

国立環境研究所特別研究報告

Report of Special Research from the National Institute for Environmental Studies, Japan

SR - 91 - 2009

都市大気環境中における  
微小粒子・二次生成物質の影響評価と予測  
(特別研究)

Forecast and impact analysis of fine particles and photochemical pollutants  
in urban air environment

平成18～20年度

FY2006～2008

NIES



独立行政法人 国立環境研究所

NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES

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

都市大気環境中における  
微小粒子・二次生成物質の影響評価と予測  
(特別研究)

Forecast and impact analysis of fine particles and photochemical pollutants  
in urban air environment

平成 18～20 年度

FY2006～2008

特別研究「都市大気環境中における微小粒子・二次生成物質の影響評価と予測」

(期間 平成18～20年度)

特別研究責任者：小林伸治

特別研究幹事：小林伸治

特別研究報告書編集担当：今村隆史

## 序

本報告書は、平成18～20年度の3年間にわたって実施した特別研究「都市大気環境中における微小粒子・二次生成物質の影響評価と予測」の研究成果を取りまとめたものです。

直径が数 $\mu\text{m}$ 以下の微小な粒子（PM）は、人の健康に及ぼす影響が大きいため、大気環境を保全する上で大変重要な物質です。近年、ディーゼル車に対する排出ガス規制の強化により、都市の大気環境に大きな影響を及ぼしていたディーゼル車からの粒子（DEP）は減少する傾向にありますが、その一方で、窒素酸化物（NO<sub>x</sub>）や揮発性の有機物質（VOC）等のガス状物質から光化学反応で生成される二次粒子の影響が高まる傾向があります。二次粒子は、NO<sub>x</sub>と植物から放出されるVOCとの反応などからも生成されますが、その挙動は、十分解明されておられません。

この研究では、今後、起こりうる都市の環境問題を未然に予測し、安全・安心な生活環境の確保に向けて、適切な対策を講じるための知見を得ることを目的に、発生源、大気環境、化学分析、疫学など、広範な専門分野の異なる研究者が密接に連携し、都市における微小粒子、特に二次粒子について、原因物質の発生から大気中における生成や変化、さらには、大気環境の将来予測や健康影響までの一連の研究を行いました。

最新ディーゼル車の排出ガス評価では、二酸化窒素（NO<sub>2</sub>）の排出量が従来車よりも増加しているなど、新たな課題があることを明らかにしました。2007年夏に外部機関の協力を得て実施したフィールド観測では、最新の分析手法を適用するとともに、得られた情報をもとに都市大気汚染モデルによる解析を行い、有機二次粒子（SOA）や生物起源粒子の挙動や寄与を明らかにするなど、今後の大気環境を保全するうえで、有益な情報を得ることができました。

また、疫学的な見地から、大都市圏を含む全国20地域における人口動態統計に基づく死亡データによる解析を行い、大都市域およびその周辺地域で微小粒子状物質への曝露と死亡リスクとの関連性を見いだすとともに、東京都内の幹線道路沿道等を歩行しながらPM濃度や超微小粒子の濃度等を測定し、幹線道路沿道住民等の交通環境における高曝露群の曝露実態を明らかにしました。

本研究の成果は、二次生成汚染物質や大陸からの越境汚染の寄与が大きくなるなど、ますます複雑になる都市の大気環境を保全する総合的な施策を検討する上で役に立つものと確信しています。

最後に、本研究を進めるにあたり、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。ここに深く感謝致します。

平成21年12月

独立行政法人 国立環境研究所  
理事長 大 垣 眞一郎



## 目 次

1	研究の目的と経緯	1
1.1	研究の背景及び目的	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	5
2.1	都市圏における二次生成汚染物質の発生源から環境中における計測と動態解明	5
2.1.1	新型ディーゼルの排気特性と課題	5
2.1.2	自動車排気由来ナノ粒子の観測と動態解析：粒径分布の長期観測	9
2.1.3	自動車排気由来ナノ粒子の観測と動態解析：化学組成に基づく由来・動態解析	11
2.1.4	二次粒子を含む微小粒子の観測と環境動態（FAMIKA）：観測概要と炭素成分の挙動	17
2.1.5	二次粒子を含む微小粒子の観測と環境動態（FAMIKA）：全炭素中 <sup>14</sup> Cの経時変化	20
2.1.6	二次粒子を含む微小粒子の観測と環境動態（FAMIKA）：レセプターモデルによる発生源寄与解析	21
2.1.7	二次粒子を含む微小粒子の観測と環境動態（FAMIKA）：AMSを用いた騎西ならびに前橋での粒子成分挙動の解析	24
2.2	都市における二次生成大気汚染のモデル化と将来予測	29
2.2.1	化学輸送モデルによる微小粒子の組成別時空間変動の予測	29
2.2.2	化学輸送モデルによる微小粒子の排出源寄与推計	34
2.2.3	曝露評価のための沿道拡散モデルの開発	38
2.3	都市環境における大気汚染高レベル曝露と健康影響予測	41
2.3.1	都市域およびその周辺地域における微小粒子状物質への曝露と死亡リスクとの関連性解析	41
2.3.2	都市幹線道路周辺の歩行中における大気汚染物質曝露	46

### [資料]

I	研究の組織と研究課題の構成	57
1	研究の組織	57
2	研究の課題と担当者	58
II	研究成果発表	59
1	誌上发表	59
2	口頭発表	66



# 1 研究の目的と経緯

## 1.1 研究の背景および目的

ディーゼル車に対する厳しい排出ガス規制導入により、将来、ディーゼル排気粒子（DEP）等の一次排出粒子の排出量は大幅な低減が見込まれているが、その一方で、大気中における光化学反応で生成される微小な二次生成粒子の寄与が高まる傾向がある。

図1は、1993年度およびその10年後の2003年度における東京都内の大気測定局の月毎の変化を比べたものである。1990年代の初めは、初冬季（11月ごろ）に、浮遊粒子状物質（SPM）の高濃度現象が観測されたが、2000年代に入ると、ディーゼル車などへの排出規制強化により、かなり改善され、冬季よりも、夏季の方が SPM 濃度が高い状態が見られるようになってきている。SPM の濃度変化は、光化学反応で生成されるオキシダント（Ox）とよく似た変化を示している。このことから、ガス状物質から光化学反応で生成される二次生成粒子の影響が大きいことが推察され、都市における大気環境は変化しつつあることがわかる。

また、今後、ディーゼル車に対する排ガス触媒の採用等、自動車排出ガスの質が大きく変化し、都市における大気汚染の構造が大きく変化することが予想される。本研究では、都市圏における微小粒子、二次生成汚染物質を対象にその動態、生成要因の解明と曝露モニタリング、リスク評価等を行い、今後、自動車等の技術変革により

起こりうる都市の環境問題を未然に予測し、中長期的な環境政策立案に資することを目的とする。

## 1.2 研究の構成

### 1.2.1 全体計画

本研究は、都市圏における微小粒子、二次生成汚染物質を対象に、広範な専門分野にわたる研究者の連携により、図2に示すように、その動態の解明から発生源寄与率の評価、曝露実態の把握と健康影響予測までにわたる一連の研究を行うもので、以下の3つのサブテーマを設定して研究を進めた。

### 1.2.2 サブテーマ1：都市圏における二次生成汚染物質の発生源から環境中における計測と動態解明

今後、普及が予測される排気後処理付ディーゼル車等、次世代の自動車や燃料についての排出特性を評価し、排出源としての課題を明らかにするとともに、排出インベントリ改良に資する情報を得た。加えて、エアロゾル質量分析装置（AMS：Aerosol Mass Spectrometer）や<sup>14</sup>C分析による生物起源粒子の寄与率推定など、最新手法を適用した都市圏におけるフィールド調査を行い、微小粒子や二次有機粒子（SOA：Secondary Organic Aerosol）を中心とする二次生成粒子の濃度や成分を解析し、その動態を明らかにした。さらに、得られた観測データを用いて、改良した SOA 生成モデルや将来の都市大気環境を評価・予測する化学輸送モデル（都市大気汚染モデル）を検証するとともに、粒子成分分析結果を用い

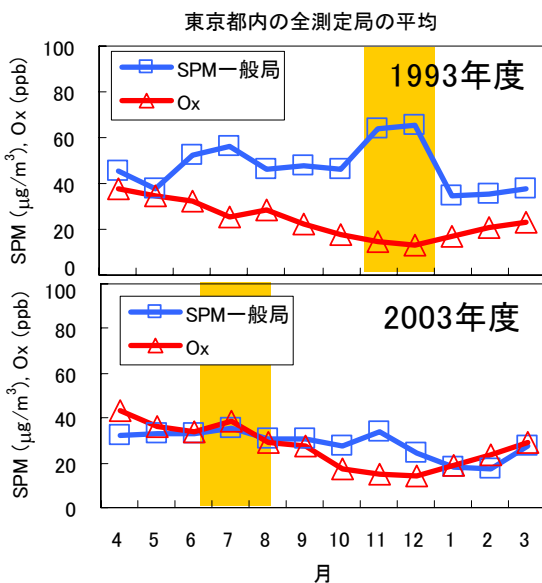


図1 東京都内における1993年度と2003年度のSPM, Ox濃度の比較

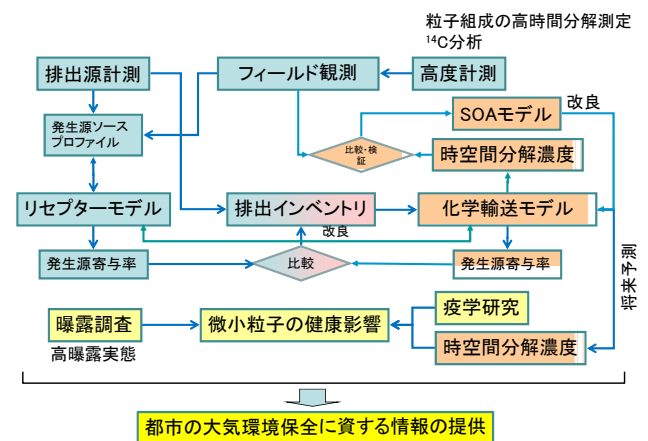


図2 研究の全体構成



て、ケミカルマスバランス法（CMB法）による発生源推定を行い、微小粒子に及ぼす一次発生源やSOAの寄与率を推定した。

### 1.2.3 サブテーマ2：都市における二次生成大気汚染のモデル化と将来予測

都市大気において微小粒子状物質の濃度低減は重要な課題であり、その対策立案のためには、微小粒子状物質の動態と発生源寄与率を把握する必要がある。中でも炭素性エアロゾルは特に動態解明が遅れており、一次排出と二次生成の寄与の分離を含む発生源別寄与推計が重要な課題となっている。

本研究では、2007年夏季に行われた微小粒子の広域観測結果（2章）と化学輸送モデル（CTM）の計算結果を比較して、関東地方における微小粒子状物質濃度の時空間分布の把握とモデルの再現性を評価した。次に、CMB法（2章）を用いた炭素性エアロゾルの発生源寄与推計結果をCTM計算結果と比較することにより、排出インベントリやCTMの予測性能を評価した。また、CMBの推計結果と放射性炭素（ $^{14}\text{C}$ 、2.1.5節）の測定結果を合わせて、人為起源SOA（ASOA）と生物起源SOA（BSOA）の分離を試み、その推計結果を基に、SOAに対するCTMの予測性能評価を行った。

一方、道路沿道における自動車起源の微小粒子状物質による高濃度汚染は、依然として重要な問題であることから、その長期曝露評価を目的とした新しいタイプの沿道拡散モデルを、風洞実験データを基にして構築した。

### 1.2.4 サブテーマ3：都市環境における大気汚染高レベル曝露と健康影響予測

微小粒子状物質への曝露による健康影響については近年世界各国で多くの調査研究が実施され、科学的知見が蓄積されている。しかしながら、微小粒子状物質中のどのような成分が最も健康影響に寄与しているかは明らかとなっていない。粒子成分による健康影響予測を行うことは発生源寄与を推定することにつながり、大気汚染防止対策立案において非常に重要である。一方、自動車排出ガス対策の効果によって、都市環境中の大気汚染レベルについては改善傾向が見られるものの、幹線道路沿道における局所的な高濃度出現、特に短時間の高濃度に関わる住民の高レベル曝露の実態は明らかとなっていない。

本研究では疫学的見地から大都市圏における二次生成大気汚染の健康影響を予測するために、大都市圏を含む全国20地域における人口動態統計に基づく死亡データとサブテーマ2の研究グループの研究結果から得られた各地域の成分別濃度推計値を基に、両者の短期的な関連性について統計的解析を行った。

また、東京都内の幹線道路周辺において、可搬式の測定器を用いて歩行時の窒素酸化物濃度、微小粒子状物質濃度、超微小粒子濃度（個数濃度）の連続測定を夏期と冬期に実施して、数秒から数十秒単位の曝露濃度の変動と各汚染物質濃度間の相関、沿道における位置情報の解析等を行い高濃度曝露が生ずる条件について検討を行った。

## 1.3 本研究で得られた成果の概要

### 1.3.1 サブテーマ1：都市圏における二次生成汚染物質の発生源から環境中における計測と動態解明

今後、普及が予想されるDPF（Diesel Particulate Filter）や触媒等の排気後処理装置付最新ディーゼル車から排出される大気汚染物質の排出特性を実使用条件で評価し、粒子状物質は大幅に低減する一方、 $\text{NO}_2$ の排出量の増加やコールドスタート時の排出寄与が大きくなるなど、新たな課題があることを明らかにした。さらに、最新ディーゼル車について、経年劣化を調べ、車種によっては、1年程度で排気後処理装置が劣化し、排出量が大幅に増加する可能性があり、改善の余地があることを明らかにした。

自動車由来ナノ粒子の大気中における動態を把握することを目的として、道路沿道と一般環境におけるナノ粒子を含む微小粒子の粒径分布や個数濃度、粒径毎組成の長期観測を実施した。自動車から排出される粒径が20nm付近に個数濃度のピークを有するナノ粒子は、主にエンジンオイルの成分から構成された半揮発性の粒子であり、道路沿道では高濃度で存在するが、一般環境に移流拡散していく過程で揮発し、消滅していくことなど、これまで十分把握されていなかった自動車由来のナノ粒子の挙動を明らかにした。

二次生成粒子や生物起源粒子の動態、生成要因、寄与率等を把握するとともに、化学輸送モデルの予測精度を検証することを目的として、関東平野を対象に、AMSや粒子中炭素の $^{14}\text{C}$ 分析などの最新手法を適用したフィールド観測を実施した。炭素分析やAMSによる測

定結果から、粒子中の炭素成分は、有機炭素の割合が多く、その中でも、SOAと考えられる含酸素有機エアロゾルの寄与が日中に増加し、70～80%を占めることを明らかにした。さらに、観測期間中に採取された大気中試料（PM<sub>2.5</sub>）の総炭素（TC）中の<sup>14</sup>C分析を実施し、生物由来のカーボンの比率 pMC（%モダンカーボン）を求めた。その結果、騎西、前橋では、pMCが約40～60%と粒子中炭素に占める生物由来の寄与が大きく、人為発生源の活動量が低下する夜間に、pMCが上昇する傾向があることを明らかにした。

フィールド観測で得られた粒子成分分析結果を用いて CMB 法による発生源推定を行い、一次発生源や SOA の寄与率を推定した。その結果、一次発生源の寄与は前橋では28%、騎西では51%であった。また最も寄与の大きい発生源は、前橋では自動車で12%、騎西では野焼きで27%であった。また、SOAの寄与率は前橋で14%、騎西で8%であった。さらに、CMBにより推定した排出源寄与率を用いて、生物由来の炭素の寄与を推定した。その結果、全炭素の40～60%が生物起源であり、<sup>14</sup>C測定の結果と良く一致した。元素状炭素の85%は化石燃料起源であるが、有機炭素については化石燃料起源よりも生物起源の寄与が高いことが示唆された。

### 1.3.2 サブテーマ2：都市における二次生成大気汚染のモデル化と将来予測

化学輸送モデルの PM<sub>2.5</sub>成分に対する予測性能について、フィールド観測結果を基に、関東の広域4地点（前橋、騎西、狛江、つくば）において評価した。その結果、①二次無機成分の平均濃度は4地点において比較的良く再現された、②一次排出物（EC：元素状炭素エアロゾル）、一次有機エアロゾル（POA）は、郊外で過小評価が見られ、一次排出される気体成分（NO<sub>x</sub>など）と同様の傾向であった、③有機炭素エアロゾル（OC）は全地点で顕著に過小評価していた。SOA生成モデルとして、最新の実験結果を基に光化学反応を精緻に計算するメカニカルモデルを導入することにより、従来のモデルと比較して、SOAの予測精度が2倍程度向上し、その結果、OCの予測精度も40～80%向上した。

化学輸送モデルによる一次粒子の発生源寄与率を、前橋における CMB による推定値と比較した結果、①自動車排ガスは EC の主要な発生源であり、その寄与率は CMB で72%、化学輸送モデルで67%とほぼ一致するこ

と、②OCについても、自動車排ガスが主要な発生源ではあるものの（CMB で33%、化学輸送モデルで54%）、野焼きが自動車排ガスと同程度の寄与を持つこと（CMB で37%、化学輸送モデルで22%）、などが明らかになった。

ASOA と BSOA の濃度を計算し、pMC 測定とレセプターモデルを基にした推計結果と比較したところ、①モデル計算された ASOA はオゾンとともに日中に増大しており、ASOA の推計結果とよく似た経時変動を示すことから、光化学生成が ASOA の主要な生成源であること、②調理など CMB で考慮していない生物起源 POA が無視できると仮定すると、BSOA は一日を通して ASOA よりも高濃度であると観測値から推計されるが、モデルでも同様な特徴を示すことから、内陸部で BSOA が重要な寄与を持つこと、③SOA メカニカルモデルを使用しても、観測から推計された SOA 濃度を5～10倍過小評価しており、モデル化されていない揮発性有機化合物（VOC）等からの SOA 生成が重要であること、などが示された。

自動車から排出された NO<sub>x</sub> や微小粒子への曝露量を評価するために、沿道建物状況や道路構造による影響を考慮して汚染濃度の空間分布を計算できる、半解析半数値型の沿道拡散モデルを風洞実験データを基に開発し、フィールド観測データにより検証した。

### 1.3.3 サブテーマ3：都市環境における大気汚染高レベル曝露と健康影響予測

大都市圏を含む全国20地域における人口動態統計に基づく死亡データにより解析を行い、大都市域およびその周辺地域で微小粒子状物質への曝露と死亡リスクとの関連性が見いだされた。特に、呼吸器系疾患や心疾患による死亡リスクとの関連性が認められた。しかしながら、微小粒子の構成成分や社会経済的要因など種々の要因が微小粒子状物質への曝露による死亡リスクに関する地域差に関わっている可能性が示唆され、二次生成大気汚染レベルと直接に関連づけることは困難であった。

二次生成粒子の健康リスクを検討するために、サブテーマ2で開発されたモデルによって推計された日別成分濃度と日死亡率との関連性をケースクロスオーバー解析によって検討した。その結果、大都市域とその周辺地域の一部で OC 濃度と全死亡（事故を除くすべての死亡）や循環器系疾患による死亡との関連性を示す地域があった。微小粒子状物質濃度（総量）と死亡との関連性とは

異なる傾向を示す地域が存在していた。さらに、二次生成に関わる推計成分濃度との関連性を示す地域が認められ、このことから、微小粒子状物質全体の健康リスクの評価にあたっては、二次生成寄与を考慮する必要性を示すものと考えられた。

東京都内の幹線道路周辺において、歩行時の窒素酸化物濃度、微小粒子状物質濃度、超微小粒子濃度（個数濃度）の連続測定を夏期と冬期に実施した。その結果、沿道歩行時の曝露濃度と後背地濃度との差は日平均値レベルでは大きくないものの、数秒から数十秒の単位では沿

道歩行時の窒素酸化物、微小粒子、超微小粒子への曝露濃度はそれぞれの平均濃度の数十倍にも達する場合があった。窒素酸化物濃度と超微小粒子個数濃度との相関は高く、共通の発生源を持つことが示唆された。これら高濃度曝露が生ずる事例を検討したところ、排出ガス量の大きい車両が歩道脇を通過した場合や停車中に側を歩行した場合、および渋滞時に風下側を歩行した場合に認められることを明らかにした。また、交差点での信号待ち時の曝露の寄与も大きいことが示された。

## 2 研究の成果

### 2.1 都市圏における二次生成汚染物質の発生源から環境中における計測と動態解明

#### 2.1.1 新型ディーゼルの排気特性と課題

##### (1) 研究の目的

ディーゼル車から排出される窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>) および粒子状物質 (PM) は、都市における大気環境への影響が大きく、段階的に排出規制が強化されてきた。近年、厳しい排出規制に対応するため、ディーゼル車にも酸化触媒やDPF (Diesel Particulate Filter) 等の排気後処理装置が装着されるようになり、特にPMについては、大幅に低減された車両が市場に投入されるようになってきた。その反面、排気後処理装置付ディーゼル車の導入により、排気管から直接排出される二酸化窒素 (NO<sub>2</sub>) の排出量が増加し、道路沿道でのNO<sub>2</sub>濃度の上昇を招くなど、新たな問題が生じる恐れがあることが指摘されている<sup>1-3)</sup>。そこで、本研究では、排気後処理装置付ディーゼル車の導入が大気環境に及ぼす影響を検討するための基礎データを得るため、都市内実走行モードを用いて、市販の酸化触媒やDPF付ディーゼル車から排出されるNO<sub>2</sub>やPM等の大気汚染物質等の排出特性を調べた。

##### (2) 実験装置および方法

###### (ア) 実験装置

排出ガスの測定は、国立環境研究所の自動車排出ガス試験設備を用いて実施された。図3に試験設備の概要を示す。シャシーダイナモメータは電気慣性方式のローラダイナモメータ (ローラ径: 1219mm (48in), 吸収: 150kW, 駆動: 130kW) を使用した。排出ガスは、希釈トンネル (流量: 5~45m<sup>3</sup>/min) で希釈したのち、自動

車用排気ガス分析計 (CO: NDIR, THC: 加熱型 FID, NO, NO<sub>x</sub>: 加熱型 CLD, CO<sub>2</sub>: NDIR) により測定した。車両の運転は、ロボットを用いた。PMはローボリウムサンプラーを用いてフィルター (Pallflex TX40 HI-20-WW 又は2500QAT-UP) に捕集し、25°C, 50%RHの秤量チャンバーに24時間以上放置した後、読み取り限度0.1μgの天秤により秤量した。排出量は、捕集前後の重量差より求めた。

###### (イ) NO<sub>2</sub>の測定方法

NO<sub>2</sub>は、各バッグに採取した希釈排気ガス中のNOとNO<sub>x</sub>の測定値からNO<sub>2</sub>を求める方法も検討したが、試験期間中におけるNOの酸化や水分へのNO<sub>2</sub>の溶けこみ等の影響が考えられるため、希釈排気ガスを連続測定して瞬時の排出量を求め、それを積算することによりモード運転時の排出量を求めた。2台の化学発光式NO<sub>x</sub>分析計を用い、それぞれ、NO、NO<sub>x</sub>モードに設定し、その差をNO<sub>2</sub> (NO<sub>2</sub> = NO<sub>x</sub> - NO) とした。

試験における走行モードは、表1に示す我が国における代表的な実走行モードである東京都の実走行モードを使用し、積載の影響を調べる時以外は、全て半積載の条

表1 試験に用いた走行モード

試験モード名	平均速度 (km/h)
東京都 No. 2	8.4
No. 4	14.6
No. 8	28.5
No. 10	44.3
高速No. 2	53.4
JE05	27.3

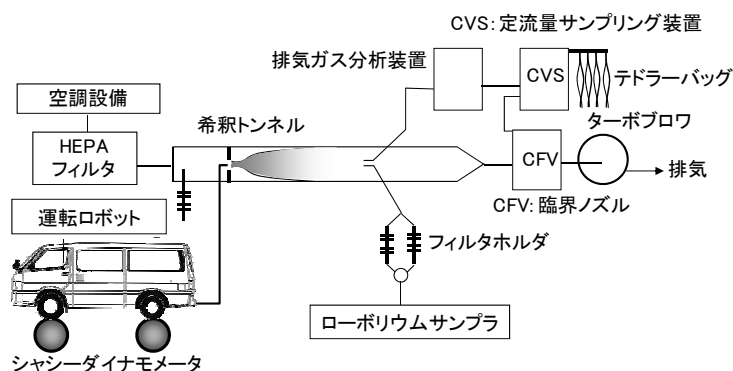


図3 試験設備概要

表2 供試車両主要諸元

	新短期A	新短期B	新長期C	新長期D	新長期E
車両重量(kg)	1,990	1,690	2,250	2,180	2,230
最大積載量(kg)	1,000	1,250	2,000	2,000	2,000
車両総重量(kg)	3,155	3,105	4,415	4,345	4,395
車体形状	バン	バン	キャブオーバ	キャブオーバ	キャブオーバ
エンジン					
燃烧方式	直接噴射	直接噴射	直接噴射	直接噴射	直接噴射
排気量(L)	2.95(ターボ過給)	1.99(ターボ過給)	4.009(ターボ過給)	2.99(ターボ過給)	2.97(ターボ過給)
排気後処理装置	酸化触媒	酸化触媒 +DPF	酸化触媒 +DPF	酸化触媒 +触媒化DPF	酸化触媒 +DPF +酸化触媒
排出ガス規制	2003(新短期)	2003(新短期)	2005(新長期)	2005(新長期)	2005(新長期)

件で試験を実施した。なお、積載条件の影響を調べる時は、実験回数を削減するため、都市内における広範囲の運転条件を含むJE05モードを使用した。

(ウ) 供試車両

供試車両には、表2に示す新短期(平成15年)排出ガス規制対応のディーゼル貨物車2台と新長期(平成17年)排出ガス規制対応のディーゼル貨物車3台を使用した。車両A(新短期A)以外は、全て、DPFが装着された車両である。

燃料は市販のディーゼル軽油(2号軽油, 硫黄分10ppm以下)を使用した。

(3) 実験結果と考察

(ア) 実走行モードにおけるNOx排出特性

図4~6に、それぞれ、実走行モード試験時におけるNOxとNO2の排出特性およびNO2/NOx比を示す。

図4には、環境省が設定している長期, 新短期, 新長期規制車両の排出原単位(それぞれ, MOE\_長期, MOE\_新短期, MOE\_新長期<sup>4)</sup>)も示した。ディーゼル車のNO2/NOx比は、後処理装置が無い場合、一般に5~12%程度と言われている<sup>5)</sup>。そこで、図5には、NO2/NOx比をそれぞれ10, 20%と仮定して求めた新長期規制対応車両のNO2排出原単位も示した。

各車両について、数回の試験を実施したが、DPF装着車は値がばらつく傾向が見られたため、NO2/NOx比の全ての試験結果をプロットしてある(図6)。

いずれの車両も通常の運転状態では、NOx排出量は、環境省の排出原単位と同レベルか、それ以下であったが、後述するようにDPFの自動再生が行われるとNOx排出量が増加し、環境省の排出原単位を超える場合があった。

NO2排出量は、長期規制車両に比べてNOx排出量が

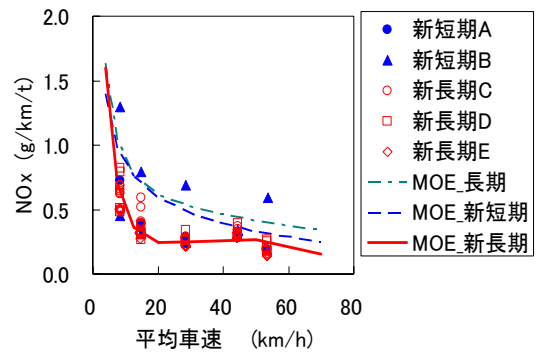


図4 NOx排出特性

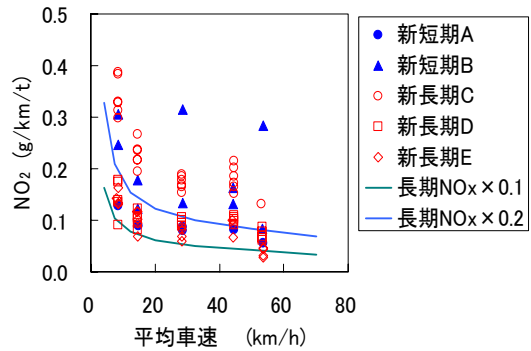


図5 NO2排出特性

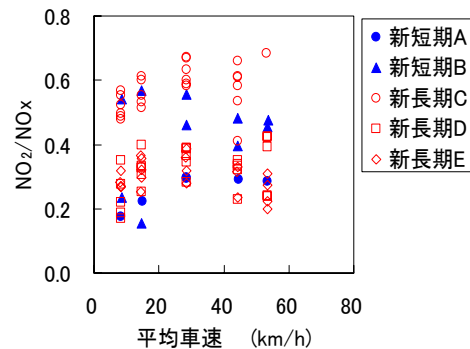


図6 NO2/NOx比

大幅に低減されているにも関わらず、 $\text{NO}_2/\text{NO}_x$  比が、20~70%と高いため、 $\text{NO}_2/\text{NO}_x=10\%$ と仮定して求めた長期規制車両の排出量よりも高い値を示した。得られた結果から、新長期規制対応車両の導入による $\text{NO}_2$ の排出削減は難しいことがわかる。しかしながら、新短期規制対応のDPF付き車両Bに比べて、新長期規制対応の車両は、DPFが付いているにも関わらず、 $\text{NO}_2$ 排出量はいずれも低く、今後、排気後処理装置の改善が進むに従い、改善される傾向にあると考えられる。

(イ) DPF再生時における $\text{NO}_x$ 排出量の増加

同一試験を繰り返した時に生ずる $\text{NO}_x$ 排出量変化の原因を調べるため、同一の実走行モード（東京都No.8）を長時間繰り返し走行させ、 $\text{NO}_x$ 排出量の変化を測定した。結果を図7に示す。図中の1プロットが1回の試験（走行距離約9.4km）に相当する。図に示すように周期的に $\text{NO}$ および $\text{NO}_x$ 排出量が増加する結果が得られた。同時に計測した排気温度も $\text{NO}_x$ の上昇に同期して上昇することから、 $\text{NO}_x$ の増加はDPFの自動再生によるものと考えられた。すなわち、EGR量を削減してPMの排出を減らし、噴射時期を遅延させて排気温度を上昇させるとともに、噴射時期の遅延による出力低下を噴射量の増加で補っていることによるものと推察された。

新長期規制対応車両についても、同様の実験を行い、DPFの自動再生による $\text{NO}_x$ 排出量の増加を確認したが、図7に示した新短期規制対応車両Bよりは、再生の間隔が長くなっており、改善されていることが確認された。

(ウ)  $\text{NO}_x$ 以外の汚染物質等の排出特性

$\text{NO}_x$ 以外の大気汚染物質等の排出特性についての結果を図8~10に示す。図中には、環境省が設定している長期、新短期、新長期規制車両の排出原単位を示した。

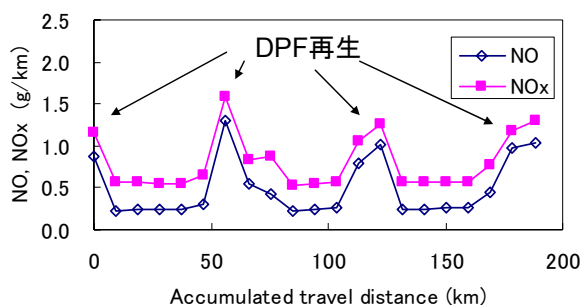


図7 DPF再生時の排出量増加（新短期B）

PMについては、酸化触媒付きの車両（新短期A）が最も高い値を示したものの、それ以外のDPF付き車両は、極めて低い値を示した。排出レベルは、全ての車両が、それぞれ対応する環境省排出原単位と同レベルであったが、DPFの自動車再生が行われた時には、対応する排出原単位を超える時があった。COは、それぞれ対応する環境省の排出原単位と同レベルの排出量を示した。THC（全炭化水素）は、通常の運転条件では、それぞれ対応する環境省の排出原単位と同レベルの排出量であったが、DPFの自動再生が行われた時に長期規制レベルの排出量まで増加する車両があった。

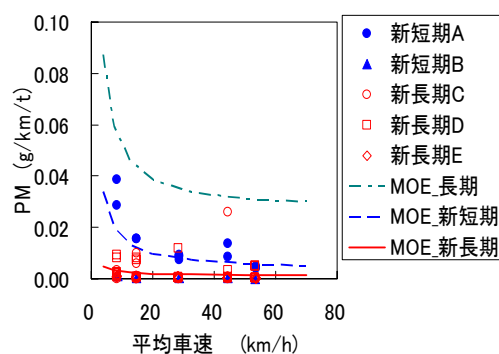


図8 PM排出特性

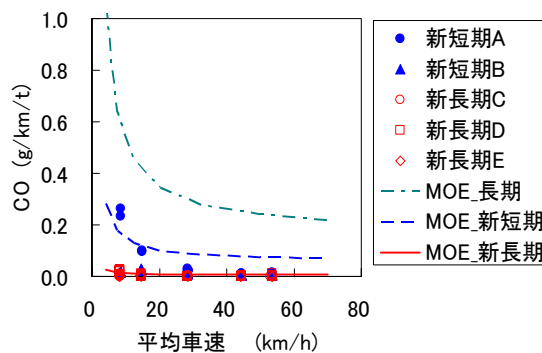


図9 CO排出特性

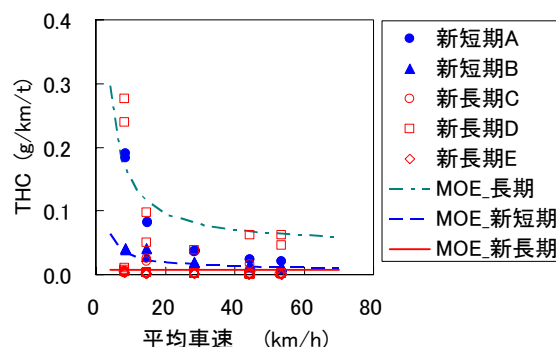


図10 THC排出特性

図11は、NMHC（非メタン炭化水素）/THC比であるが、新長期規制対応車両は、THCに占めるNMHCの比率が低下しており、光化学反応性の観点からは、従来車よりも改善されていることが確認された。これは、DPFの前段に、排気中のNOをNO<sub>2</sub>に変換して炭素粒子の酸化を促進するための活性の高い酸化触媒が装着されていることによるものと考えられる。

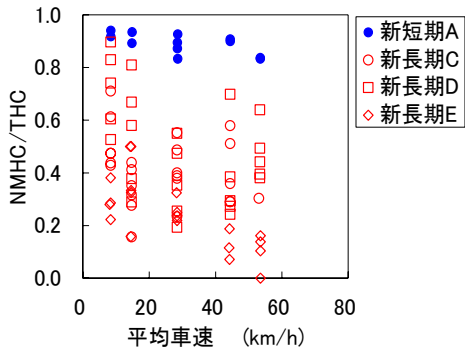
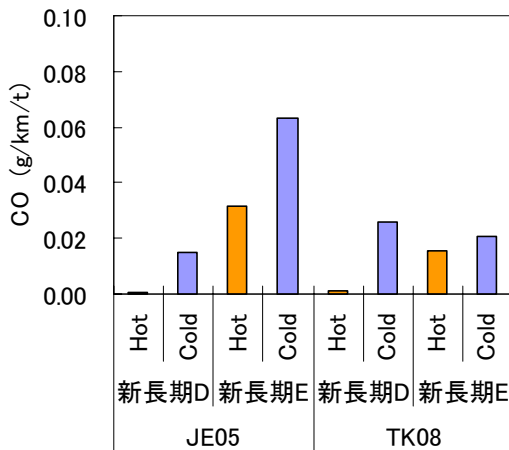


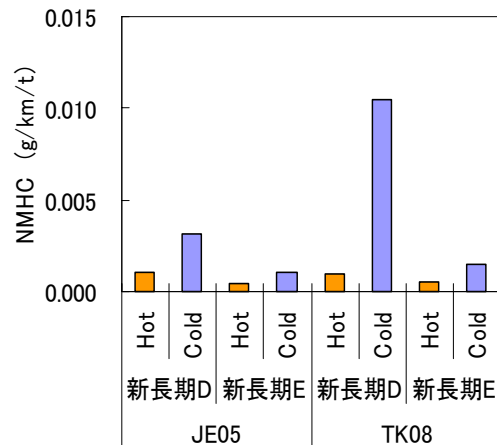
図11 NMHC/THC比

(エ) コールドスタート時における排出特性

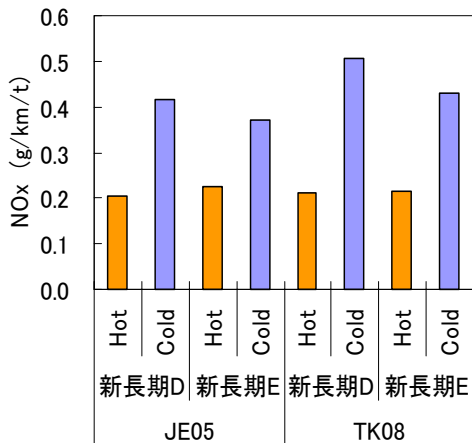
図12にJE05モードと実走行モード（東京都No.8）におけるコールドスタートとホットスタートにおけるモード平均の排出量（g/km/t）を示す。いずれの汚染物質もホットスタートに比べて、コールドスタートの排出量は、大幅に増加している。コールドスタート時の排出量増加率は、酸化触媒での浄化率が高いCO、NMHCが大きい。排出量の絶対値が小さいため、排出総量に及ぼす影響は小さいと考えられる。NO<sub>x</sub>は、排気後処理装置の影響は少ないと考えられるが、ホットスタートに比べて、コールドスタート時には、約2倍に排出量が増加している。これは、エンジンの耐久性を確保するため、NO<sub>x</sub>低減対策の主要な手法である排気ガス再循環（EGR）を冷間時に制限しているためと考えられる。ディーゼル車のNO<sub>x</sub>排出量は、自動車からのNO<sub>x</sub>総排出量に対する寄与が高いため、NO<sub>x</sub>の総排出量の推計を推計する際に、今後、コールドスタート時の排出量増加を考慮すること



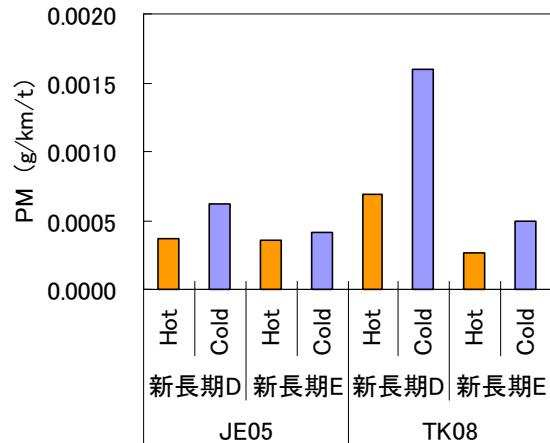
(a) CO



(b) NMHC



(c) NO<sub>x</sub>



(d) PM

図12 コールドスタート時における排出量の増加



が必要と考えられる。PM もコールドスタート時に排出が増加するが、排出量の絶対値が小さいため、自動車の排出総量に及ぼす影響は小さいと考えられる。

#### (4) まとめ

本稿では、排気後処理装置について新型ディーゼル車の導入が大気環境に及ぼす影響を検討するための基礎データを得るため、都市内実走行モードを用いて、市販の最新ディーゼル車から排出される汚染物質の排出特性を調べ、以下の結果を得た。

- (1) 新短期および新長期規制対応のディーゼル車の排気中における  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$  比は、後処理装置が装着されたことにより20~70%と従来車に比べて高く、 $\text{NO}_x$  は長期規制車に比べ大幅に低減されているにもかかわらず、 $\text{NO}_2$  排出量は増加していることが明らかになった。
- (2) DPF 付車両では、DPF の再生時に、 $\text{NO}_x$  排出量が増加することが確認された。その原因は、再生時に EGR 量を削減したためと推察された。
- (3)  $\text{NO}_x$  以外の汚染物質は、酸化触媒付車両では、対応する環境省排出原単位と同レベルであった。DPF 付車両では、CO, THC, PM は、極めて低いレベルであった。
- (4) 新型ディーゼル車のコールドスタート時における排出量は、いずれの汚染物質もホットスタートに比べて、大幅に増加していることが明らかになった。特に、コールドスタート時における EGR 量の抑制による  $\text{NO}_x$  排出量の増加が大きいことが明らかになった。

#### 参考文献

- 1) Carslaw D.C. (2005) Evidence of an increasing  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$  emissions ratio from road traffic emissions, Atmos. Environ., vol.39, 4793-4802.
- 2) Barratt B. (2005) Assessment of recent trends in  $\text{NO}_2$  using CUSUM analysis methods, <http://www.erg.kcl.ac.uk/erg/asp/MonitoringReports.asp>.
- 3) Air Quality Expert Group (2006) Trends in Primary Nitrogen Dioxide in the UK, <http://www.defra.gov.uk/corporate/consult/aeqg-itrogen dioxide/consultation.pdf>.
- 4) 数理計画 (2008) 平成19年度環境省委託業務結果報告書「自動車排出ガス原単位及び総量算定検討調査」

5) Carslaw D.C., Beevers S.D. (2005) Development of an urban inventory for road transport emissions of  $\text{NO}_2$  and comparison with estimates derived from ambient measurements, Atmos. Environ., vol.39, 2049-2059.

### 2.1.2 自動車排気由来ナノ粒子の観測と動態解析: 粒径分布の長期観測

#### (1) はじめに

大気中のナノ粒子 (粒径<50nm) は健康影響の観点から注目されており、大気中での詳細な動態や、経年変化に影響する要因などは依然として不明な点として残されている。本研究ではこれらの課題を明らかにする目的で、首都圏の道路沿道や一般環境において個数濃度と粒径分布の多点同時観測を行った。

#### (2) 方法

個数濃度と粒径分布の観測には走査型モビリティ粒子分級器 (SMPS, TSI 社製3034; 測定粒径範囲10~487nm) を使用した。観測地点は図13に示したように沿道地点が川崎市池上新町交差点 (池上), 千代田区北の丸測定局 (北の丸), 足立区日光街道梅島測定局 (梅島) の3地点、一般環境地点が足立区綾瀬測定局 (綾瀬) と国立環境研究所大気モニター棟 (つくば) である。このうち池上と北の丸は2004年度に連続測定を開始し、梅島、綾瀬、つくばの連続測定は2006年に開始した。池上では本研究で独自に  $\text{NO}_x$ , SPM, 気象要素の観測を行い、その他の地点では既設の測定局で計測している汚染物質濃度を参考とした。

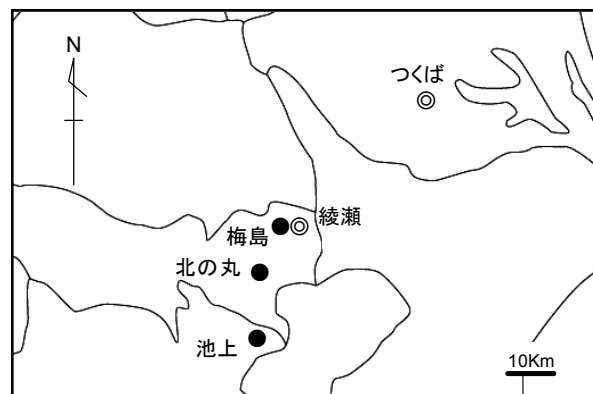


図13 粒径分布の連続測定地点



### (3) 結果と考察

図14に各地点の50nm以下の個数濃度 ( $N_{Dp<50}$ ) と50~100nmの個数濃度 ( $N_{Dp50-100}$ ) の推移を示した。 $N_{Dp<50}$  は一般環境よりも、道路沿道が高く、高い順に池上、北の丸、梅島、綾瀬、つくばとなっている。さらに  $N_{Dp<50}$  の季節変動は冬季に上昇するパターンが見られ、 $N_{Dp50-100}$  は季節変化が比較的小さかった。また  $N_{Dp50-100}$  は地点差が比較的小さいのに対して、 $N_{Dp<50}$  は一般環境地点よりも、沿道地点の濃度が2倍以上高かった。特に池上と北の丸は11月以降に急に増加した。

経年的な変動を見ると、北の丸では2004年の末ごろから、また池上では2006年の後半から濃度が低下する傾向が見られたが、両地点とも2007年11月頃から濃度が上昇し始め、冬期の濃度は、2006年度よりも高い値となった。その後2008年度も同様な濃度で推移している。このように個数濃度の経年変化は一定の傾向が見られない。池上で観測された2006年度の個数濃度低下については、排出量の変化、自動車交通量の低下および環境中での生成過程が変化したことなど、いくつかの要因が考えられる。このうち、排出量の変化については、2003年に開始されたディーゼル自動車の運行規制以降、粒子状物質排出量が極めて少ない酸化触媒やDPF等の粒子状物質低減装置を装着したディーゼル車が増加していることが影響した可能性があるが、長期観測の結果からは個数濃度の低減傾向は見られていない。また交通量については、同時

に測定している  $NO_x$  濃度にも大きな変化が見られないことから、自動車の交通量変化による影響とは考えられない。2006年度に比べて2007年度に粒径が50nm以下の揮発性を有するナノ粒子の増加が著しいことから、後述するように気温低下による凝縮性粒子の生成が増加したためと推察される。

梅島や一般環境の綾瀬とつくばは、どの粒径区分においても季節変動は小さかったが、冬季には  $N_{Dp<50}$  がやや増加した。これは拡散が抑制されることにより、一般環境でも沿道で発生したナノ粒子が影響するためであると考えられる。

図15に各地点における全測定期間の8月と2月の月平均粒径分布を示した。全体的な傾向として、沿道地点では2月に20nm付近にピークが表れ、さらに60~70nm付近に肩をもつような粒径分布となった。ここで見られた肩の粒径(60~70nm)は一般環境の粒径分布とほぼ一致するため、道路沿道ではバックグラウンドの粒子に自動車排ガス起源の粒子が上乘せされていると考えられる。冬季には一般環境の綾瀬やつくばでもピーク粒径が次第に微小粒径にシフトしていく様子が見られる。これは、前述のとおり拡散の抑制により沿道の影響を受けるためと考えられる。池上や北の丸で冬季に  $N_{Dp<50}$  が上昇するのは、拡散の抑制効果に加えて、気温が低いために蒸発が抑えられることの両方が寄与していると考えられる。同様のことは梅島、綾瀬、つくばでも起きていると考え

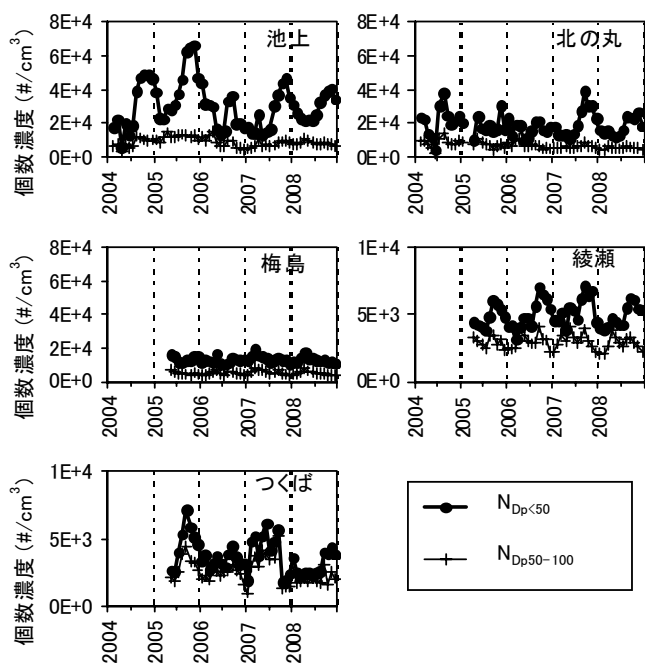


図14 各地点の50nm以下の個数濃度 ( $N_{Dp<50}$ ) と50~100nmの個数濃度 ( $N_{Dp50-100}$ ) のトレンド

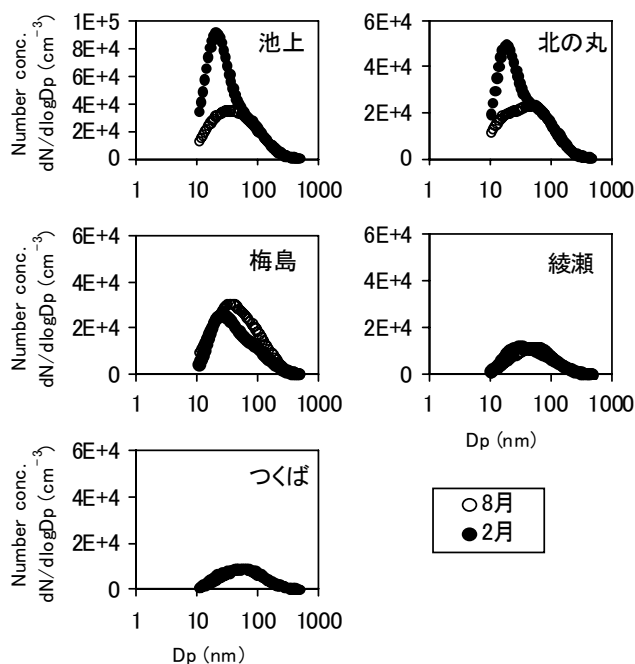


図15 各地点の測定期間中における8月と2月の平均粒径分布

られるが明確に見られないのは、これらの地点では自動車のテールパイプから放出されたナノ粒子が観測されるまでに、すでに蒸発したためと考えられる。

道路沿道である池上と北の丸では、粒径が50nm以下のナノ粒子の個数濃度は、気温との関係が強く、気温が低いほど増加する傾向がある。粒径が50nmより大きい粒子は、気温との関係が明確ではなく、気温と個数濃度との間に有意な関係は見られない。これまでの組成分析結果などから、粒径が50nm以下のナノ粒子は、エンジンオイルや燃料の高沸点成分から構成された凝縮性粒子であることが推察されていることから、気温が低い時の個数濃度の上昇は、凝縮性粒子の生成が促進されるためと考えられる。

### 2.1.3 自動車排気由来ナノ粒子の観測と動態解析: 化学組成に基づく由来・動態解析

#### (1) はじめに

ナノ粒子(粒径 $<0.050\mu\text{m}$ )の毒性が注目されるなか、自動車(特にディーゼル車)排気中や沿道大気中に高濃度のナノ粒子が存在することが報告されているが、ナノ粒子の化学組成や大気中での動態には不明な点が多い。例えば、沿道大気中で高濃度に観測されるナノ粒子が、幹線道路から100m程度以上離れた場所では観測されないことから、大気中でのナノ粒子の寿命が短いことが推測されるが、なぜナノ粒子が消失するかは解明されていない。大気経路でのナノ粒子の人への曝露を考えるうえで、大気中におけるナノ粒子の由来や動態を把握することは重要である。

そこで、我々は、大気中におけるナノ粒子の由来や動態を解明するため、ディーゼル排気中および沿道・後背地大気中の粒子の個数濃度と粒径別化学組成(炭素成分と有機成分)を測定することとした。

#### (2) 方法

大気粒子の測定は、神奈川県川崎市の池上新町交差点(沿道)とそこから内陸部に約200m離れた中留公園(後背地)において行った(図16)。

沿道と後背地において、粒子個数濃度をSMPSを用いて2004年12月22日から2005年1月19日まで測定した。沿道ではSMPS 3034(粒径範囲 $0.010\sim 0.470\mu\text{m}$ ; TSI)を用い、後背地ではSMPS 3936(粒径範囲 $0.098\sim 0.414\mu\text{m}$ ; TSI; model 3081 DMA+model 3025A CPC)

を用いた。

沿道と後背地において粒径別試料を2004年12月20~22日と2005年1月19~21日に低圧多段分級インパクター(LPI, DEKATI)を用いて採取した。両期間における測定結果は類似していたので、以下では2004年12月20~22日の測定結果のみを示す。沿道では粒子濃度が高いため、流量 $10\text{L}/\text{min}$ のLPI(LPI10)を用い、24時間採取を2回連続して行った。粒子濃度が低い後背地では、流量 $30\text{L}/\text{min}$ のLPI(LPI30)を用いて48時間採取を1回行った。LPI10の各段(ステージ)における50%カット径( $\mu\text{m}$ )は、 $<0.028$ (バックアップフィルター),  $0.028$ (S1),  $0.056$ (S2),  $0.093$ (S3),  $0.155$ (S4),  $0.262$ (S5),  $0.383$ (S6),  $0.614$ (S7),  $0.950$ (S8),  $1.60$ (S9),  $2.39$ (S10),  $4.00$ (S11),  $6.69$ (S12)である。同様にLPI30の50%カット径( $\mu\text{m}$ )は、 $0.029$ (S1),  $0.058$ (S2),  $0.102$ (S3),  $0.163$ (S4),  $0.251$ (S5),  $0.389$ (S6),  $0.632$ (S7),  $0.980$ (S8),  $1.60$ (S9),  $2.44$ (S10),  $3.95$ (S11),  $6.54$ (S12),  $10.12$ (S13)である。インパクションステージの捕集材にはアルミホイル( $25\text{mm}\phi$ , 東京ダイレック)を用い、バックアップフィルターには石英繊維フィルター( $47\text{mm}\phi$ , 2500QAT-UP, Pall)を使用した。

同様に、ディーゼル排気粒子(DEP)を、国立環境研究所のシャーシダイナモメータにおいて、LPI10(捕集材はアルミ)により粒径別に採取した。試験車両は3Lの直噴ディーゼルトラック(1997年規制対応、排気後処理無)であり、過渡運転(CD-34モード)で試験した。

粒子質量は、サンプリング前後の捕集材の質量の差から求めた。秤量は気温 $25^\circ\text{C}$ 、相対湿度50%に制御されたチャンバー(CHAM-1000, 堀場製作所)内に設置された電子天秤(最小読み取り値 $1\mu\text{g}$ , M5P-F, Sartorius)

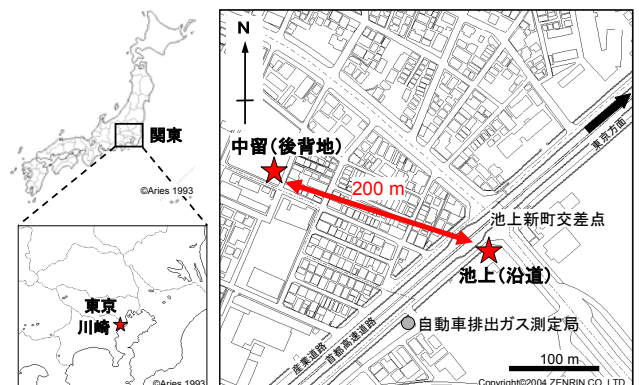


図16 測定地点の地図。沿道(池上)、後背地(中留)

を用いて行った。石英繊維フィルターは秤量前にチャンパー内で24時間恒量したが、アルミホイルは吸湿性がないため恒量しなかった。

粒径別試料中の元素炭素 (EC) と有機炭素 (OC) は熱分離/光学補正炭素分析計 (DRI Model 2001 Carbon Analyzer; Desert Research Institute) を用い、IMPROVE プロトコル (OC1: 120°C, OC2: 250°C, OC3: 450°C, OC4: 550°C (以上100% He 雰囲気), EC1: 550°C, EC2: 700°C, EC3: 800°C (以上2% O<sub>2</sub>/98% He 雰囲気) で測定した。インパクション (アルミホイル) 試料の場合には、ホイルが溶けるのを防ぐため EC3の分析は省略し、スポット状試料は適切な補正が困難なため OC の光学補正は行わなかった。

粒径別試料中の有機成分の分析には、極微量の試料に適用できる加熱脱着-ガスクロマトグラフィー/質量分析法 (GC/MS) を用いた。加熱脱着は熱分解装置 (Py-2010iD, フロンティアラボ) により、He 気流下 (3.0 mL/分) において50°C→50°C/分→450°C (2分) で行い、GC とのインターフェース温度は320°Cとした。GC には6890N を MS には四重極型の5973N (いずれも Agilent Technologies) を用いた。GC のインジェクターはスプリットレスモードで使用し、温度は320°Cに設定した。GC カラムには DB5 (長さ30m, 内径0.32mm, 膜厚0.25µm, Agilent Technologies) を用い、カラム流量は1.4 mL/分 (He) とした。GC オープンは40°C (1分) →20°C/分→150°C→10°C/分→320°C (5分) にプログラムし、MS とのインターフェース温度は320°Cとした。有機成分の全体像を把握するため、MS は Scan モード ( $m/z$  35~500) で測定した。イオン源と四重極の温度はそれぞれ250, 150°Cとした。

以上から、粒径0.03~0.06 µm およびそれより大きな粒子の化学組成に基づくナノ粒子の由来・動態解析が可能となる。しかし本来、ナノ粒子の化学組成を強く反映しているのは、粒径0.03 µm 以下の粒子と考えられる。そこで、我々は、さらに粒径0.03 µm 以下の粒子の組成を明らかにするため、粒径0.03 µm 以下の粒子を分級捕集できるインパクターを新たに適用するとともに、加熱脱着 GC/MS 法を加熱脱着装置や質量分析計の変更、選択イオン検出 (SIM) 法の適用などにより二桁程度高感度化し、沿道と後背地大気中の粒径別粒子に適用した。インパクターには NanoMoudi II (Model 125B, MSP, 流量10L/分) を用い、インパクション部の捕集材には金

ホイル (47 mm φ, 厚さ17 µm, 三菱マテリアル) を、バックアップフィルターには石英繊維フィルター (47mm φ, 2500QAT-UP, Pall) をそれぞれ用いた。粒径別試料は、2006年1月30日~2月3日に、沿道 (池上) と後背地 (中留) において同時に採取した。

### (3) 結果と考察

沿道と後背地における粒子個数濃度の粒径分布を図17に示す。沿道では0.020 µm 付近のナノ粒子のピークがはっきり観察された。この粒径分布はディーゼル排気粒子のものとよく似ており、ディーゼル排気の影響を強く受けていることが示唆された。一方、後背地ではナノ粒子のピークはなく、0.040 µm 付近を中心としたなだらかな粒径分布であった。後背地における粒径分布形状は風向によらずほぼ一定であり、池上新町交差点の風下になった場合でもナノ粒子のピークは観測されなかった。よって、池上新町付近の自動車から排出されたナノ粒子は、200m 離れた後背地に到達するまでの間に速やかに消失することが明らかになった。沿道のナノ粒子のピークが、サーモデニューダーで250°Cに加熱すると消失すること<sup>1)</sup>と合わせて考えると、ナノ粒子が大気中で揮発により消失した可能性がある。なお、凝集もナノ粒子消失の要因として考えられるが、凝集の速度は遅く、凝集のみではナノ粒子の速やかな消失を説明しきれないことが理論的に示されている<sup>2)</sup>。

沿道と後背地における粒子質量と炭素成分濃度の粒径分布を図18に示す。沿道では、全炭素 (TC=EC+OC) が粒子質量の大部分を占めており、特に粒径0.26 µm 以下 (S1~S4) でその割合が高い。また、粒径0.26 µm 以下の粒子は EC/TC 比が72~82%と高く、EC 濃度が DEP の場合と同様に0.1 µm 付近で最大となった。よって、

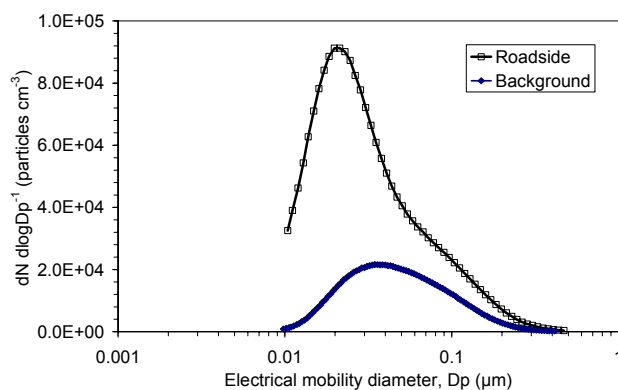


図17 沿道と後背地における粒子個数濃度の粒径分布。測定期間 (2004年12月22日~2005年1月19日) の平均値

沿道の粒径 $0.26\ \mu\text{m}$ 以下の粒子はDEPの影響を強く受けていると考えられた。後背地でも、EC濃度は粒径 $0.1\ \mu\text{m}$ 付近でやや高くなっており、粒径 $0.26\ \mu\text{m}$ 以下の粒子に対して、DEPがある程度寄与していることが示唆さ

れた。ナノ粒子画分(S1;  $0.03\sim 0.06\ \mu\text{m}$ )では、沿道・後背地ともにTCは粒子質量の80%程度を占めていた。

沿道と後背地における粒径別EC/OCフラクションの割合を図19に示す。沿道においてDEP主粒径の粒子(S3; 粒径 $0.093\sim 0.155\ \mu\text{m}$ )中のOC/TC比は18%と低いが、粒径が小さくなるとOC/TC比は増加しS1粒子では28%であった。S1粒子にはナノ粒子だけでなく、元素炭素を主成分とする凝集モード粒子も含まれると考えられるため、沿道のナノ粒子中のOC/TC比は28%以上であり、OCが主成分の一つであると推測された。後背地では、大半の粒径において、TC/PM比は沿道より低く、OC/TC比は沿道より高いことから、自動車から排出される一次粒子の寄与が沿道より低いと考えられた。後背地では、S2粒子(粒径 $0.0958\sim 0.102\ \mu\text{m}$ )中のOC/TC比は37%で、S1粒子では同比は51%と増加した。

加熱脱着GC/MSによる軽油とエンジンオイル、ディーゼル排気中のS3粒子とS1粒子のマスキロマトグラム( $m/z\ 57$ , 炭化水素の指標)を図20に示す。ディーゼル排気中のS3粒子のクロマトグラムは、排気中総粒子のクロマトグラムとよく似ており、軽油由来と考えられるC18~C26 *n*-アルカンおよびその保持時間の範囲のハンプ(ベースラインの盛り上がり。環状または分岐炭化水素等の複雑な混合物と考えられている)が顕著であった。また、保持時間18分以降にはエンジンオイル由来と考えられるハンプが検出された。ハンプの面積の比較から、ディーゼル排気中のS3粒子に対しては、軽油とエンジンオイルが半分程度ずつ寄与していると考えられた。一方、ディーゼル排気中のS1粒子のクロマトグラムパターンはエンジンオイルのものに似ており、C18~C26 *n*-アルカンおよびその保持時間の範囲の化合物の強度はS3粒子に比べ大分小さい。よって、ディーゼル排気中のS1粒子に対しては、エンジンオイルが支配的であり、軽油の寄与は小さいと考えられた。

沿道と後背地のS3, S1粒子のマスキロマトグラム( $m/z\ 57$ )を図21に示す。沿道のS3粒子からC21~C25の *n*-アルカンおよびその保持時間の範囲の化合物が顕著に検出されたことから、この粒径付近の粒子に対して軽油の寄与が高いと考えられた。沿道のナノ粒子(S1)は、そのクロマトグラムからC23 *n*-アルカンより揮発性の低い成分が主であることがわかり、*n*-アルカンの他、アルケン、脂肪酸、多環芳香族炭化水素(PAHs)、ホパン等が検出された。沿道ナノ粒子のクロマトグラムは、

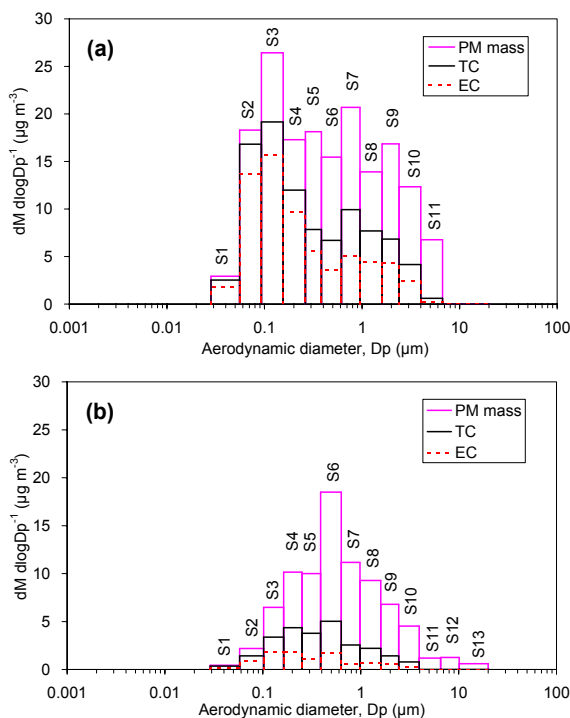


図18 粒子質量と炭素成分濃度の粒径分布。  
a) 沿道とb) 後背地 (2004年12月20~22日)

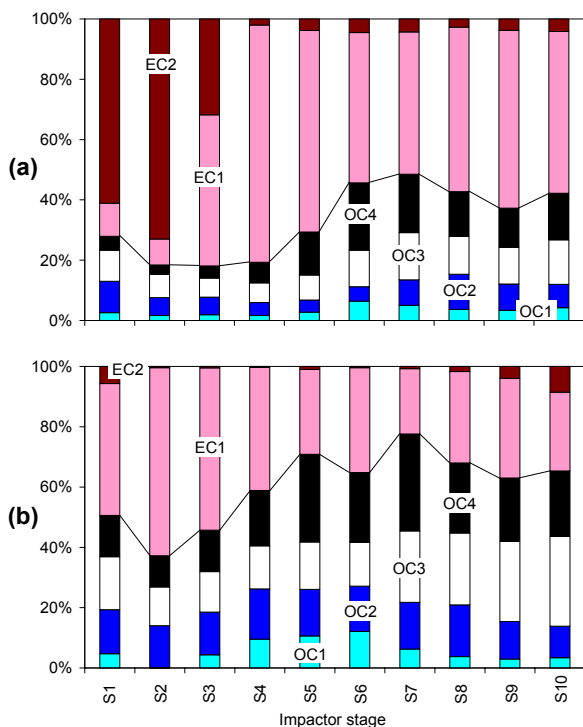


図19 EC/OCフラクションの粒径別割合。  
a) 沿道とb) 後背地 (2004年12月20~22日)。  
各ステージの粒径範囲は本文を参照

低沸点成分の割合がやや少ないが、ディーゼル車のエンジンオイルのクロマトグラムと似ていた。このことから、沿道ナノ粒子に対して、エンジンオイルの寄与が高いと考えられた。後背地のS3粒子のクロマトグラムからは、沿道に比べると強度は大分弱いC18~C26 *n*-アルカンおよびその保持時間の範囲の化合物が検出されたことから、後背地でもS3粒子に対しては軽油の寄与が一定程度あることが示唆された。後背地のS1粒子のクロマトグラムは、保持時間23分以前では保持時間が早いほどハンプ強度が弱い、23分以降は沿道のS1粒子のクロマトグラムとほぼ重なることから、後背地でもエンジンオイルが一定程度寄与していることが示唆された。なお、後背地

ではS3粒子と同様S1粒子においても、C16とC18の脂肪酸のピークが顕著であり、かつ奇数 *n*-アルカンの優位性が認められたことから、植物なども寄与していた可能性がある。

エンジンオイル以外にホパン（5環のC17~C35の炭化水素）の発生源がなく、ホパン異性体のピーク強度（ホパンプロファイル）がエンジンオイルの種類によらず一定であると仮定して、ホパンプロファイルの比較によりS1粒子の揮発の程度を推定した。エンジンオイル、およびディーゼル排気・沿道・後背地のS1粒子のマスキロマトグラム (*m/z* 191, ホパンの指標) を図22に示す。いずれのクロマトグラムからもホパンのピークが検出された

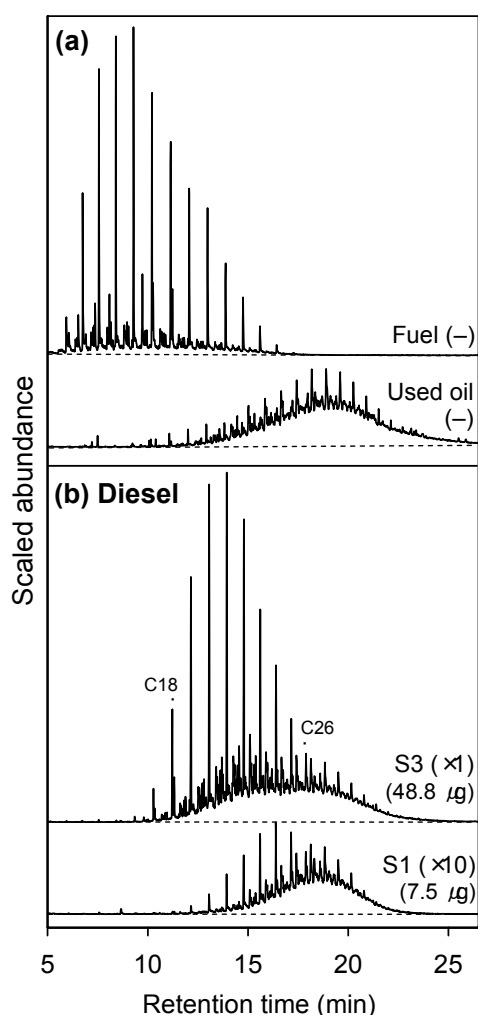


図20 加熱脱着GC/MSによるマスキロマトグラム (*m/z* 57)。(a)ディーゼル車の試験に用いた軽油と使用済エンジンオイル、(b)ディーゼル排気中のS3 (粒径0.093~0.155  $\mu\text{m}$ )、S1 (粒径0.028~0.056  $\mu\text{m}$ ) 粒子。なお、DEP試料のクロマトグラム強度は排気中濃度に比例するよう表示。DEP試料とエンジンオイルのクロマトグラムは保持時間 (RT) 19分以降のハンプの強度が同等になるようスケールリングしてある。スケールリング係数と分析に供した粒子質量は括弧内に表示

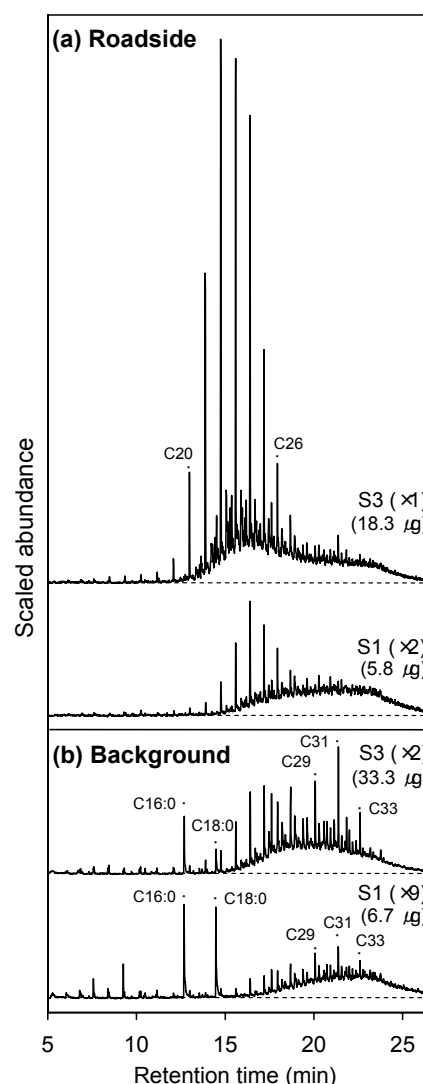


図21 加熱脱着GC/MSによるS3粒子 (粒径0.1~0.16  $\mu\text{m}$ ) とS1粒子 (粒径0.03~0.06  $\mu\text{m}$ ) のマスキロマトグラム (*m/z* 57)。(a)沿道 (2004年12月21~22日)、(b)後背地 (2004年12月20~22日)。なお、クロマトグラム強度は大気中濃度に比例するよう表示。クロマトグラムは保持時間 (RT) 23分以降のハンプの強度が同等になるようスケールリングしてある。スケールリング係数と分析に供した粒子質量は括弧内に表示



ことから、ディーゼル排気だけでなく、沿道、後背地においても S1 粒子に対してエンジンオイルが寄与していることが支持された。ディーゼル排気中 S1 粒子のホパンプロファイルはエンジンオイル中のものとよく似ていることから、ディーゼル排気ナノ粒子は揮発の程度が小さいと考えられた。一方、沿道の S1 粒子の場合、保持時間 23 分以前のホパンのピーク強度は保持時間が短くなるに

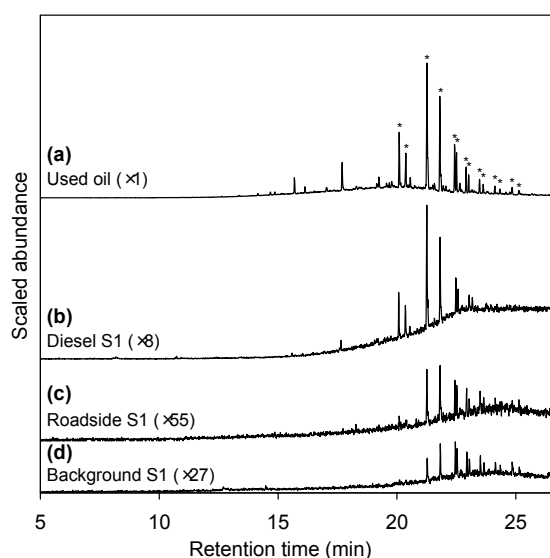


図22 (a)使用済エンジンオイル、(b)ディーゼル排気ナノ粒子 (S1: 粒径 $0.03\sim 0.06\ \mu\text{m}$ )、(c)沿道ナノ粒子 (川崎市池上新町交差点, 2004年12月21~22日)、(d)後背地ナノ粒子 (川崎市中留公園, 2004年12月20~22日) のマスククロマトグラム ( $m/z$  191)。なお、\*印はホパンのピークを示す。各クロマトグラムには、保持時間23分以降のホパンのピーク強度が同等になるよう、括弧内に示すスケール係数を乗じてある

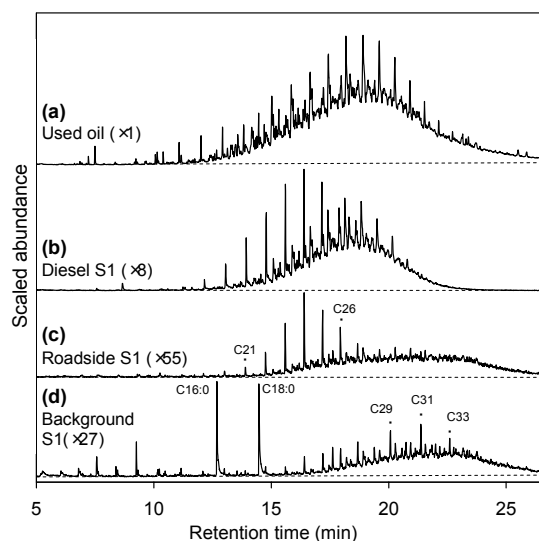


図23 (a)使用済エンジンオイル、(b)ディーゼル排気ナノ粒子 (S1: 粒径 $0.03\sim 0.06\ \mu\text{m}$ )、(c)沿道ナノ粒子 (川崎市池上新町交差点, 2004年12月21~22日)、(d)後背地ナノ粒子 (川崎市中留公園, 2004年12月20~22日) のマスククロマトグラム ( $m/z$  57)。なお、各クロマトグラムには、図7と同じスケール係数 (括弧内の数値) を乗じてある

つれて弱くなっており、保持時間20.1分のピークの強度はエンジンオイルに比べ25%となっている。後背地の S1 粒子ではさらにその傾向が顕著であり、保持時間20.1分のピークの強度はエンジンオイルに比べ10%となっている。以上のことから、S1粒子中の C33  $n$ -アルカンよりも揮発性の高い化合物 (保持時間23分以前) は、ディーゼル車から排出された後、沿道、後背地と進むにつれ大気中で揮発が進行したと考えられた。また、有機組成や揮発の程度から判断すると、沿道の S3や S1粒子はディーゼル車から排出され間もない粒子で主に構成されており、後背地では大気中を比較的長時間滞留していた粒子で主に構成されていることが示唆された。

さらにホパンを用いて、S1粒子が全てエンジンオイルに由来すると仮定した場合の、大気中での揮発に伴う有機組成変化を推定した。保持時間23分以降のホパンのピーク強度が同等になるよう、スケールを調整したエンジンオイル、およびディーゼル排気・沿道・後背地の S1 粒子のマスククロマトグラム ( $m/z$  57) を図23に示す。この図から、エンジンオイルによく似た組成のディーゼル排気ナノ粒子が大気中に放出された後、沿道、後背地と進むにつれて揮発により低沸点成分の割合が減少していく様子がイメージできる。

以上のことから、粒子中成分の揮発 (または揮発による粒径減少後に既存粒子に凝集<sup>2)</sup>) が大気中での核モード粒子の消失に寄与していると考えられた。

粒径 $0.03\ \mu\text{m}$  以下の粒子の組成を明らかにするため、NanoMoudiII を用いて採取した沿道と後背地の粒径別大気粒子中 TC、EC の気中濃度、および高感度化した加熱脱着 GC/MS 法による  $n$ -アルカンと PAHs の気中濃度、粒子質量あたり  $17\ \alpha$  (H)、 $21\ \beta$  (H)-hopane 濃度を図24に示す。高感度化により、粒径 $0.03\ \mu\text{m}$  以下の粒子からも有機成分が初めて検出・定量された。沿道では、DEP の場合と同様、粒径範囲 $0.110\sim 0.180\ \mu\text{m}$  において EC および C26以下の  $n$ -アルカン、PAHs の気中濃度が最大となったことから、この粒径付近の粒子に対して EC を主成分とする DEP の寄与が高いと考えられた。沿道における粒子中  $17\ \alpha$  (H)、 $21\ \beta$  (H)-hopane 濃度は、粒径 $0.060\sim 0.110\ \mu\text{m}$  と $1.00\sim 1.80\ \mu\text{m}$  をピークとする二山分布となり、DEP の場合とは異なり、 $0.060\ \mu\text{m}$  以下の粒径では濃度が減少している (図24(iv-a) Hopane w/o correction)。後背地でも、沿道ほど顕著ではないが、EC および C26以下の  $n$ -アルカン、PAHs の気中濃度の

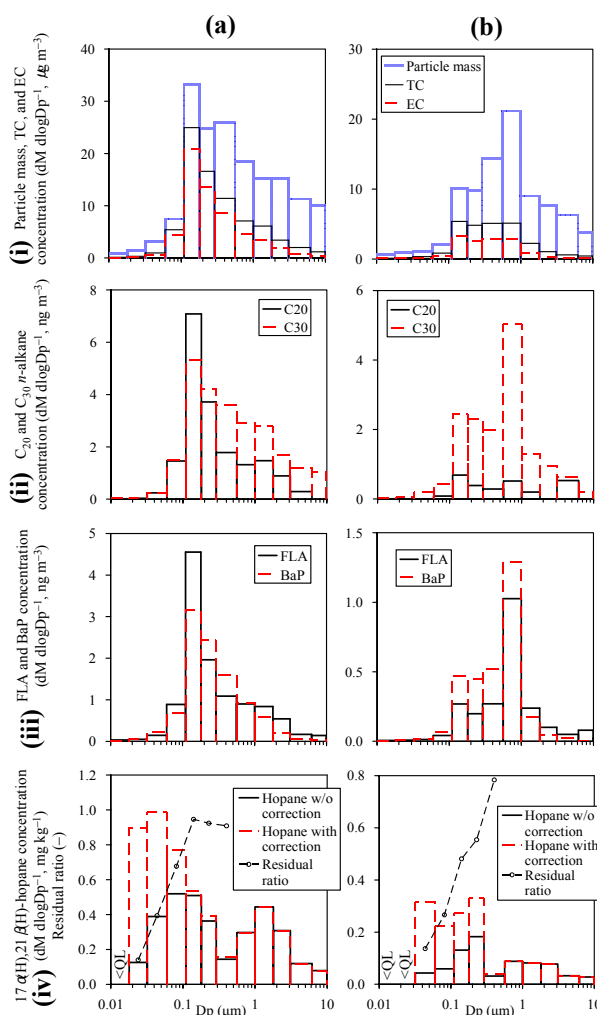


図24 (i)粒子質量と炭素成分, (ii) *n*-アルカン, (iii) PAHs, (iv) 17 $\alpha$ (H), 21 $\beta$ (H)-hopane 濃度の粒径分布。  
 (a) 沿道 (池上) と (b) 後背地 (中留) の大気粒子。なお, 試料採取期間は2006年1月30日~2月3日。  
 FLA: Fluoranthene, BaP: Benzo[a]pyrene, QL: 定量下限値

ピークが粒径範囲0.110~0.180  $\mu\text{m}$  に認められ, これらの粒子に対して DEP の寄与があることが示唆された。後背地における粒子中17 $\alpha$ (H),21 $\beta$ (H)-hopane 濃度は, 粒径0.180~0.290  $\mu\text{m}$  と0.560~1.00  $\mu\text{m}$  をピークとする二山分布となり, 0.180  $\mu\text{m}$  以下の粒径では濃度が減少している。

17 $\alpha$ (H),21 $\beta$ (H)-hopane の揮発性は比較的低いが, 上述したようにナノ粒子 (粒径0.03~0.06  $\mu\text{m}$ ) のように非常に小さな粒子の場合には, 大気中で揮発が進む可能性がある。また, 今回の測定でも, 揮発性の高い *n*-アルカンや PAHs は, DEP, 沿道, 後背地と進むにつれ, また小粒径ほどその存在割合が低下しており, 大気中で一部揮発したことが示唆される。そこで, 粒子中17 $\alpha$ (H),21 $\beta$ (H)-hopane の揮発を, より揮発性の低い炭素数35のホパン異性体は揮発しないと仮定し, その相対強度 (ピーク面積の比) から推定した。DEP (粒径0.110~0.180  $\mu\text{m}$ ) 中のホパン強度比を基準に推定すると, 沿道大気粒

子における17 $\alpha$ (H),21 $\beta$ (H)-hopane 残存率は粒径0.110  $\mu\text{m}$  以下になると急激に低下し, 粒径0.018~0.032  $\mu\text{m}$  の粒子では約10%であった (図24(iv-a) Residual ratio)。後背地では沿道より残存率がさらに低く, 粒径0.032~0.060  $\mu\text{m}$  の粒子での残存率が約10%と推定された (図24(iv-b))。このように求めた残存率を用い, 沿道と後背地における揮発前の粒子中17 $\alpha$ (H),21 $\beta$ (H)-hopane 濃度を推定すると, 両地点とも粒径が小さくなるほど濃度が増加する傾向が認められた (図24(iv-a, b) Hopane with correction)。

このように, 粒径0.01~0.03  $\mu\text{m}$  の粒子の有機組成は LPI による0.03  $\mu\text{m}$  以上の粒子の測定結果から予想されたものと矛盾しなかった。さらに, 0.01~0.03  $\mu\text{m}$  の粒子は OC/TC 比が0.03~0.06  $\mu\text{m}$  の粒子よりもさらに高いことも確認された。これらのことから, 沿道と後背地のナノ粒子 (粒径0.03  $\mu\text{m}$  以下) は, かなり揮発が進んでいるが, 元はエンジンオイルが主成分であったと推測

され、ディーゼル排気中のナノ粒子に由来することが示唆された。

なお、粒径別試料採取に用いた低圧多段分級インパクター (LPI と NanoMoudiII) の内部は低圧になっているため、試料採取中のインパクター内部での成分の揮発が懸念された。そこで、LPI の S1 ステージ (圧力10kPa) のアルミホイル上にエンジンオイルを少量添加した後、HEPA フィルターを通した除粒子空気を24時間吸引し (気温25℃)、その有機組成を測定したが、組成はほとんど変わらなかった。また、粒径0.110~0.180 μm の DEP 試料を最下段 (粒径0.010~0.018 μm, 圧力16kPa) に載せ、除粒子空気を3時間吸引した後 (気温25℃)、再度有機成分を測定したところ、C22以下の *n*-アルカンと Fluorathene 以下の PAHs で30%以上の濃度低下が確認されたが、17α(H),21β(H)-hopane は減少しなかった。よって、比較的揮発性が高い成分は試料採取中に一部揮発する可能性があるが、17α(H),21β(H)-hopane などのエンジンオイル由来成分の揮発は少ないと考えられた。これは、インパクター内では、多数の粒子が重なりあい捕集面に付着しているため、個々の粒子が大気中を浮遊している時より揮発しにくいためと考えられた。

#### 参考文献

- 1) Hasegawa S., Hirabayashi M., Kobayashi S., Moriguchi Y., Kondo Y., Tanabe K., Wakamatsu S. (2004) Size distribution and characterization of ultrafine particles in roadside atmosphere, J. Environ. Sci. Heal., A39, 2671-2690.
- 2) Jacobson M.Z., Kittelson D.B., Watts W.F. (2005) Enhanced coagulation due to evaporation and its effect on nanoparticle evolution, Environ. Sci.

Technol., 39, 9486-9492.

### 2.1.4 二次粒子を含む微小粒子の観測と環境動態 (FAMIKA) : 観測概要と炭素成分の挙動

#### (1) 観測概要

各研究機関の研究者と共同・協力して、2007年夏季に関東地方において、微小粒子を対象とした広域的なフィールド観測とモデリング (Fine Aerosol Measurement and Modeling in Kanto Area; FAMIKA) を実施した。FAMIKA では、夏季の高濃度微小粒子の特徴とその要因、二次生成粒子の地域分布、輸送過程、変質などの動態を把握し、特に自然 (森林) 起源・人為起源の二次有機エアロゾル (SOA) の挙動を明らかにすることを目的として、フィールド観測、および観測データに基づく発生源寄与解析や大気質モデルの検証・改良に取り組んだ。

観測地点は、前橋 (群馬県衛生環境研究所)、騎西 (埼玉県環境科学国際センター)、つくば (国立環境研究所)、粕江 (電力中央研究所) の4地点であり、観測期間は、2007年7月30日~8月16日である。主な観測内容は、表3に微小粒子試料のフィルターサンプリングと化学分析、表4に連続測定について示した。フィルターサンプリングはいずれも平日のみ実施した。また、ガス成分については、NO<sub>x</sub>, O<sub>3</sub>, CO, SO<sub>2</sub>, NMHC を測定した (ただし、一部は常時監視測定局データを利用)。

図25に、前橋・騎西におけるPM<sub>2.5</sub>, O<sub>3</sub>, 風向の経時変化を示す。気象状況は、8月1日に梅雨明けし、8月1~2日には台風が接近したが、それ以降は高気圧に覆われていた。風は全体的には南風が支配的であったが、前橋では夜間に弱いながらも北風となることが多かった。この間、高濃度となった2つの期間に着目した。

表3 粒子のフィルターサンプリングと化学分析

サンプラー	フィルター	粒径	捕集時間(交換時刻)	地点	化学分析
FRM-2025	石英繊維	PM2.5	6時間(9,15,21,3時)	4地点	炭素分析(熱分離・光学補正法, IMPROVEプロトコル)
GS-10	テフロン(デニューダ-FP法)	PM2.5	6時間(9,15,21,3時)	4地点	イオン分析(イオンクロマトグラフ)
FRM-2000	ポリフロン	PM2.5	6or12時間(9,15,21時)	前橋・騎西	元素分析(ICP-AES/MS)
HV-A	石英繊維	PM2.1	6or12時間(9,15,21時)	前橋・騎西	14C分析(加速器MS)

表4 粒子の連続測定

測定装置	粒径	地点	測定対象
TEOM(拡散ドライヤー付35℃設定)	PM2.5	4地点	PM2.5質量濃度
AMS(エアロゾル質量分析計)	およそPM1	前橋・騎西	SO4 <sup>2-</sup> , NO3 <sup>-</sup> , Cl <sup>-</sup> , NH4 <sup>+</sup> , 有機物
MAAP, Aethalometer, カーボンモニター	PM2.5	4地点	BC/EC
SMPS	0.01-0.5μm	前橋・騎西・つくば	個数粒径分布
APS	0.5-20μm	前橋・騎西	個数粒径分布
ベータ線吸収式SPM計	SPM	4地点(測定局データ)	SPM質量濃度



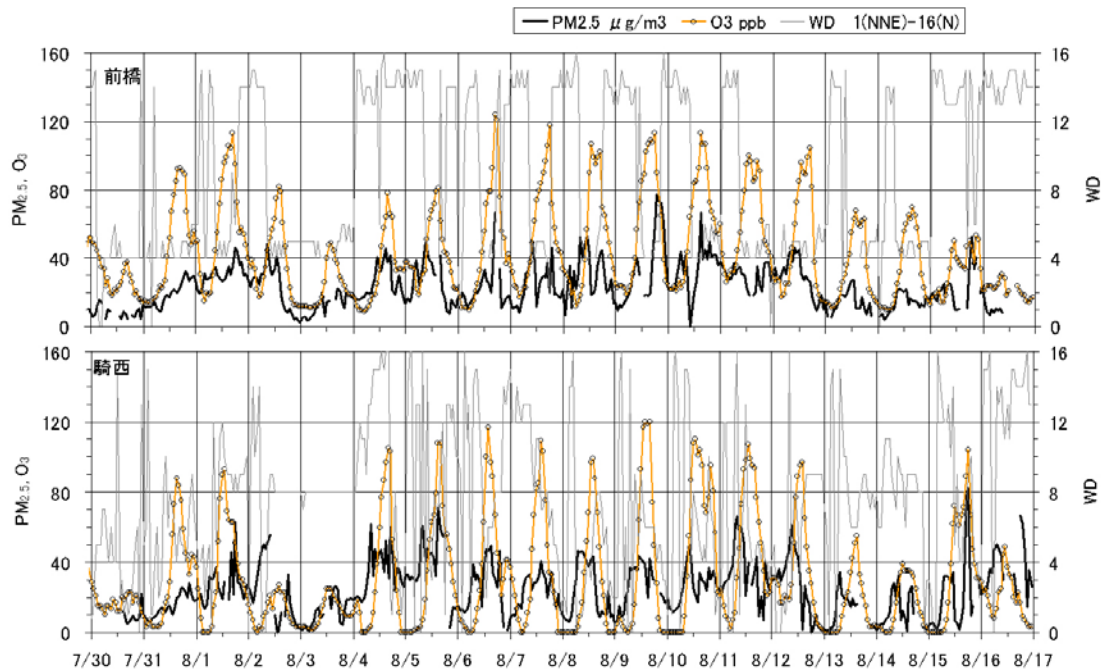


図25 前橋と騎西のPM<sub>2.5</sub>, O<sub>3</sub>, 風向の経時変化

- (1) 7月31日～8月2日 O<sub>3</sub>がやや高くなっており、8月1日に前橋で110ppb、騎西90ppbとなったが、つくばと狛江は50ppbだった。地点によって最高値出現時刻に違いがあった。この期間のPM<sub>2.5</sub>は周期的な変動をせずに上昇していた。
- (2) 8月6日～11日 O<sub>3</sub>が前橋・騎西で連日100～120ppbと高濃度となり、この日中のO<sub>3</sub>の上昇と同様に、PM<sub>2.5</sub>も周期的に上昇していた。つくば・狛江でのO<sub>3</sub>は、8月9日までは全体的にそれほど高濃度になっていなかったが、8月10～11日は高濃度になり、PM<sub>2.5</sub>も上昇した。8月9日は関東全般の一般風として南風となっているが、8月10日は広く高気圧に覆われて関東平野内に収束帯が形成されており、全体に高濃度となったと考えられる。

## (2) 炭素成分の時間的・空間的挙動

同一の方法により4地点において炭素成分を測定し、その時間的・空間的な挙動を把握するとともに、前橋と騎西でエアロゾル質量分析計(AMS)により測定された有機成分も合わせ、特に有機粒子に関して解析と考察を行った。OCとECの分析は、DRI Model 2001 Carbon Analyzerを用いて、IMPROVEプロトコル(反射光による炭化補正)によって行った。また、試料を純水に抽出し、その抽出水をフィルターに含浸・乾燥させ、DRI Model 2001 Carbon Analyzerを用いて、IMPROVEプ

ロトコル(透過光による炭化補正)によって水溶性有機炭素(WSOC)を分析した。

図26に前橋と騎西での炭素成分の時間変動を示す。OCとECは、いずれの地点においても時間変動が全体的に似ていた。8月6～10日の期間は日中増加、夜間減少という周期的な変化がよく見られた。このときのOC/TC比の変動を見ると、日中のOC高濃度時に高くなる傾向であった。このため、日中のOC増加には光化学生成が寄与していることが考えられる。ただし、騎西やつくばに比べて、前橋ではOC/TC比の変動が小さかった。また、騎西・つくばではOCフラクション割合にも変動が見られたが、前橋での変動は比較的小さかった。これらは、前橋では日中は関東南部からの風、夜間は北側の山岳部からの風が吹き、また、全体的に風速が弱かったため、同様の気塊が往復あるいは滞留するような状況であったことが要因の一部として考えられる。

ECの主要な排出源は自動車であると考え、排ガス試験によるDEPや沿道大気粒子に基づいてOC/EC比を0.6と仮定して、OC中の二次生成OC(SOC)と一次排出OC(POC)を推定した。これによれば、いずれの地点においても、POCよりもSOCの方がOCの増加に対して寄与していた。また、特に光化学二次生成が活発だったと考えられる8月6～11日は、騎西ではSOCが日中80%、夜間40%程度となっており、つくばでも似た傾向だったのに対して、前橋ではSOCが70%程度で日中・夜

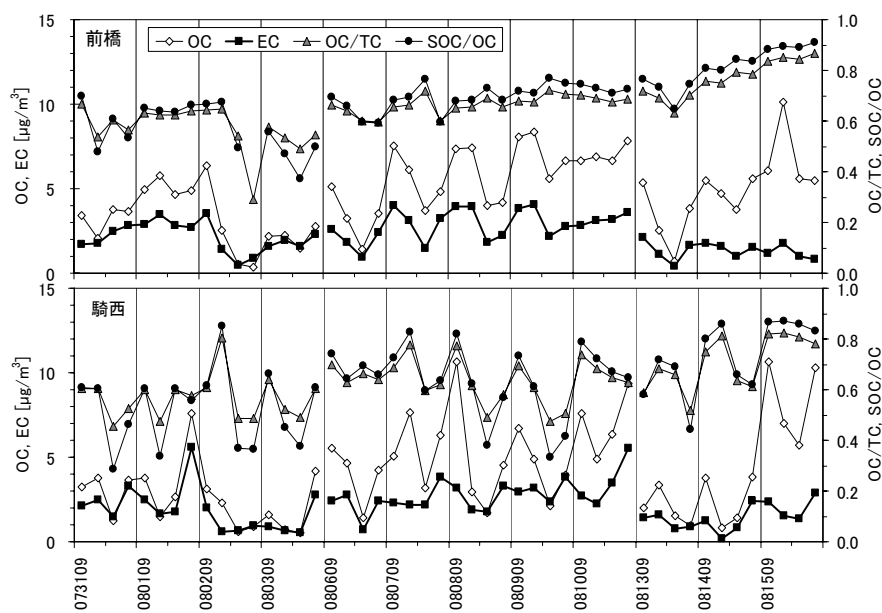


図26 前橋と騎西における炭素成分の時間変動。横軸の6桁の数字 (MMDDHH) は、月 (MM)・日 (DD)・サンプリング開始時刻 (HH) を示す

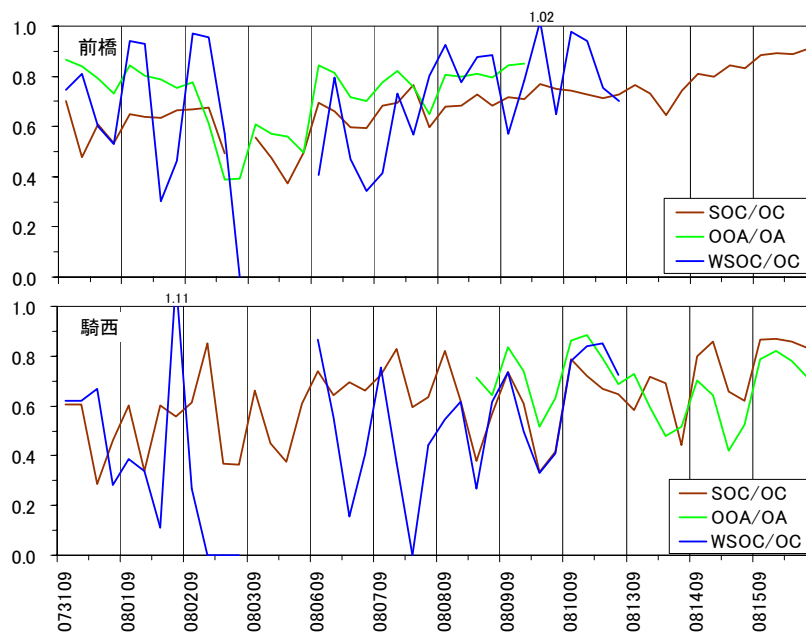


図27 前橋と騎西における SOC/OC, OOA/OA, WSOC/OC の時間変動。横軸の6桁の数字 (MMDDHH) は、月 (MM)・日 (DD)・サンプリング開始時刻 (HH) を示す

間の顕著な変動は見られなかった (図27)。また、AMS の有機物のマスペクトルデータから、有機物 (OA) を炭化水素態有機物 (HOA) と酸化態有機物 (OOA) に分けると、前橋と騎西における OOA の割合は、上述の SOC の割合と概ねレベルや変動が合っていた。一方、OC に占める WSOC の割合 (WSOC/OC) を調べると、低濃度が分析に影響し変動が大きいところがあるが、昼間に高くなり夜間に低下する傾向が見られ、また、全体的には前橋の方が騎西に比べて高く、時間的に遅れてピークが出ている傾向であった。また、WSOC/OC は

SOC/OC や OOA/OA と変動やレベルが合っているところが多かった。このように、二次生成粒子の寄与を示す SOC/OC, OOA/OA, WSOC/OC が大きく矛盾することなく類似した傾向を示したことから、これらを基に考えると、前橋は騎西やつくばなど他の地点と異なる傾向となっており、二次生成の寄与が大きいこと、酸化が進んでいること、同質の気塊が滞留していること、夜間は森林起源 SOA の寄与していること、などの可能性が示唆された。

## 2.1.5 二次粒子を含む微小粒子の観測と環境動態 (FAMIKA) : 全炭素中<sup>14</sup>Cの経時変化

### (1) はじめに

炭素の同位体には<sup>12</sup>C, <sup>13</sup>C, <sup>14</sup>Cがあり、このうち<sup>14</sup>Cと宇宙線から生成する<sup>14</sup>C(放射性炭素同位体)を利用して粒子状物質の起源を化石燃料由来か生物由来かを推定する方法が報告されている。<sup>14</sup>Cは半減期が5730年であるため、化石燃料では<sup>14</sup>Cがほとんど存在しない(dead carbon)のに対し、バイオマス中には<sup>14</sup>Cが存在する(modern carbon)。それぞれを燃焼して発生する粒子状物質では<sup>14</sup>C/<sup>12</sup>C比が異なる。

FAMIKAにおいて東京郊外で連続的に採取された大気試料を対象に、全炭素(TC)中の放射性炭素(<sup>14</sup>C)を測定した。<sup>14</sup>Cを測定することで、化石燃焼起源とバイオマス起源の比率を定量的に推定することが可能になる。また、元素炭素(EC)、有機炭素(OC)、金属元素、イオンのデータに<sup>14</sup>Cのデータを加えてケミカルマスマバランス(CMB)法を実施することで、二次生成有機粒子の起源推定など、従来よりも高度な由来解析が期待できる。

### (2) 方法

FAMIKAの第2クール(2007年8月6~11日)として、埼玉県騎西と群馬県前橋において、ハイボリウム・アンダーセンサンプラーの石英繊維製バックアップフィルターに6時間ごと(夜間は12時間ごと)に連続採取された大気中PM<sub>2.1</sub>試料に関してTC中<sup>14</sup>C分析を実施した。大気試料は石英管に封入した後、燃焼(CO<sub>2</sub>化)、CO<sub>2</sub>精製、グラファイト化を行い(Endo et al.<sup>1)</sup>に準拠)、国立環境研究所タンデム加速器分析施設(NIES-TERRA)において<sup>14</sup>C/<sup>12</sup>C比を測定した。

### (3) 結果と考察

図28, 29に騎西と前橋におけるTC, O<sub>3</sub>, およびTCのpMC(% Modern Carbon), Modern Carbon, Dead Carbonの経時変化を示す。日中に濃度が増加し夜間に減少するTCやO<sub>3</sub>とは異なり、pMCは夜間に上昇する傾向が認められ、特に前橋で顕著であった。騎西, 前橋におけるpMCはそれぞれ35~58, 35~62%であったことから、両地点とも、化石燃焼とバイオマス起源が概ね同程度寄与していたと考えられる。両地点において、化石燃料由来とみなせるDead Carbonは、TCと同様、日

中に高濃度となる傾向が認められた。これは、日中に人為活動が盛んで、かつ南風により都心部からの汚染気塊が輸送されたためと推測された。バイオマス起源とみなせるModern Carbonも、騎西では日中に高濃度となったが、前橋では日内ほぼ一定で、夜間にやや増加することもあった。

なお、Modern Carbonの主な発生源と考えられる野焼き、ゴミ焼却、土壌、生物起源SOAのpMCはそれぞれ100, 60, 60, 113%程度、人為起源SOAのpMCは9.5%程度であり(本研究; Offenberget al., 2007<sup>2)</sup>), 発生源によってpMCの値が異なる。よって、微小粒子中に対しpMCが100%を超えるバイオマス発生源が大きく寄与

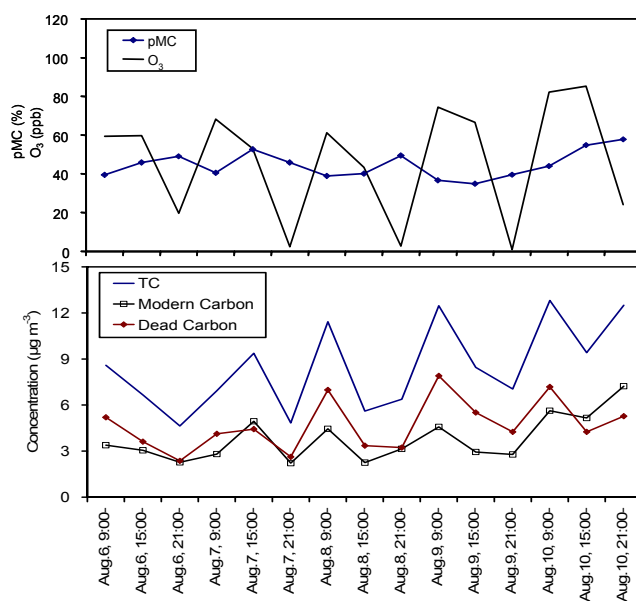


図28 TC, O<sub>3</sub>およびTC中pMC, Modern/Dead Carbonの経時変化(騎西)

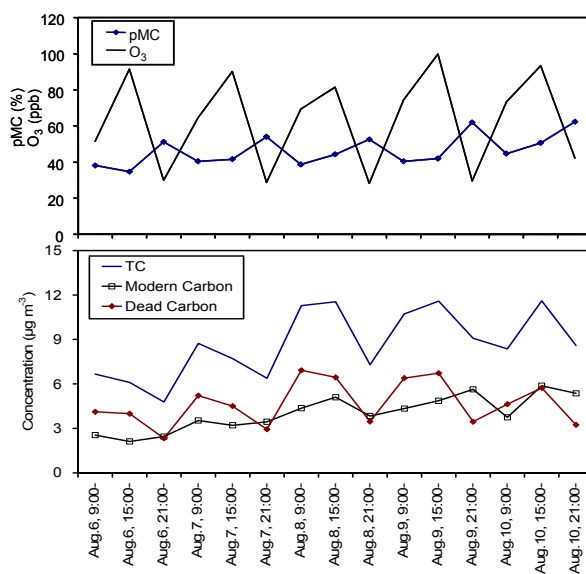


図29 TC, O<sub>3</sub>およびTC中pMC, Modern/Dead Carbonの経時変化(前橋)

している場合には、バイオマスの寄与は測定された pMC の値より少し小さくなることに注意が必要である。

## 参考文献

- 1) Endo M., Yamamoto N., Yoshinaga J., Yanagisawa Y., Endo O., Goto S., Yoneda M., Shibata Y., Morita M. (2004) <sup>14</sup>C measurement for size-fractionated airborne particulate matters, Atmos. Environ., 38, 6263–6267.
- 2) Offenberg J.H., Lewis C.W., Lewandowski M., Jaoui M., Kleindienst T.E., Edney E.O. (2007) Contributions of toluene and α-pinene to SOA formed in an irradiated toluene/α-pinene/NOx/ air mixture : Comparison of results using <sup>14</sup>C content and SOA organic tracer methods, Environ. Sci. Technol., 41, 3972-3976.

### 2.1.6 二次粒子を含む微小粒子の観測と環境動態 (FAMIKA) : レセプターモデルによる発生源寄与解析

#### (1) はじめに

都市大気中の微小粒子状物質は健康影響が懸念されるなど、その対策が必要となっているが、近年は一次発生源対策が進み、相対的に二次粒子の寄与が高くなっていると推定される。今後、二次粒子の対策を進める上で、その寄与割合を把握することは重要である。そこで本研究では、発生源を推定する手法の一つであるレセプターモデルを用い、2007年に埼玉県騎西町および群馬県前橋市で観測された微小粒子状物質の発生源寄与を解析し、間接的に二次粒子の寄与割合を推定した。

#### (2) 方法

本研究では2007年度に国立環境研究所、群馬県衛生環境研究所、および埼玉県環境科学国際センターが中心となって実施した FAMIKA の結果を用いた。観測地点は群馬県前橋市および埼玉県騎西町であり、PM<sub>2.5</sub>を9～15時、15～21時、および21～9時にフィルタ上に捕集した。捕集した PM<sub>2.5</sub>試料は秤量後、炭素成分を熱分離光学補正法、イオン成分をイオンクロマトグラフ法、無機元素成分を ICP-MS 法により分析を行った。

本研究で PM<sub>2.5</sub>の発生源推定に用いたレセプターモデルはケミカルマスバランス (Chemical Mass Balance;

CMB) 法である。

CMB 法の計算方法には、指標元素法、線形計画法、最小自乗法、有効分散最小自乗法等が知られている。そのうち最小自乗法は(1)式で示される  $\chi^2$  を最小とする発生源寄与を求めるのに対し、有効分散最小自乗法は(2)式に示される  $\chi^2$  を最小とするものであり、各測定値の誤差を考慮に入れるという特徴がある。

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^n \frac{(C_i - \sum_{j=1}^p a_{ij} S_j)^2}{C_i^2} \quad (1)$$

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^n \frac{(C_i - \sum_{j=1}^p a_{ij} S_j)^2}{\sigma_{ci}^2 + \sum_{j=1}^p \sigma_{aj}^2 S_j^2} \quad (2)$$

ここで  $C_i$  は環境試料における化学種  $i$  の濃度、 $a_{ij}$  は発生源  $j$  の試料における化学種  $i$  の濃度、 $S_j$  は発生源  $j$  の寄与である。 $n$  は化学種の数であり、 $p$  は発生源の数である。 $\sigma_{ci}$ 、 $\sigma_{aj}$  はそれぞれ  $C_i$ 、 $a_{ij}$  の測定に伴う誤差の標準偏差である。(2)の最小解は次式のくり返し計算によって求めている。

$$S = (A V A)^{-1} t A V C \quad (3)$$

ここで  $A$  は要素が  $a_{ij}$  の行列、 $V$  は対角要素が(2)式の分母の逆数にあたる対角行列、 $C$  は要素が  $C_i$  のベクトル、 $S$  は要素が  $S_j$  のベクトルである。 $tA$  の上付きの  $t$  は行列  $A$  の転置行列の意味である。

この元のプログラムは米国 EPA により開発されたものが「CMB8」として公開されている。本研究では早狩ら<sup>1)</sup>が日本語版として表計算ソフト上で解析できるように、「CMB8J」として公開したものをを用いた。発生源プロファイルのうち土壌および道路粉じんについては測定地点周辺で採取し、再飛散・分級捕集したものを分析して作成した。その他の発生源については既往の文献や調査・研究事例から整理して作成した。

#### (3) 結果と考察

発生源と指標元素の検討をした結果、重油燃焼、都市ごみ焼却、野焼き、製鋼用電気炉、海塩、土壌、タイヤ磨耗、ブレーキ磨耗、道路粉じん、および自動車の10発生源、指標元素は Na, K, Mg, EC, Al, Fe, V, Mn, Ni, Cu, Zn, As, Sb, および Pb の14成分とした。この条件で前橋、騎西における CMB 法による発生源寄与率推定結果を図30に示した。ただし、騎西は Sb 濃度が異常に高くその原因が特定できなかったため解析からは

除いた。

前橋では一次発生の寄与率が高い順に自動車, 野焼き, 道路粉じんであった。一次発生の合計は28%であった。また二次粒子は二次 SO<sub>4</sub>, 二次 OC, 二次 NO<sub>3</sub>の順であり, 二次粒子の合計は57%であった。騎西は一次発生の寄与率は野焼きが最も大きく27%あり, 自動車はその次に多かった。二次生成は硫酸塩, 硝酸塩が多く, OC は8%であった。

騎西では野焼きの寄与が最も高いが, 観測を行ったのは夏季であり, 野焼きが盛んに行われる時期とは異なっている。実際の観測中も野焼きは目視で確認されていない。このため発生源寄与率の推定結果は実際を反映していない可能性がある。元素別の発生源寄与率を調べたところ, 野焼きにはKとECが多く割り振られていた。Kは従来から植物起源の指標として知られている。そこで前橋と騎西のKのPM<sub>2.5</sub>に対する含有率を調べたところ, 前橋では平均0.2%, 騎西では平均0.6%でわずかな違いではあるが騎西のほうが若干高い。その変動は野焼きの寄与率の変動によく一致しており, Kが野焼きの寄与率に影響していることがわかる。この結果ECが野焼きにも割り振られることになり, 結果として自動車の寄与率を下げている可能性がある。一方, 近年ディーゼル自動車の排ガス規制が強化され, 運行規制等も行われた結果, 粒子状物質への自動車寄与率が低下していると考えられる。本解析の結果は自動車規制の効果により自動車の発生源寄与率が低下することで, 今まで注目されて

いなかった発生源の寄与が相対的に高くなったことを示唆している。さらに推定の精度を向上させるには観測されたECが化石燃料由来か, バイオマス由来かを検討する必要がある。

これまで炭素成分はディーゼル自動車由来が多いとされていたが, 前述のとおり最近では自動車排ガス規制の効果によりその寄与が低下していると考えられる。逆に寄与が相対的に増加していると考えられているのは二次生成の有機炭素である。本解析ではCMB法により一次発生の炭素成分を推定し, 観測値から一次発生を差し引くことにより二次生成の炭素成分を計算した。ただし, ここで算出した二次生成には有機炭素の不明分が含まれていることに注意する必要がある。図31は前橋における発生源別のECとOCの濃度を示したものである。ECは71%が自動車由来であった。その他の発生源としてはタイヤ磨耗が約10%, 重油燃焼が約9%となっていた。一方, OCは70%が二次生成によるものであった。観測の後半は二次生成のOCが75%であり, 前半が65%であることと比べて高くなっていった。観測の後半に二次生成が活発に行われたことを示している。また, 自動車由来のOCが16%, 野焼き由来が7%程度あることがわかった。

騎西でも同様に炭素成分を発生源別に推定した。騎西においてもECの約3分の1は自動車由来であるが, 野焼きの寄与もほぼ同等であった。しかし野焼きの寄与が高い時には自動車の寄与が低下している。これは自動車と野焼き(あるいは野焼きに類似した発生源)との間に多重共線性が存在するためと考えられ, 野焼きと自動車の寄与率の精度を上げることが今後の課題である。そのためには野焼きの指標となる化学成分の分析や放射性炭素同位体を利用したCMB計算などを検討する必要がある。

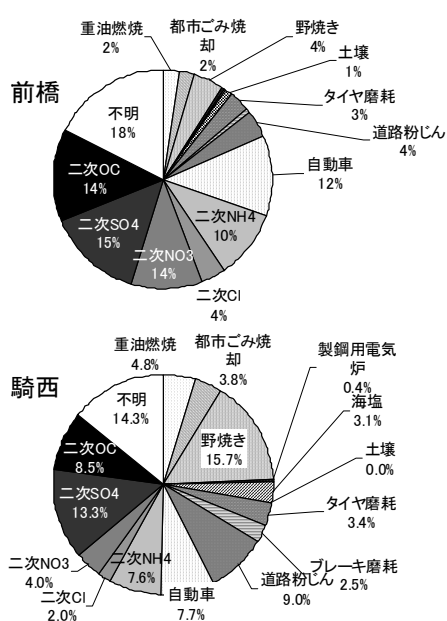


図30 前橋と騎西の発生源推定結果 (全測定期間のPM<sub>2.5</sub>質量濃度で重み付けした平均値)

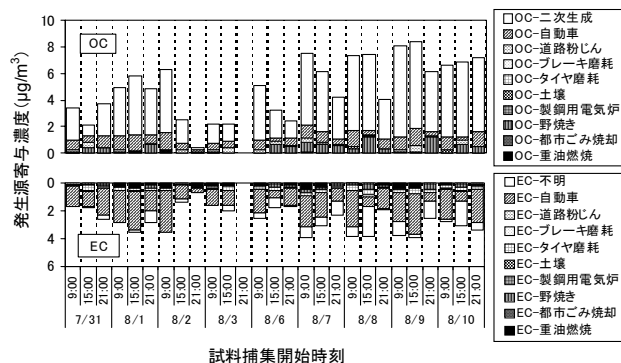


図31 前橋における炭素成分の発生源別寄与と濃度

る。また、OC も前橋とは異なり野焼きが50%で最も多く、二次生成が33%であった。

ここまでの検討では騎西において野焼きと自動車の寄与率の分離が課題としてあげられた。また、前橋においてもOCの大部分を占める二次生成OCが化石燃料由来か生物起源かを検証する必要がある。そのアプローチの一つとして本研究では放射性炭素同位体比を用いた方法を試みた。

放射性炭素同位体である<sup>14</sup>Cは半減期が5730年であるため、化石燃料では<sup>14</sup>Cがほとんど存在しないのに対し、バイオマス中には<sup>14</sup>Cが存在する。それぞれを燃焼して発生する粒子状物質では<sup>14</sup>C/<sup>12</sup>C比が異なる。よって、発生源と環境の粉じんの両方に<sup>14</sup>C/<sup>12</sup>C比の実測値があれば、これを利用して環境中の粒子状物質の起源を推定することが可能となる。本研究では<sup>14</sup>C/<sup>12</sup>C比からもとめたpMCを参考に検討を行った。しかし発生源のpMCの実測値がないため、既存の文献値<sup>2)</sup>や独自に測定した値を参考に表5の値を利用した。

表5 発生源別のpMC

	ごみ 焼却	野焼き	土壌	道路粉 じん	プレー キ磨耗	タイヤ 磨耗
本研究	60	100	60	—	—	—
Hildemann (1994)	—	—	—	50	50	15

Hildemann (1994): Ref. [2].

この結果を用い次の式によりEC、OCのpMCを推定した。

$$ECpMC_{cal} = \frac{\sum (EC_{Si} \times pMC_{Si})}{\sum (EC_{Si})} \quad (4)$$

$$POCpMC_{cal} = \frac{\sum (POC_{Si} \times pMC_{Si})}{\sum (POC_{Si})} \quad (5)$$

ここでECpMC<sub>cal</sub>はECのpMC(計算値)、EC<sub>Si</sub>はi番目の発生源SのEC(実測値)、pMC<sub>Si</sub>はi番目の発生源SのpMC(文献値)、POCpMC<sub>cal</sub>は一次OCのpMC(計算値)、POC<sub>Si</sub>はi番目の発生源Sの一次OC(計算値)である。図32に前橋および騎西におけるTCのpMC実測値とECおよびPOCのpMC(それぞれ計算値)の経時変化を示した。

前橋ではTCのpMCの平均が46.5、最大値は62.4、最小値は34.7であった。夜間にpMCが高くなる傾向が見られた。計算で求めたECのpMCは平均が14.2、最

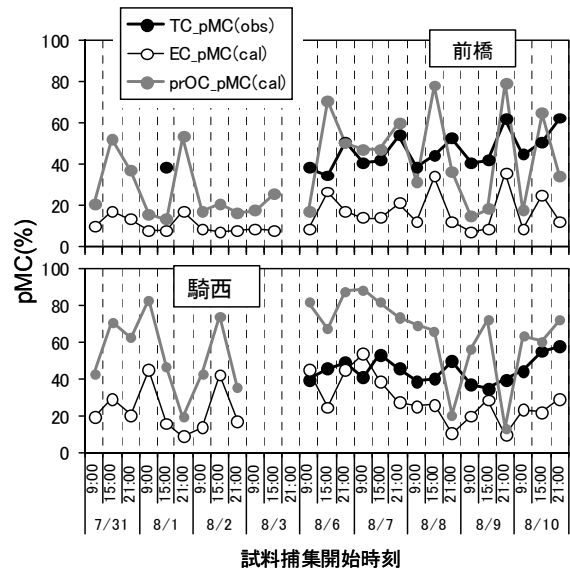


図32 前橋および騎西におけるCMB法を利用して推定したpMCの経時変化

大でも35.8であった。ECは自動車起源が多いため、ECのpMCも午前中に低い値を示している。POCのpMCは平均が36.8であった。ECのpMCも含めて午後にpMCが高くなる傾向が見られた。これは野焼きの寄与の上昇によるものである。

騎西ではTCのpMCの平均値が44.6、最大値が57.8、最小値は34.8で前橋と大きな違いは見られず、前橋と同様に夜間の方が日中よりもpMCが高くなる傾向を示した。ECのpMCの平均は46.2であり、前橋に比べて大きな値となり、生物起源の寄与が高い。これは騎西では野焼き由来のECが3分の1を占めることが要因である。またPOCも同様の理由により生物起源が支配的で、pMCの平均は80.7であった。

ここで推定したpMCの変動は、FAMIKAにおいて実測したpMCの変動と矛盾しないものであった。したがって、CMB法により得られた一次発生源の寄与割合から間接的に二次粒子を推定し、さらに発生源別のpMCの値から二次粒子が化石燃料起源か生物起源であるかを推定することが可能となった。今後、野焼きの指標となる化学物質の検討や、EC・OC別のpMC分析が進むことで、さらに推定の精度が向上することが期待される。

### 参考文献

- 1) 早狩 進, 花石竜治 (2001) 環境データ解析用表計算マクロの紹介と解析例 (II): CMB法解析マクロ, 大気環境学会誌, 36, 39-45.
- 2) Hildemann L.M., Klinedinst D.B., Klouda G.A.,



Currie L.A., Cass G.R. (1994) Sources of Urban Contemporary Carbon Aerosol, Environ. Sci. Technol., 28, 1565-1576.

### 2.1.7 二次粒子を含む微小粒子の観測と環境動態 (FAMIKA) :AMS を用いた騎西ならびに前橋での粒子成分挙動の解析

#### (1) 観測方法

エアロゾルの組成分析には、Aerodyne Research 社製のエアロゾル質量分析計 (Aerosol Mass Spectrometer; 以下, Q-AMS) を使用した。測定原理は、まず、空力学的レンズによって  $PM_{1.0}$  の粒子を選別し、粒子の飛行時間から空力学的直径を求める。その後、粒子を  $600^{\circ}C$  の蒸発器で蒸発し、気化した分子を電子衝撃法でイオン化し、四重極質量分析計によって分析する。Q-AMS で測定されるイオン信号はエアロゾルの主要成分であるアンモニウム ( $NH_4$ )、硝酸塩 ( $NO_3$ )、硫酸塩 ( $SO_4$ )、塩化物 (Chl)、有機物に対応するイオンとして解析される。ここで有機物とは Q-AMS で測定されるエアロゾルの全重量から無機塩類 ( $NH_4$ ,  $NO_3$ ,  $SO_4$ , Chl) とガス成分 (窒素, 酸素,  $CO_2$  など空気中の主要ガス成分) の寄与を除いた残りであり、有機化合物を構成する元素である炭素, 水素, 酸素, 窒素なども含まれる。測定時間間隔は10分とし、また、データ解析は専用のソフトを用いて行った。測定原理およびデータ解析の詳細は文献を参照のこと<sup>15)</sup>。なお、解析にあたっての捕集効率 (CE) は Q-AMS とフィルターサンプリングのサルフェートの結果を比較して決

めた。前橋では  $CE=1$  を用い、騎西では  $CE=0.5$  を用いた。前橋の有機物については、フィルターサンプリングの OC との比較から 0.5 倍程度にすると OM/OC 比が 1 から 2.5 に収まるので、AMS で得られた有機物の重量濃度を 0.5 倍して重量濃度とした。

#### (2) 結果と考察

##### (ア) 前橋・騎西での観測結果

図33, 34に騎西と前橋で AMS を用いて測定したエアロゾルの化学組成の時系列変化を示す。測定期間は、騎西は 8月9～16日、前橋は 8月3～10日である。表6にこの期間のそれぞれの場所での主要成分の平均値を示す。

騎西：図33a に示すとおり騎西では有機物が主要成分であり、前半の 8月9～12日の期間では有機物が特に多い。また、有機物の濃度変動は他の成分と変動が異なる。図33b にこの期間の日変化の平均を示す。有機物は昼間に濃度が高くなっていることが多いが、 $SO_4$ ,  $NH_4$  に関しては日中ではなく夕方や夜間にピークが現れることもある。例えば 8月10日では午前 1 時ごろと夕方の 19 時ごろにピークが現れている。 $NO_3$  は有機物や  $SO_4$  と異なる挙動を示しており、午前中に濃度が高くなることが多いが、8月12日には午前 3 時ごろにピークが現れている。要約すると有機物は日中に濃度が高くなり、 $NO_3$  は朝方に濃度が高くなる傾向がある。 $SO_4$ ,  $NH_4$  は 1 日中あまり変動がない。これらのことから、有機物は光化学反応によって、 $NO_3$  は窒素酸化物 ( $NO_x$ ) 濃度が高いときに

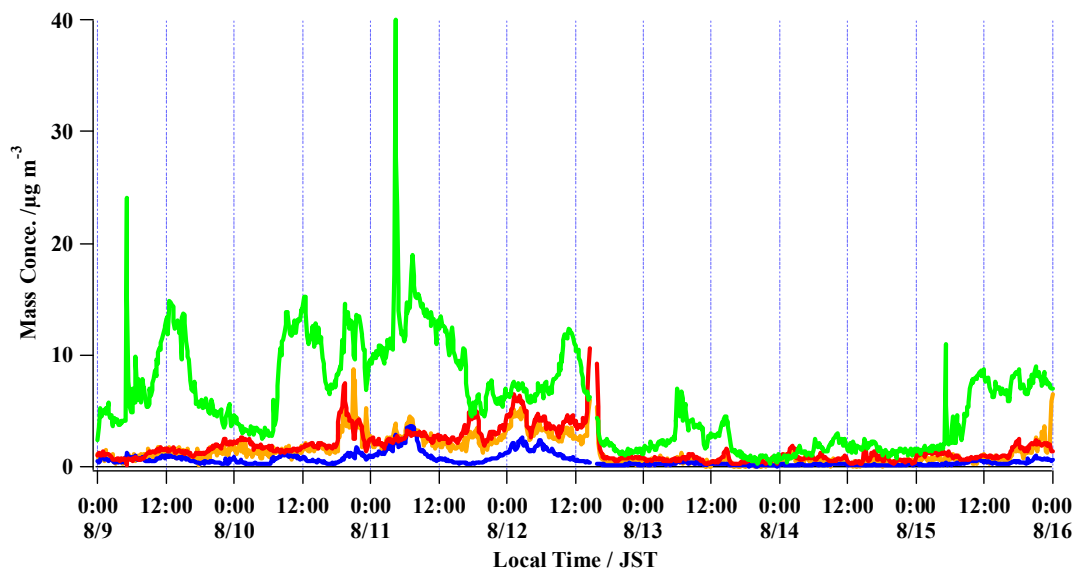


図33 a 騎西で観測されたエアロゾルの主要成分の時系列変化。オレンジ： $NH_4$ 、青： $NO_3$ 、赤： $SO_4$ 、緑：有機物

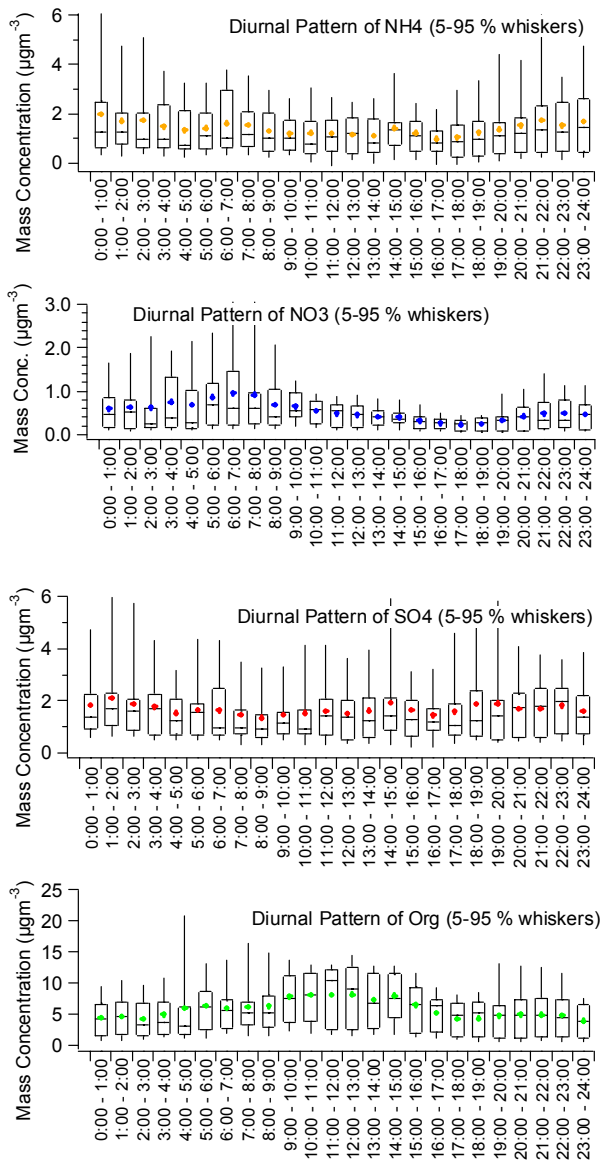


図33b 騎西で観測されたエアロゾル主要成分の日変化。オレンジ：NH<sub>4</sub>、青：NO<sub>3</sub>、赤：SO<sub>4</sub>、緑：有機物

濃度が上昇し、SO<sub>4</sub>やNH<sub>4</sub>は都心からの移流の影響を受けていると推測される。

図33c に粒径分布を示す。8月9～12日の間は有機物とそのほかの無機物(NH<sub>4</sub>, NO<sub>3</sub>, SO<sub>4</sub>)の粒径分布は類似しており、ある程度の期間移流し粒子同士が混合していると考えられる。それに比べ、8月13～15日の期間では、有機物の粒径分布が100nm以下にも多く分布しており、排出されてからの期間が短い比較的若い(Freshな)有機物が相対的に多かったと考えられる。

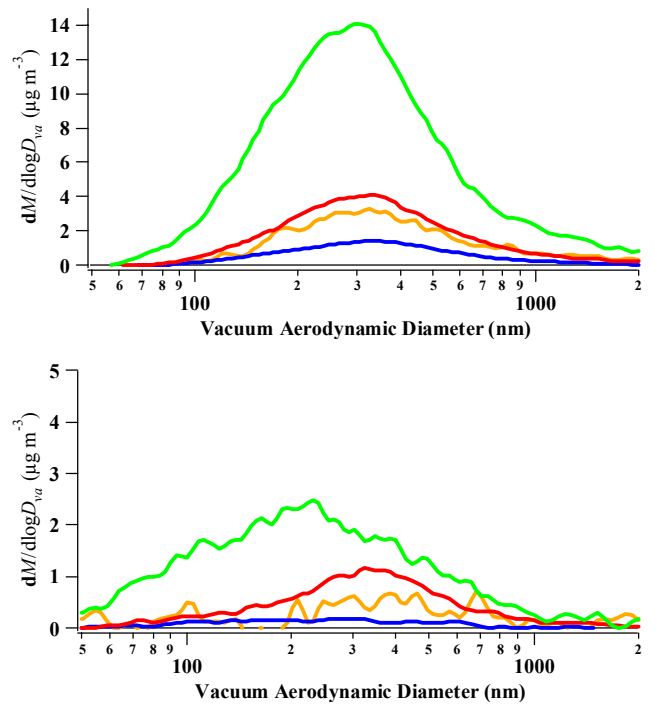


図33c 騎西で観測されたエアロゾル主要成分の粒径分布。(上図) 8月9～12日の観測データ、(下図) 8月13～15日の観測データ。オレンジ：NH<sub>4</sub>、青：NO<sub>3</sub>、赤：SO<sub>4</sub>、緑：有機物

前橋：有機物が主成分であるが、SO<sub>4</sub>も同程度の濃度であり、NH<sub>4</sub>、NO<sub>3</sub>もある程度存在している(図34a)。有機物は午後濃度が高くなる傾向にあり、光化学反応が示唆される。SO<sub>4</sub>は夜間、早朝、夕方と濃度が高くなっており、移流の影響が示唆される。またNO<sub>3</sub>は騎西では最高で4 µgm<sup>-3</sup>程度であったのが、前橋では最高で20 µgm<sup>-3</sup>程度まで上昇している。また、朝方高くなっていることがしばしばあり、自動車排ガスの影響が示唆される。図34b に日変化を示す。傾向は騎西と似ているが前橋の場合、有機物、NO<sub>3</sub>、SO<sub>4</sub>、NH<sub>4</sub>ともに午前中に濃度が上昇する傾向が見られる。図34c に前橋におけるこの期間の平均粒径分布を示す。SO<sub>4</sub>、NH<sub>4</sub>に関しては蓄積モードにピークがあり、移流し時間が経過(Aging)していると考えられる。有機物とNO<sub>3</sub>は蓄積モードにもピークがあるが、超微小モードにテールがあり、排出されてからの期間が短いfreshな有機物やNO<sub>3</sub>も一定程度寄与していると考えられる。

表6 騎西ならびに前橋でQ-AMSを用いて測定されたエアロゾルの主要成分の平均濃度

	NH <sub>4</sub> / µgm <sup>-3</sup>	SO <sub>4</sub> / µgm <sup>-3</sup>	NO <sub>3</sub> / µgm <sup>-3</sup>	Organics / µgm <sup>-3</sup>
Kisai	1.41 ± 1.23	1.67 ± 1.31	0.55 ± 0.56	5.95 ± 4.30
Maebashi	4.30 ± 1.77	7.08 ± 3.05	2.66 ± 3.14	8.64 ± 4.97



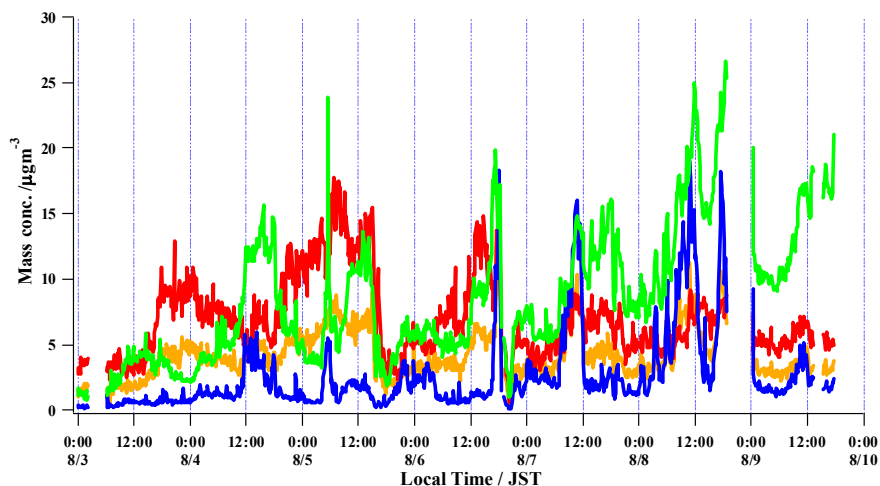


図34 a 前橋で観測されたエアロゾルの主要成分の時系列変化。  
オレンジ：NH<sub>4</sub>，青：NO<sub>3</sub>，赤：SO<sub>4</sub>，緑：有機物

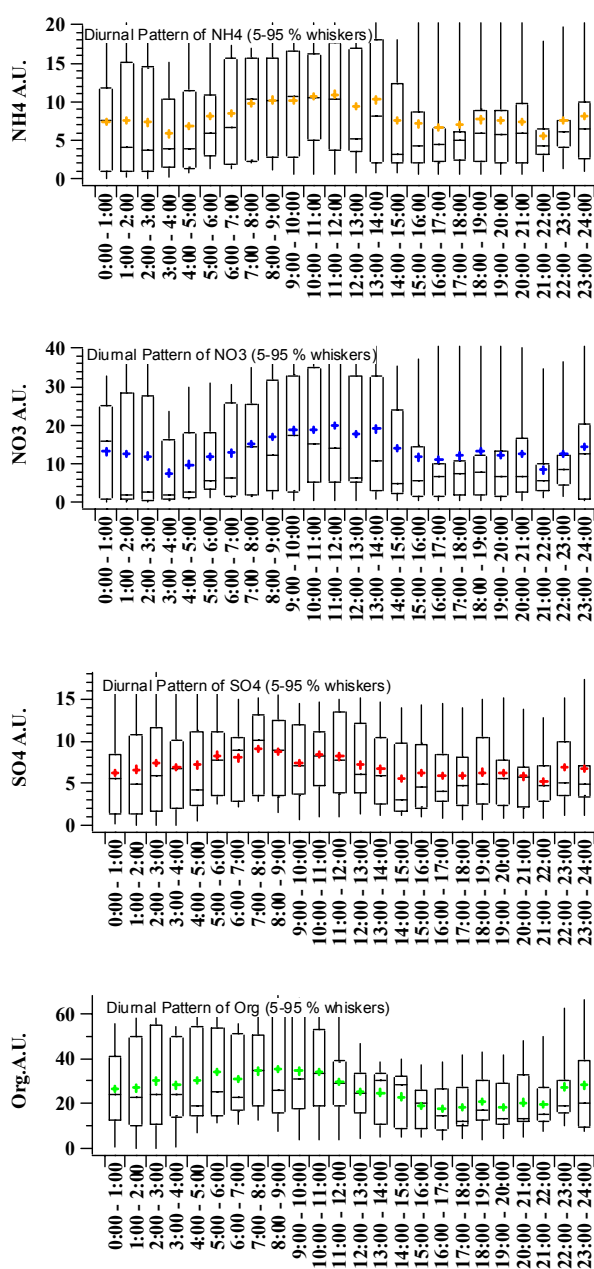


図34 b 前橋で観測されたエアロゾル主要成分の日変化。  
オレンジ：NH<sub>4</sub>，青：NO<sub>3</sub>，赤：SO<sub>4</sub>，緑：有機物

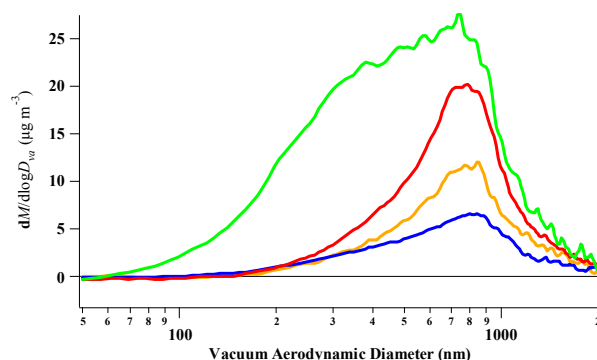


図34 c 前橋で観測されたエアロゾル主要成分の粒径分布。  
オレンジ：NH<sub>4</sub>，青：NO<sub>3</sub>，赤：SO<sub>4</sub>，緑：有機物

#### (イ) PMF による解析

Positive Matrix Factorization (PMF) 法は Paatero と Tapper により開発された因子分析の一種であり、発生源データを用いることなく統計的に意味のある因子を抽出できる<sup>6)</sup>。PMF 法による解析の結果、意味のある因子数としては前橋も騎西も 3 因子とした。4 因子以上にした場合 Hydrocarbon-like Organic Aerosol (HOA) と考えられるスペクトルが消失し、既存のデータとは無関係の解釈が困難なスペクトルが分離されたため 3 因子とした。

図35a に騎西で観測された AMS データについて PMF 法を適用し、3 因子に分離された場合の日変化とそれに対応する質量スペクトルを示す。質量スペクトルを見ると、第 1 番目の因子 (factor1) では  $m/z=44$  のシグナルが顕著であり非常に酸化された有機物、すなわち Oxygenated Organic Aerosol I (OOAI) と考えられる。次に第 2 番目の因子 (factor2) では  $m/z=44$  のシグナルは無くなり、 $m/z=41, 43, 55, 57$  など炭化水素のフラグメントと考えられるシグナルが顕著である。これは炭化水素

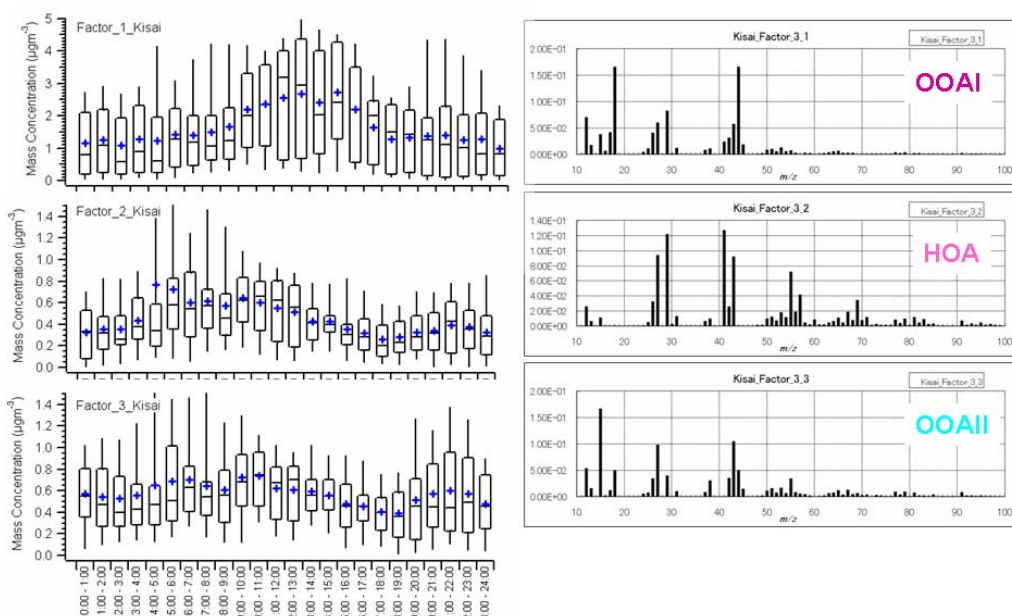


図35 a PMF法で解析した日変化パターンと質量スペクトル（騎西のデータ）

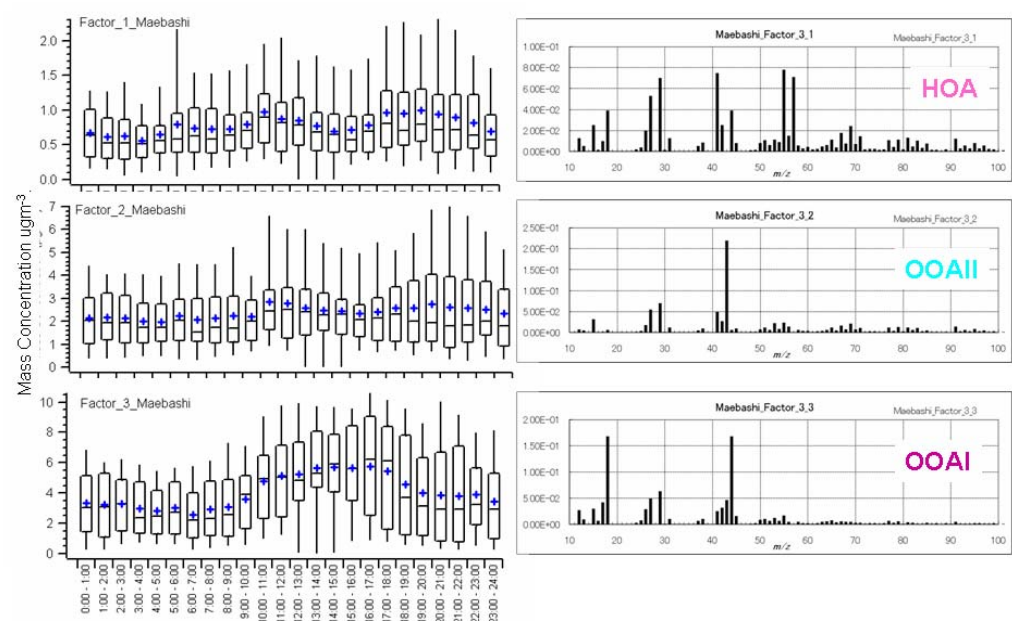


図35 b PMF法で解析した日変化パターンと質量スペクトル（前橋のデータ）

様の有機物のシグナル HOA に対応する。第3番目の因子 (factor3) では  $m/z=43$  が顕著であり44も残っている。したがって、この因子は少し酸化された有機物に対応する OOAII と考えられる。少し酸化された有機物と言うのはあいまいな表現であるが、HOA を Fresh, OOAI を非常に酸化されたいわゆる Aged な有機物とすると、OOAII はその中間であり排出されてから光化学酸化反応などを経て少し酸化されている有機物である。日変化を示すと、HOA は午前中に濃度が上昇しピークが10時ごろに来ている。一方酸化された有機物である OOAII は

正午から14時ごろにピークとなっており、光酸化反応の寄与を表している。OOAII であるが、騎西の場合には HOA に類似している。

前橋のデータについても同様に解析した (図35b)。その結果第1番目の因子が HOA, 2番目が OOAII, 3番目が OOAI である。HOA では  $m/z=55,57$  が、OOAI では  $m/z=44$  が、OOAII では  $m/z=43$  が顕著であった。ただし、前橋の場合 OOAII は  $m/z=43$  のみが顕著であり、騎西の場合とは少し異なる。日変化は、OOAI のみ顕著で、午後にはピークが現れている。HOA, OOAII では騎西に見

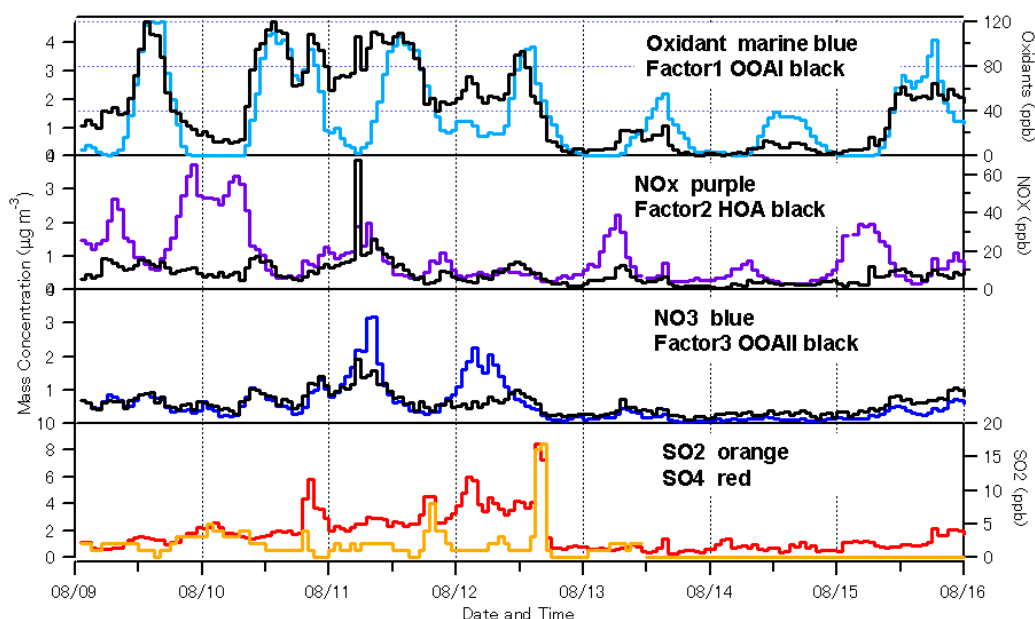


図36 騎西における OOAI, OOAI, HOA の変動

られたような午前中のピークは見られなかった。

図36に PMF 法で分離した因子と他の成分との濃度変動を比較した。騎西の場合では OOAI はオキシダントと、HOA は NO<sub>x</sub> と、OOAI は NO<sub>3</sub> と濃度変動が似ている。HOA, OOA の二分法と比較したとき、OOAI というあまり酸化されていない有機物を導入することによって、Fresh な有機物の HOA と Aged な有機物 OOAI を明確に分離できるようになった。

#### (ウ) 各物質の生成と消滅

PMF 法による因子分析と各成分の濃度変動の類似性から生成過程を推測した。SO<sub>4</sub>については、他の物質とあまり相関がなく、生成過程としては SO<sub>2</sub>の酸化反応と考えられるが、Ox などとも変動が一致しておらず、また SO<sub>2</sub>濃度とも変動があまり一致していないのでほとんど移流で濃度が決まっていると考えられる。一方で、OOAI (十分酸化された有機物) はオゾンなど Ox と濃度変動が一致しており、相関も高いので、光化学酸化反応による生成と考えられる。しかし、生成した場所は観測場所の近く、および、移流中の生成の両方が考えられる。日変動を見ると、平均としては日中に濃度が高くなり、夜間は下がる傾向があるが、たとえば、前橋では夕方から夜にかけてオゾンと OOAI が同時に濃度上昇を示しており (8/6, 7)、これは都心から輸送されてきた空気塊に高濃度のオゾンや OOAI が含まれていた結果と考えられる。騎西の HOA に関しては、午前中に濃度が高い

ので観測場所近くでの発生の可能性が高い。一方で前橋の場合にはあまり明確な日変動を示していないことから、常時ある程度の HOA が存在していることになり、移流の影響あるいは自動車の使用などの人為起源以外の影響が強いことを示唆している。OOAI (あまり酸化されていない有機物) については、騎西、前橋とも明確な日変動は見られない。

前橋においては NO<sub>3</sub>の濃度変動は HOA と類似している。さらに分解能が悪いため明確ではないが CO の濃度変動も NO<sub>3</sub>, HOA の濃度変動と対応しているように見える。NO<sub>3</sub>は二次生成粒子であり、NO の酸化反応で NO<sub>2</sub>を生成し、さらに NO<sub>2</sub>が OH ラジカルと反応してガス状の HNO<sub>3</sub>を生成した後、NH<sub>3</sub>をカウンターパートとして粒子となる。しかし今回の観測では SO<sub>4</sub>, オゾン, OOAI など (光化学) 酸化反応の生成物とは異なる挙動を示している。

#### (エ) 有機物の中の自然起源の痕跡はあるか

Alffara ら<sup>7)</sup>は、1,3,5トリメチルベンゼン (TMB) と  $\alpha$ -pinene のチャンバー中での照射によって生成される二次有機エアロゾル (Secondary Organic Aerosol; SOA) ではその質量スペクトルに特徴的な差があると報告している。たとえば、 $m/z=53$ と $55$ ,  $m/z=67$ と $69$ のシグナルを比べると TMB の酸化生成物では前者が大きく、 $\alpha$ -pinene の酸化生成物では後者が大きくなる。また特徴的なシグナルとして、 $\alpha$ -pinene の酸化生成物で

は  $m/z=69,79,83, 105,115,139$ が見られるが、TMB の酸化生成物ではこれらの生成物は非常に小さい。

騎西や前橋で得られた OOA が多い場合 (OOArich), あるいは HOA が多い場合 (HOArich) の質量スペクトルの  $m/z$  シグナルの特長について調べた。騎西, 前橋とも HOArich の場合には  $m/z=53<57, m/z=67<69$ であった。OOArich の場合では両地点ともに  $m/z=53>57, m/z=67<69$ であった。HOArich の場合には  $\alpha$ -pinene の酸化生成物の特徴を示している (HOArich でも5割程度は OOA が含まれるので酸化生成物がシグナルとして見られても良い)。また, 質量スペクトルでは  $m/z=69,79,83, 105,115,139$ のシグナルが常に観測されていた。これらのことから自然起源の  $\alpha$ -pinene の酸化生成物の痕跡が AMS の質量スペクトルに見られており, 自然起源の物質が騎西や前橋で二次生成有機エアロゾルに関与している可能性があることは示唆される。今後, イソプレン, トルエン, キシレンなど, 人為起源, 自然起源の代表的な揮発性炭化水素から生成する有機エアロゾルの質量スペクトルをライブラリー化し, その特徴を明らかにしていくことが重要であると考えられる。

## 参考文献

- 1) Jayne J.T., Leard D.C., Zhang X., Davidvits P., Smith K.A., Kolb C.E., Worsnop D.R. (2000) Development of an aerosol mass spectrometer for size and composition analysis of submicron particles, *Aerosol Sci. Technol.*, 33, 49-57.
- 2) 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.
- 3) 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.
- 4) Hagino H., Takada T., Kunimi H., Sakamoto K. (2007) Characterization and source presumption of winter time submicron organic aerosol at Saitama, Japan, using the Aerodyne aerosol mass spectrometer, *Atmos. Environ.*, 41, 8834-8845.
- 5) 萩野浩之, 高田智至, 国見均, 坂本和彦 (2008) PMF

法を用いた有機エアロゾル質量スペクトルの事例解析, *大気環境学会誌*, 43, 161-172.

- 6) Paatero P., Tapper U. (1994) Positive matrix factorization: a nonnegative factor model with optimal utilization of error estimates of data values, *Environmetrics*, 5, 111-126.
- 7) Alfarra M.R., Paulsen D., Gysel M., Garforth A.A., Dommen J., Prevot A.S.H., Worsnop D.R., Baltensperger U., Coe H. (2006) A mass spectrometric study of secondary organic aerosols formed from the photooxidation of anthropogenic and biogenic precursors in a reaction chamber, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 5279-5293.

## 2.2 都市における二次生成大気汚染のモデル化と将来予測

### 2.2.1 化学輸送モデルによる微小粒子の組成別時空間変動の予測

#### (1) 研究の目的

近年の微小粒子の排出抑制の結果, 東京近郊で一次排出粒子の濃度は減少傾向にあるが, 二次生成粒子の濃度は減少幅が小さく, 相対的に二次生成粒子の寄与が増大していることが指摘されている<sup>1)</sup>。二次粒子は, 一般的に一次粒子と比較して広域的に分布しており, その空間分布の把握が困難である。微小粒子の抑制対策を立案するための濃度制御要因解明と発生源推定には, CTM を用いた推計が有効であるが, CTM の計算結果には諸要因による不確実性が大きい。そのため, CTM を利用するには, 実測データとの注意深い比較が不可欠である。本研究では, 2007年夏季に行われた微小粒子の広域観測結果 (2.1.4節) と CTM の計算結果を比較して, 関東地方における微小粒子濃度の時空間分布の把握とモデルの再現性の評価を試みた。

#### (2) 研究手法

本研究において, CTM はアジア域 (領域1), 日本域 (領域2), 関東域 (領域3) の3領域に対して計算した。計算領域を図37に示し, 各領域における CTM の入力条件や領域設定などを表7にまとめた。ここでは, アジア域と日本域・関東域では異なるモデル・データセットを用いている。気象モデルは, 領域1を独立に計算しており, 領域2と領域3とは双方向ネスティングを行ってい

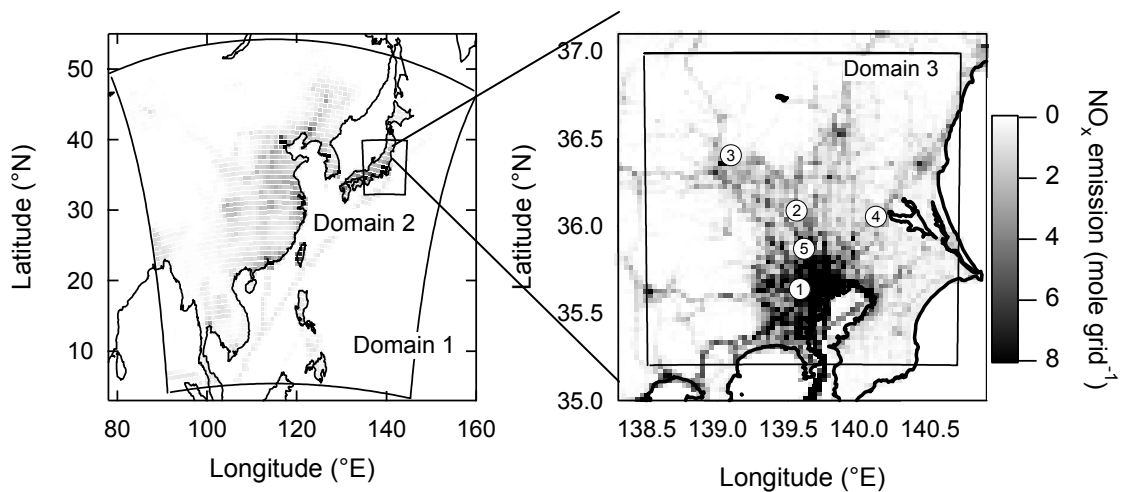


図37 CTM の計算領域と観測地点（1：狛江，2：騎西，3：前橋，4：つくば，5：さいたま）

表7 利用したモデル，計算モジュールと領域設定

	領域1	領域2	領域3
化学輸送モデル (M1) (M2)	CMAQ v4.4 <sup>a</sup>	CMAQ-MADRID <sup>a</sup>	CMAQ-MADRID <sup>a</sup>
		CMAQ v4.6 <sup>b</sup>	CMAQ v4.6 <sup>b</sup>
気象モデル	RAMS v4.3 <sup>c</sup>	WRF v3.1 <sup>d</sup>	WRF v3.1 <sup>d</sup>
客観解析データ	ECMWF	NCEP-FNL	NCEP-FNL
排出量データ	REAS v1.1 <sup>e</sup>	EAGrid 2000 <sup>f</sup>	EAGrid 2000 <sup>f</sup>
化学モジュール (M1) (M2)	SAPRC 99 <sup>g</sup>	CACM <sup>g</sup>	CACM <sup>g</sup>
		SAPRC 99 <sup>h</sup>	SAPRC 99 <sup>h</sup>
粒子モジュール (M1) (M2)	aero3 <sup>a</sup>	MADRID2 <sup>a</sup>	MADRID2 <sup>a</sup>
		aero4 <sup>b</sup>	aero4 <sup>b</sup>
水平分解能	80 km	15 km	5km
水平グリッド数	68 x 78	56 x 56	58 x 58

a: Zhang et al., 2004<sup>5)</sup>, b: Binkowski and Roselle, 2003<sup>6)</sup>, c: Pielke et al., 2001<sup>7)</sup>,  
d: Skamarock et al., 2008<sup>8)</sup>, e: Ohara et al., 2001<sup>9)</sup>, f: Kannari et al., 2007<sup>4)</sup>,  
g: Griffin et al., 2002: 2005<sup>2,3)</sup>, h: Carter, 2000<sup>10)</sup>,

る。また、CTM は領域1，領域2，領域3に対して一方向ネスティングを用いることにより，東アジア域起源物質の関東域への流入を考慮している。領域2と領域3においては，2つのCTM (CMAQ-MADRID (M1) と CMAQ v4.6 (M2)) を計算した。化学モジュールについて，従来広く使われてきた SAPRC (M2) に対して，M1ではCACM<sup>2)</sup>が採用されている。CACMの特徴は，粒子化傾向の高い低揮発性化合物の生成反応を陽に計算する点である。関連して，M1ではエアロゾルモジュールも改良されており (MADRID2)，従来モデルと比べて粒子生成能を持つ VOC (Semi-volatile organic compounds, SVOC) を多成分 (39成分) について考慮している。CACM-MADRID2モジュールで計算される粒子生成収率は，芳香族 VOC とモノテルペンに対して実験データと比較して，その一致が確認されている<sup>3)</sup>。な

お，日本域と関東域における排出量データには，1 km メッシュの EAGrid2000<sup>4)</sup>を利用した。VOC の成分割付は JCAP (2001) を基に設定し，PM<sub>2.5</sub>の成分割付はレセプターモデル (CMB 法) で利用した発生源プロフィール (2.1.6節) に統一した。

観測は，狛江，騎西，前橋，つくばの4地点において2007年7月30日・8月16日の期間に行われた (詳細は2.1.4節参照)。広域において高時間分解能で微小粒子の組成別濃度を観測した本データセットは，CTM の微小粒子濃度再現性を検証する上で有用である。CTM の計算期間は2007年7月23日から8月16日であり，主な解析対象期間は2007年8月7日から8月10日とした。この期間は，関東地方において海陸風循環が発達しており，日中には関東全域を南風が支配していた。



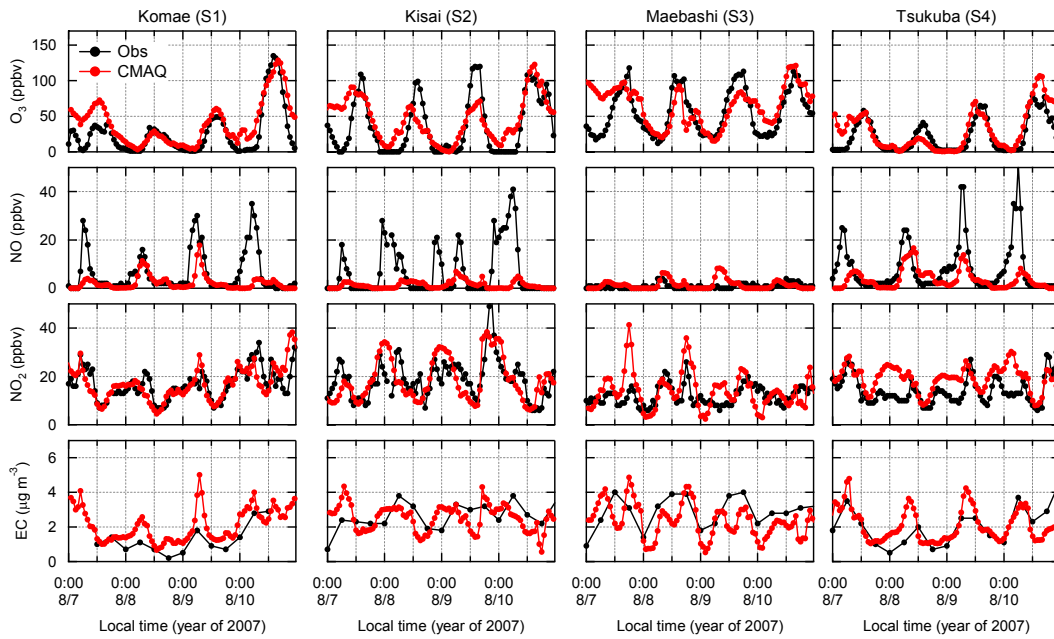


図38 2007年8月7～10日における O<sub>3</sub>, NO, NO<sub>2</sub>, EC 濃度の経時変動の観測値（黒）と CMAQ (M1) 計算値（赤）

### (3) 結果と考察

図38に、O<sub>3</sub>, NO, NO<sub>2</sub>, 元素状炭素エアロゾル (EC) の観測値と CMAQ (M1) 計算結果の経時変動を示した。二次生成物質である O<sub>3</sub>は4地点ともに明確な日変動を示し、特に都市の下流である駒西と前橋では4日間ともに日最高 O<sub>3</sub>濃度が100ppbv を超えていた。CMAQ は駒西において O<sub>3</sub>濃度の観測値をやや過小評価していたが、その他の地点では概ね再現していた。また、一次排出物質である NO<sub>2</sub>と EC の観測濃度は午前中や夕方に濃度増大が見られることが多く、NO<sub>2</sub>濃度は駒西で、EC 濃度は駒西と前橋で他地点よりも高濃度であった。CMAQ はこれらの時空間変動を概ね再現し、平均濃度も30%の範囲で再現していた。ただ、狛江・駒西・つくばにおいて観測された NO 濃度は、夜間から早朝にかけて1時間平均で20～50ppbv 程度まで増大していたが、CMAQ ではこの濃度増大は再現できなかった。この過小評価要因として、近隣の発生源の影響を5 km グリッドの CMAQ では考慮できていないことが考えられる。これらの3地点と比較して、前橋では NO 濃度の顕著な増大が起らなかったことから、近隣の発生源の影響が比較的小さいと考えられる。

今回の解析対象期間（4日間）における O<sub>3</sub>と NO<sub>x</sub> 濃度の水平分布の観測値と CMAQ (M1) 計算結果を比較した (図39a)。二次生成物質である O<sub>3</sub>の濃度は都市の下流において増大しているのに対して、一次排出物質である NO<sub>x</sub> の濃度は都心で最も高く、その下流にかけて減

少しており、概ねその傾向は CMAQ によって再現されていた。また、CMAQ で計算された EC と SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 濃度の水平分布を図39b に示した。EC は、NO<sub>x</sub> と比較して寿命が長いことを反映して、都心から下流まで広がっていると計算された。また、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> は、O<sub>3</sub>と同様に東京下流で比較的均一に分布すると計算された。

今回の解析対象期間における平均的な CMAQ (M1, M2) の予測性能を図40に示した。O<sub>3</sub>と NO<sub>2</sub>については、平均濃度を30%以内で再現し、相関係数も全地点で0.4以上であった。また、M1は全エアロゾル成分に対してM2よりも高濃度と計算していた。EC と SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> は比較的平均濃度も再現されており、前橋での SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> を除いて相関係数が0.4以上であった。それに対して、TNO<sub>3</sub> (=HNO<sub>3</sub> + NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) は顕著に過大評価、OC は顕著に過小評価しており、これらの成分の再現性向上が現状のモデルの課題であることがわかる。M1は、M2と比較して全4地点で3倍程度 OC 濃度を高濃度と計算し、その結果として OC 濃度の再現性が向上していた。この差異はほとんどが SOA の差異に起因しており、M1では M2と比べて SOA を10～20倍高濃度で計算した。M1でも依然2倍程度 OC 濃度を過小評価しているが、この点は次節(2.2.2節)で詳しく述べる。

越境輸送の影響を調べるために、領域2の境界濃度をゼロにした計算を行った (図40中の BCON off)。その結果、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> について越境輸送が全地点において50%程度の寄与を持つことが示された。また、越境輸送を考慮す

ることによって、 $\text{SO}_4^{2-}$  濃度の観測と CTM の相関係数が増大し、経時変動の再現性が向上している。この結果も、間接的ではあるが、越境輸送が  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度に対して大きな寄与を持つことを支持する。なお、その他の成分

ではほとんどこの期間に越境輸送の影響が見られなかった。夏季における越境輸送の先行研究は限られており、今後これらの点のより直接的な検証が必要である。

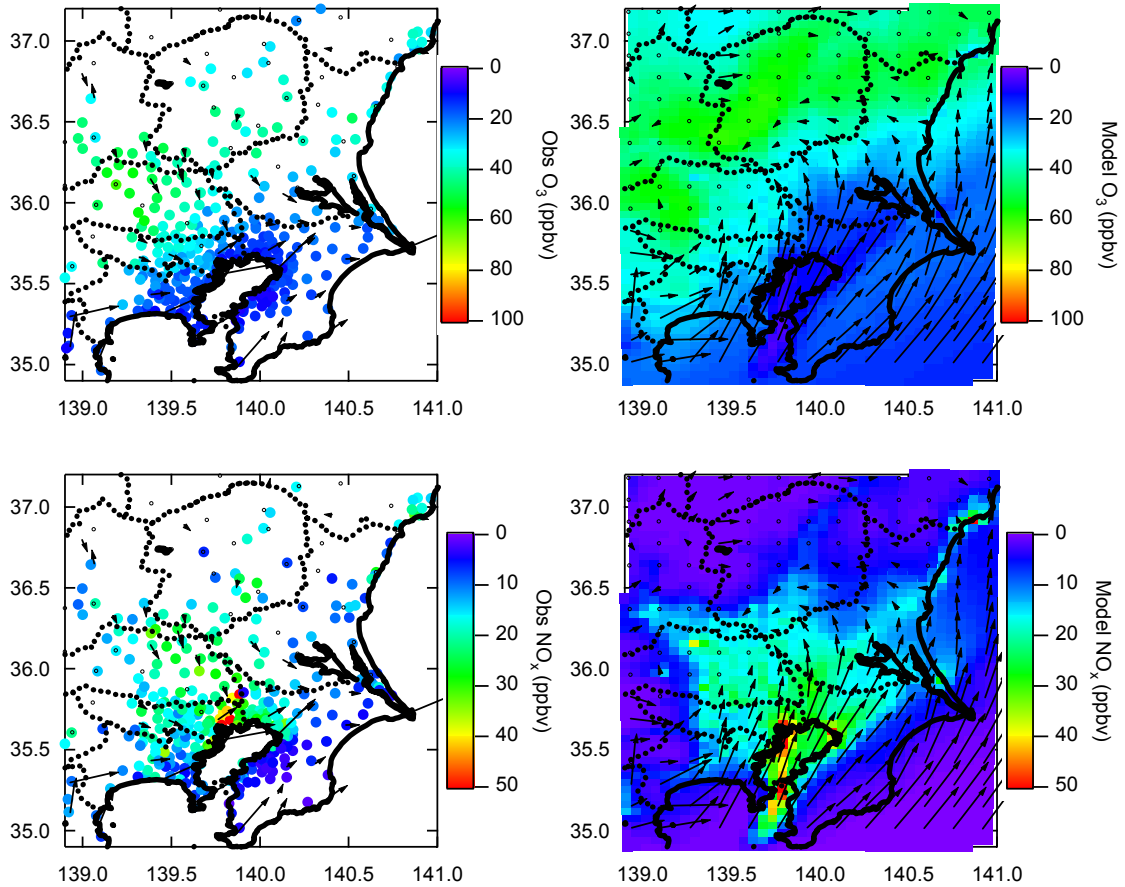


図39 a 2007年8月7～10日の期間平均の、地表（モデルでは第一層）における  $\text{O}_3$  と  $\text{NO}_x$  濃度の水平分布の観測値（左）と CMAQ (M1) 計算値（右）

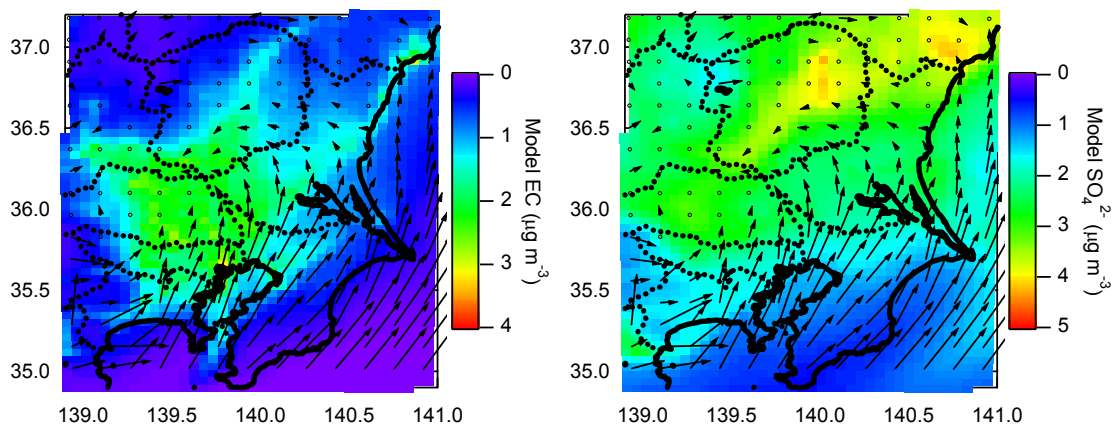


図39 b 2007年8月7～10日の期間平均の、CMAQ (M1) で計算された第一層における EC と  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度の水平分布

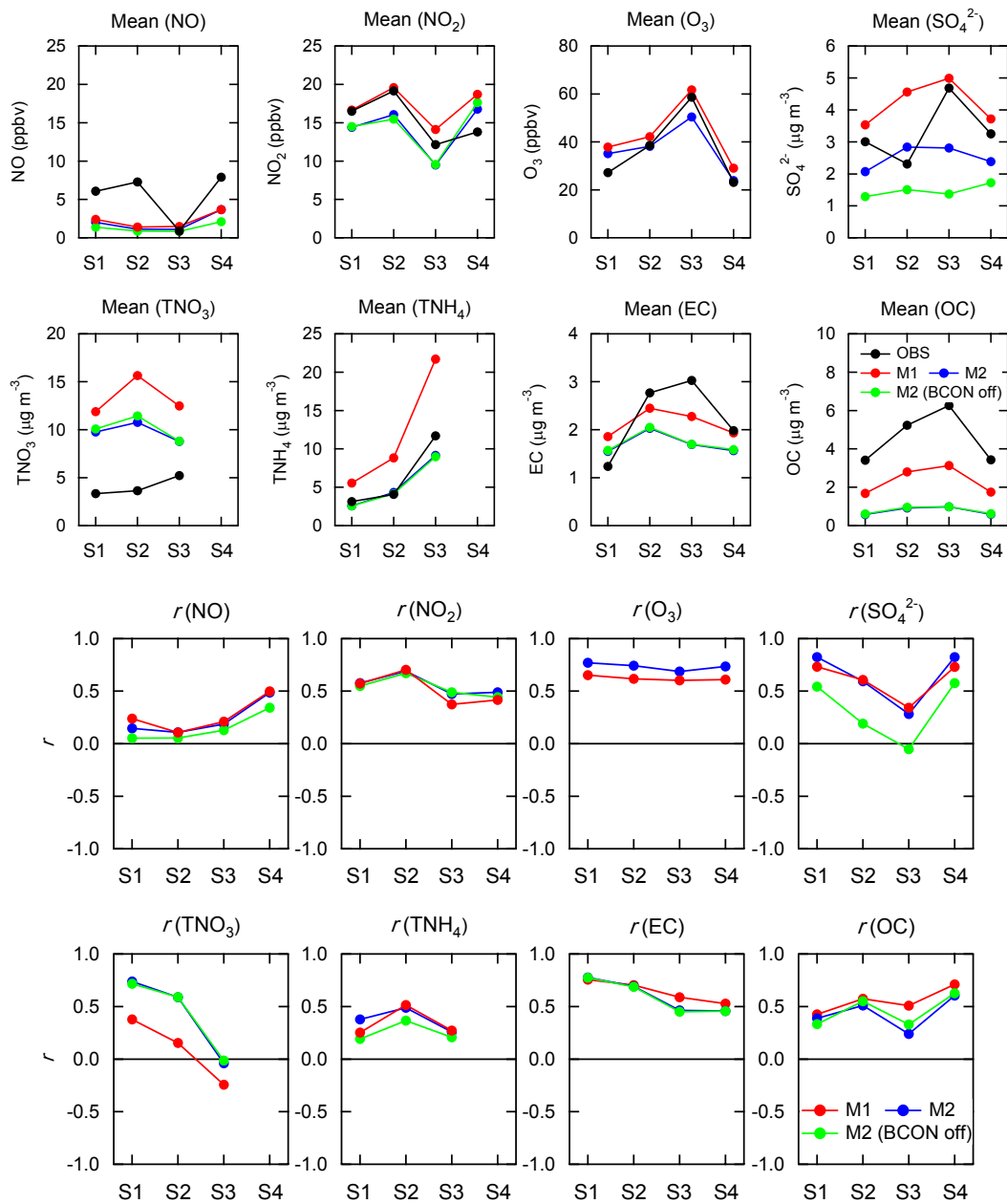


図40 2007年8月7～10日におけるモデルの予測性能 (S1: 狛江, S2: 駒西, S3: 前橋, S4: つくば, M1: CMAQ-MADRID, M2: CMAQ v4.6).  
上図に平均濃度, 下図に相関係数 (r) を示した

#### 参考文献

- 1) Minoura H., Takahashi K., Chow J.C., Watson J.G. (2006) Multi-year trend in fine and coarse particle mass, carbon, and ions in downtown Tokyo, Japan, *Atmos. Environ.*, 40, 2478-2487.
- 2) Griffin R.J., Dabdub D., Seinfeld J.H. (2002) *J. Geophys. Res.*, 107(D17), 4332, doi:10.1029/2001JD000541.
- 3) Griffin R.J., Dabdub D., Seinfeld J.H. (2005) *J. Geophys. Res.*, 110, D05304, doi:10.1029/2004JD005219.
- 4) Kannari A., Tonooka Y., Baba T., Murano K. (2007) *Atmos. Environ.*, 41, 3428-3439.
- 5) Zhang Y., Pun B., Vijayaraghavan K., Wu S.Y., Seigneur C., Pandis S.N., Jacobson M.Z., Nenes A., Seinfeld J.H. (2004) *J. Geophys. Res.*, 109, D01202, doi:10.1029/2003JD003501.
- 6) Binkowski F.S., Roselle S.J. (2003) *J. Geophys. Res.*, 108(D6), 4183, doi:10.1029/2001JD001409.
- 7) Pielke R. A. et al. (1992) *Meteorol. Atmos. Phys.*, 49, 69-91.
- 8) Skamarock W.C., Klemp J.B., Dudhia J., Gill D.O.,



Barker D.M., Wang W., Powers J.G. (2008) NCAR Technical note, NCAR/TN-475+STR, 125p.

9) Ohara T., Akimoto H., J. Kurokawa J., Horii N., Yamaji K., Yan X., Hayasaka T. (2007) Atmos. Chem. Phys., 7, 4419-4444.

10) Carter W.P.L. (2000) Contract 92-329 and Contract 95-308, Calif. Air Resour. Board, Sacramento, Calif.

廃棄物, その他), 小規模燃焼発生源 (廃棄物, その他), 野焼き, 飛行機, 船舶, オフロード, 自動車 (排気, タイヤ, ブレーキ) の12種類に分類した。本研究では, 近隣の発生源の影響が小さく (2.2.1節), CMB の推計結果に大きな問題が見られなかった (2.1.6節) 前橋における計算結果を解析した。また, 解析対象期間は, 2.2.1節と同様に2007年8月7日から8月10日とした。

## 2.2.2 化学輸送モデルによる微小粒子の排出源寄与推計

### (1) 研究の目的

都市大気において微小粒子状物質の濃度低減は重要な課題であり, その対策立案に向けた発生源寄与推計が必要である。中でも炭素性エアロゾルは特に動態解明が遅れており<sup>1)</sup>, 一次排出と二次生成の寄与の分離を含む発生源別寄与推計が必要とされている。本研究では, CMB法 (2.1.6節) を用いた炭素性エアロゾルの発生源寄与推計結果を CTM 計算結果と比較することで, 炭素性エアロゾル濃度再現に関わる, 現在の排出インベントリや CTM の予測性能を発生源別に評価した。また, CMB の推計結果と TC 中の<sup>14</sup>C (2.1.5節) の測定結果を合わせて, 人為起源 SOA (ASOA) と生物起源 SOA (BSOA) の分離を試みた。本節では, その推計結果を基に, SOA に対する CTM の予測性能評価を行った結果を示す。

### (2) 研究手法

CTM の概要は, 2.2.1節にまとめた。本節では, 全て CMAQ-MADRID (M1) を用いた結果を示す。また, 新たに CMAQ を用いて EC と一次 OC (POC) の排出源別タグ付き計算を行うことで, 排出源別寄与率の時空間分布を推計した。ここでは, 大規模燃焼発生源 (重油,

### (3) 結果と考察

CMB で推計した EC と POC の発生源寄与率を, CMAQ と比較した。ここで, CMB と CMAQ の発生源分類は完全には一致しないので, 比較のために燃焼起源, ごみ焼却, 野焼き, 自動車排気, その他自動車 (タイヤ, ブレーキ, 土壌), その他交通 (船舶, 飛行機, オフロード) にまとめて集計した。期間平均の比較結果を表 8 に示した。EC の発生源としては, CMB, CMAQ とともに自動車排気が主要であると計算され, それぞれ72%と68%の寄与であった。この結果を反映して, pMC (EC) (EC 中の Modern carbon 存在比) は両モデルともに18~19%と低い値を示した。それに対して, POC の発生源は自動車排気 (CMB で51%, CMAQ で50%) に加えて野焼きが大きな寄与を持つと計算された (CMB で36%, CMAQ で44%)。この野焼きの寄与を反映して, pMC (POC) は CMB で45%, CMAQ で49%と pMC (EC) よりも高い値を示した。また, pMC (EC), pMC (POC) とともに CMB と CMAQ とが同程度の値を示し, CMB 計算結果は排出インベントリと整合的であった。pMC (EC) と pMC (POC) の経時変動を図41に示した。EC の排出源としては自動車排気が支配的なため, pMC (EC) の変動幅は小さく, CMB と CMAQ のいずれも小さいと計算

表 8 前橋において CMB と CMAQ (M1) で計算された EC と POC 濃度に対する発生源別寄与

Sectors	pMC	EC ( $\mu\text{g m}^{-3}$ )		POC ( $\mu\text{g m}^{-3}$ )	
		CMB	CMAQ	CMB	CMAQ
Industrial Combustion	0%	0.19 ( 8%)	0.17 ( 7%)	0.03 ( 2%)	0.03 ( 2%)
Incineration	60%	0.02 ( 1%)	0.01 ( 0%)	0.01 ( 1%)	0.00 ( 0%)
Field burning	100%	0.16 ( 7%)	0.19 ( 8%)	0.52 ( 36%)	0.61 ( 44%)
Vehicle –exhaust	7%	1.65 ( 72%)	1.55 ( 68%)	0.74 ( 51%)	0.69 ( 50%)
Vehicle –tire and brake	50%	0.29 ( 12%)	0.21 ( 9%)	0.15 ( 10%)	0.05 ( 3%)
Other transport	7%		0.15 ( 7%)		0.01 ( 1%)
Total		2.31 (100%)	2.29 (100%)	1.45 (100%)	1.39 (100%)
		<i>pMC (%)</i>			
		19%	18%	45%	49%

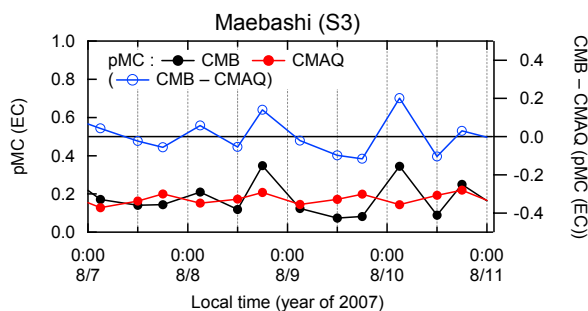
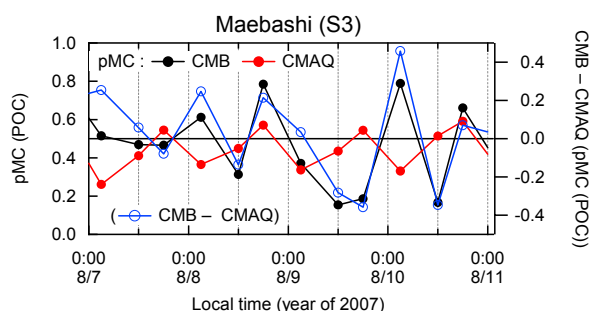


図41 前橋における CMB (黒) と CMAQ (M1, 赤) で計算された pMC (EC) と pMC (POC) の経時変動。CMB と CMAQ の差異を青線で示した



される (平方自乗和: 0.10)。それに対して, pMC (POC) は振れ幅が大きく, 両モデルでのずれも比較的大きかった (平方自乗和: 0.26)。

Dead-carbon と Modern-carbon 別の二次 OC (SOC) の濃度推計は下式を基に行った。

$$[\text{Dead-SOC}] =$$

$$[\text{Dead-TC}]_{\text{obs}} - ([\text{Dead-EC}] + [\text{Dead-POC}]) \quad (6)$$

$$[\text{Modern-SOC}] =$$

$$[\text{Modern-TC}]_{\text{obs}} - ([\text{Modern-EC}] + [\text{Modern-POC}]).$$

$$[\text{Dead-EC}] = [\text{EC}]_{\text{obs}} \times (1 - \text{pMC}(\text{EC})_{\text{CMB}}) \quad (7)$$

$$[\text{Dead-POC}] = [\text{POC}]_{\text{CMB}} \times (1 - \text{pMC}(\text{POC})_{\text{CMB}})$$

$$[\text{Modern-EC}] = [\text{EC}]_{\text{obs}} \times \text{pMC}(\text{EC})_{\text{CMB}}$$

$$[\text{Modern-POC}] = [\text{POC}]_{\text{CMB}} \times \text{pMC}(\text{POC})_{\text{CMB}}.$$

この推計においては, CMB による EC, POC 濃度の説明率が不十分なことが, pMC (EC) や pMC (POC) の大きな誤差要因となる。この説明率を調べたところ, EC に対して33%, POC に対して24%と見積もられた。また, CMB による pMC (EC) や pMC (POC) 推計の絶対的な誤差評価は困難であるが, ここでは CMB と CMAQ のずれを pMC (EC+POC) の誤差の一つの目安と考えた。これらの推計より, pMC (EC+POC) の誤差範囲は, 最大で0.46程度と見積もられた。式 (6) を基に推計された Dead-SOC と Modern-SOC を図42に示した。その結果, [Dead-SOC] は昼夜で大きな変動を示し, 夜間にはその濃度が大きく減少するのに対して, [Modern-SOC] は昼夜問わずにある程度の濃度で存在していると計算されている。上記のとおり, この推計には CMB による pMC (EC) や pMC (POC) の推計の誤差が含まれるが, ハッチ部で示したように, 誤差を考慮しても [Dead-SOC] は明確な日変動を示すと考えられる。

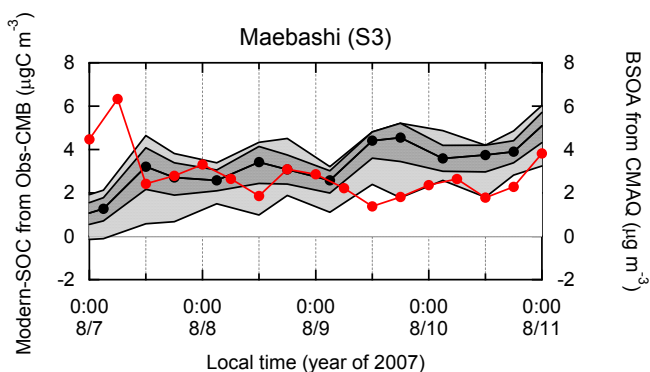
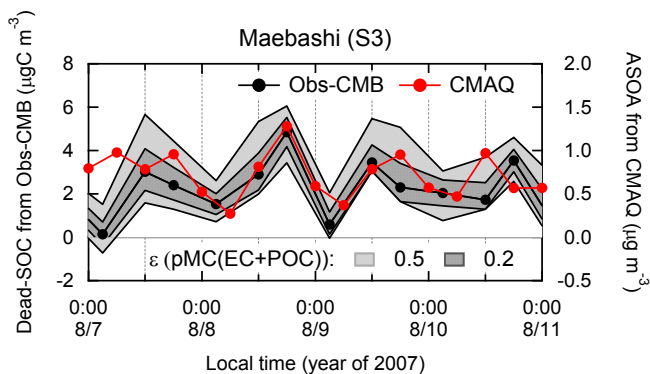


図42 前橋における CMB (CMAQ (M1)) で計算された Dead-SOC (ASOA) と Modern-SOC (BSOA) の経時変動。ハッチは pMC (EC+POC) の不確定性を 0.2 (0.5) とした場合の計算結果の変動範囲。

SOC の日中増大量に対する起源別寄与と評価を調べるために, OX (=O<sub>3</sub> + NO<sub>2</sub>) を光化学生成の指標として回帰分析を行った。その結果, [SOC]/[OX] は 51 µg m<sup>-3</sup>/ppbv (r=0.75, p<0.01), [dead-SOC]/[OX] は 32 µg m<sup>-3</sup>/ppbv (r=0.69, p=0.01), Δ[modern-SOC]/Δ[OX] 19 µg m<sup>-3</sup>/ppbv (r=0.62, p=0.03) と計算された。このことから [dead-SOC] が日中に増大する SOC の63%を占めると考えられる。

なお, SOA/SOC 比 (=1.6), および pMC (ASOA) と pMC (BSOA) が一定と仮定すると, [dead-SOC] 濃度と [ASOA] 濃度, および [modern-SOC] 濃度と [BSOA] 濃度を関連づけることが可能となる。2.1.5節に示した pMC (ASOA) (=9.5%) と pMC (BSOA) (=113%) を

仮定すると、 $[\text{dead-SOC}]/[\text{SOC}]$ 比と $[\text{ASOA}]/[\text{SOA}]$ 比や13%以内で一致すると計算された。図42に、CMAQによって計算されたASOA濃度とBSOA濃度も示した。CMAQでは、ASOA濃度は昼間に濃度増大し夜間に減少する明確な日変動を示し、それに対してBSOA濃度は昼夜ともに同程度の濃度で存在すると計算された。このように、CMAQの計算結果は、上記で推計されたdead-SOC、modern-SOCと似た傾向を示していた。ただ、CMAQは、ASOAを6～7倍、BSOAを1.5～2倍程度過小評価していた。この過小評価要因について、以下で考察する。

ASOAに対する前駆VOCの寄与率は、芳香族が56%、高分子数アルカンが41%と計算された。ここで、さいたま（埼玉県衛生研究所、図37参照）において測定されたVOC濃度とCMAQ計算結果とを比較し、モデルで計算されるVOC濃度を検証した。ここでは、ガスクロマトグラフィー/水素炎イオン化検出器（GC-FID）<sup>2)</sup>によって1時間の時間分解能でベンゼン、トルエン、キシレンなど14成分のNMHCが測定された。その結果、CTM計算値と観測値の比はAROH（トルエン、ベンゼン、エチルベンゼンなどの集合）に対して0.84で、AROL（m-キシレン、p-キシレン、o-キシレンなどの集合）に対して1.78であった。この結果を東京から前橋への輸送過程におけるVOC濃度の再現性の目安と考えると、CMAQによるDead-SOCの過小評価の要因は、前駆VOCの再現性の問題では説明できない。従来、芳香族はSOA生成に重要な成分と考えられてきたが、今回の計算結果は芳香族以外からのDead-SOC生成過程の寄与が重要である事を示唆する。近年、ASOAの生成過程として、液相反応<sup>3,4)</sup>や、同定されていないNMHC、SVOCなどからのSOA生成<sup>5)</sup>が重要な寄与を持つと示唆されている。いずれの過程もOHによるVOCの酸化反応が主要な初期反応であると考えられているため、これらの過程から生成されるASOAは今回推計されたDead-SOCと類似した濃度変動を示すと予想される。今後、ASOA濃度を正確に再現する上で、これらの過程を導入することが必要であると考えられる。

また、CMAQにおいて、BSOAの前駆物質としてモノテルペン（ $\text{C}_{10}\text{H}_{16}$ ）のみが考慮されている。モノテルペンの酸化体としては関東地方（前橋）においてOHが61%（26%）、 $\text{O}_3$ が20%（13%）、 $\text{NO}_3$ が19%（60%）と、夜間にもBSOA生成が起こると計算される。BSOAの日

変動が小さいことは、このことを反映していると考えられる。また、既に示した通りBSOAはASOAよりもCMAQと観測の乖離が小さい。ただ、その生成過程には不確定性が大きく、BVOCの排出量、大気中でのBVOCの酸化体との反応速度、BVOCとBSOAの分配係数などの、詳細な評価が必要であると言える。現在のCMAQでは、イソプレン（ $\text{C}_5\text{H}_8$ ）やセスキテルペン（ $\text{C}_{15}\text{H}_{24}$ ）からのBSOA生成は考慮されていない点にも注意がいる。近年、BSOA生成に対するこれらの成分の寄与は従来考えられていたよりも大きいことが示唆されており<sup>6,7)</sup>、これらの影響評価が今後必要である。

ASOAとBSOAの空間分布を図43に示した。ここでは、前橋におけるASOAとBSOAの観測・モデル比が関東全域に当てはまると仮定して、濃度を補正した。ASOAは都市の下流で日中に濃度が増大して、BSOAは森林域を中心に関東全域で昼夜を問わずに濃度が増大していると計算される。補正後は、関東全域の平均でASOA/SOA比は0.26と計算され、補正前（0.09）よりも3倍程度大きい。この結果は、従来考えられていたよりもASOAが大きな寄与を持つことを示唆しており、ASOAの過小評価要因の解明と、その正確なモデル化が、都市近傍の $\text{PM}_{2.5}$ の動態把握において重要であることを示している。また、BSOAは森林のみでなく関東全域に大きな寄与を持って分布していると考えられるもののその生成過程には不確定性が大きいことから、今後BSOAの生成過程の詳細な検証が必要である。

#### （４）まとめ

CMBとCMAQの比較の結果、ECの発生源としては、CMB、CMAQともに自動車排気が主要であると計算された（CMBで72%、CMAQで68%）。また、POCの発生源は自動車排気（CMBで51%、CMAQで50%）に加えて野焼きが大きな寄与を持つと計算された（CMBで36%、CMAQで44%）。CMBとCMAQが整合的な値を示したことから、前橋付近でのEC、POCの排出インベントリは概ね妥当であることが示された。今回のようなCMBとCMAQの比較は排出インベントリの検証にとって有用な手法であり、今後、様々な地点や他の季節においても同様の比較を実施して、排出インベントリの精度検証を進める必要がある。

また、 $^{14}\text{C}$ 観測とCMBによるSOAの起源推計結果をCTM計算結果と比較することにより、現在のCTMの

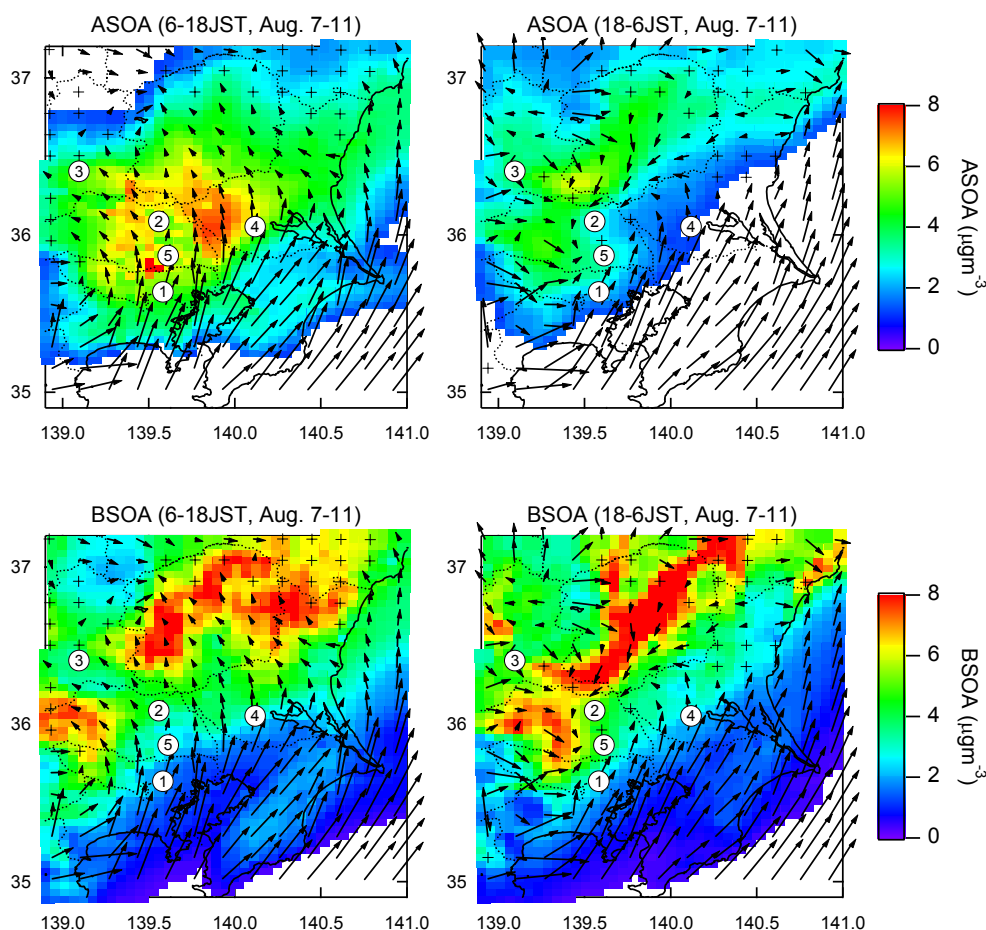


図43 2007年8月7～10日の期間平均の、CMAQ(M1)で計算された第一層におけるASOAとBSOA濃度の水平分布。濃度の絶対値の補正方法は本文を参照のこと

SOA に対する再現性を人為起源 (ASOA), 生物起源 (BSOA) 別に評価できた。その結果, 現在の CTM は比較的 BSOA 濃度をよく再現するが, ASOA を 6～7 倍と大きく過小評価すること, 関東平野における SOA 中の ASOA の割合は 26% と推計され, 従来考えられていたよりも ASOA が重要な寄与を持つことが示唆された。今回得られた人為起源・生物起源別 SOA の推計結果は, SOA の発生源対策を立案する上で重要な科学的基礎となる。今後は, ASOA の過小評価要因解明, BSOA の生成過程の検証を進めるとともに, 今回の手法を時空間方向に拡大して基礎データを収集し, より正確な SOA の動態把握に努める必要がある。

#### 参考文献

- 1) Volkamer R., Jimenez J.L., SanMartini F., Dzepina K., Zhang Q., Salcedo D., Molina L.T., Worsnop D.R., Molina M.J. (2006) *Geophys. Res. Lett.*, 33, L17811, doi:10.1029/2006GL026899.
- 2) Shirai T., Yokouchi Y., Blake D.R., Kita K., Izumi K., Koike M., Komazaki Y., Miyazaki Y., Fukuda M., Kondo Y. (2007) *J. Geophys. Res.*, 112, D24305, doi:10.1029/2006JD008163.
- 3) Volkamer R., Martini F.S., Molina L.T., Salcedo D., Jimenez J.L., Molina M.J. (2007) *Geophys. Res. Lett.*, 34, L19807, doi:10.1029/2007GL030752.
- 4) Johnson D., Utembe S.R., Jenkin M.E., Derwent R.G., Hayman G.D., Alfarra M.R., Coe H., McFiggans G. (2006) *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 403–418.
- 5) Dzepina K., Volkamer R.M., Madronich S., Tulet P., Ulbrich I.M., Zhang Q., Cappa C.D., Ziemann P.J., Jimenez J.L. (2009) *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5681-5709.
- 6) Sakulyanontvittaya T., Guenther A., Helmig D. et al. (2008) *Environ. Sci. Technol.*, 42, 8784-8790.
- 7) Kleindienst T.E., Jaoui M., Lewandowski M., Offenberg J.H., Lewis C.W., Bhawe P.V., Edney E.O. (2007) *Atmos. Environ.*, 41, 8288–8300.

## 2.2.3 曝露評価のための沿道拡散モデルの開発

### (1) 概要

沿道拡散モデルは、幹線道路から200～300m程度以内の領域における道路交通起因の大気汚染物質の濃度推計を効率的に行うために開発された。沿道拡散モデルの主な特徴は以下の2点である。

- ① プルームパフモデルなどの従来の解析解型モデルでは不可能であった複雑街区の個々の建物影響による濃度分布を推計できる。
- ② ①の目的のために開発されてきた流体力学型モデルと同程度の推計精度を、流体力学型モデルよりもはるかに少ない計算コストで実現できる。

特徴①は、日本のように道路沿道の街区構造が複雑な場合に不可欠の要素である。また、特徴②は、長期間の曝露濃度を推計する場合のように、多くの気象・交通条件における推計計算をしなければならない場合に有効な要素である。

### (2) 基本設計

図44に設計の概略を示した。主な開発要素は、①「前処理」の「排出量分布」計算、②「前処理」の「計算格子」の作成、③「メインルーチン」の「風速場」計算、④「メインルーチン」の「濃度計算」、である。

- ① 排出量分布の計算においては、(財)日本気象協会が開発した手法<sup>1)</sup>に基づき、信号交差点周辺のアイドリング・加速に伴う排出量増加を考慮する。
- ② 計算格子作成においては、地理情報(建物形状、標高分布、排出源分布)を基に等間隔格子を設定する。樹木や密集街区は、計算負荷軽減のために透過率を持ったひとかたまりの固形構造物として表現する。
- ③ 風速場の計算においては、Kaplan-Dinar型的手法<sup>2)</sup>を適用し、風洞実験などに基づく風速場の推定値を初期条件として、質量保存場を逐次計算する。この手法

では、運動方程式を解かないため、計算格子を大きく設定することができ、計算コストを低く抑えることができる。

- ④ 濃度場の計算では、渦拡散型の拡散方程式を解くが、渦拡散係数にLagrange的な性質を付与することにより、排出源近傍および長時間平均における精度を高めている。

以下に、①～④の要素について簡単に述べる。

#### ① 排出量分布

典型的な幹線一般道路の信号サイクル・信号間距離・車線交通量などに対して、追従型交通シミュレーションを行い、NO<sub>x</sub>排出量の車載計測結果を適用すると、信号周辺の排出量分布は図45のようになる。信号停止線手前(x<0)では、アイドリングおよび待ち行列からの加速によって排出量が大きくなっている。ほとんどの車が加速しながら通過するx=0にピークがあり、信号後(x>0)の排出量は比較的少ない。

#### ② 計算格子

図46に標高差が大きい場合の約600×600m区画における計算格子を示す。格子サイズは3m立方と比較的大

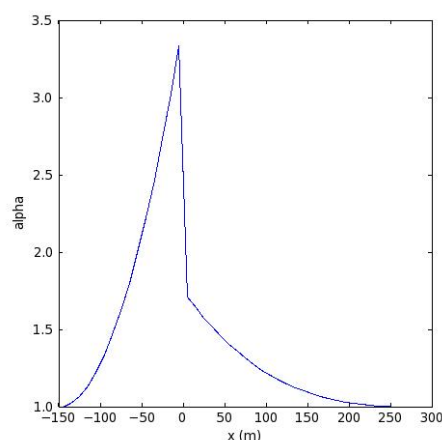


図45 信号(x=0)付近の排出量分布。信号の影響を受けない領域(x<-150, 300<x)の排出量を1としたときの、信号付近の排出量比alphaを図示してある

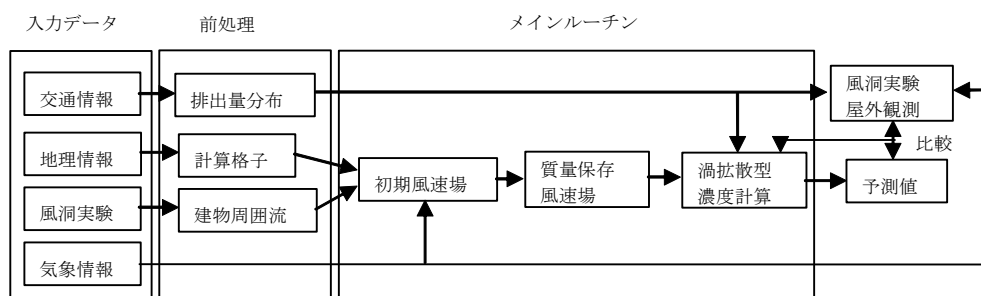


図44 沿道モデルの概略



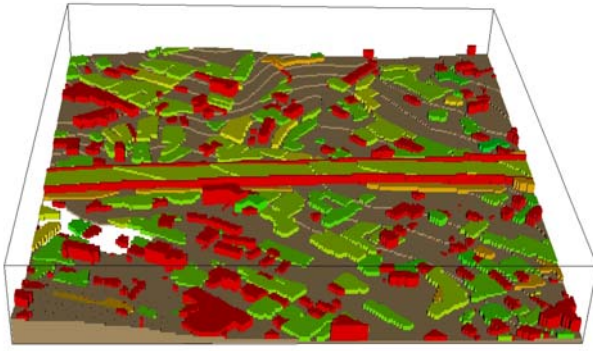


図46 計算格子の例。黄土色は地面を表す。  
建物は、緑が小家屋群，赤が大型建物を表す

きいが、主要な構造物は十分に分解されていることがわかる。実在街区の計算ではこの格子サイズを適用する。

### ③ 風速場

各格子点と構造物との関係によって計算領域を様々なゾーンに分類し、ゾーンごとに表9に示した方法で初期風速場を与えた。図47に単純な建物配置における風速計

算結果を示す。初期値をそのように与えたので当然ではあるが、風洞実験などで観察されるものと同様の風速場になっていることがわかる。

### ④ 濃度場

建物周囲のゾーンにおいては経験的に定めた係数に比例する拡散係数を与え、その他のゾーンでは、水平方向には風速スペクトルから拡散理論によって導出される拡散係数を、鉛直方向には混合長理論に基づく拡散係数を与えた。図48に一樣街区を模した風洞実験との比較を示す。計算結果は、風洞実験結果とよく合っている。図49に実在街区を模した風洞実験との比較を示す。一致性は決して良いとはいえないが、大型建物の影響などは正しく反映している。一方で、従来型のプルームパフモデルは個別の建物影響を考慮できないため、推計濃度は道路からの距離のみで決まってしまう、風洞実験結果とは著しく異なる推計となる。

表9 構造物形状別ゾーンにおける初期風速場の設定方法

形状	対応領域	風速場の設定方法
ストリートキャニオン		Hotchkiss-Harlow の式 <sup>3)</sup> 、または、上原ら <sup>4)</sup> の風洞実験結果を適用
地上建物		Kaplan & Dinar <sup>2)</sup> , Leuzzi & Monti <sup>5)</sup> と同様の速度分布を与える
高架構造物		Lyn et al <sup>6)</sup> の風洞実験結果を適用
空地		Kaimal & Finnigan <sup>7)</sup> の内部境界層 (IBL) の発達式を適用
高層建物		Taylor & Salmon <sup>8)</sup> の far-wake の式を適用
ビル風		高層ビルが貫く水平断面内でポテンシャル流として流れ場を数値的に解く
都市キャノピー		建物平均高以下では、Coceal-Belcher <sup>9)</sup> の風速分布を適用
その他		Macdonald らの手法 <sup>10)</sup> で計算した地表面粗度パラメータに応じた対数則を適用

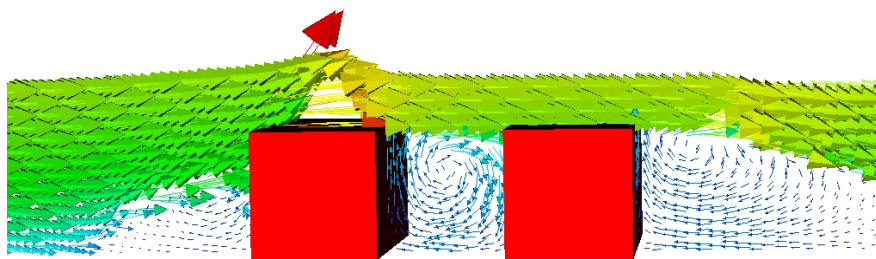


図47 2つの隣接した建物周辺の速度場。風は左から右へ吹いている

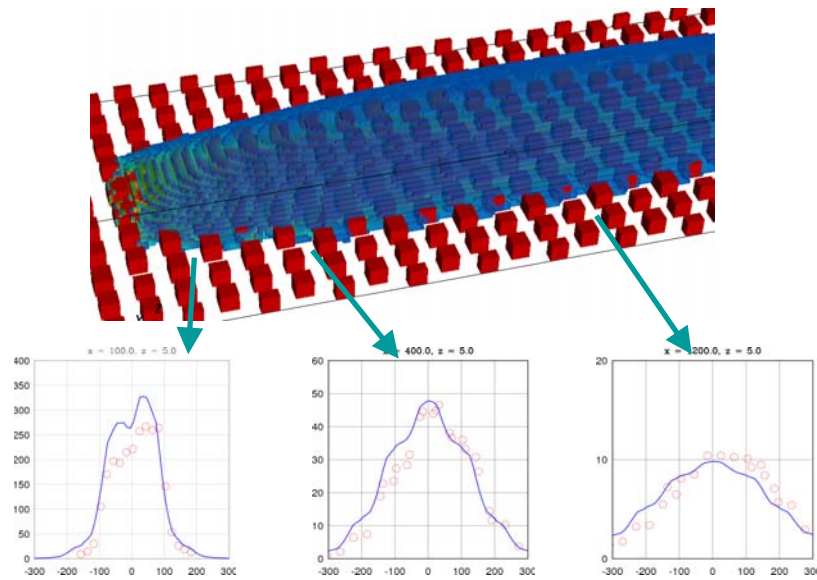


図48 一様街区を模した風洞実験とモデル計算との比較。上図の左端付近に点状の排出源があり、左から右へ向かう風によって移流拡散される。赤丸が風洞実験値、青実線がモデル計算値

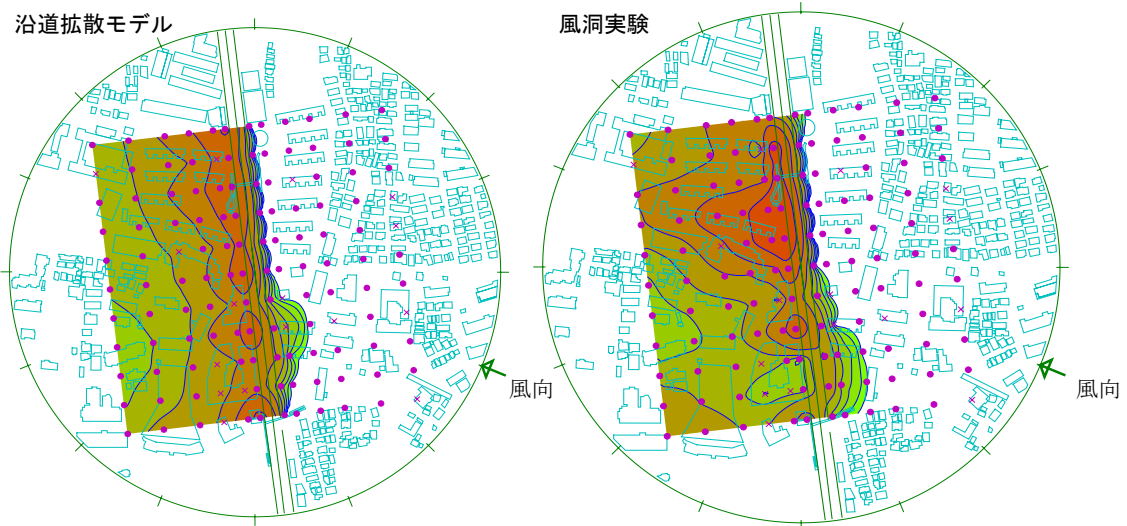


図49 実在街区における風洞実験と沿道拡散モデルとの比較。地上1.8mの濃度分布

#### 参考文献

- 1) 独立行政法人環境再生保全機構, 平成16年度環境改善に関する調査研究成果集, 23-50.
- 2) Kaplan H., Dinar N. (1996) A Lagrangian dispersion model for calculating concentration distribution within a built-up domain, Atmos. Environ., Vol.30, 4197- 4207.
- 3) Hotchkiss R.S., Harlow F.H. (1973) Air pollution transport in street canyons, Technical report, EPA-R4-73-029.
- 4) 上原清, 村上周三, 若松伸司, 池澤正 (2001) 高さの異なるストリートキャニオン内の流れと拡散に関する風洞実験, 日本建築学会計画系論文集, 第541号, 37-42.
- 5) Leuzzi G., Monti P. (1998) Particle trajectory simulation of dispersion around a building, Atmos. Environ., Vol.32, 203-214.
- 6) Lyn D.A., Einav E., Rodi W., Park J.-H. (1995) A laser-Doppler velocimetry study of ensemble-averaged characteristics of the turbulent near wake of a square cylinder, J. Fluid Mech., Vol.304, 285-319.
- 7) Kaimal J.C., Finnigan J.J. (1994) Atmospheric Boundary Layer Flows, Oxford University Press.



- 8) Taylor P.A., Salmon J.R.( 1993) A model for the correction of surface wind data for sheltering by upwind obstacles, J. Appl. Meteorol., Vol.32, 1683-1694.
- 9) Coceal O., Belcher S.E. (2004) A canopy model of mean winds through urban areas, Q.J.R. Meteorol. Soc., Vol.130, 1349-1372.
- 10) Macdonald R.W., Griffiths R.F., Hall D.J. (1998) An improved method for the estimation of surface roughness of obstacle arrays, Atmos. Environ., Vol.32, 1857-1864.

## 2.3 都市環境における大気汚染高レベル曝露と健康影響予測

### 2.3.1 都市域およびその周辺地域における微小粒子状物質への曝露と死亡リスクとの関連性解析

#### (1) はじめに

粒子状物質曝露が健康に及ぼす影響に関しては、曝露から健康事象の発生までの期間が数時間～数日間である短期曝露影響と、1年以上を要する長期曝露影響とに大きく分けられる。本研究では、微小粒子状物質が死亡に及ぼす短期曝露影響について、大気モデルに基づいて推計した各地域の日平均成分濃度と日死亡との関連性について検討した。

粒子状物質の曝露と、死亡、様々な疾患の発症・増悪、症状や機能との関連を示す研究が世界各国から数多く報告されている。粒子状物質の曝露から死亡へ至る詳細な機序はまだ明らかにはなっていないが、粒子状物質濃度の上昇と呼吸器疾患や循環器疾患の発症・増悪との関連を示す研究結果や生理機能指標との関連を検討した研究から、吸入された粒子による呼吸器系の炎症・障害、自律神経系への影響、血管内皮への障害等が関与するのではないかと考えられている<sup>7)</sup>。

従来の検討では、粒子状物質への曝露による健康影響の有無や粒子状物質の単位質量濃度あたりの健康リスクの大きさを推定することが研究の焦点であったが、最近では、その健康リスクの不均一性 (heterogeneity) に対する関心が高まっている。粒子状物質の健康影響の現れ方は一様ではなく、季節、地域により異なることが知られている<sup>2-4)</sup>。たとえば、アメリカ合衆国100都市のデータを用いて死亡とその前日の粒子状物質濃度との関連について季節ごとに解析したところ、その健康リスク推定

値は夏に最も大きく、他の季節の2倍以上であった。一方、この季節変動は地域によっても異なり、北東部では季節による影響の変動が大きく、南部では季節性変動はほとんど見られなかった<sup>2)</sup>。この季節性変動の要因の一つとして、微小粒子生成に及ぼす気象条件が季節により異なり、粒子の構成成分が変動することが挙げられている。冬季には一次生成微小粒子が主要構成成分となるが、夏季には二次生成微小粒子が主要となる。一次生成微小粒子と二次生成微小粒子の健康に対する影響が異なれば、冬季と夏季における微小粒子の影響に違いが生じる可能性があることが議論されている。我が国におけるこのような検討を行うための解析はこれまで行われていなかった。

また、地域ごとの単位質量濃度あたりの健康リスクの推定値にも大きなばらつきが見られる<sup>3)</sup>。この地域間の不均一性は、同一の統計モデルを用いた場合にも消失しない。複数地域にわたる検討では、同一の統計モデルを用いて各地域における健康影響を推定した後に、メタ・アナリシスの手法を用いて、それらの推定値を統合して要約値として健康影響の大きさを示すことが一般的である。この統合された結果では、多くの検討で粒子状物質と死亡や疾患発症 (循環器疾患、呼吸器疾患) との間に正の関連を認める。しかし、地域ごとの推定値を見ると、その健康影響の大きさには地域により差があり、場合によってはその影響の方向が異なることもある<sup>6)</sup>。日本における検討においてもその地域差が認められている。図50は全国20地域について、前日のPM<sub>2.5</sub>濃度が全死亡リスクに与える影響の推定値とその95%信頼区間を示したものである。地域により、影響の方向や大きさにばらつきが見られる。これらの粒子状物質の健康影響の地域差には複数の要因が考えられる。地域間における社会経済因子の違いやその地域人口に含まれる高感受性集団の割合の違いが結果に反映されるかもしれない。粒子状物質の影響を受けやすい特性 (高齢者、低い社会経済因子、糖尿病などの基礎疾患等) をもつ集団がその地域に多く含まれているのであれば、地域における健康影響の推定値は大きくなると予測される。

地域による粒子状物質の化学成分の違いが健康影響の違いに寄与している可能性があり、近年、この粒子状物質の成分別の健康影響について関心が高まっている<sup>7,8)</sup>。粒子状物質は、様々な種類、性状、大きさをもつ粒子の総称であり、地域により粒子の粒径分布<sup>9)</sup>や成分組成<sup>3)</sup>

が異なる。大気中の粒子は吸入された後、微小粒子状物質（PM<sub>2.5</sub>）は、下気道、肺胞領域まで到達し、より大きな影響をもつことが示唆されている<sup>10, 11)</sup>。一方、粒子状物質の成分のうち、金属や有機エアロゾルが生体に酸化ストレスをもたらすことが実験的検討により示されており<sup>12, 13)</sup>、生体に対して有害な成分を多く含む粒子状物質の健康影響はより深刻となる可能性がある。

自然界由来の粒子を多く含む粗大粒子に比較して、PM<sub>2.5</sub>は自動車からの排ガスやものの燃焼から生じる人為由来の粒子が多く含まれている。季節による粒子状物質の成分構成が異なることも知られている<sup>3)</sup>。そのため、

各成分の健康影響を比較し、粒子状物質の健康影響の不均一性と成分別濃度との関連性に基づいて、より影響の大きい成分を同定することは健康影響メカニズムを理解するために必要である。また、それらの結果を粒子状物質の発生源別寄与率推定と組み合わせることにより、発生源による粒子状物質の健康影響を比較することが可能となり、今後の発生源対策に有用である。一方、現在我が国では粒子状物質の成分濃度に関する継続的な測定は非常に限られているため、全国20地域について、モデルを用いて推定したPM<sub>2.5</sub>主要成分濃度を用いて、その経日変動と65歳以上の人の日死亡率変化の関係を調べた。

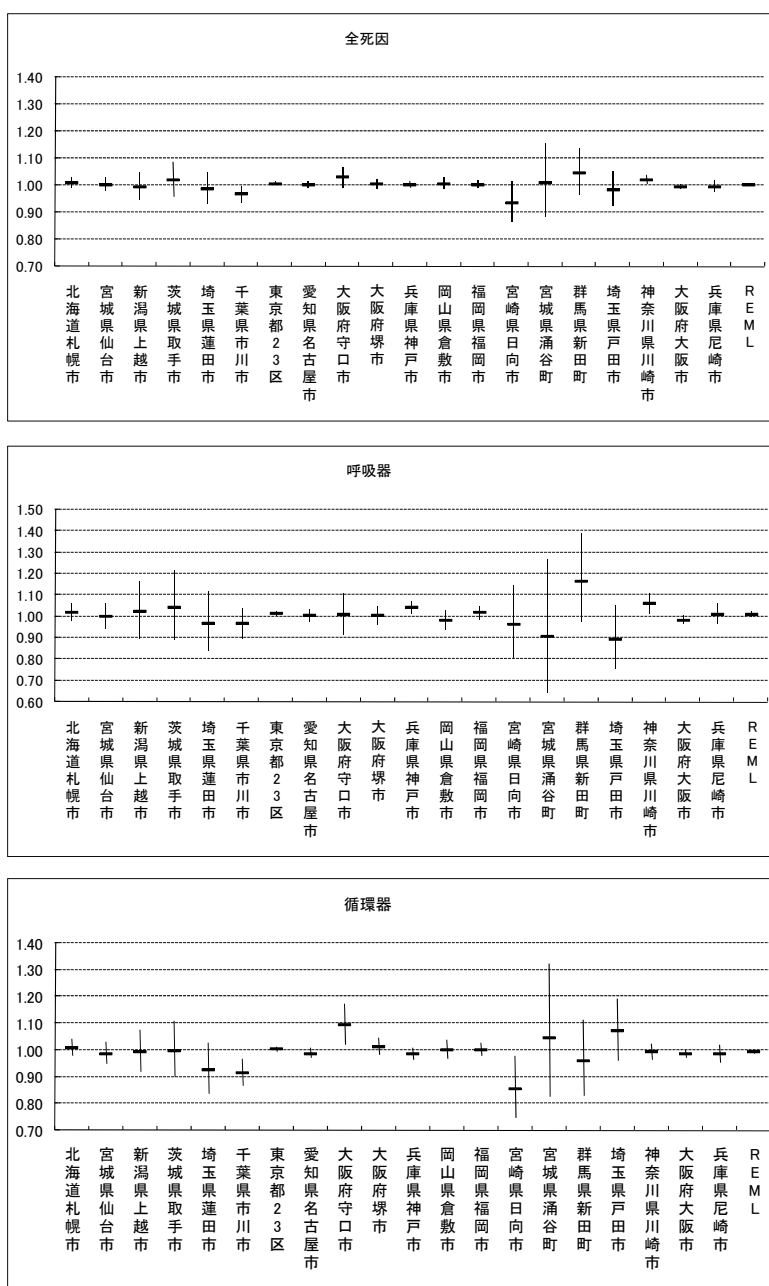


図50 前日のPM<sub>2.5</sub>濃度10 μg/m<sup>3</sup>上昇あたりの全死亡リスクの上昇率とその95%信頼区間 (REMLは統合値) (Ref.[9]より)

## (2) 方法

### (ア) 対象地域

環境省が PM<sub>2.5</sub>濃度の分布や季節変動等を検討するために2001年以降、測定を行っている地点のうち、一般局に相当する20地点の市町村（東京都は23区）を対象とした。

### (イ) 環境データ

PM<sub>2.5</sub>質量濃度は、各調査地点において、TEOM方式で測定された値を用いた。気象データは、対象地域に隣接する地域の気象観測所のデータを得た。これらの0～23時までの1時間値から算出した日平均値を用いて解析した。各調査地点のPM<sub>2.5</sub>の主要成分である元素状炭素(EC)、有機炭素(OC)、硝酸塩(NO<sub>3</sub>-)、硫酸塩(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)の日平均濃度は以下に示すモデルを用いて推定した。

### (ウ) 濃度推定法

PM<sub>2.5</sub>の成分濃度は、気象モデルと化学輸送モデルを結合した、東アジアスケールのモデリングシステム<sup>14)</sup>を使用して計算した。化学輸送モデルには、米国環境保護庁(EPA)のCommunity Multiscale Air Quality model

(CMAQ) v.4.4<sup>15)</sup>を用いた。モデル領域は、インドシナ半島を含む東アジア領域で、水平80km格子で78×68格子点、鉛直方向は19層(上空22kmまで;第一層厚さ150m)である。気象データには、米国国立環境予報センター(NCEP)による経緯度1度の全球客観解析データを基に、地域気象モデル(RAMS) v.4.4<sup>16)</sup>によって計算した結果を使用した。アジア域のNO<sub>x</sub>やNMVOC等の人為起源排出量には、アジア域排出インベントリ REAS<sup>17)</sup>を利用した。

### (エ) 死亡データ

各地域における死亡データは、2002～2004年における65歳以上の外因死を除くすべての死亡データを厚生労働省から得た。データには性別、年齢、死亡日時、死亡場所、死亡原因が含まれるが、本研究ではそのデータより、全死亡、循環器疾患死亡、呼吸器疾患死亡の日死亡者数を算出して解析に用いた(表10)。

### (オ) 統計解析手法

各地域におけるPM<sub>2.5</sub>濃度および各成分が死亡リスクへ与える影響を推定するために、ケースクロスオーバー

表10 地域別日死亡数(65歳以上)(Ref.[9]より)

地域	全死因			呼吸器系			循環器系			65歳以上人口*
	平均	最小	最大	平均	最小	最大	平均	最小	最大	
北海道札幌市	23.7	9	40	3.9	0	13	7.9	1	18	262,413
宮城県仙台市	11.7	2	25	1.8	0	8	4.0	0	11	132,729
新潟県上越市	2.4	0	9	0.3	0	4	1.0	0	5	26,134
茨城県取手市	1.1	0	6	0.2	0	3	0.4	0	3	10,702
埼玉県蓮田市	0.9	0	5	0.2	0	2	0.3	0	3	8,728
千葉縣市川市	4.9	0	14	1.0	0	6	1.7	0	7	51,342
東京都23区	126.9	83	203	20.9	5	48	43.0	20	79	1,326,618
愛知県名古屋市	32.7	16	60	5.3	0	16	11.4	1	26	336,026
大阪府守口市	2.3	0	9	0.4	0	3	0.7	0	5	23,072
大阪府堺市	11.3	2	24	2.1	0	9	3.6	0	11	116,591
兵庫県神戸市	24.0	9	44	4.1	0	13	7.2	0	20	248,451
岡山県倉敷市	6.9	0	20	1.4	0	6	2.3	0	10	69,834
福岡県福岡市	16.6	6	34	3.2	0	11	4.9	0	15	177,035
宮崎県日向市	1.0	0	6	0.2	0	4	0.3	0	4	10,680
宮城県涌谷町	0.5	0	3	0.1	0	2	0.2	0	2	4,468
群馬県太田市	2.3	0	8	0.5	0	4	0.9	0	5	20,973
埼玉県戸田市	1.0	0	7	0.2	0	3	0.3	0	4	10,148
神奈川県川崎市	14.3	3	27	2.2	0	10	4.8	0	15	153,651
大阪府大阪市	45.0	24	80	7.9	0	22	14.0	3	33	433,811
兵庫県尼崎市	7.6	1	20	1.2	0	6	2.5	0	12	74,596

デザインを用いた。ケースクロスオーバーデザインは、一過性の曝露が急性の健康事象（たとえば、死亡や疾患の発症）に及ぼす影響を評価するために用いられる統計手法である<sup>18)</sup>。このデザインでは、各個人について、健康事象の起こった直前の期間（ケース期間）と、それ以外の期間（コントロール期間）の曝露の分布を比較する。個人内の比較であるため、短時間に変動しない個人特性（性別・年齢・生活習慣など）による交絡の影響は自動的に補正されると考えられる。コントロール期間の選択にはいくつか方法があるが、本研究では、死亡日をケース期間とし、同一月内の死亡日と同じ曜日をコントロール期間とした。各地域について、条件付きロジスティック回帰にて気温・湿度による交絡因子の調整を行い、各成分濃度の四分位偏差（IQR）あたりの過剰日死亡率を推定した。さらに、各地域の推定値をメタ・アナリシスの手法を用いて統合し、20地域全体の推定値とした。

### (3) 結果および考察

図51は、各成分の当日から前々日までの平均濃度がIQR 上昇した場合の過剰日死亡率を地域別に示したものである。地域により、影響の方向（正・負の関連）や大きさに違いが見られた。

20地域全体の結果を統合したところ（表11）、死亡当日から前々日までの3日間の平均成分濃度 IQR 上昇あたりの過剰日死亡（全死亡）は成分により異なり、0.1～0.5%であった。統計学的に有意なものは、硝酸塩のみであり、IQR 上昇あたりの過剰日死亡率は0.5%（95%信頼区間0.1, 1.0%）であった。死亡原因別の検討では、呼吸器疾患による死亡と各成分との関連も全般に正の関連が見られ IQR 上昇あたりの推定値は0.6～1.8%であったが、硫酸塩濃度との関連が最も大きかった（1.8%、95%信頼区間 0.1, 3.6%）。一方、循環器疾患による死亡とは、有意な関連は見られなかったものの、成分によっては負の関連を示すものもあった（IQR 上昇あたりの推定値は、-0.5%～0.4%）。

毒性学における実験的検討から、粒子状物質の主要組成である炭素成分は、生体の酸化ストレス、心拍変動、気道上皮細胞の脂質過酸化に関連していることが観察されている<sup>19)</sup>。疫学研究では、EC と心血管疾患による死亡との関連を認める北米の調査結果がある<sup>20)</sup>。本研究では、有意な関連は見られなかったものの、EC, OC とも呼吸器疾患死亡とは正の関連が認められた。一方、循環

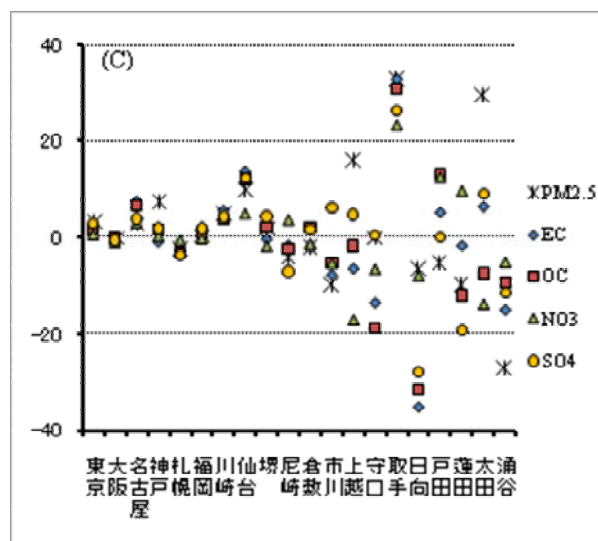
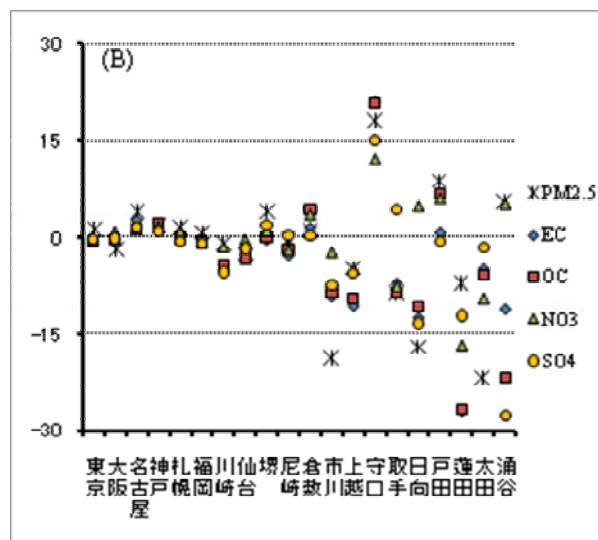
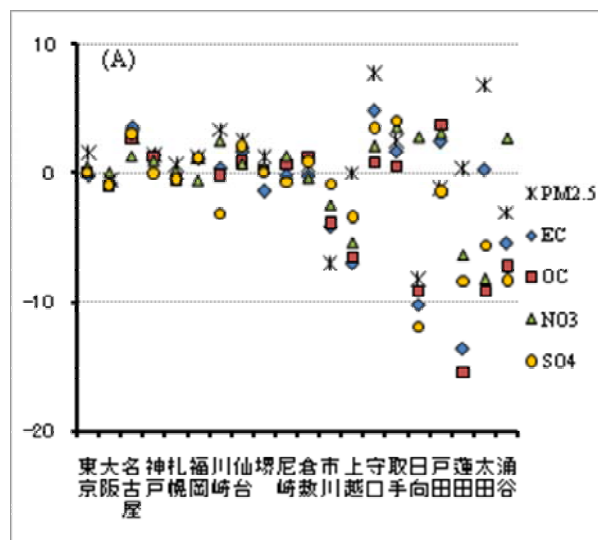


図51 各成分濃度（当日から前々日までの平均）IQR 上昇あたりの過剰日死亡率  
(A) 全死亡 (B) 循環器疾患死亡 (C) 呼吸器疾患死亡

表11 各成分の IQR 昇に対する死亡リスクの上昇率 (%)

成分(IQR*)	各成分の IQR 昇に対する死亡リスクの上昇率 (%)		
	全死亡	循環器疾患死亡	呼吸器疾患死亡
EC (0.43 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	0.3 ( -0.7 , 1.2 )	-0.5 ( -1.8 , 0.9 )	1.3 ( -0.6 , 3.3 )
OC (0.88 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	0.2 ( -0.6 , 0.9 )	-0.5 ( -1.8 , 0.8 )	1.7 ( 0.0 , 3.5 )
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (2.44 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	0.5 ( 0.1 , 1.0 )	0.4 ( -0.5 , 1.2 )	0.6 ( -0.6 , 1.7 )
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (7.88 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	0.1 ( -0.8 , 1.0 )	-0.3 ( -1.6 , 0.9 )	1.8 ( 0.1 , 3.6 )

\*20地域の各成分濃度 IQR の中央値 (95%信頼区間)

器疾患死亡とはむしろ、その関連は負であり、成分以外の他の因子（食生活、ライフスタイル等）による影響の修飾を受けている可能性がある。硝酸塩の影響は、死亡原因に関わらず、ほぼ一定であった。一方、硫酸塩の影響は呼吸器疾患による死亡で明らかであり、成分により、生体への影響のある部位や大きさに差があることが示唆された。

本検討では、PM<sub>2.5</sub>の各成分が死亡に与える影響について、モデルによる推定値を用いて解析した。人口規模の小さい都市では、その健康リスクのばらつきが大きいなど、人口規模による検出力や、様々な補正できていない潜在的な地域要因による影響など種々の問題が含まれている可能性がある。また、本研究では、個々の対象者の健康影響に関わる属性については補正されていないなどの問題もある。

本研究には様々な制約があるものの、質量濃度に基づく日死亡リスクの地域差と成分濃度による日死亡リスクの地域差の違いを示唆する結果となった。このことは特定の成分が健康影響により大きな寄与をもたらす可能性を示していると考えられる。モデルによる推計には不確実性が含まれるものの、多地域において成分濃度の連続測定値を得ることが困難である現状では、モデル推計値に基づく今回の試みは有用な手段と考えられる。

今後は、実測データを用いた同様の解析結果との相互検証や発生源寄与率の日間変動との関連性に関する検討、季節別の検討などの進める必要がある。

#### 参考文献

1) 環境省 (2008) 微小粒子状物質健康影響評価検討会報告書.  
 2) Peng R.D., Dominici F., Pastor-Barriuso R., Zeger S.L., Samet J.M. (2005) Seasonal analyses of air pollution and mortality in 100 US cities, *Am. J. Epidemiol.*, 161(6), 585-594.

3) Bell M.L., Dominici F., Ebisu K., Zeger S.L., Samet J.M. (2007) Spatial and temporal variation in PM(2.5) chemical composition in the United States for health effects studies, *Environ. Health Perspect.*, 115(7), 989-995.  
 4) Franklin M., Koutrakis P., Schwartz P. (2008) The role of particle composition on the association between PM<sub>2.5</sub> and mortality, *Epidemiology*, 19(5), 680-689.  
 5) Samet J.M., Dominici F., Curriero F.C., Coursac I., Zeger S.L. (2000) Fine particulate air pollution and mortality in 20 U.S. cities, 1987-1994, *N. Engl. J. Med.*, 343(24), 1742-1749  
 6) Franklin M., Zeka A., Schwartz J. (2007) Association between PM<sub>2.5</sub> and all-cause and specific-cause mortality in 27 US communities, *J. Expo. Sci. Environ. Epidemiol.*, 17(3), 279-287.  
 7) Bell M.L., Ebisu K., Peng R.D., Samet J.M., Dominici F. (2009) Hospital admissions and chemical composition of fine particle air pollution, *Am. J. Respir. Crit. Care Med.*, 179(12), 1115-1120.  
 8) Peng R.D., Bell M.L., Geyh A.S., McDermott A., Zeger S.L., Samet J.M. et al. (2009) Emergency admissions for cardiovascular and respiratory diseases and the chemical composition of fine particle air pollution, *Environ. Health Perspect.*, 117(6), 957-963.  
 9) 環境省 (2007) 微小粒子状物質曝露影響調査報告書.  
 10) Cifuentes L.A., Vega J., Kopfer K., Lava L.B. (2000) Effect of the fine fraction of particulate matter versus the coarse mass and other pollutants on daily mortality in Santiago, Chile, *J. Air Waste Manage. Assoc.*, 50(8), 1287-1298.  
 11) Schwartz J., Dockery D.W., Neas L.M. (1996) Is

- daily mortality associated specifically with fine particles?, J. Air Waste Manage. Assoc., 46(10), 927-939.
- 12) Mauderly J.L., Chow J.C. (2008) Health effects of organic aerosols, Inhal. Toxicol., 20(3), 257-288.
- 13) Chen L.C., Lippmann M. (2009) Effects of metals within ambient air particulate matter (PM) on human health, Inhal. Toxicol., 21(1), 1-31.
- 14) Kurokawa J., Ohara T., Uno I., Hayasaki M., Tanimoto H. (2009) Influence of meteorological variability on interannual variations of springtime boundary layer ozone over Japan during 1981-2005, Atmos. Chem. Phys., 9(17), 6287-6304.
- 15) Byun D.W., Ching J.K.S. (1999) Science algorithms of the EPA Models-3 community multi-scale air quality (CMAQ) modeling system. NERL, Research Triangle Park, NC;
- 16) Pielke R.A., Cotton W.R., Walko R.L., Tremback C.J., Lyons W.A., Grasso L.D. et al. (1992) A COMPREHENSIVE METEOROLOGICAL MODELING SYSTEM - RAMS, Meteorol. Atmos. Phys., 49(1-4), 69-91.
- 17) Ohara T., Akimoto H., Kurokawa J., Horii N., Yamaji K., Yan X. et al. (2007) An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020, Atmos. Chem. Phys., 7(16), 4419-4444.
- 18) Maclure M. (1991) The case-crossover design: a method for studying transient effects on the risk of acute events, Am. J. Epidemiol., 133(2), 144-153.
- 19) Schlesinger R.B., Kunzli N., Hidy G.M., Gotschi T., Jerrett M. (2006) The health relevance of ambient particulate matter characteristics: coherence of toxicological and epidemiological inferences, Inhal. Toxicol., 18(2), 95-125.
- 20) Mar T.F., Norris G.A., Koenig J.Q., Larson T.V. (2000) Associations between air pollution and mortality in Phoenix, 1995-1997, Environ. Health Perspect., 108(4), 347-353.

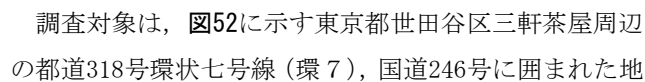
## 2.3.2 都市幹線道路周辺の歩行中における大気汚染物質曝露

### (1) 目的

沿道での自動車排ガスの曝露は、短時間であっても高濃度曝露していると考えられるが、その実態はよくわかっていない。特に近年問題とされる排ガス中のナノ粒子の曝露実態については、調査研究が始まったばかりである。粒子状物質 (PM) の削減を目的に導入された新長期規制適合ディーゼル車は、後処理装置 (酸化触媒, DPF (ディーゼル粒子フィルタ)) により、従来車に比べて排ガス中の NO<sub>x</sub> (窒素酸化物) 中に占める NO<sub>2</sub> (二酸化窒素) の比率が増加する可能性が指摘されている。そこで、大都市の幹線道路沿道などを歩行中の PM や NO<sub>2</sub> 曝露状況を明らかにすることを目的として、沿道および後背地区を歩行しながら、大気中 PM 重量濃度とナノ粒子を含む微小粒子個数濃度, NO/NO<sub>x</sub> 濃度等の時間変動を詳細に測定した。

### (2) 方法

#### (ア) 調査対象地区と経路

調査対象は、に示す東京都世田谷区三軒茶屋周辺の都道318号環状七号線 (環7), 国道246号に囲まれた地区とした。この地区は環境省局地的大気汚染の健康影響に関する疫学調査 (そらプロジェクト\*) の調査対象地域であり、その調査のために沿道など地域内7ヵ所に PM<sub>2.5</sub>濃度などを測定する臨時の大気汚染測定局が設置されている。

調査は、2007年8月1日 (水) ~ 5日 (日) (夏期) および2008年2月6日 (水) ~ 10日 (日) (冬期) の各5日間で、平日3日と週末2日ずつである。測定時間帯は概ね午前9時~12時と午後1時~4時で、約3時間の歩行測定を各測定日に2回行うこととした。

歩行測定コースは、沿道 (左回り内側: コース1, 左回り外側: コース2), 後背巡回 (コース3), 後背+沿道 (コース4) の4つを設定し、移動位置は携帯 GPS で記録した。沿道の2コースは、三軒茶屋のスタート地点から世田谷通り一環7-246号-世田谷通り一環7-246号-スタート地点に戻るという約7kmの行程である。後背巡回コース, 後背+沿道コースもスタート地点を同時に出発し、ほぼ同じ距離を歩行し、出発地に戻るよう設定した。また、いずれのコースも途中で1回上馬公園に立ち寄り、測定器の点検などを行った。246号の



図52 調査対象地区。地図内に歩行4コースと7カ所のPM<sub>2.5</sub>測定地点、直近の上馬自排局を示す。世田谷一般局は図の左端付近の区役所に設置

表12 対象地域内の幹線道路の交通量

対象道路	平日昼間12時間		休日昼間12時間	
	交通量	大型車混入率	交通量	大型車混入率
一般国道246号	40,441	15.5%	36,543	6.7%
高速3号渋谷線	52,184	26.4%	52,980	10.4%
世田谷町田線 (世田谷通り)	17,297	16.8%	14,375	8.0%
環状7号線 (環7)	43,494	20.9%	40,636	7.1%

上には高速3号渋谷線が走っている。これらの幹線道路の交通量を表12に示すが、環7、246号、高速3号とも平日昼間12時間が4～5万台で、大型車混入率も20%前後である。また休日は、大型車混入率は半減するが、交通量はあまり減少しない。

#### (イ) 使用した計測器とデータの整理・分析方法

歩行中のPM重量濃度の計測は、光散乱方式のPMモニタ(PDS-2, 柴田科学(株)製)にPM<sub>2.5</sub>の分級装置を付け、5秒ごとの平均相対濃度として測定した。ナノ粒子を含むPM個数濃度は、携帯型凝縮粒子カウンタ(CPCモデル3007, TSI製, 以後CPCあるいはナノPMカウンタと呼ぶ)を用いて、5秒ごとの平均濃度を測定した。またPM個人サンプラ(ミニポンプMP-Σ3にフィ

ルタホルダATPS-20Hを接続, 柴田科学)による並行測定を行い、1日の測定(約6時間)単位で粒径2.5μmから10μmの粗大粒子(PM<sub>10-2.5</sub>)とPM<sub>2.5</sub>の重量濃度を求めた。捕集フィルタはフッ素樹脂で補強されたガラス繊維フィルタ(TX40HI20, Pallflex)を用い、室温23℃、湿度50%で24時間以上開放静置後、精密電子天秤(メトラー・トレドUM2)で秤量した。PMモニタ測定値(相対濃度)は、並行測定した個人サンプラによる重量濃度とPM濃度モニタの平均濃度(相対濃度)との比(質量濃度変換係数, K値)を求め、実重量濃度に変換した。また、同時に同型のサンプラで石英繊維上にPMを捕集し、熱分離・光学補正式炭素分析計(DRI)を用いてIMPROVEプロトコルにより有機炭素(OC)と元素炭素(EC: 正確には非OC)の濃度を測定した。さらに、



そらプロジェクトの7測定地点においても、PM 個人サンプラにより歩行調査時間帯におけるPM 平均濃度を測定した。また、測定地域に最も近い大気汚染常時監視局（世田谷一般局、上馬自排局）におけるSPM 濃度（速報値）を収集し、歩行調査と対応する時間帯におけるSPM 濃度とPM<sub>2.5</sub>濃度との比較を行った。

ナノPM カウンタは傾きや振動により測定が中断してしまうために調査員が手持ちすることとし、他の機器は手押しキャリアーに搭載して歩道を移動した。

NOx 濃度の測定には、1秒の応答速度を持ちNO とNOx を切り替えて計測できる高速応答NOx 計（CLD-66, Eco Physics 製）を車椅子に搭載して、NOx の瞬時変化を把握した。また、NOx 濃度とPM 濃度変化の結果を比較して高濃度をもたらす原因を検討するとともに、歩行中の前方をデジタルムービーで記録して高濃度曝露の状況や原因の把握をすることとした。

\*そらプロジェクト：幹線道路沿道における局地的大気汚染と呼吸器疾患との関係について解明するため、環境省が平成17年度から関東・中京・関西の3大都市圏の幹線道路住民を対象として実施している大規模な疫学調査

### (3) 結果と考察

#### (ア) 調査期間の気象条件

調査期間の気象条件を表13に示す。夏期の測定時間帯の平均気温は29℃～33℃、冬期の平均気温は2℃～11℃であった。調査時間帯での降雨はなかったが、相対湿度が70%を超えた日があった。このような日には、光散乱方式のPM モニタが異常値を示すことがあるため、異常値については解析から除外した。

#### (イ) 歩行中のPM 曝露の状況

i) 調査期間のSPM濃度と個人サンプラによる測定結果  
測定日、歩行コース別のPM<sub>2.5</sub>重量濃度と大気汚染常時監視局におけるSPM 濃度を表14に示す。全調査期間の世田谷一般局と上馬自排局における対応する時間帯のSPM 濃度は、夏期はそれぞれ0.034mg/m<sup>3</sup>、0.049mg/m<sup>3</sup>、冬期については0.014mg/m<sup>3</sup>、0.020mg/m<sup>3</sup>であり、冬期の濃度は夏期に比べて低かった。

なお、この年（2007年）の調査時間帯の夏季（6月～8月）の世田谷一般局、上馬自排局のSPM 平均濃度はそれぞれ0.026mg/m<sup>3</sup>、0.041mg/m<sup>3</sup>であり、夏期の平均SPM 濃度はこれよりともに0.008mg/m<sup>3</sup>高く、冬季（2007年12月～2008年2月）の世田谷一般局、上馬自排局のSPM 平均濃度はそれぞれ0.016mg/m<sup>3</sup>、0.027mg/m<sup>3</sup>であり、冬期の平均SPM 濃度はこれよりそれぞれ0.002mg/m<sup>3</sup>、0.007mg/m<sup>3</sup>低くなっていた。

7カ所の定点測定地点におけるPM<sub>2.5</sub>濃度を表15に示す。1回の測定時間は10時前後からの5～6時間である。

表13 測定日の気象条件

測定日	測定時間	降水量 (mm)	平均気温 (℃)	平均湿度 (%)	平均風速 (m/sec)	風向
8月1日(水)	午前 9:00～12:00	0	29.1	71.4	2.7	南南西
	午後 13:00～15:00	0	31.0	53.4	4.0	南
8月2日(木)	午前 9:00～12:00	0	30.2	84.2	4.0	南
	午後 13:00～15:00	0	31.7	64.4	4.4	南南西
8月3日(金)	午前 9:00～12:00	0	30.2	72.7	5.4	南
	午後 13:00～15:00	0	30.3	68.5	5.4	南
8月4日(土)	午前 9:00～12:00	0	32.3	60.7	4.2	南南西
	午後 13:00～15:00	0	33.3	55.3	4.2	南
8月5日(日)	午前 9:00～12:00	0	32.7	60.3	2.5	南東
	午後 13:00～15:00	0	32.8	58.3	3.8	南
2月6日(水)	午前 9:00～12:00	0	2.3	73.0	2.6	北北西
	午後 13:00～15:00	0	2.0	83.0	1.7	北西
2月7日(木)	午前 9:00～12:00	0	6.3	47.7	3.4	北
	午後 13:00～15:00	0	8.7	24.3	4.0	北
2月8日(金)	午前 9:00～12:00	0	6.7	28.3	2.5	北
	午後 13:00～15:00	0	9.0	23.5	0.7	西
2月9日(土)	午前 9:00～12:00	0	2.3	50.0	2.7	北北西
	午後 13:00～15:00	0	3.0	56.3	3.6	北北西
2月10日(日)	午前 9:00～12:00	0	7.0	49.0	2.0	北北東
	午後 13:00～15:00	0	10.7	35.0	5.2	北

表14 歩行コース別のPM<sub>2.5</sub>重量濃度、K値および大気汚染常時監視局におけるSPM濃度と湿度

月日	コース	個人サンブラによる重量濃度			PMモニタ (PDS-2)		上馬 自排局	世田谷 一般局	世田谷 一般局
		PM <sub>2.5</sub> (mg/m <sup>3</sup> )	PM <sub>10-2.5</sub> (mg/m <sup>3</sup> )	PM <sub>10</sub> (mg/m <sup>3</sup> )	平均濃度 (mg/m <sup>3</sup> )	K値	SPM (mg/m <sup>3</sup> )	SPM (mg/m <sup>3</sup> )	湿度 (%)
夏期平均 (4日間)	1	0.028	0.014	0.041	0.035	0.78	0.052	0.038	62.6
	2	0.030	0.013	0.043	0.041	0.74			
	3	0.026	0.012	0.038	0.034	0.77			
	4	0.027	0.013	0.040	0.030	0.90			
冬期平均 (4日間)	1	0.021	0.004	0.024	0.011	1.94	0.019	0.013	50.2
	2	0.022	0.005	0.027	0.012	1.83			
	3	0.019	0.004	0.023	0.020	0.96			
	4	0.020	0.003	0.023	0.018	1.11			

個人サンブラによる重量濃度は、午前と午後の平均濃度。PDS-2平均濃度は、同じ時間帯におけるK=1とした相対濃度。K値は個人サンブラ重量濃度のPM<sub>2.5</sub>濃度をPDS-2平均濃度で除したもの。夏期平均(4日間)は8月2日を除いた平均、冬期平均(4日間)は2月6日を除いた平均。

表15 定点測定地点におけるPM<sub>2.5</sub>重量濃度

月日(曜日)	環7沿道			後背	246号沿道			日別 平均	平日、 休日別	SPM濃度	
	0m	20m	50m	100m 以上	0m	20m	50m			世田谷 一般局	上馬 自排局
8月1日(水)	0.009		0.017	0.019		0.014	0.024	0.017	0.013	0.026	0.047
8月2日(木)			0.008	0.009	0.017			0.011		0.018	0.034
8月3日(金)	0.008	0.011	0.012	0.011	0.014	0.013	0.014	0.012		0.025	0.035
8月4日(土)	0.025	0.023	0.029	0.030	0.033	0.033	0.027	0.029	0.035	0.046	0.058
8月5日(日)	0.041	0.044	0.037	0.041	0.041	0.045	0.041	0.041		0.057	0.069
平均	0.021	0.026	0.021	0.022	0.026	0.026	0.026	0.022		0.036	0.041
2月6日(水)	0.041	0.028	0.029	0.027	0.038	0.027	0.026	0.031	0.022	0.018	0.026
2月7日(木)	0.029	0.015	0.013	0.019	0.033	0.021	0.016	0.021		0.011	0.015
2月8日(金)	0.017	0.010	0.014	0.013	0.022	0.015	0.011	0.015		0.007	0.011
2月9日(土)	0.033	0.029	0.027	0.029	0.038	0.030	0.028	0.031	0.025	0.019	0.029
2月10日(日)	0.023	0.018	0.017	0.019	0.025	0.019	0.017	0.020		0.015	0.021
平均	0.029	0.020	0.020	0.021	0.031	0.023	0.020	0.023		0.014	0.020

2007年8月1日(水曜日)と2日(木曜日)の欠測は吸引ポンプの不調によるものである。2008年2月7日(木曜日)の246号0m地点は、20m地点に比べ最も高い1.5倍になっていたが、これは建設工事用のミキサー車が定点測定地点付近に長時間停車していた影響と考えられた。

定点測定地点の中でも最も高濃度の沿道0m地点と歩行中のPM<sub>2.5</sub>曝露濃度を比較したものが図53である。環7沿道0m地点と246号沿道0m地点のPM<sub>2.5</sub>濃度は246号がわずかに高く、相関は非常に強い(相関係数0.962)。図53では246号沿道0m地点の濃度と2つの沿道歩行コースの曝露濃度を示したが、両コースとも平均では沿道0mの濃度より低いながらもばらつきがあり、246号

0m地点の濃度とは、コース1(左回り内側)との相関がコース2(左回り外側)より良かった。環7沿道0mとの関係でもこれは同じであり、自動車の走行方向との関係や測定時の風向の影響が考えられる。

1日(約6時間)の歩行中の平均濃度と、対応する時間帯の最寄りの大気汚染常時監視局におけるSPM濃度と比較したものが図54である。夏期の歩行中のPM<sub>2.5</sub>曝露濃度は最寄りの上馬自排局のSPM濃度より低く、冬期ではわずかに高い1.1倍の濃度であった。最寄りの世田谷一般局と比較した場合も、夏期歩行中のPM<sub>2.5</sub>曝露濃度はSPM濃度より低かったが、冬期のPM<sub>2.5</sub>曝露濃度はSPM濃度の約1.6倍であった。

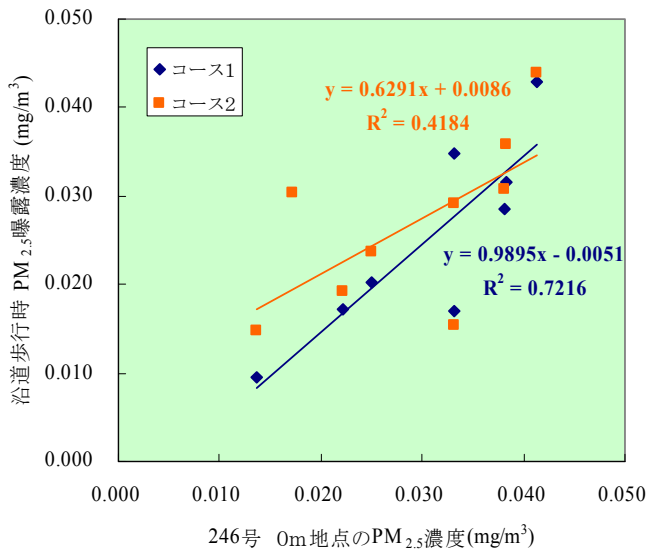


図53 沿道直近(246号 0m地点)のPM<sub>2.5</sub>濃度と沿道歩行コースのPM<sub>2.5</sub>曝露濃度

ii) PM モニタによる測定結果

PM モニタ (PDS-2) による測定は K 値を 1 に設定し、その平均濃度と並行測定で求めた重量濃度から正しい K 値を求めた。表14に示すように、冬期では沿道歩行の場合の K 値が 2 近くなったが、それ以外は 1 以下であった。

また、湿度の高い日を除いても同じコースで測定日によるばらつきが大きかったが、その原因はわからなかった。今回、モニタを通過する粒子を PM<sub>2.5</sub>に制限したため、重量濃度に対して散乱光量が相対的に増加した影響が想起され、その面についての検討が必要である。

図55に歩行コース別の PM<sub>2.5</sub>濃度変化の例として2007年8月1日(水曜日)の結果を示す。ここでは K 値で補正した重量濃度を 1 分単位の平均濃度にして示した。沿

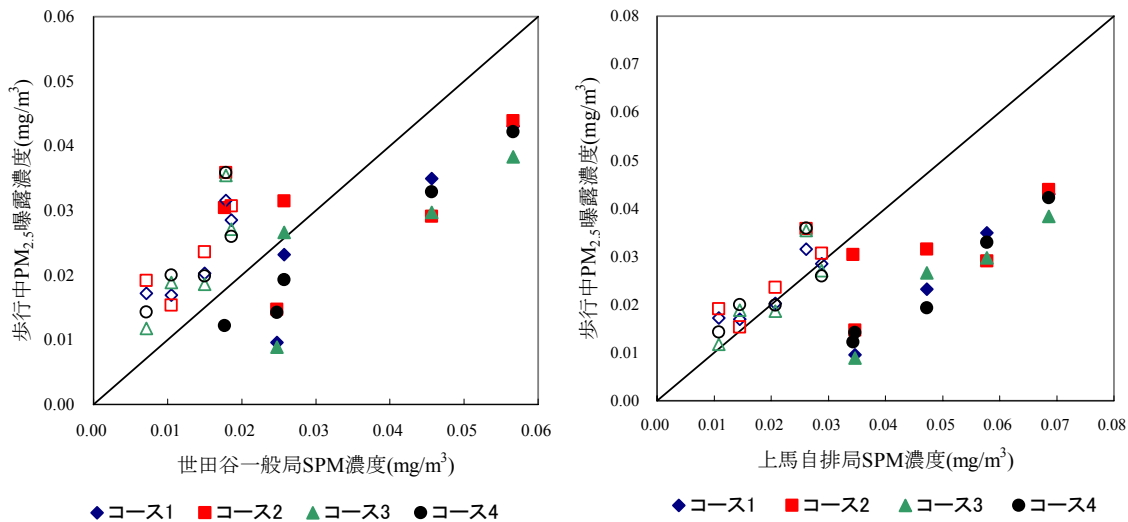


図54 大気汚染常時監視局における SPM 濃度とコース別 PM<sub>2.5</sub>濃度 (塗りつぶしのマーカーは夏期, 中抜きは冬期)

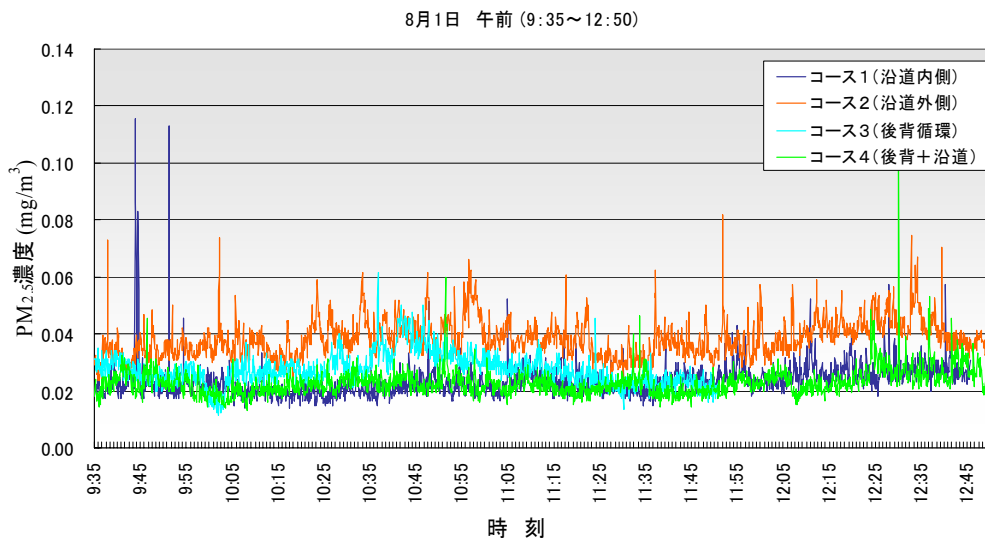


図55 歩行コース別の PM<sub>2.5</sub>重量濃度変動 (2007年8月1日(水)午前)

道の2コースは幹線道路を挟んで両側を同じ速度で移動したが、この時間帯ではコース1（内側）の平均濃度が0.024mg/m<sup>3</sup>に対しコース2（外側）が0.038mg/m<sup>3</sup>と高く、短時間の変動にも大きな違いがあったことが確認できる。この原因としては、主要なPM発生源である車道が測定者の風上にあるか風下にあるかが大きいと思われるが、車線別の交通量と大型車混入率なども影響していると考えられる。

### iii) ナノPMカウンタによる測定結果

PMモニタとナノPMカウンタによる測定の結果、5秒単位の平均濃度では、PM<sub>2.5</sub>重量濃度で最高3.6mg/m<sup>3</sup>、ナノPM個数濃度で46万個/ccという高濃度の測定値もあった（ただし、測定器の特性上、個数濃度の精度は10万個/ccまでしか保証されておらず、20万個以上の測定値では機差が大きい）。図56に沿道2コースで測定した重量濃度と個数濃度の例を示す。濃度は1分平均にしたもので、上段が2007年8月5日（日曜日）、下段が2008年2月7日（木曜日）の結果である。また、それぞれ濃度レベ

ルの違いがあったので縦軸の数値は図によって異なっている。このような短時間の平均濃度の変動は、両季節とも重量濃度より個数濃度の方が大きかった。

### iv) PM<sub>2.5</sub>の炭素成分

PM<sub>2.5</sub>の炭素分析結果などを表16に示す。ここでPM<sub>2.5</sub>は並行測定のPM<sub>2.5</sub>重量濃度で、炭素分析用サンプル捕集ができなかったものは除いてある。PM<sub>2.5</sub>濃度は夏期と冬期で大きな差は無かったが、PM<sub>2.5</sub>に占める総炭素（TC）濃度の割合は、全体の平均で見ると夏期は57%で、冬期の50%より若干多くなっていた。歩行コース別に見ると、PM<sub>2.5</sub>に占めるTCの割合およびTCに占めるECの割合は、夏期には沿道コースでは他の2コースよりわずかに多かったが、冬期にはそうした傾向は見られなかった。

今回の対象地域におけるPM<sub>2.5</sub>の歩行中の曝露濃度は、非常に短時間（5秒間など）では瞬間的には測定時間帯（6時間）の平均濃度レベルの10倍を超えることもあったが、長時間の平均濃度では幹線道路脇を歩行する

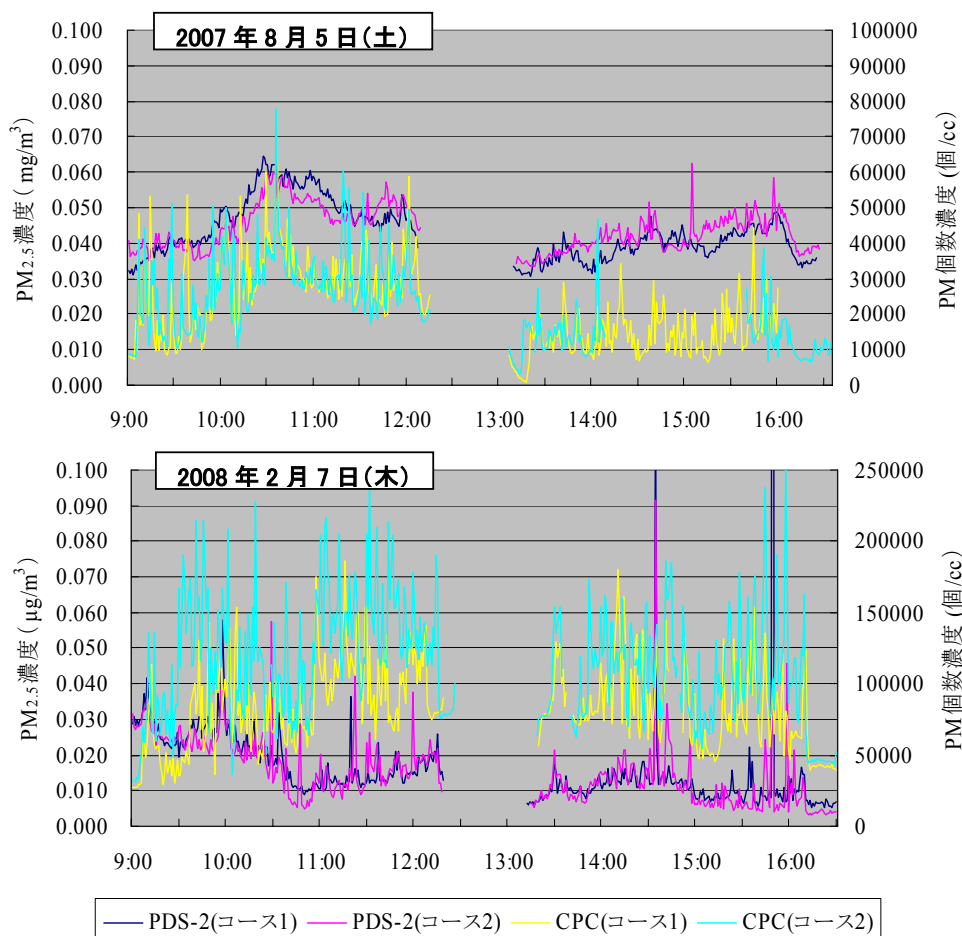


図56 沿道歩行コースのPM<sub>2.5</sub>重量濃度とナノPM個数濃度

表16 歩行コース別の PM<sub>2.5</sub>重量濃度および炭素成分分析結果

コース	夏期 (2007年8月)								冬期 (2008年2月)							
	PM <sub>2.5</sub> (mg/m <sup>3</sup> )	OC (mg/m <sup>3</sup> )	EC (mg/m <sup>3</sup> )	TC (mg/m <sup>3</sup> )	EC/ TC	OC/ PM <sub>2.5</sub>	EC/ PM <sub>2.5</sub>	TC/ PM <sub>2.5</sub>	PM <sub>2.5</sub> (mg/m <sup>3</sup> )	OC (mg/m <sup>3</sup> )	EC (mg/m <sup>3</sup> )	TC (mg/m <sup>3</sup> )	EC/ TC	OC/ PM <sub>2.5</sub>	EC/ PM <sub>2.5</sub>	TC/ PM <sub>2.5</sub>
1 沿道内側	0.028	0.014	0.005	0.019	0.28	0.49	0.19	0.68	0.023	0.008	0.003	0.011	0.24	0.35	0.11	0.47
2 沿道外側	0.030	0.013	0.005	0.018	0.27	0.44	0.17	0.61	0.025	0.009	0.004	0.012	0.29	0.35	0.14	0.49
3 後背	0.026	0.011	0.003	0.014	0.21	0.44	0.12	0.56	0.022	0.007	0.002	0.009	0.24	0.30	0.10	0.40
4 沿道+後背	0.024	0.011	0.003	0.014	0.22	0.47	0.13	0.60	0.023	0.008	0.003	0.011	0.26	0.36	0.13	0.48
S1 環七 0m	0.025	0.011	0.003	0.013	0.19	0.44	0.11	0.55	0.029	0.010	0.004	0.014	0.28	0.36	0.14	0.50
S2 環七 20m	0.026	0.010	0.002	0.012	0.17	0.38	0.08	0.46	0.020	0.007	0.002	0.009	0.21	0.35	0.09	0.45
S3 環七 50m	0.021	0.013	0.002	0.014	0.13	0.61	0.09	0.70	0.020	0.008	0.003	0.011	0.25	0.42	0.14	0.57
S4 後背 100m	0.022	0.009	0.002	0.011	0.14	0.42	0.07	0.49	0.021	0.009	0.003	0.012	0.21	0.44	0.12	0.56
S5 246号 0m	0.026	0.012	0.003	0.015	0.22	0.44	0.13	0.57	0.031	0.010	0.007	0.017	0.42	0.31	0.22	0.53
S6 246号 20m	0.026	0.012	0.002	0.014	0.17	0.44	0.09	0.53	0.023	0.010	0.004	0.014	0.30	0.45	0.19	0.64
S7 246号 50m	0.031	0.013	0.002	0.016	0.15	0.43	0.08	0.51	0.020	0.006	0.002	0.009	0.26	0.32	0.11	0.43
全体	0.026	0.012	0.003	0.015	0.20	0.46	0.11	0.57	0.023	0.008	0.003	0.012	0.27	0.36	0.14	0.50

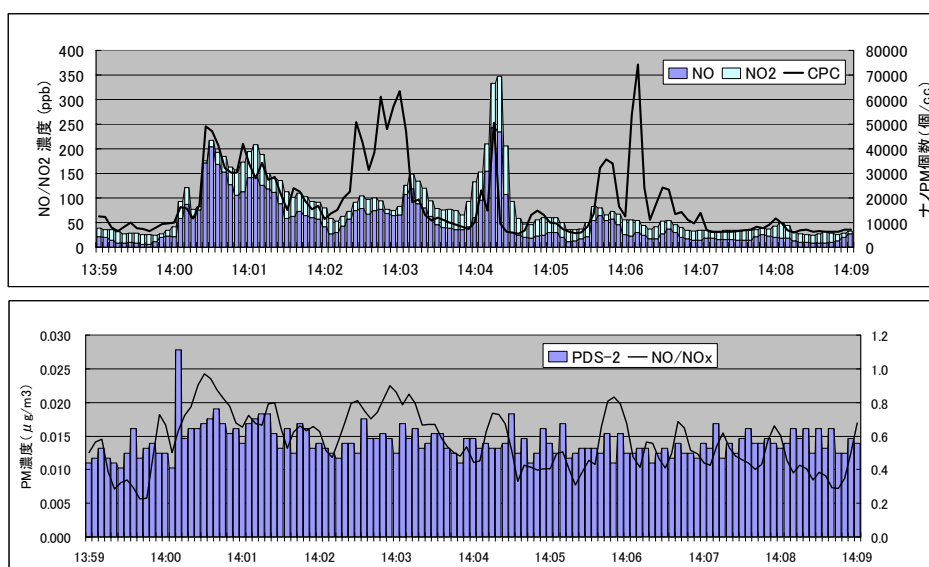


図57 2007年8月3日(金)14時前後の駒留陸橋付近のPM (PDS-2) ナノ粒子 (CPC), およびNO/NO<sub>x</sub> (CLD-66) の濃度変化

コースでも地域内(環7や246号)の沿道で測定している濃度とほぼ同じレベルであった。

(ウ) 沿道歩行中のNO<sub>x</sub>曝露の状況

i) NO<sub>x</sub>濃度とナノPM個数濃度

測定結果の例として、2007年8月3日(金)14時前後の10分間のNOおよびNO<sub>2</sub>濃度、ナノPM個数濃度を図57上に、PMモニタ値、NO/NO<sub>x</sub>比率を図57下に示す。NO<sub>x</sub>計測値は前後5秒の平均値として、他の測定値と揃えた。NOとNO<sub>2</sub>を合わせたNO<sub>x</sub>濃度とナノPM個数濃度は類似の濃度変化を示した(14:01, 14:04)。

高速応答NO<sub>x</sub>計とCPCの濃度が同時に高い14:04頃の様子を、同時に記録していたビデオ映像とGPS位置

を確認すると、環7と世田谷通りの交差点(若林交差点)から約300m南の駒留陸橋付近の横断歩道横断時で、直前をディーゼルトラックが走行していることがわかった。これがNO<sub>x</sub>とナノPMの高濃度曝露の原因と考えられた。このとき、NO<sub>x</sub>濃度は約350ppbを示し、うち8割以上はNOであった。大気中のNO<sub>x</sub>濃度に占めるNO<sub>2</sub>の比率は、図57に示す範囲では平均濃度では5割前後、NO<sub>x</sub>濃度が200ppb以上の時は、NO<sub>2</sub>濃度は1~3割と小さかった。高いナノPM個数濃度と低いNO<sub>x</sub>濃度を示す14:03と14:06頃は、道路状況からNO<sub>x</sub>計測者とCPC計測者が数m前後して歩行していただけであるが、濃度変化が類似していなかった。両計測者ができるだけ接近して歩行することが正確な原因と状況の把握に



は必要であり、本調査における今後の改善点と思われた。一方、PM モニタは、最短でも5秒の時間が1濃度假データの取得にかかるため、高速応答 NOx 計や CPC で計測された濃度変化を捉えられなかった。

### ii) 季節による曝露の違い

夏期および冬期の NOx 計測において、各回のデータを1分ごとの平均濃度として計算した。計測時間中の濃度について、夏期の NOx は平日の場合、平均すると55~78ppb に対して、休日は49~78ppb でほぼ同程度であったが、NO では平日の22~46ppb に対して休日は19~41ppb となり、平日に比べて休日の平均濃度は若干下がった。

一方、冬期において、平日の NOx は55~116ppb に対して、休日は40~132ppb であった。NO についても平日の35~69ppb の変化に対して休日は20~86ppb であり、NOx, NO ともに休日の方が広い濃度範囲と高い濃度を示した。なお、夏期、冬期ともに瞬間的には1分平均濃度に対して、NOx で約3~6倍、NO で約4~8倍の極めて高濃度ガスに曝露される状況が確認されたが、曝露の総量としては、平均濃度を求めた時間間隔に依らず、一定である。

最大の濃度を示す時刻の前後の濃度変化を見ることで、ディーゼル車が加速しつつ直前を走行したような偶発的な高濃度か、道路構造や交通渋滞によりある場所で定常的に起こりうる高濃度かを区別できると思われる。

図58に前者の場合の連続的に見た NOx, NO の濃度関係を示す。この図58から、600ppb 超を示した高濃度 NOx 曝露が数分間ずつ2度、それも NO が高濃度であったことがわかる。

なお、高速応答 NOx 計は4秒ごとに NO 測定と NOx 測定を切替えて計測する設定としたため、一方を計測している際、他方は一つ前の数値に固定されている。そのため、急速な濃度変化を捉えるためには若干の問題がある。より正しく NO および NOx の曝露状況を測定するためには、NO および NOx 用に測定ガスを固定した複数の高速応答 NOx 計の使用が必要と考えられる。

### iii) 高濃度曝露地点の抽出

NOx の時間変化の計測とともに、歩行位置を GPS にて特定できることを利用して、歩行経路における高濃度曝露地点を例示したのが図59である。図59では、2007年

8月5日(日曜日) 午後に NOx 濃度の1分間平均値として300ppb を超える地点を示した。夏期、冬期ともに、交差点等の停止時に NOx に高濃度曝露されており、詳細な実態把握には今回把握された高濃度地点での定点観測の必要性が明らかとなった。

### iv) 曝露状況の視覚化

数秒単位で計測された各種の計測器によるデータとデジタルムービーによる映像記録を基に、市販ソフト(PixelRunner) を使って曝露状況把握システムを作り上げた。その例を図60に示す。GPS と組み合わせることで、どのような状況で何が原因でどれだけの汚染物質に曝露されたかを容易に把握できるようになった。

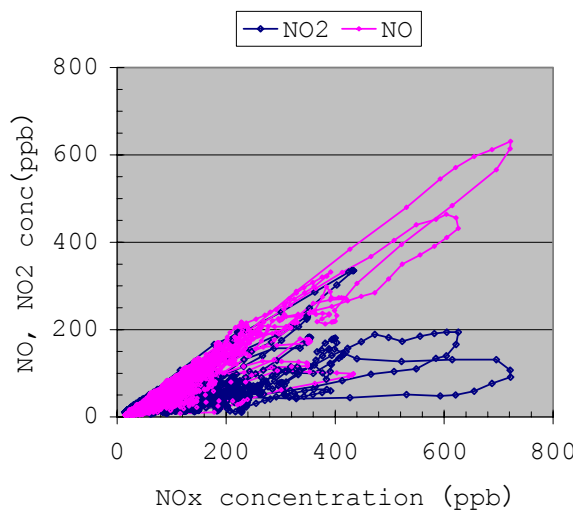


図58 2007年8月2日(木) 午前中に測定した NO および NOx の濃度変化



図59 2007年8月5日(日) 午前中に1分平均の NOx 濃度が300ppb 以上になった地点

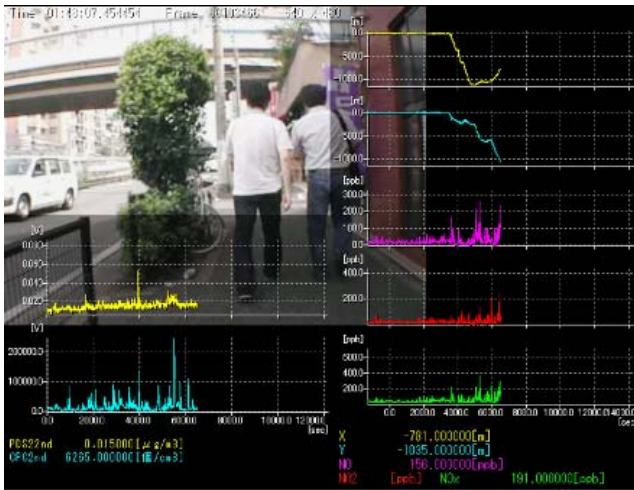


図60 デジタルムービー映像と各種計測値の統合表示による曝露状況把握システム

#### v) まとめ

今回の対象地域におけるNO<sub>x</sub>の歩行中の曝露濃度は、非常に短時間（5秒間など）では1分平均濃度レベルの数倍を超えることもあったが、曝露総量としては1時間の平均濃度に変わらない。健康影響の面で、瞬時高濃度が寄与するのか、曝露濃度の積算値（総量）が寄与するのかが明確になることで、高速応答NO<sub>x</sub>計の必要性が鮮明になる。また、ナノPM個数濃度とNO<sub>x</sub>濃度は、両測定器のサンプリング位置が近い状態の場合、類似の変化を示したが、PMモニタとはそれほどの類似性は見えなかった。高濃度NO<sub>x</sub>曝露状況を正しく把握するためには、高速応答NO<sub>x</sub>計の測定ガス切換による誤差を除くために複数台の高速応答NO<sub>x</sub>計を利用する必要がある。さらに、デジタルムービーと各種計測値を組み合わせるシステムを作成したことで、曝露状況とその原因を容易に確認することができるようになった。



[資 料]



## I 研究の組織と研究課題の構成

### 1 研究の組織

#### [A 研究担当者]

プロジェクトグループリーダー	
社会環境システム研究領域	小林 伸治 <sup>*)</sup>
サブリーダー	
化学環境研究領域	田邊 潔
社会環境システム研究領域	近藤 美則 松橋 啓介 須賀 伸介 日引 聡
アジア自然共生研究グループ	大原 利眞 高見 昭憲 佐藤 圭 森野 悠 長谷川就一 早崎 将光 <sup>*)</sup> 本多 将俊
環境健康研究領域	新田 裕史 田村 憲治 小野 雅司 上田 佳代 <sup>*)</sup>
大気圏環境研究領域	今村 隆史 菅田 誠治 上原 清 <sup>*)</sup> 神田 勲 山尾 幸夫
化学環境研究領域	柴田 康行 内田 昌男 伏見 暁洋 加藤 和浩 近藤美由紀 和穎 朗太 <sup>*)</sup>
環境リスク研究センター	平野靖史郎 藤谷 雄二
循環型社会・廃棄物研究センター	南齋 規介
環境研究基盤技術ラボラトリー	高橋 克行 <sup>*)</sup>

注) <sup>\*)</sup> は、平成21年3月以前に所属していた研究者を示す。

[B 客員研究員]

特別客員研究員

若松伸司 (愛媛大学) (平成18年度～平成20年度)

客員研究員

斉藤勝美 (秋田県健康環境センター) (平成18年度～平成20年度)

飯島明宏 (群馬県衛生環境研究所) (平成19年度～平成20年度)

日置 正 (京都府保健環境研究所) (平成18年度～平成20年度)

神成陽容 (平成18年度～平成20年度)

[C 研究協力者]

坂本和彦 (埼玉大学) (平成19年度～平成20年度)

関口和彦 (埼玉大学) (平成19年度～平成20年度)

窪田 勉 (埼玉大学大学院) (平成19年度～平成20年度)

速水 洋 (電力中央研究所) (平成19年度～平成20年度)

米持真一 (埼玉県環境科学国際センター) (平成19年度～平成20年度)

梅沢夏実 (埼玉県環境科学国際センター) (平成19年度～平成20年度)

熊谷貴美代 (群馬県衛生環境研究所) (平成19年度～平成20年度)

萩野浩之 (日本自動車研究所) (平成19年度～平成20年度)

高田智至 (石油産業活性化センター) (平成19年度～平成20年度)

下 紳郎 (石油産業活性化センター) (平成19年度～平成20年度)

下野彰夫 (三友プラントサービス) (平成19年度～平成20年度)

疋田利秀 (三友プラントサービス) (平成19年度～平成20年度)

2 研究課題と担当者 (\*客員研究員)

(1) サブテーマ1 : 都市圏における二次生成汚染物質の発生源から環境中における計測と動態解明

小林伸治・田邊 潔・近藤美則・松橋啓介・日引 聡・大原利眞・高見昭憲・佐藤 圭・森野 悠・長谷川就一・上原 清・神田 勲・山尾幸夫・伏見暁洋・和穎朗太・藤谷雄二・高橋克行・若松伸司\*・斉藤勝美\*・飯島明宏\*・日置 正\*・神成陽容\*

(2) サブテーマ2 : 都市における二次生成大気汚染モデル化と将来予測

小林伸治・田邊 潔・松橋啓介・須賀伸介・日引 聡・大原利眞・佐藤 圭・森野 悠・長谷川就一・早崎将光・本多将俊・今村隆史・菅田誠治・和穎朗太・南齋規介・高橋克行

(3) サブテーマ3 : 都市環境における大気汚染高レベル曝露と健康影響予測

田邊 潔・新田裕史・田村憲治・小野雅司・近藤美則・上田佳代・平野靖史郎・藤谷雄二

## II 研究成果発表一覧

### 1 誌上発表

(査読あり)

---

発表者・(刊年)・題目・掲載誌・巻(号)・頁

---

Adachi S., Kimura F., Sugata S., Hayasaki M., Kurosaki Y., Wakamatsu S. (2007) Dust transport along a cold front: A case study of a cyclone observed on 19-20 April 2000 in Northeast Asia, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, 42(6), 327-338

秋吉英治, 今村隆史 (2006) オゾンホール of 長期変動予測, *Sci.Technonews Tsukuba*, (79), 22-23

Arao K., Nishikawa M., Hatakeyama S., Takami A., Matsuyama S., Hayasaka T. (2006) Atmospheric turbid conditions due to fine particles in recent years at Nagasaki, Japan, *J. Environ. Stud. Nagasaki Univ.*, 9(1), 23-30

Arimura T.H., Hibiki A., Johnstone N. (2007) An empirical study of environmental R&D: what encourages facilities to be environmentally innovative?, *Environmental Policy and Corporate Behaviour* (Johnstone N. ed., Edward Elgar Publ., 278p.), 142-173

Chen X., Aoki M., Zhang S., Zhang J., Nozoe S., Komori D., Takami A., Hatakeyama S. (2008) Observation of Hydrogen Peroxide Concentrations in a Japanese Red Pine Forest, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 60, 37-49, DOI:10.1007/s10874-008-9107-0

Deguchi Y., Tanaka N., Tsuzaki M., Fushimi A., Kobayashi S., Tanabe K. (2008) Detection of components in nanoparticles by resonant ionisation and laser breakdown time-of-flight mass spectrometry, *Environ. Chem.*, 5(6), 402-412

Chand D., Jaffe D., Prestbo E., Swartzendruber P.C., Hafner W., Weiss-Penzias P., Kato S., Takami A., Hatakeyama S., Kajii Y. (2008) Reactive and particulate mercury in the Asian marine boundary layer, *Atmospheric Environment*, 42, 7988-7996

Fujitani Y., Hasegawa S., Fushimi A., Kondo Y., Tanabe K., Kobayashi S., Kobayashi T. (2006) Collection characteristics of low-pressure impactors with various impaction substrate materials, *Atmos. Environ.*, 40, 3221-3229

Fujitani Y., Ideno Y., Fushimi A., Tanabe K., Kobayashi S., Kobayashi T. (2007) Generation of nanoparticles of lubricating motor oil for inhalation studies, *Aerosol Sci. Technol.*, 41(1), 14-23

藤谷雄二, 平野靖史郎, 小林伸治, 田邊潔, 鈴木明, 古山昭子, 小林隆弘 (2007) 国立環境研究所 ナノ粒子健康影響実験施設, *Engine Technol.*, 8(6), 34-39

Fujitani Y., Kobayashi T. (2008) Measurement of Aerosols in Engineered Nanomaterials Factories for Risk Assessment, *Nano*, 3(4), 245-249

Fujitani Y., Kobayashi T., Arashidani K., Kunugita N., Suemura K. (2008) Measurement of the physical properties of aerosols in a fullerene factory for inhalation exposure assessment, *Journal of Occupational and Environmental Hygiene*, 5(6), 380-389

藤谷雄二, 平野靖史郎 (2008) ナノ粒子・ナノ材料の健康問題 —その2—, *Japanese Journal of Hygiene*, 63, 663-669

Fujitani Y., Hirano S., Kobayashi S., Tanabe K., Suzuki A.K., Furuyama A., Kobayashi T. (2009) Characterization of dilution conditions for diesel nanoparticle inhalation studies, *Inhal. Toxicol.*, 21(3), 200-209

Furuyama A., Hirano S., Koike E., Kobayashi T. (2006) Induction of oxidative stress and inhibition of plasminogen activator inhibitor-1 production in endothelial cells following exposure to organic extracts of diesel exhaust particles and urban fine particles, *Arch. Toxicol.*, 80, 154-162

Furuyama A., Kanno S., Kobayashi T., Hirano S. (2009) Extrapulmonary translocation of intratracheally instilled fine and ultrafine particles via direct and alveolar macrophage-associated routes, *Arch. Toxicol.*, 83(5), 429-437

Fushimi A., Tanabe K., Hasegawa S., Kobayashi S. (2007) Investigation of characterization method for nanoparticles in roadside atmosphere by thermal desorption-gas chromatography/mass spectrometry using a pyrolyzer, *Sci. Total Environ.*, 386, 83-92

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, 949-959

---

- 伏見暁洋, 小林伸治, 近藤美則, 森口祐一, 若松伸司, 田邊潔 (2008) 自動車排出ガス測定における高反応性揮発性有機化合物の消失, 環境化学, 18(1), 51-64
- 伏見暁洋, 長谷川就一, 藤谷雄二, 高橋克行, 斉藤勝美, 田邊潔, 小林伸治 (2008) 加熱脱着 GC/MS によるディーゼル排気及び大気中ナノ粒子の有機成分分析, エアロゾル研究, 23(3), 163-171
- Hasegawa S., Wakamatsu S., Ohara T., Itano Y., Saitoh K., Hayasaki M., Kobayashi S. (2006) Vertical profiles of ultrafine to supermicron particles measured by aircraft over Osaka metropolitan area in Japan, Atmos. Environ., 41(4), 717-729
- 長谷川就一, 若松伸司, 田邊潔, 小林伸治 (2006) 都市域におけるエアロゾル中炭素成分の実態, エアロゾル研究, 21(4), 312-321
- Hayasaki M., Sugata S., Tanaka H.L. (2006) Interannual variation of cold frontal activity in spring in Mongolia, J. Meteorol. Soc. Jpn., 84(3), 463-475
- 早崎将光, 菅田誠治, 大原利眞, 若松伸司, 宮下七重 (2007) 1992-2004年度のSPM環境基準達成率に対する黄砂減少の影響, 大気環境学会誌, 42(3), 188-199
- 早崎将光, 大原利眞, 黒川純一, 鶴野伊津志, 清水厚 (2008) 2007年5月8-9日に発生した広域的な光化学オゾン汚染: 観測データ解析, 大気環境学会誌, 43, 225-237
- 日引聡, 有村俊秀 (2007) 事業所レベルの環境マネジメントのインセンティブとステークホルダーの影響-環境管理に関するOECD事業所サーベイから-, 計画行政, 30(2), 61-68
- 日引聡 (2008) ごみ排出の減量化に向けた自治体のごみ対策の課題, 日本不動産学会誌, 22(2), 113-118
- 日引聡, 鶴見哲也, 馬奈木俊介 (2008) 環境クズネツ曲線仮説の再検討, Plann. Adm., 31(2), 37-44
- 日置正, 紀本岳志, 長谷川就一, 向井人史, 大原利眞, 若松伸司 (2009) 松山, 大阪, つくばで観測した浮遊粉じん中金属元素濃度比による長距離輸送と地域汚染特性の解析, J. Jpn. Soc. Atmos. Environ., 44(2), 91-101
- Hirabayashi M., Matsuo M., Hasegawa S., Kobayashi S., Tanabe K. (2008) Elemental analysis of airborne fine particles collected at the roadside of an arterial road, J. Radioanal. Nucl. Chem., 278(2), 479-483
- Honda Y., Kabuto M., Ono M., Uchiyama I. (2007) Determination of optimum daily maximum temperature using climate data, Environ. Health Prev. Med., 12(5), 209-216
- Iijima A., Sato K., Fujitani Y., Fujimori E., Saito Y., Tanabe K., Ohara T., Kozawa K., Furuta N. (2009) Clarification of the predominant emission sources of antimony in airborne particulate matter and estimation of their effects on the atmosphere in Japan, Environ. Chem., 6(2), 122-132
- Inoue K., Takano H., Yanagisawa R., Hirano S., Ichinose T., Shimada A., Yoshikawa T. (2006) The role of toll-like receptor 4 in airway inflammation induced by diesel exhaust particles, Arch. Toxicol., 80, 275-279
- Inoue K., Takano H., Yanagisawa R., Hirano S., Kobayashi T., Ichinose T., Yoshikawa T. (2006) Effects of organic chemicals derived from ambient particulate matter on lung inflammation related to lipopolysaccharide, Arch. Toxicol., 80, 833-838
- Inoue K., Takano H., Yanagisawa R., Hirano S., Sakurai M., Shimada A., Yoshikawa T. (2006) Effects of airway exposure to nanoparticles on lung inflammation induced by bacterial endotoxin in mice, Environ. Health Perspect., 114(9), 1325-1330
- Inoue K., Takano H., Yanagisawa R., Hirano S., Kobayashi T., Fujitani Y., Shimada A., Yoshikawa T. (2007) Effects of inhaled nanoparticles on acute lung injury induced by lipopolysaccharide in mice, Toxicology, 238, 99-110
- Itano Y., Wakamatsu S., Hasegawa S., Ohara T., Sugata S., Hayasaki M., Moriya T., Kobayashi S. (2006) Local and regional contributions to springtime ozone in the Osaka metropolitan area, estimated from aircraft observations, Atmos. Environ., 40, 2117-2127
- 伊藤真人, 小野雅司, 能登美之 (2007) 陸別のブリューワ分光光度計常数校正と紫外域日射量・オゾン全量, 高層気象台彙報, 67, 33-38
- Kabuto M., Nitta H., Yamamoto S., Yamaguchi N., Akiba S., Honda Y., Hagihara J., Isaka K., Saito T., Ojima T. et al. (2006) Childhood leukemia and magnetic fields in Japan: A case-control study of childhood leukemia and residential power-frequency magnetic fields in Japan, Int. J. Cancer, 119(3), 643-650

- Kanda I., Uehara K., Yamao Y., Yoshikawa Y., Morikawa T. (2006) A wind-tunnel study on exhaust gas dispersion from road vehicles -Part 1: Velocity and concentration fields behind single vehicles, *J. Wind Eng. Ind. Aerodyn.*, 94, 639-658
- 神成陽容, 大原利眞 (2009) オゾン週末効果反転減少のメカニズム, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, 44(2), 82-90
- Kasamatsu J., Shima M., Yamazaki S., Tamura K., Sun G. (2006) Effects of winter air pollution on pulmonary function of school children in Shenyang, China, *Int. J. Hyg. Environ. Health*, 209, 435-444
- 片山学, 大原利眞, 鶴野伊津志, 村野健太郎, 畠山史郎 (2007) 冬季・九州地域で観測された高濃度エピソードに対する中国メガンチの影響, *大気環境学会誌*, 42(3), 175-187
- 小林伸治, 長谷川就一, 高橋克行, 伏見暁洋, 近藤美則, 田邊潔 (2006) ディーゼル車からの微小粒子の排出特性と道路沿道大気中における挙動, *エアロゾル研究*, 21(4), 305-311
- 小林伸治, 長谷川就一, 近藤美則, 伏見暁洋, 田邊潔 (2007) 排気後処理付ディーゼル車からの NO<sub>2</sub>排出特性, *自動車技術会論文集*, 38(6), 11-16
- Kobayashi S., Hasegawa S., Kondo Y., Fushimi A., Tanabe K. (2008) Nitrogen dioxide emission from diesel vehicles equipped with exhaust aftertreatment systems, *Rev. Automot. Eng.*, 29(2), 229-235
- 近藤武, 渡辺俊一, 松島松翠, 浅沼信治, 櫻井四郎, 田村憲治, 安藤満 (2006) 中国四川省フッ素汚染地区の主要食材(乾燥とうもろこし, トウガラシ)のフッ素汚染濃度およびその化学的性質, *日本農村医学会雑誌*, 54, 740-748
- Kondo Y., Morino Y., Fukuda M., Kanaya Y., Miyazaki Y., Takegawa N., Tanimoto H., McKenzie R., Johnston P., Blake D.R., Murayama T., Koike M. (2008) Formation and transport of oxidized reactive nitrogen, ozone, and secondary organic aerosol in Tokyo, *J. Geophys. Res.*, 113, D21310, doi:10.1029/2008JD010134
- 黒川純一, 大原利眞, 早崎将光, 鶴野伊津志 (2008) ネスト版 RAMS/CMAQ 連携モデルによる2007年5月8,9日に発生した広域的な光化学オゾン汚染の解析, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, 43(4), 209-224
- Liu Y., Ono M., Yu D., Wang Y., Yu J. (2006) Individual solar-UV doses of pupils and undergraduates in China, *J. Exposure Sci. Environ. Epidemiol.*, 16, 531-537
- Manugai S., Hibiki A., Tsurumi T. (2008) Does trade liberalization reduce pollution emissions?, *RIETI Discuss. Paper Ser.*, 08-E-013
- Maruyama W., Hirano S., Kobayashi T., Aoki Y. (2006) Quantitative risk analysis of particulate matter in the Air(2006) Interspecies extrapolation with bioassay and mathematical models, *Inhal. Toxicol.*, 18, 1013-1023
- Matsui H., Koike M., Takegawa N., Kondo Y., Griffin R.J., Miyazaki Y., Yokouchi Y., Ohara T. (2009) Secondary organic aerosol formation in urban air: Temporal variations and possible contributions from unidentified hydrocarbons, *J. Geophys. Res.*, 114, D04201
- 松橋啓介 (2006) 身近な交通の見直しによる環境改善, *電気評論*, 503, 56-57
- 松橋啓介(2006) 持続可能な交通とまちづくりの方向性, *環境研究*, (141), 22-28
- 松橋啓介 (2007) 低炭素社会に向けた交通システムの将来ビジョンの構築について, *都市計画論文集*, 42(3), 889-894
- 松橋啓介, 工藤祐揮, 森口祐一 (2007) 交通部門における CO<sub>2</sub>排出量の中長期的な大幅削減に向けた対策, *地球環境*, 12, 179-189
- Mochida M., Miyakawa T., Takegawa N., Morino Y., Kawamura K., Kondo Y. (2008) Significant alteration in the hygroscopic properties of urban aerosol particles by the secondary formation of organics, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L02804, doi:10.1029/2007GL031310
- Murakami Y., Ono M. (2006) Myocardial infarction deaths after high level exposure to particulate matter, *J. Epidemiol. Community Health*, 30, 262-266
- Narukawa M., Matsumi Y., Matsumoto J., Takahashi K., Yabushita A., Sato K., Imamura T. (2007) Real-time analysis of secondary organic aerosol particles formed from cyclohexene ozonolysis using a laser-ionization single-particle aerosol mass spectrometer, *Anal. Sci.*, 23(5), 507-511
- Narukawa M., Matsumi Y., Matsumoto J., Takahashi K., Yabusita A., Sato K., Imamura T. (2008) Single particle analysis of secondary organic aerosol formed from 1,4-cyclohexadiene ozonolysis using a laser-ionization single-particle aerosol mass spectrometer, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, 81(1), 120-126
- Naser T.M., Kanda I., Ohara T., Sakamoto K., Kobayashi S., Nitta H., Nataami T., (2009) Analysis of traffic-related NO<sub>x</sub> and EC concentrations at various distances from major road in Japan, *Atmos. Environ.*, 43, 2379-2390



- 新田裕史 (2007) PM<sub>2.5</sub>の健康リスクに関する研究の動向と展開の方向性, 日本リスク研究学会誌, 17(2), 93-99
- Ochiai N., Ieda T., Sasamoto K., Fushimi A., Hasegawa S., Tanabe K., Kobayashi S. (2007) Comprehensive two-dimensional gas chromatography coupled to high-resolution time-of-flight mass spectrometry and simultaneous nitrogen phosphorous and mass spectrometric detection for characterization of nanoparticles in roadside atmosphere, *J. Chromatogr. A*, 1150, 13-20
- Odajima H., Yamazaki S., Nitta H. (2008) Decline in peak expiratory flow according to hourly short-term concentration of particulate matter in asthmatic children, *Inhal. Toxicol.*, 20(14), 1263-1272
- Ohara T., Akimoto H., Kurokawa J., Horii H., Yamaji K., Yan X., Hayasaka T. (2007) An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4419-4444
- Ohara T., Yamaji K., Uno I., Tanimoto H., Sugata S., Nagashima T., Kurokawa J., Horii N., Akimoto H. (2008) 2.5 Long-term simulations of surface ozone in East Asia During 1980-2020 with CMAQ and REAS inventory, In: Borrego C., Miranda A.I. eds., *Air Pollution Modeling and Its Application 19 (NATO Science for Peace and Security Series C: Environmental Security)*, Springer, 136-144
- 大原利眞 (2008) アジアで増える NO<sub>x</sub> と光化学オゾン, *科学*, 78, 727-728
- 大原利眞, 鶴野伊津志, 黒川純一, 早崎将光, 清水厚 (2008) 2007年5月8,9日に発生した広域的な光化学オゾン汚染—オーバービュー—, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, 43(4), 198-208
- 老川進, 上原清 (2008) 市街地における短時間の濃度変動とピーク濃度に及ぼす大気安定度の影響, *大気環境学会誌*, 43(1), 31-46
- Ono M., Omori T., Nitta H. (2006) Is the midnight-to-midnight average concentration of pollutants an appropriate exposure index for a daily mortality study?, *J. Exposure Sci. Environ. Epidemiol.*, 1-4
- Ono M., Omori T., Nitta H. (2007) Is the midnight-to-midnight average concentration of pollutants an appropriate exposure index for a daily mortality study?, *Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology*, 2007 Jan;17(1), 84-87
- Ono M., Tamura K., Nitta H., Nakai S. (2008) Indoor and outdoor levels of particulate matter concentration in a district of Tokyo in the late 1980s, *Journal of Japan Society for Atmospheric Environment*, 43, 147-160
- Primbs T., Simonich S.L., Schmedding D., Wilson G., Jaffe D., Takami A., Kato S., Hatakeyama S., Kajii Y. (2007) Atmospheric Outflow of Anthropogenic Semi-Volatile Organic Compounds from East Asia in Spring 2004, *Environmental Science and Technology*, 41(10), 3551
- Qi B., Sato K., Imamura T., Takami A., Hatakeyama S., Ma Y. (2006) Production of the radicals in the ozonolysis of ethene(2006) A chamber study by FT-IR and PERCA, *Chem. Phys. Lett.*, 427, 461-465
- Qi B., Kanaya Y., Takami A., Hatakeyama S., Kato S., Sadanaga Y., Tanimoto H., Kajii Y. (2007) Diurnal peroxy radical chemistry at a remote coastal site over the sea of Japan, *J. Geophys. Res.*, 112, D17306, doi:10.1029/2006JD008236
- Saitoh K., Ishikawa T., Iso H., Konishi T., Imaseki H., Hasegawa S., Fushimi A., Kobayashi S., Tanabe K. (2008) Development of sample preparation method for engine lubricating oil analysis using in-air PIXE, *Int. J. PIXE*, 18(1/2), 47-52
- Saitoh K., Sera K., Fushimi A., Fujitani Y., Hasegawa S., Takahashi K., Kobayashi S., Tanabe K. (2008) PIXE analysis of atmospheric nano- to micrometer-size particles in roadside atmosphere, *Int. J. PIXE*, 18(3/4), 175-186
- 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(39), 9796-9808
- 佐藤圭, 田中友里愛, 李紅, 小川志保, 畠山史郎 (2007) 沖縄辺戸岬における有機エアロゾルの組成と季節変化: 2005-2007年に観測された多環芳香族炭化水素, *地球科学*, 41(4), 125-133
- 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(28), 6851-6861
- 佐藤圭, Klotz B., 畠山史郎, 今村隆史 (2008) 芳香族炭化水素の大気酸化による二次有機エアロゾル生成, *エアロゾル研究*, 23(2), 86-93
- 佐藤圭 (2008) 二次粒子の生成: イソプレン酸化に関する最近の研究, *エアロゾル研究*, 23(3), 172-180

- Shiraiwa M., Kondo Y., Moteki N., Takegawa N., Sahu L.K., Takami A., Hatakeyama S., Yonemura S., Blake D.R. (2008) Radiative impact of mixing state of black carbon aerosol in Asian outflow, *J. Geophys. Res.*, 113, D24210, doi:10.1029/2008JD010546. (accepted in December 2008)
- Suga S. (2006) Numerical schemes obtained from lattice boltzmann equations for advection diffusion equations, *Int. J. Mod. Phys. C*, 17(11), 1563-1577
- 須賀伸介 (2007) 格子ボルツマン法を用いた 2 次元移流拡散方程式の数値スキームに関する研究, *応用力学論文集*, 10, 147-156
- Suga S. (2009) Stability and accuracy of lattice Boltzmann schemes for anisotropic advection-diffusion equations, *Int. J. Mod. Phys. C*, 20(4), 633-650
- Sugita T., Saitoh N., Hayashida S., Imamura T., Saeki K., Nakajima H. (2007) Temporary denitrification in the antarctic stratosphere as observed by ILAS-II in June 2003, *SOLA*, 3, 137-140
- Sugiyama T., Nansai K., Tohno S., Yamamoto K. (2009) Compilation and application of a primary PM<sub>2.5</sub> emissions inventory with high sectoral resolution in Japan, *Atmos. Environ.*, 43(4), 759-768
- Suthawaree J., Kato S., Takami A., Hatakeyama S., Kadena H., Togushi M., Tomoyose N., Yogi K., Jaffe D., Swartsendruber P. et al. (2007) Influence from long-range transport of Asia outflow on O<sub>3</sub>, CO and VOCs concentrations during an intensive measurement campaign at Cape Hedo, Okinawa, in spring 2004, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, 42(6), 350-361
- Takahashi K., Hirabayashi M., Tanabe K., Shibata Y., Nishikawa M., Sakamoto K. (2007) Radiocarbon content in urban atmospheric aerosols, *Water Air Soil Pollut.*, 185(1/4), 305-310
- 高橋克行, 森育子, 西川雅高, 全浩, 坂本和彦 (2008) 北京と東京における都市大気エアロゾルの炭素成分の特徴, *エアロゾル研究*, 23(3), 194-199
- Takami A., Wang W., Tang D., Hatakeyama S. (2006) Measurements of gas and aerosol for two weeks in northern China during the winter-spring period of 2000, 2001 and 2002, *Atmos. Res.*, 82, 688-697
- 高見昭憲, 今井孝典, 清水厚, 松井一郎, 杉本伸夫, 畠山史郎 (2006) 沖縄辺戸で観測された人為起源エアロゾルと黄砂の輸送, *エアロゾル研究*, 21(4), 341-347
- 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
- Tin-Tin-Win-Shwe, Yamamoto S., Fujitani Y., Hirano S., Fujimaki H. (2008) Spatial learning and memory function-related gene expression in the hippocampus of mouse exposed to nanoparticle-rich diesel exhaust, *Neurotoxicology*, 29(6), 940-947
- 内山政弘, 須賀伸介, 松本幸雄, 福山力 (2006) 多点測定による都市大気エアロゾルの動態, *エアロゾル研究*, 21, 322-327
- Ueda K., Nitta H., Ono M. (2009) Effects of fine particulate matter on daily mortality for specific heart diseases in Japan, *Circulation Journal*, 73(7), 1248-1254
- 上原清, 若松伸司, 老川進 (2006) 沿道建物列の隙間がストリートキャニオン内濃度に及ぼす影響に関する風洞実験, *日本建築学会環境系論文集*, (610), 51-58
- 上原清, 松本幸雄, 林誠司, 山尾幸夫, 若松伸司, 大原利眞 (2006) 通風を考慮した沿道高濃度対策の検討-1/100大縮尺模型を用いた風洞実験-, *大気環境学会誌*, 41(2), 91-102
- 上原清, 山尾幸夫, 老川進, 持田灯 (2007) 通風の良いストリートキャニオンに関する風洞実験, *大気環境学会誌*, 42(5), 301-309
- 上原清, 林誠司, 山尾幸夫, 松本幸雄, 若松伸司 (2007) 実在交差点周辺の沿道大気汚染-風洞実験による NO<sub>x</sub> 長期平均濃度分布の推定-, *大気環境学会誌*, 42(2), 93-106
- Uno I., Ohara T., Yamaji K., Kurokawa J. (2007) Recent trends and projections in Asian air pollution, *J. Disaster Res.*, 2(3), 163-172
- Wang G., Kawamura K., Hatakeyama S., Takami A., Wang W. (2007) Aircraft Measurement of Organic Aerosols over China, accepted in March 2007, *Environmental Science and Technology*, 41(9), 3115
- Wang W., Liu H., Yue X., Li H., Chen J., Ren L., Tang D., Hatakeyama S., Takami A. (2007) Study on acidity and acidic buffering capacity of particulate matter over Chinese eastern coastal areas in spring, *J. Geophys. Res.*, 111, D18207, doi:10.1029/2005JD006753

- Yamaji K., Ohara T., Uno I., Tanimoto H., Kurokawa J-i., Akimoto H. (2006) Analysis of the seasonal variation of ozone in the boundary layer in East Asia using the Community Multi-scale Air Quality model: What controls surface ozone levels over Japan?, *Atmos. Environ.*, 40(10), 1856-1868
- Yamaji K., Ohara T., Uno I., Kurokawa J., Pochanart P., Akimoto H. (2008) Future prediction of surface ozone over East Asia using Models-3 community multiscale air quality modeling system and regional emission inventory in Asia, *J. Geophys. Res.*, 113, D8306
- Yamamoto N., Muramoto A., Yoshinaga J., Shibata K., Endo M., Hirabayashi M., Tanabe K., Goto S., Yoneda M., Shibata Y. et al. (2007) Comparison of carbonaceous aerosols in Tokyo before and after implementation of diesel exhaust restrictions, *Environ. Sci. Technol.*, 41(18), 6357-6362
- Yamazaki S., Nitta H., Fukuhara S. (2006) Associations between exposure to ambient photochemical oxidants and the vitality or mental health domain of the health related quality of life, *Journal of Epidemiology and Community Health*, 60(2), 173-179
- Yamazaki S., Nitta H., Ono M., Green J., Fukuhara S. (2007) Intracerebral haemorrhage associated with hourly concentration of ambient particulate matter: case-crossover analysis, *Occupational and Environmental Medicine*, 64(1), 17-24
- Zhang Q., Jimenez J.L., Canagaratna M.R., Allan J.D., Coe H., Ulbrich I., Dzepina K., Dunlea E., Docherty K., DeCarlo P.F., Salcedo D., Alfarra M.R., Sun Y.L., Onasch T., Jayne J.T., Takami A., Miyoshi T., Shimono A., Hatakeyama S., Takegawa N., Kondo Y., Schneider J., Drewnick F., Weimer S., Demerjian K., Williams P., Bower K., Middlebrook A.M., Bahreini R., Cotrell L., Griffin R., Rautiainen J., Worsnop D.R., (2007) Oxygenated Species Dominate Organic Aerosols in Anthropogenically—Influenced Northern Hemisphere Mid-latitudes, *Geophys.Res.Lett.*, 34, L13801, doi:10.1029/2007GL029979
- 

(査読なし)

---

- Arimura T.H., Hibiki A., Katayama H. (2007) Is a voluntary approach an effective environmental policy instrument? A case for environment management systems, *Discussion Paper (Resource for the Future)(RFF, 28p.)*
- 藤谷雄二, 平野靖史郎, 小林伸治, 田邊潔, 鈴木明, 古山昭子, 小林隆弘 (2006) 国立環境研究所ナノ粒子健康影響実験施設, *エンジンテクノロジー*, 8(6), 34-39
- 藤谷雄二, 小林隆弘 (2008) ナノ材料製造現場におけるナノ粒子を含めたエアロゾルの現状, *金属*, 78, 865-869
- 藤谷雄二 (2009) ナノマテリアル製造現場でのエアロゾル調査から言えること—作業現場の個人はどうか—, *現代化学*, (459), 27
- 伏見暁洋 (2008) 加熱脱着 GC/MS による自動車排気由来ナノ粒子の分析, *ぶんせき*, 386(2), 84-85
- 早崎将光, 黒崎泰典, 樋口篤志, 足立幸穂, 菅田誠治, 西川雅高, 大原利眞, 若松伸司 (2006) MODIS 可視画像と SPM 時間値で捉えた2006年4月8日の帯状黄砂, *天気*, 53(11), 843-844
- Hibiki A., Shimane T. (2008) Empirical study on determinants of household solid waste and the effect of the unit pricing in Japan, *2008 Int. Conf. Manage. Sci. Decis. Making Proc.*, 401-411
- 日引聡 (2008) ごみ排出の減量化に向けた自治体のごみ対策の課題, *日本不動産学会誌*, 22(2), 113-118
- 日引聡 (2008) 貿易の自由化は環境負荷を低減させるか?, *経済産業ジャーナル*, (447), 32-33
- 平野靖史郎 (2009) ナノマテリアルの生体への影響—アスベストの二の舞にならないために—, *現代化学*, (459), 22-26
- 前田征司, 日引聡 (2008) 地球温暖化問題に対するサステナビリティサイエンスの研究動向-IPCC 第四次評価報告書に対する日本の貢献度から見た課題-, *科学技術動向*, (84), 10-23
- 松橋啓介 (2007) 日本における低炭素社会に向けた対策の検討, *交通工学*, 42(6), 38-43
- 松橋啓介 (2009) 低炭素社会実現に向けた交通システム改善のポイント, *調査季報*, 164, 36-39
- 松橋啓介(2009) 地球環境時代の交通システムのビジョンと実現策, *City Plann.Rev.*, 279, 25-28
-

- Miyawaki K., Omori Y., Hibiki A. (2006) Bayesian estimation of demand functions under block rate pricing. Discussion Paper, CIRJE(Miyawaki K., Omori Y., Hibiki A. eds., Univ. Tokyo, 27p.), F-424
- 森口祐一, 松橋啓介 (2007) 日本の自動車を取り巻く社会情勢の将来展望, 自動車技術, 61(3), 31-36
- 新田裕史 (2006) 我が国における花粉症対策の展望, 科学技術動向, (59), 11-18
- 新田裕史 (2006) 大気中粒子状物質の動態解明と影響評価に関するプロジェクト研究の概要と成果, かんきょう, 31(8), 26-27
- Nitta H. (2006) Prospects for measures against pollinosis in Japan, Sci. Technol. Trends Q. Rev., (20), 48-58
- 新田裕史 (2007) 西暦2025年の生活と環境, 生活と環境, 53(3), 5
- 新田裕史 (2009) 大気汚染と小児呼吸器疾患, 小児科, 50(3), 347-353
- 新田裕史 (2009) 子供の健康と環境, 生活と環境, 54(6), 3
- 大原利眞 (2007) シミュレーションの概要, エアロゾルの大気環境影響 (笠原三紀夫, 東野達編, 京都大学学術出版会, 361p.), 259-262
- 大原利眞 (2007) 日本における光化学オゾンの上昇-アジアにおける排出量の増加と越境汚染の影響-, 生活と環境, 52(5), 90-95
- 大原利眞 (2007) 中国の大気汚染と日本への影響, エコノミスト, 85(66), 104-107
- 大原利眞 (2008) 越境大気汚染の日本への影響, 地理・地図資料, 2008年4月号, 4-6, 帝国書院
- 大原利眞 (2008) 中国からの越境大気汚染の日本への影響, 季刊 環境研究, 149, 41-46
- 大原利眞 (2008) アジアで増える NO<sub>x</sub> と光化学オゾン, 科学, 78, 727-728
- 小野雅司 (2007) 地球に降り注ぐ紫外線, 太陽紫外線防御研究委員会学術報告, 17(1), 29-35
- 大嶋香織里, 飯村文成, 石井康一郎, 小野雅司 (2006) 東京都内における有害紫外線モニタリング結果について, 東京都環境科学研究所年報2006 (東京都環境科学研究所編, 東京都環境科学研究所, 152p.), 111
- 菅田誠治 (2006) 数値シミュレーションによる黄砂の発生地への推定 どこから来る黄砂が増えたのか減ったのか?, かんきょう, 31(6), 26-27
- 鶴見哲也, 馬奈木俊介, 日引聡 (2007) 国際貿易と環境保護-浮遊粒子物質を対象として-, 三田学会雑誌, 100(3), 691-709
- 上原清 (2006) 沿道大気汚染の可視化, 可視化情報学会誌, 26(102), 15-20
- 

## 書籍

- 松橋啓介 (2009) Q27: 車のかしこい使い方, 国立環境研究所地球環境研究センター編著, ココが知りたい地球温暖化 (気象ブックス26), 成山堂, 163-167
- 大原利眞 (2007) 光化学オキシダント. 浮遊粒子状物質 (6編 電力と環境, 2.3.1 大気質), 財団法人 電気科学技術奨励会編, 現代 電力技術便覧, オーム社, 1100-1103
- 大原利眞 (2008) 7.2 大気環境保全対策の変遷と展開, 環境工学の新世紀 (土木学会編, 技報堂出版, 288p.), 220-233
-

## 2 口頭発表

発表者・(暦年)・題目・学会等名称・予稿集名・頁

秋山賢一, 小林伸治, 下野彰夫 (2007) エアロゾル質量分析計による道路沿道粒子成分の観測, 第48回大気環境学会年会, 岡山

秋吉英治, 吉識宗佳, 永島達也, Zhou L.B., 今村隆史, 高橋正明, 黒川純一, 滝川雅之 (2006) CCSR/NIES 化学気候モデルを用いたオゾン層の将来予測実験, 日本気象学会 2006年度春季大会, つくば

秋吉英治, 坂本圭, 永島達也, 今村隆史 (2007) 2100年までのオゾン層将来予測実験, 第17回大気化学シンポジウム, 豊川

秋吉英治, 坂本圭, 永島達也, 高橋正明, 今村隆史 (2007) CCSR/NIES 化学気候モデルを用いたオゾン層の将来予測実験, 日本地球惑星科学連合 2007年大会, 千葉

Akiyoshi H., Sakamoto K., Nagashima T., Takahashi M., Imamura T. (2007) A future prediction of the ozone layer using the CCSR/NIES Chemistry-Climate Model in the CCMVal-REF2 scenario, CCMVal Workshop 2007(Chemistry-Climate Model Validation)(Poster Session), Leeds

Akiyoshi H., Zhou L.B., Sakamoto K., Yoshiki M., Nagashima T., Takahashi M., Kurokawa J., Takigawa M., Imamura T. (2007) Delay of the antarctic polar vortex breakup time in the year 1980-1999 due to ozone depletion simulated by the CCSR/NIES CCM with the CCMVal-REF1 and -REF2 scenarios, CCMVal Workshop 2007(Chemistry-Climate Model Validation)(Poster Session), Leeds

Akiyoshi H., Sakamoto K., Nagashima T., Imamura T. (2007) Ozone variation in the years 1980-2100 calculated by the CCSR/NIES CCM in the CCMVal-REF2 scenario, IUGG 2007(24th Gen.Assem.Int.Union Geod.Geophys.), Perugia

秋吉英治, 今村隆史, 永島達也, 山下陽介, 高橋正明 (2007) 下部成層圏の等価有効塩素濃度とオゾン全量の回復時期, 日本気象学会 2007年度秋季大会, 札幌

Akiyoshi H., Sugata S., Imamura T., Nakane H. (2008) Interannual variation in the BrO-CIO ozone destruction cycle in the northern high latitude lower stratosphere associated with the Arctic polar vortex variation in 1995-97, SMILES Int. Workshop 2008, Kyoto

秋吉英治, 今村隆史, 山下陽介 (2008) 化学気候モデルを用いた極域大気の研究, 日本気象学会 2008年度春季大会, 横浜

秋吉英治, Zhou L.B., 山下陽介, 坂本圭, 吉識宗佳, 永島達也, 高橋正明, 黒川純一, 滝川雅之, 今村隆史 (2008) 1980-2004年の南極渦崩壊時期とオゾンホールとの関係, 日本気象学会 2008年度秋季大会, 仙台

Arimura T., Hibiki A., Katayama H. (2007) Is a voluntary approach an effective environmental policy instrument? A case for environmental management systems, 2007 AAEE Meet., Portland(USA)

茶谷聡, 下紳郎, 高田智至, 森川多津子, 米持真一, 梅沢夏美, 窪田勉, 関口和彦, 長谷川就一, 小林伸治 他 (2008) 2007年夏季関東における微小粒子広域観測とモデリング(8)-広域大気シミュレーションによる再現性検証-, 第49回大気環境学会年会, 金沢

藤谷雄二, 小林隆弘, 嵐谷奎一, 秋山幸雄, 樺田尚樹, 末村耕二 (2006) 曝露評価のためのナノ材料製造工場における粒子数粒径分布の測定, 第23回エアロゾル科学・技術研究討論会

藤谷雄二, 小林伸治, 鈴木明, 古山昭子, 平野靖史郎, 小林隆弘 (2006) 吸入曝露実験におけるディーゼルエンジン由来ナノ粒子の発生条件の検討, 第47回大気環境学会年会, 東京

藤谷雄二, 小林隆弘, 嵐谷奎一, 秋山幸雄, 樺田尚樹 (2006) 曝露評価のためのナノ材料製造工場における粒子数粒径分布の測定, 第47回大気環境学会年会

藤谷雄二, 小林隆弘 (2007) 曝露評価のためのナノ材料製造工場におけるエアロゾルの測定, 第24回エアロゾル科学・技術研究討論会, 和光

藤谷雄二, 小林伸治, 鈴木明, 古山昭子, 平野靖史郎, 小林隆弘 (2007) 吸入曝露実験におけるディーゼルエンジン由来ナノ粒子の物理的・化学的的症状, 第48回大気環境学会年会, 岡山

藤谷雄二, 小林隆弘, 嵐谷奎一, 樺田尚樹 (2007) 曝露評価のためのナノ材料製造工場におけるエアロゾルの測定, 第48回大気環境学会年会, 岡山

Fujitani Y., Kobayashi T. (2007) Measurement of aerosols in engineered nanomaterials factories for the risk assessment, International Symposium on Nanotechnology in Environmental Protection and Pollution

藤谷雄二, 遠藤有紀, 濱尚矢, 船戸浩二 (2008) 拡散荷電を用いたナノ粒子表面積の測定手法の検討, 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会, 金沢

藤谷雄二, 伏見暁洋, 斉藤勝美, 長谷川就一, 高橋克行, 田邊潔, 小林伸治 (2008) ディーゼル排出ナノ粒子(<30nm)の化学組成(1) 粒子個数と組成の全体像, 第49回大気環境学会年会, 金沢

Fukuda A., Fukuda T., Shirakawa Y., Kobayashi S., Masutomo R. (2007) Possibility of Promoting Clean Development Mechanism in Transport Sector in Developing Country, Thailand: A Preliminary Stage Perspective, Transportation Research Board 86th Annual Meeting, Washington, D.C

古山昭子, 小林隆弘, 平野靖史郎 (2006) 粒径の異なる粒子の肺胞沈着, 体内動態と組織リモデリングに関する検討, 第47回大気環境学会年会, 東京

古山昭子, 菅野さな枝, 平野靖史郎 (2006) ナノ粒子の肺組織透過性, 第13回日本免疫毒性学会学術大会, 倉敷

古山昭子, 藤谷雄二, 平野靖史郎 (2008) ナノ粒子を多く含むディーゼル排気曝露による酸化ストレス誘導, 第49回大気環境学会年会, 金沢

Fushimi A., Hasegawa S., Saitoh K., Fujitani Y., Takahashi K., Tanabe K., Kobayashi S. (2006) Chemical composition of nanoparticles in roadside atmosphere in Japan, 10th ETH Conf. Combust. Generated Nanoparticle(Poster Session), Zurich

伏見暁洋, 長谷川就一, 藤谷雄二, 高橋克行, 田邊潔, 小林伸治, 若松伸司 (2006) 大気中ナノ粒子の総合観測(3)有機成分, 第23回エアロゾル科学・技術研究討論会, 福岡

伏見暁洋, 落合伸夫, 家田曜世, 笹本喜久男, 長谷川就一, 高橋克行, 藤谷雄二, 田邊潔, 若松伸司, 小林伸治 (2006) 都市大気中ナノ粒子の観測と動態解明(3)加熱脱着 GCxGC/qMS による粒径別有機組成, 第47回大気環境学会年会, 東京

伏見暁洋, 小林伸治, 近藤美則, 森口祐一, 若松伸司, 田邊潔 (2007) 直接濃縮法による自動車排出ガス中 VOCs の迅速測定, 第16回環境化学討論会, 北九州

伏見暁洋, 長谷川就一, 高橋克行, 藤谷雄二, 田邊潔, 小林伸治 (2007) 加熱脱着 GC/MS による極微量粒子中の PAHs と n-アルカン定量法の確立, 第24回エアロゾル科学・技術研究討論会, 和光

伏見暁洋, 長谷川就一, 高橋克行, 藤谷雄二, 田邊潔, 小林伸治 (2007) 加熱脱着 GC/MS によるディーゼル排気由来ナノ粒子中の PAHs と n-アルカンの定量, 第48回大気環境学会年会, 岡山

伏見暁洋, 長谷川就一, 高橋克行, 藤谷雄二, 田邊潔, 小林伸治, 落合伸夫, 家田曜世, 笹本喜久男(2007) 加熱脱着 GC/MS 及び GCxGC/MS による大気中ナノ粒子の有機組成分析, 第48回大気環境学会年会, 岡山

伏見暁洋, 斉藤勝美, 藤谷雄二, 長谷川就一, 高橋克行, 田邊潔, 小林伸治 (2008) ディーゼル排出ナノ粒子(<30nm)の化学組成(3) 有機組成, 第49回大気環境学会年会, 金沢

伏見暁洋, 長谷川就一, 高橋克行, 藤谷雄二, 田邊潔, 小林伸治 (2008) 加熱脱着 GC/MS の高感度化と沿道大気中ナノ粒子(<30nm)への適用, 第49回大気環境学会年会, 金沢

伏見暁洋, 斉藤勝美, 藤谷雄二, 長谷川就一, 高橋克行, 世良耕一郎, 田邊潔, 小林伸治 (2009) ディーゼル排出ナノ粒子(<30nm)の化学組成と由来, 第15回NMC C 共同利用研究成果発表会, 盛岡

伏見暁洋, 橋本俊次, 田邊潔, 小林伸治, 家田曜世, 落合伸夫, 笹本喜久男, 星純也 (2009) 加熱脱着 GC/MS による極微量粒子中 PAHs, oxy-PAHs, nitro-PAHs, methyl-PAHs の定量に向けた基礎検討, 第18回環境化学討論会, つくば

濱名実, 川上純一, 定永靖宗, 弓場彬江, 竹中規訓, 坂東博, 高見昭憲, 畠山史郎, 鶴野伊津志 (2007) 沖縄辺戸岬での NO<sub>x</sub>, HO<sub>3</sub>濃度の連続観測と CMAQ モデルとの比較・解析, 日本地球惑星科学連合 2007年大会, 千葉

花岡小百合, 高見昭憲, 清水厚, 川名香織, 近藤豊, 畠山史郎 (2008) 福江ー沖縄間東シナ海上空におけるエアロゾル・大気汚染物質の航空機を用いたラグランジュ的観測ー速報, 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会, 金沢

長谷川就一, 伏見暁洋, 斉藤勝美, 小林伸治, 田邊潔, 藤谷雄二, 高橋克行, 若松伸司 (2006) 大気中ナノ粒子の総合観測(2)-主要成分の分析による粒子組成, 第23回エアロゾル科学・技術研究討論会, 福岡

Hasegawa S., Fushimi A., Kobayashi S., Tanabe K., Fujitani Y. (2006) Size distribution and chemical composition of nanoparticles in roadside atmosphere, 7th Int.Aerosol Conf., St.Paul(USA)

長谷川就一, 伏見暁洋, 高橋克行, 藤谷雄二, 田邊潔, 若松伸司, 小林伸治 (2006) 都市大気中ナノ粒子の観測と動態解明(2)粒径別炭素組成, 第47回大気環境学会年会, 東京

Hasegawa S., Takahashi K., Fushimi A., Jia Y.T., Duan J.C., Yang L., Shi Z.B., Ohara T., Wakamatsu S., Ma Y.L. et al. (2007) A comparison of elemental and organic carbon in the urban atmosphere of Tokyo and Beijing in four seasons, 10th Int. Conf. Atmos. Sci. Appl. Air Qual.(ASAAQ 2007), Hong Kong

長谷川就一, 伏見暁洋, 高橋克行, 藤谷雄二, 田邊潔, 小林伸治 (2007) 沿道および一般環境大気中粒子(10nm-10 $\mu$ m)の粒径別炭素成分, 第24回エアロゾル科学・技術研究討論会, 和光

長谷川就一, 速水洋, 米持真一, 梅沢夏実, 大原利真 (2007) 関東地方で夏季に観測された高濃度エアロゾルの化学組成, 第48回大気環境学会年会, 岡山

長谷川就一, 板野泰之, 紀本岳志, 若松伸司 (2007) 大阪における大気エアロゾルの総合観測-含炭素粒子の日内変動と季節変化-, 第48回大気環境学会年会, 岡山

長谷川就一, 伏見暁洋, 高橋克行, 藤谷雄二, 田邊潔, 小林伸治 (2007) 幹線道路沿道における大気中炭素成分粒子の粒径分布, 第48回大気環境学会年会, 岡山

Hasegawa S., Fushimi A., Takahashi K., Fujitani Y., Tanabe K., Kobayashi S. (2008) Size-resolved carbonaceous particles in roadside and ambient atmosphere in Japan, 9th Int. Conf. Carbonaceous Particles Atmos., Berkeley

長谷川就一, 高橋克行, 西川雅高 (2008) PM<sub>2.5</sub>濃度測定におけるアーティファクトの影響検討, 第49回大気環境学会年会, 金沢

長谷川就一, 高橋克行, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 田邊潔, 小林伸治 (2008) 沿道における大気中ナノ粒子濃度と炭素成分の経年変化, 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会, 金沢

長谷川就一, 高見昭憲, 窪田勉, 関口和彦, 坂本和彦, 高田智至, 下紳郎, 下野彰夫, 疋田利秀, 米持真一 他 (2008) 2007年夏季関東における微小粒子広域観測とモデリング(4)-炭素成分の時間的・空間的挙動-, 第49回大気環境学会年会, 金沢

長谷川就一, 小林伸治, 大原利真, 田邊潔, 速水洋, 米持真一, 梅沢夏実, 飯島明宏, 熊谷貴美代 (2008) 2007年夏季関東における微小粒子広域観測とモデリング(1)-観測概要-, 第49回大気環境学会年会, 金沢

Hatakeyama S., Takami A., Wang W. (2006) Aircraft observations of air pollutants around large cities in China, 8th Int. Symp. BUEE 2006, Tokyo

畠山史郎, 高見昭憲, Wang W. (2006) 中国上空の航空機観測によるエアロゾルの観測, 公開シンポジウム エアロゾルの大気環境影響, 京都

畠山史郎, 今井孝典, 滝口善洋, 高見昭憲 (2006) 沖縄辺戸岬における EC/OC の長期観測, 第23回エアロゾル科学・技術研究討論会, 福岡

Hatakeyama S., Takami A., Imai T., Takiguchi Y. (2006) Changes of composition of aerosols measured at Cape Hedo, Okinawa after Long-range transport from the East Asia with Asian Dust, Int. Workshop Reg. Ecol. Environ. Eff., Beijing

Hatakeyama S., Takami A., Takiguchi Y. (2006) Establishment of Japanese super site, Cape Hedo Atmosphere and Aerosol Monitoring Station(CHAAMS) and measurements of nitrate there in 2006, 8th AANESWM, Chennai(India)

畠山史郎, 高見昭憲, 王偉 (2007) 中国国内と日本におけるエアロゾルイオン成分濃度の比較, 第17回大気化学シンポジウム, 豊川

Hatakeyama S., Takami A., Wang W., Aizawa J. (2007) Aerosol chemical constituents observed in aerial observations in China and simultaneous ground-based observations, 日本地球惑星科学連合 2007年大会, 千葉

畠山史郎, 高見昭憲, Wang W., 相澤順子 (2007) 中国における大気汚染物質の航空機観測とこれに同期した地上観測(2006年4-5月)におけるエアロゾル化学成分の特徴, 日本地球惑星科学連合 2007年大会, 千葉

畠山史郎, 高見昭憲, 相澤順子, Wang W. (2007) 2006年春の中国における大気・エアロゾルの航空機および地上観測, 第24回エアロゾル科学・技術研究討論会, 和光

畠山史郎, 高見昭憲, ワン ウェイ, 相澤純子 (2007) 中国北京・天津周辺における大気汚染物質の航空機観測と地上観測, 第48回大気環境学会年会, 岡山

畠山史郎, 高見昭憲, 清水厚, 杉本伸夫, 近藤豊, 加藤俊吾, 梶井克純 (2008) 中国北東部と福江・沖縄における航空機・地上観測による長距離輸送間の汚染質の変質過程観測, 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会, 金沢

畠山史郎, 花岡小百合, 高見昭憲, 近藤豊, 佐藤圭 (2008) 福江-沖縄間東シナ海上空におけるエアロゾル・大気汚染物質の観測, 第49回大気環境学会年会, 金沢

速水洋, 長谷川就一, 米持真一, 梅沢夏実, 飯島明宏, 熊谷貴美代 (2008) 大気質モデルにおける二次生成無機粒子のモデリングと予測性能, 第49回大気環境学会年会, 金沢

早崎将光, 足立幸穂, 菅田誠治, 西川雅高, 大原利眞, 若松伸司 (2006) 2006年春季の黄砂飛来時における高濃度 SPM の空間分布と時間変動, 第47回大気環境学会年会, 東京

早崎将光, 黒崎泰典, 樋口篤志, 足立幸穂, 菅田誠治, 西川雅高, 大原利眞, 若松伸司 (2006) 2006年4月8日の黄砂をもたらした前線の空間構造と時間発展, 日本気象学会 2006年度秋季大会, 名古屋

早崎将光, 西川雅高, 菅田誠治 (2007) 黄砂飛来時の SPM 濃度と視程の関係, 第24回エアロゾル科学・技術研究討論会, 和光

早崎将光 (2007) Ox および SPM の環境基準達成状況の過去・現在・常時監視局 1 時間値から得られる情報-, 第48回大気環境学会年会, 岡山

早崎将光, 大原利眞, 宮下七重 (2007) 2007年5月に発生した広域的な光化学オキシダント汚染 (1)観測データ解析, 第48回大気環境学会年会, 岡山

早崎将光, 菅田誠治, 大原利眞 (2008) 浮遊粒子状物質および光化学オキシダントの広域高濃度現象の時空間変動, 第49回大気環境学会年会, 金沢

Hibiki A., Managi S. (2006) Environmental information provision, market valuation and firm incentives: empirical analysis in Japan, CORE 1st Conf., Milano(Italy)

Hibiki A., Managi S. (2006) Dose housing market in Japan respond to the disclosure of the information on the release and transfer of chemical substances from the facility?, 3rd World Congr. Environ. Resour. Econ., Kyoto

Hibiki A., Managi S. (2006) Environmental information provisions, valuation of the market and Firm's incentive: empirical analysis of PRTRs in Japan, ISEIM 2006, Corte-Ajaccio(France)

Hibiki A., Shimane T. (2006) Empirical study on determination of household solid waste and the effect of the unit pricing in Japan, ISEIM 2006, Corte-Ajaccio(France)

日引聡, 島根哲哉 (2006) 空間的自己相関モデルによるごみ処理手数料化のごみ排出削減効果の計量分析, 日本経済学会 2006年度秋季大会, 大阪

Hibiki A., Arimura T.H., Takeba N. (2007) An empirical study of the effects of the exhaust gas regulation on R&D and the productivity of the Japanese auto industry, Environ. Innovation Perfom. Conf., Grenoble

Hibiki A., Shimane T. (2008) Empirical study on determinants of household solid waste and the effect of the unit pricing in Japan, 2008 Int. Conf. Manage. Sci. Decision Making, Ching-sheng

Hibiki A., Managi S., Tsurumi T. (2008) Does trade liberalization raise environmental quality?, 83rd Annu. Conf. Western Econ. Assoc. Int., Honolulu

Hibiki A., Managi S., Tsurumi T. (2009) Does trade openness raise environmental quality?, 2009 Am. Econ. Assoc./Allied Soc. Sci. Assoc., San Francisco

日引聡, 馬奈木俊介, 鶴見哲也 (2009) Does trade openness improve environmental quality?, 日本経済学会 2009年度秋季大会, 京都

日置正, 紀本岳志, 大原利眞, 若松伸司 (2008) 大阪における大気エアロゾルの総合観測-粒径別金属元素濃度比の日内変動と季節変動(2), 第49回大気環境学会年会, 金沢

日置正, 紀本岳志, 長谷川就一, 大原利眞, 向井人史, 若松伸司 (2008) 松山, 大阪, つくばで同時観測した浮遊粉じん中金属元素濃度比による長距離輸送と地域汚染の解析, 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会, 金沢

平林幹啓, 高橋克行, 米田穰, 田邊潔, 柴田康行, 西川雅高, 坂本和彦 (2006) 都市域大気粉じん中の放射性炭素同位体比の季節変動, 日本分析化学会 第55年会, 大阪

平林幹啓, 高橋克行, 米田穰, 田邊潔, 柴田康行, 西川雅高, 坂本和彦 (2006) 都市域大気粉じん中の放射性炭素同位体比の季節変動, 国立環境研究所加速器分析施設 NIES-TERRA 設立10周年記念シンポジウム, つくば

Hirabayashi M., Matsuo M., Hasegawa S., Kobayashi S., Tanabe K. (2007) Elemental analysis of airborne fine particles collected at roadside of an arterial road, 12th Int. Conf. Mod. Trends Act. Anal., Tokyo

Honda Y., Ono M., Kabuto M. (2006) Do we adapt to a new climate as the globe warms-, Int. Conf. Environ.



## Epidemiol. Exposure, Paris

家田曜世, 落合伸夫, 笹本喜久男, 伏見暁洋, 長谷川就一, 田邊潔, 小林伸治 (2006) 直接加熱導入 GCxGC-qMS による沿道大気中ナノ粒子の分析(2)-PAHs の高感度分析-, 第15回環境化学討論会, 仙台

Ieda T., Ochiai N., Sasamoto K., Fushimi A., Hasegawa S., Tanabe K., Kobayashi S. (2007) Determination of PAHs in atmospheric size-resolved particles by direct thermal desorption and comprehensive two dimensional gas chromatography coupled to quadrupole mass spectrometer, 30th ISCC & 4th GCxGC Symp.(Poster Session), Dalian(China)

Ieda T., Ochiai N., Sasamoto K., Fushimi A., Hasegawa S., Tanabe K., Kobayashi S., Hoshi J., Amano S., Sasaki Y. (2007) Determination of PAHs in atmospheric particles by direct thermal desorption and comprehensive two dimensional gas chromatography coupled to quadrupole mass spectrometer, 27th Int. Symp. Halogenat. Persistent Org. Pollut.-DIOXIN 2007(Poster Session), Organohalogen Compd., 69, Tokyo

家田曜世, 落合伸夫, 笹本喜久男, 橋本俊次, 伏見暁洋, 高澤嘉一, 田邊潔, 星純也, 天野冴子, 佐々木裕子 (2008) 直接加熱導入 GCxGC-高分解能 TOF-MS による大気粒子中 PAHs の分析, 第17回環境化学討論会, 同講演要旨集, 752-753

飯島明宏, 米持真一, 速水洋, 熊谷貴美代, 高橋克行, 田邊潔, 大原利眞, 長谷川就一 (2008) 2007年夏季関東における微小粒子広域観測とモデリング(6)-リセプターモデルを用いた PM<sub>2.5</sub>発生源の割り当て-, 第49回大気環境学会年会, 金沢

飯村文成, 飯田信行, 山川和彦, 田村義男, 若松伸司, 大原利眞, 国環研 C 型共同研究グループ (2006) 日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究 (5)-光化学オキシダント高濃度域とヒートアイランドの関係-, 第47回大気環境学会年会, 東京

猪俣敏, 今村隆史, 鷺田伸明 (2006) 光イオン化質量分析計を用いた HO<sub>2</sub>, CH<sub>3</sub>O<sub>2</sub>ラジカルと NO の反応速度定数の再決定, 第22回化学反応討論会, 岡崎

磯崎輔, 今村隆史 (2008) LIF 法を用いた CH<sub>3</sub>O+O<sub>2</sub>反応速度に対する H/D 同位体効果の測定, 第14回大気化学討論会, 横浜

磯崎輔, 今村隆史 (2009) 重水素置換した CH<sub>3</sub>O ラジカルと O<sub>2</sub>の反応に対する動的同位体効果, 日本化学会第89春季年会, 船橋

Isozaki T., Imamura T. (2009) Kinetic Isotope Effects in the Reactions of Deuterated CH<sub>3</sub>O Radicals with O<sub>2</sub>, 第25回化学反応討論会, さいたま

板野泰之, 山川和彦, 田村義男, 若松伸司, 大原利眞, 国環研 C 型共同研究グループ (2006) 日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究(4)-オゾンの週末効果の検証-, 第47回大気環境学会年会, 東京

板野泰之, 山神真紀子, 大原利眞 (2008) 光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性解明に関する研究(7)-ポテンシャルオゾンを用いた日本におけるオゾンの季節変化パターンの地域的な違いとその経年変化の解析-, 第49回大気環境学会年会, 金沢

Kanaya Y., Akimoto H., Tanimoto H., Yokouchi Y., Koike M., Fukuda M., Takegawa N., Komazaki Y., Kondo Y. (2006) Photochemical oxidant production rates in Tokyo in winter and summer 2004: Estimations from observed OH/HO<sub>2</sub> radical concentrations, Jt. IGAC/CACGP/WMO Symp., Cape Town

神田勲, 上原清, 山尾幸夫, 大原利眞, 新田裕史 (2006) 風洞実験による幹線道路沿道の大気汚染濃度評価-地域間比較-, 第47回大気環境学会年会, 東京

神田勲, 上原清, 山尾幸夫, 大原利眞 (2007) 風速スペクトルに基づいた大気汚染予測モデルの開発 その1, 第48回大気環境学会年会, 岡山

神田勲 (2008) 風速スペクトルに基づいた大気汚染予測モデルの開発 その2, 第49回大気環境学会年会, 金沢

神田勲, 山尾幸夫 (2008) 風洞実験による都市キャノピー内外における拡散の研究, 第49回大気環境学会年会, 金沢

兼保直樹, 高見昭憲, 畠山史郎 (2008) 沖縄辺戸および小笠原父島における sulfate/black carbon 濃度比の変化, 第49回大気環境学会年会, 金沢

神成陽容, 大原利眞 (2007) オゾン週末効果に関する拡張解析, 第48回大気環境学会年会, 岡山

Kannari A., Ohara T. (2008) A long term trend of VOC's photochemical reactivity in Japan, IGAC 10th Int. Conf., Annecy

- 神成陽容, 大原利眞 (2008) VOC 発生源の光化学反応性の長期変化, 第49回大気環境学会年会, 金沢
- 荻田香苗, 田村憲治, 船渡川伊久子, 矢野栄二 (2006) 車道走行中の大気汚染曝露評価(2)-バンコク市の各種運転手の曝露レベル-, 第65回日本公衆衛生学会総会, 富山
- 河村公隆, 渡辺智美, Wang G., 持田陸宏, 畠山史郎, 高見昭憲, Wang W. (2006) 中国上空エアロゾル中の水溶性ジカルボン酸, n-アルカン, PAH, 脂肪酸, 糖類の高度分布と季節変化の特徴, 第12回大気化学討論会, 山形
- Kawamura K., Watanabe T., Mochido M., Hatakeyama S., Takami A., Wang W. (2006) Aircraft observations of water-soluble dicarboxylic acids in the aerosols over China, Atmos. Chem. Inertfaces 2006(Poster Session), Cape Town
- 紀本英志, 長谷川就一, 大気エアロゾル成分連続測定法開発グループ (2007) 大阪における大気エアロゾルの総合観測-光学的元素状炭素成分の測定-, 大気環境学会第48回年会, 岡山
- Kobayashi S., Hasegawa S., Takahashi K., Fushimi A., Tanabe K., Fujitani Y. (2006) Measurements of ultrafine particles in the roadside and urban atmospheres, 10th ETH Conf. Combust. Generated Nanoparticle(Poster Session), Zurich
- 小林伸治, 長谷川就一, 近藤美則, 伏見暁洋, 田邊潔 (2007) 排気後処理装置付ディーゼル車からの NO<sub>2</sub>排出特性, 自動車技術会 2007春季大会学術講演会, 横浜
- 小林伸治 (2007) 自動車から排出されるナノ粒子の環境動態, 第18回日本内分泌攪乱化学物質学会講演会, 東京
- 小林伸治 (2007) 排気後処理装置付ディーゼル車からの NO<sub>x</sub>, PM 排出特性 (2007) 第48回大気環境学会年会, 岡山
- 小林伸治 (2008) 変わりゆく都市の大気環境-微小粒子・二次生成物質の影響評価と予測-, 国立環境研究所公開シンポジウム2008, ポスター発表, 東京, 札幌
- 小林伸治 (2008) 最新ディーゼル車のコールドスタート時における排出ガス, 第49回大気環境学会年会, 金沢
- Koike M., Kuwata M., Kondo Y., Miyazaki Y., Kodama D., Yum S.S., Tanimoto H., Matsueda H. (2006) Factors controlling the CCN number concentrations at north of East China Sea in spring 2005, Jt. IGAC/CACGP/WMO Symp.(Poster Session), Cape Town
- 近藤美則, 田村憲治, 長谷川就一, 山崎新, 唐寧, 鳥羽陽 (2006) 走行車両の車内外の PM 濃度変化の測定 東京および中国瀋陽における基礎調査, 第47回大気環境学会年会, 東京
- Kondo Y., Kagawa S., Yamada M., Tachio K. (2007) Inter-regional waste input-output model and best available eco-efficiency of regional and nationwide economy, 4th Int. Conf. Int. Soc. Ind. Ecol., ISIE, Toronto
- Kondo Y., Kudoh Y., Kato H., Matsushashi K., Kobayashi S. (2007) Evaluation of commercial small-sized battery electric vehicle in actual use, 23rd Int. Battery, Hybrid Fuel Cell Electr. Veh. Symp. Expo.(EVS23), Anaheim
- Kondo Y., Takegawa N., Hu M., Miyazaki Y., Sugimoto N., Zhang Y. (2008) Temporal variation of fine aerosol in PRD in 2006, 2nd Workshop Mega-City Regi. Air Pollut., Guangzhou
- 近藤美則, 田村憲治, 新田裕史, 小林伸治, 櫻井四郎 (2008) 都市幹線道路周辺の歩行中における PM 曝露(3)窒素酸化物曝露濃度との関係, 第49回大気環境学会年会, 金沢
- 近藤美則, 加藤秀樹 (2009) 電動自転車の環境負荷削減効果, エネルギー・資源学会 第25回エネルギーシステム・経済・環境コンファレンス, 東京
- 窪田勉, 関口和彦, 坂本和彦, 荻野浩之, 高見昭憲, 長谷川就一, 小林伸治, 高田智至, 下紳郎, 下野彰夫, 疋田利秀, 速水洋 (2008) 2007年夏季関東における微小粒子広域観測とモデリング(3)-AMS を用いた騎西ならびに前橋での粒子成分挙動の解析-, 第49回大気環境学会年会, 金沢
- Kudoh Y., Matsushashi K., Kondo Y., Kobayashi S., Moriguchi Y., Yagita H. (2006) Statistical analysis of fuel consumption of hybrid electric vehicles in Japan, 22nd Int. Battery, Hybrid Fuel Cell Electr. Veh. Symp. Expo., Yokohama
- Kudoh Y., Nansai K., Kondo Y., Tahara K. (2007) Life cycle CO<sub>2</sub> emissions of FCEV, BEV and GV in actual use, 23rd Int. Battery, Hybrid Fuel Cell Electr. Veh. Symp. Expo.(EVS23), Anaheim
- Lun X., Takami A., Miyoshi T., Hatakeyama S. (2007) Long-rang transport of organic aerosol from continental origin Cape-Hedo, Japan, 第17回大気化学シンポジウム, 豊川
- Managi S., Hibiki A. (2006) International trade, economic growth and the environment in north and south, Int. Conf. Econ. Poverty, Environ. Resour. Use, Wageningen(Netherlands)

- 馬奈木俊介, 鶴見哲也, 日引聡 (2006) 貿易自由化が環境へ及ぼす影響の実証研究, 環境科学会2006年会, 東京
- Managi S., Hibiki A., Tsurumi T. (2006) International trade and the environment: Is trade openness good for the environment?, 9th Int. Soc. Ecol. Econ.(ISEE 2006), New Delhi
- Managi S., Hibiki A., Tsurumi T. (2007) International trade and the environment, Empirical Invest. Trade Investment Conf., Tokyo
- Matsuda A., Hibiki A. (2006) Environmental behavior of the firm and financial market evaluation, AERNA 2006(Span.-Port. Assoc. Natl. Resour. Environ. Econ.), Lisbon
- 松橋啓介 (2007) 2050年までに日本の運輸部門 CO<sub>2</sub>を約70%削減する対策について, 第1回つくば3E フォーラム, つくば
- 松橋啓介, 工藤祐揮 (2007) 2050年の脱温暖化社会実現に向けた LRT の役割, 第2回人と環境にやさしい交通をめざす全国大会, 京都
- 松橋啓介 (2008) 脱温暖化社会に向けた交通とまちづくり, 環境の視点から札幌の交通を考える市民セミナー, 札幌
- 松橋啓介 (2008) 2050年の低炭素社会における日本の交通の姿について, もったいない学会第10回サロン講演会, 東京
- 松橋啓介 (2008) 人と交通と地域はどこに向かうのか, 第2回つくば3E フォーラム, つくば
- 松橋啓介 (2008) 交通部門の CO<sub>2</sub>排出量推計と削減策, 第3回新地方公共団体実行計画策定マニュアル等改訂検討会, 東京
- 松橋啓介 (2009) 技術革新と行動変化の組み合わせによる交通部門の二酸化炭素削減, 環境省地球環境研究総合推進費(S-3)「脱温暖化2050プロジェクト」ワークショップ, つくば
- 松井仁志, 小池真, 近藤豊, 竹川暢之, 宮川拓真, 河村公隆, 大原利真, 菅田誠治 (2006) 3次元モデルによる都市大気中の2次有機エアロゾルの再現性と生成・変動について, 第12回大気化学討論会, 山形
- 松井仁志, 小池真, 近藤豊, 竹川暢之, 宮川拓真, 大原利真, 菅田誠治 (2007) 3次元モデルを用いた関東域における2次有機エアロゾルの変動過程について, 日本地球惑星科学連合 2007年大会, 千葉
- 松本幸雄, 原沢英夫, 椿貴博, 佐々木寛介, 田村憲治 (2006) 温暖化にともなうオキシダント濃度の変化と健康影響の予測-東京, 大阪周辺を例に-, 第47回大気環境学会年会, 東京
- 三浦和彦, 岡本大佑, 小林拓, 五十嵐康人, 古谷浩志, 岩本洋子, 成田祥, 植松光夫, 福田秀樹, 高見昭憲 (2008) 海洋および山岳大気ナノ粒子の粒径分布(2), 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会, 金沢
- Miyawaki K., Omori H., Hibiki A. (2006) Bayesian estimation of demand functions under block rate pricing, Recent Adv. Appl. Econ., Jpn. Stat. Soc. 75th Anniv. Symp., Tokyo
- 宮脇幸治, 大森裕浩, 日引聡 (2006) Bayesian estimation of demand functions under block rate pricing, 2006年度統計関連学会連合大会, 仙台
- Mochida M., Nishita C., Aggarwal S.G., Kitamori Y., Kawamura K., Miura K., Takami A., Hatakeyama S. (2008) Comparison between the hygroscopicity and cloud condensation nuclei activity of atmospheric aerosol particles at Cape Hedo, Okinawa, 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会, 金沢
- 森淳子, 山川和彦, 田村義男, 若松伸司, 大原利真, 国環研 C 型共同研究グループ (2006) 日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究(1)-昼夜時間帯別解析によるオキシダント濃度の全国的状況-, 第47回大気環境学会年会, 東京
- 森野悠, 近藤豊, 菅田誠治, 大原利真, 竹川暢之, 駒崎雄一, 福田真人, 宮川拓真, 北和之 (2007) 都市大気中での硝酸および硝酸塩エアロゾルの生成・消失過程, 第17回大気化学シンポジウム, 豊川
- Morino Y., Kondo Y., Ohara T., Sugata S., Takegawa N., Miyakawa T., Fukuda M. (2007) Production, transport, and removal of HNO<sub>3</sub> and particulate nitrate over Tokyo, 10th Int. Conf. Atmos. Sci. Appl. Air Qual.(ASAAQ 2007), Hong Kong
- 森野悠, 近藤豊, 大原利真, 菅田誠治, 竹川暢之, 福田真人 (2007) 首都圏における硝酸及び硝酸塩エアロゾルの生成, 消失, 輸送過程, 日本地球惑星科学連合 2007年大会, 千葉
- 森野悠, 大原利真, 近藤豊, 竹川暢之, 宮川拓真 (2007) 夏季のエアロゾル高濃度イベントにおける二次有機エアロゾルのシミュレーション, 第13回大気化学討論会, 名古屋
-

森野悠, 大原利眞, 長谷川就一, 高見昭憲, 窪田勉, 関口和彦, 坂本和彦, 小林伸治, 田邊潔 (2008) 2007年夏季関東における微小粒子広域観測とモデリング(7)-3次元モデルで計算される有機炭素収支, 第49回大気環境学会年会, 金沢

森野悠, 近藤豊, 大原利眞, 菅田誠治, 竹川暢之, 福田真人 (2008) 3次元化学輸送モデルで計算された, 夏季関東域におけるオゾン生成レジームの変化, 第14回大気化学討論会, 横浜

Morino Y., Kondo Y., Ohara T., Sugata S., Takegawa N., Fukuda M., (2008) Ozone production over the Tokyo Metropolitan Area: Physical and chemical processes simulated by Community Multiscale Air Quality model (CMAQ), A34C-08, AGU fall meeting 2008, San Francisco

森田英和, 早川眞, 上原清 (2007) 外壁線の後退した容積率緩和の高層建物が周辺空気質に及ぼす影響, 2007年度日本建築学会大会学術講演会, 福岡

Myojo T., Ono-Ogasawara M., Kobayashi S. (2006) A nano-particle sampler using a differential mobility analyzer and its application, 7th International Aerosol Conference, St. Paul

中山智喜, 松見豊, 山崎明宏, 内山明博, 佐藤圭, 今村隆史 (2009) 二次有機エアロゾルは BrownCarbon となりうるか? : 光吸収特性の実験的研究, 日本地球惑星科学連合 2009年大会, 千葉

Narukawa M., Matsumi Y., Matsumoto J., Takahashi K., Yabushita A., Sato K., Imamura T. (2006) Heterogeneous compositions of secondary organic aerosols formed in environmental chamber: analysis by laser ionization time-of-flight mass spectrometry, 7th Int. Aerosol Conf., St. Paul

Naser T.M., Kanda I., Ohara T., Sakamoto K., Nitta H. (2008) Analysis of Traffic-related air pollutants at various distances from major roads in Japan, 第49回大気環境学会年会, 金沢

Nitta H., Ohara T., Ono M., Sato T., Shima M., Nakadate T. (2006) Traffic-related air pollution exposures and respiratory health: A study design of the schoolchildren cohort in the SORA project, Int. Conf. Environ. Epidemiol. Exposure(Poster Session), Paris

新田裕史, 大原利眞, 小野雅司, 佐藤俊哉, 島正之, 中館俊夫 (2006) 学童コホート調査における曝露評価と解析計画, 第47回大気環境学会年会, 東京

新田裕史, 島正之, 山崎新 (2006) 微小粒子状物質の健康影響に関する疫学研究-長期影響調査の実施状況(第4報)-, 第47回大気環境学会年会, 東京

新田裕史, 大原利眞, 小野雅司, 佐藤俊哉, 島正之, 中館俊夫 (2007) 局地的大気汚染の健康影響に関する疫学調査(さらプロジェクト): 学童コホート調査のベースライン調査結果と進捗状況, 第48回大気環境学会年会, 岡山

新田裕史, 大原利眞, 小野雅司, 佐藤俊哉, 島正之, 中館俊夫 (2007) 局地的大気汚染の健康影響に関する疫学調査(さらプロジェクト): 曝露評価の手法, 第48回大気環境学会年会, 岡山

新田裕史 (2007) 大気汚染と小児呼吸器疾患, 第40回日本小児呼吸器疾患学会, 日本小児呼吸器疾患学会雑誌, 18 (Supplement), 大阪

新田裕史, 大村佳代, 友利直子, 小野雅司 (2008) 日本における微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)の死亡率に対する影響: 地域特性による影響修飾の検討, 第49回大気環境学会年会, 金沢

野津剛, 老川進, 上原清 (2007) 大気安定度とが可燃性ガスの短時間拡散性状に及ぼす影響(その2)数値解析と風洞実験の比較(平均濃度場), 第48回大気環境学会年会, 岡山

Ochiai N., Sasamoto K., Ieda T., Fushimi A., Hasegawa S., Kobayashi S., Tanabe K. (2006) Comprehensive two dimensional gas chromatography coupled with high-resolution time-of-flight mass spectrometry for characterization of nanoparticles in roadside atmosphere, 29th Int. Symp. Capillary Chromatogr. 3rd GC×GC Symp.(Poster Session), River of Garda(Italy)

落合伸夫, 家田曜世, 笹本喜久男, 伏見暁洋, 長谷川就一, 田邊潔, 小林伸治 (2006) 直接加熱導入 GC×GC-qMS による沿道大気中ナノ粒子の分析(1)-キャラクタリゼーション-, 第15回環境化学討論会, 仙台

落合伸夫, 伏見暁洋 (2006) GC×GC-MS の環境分析への適用, 第9回日本水環境学会シンポジウム, 東京

落合伸夫, 家田曜世, 笹本喜久男, 伏見暁洋, 橋本俊次, 長谷川就一, 田邊潔, 小林伸治 (2007) 直接加熱導入 GC×GC-MS による沿道大気中ナノ粒子の分析 その3-高分解能 TOF-MS と NPD/qMS によるキャラクタリゼーション-, 第16回環境化学討論会, 北九州

Ochiai N., Ieda T., Sasamoto K., Fushimi A., Hasegawa S., Tanabe K., Kobayashi S. (2007) Characterization of organic compounds in atmospheric nanoparticles by thermal desorption -GC×GC coupled to high-resolution time-of-flight mass spectrometry, 27th Int. Symp. Halogenat. Persistent Org. Pollut.-DIOXIN 2007(Poster

Session), Organohalogen Compd., 69, Tokyo

落合伸夫, 家田曜世, 笹本喜久男, 橋本俊次, 高澤嘉一, 伏見暁洋, 田邊潔 (2009) スターバー抽出—GCxGC—高分解能 TOF-MS による水中の POPs の超高感度分析その 2 一定量精度の検討一, 第18回環境化学討論会, つくば

Ohara T. (2006) Emission and transport of air pollutants in East Asia, Tsukuba Workshop Appl. Multimedia Models Identification Pres. Org. Pollut. East Asian Ctry., Tsukuba

大原利眞, 秋元肇, 黒川純一, 山地一代, 堀井伸浩, 早坂忠裕 (2006) 中国における人為起源排出量のトレンド解析と将来予測, 第47回大気環境学会年会, 東京

大原利眞, 新田裕史, 田村憲治, 神田勲, 長谷川就一, 上原清, 片山学, 坂本和彦, 中井里史, 横田久司 (2006) 学童コホート調査の屋外濃度推計モデルと環境測定, 第47回大気環境学会年会(特別集会), 東京

大原利眞, 谷本浩志 (2006) 東アジア地域における大気環境問題の特徴と研究の必要性・緊急性, 第47回大気環境学会年会(特別集会), 東京

大原利眞, 望月江里佳 (2006) ネスト CMAQ による関東地域における PM<sub>2.5</sub>の年間シミュレーション, 第47回大気環境学会年会, 東京

大原利眞 (2006) 日本の光化学オキシダントの現状と最近の解析結果, 大気環境学会 第33回近畿支部シンポジウム, 大阪

Ohara T., Yamaji K., Uno I., Tanimoto H., Sugata S., Nagashima T., Kurokawa J., Horii N., Akimoto H. (2007) Long-term simulations of surface ozone in East Asia during 1980-2020 with CMAQ and REAS inventory, ITM 2007: 29th NATO/SPS Int. Tech. Meet. Air Pollut. Modelling its Appl., Aveiro( Portugal)

大原利眞 (2007) 光化学オキシダントと浮遊粒子状物質の全国的・地域的特性, 第48回大気環境学会年会, 岡山

大原利眞, 鶴野伊津志, 黒川純一, 早崎将光 (2007) 2007年5月に発生した広域的な光化学オキシダント汚染 (2)モデル解析, 第48回大気環境学会年会, 岡山

大原利眞, 黒川純一, 片山学, 鶴野伊津志, 山地一代, 秋元肇 (2007) CMAQ/REAS による1980-2003年の東アジアにおける地表オゾンの長期シミュレーション, 第48回大気環境学会年会, 岡山

大原利眞 (2007) 光化学オゾンの最近の特徴-今春の高濃度エピソードを中心として-, 日本気象学会 2007年度秋季大会(オゾン研究連絡会), 札幌

大原利眞 (2008) 光化学オキシダント-最近の動向と今後について-, 大気環境学会九州支部第8回研究発表会(特別講演), 福岡

Ohara T., Sugata S., Kurokawa J., Morino Y., Miyashita N. (2008) Chemical weather forecasting system at the National Institute for Environmental Study: Part 1, introduction, Workshop Chem. Weather Forecasting Online Modeling, Yokohama

大原利眞, 黒川純一, 秋元肇, 山地一代, 堀井伸浩, 早坂忠裕 (2008) 東アジアにおけるオゾン前駆物質排出量の経年変化と将来予測, 日本農業気象学会 2008年度全国大会, 下関

大原利眞 (2008) 東アジアの越境大気汚染, 大気環境学会植物分科会講演会「東アジアの越境大気汚染と植物影響」, 東京

大原利眞 (2008) 東アジア地域から日本への越境大気汚染, 大気環境学会シンポジウム「東アジア地域における国際的な環境負荷の移転と日本の役割」, 東京

大原利眞 (2008) 排出インベントリ REAS(2008)アジア域における1980~2020年の大気汚染排出量の変化, 大気環境学会都市大気環境モデリング/発生源対策分科会講演会「国内外排出量インベントリの現状とその評価」, 東京

Ohara T. (2008) Integrated approach to air quality Management-Development of research tools in East Asia, 9th Senior Tech. Managers Meet. Acid Deposition Monit. Network East Asia(EANET/STM 9), Niigata

Ohara T. (2008) Long-term increase of urban ozone in Japan: Possibility of impacts by transboundary air pollution from Asian continent, 第49回大気環境学会年会, 金沢

Ohara T. (2008) Trend and future projection of Nox and VOC emissions in East Asia, Tripartite Workshop Sci. Res. Photochem. Ozone, Tokyo

大原利眞 (2008) 光化学オキシダント・対流圏オゾン濃度の上昇トレンドの要因について, 第29回酸性雨問題研究会シジウムポム「対流圏オゾンを巡る大気環境研究の現状」, 東京

---

大原利眞, 黒川純一, 鶴野伊津志 (2008) 東アジアにおける春季オゾンの年々変動とその気象要因, 第49回大気環境学会年会, 金沢

Ohara T. (2008) Historical trend and future projection of anthropogenic emissions in East Asia, Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution(TF-HTAP), Hanoi

大原利眞 (2008) 国境を越える大気汚染, 第67回日本公衆衛生学会総会サテライトシンポジウム1「極東アジア地域の環境汚染拡大の現状と対策の国際共同化にむけて」, 福岡

大原利眞 (2008) 東アジアにおける広域大気汚染と日本への影響, 大気環境学会中部支部学術講演会, 富山

老川進, 上原清 (2006) 大気安定度が可燃性ガスの短時間拡散性状に及ぼす影響, 第47回大気環境学会年会, 東京

老川進, 上原清 (2006) 可燃性ガス漏洩時の短時間拡散性状に及ぼす大気安定度の影響(風洞実験), 2006年度日本建築学会大会学術講演会, 横浜

老川進, 上原清 (2007) 大気安定度が可燃性ガスの短時間拡散性状に及ぼす影響(その3)パスキル安定度と風速分布, 第48回大気環境学会年会, 岡山

老川進, 上原清 (2007) 大気安定度が可燃性ガスの短時間拡散性状に及ぼす影響(その4)漏洩ガス塊の細片化と大気安定度, 第48回大気環境学会年会, 岡山

老川進, 上原清 (2007) 大気安定度が漏洩ガス塊の分裂, 細片化に及ぼす影響, 2007年度日本建築学会大会学術講演会, 福岡

大村佳代, 新田裕史, 小野雅司 (2008) 日本における微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)の死亡率に対する影響:統計手法の比較, 第49回大気環境学会年会, 金沢

Omura K., Ono M., Takeuchi A., Nitta H. (2008) The effects of fine particulate matter on daily mortality for specific heart diseases in Japan, ISEE/ISEA 2008 Jt. Annu. Conf., Pasadena

大村佳代, 新田裕史, 小野雅司 (2008) 気温と日死亡の関係(2008)線形スプラインを用いたリスクと高気温・低気温閾値の検討, 第67回公衆衛生学会総会, 福岡

大村佳代, 新田裕史, 小野雅司 (2009) 微小粒子状物質の心疾患死亡に対する影響~曝露から死亡に至る時間経過~, 第19回日本疫学会学術総会, 金沢

Ono M., Honda Y., Moriguchi Y., Odajima H., Ohara T., Shima M., Tanaka T. (2006) Environmental health surveillance system in Japan -Air pollution and children's health-, Int. Conf. Environ. Epidemiol. Exposure(Poster Session), Paris

小野雅司, 清水明, 津田憲次 (2006) 連続観測結果に基づく WBGT 温度推定, 第45回日本生気象学会大会, 京都

Ono M., Machida T. (2006) UV monitoring in Japan, 3rd Asian Oceanian Conf. Photobiol., Beijing

小野雅司 (2007) 地球に降り注ぐ紫外線, 太陽紫外線防御研究委員会 第17回シンポジウム, 東京

Ono M. (2008) Heat disorders in Japan, 2007 -From the results of ambulance transportation records-, 18th Int. Congr. Biometeorol.(ICB 2008), Tokyo

大野隆史, 山川和彦, 田村義男, 若松伸司, 大原利眞, 国環研 C 型共同研究グループ (2006) 日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究(2)-光化学オキシダントと NO<sub>x</sub>・SPM との関連(その2)-, 第47回大気環境学会年会, 東京

長田健太郎, 田中孝典, 大野隆史, 若松伸司, 大原利眞 (2007) 中国・四国地方における光化学オキシダント高濃度事例解析(2), 第48回大気環境学会年会, 岡山

Quel E., Wolfram E., Salvador J., Otero L., Pallotta J., D'Elia R., Godin-Beckmann S., Pazmino A., Nakane H., Ono M., Mizuno A., Nagahama T. (2007) SOLAR Project: stratospheric ozone monitoring at Argentina subpolar region, Int. Symp. Asian Collab. IPY 2007-2008, Tokyo

Saitoh K., Ishikawa T., Iso H., Hasegawa S., Fushimi A., Kobayashi S., Tanabe K., Konishi T., Imaseki H. (2007) Development of sample preparation method for engine lubricating oil analysis using in-air PIXE, 11th Int. Conf. PIXE its Anal. Appl.(PIXE 2007)(Poster Session), Puebla(Mexico)

Saitoh K., Sera K., Fushimi A., Fujitani Y., Hasegawa S., Takahashi K., Kobayashi S., Tanabe K. (2008) Pixe analysis of atmospheric nano- to micrometer-size particles in roadside atmosphere, BioPIXE 6: 6th Int. Symp. Dedicated Adv. Biol., Med., Environ. Appl. Proton-Induced X-Ray Emiss., Richland(USA)

斉藤勝美, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 長谷川就一, 高橋克行, 田邊潔, 小林伸治 (2008) ディーゼル排出ナノ粒子(<30nm)

の化学組成(2) 元素とイオン, 第49回大気環境学会年会, 金沢

佐藤圭, 高見昭憲, 磯崎輔, 疋田利秀, 下野彰夫, 今村隆史 (2009) エアロゾル質量分析計による芳香族炭化水素からの二次粒子測定, 日本地球惑星科学連合 2009年大会, 千葉

Shi Z.B., Zang D.Z., Ji H.Z., Hasegawa S., Hayashi M. (2007) Modification of soot by volatile species in an urban atmosphere, 第24回エアロゾル科学・技術研究討論会, 和光

島正之, 小野雅司, 中館俊夫, 新田裕史 (2006) 局地的大気汚染の健康影響に関する疫学調査-学童コホート調査における健康影響評価の方法とベースライン調査の概要-, 第47回大気環境学会年会, 東京

島正之, 大原利眞, 小野雅司, 新田裕史 (2007) 局地的大気汚染の健康影響に関する疫学調査(そらプロジェクト): 幼児症例対照調査の計画と実施状況, 第48回大気環境学会年会, 岡山

島正之, 小野雅司, 佐藤俊哉, 新田裕史 (2007) 局地的大気汚染の健康影響に関する疫学調査(そらプロジェクト): 幼児症例対照調査, 第66回日本公衆衛生学会総会, 松山

白井知子, 菅田誠治, 横内陽子 (2006) 東アジアにおけるハロカーボンの放出・輸送シミュレーション-初期結果報告-, 第12回大気化学討論会, 山形

白井知子, 菅田誠治, 横内陽子 (2007) 東アジアにおけるハロカーボンの放出・輸送シミュレーション-フォワード計算-, 第17回大気化学シンポジウム, 豊川

白岩学, 近藤豊, 茂木信宏, Sahu L.K., 竹川暢之, 高見昭憲, 畠山史郎 (2007) アジア大陸起源空気塊中のブラックカーボンの混合状態の測定, 第13回大気化学討論会, 名古屋

Sugata S., Ohara T., Nishikawa M., Sugimoto N., Mori I., Shimizu A., Hayasaki M. (2006) Recent interannual variation in dust from changes in emission and transport, Int. Workshop Reg. Ecol. Environ. Eff., Beijing

菅田誠治, 足立幸穂, 西川雅高, 大原利眞, 早崎将光 (2006) 2001-2006年における黄砂の年々変動の数値計算による要因解析, 第47回大気環境学会年会, 東京

杉田考史, 齋藤尚子, 林田佐智子, 今村隆史, 中島英彰 (2007) ILAS-II で観測された2003年の南極成層圏における硝酸とエアロゾル消散係数の短時間変動, 日本地球惑星科学連合 2007年大会, 千葉

杉田考史, 齋藤尚子, 林田佐智子, 今村隆史, 佐伯浩介, 中島英彰 (2007) ILAS-II によって観測された南極成層圏のPSCによる一時的な脱窒, 日本気象学会 2007年度秋季大会, 札幌

鈴木明, 種田晋二, 藤谷雄二, 小林隆弘 (2006) ナノ粒子を多く含んだディーゼル排気暴露の循環器影響. 第47回大気環境学会年会, 東京

鈴木明, 種田晋二, 藤谷雄二, 小林隆弘 (2007) ナノ粒子の多いディーゼル排気暴露の循環器影響, 第48回大気環境学会年会, 岡山

Suzuki A.K., Taneda S., Fujitani Y., Li C., Hirano S. (2008) Effects of diesel exhaust particles with high concentration nanoparticles on cardiovascular system, Int. Workshop Environ. Nanoparticles -Spec. Ref. Atmos. Environ.-, Tsukuba

Suzuki A.K., Taneda S., Fujitani Y., Li C. (2008) Diesel exhaust particles contained high concentration nanoparticles affects on cardiovascular system, 45th Congr. Eur. Soc. Toxicol., Toxicol. Lett., 180S, S226, Rhodes

高橋克行, 平林幹啓, 米田穰, 田邊潔, 柴田康行, 西川雅高, 坂本和彦 (2006) 都市大気エアロゾル中の放射性炭素同位体比の季節変動. 第8回 AMS シンポジウム, つくば

高橋克行, 長谷川就一, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 田邊潔, 小林伸治, 若松伸司 (2006) 大気中ナノ粒子の総合観測(1)粒径分布の長期連続観測, 第23回エアロゾル科学・技術研究討論会, 福岡

高橋克行, 長谷川就一, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 田邊潔, 若松伸司, 小林伸治 (2006) 都市大気中ナノ粒子の観測と動態解析(1)個数濃度と粒径分布の多点観測, 第47回大気環境学会年会, 東京

高橋克行, 長谷川就一, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 田邊潔, 小林伸治 (2007) 沿道と一般環境における大気中ナノ粒子の粒径分布, 第24回エアロゾル科学・技術研究討論会, 和光

高橋克行, 長谷川就一, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 田邊潔, 小林伸治 (2007) 幹線道路沿道における大気中ナノ粒子の粒径分布の長期観測, 第48回大気環境学会年会, 岡山

高橋克行, 長谷川就一, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 田邊潔, 小林伸治 (2008) 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, 第49回大気環境学会年会, 金沢

高橋雅昭, 武直子, 大泉毅, 村山等, 大原利眞 (2008) Seasonal-Mann-Kendall 法による新潟県内の光化学オキシダント濃度の長期トレンド解析, 第49回大気環境学会年会, 金沢

高見昭憲, 倫小秀, 疋田利秀, 下野彰夫, 畠山史郎 (2006) 福江・辺戸における AMS を用いた同期観測, 第23回エアロゾル科学・技術研究討論会, 福岡

Takami A., Miyoshi T., Shimono A., Hatakeyama S. (2006) Difference of aerosol chemical compositions measured at northern and southern areas of East China Sea, 7th Int. Aerosol Conf., St. Paul(USA)

高見昭憲, 滝口善洋, 定永靖宗, 坂東博, 畠山史郎 (2007) 東アジア域における窒素系化合物の輸送と変質, 日本地球惑星科学連合 2007年大会, 千葉

Takami A., Lun X., Shimono A., Yonemura S., Wang W., Hatakeyama S. (2007) Transformation of aerosol chemical composition during transport over east China Sea, IUGG 2007, Perugia

Takami A., Lun X., Miyoshi T., Shimono A., Hatakeyama S. (2007) Three years measurement of sulfate at Okinawa, Japan in spring period, AAAR 26th Annu.Conf., Nevada

Takami A., Hatakeyama S. (2008) Long-term monitoring of ambient aerosol at Okinawa, Japan, 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会, 金沢

高見昭憲, 佐藤圭, 清水厚, 花岡小百合, 加藤俊吾, 梶井克純, 定永靖宗, 坂東博, 川名華織, 白岩学 他 (2008) 東シナ海域におけるガスおよびエアロゾルの航空機観測, 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会, 金沢

高見昭憲, 倫小秀, 佐藤圭, 清水厚, 菊地信行, 加藤俊吾, 梶井克純, 兼保直樹, 米村正一郎, 下野彰夫 他 (2008) 大気エアロゾルの輸送中の変質について, 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会, 金沢

高見昭憲, 長谷川就一, 小林伸治, 高田智至, 下紳郎, 下野彰夫, 疋田利秀, 速水洋, 窪田勉, 関口和彦, 坂本和彦, 荻野浩之 (2008) 2007年夏季関東における微小粒子広域観測とモデリング(2) - AMS を用いた高時間分解粒子組成観測 -, 第49回大気環境学会年会, 金沢

Takami A., Miyoshi T., Xiaoxiu L., Kato S., Kaneyasu N., Shimono A., Kji Y., Hatakeyama S. (2008) Long-term measurement of aerosol at cape Hedp, Japan using a Q-AMS, AAAR 27th Annu. Conf., Orlando

高見昭憲, 佐藤圭, 今村隆史, シンジャワ, 高橋けんし, 藪下彰啓, 衣川高志, 中山智喜, 松見豊, 戸野倉賢一, 川崎昌博, 疋田利秀, 下野彰夫 (2009) 二種類のエアロゾル質量分析計による2008年夏季東京都心のエアロゾル観測, 日本地球惑星科学連合 2009年大会, 千葉

高菅卓三, 森育子, 清水厚, 早崎将光, 西川雅高 (2009) 黄砂飛来時期における大気捕集試料中の農薬・POPs・PAHの解析, 第18回環境化学討論会, つくば

武直子, 大泉毅, 村山等, 高橋雅昭, 大原利眞 (2008) 新潟県におけるオゾン濃度の空間分布, 第49回大気環境学会年会, 金沢

Takeuchi A., Matsuyama Y., Omori T., Ono M., Nitta H. (2008) Effects of Ambient Air Pollution (PM<sub>2.5</sub>) on Daily Mortality in 20 Japanese Cities, the XXIVth International Biometric Conference, Dublin, Ireland

滝口善洋, 高見昭憲, 定永靖宗, 川上純一, 坂東博, 畠山史郎 (2007) 沖縄辺戸岬における大気エアロゾル中に含まれる硝酸塩の季節変動, 第17回大気化学シンポジウム, 豊川

田村憲治, 山崎新, 中井里史, 松木秀明 (2006) 微小粒子状物質の健康影響に関する疫学研究-個人曝露評価のための家屋内外濃度測定(6) 夏季個人曝露調査結果, 第47回大気環境学会年会, 東京

田村憲治, 山崎新, 島正之 (2006) 車道走行中の大気汚染曝露評価(1)-瀋陽市のタクシー走行中の曝露レベル-, 第65回日本公衆衛生学会総会, 富山

田村憲治, 中井里史 (2006) 大気中微小粒子の屋外,室内及び個人曝露濃度の関係-国内7地域の調査結果から-, 平成18年度室内環境学会総会, 東京

田村憲治, 近藤美則, 新田裕史, 長谷川就一, 櫻井四郎 (2007) 都市幹線道路周辺の歩行中における PM 曝露(1)PM 重量濃度と個数濃度の比較, 大気環境学会年会講演要旨集

Tamura K., Kondo Y., Jinsart W. (2007) Evaluation of fine particulate matter exposure levels of drivers in big cities, 15th Acad. Conf., 2007 Annu. Meet., Steps Towards 10th Decade of the Faculty of Sci., Bangkok

田村憲治, 新田裕史, 近藤美則, 長谷川就一 (2007) 沿道歩行時の大気汚染物質曝露-PM 重量濃度および個数濃度の変動について-, 第77回日本衛生学会総会, 吹田

田村憲治, 近藤美則, 新田裕史, 長谷川就一, 小林伸治, 櫻井四郎 (2008) 沿道歩行時の大気汚染物質曝露－夏季における微小粒子曝露濃度について－, 第78回日本衛生学会総会, 熊本

田村憲治, 近藤美則, 新田裕史, 長谷川就一, 小林伸治, 櫻井四郎 (2008) 都市幹線道路周辺の歩行中における PM 曝露(2)PM 濃度の季節間比較, 第49回大気環境学会年会, 金沢

田中伸幸, 津崎昌東, 出口祥啓, 田邊潔, 小林伸治, 伏見暁洋, 越光男, 須佐秋生 (2006) ナノ粒子中化学成分の多成分同時計測技術の開発, 第47回大気環境学会年会, 東京

田中伸幸, 津崎昌東, 田邊潔, 小林伸治, 伏見暁洋 (2007) ナノ粒子中化学成分の測定方法の開発－ディーゼル排ガスへの適用－, 化学工学会 第39回秋季大会, 札幌

田中伸幸, 津崎昌東, 田邊潔, 小林伸治, 伏見暁洋 (2008) ナノ粒子中化学成分の測定方法の開発－ディーゼル排ガスをを用いた測定手法の検証－, 化学工学会 第73年会, 浜松

田中伸幸, 津崎昌東, 出口祥啓, 田邊潔, 小林伸治, 伏見暁洋 (2008) ナノ粒子中の化学成分の高感度・迅速計測法の開発－ディーゼル排ガスへの適用－, 第49回大気環境学会年会, 金沢

田中孝典, 長田健太郎, 大野隆史, 若松伸司, 大原利眞 (2007) 中国・四国地方における光化学オキシダント高濃度事例解析(1), 第48回大気環境学会年会, 岡山

種田晋二, 藤谷雄二, 小林隆弘, 関興一, 大倉一枝, 佐久嶋明世, 八巻耕也, 吉野伸, 鈴木明 (2007) ナノ粒子を多く含んだディーゼル排気曝露における循環器影響の検討, 日本薬学会 第127年会, 富山

谷本直隆, 大原利眞, 鶴野伊津志, 植松光夫, 菅田誠治 (2006) 東アジアスケール大気質モデルによる EC 発生源寄与の解析, 第47回大気環境学会年会, 東京

Tin-Tin-Win-Shwe, Yamamoto S., Fujitani Y., Hirano S., Fujimaki H. (2008) Analysis of spatial learning performance and memory function-related gene expressions in the hippocampus of mice exposed to nanoparticle-rich diesel exhaust, 31st Annu. Meet. Jpn. Neurosci. Soc., Neurosci. Res., 61(Suppl.1), S258, Tokyo

Tin-Tin-Win-Shwe, 山元昭二, 藤谷雄二, 平野靖史郎, 藤巻秀和 (2008) ナノ粒子画分の多いディーゼル排気ガスを曝露したマウスにおける神経免疫軸への影響, 第49回大気環境学会年会, 金沢

Tin-Tin-Win-Shwe, Mitsushima D., Yamamoto S., Fujitani Y., Funabashi T., Hirano S., Fujimaki H. (2008) Neurotoxic effect of nanoparticle-rich diesel exhaust in the mouse olfactory bulb, 45th Congr. Eur. Soc. Toxicol., Toxicol. Lett., 180S(2008), S206, Rhodes(Greece)

Tin-Tin-Win-Shwe, Yamamoto S., Fujitani Y., Hirano S., Fujimaki H. (2009) Targeting in nanoparticle-induced neurotoxicity in mice, 79th Annu. Meet. Japanese Society for Hygiene(第79回日本衛生学会学術総会), Tokyo

Tonouchi M., Kandori H., Murahashi T., Ono M., Shishime T. (2008) A web site to reduce risks of heat disorders in Japan, 18th Int. Congr. Biometeorol.(ICB 2008), Tokyo

鶴見哲也, 馬奈木俊介, 日引聡 (2007) 環境クズネツ曲線仮説の再検討・ノンパラメトリック手法を用いて-, 環境経済・政策学会2007年大会, 彦根

鶴見哲也, 馬奈木俊介, 日引聡 (2009) Effects of environmental regulation on bilateral trade flows, 日本経済学会 2009年度春季大会, 京都

津崎昌東, 田中伸幸, 田邊潔, 小林伸治, 出口祥啓, 越光男 (2006) 多環芳香族成分を吸着した標準ナノ粒子発生装置の開発 (ポスター発表), 第47回大気環境学会年会, 東京

上田紗也子, 長田和雄, 高見昭憲 (2009) 辺戸岬で観測されたスス粒子の混合状態と粒径分布, 日本気象学会 2009年度春季大会, つくば

上原清 (2006) 沿道建物列の隙間がストリートキャニオン内濃度に及ぼす影響に関する風洞実験, 2006年度日本建築学会大会学術講演会, 横浜

上原清 (2006) 大気拡散風洞を用いた市街地沿道の流れと拡散の研究, 日本機械学会 2006年度年次大会, EFD ワークショップ: 乱流拡散・混合・反応乱流研究の最前線, 熊本

上原清, 林誠司, 山尾幸夫, 松本幸雄, 若松伸司 (2006) 川崎市池上新町交差点周辺地域の年平均 NOx 濃度分布推定, 第47回大気環境学会年会, 東京

上原清 (2007) 市街地における大気汚染物質の拡散に関する風洞実験, 第48回大気環境学会年会, 岡山

上原清, 山尾幸夫, 老川進 (2007) 高架道路がストリートキャニオン内の流れと拡散に及ぼす影響に関する風洞実験,

第48回大気環境学会年会, 岡山

上原清, 山尾幸夫, 老川進, 持田灯 (2007) 通風の良いストリートキャニオンに関する風洞実験, 第48回大気環境学会年会, 岡山

上原清, 老川進, 持田灯 (2007) 通風の良いストリートキャニオンに関する風洞実験, 2007年度日本建築学会大会学術講演会, 福岡

Wagai R., Uchida M., Suzuki M., Hasegawa S., Kobayashi S., Tanabe K., Shibata Y. (2008) Radiocarbon measurements of elemental carbon in aerosols at NIES-TERRA, 11th Int. Conf. Accel. Mass Spectrom., Rome

和穎朗太, 内田昌男, 北山兼弘 (2008) 放射性炭素同位体を用いた温度条件と土壌炭素分解の関係の評価～鉱物粒子による分解抑制反応の温度依存性, 日本地球化学会 第55回年会, 東京

和穎朗太, 内田昌男, 鈴木優徳, 長谷川就一, 小林伸治, 田邊潔, 柴田康行 (2008) 放射性炭素同位体を用いた大気エアロゾル中ブラックカーボンおよび有機炭素の起源推定～熱分離を基にした手法開発, 日本地球化学会 第55回年会, 東京

山神真紀子, 山川和彦, 田村義男, 若松伸司, 大原利眞, 国環研 C 型共同研究グループ (2006) 日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究(3)-光化学オキシダント高濃度時における PM<sub>2.5</sub>とその成分-, 第47回大気環境学会年会, 同講演要旨集(CD-ROM), 1E1000

山地一代, 大原利眞, 鶴野伊津志, 堀井伸浩, 黒川純一, 秋元肇 (2006) 東アジアにおける対流圏オゾン濃度の将来予測, 日本気象学会 2006年度春季大会, つくば

山地一代, 大原利眞, 鶴野伊津志, 黒川純一, 秋元肇 (2007) CMAQ/RAMS および Regional Emission inventory in Asia(REAS)を用いた対流圏オゾンの将来変動予測, 日本地球惑星科学連合 2007年大会, 千葉

山元昭二, 武内伸治, 藤谷雄二, 福島篤, Tin-Tin-Win-Shwe, 藤巻秀和 (2007) ディーゼル排気ナノ粒子がグラム陽性菌毒素による肺の炎症反応に及ぼす影響, 第48回大気環境学会年会, 岡山

山元昭二, Tin-Tin-Win-Shwe, 藤谷雄二, 平野靖史郎, 藤巻秀和 (2008) ナノ粒子画分を多く含んだディーゼル排気の亜急性吸入曝露による肺の炎症反応への影響, 第49回大気環境学会年会, 金沢

柳下正治, 早瀬隆司, 松橋啓介, 濱田志穂, 山田章博 (2006) 社会変革のためのステークホルダー会議の可能性-持続可能な交通を事例として-, 環境科学会2007年会, 長崎

米持真一, 速水洋, 梅沢夏実, 飯島明宏, 熊谷貴美代, 高橋克行, 大原利眞, 長谷川就一 (2008) 2007年夏季関東における微小粒子広域観測とモデリング(5)-夏期におけるサルフェートの濃度変動と冬期との比較-, 第49回大気環境学会年会, 金沢

Zhang Q., Jimenez J-L., Dzepina K., Dunlea E., Docherty K., Allan J., Afarra M.R., Takami A., Miyoshi T., Hatakeyama S. (2006) Component analysis of organic aerosols in urban rural, and remote atmospheres based in aerosol mass spectrometry, 7th Int. Aerosol Conf., St. Paul(USA)

---

## (付録：主な略語一覧)

<sup>14</sup> C	Carbon-14 (radioactive carbon)	放射性炭素
AMS	Aerosol Mass Spectrometer	エアロゾル質量分析装置
ASOA	Anthropogenic Secondary Organic Aerosol	人為起源 SOA
BSOA	Biogenic Secondary Organic Aerosol	生物起源 SOA
CACM	Caltech Atmospheric Chemistry Mechanism	カリフォルニア工科大学作成の大気化学反応機構
CE	Collection Efficiency	捕集効率
CMAQ	Community Multiscale Air Quality model	
CMB	Chemical Mass Balance	ケミカルマスバランス
CPC	Condensation Particle Counter	凝縮粒子カウンター
CTM	Chemical Transport Model	化学輸送モデル
DEP	Diesel Exhaust Particles	ディーゼル排気粒子
DPF	Diesel Particulate Filter	
EC	Elemental Carbon	元素状炭素エアロゾル
EGR	Exhaust Gas Recirculation	排気ガス再循環
EPA	U.S. Environmental Protection Agency	米国環境保護局
FAMIKA	Fine Aerosol Measurement and Modeling in Kanto Area	
GC/MS	Gas-Chromatograph / Mass Spectrometer	ガスクロマトグラフィー／質量分析法
GC-FID	Gas-Chromatograph / Flame Ionization Detector	ガスクロマトグラフィー/水素炎イオン化検出器
GPS	Global Positioning System	全球測位システム
HOA	Hydrocarbon-Like Organic Aerosol	炭化水素態有機物
ICP-MS	Inductively Coupled Plasma - Mass Spectrometer	誘導結合プラズマ-質量分析計
IQR/PM	Inter-Quartile Range	四分位偏差
JCAP	Japan Clean Air Program	大気改善のための自動車や燃料等の技術開発
LPI	Low Pressure Impactor	低圧多段分級インパクトター
MADRID	Model for Aerosol Dynamics, Reaction, Ionization, and Dissolution	
NCEP	National Centers for Environmental Prediction	
NMHC	Non-Methane HydroCarbon	非メタン炭化水素
NMVOC	Non-Methane Volatile Organic Compounds	非メタン揮発性有機化合物
OA	Organic Aerosol	有機エアロゾル
OC	Organic Carbon	有機炭素 (エアロゾル)
OM	Organic Matter	有機状物質
OOA	Oxygenated Organic Aerosol	酸化態有機物
PAH	Polycyclic Aromatic Hydrocarbon	多環芳香族炭化水素
PM	Particulate Matter	粒子状物質
PM <sub>2.5</sub>	Particulate Matter with aerodynamic diameter < 2.5 μm	空力学的粒径が 2.5 μm 以下の粒子状物質
pMC	Percent Modern Carbon	%モダンカーボン
PMF	Positive Matrix Factorization	(因子分析法の一つ)
POA	Primary Organic Aerosol	一次有機エアロゾル
POC	Primary Organic Carbon	一次有機炭素

RAMS	Regional Atmospheric Modeling System	(領域スケールの大気モデルの一つ)
REAS	Regional Emission Inventory in Asia	(アジア域での排出量インベントリー)
SAPRC	Statewide Air Pollution Research Center	(米国の大気汚染研究機関。 カリフォルニア大 Liverside 校に設置)
SMPS	Scanning Mobility Particle Sizer	走査型モビリティ粒子分級器
SOA	Secondary Organic Aerosol	二次有機粒子
SOC	Secondary Organic Carbon	二次有機炭素
SPM	Suspended Particulate Matter	浮遊粒子状物質
SVOC	Semi-Volatile Organic Compounds	半揮発性有機化合物
TC	Total Carbon	総炭素 (TC=EC+OC)
TEOM	Tapered Element Oscillating Microbalance	振動素子式マイクロ天秤
THC	Total HydroCarbon	全炭化水素
TO	Total Organics	全有機物
VOC	Volatile Organic Compounds	揮発性有機化合物
WSOC	Water Soluble Organic Carbon	水溶性有機炭素



REPORT OF SPECIAL RESEARCH FROM  
THE NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES, JAPAN

国立環境研究所特別研究報告  
SR-91-2009

---

平成 21 年 12 月 25 日発行

編 集 国立環境研究所 編集委員会

発 行 独立行政法人 国立環境研究所

〒305-8506 茨城県つくば市小野川 16 番 2

電話 029-850-2343 (ダイヤルイン)

---

印 刷 前田印刷株式会社筑波支店

〒305-0836 茨城県つくば市山中 152-4

Published by the National Institute for Environmental Studies  
16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506 Japan  
December 2009

---

無断転載を禁じます

リサイクル適性の表示：紙へリサイクル可  
本冊子は、グリーン購入法に基づく基本方針における「印刷」に係る判断の  
基準にしたがい、印作用の紙へのリサイクルに適した材料〔Aランク〕のみ  
を用いて作製しています。



