

【領域番号】 4003	【領域略称名】 粒子人間植物影響
【領域代表者（所属）】 畠山史郎（東京農工大学・大学院農学研究院・教授）	
<p>研究項目 <b>A01</b>：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マイ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。</p> <p>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ザールそれぞれが 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。</p> <p>研究項目 <b>A02</b>：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。</p> <p><b>P05</b> 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。</p> <p>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（<b>P06</b>）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、疫学研究的指標としては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。</p> <p><b>P06</b> 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</p>	

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  $PM_{2.5}$  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。 $PM_{2.5}$  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  $PM_{2.5}$  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  $PM_{2.5}$  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  $0.24\sim 0.28\text{ mg m}^{-2}\text{ day}^{-1}$  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。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、フィールドバ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。