

領域略称名：粒子人間植物影響  
領域番号：4003

平成25年度科学研究費補助金「新学術領域研究  
(研究領域提案型)」に係る事後評価報告書

「東アジアにおけるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト」

(領域設定期間)

平成20年度～平成24年度

平成25年 6月

領域代表者 (東京農工大学・大学院農学研究院・教授・畠山史郎)

# 目 次

1. 研究領域の目的及び概要	3
2. 研究組織（公募研究を含む）と各研究項目の連携状況	5
3. 研究領域の設定目的の達成度	7
4. 研究領域の研究推進時の問題点と当時の対応状況	10
5. 研究計画に参画した若手研究者の成長の状況	11
6. 研究経費の使用状況（設備の有効活用、研究費の効果的使用を含む）	12
7. 総括班評価者による評価	13
8. 主な研究成果（発明及び特許を含む）	16
9. 研究成果の取りまとめ及び公表の状況（主な論文等一覧、ホームページ、公開発表等）	20
10. 当該学問分野及び関連学問分野への貢献度	25

## 1. 研究領域の目的及び概要（2 ページ程度）

研究領域の研究目的及び全体構想について、応募時に記述した内容を簡潔に記述してください。どのような点が「我が国の学術水準の向上・強化につながる研究領域」であるか、研究の学術的背景（応募領域の着想に至った経緯、これまでの研究成果を進展させる場合にはその内容等）を中心に記述してください。

### 研究の学術的背景

東アジア地域における急速な経済発展は、環境に調和した成長とは乖離した石炭・石油を中心とするエネルギー大量消費を伴い、排出される多量の二酸化炭素や NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub> 等の酸性ガス、粒子状物質は、発生源近傍の大気汚染はもとより、周辺国への広域越境汚染、さらには北半球全体にも及ぶ広がりをもって、気候変動にも影響するなど、地域規模～地球規模の大気環境問題の顕在化につながっている。しかしながら、エアロゾルの空間的分布、生成機構、環境影響の定量的評価については未解明な点が多い。これまでに、気候変動との関わりに重点をおいた INDOEX, TRACE-P, ACE-Asia, ABC に代表される大型集中観測プロジェクトが組織され研究が推進されてきた。わが国でも APEX, VMAP, AIE などの研究プロジェクトが組織され成果を挙げているが、これらのプロジェクトでは人間の健康影響や植物への影響は含まれていない。エアロゾル粒子のうち、ガスの粒子転換により生成する二次粒子は粒径 2.5 $\mu$ m 以下の PM<sub>2.5</sub> と呼ばれる微小粒径域に存在し、人間の健康に大きく関わっている。アジアでは一次物質による環境汚染が依然深刻であるが、二次粒子やオゾンなどの二次生成物の越境大気汚染も重要な問題となりつつあり、平成 25 年 1 月～3 月にはそのような懸念が現実のものとなって、中国における高濃度 PM<sub>2.5</sub> 汚染とその我が国への影響が大きな社会問題にもなった。広域な影響評価、地球温暖化対応策と連動した削減方策の提言と実行は喫緊の課題である。

上記プロジェクトのうち、AIE（科研費特定領域研究「東アジアにおけるエアロゾルの大気環境インパクト」（H13～17 年度、領域代表：笠原三紀夫））は、本研究領域を先導する研究課題であった。AIE では東アジアにおける大気エアロゾルの空間分布の測定や、大気エアロゾルの性状、二次粒子の生成プロセスに関する研究が進められた。また、東アジアにおける大気エアロゾルの輸送と沈着のプロセス解明、さらに大気エアロゾルによる地球冷却の効果などが精力的に進められ、その結果、現在・将来の日本の酸性雨・酸性沈着に及ぼす発生源や国別寄与の定量化、エアロゾルの地球冷却化効果の解析、特に東アジアにおけるエアロゾル増加による冷却化の定量的評価が行われて、終了後高い評価が与えられたが、この特定領域研究では植物や人の健康に対する影響に関する研究は行われなかった。しかし、人の健康影響は、環境保護対象として最も高位に位置づけられるものであり、また CO<sub>2</sub> 吸収源でもある植生への影響は地球温暖化にも関わって、非常に緊急性の高い問題である。本研究領域は、先行研究となった上記科研費特定領域研究の研究成果や、構築された研究資産を継承し有効に活用して、このような喫緊の課題となっている東アジア由来のエアロゾルの環境影響を解明しようとするものであり、広域で重要な課題解決のための政策など意志決定のために不可欠な、エアロゾルに関わる従来の枠組みを超えた新たな学術領域の創製を目指したものである。

### 当該領域の発展

本研究領域は、公募要領の対象にいう、「異なる学問分野の研究者が連携して行う共同研究等の推進により、当該研究領域の発展を目指すもの」に該当する。エアロゾルの化学、物理、工学などの研究者と植物生理の研究者、医学の研究者が連携してエアロゾルをキーワードに東アジアで増加するエアロゾルの発生、変質、沈着のプロセスの解明と、組成・分布・輸送のデータから植物、人間の健康への影響を明らかにしようとしたものである。共通のフィールド（北九州地域を想定）で三者が共同で観測を行ったり、影響研究を推進するにあたってどのような野外観測データが必要であるかの提言を影響研究側からタイムリーに行ったりすることにより、三者の間の連携を深め、新たな研究領域を進展させる。そこには、植物や人の視点を考慮した新規なエアロゾル実験、計測技術や評価方法の開発、エアロゾル性状特性の詳細化による影響評価の高度化など、エアロゾルの自然科学的影響（大気環境＋人や植物影響）＋社会経済的影響を明らかにする「エアロゾル環境学」の創設が視野に入っている。

### 学術水準の向上・強化

これまで、東アジアの急速な経済発展によるエアロゾル汚染の増悪と、様々な大気汚染物質の植物や健康への影響はそれぞれ独立に研究が進められてきた。そのため、種々のフィールド観測のデータも地球科学的には非常に興味があり、意義深いものであっても、影響の研究に有効に活用されてきたとは言い難い。一方、植物や健康影響に関連して多くの大気汚染物質や粒子状物質の曝露実験が行われてきたが、ローカルな汚染をターゲットにしたものが中心で、広域の汚染を意識したものは限られていた。このような分野の研究者が連携を深めて研究を進めることにより、異分野間の関係をより密接なものとすることに貢献し、この分野の学術水準の向上・強化に資することができる。

### 研究の目標

本研究領域はエアロゾルを研究対象の核としたが、その研究分野はエアロゾルの発生・輸送・沈着のプロセスや、東アジア地域に大気エアロゾルとその前駆物質の広域分布、さらにはエアロゾルの森林への沈着と植物

に対する影響、そして主に東アジアや東南アジアに由来するエアロゾルの人間の健康に対する影響、と非常に学際的、分野横断的なものとなっている。このような研究領域を円滑にまとめ、研究の推進を図るには、それぞれの研究分野ごとに研究項目を立ててその中で調整をとりながら、相互にフィードバックを行い全体の調和を図るという方法が最も効率的であると考えられる。この目的から、本研究領域は、A01~A04の4つの研究項目で構成した。A01とA02の研究項目ではプロセススタディ研究を行い、研究項目A03とA04による影響解明の研究を連携して進めることとした。A01、A02で東アジアに由来するエアロゾルの発生・変質・沈着の過程の解明と、現状評価を行い、その成果をA03、A04に取り入れて現在の影響を明らかにし、再度A01にフィードバックして将来の影響の評価も行い、対策の基礎となる環境基準や国際的排出源対策・連携の裏付けとなる科学的データの提供と提言に結びつけることを目標とした。

#### 具体的な研究目標

研究項目A01では、エアロゾルやその前駆体の発生源、大気中での反応と二次粒子生成機構の解明に主眼をおくが、発生源評価に社会経済的視点を導入することで新たな学術領域を開く。このため、(1)対流圏上空を想定した低温・低圧の非常態場における二次粒子生成・成長過程を実験的、理論的に解明し、対応するサブナノからサブミクロンまでの粒子計測システムを開発する。(2)植物起源VOC(BVOC)の気相酸化反応と後続する有機エアロゾルの生成・成長過程を解明し、化学種、反応速度決定のための計測システムを開発する。(3)人為固定発生源における一次及び二次粒子生成過程を解明しソース・リセプタ関係の同定のための発生源プロフィールを構築する。(4)BVOCフラックス計測とインベントリマップの構築、発生源情報と化学輸送モデルを用いたエアロゾル空間分布の推定と研究項目A03やA04の成果を導入した人や植物への影響評価、産業関連分析法を用いた人為発生源の影響ポテンシャルのアジア地域における構造分析を行う。

研究項目A02では地上や航空機による観測を行って、東アジアから飛来するエアロゾルの定性・定量的把握を行うことを目的とした。ライダーネットワークなどの観測データと化学輸送モデルを用いてエアロゾルの分布と動態を解析し、地域毎のエアロゾル濃度とエアロゾル種の特徴、イベント毎のエアロゾル濃度変化などを明らかにする。また、PM<sub>2.5</sub>濃度の辺戸・福江・および九州北部の都市における通年観測から、長距離輸送イベントが盛んとなる春季のPM<sub>2.5</sub>中の有害物質含有割合を明らかにする。これらのデータから各有害物質の通年濃度(曝露量)を計算する。また、エアロゾル形成に関与するガス状物質濃度を同時観測し、エアロゾルの輸送過程での変質を解析する。航空機観測では、本研究領域の主目的である東アジアに由来するエアロゾルの健康や植物への影響の解明のため、我が国に輸送されるエアロゾルの化学成分を網羅的に調べ、我が国にどのようなエアロゾルがどのような気象条件のときにどのくらい飛来するのかを、東シナ海や日本海上空で捉え、分析し、基礎データとして研究項目A03とA04に提供する。

研究項目A03では、実験的研究によって樹木に対するエアロゾルの影響を明らかにし、さらにフィールド調査によって森林におけるエアロゾルの成分濃度、沈着・発生フラックスおよび葉面への沈着影響を明らかにすることを目標にした。それらの実験的研究の結果と野外観測の結果を総合的に考察し、東アジアにおけるエアロゾルの樹木影響の現状評価、中でも樹木の成長量、光合成などの生理生化学的機能、水分状態および栄養状態などに対する影響とその樹種間差異を解明する。研究項目内で測定した森林内のエアロゾルのデータに加えて、研究項目A02から提供される、広域汚染データを取り入れて、我が国および東アジアにおけるエアロゾルの植物影響を把握する。

研究項目A04では、まず疫学的手法により、将来の大気環境基準策定の基礎となるべき情報を得るため、性状別に細分化された粒子状物質と死亡との関連を明らかにすることを目標にした。エアロゾルに関しては、研究項目A01、A02、あるいは項目内の研究の結果から、東アジア・東南アジア由来の粒子状物質の化学組成などの情報が得られるので、これを取り入れ解析に供する。特に黄砂がわが国に飛来する過程で、中国、韓国などの大気汚染排出地域を通過するかどうかを気象条件によって分類し、その相違を評価する。一方、実験的研究では、各地域で採取した発生源や移動経路、形状、粒径、成分、等が異なる微小粒子・エアロゾルやそれらに含まれる含有成分を複数の細胞培養系に曝露することにより、微小粒子・エアロゾルの健康影響を、免疫応答と気道上皮への影響に注目し、実験的に評価する。また、スギ花粉症を対象として、スギ花粉に付着しやすい粒子、アレルゲン含有粒子、化学組成(黄砂微小粒子の沈着成分、ディーゼル排気粒子など)とその複合的な汚染物質の形成可能性について調査し、影響指標を示す。

## 2. 研究組織（公募研究を含む）と各研究項目の連携状況（2 ページ程度）

領域内の計画研究及び公募研究を含んだ研究組織と領域において設定している各研究項目との関係を記述し、どのように研究組織間の連携や計画研究と公募研究の調和を図ってきたか、図表などを用いて具体的かつ明確に記述してください。

研究組織（括弧内は代表者）

研究項目 A01：エアロゾルの生成と排出源の評価（東野達）

計画研究 P01（奥山喜久夫）、P02（廣川 淳）、P03（神谷秀博）、P04（東野 達）、公募研究 K01（持田陸宏）、K02 および K21（関口和彦）、K03 および K23（松本淳）

研究項目 A02：東アジアのエアロゾル・大気汚染物質の輸送と広域分布の解明（杉本伸夫）

計画研究 P05（杉本伸夫）、P06（兼保直樹）、P07（畠山史郎）、公募研究 K04（早川和一）、K05 および K24（定永靖宗）、K06 および K25（向井苑生）、K07（内田昌男）

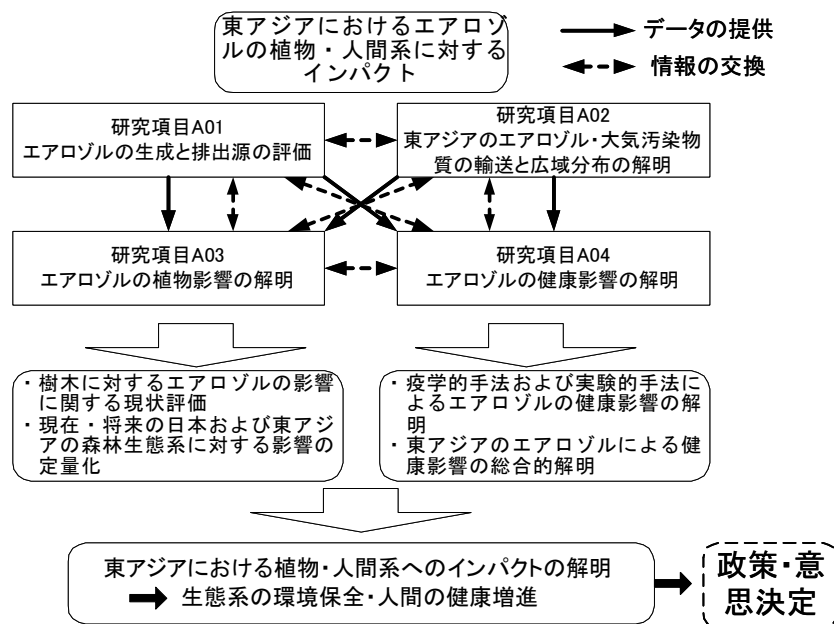
研究項目 A03：エアロゾルの植物影響の解明（伊豆田猛）

計画研究 P08（船田 良）、P09（伊豆田猛）、P10（原 宏）、P11（松田和秀）、公募研究 K08 および K26（渡邊陽子）、K09（堅田元喜）、K10（家合浩明）

研究項目 A04：エアロゾルの健康影響の解明（本田 靖）

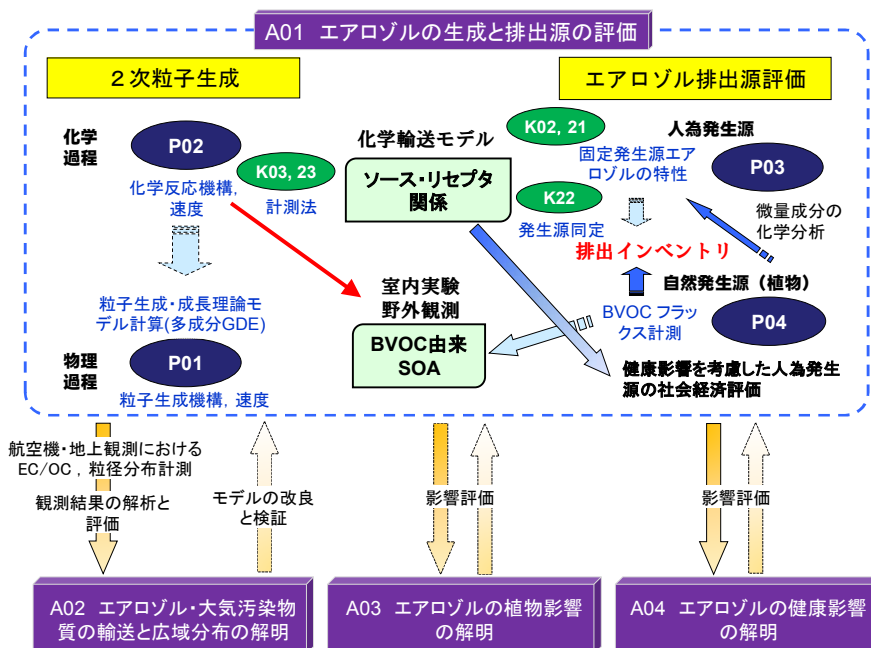
計画研究 P12（本田 靖）、P13（高野裕久）、P14（王 青躍）、公募研究 K11（北園孝成）、K12（橋爪真弘）、K13（上田佳代）、K27（東 朋美）、K28（奥田知明）

各計画研究・公募研究は右図に示したように、研究項目内はもとより、研究項目間においても密接な連携を保ち、お互いの研究結果を参照しながら研究を進めた。



具体的な各研究項目内、研究項目間の研究の連携状況

研究項目 A01：A01 では大気中における二次粒子生成過程の解明と人為および自然起源のエアロゾル及び前駆体の排出源に関わる評価を進めたが、前者の課題は、無機物質物理過程を主対象とする計画研究 P01 と有機物質の化学過程を主対象とする計画研究 P02 があり、最終的には有機物質として植物由来のイソプレンから生成する二次有機エアロゾル（SOA）をターゲットに、P02 で解明される前駆体反応機構や速度を P01 に反映し、二次粒子生成・成長過程を明らかにすることを目指した。一方、エアロゾル排出源の評価は、計画研究 P03 ではアジアの固定発生源におけるエアロゾルの排出特性を明らかにし、発生源同定への利用を考慮するとともに、計画研究 P04 で行うアジアにおけるエアロゾルのソース・リセプタ解析への排出インベントリに供することが可能となるように計画した。さらに、燃料種の異なる固定発生源から捕集した PM<sub>2.5</sub>、凝縮性粒子の無機、有機微量成分の化学分析を、P04、公募研究（K02, K21, A04-K28）と実施し、燃料種、燃焼状態による微量成分の変化、特に PM<sub>2.5</sub> やナノ粒子への有害微量成分の濃縮があること、燃焼状態の悪い海外の廃棄物燃焼では、有機系の微量成分が多いこと等を解明した。P04 では自然起源のエアロゾル前駆体として重要な植物からの VOC フラックス計測と野



外における SOA 組成分析を行ったが、P02, A02-P06 と共同でイソプレンからの SOA 生成に関わるスモッグチャンパー実験を実施し、実大気中での存在を実証した。下図に示すように項目内部及び他研究項目との間で連携を行いながら研究を進めた。他研究項目との連携は、P01 計画研究は、A02 研究項目の協力を受け、H22 年度には福江島における大気エアロゾル（ブラックカーボン）の地上観測を、H23 年度には航空機観測を行い、H24 年度には地上観測において大気エアロゾルの粒子径分布の連続観測を行い、航空機観測データと地上データとの相関解析を行った。これらにより総合的観測に寄与した。A03 及び A04 研究項目とは、エアロゾルの植物及び健康影響の定量的評価の成果を被害係数として、P04 のソース・リセプタ解析に導入し、産業連関分析との融合により、人為発生源の社会経済的インパクト評価が可能となるよう研究を進めた。前ページ下図に A01 研究項目内及び他研究項目との関係を示す。

**研究項目 A02：**研究項目 A02 では P05~P07 の 3 つの計画研究を柱に公募研究が加わって、航空機観測を中心にライダーネットワーク、北部九州での地上観測、衛星観測などが有機的に連携して研究を進めた。P05 ではライダーネットワークによる継続的観測を行ったが、先行研究の期間を含む長期的な観測データから地上付近の黄砂および大気汚染エアロゾルの消散係数（光学的な濃度）のデータセットを構築して疫学研究（A04）に提供した。また、航空機観測時には、ライダーデータに加えて P05 で継続的に運用した領域化学輸送モデル（CFORS）の計算結果を関連する研究班に提供した。P06 では航空機観測班 P07 との研究連携により、地上と上空でのエアロゾル組成の特徴を共同で解明した。P05 のライダー班とは、エアロゾル鉛直分布と長距離輸送パターン（寒冷前線後面型と移動性高気圧周辺流型）の関係の解析、PM<sub>2.5</sub>およびSPM 測定値から黄砂到来の判別を行う試みでの非球形散乱係数との比較など、緊密に連携して長距離輸送の解析を行った。また、疫学研究班（A04-P12）および *in-vitro* 生態影響研究班（A04-P13）との間で、測定対象物質の選定から測定データ・知見の供与まで、研究開始当初から有機的に連携した。さらに A04-K28 の奥田とは大量の金属成分分析において共同で研究を進めた。P07 では中心となる航空機観測を行ったが、この観測は多くの計画研究、公募研究と連携して進めた。具体的には①P05 は観測の対象となった北部九州地域におけるライダー観測を同時に行い、また観測期間の汚染質の輸送予測をモデル計算によって提供した②P06 は航空機観測期間に北部九州における地上観測を行い、地上と上空の立体的なデータ解析を可能にした③公募研究 K05、K24 は機内での NO<sub>y</sub> 観測を実施④公募研究 K06、K25 は観測時の周辺の大気汚染状況を衛星観測から概観⑤A01 研究項目の P01 は BC の観測を機内および地上で行った。これらの連携により、総合的な観測を行うことができた。

**研究項目 A03：**研究項目 A03 においては、4 つの計画研究班（P08、P09、P10 および P11）と 4 つの公募研究班（K08、K09、K10 および K26）が有機的に連携し、5 年間にわたる研究を精力的に進めた。計画研究 P09 が世界で初めて開発した植物用エアロゾル暴露チャンパーを用いて、計画研究 P08 と計画研究 P09 が全面的に協力して行った実験的研究によって、東アジアの代表的な樹木の葉におけるサブミクロンサイズのエアロゾル（ブラックカーボン粒子と硫酸アンモニウム粒子）の吸着量と吸収量を評価し、樹木の成長、光合成などの生理機能、栄養状態および水分状態などに対する影響とその樹種間差異を明らかにした。また、計画研究 P10 で新規に開発した森林におけるエアロゾルの沈着量と動態の評価手法などを用いて、計画研究 P11、公募研究 K08 および公募研究 K10 において東アジアの森林におけるエアロゾル成分の濃度、沈着・発生フラックスおよび樹木葉面への沈着形態などを明らかにした。さらに、公募研究 K09 で開発した葉面を含む大気・植生層におけるエアロゾルの濃度や沈着量の高度分布を計算可能な新しい大気-土壌-植生モデルを計画研究 P10 や計画研究 P11 の観測サイトに適用し、計画研究 P08 および計画研究 P09 が実施した実験的研究から得られた知見などを総合的に解析し、最終的には東アジアの森林を構成する樹木に対するエアロゾルの影響に関するリスク評価を行った。

**研究項目 A04：**研究項目 A04 では、P12~P14 の 3 つの計画研究、および平成 21 年度~22 年度の公募研究 K11~K13 と平成 23 年度~24 年度の公募研究 K27、K28 の 5 件の公募研究で研究を進めた。

実験的な研究（P13）においては、数多く存在するエアロゾル構成成分のうち、何を対象として研究するかについて、A01、A02 班との連携の元に、大気中濃度や反応性の高さなどを勘案して対象とする成分を決定した。

A04 班の公募研究は多くが黄砂に関する研究であり、黄砂の飛来した日、あるいはその濃度の情報を、A02 班のライダーのデータから入手することにより、過去にほとんど例のないほど精度の高い解析が可能となった。また、粒子状物質の死亡影響を評価する研究（P12）では、越境汚染の状況、PM<sub>2.5</sub>などの濃度、成分に関する情報を A02 班から入手することにより、それぞれの地域での汚染との相違を観察することが可能となった。公募研究 K28 では、その成果を基に領域内の他研究班と連携し、以下のように様々な環境試料分析や情報交換を行った。A01-P03 神谷班：発生源サンプル分析、A01-P04 東野班：泥炭サンプル分析、A02-P06 兼保班：インパクトサンプル分析、毎日採取エアロゾル（QFF）サンプル分析、A04-P12 本田・中井班：屋内外 PM<sub>2.5</sub>濃度および成分分析、A04-P13 高野班：大気中金属濃度・挙動・発生源に関する情報交換、A04-P14 王班：インパクトサンプル分析。

### 3. 研究領域の設定目的の達成度（3 ページ程度）

研究期間内に何をどこまで明らかにしようとし、どの程度達成できたか、また、応募時に研究領域として設定した研究の対象に照らしての達成度合いについて、具体的に記載してください。必要に応じ、公募研究を含めた研究項目毎の状況も記述してください。

**研究項目 A01**：本研究項目では、エアロゾル及びその前駆体の発生源特性、大気中での反応と二次粒子生成機構の解明に主眼をおくが、各計画研究の成果を相互に共有し新規な展開を図り、他研究項目にある異分野の成果も反映させ、発生源評価に社会経済的視点を導入することで新たな学術領域の創生を目指した。具体的には、①地上から対流圏中層部を想定した低温・減圧の非常態場における二次粒子生成・成長過程の実験的、理論的解明と、これに対応したサブナノ領域からサブミクロンまでの粒子計測システムの開発、②植物起源 BVOC の気相酸化反応とこれに続く二次有機エアロゾル生成・成長過程の解明と、化学種、反応速度決定のための計測システムの開発、③人為固定発生源における一次粒子及び二次粒子生成過程の解明とソース・リセプタ関係の同定のための発生源プロファイルの構築、④自然起源 BVOC フラックス計測とインベントリマップの構築、発生源情報と化学輸送モデルを用いたエアロゾル空間分布の推定と人や植物への影響評価、および産業連関分析法を用いた人為発生源の影響ポテンシャルのアジア地域における構造の解明、を目標とした。

上記①の目標に対しては、エアロゾル粒子の計測に不可欠な荷電プロセスに関して、減圧および低温下での荷電が可能な軟 X 線およびプラズマ放電による粒子帯電装置の開発や試験粒子発生法を確立し、低温および減圧下における SO<sub>2</sub> ガスからの粒子転換過程、BVOC（イソプレン）や、海塩粒子を模した食塩粒子などの存在下における二次粒子生成に関する室内実験を行い、粒子の生成および成長に与える影響を定量的に示し、目標を達成した。②では計測システムとして負イオン化学イオン化質量分析法とレーザー光分解レーザー誘起蛍光法を開発し、イソプレンの逐次酸化反応により生成するメタクロレインとメチルグリオキサールそれぞれが OH ラジカルにより酸化される反応の速度定数を実験的に決定するとともに、イソプレンのオゾン酸化反応により二次有機エアロゾルが生成する化学機構を、気相・粒子相成分の分析を通じて明らかにして、目標をほぼ達成した。ただし、提案した化学機構は定性的な検証にとどまり、定量的検証は不十分であった。③は、固定発生源からの PM<sub>2.5</sub>、エアロゾルの排出機構について 3 種類の機構を想定し、各機構に関して正確な排出濃度や粒度分布を計測する手法を標準法として開発するとともに、その妥当性を実験室でのモデル排ガス及び国内外の燃焼プラント排ガスにより検証し、その成果は ISO に採用された。さらに、得られた粒度分布、形態・組成分析等から排出機構が推定可能となったが、発生源プロファイルとなる固有な成分の特定までには至っていない。④の目標は、さらに 3 つのサブ目標が含まれているが、いずれもほぼ目標を達成した。まず、わが国の代表的な樹種からの BVOC 排出特性は当初予定どおりの計測を終え、放出フラックスの光・温度依存性を明らかにした。東・東南アジアの主要国について PM<sub>2.5</sub> の国内及び越境汚染に対するソース・リセプタ関係を定量化し、各国の PM<sub>2.5</sub> 濃度及び早期死亡数に対する国や排出部門の寄与率を明らかにした。その成果をアジア国際産業連関表へ導入し、各国の最終需要が国内汚染やわが国への越境汚染によって誘発する健康被害を早期死亡数として算出し、消費基準で見た各国のインパクトへの寄与率を衡平に評価できた。ただし、対象エアロゾルは 1 次粒子である BC と OC にとどまり、2 次粒子への分析は行っていない。また、植物や健康被害に対して A03 や A04 研究項目の成果導入の方法論は確立できたが、実際の導入までには至らなかった。

**研究項目 A02**：本研究項目では東アジアから輸送されてくるエアロゾルを地上観測やライダーネットワーク観測、航空機観測、さらには衛星による観測とも組み合わせて立体的に把握し、植物影響、健康影響の研究班に提供することを大きな目標とした。各計画研究の目標達成度は以下の通りである。

P05 計画研究では、エアロゾルの植物影響、健康影響の基礎データとなるエアロゾルの種別毎の分布を様々な時間空間スケールで把握することを目的とした。特に、エアロゾルの三次元的な動態の把握、エアロゾルの種別の把握、エアロゾルの混合状態の把握を研究のねらいとした。また、影響研究と連携して、植物影響、健康影響の指標となるパラメータを検討することを目標とした。

ライダーネットワークおよび山岳での光パーティクルカウンターによる通年観測によりエアロゾルの立体分布を捉え、黄砂および大気汚染エアロゾルについて解析できた。ライダーネットワークの主要地点へのラマン散乱チャンネルの増設によって、エアロゾル種毎の分布の推定を実現した。ライダーと地上観測（P06）の連携により、ライダーで得られる黄砂消散係数は微小粒径域の黄砂と高い相関があり、疫学研究の指標として妥当性も確認された。データ同化したモデルを用いたエアロゾルの影響研究という将来の展望も得られた。P06 計画研究では、わが国の風上域、特に福岡およびその風上に位置する長崎県福江島において PM<sub>2.5</sub> の組成を比較し、九州北部地域での長距離輸送分の寄与を見積もるとともに、高度な分析技術を用いて長距離輸送由来エアロゾルの特性を明らかにすることを目的とした。

九州北部では福岡といった大都市でも PM<sub>2.5</sub> 質量濃度は大陸からの移流に支配されていることが明らかにできた。PM<sub>2.5</sub> 中の主要成分のうち硫酸塩および粒子状有機物の大部分は長距離輸送分が占めるが、硝酸塩は福岡の都市大気汚染によるものが主体であった。また、多環芳香族炭化水素類の diagnostic ratio による解析による発生源種別の評価が進展するとともに、エアロゾル質量分析計やレーザーイオン化質量分析計による測

定から、長距離輸送されたエアロゾルの物質の混合状態について新たな知見を得ることができた。本研究結果は疫学研究班での PM<sub>2.5</sub> 組成による健康影響の評価にデータとして直接導入されており、*in-vitro* 生体影響研究班での重金属の暴露実験に生かされるなど、領域全体としての PM<sub>2.5</sub> の健康影響評価研究に大きく寄与できたと考えられる。このように、本研究班における研究は当初の目的をほぼ達成することができたと考えられる。

P07 計画研究では領域の全研究期間内に、大陸からの汚染大気の輸送が起こりやすい秋、冬、春の3季節に各1回の航空機観測を行い、大陸から輸送される汚染物質を網羅的に調べて、影響研究を行う各研究グループに提供することを目的とした。幸いにしてこの目標を達成し、2009年10月、2010年12月、2012年3月の3回の観測を行うことができ、そのうち2009年のデータについては領域のホームページ上に公開して領域内での共有をはかるとともに一般にも利用可能となるようにした。また、これらの観測には多くの研究班が連携した。航空機および地上観測による窒素化合物の時空間変化の解明 (K05、K24)、放射性炭素の分析によるバイオマス燃焼起源と化石燃料燃焼起源のブラックカーボンの解析 (K07)、衛星観測データエアロゾル分布を精密に解析する手法の研究 (K06、K25) を行った。これらによって、エアロゾルと大気汚染物質の分布と大陸からの日本への輸送の動態を明らかにした。

研究項目 A03: 計画研究 P08 においては、越境大気汚染物質であるエアロゾルが東アジアの森林を構成している樹木に与える影響を実験的に解明するために、エアロゾルの葉への吸収・吸着機構を各種イメージング技術を用いて明らかにすることを目的とした。そこで、東アジアに生育する代表的な樹木を網羅的に選択し、エアロゾルの吸収・吸着パターンに密接に関係すると考えられる葉の表面構造や気孔の数・サイズなどを網羅的に解析した結果、これらのパラメータの樹種特性を明確にすることができた。また、高分解能走査電子顕微鏡 (FE-SEM) による微粒子の形態観察とエネルギー分散型 X 線分析装置 (EDX) による元素分析を組み合わせることで、葉の表面に暴露したサブミクロンサイズのブラックカーボン粒子や硫酸アンモニウム粒子をナノレベルで可視化する新しい手法を確立できた。さらに、これらの方法を駆使して、葉に短期または長期暴露したエアロゾル粒子の局在に関する多くの知見を得られたことから、当初の研究目標は達成できたとと言える。

計画研究 P09 においては、エアロゾル粒子を長期間にわたって植物に暴露することができるエアロゾル暴露チャンバーを開発し、東アジアの代表的な樹木に対するブラックカーボン粒子または硫酸アンモニウム粒子の影響とその樹種間差異を実験的研究によって明らかにすることを目的とした。そこで、サブミクロンサイズのブラックカーボン粒子または硫酸アンモニウム粒子の発生装置を開発し、長期間にわたって植物にそれらの粒子を暴露することができるエアロゾル暴露チャンバーを世界で初めて開発することに成功した。このエアロゾル暴露チャンバーを用いて、2年間にわたる樹木苗へのブラックカーボン粒子または硫酸アンモニウム粒子の暴露実験を行った。その結果、ブナ、スダジイ、カラマツおよびスギの苗木の個体乾物成長や光合成能力などに対するブラックカーボン粒子の有意な影響は認められなかった。これに対して、4樹種の葉に連続50時間にわたってサブミクロンサイズのブラックカーボン粒子の暴露を行った結果、暴露後の純光合成速度は暴露前のそれに比べて低下することが明らかになった。ブラックカーボン粒子の葉面沈着量の増加に伴う純光合成速度の低下程度は、スダジイ>ブナ>スギ>カラマツの順に著しいことが明らかになった。一方、硫酸アンモニウム粒子の暴露は、4樹種の個体乾物成長に有意な影響を及ぼさなかったが、スギの当年葉の光合成能力を増加させ、旧年葉のそれを低下させることが明らかになった。以上のように、計画研究 P09 においては当初の研究目的を達成することができた。

計画研究 P10 においては、森林生態系におけるエアロゾルの沈着量と動態を正確に評価する手法を開発することを目的とした。そこで、葉面に付着したブラックカーボンを抽出して定量する手法(葉面洗浄法)を検討した。樹高20mの森林樹木の葉に対するブラックカーボンの葉面積あたりの沈着を葉面洗浄法によって実測し、濃度勾配法によって得られた大気から森林樹冠へのブラックカーボンの乾性沈着量と比較した。ブラックカーボンの葉面沈着量は、萌芽期から単調増加し、高原状態を経た後、落葉期には急激に減少することが明らかになった。また、期間を通じて、高度が下がるほど、ブラックカーボンの葉面沈着量は減少することが明らかになった。ブラックカーボン沈着の初期速度は0.24~0.28 mg m<sup>-2</sup> day<sup>-1</sup>であり、大気から沈着したブラックカーボンの概ね半分程度が葉に沈着していると見積もられた。以上のように、計画研究 P10 においては当初の目的を達成することができた。

計画研究 P11 においては、東アジアの森林生態系におけるエアロゾルの沈着量と動態を評価することを目的とした。そこで、東アジアでは初の試みである森林における総合的なエアロゾルの乾性沈着観測を行い、沈着のしやすさを表す沈着速度の知見を得た。森林内において、エアロゾルは森林の上方ほど多く沈着し、森林全体への沈着量に対して葉への沈着量は概ね半分程度であることが明らかになった。また、エアロゾル沈着量は、日本の遠隔域で二酸化硫黄に対する硫酸塩粒子の沈着比が大きいこと、熱帯林への元素炭素の沈着は乾性沈着が湿性沈着を大きく上回ることなどが明らかになった。東アジア広域のエアロゾル沈着量を大気化学輸送モデルで計算した結果、エアロゾル沈着が森林へ悪影響を及ぼしている地域がある可能性が示された。以上のように、計画研究 P11 においては当初の目的を達成することができた。

公募研究 K08 においては、北海道の冷温帯林樹木に対するエアロゾルの影響を解明するために、フィールド



パック法による大気中エアロゾル濃度の測定と野外において樹木葉に付着したエアロゾルの観察および成分分析を行った。北海道東部においては、森林樹木の生育期間中に硫酸塩やアンモニウムイオンの濃度が最も高くなることが明らかになった。森林樹木の葉表面には、土壌粒子、花粉、塩化ナトリウム、硫黄を含む粒子が付着していることが明らかとなった。公募研究 K09 においては、エアロゾルが植物生態系に及ぼす影響を評価することを目的に、乾性・湿性・霧水沈着を含めた包括的な沈着過程と葉面水の蒸発に伴う濃縮等の物理化学過程をモデル化し、植物への物質沈着量とともに樹冠内部の酸性物質の濃度および沈着量の鉛直分布を評価可能な精緻な地表面モデルを開発した。研究項目 A03 の計画研究班との連携では、サブミクロン粒子の沈着にエアロゾルの吸湿効果が重要な役割を果たすことを示した。公募研究 K10 においては、2010～2011 年にかけてモンゴル・ウランバートルにおいて大気、土壌、植物および石炭試料を採取し、試料中の成分分析を行った。一連の結果より、主に大気からの乾性沈着によって石炭燃焼由来のエアロゾルが地表面に沈着する過程が支配的であることが示された。また、森林衰退の影響を強く受けているサイトでは、石炭燃焼の指標成分である炭素状粒子、硫黄化合物および微量元素が植物や土壌により多く蓄積されていることが明らかになった。公募研究 K26 においては、エアロゾルと霧の沈着による森林樹木への影響を解明するために、霧が発生する北海道東部において霧の化学的・物理的性質の解明および粒径の測定を行った。その結果、霧は大気中のエアロゾルを取り込んでいることや粒径が比較的大きいことが明らかとなった。また、樹木葉に付着したエアロゾルの雨滴に対する挙動を観察した結果、降雨によって多くの粒子が葉表面から流されることが明らかになった。

上記のように、研究項目 A03 においては、実験的研究の結果と野外観測の結果などを総合的に解析・考察して樹木に対するエアロゾルのリスク評価を行った結果、東アジアにおいてはエアロゾルの沈着が森林へ悪影響を及ぼしている地域がある可能性が示されたため、当初の目的を達成することができた。

研究項目 A04：計画研究 P12 では、第一に、統一的なモデルを用いた解析を行うことで、東アジア・東南アジア各地域での粒子状物質による健康影響の相違を明らかにすし、第二に、北九州地域において、通常の疫学的手法による研究に加えて、越境汚染の地域による相違を明らかにすることを計画していた。第一については日本、韓国、中国、台湾のデータを収集し、その標準化をおこなったことで十分に達成できたと考えられる。第二については、越境汚染の有無によって粒子状物質の影響がどのように異なるかについて推定値を計算することができた。ただし、日本における粒子状物質濃度は、越境汚染を加えてもそれほど高くないため、どの程度安定した結果と考えてよいのかについては、今後も検討が必要である。

計画研究 P13 では、「発生源や移動、成分等が異なる微小粒子・エアロゾルやそれらに含まれる成分、特に、多環芳香族炭化水素 (PAHs) とその誘導体の健康影響について、免疫応答と気道上皮への影響に注目し、実験的に評価すること。成分等による健康影響の相違を検討するとともに、それらの結果と健康影響の相関性を検討し、健康影響を規定する要因の絞り込みに資すること。加えて、増悪メカニズムを分子レベルで解析し、その結果をバイオマーカーの同定や予防対策の確立に役立てること。」を目的とし、他の研究班と連携しつつ研究を進めた。他研究班の情報も元に、検討対象物質を選定し、研究を進展することにより、その健康影響は、微小粒子・エアロゾルに含有される化学物質種により異なること、また、ベンゼン環数、官能基の有無やその種類、配置、酸化活性等が健康影響を規定する要因として重要であることも明らかにすることができた。併せて、健康影響評価に有用なバイオマーカーを探索・同定し、健康影響発現メカニズムを分子レベルで明らかにすることもできた。また、健康影響に係る情報を他班にフィードバックし、環境測定の対象とすることもできた。以上より、当初の設定通りの達成度と自己評価している。

計画研究 P14 では、都市部で排出される汚染化学種によるスギ花粉や黄砂の修飾に関する影響評価を行い、その動態解析手法を開発し、花粉と黄砂・汚染化学種による花粉症罹患への複合影響について工学的解析を主とした分野融合型研究で、越境大気汚染とスギ花粉による生体影響評価手法の検討、ならびにその情報化のための基礎データの蓄積に貢献することを目的としていた。その結果、分析、動態解析、複合影響すべてに目的を達成することができ、多くの新たな知見が得られた。

公募研究 K11,12,13 は、黄砂の健康影響を評価するために行われ、それぞれが脳梗塞発症、被爆者コホートの死亡、救急外来受診という異なったアウトカムを評価した。当初の目的は達成され、学会で、あるいは学術雑誌に発表された。公募研究 K27 は黄砂が慢性咳嗽に及ぼす影響に関する研究であり、目的とする研究は問題なく遂行できた。現在、学会では何回か発表が行われ、雑誌への掲載のため、論文を執筆中である。公募研究 K28 は他の公募研究と異なり、エアロゾルの成分測定の簡便法のパフォーマンス評価と改善を目的として行われた。結果、簡便法で十分な精度を確保して、毎日の成分濃度測定が可能となった。公募研究全体として、十分当初の目標を達成したと考えられる。

#### 4. 研究領域の研究推進時の問題点と当時の対応状況（1 ページ程度）

研究推進時に問題が生じた場合には、その問題点とそれを解決するために講じた対応策等について具体的に記述してください。また、組織変更を行った場合は、変更による効果についても記述してください。

##### 研究項目 A01

計画研究 P01：平成 22 年度から瀬戸章文が研究分担者に加わり、ガス中エアロゾルの有機系・無機系成分の評価実験を行うことが可能となった。また、平成 23 年度から荻 崇が研究分担者に加わり、カーボン凝集粒子の発生および特性評価が可能となった。

計画研究 P03：個別プラントにおける PM<sub>2.5</sub> 排出濃度などの情報は得られたが、中国側の情報開示の困難化により清華大学や中国科学院を通じた情報交換、特に、Source-receptor 関係解明に必要な大規模発電所、鉄鋼、セメント等の工場からの総排ガス量などの情報入手が困難化した。特に、中国も PM<sub>2.5</sub> 環境基準を 2016 年から実施することになってからその傾向は厳しい。中国での情報収集は当面断念し、マレーシア、タイなど東南アジア諸国のプラント計測、情報収集を行うこととした。

計画研究 P04：平成 23 年度から大原利眞が研究分担者に加わり、東・東南アジアにおける濃度、早期死亡数からみた PM<sub>2.5</sub> の排出部門別ソース・リセプタ関係の評価が飛躍的に進展し、その成果を利用して排出部門の産業連関法による排出（負荷量）構造分析を拡張し、本研究領域の目標であるエアロゾルの健康影響からみたインパクト構造の解明が可能となった。

##### 研究項目 A02

本研究項目では大きなメンバーの入れ替えはなかった。計画研究 P05 において研究分担者の異動により一部のメンバーの入れ替えがあったが、基本的な研究への取り組みに変化はなかった。また、領域の中間評価において中国の研究者の参加が強く要請されたが、予算的に困難があったため、計画研究 P07 の代表者を中心として JST による「戦略的国際科学技術協力推進事業－中国 MOST との「気候変動」分野における研究交流」に応募し、中国環境科学研究院との共同研究が認められたため、中国との共同研究のデータを本研究の成果と組み合わせることで東アジアに関する解析を行うことが可能となった。

##### 研究項目 A03

計画研究 P08 および P09 においては、研究推進時に大きな問題は生じず、他の計画研究や公募研究との連携も円滑に実施することができたため、多くの新しい知見が得られた。計画研究 A03-P10 では、観測タワーを野外実験施設に建設した際に、予算執行上の時間的制約と現地地形による技術的問題が生じた。タワー建設に関する時間的制約は大学事務組織の全面的な協力があり、予算の繰越処理で克服することができた。タワー建設に関する技術的問題は、計画研究 P11 の協力を得て解決することができた。また、電子顕微鏡による観察は、最終年度に組織変更によって研究協力者を研究分担者に変更し、計画研究 P08 からの協力もあり、遂行することができた。計画研究 P11 では、2011 年度に研究組織の微変更(1 名：分担者から連携研究者、3 名：研究協力者から連携研究者)を行ったが、メンバー構成は変わっておらず、各調査地点の観測の進捗状況に応じて貢献度を調整したものであり、2011～2012 年度の観測に効果的であった。

##### 研究項目 A04

エアロゾルの死亡影響に関する疫学研究（計画研究 P12）では、近年、中国では大気汚染などの情報を国外に持ち出すことが簡単ではなくなっており、東アジア地域の研究であるにもかかわらず、中国を含まない状況で中間評価を迎え、大きな問題点として指摘された。幸い、最終年度になってから、共同研究が可能となり、東アジアの実態を把握する機会を得ることができた。日本以外では韓国 6 都市、台湾 3 都市に加え、中国 18 都市のデータが得られた。越境汚染の発生源から下流の国々を含む、世界でも唯一と言える共同研究体制が構築された。ただし、解析結果が得られ、論文として発表されるのは平成 25 年度以降となる。

## 5. 研究計画に参画した若手研究者の成長の状況（1ページ程度）

研究領域内での若手研究者育成の取組及び参画した若手研究者の研究終了後の動向等を記述してください。

本領域では、若手の研究者の育成を大きな目的の一つに掲げてきた。この目的に沿って、平成 23 年度には第 2 回全体会議と同期して領域外の研究者にも門戸を開いた国内シンポジウムを開催した。その際に学生を中心とする若手研究者の発表を奨励し、特に学生には旅費の一部支給も行って、研究報告を奨励した。その結果、このシンポジウムでは若手のポスター発表が 54 件あり、活発な議論が行われた。

研究項目 A01：計画研究 P01 ではカーボン粒子の発生法の開発に参加した博士前期課程の学生が、日本エアロゾル学会において受賞した（井上歩，第 28 回エアロゾル科学・技術研究討論会、2011 年 8 月、井伊谷賞）。また、中国西安で行われたアジアエアロゾル会議においてもベストプレゼンテーションを受賞した。後者は博士課程後期に進学している。計画研究 P03 では平成 20～24 年度の間に参加した修士課程学生 6 名は、環境関連プラントエンジニアリング企業に就職した。計画研究 P04 では研究員として雇用した PD は、国内外の研究発表や観測を通じて多くの研究者と交流して業績を挙げ、京都大学農学研究科研究員として異動した。公募研究 K22 では全員助教・講師クラスの若手が対象となっており、切磋琢磨する環境があった。また研究終了後にも共同研究に発展する等、効果があった。公募研究 K03、K23 では研究代表者は、公募研究を通して研究費獲得と研究遂行の経験を蓄積し、大学教員（任期なし）に採用された。

研究項目 A02：計画研究 P07 では特に航空機観測の分野に多くの若手が参加した。計画研究 P07 で航空機観測に参加した博士後期課程の学生が、研究終了後同じ大学の工学部に特任助教として採用され、また公募研究 K24 で航空機観測に参加した博士後期課程の学生が他大学の博士研究員に採用された。

研究項目 A03 では、2011 年 3 月（北海道大学）と 2012 年 11 月（キングモンクット大学）に研究会「Workshop on Atmospheric Deposition in East Asia」を開催した。いずれもタイの研究協力者を招いて、英語で発表・質疑応答を行った。参加した若手研究者に対し、英語での口頭発表の機会を与えることができた。計画研究 P08 において科学研究費等研究支援研究員として雇用した半 智史氏が東京農工大学大学院農学研究院・テニユアトラック助教に採用され、現在エアロゾルの樹木の生理学的反応への影響に関する研究を精力的に遂行中である。また、計画研究 P08 および P09 において科学研究費等研究支援研究員として雇用した山根健一氏と山口真弘氏は環境省環境研究総合推進費の産学官連携研究員に採用され、現在は樹木に対する越境大気汚染物質の影響評価に関する研究を精力的に遂行している。また、計画研究 P10 においては、緒方裕子早稲田大学助手(2011 年度協力研究者、2012 年度分担研究者)が光散乱粒子測定法を森林に初めて適用し、エアロゾル個別粒子の鉛直分布観測を行い、粒径 1.0~2.0  $\mu\text{m}$  の粒子の概ね半分程度が樹冠によって捕捉されることなどを見出した。

研究項目 A04 では若手研究者は主に公募研究に参加していた。疫学、毒性学、医学、工学（物理・化学）といった異なる領域の研究者の共同作業の中から、エアロゾルに関する広い知識、研究方法を身につけた若手が多く、当初助教であった課題代表者 2 名が、現在は教授として日本の研究をリードしているし、ややせまい臨床に近い研究をしていた研究者も、広く大気汚染の疫学的手法を身につけ、多くの論文を執筆中である。

## 6. 研究経費の使用状況（設備の有効活用、研究費の効果的使用を含む）（1 ページ程度）

領域研究を行う上で設備等（研究領域内で共有する設備・装置の購入・開発・運用・実験資料・資材の提供など）の活用状況や研究費の効果的使用について総括研究課題の活動状況と併せて記述してください。

本領域は非常に学際的な研究を行ったため、研究の対象や手段がきわめて多彩である。そのため研究領域内で共通して使用する設備・装置はない。しかし、他の項目でも述べるように、領域内における連携を積極的に行ったため、各研究グループで購入し使用された設備や装置から得られたデータは有効に他の研究グループにも利用されたと認識している。

研究項目 A01：計画研究 P01 では BLACK CARBON MONITOR 用計測装置（MODEL3130-02）を購入し、大気中でのブラックカーボン濃度の高度による変化を観測すると同時に、地上において高精度のエアロゾル計測装置を用いてカーボン濃度の計測を行い、比較検討を行った。観測は A02 研究項目と共同で行い、総合的な解析に寄与した。計画研究 P03 では腐食性ガスを含む煙道内での分離測定のため、軽量のチタン合金製パーティクルインパクトを試作し、複数台のインパクトを有することで、同じ原理の平行測定を行い、測定法の ISO 作成に必要な装置間誤差の測定を可能とし、研究成果は ISO の基礎データとして採用された。計画研究 P04 では BVOC フラックス計測や SOA 性状分析のために購入した GCMS は、P04 のみならず A01-P03 の固定発生源排ガス中 PM 成分分析や A01-P02, A02-P06 との SOA 生成スモッグチャンバー実験の分析にも供されて有効に利用された。

研究項目 A02：本研究項目では計画研究 P07 が中心となって進めた航空機観測と計画研究 P05 によるライダーネットワーク観測、計画研究 P06 による北部九州での地上観測が研究の柱となった。そのために購入した設備備品類は、航空機観測を中心とした集中観測時に共通の基礎データを与えるためにも利用された。また航空機観測の飛行機借り上げ費用は高額のものであったが、数少ない研究機会を有効に活用するため様々な連携の基に大規模観測を行うことができたので、本研究費で購入した設備備品等も有効に活用することができた。

研究項目 A03：計画研究 P08 においては大型設備を購入していないが、分担研究者である黒田克史氏（森林総合研究所研究員）が高分解能走査電子顕微鏡をリース契約で導入し、エアロゾル粒子のナノレベルでの解析に貢献した。計画研究 P09 においては、ファイトトロンを購入してエアロゾル暴露チャンバーを開発したが、この装置は計画研究 P08 と共同で行った実験的研究に有効活用され、多くの新しい知見が得られた。計画研究 P10 で東京農工大学の野外実験施設（フィールドミュージアム多摩丘陵）に設置した高さ 30 m の観測タワーは、計画研究 P10 における研究でも使用され、エアロゾルの観測手法の開発などに極めて有効活用された。計画研究 P11 でタイ国サケラートに建設した観測鉄塔を有効活用して、熱帯域における多くの貴重なデータを得ることができ、さらに研究項目 A03 における総合影響解析の検証にも活用された。公募研究 K09 では、モデル開発を効率的に進めるために、高速かつ長時間継続計算が可能な複数ノードのクラスタ計算機（HPC システムズ製計算サーバー）を購入した。また、モデル計算に必要な入力データを取得するために、航空機搭載型レーザーキャナデータとそれを扱うための GIS ソフトウェアおよび超音波式樹高測定器を購入した。これらの購入物品は、計画研究 P10 や計画研究 P11 のデータ解析時においても有効活用された。

研究項目 A04：計画研究 P12 による疫学研究では、韓国、台湾と緊密に連絡を取るため、何度か行き来して、データの標準化などに取り組み、ワークショップなどで意見交換を行った。このことで意思疎通が十分にとれ、共同研究の成果も学会発表やシンポジウムでの発表につながった。現在、学術論文として雑誌への投稿を準備中である。

設備としては

(1) 国立環境研究所に設置された顕微鏡用画像解析システム、顕微鏡ミラーユニット、クリーンベンチ、MACS Separation Unit、多本架冷却遠心機、超純水製造装置の購入・設置により、検討対象物質の曝露による細胞の形態的变化の観察等の研究を効率的に実施できた。また、既設のフローサイトメーターにレーザーを増設し、より詳細な解析に対応が可能となった。ディープフリーザーと冷蔵庫は、保存サンプル数の増加に対応するために活用した。

(2) 京都大学では HS オールインワン蛍光顕微鏡とそのオプションを購入・設置し、検討対象物質の曝露による細胞の機能・形態変化の観察等に効率的に活用した。バイオフィトメーター、プレートリーダー、セルカウントを購入・設置することにより、細胞を用いた分子レベルのメカニズムの解明を効率的に実施した。また、クリーンベンチは細胞培養における無菌的操作を行うために頻用した。

## 7. 総括班評価者による評価（2 ページ程度）

総括班評価者による評価体制や研究領域に対する評価コメントを記述してください。

本研究領域は A01～A04 の 4 つの研究領域から構成されている。各研究領域の専門性を考慮し、A03 研究項目には 2 名、他の研究項目には 1 名の外部評価委員を委嘱し、研究の進め方の指導、進捗状況や研究成果の評価を依頼した。

### 研究項目 A01（笠原三紀夫 京都大学名誉教授）

本研究は、東アジアにおけるエアロゾルの動態を解明し、人や植物への影響を明らかにすることを目的に組織化された新学術領域研究である。

本年 1 月に中国で端を発した PM<sub>2.5</sub>問題は、まさしく本研究のキーワードである「東アジア」、「エアロゾル (PM<sub>2.5</sub>を含む微粒子)」、「動態 (長距離輸送＝越境汚染、変質)」、「健康影響」などに関わった問題であり、先見的にその重要性を認識し、現象の解明、人や植物への影響の解明に取り組んできたことは高く評価できる。

研究項目 A01 班では、エアロゾル計測技術の高度化、大気中における硫酸塩や有機粒子など二次粒子生成、東アジア地域におけるエアロゾルのソース・リセプタ解析 (SR 解析) などを実施してきた。計測技術の向上は、エアロゾル研究を発展・高度化させる基本的要素であるが、非常態下での計測など緻密な研究計画のもと進展させることができ、A02 班の飛行機観測による低圧・低温下観測で実際に使用しその有用性を確認する一方、A01～A04 班での研究をはじめ一般エアロゾル研究でも広く使用されている。硫酸塩や有機粒子生成については、対象とした成分の粒子生成・成長過程に関し、多くの有用なデータを得、個別研究として大きな研究成果をあげた。SR 解析では、輸送シミュレーションモデルを用いて東アジア地域における PM<sub>2.5</sub>の各国間濃度マトリックス (i 国が j 国に及ぼす濃度影響)、さらには早期死亡数マトリックスを評価し、東アジア地域における微粒子対策において重要となる基礎データを得た。各研究班は、個々の研究においては多くの成果をあげ、一部には今後の研究を展開していく上でブレークスルーとなる技術開発、新規解析手法の開発を行ったことは評価できる。ただし、問題点もなくはなかった。

異なる学問分野の研究者からなる本新学術領域のようなプロジェクト研究においては、各研究項目 (A01～A04) 班、各研究班の連携が重要となる。データの提供、エアロゾル発生・暴露実験などでの技術支援など、少なからぬ研究者間の連携は認められたものの、個々の研究班の研究方針の多くは、興味ある研究テーマの推進にあり、領域が必要とする研究テーマの選定・推進が必ずしも優先されなかったとの印象を受ける。例えば、二次粒子生成においては、微粒子が人や植物へ及ぼす影響を評価しようとするれば、主として興味の対象となった生成機構の解明ばかりでなく、現在の大気中での二次粒子の物理、化学両観点からみた定量的な性状データが不可欠であったのではないかと考える

繰り返しになるが、全体的には限られた期間・助成金の中で研究が推進され、本新学術領域研究の目的に沿った成果を相当程度達成したものと判断し、明記しておきたい。今後は、本研究で得られた研究成果やデータベースを広く公開し、関連する研究者が活用できるよう努めていただきたい。

### 研究項目 A02（太田幸雄 北海道大学名誉教授）

研究項目 A02 では、まずライダーおよび地上モニタリングによるエアロゾル動態解明に関する研究が実施された。多地点でのライダーネットワークで得られた地上付近の黄砂及び大気汚染性エアロゾルの長期間データは A04 項目の疫学研究班に提供され、ライダーデータを用いたいくつかの疫学研究が行われた。また健康影響が懸念される PM<sub>2.5</sub>粒子状物質の我が国風上域での動態把握研究が行われた。長崎県福江島、沖縄本島辺戸岬及び福岡市において、PM<sub>2.5</sub>粒子や粒子状有機物及び重金属類の地上観測が実施され、東アジア起源のエアロゾルが我が国の都市域の大気汚染に及ぼす影響が評価された。九州北部の都市域における PM<sub>2.5</sub>重量濃度については、各都市自身から発生している大気汚染物質の寄与はわずかであり、広域的な汚染状況に実質的に支配されていることを明らかにした。さらに、東アジアから輸送されるエアロゾル化学成分の航空機観測が行われた。2009 年の春季から 2012 年の春にかけて東シナ海上空において越境大気汚染についての 3 回の航空機観測を実施している。その際に各種エアロゾル成分の輸送モデルである CFORS による解析と、地上観測やライダー観測網による観測も並行して行われた。これらの結果、東シナ海海域において、イオン成分濃度は季節による違いよりも、黄砂や大規模汚染物質の飛来時に高くなること、ただし春季には大規模汚染の襲来日でない日でも硫酸塩や硝酸塩の濃度が高く、大陸からの大気汚染物質の輸送の影響があることを明らかにしている。一方、人工衛星のデータ解析と新たに開発された放射伝達計算シミュレーションとを比較し、地上計測による検証を行った。6 成分のエアロゾルを仮定し、中国北東部の黄砂嵐による黄砂粒子や森林火災による煤粒子について地上観測との検証を行い、妥当な粒径分布や複素屈折率を導出している。これらの結果を用いた国際的な共同観測である DRAGON キャンペーン (東アジア/日本/大阪) 観測と協力し、2012 年 3 月 11 日の観測において、大陸から我が国への大気汚染物質の大規模な越境輸送が生じていたことを明らかにした。以上のように A02 領域における研究では、新たな測定機の開発、および測定法の工夫を行っており、その上で特に東シナ海海域の離島観測、北九州の都市域観測、航空機観測及び人工衛星リモートセンシングを実施して、春季に黄砂の流入はもちろんのこと、同時に中国大陸から高濃度の汚染物質が我が国に輸送されてきていることを明らかにしている。この結果はこれまで断片的に指摘されて来たものではあるが、本研究で始めて総合的に実証されたものであり、非常に価値ある成果といえる。特に近年、西日本地域において春季に PM<sub>2.5</sub>濃度が急増

し、中国大陸からの飛来が指摘されているが、本研究はこれらの事象およびその輸送機構について、総合観測及びモデル解析によりすでに明らかにしている先駆的研究である。これら A02 項目の成果は A03 項目の植物影響班及び A04 項目の疫学研究班に継承されており、特に A04 項目ではこれらの結果を受けて、黄砂の小児ぜんそくに対する影響などが報告され、さらに黄砂と大気汚染物質の複合による呼吸器疾患の自覚症状の増加を示唆する結果も報告された。このように、項目間の連携も十分にとられている。

#### 研究項目 A03-1 (高松武次郎 元茨城大学教授)

A03 では、ブラックカーボン (BC) や硫酸アンモニウム (AS) エアロゾルが植物に沈着した場合の影響を、チャンバー試験、SEM 観察、野外調査などの手法で総合的に研究し、多くの新しい知見を得ている。大気汚染物質の植物影響については、これまでガス状汚染物質に関する研究が主流で、エアロゾルに関する知見は極めて乏しかったので、ここでの成果はいずれも独創的で、その波及効果も非常に大きいと評価できる。中でも、サブミクロンレベルの BC・AS エアロゾルを一定濃度で植物に暴露できる精巧な暴露チャンバーを設計・開発したこと、そのチャンバーを日本と東アジアの代表的樹種に適用し、「BC 沈着の物理的影響は比較的少ない」ことや「AS 沈着は特定樹種 (スダジイやスギ) に一定の影響を与える」ことを明らかにしたこと、SEM を用いた葉面沈着エアロゾルの可視化技法を開発し、BC は葉面のワックス構造などに依存して不均一に沈着するが、AS は比較的均一に沈着することを明らかにしたこと、そして、複数の手法を用いて実際の森林 (多摩丘陵、タイのサケラートなど) での BC・AS 沈着量を測定し、手法の比較検討と正確な沈着量の推定を行ったことなどは特筆すべき成果である。これらの成果は今後発展的に活用され、エアロゾル研究の進展に大いに寄与すると期待される。ただ、影響評価に関して、チャンバー実験での知見がフィールド調査結果の解析にあまり活かされていない、すなわち、実際の森林に対するエアロゾルの影響解析が充分行われていないのは少し残念である。また、公募研究で得られた成果の位置付けも少し曖昧である。ここで得られた成果を基に、今後、SEM による可視化技法の定量化 (沈着量や沈着部位の数値化)、BC の化学的因子を加味した影響評価、現地森林の生理活性の調査などを行い、エアロゾルの植物影響をより詳しく解明して欲しい。

#### 研究項目 A03-2 (戸塚 績 元東京農工大学教授)

植物影響に関する実験的研究では 5 ヶ年計画の前半 2 年間にブラックカーボン (BC) の影響と後半 2 年間に硫酸アンモニウム粒子の影響について試験した。本研究実施のために新たに開発された暴露用人工気象室内で生育させたブナ、スダジイ、カラマツ、スギの樹木苗 (1~3 年生) に一定の粒径を持つ BC を一定期間 1~2 日ごとに 1 回噴霧して樹木の生育変化を試験した結果、個体乾物成長では BC 暴露の影響は認められなかった。しかし BC の連続 50 時間の短期暴露した結果、葉面における BC 沈着量の増大による光合成速度の低下の度合いが前述の 4 種の樹木のいずれも大きくなったが、なかでもスギが最も顕著であった。このことは低濃度のエアロゾルでも試験した 4 樹種では野外条件下で BC エアロゾルに長期間暴露されれば植物の生育に悪影響を受けることを示唆している。一方、硫酸アンモニウム (硫安) 粒子の暴露実験では上述の 4 樹種に 2 年間一定期間だけ 1 日に 1~2 回散布 (暴露室内における硫安粒子の平均濃度は  $2.73\sim 4.32\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) した結果、スギを除きいずれの樹種でも個体乾物成長には有意な影響が認められなかった。しかしスギ当年葉の純光合成速度は有意に増加した。これはスギ葉面における硫安成分の吸収とその肥料効果によるのかもしれない。本実験では鍵となる一定範囲の粒径を持つエアロゾル発生・噴霧装置を工学系の分担研究者により新たに開発されたことが本実験を成功させたと高く評価される。また実験結果を解釈する上に走査型電子顕微鏡 (SEM) を扱う研究者との共同研究により葉面における BC や硫酸アンモニウムエアロゾルの葉面における吸着形態および葉内へのこれらエアロゾルの取り込みの有無が確認されており、エアロゾルの植物影響を解明するうえに貢献した。

野外観測用タワーを利用した森林への各種エアロゾルの沈着量の計測と動態の評価に関する研究では空気力学的手法により地上への BC 沈着量を算出するため東京農工大学附属実験施設 (FM 多摩丘陵) のコナラ林 (樹高 20m) に設置した観測タワーを利用して地上 20 m と 15 m での空气中 BC の濃度観測をもとにした濃度勾配法と葉に付着している BC を葉面洗浄法によって計測 (高度 4~20 m で葉を採取し、地上への沈着量を算出した。その他光学的計測装置 (FTIR 分光法) を用いて各種エアロゾル成分の高度分布や沈着量を計測した。その結果、BC が樹冠上部から地表に向けて沈着していくことと沈着した BC は降水等により樹冠から一部除去されることが示唆された。観測結果から初夏の新葉展開期における BC 沈着量は 2011 - 2012 年にそれぞれ  $0.24\ \text{mgC}$ 、 $0.28\ \text{mgC}/\text{m}^2/\text{day}$  と算出された。さらに 2011 年 4 月から 6 月までの 3 ヶ月間における積算沈着量は  $200\sim 250\ \text{mgC}/\text{m}^2$  と推定された。一方、東アジアの森林によるエアロゾルの沈着メカニズムの解明と沈着量を把握するために東アジアの熱帯、温帯、寒帯にそれぞれ属したサケラート (タイ国)、北佐久 (長野県)、天塩 (北海道) の森林で大気観測用タワーを利用してエアロゾルの乾性沈着観測をおこなった。その結果、サケラートにおける乾燥落葉林における乾性沈着速度は 2010 年と 2011 年でそれぞれ  $0.41$ 、 $0.34\ \text{cm}/\text{sec}$  と算出された。この数値と東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET) の測定局におけるモニタリングデータを使って森林表面への硫酸酸化物の乾性沈着量を算出した。さらに東アジア地域の森林への BC 沈着量を推定した。これら東アジア地域におけるエアロゾル沈着量の推定は本研究が初めてである。

#### A04 研究項目 (内山 巖雄 京都大学名誉教授)

本研究は、エアロゾルをキーワードとして、4 分野の研究者が協力して研究を推進する意図をもって進められたが、5 年間の研究成果をみると、それぞれの分野で他分野の成果を利用しつつ研究を進めている点が各所にみられ、その目的をある程度達成していると思われる。研究項目 A04 は、本研究の中ではエアロゾルの健康影響を明らかにしよ

うとするものである。

計画研究 P12 は日本の主要都市、韓国、台湾のデータを解析しており、SPM と日死亡の関係が、日本国内でも都市や季節により影響は一様ではなく、結論を得るにはまだ不十分であり、この分野の研究の困難さを示している。韓国、台湾の入手困難なデータを分析、比較したことに意義があるが、黄砂の影響の結果がわが国と異なるのは、黄砂への退避行動の違いなのかもしれないもう少し詳細な考察が欲しかった。

計画研究 P13 は、エアロゾルの成分ごとに影響が異なること、影響評価に有用なバイオマーカーの同定もあり、これらの成果は、これからの疫学研究に大いに役立てていただきたい。

計画研究 P14 はスギ花粉と SPM の相互作用、微小粒子への転換等興味深い成果が得られているが、提案された仮説が実際上の影響に結びついているか、疫学研究もこれから必要と思われる。

公募課題のうちの 4 課題は、黄砂の健康影響に関する公募課題である。研究期間途中から参加したものであり、研究全体の位置づけは十分でないものもあるが、平成 25 年 1～3 月の PM<sub>2.5</sub> 問題における注意喚起のための暫定指針値の根拠となる重要な成果も含んでいる。貴重なコホート集団をもっている研究者ばかりなので、黄砂と同時に SPM を対象とした同様の解析をこれからも行って欲しい。黄砂の影響を見るときに、黄砂日と非黄砂日の比較が多いが、黄砂の濃度-反応関係をみられるようなプロトコルを検討すれば、さらに有用なデータが得られると思われるので、今後に期待したい。

## 8. 主な研究成果（発明及び特許を含む）〔研究項目毎または計画研究毎に整理する〕

（3 ページ程度）

新学術領域研究（公募研究含む）の研究課題を元に発表した研究成果（発明及び特許を含む）について、図表などを用いて研究項目毎に計画研究・公募研究の順に整理し、具体的に記述してください。なお、領域内の共同研究等による研究成果についてはその旨を記述してください。

### 研究項目 A01

・計画研究 P01：P01 では地表から対流圏中層における二次粒子生成とその成長過程、および多成分系での成長過程を明らかにすることを目的とした研究を行い、以下の成果をあげた。① 高層大気中のエアロゾルの計測のため開発したエアロゾル荷電法により、世界最高レベルの荷電効率が得られ、製品化された。また、カーボン試験用標準粒子として生成するカーボンナノ粒子凝集体、多孔質体の密度・空隙率・屈折率などの制御を可能とした。②SO<sub>2</sub> ガスからの粒子生成過程に与える圧力、温度の影響を実験的に明らかにし、粒子生成メカニズムの SO<sub>2</sub> ガス濃度への依存性を明らかにした。③生物由来揮発性有機化合物(BVOC)のイソプレンの酸化による粒子生成速度と、大気中既存粒子(海塩粒子など)との相互作用を解析する手法を確立した。④A02 研究項目が中心となって実施した福江島における越境大気汚染の地上観測および航空機観測に参加し、中国などから長距離輸送される大気汚染物質の存在下における、ナノ粒子の生成初期過程の観測に初めて成功した。

・計画研究 P02：イソプレンのオゾンによる気相酸化反応から二次有機エアロゾルが生成する過程を対象とし、気相および粒子相での生成物分析を通して、エアロゾル生成機構を明らかにした。負イオン化学イオン化質量分析計および陽子移動反応質量分析計による生成物分析により、気相中で、オゾン酸化反応から生成するクリーギー中間体がカルボン酸、ヒドロペルオキシドに逐次的に付加したオリゴマー体が形成され、これが二次有機エアロゾルの生成に大きく寄与していることを見いだした。また、このような実験で一般的に用いられている OH ラジカル捕捉剤が、粒子相成分としてエアロゾル生成に直接関与していることを見いだした。これらの実験の一部は、A01-P04、および A02-P06 との共同研究として行われた。

・計画研究 P03： 固定発生源からの PM<sub>2.5</sub> やエアロゾルの 3 種類の排出機構を対象に、正確な排出濃度や粒度分布を計測する手法を、ISO13271:2012, ISO2559:2013 の国際標準法として規格化できるものを開発した。その計測法の妥当性を実験室でのモデル排ガス、及び国内外の各種燃焼プラント排ガスにより Virtual impactor が、PM<sub>2.5</sub> 計測のフィルタには微粒子のみが捕集され正確な PM<sub>2.5</sub> 濃度測定法であることを立証した。また、バグフィルターなど高性能集じん機を経ないで排ガスが放出された場合の PM<sub>2.5</sub> 質量濃度の計測を中国実プラントで行い、高濃度の PM<sub>2.5</sub> が放出されることを確認した。捕集された PM<sub>2.5</sub> や凝縮性粒子を含むフィルタを、A01-P04、K21、A04-K28 班と協力して有機、無機微量成分の分析を行い、微粒子で凝縮性粒子を含むほど微量成分が多いことを確認した。

・計画研究 P04：わが国の森林サイトやチャンバーを用いて代表的な樹木からの BVOC フラックスの放出特性（環境条件依存性）を明らかにし、近畿地方の BVOC 年間放出量マップを構築した。東アジアスケールの数値シミュレーションモデルを用いて、東・東南アジア諸国の部門別排出量と PM<sub>2.5</sub> 濃度との関係（ソース・リセプター関係）、並びに PM<sub>2.5</sub> による健康影響(早期死亡数)を排出部門別 SR マトリックスとして定量的に評価した。輸送部門以外では東アジアと一部の東南アジア諸国において中国起源の PM<sub>2.5</sub> の寄与が最大となるのに対して、輸送部門ではほぼ全てのリセプター領域において自国起源の寄与が最大となることが明らかとなった。更に、PM<sub>2.5</sub> による早期死亡数は中国で最も多く、次いで日本、インドネシアで多いことが示された。その成果をアジア国際産業連関表に導入し、各国の最終需要が誘発する国内外の BC, OC 吸入による早期死亡数を明らかにし、消費基準でみたわが国の国内汚染および越境汚染による健康影響について他国及び日本の寄与率を示した。

・公募研究 K01：フィルタ上に採取された大気エアロゾル試料を気体のオゾン・アルデヒドに曝露し、不均一反応に伴う有機組成の変化の可能性を調べる実験を行った。エアロゾル質量分析計に導入して有機物の質量スペクトルを検討したところ、オゾン曝露に伴う変化は僅かであった。一方、アルデヒドの曝露では、質量スペクトルのパターンの変化が認められ、不均一反応によって高分子量の化合物が生成している可能性が示された。

・公募研究 K02：慣性フィルターサンプラーを用いた超微小粒子(UFP)の捕集分析手法を確立し、固定発生源での UFP の大気観測に加え、道路(交差点)近傍での UFP 大気観測を実施した。固定発生源の二次粒子生成に与える金属核粒子の影響や、移動発生源における成分別の粒子成長挙動の違いを明らかにした。さらに、金属核粒子を用いたチャンバー実験を行い、二次粒子生成に与える金属核粒子の影響を実験室的に確認した。

・公募研究 K21：捕集分析手法に関して、慣性フィルタ(INF)サンプラーのガス吸着アーティファクトの評価や多環芳香族炭化水素の簡易迅速分析手法の開発を行った。一方で、道路交差点近傍での UFP 大気観測を地点別に行い、道路近傍からバックグラウンド地域に向かう粒子中各成分の挙動を明らかにした。さらに韓国ソウル市内において同様の地点別大気観測を行い、濃度差はあるものの UFP 成分が日韓で近い挙動を示すことを明らかにした。

・公募研究 K22： アンモニアのガスから粒子化の同位体分別係数の温度の違いによる変化量は 5%以内と非常



に小さく、アンモニアの場合は、発生源による違いが大きいことが推察された。また、いくつかの発生源の前駆物質であるガス状成分も野外にて同時測定を行うことが出来、実験室における結果をほぼ再現していることがわかった。また石炭中の炭素安定同位体比の結果は、数億年前の石炭生成時期を予測することが可能であるということが推察された。

・公募研究 K03, K23 : 前駆体 VOC からの SOA 生成過程の解明に貢献するために、K03 にて「VOC のラジカル反応性計測」、K23 にて「粒子中の有機硝酸類 ANs の計測」、を実現した。

#### 研究項目 A02

・計画研究 P05 ではエアロゾルの立体分布を観測するために地上ライダーネットワークおよび山岳を含む継続的な地上観測を行なった。ライダー観測では、先行研究で整備した 20 地点から構成される東アジアのライダーネットワークを利用し、本研究では新たに主要地点のライダーにラマン散乱測定機能を整備して自動連続観測を行った。またラマン散乱ライダーデータから黄砂、硫酸塩など（非光吸収性の小粒子）、海塩に加えて、ブラックカーボンなどの光吸収性小粒子の分布を推定する手法を開発した。一方、散乱強度と偏光解消度から球形エアロゾル（主に大気汚染）と非球形エアロゾル（黄砂）の濃度（消散係数）を推定する手法を用いて、過去データを含むライダーネットワークデータを解析し、各地点の地上付近の黄砂と大気汚染エアロゾルの継続的なデータセットを作成して疫学研究（研究項目 A04）に提供した。

・計画研究 P06 では長期自動運転が可能な測器を偏西風帯の風上域である沖縄本島辺戸岬および五島列島福江島に配備し、通年での PM<sub>2.5</sub> 濃度を観測し、これに加えて、長距離輸送イベントが盛んとなる春季を中心として PM<sub>2.5</sub> 中の有害物質の割合を明らかにするための短期集中観測を行う。さらに大陸起源の大気汚染物質が最初に到達する都市域として、九州北部の都市において PM<sub>2.5</sub> 中の有害物質の割合を明らかにするため、3 年目および 4 年目に季節を変えて短期集中観測を行った。島嶼部における集中観測では、PM<sub>2.5</sub> に占める有害物質の割合および混合状態をエアロゾル質量分析計、レーザー蒸発型エアロゾル質量分析計、フィルタ捕集などにより明らかにした。また、以下の実用新案を取得した。

名称：通常型ハイボリューム・エアサンプラー装着用 PM<sub>2.5</sub> 分級器；発明者：兼保直樹；

権利者：独立行政法人産業技術総合研究所；種類：実用新案；番号：実用新案第 3158839 号

取得年月日：H22 年 3 月 31 日；国内外の別：国内

・計画研究 P07 では平成 21 年 10 月、平成 22 年 12 月および平成 24 年 3 月の都合 3 回の航空機観測によって、本計画研究で予定した秋、冬、春の 3 季節での東シナ海上空の航空機観測を予定通り遂行することができ、化学成分の分析結果やモデル解析、流跡線解析などを加え、越境汚染の状況を解明し、さらに 3 年間の観測結果を総合して東シナ海上空における越境大気汚染の状況を解析した。この航空機観測では領域内の A01-P01 や A02-P05 および P06、公募研究の K05, K06, K24, K25 と緊密な連携を取って共同研究として観測が進められた。

・公募研究 K04 では中国東北部を代表する瀋陽、撫順、鉄嶺と金沢および輪島において、大気中多環芳香族炭化水素 (PAH) およびそのニトロ誘導体 (NPAH) を測定した。この研究では 9 種類の PAH と 4 種類の NPAH を測定し、濃度と組成比の特徴を解析した。PAH、NPAH の組成比から発生源（石炭燃焼あるいは石油燃焼）が推定されるが、輪島の測定結果は、金沢のもよりも組成が中国東北部のものに近く、輪島の PAH、NPAH が中国から輸送されたものであると考えられることが分った。

・公募研究 K05 および K24 では窒素酸化物由来の越境汚染の動態を把握するため、ガス状硝酸と硝酸エアロゾルの両方（全硝酸：TN）を観測した。航空機（P07 と共同）および地上で全硝酸の観測を行った。航空機観測（2009 年 10 月（秋）、2010 年 12 月（冬）、2012 年 3 月（春））により、冬には光化学活性が低いいため NO<sub>x</sub> が残留していたと考えられる。秋と冬の観測では、黄砂時を除き海塩粒子との反応による NaNO<sub>3</sub> が主要な硝酸エアロゾルであった。春には NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> の存在が推定された。また黄砂時には Ca(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> など、土壌粒子との反応によるものが含まれた。地上観測では、多くの場合、粒子状硝酸イオンがガス状硝酸より濃度が高い傾向にあり、窒素酸化物については大陸からの輸送の寄与は比較的小さいと言える。

・公募研究 K06 および K25 では地球大気・表面モデルによる放射計算によるシミュレーションと衛星データが最もよく一致するようにエアロゾル特性を導出する解析手法を開発した。NASA の地上放射計ネットワーク AERONET のデータから提案された 6 種類のエアロゾルタイプを、小粒子比率をパラメータとするバイモデル対数正規分布で近似する手法を提案した。エアロゾルイベント時の大気を光学的半無限大気モデルで記述し、衛星が観測する大気上端の上向き放射強度を効率的に計算できることを示した。また、AERONET の集中観測として 2012 年 2-5 月に実施された DRAGON-東アジア/日本/大阪を統括し、越境大気汚染イベントを地上の放射計ネットワーク、化学分析、衛星観測で捉えた。

・公募研究 K07 では燃焼生成炭素系物質であるブラックカーボン(BC)中の放射性炭素(<sup>14</sup>C)を分析することによって、バイオマス燃焼起源 BC と化石燃料燃焼起源の BC の割合と変動を解析する手法を検討した。また BC-<sup>14</sup>C 分析に必要な量の BC を採集することが難しい時期の試料量にも対応するため、加速器質量分析計による微量分析についても検討した。

## 研究項目 A03

研究項目 A03 においては、4 つの計画研究班(P08、P09、P10 および P11)と 4 つの公募研究班(K08、K09、K10 および K26)が有機的に連携し、東アジアの森林を構成する樹木に対するエアロゾルの影響に関するリスク評価を行った。計画研究 P08 と計画研究 P09 で行った実験的研究においては、世界で初めて植物用エアロゾル暴露チャンバーを開発し、それを用いて東アジアの代表的な樹木の葉におけるエアロゾルの吸着量と吸収量を評価し、成長、光合成などの生理機能、栄養状態および水分状態に対する影響とその樹種間差異を明らかにした。さらに、計画研究 P10 や公募班が新規に開発した森林におけるエアロゾルの沈着量と動態の評価手法を用いて、計画研究 P11 では東アジアの森林におけるエアロゾル成分の濃度、沈着・発生フラックス、樹木葉面への沈着形態などを明らかにした。最終的には、実験的研究の結果と野外観測の結果を総合的に解析・考察し、樹木に対するエアロゾルのリスク評価を行った結果、東アジアにおいてはエアロゾルの沈着が森林へ悪影響を及ぼしている地域がある可能性が示された。以下に、各計画研究班と公募研究班の研究成果の概要を示す。

・計画研究 P08 においては、葉におけるエアロゾル粒子をナノレベルで可視化するイメージング技術を確立し、葉の表面構造や気孔の大きさと形態などが異なる樹木におけるエアロゾルの吸収・吸着状態の樹種間差異を明らかにした。P09 との連携により、P09 で開発された暴露装置によって得られたブラックカーボン粒子の葉への吸着状態の違いを解析し、葉の表面状態の違いが大きく影響することを明らかにした。長期暴露した硫酸アンモニウム粒子の形状や大きさは、微粒子の周りの環境が変化したことで変化した。また、ブラックカーボン粒子と硫酸アンモニウム粒子の沈着場所は異なり、両者の葉の生理学的機能に与える影響が異なることが示唆された。

・計画研究 P09 においては、サブミクロンサイズのブラックカーボン粒子または硫酸アンモニウム粒子を植物に暴露する手法を開発し、東アジアの代表的な樹木に対するサブミクロンサイズのエアロゾル粒子の影響を実験的研究によって明らかにした。ブナ、スダジイ、カラマツおよびスギの苗木の個体乾物成長や光合成などに対するブラックカーボン粒子の有意な影響は認められなかった。4 樹種の葉に連続 50 時間にわたってブラックカーボン粒子の暴露を行った結果、暴露後の純光合成速度は暴露前のそれに比較して低く、ブラックカーボン粒子の葉面沈着量の増加に伴う純光合成速度の低下程度はスダジイ > ブナ > スギ > カラマツの順に著しいことが明らかになった。硫酸アンモニウム粒子の暴露は、4 樹種の個体乾物成長に影響を及ぼさなかったが、スギの当年葉の光合成能力を増加させ、旧年葉のそれを低下させることが明らかになった。

・計画研究 P10 においては、樹高 20 m の森林樹木の葉に対するブラックカーボンの葉面積あたりの沈着を葉面洗浄法によって実測し、濃度勾配法によって得られた大気から森林樹冠へのブラックカーボンの乾性沈着量と比較した。その結果、ブラックカーボンの葉面沈着量は、萌芽期から単調増加し、高原状態を経た後、落葉期には急激に減少することが明らかになった。期間を通じて、高度が下がるほど、ブラックカーボンの葉面沈着量は減少することが明らかになった。ブラックカーボン沈着の初期速度は  $0.24 \sim 0.28 \text{ mgm}^{-2} \text{ day}^{-1}$  であり、大気から沈着したブラックカーボンの概ね半分程度が葉に沈着していると見積もられた。

・計画研究 P11 においては、東アジアの森林において初めて総合的なエアロゾルの乾性沈着観測を行い、その沈着速度に関する知見を得た。森林内において、エアロゾルは森林の上方ほど多く沈着し、森林全体への沈着量に対して葉への沈着量は概ね半分程度であることが明らかになった。エアロゾル沈着量は、日本の遠隔域で二酸化硫黄に対する硫酸塩粒子の沈着比が大きいこと、熱帯林への元素状炭素の沈着は乾性沈着が湿性沈着を大きく上回ること等が明らかになった。東アジア広域のエアロゾル沈着量を大気化学輸送モデルで計算した結果、エアロゾル沈着が森林へ悪影響を及ぼしている地域がある可能性が示された。

・公募研究 K08 においては、北海道の冷温帯林樹木に対するエアロゾルの影響を解明した。フィールドバック法による大気中エアロゾル濃度の測定と野外での樹木葉に付着したエアロゾルの観察及び成分分析を行った結果、北海道東部においては森林樹木の生育期間中に硫酸塩やアンモニウムイオンの濃度が最も高いことが明らかになった。また、森林樹木の葉表面には、土壌粒子、花粉、塩化ナトリウム、硫黄を含む粒子が付着していることが明らかとなった。

・公募研究 K09 においては、エアロゾルの植物生態系への影響を評価することを目的に、乾性・湿性・霧水沈着を含めた包括的な沈着過程と葉面水の蒸発に伴う濃縮等の物理化学過程をモデル化し、植物への物質沈着量とともに樹冠内部の酸性物質の濃度および沈着量の鉛直分布を評価可能な精緻な地表面モデルを開発した。また、サブミクロン粒子の沈着に吸湿効果が重要な役割を果たすことを示した。

・公募研究 K10 においては、2010～2011 年にかけてモンゴル・ウランバートルにおいて大気、土壌、植物、石炭試料を採取し、試料中の成分分析を行った。その結果、主に大気からの乾性沈着によって、石炭燃焼由来エアロゾルが地表面に沈着する過程が支配的であることが示された。また、森林衰退の影響を強く受けているサイトでは、石炭燃焼の指標成分である炭素状粒子、硫黄化合物、微量元素が植物や土壌により多く蓄積されていることが明らかになった。

・公募研究 K26 においては、エアロゾルと霧の沈着による森林樹木への影響を解明するために、霧が発生する北海道東部において霧の化学的・物理的性質の解明および粒径の測定を行った。その結果、霧は大気中エアロゾルを取り込んでいることや粒径が比較的大きいことが明らかになった。また、樹木の葉に付着したエアロゾルの

雨滴に対する挙動を観察した結果、降雨によって多くの粒子が葉表面から流されることが明らかとなった。

#### 研究項目 A04

・計画研究 P12 では、エアロゾルの死亡影響を、地域汚染と越境汚染に分け、他の関連因子を制御した上で評価することを目的としていた。また、対象地域としては、日本及び東アジアを考えていた。A02 研究項目との連携により、通常の疫学的手法による研究に加えて、越境汚染の地域による相違を明らかにすることができ、その影響についても推定値を計算することができた。ただし、日本における粒子状物質濃度は、越境汚染を加えてもそれほど高くないため、どの程度安定した結果と考えてよいのかについては、今後も検討が必要である。

・計画研究 P13 では、「発生源や移動、成分等が異なる微小粒子・エアロゾルやそれらに含まれる成分、特に、多環芳香族炭化水素 (PAHs) とその誘導体の健康影響について、免疫応答と気道上皮への影響に注目し、実験的に評価すること。成分等による健康影響の相違を検討するとともに、それらの結果と健康影響の相関性を検討し、健康影響を規定する要因の絞り込みに資すること。加えて、増悪メカニズムを分子レベルで解析し、その結果をバイオマーカーの同定や予防対策の確立に役立てること。」を目的とし、他の研究班と連携しつつ研究を進めた。他研究班の情報も元に、検討対象物質を選定し、研究を進展することにより、その健康影響は、微小粒子・エアロゾルに含有される化学物質種により異なること、また、ベンゼン環数、官能基の有無やその種類、配置、酸化活性等が健康影響を規定する要因として重要であることも明らかにすることができた。併せて、健康影響評価に有用なバイオマーカーを探索・同定し、健康影響発現メカニズムを分子レベルで明らかにすることもできた。また、健康影響に係る情報を他班にフィードバックし、環境測定の対象とすることもできた。以上より、当初の設定通りの達成度と自己評価している。

・計画研究 P14 では、都市部において、スギ花粉アレルゲンの雨水などによる放出や黄砂・大気汚染の修飾影響を調査し、アレルギーの増悪など、花粉症罹患への黄砂や汚染物質の複合影響を評価した。特に、スギ花粉アレルゲンの微小粒径への移行は降雨が影響しており、降雨のイオン成分や pH によるスギ花粉アレルゲンの溶出挙動とその活性変化を検討した。このことにより、以前は説明できなかった、雨上がりの後の患者数増加に関する説明が可能となった。また、黄砂によって花粉症の症状が増悪するメカニズムが明らかになるなど、多くの知見が得られた。

・公募研究 K11,12,13 は、黄砂の健康影響を評価するために行われた。その結果、あるタイプの脳梗塞は黄砂の影響を受けてリスクが上昇することが示唆されたが、死亡、救急外来との関連が存在するとは言えないという結果となった。公募研究 K27 は黄砂が慢性咳嗽に及ぼす影響に関する研究であり、黄砂の濃度が一定以上では咳への影響がうかがわれた。本研究では A02-P05 計画研究と緊密な連携を取り、黄砂の飛来に関する迅速かつ正確なデータを解析に用いることができた。スギ花粉との複合影響に関しては解析中である。公募研究 K28 は他の公募研究と異なり、エアロゾルの成分測定の簡便法のパフォーマンス評価と改善を目的として行われた。結果、簡便法で十分な精度を確保して、毎日の成分濃度測定が可能となった。この手法を用いた解析を A02-P06 の分析にも適用して重要な成果を上げている。短期影響の疫学研究では、死亡数と汚染物質の日別データが長期に必要となるため、この成果は今後の短期影響疫学研究に、非常に重要な貢献をすることが期待される。

## 9. 研究成果の取りまとめ及び公表の状況（主な論文等一覧、ホームページ、公開発表等）（5ページ程度）

新学術領域研究（公募研究含む）の研究課題を元に発表した研究成果（主な論文、書籍、ホームページ、主催シンポジウム等の状況）について具体的に記述してください。論文の場合、計画研究・公募研究毎に順に記載し、研究代表者には二重下線、研究分担者には一重下線、連携研究者には点線の下線を付し、corresponding author には左に\*印を付してください。また、一般向けのアウトリーチ活動を行った場合はその内容についても記述してください。

### 研究領域（総括班）

ホームページ：領域としてのホームページを当初から開設して対外的な情報発信に用いた。URL は <http://www.tuat.ac.jp/~aerosol/> である。

### 主催シンポジウム：

(1) 主として領域内の情報共有のためのシンポジウムを平成 20 年度 1 回、以降平成 21 年度～24 年度は各年度 2 回開催した。

- (1) 平成 21 年 2 月 27 日、28 日（東京農工大学農学部、東京都府中市）
- (2) 平成 21 年 8 月 24 日、25 日（東京農工大学工学部、東京都小金井市）
- (3) 平成 22 年 1 月 21 日、22 日（国立環境研究所、茨城県つくば市）
- (4) 平成 22 年 9 月 28 日、29 日（東京農工大学工学部、東京都小金井市）
- (5) 平成 23 年 1 月 26 日、27 日（筑波大学、茨城県つくば市）
- (6) 平成 23 年 9 月 28 日、29 日（東京農工大学農学部、東京都府中市）
- (7) 平成 24 年 1 月 24 日～26 日（一般研究者も対象とした拡大シンポジウムとして実施）（京都大学、京都府京都市）
- (8) 平成 24 年 9 月 24 日、25 日（埼玉大学工学部、埼玉県さいたま市）
- (9) 平成 25 年 1 月 24 日、25 日（東京農工大学工学部、東京都小金井市）

(2) 国内シンポジウム：領域における研究成果を広く一般にも情報発信し、また若手研究者の研究を奨励するため一般の研究者等も対象としたシンポジウムを平成 24 年 1 月 24 日～26 日に京都府京都市の京都大学百周年時計台記念館にて開催した。招待講演 4 件、学生を含む若手のポスター発表は 54 件行われた。

(3) 国際シンポジウム：海外の著名研究者を招待し、また国内外の研究者にも広く呼びかけて、平成 24 年 11 月 29 日～12 月 1 日に東京農工大学工学部（東京都小金井市）において”International Symposium on Aerosols in East Asia and Their Impacts on Plants and Human Health” と題した国際シンポジウムを開催し、8 名の招待講演（内 7 名は外国からの招待）を含む 28 件の口頭発表と 38 件のポスター発表が行われた。

研究成果報告書：本領域では各年度の研究成果を一般に公開するため、平成 21 年度～24 年度の各年度末に研究成果報告書を和文および英文にてそれぞれ出版した。各巻の平均頁数は和文 160 ページ英文 120 ページである。

### 一般向けアウトリーチ活動：

(1) 酸性雨問題研究会との共催で一般市民向け講座「大気エアロゾルとその植物・人間へのインパクト」を平成 23 年 5 月 21 日に東京農工大学農学部（東京都府中市）において開催した。

- (1) エアロゾル：ミクロとマクロの出会いの場所：原 宏（東京農工大学農学部）
- (2) エアロゾル沈着の科学：松田 和秀（明星大学理工学部総合理工学科）
- (3) 日本の果てのエアロゾル：長期観測から見えるもの：兼保 直樹（産業技術総合研究所）
- (4) スギ花粉由来エアロゾルって、どうなってるの？：王 青躍（埼玉大学工学部）
- (5) 植物に対するエアロゾルの影響：伊豆田 猛（東京農工大学大学院）
- (6) 「エアロゾル学」創成を目指して：畠山 史郎（東京農工大学大学院）

の 6 件の講演を行い、終了後アンケートを実施した。50 名を超える参加者があり、講演の内容に約 60% が十分満足、約 40% が、まあ満足したとの回答を寄せた。

(2) 学会誌の特集号の発刊：日本エアロゾル学会の機関誌「エアロゾル研究」に「東アジアにおけるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト」と題する特集として領域代表および各研究項目代表による以下の 4 件の総説を掲載した。

- (1) 東アジアから輸送されるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト解明を目指して（畠山 史郎）
- (2) エアロゾルの生成と排出源の評価（東野 達）
- (3) 東アジアのエアロゾル・大気汚染物質の輸送と広域分布の解明（杉本 伸夫、兼保 直樹、畠山 史郎、早川 和一、定永 靖宗、向井 苑生、内田 昌男）
- (4) 植物に対するエアロゾルの影響に関する研究（伊豆田 猛）
- (5) エアロゾルの健康影響の解明（本田 靖）

(3) テレビ、ラジオ、新聞、雑誌等での情報発信：

平成 25 年 1 月 3 日にかけては、中国の北京周辺で報告された高濃度 PM2.5 が大きな社会問題となったため、

本研究領域を構成する多くの研究者がテレビ、ラジオや新聞、雑誌等においてこれに関連する情報発信を行った。その中には本研究領域で行われた研究成果も多く含まれている。

論文

研究項目 A01

・計画研究 P01

- 1) \*T. Seto, S. Kim, Y. Otani, A. Takami, N. Kaneyasu, T. Fujimoto, K. Okuyama, T. Takamura, and S. Hatakeyama: New particle formation and growth associated with East-Asian long range transportation observed at Fukue Island, Japan in March 2012, *Atmos. Environ.*, **74**, 29-36 (2013).
- 2) \*藤本敏行, 山中真也, 空閑良壽: 紫外光反応により発生した硫酸二次粒子の成長, *エアロゾル研究*, **27** (1), 81-89 (2012).
- 3) S. Y. Lee, H. Chang, T. Ogi, F. Iskandar and \*K. Okuyama: Measuring the effective density, porosity, and refractive index of carbonaceous particles by tandem aerosol technique, *Carbon*, **49**, 2163-2172 (2011).

・計画研究 P02

- 1) J.-H. Xing, \*K. Takahashi, A. Yabushita, T. Kinugawa, T. Nakayama, Y. Matsumi, K. Tonokura, A. Takami, T. Imamura, K. Sato, M. Kawasaki, T. Hikida, and A. Shimono: Characterization of aerosol particles in the Tokyo metropolitan area using two different particle mass spectrometers, *Aerosol Sci. Technol.*, **45**, 315-326 (2011).
- 2) \*K. Takahashi, J.-H. Xing, M. D. Hurley, and \*T. J. Wallington: Kinetics and mechanism of chlorine-atom-initiated oxidation of allyl alcohol, 3-buten-2-ol, and 2-methyl-3-buten-2-ol, *J. Phys. Chem.*, **A114**, 4224-4231 (2010).
- 3) \*J. Hirokawa, T. Kato, and F. Mafune: In situ measurements of atmospheric nitrous acid by chemical ionization mass spectrometry using chloride ion transfer reactions, *Anal. Chem.*, **81**, 8380-8386 (2009).

・計画研究 P03

- 1) N. Hama, Y. Takashima, M. Gen, M. Tsukada, H. Kamiya and \*I.W. Lenggoro: Measurement of model aerosols containing two metal components formed via cooling and dilution routes, *Eaorozoru Kenkyu* (Journal of Aerosol Research Japan), **26**, 2011, 277-285 (2011).
- 2) \*神谷秀博: 固定発生源からの PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> の排出挙動評価法, *環境管理*, **47**, 190-196 (2011).
- 3) \*H. Kamiya, K. Hada, T. Sekizawa, M. Yamada, M. Tsukada, W. Lenggoro, M. Wada, N. Kogure, Y. Yuping & W.W. Szymanski, Measurement and analysis of fine particulate matters (PM<sub>10</sub>/PM<sub>2.5</sub>) and condensable nanoparticles emission from stationary sources, WIT Transactions on Ecology and the Environment, "Sustainable Chemistry", **154**, 71-81 (2010).

・計画研究 P04

- 1) \*Nansai, K., Kondo, Y., Kagawa, S., Suh, S., Nakajima, K., Inaba, R. and Tohno, S.: Estimates of embodied global energy and air-emission intensities of Japanese products for building a Japanese input-output life cycle assessment database with a global system boundary. *Environ. Sci. Technol.* **46**, 9146-9154 (2012).
- 2) \*Tani, A., Tozaki, D., Okumura, M., Nozoe, S., Hirano, T.: Effect of drought stress on isoprene emission from two major species native to East Asia. *Atmos. Environ.* **45**, 6261-6266 (2012).
- 3) \*東野 達: エアロゾルの越境汚染と影響の評価, *環境衛生工学研究*, **23**, 3-14 (2009) .

・公募研究 K02, K21

- 1) Kim, K. H., \*Sekiguchi, K., Kudo, S., Kinoshita, M., Sakamoto, K.: Carbonaceous and ionic components in ultrafine and fine particles at four sampling sites in the vicinity of roadway intersection, *Atmos. Environ.*, **74**, 83-92 (2013).
- 2) Kudo, S., \*Sekiguchi, K., Kim, K. H., Kinoshita, M., Möller, D., Wang, Q., Yoshikado, H., and Sakamoto, K.: Differences of chemical species and their ratios between fine and ultrafine particles in the roadside environment, *Atmos. Environ.*, **62**, 172-179 (2012).

・公募研究 K22

- 1) \*H. Kawashima, Y. Haneishi: Effects of combustion emissions from the Eurasian continent in winter on seasonal  $\delta^{13}\text{C}$  of elemental carbon in aerosols in Japan, *Atmos. Environ.*, **46**, 568-579 (2012).
- 2) \*H. Kawashima, T. Kurahashi: Inorganic ion and nitrogen isotopic compositions of atmospheric aerosols at Yurihonjo, Japan; Implications for nitrogen sources, *Atmos. Environ.*, **45**, 6309-6316 (2011).

・公募研究 K03, K23

- 1) \*Matsumoto, J.: Measuring biogenic volatile organic compounds (BVOCs) from vegetation in terms of ozone reactivity, *Aerosol and Air Quality Research*, in press.
- 2) \*Matsumoto, J.: Kinetics of the reactions of ozone with 2,5-dimethylfuran and its atmospheric implication, *Chem. Lett.*, **40**(6), 582-583 (2011).

研究項目 A02

・計画研究 P05

- 1) \*Sugimoto, N., Hara, Y., Shimizu, A., Nishizawa, T., Matsui, I., Nishikawa, M. (2013). Analysis of Dust Events in 2008 and 2009 Using the Lidar Network, Surface Observations and the CFORS Model, *Asia-Pacific J. Atmos. Sci.*, **49** (1), 27-39.
- 2) \*Sugimoto, N., Huang, Z., Nishizawa, T., Matsui, I., Tatarov, B. (2012). Fluorescence from atmospheric aerosols observed with a multi-channel lidar spectrometer, *Optics Express*, **20** (19), 20800-20807.
- 3) \*Naoe, H., Y. Zaizen, K. Yanagida, K. Okada, H. Takahashi, and Y. Igarashi (2012). Mixing state of aerosol particles at Mt. Hotaka, Japan: A case study in winter, *Atmospheric Research*, **118**, 170-179.

・計画研究 P06

- 1) \*Sato, K., Takami, A., Irei, S., Miyoshi, T., Ogawa, Y., Yoshino, A., Nakayama, H., Maeda, M., Hatakeyama, S., Hara, K., Hayashi, M., Kaneyasu, N. (2013) Transported and Local Organic Aerosols over Fukuoka, Japan, *Aerosol and Air Quality Research*, (in press), DOI: 10.4209/aaqr.2013.01.0006
- 2) \*Yabushita, A., Kinugawa, T., Narukawa, M., Takahashi, K., Kawasaki, M., Matsumi, Y. (2011). Ion formation processes in laser ablation of multicomponent inorganic particles relevant to single particle laser analysis of atmospheric aerosols, *Chemistry Letters*, **40**(5) 446-448.
- 3) \*兼保直樹, 高見昭憲, 佐藤 圭, 畠山史郎, 林 政彦, 原 圭一郎, Chang, L.-S., Ahn, J.-Y. (2010), 九州北部における春季の高濃度 PM<sub>2.5</sub> と長距離輸送, 大気環境学会誌, 45(5), 227 ~ 234, DOI: 10.11298/taiki.45.227

・計画研究 P07

- 1) \*畠山史郎 (2012). 長距離越境大気汚染の解明を目指した航空機および地上観測, 大気環境学会誌, **47** (3), 111-118.
- 2) \*S. Hatakeyama, S. Hanaoka, K. Ikeda, I. Watanabe, T. Arakaki, Y. Sadanaga, H. Bandow, S. Kato, Y. Kajii, K. Sato, A. Shimizu, and A. Takami (2011). Aerial Observation of Aerosols Transported from East Asia —Chemical Composition of Aerosols and Layered Structure of an Air Mass over the East China Sea, *Aerosol Air Qual. Res.*, **11**, 497-507.
- 3) Shi, G., \*D. Zhang, B. Wang, B. Chen, M. Yamada, and H. Niu (2011). Elevated aerosol layer embedded with aged soot particles in a polluted urban atmosphere. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **11**, 1641-1669.

・公募研究 K04

- 1) \*Okamoto, S., Adachi, M., Chujo, S., Yamada, K., Akita, K., Itoh, S., Takii, T., Hayakawa, K., Onozaki, K. (2011). Etiological role of cigarette smoking in rheumatoid arthritis: Nasal exposure to cigarette smoke condensate extracts augments the development of collagen-induced arthritis in mice. *Biochem. Biophys. Res. Commun.*, **404** (4), 1088-1092.
- 2) \*片山裕規, 後藤知子, 亀田貴之, 唐 寧, 松木 篤, 鳥羽 陽, 早川和一 (2011). 日本および中国における大気粒子中多環芳香族炭化水素キノンの観測—濃度レベルの把握と発生要因の検討—, 大気環境学会誌, **46** (1), 20-28.

・公募研究 K05, K24

- 1) 藤原大, \*定永靖宗, 竹中規訓, 坂東博 (2012). 大阪府におけるオゾンとその前駆物質の週内変動. 大気環境学会誌, **47**, 75-80.
- 2) \*Y. Sadanaga, M. Sengen, N. Takenaka, and H. Bandow (2012). Analyses of the ozone weekend effect in Tokyo, Japan: Regime of oxidant (O<sub>3</sub> + NO<sub>2</sub>) production. *Aerosol Air Qual. Res.*, **12**, 161-168.

・公募研究 K06, K25

- 1) \*Mukai, S., Yokomae, T., Sano, I., Nakata, M. and Kohkanovsky, A. (2012) Multiple scattering in a dense aerosol atmosphere, *Atmos. Meas. Tech. Discuss.*, **5**, 881-907.
- 2) \*Nakata, M., Sano, I. and Mukai, S. (2012) Relationship between AOT and PM based on multi-measurements and model simulations, *NAIS Journal*, **7**, 17-21.

ホームページ :

航空機観測のデータ公開

URL: <http://www.tuat.ac.jp/~aerosol/obs-data.html>

ライダーネットワーク(AD-Net)データの公開

URL: <http://www-lidar.nies.go.jp/AD-Net/>

P05 班 (ラマン散乱ライダー、山岳観測) のデータ共有

URL: [http://www-lidar.nies.go.jp/ASEPH\\_A02-P05/](http://www-lidar.nies.go.jp/ASEPH_A02-P05/)

研究項目 A03

・計画研究 P08

- 1) \*Yamaguchi, M., Y. Otani, K. Takeda, I. W. Lenggoro, A. Ishida, K. Yazaki, K. Noguchi, H. Sase, N. Murao, S. Nakaba, K. Yamane, K. Kuroda, Y. Sano, R. Funada, and T. Izuta\* (2012). Effects of long-term

- exposure to black carbon particles on growth and gas exchange rates of *Fagus crenata*, *Castanopsis sieboldii*, *Larix kaempferi* and *Cryptomeria japonica* seedlings. *Asian J. Atmos. Environ.* 6, 259-267.
- 2) \*Yamane, K., S. Nakaba, M. Yamaguchi, K. Kuroda, Y. Sano, Y. I. W. Lenggoro, T. Izuta, T. and R. Funada\* (2012). Visualization of artificially deposited submicron-sized aerosol particles on the surfaces of leaves and needles in trees, *Asian J. Atmos. Environ.* 6, 275-280.
  - 3) \*Nakaba, S., Kubo, T. and Funada, R. (2011). Nuclear DNA fragmentation during cell death of short-lived ray tracheids in the conifer *Pinus densiflora*, *Journal of Plant Research*, **124**, 379-384.
- ・計画研究 P09
- 1) Yamaguchi, M., K. Takeda, Y. Otani, N. Murao, H. Sase, I. W. Lenggoro, K. Yazaki, K. Noguchi, A. Ishida, and \*T. Izuta (2012). Optical method for measuring deposition amount of black carbon particles on foliar surface, *Asian J. Atmos. Environ.* 6, 268-274.
  - 2) Hama, N., Y. Takashima, M. Gen, M. Tsukada, H. Kamiya, and \*I. W. Lenggoro (2011). Measurement of model aerosols containing two metal components formed via cooling and dilution routes, *J. Aerosol Res.*, **26**, 277-285.
  - 3) \*伊豆田 猛, 船田 良 (2010). 東アジアにおけるエアロゾルの森林影響の解明をめざして, 北方林業, **62**, 61-64.
- ・計画研究 P10
- 1) 鈴木佳祐, \*大河内 博, 緒方裕子 (2012). 首都近郊小規模森林における生物起源揮発性有機化合物 (BVOCs) の大気動態, 大気環境学会誌, **47**, 51-57.
  - 2) 曾田美夏, \*大河内 博, 緒方裕子, 大川浩和 (2013). メチレンブルー吸光度法を用いた都市大気エアロゾル中陰イオン界面活性物質の迅速定量, 分析化学, 掲載決定(2013年3月1日).
  - 3) \*高柳正夫 (2011). 講座: 赤外分光測定法—基礎と最新手法. 15. 近赤外分光法, 分光研究, **60**, 107-114.
- ・計画研究 P11
- 1) \*Matsuda, K., H. Sase, N. Murao, T. Fukazawa, K. Khoomsub, P. Chanonmuang, and P. Khummongko (2012). Dry and wet deposition of elemental carbon above a tropical forest in Thailand, *Atmospheric Environment*, **54**, 282-287.
  - 2) \*Sase, H., K. Matsuda, T. Visaratana, H. Garivait, N. Yamashita, B. Kietvuttinon, B. Hongthong, J. Luangjame, P. Khummongkol, J. Shindo, T. Endo, K. Sato, S. Uchiyama, M. Miyazawa, M. Nakata, and I. W. Lenggoro (2012). Deposition process of sulfate and elemental carbon in Japanese and Thai forests, *Asian Journal of Atmospheric Environment*, **6**, 246-258.
  - 3) \*Fukazawa, T., N. Murao, H. Sato, M. Takahashi, M. Akiyama, T. Yamaguchi, I. Noguchi, H. Takahashi, H. Akahashi, C. Kozuka, R. Sakai, K. Takagi, Y. Fujinuma, N. Saigusa, and K. Matsuda (2012). Deposition of aerosols on leaves in a cool-temperate larch forest in Northern Hokkaido, Japan, *Asian J. Atmos. Environ.*, **6**, 281-287.
- ・公募研究 K08, K26
- 1) \*Watanabe, Y., T. Yamaguchi, G. Katata, and I. Noguchi (2013). Aerosol deposition and behavior on leaves in cool-temperate deciduous forests, Part 1: A preliminary study of the effect of fog deposition on behavior of particles deposited on the leaf surfaces by microscopic observation and leaf-washing technique, *Asian J. Atmos. Environ.*, **7**, 1-7.
  - 2) \*渡邊陽子, 渡辺 誠 (2010) エアロゾルは樹木へ影響するのだろうか?—これまでにわかっていること—, 北方林業, **62**, 88-91.
- ・公募研究 K09
- 1) \*Katata, G., T. Yamaguchi, H. Sato, Y. Watanabe, I. Noguchi, H. Hara and H. Nagai (2013). Aerosol deposition and behavior on leaves in cool-temperate deciduous forests, Part 3: Estimation of fog deposition onto cool-temperate deciduous forest by the inferential method, *Asian J. Atmos. Environ.*, **7**, 17-24.
  - 2) \*Katata, G., Nagai, H., Kajino, M., Ueda, H., and Hozumi, Y. (2010). Numerical study of fog deposition on vegetation for atmosphere-land interactions in semi-arid and arid regions. *Agr. Forest Meteorol.*, **150**, 340-353.
- ・公募研究 K10
- 1) \*Endo, T., Yagoh H., Sato, K., Matsuda, K., Hayashi, K., Noguchi I., and Sawada K. (2011). Regional characteristics of dry deposition of sulfur and nitrogen compounds at EANET sites in Japan from 2003 to 2008. *Atmos. Environ.* **45**, 1259-1267.
  - 2) \*松田和秀, 佐藤啓市 (2009). EANET 広域大気汚染データの活用, 大気環境学会誌, **44**, 341.

研究項目 A04

・計画研究 P12

- 1) \*本田 靖 (2011). エアロゾルの健康影響の解明. エアロゾル研究, **26**, 127-132.  
・計画研究 P13
- 1) \*小池英子(2013) 多環芳香族炭化水素と誘導体の毒性機序解明へのアプローチ. エアロゾル研究, **28**: 34-41.  
2) \*高野裕久、小池英子、柳澤利枝 (2012) 環境化学物質とアレルギー疾患. チャイルドヘルス, **15**: 850-854.  
3) \*Inoue K, Takano H (2011) Biology of diesel exhaust effects on allergic pulmonary inflammation. *Yakugaku Zasshi*, **131**: 367-371.  
・計画研究 P14
- 1) \*S. Lu, R. Zhang, Z. Yao, F. Yi, J. Ren, M. Wu, M. Feng, Wang Q., (2012) Size distribution of chemical elements and their source apportionment in ambient coarse, fine, ultrafine particles in Shanghai urban summer atmosphere, *J. Environ. Sci.*, **24**(5), 882-890 (Doi: 10.1016/S1001-0742(11)60870-X).  
2) \*S. Kudo, K. Sekiguchi, K. H. Kim, M. Kinoshita, D. Moller, Q. Wang, H. Yoshikado, K. Sakamoto (2012) Differences of chemical species and their ratios between fine and ultrafine particles in the roadside environment, *Atmos. Environ.*, **62**, 172-179.  
3) \*Bao L., Matsumoto M., Kubota T., Sekiguchi K., Wang Q., Sakamoto K. (2012) Gas/particle partitioning of low-molecular-weight dicarboxylic acids at a suburban site in Saitama, Japan, *Atmos. Environ.*, **47**, 546-553 (<http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2009.09.014>).  
・公募研究 K11
- 1) \*Kamouchi M, Ueda K, Ago T, Nitta H, Kitazono T; Fukuoka Stroke Registry Investigators (2012) Relationship between Asian dust and ischemic stroke: a time-stratified case-crossover study. *Stroke*. **43**(11):3085-7.  
・公募研究 K12
- 1) \*橋爪 真弘, 上田 佳代, 西脇 祐司, 道川 武紘, 小野塚 大介 (2010) 黄砂の健康影響—疫学文献レビュー. *日衛誌* **65**(3):413-421.  
2) \*Hashizume, M., Ueda, K., Nishiwaki, Y., Michikawa, T., Onozuka, D. (2010). Health effects of Asian dust events: a review of the literature. *Nippon Eiseigaku Zasshi*. **65**, 413-421.  
・公募研究 K13
- 1) \*Ueda, K., Nitta, H., Odajima, H. (2010) The effects of weather, air pollutants, and Asian dust on hospitalization for asthma in Fukuoka. *Environ Health Prev Med* **15**:350-357.  
・公募研究 K27
- 1) \*Higashi, T., Saijoh, K. (2012). Health Effects of Asian Dust (Kosa). In: Environmental Health and Education for Sustainable Development (Nakamura H, Suzuki K, Hayakawa K, eds). Kanazawa e-Publishing Co. Ltd., Kanazawa, Japan, 45-50.  
2) \*Tanii, H., Higashi, T., Demura, M., Saijoh, K. (2012). Repeated Exposure to Cruciferous Allyl Nitrile Protects against Chemically Induced Skin Inflammation in the Mouse. *Food and Nutrition Sciences*, **3**, 1037-1042.  
・公募研究 K28
- 1) \*Okuda, T., Fujimori, E., Hatoya, K., Takada, H., Kumata, H., Nakajima, F., Hatakeyama, S., Uchida, M., Tanaka, S., He, K., Ma, Y., Haraguchi, H. (2013) Rapid and simple determination of multi-elements in aerosol samples collected on quartz fiber filters by using EDXRF coupled with fundamental parameter quantification technique, *Aerosol Air Quality Res.*, **13**, 436-449.  
2) \*Okuda, T., (2013) Measurement of the specific surface area and particle size distribution of atmospheric aerosol reference materials, *Atmos. Environ.*, **75**, 1-5.

ホームページ :

A04-P14 の成果について

[http://park.saitama-u.ac.jp/~wang\\_oseiyo/index-j.php](http://park.saitama-u.ac.jp/~wang_oseiyo/index-j.php)



## 10. 当該学問分野及び関連学問分野への貢献度（1 ページ程度）

研究領域の研究成果が、当該学問分野や関連分野に与えたインパクトや波及効果などについて記述してください。

本研究領域は、公募要領の対象にいう、「異なる学問分野の研究者が連携して行う共同研究等の推進により、当該研究領域の発展を目指すもの」に該当するものとして開始された。エアロゾルの化学、物理、工学など理工系の研究者と植物生理の研究者、医学の三分野の研究者が連携してエアロゾルをキーワードに東アジアで増加するエアロゾルの発生、変質、沈着のプロセスの解明と、組成・分布・輸送のデータから植物、人間の健康への影響を明らかにすることを中心的な目標に掲げ研究を行った。これらの分野でのエアロゾルについての研究の進展度合いには従来大きな差があった。理工学系の研究分野におけるエアロゾル科学はすでに大きく発展してきているが、植物に対するエアロゾルの影響の研究はこれまでほとんど行われておらず、エアロゾルの健康への影響も疫学的な調査・研究はまだ緒に就いたばかりであった。また、これまで、東アジアの急速な経済発展によるエアロゾル汚染の増悪と、様々な大気汚染物質の植物や健康への影響はそれぞれ独立に研究が進められてきた。そのため、種々のフィールド観測のデータも地球科学的には非常に興味があり、意義深いものであっても、影響の研究に有効に活用されてきたとは言い難い。一方、植物や健康影響に関連して多くの大気汚染物質や粒子状物質の曝露実験が行われてきたが、ローカルな汚染をターゲットにしたものが中心で、広域の汚染を意識したものは限られていた。このような分野の研究者が連携を深めて研究を進めることにより、異分野間の関係をより密接なものとすることに貢献し、この分野の学術水準の向上・強化に資することができた。

本領域では共通のフィールド（北九州地域）で三者が共同で観測を行ったり、影響研究を推進するにあたってどのような野外観測データが必要であるかの提言を影響研究側からタイムリーに行ったりすることにより、三者の間の連携を深め、新たな研究領域を発展させることができたと考えられる。このような従来の研究分野をまたいだ連携の例としては、黒色炭素エアロゾルの安定的な発生装置を理工学系が作成し、それを用いた暴露実験を植物影響のチームが行ったり、暴露された葉の表面の電子顕微鏡による観測を行ったりしたことや、理工系のチームが黄砂などの大陸由来のエアロゾルの測定や飛来の予測を行い、これを基にして医学系の研究者が喘息や脳梗塞などの発症率に与える影響を調べるなどの研究を上げることができる。従来、日本においては大気汚染の疫学研究で、大気汚染の指標は都道府県などから得られたものを用いるのが一般的で、黄砂に関しても、気象庁の発表を用いた黄砂日と非黄砂日というカテゴリカルな情報を用いていた。しかし、この新学術領域において、A02 班や公募班における測定系の研究者との共同研究により、黄砂の濃度を量的に扱うことが可能になった。このことによりこれまで見られなかった研究として、国際的な雑誌にも論文が掲載されるようになった。また、粒子状物質の金属成分も、これまでは数日間の季節毎のデータのみであったものが、継続的な毎日の測定が可能となったので、粒子状物質全体ではなく、成分毎の濃度指標を用いた越境汚染の疫学研究がいつでも実施可能となった。植物や人間の視点を考慮した新規なエアロゾル実験、計測技術や評価方法の開発、エアロゾル性状特性の詳細化による影響評価の高度化など、エアロゾルの自然科学的影響（大気環境＋人や植物影響）＋社会経済的影響を明らかにする「エアロゾル環境学」の基礎を築くことができた。

また、航空機観測などの大型の観測プロジェクトにおいては、韓国の研究グループとの共同同期観測を行ったり、欧米の研究者と共同で DRAGON project と協力して、領域外の研究者も含めた広範な研究協力を進めることができた。また、本領域におけるプロジェクトを発展させる形で、学術振興会による「戦略的国際科学技術協力推進事業」「中国 MOST との「気候変動」分野における研究交流」に応募し、「吸収性エアロゾル（EC）と散乱性エアロゾル（OC、金属成分、イオン成分）の分布と化学成分の変化による影響の解明」（平成 24 年度～26 年度、代表：畠山史郎、中国側参加機関：中国環境科学研究院）を中国研究機関との共同研究として立ち上げることもできたことは大きな波及効果であった。

本研究領域の研究の成果と研究者間の交流により、従来個々に行われていた研究の統合と連携が図られ、共同して研究を進める素地が築かれたことは、すでに多方面に波及し、この分野のみならず、他の分野においても重要な指針を与えたものと考えている。

これらの様々な研究成果の一般への発信とアウトリーチ活動として、年 2 回の全体会議（成果報告シンポジウム）と 4 年度目に行った一般向けシンポジウム、および若手の研究奨励を主眼とした領域外研究者も対象としたシンポジウム、5 年度目に開催した国際シンポジウム（7 名の外国招待研究者を含む）の開催、および日本エアロゾル学会機関誌「エアロゾル研究」の特集号の発刊、さらに毎年度末に発行した和文と英文の報告書（各巻平均 160 ページ前後）の発行などを上げることができる。これらにより、本領域の研究成果の一般への発信が進められた。

また平成 25 年 2～3 月に見られた中国における高濃度 PM<sub>2.5</sub> 問題に際しては、本研究領域を構成する研究者を中心として日本エアロゾル学会のホームページに「PM<sub>2.5</sub> 問題の Q&A」（[http://www.jaast.jp/PM2\\_5\\_faq/](http://www.jaast.jp/PM2_5_faq/)）を掲載した。ここに掲載された記事は高い信頼性を評価され、マスコミ関係者にも広く引用された。このような活動も従来は見られなかったものであり、本研究領域の波及効果の一つであると言えることができよう。