプレインキュベーション法で評価した⁶⁵⁾。計64試料の大気中PM_{2.5}濃度と単位大気体積当たり変異原性の関係を図23に示した⁶⁵⁾。このように、大気中PM_{2.5}濃度と変異原性は相関するものの、同じPM_{2.5}濃度であっても活性は大きな幅を持つことが明らかとなった。

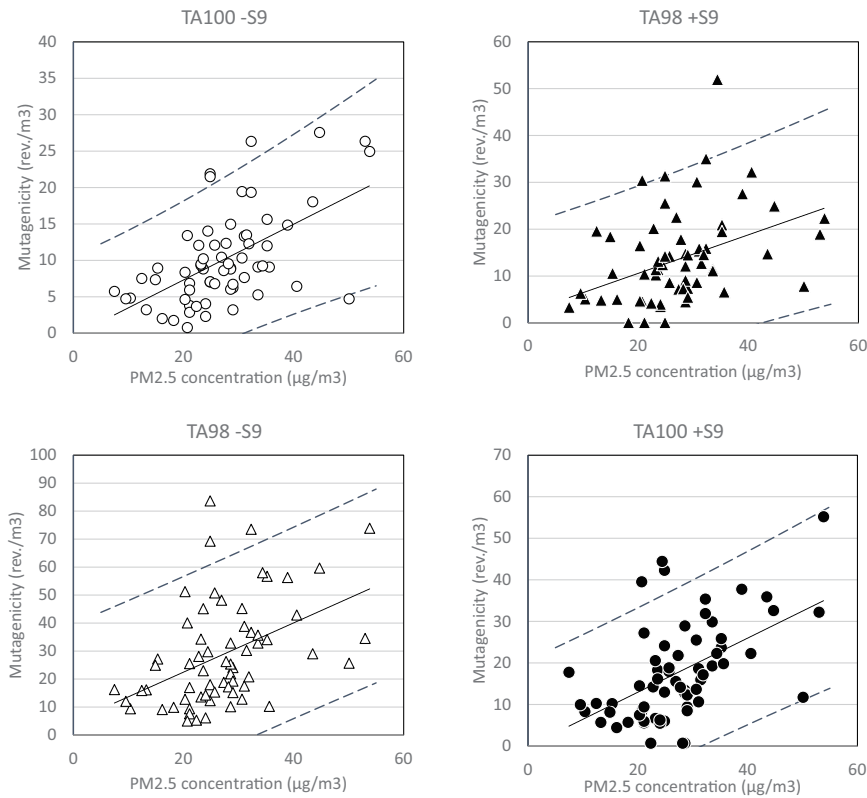


図23 大気中PM_{2.5}濃度と変異原性との関係
 実線：回帰曲線、破線：95パーセンタイル

(8) 毒性の相加性試験

大半の標準化学物質、発生源試料、環境大気試料について、どの毒性評価項目も用量応答曲線は良好で用量依存的であった。DNA損傷性(umu応答性)を例にとると、2種類の化学物質の混合物、DEP試料と化学物質の混合物では、それぞれ相加性は良好であった。この相加試験は、2つの溶液はumu応答が同レベルとなる濃度同士を混合して試験した。その結果、umu応答の実測値/理論値比は1.12(4NQOと1-ニトロピレン(1NP)の混合物)、1.10(4NQOと(Z)-2-(furan-2-yl)-3-(5-nitrofuran-2-yl)prop-2-enamide(AF2)の混合物)、1.07(SRM1650bと4NQOの混合物)、そして0.96(SRM1650bと1NPの混合物)であった。

例として、2発生源混合PM試料と4発生源混合PM試料に対する毒性応答の理論値と実測値を図24に示す。全般的に、支配的な発生源が異なっても、毒性応答の実測値は理論値と比較的よく一致した。この実測値と理論値の比の平均と標準偏差を表15に示す。なお、ここでは、各発生源試料の応答の検出率が低く、相加性を評価できなかったumu応答性は示していない。残りの5種類の毒性評価項目に関して、毒性応答の実測値/理論値比は0.92~1.39の範囲であった。

以上の結果をまとめると、全てのアッセイ系で毒性の相加性は良好であった。良好な結果が得られたのには、有機物(有機抽出物)に焦点をあてたこと、実験間の変動を低く抑えるようコントロールしたことが一定程度関与したと思われる。

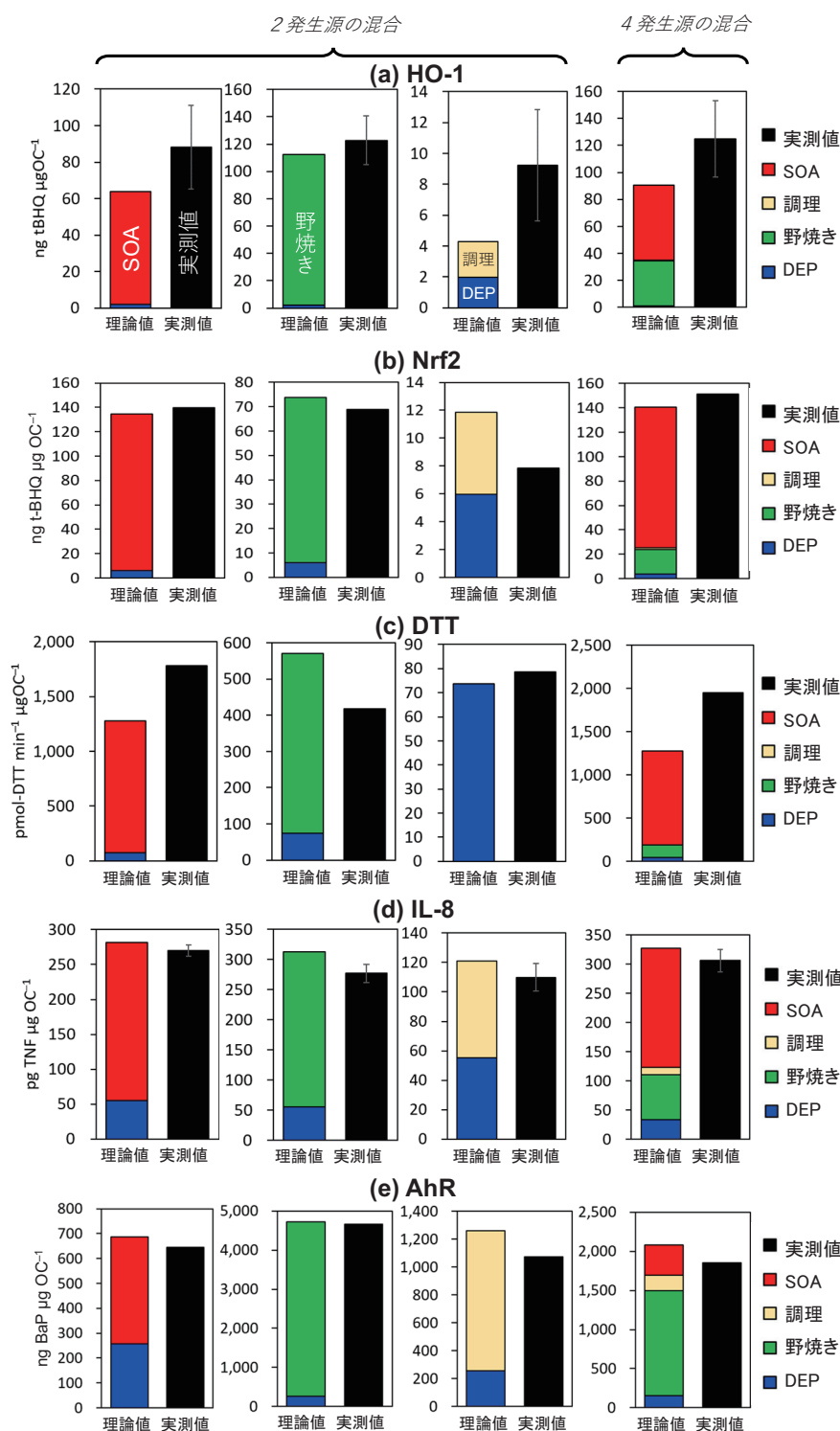


図 24 2 発生源混合 PM 試料と 4 発生源混合 PM 試料に対する毒性応答の理論値と実測値

表 15 2 発生源混合 PM 試料と 4 発生源混合 PM 試料に対する毒性応答の実測値 / 理論値比の平均と標準偏差

	実測値 / 理論値比
HO-1	1.50 ± 0.46
Nrf2	0.93 ± 0.19
DTT	1.18 ± 0.36
IL-8	0.92 ± 0.03
AhR	0.92 ± 0.06

2.4 サブテーマ3：各毒性に対する発生源別寄与推定

2.4.1 目的

このサブテーマの目的は、大気有機粒子の各種の毒性に対する発生源別寄与を明らかにすることである。

2.4.2 方法

サブテーマ1で得られた大気有機粒子の質量に対する発生源別寄与率にサブテーマ2で得られた各発生源の有機粒子の有機炭素質量あたり毒性強度を乗じることで、大気有機粒子の各種の毒性に対する発生源別寄与を推定した。なお、DNA 損傷性 (*umu*+S9) に関しては、毒性応答の大半が検出限界以下であったため、検出限界の半分の値を用いて解析した。

2.4.3 結果と考察

大気有機粒子の質量濃度 ($\mu\text{gOC}/\text{m}^3$) と毒性応答 (μgOC あたり) の実測値及び発生源別寄与推定値を図10に示す。酸化能 (HO-1、Nrf2、DTT) と炎症能 (IL-8) の全体的な傾向は、ここでも互いに類似していた。酸化能 (HO-1、Nrf2、DTT)、炎症能 (IL-8) 及びDNA 損傷性 (*umu* + S9) に関しては、推定された発生源寄与の合計値は、実測値よりも概して大きかった。一方、AhR 活性に関しては、試料によって、推定値の合計は実測値と同程度だったり、高かったり低かったりした。

大気有機粒子の質量濃度 ($\mu\text{gOC}/\text{m}^3$) と毒性応答 (μgOC あたり) に対する発生源寄与率の推定値を図11に示す。各発生源の重要度は大気試料を採取した場所や季節によって異なるが、結果の概要は次のようである。酸化能 (HO-1、Nrf-2、DTT) と炎症能 (IL-8) には、NapSOA が最も大きく寄与しており、次いで野焼き、自動車排気、TolSOA の順であった。NapSOA の寄与率は都心 (両国) で高く、野焼きの寄与率は郊外 (つくば) で高く、自動車排気の寄与率は沿道 (川崎) で高かった。調理とBSOA の寄与率は合計しても4%以下であった。

AhR 活性に対して寄与の大きい発生源は、酸化能や炎症能の場合とは大きく異なると推定された (図11)。すなわち、大半の大気試料において、野焼きの寄与が非常に大きかった。この主な原因は、野焼きの発生源試料のAhR 活性が非常に高いためである (図12)。全地点の平均に対して、NapSOA、自動車排気、調理の寄与率は、それぞれ数パーセントであった。TolSOA とBSOA の寄与率は合わせて1%以下であった。

DNA 損傷性 (*umu* + S9) に対して寄与の大きい発生源は、他の毒性応答の場合とは大きく異なる (図11)。すなわち、自動車排気の寄与が辺戸と富士以外で支配的であった。この主な原因は、自動車排気の発生源試料のDNA 損傷性が高いためである (図12)。野焼きとTolSOA の寄与が比較的大きいケースもあった。一方、NapSOA、BSOA、調理の寄与は比較的小さかった。

大気有機粒子の質量濃度と毒性に対する発生源寄与率の比較を図25に示す。この比較から、興味深く、重要と思われる特徴がいくつか見出された。NapSOA は、大気有機粒子の質量への寄与は大きくないが (10 ~ 40% 以下)、酸化能や炎症能に対して非常に大きな寄与 (40 ~ 90% 以上) を示した。一方、調理は、粒子質量には比較的大きく寄与するケースがあるが (最大22%)、毒性への寄与は本研究で対象とした全ての毒性評価項目において一貫して小さかった (最大12%)。野焼きは、粒子質量に対する寄与率に比べ、AhR 活性に対する寄与率が一貫して非常に高かった。DNA 損傷性 (*umu* + S9) については、自動車排気とBSOA の寄与が、粒子質量に対する寄与よりも一貫して大きかった。BSOA は、DNA 損傷性以外の毒性応答への影響は非常に小さい (0.4% 以下) と推定された。

大気有機粒子の酸化能、炎症能、DNA 損傷性については、発生源別寄与の推定値の合計が実測値よりも大半の試料で高かった。これには、大気中でのエイジング (酸化反応) による大気粒子の毒性低下が影響している可能性がある。他の原因としてあり得るのは、発生源試料 (特にNapSOA) の代表性である。一方、AhR 活性の場合、推定値と実測値は同程度で、しばしば実測値の方が高かった。これは、AhR 活性に大きく関与するPAHs等の化学成分が大気中で安定であるため、大気中でのエイジングの影響を受けにくいためかもしれない。

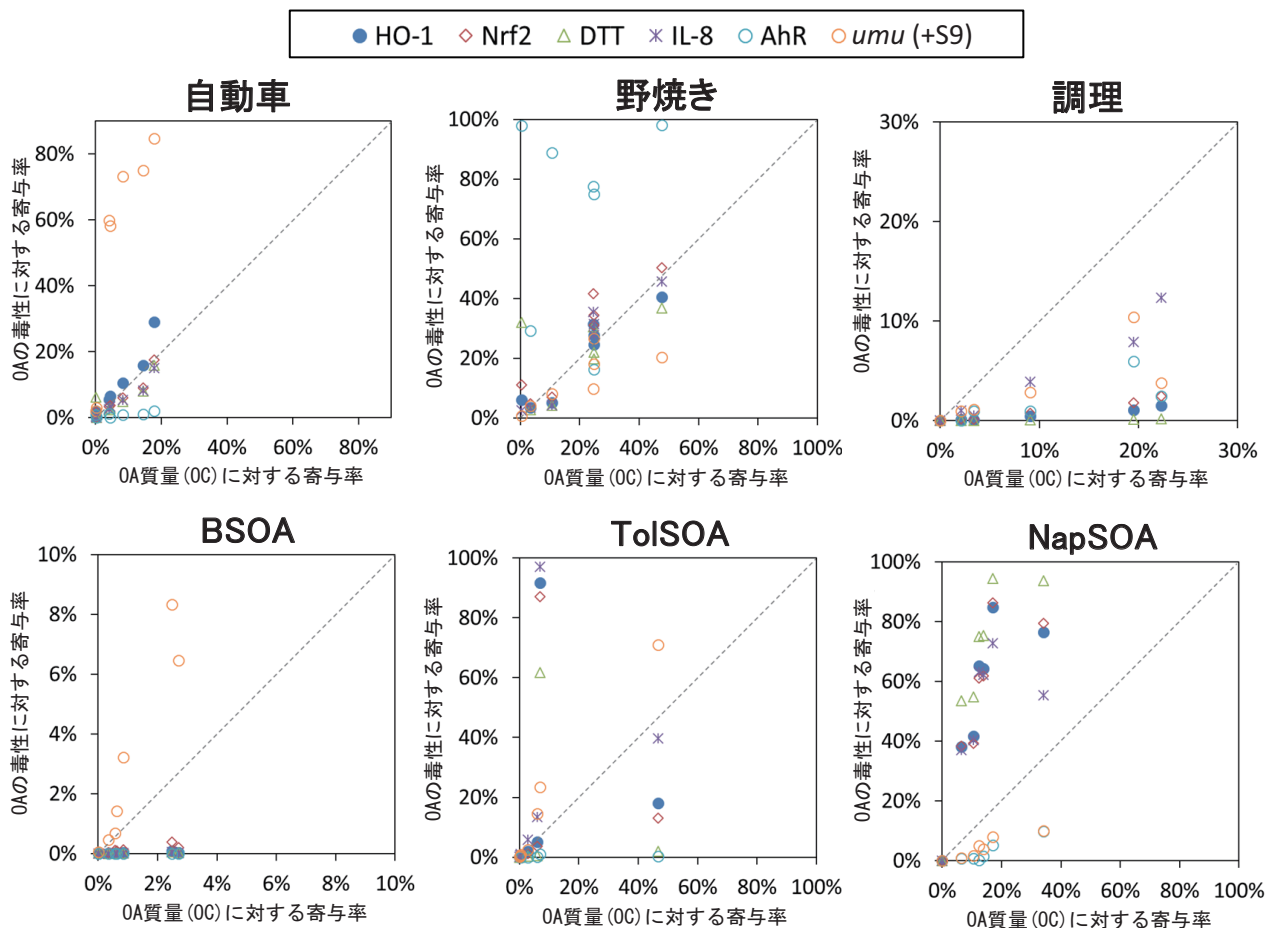


図 25 大気有機粒子の質量濃度と毒性に対する発生源寄与率の比較

2.5 まとめ

本研究では、有機成分を用いた CMB 法と毒性データを用いて、大気有機粒子の様々な毒性に対する発生源寄与を推定する新しいアプローチを提案した。その結果、有機炭素質あたりの毒性応答は、発生源の種類や大気の地点・季節によって大きく異なることが確認された。毒性応答に対する相対的な発生源寄与率は、粒子質量に対する寄与率とは著しく異なった。そして、大気有機粒子のそれぞれの毒性応答に対して寄与の大きい発生源やその順位は、粒子質量に寄与の大きい発生源やその順位とは大きく異なった。これらの結果から、大気粒子の環境基準や排出規制に従来用いられてきた、粒子質量のみに基づく評価方法では、粒子の健康影響・毒性を適切に評価できない可能性があると思われる。

大気有機粒子の毒性に対する発生源寄与推定の結果、以下の知見が得られた。まず、酸化能 (HO-1、Nrf2、DTT) と炎症能 (IL-8) については、NapSOA の寄与が支配的であり、次いで野焼き、自動車排気、ToISOA の順であった。AhR 活性は、野焼きの寄与が支配的で、次いで NapSOA、自動車排気、調理の順であった。DNA 損傷性 (umu + S9) は、自動車排気の寄与が支配的で、次いで野焼き、ToISOA の順であった。これらの結果から、本研究で評価対象とした発生源の中では、NapSOA、野焼き及び自動車排気が、本研究の毒性評価項目に対して重要な発生源だと推定された。一方、調理と BSOA の重要性は相対的に低いと推定された。

対象とした種々の地点・季節で採取した大気有機粒子の中では、都市部と沿道の試料が、強い毒性応答を示した。夏季のリモート地域の粒子試料の毒性応答が、全ての毒性評価項目において一貫して非常に低かったことから、長時間 (例えば 1 週間以上) の大気中でのエイジング (酸化反応) が大気粒子の毒性を低下させることが示唆された。大気有機粒子の毒性の推定値と実測値の比較結果も、この仮説を支持するものであった。大気中でのエイジングに伴う SOA や燃焼生成粒子の毒性の変化が近年注目され、研究が行われてきているが⁹⁾、その結論は一貫していないため、さらなる研究が必要だと思われる。夏季に森林大気中で採取した粒子試料と実験的に生成した生物起源 SOA の毒性応答が低

かったことから、生物起源の一次粒子と二次粒子の毒性はいずれも比較的低いと考えられる。

近年、大気中の粒子の毒性の指標として酸化ストレス（酸化能）が広く用いられており、特に、化学アッセイ法である DTT 法が最もよく用いられている。また、ナフタレン起源 SOA (NapSOA) が他の VOC 起源の SOA よりも強い酸化ストレスを引き起こすことが DTT 法によって最近報告されている^{8,66)}。本研究では、NapSOA の酸化能 (DTT 法だけでなく細胞アッセイ (HO-1、Nrf2) による) 及び炎症能 (IL-8) が非常に強いことを明らかにした。また、NapSOA の酸化能と炎症能は、これまで重視されてきた DEP や野焼きよりも強いいため、環境健康影響の観点から重要な発生源だといえる。したがって、今後、NapSOA のような芳香族 VOCs 由来 SOA の前駆体や生成条件を変化させて、その毒性や健康影響をさらに検討していく必要があるだろう。

本研究で提案した手法によって、大気質を改善するための発生源対策を検討するうえで重要な知見を得ることができた。本手法は、毒性・健康影響に基づく規制政策に有用だと思われる。なお、本研究では、解析内容が複雑になりすぎるのを避けるため、大気微小粒子中の有機成分に焦点をあてた。しかし、将来的には、元素状炭素 (すす)、金属元素、無機塩を含む微小粒子全体の毒性、そしてそれぞれの化学成分ごとの毒性を評価することが重要だと思われる。

引用文献

- 1) Cassee, F. R.; Heroux, M. E.; Gerlofs-Nijland, M. E.; Kelly, F. J., Particulate matter beyond mass: recent health evidence on the role of fractions, chemical constituents and sources of emission. *Inhal Toxicol* **2013**, *25*, (14), 802-12.
- 2) Dockery, D. W.; Pope, C. A., 3rd; Xu, X.; Spengler, J. D.; Ware, J. H.; Fay, M. E.; Ferris, B. G., Jr.; Speizer, F. E., An association between air pollution and mortality in six U.S. cities. *N Engl J Med* **1993**, *329*, (24), 1753-1759.
- 3) Habertzell, P.; O'Toole, T. E.; Bhatnagar, A.; Conklin, D. J., Exposure to Fine Particulate Air Pollution Causes Vascular Insulin Resistance by Inducing Pulmonary Oxidative Stress. *Environ Health Perspect* **2016**, *124*, (12), 1830-1839.
- 4) Meng, X.; Zhang, Y.; Yang, K. Q.; Yang, Y. K.; Zhou, X. L., Potential Harmful Effects of PM_{2.5} on Occurrence and Progression of Acute Coronary Syndrome: Epidemiology, Mechanisms, and Prevention Measures. *Int J Environ Res Public Health* **2016**, *13*, (8).
- 5) Pope, C. A., 3rd; Dockery, D. W., Health effects of fine particulate air pollution: lines that connect. *J Air Waste Manag Assoc* **2006**, *56*, (6), 709-42.
- 6) U S Environmental Protection Agency, Integrated Science Assessment (ISA) for Particulate Matter (Final Report, 2019), EPA/600/R-19/188. In 2019.
- 7) Wittkopp, S.; Staimer, N.; Tjoa, T.; Stinchcombe, T.; Daher, N.; Schauer, J. J.; Shafer, M. M.; Sioutas, C.; Gillen, D. L.; Delfino, R. J., Nrf2-related gene expression and exposure to traffic-related air pollution in elderly subjects with cardiovascular disease: An exploratory panel study. *J Expo Sci Environ Epidemiol* **2016**, *26*, (2), 141-9.
- 8) Shiraiwa, M.; Ueda, K.; Pozzer, A.; Lammel, G.; Kampf, C. J.; Fushimi, A.; Enami, S.; Arangio, A. M.; Frohlich-Nowoisky, J.; Fujitani, Y.; Furuyama, A.; Lakey, P. S. J.; Lelieveld, J.; Lucas, K.; Morino, Y.; Pöschl, U.; Takahama, S.; Takami, A.; Tong, H.; Weber, B.; Yoshino, A.; Sato, K., Aerosol Health Effects from Molecular to Global Scales. *Environ Sci Technol* **2017**, *51*, (23), 13545-13567.
- 9) World Health Organization, *Ambient air pollution: A global assessment of exposure and burden of disease*. 2016.
- 10) 伏見暁洋, 森野 悠, 高見昭憲, 大原利真, 田邊 潔; PM_{2.5} の実態解明に向けて - 最近の研究と今後の課題 -, 大気環境学会誌, 46, (2), p. 84-100, 2011.
- 11) Seinfeld, J. H.; Pandis, S. N., *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*. John Wiley & Sons, Inc.: 1998.
- 12) Heo, J.; Dulger, M.; Olson, M. R.; McGinnis, J. E.; Shelton, B. R.; Matsunaga, A.; Sioutas, C.; Schauer, J. J., Source apportionments of PM_{2.5} organic carbon using molecular marker Positive Matrix Factorization and comparison of results from different

- receptor models. *Atmos. Environ.* **2013**, *73*, 51-61.
- 13) Schauer, J. J.; Rogge, W. F.; Hildemann, L. M.; Mazurek, M. A.; Cass, G. R.; Simoneit, B. R. T., Source apportionment of airborne particulate matter using organic compounds as tracers. *Atmos. Environ.* **1996**, *30*, (22), 3837-3855.
 - 14) Morino, Y.; Takahashi, K.; Fushimi, A.; Tanabe, K.; Ohara, T.; Hasegawa, S.; Uchida, M.; Takami, A.; Yokouchi, Y.; Kobayashi, S., Contrasting diurnal variations in fossil and nonfossil secondary organic aerosol in urban outflow, Japan. *Environ Sci Technol* **2010**, *44*, (22), 8581-86.
 - 15) 高橋克行, 伏見暁洋, 森野 悠, 飯島明宏, 米持真一, 速水 洋, 長谷川就一, 田邊 潔, 小林伸治; 北関東における微小粒子状物質のレセプターモデルと放射性炭素同位体比を組み合わせた発生源寄与率推定, 大気環境学会誌, **46**, (3), p. 156-163, 2011.
 - 16) Lough, G. C.; Christensen, C. G.; Schauer, J. J.; Tortorelli, J.; Mani, E.; Lawson, D. R.; Clark, N. N.; Gabele, P. A., Development of molecular marker source profiles for emissions from on-road gasoline and diesel vehicle fleets. *J Air Waste Manag Assoc* **2007**, *57*, (10), 1190-1199.
 - 17) Rogge, W. F.; Hildemann, L. M.; Mazurek, M. A.; Cass, G. R.; Simoneit, B. R. T., Sources of Fine Organic Aerosol .5. Natural-Gas Home Appliances. *Environ Sci Technol* **1993**, *27*, (13), 2736-2744.
 - 18) Rogge, W. F.; Hildemann, L. M.; Mazurek, M. A.; Cass, G. R.; Simoneit, B. R. T., Sources of Fine Organic Aerosol .4. Particulate Abrasion Products from Leaf Surfaces of Urban Plants. *Environ Sci Technol* **1993**, *27*, (13), 2700-2711.
 - 19) Schauer, J. J.; Kleeman, M. J.; Cass, G. R.; Simoneit, B. R. T., Measurement of Emissions from Air Pollution Sources. 4. C1 – C27 Organic Compounds from Cooking with Seed Oils. *Environ Sci Technol* **2002**, *36*, (4), 567-575.
 - 20) Schauer, J. J.; Kleeman, M. J.; Cass, G. R.; Simoneit, B. R. T., Measurement of emissions from air pollution sources. 1. C-1 through C-29 organic compounds from meat charbroiling. *Environ Sci Technol* **1999**, *33*, (10), 1566-1577.
 - 21) Schauer, J. J.; Kleeman, M. J.; Cass, G. R.; Simoneit, B. R., Measurement of emissions from air pollution sources. 5. C1-C32 organic compounds from gasoline-powered motor vehicles. *Environ Sci Technol* **2002**, *36*, (6), 1169-80.
 - 22) Fushimi, A.; Saitoh, K.; Hayashi, K.; Ono, K.; Fujitani, Y.; Villalobos, A. M.; Shelton, B. R.; Takami, A.; Tanabe, K.; Schauer, J. J., Chemical characterization and oxidative potential of particles emitted from open burning of cereal straws and rice husk under flaming and smoldering conditions. *Atmos. Environ.* **2017**, *163*, 118-127.
 - 23) Villalobos, A. M.; Barraza, F.; Jorquera, H.; Schauer, J. J., Chemical speciation and source apportionment of fine particulate matter in Santiago, Chile, 2013. *The Science of the total environment* **2015**, *512-513*, 133-42.
 - 24) Stone, E.; Schauer, J.; Quraishi, T. A.; Mahmood, A., Chemical characterization and source apportionment of fine and coarse particulate matter in Lahore, Pakistan. *Atmos. Environ.* **2010**, *44*, (8), 1062-1070.
 - 25) Saffari, A.; Daher, N.; Shafer, M. M.; Schauer, J. J.; Sioutas, C., Global perspective on the oxidative potential of airborne particulate matter: a synthesis of research findings. *Environ Sci Technol* **2014**, *48*, (13), 7576-7583.
 - 26) Hannigan, M. P.; Busby, W. F., Jr.; Cass, G. R., Source contributions to the mutagenicity of urban particulate air pollution. *J Air Waste Manag Assoc* **2005**, *55*, (4), 399-410.
 - 27) Kim, I.; Park, K.; Lee, K.; Park, M.; Lim, H.; Shin, H.; Kim, S. D., Application of various cytotoxic endpoints for the toxicity prioritization of fine dust (PM_{2.5}) sources using a multi-criteria decision-making approach. *Environ Geochem Health* **2020**, *42*, (6), 1775-1788.
 - 28) Fushimi, A.; Villalobos, A. M.; Takami, A.; Tanabe, K.; Schauer, J. J. In *Contribution of Open Burning of Agricultural Residues to PM_{2.5} in Suburban Tokyo: PM Mass and Oxidative Potential*, 36th AAAR (American Association for Aerosol Research) Annual Conference, Raleigh, NC, USA, Abstract book, 8OP.12., 2017; 2017.
 - 29) 兼保直樹, ハイボリューム・エアサンプラー用 PM_{2.5} インパクター (HVI2.5) の開発. 大気環境学会誌 **2010**, *45*, (4), 171-174.
 - 30) Akimoto, H.; Sakamaki, F.; Hoshino, M.; Inoue, G.; Okuda, M., Photochemical ozone formation in propylene-nitrogen ox-

- ide-dry air system. *Environ Sci Technol* **1979**, *13*, (1), 53-58.
- 31) Sato, K.; Hatakeyama, S.; Imamura, T., Secondary organic aerosol formation during the photooxidation of toluene: NO_x dependence of chemical composition. *J Phys Chem A* **2007**, *111*, (39), 9796-808.
- 32) DeCarlo, P. F.; Kimmel, J. R.; Trimborn, A.; Northway, M. J.; Jayne, J. T.; Aiken, A. C.; Gonin, M.; Fuhrer, K.; Horvath, T.; Docherty, K. S.; Worsnop, D. R.; Jimenez, J. L., Field-deployable, high-resolution, time-of-flight aerosol mass spectrometer. *Anal Chem* **2006**, *78*, (24), 8281-9.
- 33) 内田里沙; オゾン-アルケン反応系での syn anti-Criegee 中間体を識別した OH ラジカル生成に関する研究, 神戸大学, 甲第 6356 号 of 139, 2015.
- 34) Henze, D. K.; Seinfeld, J. H., Global secondary organic aerosol from isoprene oxidation. *Geophysical Research Letters* **2006**, *33*, (9).
- 35) Chan, A. W. H.; Kautzman, K. E.; Chhabra, P. S.; Surratt, J. D.; Chan, M. N.; Crouse, J. D.; Kürten, A.; Wennberg, P. O.; Flagan, R. C.; Seinfeld, J. H., Secondary organic aerosol formation from photooxidation of naphthalene and alkylnaphthalenes: implications for oxidation of intermediate volatility organic compounds (IVOCs). *Atmos. Chem. Phys.* **2009**, *9*, (9), 3049-3060.
- 36) Ng, N. L.; Kroll, J. H.; Chan, A. W. H.; Chhabra, P. S.; Flagan, R. C.; Seinfeld, J. H., Secondary organic aerosol formation from m-xylene, toluene, and benzene. *Atmos. Chem. Phys.* **2007**, *7*, (14), 3909-3922.
- 37) Fushimi, A.; Saitoh, K.; Fujitani, Y.; Hasegawa, S.; Takahashi, K.; Tanabe, K.; Kobayashi, S., Organic-rich nanoparticles (diameter: 10-30 nm) in diesel exhaust: Fuel and oil contribution based on chemical composition. *Atmos. Environ.* **2011**, *45*, (35), 6326-6336.
- 38) Fushimi, A.; Kondo, Y.; Kobayashi, S.; Fujitani, Y.; Saitoh, K.; Takami, A.; Tanabe, K., Chemical composition and source of fine and nanoparticles from recent direct injection gasoline passenger cars: Effects of fuel and ambient temperature. *Atmos. Environ.* **2016**, *124*, 77-84.
- 39) Fujitani, Y.; Hirano, S.; Kobayashi, S.; Tanabe, K.; Suzuki, A.; Furuyama, A.; Kobayashi, T., Characterization of dilution conditions for diesel nanoparticle inhalation studies. *Inhal Toxicol* **2009**, *21*, (3), 200-9.
- 40) Hayashi, K.; Ono, K.; Kajiura, M.; Sudo, S.; Yonemura, S.; Fushimi, A.; Saitoh, K.; Fujitani, Y.; Tanabe, K., Trace gas and particle emissions from open burning of three cereal crop residues: Increase in residue moistness enhances emissions of carbon monoxide, methane, and particulate organic carbon. *Atmos. Environ.* **2014**, *95*, 36-44.
- 41) Fujitani, Y.; Takahashi, K.; Fushimi, A.; Hasegawa, S.; Kondo, Y.; Tanabe, K.; Kobayashi, S., Particle number emission factors from diesel trucks at a traffic intersection: Long-term trend and relation to particle mass-based emission regulation. *Atmospheric Environment: X* **2020**, *5*, 100055.
- 42) Fushimi, A.; Hasegawa, S.; Takahashi, K.; Fujitani, Y.; Tanabe, K.; Kobayashi, S., Atmospheric fate of nuclei-mode particles estimated from the number concentrations and chemical composition of particles measured at roadside and background sites. *Atmos. Environ.* **2008**, *42*, (5), 949-959.
- 43) 富山 一, 田邊 潔, 茶谷 聡, 小林伸治, 藤谷雄二, 古山昭子, 佐藤 圭, 伏見暁洋, 近藤美則, 菅田誠治, 森野 悠, 早崎将光, 小熊宏之, 井手玲子, 日下博幸, 高見昭憲: 野焼き発生の時間分布調査および稲作残渣野焼きによる大気汚染物質排出量の日変動推計, 大気環境学会誌, 52, (4), p.105-117, 2017
- 44) Chow, J. C.; Watson, J. G.; Crow, D.; Lowenthal, D. H.; Merrifield, T., Comparison of IMPROVE and NIOSH carbon measurements. *Aerosol Sci Tech* **2001**, *34*, (1), 23-34.
- 45) U S Environmental Protection Agency, EPA-CMB8.2, Users Manual, 2004. <https://www.epa.gov/sites/production/files/2020-10/documents/epa-cmb82manual.pdf> (2020年6月29日最終確認).
- 46) Hamad, S. H.; Shafer, M. M.; Kadhim, A. K. H.; Al-Omran, S. M.; Schauer, J. J., Seasonal trends in the composition and ROS activity of fine particulate matter in Baghdad, Iraq. *Atmos. Environ.* **2015**, *100*, 102-110.
- 47) Villalobos, A. M.; Amonov, M. O.; Shafer, M. M.; Devi, J. J.; Gupta, T.; Tripathi, S. N.; Rana, K. S.; McKenzie, M.; Bergin, M. H.; Schauer, J. J., Source apportionment of carbonaceous fine particulate matter (PM_{2.5}) in two contrasting cities across the Indo-

- Gangetic Plain. *Atmospheric Pollution Research* **2015**, *6*, (3), 398-405.
- 48) Zhang, Y.; Schauer, J. J.; Zhang, Y.; Zeng, L.; Wei, Y.; Liu, Y.; Shao, M., Characteristics of particulate carbon emissions from real-world Chinese coal combustion. *Environ Sci Technol* **2008**, *42*, (14), 5068-73.
- 49) Kleindienst, T. E.; Jaoui, M.; Lewandowski, M.; Offenberg, J. H.; Lewis, C. W.; Bhave, P. V.; Edney, E. O., Estimates of the contributions of biogenic and anthropogenic hydrocarbons to secondary organic aerosol at a southeastern US location. *Atmos. Environ.* **2007**, *41*, (37), 8288-8300.
- 50) Kleindienst, T. E.; Jaoui, M.; Lewandowski, M.; Offenberg, J. H.; Docherty, K. S., The formation of SOA and chemical tracer compounds from the photooxidation of naphthalene and its methyl analogs in the presence and absence of nitrogen oxides. *Atmos. Chem. Phys.* **2012**, *12*, (18), 8711-8726.
- 51) Al-Naiema, I. M.; Offenberg, J. H.; Madler, C. J.; Lewandowski, M.; Kettler, J.; Fang, T.; Stone, E. A., Secondary organic aerosols from aromatic hydrocarbons and their contribution to fine particulate matter in Atlanta, Georgia. *Atmos. Environ.* **2020**, *223*.
- 52) Sato, K.; Jia, T.; Tanabe, K.; Morino, Y.; Kajii, Y.; Imamura, T., Terpenylic acid and nine-carbon multifunctional compounds formed during the aging of β -pinene ozonolysis secondary organic aerosol. *Atmos. Environ.* **2016**, *130*, 127-135.
- 53) El Haddad, I.; Marchand, N.; Temime-Roussel, B.; Wortham, H.; Piot, C.; Besombes, J. L.; Baduel, C.; Voisin, D.; Armengaud, A.; Jaffrezo, J. L., Insights into the secondary fraction of the organic aerosol in a Mediterranean urban area: Marseille. *Atmos. Chem. Phys.* **2011**, *11*, (5), 2059-2079.
- 54) Edney, E. O.; Kleindienst, T. E.; Jaoui, M.; Lewandowski, M.; Offenberg, J. H.; Wang, W.; Claeys, M., Formation of 2-methyl tetrols and 2-methylglyceric acid in secondary organic aerosol from laboratory irradiated isoprene/NOX/SO2/air mixtures and their detection in ambient PM_{2.5} samples collected in the eastern United States. *Atmos. Environ.* **2005**, *39*, (29), 5281-5289.
- 55) Kleindienst, T. E.; Lewandowski, M.; Offenberg, J. H.; Jaoui, M.; Edney, E. O., The formation of secondary organic aerosol from the isoprene + OH reaction in the absence of NO_x. *Atmos. Chem. Phys.* **2009**, *9*, (17), 6541-6558.
- 56) Clement, A.; Steele, M. P.; Brody, J. S.; Riedel, N., SV40T-immortalized lung alveolar epithelial cells display posttranscriptional regulation of proliferation-related genes. *Experimental Cell Research* **1991**, *196*, (2), 198-205.
- 57) van der Linden, S. C.; von Bergh, A. R.; van Vught-Lussenburg, B. M.; Jonker, L. R.; Teunis, M.; Krul, C. A.; van der Burg, B., Development of a panel of high-throughput reporter-gene assays to detect genotoxicity and oxidative stress. *Mutat Res Genet Toxicol Environ Mutagen* **2014**, *760*, 23-32.
- 58) Kumagai, Y.; Koide, S.; Taguchi, K.; Endo, A.; Nakai, Y.; Yoshikawa, T.; Shimojo, N., Oxidation of Proximal Protein Sulfhydryls by Phenanthraquinone, a Component of Diesel Exhaust Particles. *Chem. Res. Toxicol.* **2002**, *15*, (4), 483-489.
- 59) Pieterse, B.; Felzel, E.; Winter, R.; van der Burg, B.; Brouwer, A., PAH-CALUX, an optimized bioassay for AhR-mediated hazard identification of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) as individual compounds and in complex mixtures. *Environ Sci Technol* **2013**, *47*, (20), 11651-9.
- 60) Oda, Y.; Nakamura, S.-i.; Oki, I.; Kato, T.; Shinagawa, H., Evaluation of the new system (*umu*-test) for the detection of environmental mutagens and carcinogens. *Mutation Research/Environmental Mutagenesis and Related Subjects* **1985**, *147*, (5), 219-229.
- 61) Nakajima, D.; Ishii, R.; Kageyama, S.; Onji, Y.; Mineki, S.; Morooka, N.; Takatori, K.; Goto, S., Genotoxicity of Microbial Volatile Organic Compounds. *Journal of Health Science* **2006**, *52*, (2), 148-153.
- 62) Fushimi, A.; Nakajima, D.; Furuyama, A.; Suzuki, G.; Ito, T.; Sato, K.; Fujitani, Y.; Kondo, Y.; Takami, A. In *New approach for source apportionment of toxicity by atmospheric organic aerosols*, 37th AAAR (American Association for Aerosol Research) Annual Conference, Portland, Oregon, USA, 2AD.5., 2019; 2019.
- 63) Suzuki, T.; Yamamoto, M., Stress-sensing mechanisms and the physiological roles of the Keap1-Nrf2 system during cellular

stress. *J Biol Chem* **2017**, *292*, (41), 16817-16824.

- 64) Fujitani, Y.; Furuyama, A.; Tanabe, K.; Hirano, S., Comparison of Oxidative Abilities of PM_{2.5} Collected at Traffic and Residential Sites in Japan. Contribution of Transition Metals and Primary and Secondary Aerosols. *Aerosol and Air Quality Research* **2017**, *17*, (2), 574-587.
- 65) Sugita, K.; Kin, Y.; Yagishita, M.; Ikemori, F.; Kumagai, K.; Ohara, T.; Kinoshita, M.; Nishimura, K.; Takagi, Y.; Nakajima, D., Evaluation of the genotoxicity of PM_{2.5} collected by a high-volume air sampler with impactor. *Genes & Environ* **2019**, *41*, 7.
- 66) Tuet, W. Y.; Chen, Y.; Xu, L.; Fok, S.; Gao, D.; Weber, R. J.; Ng, N. L., Chemical oxidative potential of secondary organic aerosol (SOA) generated from the photooxidation of biogenic and anthropogenic volatile organic compounds. *Atmos. Chem. Phys.* **2017**, *17*, (2), 839-853.

[資 料]

1 研究の組織と研究課題の構成

1.1 研究の組織

[A 研究担当者]

環境計測研究センター	伏見暁洋
環境リスク・健康研究センター	中島大介 古山昭子 伊藤智彦 藤谷雄二
資源循環・廃棄物研究センター	鈴木 剛
地域環境研究センター	佐藤 圭 近藤美則 高見昭憲（平成 29 年度） 吉野彩子（平成 30～令和元年度）

（注）所属は年度終了時点のもの。

[B 客員研究員]

齊藤勝美（イサラ研究所、富士通クオリティ・ラボ・環境センター株式会社）（平成 29～平成 30 年度）

[C 協力研究者]

Sathiyamurthi Ramasamy	（地域環境研究センター）
高橋善幸	（地球環境研究センター）（平成 29 年度）
柳下真由子	（環境リスク・健康研究センター）（平成 29 年度）
猪俣 敏	（環境計測研究センター）（平成 29 年度）
茶谷 聡	（地域環境研究センター）（令和元年度）
山尾幸夫	（地球環境研究センター）（平成 29 年度）
武田裕司	（地球環境研究センター）（平成 29 年度）
大山 猛	（環境計測研究センター）
小林美哉子	（環境計測研究センター）
千葉真紀	（環境計測研究センター）
肥後桂子	（環境計測研究センター）
井原昌代	（環境リスク・健康研究センター）
島谷詠子	（環境リスク・健康研究センター）
道中智恵子	（資源循環・廃棄物研究センター）
James J. Schauer	（University of Wisconsin-Madison, U.S.）
Brandon R. Shelton	（University of Wisconsin-Madison, U.S.）
Pingqing Fu	（Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, China）（平成 29 年度）
Siyao Yue	（Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, China）（平成 29 年度）
齊藤伸治	（東京都環境科学研究所）（平成 29 年度）
林健太郎	（農研機構農業環境変動研究センター）（平成 29 年度）
Bram Brouwer	（BioDetection Systems B.V., Netherland）

今野秀徳	(株式会社堀場テクノサービス)
中村真人	(グリーンブルー株式会社) (平成 29 ~平成 30 年度)
Emmet Norris	(Middlebury University, US) (平成 30 年度)
高橋佑貴	(東京電機大学) (平成 30 年度)

1.2 研究課題と担当者

サブテーマ 1 大気・発生源試料の採取・化学分析・発生源寄与推定

伏見暁洋、藤谷雄二、佐藤 圭、近藤美則、中島大介、吉野彩子、高見昭憲、齊藤勝美*、
 Sathiyamurthi Ramasamy **、James J. Schauer **、Pingqing Fu **、高橋善幸**、齊藤伸治**、林健太郎**、
 Siyao Yue **、柳下真由子**、猪俣 敏**、Brandon R. Shelton **、茶谷 聡**、今野秀徳**、中村真人**、
 山尾幸夫**、武田裕司**、大山 猛**、小林美哉子**、千葉真紀**、肥後桂子**、Emmet Norris **、
 高橋佑貴**

サブテーマ 2 大気・発生源試料の毒性評価

中島大輔、古山昭子、鈴木 剛、伊藤智彦、藤谷雄二、伏見暁洋、井原昌代**、Bram Brower **、
 島谷詠子**、道中智恵子**

サブテーマ 3 各毒性に対する発生源別寄与推定

伏見暁洋、中島大介、古山昭子、鈴木 剛、伊藤智彦、藤谷雄二

(注) *客員研究員、**協力研究者

2 研究成果発表一覧

2.1 誌上発表

<雑誌>

発表者・(刊年)・題目・掲載誌・巻(号)・頁

【査読あり】

Aoki Y., Nakajima D., Matsumoto M., Yagishita M., Matsumoto M., Yanagisawa R., Goto S., Masumura K., Nohmi T. (2018) Change over time of the mutagenicity in the lungs of gpt delta transgenic mice by extract of airborne particles collected from ambient air in the Tokyo metropolitan area. *Genes and Environment*, 40 (25).

Fujitani Y., Takahashi K., Fushimi A., Hasegawa S., Kondo Y., Tanabe K., Kobayashi S. (2020) Particle number emission factors from diesel trucks at a traffic intersection: Long-term trend and relation to particle mass-based emission regulation. *ATMOSPHERIC ENVIRONMENT: X*, 5.

Fujitani Y., Fushimi A., Saitoh K., Sato K., Takami A., Kondo Y., Tanabe K., Kobayashi S. (2020) Mid carbon (C6+-C29+) in refractory black carbon aerosols is a potential tracer of open burning of rice straw: Insights from atmospheric observation and emission source studies, *Atmospheric Environment*, 238, 117729, 1-16.

伏見暁洋, 中山智喜, 佐藤 圭, 高橋克行 (2018) エアロゾル学基礎講座－計測－9. エアロゾルの炭素性成分分析. *エアロゾル研究*, 33 (3), 183-194.

Fushimi A., Nakajima D., Furuyama A., Suzuki G., Ito T., Sato K., Fujitani Y., Kondo Y., Yoshino A., Ramasamy S., Schauer J. J., Fu P., Takahashi Y., Saitoh K., Saito S., Takami A. (2021) Source Contributions to Multiple Toxic Potentials of Atmospheric Organic Aerosols, *Science of the Total Environment*, 773, 145614, 1-10.

He M., Ichinose T, Yoshida S., Ito T., He C., Yoshida Y., Arashidani K., Takano H., Sun G., Shibamoto T. (2017) PM_{2.5}-induced lung inflammation in mice: Differences of inflammatory response in macrophages and type II alveolar cells. *Journal of Applied Toxicology*, 37 (10), 1203-1218.

Hirano S., Zhou Q., Furuyama A., Kanno S. (2017) Differential Regulation of IL-1 β and IL-6 Release in Murine Macrophages. *Inflammation*, 40 (6), 1933-1943.

Inomata S., Sato K., Sakamoto Y., Hirokawa J. (2017) Direct observation of new particle formation during ozonolysis of isoprene and ethene competing against the growth of preexisting particles. *Atmospheric Environment*, 170, 149-155.

Ito, T.; Bekki, K.; Fujitani, Y.; Hirano, S., The toxicological analysis of secondary organic aerosol in human lung epithelial cells and macrophages. *Environ Sci Pollut Res Int* 2019, 26, (22), 22747-22755.

Kamata R., Nakajima D., Shiraishi F. (2018) Agonistic effects of diverse xenobiotics on the constitutive androstane receptor as detected in a recombinant yeast-cell assay. *Toxicology in Vitro*, 46, 335-349.

Kamata R., Nakajima D., Shiraishi F. (2019) Measurement of the agonistic activities of monohydroxylated polychlorinated biphenyls at the retinoid X and retinoic acid receptors using recombinant yeast cells. *Toxicology in Vitro*, 57, 9-17.

Miura K., Shimada K., Sugiyama T., Sato K., Takami A., Chan K.C., Kim I.S., Kim Y.P., Lin N.H., Hatakeyama S. (2019) Seasonal and annual changes in PAH concentrations in a remote site in the Pacific Ocean. *Scientific Reports*, 9:12591.

Ramasamy S., Nakayama T., Nakayama T., Imamura T., Morino Y., Kajii Y., Kajii Y., Sato K. (2019) Investigation of dark condition nitrate radical- and ozone-initiated aging of toluene secondary organic aerosol: Importance of nitrate radical reactions with phenolic products. *Atmospheric Environment*, 219 (117049).

Sato K., Nakashima Y., Morino Y., Imamura T., Kurokawa J., Kajii Y. (2017) Total OH reactivity measurements for the OH-initiated oxidation of aromatic hydrocarbons in the presence of NO_x. *Atmospheric Environment*, 171, 272-278.

Sato K., Fujitani Y., Inomata S., Morino Y., Tanabe K., Ramasamy S., Hikida T., Shimono A., Takami A., Fushimi A., Kondo Y., Imamura T., Tanimoto H., Sugata S. (2018) Studying volatility from composition, dilution, and heating measurements of secondary organic aerosols formed during α -pinene ozonolysis. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18, 5455-5466.

Sato K., Fujitani Y., Inomata S., Morino Y., Tanabe K., Hikida T., Shimono A., Takami A., Fushimi A., Kondo Y., Imamura T., Tanimoto H., Sugata S. (2019) A study of volatility by composition, heating, and dilution measurements of secondary organic aerosol from 1,3,5-trimethylbenzene. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19, 1-15.

佐藤 圭 (2019) 有機物と大気中の粒子状物質 SPM からクラスターまで. *現代化学*, 580, 42-45.

佐藤 圭, RAMASAMY Sathiyamurthi, 猪俣 敏, 森野 悠, 疋田利秀, 下野彰夫 (2019) 加熱脱着-陽子移動反応-四重極インターフェース飛行時間質量分析計による有機エアロゾルのオンライン分析に向けて: 単一組成粒子を用いた応答評価. *エアロゾル研究 特集「猛暑と大気汚染」*, 34 (2), 45-52.

Shimada K., Nohchi M., Yang X., Sugiyama T., Miura K., Takami A., Sato K., Chen X., Kato S., Kajii Y., Meng F., Hatakeyama S. (2020) Degradation of PAHs during long range transport based on simultaneous measurements at Tuoji Island, China, and at Fukue Island and Cape Hedo, Japan. *Environmental Pollution*, 260, 1-9.

Shiraishi F., Kamata R., Terasaki M., Takigami H., Imaizumi Y., Yagishita M., Nakajima D. (2018) Screening data for the endocrine disrupting activities of 583 chemicals using the yeast two-hybrid assay. *Data in Brief*, 21, 2543-2546.

Shiraiwa M., Ueda K., Pozzer A., Lammel G., Kampf C.J., Fushimi A., Enami S., Arangio A.M., Frohlich J., Fujitani Y., Furuyama A., Lakey P.S.J., Lelieveld J., Lucas K., Morino Y., Poschl U., Takahama S., Takami A., Tong H., Weber B., Yoshino A., Sato K. (2017) Aerosol Health Effects from Molecular to Global Scales. *Environmental Science and Technology*, 51, 13545-13567.

Sugita K., Kin Y., Yagishita M., Ikemori F., Kumagai K., Ohara T., Kinoshita M., Nishimura K., Takagi Y., Nakajima D. (2019) Evaluation of the genotoxicity of PM_{2.5} collected by a high-volume air sampler with impactor. *Genes & Environment*, 41 (7), 1-11.

Suzuki G., Nakamura M., Michinaka C., Tue N.M., Handa H., Takigami H. (2017) Dioxin-like activity of brominated dioxins as individual compounds or mixtures in in vitro reporter gene assays with rat and mouse hepatoma cell lines. *Toxicology in Vitro*, 44, 134-141.

Suzuki G., Michinaka C., Matsukami H., Noma Y., Kajiwara N. (2020) Validity of using a relative potency factor approach for the risk management of dioxin-like polychlorinated naphthalenes. *Chemosphere*, 244, 125448.

【査読なし】

藤谷雄二 (2017) 種々のエアロゾル曝露実験手法によるスケールの違いと沈着量の推定. *エアロゾル研究*, 32, 151-156.

古山昭子 (2019) 環境 x 化学 PM_{2.5} と健康影響. *現代化学 CHEMISTRY TODAY*, (580), 42-45.

近藤美則 (2018) 自動車と環境問題. *生活と環境*, 63 (6), 19-24.

佐藤 圭 (2019) 特集にあたって: 猛暑と大気汚染 Introduction to the feature Articles: Effects of Extreme Heat on Air Pollution. *エアロゾル研究 特集「猛暑と大気汚染」*, 34 (2), 4.

高見昭憲 (2017) 東アジアの大気と海洋の環境. *電気評論*, 74-75.

高見昭憲, 吉野彩子 (2019) 大気汚染と PM_{2.5}. *現代化学*, 577, 52-55.

高見昭憲, 古山昭子, 藤谷雄二, 山崎 新, 道川武紘 (2020) 【研究プログラムの紹介: 「安全確保研究プログラム」から】 PM_{2.5} の現状と健康影響. *国立環境研究所ニュース*, 38 (6), 3-5.

高見昭憲 (2020) PM_{2.5} は今どうなっている?. *国立環境研究所ニュース*, 38 (6), 2-3.

吉野彩子 (2018) 越境大気汚染による PM_{2.5} の起源を推定する. *化学と教育*, 66 (8), 390-391.

<書籍等（分担執筆）>

発表者・(刊年)・題目・編著者名・書名・出版社・頁

伏見暁洋（2019）第5章 知られざるPM_{2.5}－何が原因？どこからやってくる？. 日本環境化学会編著，地球をめぐる不都合な物質 拡散する化学物質がもたらすもの，講談社ブルーバックス，140-161

伏見暁洋（2019）揮発性有機化合物／非メタン炭化水素. 大気環境学会編，大気環境の事典，朝倉書店，364-365

Nakajima D., Yagishita M. (2018) Carcinogenicity/Mutagenicity. In: Kazuichi Hayakawaed., Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, Environmental Behavior and Toxicity in East Asia, Springer, 235-244

中島大介（2018）10.4 環境中の化学物質濃度. 国立天文台編，環境年表 2019-2020 第6冊，丸善出版，424-451

中島大介（2019）II-2.1.4 [2] 毒物・劇物. II-2.1.4 [3] 有害物質による健康影響. II-2.1.4 [5] 感作性物質. II-2.1.5 [3] 遺伝毒性試験. II-2.1.6 [1] 化学物質の曝露限度. II-2.1.6 [2] 作業環境気中濃度の指標（管理濃度）. 安全工学会編，安全工学便覧（第4版），株式会社 コロナ社，104 104-106 108-110 118-120 121-128 128-132

中島大介（2019）コラム：環境リスク・化学物質のリスク. 大気環境学会編，大気環境の事典，朝倉書店，207

佐藤 圭（2019）3-17 無機粒子の生成. 大気環境学会編，大気環境の事典，朝倉書店，168-169

高見昭憲（2019）1-7 越境大気汚染による大気環境影響. 大気環境学会編，大気環境の事典，朝倉書店，16-17

2.2 口頭発表

発表者・(暦年)・題目・学会等名称・予稿集名・頁

足立光司, 梶野瑞王, 財前祐二, 木名瀬健, 五十嵐康人, 大畑昌輝, チョン千香子, 藤谷雄二, 古山昭子, 高見昭憲, 吉野彩子, 萩野浩之, 林政彦, 原圭一郎 (2018) 空に浮かぶ小さな金属粒子. 市民公開講座大気エアロゾルの環境管理・改善に関する研究最前線, 同予稿集.

Anh H.Q., Suzuki G., Michinaka C., Minh T.B., Takahashi S. (2019) Evaluation of polycyclic aromatic hydrocarbon-induced toxicity in Vietnamese settled dust: Combination of instrumental analysis and in vitro bioassays. 39th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants, Abstract Book, 708-711.

藤岡直人, 徳住英彰, Nguyen MinhTue, 浦丸直人, 鈴木 剛, 仲山 慶 (2019) メダカの初期生活段階毒性試験に基づく臭素系ダイオキシン類の相対毒性強度 (REP) の算出. 第 25 回日本環境毒性学会研究発表会, 同予稿集, 64.

Fujitani Y., Sato K., Fushimi A., Tanabe K., Kondo Y., Morino Y., Kobayashi S., Takami A. (2017) Measurement of the volatility distribution of emission factor from biomass burning. European Aerosol Conference 2017, Abstracts.

藤谷雄二, 古山昭子 (2017) つくばにおける呼吸器炎症に関連する粒子酸化能評価に関する研究. 2017 年度福岡から診る大気環境研究所研究会, なし.

Fujitani Y., Takami A., Kobayashi S. (2017) Source Apportionment of Organic Aerosols by Using Aerosol Mass Spectrum Data of Traffic Intersection in Japan. The 10th Asian Aerosol Conference, Abstracts, 66.

藤谷雄二, 高見昭憲, 小林伸治 (2017) エアロゾル質量分析計を用いた交差点における有機エアロゾルの発生源寄与解析. 第 34 回エアロゾル科学技術研究討論会, 同予稿集.

Fujitani Y. (2017) Long term monitoring of ultrafine and PM_{2.5} particles at traffic intersection in Japan. 4th Konomax international Aerosol Workshop, Abstracts, 133-139.

藤谷雄二 (2017) PM_{2.5} の大気環境影響. 第 30 回環境工学連合講演会, 同予稿集, 39-42.

藤谷雄二, 小林伸治, 沿道 PM_{2.5}・ナノ粒子研究会 (2017) 道路沿道環境における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 及びナノ粒子に及ぼす要因に関する調査研究. 第 58 回大気環境学会年会, 同予稿集, 224-225.

藤谷雄二, 伏見暁洋, 齊藤勝美, 佐藤 圭, 高見昭憲 (2018) 野焼き活動が盛んな時期のつくばにおけるブラックカーボンの発生源寄与評価. 第 59 回大気環境学会, 同予稿集, 215.

Fujitani Y., Takahashi K., Fushimi A., Hasegawa S., Kondo Y., Tanabe K., Kobayashi S. (2018) Over a Decade-long Trend of Concentrations of Ultrafine Particle and Carbonaceous Aerosols at a Traffic Intersection. Xth International Aerosol Conference, Abstracts.

藤谷雄二 (2018) ディーゼル排ガスはきれいになったのか? - 交差点での長期大気観測から分かったこと -. 国立環境研究所公開シンポジウム 2018, 同予稿集, 22.

藤谷雄二 (2018) ナノ粒子の長期観測 - 自動車排出ガス規制が大気中 PM_{2.5} と個数濃度の低減に効いているか? -. 国立環境研究所 - 日本自動車工業会共同コンファレンス - これからの大気環境を考える -, 同予稿集, 5-8.

藤谷雄二 (2018) 燃焼発生源における PM_{2.5} の未把握成分の測定手法の開発. 市民公開講座大気エアロゾルの環境管理・改善に関する研究最前線, 同予稿集.

Fujitani Y., Takahashi K., Fushimi A., Hasegawa S., Kondo Y., Tanabe K., Kobayashi S. (2019) Long-term trend of emission factors of particle number from diesel vehicles: New approach deducing from monitoring data at a traffic intersection. 11th Asian Aerosol Conference 2019, Abstracts, 11-12.

Fujitani Y., Fushimi A., Saitoh K., Takami A. (2019) Source Apportionment of Refractory Black Carbon in Aerosols during Period of The Harvest Season in Suburban Area in Japan. 15th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality, Abstracts, 49.

藤谷雄二, 古山昭子, 林 政彦, 梶野瑞王 (2019) つくば、福岡における PM_{2.5} の酸化能評価. 第 60 回大気環境学会年会, なし.

古山昭子, 藤谷雄二, 宇田川理, 平野靖史郎 (2017) ディーゼル排気由来二次有機エアロゾル (SOA) の新生仔期曝露影響. 第 58 回大気環境学会年会, 同予稿集, 523.

- 古山昭子, 藤谷雄二, 伏見暁洋, 佐藤 圭, 平野靖史郎, 高見昭憲 (2018) PM_{2.5} の多面的な影響評価のためのバイオアッセイ系の開発. 第 59 回大気環境学会年会, 同 講演要旨集, 223.
- 古山昭子, 宇田川理, 藤谷雄二, 平野靖史郎 (2018) ディーゼル排気由来二次粒子生成有機エアロゾル吸入曝露によるマウスの脂質代謝への影響. 第 88 回 日本衛生学会学術総会, 日本衛生学雑誌, 73 (Supplement), S232.
- 古山昭子, 佐藤 圭, RAMASAMY Sathiyamurthi, 中島大介, 鈴木 剛, 伊藤智彦, 藤谷雄二, 近藤美則, 吉野彩子, 高見昭憲, 伏見暁洋 (2019) 人為起源・自然起源二次有機エアロゾル (SOA) 曝露による細胞応答. 第 60 回大気環境学会年会, 同予稿集, 1D1610-1.
- 古山昭子, 藤谷雄二, 平野靖史郎 (2019) ディーゼル排気由来二次有機エアロゾルの胎仔期から発達期の曝露による T 細胞分化への影響. 第 60 回大気環境学会年会, 同予稿集, (1G1015), 270.
- Fushimi A., Villalobos A.M., Takami A., Tanabe K., Schauer J.J. (2017) Contribution of Open Burning of Agricultural Residues to PM_{2.5} in Suburban Tokyo: PM Mass and Oxidative Potential. 36th AAAR Annual Conference, Abstract book, 8OP.12.
- Fushimi A. (2017) Contribution of automobiles and other sources to PM_{2.5} in Japan: PM mass and oxidative potential. International Seminar on Source Apportionment of Ambient Particulate Matter and Its Health Effects, 11.
- 伏見暁洋, 齊藤勝美, 古山昭子, 佐藤 圭, 藤谷雄二, 田邊 潔, 高見昭憲 (2018) 野焼きシーズンの関東郊外における大気 PM_{2.5} 中の化学成分と酸化ストレス強度の関係. 第 27 回環境化学討論会, 同予稿集, 331-332.
- 伏見暁洋 (2018) PM_{2.5} の発生源と大気中の動態に関する研究 (自動車排気や野焼きを中心に). 国立環境研究所 - 日本自動車工業会共同コンファレンス - これからの大気環境を考える -, 同予稿集, 15-18.
- 伏見暁洋, 中島大介, 古山昭子, 鈴木 剛, 伊藤智彦, 佐藤 圭, 藤谷雄二, 近藤美則, 高見昭憲 (2019) 大気中有機エアロゾルの各種毒性に対する発生源寄与率推定のための新規アプローチ. 第 60 回大気環境学会年会, 同予稿集, 1B0900-4, 105-106.
- Fushimi A., Nakajima D., Furuyama A., Suzuki G., Ito T., Sato K., Fujitani Y., Kondo Y., Takami A. (2019) New approach for source apportionment of toxicity by atmospheric organic aerosols. 37th AAAR (American Association for Aerosol Research) Annual Conference, Abstracts, (2AD.5).
- Fushimi A., Nakajima D., Furuyama A., Suzuki G., Ito T., Sato K., Fujitani Y., Kondo Y., Yoshino A., Takami A. (2020) Novel Method for Source Apportionment of Toxicity of Atmospheric Organic Aerosols. 5th International Forum on Sustainable Future in Asia / 5th NIES International Forum, Abstracts, 79.
- 萩野浩之, 梶野瑞王, 大畑昌輝, 藤谷雄二 (2017) 一次粒子および二次粒子の酸化能に関する文献調査. 第 58 回大気環境学会年会, 同予稿集, 365.
- 畠山史郎, 島田幸治郎, 高見昭憲, 谷口裕太, 辰田詩織, 三浦香央理 (2017) 粒径別エアロゾル中の指標化合物を用いた越境大気汚染とローカル汚染の寄与. 第 58 回大気環境学会年会, 同予稿集, 455.
- 平野靖史郎, 古山昭子, 菅野さな枝 (2017) マウスマクロファージにおける IL-1 β 分泌機構の差異. 第 24 回日本免疫毒性学会学術年会, 同予稿集, 69.
- 家田曜世, 橋本俊次, 伏見暁洋, 高澤嘉一, 田邊 潔 (2018) GC \times GC-HRTOFMS による大気粒子中有機化合物の TMS 誘導体の探索. 第 27 回環境化学討論会, 同予稿集.
- Iinuma Y, Ramasamy S., Sato K. (2019) Molecular Characterisation of Dimeric Compounds in α -Pinene Secondary Organic Aerosol using N₂ and CO₂ Drift Gas Ion Mobility Tandem Mass Spectrometry. The 67th Annual Conference on Mass Spectrometry, Abstracts, 91.
- Iinuma Y., Ramasamy S., Sato K. (2019) Evaluation of Polarizable Drift Gas in Travelling Wave Ion Mobility Mass Spectrometry for Structural Analysis of α -Pinene SOA Marker Compounds. EAC2019 EUROPEAN AEROSOL CONFERENCE, Abstracts.
- Ikemori F., Nakayama T., Hasegawa H., Morino Y., Sato K., Ramasamy S., Fushimi A. (2019) Observations of nitrated aromatic hydrocarbons in PM_{2.5} at day and night in summer and fall in Nagoya city, Japan. European Aerosol Conference 2019, -.

池盛文数, 中山智喜, 長谷川瞳, 森野 悠, 佐藤 圭, RAMASAMY Sathiyamurthi, 伏見暁洋 (2019) 名古屋市における PM_{2.5} 中ニトロ芳香族炭化水素類の観測. 第 36 回エアロゾル科学・技術研究討論会, -.

池盛文数, 中山智喜, 長谷川瞳, 森野 悠, 佐藤 圭, RAMASAMY Sathiyamurthi, 伏見暁洋 (2019) ニトロ芳香族炭化水素類の大気観測と人為起源二次有機エアロゾルマーカーとしての有効性評価. 第 60 回大気環境学会年会, なし.

猪俣 敏, 廣川 淳, 谷本浩志, 藤谷雄二 (2017) ガス状有機物と一次・二次エアロゾルとの不均一反応による粒子内有機組成変化の実時間測定. JpGU-AGU joint Meeting 2017, 同予稿集.

Inomata S., Sato K., Sakamoto Y., Hirokawa J. (2018) Direct observation of new particle formation during ozonolysis of isoprene and ethene competing against the growth of preexisting particles. 2018 joint 14th iCACGP Quadrennial Symposium and 15th IGAC Science Conference, Abstracts.

猪俣 敏, 谷本浩志, 佐藤 圭, 藤谷雄二, 森野 悠, 田邊 潔, Brown P.A., 矢嶋亮次, 坂本陽介, 廣川 淳 (2019) α -ピネンのオゾン酸化反応生成物のガス-粒子分配の決定のためのガス相・粒子相成分の同時・時間分解測定. 第 67 回質量分析総合討論会, 同予稿集, 30.

伊藤智彦, 戸次加奈江, 市瀬孝道, 曾根秀子 (2017) 多能性幹細胞を用いた大気汚染物質の毒性評価系の検討. 日本薬学会第 137 年会, ファルマシア 53 巻 2 号, 173.

伊藤智彦, 戸次加奈江, 曾根秀子, 市瀬孝道 (2017) 培養細胞を用いた呼吸器系に対する PM_{2.5} の毒性影響の解析. 第 44 回日本毒性学会学術年会, The Journal of Toxicological Sciences, Supplement, 42, S89.

Iwata A., Kiriya M., Okuda T., Yoshino A., Takami A., Chandra I., Seto T., Furuya M., Matsuki A., Hayashi M., Nishita-Hara C., Hara K., Funato K., Inoue K. (2019) Observations of atmospheric particles surface area at several observations in Japan. 11th Asian Aerosol Conference, Abstracts, 534-535.

梶野瑞王, 五十嵐康人, 財前祐二, 足立光司, 関山 剛, Joseph Ching, 大畑昌輝, チョン千香子, 藤谷雄二, 古山昭子, 萩野浩之, 須藤菜那, 亀田貴之, 猪股弥生, 大西一成 (2017) 粒子酸化能に着目した新健康影響指標の提案にむけて. 第 58 回大気環境学会年会, 同予稿集, 366.

梶野瑞王, 足立光司, Joseph Ching, 木名瀬健, 関山 剛, 財前祐二, 五十嵐康人, 大畑昌輝, チョン千香子, 藤谷雄二, 古山昭子, 萩野浩之, 須藤菜那, 大西一成, 亀田貴之, 猪股弥生, 原圭一郎, 西田千春, 林 政彦 (2018) 粒子酸化能に関する観測のおよび数値的研究. 第 59 回大気環境学会年会, 同要旨集, 195.

Kajino M., Ching J., Igarashi Y., Adachi K., Zaizen Y., Sekiyama T., Hagino H., Morikawa T., Fujitani Y., Furuyama A., Ohata M., Cheong C. (2018) Simulation of transition metals toward the prediction of oxidative potential and health hazard of aerosols in East Asia. AGU Fall Meeting 2018, Abstracts.

梶野瑞王, 萩野浩之, 藤谷雄二, 森川多津子, 福井哲央, 大西一成, 奥田知明, 五十嵐康人 (2019) 酸化能予測のためのモデル開発 5 種の遷移金属について. 第 60 回大気環境学会年会, なし.

Kaneko K., Ikeda T., Furuta N., Fushimi A. (2020) Monitoring of elemental, ion and carbon components in airborne particulates PM_{0.1} collected in Tokyo. 2020 Winter conference on plasma spectrochemistry, Abstracts, 270-271.

Kondo Y. (2019) Past Correspondence and Present Conditions of Air Pollution Issues from Motor Vehicles (自動車による大気汚染に対する日本のこれまでの対応と現状について). 二国間協力事業セミナー 2019 (スリランカにおける二国間協力事業), 2019.2.27, Colombo, Sri Lanka, -.

近藤美則 (2019) 2017 年頃の自動車の燃費性能・排気の状態について. 第 60 回大気環境学会年会, なし.

久保拓也, 山本周平, 内藤豊裕, 柳下真由子, 中島大介, 大塚浩二 (2019) 受容体模倣基材を用いた内分泌かく乱化学物質のスクリーニング手法の開発. 第 28 回環境化学討論会, 同予稿集.

Li J., Fujii T., Matsuoka K., Takemura M., Sakamoto Y., Kohno N., Nakagawa M., Nakagawa M., Sdanaga Y., Ramasamy S., Sato K., Takami A., Yoshino A., Nakayama T., Nakayama T., Nakashima Y., Kato S., KaJii Y., Kajii Y. (2018) Total HOX reactivity measurements in Tsukuba during the 2017 summer campaign. The 59th Annual meeting of Japan Society for Atmospheric Environment, Abstracts, 309.

MAUNG C., AUNG W.Y., YI E.E.P.N., THEIN Z.L., Nakajima D., ISHIGAKI Y., Tin-Tin-Win-Shwe, MAR O. (2020) Cooking-generated PM_{2.5} and PM₁₀ in residential buildings with different cooking stoves. 5th International Forum in Sustainable Future in Asia, 5th NIES International Forum, Abstracts, 74.

道川武紘, 上田佳代, 高見昭憲, 菅田誠治, 吉野彩子, 新田裕史, 山崎 新 (2018) 日本の 100 都市における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の短期曝露と死亡との関連. 第 28 回日本疫学会学術総会, 同予稿集, 28 (Suppl), 130.

道川武紘, 上田佳代, 高見昭憲, 菅田誠治, 吉野彩子, 新田裕史, 山崎 新 (2018) 日本の主要都市における粗大粒子短期曝露と死亡の関連性についての検討. 第 88 回日本衛生学会学術総会, 同予稿集, 73 (Suppl), 231.

道川武紘, 高見昭憲, 吉野彩子, 菅田誠治, 上田佳代, 齊藤伸治, 星 純也, 新田裕史, 山崎 新 (2019) 東京における微小粒子状物質化学成分と死亡との関連性について. 第 89 回日本衛生学会学術総会, 同予稿集, S173.

道川武紘, 高見昭憲, 菅田誠治, 吉野彩子, 上田佳代, 新田裕史, 山崎 新 (2020) 微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の短期曝露影響: 環境省四季 PM_{2.5} 化学組成と死亡との関連性について. 第 30 回日本疫学会学術総会, 同予稿集, 119.

Morino Y., Chatani S., Tanabe K., Fujitani Y., Morikawa T., Sato K. (2017) Contributions of condensable particulate matter to atmospheric organic aerosol in Japan. 36th AAAR Annual Conference.

Morino Y., Sato K., Tanabe K., Inomata S., Fujitani Y. (2017) Modelling evaporative behaviours of secondary organic aerosol from α -pinene and TMB. Goldschmidt2017.

森野 悠, 茶谷 聡, 田邊 潔, 藤谷雄二, 森川多津子, 高橋克行, 佐藤 圭 (2017) 凝縮性ダストを考慮した有機エアロゾルの大気シミュレーション. 第三回 アジア域の化学輸送モデルの現状と今後の展開に関する研究集会, なし.

森野 悠, 茶谷 聡, 田邊 潔, 藤谷雄二, 森川多津子, 佐藤 圭 (2017) PM_{2.5} に対する固定燃焼発生源起源の半揮発性化合物の寄与評価. 第 23 回大気化学討論会, 同予稿集, 87.

森野 悠, 茶谷 聡, 田邊 潔, 藤谷雄二, 森川多津子, 佐藤 圭 (2017) 凝縮性ダストを考慮した有機エアロゾルの大気シミュレーション. 第 58 回大気環境学会年会, 同予稿集, 459.

Morino Y., Sato K., Tanabe K., Inomata S., Fujitani Y. (2017) Modelling evaporative behaviours of secondary organic aerosol from α -pinene. 3rd International Workshop on Heterogeneous Kinetics Related to Atmospheric Aerosols, -.

Morino Y., Chatani S., Tanabe K., Fujitani Y., Morikawa T., Takahashi K., Sato K., Sugata S. (2018) Contributions of condensable particulate matter to atmospheric organic aerosol over Japan. 2018 joint international conference on ABaCAS and CMAS-Asia-Pacific, Abstracts.

Morino Y., Sato K., Jathar S., Tanabe K., Inomata S., Fujitani Y., Cappa C. (2018) Modelling the Evaporative Behaviour of Secondary Organic Aerosol Formed from α -pinene. University of California, Davis, Abstracts.

Morino Y., Chatani S., Tanabe K., Fujitani Y., Morikawa T., Takahashi K., Sato K., Sugata S. (2018) Contributions of condensable particulate matter to atmospheric organic aerosol over Japan. 2018 joint 14th

iCACGP Symposium and 15th IGAC Science Conference, Abstracts.

森野 悠, 熊谷貴美代, 中山智喜, 山本祐志, 清水 厚, 櫻井元樹, 高見昭憲, 田邊 潔, 菅田誠治, 佐藤 圭 (2019) 大気質モデル検証のための PM_{2.5} 立体観測. 第 60 回 大気環境学会年会, なし.

Morino Y., Chatani S., Tanabe K., Fujitani Y., Morikawa T., Takahashi K., Sato K., Sugata S. (2019) Simulation of Condensable Particulate Matter from stationary combustion sources. European Aerosol Conference 2019, -.

中島大介 (2017) 東日本大震災の避難所における浮遊粒子濃度・ハウスダスト中重金属濃度. 平成 29 年室内環境学会学術大会 災害時室内環境分科会 公開キックオフ会合, なし, 14.

Nakajima D., Nway N.C., Aung W.Y., Thant Z., Yee E.E.P.N., Myint E.E.P., Yagishita M. (2017) Preliminary study of concentration and size distribution of atmospheric particulates in Yangon City. 46th Myanmar health Research Congress, Abstracts, 122.

中島大介, 柳下真由子, 山崎美穂, 鈴木 剛, 伊藤智彦, 古山昭子, 佐藤 圭, RAMASAMY Sathiyamurthi, 近藤美則, 藤谷雄二, 高橋善幸, 高見昭憲, 伏見暁洋 (2018) 由来の異なる PM_{2.5} 抽出物の遺伝子損傷性. 日本環境変異原学会第 47 回大会, 同予稿集, 136.

中島大介 (2018) 水環境中受容体結合加性物質の生物的・化学的検出. 平成 29 年度全国環境研協議会 第 52 回日本水環境学会併設研究集会, 同資料集.

中野朋彦, 谷川哲也, 内藤豊裕, 久保拓也, 中島大介, 白石不二雄, 大塚浩二 (2017) 分子インプリント基材を用いたエストロゲン受容体活性物質の選択的吸着と環境水試料のスクリーニング. 第 26 回環境化学討論会, 同予稿集.

中山智喜, 車 裕輝, 松見 豊, 森野 悠, 佐藤 圭, 鶴丸 央, RAMASAMY S., 坂本陽介, 加藤俊吾, 宮崎雄三, 望月智貴, 河村公隆, 定永靖宗, 中嶋吉弘, 松田和秀, 梶井克純 (2017) 東京多摩丘陵における実大気へのオゾン添加による二次粒子生成の観測: エアロゾル生成モデル計算との比較. 第 34 回エアロゾル科学・技術研究討論会, 同予稿集.

中山智喜, 車 裕輝, 松見 豊, 森野 悠, 佐藤 圭, 鶴丸 央, RAMASAMY Sathiyamurthi, 坂本陽介, 加藤俊吾, 宮崎雄三, 望月智貴, 河村公隆, 定永靖宗, 中嶋吉弘, 松田和秀, 梶井克純 (2017) 都市近郊森林における実大気へのオゾン添加による二次粒子生成の観測: 未知の SOA 生成過程の存在. 第 23 回大気化学討論会, 同予稿集, 19.

Nakayama T., Kuruma Y., Matsumi Y., Morino Y., Sato K., Tsurumaru H., Ramasamy S., Sakamoto S., Kato S., Miyazaki Y., Mochizuki T., Kawamura K., Sadanaga Y., Nakashima Y., Matsuda K., Yoshino A., Takami A., Kajii Y. (2018) Observations of Ozone-Induced Potential Aerosol Formation at Deciduous Forest and Residential Sites near Tokyo. 2018 joint 14th iCACGP Symposium and 15th IGAC Science Conference, Abstracts.

Nakayama T., Kuruma Y., Matsumi Y., Morino Y., Sato K., Tsurumaru H., Ramasamy S., Sakamoto S., Kato S., Miyazaki Y., Mochizuki T., Kawamura K., Sadanaga Y., Nakashima Y., Matsuda K., Kajii Y. (2018) Missing Ozone - Induced Potential Aerosol Formation in a Suburban Deciduous Forest near Tokyo. 10TH INTERNATIONAL AEROSOL CONFERENCE (IAC), Abstracts.

西橋政秀, 高橋里美, 吉野彩子, 高見昭憲, 向井人史 (2018) つくばにおける ACSA-14 の並行試験. 第 59 回大気環境学会年会, 講演要旨集, 414.

能智雅之, 島田幸治郎, Xiaoyang Yang, 杉山太一, 三浦香央理, 高見昭憲, 佐藤 圭, Xuan Chen, Fan Meng, 嶋山史郎 (2018) 中国トウジ島と沖縄県辺土岬で同時に観測された長期離輸送中における PAHs の分解プロセス解明. 第 59 回大気環境学会年会, 講演要旨集, 287.

Nway N.C., Fujitani Y., Mar O., Hirano S., Tin-Tin-Win-Shwe (2018) Developmental exposure to diesel exhaust origin secondary organic aerosol and role of TLR4 in olfactory-based spatial learning activity of neonatal mice. 46th Myanmar Health Research Congress, Abstract (Poster 21), 119.

Nway N.C., Yi E.E.P.N., Aung W.Y., Yagishita M., Suzuki T., Ishigaki Y., Nakajima D., Tin-Tin-Win-Shwe, Mar O. (2019) Determination of Particulate matter (PM_{2.5} and PM₁₀) concentrations of seven Townships of Taunggyi City, Shan State. 47th Myanmar Health Research Congress, Abstract, 144-145.

Nway N.C., Aung W.Y., Yi E.E.P.N., Thant Z., Yagishita M., Ishigaki Y., Suzuki T., Nakajima D., Tin-Tin-Win-Shwe, Mar O. (2019) Seasonal and Regional Variation of Particulate Matter Pollutants (PM_{2.5} and PM₁₀) Distribution in Yangon and Taunggyi Cities, Myanmar. Myanmar Universities' Research Conference 2019, Abstracts, 54.

Nway N.C., Suzuki T., Nakajima D., Ishigaki Y., Tin-Tin-Win-Shwe, Mar O. (2020) Effect of maternal exposure to PM_{2.5} on OXTR DNA methylation of umbilical cord white blood cells. 48th Myanmar Health Research Congress, Abstract, 180.

NWAY N.C., Suzuki T., Nakajima D., ISHIGAKI Y., Tin-Tin-Win-Shwe, MAR O. (2020) Effect of Maternal Exposure to PM_{2.5} on Proinflammatory Cytokine, Oxidative Stress Marker and Serotonin in Umbilical Cord Blood. 5th International Forum in Sustainable Future in Asia, 5th NIES International Forum, Abstracts, 73.

Nyunt T.T.M.M., Khin E.E., Yagishita M., Kyaw M.P., MyaThwin M.M., Tin-Tin-Win-Shwe, Nakajima D. (2019) Analysis of endocrine disrupting chemical in drinking and environmental water samples from Myanmar. 47th Myanmar Health Research Congress, Abstract, 170.

岡本 渉, 松見 豊, 関口和彦, 藤野 毅, 三小田憲史, 熊谷貴美代, 藤谷雄二, Thuy LyBich, Dung Nghiem Trung, Thuy Nguyen ThiThu, Thuy Pham Chau, 梶井克純, 坂本陽介 (2018) ベトナム・ハノイにおける小型計測器による PM_{2.5} の長期・多点測定. 日本地球惑星科学連合 2018 年大会, 同予稿集.

Ramasamy S, Nakayama T., Imamura T., Sato K. (2017) Ozone- and NO₃-initiated aging of secondary organic aerosol formed from the oxidation of toluene. 第 34 回エアロゾル科学・技術研究討論会, 同予稿集.

Ramasamy S., Nakayama T., Imamura T., Sato K. (2017) Dark condition NO₃ and O₃ aging of toluene SOA. JpSAC Annual Meeting 2017, Abstracts, 26.

Ramasamy S., Nakayama T., Imamura T., Sato K. (2017) O₃- and NO₃-initiated aging of toluene secondary organic aerosol. 36th AAAR Annual Conference, Abstracts, 50.

Ramasamy S., Nakayama T., Imamura T., Sato K. (2018) Investigation of NO₃-and O₃-initiated dark condition aging of toluene SOA. 34th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Abstracts, 131.

Ramasamy S., Nakayama T., Imamura T., Sato K. (2018) Light and dark condition aging of SOA formed by ozonolysis of d-limonene. THE 35th ANNUAL MEETING AND SYMPOSIUM ON AEROSOL SCIENCE AND TECHNOLOGY, Abstracts, 231-232.

Ramasamy S., Nakayama T., Nakayama T., Imamura T., Sato K. (2018) OH-, ozone-, and nitrate radicals-initiated aging of secondary organic aerosol formed from the ozonolysis of limonene. iCACGP-IGAC2018, Abstracts.

Ramasamy S., Inomata S., Hikida T., Shimono A., Sato K. (2019) A thermal desorption-proton transfer reaction-quadrupole interface time-of-flight mass spectrometer for online analysis of organic aerosol: results of cyclohexene ozonolysis products. The 36th Annual Meeting and Symposium on Aerosol Science and Technology.

佐藤 圭, 森野 悠, 猪俣 敏, 藤谷雄二, 田邊 潔, 高見昭憲, 今村隆史 (2017) α -ピネン SOA 中の高度酸化物 (HOM) およびオリゴマーの生成. 第 23 回大気化学討論会, 同予稿集, 27.

Sato K., Nakayama T., Ramasamy S., Inomata S., Fu P., Imamura T., Akimoto H. (2017) Secondary aerosol formed from isoprene oxidation under acidic conditions: laboratory and field study. 33rd Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Abstracts, 117.

Sato K. (2017) Formation of highly oxygenated molecules and dimers during alpha-pinene ozonolysis. 3rd International Workshop on Heterogeneous Kinetics Related to Atmospheric Aerosols, -.

Sato K. (2018) Formation of highly oxygenated molecules (HOMs) and dimers during α -pinene ozonolysis. 2018 East Asia Forum on Particulate Air Pollution and Health, Abstracts, 87-94.

Sato K., Enami S., Ramasamy S., Inomata S., Imamura T. (2018) Effects of Criegee Intermediate Scavenger on Secondary Organic Aerosol Formation during α -pinene Ozonolysis. 10th International Aerosol Conference (IAC2018), Abstracts, 73.

佐藤 圭, 梶井克純 (2018) VOC 酸化生成物の暗反応からの二次有機エアロゾル生成に関するチャンバー実験. 第 59 回大気環境学会年会, 講演要旨集, 117.

Sato K. (2018) Laboratory and field studies of oxidants existing in fine particles. TSUKUBA GLOBAL SCIENCE WEEK2018 -The Mitsubishi UFJ Environment Foundation Lectures- Air Pollution and its Biological Effects, Abstracts, 5.

Sato K., Morino Y., Tanabe K., Imamura T., Ramasamy S., Fushimi A., Enami S., Inomata S., Takami A. (2019) Interpretation of toluene secondary aerosol yield curves by peroxy radical autoxidation chemistry. 35th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Abstracts, 135.

Sato K., Morino Y., Imamura T., Ramasamy S., Fushimi A., Enami S., Inomata S., Takami A. (2019) Interpretation of toluene secondary aerosol yield curves and volatilities by peroxy radical autoxidation chemistry. EAC2019 EUROPEAN AEROSOL CONFERENCE, Abstracts.

- 佐藤 圭, RAMASAMY Sathiyamurthi, 池盛文数, 伏見暁洋, 森野 悠 (2019) スモッグチャンバーによる人為起源二次有機エアロゾルのマーカー収率評価. 第 60 回 大気環境学会年会, なし.
- 佐藤 圭, RAMASAMY Sathiyamurthi, 猪俣 敏, 宮崎雄三 (2019) 冷温帯林における通年観測で採取された植物由来二次有機エアロゾル中に存在する分子マーカーの LC/MS 分析. 日本地球惑星科学連合 2019 年大会, なし, (AAS04-22).
- 佐藤 圭, RAMASAMY Sathiyamurthi, 猪俣 敏, 森野 悠, 正田利秀, 下野彰夫 (2019) 加熱脱着-陽子移動反応-四重極インターフェース質量分析計による有機エアロゾルのオンライン分析に向けて: 単一組成粒子を用いた応答評価. 第 36 回エアロゾル科学・技術研究討論会, なし.
- 佐藤 圭 (2019) 有機エアロゾル化学組成に着目した反応プロセスおよび大気動態に関する研究. 国立環境研究所と地方環境研究所との 2 型共同研究「光化学オキシダントおよび PM_{2.5} 汚染の地域的・気象的要因の解明」PM_{2.5} 分析法グループ会合, なし.
- 柴崎みはる, 吉村有史, 高橋克行, 伏見暁洋, 田邊 潔 (2019) PM_{2.5} 自動測定機の測定値に除湿機構及び成分組成が与える影響. 第 60 回大気環境学会年会, 同予稿集, P-27, 313.
- Shimada K., Miura K., Sugiyama T., Sato K., Takami A., Chak K.C., Yong P.K., Neng-Huei L., Hatakeyama S. (2017) Seasonal and Annual Changes in PAHs Transported from East Asia to Cape Hedo, Okinawa. The 10th Asian Aerosol Conference, Abstracts, 40.
- Shimada K., Yang X., Kim Y.P., Sato K., Lin N.H., Chan C.K., Nakashima Y., Matsuda K., Chen K., Takami A., Itahashi S., Meng F., Hatakeyama S. (2017) Analysis of trans-boundary air pollution in East Asia with the use of international observational network on isolated islands. The 58th Annual Meeting of Japan Society for Atmospheric Environment, Abstracts, 97.
- Shimada K., Nohchi M., Yang X., Sugiyama T., Miura K., Takami A., Sato K., Chen X., Meng F. (2019) Degradation of PAHs during long range transport simultaneously measured at Tuoji island, China and Cape Hedo, Japan. 11th Asian Aerosol Conference, Abstracts, 369-370.
- 清水 厚, 高見昭憲, 吉野彩子 (2017) ドローンにより計測された高度 150m 以下のエアロゾル分布微細構造. 第 34 回エアロゾル科学・技術研究討論会, 同予稿集.
- 清水 厚, 高見昭憲, 吉野彩子 (2017) ライダーとドローンによる地表付近の微粒子鉛直分布観測. 日本気象学会 2017 年度秋季大会, 同予稿集, 112, 347.
- 清水 厚, 高見昭憲, 吉野彩子, 杉本伸夫, 西澤智明, 神慶 孝 (2018) 地上付近のエアロゾル鉛直分布把握のための取り組み. 第 22 回大気ライダー研究会, 同講演集, 25-28.
- Sone H., Kawahara J., Nakajima D., Nansai H., Zeng Y. (2016) Simplified Analysis of Environmental Chemical Mixtures at Realistic Levels for Total Cancer Risks using Public Reports. ISEE-ISES AC2016: International Society for Environmental Epidemiology and International Society of Exposure Science; Asia Chapter Conference.
- Sone H., Miki M., Ito T., Tin-Tin-Win-Shwe, Fujitani Y., Nakajima D. (2020) Hazard evaluation of air pollution by using the key characteristics approach. 5th NIES International Forum, Abstract, 70.
- Suzuki G., Matsukami H., Michinaka C., Takagi H., Kajiwara N. (2017) Relative potency of polychlorinated naphthalene (PCN) to 2,3,7,8-TCDD in vitro reporter gene assay with rat hepatoma cell line. The 37th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (POPs), -.
- Suzuki G., Michinaka C., Nakajima D., Furuyama A., Ito T., Sato K., Kondo Y., Fujitani Y., Takahashi Y., Yagishita M., Ramasamy S., Takami A., Fushimi A. (2019) Effect-based Detection of Organic Chemicals in PM_{2.5} for Their Risk Management. 47th Myanmar Health Research Congress, Abstracts, 21-25.
- 鈴木武博, Nay Chi Nwey, Tin-Tin-Win-Shwe, 中島大介, 石垣 陽, Ohn Mar, 野原恵子 (2019) ミャンマーの PM_{2.5} 高濃度地区における妊婦臍帯血ゲノム DNA の OXTR メチル化変化. 2019 年室内環境学会学術大会, 同講演要旨集, 216-217 < 2019 年室内環境学会学術大会優秀ポスター賞受賞 >.

Suzuki T., Nway N.C., Tin-Tin-Win-Shwe, Nakajima D., Isigaki Y., Mar O., Nohara K. (2020) DNA methylation changes in cord blood of pregnant woman in the area of high PM_{2.5} concentration in Myanmar. 5th International Forum in Sustainable Future in Asia, Abstracts, 80.

Swe K.Z., Nway N.C., Tin-Tin-Win-Shwe, Nakajima D., Ishigaki Y., Mar O. (2020) PM_{2.5} and PM₁₀ concentrations of Urban and Rural primary schools in Yangon division, Myanmar. 5th NIES International Forum, Abstract, 76.

高橋 真, Hoang Quoc Anh, Nguyen Minh Tue, 鈴木 剛, Tu Binh Minh, Pham Hung Viet, 酒井伸一 (2017) ベトナムの使用済み自動車解体処理地域における化学物質汚染 (第四報) - GC/MS 一斉分析用データベースを用いたダスト試料の測定 - . 第 26 回環境化学討論会, 同予稿集.

Takahashi S., Takayanagi C., Tue N.M., Suzuki G., Tuyen L.H., Viet P.H., Tanabe S., Sakai S. (2017) Toxicity Identification Evaluation of Dioxin-Related Compounds in Dust from End-of-Life Vehicle Recycling Sites in Northern Vietnam. The 37th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (POPs), -.

高見昭憲, 高橋里美, 吉野彩子, 伏見暁洋 (2017) つくばにおける ACSA-14 を用いた大気中 PM_{2.5} の化学組成分析. 第 58 回大気環境学会年会, 同予稿集, 404.

Takami A., Yoshino A., Hayashi M., Hara K., Nishita C., Kaneyasu N., Hatakeyama S. (2017) Analysis of Aerosol Chemical Composition Observed at Urban and Rural Sites. The 10th Asian Aerosol Conference, Abstracts, 67.

高見昭憲, 清水 厚, 吉野彩子 (2017) ドローンを用いた PM_{2.5} 測定の活用例. 第 58 回大気環境学会年会, 同予稿集, 143.

高見昭憲, 小島 淳, 道川武紘, 上田佳代, 吉野彩子, 三澤健太郎, 小島知子, 坂本哲夫, 畠山史郎, 新田裕史, 小川久雄 (2018) PM_{2.5} や黄砂が及ぼす心臓などへの健康影響について. 第 35 回エアロゾル科学・技術研究討論会, 同予稿集, 307-309.

高見昭憲, 小島 淳, 道川武紘, 上田佳代, 吉野彩子, 三澤健太郎, 小島知子, 坂本哲夫, 畠山史郎, 新田裕史, 小川久雄 (2018) 黄砂など粒子状物質が循環器疾患に及ぼす短期曝露影響に関する研究. 第 59 回大気環境学会年会, 講演要旨集, 68-69.

高見昭憲 (2018) 大気中での化学反応 - 東アジア域での観測からわかること -. 「反応場の化学」講演会, -.

高見昭憲 (2019) 大気汚染の長距離輸送と観測. IIAE 第 2 期セミナー, なし.

高見昭憲 (2019) わが国の大気環境問題の系譜. 令和元年度大気環境研修, なし.

Takami A. (2019) Air Pollution Monitoring in Japan. 第 25 回中国大気環境学会年会, Abstracts, 10.

Tanigawa T., Nakano T., Nakajima D., Naito T., Kubo T., Otsuka K. (2016) Selective Separation of Estrogen-receptor Active Compounds by a Bio-mimic Adsorbent using an Enlarged Molecularly Imprinted Polymer. HPLC 2016, HPLC 2016 Book of Abstracts, 240.

THANT Z., MAUNG C., AUNG W.Y., YI E.E.P.N., THEIN Z.L., Nakajima D., ISHIGAKI Y., Tin-Tin-Win-Shwe, MAR O. (2020) Effect of natural ventilation on cooking-generated PM_{2.5} and PM₁₀ in kitchen and living room of residential buildings. 5th International Forum in Sustainable Future in Asia, 5th NIES International Forum, Abstracts, 75.

THEIN Z.L., AUNG W.Y., YI E.E.P.N., Maung C., NWAY N.C., Thant Z., Suzuki T., Ishigaki Y., MAR O., Nakajima D., Tin-Tin-Win-Shwe (2020) Determination of Personal Exposure to Particulate Matters by Pocket PM_{2.5} Sensor [Pro] in Middle_Aged Women in Myanmar. 5th International Forum in Sustainable Future in Asia, 5th NIES International Forum, Abstracts, 81.

Tin-Tin-Win-Shwe, Fujitani Y., Hirano S. (2017) Evaluation of neurotoxicity by air pollutant exposure using animal model. 44th Annual Meeting of the Japan Society of Toxicology, Abstracts, S90.

Tin-Tin-Win-Shwe, 藤谷雄二, 平野靖史郎 (2017) ディーゼル排気ガス由来二次生成有機エアロゾル (DE-SOA) の発達期曝露がラットの脳神経系に及ぼす影響. 第 58 回大気環境学会年会, 同予稿集, 423.

Tin-Tin-Win-Shwe, Sano K., Isobe T., Kawashima T., Suzuki G., Hashimoto S., Nakayama S., Maekawa F. (2017) Developmental exposure to tetrabromobisphenol A (TBBPA) on late onset behavior and neurological biomarkers in adult mice. The 40th Annual Meeting of the Japan Neuroscience Society, Abstract, 218.

Tin-Tin-Win-Shwe, Nway N.C., Mar O., Watanabe H., Fujitani Y., Hirano S. (2018) Developmental exposure to secondary organic aerosol alters social dominance behavior and expression of neuroimmune biomarkers in rats. The 27th Symposium of Japan Environmental Chemistry, Abstract, 536-537.

Tin-Tin-Win-Shwe, Fujitani Y., Hirano S. (2018) Perinatal exposure to secondary organic aerosol influences neurobehavioral development and inflammatory markers in rats. 54th European Societies of Toxicology Meeting (EUROTOX2018), Abstract, 133.

Tin-Tin-Win-Shwe, Yi E.E.P.N., Aung W.Y., Nway N.C., Wai T.H., Thant Z., Maung C., Hlaing K.K., Yagishita M., Ishigaki Y., Nakajima D., Mar O. (2019) Monitoring of PM_{2.5} Concentration in Yangon City, Myanmar: Collaborative Research between NIES and University of Medicine (1), Yangon, Myanmar. 4th NIES International Forum, Abstract, 104.

Tin-Tin-Win-Shwe, Zaw Lin Thein, Win Yu Aung, EiEi Pan NuYi, Cherry Maung, Nay Chi Nway, Zarli Thant, 鈴木武博, Ohn Mar, Yang Ishigaki, 中島大介 (2019) ポケット PM_{2.5} センサー [Pro] を用いた PM_{2.5} の個人曝露評価のパイロット研究. 室内環境学会学術大会, 同予稿集, 35.

Tin-Tin-Win-Shwe, Fujitani Y., Hirano S. (2019) Developmental exposure to diesel exhaust-derived secondary organic aerosol (DE-SOA) on anxiety and depression in mice. 28th Symposium on Environmental Chemistry, Abstract (Poster-134).

Tin-Tin-Win-Shwe, Fujitani Y., Hirano S. (2019) Alteration of social dominance behavior in rats after developmental exposure to secondary organic aerosol. The 42nd Annual Meeting of the Japan Neuroscience Society, Abstract, 281.

鳥羽 陽, 中島大介, 遠藤 治, 香川 (田中) 聡子, 神野透人, 斎藤育江, 杉田和俊, 酒井信夫, 星 純也 (2017) 衛生試験法・注解 空気試験法 多環芳香族炭化水素 (新規). 日本薬学会第 137 年会, 同予稿集.

Tue N.M., Tuyen L.H., Suzuki G., Takahashi S., Viet P.H., Tanabe S., Kunisue T. (2019) CALUX activities, flame retardants and polyaromatic hydrocarbons in indoor dust from informal waste recycling sites in Vietnam. 39th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants, Abstract Book, 1085.

宇智田奈津代, 鈴木 剛, 松神秀徳, Nguyen Minh Tue, Le Huu Tuyen, Pham Hung Viet, 高橋 真, 国末達也, 寺園 淳 (2017) 模擬胃液及び小腸液における有害金属類のバイオアクセシビリティ: 有害金属含有媒体への試行的適用. 第 26 回環境化学討論会, 同予稿集.

宇智田奈津代, Tatiya Wannomai, 松神秀徳, 高橋史武, Nguyen Minh Tue, Le Huu Tuyen, Pham Hung Viet, 高橋 真, 国末達也, 鈴木 剛 (2019) 模擬肺胞液及び模擬リソソーム液における有害化学物質の Bioaccessibility. 第 28 回環境化学討論会, 要旨集.

宇田川理, 古山昭子, 今井宏治, 藤谷雄二, 平野靖史郎 (2017) 卵子オルガネラの配置に影響する大気汚染物質の探索. 第 44 回日本毒性学会学術年会, 同予稿集, 188.

Udagawa O., Furuyama A., Imai K., Fujitani Y., Hirano S. (2017) Effects of diesel exhaust-derived secondary organic aerosol (SOA) on oocytes in mice. 2017 Advanced Investigation in Mechanistic Toxicology, Gordon Research Conference, Abstracts, 13.

Udagawa O., Sone H., Furuyama A. (2018) Possible key characteristics of reproductive toxicants. Meeting on Advancing the Key Characteristics Framework to Reproductive Toxicants and Endocrine Disruptors, -.

上田佳代, Seposo Xerxus, Vera Phung LingHui, 高見昭憲, 吉野彩子, 菅田誠治, 道川武紘, 山崎 新, 新田裕史 (2019) PM_{2.5} の短期曝露と急病による救急搬送との関連における地域差. 第 89 回日本衛生学会学術総会, 同予稿集, S165.

上田佳代, Uttajug Athicha., 高見昭憲, 菅田誠治, 吉野彩子 (2019) PM_{2.5} 健康影響の地域差と粒子成分との関わり. 第 60 回大気環境学会年会, なし.

鵜野伊津志, 板橋秀一, 弓本桂也, 王 哲, 山村由貴, 吉野彩子, 高見昭憲, 早崎将光 (2019) 最近の PM_{2.5} 越境汚染の濃度減少と組成の変化について. 第 60 回大気環境学会年会, なし.

柳下真由子, 久保拓也, 谷川哲也, 中山祥嗣, 中島大介 (2018) 活性特異的濃縮基材と精密質量による内分泌かく乱化学物質のスクリーニング法開発. 第 27 回環境化学討論会, 同予稿集.

柳下真由子, 久保拓也, 中山祥嗣, 中島大介 (2019) 二群試料間の差異分析のための差分ピーク検出ソフトウェア開発. 第 28 回環境化学討論会, 同予稿集.

Yamakawa A., Takami A., Takeda T., Kato S., Kajii Y. (2019) Hg isotopic measurements for atmospheric mercury at the Cape Hedo Atmosphere and Aerosol Monitoring Station (CHAAMS), Japan. European Winter Conference on Plasma Spectrometry, Abstracts, 50.

山川 茜, 高見昭憲, 加藤俊吾, 梶井克純 (2019) 大気中水銀同位体分析: 沖縄県辺戸岬での季節変動調査. 第 28 回環境化学討論会, 同予稿集.

Yamakawa A., Takami A., Takeda T., Kato S., Kajii Y. (2019) Isotopic Compositions of Gaseous Elemental Mercury (GEM) at the Cape Hedo Atmosphere and Aerosol Monitoring Station (CHAAMS), Japan. AGU Fall Meeting 2019, -.

山崎 新, 道川武紘, 新田裕史, 吉野彩子, 高見昭憲 (2018) PM_{2.5} の成分濃度と心原性の病院外心停止との関連性. 第 35 回エアロゾル科学・技術研究討論会.

Yi E.E.P.N., Nway N.C., Aung W.Y., Thant Z., Wai T.H., Hlaing K.K., Maung C., Yagishita M., Ishigaki Y., Tin-Tin-Win-Shwe, Nakajima D., Mar O. (2018) Preliminary Monitoring of Concentration of Particulate Matter (PM_{2.5}) in Seven Townships of Yangon City, Myanmar. The 27th Symposium of Japan Environmental Chemistry, Abstract, 174-175.

Yi E.E.P.N., Aung W.Y., Nway N.C., Thant Z., Yagishita M., Ishigaki Y., Nakajima D., Tin-Tin-Win-Shwe, Mar O. (2019) Assessment of distribution of particulate matter (PM_{2.5} and PM₁₀) concentrations in Yangon City. 47th Myanmar Health Research Congress, Abstract, 154-155.

YI E.E.P.N, AUNG W.Y., MAUNG C., NWAY N.C., THEIN Z.L., Nakajima D., ISHIGAKI Y., Tin-Tin-Win-Shwe, MAR O. (2020) Indoor PM_{2.5} and PM₁₀ concentrations in teaching rooms and recreation areas, university of medicine 1, Yangon. 5th International Forum in Sustainable Future in Asia, 5th NIES International Forum, Abstracts, 72.

吉田 淳, 大畑 祥, 茂木信宏, 足立光司, 森 樹大, 小池 真, 高見昭憲 (2017) 東アジア域における人為起源酸化鉄エアロゾルの動態. 第 23 回大気化学討論会, 同予稿集, 17.

Yoshino A., Takami A., Misawa K., Hayashi M., Hara K., Nishita C., Kaneyasu N., Seto T., Hatakeyama S. (2017) ANALYSIS OF AEROSOL CHEMICAL COMPOSITION MEASURED AT URBAN AND RURAL SITES IN JAPAN. International Conference on Nucleation and Atmospheric Aerosols, Abstracts.

吉野彩子, 高見昭憲 (2017) 2017 年春の福岡-福江における PM 科学成分の観測. 2017 年度福岡から診る大気環境研究所, なし.

吉野彩子, 高見昭憲, 三澤健太郎, 小島知子, 原圭一郎, 西田千春, 林 政彦, 兼保直樹, 畠山史郎, 山本重一, 鶴野伊津志 (2017) 福岡および熊本における大気中微小粒子状物質の化学成分の観測. 第 58 回大気環境学会年会, 同予稿集, 412.

吉野彩子, 高見昭憲, 原圭一郎, 西田千春, 林 政彦, 兼保直樹, 畠山史郎, 山本重一, 鶴野伊津志 (2018) 長崎県福江島および福岡県福岡市におけるエアロゾル化学組成の変動について. 第 59 回大気環境学会年会, 講演要旨集, 446.

Yoshino A., Takami A., Hayashi M., Nishita C., Hara K., Kaneyasu N. (2018) Variation of Particle Numbers at Fukuoka, Japan in winter, 2018. iCACGP-IGAC2018, Abstracts, 2.114.

Yoshino A., Takami A., Hayashi, M, Nishita, C., Hara, K., Kaneyasu, N. (2019) factors for particle number variation at Fukuoka Japan in winter period. 11th Asian Aerosol Conference, Abstracts, 432.

Yoshino A., Takami A., Hayashi M., Hayashi M., Hara K., Hara K., Hara-Nishita C., Uno I. (2019) Variation of aerosol chemical composition and its relation to the trans-boundary air pollution in Japan. EAC 2019 European Aerosol Conference, Abstracts.

吉野彩子, 高見昭憲, 原圭一郎, 西田千春, 林 政彦, 鶴野伊津志 (2019) 長崎県福江島における近年のエアロゾル化学成分の変化. 第 60 回大気環境学会年会, なし.

国立環境研究所研究プロジェクト報告 第137号
NIES Research Project Report, No.137

(SR - 137 - 2020)

大気中の有機粒子の各種毒性に対する発生源別寄与の解明
(所内公募型提案研究)
平成29～令和元年度
Source apportionment of various toxicities by
atmospheric organic aerosols
FY2017～2019

令和3年3月26日発行

編集 国立環境研究所 編集分科会

発行 国立研究開発法人 国立環境研究所

〒305-8506 茨城県つくば市小野川16番2

E-mail: pub@nies.go.jp

Published by the National Institute for Environmental Studies

16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506 Japan

March 2021

組版 株式会社 イセブ

〒305-0005 茨城県つくば市天久保2丁目11-20

無断転載を禁じます

国立環境研究所の刊行物は以下の URL からご覧いただけます。
<https://www.nies.go.jp/kanko/index.html>