

都市大気における粒子状物質削減のための動態解明と  
化学組成分析に基づく毒性・健康影響の評価  
(分野横断型提案研究)

A study of PM in urban atmosphere for reduction of PM and evaluation of toxicity  
and health impact of PM based on chemical compositions

平成 24 ～ 26 年度

FY2012 ～ 2014

NIES



国立研究開発法人 国立環境研究所

NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES

<http://www.nies.go.jp/>

都市大気における粒子状物質削減のための動態解明と  
化学組成分析に基づく毒性・健康影響の評価  
(分野横断型提案研究)

A study of PM in urban atmosphere for reduction of PM and evaluation of toxicity  
and health impact of PM based on chemical compositions

平成24～26年度

FY2012～2014

国立研究開発法人 国立環境研究所

NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES

<http://www.nies.go.jp/>

分野横断型提案研究「都市大気における粒子状物質削減のための動態解明と  
化学組成分析に基づく毒性・健康影響の評価」  
(期間：平成 24 ～ 26 年度)

課題代表者：高見昭憲

執 筆 者：高見昭憲、大原利眞、佐藤 圭、近藤美則、菅田誠治、  
森野 悠、吉野彩子、富山 一、平野靖史郎、古山昭子、  
藤谷雄二、今村隆史、田邊 潔、伏見暁洋、瀬田孝将、  
新田裕史、上田佳代

編 者：森野 悠、高見昭憲

## 序

本報告書は、平成 24 ～ 26 年度の 3 年間にわたって実施した分野横断型提案研究「都市大気における粒子状物質削減のための動態解明と化学組成分析に基づく毒性・健康影響の評価」の研究成果を取りまとめたものです。

直径が数  $\mu\text{m}$  以下の大気中を浮遊する粒子は、人の健康に影響を及ぼすため、大気環境保全を考えるうえで大変重要な物質です。平成 21 年秋に微小粒子状物質 ( $\text{PM}_{2.5}$ ) についての環境基準が設定されましたが、基準達成のためには  $\text{PM}_{2.5}$  の環境動態や多様な発生源情報に基づいた発生源対策が必要です。また、国内の健康影響評価の知見はまだ不十分であるため、国内での知見の蓄積が必要です。このような背景をもとに、発生源情報、大気動態の基礎的理解に基づいて大気濃度分布を把握するとともに、化学組成に基づいて粒子状物質の毒性・健康影響を評価しました。

この研究では、粒子状物質について前駆体も含めた発生源情報の整備、野焼きや直噴自動車からの粒子排出実験、大気チャンバーでの二次生成有機粒子の生成機構の解明や収率測定実験、粒子の凝縮蒸発の実験、関東地方での大気総合観測等を行って、大気シミュレーションモデルの精度向上を図りました。また、人為起源および大気中で捕集した粒子状物質について細胞を用いた曝露実験を行い、二次生成有機粒子などの毒性を評価しました。さらに、大気シミュレーションや観測などから得られた粒子状物質の化学組成や濃度分布に基づいて、粒子状物質がもたらす健康への影響を評価しました。

本研究の成果は、大気環境を保全する総合的な施策を検討するうえで役に立つものと確信しています。

最後に、本研究をすすめるにあたり、大学や地方自治体の研究機関をはじめ、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。

平成 27 年 9 月

国立研究開発法人 国立環境研究所  
理事長 住 明 正

## 目 次

1	研究の目的と経緯	1
1.1	研究の背景および目的	1
1.2	研究の構成	1
1.3	本研究で得られた成果の概要	2
2	研究の成果	4
2.1	室内実験による SOA の生成と毒性評価	4
2.1.1	大気チャンバーによる SOA の生成	4
2.1.2	SOA の組成分析	6
2.1.3	SOA の酸化度と毒性評価	9
2.2	関東における夏季の SOA 総合観測と毒性評価	12
2.2.1	観測概要	12
2.2.2	AMS を用いた大気中の微小粒子状物質の観測	13
2.2.3	酸化度の測定	14
2.2.4	炭素成分の分析	19
2.2.5	イオン・元素の分析	20
2.2.6	有機成分の分析	24
2.2.7	大気中で捕集された粒子の毒性評価	26
2.3	排出インベントリの改良	30
2.3.1	農作物残渣の屋外焼却（野焼き）による粒子の排出係数と化学組成	30
2.3.2	直噴ガソリン車からの粒子排出	32
2.3.3	時刻別活動量推計手法の開発－火力発電所における時刻別排出量比の推計	34
2.3.4	大気汚染物質排出量推計システムの開発	37
2.4	数値モデルを用いた SOA 濃度計算	39
2.4.1	はじめに	39
2.4.2	OA モデルの相互比較	39
2.4.3	OA モデルとチャンバー実験結果の比較	41
2.4.4	OA モデルと大気観測結果の比較	42
2.4.5	まとめ	45
2.5	健康影響	46
2.5.1	はじめに	46
2.5.2	PM の化学組成と死亡との関連	46
2.5.3	国内における SOA および PM による健康影響の評価	47
2.6	研究のまとめと今後の展望	47
2.6.1	本研究で得られた成果の概要	47
2.6.2	PM 削減の方向性について	48
2.6.3	学術面での貢献	49
2.6.4	今後の課題と研究の展開	49

[資 料]

I	研究の組織と研究課題の構成	53
1	研究の組織	53
2	研究課題と担当者	53
II	研究成果発表一覧	55
1	誌上発表	55
2	口頭発表	64

# 1 研究の目的と経緯

## 1.1 研究の背景および目的

2009 年秋に微小粒子状物質の重量濃度に対する環境基準（日平均  $35 \mu\text{g m}^{-3}$  未満、年平均  $15 \mu\text{g m}^{-3}$  未満）が設定された。自動車などの移動発生源への規制が強化された結果、関東域では、大気中に排出される粒子状物質 (Particulate Matter: PM) の質量は半減したともいわれている。しかし、大気中の PM 濃度は平均で十数  $\mu\text{g m}^{-3}$  程度あり、環境基準の達成は未だ困難な状況にある。これは移動発生源以外にもそれなりの多様な発生源が存在することを示唆している。大気中の微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>、捕集効率が 50 % となる空気力学径が  $2.5 \mu\text{m}$  となる PM) は、硫酸塩、硝酸塩、有機物が主要成分である。これまで、国環研でも PM の環境動態を解明してきた。しかし、化学輸送モデル (Chemical Transport Model: CTM) で計算された有機物の濃度は、観測値に比べて大幅な過小評価となっており、この有機物の過小評価の問題は世界的な課題となっている。

ところで、環境基準は人間への健康影響の観点から決定された。PM 中の有機物は、大気中に粒子として排出された一次粒子 (Primary Organic Aerosol: POA) と、ガス状物質から生成する二次生成有機粒子 (Secondary Organic Aerosol: SOA) の混合物である。SOA の毒性は SOA の成分が未知のものが多いため、どの物質にどの程度曝露されると危険であるかが不明な状況にある。また、国内データが少なかつたため、環境基準値の決定には、アメリカなど外国の疫学データに多くを依存しており、わが国の実態に合わない可能性がある。このような課題がある中で、国内における PM 濃度の削減のためには、ガス及び PM の大気濃度を把握し、発生源寄与に関する情報を基にした発生源対策を講ずる必要がある。また大気濃度だけではなく、化学組成に基づいた PM の毒性・健康影響も評価する必要がある。

## 1.2 研究の構成

本研究では PM 削減のための実態把握、発生源情報の精緻化、PM の毒性・健康影響を検討するため、大気、化学、毒性評価、健康影響の専門家を分野横断的に集めて、以下の研究テーマを実施した。

- (1) 室内実験による SOA の生成機構・物性の解明と毒性評価
- (2) PM 大気濃度分布把握のための環境動態解明と大気中 PM の毒性評価
- (3) 排出インベントリの改良
- (4) CTM の改良と濃度分布計算
- (5) PM 質量濃度や化学組成に基づいた健康影響評価

各テーマの研究概要は以下のとおりである。CTM で計算された有機物の濃度が観測値と比べて大幅に過小評価されていることが大きな問題であるため、まず、大気チャンバーを用いた室内実験を行い、SOA の物理的・化学的な物性を把握し、CTM 内での物理化学プロセスの改良を図った。大気中での光化学反応等により揮発性有機化合物 (Volatile Organic Compound : VOC) から SOA が生成した場合、生体に有害な有機化合物に変化する可能性が指摘されている。これまでも SOA の細胞毒性に関する研究を進めてきた結果、酸化ストレスを誘導する SOA を発見した。本課題でも引き続き SOA の毒性スクリーニングを行い、毒性を示す SOA の絞込みを行った。

関東域を対象として、SOA の生成が多くなると考えられる夏季に、大気の総合的な観測を行い、観測と CTM の比較を行うことによって、PM の環境動態の解明と大気濃度分布の把握を行った。また、大気中で捕集した PM 試料について毒性調査を行い、室内実験などで得られた酸化ストレス発現量と比較して、大気中の PM による毒性影響を評価した。

国内の発生源情報について、自動車および自動車以外の煙源などは JATOP (Japan Auto-Oil Program)、VOC は環境省のように分かれており、情報が一元的に集まっていない。また、産業統計には入らない稲藁などの野焼き、家庭や業務用の調理などからの排出源情報は整備されていない。自動車排気・野焼きなど燃焼発生源の POA が大気中に排出されたときに蒸発する半揮発性の VOC (SVOC) の蒸発量も見積がなされていないのが現状である。そこで、野焼きや

新規に開発されたエンジン車からの粒子発生やその発生効率の測定や、統計的な解析などを通して国内の排出源情報の精度向上を行うとともに、CTM で試験的に SVOC を考慮した計算を実施した。

上にも述べたように、CTM で計算された有機物の濃度が観測値と比べて大幅に過小評価されていることが大きな問題であるため、室内実験、大気観測、排出インベントリなどから得られるデータを用いて主に有機エアロゾルのシミュレーションの改善を行った。

これらの研究を行うことにより、発生源情報や大気動態の基礎的理解に基づいた大気濃度分布の把握、さらには SOA など PM の化学組成に基づいた毒性・健康影響評価の知見が得られ、PM 削減に対する基礎的知見を提供した。

### 1.3 本研究で得られた成果の概要

以下の各テーマについて、得られた成果の概要を示す。

#### (1) 室内実験による SOA の生成機構・物性の解明と毒性評価（研究成果は 2.1 節に対応）

大気チャンバーを用いた SOA 生成実験では、大気中の酸化過程を再現するため、OH ラジカルの生成によってエイジング（酸化反応）を進行させることに成功した。また、大気チャンバーで生成した SOA に対して細胞による毒性スクリーニングを行った結果、m-キシレンのほかに、トリメチルベンゼン、ブタジエンは、SOA の酸化ストレス応答遺伝子（HO-1）の遺伝子発現が大きかった。すなわち、イソプレンやピネン類など自然起源の物質由来の SOA よりも、自動車排ガス由来の SOA は毒性が高いことを明らかにした。さらに、有機指標成分の分析を行った結果、大きな酸化ストレス発現を示した m-キシレン由来の SOA に含まれる約 30 種の有機物の同定に成功した。

#### (2) PM 大気濃度分布把握のための環境動態解明と大気中 PM の毒性評価（研究成果は 2.2 節に対応）

2013 年夏季に関東（都心部：九段、中間部：加須、内陸部：前橋）において、AMS（Aerosol Mass Spectrometer）などの自動観測器やフィルターサンプリング、ガス測定など、複数の測定器で多地点の観測を行う、大気中粒子の総合的観測を行った。その結果、PM<sub>2.5</sub> の化学組成としては有機物、硫酸イオン、硝酸イオンが主であることを示した。また、有機物の酸化は上記 3 地点で同程度であり、内陸部にある前橋でも著しい酸化は見られなかった。大気試料中のレボグルコサン等の発生源解析の指標となる有機物が同定できた。観測によって得られた PM 試料の毒性評価を行った結果、室内実験で生成した m-キシレン由来の SOA と比較すると、大気中の PM 試料の毒性（HO-1 遺伝子発現）は相対的に低かった。

#### (3) 排出インベントリ（EI）の改良（研究成果は 2.3 節に対応）

国内の代表的 EI である G-BEAMS データを改定・整備した。G-BEAMS 整備と並行し、排出量推計の精緻化も行き、電力需給の時間変動の推計法を構築した。また、小麦、稲わらなどの燃焼実験の結果に基づき、小麦や稲わらなど野焼きに関わる排出係数を推計した。さらに、燃焼室内で空気を圧縮しそこに燃料を直接噴射する直噴ガソリン車は、燃料と空気を混合した形で燃焼室に注入する従来のガソリン車より多くの粒子を重量としても個数濃度としても排出していることを明らかにした。これらの知見を EI の改良に役立てた。

#### (4) 化学輸送モデル（CTM）の改良と濃度分布計算（研究成果は 2.4 節に対応）

CTM の計算過程の改良については、数種類のモデルを用いて大気チャンバーで行った粒子のエイジングの再現計算を行った。エイジングを再現できたモデル、濃度が過大評価となるモデルなどあったが、モデルにおいてエイジングを考慮する必要性を確認した。また、大気総合観測で得られた大気中の硫酸イオンなどの化学組成の濃度データと CTM の濃度分布計算とを比較した結果、硫酸イオン等の再現性は高いが、一方で、有機物濃度はモデルごとに濃度が異なり、揮発性基底関数（VBS）モデルの導入で夏季の再現性は向上したものの、冬季はいずれのモデルでも顕著に過小評価していた。CTM による動態計算を行った結果、m-キシレン等の炭素数が 8 以上の人為起源の VOC から生成する SOA の分布が、無機イオン（硫酸イオン、硝酸イオン）等と異なる分布を示すことが明らかとなった。

#### (5) PM 質量濃度や化学組成に基づいた健康影響評価（研究成果は 2.5 節に対応）

PM 成分濃度と疾患発症との関連を統計解析の手法を用いて定量的に評価した結果、予備的段階ではあるが、特定成分（硝酸イオン）に対し有意な相関が得られた。また、CTM により求めた大気濃度分布をもとに、健康リスクに

ついて評価した結果、硫酸イオンなどの無機イオンと、キシレン由来などの SOA の分布が大きく異なり、PM の化学組成によって健康への影響が異なることが示唆された。さらに、既存のデータや各種仮定に基づいて、全国における PM 化学組成別の超過死亡の分布を推定した。

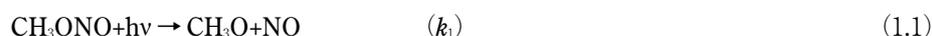
## 2 研究の成果

### 2.1 室内実験による SOA の生成と毒性評価

#### 2.1.1 大気チャンバーによる SOA の生成

最近の研究から、大気エアロゾル中に見つかる有機物は従来型のチャンバー実験で生成する SOA よりもエイジング（大気中での反応により進む酸化や分解）が進んでいること<sup>1)</sup> および大気化学モデル計算による有機エアロゾルの過小評価を改善するにはエイジング効果の導入が有効であること<sup>2)</sup> が分かってきた。本研究では大気化学モデル計算と実験データの比較を目的として、チャンバーを用いて従来型の手法により生成した SOA のエイジングを人工的に加速する実験手法について検討した。

実験は、6 m<sup>3</sup> の大気チャンバー（図 1）を用いて行われた<sup>3)</sup>。チャンバー内に、203 ppbv の  $\alpha$ -ピネン、91 ppbv の NO、6 ppbv の NO<sub>2</sub> および 5 ppbv の CH<sub>3</sub>ONO を導入し、模擬太陽光を照射して SOA を生成した。CH<sub>3</sub>ONO は反応開始のための OH ラジカルの発生剤として導入された。OH ラジカルは式 1.1 ~ 1.3 の反応によって生成する。



$k_1$  は、CH<sub>3</sub>ONO の光分解速度を表す。SOA の生成後、さらに 861 ppbv の CH<sub>3</sub>ONO を追加して OH ラジカルを発生させ、SOA のエイジングを加速した。チャンバー内のガス状生成物は、長光路フーリエ変換赤外分光光度計（FT-IR）を用いて測定された。また、エアロゾルの化学組成は、飛行時間型エアロゾル質量分析計（ToF-AMS）を用いて追跡された。

FT-IR により測定したガス状物質の時間変化を図 2 に示す。11:00 に光照射を開始した。照射開始後、 $\alpha$ -ピネンの濃度は時間とともに減少した。また、NO は NO<sub>2</sub> に変換され O<sub>3</sub> が生成した。反応により  $\alpha$ -ピネンがほぼ消失した 14:00 に、エイジングを加速するため約 1 ppm の CH<sub>3</sub>ONO を追加した。本研究の実験条件の下では CH<sub>3</sub>ONO の光分解速度 ( $k_1$ ) は  $8.03 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  であった。図 2 に示すように、式 1.1 ~ 1.3 の反応による NO、NO<sub>2</sub> および HCHO の生成が認められた。NO、NO<sub>2</sub>、HCHO は後続反応（式 1.4 ~ 1.7）によってさらに OH ラジカルと反応する。



図 1 6 m<sup>3</sup> の大気チャンバー



ここで、M は空気の分子であり、 $k_4$ 、 $k_5$  および  $k_6$  の反応速度定数の値は DeMore らの推奨値である<sup>4)</sup>。チャンバー内の OH ラジカル濃度について定常状態が成り立つと仮定すると、OH ラジカル濃度は式 1.8 で表される。

$$[\text{OH}]_{ss} = k_1 [\text{CH}_3\text{ONO}] / (k_4 [\text{NO}] [\text{M}] + k_5 [\text{NO}_2] [\text{M}] + k_6 [\text{HCHO}]) \quad (1.8)$$

式 1.8 を用いて計算された OH ラジカル濃度は、 $\text{CH}_3\text{ONO}$  をチャンバーに導入した直後の 14:00 に  $2.5 \times 10^8 \text{ molec cm}^{-3}$  であり、16:00 に  $1.0 \times 10^6 \text{ molec cm}^{-3}$  になるまで単調に減少した。 $\text{CH}_3\text{ONO}$  を追加した後の 2 時間内に SOA に暴露した OH ラジカルの積分量 ( $[\text{OH}]\Delta t$ ) は  $2.5 \times 10^{11} \text{ molec s cm}^{-3}$  であった。これは、大気中における  $1.0 \times 10^6 \text{ molec cm}^{-3}$  の OH ラジカル濃度条件では、2.9 日分の OH 曝露に相当する。

ToF-AMS により測定した粒子の時間変化を図 3 に示す。図 3 (a) は、有機エアロゾル (Org)、硝酸エアロゾル ( $\text{NO}_3$ )、硫酸エアロゾル ( $\text{SO}_4$ )、アンモニウムエアロゾル ( $\text{NH}_4$ ) および塩化物エアロゾル (Chl) の結果である。有機エアロゾル濃度は、照射開始から 1 時間後の 12:00 に増加し始め、やがて  $29 \mu\text{g m}^{-3}$  の濃度でほぼ一定となった。 $\text{CH}_3\text{ONO}$  を追加した 14:00 以降、有機エアロゾルの濃度は再び増え始め、 $65 \mu\text{g m}^{-3}$  まで増加したあと減少に転じた。 $\text{CH}_3\text{ONO}$  追加時の  $\alpha$ -ピネン濃度はほぼゼロであったので、 $\text{CH}_3\text{ONO}$  の追加後の濃度の増加はピネン酸化物の反応によるものと考えられる。微量ではあるが、実験では硝酸エアロゾルの生成も確認された。FT-IR の結果によれば、実験では無機硝酸 ( $\text{HNO}_3$ ) も反応によって生成した。しかし、反応系にアンモニアはなく無機硝酸は粒子化しにくいと考えられる。測定された硝酸エアロゾルの信号は、おそらく有機物の  $\text{NO}_x$  光酸化で生成した有機硝酸によるものであろう。

図 3 (b) は、ToF-AMS により測定された有機エアロゾルの O/C 比の結果である。有機エアロゾルの O/C 比は従来法によって生成した SOA では時刻 12:12 に 0.49 程度であった。従来法の実験によっても O/C 比はエイジングによってゆっくりと増加し、時刻 14:00 に 0.52 になった。 $\text{CH}_3\text{ONO}$  を追加すると、O/C 比は 24 分の間に 0.65 まで増加した。O/C 比の増加率は  $\text{CH}_3\text{ONO}$  の追加前後にそれぞれ  $0.00028$  および  $0.0054 \text{ min}^{-1}$  であり、 $\text{CH}_3\text{ONO}$  の追加によって増加率は 19 倍になった。

最近の海外における報告によると、本研究で行ったのと同様なエイジング実験が行われている<sup>5)</sup>。海外の報告では、OH ラジカルの発生方法として、本研究の (1)  $\text{CH}_3\text{ONO}$  の光分解とは異なる (2) HONO の光分解および (3) 2,3-ジメチル-2-ブテンのオゾン分解を採用していた。 $\text{CH}_3\text{ONO}$  と HONO の準備にはいずれも研究室における合成が必要である。 $\text{CH}_3\text{ONO}$  の精製は比較的容易なため (1) の方法では合成の不純物である  $\text{NO}_x$  をコントロール可能である一方、

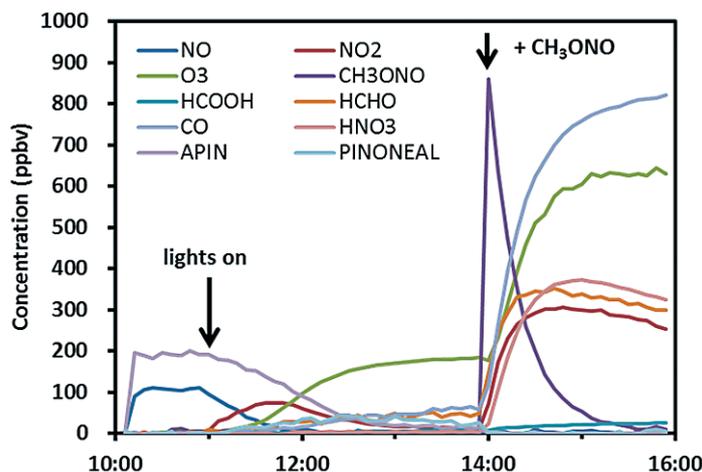


図 2 FT-IR により測定したガス状物質の時間変化

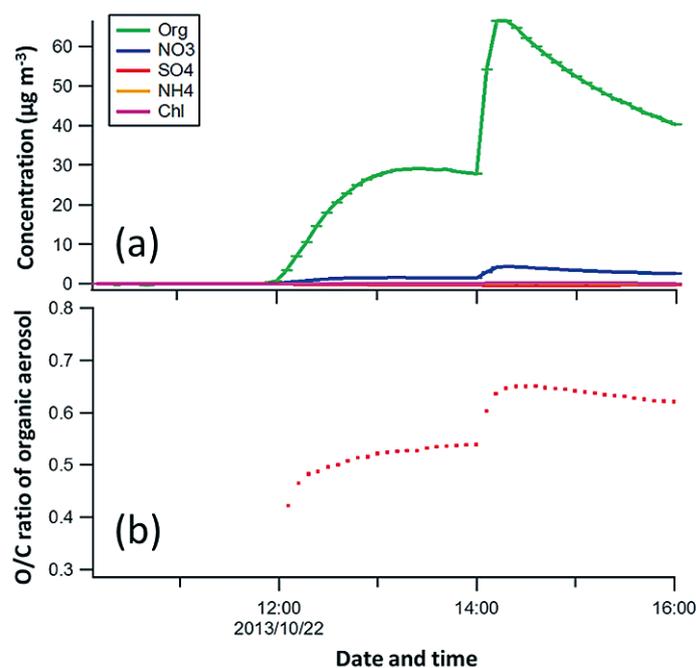


図3 ToF-AMSにより測定した粒子の時間変化

副次的な生成物としてNO、NO<sub>2</sub>およびHCHOを生成する。逆に(2)の方法では、合成の不純物であるNO<sub>x</sub>も同時にチャンバーに導入される一方、副次的な生成物はNOのみである。(3)の方法は、NO<sub>x</sub>フリーのOHラジカル発生源である。オゾン分解の反応中間体としてCriegee型のラジカルを生成するのでSOA生成に影響を及ぼす可能性がある。

本研究では、CH<sub>3</sub>ONOをOHラジカルの発生源とするチャンバーを用いたSOAのエージング法の検討を行い、エージングが進行したSOAの生成実験に成功した。861 ppbvのCH<sub>3</sub>ONOを導入することにより、積算量([OH]Δt)で表すと $2.5 \times 10^{11} \text{ molec s cm}^{-3}$ のOHラジカルにSOAを暴露した。これは大気中のOHラジカル濃度条件では2.9日の酸化に相当する。OHへの暴露により、SOA濃度は $29 \mu\text{g m}^{-3}$ から $65 \mu\text{g m}^{-3}$ まで2.2倍に増加し、有機エアロゾルのO/C比は0.52から0.65まで増加した。本研究で検討した実験法を用いることにより、エージング進行後におけるSOA収率の実験データを大気化学モデルに提供することが可能になった。また、今後の研究では、本研究で検討した手法を活用することによって、エージングによるSOAの化学組成や揮発性の変化を調べる予定である。

### 2.1.2 SOAの組成分析

本研究ではSOAの毒性を理解する上で基本的な情報となるSOAの化学組成を調べた。本分野横断型研究で報告するSOAのうち、α-ピネン、イソプレン、1,3-ブタジエン、1,3,5-トリメチルベンゼン(TMB)の反応によって生成するSOAについては、これまでに化学組成についての報告がある<sup>6-9)</sup>。一方、*m*-キシレンSOAは本研究で評価したSOAの中でも特に毒性が高いにもかかわらず、これまでにSOAの化学組成についての報告がない。そこで、本研究では*m*-キシレンSOAの組成分析を行った。

実験は、6 m<sup>3</sup>の大気チャンバーを用いて行われた<sup>9)</sup>。チャンバーに4,173 ppbの*m*-キシレン、14 ppbのNO、949 ppbのNO<sub>2</sub>、1,134 ppbのCH<sub>3</sub>ONOを導入し、模擬太陽光を照射した。CH<sub>3</sub>ONOはOHラジカル発生源として導入された。生成するSOAの粒径分布をSMPSによって測定した。SOAの体積濃度は、照射38分に $643 \mu\text{m}^3 \text{ cm}^{-3}$ で最大になり、その後チャンバー壁への吸着によりゆっくりと減少した。照射74分にSOAの採取を開始した。47 mm φのテフロンフィルターに $16.7 \text{ L min}^{-1}$ の捕集速度で採取を行った。捕集と同じ速度で精製空気を導入しチャンバー内を大気圧に保った。約1 hの間隔でフィルターを交換し、計4枚のフィルターに試料を採取した。フィルター試料は、液体クロマトグラフ質量分析計(LCMS)による化学組成分析(1枚)、ヨウ素滴定分光法(KI法)によるオキシダント(O<sub>x</sub>)分析(1枚)、

および毒性評価（2枚）に用いられた。KI法によって測定された粒子中の $O_x$ 量は $0.306 \mu\text{mol mg}^{-1}$ であり、小型バッグを用いて測定された結果（ $0.224 \pm 0.120 \mu\text{mol mg}^{-1}$ ,  $n = 4$ ）と同程度であった。また、培養ラット肺胞上皮細胞を用いた細胞生存率の測定の結果、大気チャンバーで生成したSOAの毒性は50%効果濃度（ $EC_{50}$ ）で $201 \mu\text{g/ml}$ であり、小型バックで生成したSOAの結果（ $EC_{50} = 181 \mu\text{g/ml}$ ）と同程度であった。

LCMS分析を行うためのフィルター試料を5 mLのメタノール中で30 minの間超音波抽出した。抽出液を5 mLのバイアルに移して、 $N_2$ 流通下でほぼ乾燥するまで濃縮した。0.05%ギ酸水およびメタノールの1:1混合溶液1 mLをSOA濃縮物のバイアルに加えて分析試料とした。分析試料は、オクタデシルシリカゲルカラム（ジーエルサイエンス社製、ODS-3）とLCMS装置（アジレント社製、LC-TOF）を用いて分析された。LCの移動相として0.05%ギ酸水およびメタノールを用いた。移動相の総流量は $0.4 \text{ mL min}^{-1}$ であった。メタノール濃度は分析開始後30 minの間に5%から90%まで増加され、その後10 minの間90%で保持された。分析終了後、メタノール濃度は5 minの間に5%に戻され、さらに15 min洗浄された。カラムによって分離した試料は電子スプレーイオン化飛行時間型質量分析計によって分析された。主にカルボン酸類やフェノール類を分析するため、負イオンモードを採用した。カルボン酸やフェノール類などの分析物（M）は、脱プロトン反応によって負の擬分子イオン（ $[M-H]^-$ ）として検出された。

SOAを分析した結果、質量数が1000以下の領域にオリゴマーによる信号を含む生成物の信号を検出した（図4）。炭素数が8以下のモノマーの信号の方がオリゴマーの信号よりも強かった。信号が強い炭素数が8以下の生成物について、擬分子イオンの質量数、信号強度、分子式などをまとめた（表1）。信号強度は、クロマトグラフに表れた全ピークの面積に対応している。ニトロフェノール類（No. 17、20、21、26、30）およびその他の含酸素有機物類が検出された。検出された生成物は、バイオマス燃焼から発生するフェノール類が酸化して生成するSOAの場合とよく似ていた。例えば、ジヒドロキシメチルニトロベンゼン異性体（No. 21）はバイオマス燃焼の分子マーカーとして知られる<sup>11</sup>。また、分子式が $C_7H_{10}O_5$ の化合物（No. 23）は*m*-キシレノールが酸化して生成するSOA中に存在することが知られる<sup>12</sup>。*m*-キシレンの光酸化によって生成する*m*-キシレノールがSOAの中間体として働くと考えられる。

*m*-キシレン SOA 中に見つかった生成物のうち、信号強度が0.5以上のものは分子量が140以下の領域に集まっていた（後述する $C_8H_{10}O_x$ 型の生成物を除く）。最も信号が強いのは分子量88のピルビン酸（ $CH_3COCOOH$ ）であった。ピルビン酸は粒子化するほどその揮発性が低くないため、粒子中に存在するオリゴマーの加水分解で生成すると言われている<sup>13</sup>。また、分子量130のシトラコン酸（ $HOCC(CH_3)=CHCOOH$ ）については、芳香族炭化水素の酸化生成物として知られるシトラコン酸無水物の加水分解によって生成すると考えられる<sup>10</sup>。本研究でSOA中に検出された低分子量のカルボン酸はSOAサンプル捕集後のフィルター上や溶液中における加水分解によって生成したものと考えられる。一方で、生物がSOA粒子を細胞内に取り込むと同様な加水分解が進む可能性があるため、SOA粒子の影響を理解する上でこれら低分子のカルボン酸も無視できない。

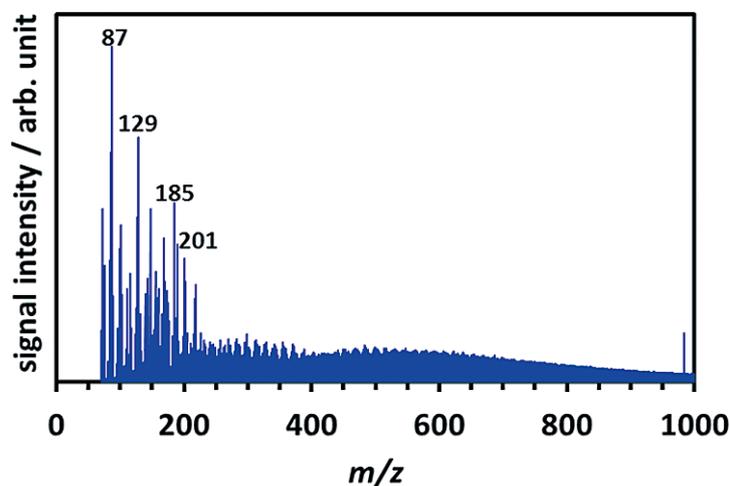


図4 *m*-キシレン SOAの質量スペクトル

表1 *m*-キシレン SOA の分析結果

No.	<i>m/z</i>	信号強度 (a.u.)	分子式	計算と実 験の差 (ppm)	化合物	備考
1	73.0288	0.499	-	-		
2	83.0503	0.504	C <sub>5</sub> H <sub>8</sub> O	-0.73		
3	85.0294	0.703	C <sub>4</sub> H <sub>6</sub> O <sub>2</sub>	1.20		
4	87.0088	1.000	C <sub>3</sub> H <sub>4</sub> O <sub>3</sub>	-0.37	ピルビン酸	
5	89.0237	0.229	-	-		
6	99.0450	0.595	C <sub>5</sub> H <sub>8</sub> O <sub>2</sub>	1.53		
7	101.0241	0.843	C <sub>4</sub> H <sub>6</sub> O <sub>3</sub>	3.11		
8	103.0033	0.140	C <sub>3</sub> H <sub>4</sub> O <sub>4</sub>	3.67	マロン酸	
9	111.0082	0.178	C <sub>5</sub> H <sub>4</sub> O <sub>3</sub>	5.07		
10	115.0393	0.811	C <sub>5</sub> H <sub>8</sub> O <sub>3</sub>	6.62		
11	127.0398	0.624	C <sub>6</sub> H <sub>8</sub> O <sub>3</sub>	2.09		
12	129.0200	0.434	C <sub>5</sub> H <sub>6</sub> O <sub>4</sub>	-5.14	シトラコン酸	a
13	139.0393	0.477	C <sub>7</sub> H <sub>8</sub> O <sub>3</sub>	5.48		
14	141.0535	0.391	-	-		
15	143.0344	0.370	C <sub>6</sub> H <sub>8</sub> O <sub>4</sub>	4.04		
16	147.0295	0.348	C <sub>5</sub> H <sub>8</sub> O <sub>5</sub>	2.68		
17	152.0359	0.135	C <sub>7</sub> H <sub>7</sub> NO <sub>3</sub>	-3.81	ヒドロキシメチルニトロベンゼン異性体	
18	157.0487	0.228	-	-		
19	161.0454	0.170	C <sub>6</sub> H <sub>10</sub> O <sub>5</sub>	0.91		
20	166.0509	0.385	C <sub>8</sub> H <sub>9</sub> NO <sub>3</sub>	0.40	ヒドロキシジメチルニトロベンゼン異性体	
21	168.0305	0.114	C <sub>7</sub> H <sub>7</sub> NO <sub>4</sub>	-1.59	ジヒドロキシメチルニトロベンゼン異性体	b
22	169.0503	0.684	C <sub>8</sub> H <sub>10</sub> O <sub>4</sub>	1.95		
23	171.0300	0.185	C <sub>7</sub> H <sub>8</sub> O <sub>5</sub>	-0.60		c
24	173.0445	0.189	C <sub>7</sub> H <sub>10</sub> O <sub>5</sub>	6.02		
25	175.0251	0.136	C <sub>6</sub> H <sub>8</sub> O <sub>6</sub>	-1.64		
26	182.0458	0.309	C <sub>8</sub> H <sub>9</sub> NO <sub>4</sub>	0.44	ジヒドロキシジメチルニトロベンゼン異性体	
27	185.0445	0.663	C <sub>8</sub> H <sub>10</sub> O <sub>5</sub>	5.63		
28	189.0405	0.215	C <sub>7</sub> H <sub>10</sub> O <sub>6</sub>	-0.20		
29	201.0399	0.333	C <sub>8</sub> H <sub>10</sub> O <sub>6</sub>	2.78		
30	211.0357	0.074	C <sub>8</sub> H <sub>8</sub> N <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	1.63	ヒドロキシジメチルジニトロベンゼン異性体	
31	217.0376	0.114	-	-		
32	219.0488	0.209	-	-		

a シトラコン酸無水物の加水分解生成物<sup>10)</sup>。b バイオマス燃焼の分子マーカー<sup>11)</sup>。

c キシレノール SOA 中に見つかっている生成物<sup>12)</sup>。

反応物の芳香族炭化水素の炭素数を保存しつつ信号が強い生成物として、C<sub>8</sub>H<sub>10</sub>O<sub>x</sub> (x = 4, 5, 6) の分子量を持つ生成物が見つかった。これらの生成物では、反応物の炭素数および水素数が保存されつつ高度に酸化が進んでいる。同様な生成物は他の芳香族炭化水素からの SOA 中にも見つかっている。これらの生成物の化学構造については、開環型カルボン酸類<sup>9)</sup>、二環型過酸化物類<sup>12)</sup>、ポリヒドロキシベンゼン類<sup>14)</sup> など諸説あり、現時点では同定に至っていない。

1,3,5-TMB を反応物に用いた以前の研究では、ピルビン酸、2-メチル-4-オキソ-2-ペンテン酸 (HOCC (CH<sub>3</sub>) = CHCOCH<sub>3</sub>)、C<sub>9</sub>H<sub>12</sub>O<sub>x</sub> (x = 4, 5, 6, 7) 型の化合物などの含酸素有機物が SOA 中に見つかっている<sup>9)</sup>。TMB のメチル置換基数はキシレンより多いため、酸化によって 2-メチル-4-オキソ-2-ペンテン酸のようなケトン型の生成物が生成しやすいと考えられる。キシレン SOA 中ではニトロフェノール型の生成物が比較的高濃度に検出されたが、TMB からの SOA 中ではニトロフェノール型の生成物の濃度が低かった。TMB の反応では、メチル置換基の立体障害により、フェノール型中間体のニトロ化が進みにくいとされる。

本研究では、NO<sub>x</sub> 存在下での *m*-キシレンの光酸化実験を行い、生成する SOA の化学組成を LCMS 法によって分析した。SOA 中には、ピルビン酸 (CH<sub>3</sub>COCOOH)、シトラコン酸 (HOCC (CH<sub>3</sub>) = CHCOOH)、C<sub>8</sub>H<sub>10</sub>O<sub>x</sub> (x = 4, 5, 6) 型の化合物などの含酸素有機物類やニトロフェノール類が検出された。同じ芳香族炭化水素である 1,3,5-TMB の酸化で生成する SOA に比べ、ニトロフェノール型の生成物が多かった。*m*-キシレン SOA 中に検出された生成物は、バイオマス燃焼由来の VOC が空気中で酸化して生成する SOA 中の生成物によく似ていた。

## 2.1.3 SOAの酸化度と毒性評価

### 2.1.3.1 目的

二次有機エアロゾル (SOA) は中間生成物や SOA 自体に酸化生成物が含まれており、化学成分による健康影響が懸念される。環境中には様々な VOC 由来の SOA が存在しており、それらの前駆物質毎の SOA の毒性を系統的に評価し、発生源対策につなげる必要がある。そこで本研究では小型チャンバーを用いて各種 SOA を生成した。次に捕集した SOA を培養培地に溶出して SOA 溶液を作成し、それを培養細胞に曝露して酸化ストレスに関する毒性評価アッセイを行った。また、酸化ストレスと関係していると考えられる性状評価を行った。

### 2.1.3.2 方法

#### (1) 発生方法

各種 SOA の発生法の詳細は藤谷ら<sup>15)</sup> に記す。SOA 種の生成対象は、我が国の排出量を考慮して、自然由来として  $\alpha$ -ピネンのオゾン反応により生成する SOA (p-SOA)、イソプレン NO 存在下での光化学酸化反応により生成する SOA (i-SOA)、人為起源として NO 存在下で m-キシレン、1,3,5-TMB および 1,3 ブタジエンの光化学酸化反応により生成する SOA (それぞれ x-SOA、t-SOA、b-SOA) である。表 2 に各種 SOA の初期濃度等の生成条件を示す。p-SOA の場合、200 L のテフロン製チャンバー (CCK-200L、GL サイエンス) にボンベ空気、オゾン発生器で発生させたオゾン、および  $\alpha$ -ピネンを導入して生成させた。オゾンが完全消費する条件 (Pinene rich) とピネンが完全消費する条件 (Ozone rich) を  $\alpha$ -ピネンとオゾンの反応定数から求めて実験を行った。他の SOA 種は NO 存在下で光照射を行い生成させた。p-SOA に比べ、長い反応 (滞留) 時間が必要になることから、これらの生成実験は、表面積 / 気積比を極力小さくして生成粒子の壁面ロスが小さくなるように、気積が 1 m<sup>3</sup> の円筒形のテドラーチャンバーを用いた。空気、NO、VOC を導入後にブラックライトにより紫外線を照射して光化学反応させた。紫外光の強度の目安となる NO<sub>2</sub> の光分解速度定数は 0.067 min<sup>-1</sup> である。本研究では初期条件の VOC/NO<sub>x</sub> 比をおおむね 2 として実験した。

#### (2) SOA 性状測定

生成した SOA をテフロンフィルター (FP-500、住友電工: 47 mm  $\phi$ ) に吸引捕集し、その試料を用いて酸化ストレスに関連すると考えられる化学的性状評価と毒性評価を行った。オキシダント全量は Sato ら<sup>10)</sup> の手順により KI 法で定量した。粒子の持つ酸化能は Shima ら<sup>16)</sup> の手順により還元剤である dithiothreitol (DTT) 中の SH 基の消費量により評価した。in vitro 試験としては、吸入時の毒性を評価する目的でラットの肺胞上皮株細胞 (SV40-T2 細胞) を用いた。テフロンフィルター試料を、10% 牛胎児血清を加えた細胞培養培地 DMEM (細胞培養用、和光純薬工業) 0.5 - 1 ml で 10-30 分間超音波抽出し、SOA 溶液を作製した。その溶液を DMEM で 1-10 倍希釈して各 SOA 溶液濃度の試料とした。細胞生存率はその試料を細胞に曝露し、24 時間培養した後、Cell Counting Kit-8 (同仁化学研究所) を用いて評

表 2 各種 SOA の初期条件および反応条件

VOC	Initial VOC conc. [ppm]	Initial O <sub>3</sub> conc. [ppm]	Initial NO conc. [ppm]	Reaction duration [min]	Collected particle mass [mg]
$\alpha$ -Pinene (Pinene rich)	22.8	2.8	-	5	2.47 $\pm$ 0.7
$\alpha$ -Pinene (Ozone rich)	12.5	1.9	-	5	1.35 $\pm$ 0.2
m-Xylene	5.3	-	2.4	180	0.11 $\pm$ 0.1
m-Xylene	5.3	-	2.4	300	0.63 $\pm$ 0.2
m-Xylene	5.3	-	2.4	900	0.26 $\pm$ 0.1
1,3,5-TMB	4.4	-	2.5	300	0.27 $\pm$ 0.1
Isoprene	5.2	-	2.5	300	0.23 $\pm$ 0.1
1,3-Butadiene	5.3	-	2.4	300	0.40 $\pm$ 0.1

価した。細胞生存数に比例する吸光度を計測し、SOA 溶液濃度と細胞生存率の関係を得て 50 %効果濃度 (EC<sub>50</sub>) を算出した。酸化ストレスは SOA 溶液濃度 50 μg ml<sup>-1</sup> の試料を細胞に曝露し、3 時間培養した後、細胞から RNA を抽出してリアルタイム RT-PCR 法によりヘムオキシゲナーゼ-1 (HO-1) 遺伝子発現の変化を検出した。HO-1 は細胞内のレドックスセンサーである転写因子 Nrf2 により転写が活性化される酸化ストレス応答性タンパク質である。

### 2.1.3.3 結果・考察

各種 SOA の分析結果について、p-SOA (Pinene rich) を基準とした比にして示す (図 5)。本来、EC<sub>50</sub> は値の低いほど毒性が強いことを意味するが、この図では逆転させて示している。すなわち EC<sub>50</sub> 比が大きいほど、EC<sub>50</sub> 濃度としては低く、毒性が強いことを意味している。まず、オキシダント比は p-SOA (Pinene rich) が最も大きく、逆に DTT 比は p-SOA (Pinene rich) が比較的小さい結果となった。よって SOA そのものに含まれるオキシダントと細胞内の酸化還元反応に起因する活性酸素種は必ずしも挙動が一致しているわけではないということが明らかになった。また、竹川ら (2010)<sup>17)</sup> によると、芳香族炭化水素 (トルエン、キシレン、TMB) 由来 SOA の方が植物炭化水素 (ピネン) SOA よりも DTT 消費量が大きいという結果が出ているため、概ね同じ傾向が得られた。

次に毒性結果の HO-1 比をみると、x-SOA が大きく、次いで b-SOA が大きい。EC<sub>50</sub> 比は b-SOA が大きく、次いで x-SOA が大きい。毒性結果を総合すると x-SOA と b-SOA の毒性が強いことが分かる。本研究で行った生成条件で比較した場合には、x-SOA や b-SOA などの人為起源由来の SOA の毒性は p-SOA や i-SOA などの自然起源由来の SOA の毒性よりも強いことが分かった。

次に毒性が強い結果となった x-SOA に関して照射時間による影響を見た (図 6)。図 5 と同様に、p-SOA (Pinene rich) を基準とした比にして示す。DTT 比の x-SOA の時間依存性をみると、照射時間が長い x-SOA ほど低くなる傾向にあるが、ほとんど変化はなく、他の SOA 種との相違ほどは変化していない。一方、EC<sub>50</sub> 比は照射時間が長くなるにつれ大きくなり、その変化量は他の SOA 種との相違以上であった。また、HO-1 では、5 時間の照射が最も高い値となった。以上のことからエイジングの長さで毒性が変化するが、必ずしもエイジングの時間が長いほど毒性が強くなるとは限らない場合があることが分かった。これを検証するためにも室内実験の試料と実環境中の試料との比較や実環境中のエイジング時間の異なる試料間の比較を行う必要がある。

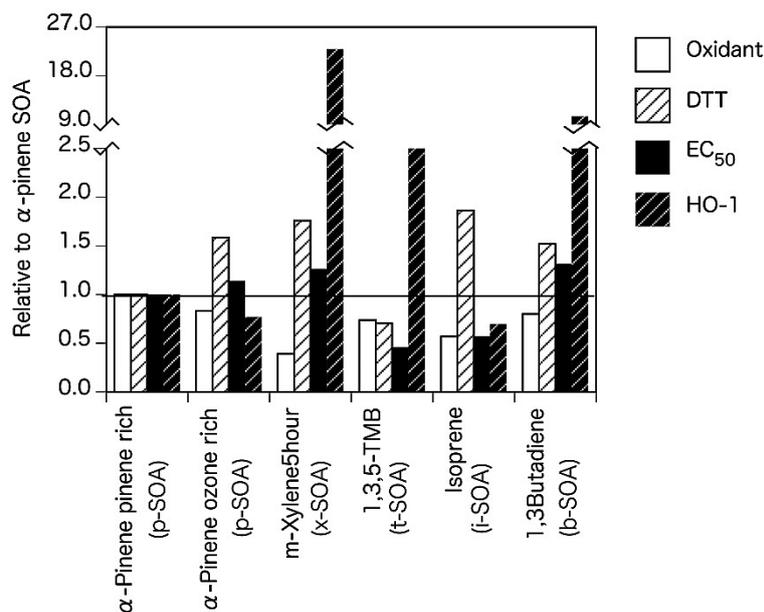


図 5 各種 SOA の性状測定結果

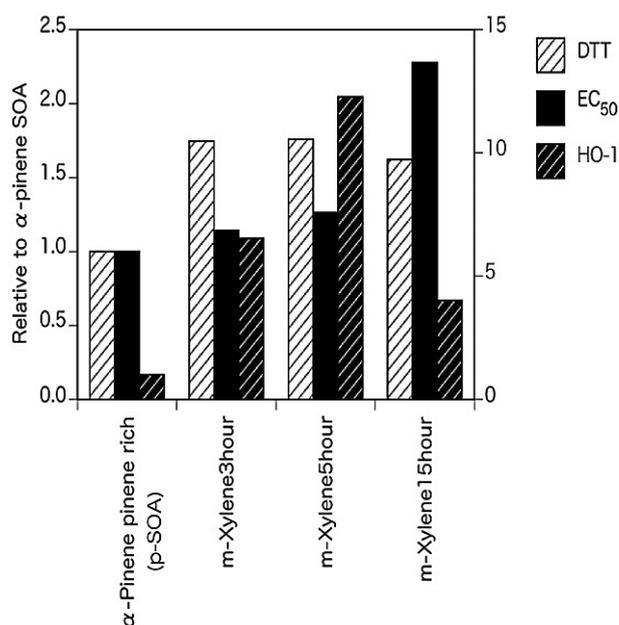


図6 m-xylene-SOAの反応時間を変化させた場合の性状測定結果 (HO-1のみ右軸)

#### 引用文献

- 1) Chhabra P.S., Ng N.L., Canagaratna M.R., Corrigan A.L., Russell L.M., Worsnop D.R., Flagan R.C., Seinfeld J.H. (2011) Elemental composition and oxidation of chamber organic aerosol, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 8827–8845.
- 2) Tsimpidi A.P., Karydis V.A., Zavala M., Lei W., Bei N., Molina L., Pandis S.N. (2011) Sources and production of organic aerosol in Mexico City: insights from the combination of a chemical transport model (PMCAMx-2008) and measurements during MILAGRO, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 5153–5168.
- 3) 国立公害研究所 (1977) スモッグチャンバーによる炭化水素-窒素酸化物系光化学反応の研究-昭和52年度 中間報告-, 国立公害研究所研究報告, R-4-78, 97p.
- 4) DeMore W.B., Sander S.P., Golden D.M., Hampson R.F., Kurylo M.J., Howard C.J., Ravishankara A.R., Kolb C.E., Molina M.J. (1997) Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modeling. Evaluation number 12, JPL Publication 97-4, 266p.
- 5) Donahue N.M., Henry K.M., Mentel T.F., Kiendler-Scharr A., Spindler C., Bohn B., Brauers T., Dorn H.P., Fuchs H., Tillmann R., Wahner A., Saathoff H., Naumann K.-H., Möhler O., Leisner T., Müller L., Reinnig M.-C., Hoffmann T., Salo K., Hallquist M., Frosch M., Bilde M., Tritscher T., Barmet P., Praplan A.P., DeCarlo P.F., Dommen J., Prévôt A.S.H., Baltensperger U. (2012) Aging of biogenic secondary organic aerosol via gas-phase OH radical reactions, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 109, 13503–13508.
- 6) 国立環境研究所 (2012) 二次生成有機エアロゾルの環境動態と毒性に関する研究, 国立環境研究所研究プロジェクト報告, SR-101-2012, 75p.
- 7) Sato K. (2008) Detection of nitrooxypolyols in secondary organic aerosol formed from the photooxidation of conjugated dienes under high-NO<sub>x</sub> conditions, *Atmos. Environ.*, 42, 6851–6861.
- 8) Sato K., Nakao S., Clark C.H., Qi L., Cocker D.R.III (2011) Secondary organic aerosol formation from the photooxidation of isoprene, 1,3-butadiene, and 2,3-dimethyl-1,3-butadiene under high NO<sub>x</sub> conditions, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 7301–7317.
- 9) Sato K., Takami A., Kato Y., Seta T., Fujitani Y., Hikida T., Shimono A., Imamura T. (2012) AMS and LC/MS analyses

of SOA from the photooxidation of benzene and 1,3,5-trimethylbenzene in the presence of NO<sub>x</sub>: effects of chemical structure on SOA aging, Atmos. Chem. Phys., 12, 4667–4682.

- 10) Sato K., Hatakeyama S., Imamura T. (2007) Secondary Organic Aerosol Formation during the Photooxidation of Toluene: NO<sub>x</sub> Dependence of Chemical Composition, J. Phys. Chem. A, 111, 9796–9808.
- 11) Iinuma Y., Böge O., Gräfe R., Herrmann H. (2010) Methyl-nitrocatechols: atmospheric tracer compounds for biomass burning secondary organic aerosols, Environ. Sci. Technol., 44, 8453–8459.
- 12) Nakao S., Clark C., Tang P., Sato K., Cocker D.III (2011) Secondary organic aerosol formation from phenolic compounds in the absence of NO<sub>x</sub>, Atmos. Chem. Phys., 11, 10649–10660.
- 13) Praplan A.P., Hegyi-Gaeggeler K., Barmet P., Pfaffenberger L., Dommen J., Baltensperger U. (2014) Online measurements of water-soluble organic acids in the gas and aerosol phase from the photooxidation of 1,3,5-trimethylbenzene, Atmos. Chem. Phys., 14, 8665–8677.
- 14) McDonald J.D., Doyle-Eisele M., Kracko D., Lund A., Surratt J.D., Hersey S.P., Seinfeld J.H., Rohr A.C., Knipping E.M. (2012) Cardiopulmonary response to inhalation of secondary organic aerosol derived from gas-phase oxidation of toluene, Inhal. Toxicol., 24, 689–697.
- 15) 藤谷ら (2012) 二次生成有機エアロゾルの毒性評価を目指した小規模チャンバーによる粒子発生法評価, エアロゾル研究, 27, 350–356
- 16) Shima H. et al. (2006) Oxidative ability and toxicity of n-Hexane insoluble fraction of diesel exhaust particles, Toxicol. Sci., 91, 218–226
- 17) 竹川ら (2010) 大気微小粒子中の酸化能, 第 51 回大気環境学会要旨集, 266

## 2.2 関東における夏季の SOA 総合観測と毒性評価

### 2.2.1 観測概要

微小粒子状物質の主要成分である有機エアロゾルのうち、揮発性有機化合物 (Volatile Organic Compounds: VOC) から光化学酸化反応などで生成する二次生成有機エアロゾル (Secondary Organic Aerosol: SOA) の生体への影響は未知である。国立環境研究所で行った室内チャンバーを用いて生成した SOA を細胞に曝露すると、キシレン由来の SOA などで酸化ストレスの発現が見られた<sup>1)</sup>。今回は、大気環境中で捕集された粒子状物質に含まれる SOA に対する酸化ストレスの評価を行うため、2013 年夏に関東域 (九段、加須、前橋、図 7) において粒子状物質の総合的観測を行った。酸化ストレス発現の要因を理解するため、粒子中の酸化物、水溶性の有機化合物 (WSOC)、極性有機成分、金属成分なども測定した。その観測結果を紹介する。

自動観測装置による測定は 2013 年 7 月 15 日から 8 月 10 日まで、フィルターによる粒子の捕集は日中と夜間に分けて 2013 年 7 月 22 日から 8 月 7 日まで行った。自動観測は、エアロゾル質量分析計 (Aerodyne Aerosol Mass Spectrometer: AMS) による硫酸塩、硝酸塩、アンモニウム、有機物、塩化物濃度、PM-712 など等価性が保証された自動測定装置による PM<sub>2.5</sub> 質量濃度、ガス測定器によるオゾン、窒素酸化物、硫黄酸化物、一酸化炭素濃度 (混合比) を測定した。フィルターの交換は基本的には 9 時と 17 時に行ったが、夕立その他の事情で多少時間は前後した。フィルター捕集サンプルは冷凍保存し、化学分析は国立環境研究所、群馬県衛生環境研究所、イサラ研究所で行った。国立環境研究所では KI 法、DTT 法による酸化物測定、有機炭素、元素状炭素濃度測定、酸化ストレス発



図 7 観測地点の図

現の測定を行った。群馬県衛生環境研究所では極性有機成分分析を行った。イサラ研究所ではイオンクロマトグラフによるイオン成分分析、誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) による金属成分分析を行った。それぞれの測定方法、観測結果の詳細を以下に記載する。

## 2.2.2 AMS を用いた大気中の微小粒子状物質の観測

### 2.2.2.1 測定

AMS は  $PM_{10}$  程度の気微小粒子を四重極質量分析計で分析し、粒子の化学組成を 10 分程度の高い時間分解能で測定できる装置である。エアロダイナミックレンズにより粒子とガスを分離し、600℃に加熱されたタングステンの蒸発装置で、粒子に含まれている分子を気化させる。気化した分子は 70eV の電子衝撃法でイオン化され、四重極質量分析計で分析される。600℃で気化するものは、硫酸塩、硝酸塩、塩化物、有機物であり、土壌粒子、金属、BC などは 600℃で気化しないため分析できない。粒子がチョッパーと検出器の間を飛行する時間 (Time-of-Flight) を測定し、粒子直径 (真空中の空力学的直径) を計算によって求め、粒径分布に変換する。

前橋では AMS を群馬県衛生環境研究所の 4 階の部屋に設置し、窓からステンレス製の配管を外に出し外気を取り入れた。加須では埼玉県環境科学国際センターの 2 階に装置を設置し、窓から配管を出した。九段はトヨタ九段ビル (9 階建て) 屋上のプレハブ小屋に AMS を設置し、プレハブから配管を突き出し、外気を取り入れた。3 か所とも粗大粒子を除くため、 $PM_{2.5}$  カットのサイクロンを用いた。

$PM_{2.5}$  自動測定は、前橋、加須では紀本電子製の PM-712 を、九段では米国 Thermo 製の Sharp と呼ばれる自動測定装置を用いた。いずれも等価性が保証されている装置である。

### 2.2.2.2 結果と考察

図 8 は前橋、加須、九段で測定した AMS による微小粒子中化学成分と、 $PM_{2.5}$  の質量濃度である。前橋、加須では AMS と  $PM_{2.5}$  の測定値は比較的良好に一致していた。 $PM_{2.5}$  の主成分は有機物、硝酸塩であった。8 月に入ると硫酸塩の割合も高くなった。有機物と硝酸塩が高いことは近郊で生成した二次粒子を観測している可能性が高い。粒子濃度は日変動をしており、昼間に高く、夜間に低くなる場合が多い。これは光化学酸化反応による二次生成粒子の変動を観測していると考えられる。九段では AMS と  $PM_{2.5}$  の測定値が大きくずれている場合も見られ、AMS 測定に何らかのバイアスがかかったと考えられる。特に 7/25-31 は AMS 濃度が  $PM_{2.5}$  よりかなり大きく、測定としては参考データと考えられる。8/2 以降は  $PM_{2.5}$  質量濃度とも一致している場合があり、ある程度信頼できるデータと考えられるが、8/10-12 の高濃度エピソードを AMS ではとらえられておらず、さらなるデータの検証が必要である。特徴としては、有機物と硫酸イオンが多く、硝酸イオンが相対的に少ない。交通量の多い沿道のそばのビルであるが、測定場所の位置が高かったため、広域の大気汚染をとらえたものと考えられる。

図 9 は有機物の酸化度を示す質量数 44 (COO フラグメントに相当する) と有機物全量の比 (f44) を示している。同時に 100 mg あたりや、 $1 m^3$  あたりの HO-1 遺伝子の発現量を示している。f44 に関して、前橋、加須、九段とも 0.06-0.2 の間で変動していた。東京などの都心では発生源が近く酸化も進んでいないため f44 の値は 0.08 程度<sup>2)</sup>、また著しく酸化が進んだ離島などでは 0.15-0.2 になる<sup>3,4)</sup> と考えられている。今回前橋では 0.1-0.15 程度であり、有機物の酸化がある程度進んでいたことが分かる。また、7/27 から 8/3 にかけて昼間に高く夜間に低いという日変動が見られた。加須の場合の f44 は 0.06-0.14 と前橋に比べると酸化が進んでいないようにみえる。また明確な日変動もあまり見られなかった。天候にも影響されていると考えられ、期間中晴天の日もあったが、夕方に集中豪雨があるケースや、終日曇りの日もあったため、明確な日変動が観測されなかったと考えられる。前橋と加須は変動が類似していたが、九段は有機物と硫酸塩の割合が高く、f44 の変動も少し異なっていた。九段は都心であり、f44 としては 0.08 から 0.1 程度の場合が多いと考えられるが、九段でも f44 が 0.15 を超える場合がしばしば見られた。加須よりも相対的に f44 の値は高かった。これは、日射が強く酸化された有機物の割合が比較的多かったか、あるいは酸化された有機物が関東域で広く滞留したと推測される。

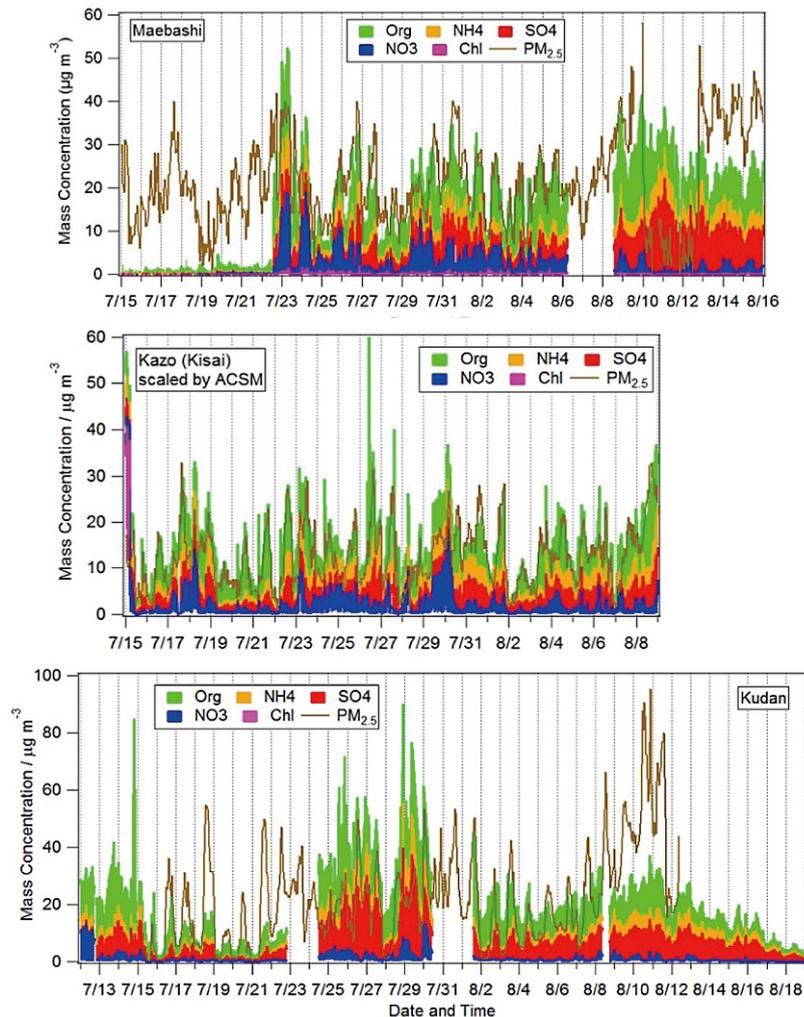


図8 エアロゾル質量分析計による化学組成分析  
上から前橋、加須、九段のデータ。PM<sub>2.5</sub>はPM-712など等価性を有する自動測定器で測定したデータ。

光化学酸化反応で生成するSOAが毒性を持ち健康に影響を及ぼす可能性があると考えられるが、酸化性ストレスに対して発現するHO-1遺伝子と有機物、あるいは、酸化の指標となるf44とHO-1の間には明確な相関は見られなかった。前橋では7/28、8/2、8/6に、100 mgあたりのHO-1遺伝子の発現が高く（3以上）なっていた。しかし、f44の値はそれほど高くなっておらず、あまり相関は無いと考えられる。加須では7/22、7/23、8/2、8/6に100 mgあたりのHO-1遺伝子の発現が高く（3以上）なっていた。しかし、f44との相関は見られなかった。九段では7/23、7/28、7/30、7/31、8/2に100 mgあたりのHO-1遺伝子の発現が高く（3以上）なっていた。九段もf44との相関は見られなかった。3地点で共通にHO-1遺伝子発現が高くなった日は無く、f44との相関も見られないことから、酸化ストレスという観点からは有機物の酸化はあまり影響がないと推定される。しかし、ここで指標としているものは安定な酸化生成物のカルボン酸のフラグメントであり、より不安定なラジカル類は測定できていないので、その点は今後検討をする必要がある。

## 2.2.3 酸化度の測定

### 2.2.3.1 KI法

本研究では関東で採取したPM<sub>2.5</sub>の酸化度をKI法によるオキシダント(O<sub>x</sub>)濃度測定から評価した。大気中の二次有機エアロゾル(SOA)粒子のエイジングが健康に及ぼす影響を調べるため、夏季の関東地方における微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)中のO<sub>x</sub>を観測した。2.1節において、チャンバーで生成したSOA粒子中に存在するO<sub>x</sub>のKI法による分析結

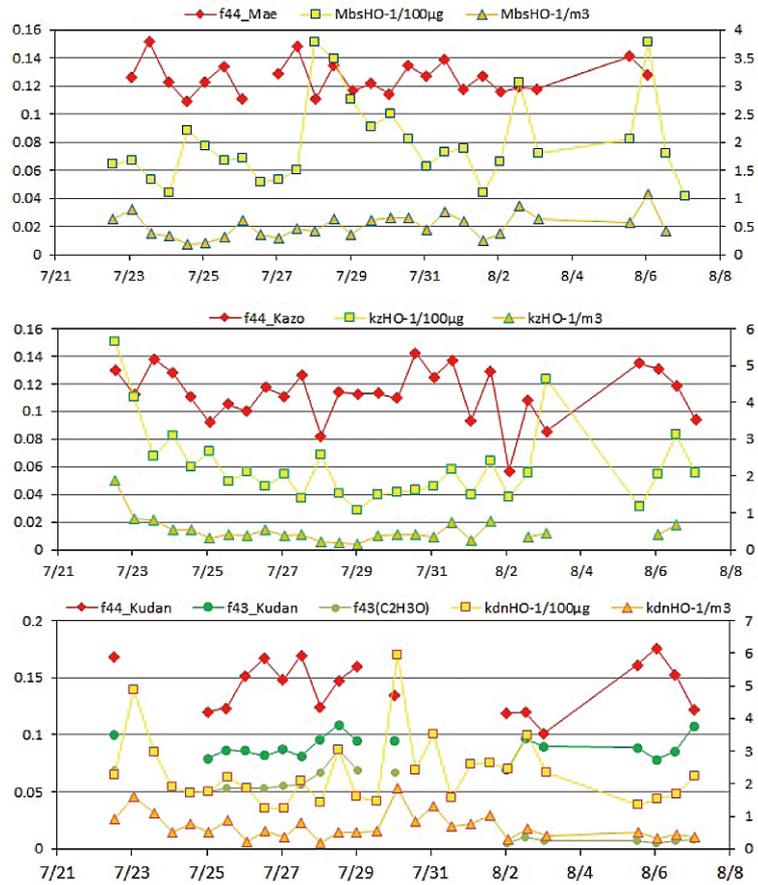


図9 エアロゾル質量分析計によって測定した有機物中のCOOフラグメントシグナル (f44) とHO-1遺伝子発現の時系列グラフ  
 横軸が日付、左縦軸がf44 (割合)、右縦軸がHO-1遺伝子の発現量。上から前橋、加須、九段のデータ。九段ではCHOフラグメントデータ (f43) も示してある。

0.0	$2H^+ + 2e^- \rightleftharpoons H_2$
+0.2	$SO_4^{2-} + 4H^+ + 2e^- \rightleftharpoons H_2SO_3 + H_2O$
+0.3	$Cu^{2+} + 2e^- \rightleftharpoons Cu$
<hr/>	
+0.7	$O_2 + 2H^+ + 2e^- \rightleftharpoons H_2O_2$
+0.8	$Fe^{3+} + e^- \rightleftharpoons Fe^{2+}$
+0.8	$Ag^+ + e^- \rightleftharpoons Ag$
+1.0	$NO_3^- + 4H^+ + 3e^- \rightleftharpoons NO + 2H_2O$
+1.3	$MnO_2 + 4H^+ + 2e^- \rightleftharpoons Mn^{2+} + 2H_2O$
+1.3	$Cr_2O_7^{2-} + 14H^+ + 6e^- \rightleftharpoons 2Cr^{3+} + 7H_2O$
+1.5	$MnO_4^- + 8H^+ + 5e^- \rightleftharpoons Mn^{2+} + 4H_2O$
+1.8	$H_2O_2 + 2H^+ + 2e^- \rightleftharpoons 2H_2O$

↓  
KIを酸化

図10 主要な酸化剤の酸化還元電位

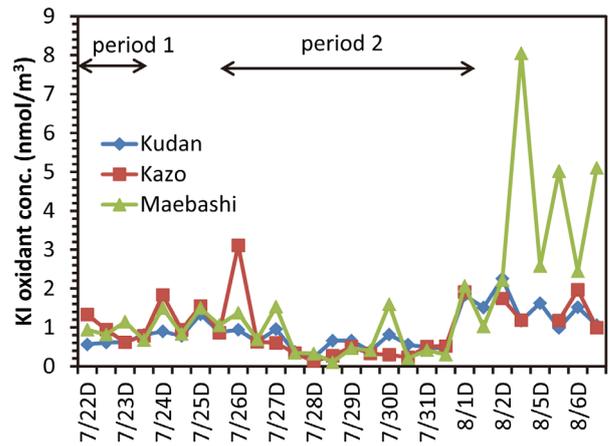


図11 PM<sub>2.5</sub>中に存在するO<sub>3</sub>濃度の時系列

果を報告したが、本研究では同手法を関東における大気中のPM<sub>2.5</sub>に適用した。大気中のPM<sub>2.5</sub>にKI法を適用する場合、KI法の結果は過酸化水素および有機過酸化物のような光化学オキシダントだけでなく金属やその酸化物などの酸化剤の影響も受けると予想される。図10は、主要な酸化剤の酸化還元電位をまとめたものである。過酸化水素以外にも金属やその他の無機物のイオンがKIを酸化する。本研究で得られるKI法の観測結果とPM<sub>2.5</sub>中の金属成分、水溶性有機物 (WSOC) 成分などの濃度や細胞曝露試験の結果とを相互に比較することによって、大気中のPM<sub>2.5</sub>の化学成分のエイジングによる変化やそれによる細胞毒性の変化を理解することが本研究の目的である。

観測は2013年7/22～8/6に、九段、加須、および前橋で行われた。7/22～24(期間1)および7/26～8/1(期間2)は重点観測期間であり、これらの期間には本研究の観測以外にも水溶性有機物成分、金属成分など様々な観測が一斉に行われた。重点期間のサンプル数は $n = 16$ 、三か所の観測地点での合計サンプル数は $n = 48$ であった。粗大粒子をカットするためのインパクターを取り付けたハイボリウムエアサンプラーによって大気中の $PM_{2.5}$ をテフロンフィルターに採取した。フィルターの交換は一日に朝夕二回行われた。微小粒子状物質の試料を酢酸エチルに抽出し、抽出液から不溶成分を濾過し、窒素の通気によって溶存酸素を取り除いた後、窒素密封下の酸性条件の下でヨウ化カリウムと反応させた<sup>5,6)</sup>。滴定反応によって生成する三ヨウ化物イオンの濃度を470 nmの吸収測定によって決定した。ブランクフィルターの分析も行ったところ、サンプルがない時も分析結果にバックグラウンドがあることが認められた。従って、サンプルの分析結果からブランクの分析結果を差し引いて $O_x$ 濃度を評価することにした。

図11に九段、加須、および前橋で測定された $PM_{2.5}$ 中に存在する $O_x$ の濃度を示す。九段、加須、および前橋における重点観測期間中のオキシダント濃度の中央値は、それぞれ $0.61 \pm 0.20$ 、 $0.51 \pm 0.71$ 、および $0.57 \pm 0.48 \text{ nmol m}^{-3}$ であり(誤差は標準偏差)、場所による濃度の差は見られなかった( $p > 0.05$ )。各観測地点における日中と夜間の濃度を比較したところ、前橋でのみ日中の濃度( $1.05 \pm 0.52 \text{ nmol m}^{-3}$ )が夜間( $0.38 \pm 0.26 \text{ nmol m}^{-3}$ )よりも有意に高かった( $p < 0.05$ )。

重点期間における $O_x$ 濃度と他の特定の観測項目との相関関係を調べた。 $PM_{2.5}$ 中の $O_x$ 濃度との相関が高い順に、ピノン酸濃度( $r = 0.39$ )、WSOC濃度( $r = 0.38$ )、DTTアッセイ( $r = 0.37$ )、コハク酸濃度( $r = 0.30$ )、エアロゾル質量分析計の酸化指標f44( $r = 0.30$ )、Fe濃度( $r = 0.28$ )、シュウ酸イオン濃度( $r = 0.27$ )、Mn濃度( $r = 0.24$ )、硫酸イオン濃度( $r = 0.20$ )、Cr濃度( $r = 0.20$ )、Cu濃度( $r = 0.19$ )、酸化ストレス指標HO-1( $r = 0.13$ )、レボグルコサン濃度( $r = 0.11$ )、Ag濃度( $r = -0.13$ )、硝酸イオン( $r = -0.16$ )であった。ピノン酸濃度、WSOC濃度、コハク酸濃度、f44指標はいずれもSOAとの関連が高い成分であるが、これらは $O_x$ 濃度と有意な相関があった( $p < 0.05$ )。また、KI法とは別の酸化度の指標であるDTTアッセイの結果とも有意な相関があった( $p < 0.05$ )。しかし、その他の金属、無機物イオン、HO-1指標、レボグルコサン濃度との間には有意な相関がなかった( $p > 0.05$ )。

本研究の観測結果と式1の回帰式を用いて部分最小二乗法による重回帰分析を行った。

$$[O_x] = c_0 + c_1[\text{ピノン酸}] + c_2[\text{コハク酸}] + c_3[\text{Mn}] + c_4[\text{Cr}] + c_5[\text{NO}_3^-] + c_6[\text{Ag}] + c_7[\text{Fe}] \quad \text{式1}$$

解析には重点観測期間のデータを用いた。重回帰分析の結果を図12に示す。図12の一番左のバーが $PM_{2.5}$ 中の $O_x$ 濃度の観測結果、左から二番目が重回帰分析の結果を用いた予測値を表す。予測値は観測値を再現したが、予測値の標準偏差は、観測値よりも小さかった。図12の左から三番目以降のバーは、回帰式の右辺各項の寄与を表している。定数項 $c_0$ が最も大きく、予測値の約半分を占めた。SOAの成分であるピノン酸やコハク酸は有意な寄与を持っており、マンガン、クロム、鉄などの金属成分の寄与は小さかった。

本研究では、九段、加須、および前橋の $PM_{2.5}$ 中に存在する $O_x$ をKI法で測定した。特に前橋では日中の $PM_{2.5}$ 中の $O_x$ 濃度が夜間よりも有意に高かった。 $PM_{2.5}$ 中の $O_x$ 濃度とSOA生成と関連が深い観測値との間には有意な相関が見られた。 $PM_{2.5}$ 中の $O_x$ 濃度は、SOA組成や金属成分の濃度を変数とする回帰式で説明された。重回帰分析の結果も、 $O_x$ 濃度の変化が金属成分よりもむしろSOA組成によって説明されることを示していた。 $PM_{2.5}$ 中の $O_x$ 濃度と酸化ストレス指標HO-1との相関は弱かった。 $O_x$ 以外に $PM_{2.5}$ 中に酸化ストレスを誘導するものがあるか、 $O_x$ 中の微量成分に高い酸化ストレス誘導性があると考えられる。

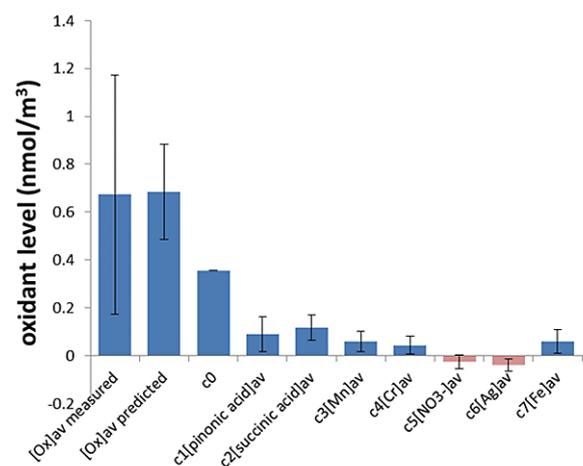


図12 重回帰分析の結果

### 2.2.3.2 DTT アッセイ

ジチオスレイトール (DTT) アッセイによる粒子状物質の酸化能はヘムオキシゲナーゼ-1 (HO-1) の遺伝子発現変化と強い相関を持つ<sup>7)</sup> ことから、生体内の酸化ストレスの指標になると言われている。また、粒子状物質の曝露と酸化ストレスに起因する喘息などの病気の関連を明らかにする疫学研究においても DTT 酸化能が良い指標になることが示されている<sup>8)</sup>。本研究では、2013 年夏季の PM<sub>2.5</sub> 環境試料を対象に DTT アッセイを行い、二次生成粒子 (SOA) のエイジングをはじめとした、DTT 酸化能に与える要因について明らかにした。

DTT アッセイの方法を説明する。PM<sub>2.5</sub> の捕集は 2013 年 7 月から 8 月に九段、加須、および前橋で行った。PM<sub>2.5</sub> カットのインパクターを取り付けたハイボリウムエアサンプラーによって PM<sub>2.5</sub> をテフロンフィルターに採取した。フィルターの交換は一日に朝夕二回行った。粒子の持つ酸化能は還元剤である DTT 中の SH 基の消費量により評価した。4 cm × 2 cm に切り取った試料を 1.5 ml の Tris-HCl buffer (pH8.9) により 30 分間、溶媒を 10℃ 以下に保って超音波抽出し、その溶液に DTT を 160 μM となるように添加した。37℃ の雰囲気中で 15 分間反応させ、反応液を遠心分離し、その上澄み液 1 ml に 5,5'-ジチオビス 2-ニトロ安息香酸を 320 μM となるように添加して 414 nm における吸光度を測定した。また、大気エアロゾル中の DTT 消費量のうち 80% 程度は金属成分が寄与するという報告<sup>9)</sup>があることから、遷移金属を中心に別途試薬を用いてフィルター試料と同様の手順で DTT 消費量試験を行った。

図 13 に粒子重量あたりの DTT 消費量の平均値 (図中エラーバーは複数試料の標準偏差) を示す。九段、加須、前橋の日中の結果は、それぞれ 0.57、0.59、0.64 nmol-DTT/μg であった。夜間はそれぞれ 0.43、0.51、0.49 nmol-DTT/μg であった。日中の試料の酸化能が強い結果であった。なお、ディーゼル粒子 (DEP) で 0.54 nmol-DTT/μg、ディーゼル排気から生成した SOA は 0.64 nmol-DTT/μg、ピネンオゾン反応 SOA 等の純品の前駆物質由来の各種 SOA は 0.44 nmol-DTT/μg である。PM<sub>2.5</sub> 試料の酸化能はこれらの室内で発生させた粒子の酸化能とおおむね同程度であった。全環境試料について DTT 消費量と比較したところ、PM<sub>2.5</sub> 濃度、オキシダント量、HO-1 とそれぞれ正の相関があった(図 14)。ただし HO-1 との相関は弱く、本試料では DTT アッセイが HO-1 アッセイを代替できるほどの結果は得られなかった。次に環境試料の金属成分の影響を評価した。試薬で試験した V、Cr、Mn、Fe、Ni、Cu、Zn のうち、試料中の溶液濃度で影響のある元素は Cu、Fe、Ni であり、それらの大気中濃度と DTT 消費量には正の相関が見られた (例えば Fe で  $r = 0.38$  : 図 15)。これらの元素の試料中溶液濃度と試薬試験による濃度あたりの DTT 消費量から環境試料 DTT 消費量に対する金属成分の寄与率を推定したところ、ほぼ 100% の寄与となった。本試料の DTT 消費量は金属の影響を大きく受けていると言える。次に、大部分が金属成分の影響と考えられたが、金属成分の寄与を除いて DTT 消費量の相対的な変化を求めた。図 16 に Cu、Fe、Ni 以外の要因による単位空気量あたりの DTT 消費量の相対的な変化を時系列に示した。この相対的な消費量と各測定値を比較したところ、有機物の酸化度を示す f44、元素状炭素、有機炭素、水溶性有機炭素、ジカルボン酸、ピノン酸と負の相関が見られた。特に f44 と比較的強い負の相関 ( $r = -0.36$ ) を示し、

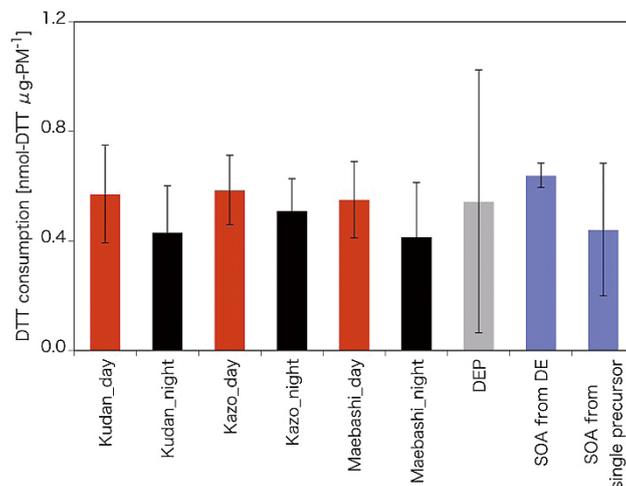


図 13 環境試料と他の粒子種との DTT 消費量の比較

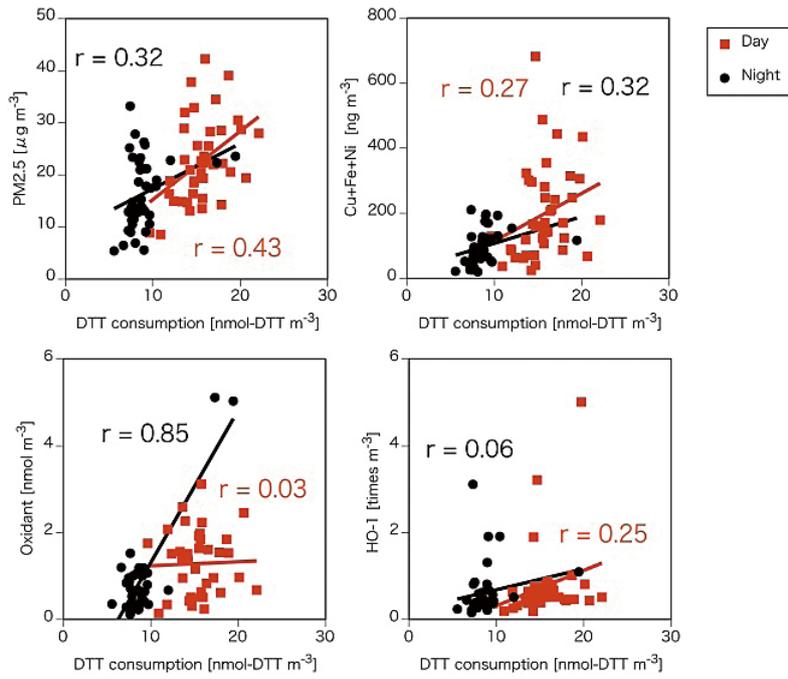


図 14 DTT 消費量と他の測定項目との比較

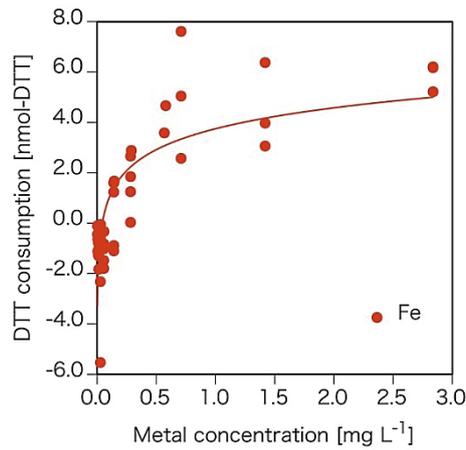


図 15 塩化鉄Ⅲ溶液濃度と DTT 消費量の関係

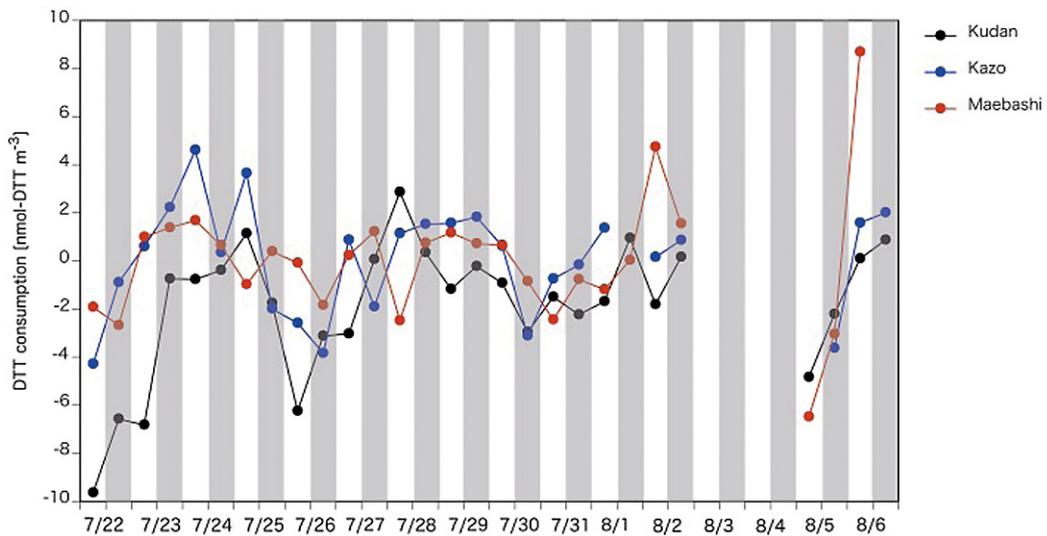


図 16 Cu, Fe, Ni の寄与を除いた DTT 消費量の変化

エイジングにより DTT 消費量が大きくなる傾向は見られなかった。環境試料中の SOA 自体の影響を評価する場合は、キレート剤等を用いて金属成分の影響を除いた上で DTT アッセイを行う必要がある。

## 2.2.4 炭素成分の分析

### 2.2.4.1 試料採取と分析項目

九段（東京都）、加須（埼玉県）、前橋（群馬県）の3地点で2013年7月22日から8月7日まで、昼間（午前9時頃～午後5時頃）と夜間（午後5時頃～翌日午前9時頃）にわけて PM<sub>2.5</sub> 試料を採取した。試料採取には PM<sub>2.5</sub> インパクター<sup>10)</sup> 付きハイボリウムエアサンプラー（HV：HV-1000R または HV-1000F、柴田科学）を2台同時に使い、1台には加熱処理済み（350℃×1時間）石英繊維フィルター（Pall 2500QAT-UP, 20.3×25.4 cm）を、もう1台にはテフロンフィルター（HORIBA TFH-R, 20.3×25.4 cm）を用い、吸引流速は740 L/min とした。円型インパクター部には、試料のコンタミネーションを避けるため、オイルを塗布しない石英繊維フィルターをセットし使い、一つのサンプルを交換するたびに、インパクター部のフィルターも交換した。

石英繊維フィルターに採取した試料は EC/OC（元素状炭素・有機炭素比）、WSOC、有機成分の分析を行った。なお、加熱処理した石英繊維フィルターでは秤量により正確に粒子質量を求めるのが難しいため、秤量は行わず、テフロンフィルター（HV-T）試料のみ秤量し、粒子（PM<sub>2.5</sub>）質量を求めた。テフロンフィルターに採取した試料はイオン、元素、及び各種毒性試験を行った。

### 2.2.4.2 分析方法

テフロンフィルター（HV-T）試料の秤量の際には、事前にテフロンフィルターを気温25℃、湿度50%に調整された実験室内に24時間以上静置した。秤量には電子天秤（Sartorius, LA130S-F、最小読取0.1mg）を用いた。繰り返し秤量値の許容誤差は1mgとし、この範囲内に入った二つの値を平均した。

石英繊維フィルター（HV-Qz）試料に含まれる炭素成分（元素状炭素：EC、有機炭素：OC、全炭素：TC）を以下の方法で測定した。EC、OC、TCはHV-Qzフィルター8mmφを熱分離・光学補正式炭素分析計（Model 2001 Carbon Analyzer, DRI）によりIMPROVE法で分析した<sup>11)</sup>。分析中のOC炭化は反射光で補正した。

石英繊維フィルター（HV-Qz）試料に含まれる水溶性有機炭素（WSOC）は、HV-Qzフィルター25mmφの半分を純水で抽出し濾過した後、TOC計（TOC-VCPH ASI-V24、島津製作所）で測定した。OC濃度からWSOC濃度を差し引くことで、非水溶性有機炭素（WISOC）量を求めた。

重点分析期間（7月22～24日、7月26日～8月1日）の粒子質量と炭素成分の分析結果を以下に示す。

### 2.2.4.3 結果と考察

フィルター試料の分析により求めた、3地点における大気中の PM<sub>2.5</sub> 質量と炭素成分濃度の経時変化を図17、図18に示す。PM<sub>2.5</sub> 濃度は大半の時間帯で九段が最も高く、加須の濃度は常に九段より数～10 μg/m<sup>3</sup> 程度低かった。前橋の濃度は加須と同程度かやや高かった。PM<sub>2.5</sub> 濃度は3地点とも昼間の方が夜間よりやや高い傾向があった。なお、自動測定機による測定でも、PM<sub>2.5</sub> 濃度には同様の傾向がみられた。

EC濃度の経時変化の傾向や地点ごとの濃度の大小は、PM<sub>2.5</sub> の場合と比較的似ており、ほとんどのサンプルで九段の濃度が最も高かった。人為活動の盛んな都心部でEC濃度が高いのは妥当な結果である。一方、前橋のEC濃度が加須より高いケースもあり、単純に都心に近いほど高濃度というわけではない。

OC濃度は3地点とも昼間に高濃度になる傾向がはっきり認められた。また、PM<sub>2.5</sub> やECの場合とは異なり、昼間のOC濃度が前橋で最大となる日がしばしばあった（7月22、27、30、31日）。この4日間は、昼間のWSOC濃度の増加が顕著であり、WSOC濃度は九段・加須に比べ前橋で高かった。一方、WISOCの昼間濃度は7月22日と27日はWSOCと同様に前橋で高いが、7月30日と31日は前橋の濃度は九段より低かった。WISOCの昼間濃度は7月22日と27日はWSOCと同レベルであったが、7月30日と31日はWSOCよりだいぶ低かった。このように、7月30日と

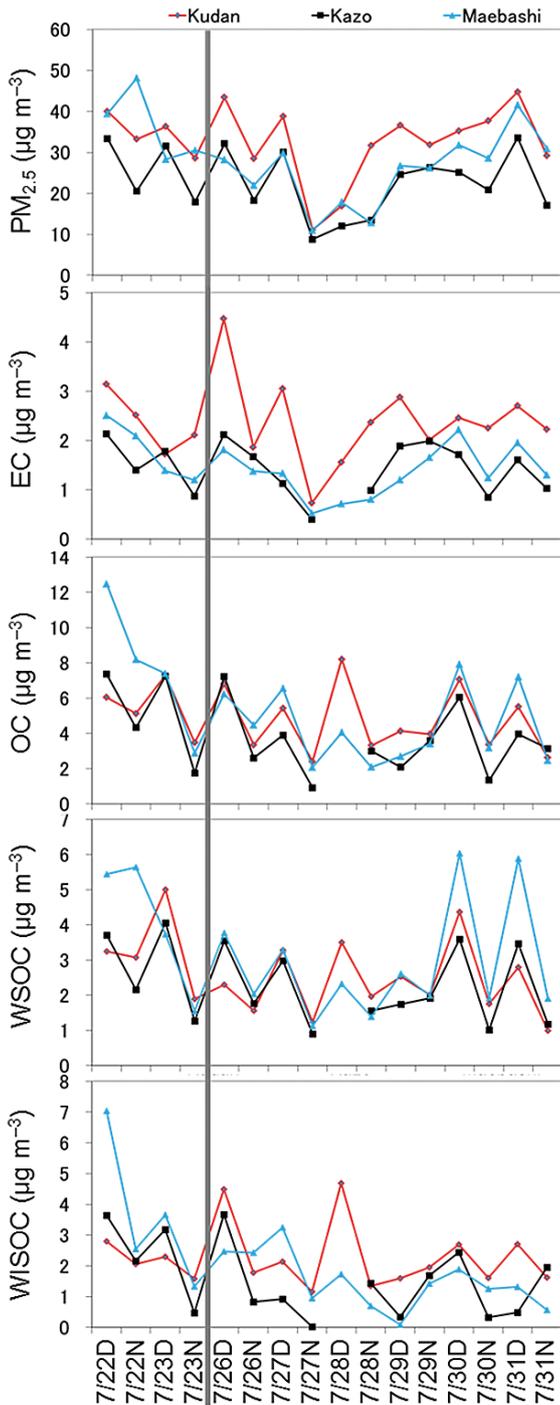


図 17 PM<sub>2.5</sub>, EC, OC, WSOC, WISOC 濃度の経時変化  
D: 日中、N: 夜間

## 2.2.5 イオン・元素の分析

### 2.2.5.1 方法

イオン成分として、F<sup>-</sup>、Cl<sup>-</sup>、NO<sub>2</sub><sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、シュウ酸イオン (C<sub>2</sub>O<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、Na<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>をイオンクロマトグラフを用いて測定した。15 mL ポリプロピレン製容器に HV テフロンフィルターの 32 分の 1 を入れ、超純水 (18.2 M Ω・cm) を 10 mL 加えた後、超音波抽出 (10 分×2 回、ASONE 製 US-5A) した。抽出液をポアサイズ 0.45 μm のディスポーザブルメンブレンフィルタ (親水性 PTFE) でろ過し、イオンクロマトグラフ (Metrohm 製 IC850) で分析した。陰イオンの分析の際、カラムには Shodex IC SI-90 を、溶離液には NaHCO<sub>3</sub> (1.7 mmol/L)+Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> (1.8 mmol/L) を用い、溶離液流量は 1.2 mL/min、試料注入量は 200 μL とした。陽イオンの分析には、カラムに Shodex

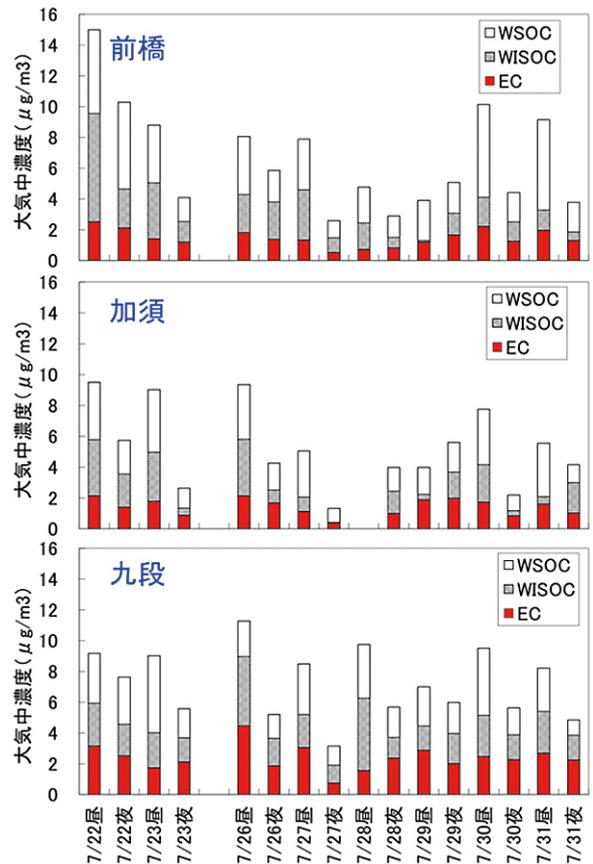


図 18 3 地点における EC, WSOC, WISOC 濃度

31 日の昼間に前橋で OC が高濃度になったのは WSOC 濃度の増加によることが確認された。夏季の微小粒子の WSOC の主な起源は二次有機粒子と考えられること<sup>12)</sup>、前橋での OC 高濃度日には O<sub>3</sub> 濃度も比較的高く、九段<加須<前橋の濃度順になっていることから (図 19)、前橋ではこれらの日には、昼間の二次有機粒子の生成が OC 増加に関与していると推測された。

2007 年夏季観測<sup>13-15)</sup> の際ほど明瞭ではないが、今回の観測期間においても、南からの風によって都心部からの一次粒子や前駆ガスが郊外に輸送されるとともに二次有機粒子を生成したことが示唆される。

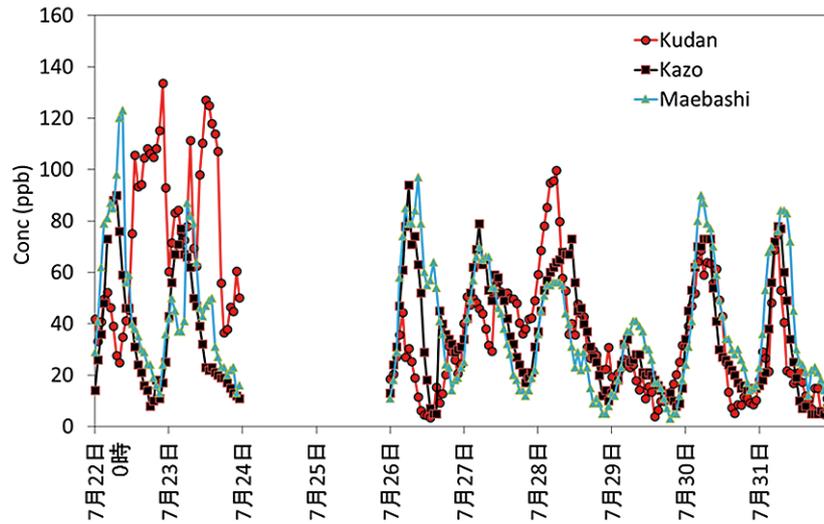


図 19 O<sub>3</sub> 濃度 (1 時間値) の経時変化

IC YK-421、溶離液に H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> (4 mmol/L)+18-Crown-6 (0.15 mmol/L) を用い、溶離液流量は 1.0 mL/min、試料注入量は 200 μL とした。標準溶液濃度は 0.0005、0.001、0.005、0.01、0.05、0.1、0.5、1、2 mg/L とし、レスポンスファクター (RF、感度係数または校正係数) 法を用いて定量した。

無機元素成分 (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 ICP/MS を用いて測定した。試料には HV テフロンフィルターの 32 分の 1 を用い、前処理は超音波-ヒートブロック法で行った。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、大気粒子を捕集したフィルタまでも分解する方法ではなく、捕集フィルタから大気粒子を脱離させ、大気粒子を分解あるいは元素成分を抽出する方法である。分解されずに存在する大気粒子は ICP/MS で分解・イオン化される。超音波-ヒートブロック法は、National Institute of Standards & Technology (NIST, USA) の Standard Reference Material® 2783 (Air Particulate on Filter Media) を用いて分析精度の確認をしている。超音波-ヒートブロック法の手順を以下に示す。

- ①ヒートブロック専用容器に捕集フィルタを入れる。
- ②1% HNO<sub>3</sub> を 10 mL 加える。
- ③超音波脱離 (15 ~ 20 分)。
- ④ヒートブロック分解 (80℃、1 時間)。
- ⑤超音波脱離 (15 ~ 20 分)。
- ⑥これによって作製した分析試料を直接 ICP/MS に注入。

ICP/MS の分析条件は表 3 のとおりである。

#### 2.2.5.2 結果と考察

表 4 にイオンと元素成分濃度の概要を示す。図 20、図 21 にいくつかのイオン成分と元素成分の経時変化を示す。AMS と同様に 7/26 ~ 27、7/31 ~ 8/1 に高濃度の SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> イオンが観測され、3 地点で同様の変動を示していた。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> イオンはほぼ全ての時間帯で九段の濃度が最も高く、加須と前橋の濃度は近いレベルであった。また、3 地点とも経時変化のパターンがかなり類似しており、夜間より日中の濃度が高かった。7/22 ~ 24、30 に高濃度の NO<sub>3</sub><sup>-</sup> イオンが観測された。NO<sub>3</sub><sup>-</sup> イオンについても 3 地点とも経時変化のパターンが似ており、ほとんどの日に、夜間に日中よりも高濃度であった。特に、前橋では夜間の高濃度が顕著で、その時間帯においては、前橋の濃度が最大で、次いで加須、九段の順であった。7/22 ~ 23 に高濃度の Ca<sup>2+</sup> イオンが観測された。九段において他の 2 地点よりも Ca<sup>2+</sup> 濃度が高かった。野焼きやごみ焼却の指標となり得る K<sup>+</sup> イオンの濃度には一貫した傾向が認められず、周辺に水田や畑がある加須や前

表3 ICP/MSの分析条件

使用機器	Agilent Technologies 製 7700x
① プラズマ条件	RF パワー:1550 W キャリアガス(Ar):1.04 L/min プラズマガス(Ar):15.0 L/min 補助ガス(Ar):0.90 L/min
② リアクションガス	H <sub>2</sub> gas:6.0 mL/min He gas:4.3 mL/min
③ サンプル条件	ネブライザ: Micromist サンプリングコーン: Ni 製 スキマコーン: Ni 製 サンプリング量: 0.4 mL/min
④ 測定パラメータ	積分データポイント: 3 積分時間: 3 sec 繰り返し回数: 3 回 チューンステップ: #1 Nongas, #2 H <sub>2</sub> gas, #3 He gas
⑤ 測定元素	<sup>9</sup> Be, <sup>23</sup> Na, <sup>24</sup> Mg, <sup>27</sup> Al, <sup>28</sup> Si, <sup>39</sup> K, <sup>44</sup> Ca, <sup>47</sup> Ti, <sup>51</sup> V, <sup>52</sup> Cr, <sup>55</sup> Mn, <sup>56</sup> Fe, <sup>59</sup> Co, <sup>60</sup> Ni, <sup>63</sup> Cu, <sup>66</sup> Zn, <sup>75</sup> As, <sup>78</sup> Se, <sup>88</sup> Sr, <sup>95</sup> Mo, <sup>107</sup> Ag, <sup>111</sup> Cd, <sup>115</sup> In, <sup>121</sup> Sb, <sup>137</sup> Ba, <sup>205</sup> Tl, <sup>208</sup> Pb, <sup>232</sup> Th, <sup>238</sup> U ( <sup>115</sup> In は内標準元素) 標準溶液濃度 0.001, 0.005, 0.01, 0.05, 0.1, 0.5, 1, 10, 100, 1000 µg/L 内標準元素 <sup>115</sup> In 濃度 1 µg/L
⑥ 校正元素	<sup>7</sup> Li, <sup>89</sup> Y, <sup>205</sup> Tl (1 µg/L)

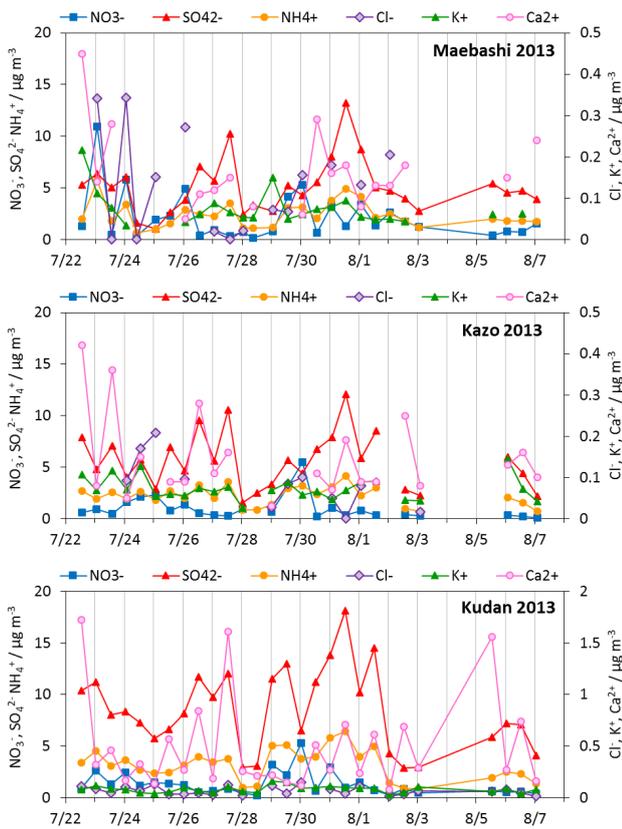


図20 前橋、加須、九段におけるイオン濃度の経時変化

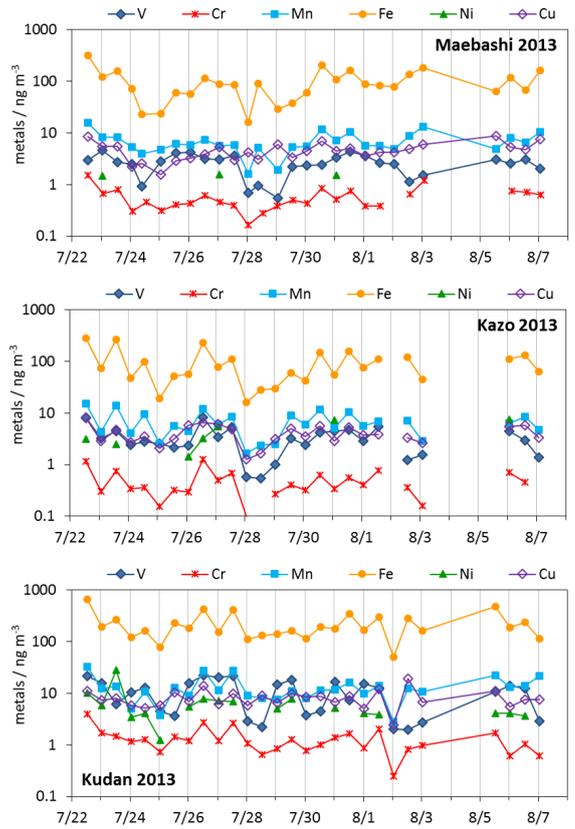


図21 前橋、加須、九段における金属元素濃度の経時変化

表4 OC, EC, イオン成分, 元素成分濃度の概要

(重点分析期間: 2013年7月22~24日, 7月26日~8月1日)

Components		Kudan		Kazo		Maebashi	
		Mean	S.D.	Mean	S.D.	Mean	S.D.
OC	$\mu\text{gC}/\text{m}^3$	4.9	1.8	3.9	2.2	5.4	3.0
EC	$\mu\text{gC}/\text{m}^3$	2.4	0.8	1.4	0.5	1.5	0.6
$\text{Cl}^-$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.069	0.047	0.029	0.040	0.066	0.098
$\text{NO}_3^-$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	1.69	1.36	1.14	1.41	2.26	2.88
$\text{SO}_4^{2-}$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	10.11	3.81	6.47	2.82	6.20	2.91
$\text{Na}^+$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.117	0.072	0.055	0.034	0.037	0.030
$\text{NH}_4^+$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	3.88	1.43	2.53	0.87	2.80	1.40
$\text{K}^+$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.094	0.032	0.072	0.022	0.085	0.045
$\text{Mg}^{2+}$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.048	0.021	0.031	0.015	0.029	0.014
$\text{Ca}^{2+}$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.50	0.50	0.13	0.13	0.14	0.12
Al	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.122	0.128	0.080	0.096	0.154	0.172
Si	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.160	0.156	0.095	0.091	0.133	0.126
Ti	$\text{ng}/\text{m}^3$	9.18	7.12	6.00	6.25	6.30	5.42
V	$\text{ng}/\text{m}^3$	12.74	7.35	3.91	2.19	2.70	1.23
Cr	$\text{ng}/\text{m}^3$	1.52	0.88	0.53	0.32	0.58	0.32
Mn	$\text{ng}/\text{m}^3$	13.91	8.13	7.69	4.13	7.03	3.55
Fe	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.237	0.152	0.111	0.087	0.112	0.076
Co	$\text{ng}/\text{m}^3$	0.130	0.071	0.076	0.057	0.065	0.037
Ni	$\text{ng}/\text{m}^3$	5.72	6.92	1.45	2.33	0.32	0.62
Cu	$\text{ng}/\text{m}^3$	8.18	2.33	4.41	1.75	4.85	1.52
Zn	$\text{ng}/\text{m}^3$	70.48	18.67	44.69	15.10	45.42	18.86
As	$\text{ng}/\text{m}^3$	1.45	0.59	1.20	0.50	1.03	0.26
Se	$\text{ng}/\text{m}^3$	1.95	0.72	1.22	0.30	1.11	0.32
Sr	$\text{ng}/\text{m}^3$	6.82	6.62	0.96	0.52	1.23	0.67
Mo	$\text{ng}/\text{m}^3$	2.00	1.31	0.75	0.35	0.67	0.37
Ag	$\text{ng}/\text{m}^3$	0.15	0.10	0.15	0.12	0.10	0.07
Cd	$\text{ng}/\text{m}^3$	0.285	0.170	0.234	0.119	0.155	0.165
Sb	$\text{ng}/\text{m}^3$	1.50	0.38	1.69	0.80	1.34	0.50
Ba	$\text{ng}/\text{m}^3$	8.22	2.09	3.98	1.43	5.97	2.16
Tl	$\text{ng}/\text{m}^3$	0.126	0.062	0.071	0.024	0.063	0.023
Pb	$\text{ng}/\text{m}^3$	14.14	4.66	9.06	3.36	9.15	2.62
Th	$\text{ng}/\text{m}^3$	0.009	0.005	0.006	0.009	0.004	0.003
U	$\text{ng}/\text{m}^3$	0.008	0.005	0.005	0.004	0.007	0.005
Total	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	24.447	—	16.155	—	18.958	—
PM <sub>2.5</sub>	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	32.7	8.8	23.6	7.7	28.2	10.0
Total/PM <sub>2.5</sub> (%)		74.8	—	68.4	—	67.2	—

橋で特に高いケースはなかった。元素成分については、すべての成分で前橋、加須が同程度の濃度なのに対し、九段は他の2地点に比べて高い濃度が観測された。FeとCuの経時変化は比較的似ており、いずれも夜間よりも日中に高濃度であった。

## 2.2.6 有機成分の分析

### 2.2.6.1 方法

石英繊維フィルターの試料を用い、無極性有機成分と極性有機成分を別々に測定した。以下に詳細を述べる。

無極性有機成分は、加熱脱着 GC/HRMS<sup>16)</sup> により測定した。サンプル表面に内標準物質を添加した後、TDU-CIS4 (ゲステル) を用いて加熱脱着導入し、高分解能 (分解能 1 万) SIM 法での二重収束型 MS (JMS-700K, JEOL) により対象成分を定量した。対象とした無極性有機成分は、*n*-アルカン (C<sub>18</sub>-C<sub>33</sub>)、PAHs (Phenanthrene: PHE, Anthracene: ANT, Fluoranthene: FLA, Pyrene: PYR, Benz[a]anthracene: BaA, Chrysene: CHR, Benzo[b]fluoranthene: BbF, Benzo[k]fluoranthene: BkF, Benzo[a]pyrene: BaP, Indeno[1,2,3-cd]pyrene: IcdP, Dibenz[a,h]anthracene: DahA, Benzo[ghi]perylene: BghiP)、oxy-PAHs (9-Fluorenone: 9FLE-O, Perinaphthenone: PN-O, Anthrone: ANT-O, 9,10-Anthraquinone: 9,10AQ-O, Cyclopenta[def]phenanthrenone: CPP-O, Benzo[a]fluoren-11-one: BaF-O, Benzo[b]fluoren-11-one: BbF-O, Benzanthrone: BA-O, Benz[a]anthracen-7,12-dione, BaA-DO)、nitro-PAHs (9-Nitroanthracene: 9NA, 2-Nitrofluoranthene: 2NFLA, 3-Nitrofluoranthene: 3NFLA, 3-Nitrofluoranthene: 3NFLA, 4-Nitropyrene: 4NP, 1-Nitropyrene: 1NP, 2-Nitropyrene: 2NP)、Methyl-PAHs (2-Methylphenanthrene: 2MPhe, 1-Methylphenanthrene: 1MPhe, 1-Methylpyrene: 1MPy)、ホパン (17 $\alpha$ (H)-22,29,30-trisnorhopane: Tm, 17 $\alpha$ (H),21 $\beta$ (H)-30-norhopane: 29 $\alpha\beta$ , 17 $\alpha$ (H),21 $\beta$ (H)-hopane: 30 $\alpha\beta$ , 17 $\alpha$ (H),21 $\beta$ (H)-22S-homohopane: 31 $\alpha\beta$ 22S, 17 $\alpha$ (H),21 $\beta$ (H)-22R-homohopane: 31 $\alpha\beta$ 22R)、ステラン ( $\alpha\alpha\alpha$  20R-cholestane: 27 $\alpha\alpha\alpha$ ,  $\alpha\beta\beta$  20R-cholestane: 27 $\alpha\beta\beta$ ,  $\alpha\beta\beta$  20R-24S-methylcholestane: 28 $\alpha\beta\beta$ ,  $\alpha\alpha\alpha$  20R-24R-ethylcholestane: 29 $\alpha\alpha\alpha$ ,  $\alpha\beta\beta$  20R-24R-ethylcholestane: 29 $\alpha\beta\beta$ )である。これらの成分は、発生源の指標となり得るだけでなく、oxy-PAHs や nitro-PAHs の中には直接排出だけでなく大気中での反応による生成の寄与が高いと考えられている成分もあり (例えば 1,8-naphthalic anhydride、9-fluorenone、9,10-anthraquinone、2-nitrofluoranthene<sup>17, 18)</sup>)、大気中での粒子の酸化反応の指標としても利用できる可能性がある。もちろん PAH 類は有害性の観点からも重要である。

極性有機化合物の対象成分は、溶媒抽出-誘導体化 GC/MS 法により測定可能な成分のうち、光化学反応の指標であるジカルボン酸 (C<sub>3</sub> ~ C<sub>9</sub>)、BSOA マーカーであるピノン酸、バイオマス燃焼マーカーであるレボグルコサンとした。内部標準物質として、ジカルボン酸およびピノン酸にはケトピン酸、レボグルコサンにはレボグルコサン-d7 をそれぞれ用いた。内部標準物質各 1  $\mu$ g を含むジクロロメタン:メタノール (2:1) 混合溶媒を用いて超音波装置 (15 分間) により試料フィルターから対象成分を抽出した。抽出液をろ過し、N<sub>2</sub> 気流下で溶媒を除去後、シリル化剤 (BSTFA+10 % TMCS) を含むジクロロメタン:ヘキサン (1:1) 混合溶媒を加え、70 °C で 2 時間加熱して対象成分をシリル化した。上記混合溶媒で希釈後、GC/MS (Agilent 6890/5973) により、DB-5MS (60 m, 0.25 mmID, 0.25  $\mu$ m) のカラムを用いて scan 法で対象成分を測定した。

### 2.2.6.2 結果と考察

無極性有機成分のうち、C<sub>25</sub> *n*-alkane、17 $\alpha$ (H),21 $\beta$ (H)-hopane、BaP の経時変化を図 22 に示す。これらの成分は、概ね九段で高く、加須と前橋は近いレベルであった。C<sub>25</sub> *n*-alkane と 17 $\alpha$ (H),21 $\beta$ (H)-hopane の経時変化は良く似ており、九段で高く、加須はやや前橋より高かった。また、昼間に夜間よりも顕著に高くなった。このことから、C<sub>25</sub> *n*-alkane と 17 $\alpha$ (H),21 $\beta$ (H)-hopane の主要発生源が同じ (例えば自動車) であることが示唆される。一方、BaP の経時変化は C<sub>25</sub> *n*-alkane や 17 $\alpha$ (H),21 $\beta$ (H)-hopane とは少し異なる。また、概して九段で高いが、前橋より加須が高い日もあれば、前橋で最高濃度が観測された日 (7 月 29 日昼・夜) もある。このことから、PAHs には他の発生源の寄与も一定程度以上寄与していると考えられる。なお、PAHs 成分の濃度変動の傾向は互いに似ており、oxy-PAHs も各成分の濃度変動の傾向は似ていた。Nitro-PAHs は大半が不検出であり、最も検出率が高かった 2-Nitrofluoranthene でも、測定日の半数弱で検出されたのみであった。

図 23 には 9,10-Anthraquinone と Anthracene との濃度比の経時変化を示す。Anthracene は 9,10-Anthraquinone を生成する可能性があるため<sup>19)</sup>、もしこの生成が 9,10-Anthraquinone の濃度に対して強く関与しているのであれば、日中に 9,10-Anthraquinone/Anthracene 比が上昇するなどの傾向が見られると考えられる。しかし、実際にはそのよう

な日内変動は見られなかった。また、仮に、都心からの輸送中に9,10-Anthraquinoneが生成されるとする、九段よりも加須や前橋で9,10-Anthraquinoneが高濃度になる可能性があるが、前橋で最も高濃度になったケースもあるが(7月23日昼・夜、7月28日夜)、注目日(7月22日、27日、30日、31日の昼間)では必ずしも前橋で高濃度となっていない。これらのことから、oxy-PAHsを大気中での光化学反応の指標に用いて動態解析に用いることは難しいと思われた。また、2-NitrofluorantheneとFluorantheneの比をとったところ、九段より前橋で高濃度となった日はなかった。

図24にはPAH類の組成を7月22日昼と7月31日昼を例に示す。両日とも、また3地点とも組成は似ていた。PAH類の濃度は概して九段で高いが、加須と前橋の濃度の大小は日によって異なる。

*n*-アルカンの組成は興味深い(図25)。7月22日昼において、主に化石燃料起源と思われるC<sub>25</sub>以下の*n*-アルカンの濃度は加須で高く、九段と前橋は同程度であった。一方、C<sub>27</sub>、C<sub>29</sub>、C<sub>31</sub>の*n*-アルカンは前橋で最大となっており、特にC<sub>27</sub>*n*-アルカンが前橋で顕著に高くなっている。こういった奇数アルカンの優位性は、植物の影響が大きいことを示している。森林地帯に近い前橋で、植物の影響が強く表れていることは妥当なことだと思われる。7月31日昼の*n*-アルカンの組成は7月22日昼とはやや異なる。C<sub>22</sub>以上は九段が高いが、C<sub>21</sub>以下は加須が高い。C<sub>27</sub>は前橋で最高濃度が観測されている。

図26にホパンとステランの組成を示す。ホパンとステランの組成は日による変動が少なく、九段で高く、加須と前橋は同レベルであった。

極性有機成分については、C<sub>3</sub>~C<sub>9</sub>ジカルボン酸のなかでは、マロン酸(C<sub>3</sub>)が最も濃度が高く(4~103 ng/m<sup>3</sup>)、次いでコハク酸(C<sub>4</sub>)(2~56ng/m<sup>3</sup>)であった。7月26日~31日におけるOCおよびマロン酸、ピノン酸、レボグルコサンの濃度を図27に示す。OC濃度は夜間よりも日中に高くなる傾向が見られた。28日は九段でのみOCが高かった。マロン酸およびピノン酸の濃度変動は、日中に高い値を示す傾向が見られており、OCの変動と比較的一致していた。またO<sub>3</sub>濃度(図19)とも関連が見られ、いずれの成分も日中の光化学反応によって濃度が上昇したことが示唆される。マロン酸は3地点とも概ね同様の変動を示しているが、7月26、27、31日など前橋で高濃度となるが多かったことから、関東内陸では有機粒子の酸化が進行しているものと推察される。ピノン酸濃度については、九段>前橋>加須と地点差が見られた。28日には九段で最も高い濃度が観測された。このとき九段ではO<sub>3</sub>濃度が100 ppbの高い値となっており(図19)、BSOA生成が盛んであったと推察される。一方で30日など、郊外地

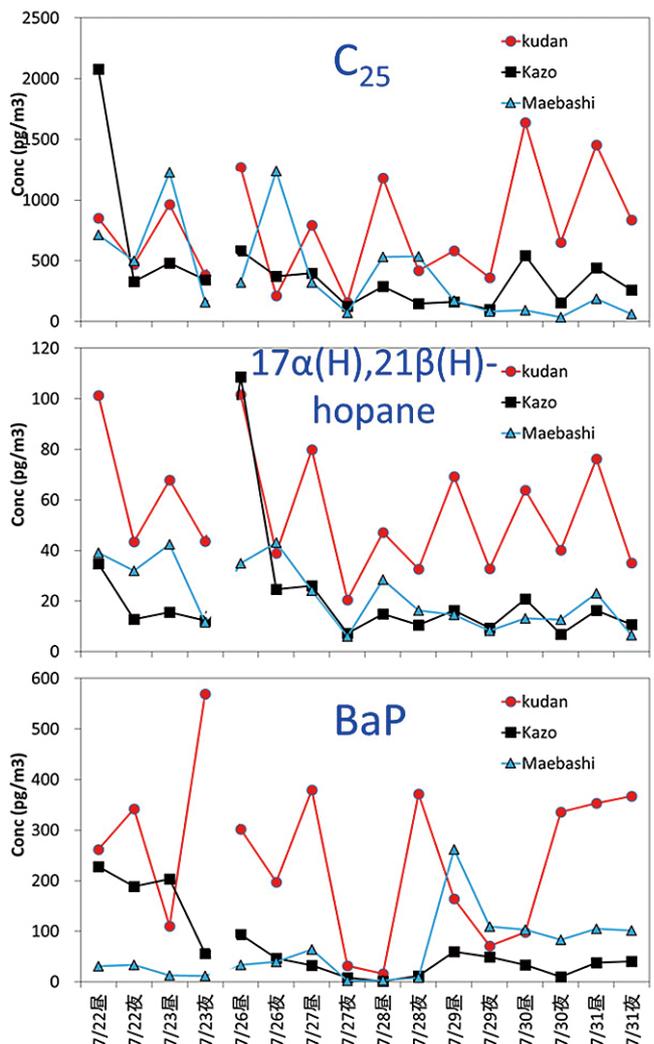


図22 C<sub>25</sub>*n*-alkane, 17α(H), 21β(H)-hopane, BaPの経時変化

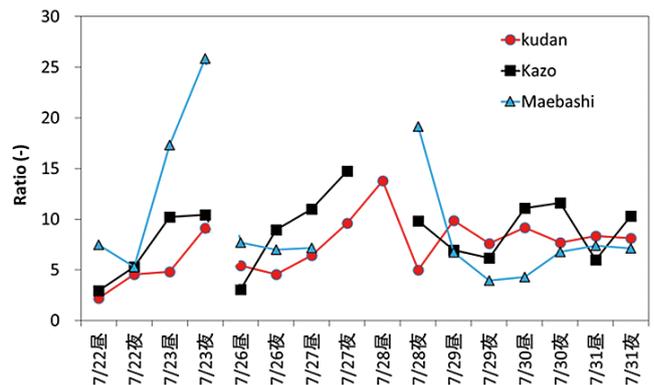


図23 9,10-AnthraquinoneとAnthraceneとの濃度比の経時変化

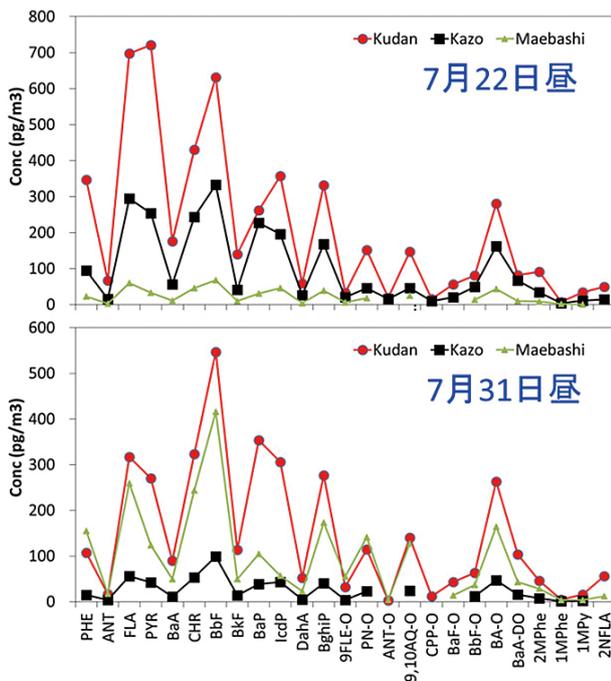


図 24 PAH 類の組成 (7 月 22 日昼, 7 月 31 日昼)

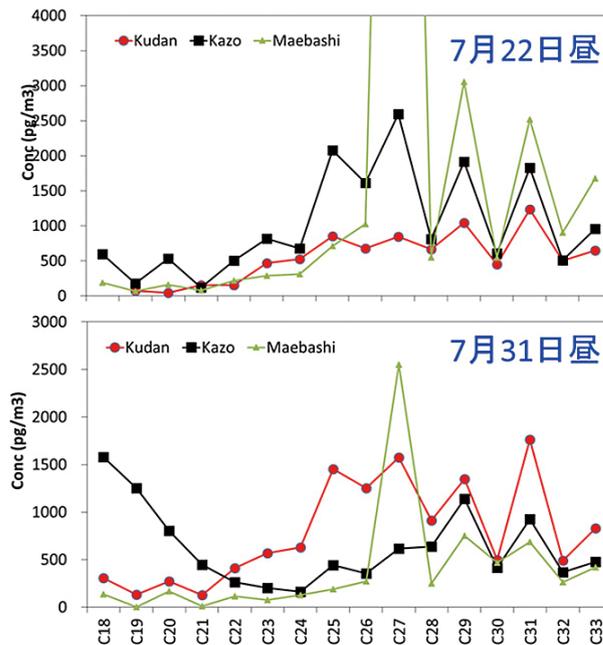


図 25 n-アルカンの組成 (7 月 22 日昼, 7 月 31 日昼)

点の前橋でも  $O_3$  濃度が高くなっているにも関わらず、ピノン酸濃度は都市地点の九段の方が高い値を示す日が見られた。この要因については現時点で明らかではないが、地点近傍における前駆物質の発生源の分布状況が影響している可能性が考えられる。

レボグルコサン濃度については、3 地点の中では加須が最も高かった。SOA マーカーに見られたような昼夜別の違いは見られなかった。同じ郊外地点の前橋とは挙動が異なっており、バイオマス燃焼による局地的な汚染の違いが反映されているものと考えられる。都市地点の九段では 3 地点の中では最も低い濃度で推移していた。

図 28 に OC とマロン酸およびピノン酸の相関図を示す。九段、加須、前橋における相関係数は、マロン酸でそれぞれ 0.66、0.57、0.91、ピノン酸で 0.80、0.77、0.87 といずれも強い正の相関が得られた。このことから、夏季では OC の増加要因として SOA 生成が大きく影響していると考えられる。ピノン酸とも相関が見られたことは、BSOA の寄与も示唆する。一方で、レボグルコサンと OC には相関がみられなかった。夏季においてはバイオマス燃焼由来の粒子は存在するものの、OC 増加の支配的な要因ではないと考えられた。

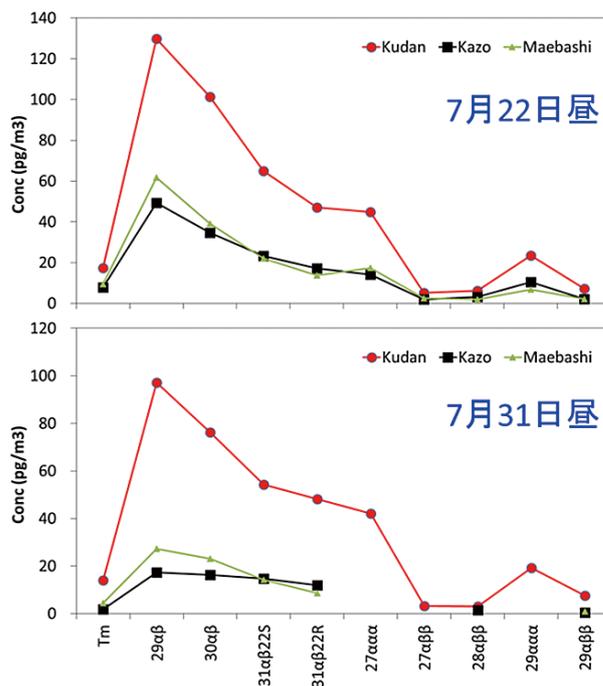


図 26 ホパン・ステランの組成 (7 月 22 日昼, 7 月 31 日昼)

### 2.2.7 大気中で捕集された粒子の毒性評価

疫学的調査により大気中微小粒子状物質が循環器や呼吸器疾患の発症や死亡率と相関することが示されている。大気中微小粒子状物質は元素炭素の他に有機炭化水素、硫酸塩、硝酸塩、重金属などによって構成されており、これらの

物質によって誘導される酸化ストレスが呼吸器・循環器系疾患を引き起こすと考えられている<sup>20)</sup>。一方、粒子状物質の主要成分で VOC から光化学酸化反応などで生成する SOA の健康影響に関する知見は少ない。そこで夏季の関東地方における PM<sub>2.5</sub> 中の SOA のエイジングに伴う組成や酸化度変化と毒性の関係についてあきらかにするために、捕集した PM<sub>2.5</sub> から抽出した水溶性抽出物を培養細胞に曝露して、転写因子 Nrf2 によって誘導される酸化ストレス応答酵素である HO-1 遺伝子の発現増加を指標として毒性評価を行った。

### 2.2.7.1 細胞培養と測定

テフロンフィルターに採取した PM<sub>2.5</sub> 試料に粒子重量で 1 mg/ml になるように純水を加えて、4℃で 15 分間超音波処理を行った後、0.22 μm フィルター濾過して PM<sub>2.5</sub> 水溶性抽出物を得た。対照物質として金属塩、ジカルボン酸、ジアルデヒド等の水溶液を作製した。実験にはラット由来不死化肺胞上皮株細胞 (SV40-T2 cell) を用いた。細胞をプラスチックディッシュに播種し、10%牛胎児血清入り DMEM 培地で 24 時間培養の後に実験に供した。PM<sub>2.5</sub> 水溶性抽出物を加えた後に浸透圧を調整した DMEM 培地中で 24 時間培養した細胞は Cell Counting Kit-8 (DOJINDO) を用いて細胞障害の指標となる細胞生存率を求めた。また、試料の粒子重量で 50 および 100 μg/ml PM<sub>2.5</sub> 水溶性抽出物を加えた培地を 3 時間曝露した細胞から RNA を抽出し、リアルタイム RT-PCR 法により HO-1 と炎症性ケモカイン (CXCL1) 遺伝子発現を測定して比較 Ct 法で相対定量評価した。活性酸素発生の測定は、細胞透過性の活性

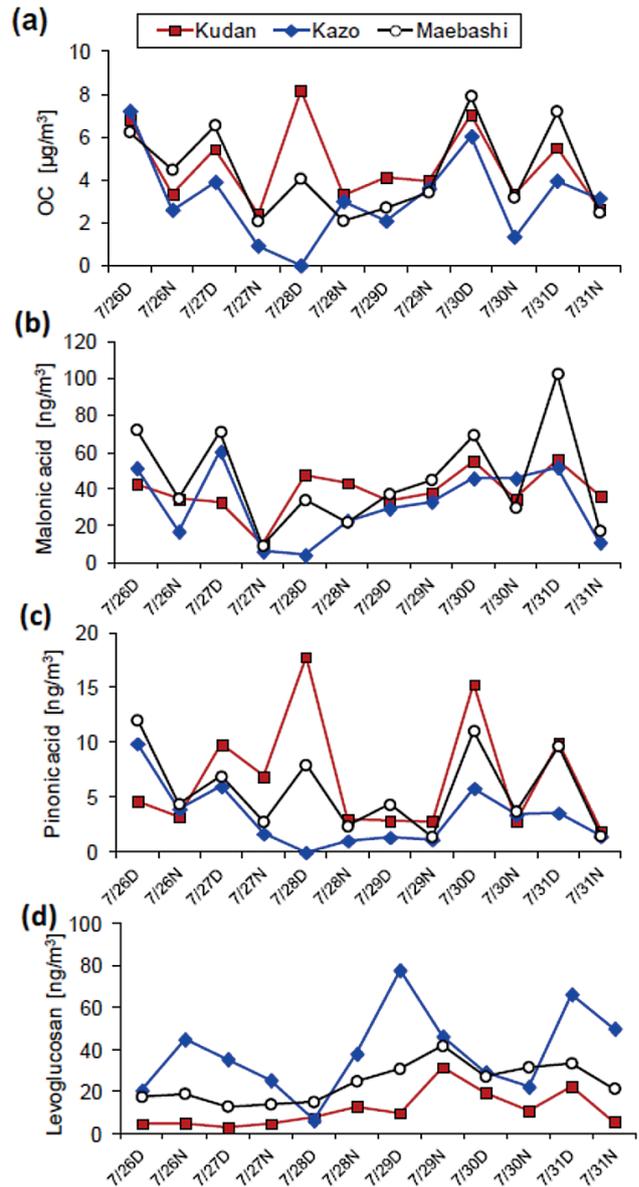


図 27 (a)OC, (b)Malonic acid, (c)Pinonic acid, (d) Levoglucosan 濃度の経時変化 (D: daytime, N: nighttime)

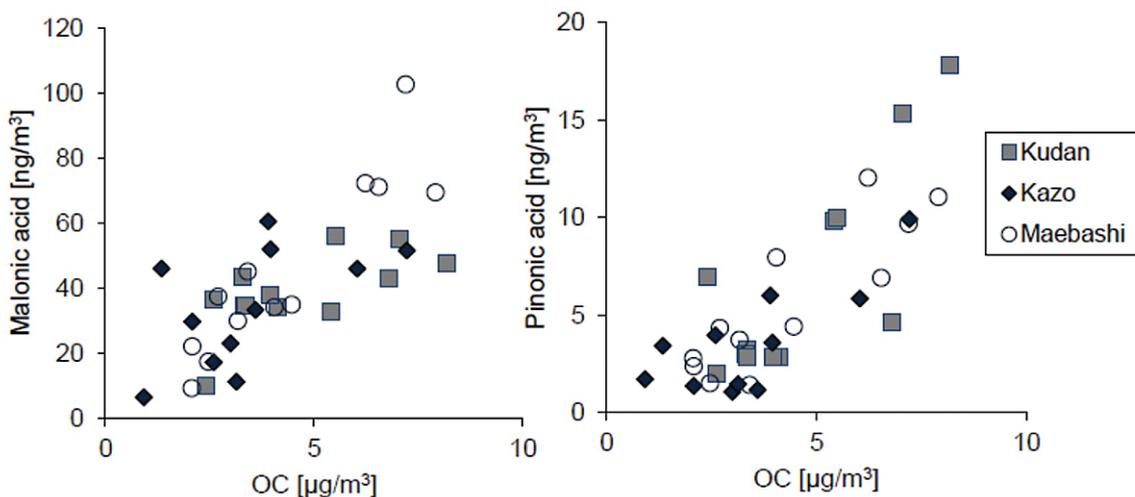


図 28 OC と malonic acid, pinonic acid との関係

酸素プローブ CM-H2DCFDA を細胞に取り込ませた後に PM<sub>2.5</sub> 水溶性抽出物を 1 時間曝露した細胞からの活性酸素発生量を蛍光強度で測定した。

### 2.2.7.2 結果と考察

PM<sub>2.5</sub> は金属や有機化学物質を含むが、夏季観測捕集粒子では硝酸塩やジカルボン酸などの酸化生成物等が増加しており、100 μg/ml の PM<sub>2.5</sub> 水溶性抽出物は pH4.2 から pH5.3 の弱酸性を示し、pH 変化はわずかであるが東京都九段、埼玉県加須、群馬県前橋の順で pH が低くなる傾向が認められたことから、内陸輸送過程で光化学酸化反応物がエイジングしている可能性があった。しかしながら SOA 生成の日変動に伴う昼夜のパターンは見られなかった。図 29 に九段、加須、前橋の PM<sub>2.5</sub> 大気中濃度あたりに換算した相対的な HO-1 遺伝子の誘導率を示す。PM<sub>2.5</sub> 水溶性抽出物曝露により HO-1 遺伝子発現が増加し、この HO-1 遺伝子発現は抗酸化剤である N-アセチルシステインの添加により抑制された。しかしながら、SOA 生成の昼夜のパターンと内陸輸送に伴うと考えられる変化は認められなかった。100 μg/ml の PM<sub>2.5</sub> 水溶性抽出物曝露による細胞生存率の顕著な低下も認められなかった。この酸化ストレスは、PM<sub>2.5</sub> 曝露により細胞内で発生する活性酸素により誘導されることから、活性酸素発生量を測定した。細胞からの活性酸素の発生は曝露により増加したが、日変動に伴う昼夜のパターンは認められず、HO-1 遺伝子の発現増加とも一致しなかった (図 30)。また、PM<sub>2.5</sub> は転写因子の NFκB を活性化して、炎症などに関与するサイトカインやケモカインを誘導することから、PM<sub>2.5</sub> 水溶性抽出物曝露による CXCL-1 遺伝子の発現を測定した。曝露による増加は認められたものの、HO-1 遺伝子の発現増加の傾向とは一致しなかった。

PM<sub>2.5</sub> 水溶性抽出物中には金属、硝酸塩、硫酸塩、ジカルボン酸等が含まれることから、これらの成分の酸化ストレス誘導への寄与について検討をおこなった。Ni、Zn、Cu、Pb などの金属で HO-1 遺伝子発現が誘導され、特に Ni や Zn で顕著であったことから、PM<sub>2.5</sub> 中のこれら金属成分が酸化ストレス誘導に寄与している可能性が示唆された。PM<sub>2.5</sub> 中に多量に存在する硝酸塩や硫酸塩の曝露による細胞への酸化ストレス誘導や細胞生存率への影響はごく低かった。また、光化学酸化反応で初期に生成するジアルデヒドであるグリオキサールやメチルグリオキサールは、低濃度で HO-1 遺伝子発現を顕著に誘導し、細胞生存率を低下させた。一方、より酸化の進んだシュウ酸、マロン酸、コハク酸などのジカルボン酸の曝露では細胞毒性は弱く、低い HO-1 遺伝子発現しか示さなかった (図 31)。グリオキサールなどのジアルデヒドは、光化学酸化反応だけでなく、広く有機物の酸化反応によって生成し、生体内で代謝過程においても産生される糖化最終産物の生成の中間代謝物である。吸入曝露により眼や呼吸器などの粘膜や皮膚に刺激性があり、タンパク、核酸、脂質などとも反応性が高く、遺伝毒性も示す。しかしながら、反応性が高いために大気中では速やかに酸化されるため、PM<sub>2.5</sub> 中での寄与は低いと推測される。さらに光化学反応により生成するシュウ酸などのジカルボン

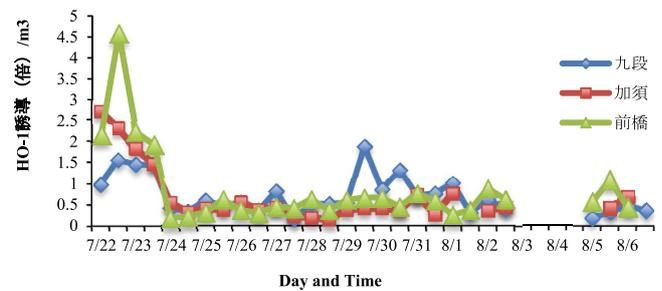


図 29 大気 1 m<sup>3</sup> あたり HO-1 誘導増加量変化

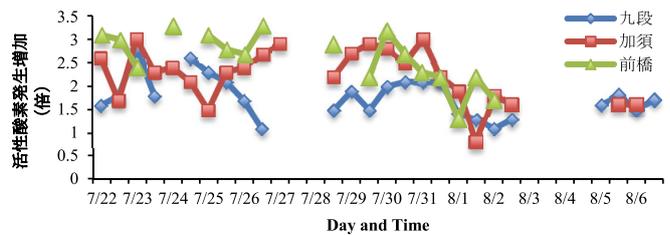


図 30 100μg/ml の PM<sub>2.5</sub> 水溶性抽出物曝露細胞からの活性酸素発生量変化

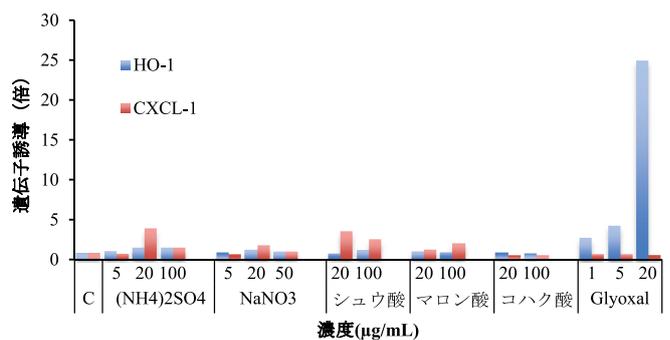


図 31 ジカルボン酸等を曝露した細胞の遺伝子発現誘導

酸は無視できない量存在する。酸化ストレス誘導は低いが眼や呼吸器などの粘膜に刺激性があり、CaやZnなどの二価金属と反応してさらに刺激性が強い不溶性の錯体を形成する。さらに、夏季観測捕集粒子PM<sub>2.5</sub>中のシュウ酸濃度とPM<sub>2.5</sub>水溶性抽出物曝露による酸化ストレス誘導増加は良く相関した(図32)。このことは、シュウ酸が生成する条件下において生成されるSOAが高い酸化ストレス誘導を持つ有機化合物を多く含んでいる可能性を示唆するものである。

以上の結果から、夏季観測捕集粒子PM<sub>2.5</sub>はSOAを多く含むものの、酸化ストレス誘導や細胞生存率への影響は比較的低いことから、SOAのエイジングが細胞毒性影響を増加させるとは限らないことが示された。酸化ストレスがPM<sub>2.5</sub>中の有機酸化物そのものより金属などにより誘導されたことは、循環器系疾患発症リスクとCuやNiなどの金属濃度との相関が高い疫学知見<sup>21,22)</sup>と一致していることから興味深い。酸化ストレスを指標とした場合にはSOA中のジカルボン酸などの酸化物は影響が低い、刺激性があることから毒性を示す健康に影響を及ぼす物質である。また、人為起源VOC(AVOC)と生物起源VOC(BVOC)のSOAへの寄与率も細胞毒性に影響を与える可能性がある。今回、PM<sub>2.5</sub>中の水溶性の低いPAHs等については水溶性抽出物の曝露では検討できていない。PAHニトロ化物等の曝露は細胞の酸化ストレス誘導や細胞毒性がより強いことも推測されることから、今後SOAの評価に有効な指標と曝露法の検討が必要である。

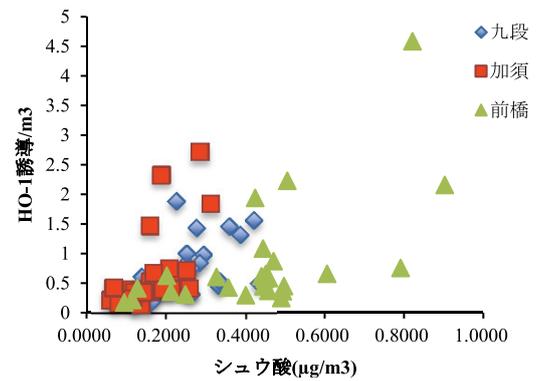


図32 PM<sub>2.5</sub>中シュウ酸濃度と細胞の酸化ストレス誘導の相関

#### 引用文献

- 1) 藤谷雄二, 佐藤 圭, 古山昭子, 伏見暁洋, 伊藤智彦, 田邊 潔, 平野靖史郎, 今村隆史, 高見昭憲 (2012) 二次生成有機エアロゾルの毒性評価を目指した小規模チャンバーによる粒子発生法評価, エアロゾル研究, 27, 350-356
- 2) Takegawa N., Mitakawa T., Kawamura K., Kondo Y. (2007) Contribution of Selected Dicarboxylic and ω-Oxocarboxylic Acids in Ambient Aerosol to the m/z 44 Signal of an Aerodyne Aerosol Mass Spectrometer, Aerosol Sci. Tech., 41, 418-437
- 3) Takami A., Miyoshi T., Shimono A., Hatakeyama S. (2005) Chemical composition of fine aerosol measured by AMS at Fukue Island, Japan during APEX period, Atmos. Environ., 39, 4913-4924
- 4) Takami A., Miyoshi T., Shimono A., Kaneyasu N., Kato S., Kajii Y., Hatakeyama S. (2007) Transport of anthropogenic aerosols from Asia and subsequent chemical transformation, J. Geophys. Res., 112, D22S31, doi:10.1029/2006JD008120
- 5) 国立環境研究所 (2012) 二次生成有機エアロゾルの環境動態と毒性に関する研究, 国立環境研究所研究プロジェクト報告, SR-101-2012, 75p.
- 6) Sato K., Hatakeyama S., Imamura T. (2007) Secondary Organic Aerosol Formation during the Photooxidation of Toluene: NO<sub>x</sub> Dependence of Chemical Composition, J. Phys. Chem. A, 111, 9796-9808.
- 7) Li N. et al. (2003) Ultrafine particulate pollutants induce oxidative stress and mitochondrial damage, Environ. Health Perspect., 111
- 8) Delfino R.J. et al. (2013) Airway inflammation and oxidative potential of air pollutant particles in a pediatric asthma panel, J. Expo. Sci. Environ. Epidemiol., 23
- 9) Charrier J.G., Anastasio C. (2012) On dithiothreitol (DTT) as a measure of oxidative potential for ambient particles: evidence for the importance of soluble transition metals, Atmos. Chem. Phys., 12

- 10) 兼保直樹 (2010) ハイボリューム・エアサンプラー用 PM<sub>2.5</sub> インパクター (HVI2.5) の開発, 大気環境学会誌, 45 (4), 171-174.
- 11) Chow J.C., Watson J.G., Crow D., Lowenthal D.H., Merrifield T. (2001) Comparison of IMPROVE and NIOSH carbon measurements, *Aerosol Sci. Tech.*, 34(1), 23-34.
- 12) 河村公隆 (2006) 大気中に存在する有機エアロゾルの組成分布と変質, 地球化学, 40, 65-82.
- 13) 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 (2011) 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), 156-163.
- 14) Fushimi A., Wagai R., Uchida M., Hasegawa S., Takahashi K., Kondo M., Hirabayashi M., Morino Y., Shibata Y., Ohara T., Kobayashi S., Tanabe K. (2011) Radiocarbon (<sup>14</sup>C) diurnal variations in fine particles at sites downwind from Tokyo, Japan in summer, *Environ. Sci. Technol.*, 45(16), 6784-92.
- 15) Morino Y., Takahashi K., Fushimi A., Tanabe K., Ohara T., Hasegawa S., Uchida M., Takami A., Yokouchi Y., Kobayashi S. (2010) Contrasting diurnal variations in fossil and nonfossil secondary organic aerosol in urban outflow, Japan, *Environ. Sci. Technol.*, 44(22), 8581-86.
- 16) Fushimi A., Hashimoto S., Ieda T., Ochiai N., Takazawa Y., Fujitani Y., Tanabe K. (2012) Thermal desorption - comprehensive two-dimensional gas chromatography coupled with tandem mass spectrometry for determination of trace polycyclic aromatic hydrocarbons and their derivatives, *J. Chromatogr. A*, 1252, 164-70.
- 17) Kojima Y., Inazu K., Hisamatsu Y., Okochi H., Baba T., Nagoya T. (2010) Influence of secondary formation on atmospheric occurrences of oxygenated polycyclic aromatic hydrocarbons in airborne particles, *Atmos. Environ.*, 44(24), 2873-2880.
- 18) Arey J., Zielinska B., Atkinson R., Winer A.M., Ramdahl T., Pitts J.N. (1986) The Formation of Nitro-Pah from the Gas-Phase Reactions of Fluoranthene and Pyrene with the Oh Radical in the Presence of NO<sub>x</sub>, *Atmos. Environ.*, 20(12), 2339-2345.
- 19) Chen W., Zhu T. (2014) Formation of nitroanthracene and anthraquinone from the heterogeneous reaction between NO<sub>2</sub> and anthracene adsorbed on NaCl particles, *Environ. Sci. Technol.*, 48(15), 8671-8.
- 20) Hirano S. et al. (2003) Oxidative-stress potency of organic extracts of diesel exhaust and urban fine particles in rat heart microvessel endothelial cells, *Toxicology*, 187, 161-170.
- 21) Niu J. et al. (2013) The role of metal components in the cardiovascular effects of PM<sub>2.5</sub>, *PLoS One*, 8(12): e83782.
- 22) Wang M. et al. (2014) Long-term exposure to elemental constituents of particulate matter and cardiovascular mortality in 19 European cohorts: results from the ESCAPE and TRANSPHORM projects, *Environ. Int.*, 66, 97-106

## 2.3 排出インベントリの改良

### 2.3.1 農作物残渣の屋外焼却（野焼き）による粒子の排出係数と化学組成

#### 2.3.1.1 はじめに

工場や自動車排ガス等への対策が進んだ結果、大気は年々きれいになってきた。しかし、大気中の微小粒子(粒径 2.5 μm 以下の粒子:PM<sub>2.5</sub>)は、2009 年に環境基準が設定されたものの、環境基準達成率は 32 % と低く (2010 年度、一般局)<sup>1)</sup>、その起源や環境動態の解明が急務である。PM<sub>2.5</sub> は各種の発生源から排出されるが、近年では稲わらなど農作物残渣の屋外焼却 (野焼き) により排出される粒子が PM<sub>2.5</sub> 濃度の 2 ~ 55 % を占めるなど、無視できない寄与をもつと推定されている<sup>2-4)</sup>。野焼きによる粒子の排出係数は残渣の種類や実験条件(含水率や着火位置等)によって変わるため<sup>5)</sup>、野焼きの影響を正確に把握するためには、日本の実態にあった残渣や実験条件での排出係数・組成の情報が必要である。しかし、我が国での測定例は少なく<sup>6)</sup>、国内の排出量推計<sup>7, 8)</sup>にも海外で測定された排出係数 (AP42<sup>5)</sup>) が用いられてい

る。そこで我々は、国内産の農作物残渣を焼却し、発生する粒子の量と組成を明らかにすることを目的とした。

### 2.3.1.2 方法

野焼き実験はつくば市にある農業環境技術研究所の畑地で行った。対象とした農業残渣は、岡山県児島湾干拓地産の稲藁・籾殻・大麦藁と北海道芽室町産の小麦藁である。ステンレス製 0.3 m<sup>3</sup> チャンバーをかぶせた土壌表面に自然乾燥させた残渣 200 g (籾殻は 100 g) を敷き、チャンバー内に屋外空気を流量 2 ~ 6 m<sup>3</sup>/min で供給し、風下側に着火した。チャンバー上部から出たダクトにステンレス管 (15 mm φ) を接続し、2 台のインパクター (AN-200、東京ダイレック、28.3 L/min) で粒径別 (> 7.0 μm、2.1 ~ 7.0 μm、< 2.1 μm) に試料を採取した。ただし藁の場合には粒子濃度が高いため、希釈器 (DEKATI, DI-1000) を用いて、フィルターで粒子を除いた屋外大気により 9.0 ± 0.2 倍に希釈してサンプリングした。インパクターのうち、1 台の捕集材には石英繊維フィルターを用い、秤量による粒子質量、光学補正・熱分離炭素分析計による炭素成分 (元素状炭素 EC、有機炭素 OC、全炭素 TC) の測定を行った<sup>9)</sup>。もう 1 台の捕集材にはポリカーボネートフィルタ (バックアップフィルタはテフロンフィルター) を用い、秤量、PIXE 法による元素分析、イオンクロマトグラフィによるイオン分析を行った<sup>10)</sup>。

### 2.3.1.3 結果と考察

石英フィルター試料において、藁の場合、粒子総質量の 90 % 以上を粒径 2.1 μm 以下の粒子 (PM<sub>2.1</sub>) が占めた。籾殻では PM<sub>2.1</sub> が 75 % を占め、粒径 2.1 ~ 7.0 μm の粒子が 24 % を占めた。藁は火炎をあげて短時間 (2 ~ 37 分間) で燃えつき、排気中 PM<sub>2.1</sub> 濃度は 25 ~ 94 mg/m<sup>3</sup> であった。籾殻は火炎を出さずゆっくり (30 ~ 85 分間) 燃え、排気中 PM<sub>2.1</sub> 濃度は 1.7 ~ 3.8 mg/m<sup>3</sup> であった。

図 33 に PM<sub>2.1</sub> の成分別排出係数を示す。測定した成分の総量は粒子質量の 63 ~ 92 % であった。どの残渣の場合も炭素成分 (主に OC) が最も高濃度であった。ただし、小麦藁と籾殻では炭素成分が支配的なのに対して、稲藁と大麦藁ではイオンの比率が相対的に高かった。EC/TC 比は藁が 5.3 ~ 32 %、籾殻が 1.2 ~ 5.1 % であり、炭化しやすい OC が TC の比較的大きな割合 (6.1 ~ 16 %) を占めた。野焼きの指標としてよく用いられる K<sup>+</sup> の粒子中濃度は 0.54 ~ 19 % (平均 6.3 %) と残渣の種類によって大きく異なった。他のイオン・元素としては、Cl<sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Si の排出係数が高かった。このように残渣の種類や産地によって粒子の組成が大きく異なることが明らかになった。

PM<sub>2.1</sub> の排出係数は残渣の種類・産地によって最大 7 倍程度異なることがわかった (図 33)。同じ残渣・実験条件であれば再現性は比較的良好であった。例えば稲藁の PM<sub>2.1</sub> 排出係数は風量を変えても 2.66 ± 0.49 g/kg (n = 4) であり変動係数は 18 % であった。一方、残渣の含水率を約 20 % に高めると排出係数は増加し、稲藁では 3.2 倍になった。このように、PM<sub>2.1</sub> 排出係数は実験条件によって変わるが、稲藁と小麦藁に関する AP42 の報告値は本実験値の範囲内であった。よって、これらの残渣について AP42 の値を日本で用いても大きな問題はないと思われる。一方、本実験による大麦藁の排出係数は AP42 の値の半分程度であった。よって、残渣の種類や産地、燃焼条件によって排出係数や組成が大きく変わり得ることは排出インベントリにおいて考慮すべきと思われる。

### 謝辞

本研究は農林水産省プロジェクト研究「農業分野における温

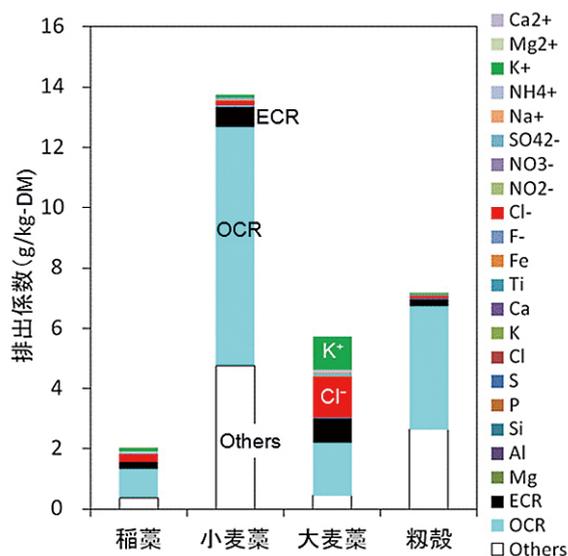


図 33 野焼き排出微小粒子 (PM<sub>2.1</sub>) の主要成分の排出係数

(含水率約 10 %, 風量 4 m<sup>3</sup>/min. DM: 乾燥させた農作物残渣. イオンと元素の両方で測定した成分はイオンとしての存在量を元素分析値から減算)

暖化緩和技術の開発」の支援をうけ、農業環境技術研究所の林健太郎博士、須藤重人博士、小野圭介博士、梶浦雅子博士と共同で実施した。ここに謝意を表す。

## 2.3.2 直噴ガソリン車からの粒子排出

### 2.3.2.1 はじめに

乗用車の低燃費化は、地球温暖化対策として急務の課題であり、低燃費のハイブリッド車やディーゼル乗用車等がこれまで市場に投入されてきた。しかし、これらの車両は一般的なガソリン車に比べて車両価格が高く、大量に普及させることは難しい状況にあった。そのため、ガソリン車の低燃費化についても研究開発が進められ、ハイブリッド車と同等の燃費性能を示す筒内直接燃料噴射式のガソリン車（直噴ガソリン車）が、近年、欧州の市場に投入され始めた。直噴ガソリン車は、日本でも急速に普及しはじめ、2012年には日本のメーカーから発売された主な新型エンジンの約4割に採用されている<sup>11)</sup>。

直噴ガソリン車は、良好な燃費性能を示す一方、従来のガソリン車（ポート噴射ガソリン車）では問題視されなかった粒子状物質（PM）の排出が確認された<sup>12)</sup>。日本では自動車から排出される粒子個数についての規制はないが、欧州では直噴ガソリン車に対する粒子個数の排出規制が2014年に開始された。

直噴ガソリン車からのPMの排出については、欧州での粒子規制に対応した研究は行われてきたが、大気環境への影響や毒性を考えるうえで重要な化学組成に関する研究や、粒子の排出抑制策を検討する際に欠かせない粒子の起源に関する研究はあまり報告されていなかった。

このような状況をふまえ、市場に投入され始めた最近の直噴ガソリン車を対象に、PMの排出量や粒径分布、化学組成等を明らかにすることを目的に研究を進めた。また、化学組成に基づき粒子の起源（ガソリン燃料、エンジンオイル、他）についても考察した。

### 2.3.2.2 方法

2011年式の直噴ガソリン乗用車2台（国内及び欧州メーカー製各1台）と、比較のため2007年式ポート噴射ガソリン車（国産直噴ガソリン車と同じ車種）の計3台を対象とした（表5）。排出ガス試験は、国立環境研究所低公害車実験施設を用いて、都市内の加減速走行を模擬した走行条件である公定法のJC08モードを中心に試験、解析を行った。具体的には、(1) 排出される微小粒子の個数と粒径分布の測定、(2) 粒子重量の計測、(3) 化学組成（炭素成分、元素、イオン、有機成分）の分析を行うとともに、(4) 国産直噴ガソリン車については粒径別に捕集と組成分析を行い粒子の起源を考察した<sup>13-16)</sup>。

表5 対象車両の諸元

	国産ポート噴射 ガソリン車	国産直噴 ガソリン車	欧州産直噴 ガソリン車
燃料噴射方式	ポート噴射	直噴	直噴
吸気方式	自然吸気	自然吸気	過給
燃料	レギュラーガソリン	レギュラーガソリン	プレミアムガソリン
エンジンオイル	0W-20	0W-20	5W-30
排気量 (L)	1.348	1.298	1.197
試験時点の 総走行距離 (km)	106,000	8,000 (PM <sub>2.5</sub> 試料) 21,000 (粒径別試料)	11,000
年式	2007	2011	2011
排出ガス規制	平成17年規制(新長期規制)75%低減(四つ星)		

### 2.3.2.3 結果と考察

ガソリン乗用車3車種を対象とした粒子個数と粒径分布の測定、及び粒径 $2.5\ \mu\text{m}$ 以下の微小粒子( $\text{PM}_{2.5}$ )試料の測定・分析の結果、以下のことが明らかとなった。

(1) 国産直噴ガソリン車からの粒子個数の排出係数は、ポート噴射ガソリン車の10倍以上であった(図34)。欧州産直噴ガソリン車は、国産直噴ガソリン車の約5倍とさらに排出個数が多くなっていた。参考までに、粒子個数の排出係数を欧州の規制値と比較すると、直噴ガソリン車(国産及び欧州産)は、2017年実施予定の規制値を上回っており、欧州産直噴ガソリン車は2014年実施予定の規制値に近い値であった。なお、どの車両も、ディーゼル車の場合に問題視されていた粒径 $30\ \text{nm}$ 付近の、いわゆる「ナノ粒子」の排出は少ないことが確認された。

(2) 粒子重量の排出係数についても、直噴ガソリン車(国産車、欧州産車)はポート噴射ガソリン車より多い

が、希薄燃焼方式の直噴ガソリン乗用車に対する国

内規制値よりは低い値であった(図35)。なお、排気後処理装置のないディーゼル乗用車は、粒子重量も個数も欧州規制値(ガソリン車、2014年～)を上回るが、微粒子捕集フィルタ(DPF)付ディーゼル乗用車では粒子重量も個数も欧州規制値(ガソリン車、2017年～)を下回っている。

(3) 粒子の主成分は元素状炭素(いわゆるスス)であり、国産ポート噴射ガソリン車では粒子重量の約7割、国産直噴ガソリン車では約8割、欧州産直噴ガソリン車では約9割以上を元素状炭素が占めた(図36)。

(4) 国産直噴ガソリン車からの排出粒子を粒径別に分析した結果、粒子中の有機炭素(炭化水素)や元素に対して、エンジンオイルの寄与は10~30%程度であり、大半はガソリン燃料(未燃または燃焼生成物・熱分解物)起源と推定された。よって、粒子の主成分である元素状炭素に対してもガソリン燃料の寄与が大きいと推測される。

### 2.3.2.4 まとめと今後の課題

直噴ガソリン車から排出される粒子は元素状炭素が主体であることが明らかになり、その主な起源は燃料

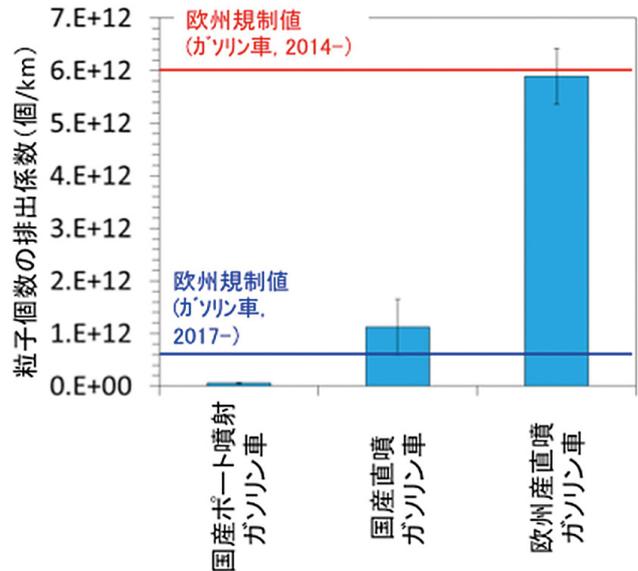


図34 直噴ガソリン車とポート噴射ガソリン車の粒子個数の排出係数

(ただし、計測条件が異なるために欧州規制値は参考程度の意味しかない)

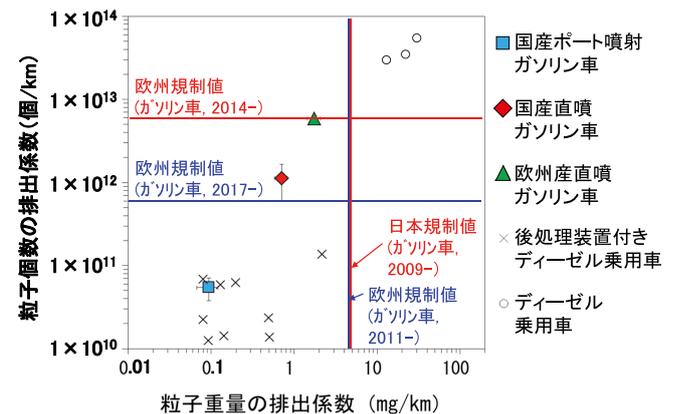


図35 直噴ガソリン車、ポート噴射ガソリン車、ディーゼル車からの粒子個数・粒子重量の排出係数

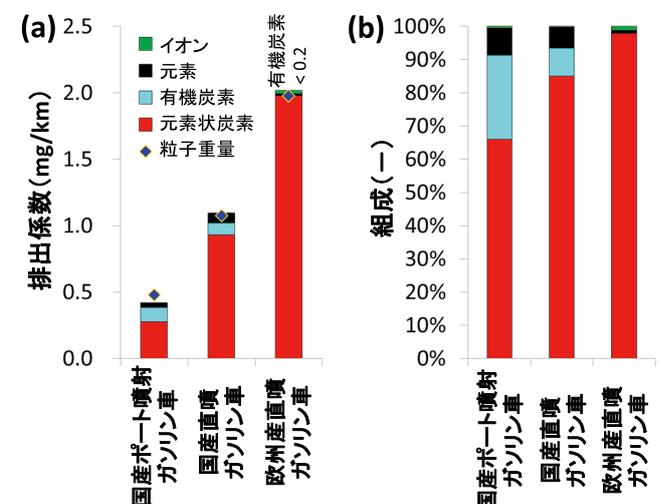


図36 直噴ガソリン車とポート噴射ガソリン車の (a) 粒子質量の排出係数と (b) 化学組成

であるガソリンからと推察された。よって、燃料起源の元素炭素をいかに減らすかという視点で対策を講じることが排出粒子の削減に重要と言える。我々は、環境影響を未然に防止する観点から、様々な車両や運転条件、環境条件、燃料での排出実態の把握、環境影響や健康影響の評価、排出抑制対策等に関する研究や取り組みが重要だと考えている。さらに、ガソリン車やディーゼル車から大気中に直接粒子の状態では排出される物質だけでなく、ガスの状態で排出された後、化学反応によって粒子化する二次生成粒子についても、最新の知見に基づいた環境影響の評価、より精度の高い排出インベントリの作成に向けて研究を進めていく予定である。

## 謝辞

株式会社掘場テクノサービスの今野秀徳氏には、シャシーダイナモ試験の実施および結果データの精度管理に多大な貢献を頂いた。ここに記して謝意を示す。

### 2.3.3 時刻別活動量推計手法の開発－火力発電所における時刻別排出量比の推計

#### 2.3.3.1 はじめに

大気汚染物質の分布予測のため化学輸送モデルによる解析が広く用いられている。メソスケール領域（都市域から国域程度の領域）における精緻な化学輸送モデル構築のためには、1時間単位に細密化された排出インベントリを用いることが有用である。

JEI-DB<sup>17)</sup>に代表される排出インベントリの作成において、一定期間（1年あるいは1カ月単位）で集計された社会統計や経済統計を利用して一定期間の総排出量を推定し、1時間単位の排出量を推定するために適切な排出量比を用いて配分することが一般的である。しかしながら、季節や地理的特性などの外的要因を考慮しない集計値を一律に外挿している（以後の図38中の「JEI-DB」を参照）ことが多く、実際の活動量の分布を反映しているのか改善の余地が残されていると考えられる。

本章では、火力発電所の稼働量を事例として、より正確に時刻別活動量比（時刻別排出量比）を推計するための知見を報告する。

#### 2.3.3.2 分析対象

- (1) 火力発電所は、JEI-DBによるとPM排出量寄与率が高いこと
- (2) 1時間毎の需給電力量データが公開されていること<sup>18)</sup>
- (3) 需給電力量に占める火力発電相当分が推測できること<sup>19)</sup>

から、時間別排出量比推計の事例として東京電力操業火力発電所の稼働量を対象とした。

#### 2.3.3.3 需給電力量が既知の場合

発電方式別の需給電力が図37に示すような構成であることを前提に、発電方式別に稼働量の変動を考える。火力発電（ガス、石油、石炭）のうちガス火力および石油火力では稼働量の変動するとみなし時刻別排出量比を推計した（石炭火力は稼働量が一定とみなすので推計しない）。

##### (1) 方法

- ア) 東京電力「過去の電力使用実績」<sup>18)</sup>から需給電力量の1時間値を取得した。
- イ) 資源エネルギー庁「電力調査統計」<sup>20)</sup>の「2- (5) 発電実績（一般電気事業者）」から汽力方式など発

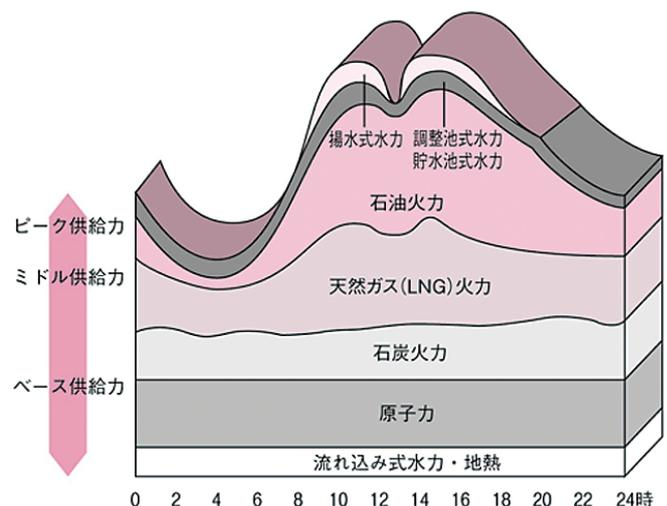


図37 1日の需給電力の電源構成<sup>3)</sup>

電方式別の月別供給力（自社発電を含む）を、「4-（1）汽力発電（一般電気事業者）」から石炭火力の月別発電量を以下の式で算出した（表6）。

$$\text{月別発電量} = \text{石炭消費量（湯炭）} \times \text{発熱熱量（湯炭）} \times \text{熱効率} 0.45$$

ウ) ガス火力および石油火力による発電量は、汽力方式の発電量と石炭火力の発電量の差分から算出した（表6の「汽力火力（石炭以外）」、「汽力火力（石炭）」）。

エ) ウ) で算出した汽力発電（石炭）、原子力、時流式（流れ込み式）水力、他社受電を時間変動しないベース供給力とみなし、発電量の1時間値を算出した（表6の右列）。揚水発電などは発電量が小さいため考慮しなかった。

オ) ア) とエ) の差分をガス火力および石炭火力発電の稼働量比とし、1時間単位排出量比とした。

## (2) 結果と考察

算出された2010年の1時間単位排出量比（年間排出量を1とした場合）の9月分を図38に示した。従来値であるJEI-DBと比較して火力発電の稼働状況を反映した値が算出されたと考えられる。1日の24時間変動に着目すると、経済活動が盛んで、かつ、高温のためエアコンの稼働量が高くなる日中では火力発電所の稼働量も高く見積もられた。日変動に着目すると、9月初頭では残暑の影響でエアコンの稼働量が高く、従来値に比べ火力発電所の稼働量も高い。9月末では暑さがやわらいだ影響でエアコンの稼働量が低く、従来値に比べ火力発電所の稼働量も低い。

### 2.3.3.4 需給電力量が未知の場合

#### (1) 方法

ア) 以下に示す線形重回帰分析を行い、回帰係数を求めた。

従属変数：東京電力需給電力量の1時間値<sup>18)</sup>

説明変数（表7）：不快指数（東京）、曜日・祝祭日、時刻に対応する {0,1} 値

表6 発電方式と燃料種別による電力内訳<sup>20)</sup>  
(東京電力 2010年9月)

	月値 (MWh)	1時間値 (MWh)
全供給力	27,419,579	
揚水用動力	-537,748	
貯水池式水力	94,341	
揚水式水力	285,737	
汽力火力(石炭以外)	14,751,333	
汽力火力(石炭)	801,914	1,114
内燃力火力	16,554	
原子力	6,689,668	9,291
自流式水力	655,411	910
風力	49	
地熱	1,274	
他社受電	4,661,046	6,474

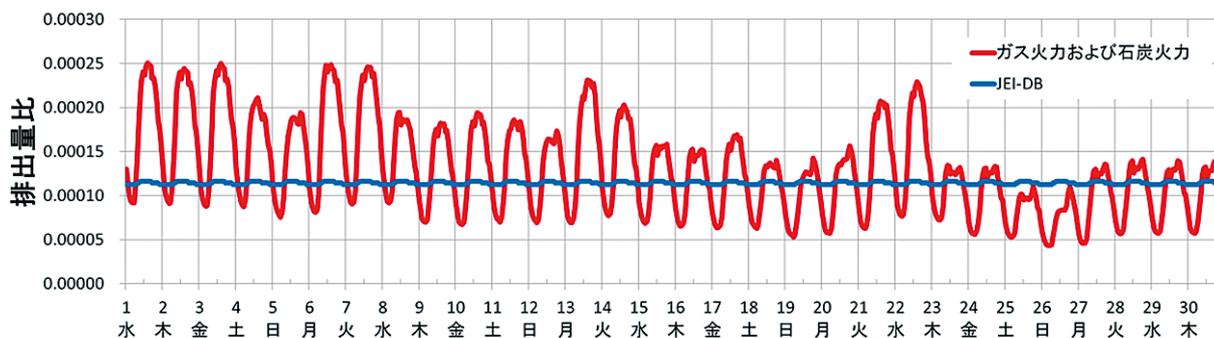


図38 ガス火力および石炭火力発電による1時間単位の排出量比  
(年間排出量を1とした値、東京電力、2010年9月)

回帰モデル：線形重回帰

変数選択：ステップワイズ法（有意水準 10 %）、変数増減法

学習期間：2008 年 1 月 1 日 0 時～ 2009 年 12 月 31 日 23 時（JST）

予測検証期間：2010 年 1 月 1 日 0 時～ 2010 年 12 月 31 日 23 時（JST）

イ) ア) で推計した回帰係数を用いて、予測検証期間における電力需給量の 1 時間値を推計した。

$$\text{需給電力の1時間値} = \text{切片値} + \sum_{i=1}^M \{\text{回帰係数}(i) \times \text{説明変数}(i)\}$$

ウ) 適合度合の評価のために、決定係数  $R^2$  の他に、

$$\text{再現率} = \frac{\sum_{i=1}^N \{\text{実績値}(i) - |\text{残差}(i)|\}}{\sum_{i=1}^N \text{実績値}(i)}$$

表 7 説明変数と需給電力量に対応する要因

	説明変数 { 0, 1 }	対応する要因
曜日・祝祭日	月曜日、火曜日、水曜日、木曜日、金曜日、土曜日、日曜日、祝日、連休中日曜日、連休中祝日、正月、年末、盆	経済活動量
平日時刻	0時～23時	工場の稼働量、人の行動
休日時刻	0時～23時	工場の稼働量、人の行動
不快指数 (16区分)	43未満、43～45.7、45.7～48.4、48.4～51.1、51.1～53.8、53.8～56.5、56.5～59.2、59.2～61.9、61.9～64.6、64.6～67.3、67.3～70、70～72.7、72.7～75.4、75.4～78.1、78.1～80.8、80.8以上	エアコンの稼働量

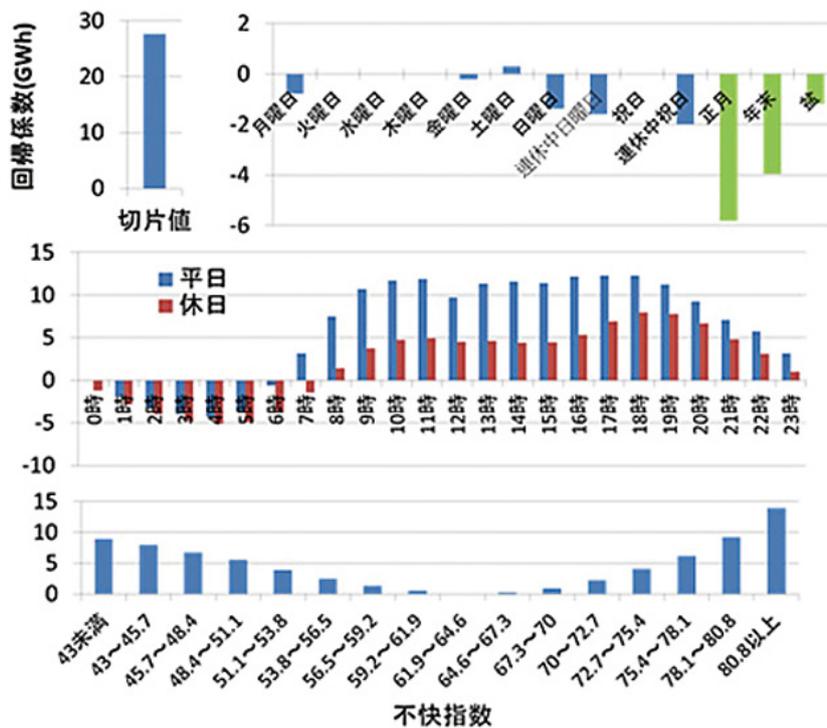


図 39 回帰係数

を定義して、学習期間と予測検証期間に対して検証した（交差検定）。

エ) 2.3.3.3の方法を用いて時刻別排出量比を推計した。

## (2) 結果と考察

ア) 図 39 に算出された回帰係数を示した。説明変数を  $\{0, 1\}$  とした回帰係数は従属変数（需給電力量の 1 時間値）を増減させる数量である。各説明変数間の交絡が小さいと考えれば説明変数が 1 のときに及ぼす影響の大きさを表すとみなせる。曜日・祝祭日により経済活動量に対応する需給電力量に及ぼす影響の大きさの違いが認められた。同様に、休日・平日別の 24 時間により電力を消費する工場の稼働量や人の行動に対応する違いが認められた。不快指数（高いと暑く、低いと寒い）からエアコンの稼働量に対応する違いが認められた。

イ) 図 40 に、推計された需給電力量の 1 時値（推定値）と実績値の 9 月分を示した。

ウ) 回帰モデルの適合度合は、

学習期間では、決定係数  $R^2 = 0.924$ 、再現率 = 0.958

予測検証期間では、決定係数  $R^2 = 0.931$ 、再現率 = 0.958

だった。学習期間と比較して予測検証期間の適合度合が下がっておらず、十分な精度で再現性のあるモデルが構築されたと言える。モデル構築のための十分なデータがあれば、線形重回帰分析は時刻別排出量比の算出に有用であることが確認されたと言える。

エ) 2.3.3.3 と重複するので省略する。

### 2.3.3.5 まとめと展望

2.3.3.3 で例示したように十分な社会・経済統計があり、2.3.3.4 で例示したように十分な過去分稼働量データがあれば、将来期間に対して時刻要因や気象要因に依存する稼働量を推計し、排出インベントリの構築に有用な値を推計できることが認められた。火力発電所のほか、気象要因に依存する溶剤蒸発量、肥料施肥による  $\text{NH}_3$  の発生量、自動車のエバポ排出量などでも、排出量比の推計に適用可能と考えられる。その他、より多くのセクターに適用することで、排出インベントリ式の精度向上が見込まれる。

本手法により作成された排出インベントリは、データが欠損している期間のほか、主に将来期間に対しての適用が想定される。将来期間の気象や社会・経済状況に対応して排出量変動する“動的な排出インベントリ”として、大気汚染物質予報システムに利用され予報精度の向上に寄与すると期待される。

### 2.3.4 大気汚染物質排出量推計システムの開発

本研究所では過年度から、自動車と石油業界の共同研究プログラム JCAP（Japan Clean Air Program）および、その後継の JATOP（Japan Auto Oil Program）と共同で、化学輸送モデルへの入力値を出力する排出量推計システム G-BEAMS<sup>21</sup> の開発を行ってきた。現在、G-BEAMS を用いて推計された排出インベントリ「JEI-DB」は、一般に公開

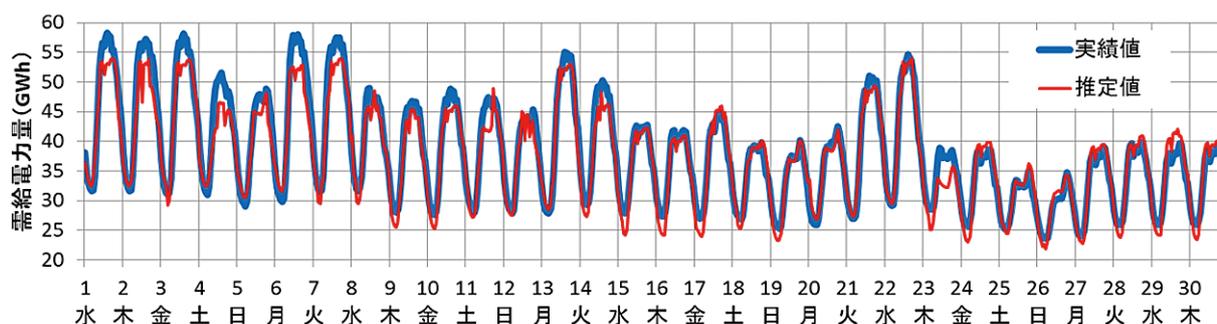


図 40 重回帰モデルによる推測値と実績値（2010 年 9 月）

され、自治体や化学輸送モデルを扱う研究者に広く使用されている。排出インベントリは多岐にわたる数多くの発生源を網羅する必要があることから、今後、排出インベントリの改良を進める上で、排出量推計システム G-BEAMS のユーザを増やし、自治体や産業界等を含む多くの関係者からの情報を集約していく必要があると考えられる。しかしながら、現行システムはデータ構造の把握や操作方法にユーザの負担が多く、新規ユーザの参入に障害となっている。

このような背景を踏まえ、G-BEAMS の設計思想である①推計手法の透明化、②推計条件の再現性確保を踏襲する「大気汚染物質排出量推計システム」の開発を行っている。多くのユーザが利用可能となるように、G-BEAMS で十分でない①データ入力 of 簡素化、②適切なログ出力、③エラーメッセージ出力、④再現計算の簡素化、⑤集計計算の自動化、⑥タスクの自動実行を実装している。

また、ユーザのシステム導入時費用を抑えるため、GUI にはフリーソフト (Apache) で動作する Web 画面を、データベースサーバにはフリーソフトの MySQL を採用した。次年度以降、UNIX 上の化学輸送モデルによる解析と連動させることも想定したシステム構築を目指している。

## 引用文献

- 1) 環境省, 平成 22 年度大気汚染状況について, 報道発表資料 2012, <http://www.env.go.jp/press/press.php?serial=14869>.
- 2) 萩野浩之, 小瀧美里, 坂本和彦 (2006) さいたま市における初冬季の微小粒子中のレボグルコサンと炭素成分, エアロゾル研究, 21 (1), 38-44.
- 3) 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 (2011) 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), 56-163.
- 4) Morino Y, Takahashi K, Fushimi A, Tanabe K, Ohara T, Hasegawa S, Uchida M., Takami A, Yokouchi Y., Kobayashi S. (2010) Contrasting diurnal variations in fossil and nonfossil secondary organic aerosol in urban outflow, Japan, Environ. Sci. Technol., 44(22), 8581-86.
- 5) US, E. P. A., AP-42, Compilation of Air Pollutant Emission Factors, 1995.
- 6) Saito K., Muto H., Takizama Y., Kodama M. (1994) Concentrations of Various Elements and Inorganic-Ions in Rice Straw and Ash, Toxicol. Environ. Chem., 41(1-2), 15-20.
- 7) JCAP&JATOP, JCAPII 大気モデル統合化システムの公開について, 2007, [http://pecj.webdrop.net/japanese/jcap/airmodel/index\\_airmodel.html](http://pecj.webdrop.net/japanese/jcap/airmodel/index_airmodel.html).
- 8) Kannari A., Tonooka Y., Baba T., Murano K. (2007) Development of multiple-species 1km × 1km resolution hourly basis emissions inventory for Japan, Atmos. Environ., 41(16), 3428-3439.
- 9) Fushimi A., Hasegawa S., Takahashi K., Fujitani Y., Tanabe K., Kobayashi S. (2008) Atmospheric fate of nuclei-mode particles estimated from the number concentrations and chemical composition of particles measured at roadside and background sites, Atmos. Environ., 42(5), 949-959.
- 10) 齊藤勝美, 長谷川就一, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 高橋克行, 小林伸治, 田邊 潔, 若松伸司 (2011) 沿道大気中における微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) の化学成分特徴と経時的挙動, 大気環境学会誌, 46 (3), 164-171.
- 11) 迫川茂博, 志々目宏二, 安田竜一, 河口邦史, 齊藤憲法 (2013) 年鑑 12 ガソリンエンジン, 自動車技術, 67 (8), 93-101.
- 12) Kirchner U., Vogt R., Maricq M. (2010) Investigation of EURO-5/6 Level Particle Number Emissions of European Diesel Light Duty Vehicles, SAE Technical Paper, 2010-01-0789.
- 13) 近藤美則, 小林伸治, 伏見暁洋, 齊藤勝美, 藤谷雄二, 高見昭憲, 田邊 潔 (2013) 直噴ガソリン乗用車の粒子状物質排出特性 - 個数濃度と走行条件との関係 -, 自動車技術会 2013 年春季大会, 前刷集 85-13, 11-14, 433-

20135505.

- 14) 伏見暁洋, 齊藤勝美, 小林伸治, 近藤美則, 藤谷雄二, 高見昭憲, 田邊 潔 (2013) 直噴ガソリン乗用車の粒子状物質排出特性－粒径別化学組成と形態－, 自動車技術会 2013 年春季大会, 前刷集 85-13, 15-18, 434-20135506.
- 15) 小林伸治, 近藤美則, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 齊藤勝美, 高見昭憲, 田邊 潔 (2012) 直噴ガソリン乗用車の粒子状物質排出特性, 自動車技術会論文集, 43, 5, 1009-1014, 20124641.
- 16) 近藤美則, 小林伸治 (2012) 最新直噴ガソリン車の燃費改善効果, 自動車技術会 2012 年春季大会, 前刷集 50-12, 9-12, 243-20125227.
- 17) 一般財団法人石油エネルギー技術センター (2012) JATOP 技術報告書「大気改善研究自動車以外排出量推計」
- 18) 東京電力「過去の電力使用実績データ」, <http://www.tepco.co.jp/forecast/html/download-j.html>
- 19) 中部電力「一日の電気の使われ方と電源構成の関係」, [http://www.chuden.co.jp/corporate/publicity/datalist/juyo/dat\\_oneday/](http://www.chuden.co.jp/corporate/publicity/datalist/juyo/dat_oneday/)
- 20) 経済産業省資源エネルギー庁「電力調査統計」平成 21 年度, 平成 22 年度 2- (5) 発受電実績 (一般電気事業者) 4- (1) 汽力発電 (一般電気事業者), [http://www.enecho.meti.go.jp/statistics/electric\\_power/ep002/results.html](http://www.enecho.meti.go.jp/statistics/electric_power/ep002/results.html)
- 21) Nansai K., Suzuki N., Tanabe K., Kobayashi S., Moriguchi Y. (2004) Design of Georeference-Based Emission Activity Modeling System (G-BEAMS) for Japanese Emission Inventory Management, 13th International Emission Inventory Conference in Clearwater, Florida

## 2.4 数値モデルを用いた SOA 濃度計算

### 2.4.1 はじめに

PM<sub>2.5</sub> の中でも、有機エアロゾル (OA) は発生源や組成、化学生成・粒子変質過程などに未解明な点が多く、大気シミュレーションモデル (化学輸送モデル、CTM) で適切に再現することが困難である。OA の計算精度を向上させるため、近年様々な OA モデルが開発されて、CTM 計算に活用されている。本研究課題においてはチャンバー実験や実大気における OA の動態を再現するモデルを構築することを目的に、OA モデルの計算性能や特性を評価した。2.4.2 項ではモデル性能の初期評価を目的として、複数の OA モデルをボックスモデル上で計算して、その計算結果を観測結果と比較した。2.4.3 項ではチャンバー実験を基に、2.4.4 項では大気観測データを基に現在の OA モデルの計算性能を評価した。

### 2.4.2 OA モデルの相互比較

本研究では 5 種のモデル (表 8) を相互比較して、それらの計算精度を評価した。化学反応モジュールの大きな違いとして、SAPRC99 (Statewide Air Pollution Research Center version 99) と CACM (Caltech Atmospheric Chemistry Mechanism) では多種の揮発性有機化合物 (VOC) をサロゲート、或いはアグリゲートさせてグルーピングしているのに対して、MCM (Master Chemical Mechanism) では一次排出物質・二次生成物質とも多数の VOC をグルーピン

表 8 本研究で利用したモデル

モデル	SAPRC99 -AERO4	SAPRC99 -AERO5	SAPRC99 -VBS	CACM -MADRID2	MCM
気相反応メカニズム	SAPRC99	SAPRC99	SAPRC99	CACM	MCM v3.2
エアロゾルモデル	AERO4	AERO5	VBS	MADRID2	
成分数	79	88	105	188	
反応数	214	224	236	366	

げせずに計算していることが挙げられる。また、揮発性基底関数 (volatility basis-set, VBS) モデルでは、一次 OA (POA) の蒸発を考慮するため、揮発性の低い VOC (SVOC と IVOC) として排出させていること、及び酸化生成物のエイジング反応を計算していることが特徴であり、一次排出される SVOC と IVOC、及び VOC からの酸化生成物は飽和濃度  $C^*$  ( $0.01\text{--}10^6 \mu\text{g m}^{-3}$  の範囲) ごとにグルーピングされている。また MCM では、Estimation Program Interface-Suite (EPI-Suite) を用いて計算された飽和蒸気圧を基にガス粒子分配を計算しており、Johnson ら<sup>1)</sup> にならって、飽和蒸気圧を 500 分の 1 に補正した計算を標準計算とした。これらの OA モデルを含む 0 次元ボックスモデル (対象領域: 東京都中心部の  $30 \times 30\text{km}^2$  グリッド) を用いて、2004 年 7 月 22 日 - 8 月 14 日の期間における化学過程・エアロゾル過程・バックグランド空気塊との交換を計算した。排出された物質は境界層高度内で均一に混合すると仮定し、気象要素は観測値を用いた。排出量データは EAGrid2000 (East Asia Grid basis Emissions Inventory) を利用し、VOC の成分プロファイルは JATOP (Japan Auto-Oil Program) の自動車データと環境省の蒸発発生源データなどを用いた。

SAPRC99-VBS では、不揮発性の POA は与えず、SVOC・IVOC の発生源プロファイルは、Tsimpidi ら<sup>2)</sup> の設定にならった。比較対象データには、2004 年夏季に東大先端研キャンパス (東京都目黒区) でエアロゾル質量分析計などを用いて測定されたデータを用いた。

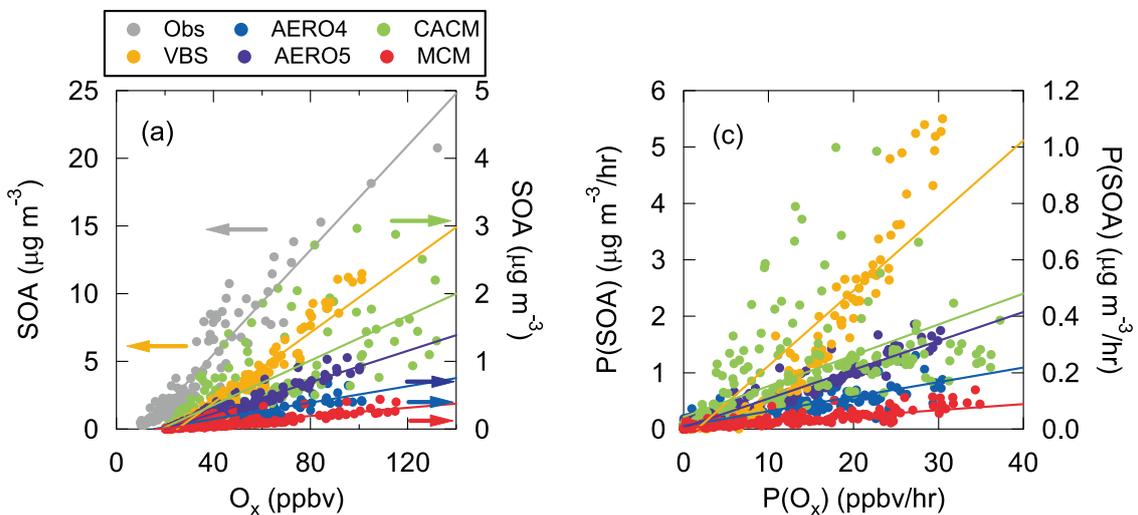


図 41 2004 年夏季の東京における SOA と  $\text{O}_x (= \text{O}_3 + \text{NO}_2)$  の濃度 (左) および生成速度 (右) の実測値とモデル計算値

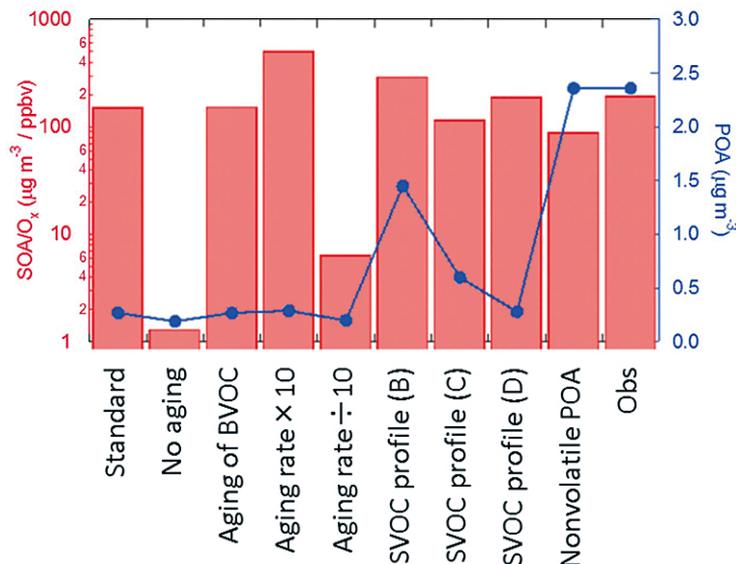


図 42 SOA/ $\text{O}_x$  比の計算設定・入力データとの関係

各モデルは、 $O_3$ ・窒素酸化物・OH ラジカル・VOC など気相成分の実測値を平均的に再現しており、またモデル間の差も比較的小さかった。それに対して、二次 OA (SOA) 濃度の計算結果はモデルごとに大きくばらついていた。SOA と  $O_x(O_3+NO_2)$  の比を指標として観測値とモデル計算結果を比較したところ、VBS モデルは実測値を比較的良く再現していたが、他のモデルは実測値を顕著に過小評価していた (図 41)。特に MCM で計算される SOA 濃度は他のモデルと比べて顕著に低いことから、今回の計算システムでは粒子相反応など重要な SOA 生成過程が抜けている可能性が示唆される (収率モデルでは、室内実験より収率を求めているので、これらの過程の一部は間接的に考慮されている)。他モデルと比べて SAPRC99-VBS で計算される SOA 濃度が高い理由は主にエイジング反応の寄与であることから、人為起源 VOC (AVOC) の酸化生成物のエイジングが SOA 生成に大きな寄与を持つ可能性が示唆された。

なお、図 42 に示した通り、VBS で計算される SOA・POA 濃度は、SVOC のエイジング速度や排出プロファイルなどの設定によって大きく変化する。そのため、これらの設定の精緻化・検証が重要な研究課題である。

### 2.4.3 OA モデルとチャンバー実験結果の比較

本項では、2.1.1 項に示したチャンバーを用いた  $\alpha$  ピネンの光酸化実験と OA モデルとの比較結果を示す。SOA モデルの基礎パラメータは主にチャンバー実験結果を基に設定されているが、様々な OA モデルが開発されている中で、それらのモデルがチャンバー実験結果を適切に再現するか評価した。本研究では、収率モデル (SAPRC99-AERO5)、SAPRC99-VBS モデル、MCM モデルを用いた。MCM、SAPRC99 とともに  $CH_3ONO$  が含まれていないため、下記の反応を追加した。なお、R1 の光解離定数は Taylor ら<sup>3)</sup> を基にした。



なお、MCM モデルでは、2 通りの手法で飽和蒸気圧を推計し、v1 では SPARC (Sparc Performs Automated Reasoning in Chcmistry) を、v2 では EPI-Suite の推計値を 500 分の 1 に補正した。また VBS モデルでは、v1 においては生物起源 VOC (BVOC) から生成された SVOC のエイジングを考慮せず、v2 においては SVOC+OH のエイジング反応を考慮した。

モデル検証に利用した  $\alpha$  ピネンの光酸化実験における初期濃度は、出発 VOC の  $\alpha$  ピネンが 200 ppbv、NO が 100 ppbv、OH 生成剤の  $CH_3ONO$  が 10 ppbv であった。また、実験開始約 3 時間後に  $CH_3ONO$  を 1000 ppbv 注入することで、いわゆるエイジング反応による SOA 生成挙動を評価している。2.1.1 項で示された通り、光照射後 1 時間で SOA が生成し始めて、 $CH_3ONO$  注入後にさらに SOA 生成されていることが分かる (図 43)。気体成分 (NO、 $NO_2$ 、 $O_3$ 、 $\alpha$  ピネン) の経時変動はいずれのモデルも概ね再現していた (図は省略)。一方、モデルで計算される SOA 濃度にはばらつきが大

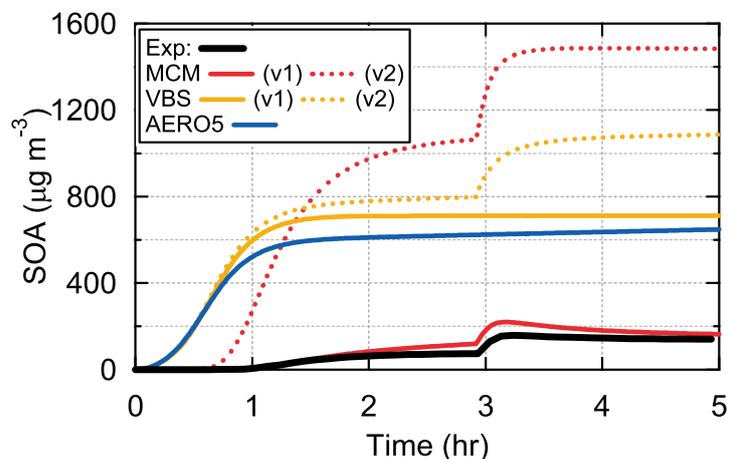


図 43 チャンバー実験における SOA 濃度の実測値とモデル計算値

大きく、MCM(v1)では濃度範囲を再現するが、他のモデルではSOA濃度を大きく過大評価していた。また、MCMとVBSモデルでは途中のエージング反応によるSOA生成を再現するが、収率モデルではこのSOA濃度増大を再現しない。VBSモデルにおいてもBVOC起源SVOCのエージングを考慮することが不可欠であることが分かる。

収率曲線を図44(左)に示した。MCM(v1)は光酸化実験での収率を再現していた。VBSやAERO5は今回の実験値を過大評価していたが、一方、 $\alpha$ ピネンのオゾン酸化実験で得られる収率曲線と整合的であった。従来、OAモデルで利用するモノテルペン類のSOA生成収率は光酸化実験とオゾン酸化実験で分けられていないが、適切に分離する必要がある。

揮発性分布を図44(右)に示した。MCMはやや広いピークを示したものの、概ねいずれのモデルも $C^* = 10 \sim 100 \mu\text{g m}^{-3}$ の飽和濃度を持つ、類似した揮発性分布を示した。これは、チャンバー実験の条件ではOA濃度が実大気と比べて高いため、比較的飽和濃度の高い成分も粒子化できていることを反映している。今後、実験結果を基にモデルを検証するとともに、蒸気圧推計の精緻化やオリゴマー化の考慮などによってモデルを改良する必要がある。

なお、VBSモデルでは、収率曲線から得られた量論係数を基に一次反応を計算して、さらに高次酸化反応としてエージングを考慮しているため、高次酸化反応をダブルカウントしている可能性が高い。ただ、初期酸化時(OA濃度 $750 \mu\text{g m}^{-3}$ 以下)には、エージング反応を考慮しないVBS(v1)とエージング反応を考慮したVBS(v2)との差がほとんどない(図44(左))。本実験条件ではエージング反応の影響は小さいことが分かる。ただ、高濃度の $\text{CH}_3\text{ONO}$ 導入後に図の傾きが大きくなっている。条件によって、エージング反応のSOA収率曲線への影響が大きく異なるため、今後網羅的な評価が必要である。また、収率モデルはエージング反応を再現しないのに対して、MCMモデルでは、エージングによるSOA濃度増大を再現した。今後、SOAのエージング反応の評価に有用であると期待される。

#### 2.4.4 OAモデルと大気観測結果の比較

本項では、実大気観測データを基にしたOAモデルの検証結果を示す。これまで、多地点での同時観測データを用いた $\text{PM}_{2.5}$ 成分のモデル検証は限られていたが、本研究では2.2節で示した夏季の関東地方における多地点同時観測データを用いることで、モデルの $\text{PM}_{2.5}$ 成分濃度再現性を詳細に評価した。OAモデルとしてSOA収率モデル(CB05-AERO6)とVBSモデル(CB05-AERO6VBS)を計算した。また、VBSモデルは標準事例(BVOC起源のSVOCのエージングを考慮しない、AERO6VBS-std)と感度事例(BVOC起源のSVOCのエージングを考慮し、 $\text{HNO}_3$ と $\text{NH}_3$ の乾性沈着速度を5倍、AERO6VBS-rev)の2事例を計算した。ベースモデルとして、気象モデルはWeather Forecast Research(WRF)v3.3.1、化学輸送モデルはCommunity Multiscale Air Quality(CMAQ)v5.0.2を利用した。また、排出インベントリとして、東アジア域ではRegional Emission inventory in ASia v2.1(REAS)v2.1、日本域ではJATOPを利用している。計

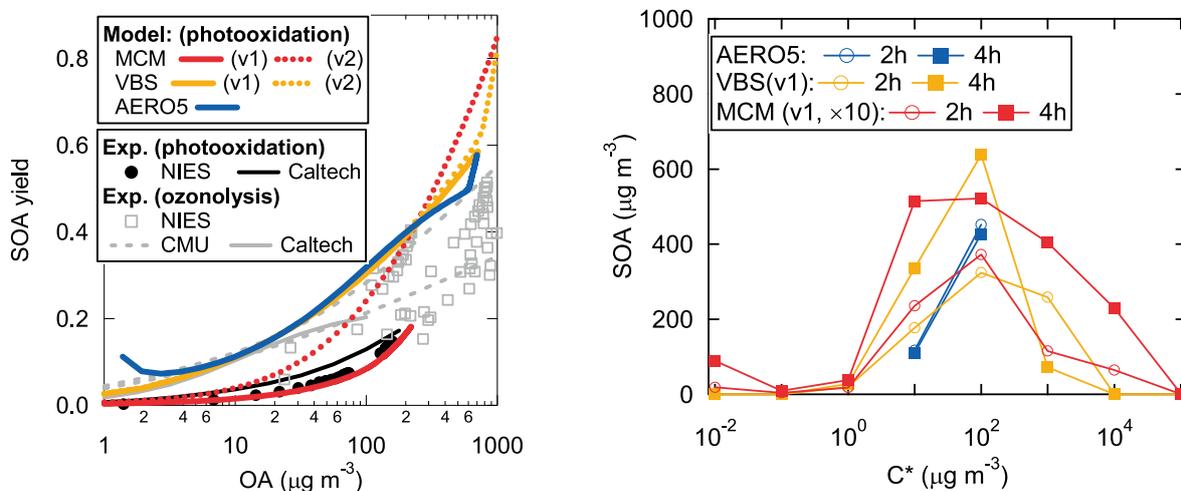


図44 (左) チャンバー実験におけるSOA生成収率の実測値とモデル計算値  
(右) 揮発性分布のモデル計算値

算領域は、東アジア域（水平分解能 60 km、135 × 135 グリッド）と日本域（水平分解能 15 km、115 × 135 グリッド）を 1-way ネスティングで結合し、日本域の計算結果を解析した。

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の時空間変動は 3 地点で良く再現されていた（図 45）。夏季に SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> を良く再現する傾向は、先行研究と整合的である。NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 濃度はいずれの地点においても標準計算では過大評価していた。NO<sub>3</sub><sup>-</sup> は支配要因が複雑であり、その要

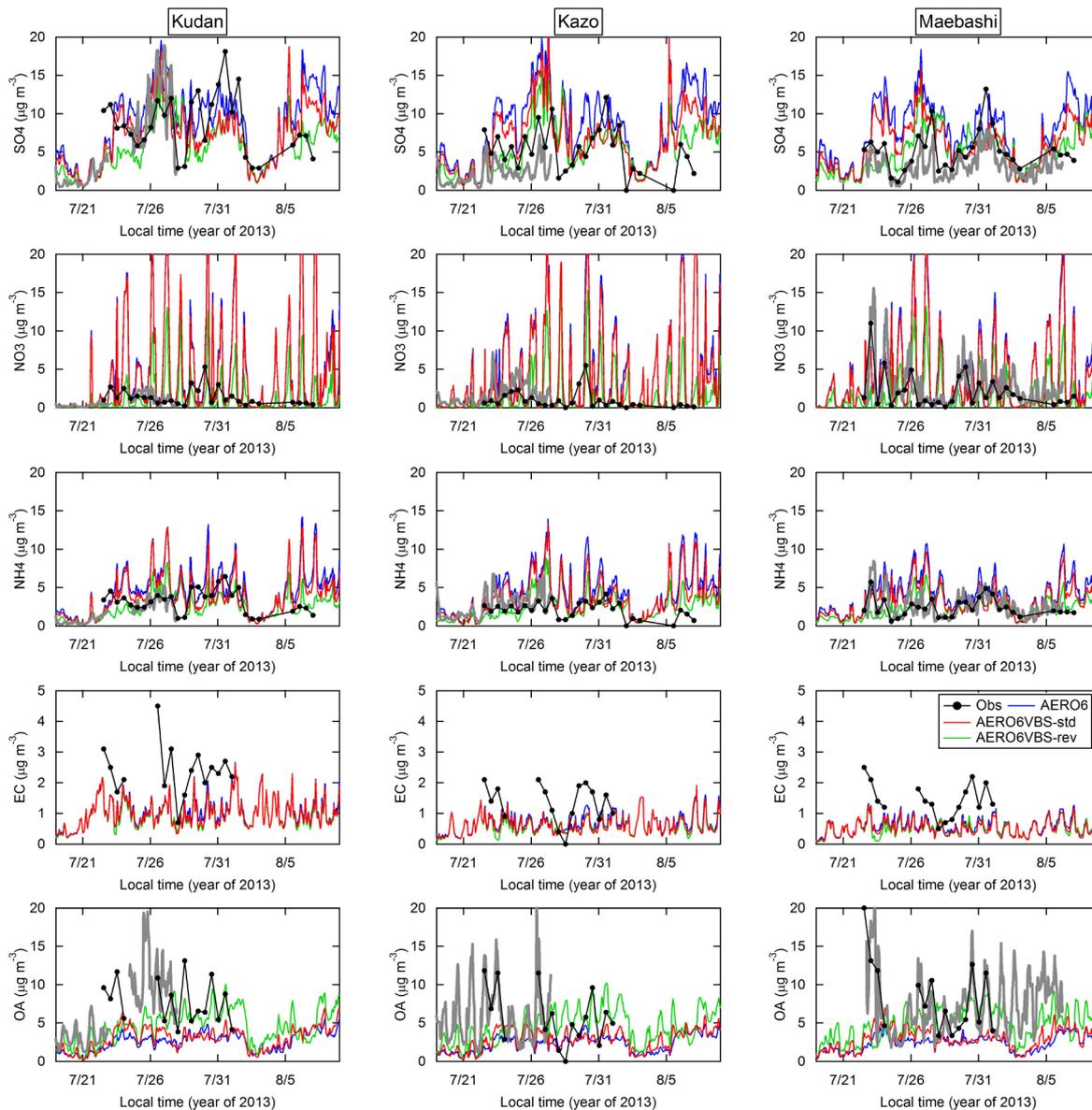


図 45 九段（左）・加須（中）・前橋（右）における PM<sub>2.5</sub> 成分濃度の比較

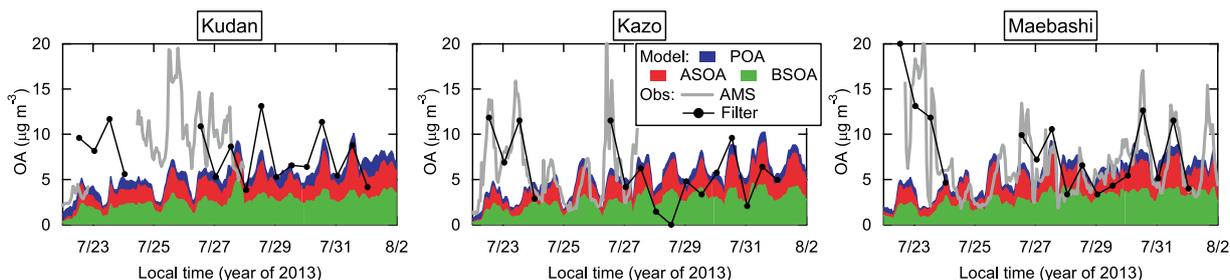


図 46 AERO6VBS-rev モデルで計算された九段（左）・加須（中）・前橋（右）における OA 濃度の内訳

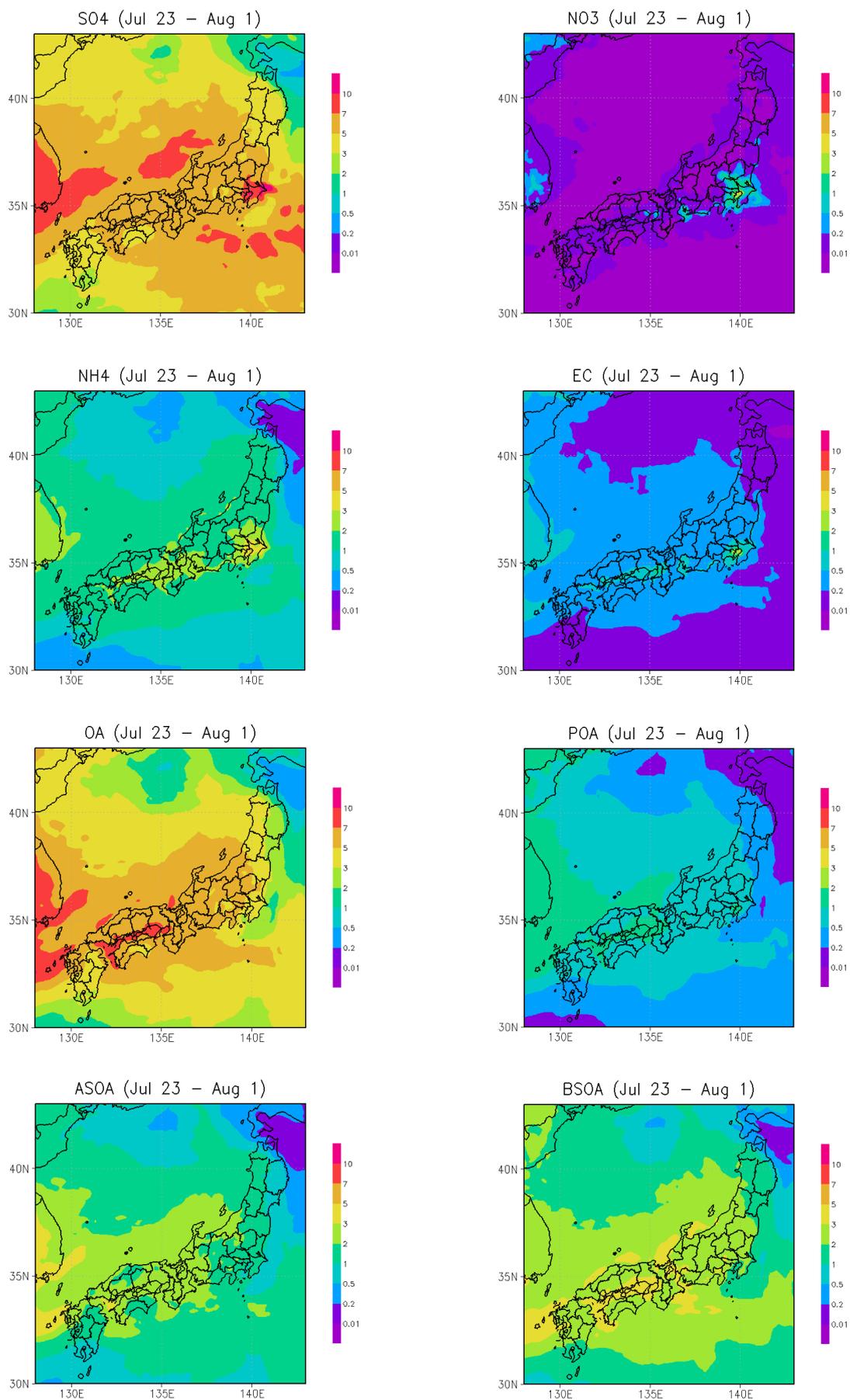


図 47 AERO6VBS-rev モデルで計算された  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ , EC, OA, ASOA, BSOA, POA の水平分布図 (2013年7月22日 - 8月1日)

因解明は困難であるが、Shimadera ら<sup>4)</sup>は感度実験から  $\text{NO}_3^-$ 濃度の計算値は  $\text{HNO}_3$ 、 $\text{NH}_3$ の乾性沈着速度に対する感度が高いことを明らかとした。Neuman ら<sup>5)</sup>による発電所プルームの航空機観測からも乾性沈着がモデル推計値よりも高い可能性があるという指摘などを基に、本研究でも  $\text{HNO}_3$ 、 $\text{NH}_3$ の乾性沈着速度を増大した(5倍)ところ、 $\text{NO}_3^-$ の再現性が顕著に向上した。EC濃度は、ピーク濃度を全地点でやや過大評価していた。

OA濃度はモデルごとに結果が大きく異なり、VBSモデルが最も適切に実測された濃度や日内変動を再現していた。AVOC・BVOCから生成されたSVOCのエイジング反応がそれぞれ重要な寄与を持つと計算され、生物起源SOA(BSOA)、人為起源SOA(ASOA)が支配的と計算される(図46)。また、日中におけるOA濃度増大は主にASOAに起因すると計算されるが、この傾向はMorino ら<sup>6)</sup>による放射性同位炭素などによる推定結果と整合的である。

また、同期間における $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の空間分布を図47に示す。 $\text{SO}_4^{2-}$ は全国的に高濃度域が広く分布するとともに、関東・関西などの大都市圏で増大していた。 $\text{NO}_3^-$ の高濃度域は都市に集中していたが、この傾向は標準事例でも同様であった。一次物質であるECは、 $\text{NO}_3^-$ と同様に都市に集中していた。OA濃度は西日本で高いが、全国に高濃度域が広がっている。POAは、発生源分布はEC同様に都市に集中しており、反映してPOAを不揮発性と扱う収率モデルでは都市に分布しているが、POAも半揮発性と扱うVBSモデルでは、SOA濃度が全国に広く分布していることを反映して、POA濃度も全国に広く分布していた。

#### 2.4.5 まとめ

実大気条件とチャンバー実験条件のいずれにおいても、エイジング反応を考慮することでOA濃度の再現性が顕著に改善されることが示された。ただ、現時点のモデルではエイジング反応の取り扱いが粗いため、今後気相・粒子相反応の反応速度や反応経路などの精緻化を進める予定である。また、 $\alpha$ ピネンからのSOA生成のモデリングにおいて、オゾン酸化と光酸化とを適切に区別したモデリングも必要である。チャンバー実験条件でMCMモデルはエイジングによるSOA生成を再現していたことから、今後反応経路を追跡する解析などに活用できる可能性が示された。一方で、実大気条件ではMCMモデルはSOA濃度を顕著に過小評価していた。OAモデルによる実測再現性が濃度範囲や酸化時間によって異なると考えられるため、チャンバー条件結果を反映したOAモデルを実大気条件に適用できるか、OAの揮発性や酸化度を基にした詳細な再現性評価が必要である。

#### 引用文献

- 1) Johnson D., Utembe S.R., Jenkin M.E., Derwent R.G., Hayman G.D., Alfarra M.R., Coe H., McFiggans G. (2006) Simulating regional scale secondary organic aerosol formation during the TORCH 2003 campaign in the southern UK, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 403-418.
- 2) Tsimpidi A.P., Karydis V.A., Zavala M., Lei W., Molina L., Ulbrich I.M., Jimenez J.L., Pandis S.N. (2010) Evaluation of the volatility basis-set approach for the simulation of organic aerosol formation in the Mexico City metropolitan area, *Atmos. Chem. Phys.*, 10(2), 525-546.
- 3) Taylor W.D., Allston T.D., Mascato M.J., Fazekas G.B., Kozlowski R. Takacs G.A. (1980) Atmospheric photodissociation lifetimes for nitromethane, methyl nitrite, and methyl nitrate, *Int. J. Chem. Kinet.*, 12, 231-240.
- 4) Shimadera H., Hayami H., Chatani S., Morino Y., Mori Y., Morikawa T., Yamaji K., Ohara T. (2014) Sensitivity analyses of factors influencing CMAQ performance for fine particulate nitrate, *J. Air Waste Manage.*, 64, 374-387.
- 5) Neuman J.A., Parrish D.D., Ryerson T.B., Brock C.A., Wiedinmyer C., Frost G.J., Holloway J.S., Fehsenfeld F.C. (2004) Nitric acid loss rates measured in power plant plume, *J. Geophys. Res-Atmos.* 109.
- 6) Morino Y., Takahashi K., Fushimi A., Tanabe K., Ohara T., Hasegawa S., Uchida M., Takami A., Yokouchi Y., Kobayashi S. (2010) Contrasting Diurnal Variations in Fossil and Nonfossil Secondary Organic Aerosol in Urban Outflow, Japan, *Environ. Sci. Technol.*, 44(22), 8581-8586.

## 2.5 健康影響

### 2.5.1 はじめに

PMの化学組成が健康に及ぼす影響について疫学的手法を用いて明らかにするとともに、これらの結果を化学輸送モデル（Chemical Transport Model: CTM）より求めた大気濃度分布に適用し、関東地域におけるPM化学組成による健康リスクについて評価した。

### 2.5.2 PMの化学組成と死亡との関連

2003～2007年に名古屋市において観測されたPM成分の日々の濃度情報と65歳以上の日死亡数の情報を用い、PM成分と死亡との関連について定量的に評価した。これらの情報について日をキーとして結合したデータセットを作成し、統計的手法を用いて長期トレンド、四季変動、気温と湿度を調整し、各PM成分が四分位範囲（IQR）増加することによる日死亡数の変化率（%）およびその95%信頼区間を算出した。PM成分と死亡との関連については当日（lag0）～2日前（lag2）について検討した。全死亡は、硫酸塩、EC、OC（図48（A））、循環器死亡はEC、OC（図48（B））、呼吸器死亡は硫酸塩（図48（C））と有意な正の関連がみられた。

PM成分の健康影響については、知見が十分でなく、結果も一貫していない。欧米の研究においては、EC、OCと死亡との正の関連を示す報告が複数ある<sup>1,2)</sup>が、本研究ではEC、OCと全死亡、循環器疾患死亡との間に関連がみられた。本研究は1地点での検討であり、サンプルサイズも限られるという限界がある。日本をはじめとするアジアにおいては、PM成分に着目した検討はほとんどないため、今後、他の地域においても検討が必要である。

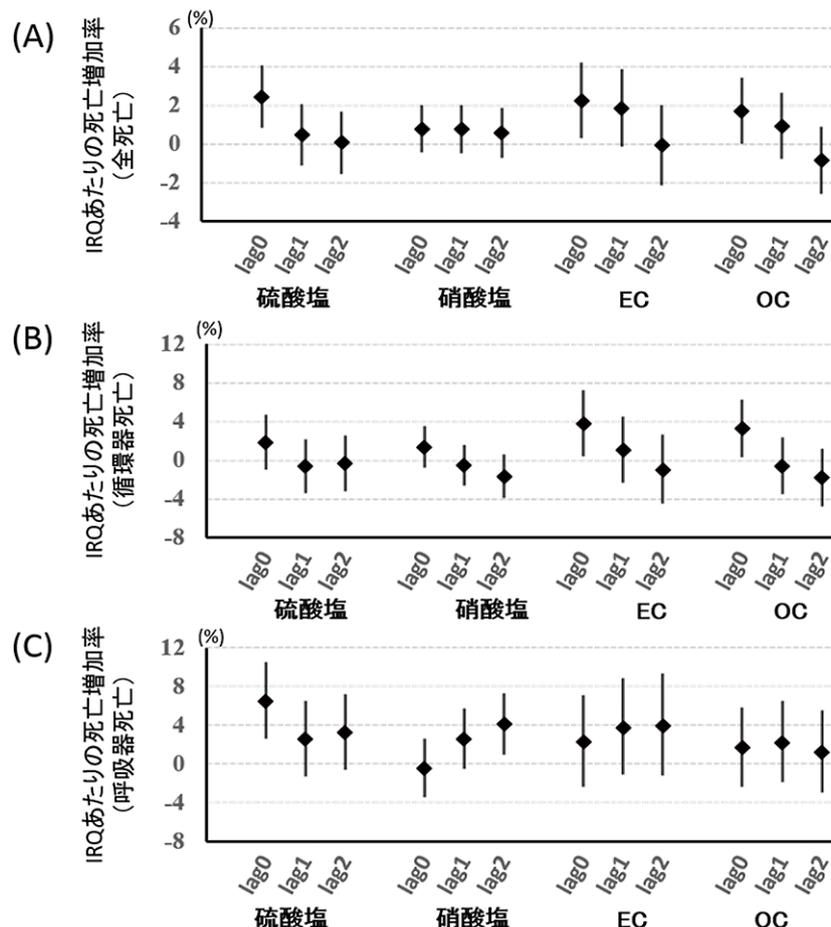


図48 各PM成分がIQR（硫酸塩 $4.4\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、硝酸塩 $1.7\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、EC $2.6\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、OC $2.4\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）増加することによる（A）外傷を除く全死亡、（B）循環器死亡、（C）呼吸器死亡の増加率

### 2.5.3 国内における SOA および PM による健康影響の評価

上記の 2.5.2 で得られた PM 成分の全死亡に対する影響推定値を CTM より求めた大気濃度分布に適用して、8 月における PM 成分による超過死亡数の分布について算出した。

PM 成分の超過死亡数の推定には、1 km × 1 km のメッシュ毎に以下の式を用いて計算し、その情報をもとに、分布図（図 49）を作成するとともに、対象地域全体の超過死亡数を算出した。

分布図においては、人口分布を反映し関東地区での超過死亡が多い。本研究で算出された超過死亡数は、様々な仮定に基づいた数字であり、影響推定値や大気濃度分布にも不確実性が大きいので、その数字の解釈には注意を要する。しかし、対策により低減する健康インパクトを定量的に評価し、PM 成分間で比較することにより、対策の優先順位を決定する際の有用な情報となり得る。

## 引用文献

- 1) Krall J.R., Anderson G.B., Dominici F., Bell M.L., Peng R.D. (2013) Short-term exposure to particulate matter constituents and mortality in a national study of U.S. urban communities, *Environ. Health Perspect.*, 121, 1148-53.
- 2) Ostro B., Feng W.Y., Broadwin R., Green S., Lipsett M. (2007) The effects of components of fine particulate air pollution on mortality in California: results from CALFINE, *Environ. Health Perspect.*, 115, 13-19.

## 2.6 研究のまとめと今後の展望

### 2.6.1 本研究で得られた成果の概要

以下の各テーマについて、得られた成果の概要を示す。

#### (1) 室内実験による SOA の生成機構・物性の解明と毒性評価

大気チャンバーを用いた SOA 生成実験では、大気中の酸化過程を再現するため、OH ラジカルの生成によってエ

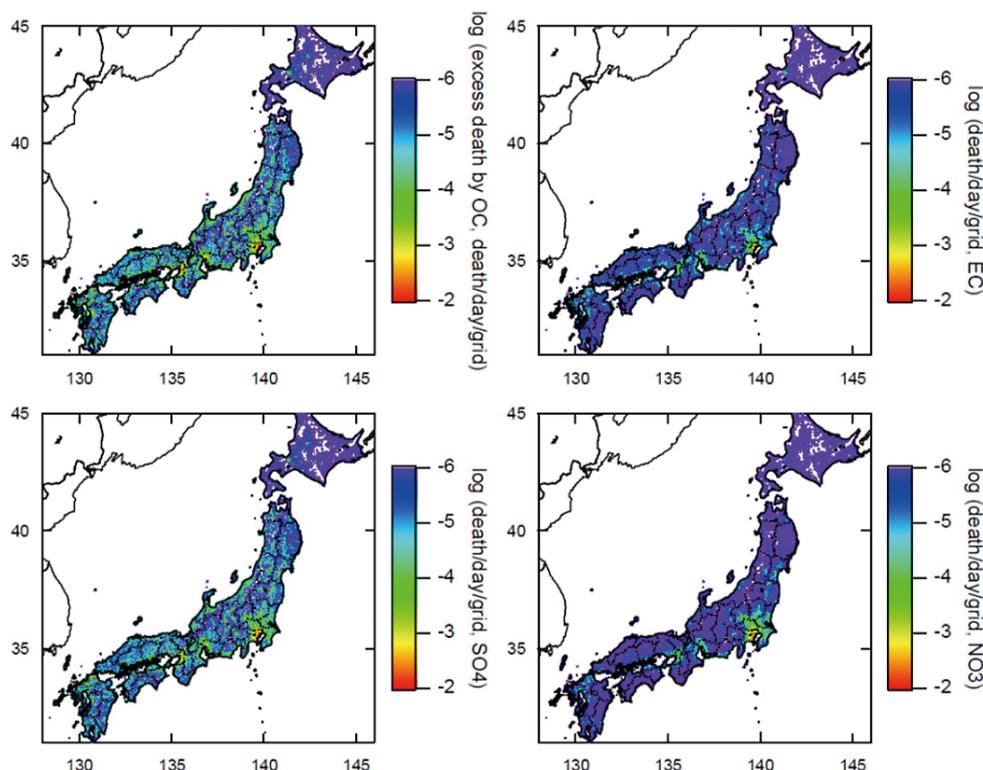


図 49 超過死亡数のマップ

エイジング（酸化反応）を進行させることに成功した。また、大気チャンバーで生成した SOA に対して細胞による毒性スクリーニングを行った結果、m-キシレンのほかに、トリメチルベンゼン、プタジエン由来の SOA は、酸化ストレス応答遺伝子（HO-1）の発現が大きかった。すなわち、イソプレンやピネン類など自然起源 VOC 由来の SOA よりも、自動車排ガス由来の SOA は毒性が高いことを明らかにした。さらに、有機指標成分の分析を行った結果、大きな酸化ストレス発現を示した m-キシレン由来の SOA に含まれる約 30 種の有機物の同定に成功した。

#### (2) PM 大気濃度分布把握のための環境動態解明と大気中 PM の毒性評価

2013 年夏季に関東（都心部：九段、中間部：加須、内陸部：前橋）において、AMS などの自動観測器やフィルターサンプリング、ガス測定など、複数の測定器で多地点の観測を行う、大気中粒子の総合的観測を行った。その結果、PM<sub>2.5</sub> の化学組成としては有機物、硫酸イオン、硝酸イオンが主であることを示した。また、有機物の酸化は上記 3 地点で同程度であり、内陸部にある前橋でも著しい酸化は見られなかった。大気試料中のレボグルコサン等の発生源解析の指標となる有機物が同定できた。観測によって得られた PM 試料の毒性評価を行った結果、室内実験で生成した m-キシレン由来の SOA と比較すると、大気中の PM 試料の毒性（酸化ストレス誘導）は相対的に低かった。

#### (3) 排出インベントリ（EI）の改良

国内の代表的 EI である G-BEAMS データを改定・整備した。G-BEAMS 整備と並行し、排出量推計の精緻化も行い、電力需給の時間変動の推計法を構築した。また、小麦、稲わらなどの燃焼実験の結果に基づき、小麦や稲わらなど野焼きに関わる排出係数を推計した。さらに、燃焼室内で空気を圧縮しそこに燃料を直接噴射する直噴ガソリン車は、燃料と空気を混合した形で燃焼室に注入する従来のガソリン車より多くの粒子を重量としても個数濃度としても排出していることを明らかにした。これらの知見を EI の改良に役立てた。

#### (4) 化学輸送モデル（CTM）の改良と濃度分布計算

CTM の計算過程の改良については、数種類のモデルを用いて大気チャンバーで行った粒子のエイジングの再現計算を行った。エイジングを再現できたモデル、濃度が過大評価となるモデルなどあったが、モデルにおいてエイジングを考慮する必要性を確認した。また、大気総合観測で得られた大気中の硫酸イオンなどの化学組成の濃度データと CTM の濃度分布計算とを比較した結果、硫酸イオン等の再現性は高いが、一方で、有機物濃度はモデルごとに濃度が異なり、揮発性基底関数（VBS）モデルの導入で夏季の再現性は向上したものの、冬季はいずれのモデルでも顕著に過小評価していた。CTM による動態計算を行った結果、m-キシレン等の炭素数が 8 以上の人為起源の VOC から生成する SOA の分布が、無機イオン（硫酸イオン、硝酸イオン）等と異なる分布を示すことが明らかとなった。

#### (5) PM 質量濃度や化学組成に基づいた健康影響評価

PM 成分濃度と疾患発症との関連を統計解析の手法を用いて定量的に評価した結果、予備的段階ではあるが、特定成分（硝酸イオン）に対し有意な相関が得られた。また、CTM により求めた大気濃度分布をもとに、健康リスクについて評価した結果、硫酸イオンなどの無機イオンと、キシレン由来などの SOA の分布が大きく異なり、PM の化学組成によって健康への影響が異なることが示唆された。さらに、既存のデータや各種仮定に基づいて、全国における PM 化学組成別の超過死亡の分布を推定した。

### 2.6.2 PM 削減の方向性について

人為起源 VOC の m-キシレン、トリメチルベンゼン、プタジエンから生成される SOA の毒性（酸化ストレス）は、イソプレン等の自然起源 VOC の SOA の毒性より高い。一方、夏季の大気観測の結果からは、大気試料から抽出された SOA を含む化学物質による酸化ストレスは、実験室での毒性評価に比べかなり低いことが分かった。したがって、夏季を中心に生成すると考えられる SOA の毒性影響は現時点では直ちに対応が必要な状況ではないと考えられる。しかし、関東地方では有機化合物は PM<sub>2.5</sub> の 5 割程度を占めるので、人為起源 VOC の削減は今後も必要であると考えられる。

PM 化学組成分析結果と疫学研究の結果からは硝酸イオン（NO<sub>3</sub><sup>-</sup>）との相関が示唆された。m-キシレン等を想定した炭素数が 8 以上の揮発性有機化合物から生成する SOA の分布は、無機イオン（硫酸イオン、硝酸イオン）と分布が

異なっていた。したがって、VOCとSO<sub>x</sub>、NO<sub>x</sub>などの削減方法は、排出量、発生源分布、PM<sub>2.5</sub>を含む大気汚染物質の濃度分布、人口構成とその分布等を基にして、まず削減物質を決め、次に削減地点を決め、その結果の効果を把握するという方法に基づくことが必要であることが示された。

### 2.6.3 学術面での貢献

PMの有機物やそのほかの化学組成に注目し、発生源情報の精緻化、CTMの改良、PMの毒性評価、PMの健康影響評価を行い、PM削減に向けての方向性を示すことができた。個々の分野について以下に示すような研究が展開できれば、さらに、PMの環境基準達成のための対策についての指針が提示できると考えられる。

### 2.6.4 今後の課題と研究の展開

#### (1) 排出インベントリ

EIの推計方法の改良を検討したので、今後は、CTMに必要な高い時間分解能を持ったEIデータベースを構築することが必要である。また、未規制燃焼発生源（野焼き、調理など）、自動車からの排気や蒸発など未把握の発生源について調査をすることが必要である。さらに、EIのデータベースであるG-BEAMSについては、自治体関係者、研究者が使いやすいデータベースを構築するとともに、日本のEIの標準（National Inventory化）となるよう整備をすすめる、政策への応用と、その効果を検証できるツールとして発展させることが重要である。

#### (2) 化学輸送モデルの改良と濃度分布計算

CTM改良のためチャンバーでの実験を行い、VBSモデルとMCMモデルの検証実験、エイジングの再現性評価、収率の再検討などを総合的にを行い、部分的にはPMの有機成分を再現することができた。しかし、窒素化合物（硝酸塩、アンモニウムイオン）、有機物などの再現性はまだ十分ではないので、今後もチャンバーを用いた室内実験や、屋外での大気観測の結果をもとに、CTMの改良を進めることが重要である。

#### (3) 毒性評価・健康影響評価

チャンバー実験で生成した粒子と大気中で捕集した粒子の試料について、同一の手法で毒性評価を行い、相対的な比較をする事ができた。一方で、大気試料には金属成分が含まれており、金属成分が毒性を示す場合があったため、環境試料では有機成分と金属成分による毒性の切り分けが課題となった。また、毒性の発現と化学物質の間の関係が未だ十分には理解されていないので、毒性の発現の機序の理解が重要である。

健康影響ではPMの化学組成と健康影響の研究を継続して行い、PMの成分が高感受性集団に及ぼす影響に関する研究を継続していくことが重要である。

[資 料]

## I 研究の組織と研究課題の構成

### 1 研究の組織

プロジェクトグループリーダー 地域環境研究センター 高見昭憲

#### [A 研究担当者]

地域環境研究センター	大原利眞（平成 24 年度～平成 25 年度） 佐藤 圭 近藤美則 菅田誠治 森野 悠 吉野彩子 富山 一
環境リスク研究センター	平野靖史郎 古山昭子 藤谷雄二
環境計測研究センター	今村隆史 田邊 潔 伏見暁洋 瀬田孝将（平成 24 年度～平成 25 年度）
環境健康研究センター	新田裕史 上田佳代（平成 24 年度～平成 25 年度）
企画部	大原利眞（平成 26 年度）

#### [B 客員研究員]

小林伸治  
上田佳代（京都大学）（平成 26 年度）

#### [C 協力研究者]

森川多津子（日本自動車研究所）	（平成 24 年度～平成 26 年度）
長谷川就一（埼玉県環境科学国際センター）	（平成 24 年度～平成 26 年度）
齊藤勝美（イサラ研究所）	（平成 24 年度～平成 26 年度）
萩野浩之（日本自動車研究所）	（平成 24 年度～平成 26 年度）
熊谷貴美代（群馬県衛生環境研究所）	（平成 24 年度～平成 26 年度）

### 2 研究課題と担当者（\*客員研究員）

サブテーマ1 未把握発生源の測定などによる発生源情報の精緻化

藤谷雄二・伏見暁洋・近藤美則・佐藤 圭・田邊 潔・小林伸治\*・高見昭憲・今村隆史・富山 一・  
齊藤勝美

サブテーマ2 大気濃度分布把握のための PM 環境動態解明

高見昭憲・伏見暁洋・藤谷雄二・佐藤 圭・今村隆史・森野 悠・大原利眞・田邊 潔・菅田誠治・  
吉野彩子・齊藤勝美

サブテーマ3 化学組成に基づいた毒性影響評価

藤谷雄二・古山昭子・平野靖史郎・佐藤 圭・伏見暁洋・高見昭憲・今村隆史

サブテーマ4 化学組成に基づいた健康影響評価

上田佳代・高見昭憲・佐藤 圭・森野 悠・新田裕史

## II 研究成果発表一覧

### 1 誌上発表

<雑誌>

---

発表者・(刊年)・題目・掲載誌・巻(号)・頁

---

(査読あり)

Chatani S., Morino Y., Shimadera H., Hayami H., Mori Y., Sasaki K., Kajino M., Yokoi T., Morikawa T., Ohara T. (2014) Multi-Model Analyses of Dominant Factors Influencing Elemental Carbon in Tokyo Metropolitan Area of Japan. *Aerosol and Air Quality Research*, 14 (1), 396-405

Clark C.H., Nakao S., Asa-Awuku A., Sato K., Cocker D.R.III (2013) Real-Time Study of Particle-Phase Products from  $\alpha$ -Pinene Ozonolysis and Isoprene Photooxidation Using Particle into Liquid Sampling Directly Coupled to a Time-of-Flight Mass Spectrometer (PILS-ToF). *Aerosol Science and Technology*, 47, 1374-1382

Fujitani Y., Saitoh K., Fushimi A., Takahashi K., Hasegawa S., Tanabe K., Kobayashi S., Furuyama A., Hirano S., Takami A. (2012) Effect of isothermal dilution on emission factors of organic carbon and n-alkanes in the particle and gas phases of diesel exhaust. *Atmospheric Environment*, 59, 389-397

Fujitani Y., Kumar P., Tamura K., Fushimi A., Hasegawa S., Takahashi K., Tanabe K., Kobayashi S., Hirano S. (2012) Seasonal differences of the atmospheric particle size distribution in a metropolitan area in Japan. *Science of the Total Environment*, 437, 339-347

Fujitani Y., Sakamoto T., Misawa K. (2012) Quantitative Determination of Composition of Particle Type by Morphology of Nanoparticles in Diesel Exhaust and Roadside Atmosphere. *Civil & Environmental Engineering*, S1 (002)

藤谷雄二, 佐藤 圭, 古山昭子, 伏見暁洋, 伊藤智彦, 田邊 潔, 平野靖史郎, 今村隆史, 高見昭憲 (2012) 二次生成有機エアロゾルの毒性評価を目指した小規模チャンバーによる粒子発生法評価. *エアロゾル研究*, 27 (4), 350-356 <論文賞受賞>

藤谷雄二, 坂本哲夫, 三澤健太郎, 平野靖史郎 (2014) 大型ディーゼル車が卓越する沿道環境中における超微小粒子の粒子凝集状態に基づくヒトの肺胞における粒子表面積負荷量. *大気環境学会誌*, 49 (5), 224-231

Fujitani Y., Sugaya Y., Hashiguchi M., Furuyama A., Hirano S., Takami A. (2015) Particle deposition efficiency in air-liquid interface of a cell exposure chamber. *Journal of Aerosol Science*, 81, 90-99

Fushimi A., Hashimoto S., Ieda T., Ochiai N., Takazawa Y., Fujitani Y., Tanabe K. (2012) Thermal desorption-comprehensive two-dimensional gas chromatography coupled with tandem mass spectrometry for trace determination of polycyclic aromatic hydrocarbons and their derivatives. *Journal of Chromatography A*, 1252, 164-170

伏見暁洋 (2015) 微小粒子・ナノ粒子の起源・動態解明のための高感度有機分析法の開発と適用. *大気環境学会誌*, 50 (2), 85-91

Goto D., Dai T., Satoh M., Tomita H., Uchida J., Misawa S., Inoue T., Tsuruta H., Ueda K., Ng C.F.S., Takami A., Sugimoto N., Shimizu A., Ohara T., Nakajima T. (2015) Application of a global nonhydrostatic model with a stretched-grid system to regional aerosol simulations around Japan. *Geoscientific Model Development*, 8, 235-259

原由香里, 鶴野伊津志, 清水 厚, 杉本伸夫, 松井一郎, 大原利真, Zifa Wang, Soonchang Yoon (2012) 東アジアにおける人為起源エアロゾルによる光学的厚さの近年のトレンドの解析. *天気*, 59 (8), 701-707

Hara K., Homma J., Tamura K., Inoue M., Karita K., Kondo Y., Yano E. (2014) Difference in concentration trends of airborne particulate matter during rush hour on weekdays and Sundays in Toyo, Japan. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 64 (9), 1045-1053

Hashimoto S., Zushi Y., Fushimi A., Takazawa Y., Tanabe K., Shibata Y. (2013) Selective extraction of halogenated compounds from data measured by comprehensive multidimensional gas chromatography/high resolution time-of-flight mass spectrometry for non-target analysis of environmental and biological samples. *Journal of Chromatography A*, 183-189

---

橋爪真弘, 西脇祐司, 道川武紘, 上田佳代, 横田賢一, 三根眞理子, 森 淳子, 清水 厚, 杉本伸夫 (2014) 黄砂曝露と死亡者数との疫学的関連. エアロゾル研究, 29 (S1), 225-229

Hatakeyama S., Ikeda K., Hanaoka S., Watanabe I., Arakaki T., Bandow H., Sadanaga Y., Kato S., Kajii Y., Zhang D., Okuyama K., Ogi T., Fujimoto T., Seto T., Shimizu A., Sugimoto N., Takami A. (2014) Aerial observations of air masses transported from East Asia to the Western Pacific: Vertical structure of polluted air masses. *Atmospheric Environment*, 97, 456-461

Hayashi K., Ono K., Kajiura M., Sudo S., Yonemura S., Fushimi A., Saitoh K., Fujitani Y., Tanabe K. (2014) 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. *Atmospheric Environment*, 95, 36-44

Hirano S., Fujitani Y., Furuyama A., Kanno S. (2012) Macrophage receptor with collagenous structure (MARCO) is a dynamic adhesive molecule that enhances uptake of carbon nanotubes by CHO-K1 Cells. *Toxicology and Applied Pharmacology*, 259 (1), 96-103

Inomata S., Tanimoto H., Fujitani Y., Sekimoto K., Sato K., Fushimi A., Yamada H., Hori. S., Kumazawa Y., Shimono A., Hikida T. (2013) On-line measurements of gaseous nitro-organic compounds in diesel vehicle exhaust by proton-transfer-reaction mass spectrometry. *Atmospheric Environment*, 73, 195-203

Inomata S., Fujitani Y., Fushimi A., Tanimoto H., Sekimoto K., Yamada H. (2014) Field measurement of nitromethane from automotive emissions at a busy intersection using proton-transfer-reaction mass spectrometry. *Atmospheric Environment*, 96, 301-309

Inomata S., Sato K., Hirokawa J., Sakamoto Y., Tanimoto H., Okumura M., Tohno S., Imamura T. (2014) Analysis of secondary organic aerosols from ozonolysis of isoprene by proton transfer reaction mass spectrometry. *Atmospheric Environment*, 97, 397-405

Inomata S., Fushimi A., Sato K., Fujitani Y., Yamada H. (2015) 4-Nitrophenol, 1-nitropyrene, and 9-nitroanthracene emissions in exhaust particles from diesel vehicles with different exhaust gas treatments. *Atmospheric Environment*, 110, 93-102

Irei S., Shimono A., Hikida T., Kuramoto K., Suzuki Y., Takami A. (2014) Qualitative evaluation of m/z 85, 87, and 133 signals in organic aerosol mass spectra of fly ash produced by coal combustion. *Aerosol and Air Quality Research*, 14 (1), 406-412

Irei S., Takami A., Hayashi M., Sadanaga Y., Hara K., Kaneyasu N., Sato K., Arakaki T., Hatakeyama S., Bandow H., Hikida T., Shimono A. (2014) Transboundary Secondary Organic Aerosol in Western Japan Indicated by the  $\delta^{13}\text{C}$  of Water-Soluble Organic Carbon and the m/z 44 Signal in Organic Aerosol Mass Spectra. *Environmental Science&Technology*, 48 (11), 6273-6281

板野泰之, 大原利眞, 山神眞紀子, 大野隆史, 長田健太郎, 武 直子, 菅田誠治 (2013) 2011年度の連続測定結果に基づく全国的なPM<sub>2.5</sub>汚染の状況解析. 大気環境学会誌, 48, 154-160

Kajino M., Inomata Y., Sato K., Ueda H., Han Z., An J., Katata G., Deushi M., Oshima N., Kurokawa J., Ohara T., Takami A., Hatakeyama S. (2012) Development of the RAQM2 aerosol chemical transport model and predictions of the Northeast Asian aerosol mass, size, chemistry, and mixing type. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12, 11833-11856

梶野瑞王, 五十嵐康人, 藤谷雄二 (2014) Fresh soot と, aged soot は, どちらが気道に沈着しやすいか一粒径分布と吸湿性の気管支・肺胞沈着率への影響一. 大気環境学会誌, 49 (2), 101-108

Kamouchi M., Ueda K., Ago T., Nitta H., Kitazono T. (2012) Relationship between Asian Dust and ischemic stroke. A time-stratified case-crossover study. *Stroke*, 43 (11), 3085-3087

Kanda I., Ohara T., Nattaami T., Nitta H., Tamura K., Hasegawa S., Shima M., Nakai S., Sakamoto K., Yokota H. (2013) Development of outdoor exposure model of traffic-related air pollution for epidemiologic research in Japan. *Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology*, 1-11

兼保直樹, 佐藤 圭, 高見昭憲, 秀森文寛, 松見 豊, 山本重一 (2014) PM<sub>2.5</sub> および健康影響が懸念される粒子状物質のわが国風上域での動態. エアロゾル研究, 29 (S1), 82-94

Kaneyasu N., Yamamoto S., Sato K., Takami A., Hayashi M., Hara K., Kawamoto K., Okuda T., Hatakeyama S. (2014) Impact of long-range transport of aerosols on the PM<sub>2.5</sub> composition at a major metropolitan area in the northern Kyushu area of Japan. *Atmospheric Environment*, 97, 416-425

神成陽容, 大原利眞, 森野 悠 (2014) 種々の光化学反応生成物に関する化学レジームの規則的な変化. *大気環境学会誌*, 49 (5), 207-217

加藤秀樹, 安藤良輔, 西堀泰英, 近藤美則, 鈴木 勉 (2013) エコドライブ活動による日常の運転特性の変化に関する研究. *自動車技術会論文集*, 44 (6), 1497-1502

Kato H., Ando R., Kondo Y., Suzuki T., Matsushashi K., Kobayashi S. (2013) Comparative measurements of the eco-driving effect between electric and internal combustion engine vehicles. *27th International Battery, Hybrid and Fuel Cell Electric Vehicle Symposium*

Kim N.K., Kim Y.P., Morino Y., Kurokawa J., Ohara T. (2013) Verification of NO<sub>x</sub> emission inventory over South Korea using sectoral activity data and satellite observation of NO<sub>2</sub> vertical column densities. *Atmospheric Environment*, 77, 496-508

Kim N.K., Kim Y.P., Morino Y., Kurokawa J., Ohara T. (2014) Verification of NO<sub>x</sub> emission inventories over North Korea. *Environmental Pollution*, 195, 236-244

Kondo Y., Ram K., Takegawa N., Sahu L., Morino Y., Liu X., Ohara T. (2012) Reduction of black carbon aerosols in Tokyo: Comparison of real-time observations with emission estimates. *Atmospheric Environment*, 54, 242-249

Kondo Y., Kato H., Karakama Y. (2012) Environmental load reduction of substitution of electric vehicles by taking geographical features into account. *The 26th International Battery, Hybrid and Fuel Cell Electric Vehicle Symposium*, 340-346

近藤美則, 加藤秀樹 (2012) 車両利用中のアイドリングストップが大気環境に及ぼす影響の考察. *大気環境学会誌*, 47 (4), 155-161

近藤美則, 小林伸治, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 斉藤勝美, 高見昭憲, 田邊 潔 (2012) 直噴ガソリン乗用車の粒子状物質排出特性. *自動車技術会論文集*, 43 (5), 1009-1014

Kondo Y., Kato H., Matsushashi K. (2012) Evaluation of Electric Vehicles based on Long-term Travel Activity Data of Passenger Cars. *World Electric Vehicle Journal*, 4, 787-792

Kondo Y., Kato H., Ando R., Suzuki T., Karakama Y. (2013) To What Extent Can Speed Management Alleviate the Range Anxiety of EV?. *27th International Battery, Hybrid and Fuel Cell Electric Vehicle Symposium*,

Li C., Li X., Suzuki A.K., Fujitani Y., Jigami J., Nagaoka K., Watanabe G., Taya K. (2012) Effects of exposure to nanoparticle-rich diesel exhaust on adrenocortical function in adult male mice. *Toxicology Letters*, 209 (3), 277-281

Li C., Li X., Jigami J., Hasegawa C., Suzuki A.K., Zhang Y., Fujitani Y., Nagaoka K., Watanabe G., Taya K. (2012) Effect of nanoparticle-rich diesel exhaust on testosterone biosynthesis in adult male mice. *Inhalation Toxicology*, 24 (9), 599-608

Li C.M., Li X., Suzuki A.K., Zhang Y., Fujitani Y., Nagaoka K., Watanabe G., Taya K. (2012) Effects of Exposure to Nanoparticle-Rich Diesel Exhaust on Pregnancy in Rats. *Journal of Reproduction and Development*, 59 (2), 145-150

Matsui H., Koike M., Kondo Y., Takami A., Fast J.D., Kanaya Y., Takigawa M. (2014) Volatility basis-set approach simulation of organic aerosol formation in East Asia: implications for anthropogenic-biogenic interaction and controllable amounts. *Atmospheric Chemistry and Physics*, (14), 9513-9535

Matsukawa R., Michikawa T., Ueda K., Nitta H., Kawasaki T., Tashiro H., Mohri M., Yamamoto Y. (2014) Desert Dust Is a Risk Factor for the Incidence of Acute Myocardial Infarction in Western Japan. *Circ Cardiovasc Qual Outcomes*, 7 (5), 743-748

間山憲仁, 後藤栄太, 三浦祐哉, 大石乾詞, 坂本哲夫, 高見昭憲, 畠山史郎, 坂東 博, 村野健太郎, 藤井正明 (2012) 高分解能飛行時間型二次イオン質量分析法を用いた微粒子粒別起源解析法の開発. *Journal of the Vacuum Society of Japan プロシーディングス*, 55 (3), 105-107

- Mayama N., Miura Y., Misawa K., Takami A., Sakamoto T., Fujii M. (2013) Characterization of Black Carbon in Fine Aerosol Particles Using High Lateral Resolution TOF-SIMS. *Analytical Sciences*, 29, 479-481
- Michikawa T., Nakai S., Nitta H., Tamura K. (2013) Validity of using annual mean particulate matter concentrations as measured at fixed site in assessing personal exposure: An exposure assessment study in Japan. *Science of the Total Environment*, 466-467, 673-680
- Michikawa T., Ueda K., Takeuchi A., Kinoshita M., Hayashi H., Ichinose T., Nitta H. (2014) Impact of short-term exposure to fine particulate matter on emergency ambulance dispatches in Japan. *Journal of Epidemiology & Community Health*, 69, 86-91
- Michikawa T., Ueda K., Takeuchi A., Tamura K., Kinoshita M., Ichinose T., Nitta H. (2015) Coarse particulate matter and emergency ambulance dispatches in Fukuoka, Japan: a time-stratified case-crossover study. *Environmental Health and Preventive Medicine*, 20, 130-136
- 三好猛雄, 高見昭憲, 下野彰夫, 畠山史郎 (2013) エアロゾル質量分析計により沖縄県辺戸岬において観測されたエアロゾル化学組成の特徴. *大気環境学会誌*, 48 (1), 1-11
- Morino Y., Tanabe K., Sato K., Ohara T. (2014) Secondary organic aerosol model intercomparison based on secondary organic aerosol to odd oxygen ratio in Tokyo. *Journal of Geophysical Research*, 119 (23), 13489-13505
- Nakamura R., Inoue K., Fujitani Y., Kiyono M., Hirano S., Takano H. (2012) Effects of nanoparticle-rich diesel exhaust particles on IL-17 production in vitro. *Journal of Immunotoxicology*, 9 (1), 72-76
- Nakashima Y., Tsurumaru H., Imamura T., Bejan I., Wenger J.C., Kajii Y. (2012) Total OH reactivity measurements in laboratory studies of the photooxidation of isoprene. *Atmospheric Environment*, 62, 243-247
- Nakayama T., Sato K., Matsumi Y., Imamura T., Yamazaki A., Uchiyama A. (2012) Wavelength and NO<sub>x</sub> dependent complex refractive index of SOAs generated from the photooxidation of toluene. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 12 (6), 14551-14589
- Nakayama T., Sato K., Matsumi Y., Imamura T., Yamazaki A., Uchiyama A. (2012) Wavelength dependence of refractive index of secondary organic aerosols generated during the ozonolysis and photooxidation of  $\alpha$ -pinene. *Scientific Online Letters on the Atmosphere*, 8, 119-123
- Nakayama T., Sato K., Matsumi Y., Imamura T., Yamazaki A., Uchiyama A. (2013) Wavelength and NO<sub>x</sub> dependent complex refractive index of SOAs generated from the photooxidation of toluene. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13 (1), 531-545
- Nawahda A., Yamashita K., Ohara T., Kurokawa J., Yamaji K. (2012) Evaluation of Premature Mortality Caused by Exposure to PM<sub>2.5</sub> and Ozone in East Asia: 2000, 2005, 2020. *Water, Air, and Soil Pollution*, 223, 3445-3459
- Nawahda A., Yamashita K., Ohara T., Kurokawa J., Yamaji K. (2013) Evaluation of the Effect of Surface Ozone on Main Crops in East Asia: 2000, 2005, and 2020. *Water, Air, and Soil Pollution*, 224, 1537
- Ng C.F.S., Ueda K., Nitta H., Takeuchi A. (2013) Seasonal variation in the acute effects of ozone on premature mortality among elderly Japanese. *Environmental Monitoring and Assessment*, 185 (10), 8767-8776
- Nishiwaki Y., Michikawa T., Takebayashi T., Nitta H., Iso H., Inoue M., Tsugane S. (2013) Long-term Exposure to Particulate Matter in Relation to Mortality and Incidence of Cardiovascular Disease: The JPHC Study. *Journal of Atherosclerosis and Thrombosis*, 20 (3), 296-309
- 小川佳美, 兼保直樹, 佐藤 圭, 高見昭憲, 林 政彦, 原圭一郎, 畠山史郎 (2012) 長距離輸送された多環芳香族炭化水素と n-アルカン - 2009 年春季および秋季の沖縄辺戸岬, 福江島, 福岡での測定から - . *大気環境学会誌*, 47 (1), 18-25
- 大泉 毅, 秋元 肇, 金谷有剛, 永島達也, 櫻井達也, 大原利眞, 佐藤啓市 (2013) 我が国の光化学オゾン汚染の 8 時間平均値による評価. *大気環境学会誌*, 48 (4), 181-187
- 定永靖宗, 坂東 博, 新垣雄光, 張 代洲, 渡邊 泉, 藤本敏行, 奥山喜久夫, 荻 崇, 瀬戸章文, 高見昭憲, 清水 厚, 畠山史郎 (2014) 東シナ海上空における窒素化合物の航空機観測. *エアロゾル研究*, 29 (S1), 117-124

- 齊藤勝美, 伏見暁洋, 田邊 潔, 佐藤 圭, 藤谷雄二, 高見昭憲 (2015) 2013年夏季関東における微小粒子の広域観測—PMFによる発生源寄与推定のアプローチ—. *エアロゾル研究*, 30 (1), 42-52
- Sato K., Takami A., Kato H., Seta T., Fujitani Y., Hikida T., Shimono A., Imamura T. (2012) AMS and LC/MS analyses of SOA from the photooxidation of benzene and 1,3,5-trimethylbenzene in the presence of NO<sub>x</sub>: effects of chemical structure on SOA aging. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 12 (1), 283-318
- Sato K., Takami A., Kato Y., Seta T., Fujitani Y., Hikida T., Shimono A., Imamura T. (2012) AMS and LC/MS analyses of SOA from the photooxidation of benzene and 1,3,5-trimethylbenzene in the presence of NO<sub>x</sub>: effects of chemical structure on SOA aging. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12 (10), 4667-4682
- Sato K., Inomata S., XING J-H., Imamura T., Uchida R., Fukuda S., Nakagawa K., Hirokawa J., Okumura M., Tohno S. (2013) Effect of OH radical scavengers on secondary organic aerosol formation from reactions of isoprene with ozone. *Atmospheric Environment*, 79, 147-154
- Sato K., Takami A., Irei S., Miyoshi T., Ogawa Y., Yhoshino A., Nakayama H., Maeda M., Hatakeyama S., Hara K., Hayashi M., Kaneyasu N. (2013) Transported and Local Organic Aerosols over Fukuoka, Japan. *Aerosol and Air Quality Research*, 13 (4), 1263-1272
- 佐藤 圭, 高見昭憲, 兼保直樹, 清水 厚, 小川佳美, 吉野彩子, 中山寛康, 前田 恵, 原圭一郎, 林 政彦, 伊禮 聡, 三好猛雄, 畠山史郎 (2014) 2009 ~ 2012年北部九州の都市と離島における大気中ベンゾ [a] ピレン濃度. *大気環境学会誌*, 49 (3), 138-148
- Sekiguchi K., Nakai Y., Imamura T., Akiyoshi H., Motizuki Y. (2013) Modeling chemical reactions in the middle atmosphere induced by solar energetic particle events. *RIKEN Accelerator Progress Report*, (46), 124
- Sekimoto K., Inomata S., Tanimoto H., Fushimi A., Fujitani Y., Sato K., Yamada H. (2013) Characterization of nitromethane emission from automotive exhaust. *Atmospheric Environment*, 81, 523-531
- Seto T., Kim S., Otani Y., Takami A., Kaneyasu N., Fujimoto T., Okuyama K., Takamura T., Hatakeyama S. (2013) New particle formation and growth associated with East-Asian long range transportation observed at Fukue Island, Japan in March 2012. *Atmospheric Environment*, 74, 29-36
- 重富陽介, 弓場彬江, 定永靖宗, 高見昭憲, 畠山史郎, 加藤俊吾, 梶井克純, 竹中規訓, 板東 博 (2012) 沖縄辺戸岬での長期連続観測による越境大気汚染物質の経年変動. *大気環境学会誌*, 47 (1), 45-50
- Shimadera H., Hayami H., Morino Y., Ohara T., Chatani S., Hasegawa S., Kaneyasu N. (2013) Analysis of Summertime Atmospheric Transport of Fine Particulate Matter in Northeast Asia. *Asia-Pacific Journal of Atmospheric Sciences*, 49 (3), 347-360
- Shimadera H., Hayami H., Chatani S., Morino Y., Mori Y., Morikawa T., Yamaji K., Ohara T. (2014) Sensitivity analyses of factors influencing CMAQ performance for fine particulate nitrate. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 64 (4), 374-387
- Shimadera H., Hayami H., Ohara T., Morino Y., Takami A., Irei S. (2014) Numerical Simulation of Extreme Air Pollution by Fine Particulate Matter in China in Winter 2013. *Asian Journal of Atmospheric Sciences*, 8 (1), 25-34
- Song S., Wu Y. (2013) Black carbon at a roadside site in Beijing: Temporal variations and relationships with carbon monoxide and particle number size distribution. *Atmospheric Environment*, 77, 213-221
- Stavrakou T., Muller J.-F., Boersma K.F. (2013) Key chemical NO<sub>x</sub> sink uncertainties and how they influence top-down emissions of nitrogen oxides. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 9057-9082
- Takahashi K., Nansai K., Tohno S., Nishizawa M., Kurokawa J., Ohara T. (2014) Production-based emissions, consumption-based emissions and consumption-based health impacts of PM<sub>2.5</sub> carbonaceous aerosols in Asia. *Atmospheric Environment*, 97, 406-415
- Takami A., Mayama N., Sakamoto T., Ohishi K., Irei S., Yoshino A., Hatakeyama S., Murano K., Sadanaga Y., Bandow H., Misawa K., Fujii M. (2013) Structural analysis of aerosol particles by microscopic observation using a time-of-flight secondary ion mass spectrometer. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 118, 6276-6737

- 高見昭憲, 伊禮 聡, 紀本岳志, 竹村俊彦, 林 政彦, 原圭一郎, 三好猛雄, 上田佳代, 佐藤 圭, 兼保直樹, 吉野彩子, 畠山史郎 (2013) 2012年夏季, 福岡市と大阪市における高濃度硫酸イオン観測事例の解析. エアロゾル研究, 28 (4), 281-286
- Tanaka M., Aoki Y., Takano H., Fujitani Y., Hirano S., Nakamura R., Sone Y., Kiyono M., Ichinose T., Itoh T., Inoue K. (2013) Effect of exposure to nanoparticle-rich or delpeped diesel exhaust on allergic pathophysiology in the murine lung. *Journal of Toxicological Sciences*, 38 (1), 35-48
- Tanaka K., Takano H., Fujitani Y., Hirano S., Ichinose T., Shimada A., Inoue K. (2013) Effects of exposure to nanoparticle-rich diesel exhaust on 8-OHdG synthesis in the mouse asthmatic lung. *EXPERIMENTAL AND THERAPEUTIC MEDICINE*, 6, 703-706
- Tang L., Nagashima T., Hasegawa K., Ohara T., Sudo K., Itsubo N. (2015) Development of human health damage factors for PM<sub>2.5</sub> based on a global chemical transport model. *The International Journal of Life Cycle Assessment*
- Tin-Tin-Win-Shwe, Fujimaki H., Fujitani Y., Hirano S. (2012) Novel object recognition ability in female mice following exposure to nanoparticle-rich diesel exhaust. *Toxicology and Applied Pharmacology*, 262, 355-362
- Tin-Tin-Win-Shwe, Yamamoto S., Fujitani Y., Hirano S., Fujimaki H. (2012) Nanoparticle-rich diesel exhaust affects hippocampal-dependent spatial learning and NMDA receptor subunit expression in female mice. *Nanotoxicology*, 6 (5), 543-553
- Tin-Tin-Win-Shwe, Fujitani Y., Sone H., Furuyama A., Nitta H., Hirano S. (2013) Effects of acute single intranasal instillation of secondary organic aerosol on neurological and immunological biomarkers in the brain and lung of BALB/c mice. *The Journal of Toxicological Sciences*, 38 (1), 71-82
- Turin T.C., Kita Y., Rumana N., Nakamura Y., Ueda K., Takashima N., Sugihara H., Morita Y., Ichikawa M., Nitta H. et al. (2012) Short-term exposure to air pollution and incidence of stroke and acute myocardial infarction in a Japanese population. *Neuroepidemiology*, 38 (2), 84-92
- Turin T.C., Kita Y., Rumana N., Nakamura Y., Ueda K., Takashima N., Sigohara H., Morita Y., Ichikawa M., Hirose K., Nitta H., Okayama A., Ueshima H. (2012) Ambient Air Pollutants and Acute Case-Fatality of Cerebro-Cardiovascular Events: Takashima Stroke and AMI Registry, Japan (1988-2004). *Cerebrovascular Diseases*, 34, 130-139
- Ueda K., Nagasawa S.Y., Nitta H., Miura K., Ueshima H. (2012) Exposure to particulate matter and long-term risk of cardiovascular mortality in Japan: NIPPON DATA80. *Journal of Atherosclerosis and Thrombosis*, 19 (3), 246-254
- Ueda K., Shimizu A., Nitta H., Inoue K. (2012) Long-range transported Asian Dust and emergency ambulance dispatches. *Inhalation Toxicology*, 24 (12), 858-867
- 上田佳代, 清水 厚, 井上健一郎 (2014) 疫学研究におけるライダーによる黄砂エアロゾルの曝露評価. エアロゾル研究, 29 (S1), 230-236
- 鶴野伊津志, 板橋秀一, 山地一代, 高見昭憲, 長田和雄, 横内陽子, 清水 厚, 兼保直樹, 梶井克純, 加藤俊吾, 古谷浩志, 植松光夫 (2012) 2008年 W-PASS 沖縄辺戸岬集中観測時の越境大気汚染の数値シミュレーションによる解析. *大気環境学会誌*, 47 (5), 195-204
- 鶴野伊津志, 板橋秀一, 山地一代, 高見昭憲, 長田和雄, 横内陽子, 清水 厚, 兼保直樹, 梶井克純, 加藤俊吾, 古谷浩志 (2012) 2008年 W-PASS 沖縄辺戸岬集中観測時の越境汚染の数値シミュレーションによる解析. *大気環境学会誌*, 47 (5), 195-204
- 鶴野伊津志, 板橋秀一, 弓本桂也, 入江仁士, 黒川純一, 大原利眞 (2013) 東アジア域のNO<sub>x</sub>排出量の経年変化と窒素化合物の挙動のモデル解析. *大気環境学会誌*, 48 (5), 223-233
- 鶴野伊津志, 弓本桂也, 大原利眞, 黒川純一 (2013) タグ付き CO 輸送モデルを用いたアジア域のソース・リセプター解析. *大気環境学会誌*, 48, 123-132
- 鶴野伊津志, 弓本桂也, 大原利眞, 黒川純一 (2013) タグ付き輸送モデルによるアジア域の CO 濃度と発生源寄与の長期解析. *大気環境学会誌*, 48, 133-139
- 鶴野伊津志, 弓本桂也, 原由香里, 板橋秀一, 金谷有剛, 杉本伸夫, 大原利眞 (2013) 何故 2013年冬季の中国で PM<sub>2.5</sub> が高濃度になったか?. *大気環境学会誌*, 48 (6), 274-280

XING J-H., Ono M., Kuroda A., Sato K., Imamura T. (2012) Kinetic Study of the Daytime Atmospheric Fate of (Z)-3-Hexenal. *Journal of Physical Chemistry A*, 116 (33), 8523-8529

山神真紀子, 佐川竜也, 中戸靖子, 長田健太郎, 米持真一, 山本勝彦, 山田大介, 芝 和代, 山田克則, 菅田誠治, 大原利眞 (2013) 2011年2月上旬に観測された広域的なPM<sub>2.5</sub>高濃度エピソードの要因推定. *大気環境学会誌*, 48 (4), 196-205

弓場彬江, 定永靖宗, 高見昭憲, 清水 厚, 松井一郎, 杉本伸夫, 畠山史郎, 竹中規訓, 坂東 博 (2012) 清浄地域におけるガス状硝酸の日内変動要因解析. *大気環境学会誌*, 47 (1), 26-32

Zushi Y., Hashimoto S., Fushimi A., Takazawa Y., Tanabe K., Shibata Y. (2013) Rapid automatic identification and quantification of compounds in complex matrices using comprehensive two-dimensional gas chromatography coupled to high resolution time-of-flight mass spectrometry with a peak sentinel tool. *Analytica Chimica Acta*, 778, 54-62

(査読なし)

藤谷雄二, 坂本哲夫, 三澤健太郎 (2012) ディーゼル粒子の内部混合状態を探る 1. *空気清浄*, 50 (3), 50-51

藤谷雄二 (2012) 細胞アッセイのためのエアロゾルの動力学解析. *COMSOL NEWS*, 40-41

藤谷雄二, 坂本哲夫, 三澤健太郎 (2012) ディーゼル粒子の内部混合状態を探る 2. *空気清浄*, 50 (4), 75-76

藤谷雄二 (2012) ベストポスター賞を受賞して. *エアロゾル研究*, 27 (4), 401-401

藤谷雄二 (2013) 2013年度日本エアロゾル学会各賞受賞者のことば 論文賞を受賞して. *エアロゾル研究*, 28 (4), 298

藤谷雄二 (2014) PM<sub>2.5</sub>と二次有機エアロゾル その環境動態と毒性影響. *クリーンテクノロジー*, 24 (4), 41-45

藤谷雄二 (2014) <書評>おはなし科学・技術シリーズ「ナノ材料のリスク評価のおはなし」. *環境化学*, 24 (3), 109

藤谷雄二, 川名華織, 中川真秀, 飯田健次郎, 萩 崇, 豊永悟史, 並木則和, 萩野浩之, 島田幸治郎, 村島淑子, 中島秀介, 吉見和樹 (2014) エアロゾル国際会議2014参加報告. *エアロゾル研究*, 29 (4), 288-295

伏見暁洋, 齊藤勝美, 小林伸治, 近藤美則, 藤谷雄二, 高見昭憲, 田邊 潔 (2012) 直噴ガソリン乗用車から排出される粒子状物質の化学組成. *NMCC 共同利用研究成果報文集* 19, 140-145

神成陽容, 大原利眞 (2013) オゾン生成レジームに関する法則—オゾン低減戦略のための理論として—. *大気環境学会誌*, 48 (2), 110-111

近藤美則 (2012) 最新規制対応乗用車の燃費及び排出ガスの速度等の依存性. 第28回エネルギーシステム・経済・環境コンファレンスプログラム講演論文集, 317-320

近藤美則 (2015) 車に代わる短距離の新たな移動手段になるか?—つくば市超小型モビリティ通勤実験への協力から—, *クールアースいばらき*, 一般社団法人茨城県環境管理協会, 1-2

近藤美則 (2015) 低炭素社会に求められる次世代車とは燃料電池車のこと? 茨城県環境管理協会だより, 1-6

森野 悠 (2012) 第3回アジアにおける排出インベントリに関する国際ワークショップの開催報告. *大気化学研究会ニュースレター*, (27), 4-4

新田裕史 (2014) PM<sub>2.5</sub>の健康影響と環境基準の設定. *環境情報科学*, 42 (4), 6-11

新田裕史, 上田佳代 (2014) 日本の大気環境と健康への影響. *アレルギー・免疫*, 21 (10), 21-29

新田裕史, 上田佳代 (2015) PM<sub>2.5</sub>と呼吸器疾患. *Annual Review 2015 呼吸器*, 80-84

大原利眞 (2012) 東アジアにおける広域越境大気汚染モデリングの最新動向. *水環境学会誌*, 35 (A), 6-9

大原利眞 (2012) 越境大気汚染によるPM<sub>2.5</sub>の日本への影響. *環境技術*, 41 (5), 275-278

大原利眞 (2012) 広域大気汚染研究をめぐる最近の状況と今後の展望. *日中環境産業*, 48 (9), 29-35

大原利眞 (2012) 光化学オキシダントの最近の動向と最新の知見. *ペテロテック*, 35 (11), 820-824

- 大原利眞 (2013) 最近の PM<sub>2.5</sub> 汚染問題をどのように考えるか?. 科学, 83 (4), 420-424
- 大原利眞 (2013) 中国における大気汚染の現状. 環境と公害, 43 (1), 45-50
- 大槻剛巳, 平野靖史郎 (2012) 「ナノ粒子研究の最先端」によせて. 日本衛生学雑誌, 67 (3), 375-383
- 齊藤勝美, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 田邊 潔, 佐藤 圭, 高見昭憲, 世良耕一郎 (2013) 大気エアロゾル試料の PIXE 法と ICP-MS 法による元素定量値の比較. NMCC 共同利用研究成果報文集, 20, 177-184
- Sakamoto T., Ohishi K., Miura Y., Fujii M., Misawa K., Mayama N., Riese M., Kitatsugu K., Takami A., Irei S., Hatakeyama S., Yoshino A., Murano K., Mukaida T., Bandow H., Sadanaga Y. (2013) Analysis of source apportionment and chemical transformation of particles in trans-boundary air pollution using high lateral resolution imaging SIMS. TECHNICAL REPORTS OF THE METEOROLOGICAL RESEARCH INSTITUTE No.68 2012, 59-60
- 早乙女拓海, 菊間英行, 伏見暁洋, 橋本弘樹, 鈴木孝治 (2013) 成田国際空港における大気汚染物質実測調査. 航空環境研究, (17), 1-7
- 佐藤圭, 中山智喜, 桑田幹哲, 藤谷雄二, 中澤卓也, 田島奈穂子 (2012) アメリカエアロゾル学会第 30 回年会参加報告. エアロゾル研究, 27 (1), 108-111
- 佐藤 圭, 伏見暁洋, 森野悠, 濱尚矢, 斎藤衛修, 木本成, 北山智歩 (2013) アメリカエアロゾル学会第 31 回年会参加報告. エアロゾル研究, 28 (1), 71-76
- 佐藤 圭 (2013) 特集にあたって: 多環芳香族炭化水素 (PAH) のエアロゾル化学. エアロゾル研究, 28 (1), 4
- 佐藤 圭 (2013) 「多環芳香族炭化水素 (PAH) のエアロゾル化学」関連用語. エアロゾル研究, 28 (1), 42-43
- 佐藤 圭 (2013) 放射光を利用した有機エアロゾル分析. ぶんせき, 2013 (10), 633-634
- 菅田誠治 (2013) 大気中の物質はどのように運ばれるか. 安全工学, 52 (6), 359-363
- 菅田誠治 (2014) 大気汚染物質の観測と数値予測の現状と課題. 環境情報科学, 42 (4), 1-5
- 菅田誠治 (2014) PM<sub>2.5</sub> の現状と今後の課題. モダンメディア, 60 (8), 23-26
- 菅田誠治 (2014) PM<sub>2.5</sub> の越境輸送と数値シミュレーション. 化学物質と環境, (126), 8-10
- 鈴木 勉, 佐藤祥路, 笹 圭樹, 安藤良輔, 加藤秀樹, 近藤美則 (2015) 交通ミクロシミュレータを用いたエコドライブによる CO<sub>2</sub> 削減効果分析. 第 31 回エネルギーシステム・経済・環境コンファレンス 講演論文要旨集, 77
- 高見昭憲 (2012) 粒子状物質の粒径, 化学組成の計測と応用 AMS を用いた化学組成計測. クリーンテクノロジー, 22 (12), 19-22
- Uchida R., Sato K., Imamura T. (2015) Gas-phase Ozone Reactions with Z-3-Hexenal and Z-3-Hexen-1-ol: Formation Yields of OH Radical, Propanal, and Ethane. Chemistry Letters, 44 (4), 457-458
- 上田佳代, Ng Chris Fook Sheng, 新田裕史 (2012) 光化学オキシダントの健康影響～ 20 都市研究の結果と海外の知見～. 大気環境学会誌, 47 (1), A9-A11

<書籍等（分担執筆）>

---

発表者・(刊年)・題目・編著者名・書名・出版社・頁

---

大原利眞（2012）大気への物質放出. 日本地球化学会編, 地球と宇宙の科学辞典, 朝倉書店, 203

大原利眞, 森野 悠（2012）第4章 都市と大気汚染. 神田学編, 気象研究ノート第224号「都市の気象と気候」, 日本気象学会, 85-102

大原利眞（2013）第3章 発生源と越境汚染状況. 編集企画委員会編著, PM<sub>2.5</sub>の基礎知識, 日本環境衛生センター, 26-32

Zhu T., Cayetano M.G., Chen C., Guttikunda S., Hu M., Kim Y.J., Kondo Y., Louie P.K.K., Molina L., Morino Y., Oanh N.T.K., Olaguer E.P., Permadi D.A., Pongkiatkul P., Salam A., Shao M., Sun X., Wakamatsu S., Wang H., Zawar-Reza P. (2012) CHAPTER 3-ASIA. In: Tong Zhu, Megan L. Melamed, David Parrish, Michael Gauss, Laura Gallardo Klenner, Mark Lawrence, Abdourahamane Konare and Cathy Liousse, WMO/IGAC Impacts of Megacities on Air Pollution and Climate, GAW Report No.205, World Meteorological Organization, 59-140

---

## 2 口頭発表

発表者・(暦年)・題目・学会等名称・予稿集名・頁

秋山雅行, 大塚英幸, 芥川智子, 菅田誠治, 大原利真 (2012) 北日本における PM<sub>2.5</sub> 高濃度出現状況について (1) - 水溶性成分, 炭素成分の挙動 -. 大気環境学会第 53 回年会, 同講演要旨集, 426

秋山雅行, 大塚英幸, 芥川智子, 菅田誠治, 大原利真 (2013) 積雪寒冷地特有の発生源における PM<sub>2.5</sub> 排出状況について. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 480

荒木優志, 鈴木亮太, 石田貴嗣, 中嶋吉弘, 渡邊泉, 畠山史郎, 吉野彩子, 高見昭憲 (2013) 沖縄辺戸岬におけるエアロゾル金属成分の粒径別解析. エアロゾル科学・技術研究討論会第 30 回, 同予稿集, 197-198

荒木優志, 中嶋吉弘, 渡邊 泉, 畠山史郎, 高見昭憲, 吉野彩子 (2014) 沖縄県辺戸岬と長崎県福江島におけるエアロゾル金属成分の粒径別解析. エアロゾル科学・技術研究討論会第 31 回, 同予稿集

Bandow H., Yuba A., Masui Y., Iseki S., Miyamoto S., Kato S., Kajii Y., Yonemura S., Yokouchi Y., Hatakeyama S., Takami A., Matsuki A., Iwasaka Y. (2012) Ground-based continuous monitoring and analyses of total reactive Odd-nitrogen species(NO<sub>y</sub>) and total nitrates at Three sampling sites in remote areas locates in the East China Sea and in the Japan Sea. 12th International Global Atmospheric Chemistry(IGAC)Science Conference, Abstracts, 72

坂東 博, 増井嘉彦, 紫合英樹, 定永靖宗, 米村正一郎, 畠山史郎, 村野健太郎, 高見昭憲, 坂本哲夫, 三澤健太郎, 藤井正明 (2012) NO<sub>y</sub>, ガス状汚染物質, 後方流跡線から見た福江での観測概要. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 412

坂東 博, 小林 碧, 定永靖宗, 松木 篤, 米村正一郎, 畠山史郎, 村野健太郎, 高見昭憲, 坂本哲夫, 三澤健太郎, 藤井正明 (2013) NO<sub>y</sub>・全硝酸連続観測および粒子拡散解析による発生源推定の試み. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 438

坂東 博, 橋本侑樹, 紫合英樹, 定永靖宗, 高見昭憲, 張 代洲 (2013) 天草における NO<sub>y</sub>・全硝酸の観測 - 福江との比較解析 -. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 433

坂東 博, 定永靖宗, 堀 雅貴, 高見昭憲, 村田浩太郎, 福島 聡, 張 代洲 (2014) 福江および天草における NO<sub>y</sub>・全硝酸の濃度変動と粒子濃度の比較解析. 大気環境学会第 55 回年会, 同予稿集, 364

Cieslik I., Bolek T., Wozniak M., Hirano S. (2014) The assessment of a toxicity of an active optical nanoparticles by in vitro test. NIMS Conference 2014, Abstracts, 145

藤谷雄二, 坂本哲夫, 三澤健太郎 (2012) FIB-SIMS を用いたディーゼル粒子の内部混合状態の計測. 第 11 回 PM 測定・評価部門委員会

藤谷雄二 (2012) 幹線道路近傍の大気環境中におけるナノ粒子の曝露調査. 大気環境学会健康影響分科会・関東支部健康部会共催セミナー, 同プログラム

Fujitani Y., Sakamoto T., Misawa K. (2012) Internal mixture of diesel nanoparticles from FIB-SIMS microscopy. International symposium on aerosol studies explored by electron microscopy, Program of International symposium on aerosol studies explored by electron microscopy

藤谷雄二, 菅谷 裕, 橋口真宜, 古山昭子, 平野靖史郎, 高見昭憲 (2012) 細胞曝露装置内における粒子沈着率の評価. エアロゾル科学・技術研究討論会第 29 回, 同予稿集, 49-50 <ベストポスター賞受賞>

藤谷雄二, 坂本哲夫, 三澤健太郎 (2012) 大気中ナノ粒子の内部混合状態の測定. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 524

藤谷雄二 (2012) 小規模チャンバーによる二次生成有機エアロゾルの発生手法確立と毒性影響評価. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 166-167

藤谷雄二, 小林伸治, 近藤美則, 伏見暁洋, 斎藤勝美, 高見昭憲, 田邊 潔 (2012) 最新直噴ガソリン乗用車から排出される微粒子の有効密度測定. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 223

藤谷雄二, 菅谷 裕, 古山昭子, 平野靖史郎, 高見昭憲, 橋口真宜 (2012) 気液界面細胞曝露装置内における粒子沈着率の評価. COMSOL CONFERENCE TOKYO 2012

藤谷雄二, 佐藤 圭, 古山昭子, 伏見暁洋, 伊藤智彦, 田邊 潔, 平野靖史郎, 今村隆史, 高見昭憲 (2013) 二次生成有機エアロゾルの小規模チャンバーによる粒子発生法と毒性評価. エアロゾル科学・技術研究討論会第30回, 同予稿集, 29-30

藤谷雄二, 佐藤 圭, 中山智喜, 平野靖史郎, 高見昭憲 (2013) ディーゼル排気由来二次生成粒子のチャンパー実験: 生成量と物理的・化学的性状. 大気環境学会第54回年会, 同予稿集, 354

藤谷雄二 (2013) 粒子形態情報を加味したディーゼルナノ粒子のヒト健康リスク評価. 大気環境学会第54回年会, 同予稿集, 194-195

Fujitani Y., Sugaya Y., Hashiguchi M., Furuyama A., Hirano S., Takami A. (2013) Determination of nanoparticle deposition efficiency in the air-liquid interface cell exposure system. 6th International Symposium on Nanotechnology, Occupational and Environmental Health, Abstracts, 91-91

Fujitani Y., Sugaya Y., Furuhashi A., Tanabe K., Takami A. (2013) Determination of vapor pressures of dicarboxylic acids using tandem APM measurement. 8th Asian Aerosol Conference, Abstracts, 101

Fujitani Y. (2014) Determination of Vapor Pressure of Adipic Acid Using Tandem APM Measurement. 1st Kanomax Aerosol Workshop, 1st Kanomax Aerosol Workshop

藤谷雄二, 菅谷 裕, 古濱彩子, 田邊 潔, 高見昭憲 (2014) タンデム APM 法によるアジピン酸の蒸気圧測定. エアロゾル科学・技術研究討論会第31回, 同予稿集

Fujitani Y., Sugaya Y., Hashiguchi M., Furuyama A., Hirano S., Takami A. (2014) Particle deposition efficiency in air-liquid interface of a cell exposure chamber. 2014 International Aerosol Conference, Abstracts

藤谷雄二, 佐藤 圭, 中山智喜, 古山昭子, 平野靖史郎, 高見昭憲 (2014) ディーゼル排気由来二次生成粒子のチャンパー実験2: 毒性評価. 大気環境学会第55回年会, 同予稿集, 284

藤谷雄二, 佐藤圭, 伏見暁洋, 斎藤勝美, 萩野浩之, 熊谷貴美代, 古山昭子, 平野靖史郎, 田邊潔, 高見昭憲 (2014) 2013年夏季関東における微小粒子状物質の粒子酸化能の評価. 大気環境学会第55回大会, 同予稿集, 214

藤谷雄二, 菅谷 裕, 古山昭子, 平野靖史郎, 高見昭憲, 橋口真宜 (2014) 気液細胞曝露装置内における粒子沈着率の評価. COMSOL CONFERENCE TOKYO 2014

藤谷雄二, 齊藤勝美, 近藤美則, 伏見暁洋, 高橋克行, 山田裕之, 横田久司, 田邊潔, 小林伸治, 世良耕一郎 (2015) 道路沿道環境におけるPM<sub>2.5</sub>およびナノ粒子におよぼす要因. 第21回NMCC共同利用研究成果発表会, 同予稿集, 16

藤原 大, 定永靖宗, 増井嘉彦, 畠山史郎, 池田圭輔, 渡邊 泉, 新垣雄光, 加藤俊吾, 高見昭憲, 清水 厚 他 (2012) 東シナ海上空における航空機を用いた窒素酸化物種の観測及び動態解析. 「東アジアにおけるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト」シンポジウム, 同予稿集, 67

藤原 大, 定永靖宗, 増井嘉彦, 弓場彬江, 坂東 博, 畠山史郎, 池田圭輔, 島田幸治郎, 古賀美也子, 田辺美保, 渡邊 泉, 新垣雄光, 加藤俊吾, 梶井克純, 張 代洲, 原和崇, 藤本敏行, 瀬戸章文, 奥山喜久夫, 萩 崇, 李 信榮, 高見昭憲, 清水 厚 (2012) 東シナ海上空での窒素酸化物種の航空機観測一季節ごとの比較. エアロゾル科学・技術研究討論会第29回, 同予稿集, 61-62

Fujiwara H., Masui Y., Yuba A., Hatakeyama S., Ikeda K., Shimada K., Watanabe I., Arakaki T., Kato S., Kajii Y., Zhang Daizhou, Hara K., Fujimoto T., Seto T., Okuyama K., Ogi T., Lee Sin-Young, Takami A., Shimizu A., Bandow H. (2012) Aerial observation and Analyses of Nitrogen Compounds over the East China Sea. 12th International Global Atmospheric Chemistry(IGAC)Science Conference, Abstracts, 74

藤原 大, 定永靖宗, 増井嘉彦, 弓場彬江, 畠山史郎, 池田圭輔, 島田幸治郎, 古賀美也子, 田辺美保, 渡邊 泉, 新垣雄光, 加藤俊吾, 梶井克純, 張 代洲, 原 和崇, 藤本敏行, 瀬戸章文, 奥山喜久夫, 萩 崇, 李 信榮, 高見昭憲, 清水 厚, 坂東 博 (2012) 窒素酸化物種についての東シナ海上空での航空機観測. 大気環境学会第53回年会, 同予稿集, 414

古濱彩子, 白石寛明, 今村隆史, 武次徹也 (2012) アミンとO<sub>3</sub>またはOHとの複合体の構造予測. 理論化学討論会第15回, 同予稿集, 103

Furuhama A., Imamura T., Maeda S., Taketsugu T. (2013) Systematic exploration of reaction pathways between CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> and OH. 29th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Abstract, 91

古山昭子, 藤谷雄二, 高見昭憲, 平野靖史郎 (2012) 二次生成有機エアロゾル (SOA) の細胞毒性. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 184

古山昭子, 藤谷雄二, Tin-Tin-Win-Shwe, 曾根秀子, 平野靖史郎 (2013) ディーゼル排気由来 SOA の動脈硬化への影響. 大気環境学会第 54 回年会, 同講演要旨集, 533

Furuyama A., Fujitani Y., Hirano S. (2013) Pulmonary and extrapulmonary responses to acute inhalation of multi-walled carbon nanotubes in mice. 6th International Symposium on Nanotechnology, Occupational and Environmental Health, Abstracts, 14

古山昭子, 佐藤 圭, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 吉野彩子, 森野 悠, 田邊 潔, 小林伸治, 平野靖史郎, 萩野浩之, 長谷川就一, 熊谷貴美代, 齊藤勝美, 高見昭憲 (2014) 2013 年夏季関東における粒子状物質を曝露した細胞の酸化ストレス反応. 大気環境学会第 55 回大会, 同予稿集, 215

古山昭子, 藤谷雄二, 菅谷 裕, 平野靖史郎 (2014) 気液界面曝露によるディーゼル排気由来二次生成粒子の培養細胞への影響評価. 大気環境学会第 55 回年会, 同予稿集, 498

古山昭子, 藤谷雄二, 平野靖史郎 (2015) ディーゼル排気ナノ粒子吸入曝露によるマウスの脂質代謝への影響. 第 85 回日本衛生学会学術総会, 同講演集, 70 (supplement), S184

Fushimi A., Hasegawa S., Kondo M., Uchida M., Tanabe K., Morino Y., Ohara T., Xu J., Hao J. (2012) Radiocarbon (<sup>14</sup>C) measurements in fine particles at Beijing and Tokyo. Joint Seminar on Formation Mechanism of Photochemical ozone, VOCs, PM<sub>2.5</sub> in Mexico, China and Japan, Abstracts, 36

伏見暁洋, 齊藤勝美, 林健太郎, 須藤重人, 小野圭介, 常田雅子, 藤谷雄二, 世良耕一郎, 高見昭憲, 田邊 潔 (2012) 農作物残渣の野焼きで排出される粒子の化学組成. NMCC 共同利用研究成果発表会第 17 & 18 回, 同予稿集, 17

伏見暁洋 (2012) 国立環境研究所における PM 研究 ～ナノ粒子と二次生成粒子, 高感度有機分析法の開発～. 富士通クオリティ・ラボ (株) 微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) セミナー: 質量測定から成分分析の実際と今後の動向, 同予稿集

伏見暁洋, 齊藤勝美, 林健太郎, 須藤重人, 小野圭介, 梶浦雅子, 藤谷雄二, 世良耕一郎, 高見昭憲, 田邊 潔 (2012) 農作物残渣の野焼きで排出される粒子の排出係数と化学組成. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 517

Fushimi A., Hashimoto S., Ieda T., Ochiai N., Takazawa Y., Fujitani Y., Tanabe K. (2012) Development of Thermal Desorption - Comprehensive Two-Dimensional Gas Chromatography Coupled with Tandem Mass Spectrometry (TD-GC × GC-MS/MS) for Determination of Trace Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Their Derivatives in Diesel Exhaust and Atmosphere. AAAR (American Association for Aerosol Research) 31st Annual Conference, Abstract book, 2IM4

伏見暁洋 (2013) 夏の関東における大気中での微小粒子の起源と動態: 化学組成と <sup>14</sup>C の測定に基づく統計解析とシミュレーションからわかったこと. 平成 24 年度関東地方大気環境対策推進連絡会浮遊粒子状物質調査会議講演会, 講演要旨集, 9-12

伏見暁洋, 齊藤勝美, 小林伸治, 近藤美則, 藤谷雄二, 高見昭憲, 田邊 潔 (2013) 直噴ガソリン乗用車から排出される粒子状物質の化学組成. NMCC 共同利用研究成果発表会第 19 回, 同予稿集, 14

伏見暁洋, 齊藤勝美, 小林伸治, 近藤美則, 藤谷雄二, 高見昭憲, 田邊 潔 (2013) 直噴ガソリン乗用車の粒子状物質排出特性 - 粒径別化学組成と形態 -. 自動車技術会 2013 年春季大会, 同学術講演会前刷集, 85-13(434-20135506), 15-18

伏見暁洋, 千葉真紀, 田邊 潔 (2013) 窒素をキャリアーガスに用いた熱分離・光学補正式炭素分析法の検討. 大気環境学会年会第 54 回, 同講演要旨集, 211

伏見暁洋 (2013) 夏季の関東における一次粒子・二次粒子の起源 (化石燃料/生物) と動態. 酸性雨問題研究会シンポジウム「二次生成粒子の起源について」第 39 回, 同予稿集, 20-23

伏見暁洋, 近藤美則, 小林伸治, 藤谷雄二, 齊藤勝美, 高見昭憲, 田邊 潔 (2014) 直噴ガソリン乗用車の粒子状物質排出特性 - 粒子重量・化学組成と燃料・気温との関係 -. 自動車技術会 2014 年春季大会, 前刷集, (30-14), 23-26

伏見暁洋, 田邊 潔, 佐藤 圭, 藤谷雄二, 橋本俊次, 高見昭憲, 齊藤勝美 (2014) 2013 年夏季関東における微小粒子状物質の広域観測 - 炭素成分と無極性有機成分の測定結果 -. エアロゾル科学・技術研究討論会第 31 回, 同予稿集

伏見暁洋, 齊藤勝美, 佐藤 圭, 藤谷雄二, 古山昭子, 熊谷貴美代, 萩野浩之, 田邊 潔, 高見昭憲 (2014) 2013 年夏季関東における微小粒子状物質中の炭素成分の観測. 大気環境学会第 55 回年会, 講演要旨集, 213

伏見暁洋, 近藤美則, 小林伸治, 藤谷雄二, 齊藤勝美, 高見昭憲, 田邊 潔 (2014) 直噴ガソリン乗用車から排出される粒子の特徴: 粒子重量と化学組成を中心に. 大気環境学会第 55 回年会, 講演要旨集, 184-185

伏見暁洋, 千葉真紀, 田邊 潔 (2014) 窒素をキャリアーガスに用いた熱分離・光学補正式炭素分析法の検討 (2). 大気環境学会第 55 回年会, 講演要旨集, 421

伏見暁洋, 齊藤勝美, 近藤美則, 藤谷雄二, 後藤忠夫, 速水修二, 小林伸治, 田邊 潔, 世良耕一郎 (2015) 最近のガソリン・LPG・ディーゼル乗用車の排気粒子とエンジンオイルに含まれる元素の特徴. 第 21 回 NMCC 共同利用研究成果発表会, 同予稿集, 16

五藤大輔, 中島映至, Tie Dai, 打田純也, 清水達也, 佐藤陽祐, 佐藤正樹, 富田浩文, 八代 尚, 原 政之, 鈴木健太郎, 竹村俊彦, 須藤健吾, 森野 悠, 大原利眞, 丹波洋介, 滝川雅之, 鶴野伊津志, 宮地あかね, 三澤翔大, YingLuo Li, 植松光夫, 鶴田治雄, 井上豊志郎 (2012) Stretched-NICAM-Chem の実験とその応用 (平成 24 年度中間報告). 第 3 回 SALSALSA ワークショップ

五藤大輔, 中島映至, Tie Dai, 打田純也, 清水達也, 佐藤陽祐, 高見昭憲, 上田佳代, Ng Chris Fook Sheng, 佐藤正樹, 富田浩文, 八代 尚, 原 政之, 鈴木健太郎, 竹村俊彦, 須藤健吾, 森野 悠, 大原利眞, 丹波洋介, 滝川雅之, 鶴野伊津志, 宮地あかね, 三澤翔大, 植松光夫, 鶴田治雄, 井上豊志郎 (2012) 全球から領域スケールに対応した大気化学モデル実験とその応用. 第 18 回大気化学討論会

五藤大輔, 中島映至, Tie Dai, 打田純也, 清水達也, 佐藤陽祐, 佐藤正樹, 富田浩文, 八代 尚, 原 政之, 鈴木健太郎, 竹村俊彦, 須藤健吾, 森野 悠, 大原利眞, 丹波洋介, 滝川雅之, 鶴野伊津志, 宮地あかね, 三澤翔大, 植松光夫, 鶴田治雄, 井上豊志郎 (2012) SALSALSA プロジェクトにおける夏季関東領域での大気微量物質シミュレーション. 日本気象学会 2012 年秋季大会

五藤大輔, 大原利眞, 中島映至, Tie Dai, 竹村俊彦, 梶野瑞王, 松井仁志, 高見昭憲, 畠山史郎, 青木一真, 杉本伸夫, 清水 厚 (2013) 多角的観測とモデル相互比較を通じたアジア域における硫酸塩エアロゾル分布の不確実性評価. 日本気象学会 2013 年秋季大会

Goto D., Ohara T., Nakajima T., Dai T., Takemura T., Kajino M., Matsui H., Takami A., Hatakeyama S., Aoki K., Sugimoto N., Shimizu A. (2013) Model intra-comparison of transboundary sulfate loading over springtime east Asia. 2013 AGU Fall Meeting

Goto D., Nakajima T., Takemura T., Ohara T. (2013) Simulation of aerosol spatial distribution over Asia using a global aerosol model. International Workshop on Inventory, Modeling and Climate Impacts of Greenhouse Gas emission (GHG's)

五藤大輔, 中島映至, 上田佳代, Ng Chris Fook Sheng, 村田 諒, SALSALSA project team (2014) 都市における大気汚染物質シミュレーションとその健康影響評価. 日本気象学会 2014 年春季大会

Goto D., Nakajima T., Murata R., Yashiro H., Sudo K., Dai T., Misawa S., Uchida J., Ohara T., MEXT/RECCA/SALSALSA Project Team (2014) Development of simulating aerosols and tropospheric ozone in megacities using a global nonhydrostatic model with a stretched-grid system. IGAC2014

Goto S., Nakajima T., Dai T., Yashiro H., Sudo K., Murata R., Misawa S., Uchida J., Inoue T., Tsuruta H., Satoh M., Tomita H., Ohara T., MEXT/RECCA/SALSALSA Project Team (2014) Simulation of atmospheric aerosols and ozone around Tokyo using a global nonhydrostatic model with a stretched-grid system. Asia Oceania Geosciences Society 2014

五東弘昭, 齊藤弘樹, 木浪由菜, 藤谷雄二, 榎原和久 (2014) ラジカルスカベンジング剤を用いた気相中の反応活性種量を測定する手法の開発. 第 23 回環境化学討論会, 同予稿集, 328-329

濱野智明, 高見昭憲, 伊禮 聡, 坂本哲夫, 間山憲仁, 畠山史郎, 吉野彩子, 坂東 博, 定永靖宗, 藤井正明, 三澤健太郎, 村野健太郎 (2012) 長崎福江島におけるフィルターパック法による粗大粒子と微小粒子の観測 (?). 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 408

長谷川就一, 山神真紀子, 菅田誠治 (2013) 地方環境研究所の共同による PM<sub>2.5</sub> 観測. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 99-101

橋本侑樹, 定永靖宗, 紫合英樹, 高見昭憲, 大原利眞, 坂東 博 (2013) 長崎県福江観測サイトと常監局データ比較 - オゾンの広域輸送について -. 大気環境学会近畿支部第 2 回支部研究発表会

橋本貴世, 山神真紀子, 高士昇吾, 松岡靖史, 野口邦雅, 佐久間隆, 長谷川就一, 菅田誠治 (2014) 2013 年 8. 9 月における PM<sub>2.5</sub> 高濃度事例の解析. 第 55 回大気環境学会年会, 同講演要旨集, 269

畠山史郎, 池田圭輔, 高見昭憲, 村野健太郎, 坂東 博 (2012) 20 年間の航空機観測に見る東シナ海上空の大気汚染のトレンド. 日本地球惑星科学連合 2012 年大会, 同予稿集

畠山史郎, 島田幸治郎, 古賀美也子, 田辺美保, 定永靖宗, 藤原 大, 坂東 博, 張 代洲, 村田浩太郎, 奥山喜久夫, 萩 崇, 藤本敏行, 瀬戸章文, 加藤俊吾, 梶井克純, 清水 厚, 高見昭憲, 新垣雄光 (2012) 東アジアからの越境大気汚染の航空機観測 - 2012 年 3 月の観測結果. エアロゾル科学・技術研究討論会第 29 回, 同予稿集, 265-266

Hatakeyama S., Murano K., Bandow H., Takami A. (2012) 20 Year's aerial observations of atmospheric pollutants over the seas between Japan and Asia Continent. The 12th International Global Atmospheric Chemistry(IGAC)Science Conference, Abstracts, 68

畠山史郎, 島田幸治郎, 古賀美也子, 田辺美保, 定永靖宗, 藤原 大, 坂東 博, 張 代洲, 瀬戸章文, 加藤俊吾, 梶井克純, 清水 厚, 杉本伸夫, 高見昭憲, 新垣雄光 (2012) 2012 年 3 月の東シナ海上空における長距離越境大気汚染の航空機観測 - 観測概要およびオゾン, SO<sub>2</sub>, エアロゾルの濃度. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 413

古賀美也子, 畠山史郎, 島田幸治郎, 田辺美保, 定永靖宗, 藤原 大, 坂東 博, 張 代洲, 瀬戸章文, 加藤俊吾, 梶井克純, 清水 厚, 杉本伸夫, 高見昭憲, 新垣雄光 (2012) 2012 年 3 月の東シナ海上空における長距離越境大気汚染の航空機観測 - 金属成分の分布と変化. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 254

Hatakeyama S., Suzuki R., Koba K., Yoshino A., Takami A. (2014) Source Apportionment and Elucidation of Chemical Transformation Path Ways for Particulate Nitrate by use of 15N and 18O Isotope Analyses. Asia Oceania Geosciences Society 11th Annual Meeting, Abstracts, 92

畠山史郎, 鈴木亮太, 木庭啓介, 高見昭憲, 吉野彩子 (2014) 窒素および酸素の同位体比を用いたエアロゾル中の硝酸塩の解析. エアロゾル科学・技術研究討論会第 31 回, 同予稿集

畠山史郎, 鈴木麻友美, 荒木優志, 鈴木亮太, 湯本弥生, 吉野彩子, 高見昭憲, 楊 小陽, 陳 炫, 孟 凡 (2014) 中国と沖縄におけるエアロゾルイオン成分・金属成分の濃度比較. 大気環境学会第 55 回年会, 同予稿集, 431

林健太郎, 小野圭介, 梶浦雅子, 須藤重人, 伏見暁洋, 齊藤勝美, 藤谷雄二, 田邊 潔 (2012) 作物残渣の焼却に伴うガス・無機エアロゾルの発生: 残渣の含水率の影響. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 516

戸次加奈江, 伊藤智彦, 藤谷雄二, 古山昭子, 平野靖史郎 (2014) 肺上皮細胞における二次生成有機エアロゾルが示す酸化ストレスに関する研究. 日本薬学会第 134 年会, 同予稿集, (3), 231

戸次加奈江, 伊藤智彦, 吉田安宏, He Cuiying, He Miao, 平野靖史郎, 櫻田尚樹, 市瀬孝道 (2015) 中国の都市大気汚染が示す毒性影響における生物由来活性物質の関与. 第 9 回大気バイオエアロゾルシンポジウム, 同予稿集, 13-14

秀森丈寛, 中山智喜, 松見 豊, 藪下彰啓, 大橋勝文, 兼保直樹, 伊禮 聡, 高見昭憲, 吉野彩子, 鈴木亮太, 湯本弥生, 畠山史郎 (2013) 大陸から飛来する PM<sub>2.5</sub> に含まれる重金属成分の挙動~個別粒子レーザーイオン化質量分析とフィルター採取による化学分析~. 日本地球惑星科学連合 2013 年大会, 同予稿集, AAS21-10

秀森丈寛, 中山智喜, 松見 豊, 藪下彰啓, 大橋勝文, 伊禮 聡, 高見昭憲, 兼保直樹, 吉野彩子, 鈴木亮太, 湯本弥生, 畠山史郎 (2013) 2010年長崎県福江島におけるアジア大陸から輸送されたエアロゾルの個別粒子質量分析-重金属およびヒ素を含むエアロゾル粒子の分析. エアロゾル科学・技術研究討論会第30回, 同予稿集, 199-200

秀森丈寛, 中山智喜, 松見 豊, 藪下彰啓, 大橋勝文, 三好猛雄, 伊禮 聡, 高見昭憲, 兼保直樹, 吉野彩子, 鈴木亮太, 湯本弥生, 畠山史郎 (2014) 福江島で観測された越境輸送 PM<sub>2.5</sub> の個別粒子分析と発生源解析. エアロゾル科学・技術研究討論会第31回, 同予稿集

Hidemori T., Nakayama T., Matsumi Y., Yabushita A., Ohashi M., Takami A., Irei S., Miyoshi T., Kaneyasu N., Hatakeyama S., Yoshino A., Yumoto Y., Suzuki R. (2014) Characterization of Long-Range Transported Aerosol on Fukue Island, Japan, Using Real-Time Mass Spectrometers and Off-Line Chemical Analysis. International Aerosol Conference 2014, Abstracts, 160

樋口篤志, 川上 聖, 村上暁信, 増富祐司, 高見昭憲 (2014) 全国合成国土数値情報土地利用メッシュラスターデータセット. 日本地球惑星科学連合 2014年大会, 同予稿集

日置 正, 谷口延子, 山本勝彦, 中戸靖子, 山本重一, 山崎敬久, 長谷川就一, 三田村徳子, 田村 圭, 家合浩明, 佐川竜也, 菅田誠治, 大原利眞 (2012) 2012年1月中旬に観測された PM<sub>2.5</sub> 高濃度イベントにおける無機元素の挙動. 大気環境学会第53回年会, 同講演要旨集, 423

日置 正, 谷口延子, 菅田誠治 (2014) 無機元素をトレーサーとした日本海沿岸域における PM<sub>2.5</sub> 越境汚染の解析. 第55回大気環境学会年会, 同講演要旨集, 196

平野靖史郎, 古山昭子, 藤谷雄二 (2012) 二次生成エアロゾル (SOA) を曝露した細胞における酸化ストレス応答. 日本衛生学会第82回学術総会, 同予稿集, 67(2), 264

平野靖史郎, 古山昭子 (2012) カーボンナノチューブによる発がんのリスク. 癌治療学会第50回, 同講演集, 47(3), 535

平野靖史郎 (2014) 大気環境と活性酸素. 日本呼吸器学会第54回学術講演会, 同予稿集, 3, 24

平野靖史郎, 古山昭子, 菅野さな枝 (2014) 繊維状粒子状物質によるリソゾームの傷害性. 日本衛生学会第84回学術総会, 日本衛生学雑誌, 69, S248

廣川 淳, 坂本陽介, 猪俣 敏, 佐藤 圭 (2012) イソプレネーオゾン反応による二次有機エアロゾル生成. 大気化学討論会第18回, 同予稿集, 62

Ichihara S., Li W., Omura S., Fujitani Y., Liu Y., Wang Q., Hiraku Y., Hisanaga N., Ding X., Kobayashi T., Ichihara G. (2013) Effects on Respiratory and Cardiovascular Systems in Workers Handling Titanium Dioxide Particles. 6th International Symposium on Nanotechnology, Occupational and Environmental Health, Abstracts, 47-47

飯島明宏, 山本勝彦, 山本重一, 谷口延子, 秋山雅行, 山崎敬久, 長谷川就一, 三田村徳子, 長田健太郎, 田村圭, 家合浩明, 佐川竜也, 菅田誠治, 大原利眞 (2012) 多変量解析による PM<sub>2.5</sub> 高濃度イベントの解釈. 大気環境学会第53回年会, 同講演要旨集, 420

飯島明宏, 菅田誠治, 大原利眞 (2012) 各種発生源から大気に排出される粒子状物質の化学組成プロファイリング. 大気環境学会第53回年会, 同講演要旨集, 428

飯島明宏, 池盛文数, 長谷川就一, 菅田誠治 (2013) PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与と評価の現状と展望. 大気環境学会第54回年会, 同予稿集, 102-105

飯島明宏, 池盛文数, 長谷川就一, 菅田誠治 (2014) PMF および CMB モデルを用いた西日本における PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与率の推定. 第55回大気環境学会年会, 同講演要旨集, 295

池田圭輔, 畠山史郎, 村野健太郎, 坂東 博, 高見昭憲 (2012) 20年間の航空機観測による越境大気汚染の長期トレンド. 日本化学会第92春季年会, 同講演予稿集, 395

池盛文数, 浅川大地, 中島寛則, 菅田誠治 (2014) 名古屋市における PM<sub>2.5</sub> 中の WSOC, シュウ酸およびレボグルコサンの季節変動. 第55回大気環境学会年会, 同講演要旨集, 199

Imamura T. (2012) Atmospheric Reactions of Organic Amines. 28th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Abstracts, 50-51

Inomata S., Tanimoto H., Sato K., Hirokawa J., Sakamoto Y. (2012) Analysis of organic components in secondary organic aerosols by proton transfer reaction mass spectrometry and discussion on oxidation mechanism of isoprene. International Symposium on Aerosols in East Asia and Their Impacts on Plants and Human Health, Abstracts, 80-81

Inomata S., Tanimoto H., Sato K., Hirokawa J., Sakamoto Y. (2013) Analysis of organic components in secondary organic aerosols by chemical ionization mass spectrometry and discussion on mechanism of isoprene ozonolysis. 6th International Conference on Proton Transfer Reaction Mass Spectrometry and its Applications, Abstracts, 114-117

猪俣 敏, 廣川 淳, 坂本陽介, 谷本浩志, 佐藤 圭, 奥村智憲, 東野 達 (2013) 化学イオン化質量分析法を用いたイソプレンのオゾン酸化による二次有機エアロゾル生成機構の考察. 日本地球惑星科学連合 2013 年大会, 同予稿集, AAS21-13

猪俣 敏, 廣川 淳, 坂本陽介, 谷本浩志, 佐藤 圭, 奥村智憲, 東野 達 (2013) 化学イオン化質量分析法を用いたイソプレンのオゾン酸化で生成する二次有機エアロゾルの生成機構の考察. 日本地球化学会第 60 回年会, 同予稿集, 38-39

猪俣 敏, 伏見暁洋, 佐藤 圭, 藤谷雄二, 山田裕之 (2014) ディーゼル車の後処理によるガス状及び粒子状ニトロ有機化合物の排出の違い. 第 20 回大気化学討論会, 同予稿集, 39

石田貴嗣, 吉野彩子, 佐藤 圭, 高見昭憲, 畠山史郎 (2012) 福江・辺戸岬への置換 PAH, キノン類の輸送. 「東アジアにおけるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト」シンポジウム, 同予稿集, 57

石田貴嗣, 島田幸治郎, 畠山史郎, 高見昭憲, 伏見暁洋 (2013) 東アジアから沖縄に飛来する炭素質エアロゾルの発生源地と受容地での比較. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 298

石井克巳, 藤谷雄二 (2012) 道路沿道における冬季大気中ナノ粒子の粒径分布調査(II). 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 523

石井克巳, 藤谷雄二 (2013) 道路沿道における夏季および冬季大気中ナノ粒子の粒径分布調査. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 497

石井克巳, 藤谷雄二 (2014) 千葉県の幹線道路沿道における夏季および冬季大気中ナノ粒子の粒径分布調査. 大気環境学会第 55 回年会, 同予稿集, 187-188

板野泰之, 菅田誠治, 大原利真 (2012) 特殊な発生源からの VOC 排出実態調査. 大気環境学会第 53 回年会, 同講演要旨集, 429

板野泰之, 森田浩行, 山本勝彦, 長田健太郎, 福田照美, 菅田誠治 (2013) 地方環境研究所の共同による光化学オキシダントの挙動解析. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 94-95

伊藤智彦, 戸次加奈江, 平野靖史郎 (2014) 二次生成有機エアロゾルの構成成分による酸化ストレス反応の誘導. フォーラム 2014 衛生薬学・環境トキシコロジー, 講演要旨集, 172

伊藤智彦, 戸次加奈江, 藤谷雄二, 平野靖史郎 (2015) 二次生成有機エアロゾルによるマクロファージへの影響. 日本薬学会第 135 年会, 同予稿集, 181

Kajino M., Igarash Y., Fujitani Y. (2014) SENSITIVITY OF REGIONAL DEPOSITION TO SIZE DISTRIBUTION AND HYGROSCOPICITY OF AEROSOLS. Protecting Public Health in a Changing Environment, Abstracts, 25

梶野瑞王, 五十嵐康人, 藤谷雄二 (2014) 粒径分布と吸湿性の気道沈着率への影響. エアロゾル科学・技術研究討論会第 31 回, 同予稿集

金谷有剛, 松井仁志, 竹谷文一, 駒崎雄一, Xiole Pan, 山地一代, 池田恒平, 高見昭憲, 谷本浩志, 近藤 豊, Zifa Wang, Daeil Kang, Limseok Chang (2014) 日中韓広域大気汚染集中観測における有機エアロゾル・PM<sub>2.5</sub>濃度のモデル再現性評価: VBS アプローチによる改善. 第 20 回大気化学討論会, 同講演要旨集, 56

Kaneyasu N., Takami A., Sato K., Yamamoto S., Kim Y.-P., Kim I.-S. (2012) Characteristics of heavy metals in PM<sub>2.5</sub> at Fukuoka, Japan, based on daily analysis of year-round samples. European Aerosol Conference 2012, Abstracts

Kato H., Ando R., Kondo Y., Suzuki T., Matsushashi K., Kobayashi S. (2013) Comparative measurements of the eco-driving effect between electric and internal combustion engine vehicles. 27th international Battery, Hybrid and Fuel Cell Electric Vehicle Symposium, Abstracts

兼保直樹, 佐藤 圭, 高見昭憲, 松 見豊 (2012) 健康影響が懸念される PM<sub>2.5</sub> 粒子状物質のわが国風上域での動態把握. 「東アジアにおけるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト」シンポジウム, 同予稿集, 9

兼保直樹, 高見昭憲, 佐藤 圭, 山本重一, 林 政彦, 原圭一郎 (2012) 福江島および福岡における PM<sub>2.5</sub> 主要成分の長期観測結果比較. エアロゾル科学・技術研究討論会第 29 回, 同予稿集, 253-254

兼保直樹, 佐藤 圭, 高見昭憲, 松見 豊 (2012) 健康影響が懸念される PM<sub>2.5</sub> 粒子状物質のわが国風上域での動態把握. 平成 24 年度第 1 回全体会議, 同予稿集, 15

兼保直樹, 高見昭憲, 佐藤圭, 山本重一, 吉野彩子, 畠山史郎 (2012) 九州北部都市域および福江島において長期観測された PM<sub>2.5</sub> 主要成分. 大気環境学会年会第 53 回, 同予稿集, 418

兼保直樹, 山本重一, 奥田知明, 高見昭憲, 佐藤 圭, 吉野彩子, 松見 豊, 秀森丈寛, 畠山史郎 (2013) 福岡における PM<sub>2.5</sub> 中金属成分の日毎・長期観測—2010～2012 年度—. エアロゾル科学・技術研究討論会第 30 回, 同予稿集, 7-8

兼保直樹, 佐藤 圭, 松見 豊, 高見昭憲 (2013) 健康影響が懸念される PM<sub>2.5</sub> 粒子状物質のわが国風上域での動態把握. 東アジアにおけるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト 平成 20 年度～平成 24 年度科学研究費助成事業, 同研究成果要旨集, 11-11

金 勢穎, 瀬戸章文, 大谷吉生, 高見昭憲, 兼保直樹, 奥山喜久夫, 藤本敏行, 高村民雄, 畠山史郎 (2012) 2012 年 3 月に福江島で観測されたナノ粒子の生成と生長. エアロゾル科学・技術研究討論会第 29 回, 同予稿集, 255-256

KIM N.K., Kim Y.P., Morino Y., Kurokawa J., Ohara T. (2012) Comparisons of NO<sub>x</sub> Emissions over South Korea. 2012 IGAC conference, Abstracts, 194-195

Kim S., Kitayama C., Takahara K., Seto T., Otani Y., Takami A., Miyoshi T., Yoshino A. (2014) Analysis of Water-Soluble Anionic Components in Long-Range Transported Aerosol and Newly-Formaed Nanoparticles. International Aerosol Conference 2014, Abstracts, 29

木浪由菜, 斎藤弘樹, 藤谷雄二, 五東弘昭, 榊原和久 (2014) ラジカル捕獲剤を用いた環境中の天然物, 人工物由来の活性ラジカル種の捕獲と分析. 日本化学会第 94 春季年会, 同予稿集, 1100

木浪由菜, 斎藤弘樹, 五東弘昭, 榊原和久, 藤谷雄二 (2014) ラジカル捕獲剤を用いた大気中の反応活性種の捕獲と分析. エアロゾル科学・技術研究討論会第 31 回, 同予稿集

Kitayama C., Kim S., Otani Y., Takami A., Seto T. (2013) Size dependent chemical analysis of water-soluble ionic compounds in atmospheric nanoparticles. 8th Asian Aerosol Conference, Abstracts, 23

小林伸治, 近藤美則, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 齊藤勝美, 高見昭憲, 田邊 潔 (2012) 最新直噴ガソリン乗用車からの粒子状物質排出特性. 自動車技術会 2012 年春季大会, 同学術講演会前刷集, (79-12), 1-6

小林伸治, 田邊 潔, 高見昭憲, 大原利眞 (2012) 自動車からの燃料蒸発ガス排出量の推計. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 472

小林伸治, 田邊 潔, 高見昭憲, 大原利眞 (2013) 我が国における自動車からの大気汚染物質排出量推計の現状と課題. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 542

近藤美則 (2012) 電気自動車の現実。確実なことと不安定なこと。革新的研究プログラム講演会 x 筑波大学第 95 回リスク工学研究会

近藤美則, 加藤秀樹, 松橋啓介 (2012) 最新規制対応乗用車の燃費及び排出ガスの速度等の依存性. エネルギーシステム・経済・環境コンファレンス第 28 回, 同講演論文要旨集, 92

近藤美則, 小林伸治 (2012) 最新直噴ガソリン車の燃費改善効果. 自動車技術会 2012 年春季大会, 同学術講演会前刷集, (50-12), 9-12

Kondo Y., Kato H., Karakama Y. (2012) Environmental load reduction of substitution of electric vehicles by taking geographical features into account. The 26th International Battery, Hybrid and Fuel Cell Electric Vehicle Symposium, Abstracts, 347-349

近藤美則, 加藤秀樹 (2012) 走行環境が自動車排ガス・燃費に及ぼす影響の考察. 大気環境学会第53回年会, 同予稿集, 474

近藤美則, 加藤秀樹, 安藤良輔, 西堀泰英, 鈴木 勉 (2012) エコドライブ活動による日常の運転特性の変化に関する研究. 2012年自動車技術会秋季学術講演会, 同予稿集, 89 (12), 1-6

近藤美則, 小林伸治, 伏見暁洋, 齊藤勝美, 藤谷雄二, 高見昭憲, 田邊 潔 (2013) 直噴ガソリン乗用車の粒子状物質排出特性. 自動車技術会2012年春季大会, 同学術講演会前刷集, 11-14

近藤美則, 小林伸治, 伏見暁洋, 齊藤勝美, 藤谷雄二, 高見昭憲, 田邊 潔 (2013) 直噴ガソリン車からの粒子状物質の排出状況について. 大気環境学会第54回年会, 同予稿集, 190-191

Kondo Y., Kato H., Ando R., Suzuki T., Karakama Y. (2013) To What Extent Can the Speed Management Alleviate the Range Anxiety of EV?. 27th International Battery, Hybrid and Fuel Cell Electric Vehicle Symposium, Abstract

近藤美則 (2014) 安全なエコドライブ, 電気駆動車のエコドライブ効果について. 「いばらきエコドライブプロジェクト」表彰式・講演会, 30-48

近藤美則, 小林伸治, 伏見暁洋, 齊藤勝美, 藤谷雄二, 高見昭憲, 田邊 潔 (2014) 直噴ガソリン乗用車の粒子状物質排出特性 - 個数濃度と燃料, 気温との関係 -. 自動車技術会2014年春季大会, 前刷集, (30-14), 19-22

近藤美則, 小林伸治, 伏見暁洋, 齊藤勝美, 藤谷雄二, 高見昭憲, 田邊 潔 (2014) 直噴ガソリン車からの粒子状物質の排出状況 (第二報). 第55回大気環境学会年会, 同講演要旨集, 220-220

近藤美則 (2014) 交通から見直す, あなたの暮らし. 茨城県環境カウンセラー協会「環境にやさしい交通について学ぼう」

近藤美則 (2014) 環境にやさしい乗用車の利用とエコライフについて. エコライフ・フォーラム2014

近藤美則 (2015) 次世代車と低炭素社会に向けた交通の状況. いばらきスマートムーブプロジェクト

小西祥子, Ng Chris Fook Sheng, Andrew Stickley, 西端慎一, 新杉知沙, 上田佳代, 高見昭憲, 渡辺知保 (2014) 微小粒子状物質は花粉飛散数と花粉症受診患者数の関連を修飾する. 日本衛生学会第84回学術総会, 同予稿集

熊谷貴美代, 伏見暁洋, 田邊 潔, 佐藤 圭, 藤谷雄二, 高見昭憲 (2014) 2013年夏季関東における微小粒子状物質の広域観測 - 極性有機成分の測定結果 -. エアロゾル科学・技術研究討論会第31回, 同予稿集

熊谷貴美代, 田子 博, 寺本佳宏, 橋本貴世, 山神真紀子, 牧野雅英, 木下 誠, 長谷川就一, 佐久間隆, 菅田誠治 (2014) 全国PM<sub>2.5</sub>成分測定結果から見た高濃度日における地域別化学組成の特徴. 第55回大気環境学会年会, 同講演要旨集, 277

熊谷貴美代, 山神真紀子, 橋本貴世, 野口邦雅, 木下誠, 長谷川就一, 菅田誠治 (2014) 2014年2月におけるPM<sub>2.5</sub>高濃度事例の解析. 第55回大気環境学会年会, 同講演要旨集, 401

前田 恵, 吉野彩子, 小川佳美, 佐藤 圭, 畠山史郎 (2012) 辺戸岬における有機エアロゾルの季節変化. 「東アジアにおけるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト」シンポジウム, 同予稿集, 59

丸本幸治, 伊禮 聡, 高見昭憲, 兼保直樹, 林 政彦 (2013) 九州地方における大気中のガス状水銀と粒子状水銀の多地点同時観測. 大気環境学会第54回年会, 同予稿集, 297

増井嘉彦, 福森裕基, 定永靖宗, 高見昭憲, 横内陽子, 大原利真, 米村正一郎, 竹中規訓, 坂東 博 (2012) 福江島におけるNO<sub>y</sub>とその構成成分の連続観測, 及び濃度変動要因の解析. 「東アジアにおけるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト」シンポジウム, 同予稿集, 66

Matsui H., Koike M., Kondo Y., Oshima N., Moteki N., Kanaya Y., Takami A., Martin I. (2013) Seasonal variations of Asian black carbon outflow to the Pacific using a tagged threedimensional model. Japan Geoscience Union Meeting 2013, Abstracts, AAS21-18

松井仁志, 小池 真, 近藤 豊, 高見昭憲, 金谷有剛, 滝川雅之 (2014) VBS法を用いた有機エアロゾルモデルの開発と検証: アジア域における人為・自然起源の相互作用. 日本地球惑星科学連合2014年大会, 同予稿集

間山憲仁, 三浦祐也, 吉野彩子, 三澤健太郎, 坂本哲夫, 高見昭憲, 畠山史郎, 坂東 博, 村野健太郎, 藤井正明 (2012) 高分解能 TOF-SIMS による微小粒子の構造解析. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 409

道川武紘, 中井里史, 新田裕史, 田村憲治 (2012) 環境疫学研究における曝露指標の妥当性検討: 屋外と室内の微小粒子状物質濃度の比較. 日本衛生学会学術総会第 82 回, 日本衛生学雑誌, 67 (2), 306

Michikawa T., Nakai S., Nitta H., Tamura K. (2012) CORRELATION BETWEEN PARTICULATE MATTER CONCENTRATIONS AT THE FIXED SITE AND PERSONAL EXPOSURE: EXPOSURE ASSESSMENT STUDY IN JAPAN. The International Society for Environmental Epidemiology (ISEE), 24th annual conference, Epidemiology, 23(5S), 709

道川武紘, 中井里史, 新田裕史, 田村憲治 (2013) 微小粒子状物質の長期曝露評価: 定点と個人曝露の比較. 日本衛生学会第 83 回学術総会, 同予稿集, 68 (Supplement), S180 <第 83 回日本衛生学会学術総会若手優秀演題賞受賞>

道川武紘, 上田佳代, 竹内文乃, 木下 誠, 林 宏巳, 市瀬孝道, 新田裕史 (2014) 微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) と救急搬送との関連: ケースクロスオーバー研究. 日本疫学会学術総会第 24 回大会, 同予稿集, 24 (Supl), 94

道川武紘, 上田佳代, 竹内文乃, 田村憲治, 木下 誠, 林 宏巳, 市瀬孝道, 新田裕史 (2014) 粗大粒子状物質と救急搬送との関連: ケースクロスオーバー研究. 日本衛生学会第 84 回学術総会, 日本衛生学雑誌, 69 (Suppl), 195

Michikawa T., Morokuma S., Ueda K., Takeuchi A., Fukushima K., Kato K., Nitta H. (2014) Ozone exposure during early pregnancy is associated with pregnancy induced hypertension in Japan. International Society for Environmental Epidemiology Conference 2014, Program, 64

道川武紘, 岡村智教, 新田裕史, 西脇祐司, 武林 亨, 上田佳代, 門田 文, 藤吉 朗, 大久保孝義, 上島弘嗣, 岡山 明, 三浦克之 (2015) Cross-sectional associations between exposure to particulate matter and inflammatory markers in Japan: NIPPON DATA2010. 第 25 回日本疫学会学術総会, 同予稿集, 25 (Supl1), 108

三澤健太郎, 坂本哲夫, 藤谷雄二, 藤井正明 (2012) レーザーイオン化 SIMS によるディーゼル微粒子分析. 日本分析化学会第 61 年会, 同予稿集, 32

三澤健太郎, 間山憲仁, 大石乾詞, 坂本哲夫, 高見昭憲, 村野健太郎, 吉野彩子, 畠山史郎, 坂東 博, 藤井正明 (2012) レーザーイオン化 TOF-SIMS による大気微粒子の構造解析. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 410

宮本脩詩, 定永靖宗, 弓場彬江, 増井嘉彦, 井関将太, 高見昭憲, 横内陽子, 大原利真, 米村正一郎, 松木篤 他 (2012) 長崎福江島から能登半島珠洲まで輸送した総反応性窒素酸化物 (NO<sub>y</sub>) および Total nitrate の動態解析. 「東アジアにおけるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト」シンポジウム, 同予稿集, 68

三好猛雄, 高見昭憲, 伊禮 聡, 佐藤圭, 下野彰夫, 疋田利秀, 原圭一郎, 林 政彦, 兼保直樹, 畠山史郎 (2012) 越境輸送および都市大気エアロゾルの化学組成分析. 日本地球惑星科学連合 2012 年大会, 同予稿集

三好猛雄, 高見昭憲, 伊禮 聡, 下野彰夫, 疋田利秀, IRWIN M., 大畑 祥, 近藤 豊 (2012) 沖縄県辺戸岬におけるワイドレンジ粒子スペクトロメータによる大気エアロゾルの観測. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 484

三好猛雄, 高見昭憲, 伊禮 聡, 佐藤 圭, 下野彰夫, 疋田利秀, 原圭一郎, 林 政彦, 兼保直樹, 畠山史郎 (2012) 福岡市において観測された大気エアロゾルの PMF 法による起源の推定. 大気化学討論会第 18 回, 同予稿集, 41

三好猛雄, 高見昭憲, 伊禮 聡 (2014) 沖縄県辺戸岬および長崎県福江島におけるエアロゾル個数濃度の粒径分布. 日本地球惑星科学連合 2014 年大会, 同予稿集

三好猛雄, 高見昭憲, 定永靖宗, 伊禮 聡, 清水 厚, 佐藤 圭, 吉野彩子, 坂東 博, 畠山史郎 (2014) 沖縄県辺戸岬における微小粒子の粒子質量と化学組成の長期観測. エアロゾル科学・技術研究討論会第 31 回, 同予稿集

Morino Y., Ohara T., Hasegawa S., Fushimi A., Kondo M., Uchida M., Tanabe K., Zhao B., Xu J., Hao J. (2012) Source apportionment of EC and OC in Tokyo and Beijing: comparison between observation and simulation model. Joint Seminar on Formation Mechanism of Photochemical ozone, VOCs and PM<sub>2.5</sub> in Mexico, China and Japan

- 森野 悠, 田邊 潔, 大原利眞 (2012) ボックスモデル上での二次有機エアロゾルモデルの比較・検討. 大気環境学会第 53 回年会, 同講演要旨集, 362
- 森野 悠, 大原利眞, 長谷川就一, 伏見暁洋, 近藤美由紀, 内田昌男, 田邊 潔, 山地一代, B. Zhao, J. Xu, J. Hao (2012) 北京での炭素性エアロゾルの発生源解析. 大気環境学会第 53 回年会, 同講演要旨集, 361
- Morino Y., Ohara T., Hasegawa S., Fushimi A., Kondo M., Uchida M., Tanabe K., Yamaji K., Zhao B., Xu J., Hao J. (2012) Source Apportionment of EC and OC in Beijing: Comparison between  $^{14}\text{C}$  Measurement and Chemical Transport Model. 2012 AAAR Annual Conference, Abstracts
- Morino Y., Ohara T., Hasegawa S., Fushimi A., Kondo M., Uchida M., Tanabe K., Yamaji K., Zhao B., Xu J., Hao J. (2012) Source Apportionment of EC and OC in Beijing: Comparison between  $^{14}\text{C}$  Measurement and Chemical Transport Model. 2012 IGAC conference, Abstracts, 197-198
- 森野 悠, 大原利眞 (2012) 放射性物質の大気シミュレーション - 感度解析を基にした不確実性要因の評価. 第 18 回大気化学討論会, 同講演要旨集, 16
- 森野 悠, 田邊 潔, 大原利眞 (2012) ボックスモデル上での二次有機エアロゾルモデルの比較・検討. 第 18 回大気化学討論会, 同講演要旨集, 65
- 森野 悠, 田邊 潔, 佐藤 圭, 大原利眞 (2013) SOA/O<sub>x</sub> 比を用いた, ボックスモデル上での有機エアロゾルモデルの相互比較. 大気環境学会第 54 回年会, 同講演要旨集, 396
- 森野 悠, 田邊 潔, 佐藤 圭, 大原利眞 (2013) ボックスモデル上での有機エアロゾルモデルの比較・検討. エアロゾル科学・技術研究討論会第 30 回, 同予稿集, 243-244
- Morino Y., Tanabe K., Sato K., Ohara T. (2013) Intercomparison of secondary organic aerosol models based on SOA/O<sub>x</sub> ratio. 12th Annual CMAS Conference
- Morino Y., Nagashima T., Sugata S., Sato K., Tanabe K., Takami A., Tanimoto H., Ohara T. (2014) Comprehensive model evaluation of PM<sub>2.5</sub> species over Japan: comparison among AERO5, AERO6, and AERO6-VBS modules. CMAS(Community Moderating & Analysis System)
- Morino Y., Tanabe K., Sato K., Ohara T. (2014) Intercomparison of secondary organic aerosol models based on secondary organic aerosol to odd oxygen ratio in Tokyo. IGAC
- 森野 悠, 大原利眞, 黒川純一, 栗林正俊, 鶴野伊津志, 原 宏 (2014) シミュレーションモデルを用いた窒素・硫黄沈着の経年変動解析. 大気環境学会, 同年会講演要旨集, 176-177
- 森野 悠, 永島達也, 菅田誠治, 高見昭憲, 谷本浩志, 大原利眞 (2014) 化学輸送モデルによる PM<sub>2.5</sub> 成分濃度の再現性と時空間分解能の関係. 大気環境学会, 同年会講演要旨集, 504
- 村野健太郎, 高見昭憲, 藤井正明 (2012) エアロゾル 3 粒径分解フィルターパックによる大気汚染物質の観測 (?). 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 433
- 村野健太郎, 高見昭憲, 伊禮 聡, 坂本哲夫, 間山憲仁, 畠山史郎, 吉野彩子, 坂東 博, 定永靖宗, 藤井正明, 三澤健太郎 (2013) 長崎福江島におけるフィルターパック法による粗大粒子と微小粒子の観測 (III). 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 437
- 長井祥秀, Charlotte Jones, 梶井克純, 横内陽子, 加藤俊吾, 今野秀典, 近藤美則, 中嶋吉弘 (2013) 軽自動車排気ガスの OH ラジカル反応性及び微量成分濃度の測定. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 213
- 永野博彦, 岩田拓記, 林健太郎, 伏見暁洋, 原蘭芳信 (2013) アラスカクロトウヒ林上でのエアロゾルフラックスの測定. 日本農業気象学会 2013 年全国大会, 同予稿集, A-8
- 永島達也, 秋元 肇, 黒川純一, 竹村俊彦, 須藤健悟, 大原利眞 (2012) IIASA 参照シナリオによる東アジア大気質の将来変動評価. 大気化学討論会第 18 回, 同講演要旨集, 25
- 永島達也, 秋元 肇, 大原利眞, 金谷有剛 (2013) 東アジアにおける地表オゾンのセクター別削減感受性評価. 大気化学討論会第 19 回, 同講演要旨集, 3
- 永島達也, 秋元 肇, 黒川純一, 竹村俊彦, 須藤健悟, 大原利眞 (2013) IIASA 参照シナリオによる東アジア大気質の将来変動評価. 大気環境学会年会第 54 回, 同講演要旨集, 513

Nagashima T., Sudo K., Akimoto H., Kurokawa J., Ohara T. (2013) Long term changes in relative contribution of various source regions on the surface ozone over Japan. IGAC/SPARC CCM1 2013 Science Workshop

Nagashima T., Ohara T., Sudo K., Akimoto H. (2013) Source-Receptor analysis of surface ozone in Southeast Asia with global CTM. Workshop on Atmospheric Composition and the Asian Summer Monsoon

Nagashima T., Kurokawa J., Sudo K., Ohara T., Akimoto H. (2013) Change in the near future surface air quality over East Asia under different assumptions in the future emissions of SLCPs. American Geophysical Union Fall Meeting 2013

Nagashima T., Akimoto H., Kurokawa J., Takemura T., Sudo K., Ohara T., Klimont Z. (2013) An estimation of future change in air quality based on IASA reference scenarios. 4th International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia

Nagashima T., Akimoto H., Ohara T., Kanaya Y. (2014) Source-receptor relationship of ground level ozone and PM<sub>2.5</sub> for different anthropogenic emission sectors in East Asia. 5th International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Abstracts, 17

Nagashima T., Ohara T., Sudo K., Akimoto H. (2014) The relative importance of various source regions on East Asian surface ozone. Workshop on Lower Tropospheric Ozone: Recent challenges

永島達也, 秋元 肇, 黒川純一, 須藤健悟, 大原利眞 (2014) 東アジアの地表オゾンに関する将来シナリオ評価. 山地森林域の生物・環境モニタリング第8回ワークショップ, 同予稿集, 21-22

永島達也, 秋元 肇, 大原利眞, 金谷有剛 (2014) 東アジアにおける大気汚染物質のセクター別削減感受性評価. 第55回大気環境学会年会, 講演要旨集, 428

Nagashima T., Morino Y. (2015) A multi-scale simulation system for SLCPs changes in Asia: Overview of the development plan and initial results. 6th International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Abstracts, 13

Nakajima T., Imasu R., Uematsu M., Takami A., Goto D., Uchida J., Inoue T., Tsuruta H., Misawa S., Murata R., Dai T., Schutgens N., Ueda K., Ng C.F.S., Satoh M., Sato Y., Murakami A., Higuchi A. (2014) Development of a Seamless Assimilation System for Atmospheric Materials and Its Applications. AOGS 11th Annual Meeting, Abstracts, 122

中嶋吉弘, 加藤俊吾, 小林伸治, 近藤美則, 梶井克純 (2014) OH 反応性による大気質診断と未知物質排出源としての自動車排気ガスの可能性. 第55回大気環境学会年会, 同講演要旨集, 189-190

中嶋吉弘, 中村隆司, Ramasamy Sathiyamurthi, 井田 明, 加藤俊吾, 伏見暁洋, 近藤美則, 藤谷雄二, 後藤忠夫, 速水修二, 田邊 潔, 小林伸治, 齊藤勝美, 梶井克純 (2014) LPG 車から排出される排気ガスの総 OH 反応性および反応性微量成分濃度測定. 第20回大気化学討論会

中戸靖子, 山本勝彦, 秋山雅行, 長谷川就一, 山本重一, 谷口延子, 山崎敬久, 三田村徳子, 長田健太郎, 田村圭, 家合浩明, 佐川竜也, 菅田誠治, 大原利眞 (2012) 2012年1月中旬に観測されたPM<sub>2.5</sub>高濃度イベントにおける炭素成分の挙動. 大気環境学会第53回年会, 同講演要旨集, 421

中山智喜, 松見 豊, 佐藤 圭, 今村隆史 (2012) 二次有機エアロゾルの光吸収特性と化学特性の関係. 日本化学会第92春季年会, 同予稿集第I分冊, 390

中山智喜, 佐藤 圭, 松見 豊, 今村隆史, 山崎明宏, 内山明博 (2012) トルエンの光酸化反応により生成する二次有機エアロゾルの光吸収特性: 波長およびNO<sub>x</sub>濃度依存性. 日本地球惑星科学連合2012年大会, 同予稿集, AAS21-07

中山智喜, 松見 豊, 佐藤 圭, 今村隆史 (2012) 二次有機エアロゾルの光学特性の湿度依存性. 大気化学討論会第18回, 同予稿集, 61

中山智喜, 松見 豊, 佐藤 圭, 今村隆史 (2014) 二次有機エアロゾルの光学特性の湿度依存性と化学特性の関係. 日本化学会第94春季年会, 同予稿集

中山智喜, 松見 豊, 佐藤 圭, 今村隆史 (2014) 二次有機エアロゾルの消散係数の湿度依存性と化学特性の関係. 日本地球惑星科学連合2014年大会, 同予稿集

---

- 中山智喜, 佐藤 圭, 今村隆史, 松見 豊 (2014) イソプレン起源の SOA はブラウンカーボンとなりうるか?. 第 20 回大気化学討論会, 同予稿集, 31
- Ng C.F.S., Ueda K., Nitta H., Takeuchi A. (2012) Acute effects of tropospheric ozone on mortality in Japan. The 22nd Annual Scientific Meeting of the Japan Epidemiological Association, 第 22 回日本疫学会学術総会講演集, 22(1), 106
- Ng C.F.S., Ueda K., Nitta H., Takeuchi A. (2012) Short-term effects of ambient ozone on daily mortality in 20 Japanese cities. 24th Annual Conference of the International Society for Environmental Epidemiology, *Epidemiology*, 23(5S), S42
- Ng C.F.S., Ueda K., Takeuchi A., Goto D., Uchida J., Misawa S., Hara M., Konishi S., Watanabe C., Nitta H., Takami A. (2012) Predicting heat-related premature mortality in the Kanto region of Japan. 26th International Biometric Conference, Abstracts, International Biometric Society
- Ng C.F.S., Ueda K., Nitta H., Takeuchi A. (2012) Effect modification by summer heat on the association between short-term ozone exposure and mortality in 9 Japanese cities. European Congress of Epidemiology, *European Journal of Epidemiology*, 27(1), S10
- Ng C.F.S., Ueda K., Takeuchi A., Nitta H. (2013) Adjusting for temperature confounding in multicity time-series studies of air pollutant: smoothness of predictor, lagged variable, and the selection of lag length. 23rd Annual Scientific Meeting of the Japan Epidemiological Association, *Journal of Epidemiology*, 23(S1), 108
- 西脇祐司, 道川武紘, 武林 亨, 新田裕史, 磯 博康, 井上真奈美, 津金昌一郎 (2013) 長期的な粒子状物質曝露と循環器疾患の発生・死亡との関連 (多目的コホート研究). 日本衛生学会第 83 回学術総会, 同予稿集, 68 (Supplement), S181
- Nishizawa T., Nagashima T., Kawase H., Nozawa T., Sudo K., Ohara T. (2012) Future development of surface ozone over East Asia under RCPs scenarios. European Geoscience Union General Assembly 2012, *Geophysical Research Abstracts*, 14
- 新田裕史 (2014) PM<sub>2.5</sub> の呼吸器系への影響. 日本呼吸器学会第 54 回学術講演会, 同予稿集, 3 (増刊号), 80
- 小川佳美, 吉野彩子, 佐藤 圭, 高見昭憲, 兼保直樹, 畠山史郎 (2012) 福江島における有機エアロゾルの季節変化. 「東アジアにおけるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト」シンポジウム, 予稿集, 61
- 奥村智憲, 深山貴文, 小南裕志, 曹 仁秋, 佐藤 圭, 猪俣 敏, 廣川 淳, 東野 達, 白井 忠 (2013) 日本の温帯混交林における有機エアロゾルの季節変動. エアロゾル科学・技術研究討論会第 30 回, 同予稿集, 187-188
- 大塚英幸, 秋山雅行, 芥川智子, 菅田誠治, 大原利眞 (2012) 北日本における PM<sub>2.5</sub> 高濃度出現状況について (2) - 無機元素成分の挙動 -. 大気環境学会第 53 回年会, 同講演要旨集, 427
- 大塚英幸, 芥川智子, 秋山雅行, 菅田誠治, 大原利眞 (2013) 北海道における PM<sub>2.5</sub> 高濃度イベント - 含有成分と気象及び他の大気汚染物質との関係について -. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 365
- 定永靖宗, 井関将太, 増富祐司, 宮本脩詩, 弓場彬江, 竹中規訓, 坂東 博, 横内陽子, 大原利眞, 高見昭憲 他 (2012) Dynamics of airpollutants transported from Asia continent to Japan. 第 5 回環日本海域の環境シンポジウム, 予稿集, 16
- Sadanaga Y., Fukumori Y., Yuuda H., Msui Y., Masui Y., Takami A., Yokouchi Y., Ohara T., Yonemura S., Bandow H. (2012) Ozone production efficiency by air pollutants transported from East Asia. 12th International Global Atmospheric Chemistry(IGAC)Science Conference, Abstracts, 69
- 定永靖宗, 弓場彬江, 宮本脩詩, 増井嘉彦, 井関将太, 横内陽子, 大原利眞, 高見昭憲, 米村正一郎, 松木 篤, 岩坂泰信, 佐藤啓市, 加藤俊吾, 梶井克純, 畠山史郎, 坂東 博 (2012) 西日本における NO<sub>y</sub>, および全硝酸の挙動と広域分布. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 264
- 定永靖宗, 藤原 大, 浦田淳基, 坂東 博, 畠山史郎, 池田圭輔, 花岡小百合, 島田幸治郎, 古賀美也子, 田辺美保, 渡邊 泉, 新垣雄光, 加藤俊吾, 梶井克純, 張 代洲, 村田浩太郎, 原 和崇, 瀬戸章文, 藤本敏行, 奥山喜久夫, 萩 崇, 高見昭憲, 清水 厚 (2013) 東シナ海上空での窒素酸化物種の航空機観測 - 3 回の観測のまとめ. エアロゾル科学・技術研究討論会第 30 回, 同予稿集, 195-196

Sadanaga Y., Bandow H., Arakaki T., Kato S., Kajii Y., Zhang D., Watanabe I., Fujimoto T., Okuyama K., Ogi T., Seto T., Takami A., Shimizu A., Hatakeyama S. (2014) Aerial observations for nitrogen compounds over the East China Sea. Japan Geoscience Union Meeting 2014, Abstracts

Saitoh K., Fushimi A., Fujitani Y., Kobayashi S., Tanabe K., Sera K., Mizuno Y. (2012) PIXE and ion chromatography analysis of spot samples on new type membrane PTFE filter-tape mounted in automated beta-ray absorption mass monitor. First China-Japan Aerosol Symposium, Abstracts

齊藤勝美, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 田邊 潔, 佐藤 圭, 高見昭憲, 世良耕一郎 (2014) 大気エアロゾル試料の PIXE 法と ICP-MS 法による元素定量値の比較. NMCC 共同利用研究成果発表会第 20 回, 同予稿集, 15

齊藤勝美, 伏見暁洋, 田邊 潔, 佐藤 圭, 藤谷雄二, 高見昭憲 (2014) 2013 年夏季関東における微小粒子状物質の広域観測 - PMF による発生源寄与推定のアプローチ -. エアロゾル科学・技術研究討論会第 31 回, 同予稿集

齊藤勝美, 世良耕一郎, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 田邊 潔, 佐藤 圭, 高見昭憲, 中坪良平, 常友大資, 平木隆年, 島正之, 余田佳子 (2014) 大気エアロゾル試料の PIXE 法による元素定量値の評価. 第 30 回 PIXE シンポジウム, 要旨集, 32

坂本哲夫, 三澤健太郎, 藤谷雄二 (2012) 高分解能 TOF-SIMS によるディーゼルナノ粒子の粒別分析. 日本化学会第 92 春季年会, 同講演予稿集

Sakamoto T., Misawa K., Fujitani Y. (2012) Individual Analysis of Diesel Nano-Particles using High Resolution TOF-SIMS. International Symposium on Aerosols in East Asia and Their Impacts on Plants and Human Health, Abstracts, 40-41

坂本哲夫, 大石乾詞, 高見昭憲, 伊禮 聡, 吉野彩子, 畠山史郎, 村野健太郎, 定永靖宗, 坂東 博, 間山憲仁, 三澤健太郎, 藤井正明 (2013) 質量分析法を用いたエアロゾル粒子の構造解析 1. エアロゾル科学・技術研究討論会第 30 回, 同予稿集, 69-70

坂本哲夫, 牧野 裕, 大石乾詞, 吉野彩子, 高見昭憲, 伊禮 聡, 三好猛雄, 村野健太郎, 畠山史郎, 坂東 博, 定永靖宗, 佐藤孝樹, 三澤健太郎, 藤井正明 (2013) 福江島で観測された粒子状物質の高濃度事例の粒別解析. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 435

佐野一広, Tin-Tin-Win-Shwe, 藤谷雄二, 野原恵子, 掛山正心, 前川文彦, 平野靖史郎 (2014) ディーゼル排ガス由来二次生成有機エアロゾルの発達期曝露が後発的に雄性行動および行動柔軟性に及ぼす影響の解析. 日本行動神経内分泌学研究会第 21 回全国集会, 同予稿集, 16

佐藤 圭, 高見昭憲, 加藤吉康, 瀬田孝将, 疋田利秀, 下野彰夫, 今村隆史 (2012) 芳香族炭化水素の光酸化からの二次有機エアロゾル中に存在する含窒素有機物. 日本化学会第 92 春季年会, 同講演予稿集第 I 分冊, 391

佐藤 圭, 高見昭憲, 疋田利秀, 下野彰夫, 今村隆史 (2012) AMS と LC/MS による芳香族炭化水素からの SOA の分析: 化学構造とエイジング速度. 日本地球惑星科学連合 2012 年大会, 同予稿集, AAS21-P13

Sato K., Imamura T., Takami A., Seta T., Hikida T., Shimono A. (2012) Formation mechanism of nitrophenols present in secondary organic aerosol from the photooxidation of aromatic hydrocarbons. 28th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Abstracts, 78

佐藤 圭, 高見昭憲, 小川佳美, 吉野彩子, 鈴木亮太, 畠山史郎, 原圭一郎, 林 政彦, 兼保直樹 (2012) 国内大都市における有機エアロゾルの広域大気汚染および都市大気汚染: 2010 ~ 2011 年の福岡市と長崎福江島の比較. エアロゾル科学・技術研究討論会第 29 回, 同予稿集, 179-180

佐藤 圭, 猪俣 敏, 奥村智憲, 東野 達, 廣川 淳, 内田里沙, XING Jia-Hua, 今村隆史 (2012) O3- イソプレレン反応で生成する SOA: ラジカル捕捉剤の効果. 日本地球化学会第 59 回年会, 同予稿集, 106

Sato K., Inomata S., Uchida R., Imamura T., Hirokawa J., Okumura M., Tohno S. (2012) Secondary organic aerosol formation from the isoprene ozonolysis: Effect of OH radical scavenger on the radical chemistry. The 31st Annual Conference of American Association for Aerosol Research, Abstracts

佐藤 圭, 高見昭憲, 小川佳美, 吉野彩子, 鈴木亮太, 畠山史郎, 原圭一郎, 林 政彦, 兼保直樹 (2012) 福岡市における有機エアロゾルの広域および都市大気汚染. 大気化学討論会第 18 回, 同予稿集, 43

- 佐藤 圭, 近藤美則, 藤谷雄二, 猪俣 敏, 小林伸治, 田邊 潔, 今村隆史, 高見昭憲 (2012) 排気光化学チャンバーの性能評価とガソリン車排気からの SOA 生成. 大気化学討論会第 18 回, 同予稿集, 64
- Sato K., Takami A., Ogawa Y., Yoshino A., Suzuki R., Hatakeyama S., Hara K., Hayashi M., Kaneyasu N. (2012) Regional- and local-scale air pollutions of organic aerosol at urban site in Kyushu Island, Japan. International Symposium on Aerosols in East Asia and Their Impacts on Plants and Human Health, Abstracts, 110-111
- Sato K., Inomata S., XING J-H., Imamura T., Uchida R., Fukuda S., Nakagawa K., Hirokawa J., Okumura M., Tohno S. (2013) Effect of OH radical scavengers on secondary organic aerosol formation from reactions of isoprene with ozone. 29th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Abstracts, 128
- 佐藤 圭, 高見昭憲, 今村隆史, 田邊 潔, Li H., Wang X., 奥村智憲, 東野 達 (2013) イソプレン-NO<sub>x</sub>-SO<sub>2</sub> 光酸化系で生成する二次有機エアロゾルの化学組成. エアロゾル科学・技術研究討論会第 30 回, 同予稿集, 185-186
- 佐藤 圭, 藤谷雄二, 近藤美則, 中山智喜, 猪俣 敏, 高見昭憲, 田邊 潔, 今村隆史, 小林伸治 (2013) 自動車排気からの二次有機エアロゾル生成: 実験法の検討. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 309
- Sato K., Takami A., Imamura T., Li H., Wang X. (2013) Effects of acidity on the chemical composition of secondary aerosol from the isoprene/NO<sub>x</sub> photooxidation: Measurements using an aerosol mass spectrometer. American Association for Aerosol Research 32nd Annual Conference, Abstracts, 30
- 佐藤 圭, 藤谷雄二, 田邊 潔, 森野 悠, 伏見暁洋, 高見昭憲, 今村隆史, 疋田利秀, 下野彰夫 (2014) エアロゾル質量分析計で測定される二次有機エアロゾルの質量スペクトルに占める高質量数イオン信号の比率. 日本地球惑星科学連合 2014 年大会, 同予稿集
- Sato K., Nakashima Y., Imamura T., Wenger J.C., Kajii Y. (2014) Total OH reactivity measurements in laboratory studies of the photooxidation of isoprene and p-xylene. 30th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Abstracts, 94
- 佐藤 圭, 高見昭憲, 森野 悠, 今村隆史, 李紅, 王 学中, 疋田利秀, 下野彰夫 (2014) イソプレン光酸化における酸触媒粒子相二次有機エアロゾル生成. エアロゾル科学・技術研究討論会第 31 回, 同予稿集
- 佐藤 圭, 中嶋吉弘, 森野 悠, 今村隆史, 梶井克純 (2014) 光化学チャンバーを用いた p-キシレンの酸化実験における OH 反応性の測定. 大気環境学会第 55 回年会, 同予稿集, 532
- 佐藤 圭, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 古山昭子, 田邊 潔, 熊谷貴美代, 齊藤勝美, 萩野浩之, 高見昭憲 (2014) 2013 年夏季関東における微小粒子状物質中オキシダントのヨウ素滴定. 大気環境学会第 55 回年会, 同予稿集, 212
- 佐藤 圭, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 古山昭子, 田邊 潔, 熊谷貴美代, 齊藤勝美, 萩野浩之, 高見昭憲 (2014) 2013 年夏季関東における微小粒子状物質中オキシダントのヨウ素滴定 (II). 第 20 回大気化学討論会, 同予稿集, 37
- 佐藤祥路, 安達修平, 鈴木 勉, 安藤良輔, 加藤秀樹, 近藤美則 (2014) 交通量の影響を考慮したエコドライブによる CO<sub>2</sub> 削減効果. 「都市の OR」ワークショップ 2014
- 瀬田孝将, 佐藤 圭, 今村隆史, 堀添浩司, 長安弘貢, 上條 孝 (2012) ジエチルアミンの日中の大気寿命決定. 日本化学会第 92 春季年会, 同講演予稿集第 I 分冊, 405
- 瀬田孝将, 佐藤 圭, 今村隆史 (2012) ニトロソアルキルアミン類の大気光化学. 光化学討論会 2012 年, 同予稿集, 2P-34
- 瀬田孝将, 佐藤 圭, 今村隆史 (2012) 二級アルキルアミンと OH ラジカルの反応速度定数の測定. 大気化学討論会第 18 回, 同予稿集, 101
- Seta T., Sato K., Imamura T. (2013) Kinetic measurements of OH radical reactions with alkylamines. 29th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Abstracts, 87
- Seta T., Sato K., Imamura T. (2014) Gas-phase reactions of alkylamino radicals with NO. 23rd International Symposium on Gas Kinetics, Abstracts, 167
- Seto T., Otani Y., Takami A., Kaneyasu N., Fujimoto T., Okuyama K. (2012) New Particle Formation and Growth Observed at Fukue Island, Japan in March 2012. AAAR 31st ANNUAL CONFERENCE, Abstracts, 78-78

Seyoung Kim, 瀬戸章文, 大谷吉生, 高見昭憲, 三好猛雄, 伊禮 聡, 高村民雄 (2013) 福江島における新粒子生成初期過程の観測. エアロゾル科学・技術研究討論会第30回, 同予稿集, 3-4

Shimada K., Hatakeyama S., Takami A., Fushimi A., Hasegawa S. (2012) Understanding source origin and emission area of carbonaceous aerosol transported from East Asia and its contribution to the composition of aerosol collected at Cape Hedo, Okinawa, Japan. 12th International Global Atmospheric Chemistry(IGAC)Science Conference, Abstracts, 71

島田幸治郎, 高見昭憲, 長谷川就一, 伏見暁洋, 梶井克純, 加藤俊吾, 畠山史郎 (2012) 沖縄辺戸岬における炭素質エアロゾルの長期トレンド. 大気環境学会第53回年会, 同予稿集, 265

Shimada K., Takami A., Kato S., Kajii Y., Hasegawa S., Fushimi A., Shimizu A., Sugimoto N., Hatakeyama S. (2014) Investigation of the Transformation Process of Organic Aerosol in Asian Outflow Observed at Cape Hedo, Okinawa, Japan. International Aerosol Conference 2014, Abstracts, 133

清水厚, 高見昭憲, 佐藤圭, 畠山史郎 (2012) 沖縄辺戸岬における大気化学/放射に関する総合観測. 日本地球惑星科学連合2012年大会, 同予稿集

白石不二雄, 中島大介, 中山祥嗣, 鈴木 剛, 菊池恵介, 佐藤郁子, 小泉俊一, 佐久間隆, 柳下真由子, 山崎美穂, 滝上英孝, 新田裕史 (2014) 津波被災地における大気中のPM<sub>2.5</sub>及び総浮遊粉じんの代謝系酵素誘導に関する受容体結合活性への影響. 第23回環境化学討論会, 同予稿集, 268-269

菅田誠治, 板野泰之, 飯島明宏, 山本勝彦, 山本重一, 谷口延子, 秋山雅行, 大原利眞, 山神真紀子, 山崎敬久, 長谷川就一, 三田村徳子, 長田健太郎, 田村 圭, 家合浩明, 佐川竜也 (2012) 全国の環境研究機関の有機的連携によるPM<sub>2.5</sub>汚染の実態解明. 大気環境学会第53回年会, 同講演要旨集, 419

菅田誠治 (2013) 日本のPM<sub>2.5</sub>の現状と数値シミュレーションの課題. 情報科学技術フォーラム第12回(FIT2013)

菅田誠治 (2013) PM<sub>2.5</sub>の概況と今後の見通し. NPO 法人環境ベテランズファームセミナー

Sugata S. (2013) Understanding of the actual state of PM<sub>2.5</sub> in Japan based on the observation network. 54th annual meeting of the Japan Society for Atmospheric Environment, Abstracts, 110-111

菅田誠治 (2013) PM<sub>2.5</sub>の越境輸送と関東地方への影響. 第37回環境・公害研究合同発表会(特別講演), 同要旨集

菅田誠治 (2014) PM<sub>2.5</sub>は増えているのか?心配なのか?. 日本気象学会関西支部第36回夏季大学, 同テキスト, 28-39

菅田誠治 (2014) 大気汚染等の大気環境の現状と見通し. 第52回全国大学保健管理研究集会, 同プログラム・抄録集, 21

菅田誠治 (2014) PM<sub>2.5</sub>の予測手法の開発状況. 2014年度環境アセスメント学会第13回大会研究発表会 企画委員会主催シンポジウム「化石エネルギーの有効活用と環境アセスメントとの関わり」, 同プログラム・要旨集, 18

菅田誠治 (2014) PM<sub>2.5</sub>の越境輸送とその見積もり. 第57回日本環境化学会講演会, 同予稿集

菅田誠治 (2014) PM<sub>2.5</sub>等の現状と問題点. 時代を刷新する会第300回環境技術委員会

菅田誠治 (2014) PM<sub>2.5</sub>の越境輸送寄与を切り出す幾つかの方法. 平成26年度富山県環境科学センター研究成果発表会

菅田誠治 (2014) 大気中のPM<sub>2.5</sub>の現状について. PM<sub>2.5</sub>・黄砂講演会～研究者が語る越境大気汚染の現状と健康への影響～

菅田誠治, 飯島明宏, 板野泰之, 山本勝彦, 山本重一, 谷口延子, 秋山雅行 (2014) 全国の環境研究機関の有機的連携によるPM<sub>2.5</sub>研究. 第55回大気環境学会年会, 同講演要旨集, 193

鈴木亮太, 吉野彩子, 島田幸治郎, 高見昭憲, 畠山史郎 (2012) エアロゾル金属成分の特徴と発生源推定. 「東アジアにおけるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト」シンポジウム, 同予稿集, 56

鈴木亮太, 吉野彩子, 島田幸治郎, 兼保直樹, 高見昭憲, 畠山史郎 (2012) 長崎県福江島・福岡県福岡市におけるエアロゾル金属成分の特徴と発生源推定. 日本化学会第92春季年会, 同講演予稿集, 390

- 鈴木亮太, 吉野彩子, 兼保直樹, 高見昭憲, 畠山史郎 (2012) 北部九州域の大気エアロゾルの統計解析手法を用いた発生源推定. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 257
- 鈴木亮太, 吉野彩子, 兼保直樹, 高見昭憲, 林 政彦, 原圭一郎, 渡邊 泉, 畠山史郎 (2013) 九州北部に輸送された大気エアロゾルの統計解析手法を用いた発生源推定. エアロゾル科学・技術研究討論会第 30 回, 同予稿集, 5-6
- 鈴木 勉, 佐藤祥路, 笹 圭樹, 安藤良輔, 加藤秀樹, 近藤美則 (2015) 交通ミクロシミュレータを用いたエコドライブによる CO<sub>2</sub> 削減効果分析. 第 31 回エネルギーシステム・経済・環境コンファレンス予稿集, 同予稿集, 77
- 高田求道, 定永靖宗, 弓場彬江, 加藤俊吾, 梶井克純, 高見昭憲, 坂東 博 (2013) 沖縄辺戸岬における大気汚染物質濃度のトレンド解析. 大気環境学会近畿支部第 2 回支部研究発表会
- 高原健人, Seyong Kim, Linfa Bao, 古内正美, 瀬戸章文, 大谷吉生, 高見昭憲, 三好猛雄 (2013) 大気中新粒子生成初期におけるナノ粒子サイズ分布の時間変動の計測. エアロゾル科学・技術研究討論会第 30 回, 同予稿集, 119-120
- 高橋克行, 藤谷雄二, 伏見暁洋, 長谷川就一, 田邊 潔, 小林伸治 (2012) 沿道と一般環境における大気中ナノ粒子の粒径分布の長期観測 (2004-2011). 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 522
- 高橋克行, 藤谷雄二, 伏見暁洋, 長谷川就一, 田邊 潔, 小林伸治 (2013) 沿道と一般環境における大気中ナノ粒子の粒径分布の長期観測 (2004-2012). 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 496
- 高橋克行, 藤谷雄二, 伏見暁洋, 長谷川就一, 田邊 潔, 小林伸治 (2014) 沿道と一般環境における大気中ナノ粒子の粒径分布の長期観測 (2004-2013). 大気環境学会第 55 回年会, 同予稿集, 390
- 高見昭憲, 村野健太郎 (2012) 越境大気汚染問題の概要と AMS, フィルターパック法によるバルク化学組成の変動. 酸性雨問題研究会シンポジウム第 37 回, 同予稿集, 1-5
- 高見昭憲, 三好猛雄, 伊禮 聡, 佐藤 圭, 林 政彦, 原圭一郎, 兼保直樹, 疋田利秀, 下野彰夫, 畠山史郎 (2012) 福岡で観測されたエアロゾル化学組成の因子分析. エアロゾル科学・技術研究討論会第 29 回, 同予稿集, 249-250
- Takami A., Irei S., Miyoshi T., Sato K., Shimizu A., Kaneyasu N., Hara K., Hayashi M., Hatakeyama S. (2012) Large scale transport of aerosol observed in East China Sea area. The International Global Atmospheric Chemistry(IGAC) Science Conference, Abstracts, 68
- Takami A., Irei S., Sato K., Shimizu A., Kaneyasu N., Hayashi M., Hara K., Hatakeyama S. (2012) Large scale aerosol transport observed at three different sites in the western Japan. 日本エアロゾル学会 30 周年記念シンポジウム, 同予稿集, 82
- Takami A. (2012) Aerosol Chemical Composition Measured at the East China Sea Area using an Aerodyne aerosol Mass Spectrometer. 10th UNU & GIST joint Programme Symposium, Abstracts, 41-41
- Takami A., Miyoshi T., Irei S., Hara K., Hayashi M., Kaneyasu N. (2012) PMF Analysis of Urban and Transported Aerosols in Fukuoka, Japan. AAAR 31st ANNUAL CONFERENCE, Abstracts, 97-97
- Takami A. (2012) Chemical compositions of aerosol particles measured at the west part of Japan(Okinawa, Nagasaki and Fukuoka) using Aerosyne Q-AMS and ACSMS. Exploring Collaboration on AMS Reserch over the Northeast Asia, Abstracts
- 高見昭憲, 間山憲仁, 坂本哲夫, 大石乾詞, 伊禮 聡, 三好猛雄, 村野健太郎, 畠山史郎, 吉野彩子, 坂東 博, 定永靖宗, 三澤健太郎, 藤井正明 (2012) 構造解析に基づいた微小粒子の生成, 変質過程の推定. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 411
- 高見昭憲 (2012) 微小粒子状物質の環境動態と毒性, 健康影響に関する研究. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 162
- 高見昭憲, 伊禮 聡, 坂本哲夫, 大石乾詞, 吉野彩子, 畠山史郎, 村野健太郎, 定永靖宗, 坂東 博, 間山憲仁, 三澤健太郎, 藤井正明 (2013) 質量分析法を用いたエアロゾル粒子の構造解析 2. エアロゾル科学・技術研究討論会第 30 回, 同予稿集, 71-72

高見昭憲, 伊禮 聡, 三好猛雄, 吉野彩子, 坂本哲夫, 大石乾詞, 佐藤孝樹, 村野健太郎, 畠山史郎, 坂東 博, 定永靖宗, 三澤健太郎, 藤井正明 (2013) 福江島で観測された粒子状物質の高濃度事例の解析. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 436

高見昭憲 (2013) 遠隔地での観測による越境大気汚染の実態. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 80

高見昭憲 (2013) 大気汚染の現状. 筑波大学平成 25 年度重点公開講座 心臓病と大気環境の意外な関係～寒さ, 暑さや大気汚染が引き金になる?～, 同予稿集, 36-45

Takami A., Miyoshi T., Irei S., Yoshino A., Hayashi M., Hara K., Kaneyasu N., Hatakeyama S. (2013) Analysis of organic aerosol measured at urban and remote sites using positive matrix factorization method. 8th Asian Aerosol Conference, Abstracts, 35-36

高見昭憲 (2013) 中国からの PM<sub>2.5</sub> 及び黄砂の日本への影響 (特に沖縄近辺). 環境・エネルギー委員会 第 7 回委員会

高見昭憲 (2014) 九州・沖縄地区での粒子状物質の観測. International Conference of PM<sub>2.5</sub> & ENERGY SECURITY 2014 同志社大学-オープン・ユニバーシティ, 同予稿集, 89-91

Takami A. (2014) Ground observation of particulate matter in EAST China Sea Area. International Workshop on Air Quality in Asia

Takami A., Shimada K., Fushimi A., Tanabe K., Kaneyasu N., Hasegawa S., Ishida T., Hatakeyama S. (2014) Long-term Measurements of Elemental and Organic Carbon at Cape Hedo Okinawa, Japan. AOGS 11th Annual Meeting, Abstracts, 120

Takami A., Miyoshi T., Shimizu A., Sadanaga Y., Kurokawa J., Irei S., Yoshino A., Sato K., Matsui I., Sugimoto N. (2014) Long-Term Monitoring Results of Particulate Matter at Cape Hedo Station, Okinawa, Japan. International Aerosol Conference 2014, Abstracts, 156

高見昭憲, 佐藤 圭, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 古山昭子, 吉野彩子, 森野 悠, 田邊 潔, 小林伸治, 平野靖史郎, 萩野浩之, 長谷川就一, 熊谷貴美代, 斎藤勝美 (2014) 二次有機エアロゾルの酸化ストレス評価のための関東域での粒子状物質の総合的観測 - 概要と AMS 観測. 大気環境学会第 55 回年会, 同予稿集, 211

高見昭憲, 菅田誠治, 清水 厚, 森野 悠 (2015) PM<sub>2.5</sub> 等の広域大気汚染に対する国立環境研究所・地域環境研究センターの取り組み. SAT 2015 テクノロジー・ショーケース, 同予稿集, 133

竹内文乃, 武林 享, 朝倉敬子, 上田佳代, 新田裕史, 塚原照臣, 西脇祐司, 吉村健清 (2013) 3 段階階層モデルで解析する

大気汚染コホート研究の例数設計と検出力計算. 日本疫学会第 23 回学術総会, 同講演集, 23 (Supplement1), 143 <第 23 回日本疫学会学術総会 ポスター賞受賞>

田辺美保, 畠山史郎, 島田幸治郎, 古賀美也子, 定永靖宗, 藤原 大, 坂東 博, 張 代洲, 瀬戸章文, 加藤俊吾, 梶井克純, 清水 厚, 杉本伸夫, 高見昭憲, 新垣雄光 (2012) 2012 年 3 月の東シナ海上空における長距離越境大気汚染の航空機観測 - イオン成分の分布と変化. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 255

谷口延子, 日置 正, 佐川竜也, 山本重一, 菅田誠治, 大原利真 (2012) 隠岐及び京丹後における大気エアロゾル化学成分自動連続分析結果について. 大気環境学会第 53 回年会, 同講演要旨集, 425

Tin-Tin-Win-Shwe, 藤谷雄二, 曾根秀子, 新田裕史, 平野靖史郎 (2012) ディーゼル排気由来 SOA 点鼻投与がマウスの脳と肺に及ぼす影響. 大気環境学会第 53 回年会, 同講演要旨集, 185

Tin-Tin-Win-Shwe, 藤巻秀和, 藤谷雄二, 黒河佳香, 曾根秀子, 平野靖史郎, 新田裕史 (2012) Impaired novel object recognition ability in female mice following nanoparticle-rich diesel exhaust exposure. 日本神経科学大会第 35 回

Tin-Tin-Win-Shwe, 藤谷雄二, 曾根秀子, 古山昭子, 新田裕史, 平野靖史郎 (2013) Effects of inhalation exposure to secondary organic aerosol generated from diesel exhaust particles on hippocampal function in BALB/c mice. Neuro2013, 同予稿集, 229

Tin-Tin-Win-Shwe, 藤谷雄二, 古山昭子, 曾根秀子, 新田裕史, 平野靖史郎 (2013) ディーゼル排気由来 SOA のマウスの学習行動・母性行動への影響. 大気環境学会第 54 回年会, 同講演要旨集, 238

- Tin-Tin-Win-Shwe, 藤谷雄二, 新田裕史, 平野靖史郎 (2014) 仔マウスにおける胎児期～乳児期のディーゼル排ガス由来二次生成有機エアロゾル曝露が嗅覚に基づいた空間学習能力に及ぼす影響. 日本 DOHaD 研究会第 3 回学術集会, 同予稿集, 48
- Tin-Tin-Win-Shwe, Fujitani Y., Kyi Tha Thu C., Furuyama A., Tsukahara S., Nitta H., Hirano S. (2014) Diesel engine exhaust origin secondary organic aerosol affects novel object recognition ability and maternal behavior in BALB/c mice. 8th International Congress of Neuroendocrinology 2014, Abstract, 31
- Tin-Tin-Win-Shwe, Maekawa F., Kyi-Tha-Thu C., Fujitani Y., Yanagisawa R., Furuyama A., Tsukahara S., Nohara K., Nitta H., Hirano S. (2014) Effects of developmental exposure to diesel engine exhaust origin secondary organic aerosol on social and learning behavior in adult mice. 37th Annual Meeting of the Japan Neuroscience Society, Abstract, 131
- Tin-Tin-Win-Shwe, 藤谷雄二, 前川文彦, 柳澤利枝, 古山昭子, 野原恵子, 新田裕史, 平野靖史郎 (2014) ディーゼル排気由来 SOA の胎児期～乳児期曝露がマウスの社会行動・空間学習行動に及ぼす影響. 大気環境学会第 55 回大会, 同予稿集, 497
- 富山 一, 小林伸治, 田邊 潔, 森野 悠, 伏見暁洋, 高見昭憲, 大原利真 (2013) 大気汚染物質排出量の時間配分に関する推計－火力発電所を例として－. 大気環境学会年会第 54 回, 同予稿集, 331
- 富山 一, 小林伸治, 田邊 潔, 森野 悠, 高見昭憲, 大原利真 (2014) 化学輸送モデルによる排出インベントリの時間配分精緻化評価. 大気環境学会第 55 回年会, 同予稿集, 352
- 内田里沙, XING Jia-Hua, 中川和道, 佐藤 圭, 今村隆史 (2012) O3+cis-3-Hexene 類の反応速度と OH ラジカル収率の決定. 大気化学討論会第 18 回, 同予稿集, 102
- Uchida R., XING J-H., Nakagawa K., Sato K., Imamura T. (2013) Reaction of ozone with cis-3-hexenes: formation yields of propanol, ethane, and OH radical. 29th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Abstracts, 131
- Uchida R., Ramasamy S., Sato K., Kajii Y., Imamura T. (2014) Reaction of ozone with 3-hexenes: Formation of ethane, OH, and secondary organic aerosol. 30th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Abstracts, 109
- Uchida R., Xing J-H., Nakagawa K., Sato K., Imamura T. (2014) Reaction of ozone with cis-3-hexenes: Formation yields of propanal, ethane, and OH radical. 23rd International Symposium on Gas Kinetics, Abstracts, 195
- Uchida R., Xing J-H., Nakagawa K., Sato K., Imamura T. (2014) Reaction of ozone with cis-3-hexenes: Formation yields of propanal, ethane, and OH radical. 23rd INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON GAS KINETICS AND RELATED PHENOMENA, Abstracts, 194
- 上田佳代, 清水 厚, 新田裕史, 井上健一郎 (2012) 異なる経路で輸送された黄砂が救急搬送リスクへ及ぼす影響. 日本疫学会第 22 回学術総会, 同講演集, 22(Supplement1), 72
- 上田佳代, 山神真紀子, 池盛文数, 久恒邦裕, 新田裕史 (2012) 微小粒子状物質成分が死亡に及ぼす影響: 検出下限未満の実測値処理による推定値の違い. 日本衛生学会学術総会第 82 回, 日本衛生学雑誌, 67(2), 284
- 上田佳代, 新田裕史 (2012) エアロゾル粒子の健康影響: 疫学研究による影響の有無およびその大きさの推定. 日本地球惑星科学連合 2012 年大会
- 上田佳代 (2012) 黄砂曝露が救急搬送数に及ぼす影響: 目視およびライダー観測に基づく黄砂日判定を用いた解析. 大気環境学会第 53 回年会, 同講演要旨集, 180
- 上田佳代, 新田裕史 (2012) 微小粒子およびその成分の健康影響: 疫学的手法による評価と課題. 大気環境学会第 53 回年会, 同講演要旨集, 167
- Ueda K., Shimizu A., Nitta H., Inoue K. (2012) The effect of Asian Dust on emergency ambulance dispatches using Lidar observations. 24th Annual Conference International Society for Environmental Epidemiology, Epidemiology, 23(5S)
- Ueda K., Ng C.F.S., Nitta H. (2012) Health effects of particles and gaseous pollutants: epidemiological evidence in Japan. 1st China-Japan Aerosol Symposium, Proceedings of the first China-Japan Aerosol Symposium, 51-52
- Ueda K., Ng C.F.S., Goto S., Ariga T., Matsuhashi K., Takami A. (2013) Future Mortality due to extreme heat in an aging population of Japan. Conference of ISEE, ISES and ISIAQ, Abstracts

上田佳代, Ng Chris Fook Sheng, 小野雅司, 五藤大輔, 有賀敏典, 松橋啓介, 高見昭憲 (2014) 関東における熱中症救急搬送数の将来予測. 日本衛生学会第 84 回学術総会, 同予稿集

鶴野伊津志, 弓本桂也, 原由香里, 杉本伸夫, 大原利眞 (2013) 化学輸送モデルを用いた東アジア域の PM 濃度の経年変化の解析. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 504

鶴野伊津志, 弓本桂也, 板橋秀一, 栗林正俊, 山本重一, 下原孝章, 菅田誠治 (2014) 色々な機関のエアロゾル観測を化学輸送モデルで統合した季節変化の解析. 第 55 回大気環境学会年会, 同講演要旨集, 207

山神真紀子, 佐川竜也, 中戸靖子, 長田健太郎, 米持真一, 山本勝彦, 山田大介, 芝 和代, 山田克則, 菅田誠治, 大原利眞 (2012) 2011 年 2 月の国内における PM<sub>2.5</sub> の高濃度現象の解析 (3). 大気環境学会第 53 回年会, 同講演要旨集, 430

山神真紀子, 橋本貴世, 熊谷貴美代, 高士昇吾, 松岡靖史, 野口邦雅, 菊池一馬, 長谷川就一, 菅田誠治 (2014) 2014 年 3 月における PM<sub>2.5</sub> 高濃度事例の解析. 第 55 回大気環境学会年会, 同講演要旨集, 276

山本重一, 下原孝章, 濱村研吾, 山本勝彦, 谷口延子, 山崎敬久, 長谷川就一, 三田村徳子, 長田健太郎, 田村圭, 家合浩明, 佐川竜也, 菅田誠治, 大原利眞 (2012) 2012 年 1 月中旬に観測された PM<sub>2.5</sub> 高濃度イベントにおけるイオン成分の挙動. 大気環境学会第 53 回年会, 同講演要旨集, 422

山本勝彦, 中戸靖子, 三田村徳子, 山神真紀子, 加藤三奈, 西山亨, 高倉尚枝, 平澤幸代, 谷口延子, 中坪良平, 板野泰之, 山本重一, 菅田誠治, 大原利眞 (2012) 2012 年 1 月における PM<sub>2.5</sub> 高濃度時の濃度分布とその要因について. 大気環境学会第 53 回年会, 同講演要旨集, 424

山本重一, 力 寿雄, 下原孝章, 兼保直樹, 高見昭憲, 佐藤 圭, 畠山史郎 (2012) 福岡における黄砂観測時の PM<sub>2.5</sub> 中多環芳香族炭化水素類の濃度上昇について. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 229

山本勝彦, 中戸靖子, 三田村徳子, 山神真紀子, 加藤三奈, 西山 亨, 平澤幸代, 中坪良平, 板野泰之, 菅田誠治, 大原利眞 (2013) PM<sub>2.5</sub> の近畿地方におけるローカルな要因による高濃度について. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 510

山本重一, 下原孝章, 濱村研吾, 山本勝彦, 谷口延子, 山崎敬久, 長谷川就一, 三田村徳子, 長田健太郎, 田村圭, 家合浩明, 小林優太, 菅田誠治, 大原利眞 (2013) 2012 年春季から夏季に西日本で観測された PM<sub>2.5</sub> 高濃度イベントの要因解析. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 226

山本重一, 下原孝章, 濱村研吾, 田村 圭, 菅田誠治, 鶴野伊津志 (2014) 福岡における PM<sub>2.5</sub> 地域汚染の特徴について. 第 55 回大気環境学会年会, 同講演要旨集, 195

山本重一, 下原孝章, 濱村研吾, 田村 圭, 小林優太, 日置 正, 菅田誠治 (2014) 西日本における PM<sub>2.5</sub> 高濃度の季節別特徴について. 第 55 回大気環境学会年会, 同講演要旨集, 194

山本勝彦, 中戸靖子, 西村理恵, 三田村徳子, 山神真紀子, 加藤三奈, 三原利之, 高士昇吾, 高倉尚枝, 中坪良平, 浅野勝佳, 板野泰之, 菅田誠治 (2014) 東海・近畿地域における PM<sub>2.5</sub> 高濃度事象の要因について. 第 55 回大気環境学会年会, 同講演要旨集, 197

山崎敬久, 木戸瑞佳, 源 将, 菅田誠治, 清水 厚 (2013) 富山県における標高別 PM<sub>2.5</sub> 調査. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 475

柳澤利枝, Tin-Tin-Win-Shwe, 藤谷雄二, 平野靖史郎, 新田裕史 (2014) ディーゼル排気ガス由来二次生成有機エアロゾル (DE-SOA) の胎児期～乳児期曝露が仔のアレルギー性気道炎症に及ぼす影響. 第 55 回大気環境学会年会, 同講演要旨集, 496-496

吉野彩子, 畠山史郎, 鈴木亮太, 高見昭憲, 佐藤 圭, 兼保直樹, 村野健太郎, 坂東 博, 定永靖宗, 坂本哲夫, 間山憲仁, 三澤健太郎, 藤井正明 (2012) 長崎県福江島における有機エアロゾル・エアロゾル金属成分の季節変化. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 407

吉野彩子, 高見昭憲, 三好猛雄, 伊禮 聡, 佐藤圭, 清水 厚, 兼保直樹, 畠山史郎, 原圭一郎, 林 政彦 (2014) 福岡市における微小粒子の化学組成解析. エアロゾル科学・技術研究討論会第 31 回, 同予稿集

弓場彬江, 定永靖宗, 高見昭憲, 畠山史郎, 増井嘉彦, 大原利眞, 横内陽子, 米村正一郎, 加藤俊吾, 梶井克純, 竹中規訓, 坂東 博 (2012) 長距離輸送中における総反応性窒素酸化物 ( $\text{NO}_y$ ), Total nitrate の動態解析: 沖縄辺戸岬および長崎福江島における連続観測結果の比較. 「東アジアにおけるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト」シンポジウム, 同予稿集, 64

湯本弥生, 吉野彩子, 兼保直樹, 高見昭憲, 畠山史郎 (2012) 東アジアから北部九州および沖縄に飛来するエアロゾルイオン成分とその挙動. 大気環境学会第 53 回年会, 同予稿集, 256

湯本弥生, 荒木優志, 畠山史郎, 吉野彩子, 高見昭憲 (2013) 東アジアに由来するエアロゾルイオン成分の粒径別濃度とその変動. エアロゾル科学・技術研究討論会第 30 回, 同予稿集, 141-142

紫合英樹, 定永靖宗, 増井嘉彦, 高見昭憲, 大原利眞, 横内陽子, 米村正一郎, 弓場彬江, 加藤俊吾, 梶井克純, 畠山史郎, 井関将太, 松木 篤, 岩坂泰信, 佐藤啓一, 坂東 博 (2012) 東アジアから越境輸送される窒素酸化物によるオゾン生成効率の評価. 大気環境学会年会第 53 回, 同予稿集, 483

紫合英樹, 定永靖宗, 高治 諒, 橋本侑樹, 石山絢菜, 高見昭憲, 大原利眞, 横内陽子, 米村正一郎, 松木 篤, 佐藤啓市, 長田和雄, 坂東 博 (2013) 東アジアから越境輸送される窒素酸化物によるオゾン生成効率の評価. 大気環境学会第 54 回年会, 同予稿集, 514

---

国立環境研究所研究プロジェクト報告 第109号  
NIES Research Project Report, No.109

(SR - 109 - 2015)

都市大気における粒子状物質削減のための動態解明と  
化学組成分析に基づく毒性・健康影響の評価  
(分野横断型提案研究)  
平成24～26年度

A study of PM in urban atmosphere for reduction of PM and evaluation of toxicity  
and health impact of PM based on chemical compositions  
FY2012 ~ 2014

---

平成27年9月30日発行

編集 国立環境研究所 編集委員会

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  
September 2015

---

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。  
<http://www.nies.go.jp/kanko/index.html>