

# 環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

研究区分 : 環境問題対応型研究（ミディアムファンディング枠）

研究実施期間 : 2022（令和4）年度～2024（令和6）年度

課題番号 : 5MF-2203

体系的番号 : JPMEERF20225M03

研究課題名 : バックグラウンド濃度の把握によるVOC等大気汚染物質予測精度の向上と地域排出源による健康リスク評価の高精度化

Project Title : Improvement of Prediction Accuracy of VOCs and Related Pollutants by Identifying Background Concentrations and Advancement of Health Risk Assessment

研究代表者 : 星 純也

研究代表機関 : 公益財団法人東京都環境公社東京都環境科学研究所

研究分担機関 : 国立環境研究所、名古屋大学、群馬県衛生環境研究所

キーワード : キーワード:バックグラウンド濃度、大気質シミュレーション、VOC、有害大気汚染物質、パッシブサンプラー

注：研究機関等は研究実施期間中のものです。また、各機関の名称は本報告書作成時点のものです。

令和7（2025）年11月



環境研究総合推進費  
Environment Research and Technology Development Fund



独立行政法人  
環境再生保全機構  
ERCA Environmental Restoration and Conservation Agency

## 目次

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書 .....	<b>1</b>
研究課題情報 .....	<b>3</b>
<基本情報> .....	3
<研究体制> .....	3
<研究経費の実績> .....	4
<研究の全体概要図> .....	5
<b>1. 研究成果 .....</b>	<b>6</b>
1. 1. 研究背景 .....	6
1. 2. 研究目的 .....	6
1. 3. 研究目標 .....	7
1. 4. 研究内容・研究結果 .....	8
1. 4. 1. 研究内容 .....	8
1. 4. 2. 研究結果及び考察 .....	16
1. 5. 研究成果及び自己評価 .....	35
1. 5. 1. 研究成果の学術的意義と環境政策等への貢献 .....	35
1. 5. 2. 研究成果に基づく研究目標の達成状況及び自己評価 .....	36
1. 6. 研究成果発表状況の概要 .....	36
1. 6. 1. 研究成果発表の件数 .....	36
1. 6. 2. 主要な研究成果発表 .....	36
1. 6. 3. 主要な研究成果普及活動 .....	37
1. 7. 國際共同研究等の状況 .....	37
1. 8. 研究者略歴 .....	37
<b>2. 研究成果発表の一覧 .....</b>	<b>38</b>
(1) 産業財産権 .....	38
(2) 論文 .....	38
(3) 著書 .....	39
(4) 口頭発表・ポスター発表 .....	39
(5) 「國民との科学・技術対話」の実施 .....	40
(6) マスメディア等への公表・報道等 .....	41
(7) 研究成果による受賞 .....	41
(8) その他の成果発表 .....	41
<b>権利表示・義務記載 .....</b>	<b>41</b>

Abstract

## 研究課題情報

&lt;基本情報&gt;

研究区分 :	環境問題対応型研究（ミディアムファンディング枠）
研究実施期間 :	2022（令和4）年度～2024（令和6）年度
研究領域 :	安全確保領域
重点課題 :	【重点課題16】大気・水・土壤等の環境管理・改善のための対策技術の高度化及び評価・解明に関する研究 【重点課題15】化学物質等の包括的なリスク評価・管理の推進に係る研究
行政ニーズ :	
課題番号 :	5MF-2203
体系的番号 :	JPMEERF20225M03
研究課題名 :	バックグラウンド濃度の把握による VOC 等大気汚染物質予測精度の向上と地域排出源による健康リスク評価の高精度化
研究代表者 :	星 純也
研究代表機関 :	公益財団法人東京都環境公社東京都環境科学研究所
研究分担機関 :	国立環境研究所、名古屋大学、群馬県衛生環境研究所
研究協力機関 :	鳥取大学、東京都環境局

注：研究協力機関は公開の了承があった機関名のみ記載されます。

## &lt;研究体制&gt;

サブテーマ1 「バックグラウンド観測手法の確立と関東平野のバックグラウンド濃度の把握」

&lt;サブテーマリーダー（STL）、研究分担者、及び研究協力者&gt;

役割	機関名	部署名	役職名	氏名	一時参画期間
リーダー	東京都環境公社	東京都環境科学研究所	気候変動・環境エネルギー研究担当科長	星 純也	
分担者	東京都環境公社	東京都環境科学研究所	主任研究員	櫛島 智恵子	
分担者	東京都環境公社	東京都環境科学研究所	主任研究員	齊藤 伸治	
分担者	東京都環境公社	東京都環境科学研究所	主任研究員	鶴丸 央	
分担者	名古屋大学	大学院環境学研究科	教授	長田 和雄	

分担者	群馬県衛生環境研究所	大気環境係	主任研究員	熊谷 貴美代	
分担者	群馬県衛生環境研究所	大気環境係	主任	坂本 祥一	2022年度
分担者	群馬県衛生環境研究所	大気環境係	独立研究員	齊藤 由倫	2023年度
分担者	群馬県衛生環境研究所	大気環境係	主任研究員	田子 博	2024年度
協力者	鳥取大学	国際乾燥地研究教育機構 乾燥地研究センター	教授	黒崎 泰典	
協力者	群馬県衛生環境研究所	大気環境係	主席研究員 副所長	田子 博	2022年度 2023年度
協力者	群馬県衛生環境研究所	大気環境係	技師	友松 瑛里	2023年度
協力者	群馬県衛生環境研究所	大気環境係	独立研究員	小池 有理子	2023-2024年度
協力者	東京都環境公社	東京都環境科学研究所	研究員	岡田 めぐみ	2023-2024年度
協力者	東京都環境公社	東京都環境科学研究所	研究員	舟久保 千景	2023-2024年度

注： 研究協力者は公開の了承があった協力者名のみ記載されます。

#### サブテーマ2 「バックグラウンド観測データによるモデルシミュレーションの高精度化」

<サブテーマリーダー (STL)、研究分担者、及び研究協力者>

役割	機関名	部署名	役職名	氏名	一時参画期間
リーダー	国立環境研究所	地域環境保全領域	主幹研究員	茶谷 聰	

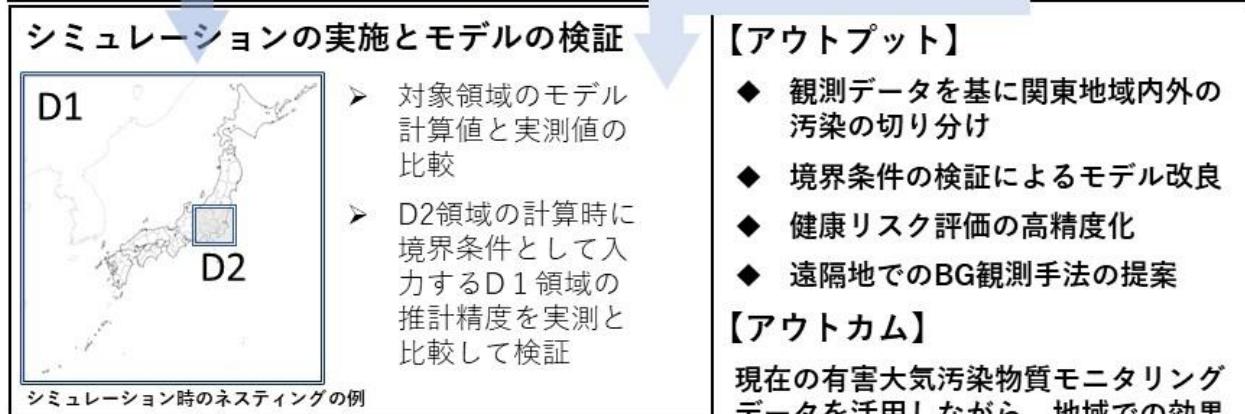
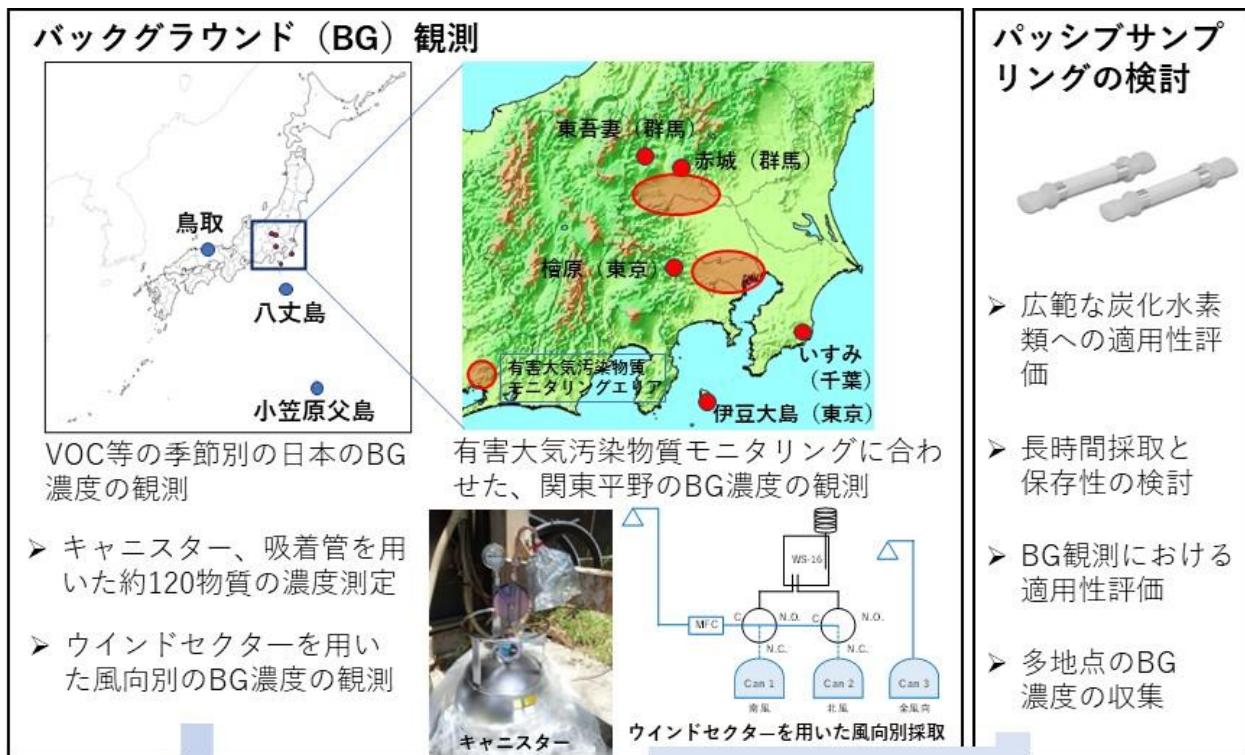
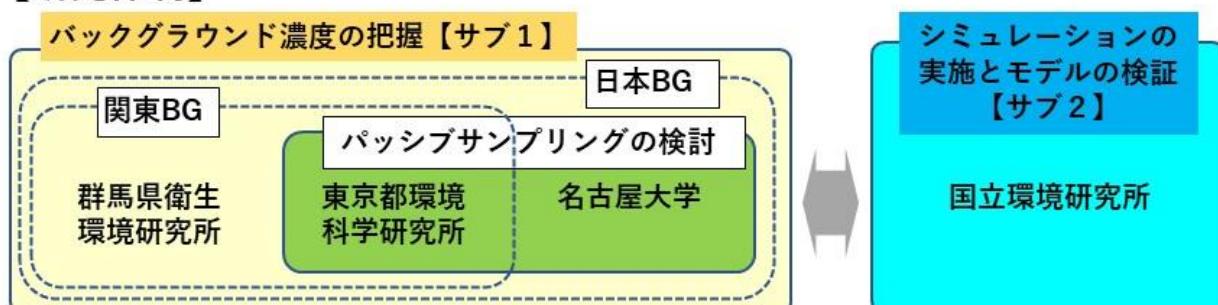
注： 研究協力者は公開の了承があった協力者名のみ記載されます。

#### <研究経費の実績>

年度	直接経費（円）	間接経費（円）	経費合計（円）	備考（自己充当等）
2022	14,604,494	4,353,691	18,958,185	
2023	14,540,311	4,351,613	18,891,924	
2024	12,163,879	3,638,536	15,802,415	
全期間合計	41,308,684	12,343,840	53,652,524	

注： 環境研究総合推進費の規定する研究経費の支援規模を超えた額は自己充当等によるものです。

## &lt;研究の全体概要図&gt;

**【研究体制】**

## 1. 研究成果

### 1. 1. 研究背景

大気中には多くの揮発性有機化合物（VOC）が存在している。それらは光化学オキシダント（O<sub>x</sub>）やPM2.5の二次生成の原因となる物質や、それ自体が有害で人の健康に対するリスクを有するものがある。O<sub>x</sub>の主成分であるオゾンは放射強制力が二酸化炭素、メタンに次いで3番目に大きいほか、植物の生育に悪影響を及ぼし植物による二酸化炭素吸収を阻害する。このため、人の健康影響だけでなく気候変動という観点でも影響が懸念されている大気汚染物質である。環境省では令和4年1月に気候変動対策・大気環境改善のための光化学オキシダント総合対策（光化学オキシダント対策ワーキングプラン）を策定してその削減に取り組んでいる。また、本課題採択時の環境研究総合推進費の重点課題16（大気・水・土壤等の環境管理・改善のための対策技術の高度化及び評価・解明に関する研究）、重点課題15（化学物質等の包括的なリスク評価・管理の推進に係る研究）にもあるように大気環境改善のための評価やリスクの評価は環境行政の中でも重要な課題となっている。

O<sub>x</sub>等の二次生成物質の評価や対策立案のためには領域化学輸送モデルによるモデルシミュレーションの活用が欠かせないが、現状のモデルの精度には課題が残る。特にVOCについては、多くの成分でモデル計算値が実測値に比べ過小評価になっている。本課題代表者、分担者らがこれまで行った研究（JSPS科研費19H04287）の結果、アルカンやケトン類でVOC個別濃度実測値に対しモデルシミュレーションでは過小評価になっており、シミュレーション計算領域外から領域内への移流の影響を過小評価していることが示唆された（茶谷ら, 2022）。また、課題代表者らが行った環境研究総合推進費（JPMEERF19S20405）による研究結果では、小笠原父島で観測した平均濃度が、都内の大気中化学物質に対してリスクベースで3割以上を占めることが推定された。このようにモデルシミュレーションによる定量的評価、及び観測をベースとしたリスクの評価等においては、小笠原父島での観測値のように、人為的汚染排出源から十分離れた場所での濃度を正確に把握することが必要となる。

### 1. 2. 研究目的

課題代表者らが過去に実施してきた研究結果からは、自治体等が地域のO<sub>x</sub>や健康リスクの低減のための対策を立案する際、あるいは対策の効果検証を行う際に地域内のモニタリングだけでは正確に評価できないことが示されている。そこで、本研究では関東平野の都市域を評価対象とし、関東都市域の周辺地域における平均的なバックグラウンド（BG）の把握、把握手法・条件の整備、及びBG濃度を用いたモデルシミュレーションの高精度化を目的とする。ここで関東都市域におけるBG濃度としては以下の3つを想定した。

- i) 大気中寿命が長いため広範囲（北半球中緯度をカバーする規模）に均一に分布している濃度
- ii) 大気寿命が数日～数週間程度で国外の発生源に由来し日本に移流してくる濃度
- iii) 日本国内で関東外の発生源に由来する濃度

関東都市域で大気観測を行った場合はi)～iii)の濃度に関東内の発生源の影響が加算された濃度として観測される。関東都市域での大気汚染対策効果を評価するためには観測された濃度のうちi)～iii)の濃度寄与分と関東内発生源の濃度寄与分を切り分ける必要がある。そのため、本研究で定義するBG濃度は、リモート地点で観測されるような北半球中緯度に恒常に存在する濃度だけでなく、関東外から流入する関東地域の排出の影響を受けていない全ての濃度としている。

具体的な研究手法としては自治体等で実施されている有害大気汚染物質モニタリングやVOC多成分モニタリングに合わせて、関東平野の境界地点において多くのVOC等の観測を行い、関東平野へ流入するBG濃度を把握する。また関東のBG濃度の中でも日本国内の排出（前述のiii)の濃度）と国外排出+北半球中緯度に恒常に存在する濃度（前述のii)+i)の濃度）を切り分けるため、日本の外縁部での観測も行う。これらのデータを用いて関東地域内での排出源による大気汚染の正確な評価を目指していく。また、O<sub>x</sub>等の二次生成物質の評価や対策立案のためには領域化学輸送モデルによるモデルシミュレーションの活用が不可欠である。既往研究において大気質シミュレーションによる個別VOC濃度の再現計算では多くの成分について過小評価になる課題が見出されている（茶谷ら, 2022）。その原因として、排出量だけでなく、地域外からの輸送を正確に表現できていない可能性が示唆されている。本研究課題では観測したBG濃度を利用し、大気質シミュレーションで用いる排出量と境界条件の検証と改良を行うことにより、高精度で計算できる大気質シミュレーションを確立していく。

本研究においてはBG観測の地点や頻度などを評価し観測手法を提案していくが、その手法を今後全国の地域で展開していくためには遠隔地でのBG濃度モニタリング手法の確立も必要となる。BG観測地点では電源の確保や大きな機材の設置が困難な場合も想定される。そのような地点でのVOC濃度評価ツールとして、パッシブサンプラーによる測定を検討する。パッシブサンプラーは基本的には室内環境や発生源の敷地境界等のモニタリング用に開発・利用されてきたが、BG観測での適用性を評価する。本研究では誰でも入手可能な市販のパッシブサンプラーを用いて検討を行う。これまで、メーカーが検討していない低濃度地点での適用性や多成分への適用性を評価することにより、サンプラーの適用可能範囲を明らかにすることを目的とする。

最後に、本研究で得られたBG濃度観測結果、パッシブサンプラーの適用性評価、モデルシミュレーションの濃度再現性を踏まえ、地域汚染の正確な評価と効果的な対策立案のための観測手法を提案する。

### 1. 3. 研究目標

#### <全体の研究目標>

研究課題名	バックグラウンド濃度の把握によるVOC等大気汚染物質予測精度の向上と地域排出源による健康リスク評価の高精度化
全体目標	季節変動を踏まえた形で関東地方、日本全国の大気中化学物質のバックグラウンド濃度を把握し、観測データから関東地域内と地域外汚染の影響の切り分けを行う。また、モデル解析を実施し、観測データによるモデル境界条件の検証を行うことでシミュレーションモデルの改善を図る。さらに、パッシブサンプラーによるバックグラウンド観測手法を開発し、簡易なバックグラウンドモニタリングによる地域内汚染対策の効果検証手法を提示していく。

#### <サブテーマ1の研究目標>

サブテーマ1名	バックグラウンド観測手法の確立と関東平野のバックグラウンド濃度の把握
サブテーマ1実施機関	東京都環境公社東京都環境科学研究所、名古屋大学、群馬県衛生環境研究所
サブテーマ1目標	季節変動を踏まえた形で関東地方、日本全国の大気中化学物質のバックグラウンド濃度を把握する。赤城等の関東外縁部のBG観測から関東内濃度への関東外からの移流等の影響の切り分けを行い、鳥取等の日本の外縁部でのBG観測では国外からの移流や全球的に残存しているBGの影響の切り分けを行う。さらに、電源が不要で、持ち運び可能なパッシブサンプラーによる簡易なバックグラウンドモニタリング手法を検討し、地方自治体が活用できる地域内汚染対策の効果検証手法を確立していく。これらのデータはサブテーマ2のモデルシミュレーションで十分な検証が行える地点数、測定回数で整備していく。

#### <サブテーマ2の研究目標>

サブテーマ2名	バックグラウンド観測データによるモデルシミュレーションの高精度化
サブテーマ2実施機関	国立環境研究所
サブテーマ2目標	サブテーマ1で得られた観測データを活用した計算を実行し、観測データによる境界条件の検証を行うことで、領域化学輸送モデルを用いたシミュレーションによるOx、VOC、有害大気汚染物質の濃度再現性の改善を図る。

## 1. 4. 研究内容・研究結果

### 1. 4. 1. 研究内容

#### (1) バックグラウンド観測手法の確立と関東平野のバックグラウンド濃度の把握

サブテーマ1では1)大気中化学物質のBG観測、2)パッシブサンプラーによるBG観測手法の確立を行った。以下に各々の研究内容を記載する。

#### 1) 大気中化学物質のBG観測

BG観測地点は日本列島の外縁部や離島に設置した日本BG地点と関東平野の外縁部に設置した関東BG地点の2種類の地点群を設定した。日本BG地点は北半球中緯度に恒常に存在する濃度と国外からの移流濃度を捉える地点として設定した。2022年度～2023年度は鳥取、八丈島、小笠原を観測地点とした（図1）。図1では参考のため後述する関東BG地点も赤プロットで挿入した。

日本BG地点のうち鳥取は鳥取大学乾燥地研究センター（鳥取県鳥取市浜坂）3階屋上を観測場所とした。この地点は、北風の場合は大陸からの移流を捉え、南風の場合は国内市街地の影響を捉えることができるため、通常の試料採取の他にウインドセクターを用いた風向別のVOC採取も併用した。八丈島は大陸からの影響が小さいと考えられる太平洋側のBG地点となっている。試料の採取は気象庁の八丈島特別地域気象観測所（東京都八丈町大賀郷）敷地内で行った。小笠原は東京から南に約1000km離れた離島であり、大陸からも約2000km離れていることから周囲1000km以内に都市が存在しない地点となっている。このため北半球中緯度のBG濃度を評価するのに適した地点と考えられる。試料の採取は小笠原諸島の父島にある環境省小笠原酸性雨離島局（東京都小笠原村父島旭山地内）の敷地で行った。2024年度の日本BG地点の観測では、鳥取、八丈島、小笠原に加えて佐渡、対馬、沖縄（辺戸岬）でも観測を行った。観測地点を図1に示した。佐渡の観測場所は国設佐渡関嶺酸性雨測定所（新潟県佐渡市関）、対馬は国設対馬酸性雨測定所（長崎県対馬市大字巣原北里大多羅）、沖縄は国立環境研究所が管理する辺戸ステーション（沖縄県国頭郡国頭村字宜名真長根原）とした。

関東BG地点は関東外から関東平野に入ってくる空気塊の濃度を捉える地点として、関東平野を取り囲むように山地部や海沿い、離島に設置した（図2）。関東BG地点の観測は、東京都、群馬県が毎月実施している有害大気汚染物質モニタリングと同日に行った。そのため、図2には参考に有害大気汚染物質モニタリングの調査地点を青プロットで挿入した。2022年度～2023年度は赤城、東吾妻、檜原、いすみ、伊豆大島を観測地点とした。このうち檜原については東京都の有害大気汚染物質モニタリング地点となっているため、東京都のモニタリングデータを活用した。

関東BG地点のうち、赤城は国設赤城酸性雨測定所（群馬県前橋市富士見町赤城山）を観測場所とした。この地点は赤城山の山頂付近で標高約1500mに位置している。赤城山を境に北は日光、尾瀬に連なる山岳地帯となっており、南は関東平野を一望できる。南風の場合は関東平野の発生源の影響を受け、北風では関東に移流していく空気塊を捉えることができるため通常の試料採取の他にウインドセクターを用いた風向別のVOC採取も併用した。

東吾妻は東吾妻町立東吾妻中学校敷地内に群馬県が設置した一般環境大気測定局（群馬県吾妻郡東吾妻町原町）を利用した。檜原は東京都が設置した大気汚染測定所である檜原測定所（東京都西多摩郡檜原村樋里）を測定場所とした。いすみは個人宅（千葉県いすみ市岬町桑田）の庭を測定場所とした。この観測地点の東側は太平洋で西側は関東の大都市圏となっている。そのためいすみにおいても風向を東西に分けてウイ



図1 日本BG観測地点



図2 関東BG観測地点

ンドセクターを用いた風向別採取を実施した。伊豆大島は沿岸に大都市が集まる東京湾と外洋との境界に位置する島となっている。試料の採取は気象庁の大島特別地域気象観測所（東京都大島町元町字家の上）の西側隣接地で行った。大島の南側は太平洋が広がっており、南風の場合は清浄な海洋大気の影響を受けることが想定された。そのためここでもウインドセクターを用いて南北の風向別のVOC採取を併用した。

2024年度の関東BG地点は上記の5地点に加え奥日光、秩父、箱根、銚子でも観測を行った（図2）。奥日光の観測場所は気象庁の日光特別地域気象観測所（栃木県日光市中宮祠）、秩父は秩父市の大滝総合支所（埼玉県秩父市大滝）、箱根は箱根町役場（神奈川県足柄下郡箱根町湯本）、銚子は気象庁の銚子地方気象台（千葉県銚子市川口町）とした。

このほか都市域の観測地点は、東京都と群馬県の有害大気汚染物質モニタリング地点とした。東京都の観測地点は中央区晴海、国設東京新宿、目黒区碑文谷、大田区東糀谷（2023年度から大田区羽田に変更）、板橋区氷川町、練馬区石神井町、足立区西新井、江戸川区春江、小金井市貫井北町（2024年度から小金井市東町に変更）、東大和市奈良橋の各一般環境大気測定局、群馬県の観測地点は太田市立中央小学校、渋川第1測定局、岩野谷公民館（安中）の各一般環境大気測定局である。

BG観測期間を表1（日本BG観測）、表2（関東BG観測）に示した。日本BG観測では基本的に1週間（168時間）連続で試料を採取した。ただし、小笠原の2022年秋観測、2023年冬観測、2023年春観測、2024年秋観測、鳥取の2024年春観測は24時間あるいは12時間で試料を採取し、解析にあたっては1週間の平均濃度を算出した。関東BG観測では試料は24時間採取とした。2022年10月、2022年12月、2023年2月、2023年3月、2023年4月～2024年3月の毎月、2024年6月に観測を実施した。各月で関東BG地点は全て同日に試料を採取している。また、同日に有害大気汚染物質モニタリングとして東京都内10地点、群馬県内3地点の観測を行っている。これらのデータを解析に用いた。

表1 BG観測期間（日本BG観測）

	小笠原	鳥取	八丈島	辺戸	対馬	佐渡
2022秋	2022.11.8-15 (24hデータ)	2022.11.8-15	2022.11.8-15			
2023冬	2023.1.13-20 (24hデータ)	2023.1.12-19	2023.1.12-19			
2023春	2023.4.22-29 (24hデータ)	2023.4.20-27	2023.4.21-28			
2023夏	2023.7.27-8.3	2023.7.27-8.3	2023.7.27-8.3			
2023秋	2023.10.20-27	2023.10.19-26	2023.10.20-27			
2024冬	2024.1.11-18	2024.1.11-18	2024.1.11-18			
2024春		2024.5.10-17 (12hデータ)				
2024夏		2024.7.25-8.1				
2024秋	2024.11.1-8 (24hデータ)	2024.11.1-8	2024.11.1-8	2024.11.1-8	2024.11.1-8	2024.11.1-8

表2 BG観測期間（関東BG観測）

	赤城	東吾妻	いすみ	伊豆大島	秩父	箱根	銚子	奥日光	檜原
2022年10月	2022.10.4-5	2022.10.4-5	2022.10.4-5					2022.10.4-5	
2022年12月	2022.12.6-7	2022.12.6-7	2022.12.6-7	2022.12.6-7				2022.12.6-7	
2023年2月	2023.2.1-2	2023.2.1-2	2023.2.1-2	2023.2.1-2				2023.2.1-2	
2023年3月	2023.3.1-2	2023.3.1-2	2023.3.1-2	2023.3.1-2				2023.3.1-2	
2023年4月	2023.4.11-12	2023.4.11-12	2023.4.11-12	2023.4.11-12				2023.4.11-12	
2023年5月	2023.5.9-10	2023.5.9-10	2023.5.9-10	2023.5.9-10				2023.5.9-10	
2023年6月	2023.6.6-7	2023.6.6-7	2023.6.6-7	2023.6.6-7				2023.6.6-7	
2023年7月	2023.7.4-5	2023.7.4-5	2023.7.4-5	2023.7.4-5				2023.7.4-5	
2023年8月	2023.8.1-2	2023.8.1-2	2023.8.1-2	2023.8.1-2				2023.8.1-2	
2023年9月	2023.9.5-6	2023.9.5-6	2023.9.5-6	2023.9.5-6				2023.9.5-6	
2023年10月	2023.10.11-12	2023.10.11-12	2023.10.11-12	2023.10.11-12				2023.10.11-12	
2023年11月	2023.11.7-8	2023.11.7-8	2023.11.7-8	2023.11.7-8				2023.11.7-8	
2023年12月	2023.12.5-6	2023.12.5-6	2023.12.5-6	2023.12.5-6				2023.12.5-6	
2024年1月		2024.1.16-17	2024.1.16-17	2024.1.16-17				2024.1.16-17	
2024年2月	2024.2.14-15	2024.2.14-15	2024.2.14-15	2024.2.14-15				2024.2.14-15	
2024年3月	2024.3.5-6	2024.3.5-6	2024.3.5-6	2024.3.5-6				2024.3.5-6	
2024年6月	2024.6.4-5	2024.6.4-5	2024.6.4-5	2024.6.4-5	2024.6.4-5	2024.6.4-5	2024.6.4-5	2024.6.4-5	2024.6.4-5

表3 測定対象物質

【アルカン・シクロアルカン】	【芳香族炭化水素】	【ハロゲン化合物】	【アルデヒド類】
1 エタン	53 ベンゼン	91 クロロメタン	130 ホルムアルデヒド
2 プロパン	54 トルエン	92 塩化ビニルモノマー	131 アセトアルデヒド
3 イソブタン	55 エチルベンゼン	93 プロモメタン	132 アクロレイン
4 n-ブタン	56 m-キシレン,p-キシレン	94 クロロエタン	133 ブロビオンアルデヒド
5 イソベントン	57 スチレン	95 1,1-ジクロロエチレン	134 クロトンアルデヒド
6 n-ペնタン	58 o-キシレン	96 ジクロロメタン	135 ピチルアルデヒド
7 2,2-ジメチルブタン	59 イソプロピルベンゼン	97 3-クロロ-1-プロベン	136 ベンズアルデヒド
8 シクロベントン	60 n-プロピルベンゼン	98 1,1-ジクロロエタン	137 イソバケルアルデヒド
9 2,3-ジメチルブタン	61 3-エチルトルエン	99 シス-1,2-ジクロロエチレン	138 バレルアルデヒド
10 2-メチルベントン	62 4-エチルトルエン	100 クロロホルム	139 o-トルアルデヒド
11 3-メチルベントン	63 1,3,5-トリメチルベンゼン	101 1,2-ジクロロエタン	140 m-トルアルデヒド, p-トルアルデヒド
12 n-ヘキサン	64 2-エチルトルエン	102 1,1,1-トリクロロエタン	141 ヘキサアルデヒド
13 メチルシクロベントン	65 1,2,4-トリメチルベンゼン	103 1,2-ジクロロプロパン	142 2,5-ジメチルベンズアルデヒド
14 2,4-ジメチルベントン	66 1,2,3-トリメチルベンゼン	104 トリクロロエチレン	
15 シクロヘキサン	67 m-ジエチルベンゼン	105 シス-1,3-ジクロロプロパン	【その他（酸化エチレン等）】
16 2-メチルヘキサン	68 p-ジエチルベンゼン	106 トランス-1,3-ジクロロプロパン	143 アクリロニトリル
17 2,3-ジメチルベントン	69 2-エチル-p-キシレン	107 1,1,2-トリクロロエタン	144 酸化プロピレン
18 3-メチルヘキサン	70 4-エチル-m-キシレン	108 1,2-ジプロモエタン	145 酸化エチレン
19 2,2,4-トリメチルベントン	71 1,2,3,5-テトラメチルベンゼン	109 テトラクロロエチレン	
20 n-ヘプタン		110 クロロベンゼン	【重金属】
21 メチルシクロヘキサン		111 1,1,2,2-テトラクロロエタン	146 ニッケル化合物
22 2,3,4-トリメチルベントン	72 エチル-tert-ブチルエーテル	112 ベンジルクロライド	147 ヒ素及びその化合物
23 2-メチルヘプタン	73 アセトン	113 m-ジクロロベンゼン	148 ベリウム及びその化合物
24 3-メチルヘプタン	74 イソプロピルアルコール	114 p-ジクロロベンゼン	149 マンガン及びその化合物
25 n-オクタン	75 酢酸メチル	115 o-ジクロロベンゼン	150 クロム及びその化合物
26 n-ノナン	76 n-ブロパノール	116 1,2,4-トリクロロベンゼン	
27 n-デカン	77 メチル-tert-ブチルエーテル	117 ヘキサクロロ-1,3-ブタジエン	
28 n-ウンデカン	78 メチルエチルケトン	118 1-ブロモプロパン	
【アルケン】	79 酢酸エチル		
29 エチレン	80 イソブタノール		
30 プロピレン	81 n-ブタノール		
31 アセチレン	82 メチルイソブチルケトン		
32 トランス-2-ブテン	83 酢酸ブチル		
33 1-ブテン	84 メタノール		
34 シス-2-ブテン	85 エタノール		
35 1-ベンテン			
36 トランス-2-ベンテン	86 イソブレン	【フロン・四塩化炭素等】	
37 シス-2-ベンテン	87 o-ビネン	119 HCFC-22	
38 2-メチル-1-ベンテン	88 カンフェン	120 CFC-12	
39 イソブテン	89 β-ビネン	121 HCFC-142	
40 3-メチル-1-ブテン	90 リモネン	122 CFC-114	
41 2-メチル-1-ブテン		123 HCFC-123	
42 2-メチル-2-ブテン		124 CFC-11	
43 1,3-ベンタジエン		125 HCFC-141	
44 1,3-ベンタジエン(2)		126 HCFC-225ca	
45 1-ヘキセン		127 HCFC-225cb	
46 シス-3-ヘキセン		128 CFC-113	
47 2-ヘキセン		129 四塩化炭素	
48 シス-3-メチル-2-ベンテン			
49 2-ヘキセン(2)			
50 トランス-3-メチル-2-ベンテン			
51 1-ヘプテン			
52 1,3-ブタジエン			

測定対象物質は最大で表3に示した150物質としたが、いくつかの試料では測定対象物質が少なくなっている。日本BG観測では表3の150物質を対象としているが、関東BG観測のうち赤城、東吾妻の試料はアルデヒド類のうち表3のNo.136～142が測定対象外となっている。また、都市域のデータは各自治体の有害大気汚染物質モニタリングデータを利用したが、東京都内の10地点ではアルデヒド類のうち表3のNo.132～142が測定対象外である。群馬県の有害大気汚染物質モニタリングでは優先取組物質のみを測定対象としているため、

VOCの多成分については本研究で別途測定した。ただし、群馬県内の都市域3地点ではアルデヒド類のうち表3のNo.136～142を測定対象外とした。

試料の採取・分析は物性等によって4つの手法に分けて行った。まず、表3のNo.1～No.129、No.143は6Lのステンレス製キャニスター(Entech社製またはRestek社製)を用いて採取し、水素炎イオン化検出器付ガスクロマトグラフ(GC-FID)及びガスクロマトグラフ質量分析計(GC-MS)で分析を行った。No.130～No.142のアルデヒド類はtrans-1,2-ビス(2-ピリジル)エチレン(BPE)を含浸させたシリカを前段に、2,4-ジニトロフェニルヒドラジン(DNPH)を含浸させたシリカを後段に充填したカートリッジ(Merck社製:BPE-DNPH)等を用いて採取した。採取後、アセトニトリル/ジメチルスルホキシド混合溶媒を用いて抽出し、液体クロマトグラフ質量分析計(LC-MS)または高速液体クロマトグラフ(HPLC)で分析した。No.144、No.145の酸化プロピレン、酸化エチレンはグラファイトカーボン系吸着剤を臭化水素酸に含浸させたカートリッジ(スペルコ社製:ORB0-78)を用いて採取し、GC-MSで分析を行った。No.146～No.150の重金属類は直径47mmのPTFE製ろ紙(ポアフロンWP-500-50:住友電工製またはTeflo:Pall社製)を用いて粒子を分級せずに全浮遊粒子として採取した。採取後、大気粒子を捕集したろ紙を実験室に持ち帰り、ポンチでろ紙をくり抜いた後、硝酸、フッ化水素酸を加えてマイクロウェーブを用いて分解し、誘導結合プラズマ質量分析計(ICP-MS)で分析を行った。

## 2) パッシブサンプラーによるBG観測手法の確立

パッシブ法は電源を必要とせず、小さなサンプラーを測定地点に吊るしておくだけでサンプリングできるため、機材の設置が困難なBG地点のモニタリングにも適している。しかし、採取ポンプを用いて試料を採取するアクティブ法に比べ測定感度が低くなっている。またパッシブサンプリングで濃度を算出する際には、パッシブサンプラーに吸着した測定対象物質の吸着量を空気中の濃度へ換算するための係数であるサンプリングレート(SR)が必要となる。SR(単位:m<sup>3</sup>/h)は次式によって算出される。

$$SR = M / (C \times h)$$

ここで、Cは公定法等で測定した空気中濃度(μg/m<sup>3</sup>)、hは暴露時間(h)、Mはパッシブサンプラーへの吸着量(μg)となる。

SRはパッシブサンプラーのメーカーによっていくつかの物質については算出、提示されているが、本研究ではメーカーによってSRが算出されていない多くの物質をBG濃度モニタリング対象としているため、新たにSRを整備し、BG観測での適用性を評価した。SRの算出はいくつかの方法があるが、低濃度が想定されるBG観測での適用性を評価するため、環境大気中で公定法等との並行試験によってSRを算出した。

本研究では市販のパッシブサンプラーの表3に示した測定対象物質への適用可能性を評価することを目的としている。そのため、測定対象物質は表3の物質が第一次候補となる。このうち入手可能な市販のサンプラーがない重金属類(No.146～No.150)は除外し、かつ、捕集した試料を溶媒抽出して分析機に導入することから、液体の標準物質が手に入らない物質(常温で気体の物質)も除外した。さらに、VOC測定用の混合標準溶液に含まれておらず、かつ、単品の標準物質も市販されていない場合、あるいは非常に高額の試薬しか手に入らない場合も除外した。一方、表3には含まれていないが混合標準溶液に含まれている物質については、SR算出の対象とはしなかったが分析条件の検討や検量線の作成の対象とした。最終的に115物質の標準物質を揃え、分析条件の検討を行った。

環境大気での並行試験によってSRを算出する際には、公定法で得られた濃度(C) × パッシブサンプラーの暴露時間(h)をx軸に取り、パッシブサンプラーへの対象物質の吸着量(M)をy軸に取って散布図を作成する。その際に得られた傾きがSRとなる。精度良くSRを算出するためには並行試験時に一定の範囲で濃度差がある複数の試料を採取する必要がある。そのため、並行試験は大気中VOC濃度が異なると想定される東京、名古屋、群馬の3か所で実施した。また、同じ地点においてもパッシブサンプラーへの吸着量を変化させるため暴露期間を1日(24時間)から最大28日(4週間)まで変化させて採取した。公定法では7日(1週間)を越える連続採取は困難であるため、1日～7日の試料採取を繰り返し、パッシブサンプラーの暴露期間の平均濃度を算出した。また、低濃度地点での適用性を評価するため、1.4.1(1)で述べたBG観測時にパッシブサンプリングも並行して実施しSR算出のデータとした。適用性を検討したサンプラーはVOC用としてVOC-SD(スペルコ社製。以後、A社製)とパッシブガスチューブ(柴田科学製。以後、B社製)、アルデヒド用としてDSD-BPE/DNPH(A社製)とDNPHパッシブガスチューブ(B社製)、酸化エチレン・酸化プロピレン用としてエチレンオキシド用パッシブサンプラー(SKC社製。以後、C社製)を用いた。VOC-SDを用いたVOCの並行試験では長田ら(2023)が開発したバッテリー駆動によるVOCパッシブオートサンプラー(VPAS)を一部併用して実施した。

試料を採取したパッシブサンプラーは実験室に持ち帰って分析を行った。2種のVOC用サンプラーは内部の吸着材をバイアル瓶に取り出し、二硫化炭素を加えて抽出したのちGC-MSで分析を行った。2種のアルデヒド用サンプラーは採取したパッシブサンプラーにシリングを接続してアセトニトリル/ジメチルスルホキシド混合溶媒を通液して抽出し、LC-MSで分析を行った。酸化エチレン等は内部の吸着材をバイアル瓶に取り出

し、トルエン/アセトニトリル混合溶媒を用いて抽出し、GC-MSで分析を行った。

環境大気における並行試験時において、市販の酸化エチレン用パッシブサンプラーを用いた場合には環境大気濃度レベルの測定には感度が不足しており、精度の良いSRも得られなかった。本研究の目的は新たな測定手法を開発・検討することではなく、市販のサンプラーの適用範囲を明らかにすることであったが、酸化エチレンは有害性も高く、国内の排出削減対策を検討する際にパッシブサンプラーの活用は非常に有用となると考えられたため、市販のサンプラーよりも高感度に測定できる手法を検討した。パッシブサンプラーのSRはサンプラーの形状、構造に影響されることが知られている（光崎ら, 2006）。

そこで、本研究で用いたエチレンオキシド用パッシブサンプラー（C社製）の吸着剤のみを取り出して、別のサンプラーに詰め替えて使用することによりSRの精度向上を検討した。また、吸着剤の違い（メーカーの違い）によるSRの差異について検討するため、アクティブサンプリング用の吸着管（ORB0-78：A社製）の吸着剤を用いた検討も行った（図3）。検討にはVOC用のVOC-SD（A社製）のサンプラーの空き容器を洗浄、乾燥し、内部に吸着剤を再充填したパッシブサンプラーを自作して用いた。自作したパッシブサンプラーとアクティブサンプリングの並行試験を東京（東京都環境科学研究所：東京都江東区）と小笠原父島で実施した。東京での並行試験では1日（24時間）～21日（3週間）まで暴露時間を変化させてサンプラーへの吸着量を変化させた。

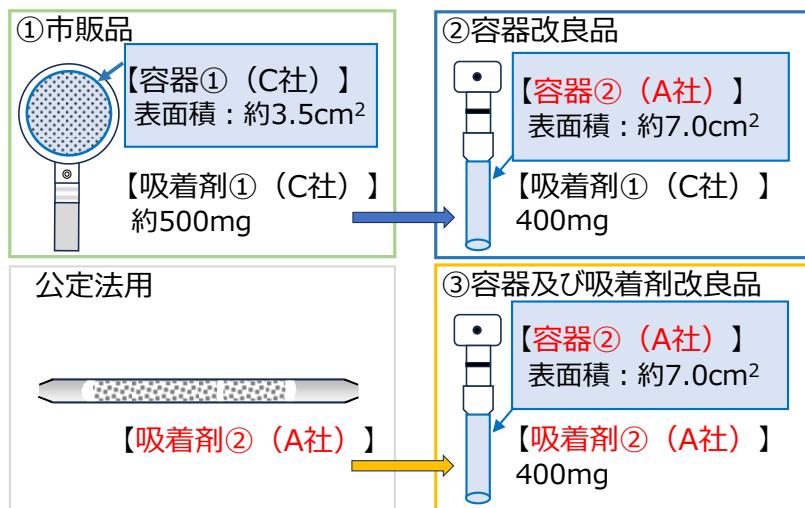


図3 パッシブサンプラーの自作（詰め替え）方法

## (2) バックグラウンド観測データによるモデルシミュレーションの高精度化

サブテーマ2では、環境研究総合推進費研究課題5-2105「対策によるオゾン濃度低減効果の裏付けと標準的な将来予測手法の開発」で実行された大気質シミュレーションを基に、本研究における大気質シミュレーションを構成した。このシミュレーションにおいて、気象場の計算には、領域気象モデルのWeather Research and Forecasting Model (WRF) version 4.5.2を用いた。大気汚染物質濃度の計算には、領域化学輸送モデルのCommunity Multiscale Air Quality Modeling System (CMAQ) version 5.4を用いた。入力する排出量には、複数の排出インベントリを組み合わせて用いた。計算対象領域を図4に示す。d01、d02、d04の3領域を対象とした。d01領域には東アジアと東南アジア各国の大部分が含まれており、水平方向のメッシュサイズは $45 \times 45\text{ km}$ とした。d02領域には日本の大半が含まれており、メッシュサイズは $15 \times 15\text{ km}$ とした。d04領域には関東地方の大部分が含まれており、メッシュサイズは $5 \times 5\text{ km}$ とした。サブテーマ1が観測を行った日本BG地点はd04領域の外側、関東BG地点はd04領域の内側に位置する。

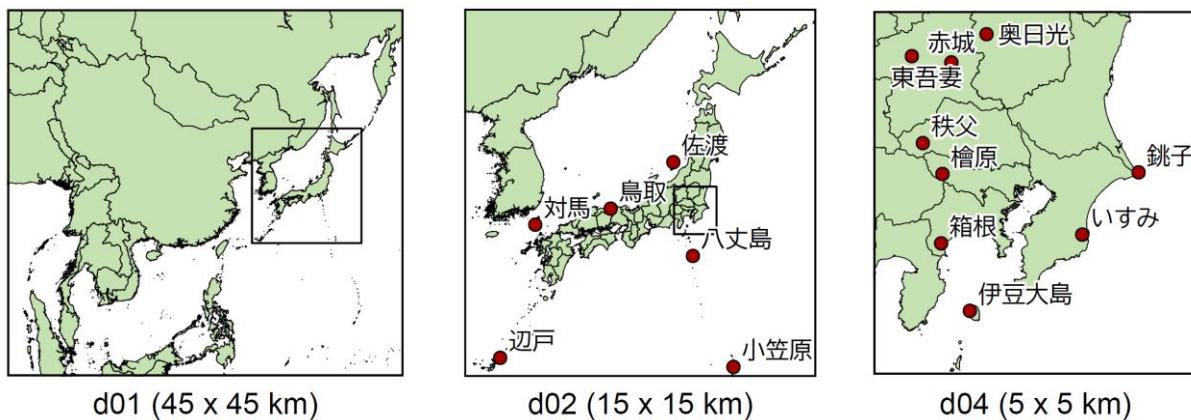


図4 計算対象領域と観測地点

CMAQでは、化学反応メカニズムに基づき、個別の揮発性有機化合物 (Volatile Organic Compound、VOC) および有害大気汚染物質を集約して表現する。本研究では、より多くのVOCが個別に扱われている saprc07tic (State Air Pollution Research Center version 07tc with extended isoprene chemistry) と、有害大気汚染物質が含まれているcb6r5hap (Carbon Bond 6 version r5 with air toxics) の2種類の化学反応メカニズムを併用した。サブテーマ1が観測した個別VOC成分とCMAQの成分との対応関係を表4、サブテーマ1が観測した有害大気汚染物質のうちサブテーマ2で対象とした優先取組物質とCMAQの成分との対応関係を表5に示す。排出インベントリに含まれるVOCの排出量を個別成分割合プロファイルを用いて個別成分に分解し、表4と表5の関係に従ってCMAQの成分に割り当てる。しかしながら、排出インベントリや個別成分割合プロファイルは、元々有害大気汚染物質の割合までを正確に表現することを目的としているものではないため、不確実性が大きい。そこで、本研究で対象とするVOC個別成分や優先取組物質の濃度をより正確に表現できるように、大気質シミュレーションに以下の改良を施した。

大気質シミュレーションに入力する排出量について、有害大気汚染物質の排出量は化学物質排出移動量届出制度 (Pollutant Release and Transfer Register, PRTR) 制度でも報告されている。PRTRで報告されている優先取組物質の排出量を大気質シミュレーションに直接入力できるように、新たにデータの構築を行った。PRTRで報告されている排出量のうち、届出排出量については、公表されている発生源の住所を緯度経度に変換し、対象領域内の排出場所を特定した。届出外排出量については、優先取組物質を排出している、PRTR対象業種の事業者のすそ切り以下排出量、殺虫剤、接着剤、塗料、汎用エンジン、たばこの煙、自動車、二輪車、特殊自動車、鉄道車両、航空機、水道、低含有率物質、下水処理施設、一般廃棄物処理施設、産業廃棄物焼却施設からの排出量を対象とし、PRTRで推計されている全国排出量を対象領域内に配分した。表5に示した優先取組物質の中には、従来の個別成分割合プロファイルにはそもそも含まれていないものもあったが、PRTRの排出量に置き換えることにより、より正確に表現できるようになったと考えられる。

d01領域内の日本以外についても既存の排出インベントリを使用しているが、これもVOCの個別成分や有害大気汚染物質までを正確に表現することを目的としているものではないため、不確実性が大きい。そこで、サブテーマ1が日本BG地点において行った観測データを利用し、観測別、地点別の濃度観測値と計算値の差分の平均値から標準偏差を差し引いた値をd02領域の境界濃度に加算することにより、補正を施した。また、排出量についても不確実性が大きいため、サブテーマ1が関東BG地点および有害大気物質モニタリング地点において行った観測データを利用し、観測別、地点別の濃度観測値と計算値から領域外からの輸送分を

差し引いた上で比を取り、その平均値から標準偏差を差し引いた値を排出量に乘じることにより、補正を施した。これにより、サブテーマ1の観測データを基にした大気質シミュレーションの改良を実現させた。

表4 VOC観測成分とCMAQの成分との対応関係

分類	CMAQ	観測成分
アルカン	ALK1	Ethane, Dichloromethane, 1,1-Dichloroethane, 1,2-Dichloroethane, 1,1,2-Trichloroethane, 1,2-Dibromoethane, Tetrachloroethylene
	ALK2	Propane, Methylacetate, Ethylacetate, Ethylchloride, 1,2-Dichloropropane, Propylene Oxide
	ALK3	Isobutane, <i>n</i> -Butane, 2,2-Dimethylbutane, 2,2,4-Trimethylpentane, Methyl- <i>tert</i> -butylether, <i>cis</i> -1,2-Dichloroethylene, Trichloroethylene
	ALK4	Isopentane, Pentane, Cyclopentane, 2,3-Dimethylbutane, 2-Methylpentane, 3-Methylpentane, Hexane, Methylcyclopentane, 2,4-Dimethylpentane, Heptane, 2,3,4-Trimethylpentane, Isopropanol, <i>n</i> -Propanol, Butylacetate
	ALK5	Cyclohexane, 2-Methylhexane, 2,3-Dimethylpentane, 3-Methylhexane, Methylcyclohexane, 2-Methylheptane, 3-Methylheptane, Octane, Nonane, <i>n</i> -Decane, <i>n</i> -Undecane, Ethyl- <i>tert</i> -butylether, Isobutanol, <i>n</i> -Butanol, Vinylchloride, Acrylonitrile, 1,1-Dichloroethene, <i>cis</i> -1,3-Dichloropropene, <i>trans</i> -1,3-Dichloropropene
アルケン	ETHENE	Ethylene
	PROPENE	Propylene
	BUTADIENE13	1,3-Butadiene
	OLE1	1-Butene, 1-Pentene, 3-Methyl-1-butene, 1-Hexene, 1-Heptene, 3-Chloro-1-propene
	OLE2	<i>trans</i> -2-Butene, <i>cis</i> -2-Butene, <i>trans</i> -2-Pentene, <i>cis</i> -2-Pentene, 2-Methyl-1-pentene, Styrene, Isobutene, 2-Methyl-1-butene, 2-Methyl-2-butene, 1,3-Pentadiene, <i>cis</i> -3-Hexene, 2-Hexene, <i>cis</i> -3-Methyl-2-pentene, <i>trans</i> -3-Methyl-2-pentene
アルキン	ACETYLENE	Acetylene
芳香族	BENZENE	Benzene
	TOLUENE	Toluene
	MXYL	<i>m</i> -Xylene
	OXYL	<i>o</i> -Xylene
	PXYL	<i>p</i> -Xylene
	AR01	Ethylbenzene, Isopropylbenzene, Propylbenzene, Chlorobenzene, Benzylchloride, <i>m</i> -Dichlorobenzene, <i>p</i> -Dichlorobenzene, <i>o</i> -Dichlorobenzene
	TMBENZ124	1,2,4-Trimethylbenzene
植物起源	AR02MN	3-Ethyltoluene, 4-Ethyltoluene, 1,3,5-Trimethylbenzene, 2-Ethyltoluene, 1,2,4-Trimethylbenzene, 1,2,3-Trimethylbenzene, <i>m</i> -Diethylbenzene, <i>p</i> -Diethylbenzene, 2-Ethyl- <i>p</i> -xylene, 4-Ethyl- <i>m</i> -xylene
	ISOPRENE	Isoprene
	APIN	$\alpha$ -Pinene
	TERP	Campheene, $\beta$ -Pinene, Limonene
	HCHO	Formaldehyde
アルデヒド	CCHO	Acetaldehyde
	ACROLEIN	Acrolein
	IPRD	Crotonaldehyde
	RCHO	Propionaldehyde, Butylaldehyde, Isovaleraldehyde, Valeraldehyde, Hexaldehyde
	BALD	Benzaldehyde
ケトン	ACETONE	Acetone
	MEK	Methylethylketone
	PRD2	Methyl-iso-butylketone
アルコール	MEOH	Methanol
	ETOH	Ethanol

表5 有害大気汚染物質（優先取組物質）とCMAQの成分との対応関係

優先取組物質	CMAQ
アクリロニトリル	ACRY_NITRILE
アセトアルデヒド	CCHO
塩化ビニルモノマー	CL_ETHE
クロロメタン	METHCHLORIDE
クロム及び三価クロム化合物	ACR_III
六価クロム化合物	ACR_VI
クロロホルム	CHCL3
酸化エチレン	ETOX
1,2-ジクロロエタン	CL2_C2_12
ジクロロメタン	CL2_ME
テトラクロロエチレン	CL4_ETHE
トリクロロエチレン	CL3_ETHE
トルエン	TOLUENE
ニッケル化合物	ANI
ヒ素及びその化合物	AAS
1,3-ブタジエン	BUTADIENE13
ベリリウム及びその化合物	ABE
ベンゼン	BENZENE
ホルムアルデヒド	HCHO
マンガン及びその化合物	AMN_HAPS

## 1. 4. 2. 研究結果及び考察

### (1) バックグラウンド観測手法の確立と関東平野のバックグラウンド濃度の把握

#### 1) 大気中化学物質のバックグラウンド観測

##### ① バックグラウンド地点及び都市域での大気中化学物質年平均濃度の比較

本研究で得られた大気中化学物質のBG濃度及び有害大気汚染物質モニタリングで得られた都市域の濃度の年平均を比較した。ここでの比較では季節変動を踏まえた比較とすることから通年のデータが得られている2023年度のデータのみを用いた。図5に物質群毎にまとめた濃度での比較を図示した。平均値の算出にあたり、BG地点で都市域の値を大きく上回っているデータは、測定地点近傍の排出の影響を受けているか輸送中の汚染の可能性があり、本研究で目的としている都市域の排出の影響を評価するためのBGデータとして不適と考え、一定のルールで削除した。データ削除のルールとして、i)人為起源VOC、ii)大気中で二次生成しない、iii)大気中寿命が比較的短く、越境輸送の影響が小さい、iv)同月あるいは同季節の都市域平均の1.3倍よりも高い値となっている、という四つの条件を満たした場合にデータを削除した。

BG地点の濃度は多くの物質群で都市域よりも低濃度となっているが、図5に示したように都市域に対するBG地点の濃度割合は物質群によって大きく異なっている。アルカン・シクロアルカン、アルケン、芳香族炭化水素など的人為起源の炭化水素類の濃度は概ね都市域>関東BG>日本BGとなっている。ただし、アルカン等よりも芳香族炭化水素の方が都市域に比べBG地点で低濃度となる傾向が見られる。含酸素化合物のうちのケトン類ではBG地点の方が都市域よりも低濃度ではあるが小笠原のようなBG地点でも都市域の最低濃度程度となっており、北半球中緯度のベース濃度として相当高い濃度が存在し、それに都市域での排出が加わる濃度となっていると考えられる。植物起源VOCはBG地点でも測定地点近傍の放出の影響を受けていると考えられ、都市域からの距離による濃度の傾向は見られなかった。フロン・四塩化炭素は都市域、関東BG、日本BGともに濃度差は見られなかった。このカテゴリーの物質のほとんどは現在は使用が規制された物質であり、かつ大気寿命が非常に長い物質のため、北半球中緯度で均一な濃度となっている物質と考えられる。

図6に主な個別物質の都市域、関東BG、日本BGの年平均濃度を比較して示した。アルカン・シクロアルカンについては物質群の全体の傾向と同様に、ほぼ全ての物質で都市域>関東BG>日本BGの傾向となっている。しかし、炭素数の少ないエタンやプロパン、イソブタン等はBG地点で一定の濃度が見られたが、炭素数が大きい物質になるとBG地点では検出下限値付近になる傾向も見られている。アルケン・アルキンではアセチレンや1-ブテンではいずれのBG地点でも一定の濃度が検出されるのに対しトランス-2-ブテン、シス-2-ブテン、1,3-ブタジエンではBG地点では非常に低濃度となっている。芳香族炭化水素でもベンゼンはいずれのBG地点でも検出されているのに対し、他の芳香族炭化水素では特に日本BG地点では検出下限付近の低濃度となった。このように同じ物質群でも物質によってBG地点の都市域に対する濃度比は異なっていた。

含酸素化合物のうちのケトン類については比較的BG濃度が高い値となった。特にアセトンは小笠原でも都市域の低濃度地点と同等の濃度となっており、北半球中緯度全域で数 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度が存在していると考えられる。その他の含酸素化合物でも酢酸メチル、n-プロパノール、n-ブタノール、メタノール等のアルコール類でBG地点が高い傾向が見られた。これらの物質は、都市域では北半球中緯度全域に恒常に存在する濃度に地域での排出が加算された濃度になっているか、BG地点で他の物質から二次生成された濃度が観測されている可能性が考えられる。仮に前者であれば都市域の排出が削減された場合も大気中濃度の低減は限定的になる可能性がある。

ハロゲン化合物では都市域濃度とBG濃度の関係は物質によって大きく異なっていた。クロロメタンは群馬の1地点（安中）を除くと都市域、BG地点にかかわらずほぼ同じ濃度となっている。大気中の反応性が小さい物質であり、多くの地点で均一の濃度となっている。ジクロロメタン、クロロホルム、1,2-ジクロロエタンではBG地点では都市域に比べ若干低濃度になっているものの、都市域の低濃度地点程度の濃度となっている。これらの物質は大気中での二次生成の影響はそれほど大きくないと想定され、大気中の反応性の低さからBG地点でも残留していることが考えられる。一方、トリクロロエチレン、p-ジクロロベンゼンは都市域では比較的高濃度に存在するがBG地点では都市域に比べてかなり低濃度で検出されている。

アルデヒドはBG地点においては都市域よりも低濃度になっているものの、一定の濃度が存在している。アルデヒドについては都市域では自動車等からの一次排出があるが、大気中で二次生成することも知られており、BG濃度が都市域の排出の残留分のみか、BG地点でも二次生成の影響を受けた濃度となっているのか不明である。アルデヒドについてはBG濃度の評価には大気中の二次生成原因物質の解明や、各々の地点での一次、二次の寄与割合の解明等が必要と考えられる。

その他の物質のうちの酸化エチレンも都市域に比較してBG濃度の割合が高い物質となっている。酸化エチレンは大気中での二次生成の影響は少ないと想われるため都市域濃度に対して5割以上の高い割合でBG濃度が影響していると考えられる。有害性も高い物質であり、今後、対策を進めるにあたり国内発生源だけでなく越境移流等のBGとなる濃度も視野に入れる必要がある。

重金属は全体的な傾向としては都市域で高い濃度になっている。しかし、各BG地点の濃度に着目するとニッケル、ヒ素、マンガンで鳥取が最も高い濃度になっている。次に高いのは関東北部の赤城、東吾妻であ

り、八丈島、小笠原と南に行くほど低濃度となっている。金属類は大気中で反応によって濃度低下しないため、大陸からの越境移流の影響が、大陸からの距離に応じて低下する濃度傾向になっていると思われる。

都市域、関東BG、日本BGの平均濃度を比較すると、その濃度の特徴は物質によって大きく異なり、BG地点であっても都市域に比べ大気中化学物質が常に低濃度とはなっていないことが明らかになった。すなわち、都市域での発生源対策の効果が物質によって異なることを意味しており、対策対象物質のBG濃度を各々モニタリングする必要があると言える。

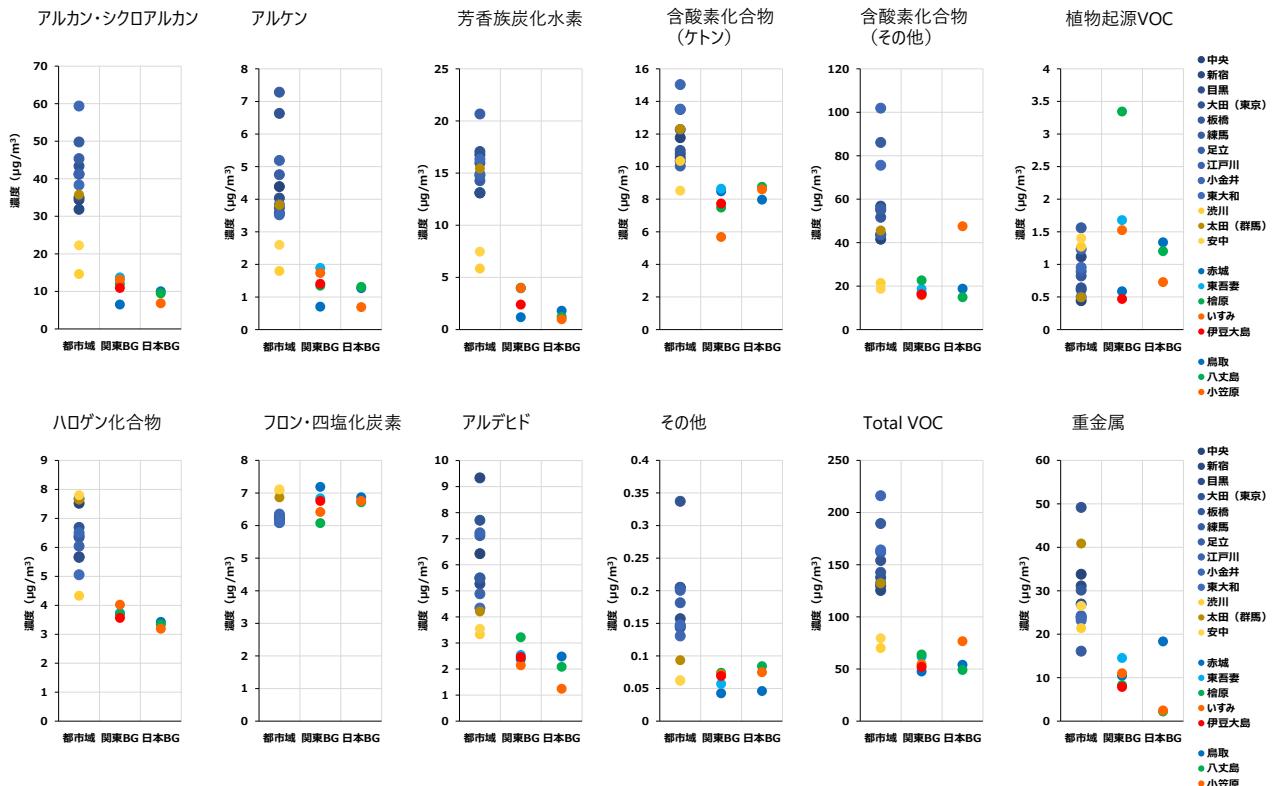


図5 物質群毎の都市域、関東BG、日本BGの年平均値の比較（2023年度）

### 【アルカン・シクロアルカン】

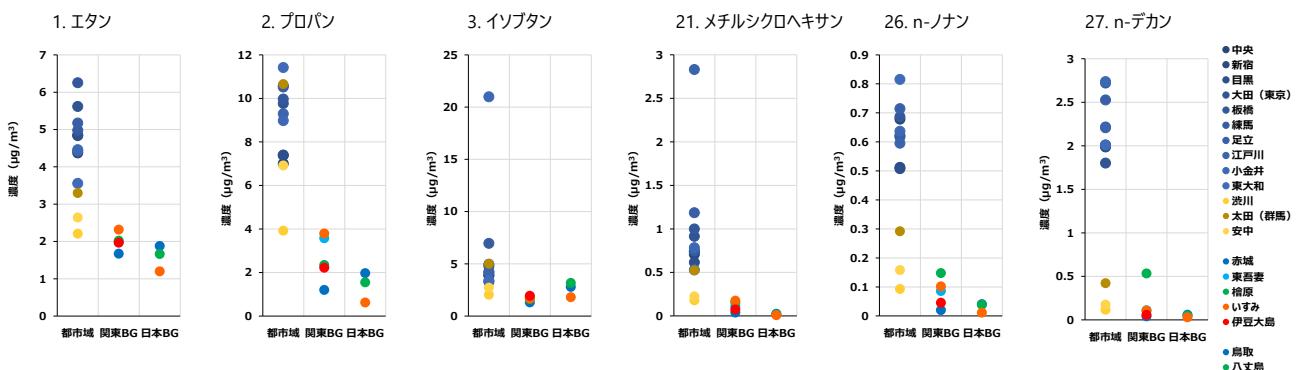
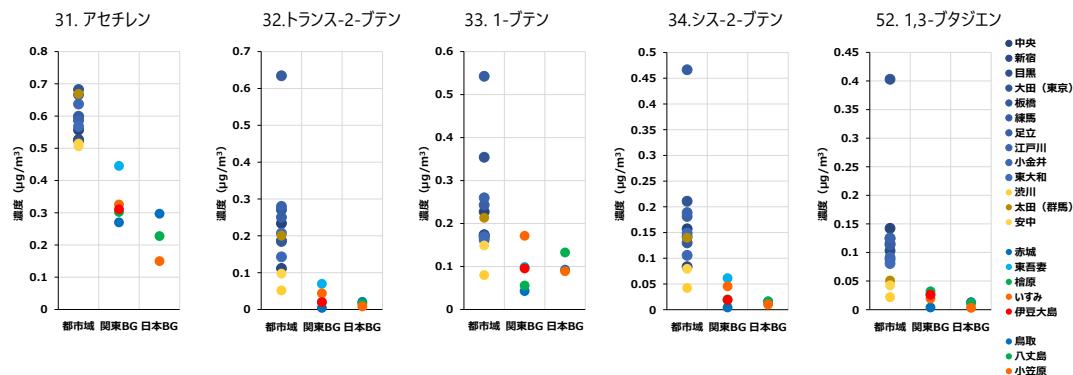
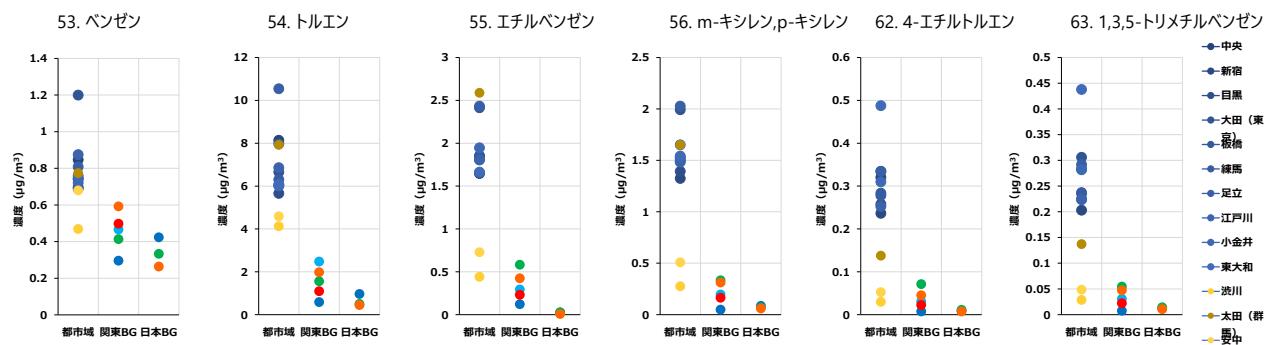


図6 物質毎の都市域、関東BG、日本BGの年平均値の比較（2023年度）

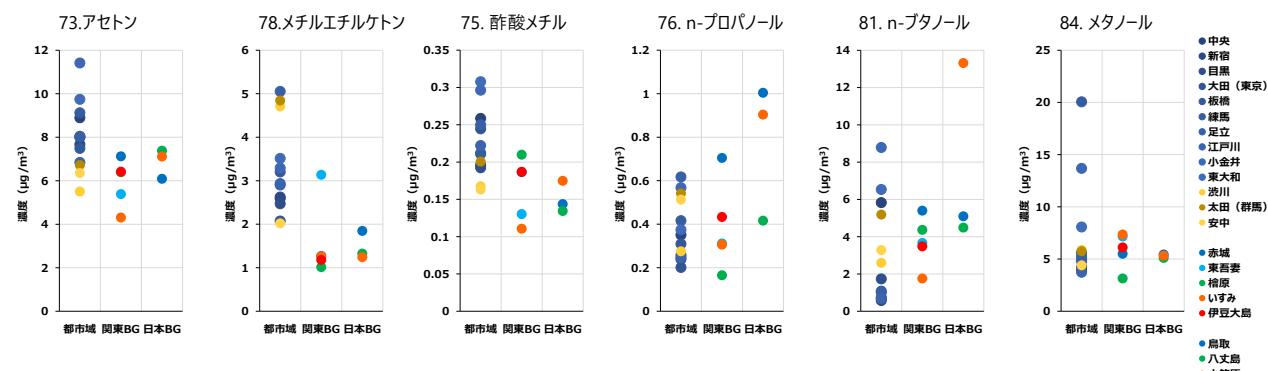
## 【アルケン・アルキン】



## 【芳香族炭化水素】



## 【含酸素化合物】



## 【ハロゲン化合物】

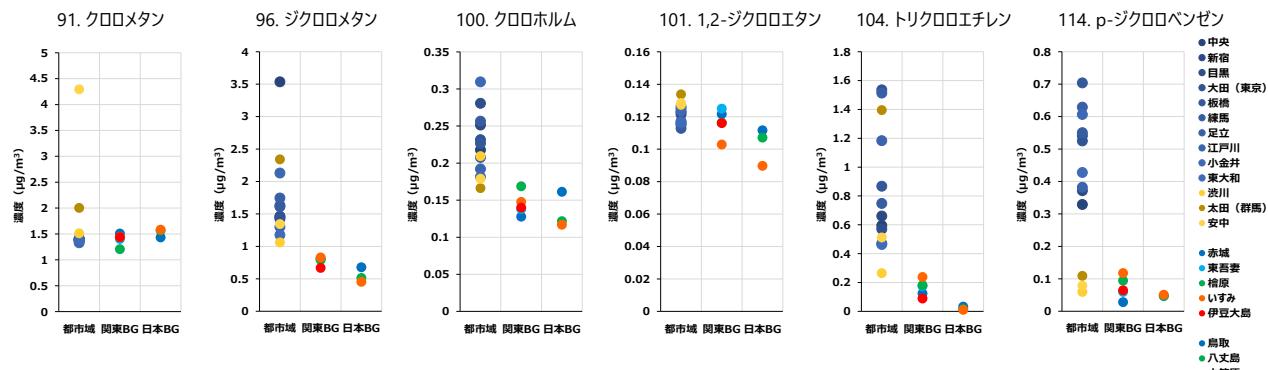
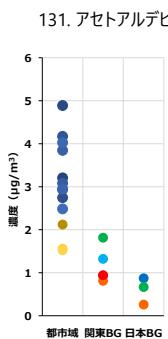
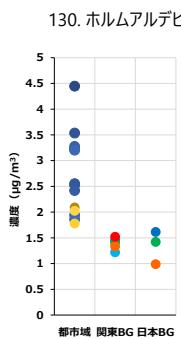
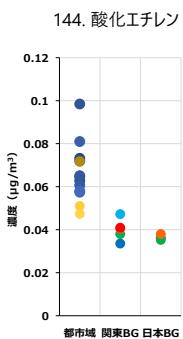


図6 物質毎の都市域、関東BG、日本BGの年平均値の比較（2023年度）（続き）

## 【アルデヒド】



## 【その他】



## 【重金属】

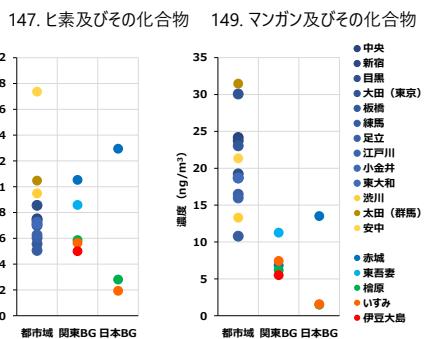
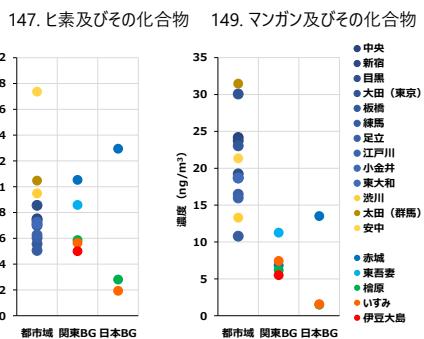
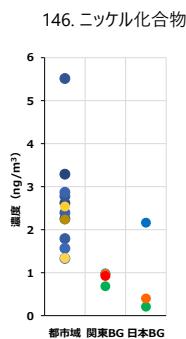


図6 物質毎の都市域、関東BG、日本BGの年平均値の比較（2023年度）（続き）

## ② OHラジカル反応速度定数とバックグラウンド/都市域濃度比の関係

上記で述べたように都市域の濃度に対するBG地点の濃度比は物質によって異なっていた。BG地点では基本的には遠方で排出され、移送されてきた物質濃度が観測されていると考えられる。このBG濃度/都市域平均濃度比はVOCについては各物質の大気中寿命を反映しているものと考えられた。すなわち、大気中での反応性の高い物質はBG地点に到達する前に減少しているため発生源近くの濃度を測定している都市域濃度に比べ、より低濃度になり、反応性の低い物質はBG地点でも比較的濃度が保存され、その濃度比が高くなると考えた。そこで、Fukusaki et al(2021)がまとめたOHラジカル反応速度定数( $10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ mol}^{-1} \text{ s}^{-1}$ )と各物質のBG濃度/都市域平均濃度の比との関係を整理し、例として鳥取と小笠原の結果を図7に示した。ここでは植物起源VOCのようにBG地点で放出されている物質や、排出源からBG地点に空気塊が到達するまでに二次生成等で増加していると考えられる物質を除き、OHラジカル反応速度定数が $20(10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ mol}^{-1} \text{ s}^{-1})$ 以下とそれ以上に分けて整理した（図7-I, II）。OHラジカル反応速度定数が20以下の比較的反応性の低い（大気寿命が長い）物質では鳥取、小笠原とともにOHラジカル反応速度定数が大きくなるにつれ都市域濃度に対する比率が小さくなる傾向が見られた（図7-I）。OHラジカル反応速度定数が20以上の物質についてもOH反応速度定数が大きい方が都市域に対する比率が小さくなる傾向が見られたが、図7-Iに示したOHラジカル反応速度定数が20以下の物質に比べその傾向は明瞭ではなかった

（図7-II）。図7-IIに示した反応性の高い物質では、発生源に近い都市域においても一定程度反応し、減少した後の濃度を観測していると考えられ、BG濃度/都市域平均濃度が高くなつたことが考えられた。定性的な結果であるが、OHラジカル反応速度定数が一定程度小さく、大気中である程度の保存性のある人為起源VOCについては、日本BG地点で大気寿命に応じた残留率で観測される傾向があることが明らかになった。

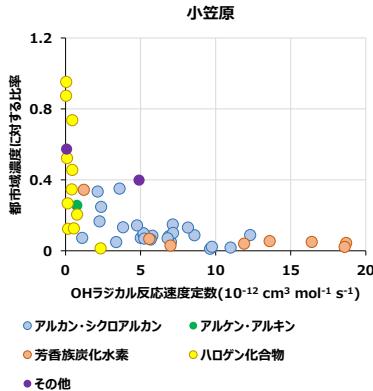
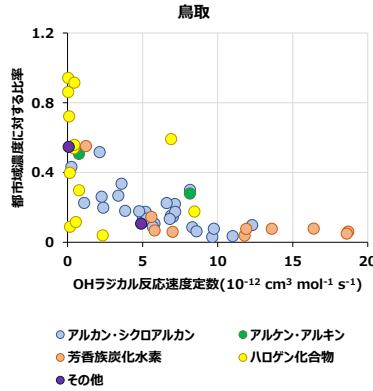
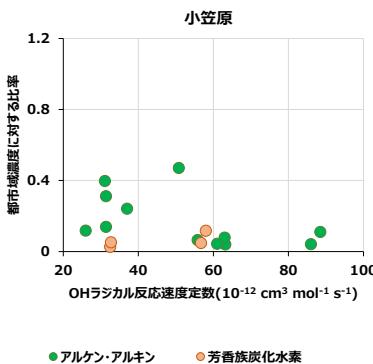
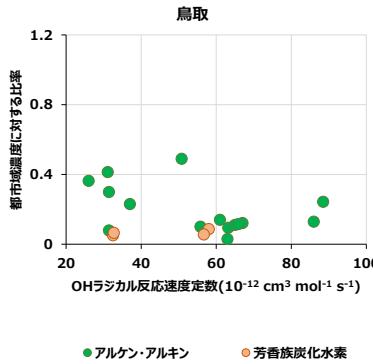
I. OHラジカル反応速度定数  $< 20(10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ mol}^{-1} \text{ s}^{-1})$   
(二次生成物質、植物起源VOC除く)II. OHラジカル反応速度定数  $> 20(10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ mol}^{-1} \text{ s}^{-1})$   
(二次生成物質、植物起源VOC除く)

図7 各物質のOHラジカル反応速度定数と都市域に対するBG濃度比の関係

### ③ 日本バックグラウンド地点の大気中化学物質の季節変動

図8に日本BG地点における各物質濃度の季節変化を図示した。観測は2022年秋から四季に一度実施した。当初の計画にはなかったが、2024年春と夏についても鳥取では観測を継続し、2年分のデータを収集することによってより明確な季節変動を把握することができた。図8に示した物質のうち、エタン、プロパン、アセチレン、ベンゼン、アセトン、メチルエチルケトン、メタノールは明確な季節変動を示した。これらの物質はOHラジカル反応速度定数が $2 \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ mol}^{-1} \text{ s}^{-1}$ 以下と小さく、かつ鳥取、八丈島、小笠原という遠隔地で同様の季節変動を示していることから北半球中緯度全域のBG濃度が季節によって変動していることが明らかになった。このうちエタン、プロパン、アセチレン、ベンゼンは夏季に低濃度、冬季に高濃度になる変動を示した。発生源から排出されたこれらの物質は大気中に長く残留するものの、夏季には光化学反応の影響をより強く受けて大気中濃度が低下した結果と考えられる。一方で、アセトン、メチルエチルケトン、メタノールは夏季に高濃度、冬季に低濃度になる傾向を示した。これらの物質は発生源からの排出だけでなく二次生成している可能性がある。そのため夏季には他のVOCからの二次生成が光化学反応による消失を上回

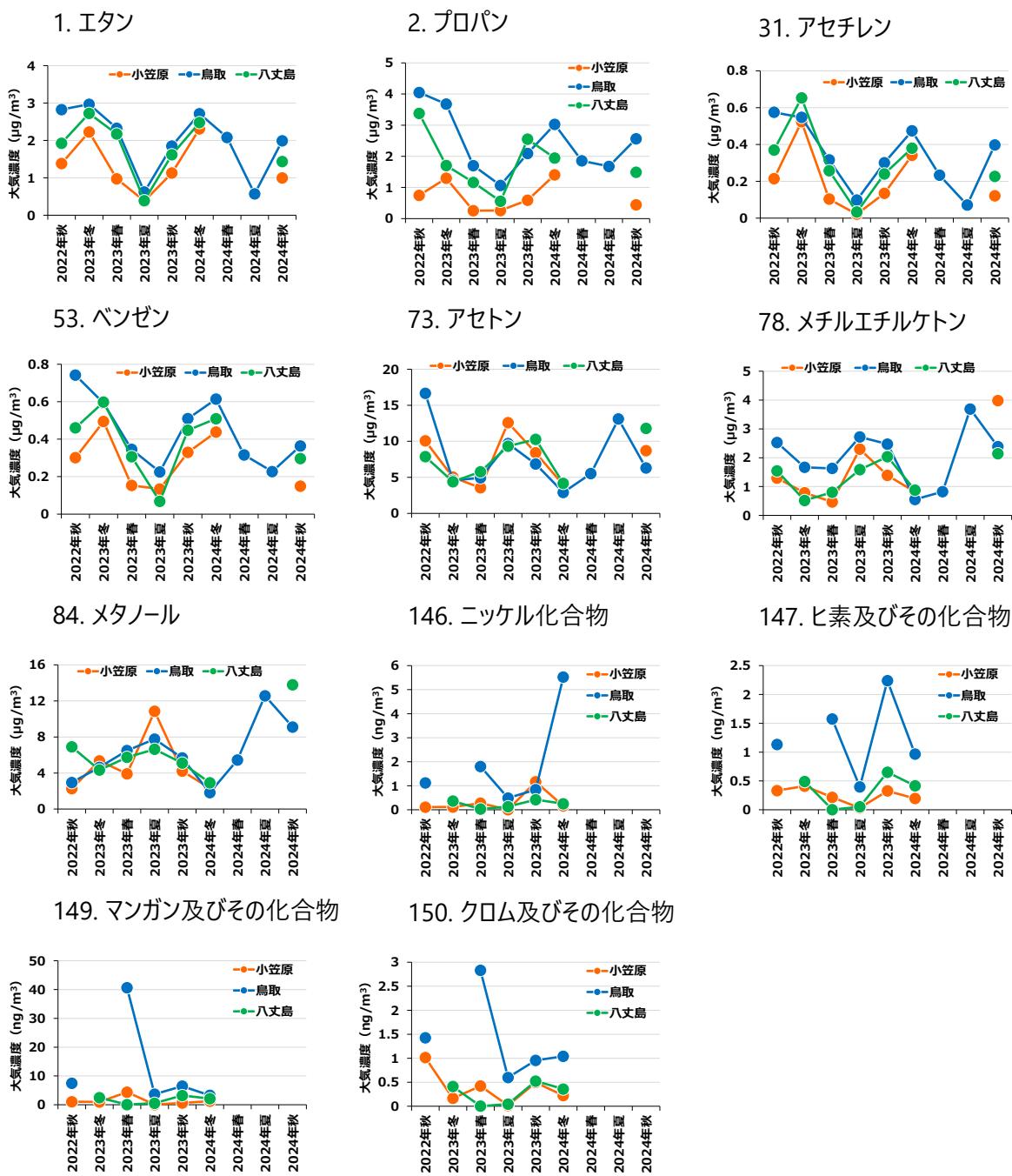


図8 物質毎の日本BGの季節変動

り、濃度が増加していると考えられた。OHラジカル反応速度定数が小さいこれらの物質は都市域濃度に対するBG濃度寄与率が高くなっている。そのため、都市域での排出削減対策の評価のためにBG濃度の切り分けをするためには、少なくとも四季に一度の観測が必要となることが示された。重金属類についても鳥取では八丈島、小笠原に比べて高濃度となるデータがあり、特に春季で高濃度となる物質が多くかった。大気中での光化学反応による生成、消失の影響がない重金属類では大陸に近いBG地点では越境輸送の影響を明確に受けていることが示されている。これらの物質では日本国内の削減対策を検討、評価する上で、日本海側のBG地点での観測が不可欠であると言える。

図9に日本BG観測期間中に各測定地点に到達した空気塊のバックトラジェクトリ解析結果を示した。ここでは500m上空から観測期間中の各日の2時と14時に48時間遡った流跡線を示した。まず、小笠原のトラジェクトリ解析結果を見ると観測期間のほとんどで太平洋上の清浄空気が到達している様子がうかがえる。このことからも小笠原では北半球中緯度のBG濃度を観測していると考えられる。そのため、エタンやアセチレン、ベンゼンなど鳥取、八丈島で、小笠原と同程度の濃度で同様の季節変動している物質は、これらの地点においても大陸や国内都市域の影響を受けていないと思われる。一方で人為起源の物質で鳥取のみ他の2地点と異なる挙動を示している物質がある。一つは金属類で、2023年春季はNi、As、Mn、Crのいずれもが他の2地点よりも明らかに高い濃度となっている。図9では鳥取では春季に大陸からの流跡線が多くなっており、このことからも鳥取の重金属類の観測地で大陸からの移流の影響を受けていることが裏付けられている。

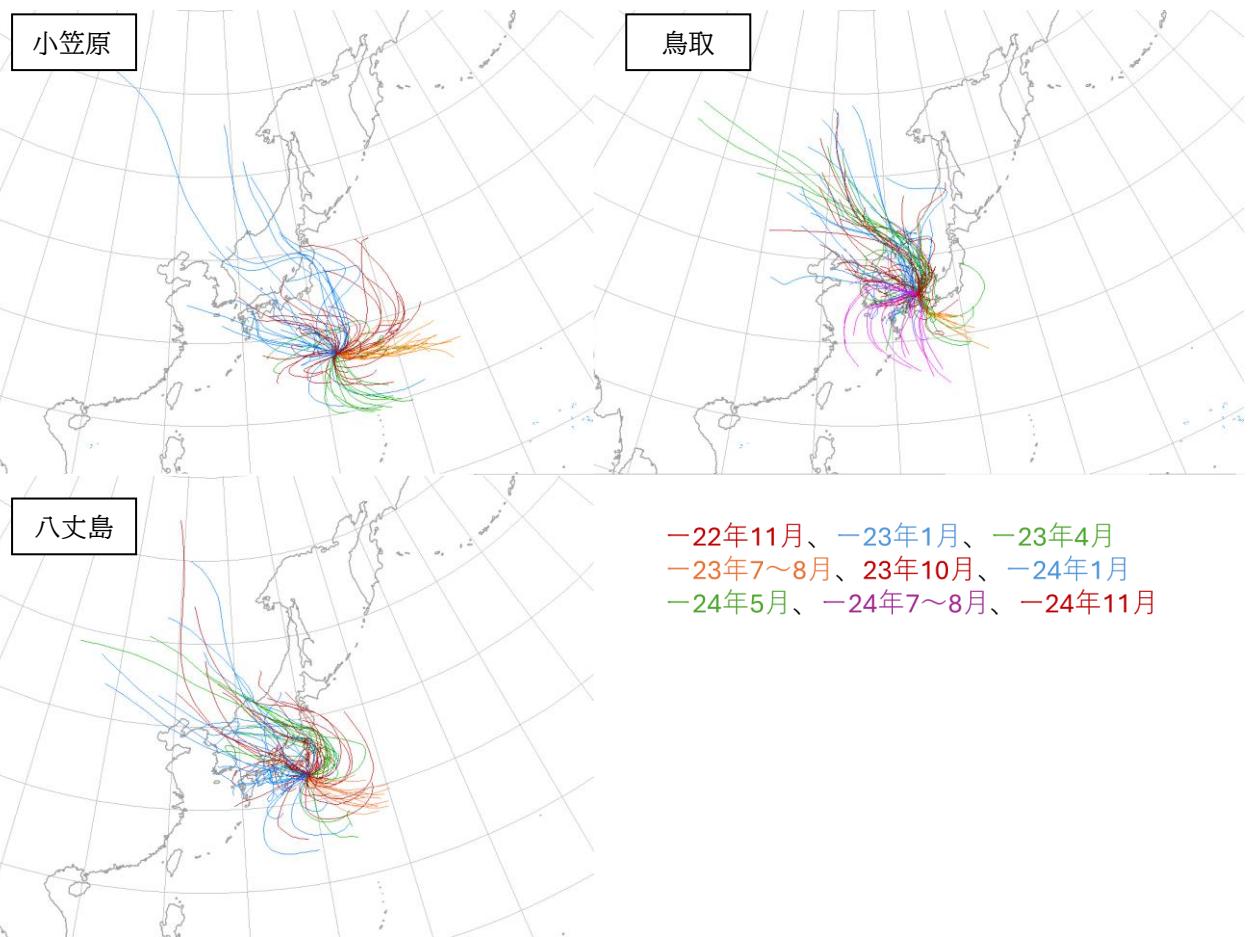


図9 日本BGの観測期間のバックトラジェクトリ解析

#### ④ 関東バックグラウンド地点の大気中化学物質の月変動

図10に2022年10月から2024年3月までの関東BG地点の主な物質の月変動を図示した。図中の棒グラフは都市域測定値（東京10地点、群馬3地点）の平均値を表し、エラーバーは都市域13地点濃度の標準偏差を示している。アルカン、アルケン、芳香族炭化水素のうち、日本BG地点で季節変動が見られたエタン、アセチレン、ベンゼンでは、いすみを除き関東BG地点でも概ね夏季に低くなる季節変動が見られている。特に赤城は夏季に低く、冬季に高いという季節変動が明瞭であり、日本BGに近い挙動を示している。その他の炭化水素類は比較的低濃度で通年推移しているが、いすみでは2023年12月にベンゼン、トルエンの他、多くの炭化水

素類の濃度が上昇している。2023年12月は都市域で多くのVOC類で高濃度となっており、関東平野全域で濃度の高い観測日であったと考えられ、いすみでは都市域の排出の影響を受けていたことが示唆された。一方、2024年2月には2023年12月よりも関東平野の都市域で高濃度となっていたが、いすみではそれほど顕著な濃度上昇が見られなかった。2023年12月は関東全域の風向が終日北寄りで、いすみが風下側にあったのに対して、2024年2月の風向は房総半島では南西の風が卓越し、都市域の風下にならなかつたためと考えられる。このように、いすみでは風向によって都市域の影響を受けるため、炭化水素類の都市域のBG濃度として活用するには風向解析等を十分に行い、濃度を吟味してから利用する必要がある。アセトン、メチルエチルケトン、メタノールは関東BG濃度が都市域と比較的近い濃度レベルになっており、日本BGと同様の濃度傾向であった。これらの物質は日本BG地点では夏季に高濃度、冬季に低濃度となる季節変動を示した。関東BG地点では東吾妻のメチルエチルケトン、いすみのメチルエチルケトンとメタノールは地域や都市域の排出の影響を受けた濃度と考えられるが、その他は概ね日本BGと同様に夏季に濃度が上昇する傾向が見られた。これらの物質も特に赤城では日本BGと同様に明瞭な季節変動を示した。ハロゲン化合物のうちクロロメタンは、都市域の特定発生源の影響を受けた安中を除いて、都市域、BG地点とも変動せずに毎月一定の濃度が検出されている。ジクロロメタン、クロロホルムのBG濃度も都市域濃度に対して比較的高い濃度であり、都市域で低濃度の測定月は関東BG地点と都市域がほぼ変わらない濃度となった。ジクロロメタンやクロロホルムは都市域に比べて関東BG濃度の月変動は少なくなっている。都市域の2022年12、2023年12月、2024年2月では、関東BG地点で観測されたベース濃度の上に都市域での排出が加算されて高濃度となったと考えられる。一方、関東BG地点のいすみではジクロロメタンの2023年12月、クロロホルムの2022年12月のように都市の高濃度に対応して他のBG地点よりも濃度が高くなる事例が見られている。いすみでは都市域の排出の影響を受ける可能性を示しており、BG濃度観測地点として適切ではない可能性がある。トリクロロエチレンやp-ジクロロベンゼンは都市域濃度に比べBG濃度は非常に低濃度であり、BG地点に到達するまでに消失しているためと考えられた。ホルムアルデヒド、アセトアルデヒドは都市域濃度の5割前後の濃度で都市域と同様の月変動を示した。二次生成の影響も受ける物質であるが、BG地点に比べ都市域では濃度変動幅が大きくなっている。都市では一次排出の影響も受けた変動であると考えられる。酸化エチレンもBG地点では平均して都市域の5割以上の濃度となっている。アルデヒドに比べ都市域での濃度変動幅がやや小さいことや、大気中での生成の影響が少ないと思われるため、関東域外の国内や国外での排出の影響割合が大きいことが想定される。そのため、酸化エチレンの削減対策にはBG濃度の正確な把握が不可欠と考えられる。BG地点として設定した関東5地点のうち、いすみは都市域の排出の影響を受けることが示され、一方、赤城では日本BG地点と同様の濃度変動を示す安定したBG濃度が観測された。アクセスの良さも考慮すると関東都市域でのBG観測地点として、赤城は重要な地点であると考える。

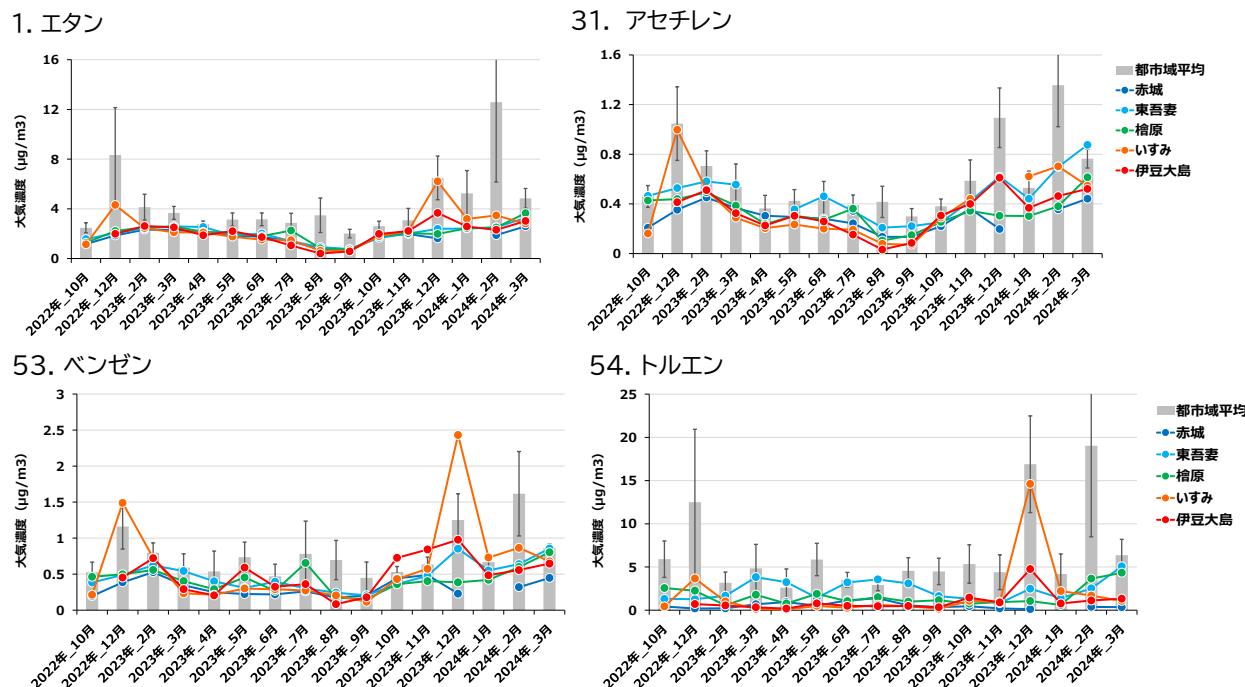
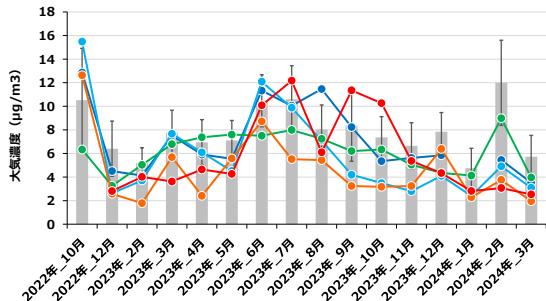
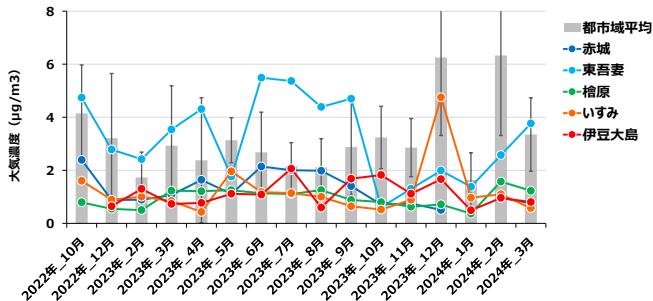


図10 物質毎の都市域と関東BG地点の月変動

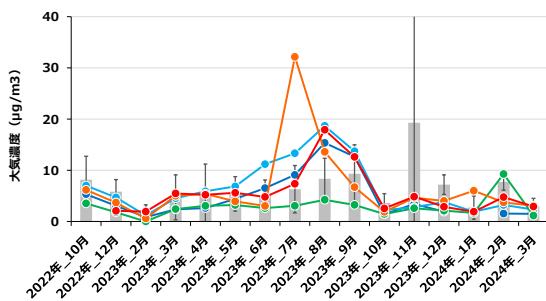
73. アセトン



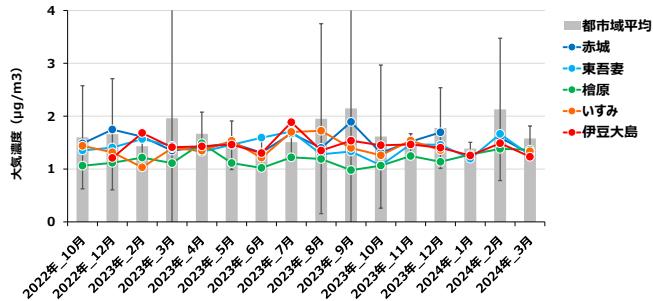
78. メチルエチルケトン



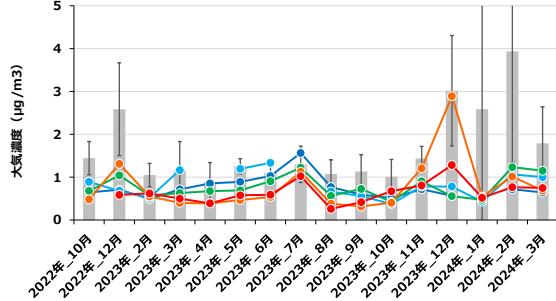
84. メタノール



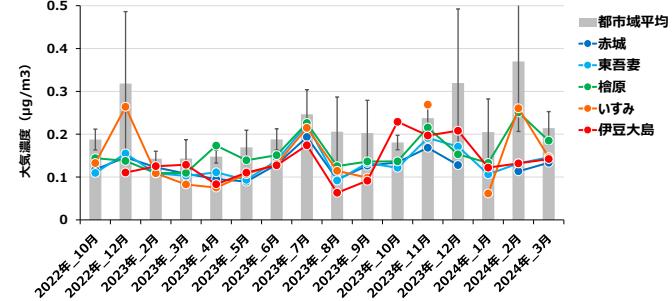
91. クロロメタン



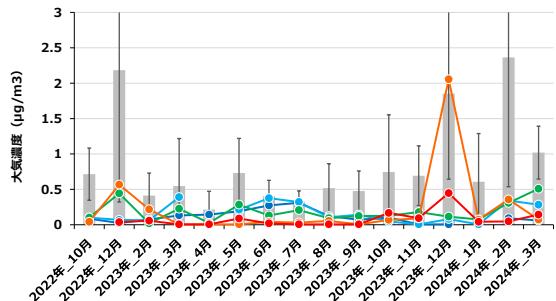
96. ジクロロメタン



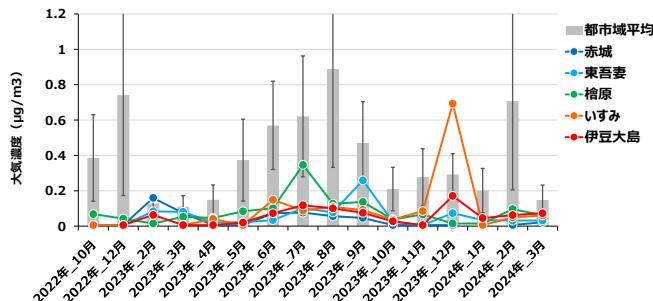
100. クロロホルム



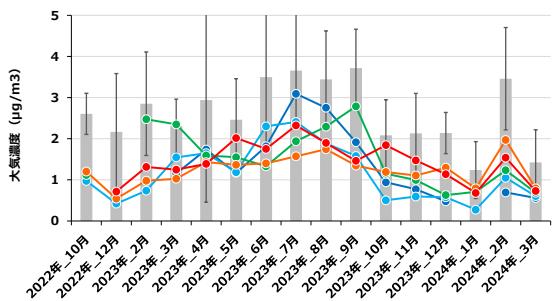
104. トリクロロエチレン



114. p-ジクロロベンゼン



130. ホルムアルデヒド



131. アセトアルデヒド

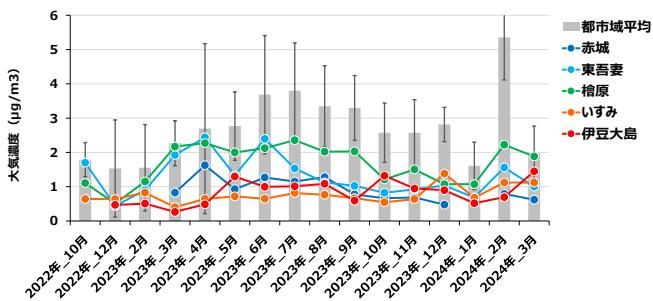


図10 物質毎の都市域と関東BG地点の月変動（続き）

## 145. 酸化工チレン

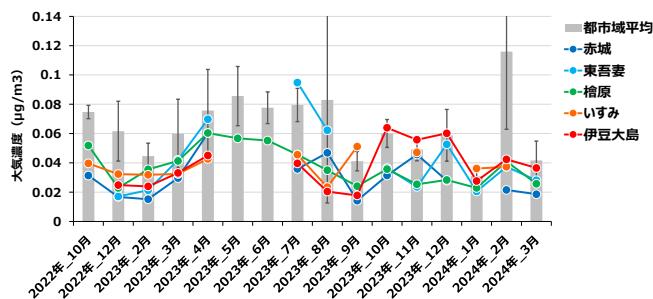


図10 物質毎の都市域と関東BG地点の月変動（続き）

## ⑤ 風向別のVOC濃度の特徴

2022年度～2023年度のBG観測では、キャニスターによる採取については通常のサンプリングの他に風向別サンプリングを併用した。風向別採取ではウインドセクターを用い、鳥取、赤城、伊豆大島では南北の風で分けて採取した。いすみでは北北東と南南西で風向を仕切り、関東平野側と太平洋側に分けて採取した。図11にウインドセクター設置地点と採取した風向を仕切るラインを示した。

最初に、ウインドセクターでの風向別採取のサンプリング精度をチェックした。

チェックには、大気中に恒常に存在し、かつ現状では排出がほとんどないと考えられるフロン、四塩化炭素のデータを用いた。フロン等の通常の全風向採取の観測値と、風向別に採取した観測値に風向頻度割合を乗じて算出した平均値とを比較した結果、両者はほぼ同一の値となった。そのため、ウインドセクターの風向別の採取切り替えは問題なく作動していると判断した。次に、全物質で全風向採取の観測値と風向別採取の観測値を比較したところ、トルエン、エチルベンゼン、m-キシレン・p-キシレン、o-キシレン、スチレンでは風向別の2つの観測値が常に全風向採取よりも高い濃度となっていた。これはウインドセクター内のバルブ等の資材の洗浄剤等に使われていた溶剤が残留しており、試料が汚染されていたと判断し、これらの物質は風向別濃度の解析に用いなかった。その他に物質について地点別に風向別濃度の特徴を解析した。まず、各地点で2023年度の両風向の観測値の平均値について有意差検定を行い、有意差が認められた物質を地点ごとに抽出した。抽出した物質の（本土or関東平野内側） / （国外or関東平野外側）の濃度比を算出し、さらに測定精度上も十分な差と考えられる濃度比として、比が $>1.3$ と $<0.7$ となった物質を抽出した。得られた濃度比を表6に示した。

抽出された物質は鳥取で7物質、赤城で12物質、いすみで22物質、伊豆大島で5物質となった。鳥取では抽出された7物質のうち5物質は比が0.7以下となっている。これらの物質は鳥取では国内の影響よりも大陸の影響が大きいことを示している。一方で本土側が高い物質はプロパンとトリクロロエチレンの2物質のみとなっている。すなわち、鳥取は本土の排出の影響よりも大陸の影響を捉えやすいBG地点となり、越境汚染の観測・評価のためのBG地点として適していると考えられる。赤城といすみは風向別に濃度差が見られた物質は全て比が1.3以上となっており、風向によって関東平野の排出の影響を受ける物質が見られた。関東BG地点は日本BG地点に比べ都市域に近い地点に設定しているので、風向によって都市域の排出の影響を受けやすい。しかし、同じ陸域のBG地点であっても、いすみに比べ赤城の方が物質数は少なく、その濃度比も小さくなっている。いすみではトリクロロエチレンやテトラクロロエチレンといった工業用途で使われる物質が風向によって5.0～6.7倍の濃度差があり、風向の影響を大きく受ける地点であったと言える。伊豆大島は濃度差が見られた物質が5物質のみと少なく、その濃度比も比較的小さく、それらの物質は実濃度では非常に低濃度であった。すなわち、伊豆大島はほとんどの物質で風向による濃度差はみられず、通年で安定したBG観測が可能な地点と考えられる。

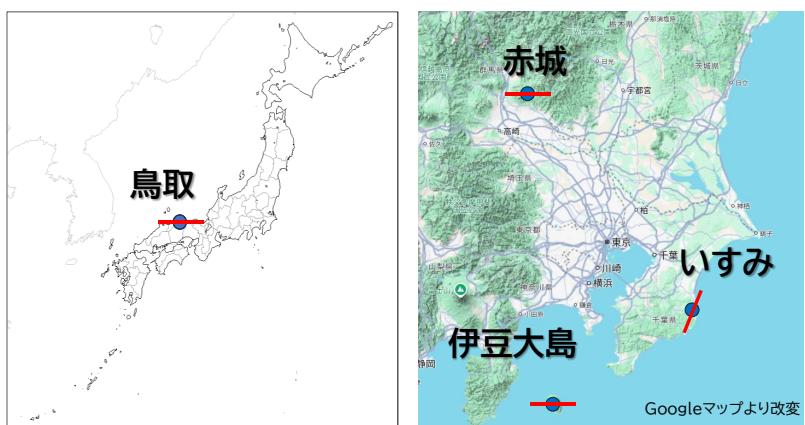


図11 ウインドセクター設置地点

表6 風向別採取観測値の濃度比

鳥取	本土側(南風) / 日本海側(北風)	濃度比の平均	いすみ	関東平野側(西風) / 太平洋側(東風)	濃度比の平均
プロパン		1.68	1-ペンテン		1.61
ベンゼン		0.48	シクロペニタン		1.68
3-メチルペニタン		0.35	2,3-ジメチルブタン		1.66
クロロエタン		0.18	2,3-ジメチルペニタン		2.04
トリクロロエチレン		1.93	イソプロピルベンゼン		2.02
クロロベンゼン		0.50	m-ジエチルベンゼン		1.96
p-ジクロロベンゼン		0.47	イソブテン		1.86
赤城	関東平野側(南風) / 山側(北風)	濃度比の平均	1,3-ペニタジエン		2.24
			1,2,3,5-テトラメチルベンゼン		2.11
エチレン		2.08	メチル-tert-ブチルエーテル		2.61
プロパン		1.39	1,3-ブタジエン		2.15
n-ブタン		1.45	HCFC-123		1.74
アセチレン		1.32	アクリロニトリル		2.01
イソペニタン		1.63	1,1-ジクロロエチレン		2.16
n-ペニタン		1.63	1,1-ジクロロエタン		2.61
シクロペニタン		2.63	1,1,1-トリクロロエタン		2.71
2-メチルペニタン		1.75	トリクロロエチレン		6.69
ベンゼン		2.87	1,1,2-トリクロロエタン		2.25
クロロエタン		3.17	テトラクロロエチレン		5.03
ジクロロメタン		1.34	クロロベンゼン		1.93
エタノール		2.08	ベンジルクロライド		1.70
			o-ジクロロベンゼン		2.11
伊豆大島			伊豆大島	関東平野側(北風) / 太平洋側(南風)	
				濃度比の平均	
1-ペンテン			1-ペンテン		0.68
2-エチル-p-キシレン			2-エチル-p-キシレン		1.84
4-エチル-m-キシレン			4-エチル-m-キシレン		1.84
1,2,3,5-テトラメチルベンゼン			1,2,3,5-テトラメチルベンゼン		2.18
カンフェン			カンフェン		2.79

#### ⑥ 日本バックグラウンド、関東バックグラウンドの多地点同時観測

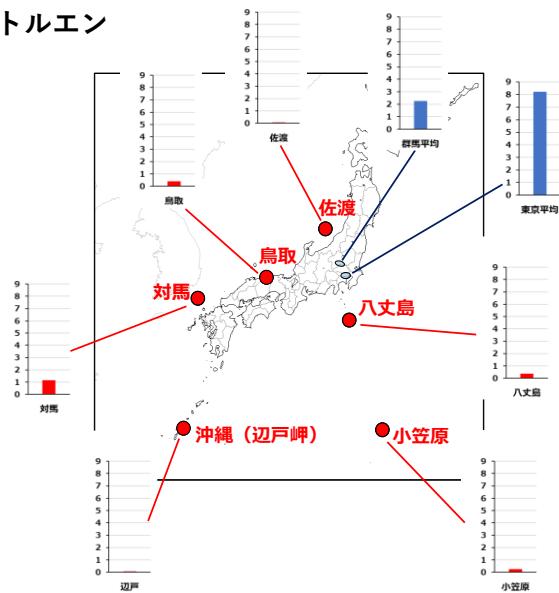
2024年度に実施した関東BGと日本BGの多地点同時観測結果のうち、例としてトルエン、ジクロロメタンの値を図12に示した。2024年度の調査は電源を使わずに実施したため、キャニスターで採取できるVOC130物質を対象物質とした。関東BG地点の観測は2024年6月4日～5日に24時間採取で実施し、同日実施した東京都と群馬県の有害大気汚染物質モニタリング結果と比較した。日本BG地点は2024年11月1日～8日に基本的に1週間採取で実施し、11月6日～7日にかけて実施した東京都と群馬県の有害大気汚染物質モニタリング結果と比較した。東京、群馬の有害大気汚染物質モニタリングと各BG濃度を比較すると、ジクロロメタンのBG濃度は都市域濃度の30%～80%程度、トルエンは都市域濃度の数%～最大20%程度の値を示した。この傾向は関東BG地点でも日本BG地点でも同様であった。関東BG地点と日本BG地点は測定日が異なることもあり、実濃度では関東BG地点よりも日本BG地点の方が高い物質も見られている。すなわち、関東平野の排出の影響を受けない距離としては関東平野の縁の山間部や海岸沿いにおいても十分であると考えられる。一方で各々の地点に着目すると一定の濃度差はみられている。図10で示したように東吾妻やいすみは観測時期や風向によって関東平野内の排出の影響を受けたと考えられる観測結果となり、赤城は平均濃度が低く、月変動も他地点に比べ安定していた。図12に示した2024年度の多地点同時観測でもトルエン、ジクロロメタンなど人為起源のVOCは低濃度となっており、関東平野のBG地点として適切な地点であると考えられる。また、関東平野は季節によって主風向が南北に変化するため平野南部のBG地点も必要と考えられる。本研究で設定したBG地点では伊豆大島が比較的安定したBG地点となり得る。

日本BG地点の濃度分布をみると、トルエン、ジクロロメタンとともに小笠原は低濃度となっている。大陸の影響も少ない小笠原は常に北半球中緯度の大気中に一定程度に存在するBG濃度を観測するのに適した地点といえる。八丈島は小笠原と伊豆大島の中間的な濃度レベルで関東BG地点の赤城に近い濃度となっている。そ

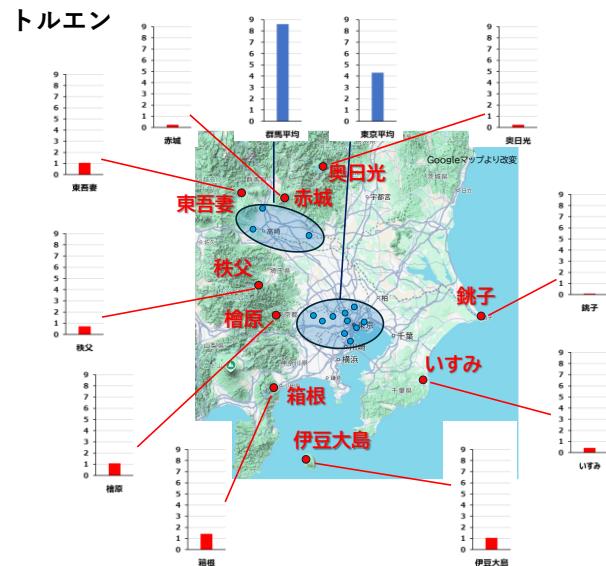
のため、日本列島全体のBG地点というよりも関東南部に位置する関東平野のBG地点として適切な地点と思われる。また、全体的な傾向として鳥取、対馬、佐渡の日本海側の地点は、辺戸や八丈島よりやや濃度が高くなっていた。図8で示した季節変動でも鳥取がやや高い推移となる物質が多く、特に重金属は大陸の影響を強く受けていることが示唆された。日本への大陸由来のBG濃度を把握する上ではこのように季節や風向によって高めの濃度を検出している地点のデータも必要である。いずれの発生源の影響も受けない小笠原のような地点とは別に、日本に影響しうる移流の影響を捉えることができる日本海側での化学物質の継続的なモニタリングも重要である。

本研究のサブテーマ1の大気中化学物質のBG観測の結果から、関東平野における関東内都市域の排出状況の把握、対策の効果検証のためのBG観測として、関東北部の赤城、関東南部の離島である伊豆大島か八丈島、北半球のBG濃度を把握できる小笠原、大陸の影響を把握できる鳥取や対馬などの日本海側地点において、少なくとも四季に一度のモニタリングを提案する。

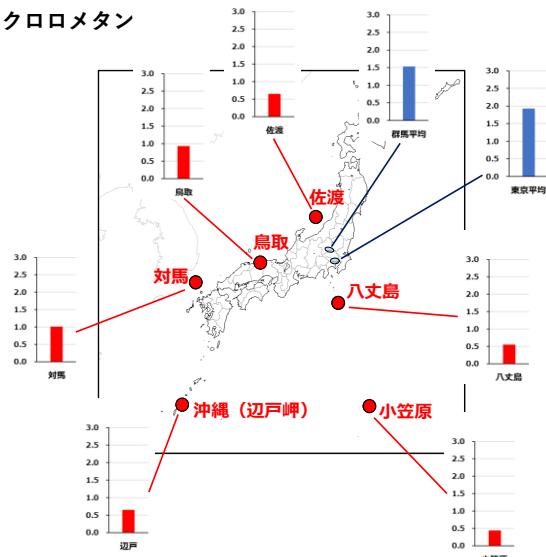
### トルエン



### トルエン



### ジクロロメタン



### ジクロロメタン

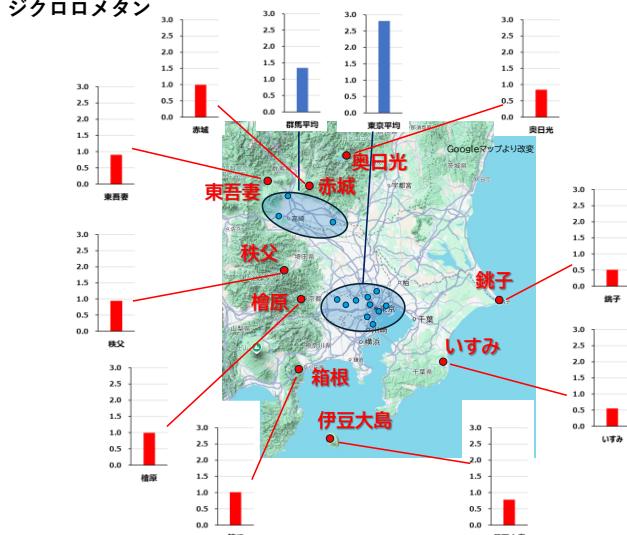


図12 関東BG、日本BG多地点同時観測結果

## 2) パッシブサンプラーによるBG観測手法の確立

測定対象とした115物質のうち、i) VOC用パッシブサンプラーでは99物質、ii) アルデヒド類パッシブサンプラーでは14物質、iii) エチレンオキシド用パッシブサンプラーでは2物質について分析条件を検討した。

i)の99物質のうち、VOC用パッシブサンプラーの抽出溶媒である二硫化炭素に標準液が溶解しなかったメチルエチルケトン等18物質、GC/MSのクロマトグラムが二硫化炭素のピークと重なり検出できなかったシクロペンタンやジクロロメタン等8物質を除外した73物質をSR検証対象とした。ii)アルデヒド類パッシブサンプラー対象の14物質及びiii)エチレンオキシド用パッシブサンプラー対象の2物質は分析可能であることを確認し、i)・ii)・iii)の合計89物質をSR調査の対象とした。

また、先行して東京で実施した環境大気を用いた公定法との並行試験において、DSD-BPE/DNPH（A社製）ではホルムアルデヒド・アセトアルデヒド共に公定法との相関が認められた（ $p<0.05$ ）のに対し、DNPHパッシブガスチューブ（B社製）ではアセトアルデヒドが公定法との相関が認められない結果となり、アルデヒド類パッシブサンプラーの2種類で公定法との相間に違いが見られた。その理由として、A社製のDSD-BPE/DNPHの吸着剤に含有されているBPEがオゾンスクラバーとして機能することに対し、B社製DNPHパッシブガスチューブにオゾンスクラバーが含有されていないことが原因と考えられた。このことから、アルデヒド用のパッシブサンプラーを大気環境調査で使用する場合にはオゾンスクラバーの有無の影響が大きいことが示唆されたため、その後のアルデヒド類のSR調査やBG調査にはDSD-BPE/DNPHを用いることとした。

また、VOC用パッシブサンプラーについても同様に2種類のサンプラーの比較を行い、両者に大きな差は見られなかったもののVOC-SD（A社製）の方がやや相関が高い物質が多かったので、SR調査やその後のBG調査にはVOC-SDを用いることとした。

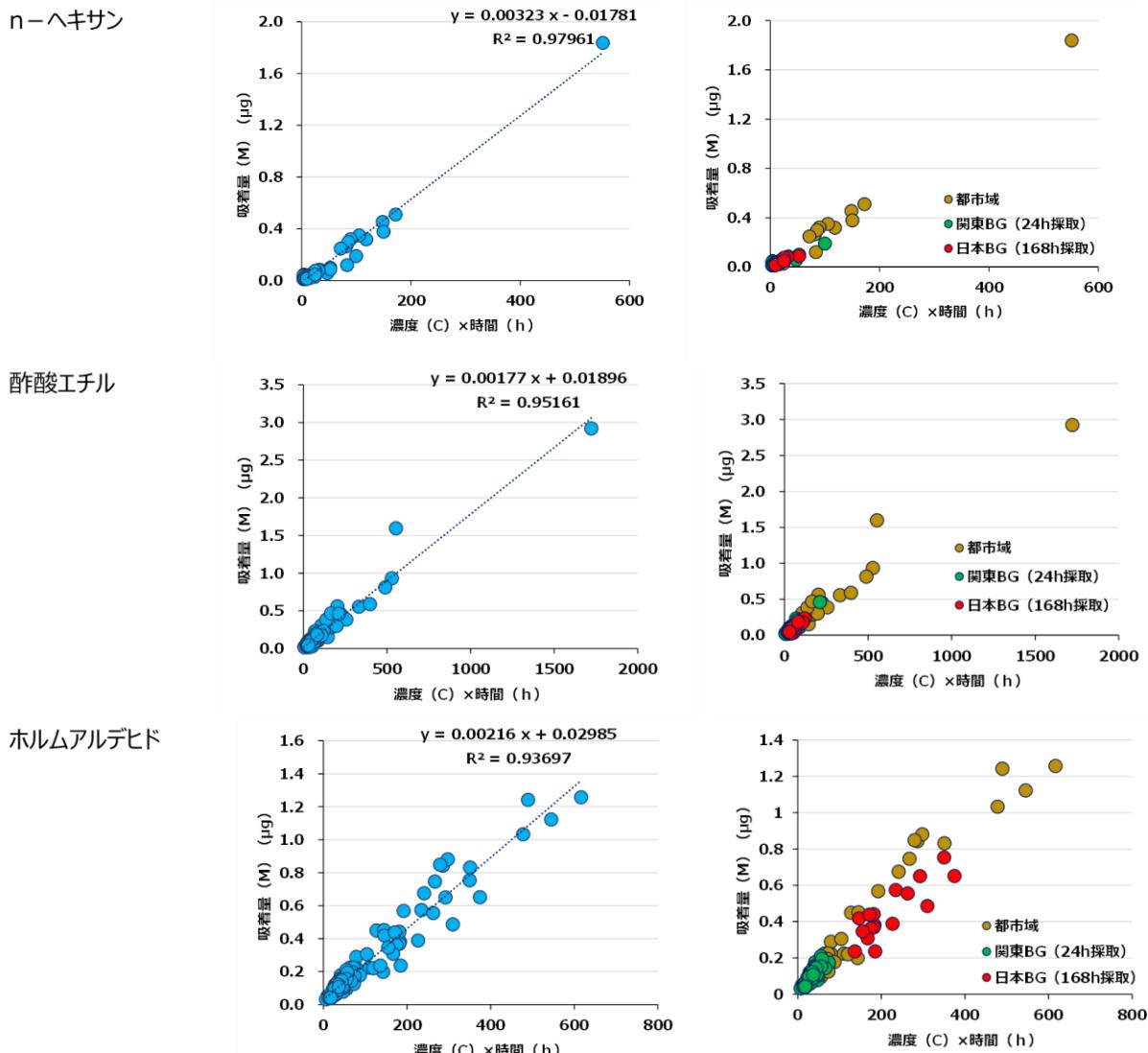


図13 パッシブサンプラーと公定法の並行試験結果（SRを算出した物質の例）

※左図は全データで回帰直線を引いたもの。右は同じ図で地域別にデータの分布を分けて見たもの

SR調査対象89物質のうち、1,2,4-トリクロロベンゼン等25物質では、大気濃度が低く公定法及びパッシブサンプラーで検出下限値以上のデータ数が5以下そのため、SR算出対象から除外した。また、1,3,5-トリメチルベンゼンのように、公定法とパッシブサンプラーで相関が認められない物質 ( $p \geq 0.05$ ) や、アクロレイン等のように都市域とBG地域を個別に見ると相関が認められないケースがある物質はパッシブサンプラーが適用できない物質と判断し、SR算出対象から除外した。この結果、公定法とパッシブサンプラーの分析結果に直線性があり、SRが得られた物質はn-ヘキサン等49物質であった（図13）。SR及び検出下限値を表7に示す。

表7のとおり、酸化エチレンと酸化プロピレンは、都市域では公定法とパッシブサンプラーに相関が認められたが、BG地域では直線性が得られなかったため、SRが算出できなかった。その原因として、環境大気濃度レベルに対して、パッシブサンプラーの感度が不足していることが考えられた。そこで、酸化エチレン用パッシブサンプラーの採取容器の形状や吸着剤を変更し、感度の向上を図った。

市販品の吸着剤をA社製VOC用パッシブサンプラーの容器に詰め替えた結果は図14凡例②のとおり、容器改良品においても酸化エチレンと酸化プロピレンとともに公定法との相関が得られた。また、容器改良品は市販品と比べると、吸着剤の種類が同じで充填量やや少なくなったにもかかわらず、24時間採取時の酸化エチレンの検出下限値が市販品では $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であったが、容器改良品では $0.04 \mu\text{g}/\text{m}^3$ まで下がり、分析感度は2.5倍程度向上した。酸化プロピレンも同様に容器改良品のほうが、検出下限値が低下した（表8）。その理由として、サンプラーの多孔質部の孔径や厚み等、対象化学成分の拡散効率の違いは不明であるが、市販品では多孔質となっている直径約2.1cmの円盤状の1面のみから拡散している一方、容器改良品は、長さ約2.6cm × 直径約0.8cmの円筒状の多孔質部から拡散するため、拡散可能な部材の面積が市販品約 $3.5 \text{ cm}^2$ から改良品約 $7.0 \text{ cm}^2$ へ増加したことによると考えられた。

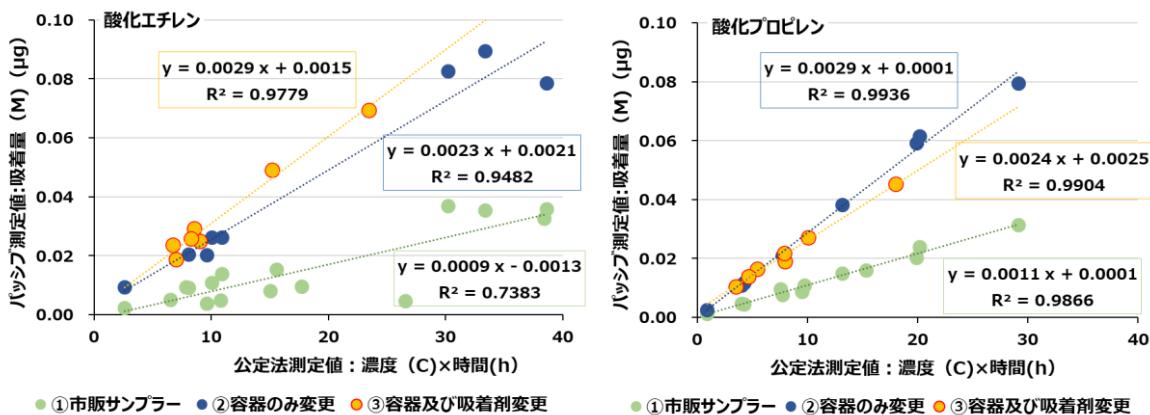


図14 酸化エチレン用パッシブサンプラーの市販品と改良品の公定法との並行試験結果

続いて、容器改良品（A社製VOC用パッシブサンプラーの容器）に、パッシブサンプラーよりも安価な公定法用アクティブ捕集で用いる吸着剤（スペルコ製 ORB0-78）を詰め替え、公定法との並行試験を行った結果を図14の③及び表8の③に示した。パッシブサンプラーの容器が同じであれば、パッシブサンプラー用吸着剤あるいは公定法であるアクティブ捕集用吸着剤のどちらを用いても、公定法との相関があり、検出下限値が同程度であることを確認した。すなわち、A社製VOC用パッシブサンプラーの容器へアクティブ捕集用吸着剤を充填することで、安価でBG観測に適用可能な検出下限値を持つパッシブサンプラーを作成することができ、表9に示す酸化エチレン及び酸化プロピレンのSRを得ることができた。

表7 環境大気を用いて算出されたVOC類のサンプリングレート

	検出試料数 (N)	相関係数	検定	検定 (都市域)	検定 (BG地域)	SR算出	サンプリングレート (m <sup>3</sup> /h)	検出下限値 (μg/m <sup>3</sup> )
								24時間採取 168時間採取
アルカン								
イソペンタン	87	0.98	**	**	**	○	0.00159	0.05 0.007
n-ペンタン	73	0.95	**	**	**	○	0.00264	0.03 0.005
3-メチルベンタン	45	0.97	**	**	**	○	0.00125	0.10 0.01
n-ヘキサン	62	0.99	**	**	**	○	0.00323	0.02 0.003
メチルシクロベタン	24	0.82	**	**	*	○	0.00345	0.002 0.0003
2,4-ジメチルベンタン	24	0.95	**	**	*	○	0.00198	0.01 0.002
シクロヘキサン	83	0.95	**	**	**	○	0.00168	0.01 0.002
2-メチルヘキサン	47	0.94	**	**	**	○	0.00235	0.02 0.002
3-メチルヘキサン	61	0.95	**	**	**	○	0.00197	0.01 0.002
2,2,4-トリメチルベンタン	32	0.91	**	**	**	○	0.00182	0.02 0.002
n-ヘプタン	70	0.85	**	**	**	○	0.00206	0.01 0.002
メチルシクロヘキサン	50	0.92	**	**	**	○	0.00191	0.03 0.004
2,3,4-トリメチルベンタン	10	0.82	**	-	-	×		
2-メチルヘプタン	15	0.91	**	**	-	○	0.00218	0.02 0.003
n-オクタン	38	0.73	**	**	-	×		
n-ノナン	33	0.76	**	**	**	○	0.00199	0.04 0.005
n-デカン	31	0.42	*	-	-	×		
n-ウンデカン	7	0.86	*	*	-	○	0.00315	0.02 0.003
アルケン								
1-ペンタン	71	0.83	**	**	**	○	0.00180	0.02 0.003
2-メチル-1-ペンタン	7	0.75	-	-	-	×		
2-メチル-1-ブテン	25	0.96	**	**	*	○	0.00183	0.04 0.005
植物起源VOC								
α-ピネン	66	0.91	**	**	**	○	0.00162	0.03 0.005
カンフェン	42	0.94	**	**	**	○	0.00180	0.004 0.0006
β-ピネン	25	0.88	**	-	**	○	0.00111	0.05 0.008
芳香族化合物								
ベンゼン	37	0.88	**	**	**	○	0.00165	0.3 0.05
トルエン	95	0.85	**	**	**	○	0.00125	0.02 0.003
エチルベンゼン	83	0.96	**	**	**	○	0.00333	0.02 0.003
m-キシレン,p-キシレン	78	0.84	**	**	**	○	0.00775	0.008 0.001
o-キシレン	40	0.88	**	**	**	○	0.00383	0.02 0.003
イソプロピルベンゼン	10	0.52	-	-	-	×		
n-プロピルベンゼン	6	0.50	-	-	-	×		
4-エチルトルエン	17	0.88	**	**	-	○	0.00498	0.01 0.001
1,3,5-トリメチルベンゼン	18	0.28	-	-	-	×		
2-エチルトルエン	23	0.79	**	**	*	○	0.00203	0.03 0.004
1,2,4-トリメチルベンゼン	47	0.74	**	**	**	○	0.00387	0.02 0.002
フロン・四塩化炭素等								
四塩化炭素	102	0.97	**	**	**	○	0.00106	0.03 0.005
含酸素化合物								
アセトン	91	0.56	**	*	**	○	0.00024	1.5 0.22
イソプロピルアルコール	34	0.58	**	-	-	×		
酢酸エチル	83	0.98	**	**	**	○	0.00177	0.1 0.02
メチルイソブチルケトン	44	0.43	**	-	-	×		
酢酸ブチル	70	0.95	**	**	**	○	0.00163	0.02 0.002
エタノール	47	0.50	**	-	**	×		
アルデヒド								
ホルムアルデヒド	108	0.97	**	**	**	○	0.00216	0.02 0.002
アセトアルデヒド	95	0.89	**	**	**	○	0.00160	0.03 0.005
アクリレイン	64	0.71	**	*	-	×		
プロピオンアルデヒド	106	0.95	**	**	**	○	0.00177	0.05 0.007
クロトンアルデヒド	53	0.68	**	**	**	○	0.00161	0.02 0.003
ブチルアルデヒド	105	0.90	**	**	**	○	0.00103	0.2 0.03
ベンズアルデヒド	58	0.92	**	**	-	×		
イソパラレルアルデヒド	68	0.93	**	**	**	○	0.00113	0.04 0.006
n-パレルアルデヒド	78	0.88	**	**	*	○	0.00059	0.04 0.006
m,p-トルアルデヒド	20	0.95	**	**	-	○	0.00141	0.02 0.003
ヘキサアルデヒド	80	0.91	**	**	**	○	0.00058	0.04 0.005
2,5-ジメチルベンズアルデヒド	34	0.49	**	-	**	○	0.01018	0.004 0.0005
有機ハロゲン化合物								
クロロホルム	58	0.99	**	**	**	○	0.00093	0.08 0.01
1,2-ジクロロエタン	102	0.96	**	**	**	○	0.00158	0.009 0.001
1,1,1-トリクロロエタン	21	-0.21	-	-	-	×		
1,2-ジクロロプロパン	52	0.93	**	**	**	○	0.00150	0.01 0.002
トリクロロエチレン	76	0.97	**	**	**	○	0.00160	0.007 0.0009
テトラクロロエチレン	84	0.89	**	**	**	○	0.00154	0.007 0.001
クロロベンゼン	11	0.83	**	-	*	○	0.00122	0.02 0.003
p-ジクロロベンゼン	60	0.80	**	**	**	○	0.00346	0.005 0.0007
その他								
酸化エチレン	21	0.73	**	**	-	×		
酸化フロビレン	16	0.99	**	**	-	×		

\*\*p&lt;0.01、\*p&lt;0.05、データ数5以下

表8 酸化工チレン用パッシブサンプラーの市販品と改良品の検出下限値

検出下限値 (大気濃度: $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	①市販品		②容器改良品		③容器及び吸着剤改良品	
	24時間採取	168時間採取	24時間採取	168時間採取	24時間採取	168時間採取
酸化工チレン	0.1	0.02	0.04	<b>0.006</b>	0.03	<b>0.005</b>
酸化プロピレン	0.03	0.004	0.009	<b>0.001</b>	0.01	<b>0.002</b>

表9 パッシブサンプラー改良品における酸化工チレン及び酸化プロピレンのSR及び検出下限値

相関係数	検定	サンプリングレート ( $\text{m}^3/\text{h}$ )	検出下限値 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	
			24時間採取	168時間採取
酸化工チレン	0.99	**	<b>0.00295</b>	<b>0.033</b>
酸化プロピレン	1.00	**	<b>0.00237</b>	<b>0.011</b>

## (2) バックグラウンド観測データによるモデルシミュレーションの高精度化

サブテーマ2では、本研究での改良（PRTR排出量の使用、境界濃度と排出量の補正）を施す前と後の大気質シミュレーションを用い、2022年10月から2024年3月までにサブテーマ1が実施した観測期間を含む計算を実行した。日本BG、関東BG、有害大気汚染物質モニタリング地点におけるVOC濃度の観測値と計算値の比較を図15に示す。全てのVOCから抜粋して、アルカンのALK1、アルケンのETHENE、芳香族のBENZENEの値を示している。2022年10月から2024年3月までに行われた観測における濃度の平均値を縦棒で、標準偏差をエラーバーで表している。計算値のうち、中央の緑色が改良前、右側の赤色が改良後の値に相当する。また、改良後の値については、領域内部の排出量とd02、d04領域の外側からの輸送に起因する分を分けて示している。

改良前のALK1の濃度計算値は観測値に比べて大幅に低くなっている。ALK1は反応性が低く、日本BG地点においても比較的高い濃度が観測されている。その濃度観測値と計算値の違いから境界濃度と排出量を補正することにより、日本BG、関東BG、有害大気物質モニタリングの各地点において再現性が大幅に向かっていることがわかる。ETHENEについても、改良前は濃度計算値が過小評価となっている。反応性が比較的高いため、日本BG地点での補正の影響は小さいが、排出量の補正により、関東BGと有害大気物質モニタリングの各地点において、再現性が向上している。BENZENEも同様に、改良前は過小評価であったが、境界濃度と排出量の補正により、日本BG地点と関東BG地点において再現性が向上している。ただし、有害大気物質モニタリ

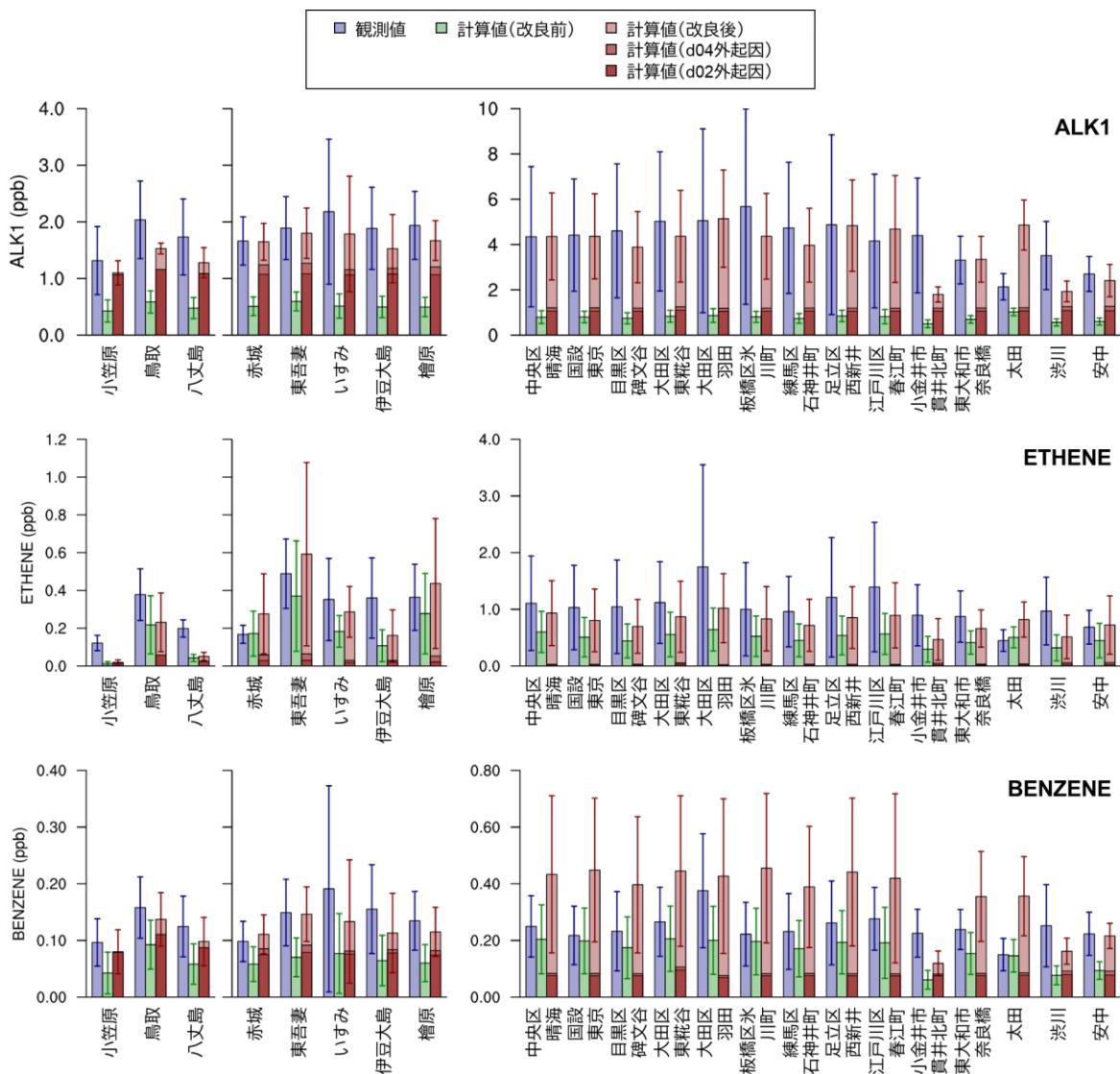


図15 日本BG、関東BG、有害大気汚染物質モニタリング地点におけるVOC濃度観測値と計算値（全観測平均値と標準偏差）の比較

ング地点においては過大評価となっている。対象領域内で一律に排出量へ補正を施したが、既存の排出インベントリにおいて排出量が都市部に過度に集中しているため、過大評価になったと考えられる。実際には都市部よりも郊外で排出量が不足している可能性が示唆される。

同様に、日本BG、関東BG、有害大気汚染物質モニタリング地点における優先取組物質の観測値と計算値の比較を図16に示す。全ての優先取組物質から抜粋して、クロロメタン（METHCHLORIDE）、トリクロロエチレン（CL3\_ETHE）、酸化エチレン（ETOX）の値を示している。クロロメタンと酸化エチレンについては、改良前の濃度計算値は極めて低かったが、本研究による改良により観測値と同等の値が計算されるようになっている。クロロメタンの濃度観測値の空間的・時間的な変動はかなり小さく、日本BG地点における濃度観測値と計算値の差分に基づく境界濃度の補正により、ほぼ全地点における濃度観測値が再現されている。一方、トリクロロエチレンについては、日本BG地点における濃度観測値は低いが、排出量の補正により、関東BGと有害大気汚染物質モニタリングの各地点において再現性が向上している。酸化エチレンについては、境界濃度と排出量の補正により、日本BGと関東BGの地点において再現性が向上している。BENZENEと同じく有害大気汚染物質モニタリング地点によっては過大評価となっているところもあり、排出量が都市部に過度に集中している可能性が示唆される。

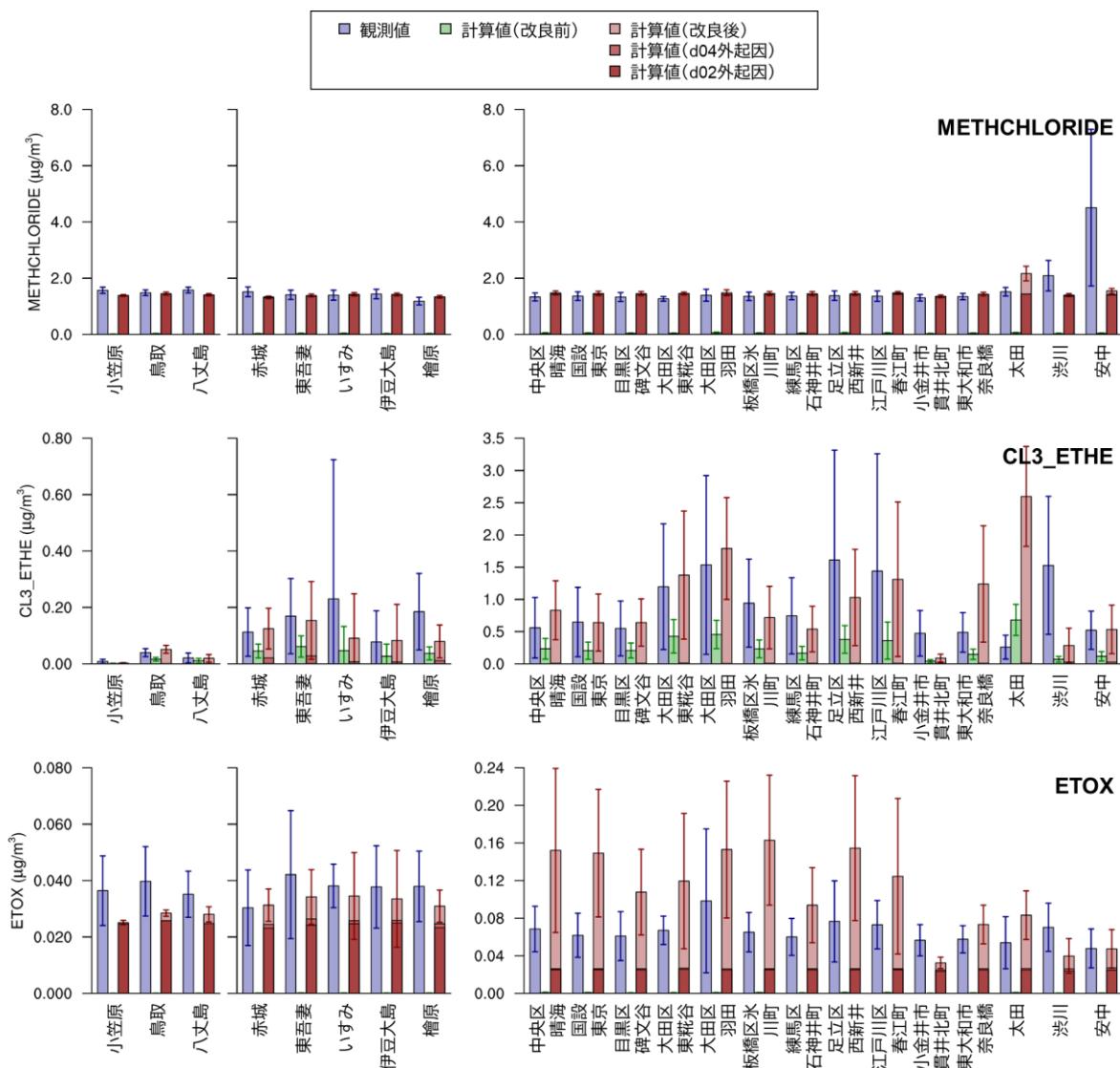


図16 日本BG、関東BG、有害大気汚染物質モニタリング地点における優先取組物質の濃度観測値と計算値（全観測平均値と標準偏差）の比較

大気質シミュレーションの改良によってVOCの濃度計算値が変わることにより、VOCを前駆物質とするオゾンの濃度も変化する。図17には、2022年10月から2024年3月まで平均した、d02領域とd04領域における改良前後のオゾン濃度計算値の水平分布とその差分を示す。オゾン濃度の変化はそれほど大きくなく、最大で2ppb程度となっている。境界濃度と排出量の改良は主に反応性が高くない成分に対して施しているため、結果としてオゾン濃度の変化幅も小さかったと考えられる。一般的に、大気質シミュレーションはオゾン濃度を過大評価する傾向にある。VOCの濃度再現性の向上によりさらに過大評価が拡大することになるが、その幅は小さく、オゾン濃度の再現性を大きく左右するものではないと考えられる。

2022年10月から2024年3月までにサブテーマ1が行った観測における濃度観測値と計算値の違いを基に、境界濃度と排出量に補正を施し、各成分の濃度再現性が向上した。同じ補正を施した大気質シミュレーションにより、2024年4月以降に行われた観測についても再現性の検証を行った。日本BGと関東BGにおける観測地点が追加されたが、新たに追加された地点における濃度再現性は他の地点と同等であった。本研究で施した大気質シミュレーションの改良が、他のBG地点においても有効であることが確認された。

改良後の大気質シミュレーションを用い、有害大気汚染物質モニタリング地点におけるVOC（図18）と優先取組物質（図19）の濃度計算値に対するd04領域外およびd02領域外からの輸送起因分を算出した。物質によって遠方からの輸送の影響が大きくなっている。VOCのうちALK1、ACETYLENE、BENZENEについては、d02領域外からの輸送が2割前後の寄与を有している。ACETONE、MEK、MEOHについてはd02領域外からの輸送がさらに大きく、5割前後となっている。アルデヒドについてはd04領域外かつd02領域内の寄与が比較的高くなっている。国内におけるアルデヒドとその前駆物質の輸送が影響しているものと考えられる。優先取組物質については、クロロメタン（METHCHLORIDE）のほぼ全量がd02領域外からの輸送による。また、クロロホルム（CHCL<sub>3</sub>）、酸化エチレン（ETOX）、1,2-ジクロロエタン（CL<sub>2</sub>-C<sub>2</sub>-12）、ジクロロメタンに対するd02領域外からの輸送の寄与が比較的大きくなっている。

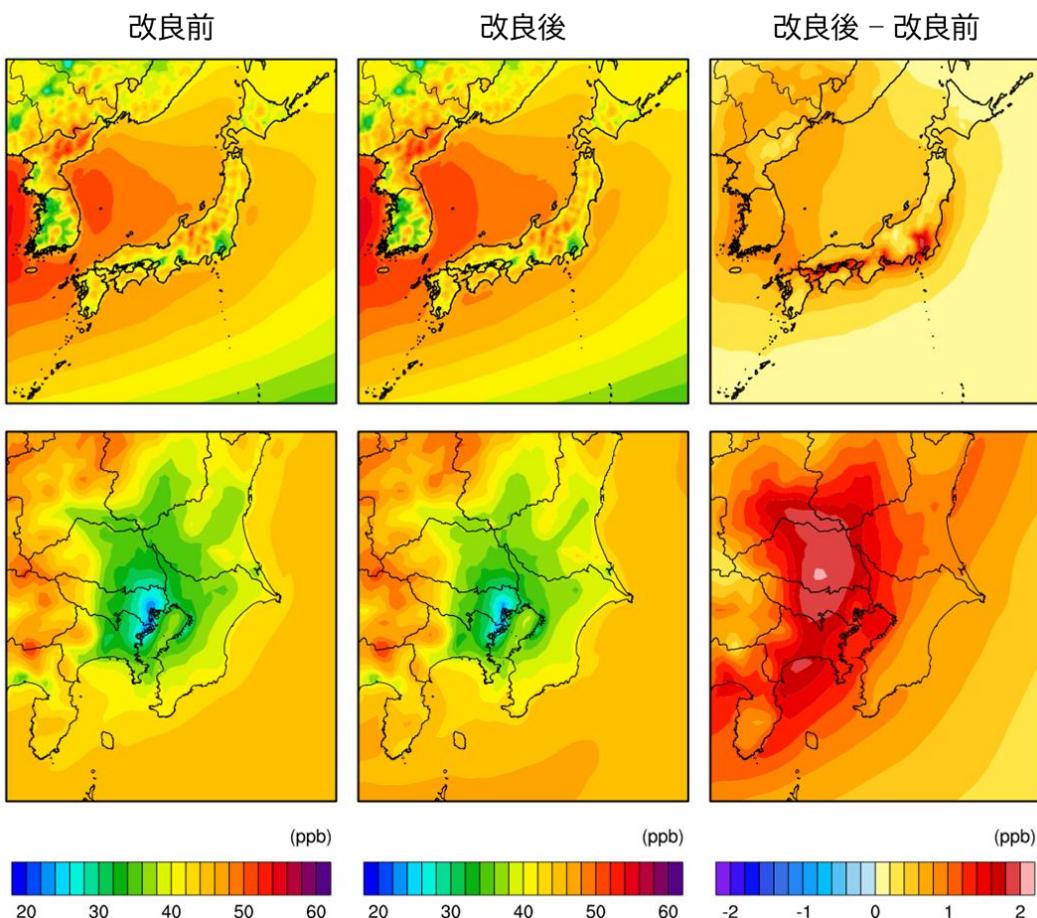


図17 大気質シミュレーションの改良前後での全期間平均オゾン濃度の変化

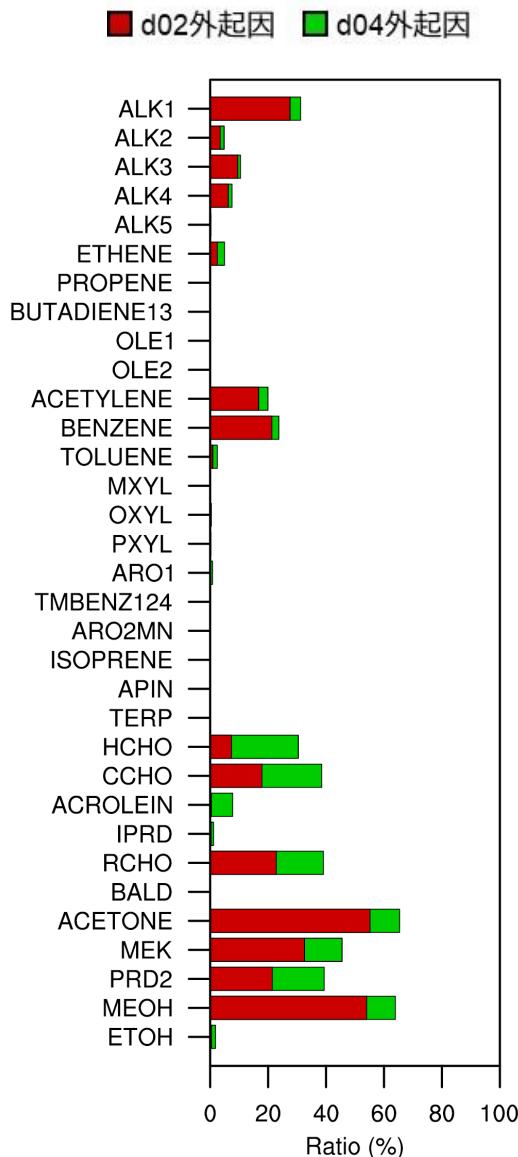


図18 有害大気汚染物質モニタリング地点におけるVOC濃度計算値に対する起因の寄与

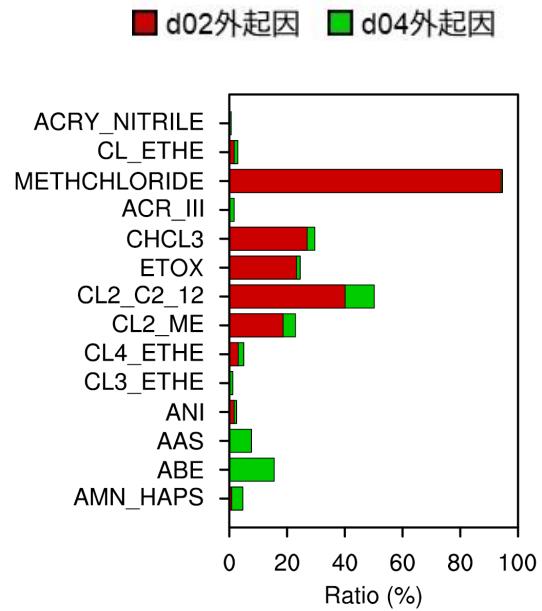


図19 有害大気汚染物質モニタリング地点における優先取組物質濃度計算値に対する起因の寄与

## 参考文献

- 茶谷聰, 國分優孝, 高橋和清, 星 純也. 2022. 東京都内におけるVOC個別成分濃度観測に基づく排出インベントリと大気質シミュレーションの検証, 大気環境学会誌, No.57, p35-52.
- 光崎純, 中井里史, 白砂裕一郎, 平野耕一郎. 2006. 拡散型サンプラーにおける理論的捕集速度の算出法の検討, 室内環境学会誌, No.9, p.1-15
- 長田和雄, 小山慎一, 大塚克弘, 星純也, 櫻島智恵子. 2023. VOCパッシブサンプラーのバッテリー駆動による自動切替装置の開発, 大気環境学会誌, No.58, p67-72

## 1. 5. 研究成果及び自己評価

### 1. 5. 1. 研究成果の学術的意義と環境政策等への貢献

#### <得られた研究成果の学術的意義>

サブテーマ1では関東平野内で観測されるVOC等の大気中化学物質濃度に対する関東平野内の排出による濃度の影響を評価するために、BG地点を選定し大気中濃度を観測してきた。本研究での観測は日本列島を取り囲む日本BGの3~6地点で観測を実施した。鳥取、八丈島、小笠原と1200km以上離れたBG地点で、150物質を対象に、同時に観測して季節変動を把握した観測例はなく、本研究で得た観測データはバックグラウンド濃度を理解する上で極めて貴重なデータである。また関東平野を取り囲む関東BGの地点5~9地点と、東京、群馬の都市域の13のモニタリング地点で同時に観測したデータを得ており、これもかつてない規模の関東での大気中化学物質観測データとなっている。これらの詳細なBG観測データから関東都市域へ影響を与えるBG濃度の寄与は物質によって大きく異なり、特に比較的寿命の長い炭化水素やハロゲン化合物等では、当初想定以上にBG濃度高いことを明らかにした。また、離島等の清浄大気においても濃度が季節変動する物質を明らかにした。さらに今後のモニタリングの有用なツールとなるパッシブサンプリングの適用性についても検証、整理できた。酸化エチレンについては有害性が高く、重要な大気汚染物質であるが、既存のパッシブサンプラーではBG観測が困難であった。しかし、本研究の中でBG等の低濃度地域のサンプリングに適用できる酸化エチレン用パッシブサンプラーを開発できたことは、学術的価値も高い。

サブテーマ2ではこれまでVOC個別成分濃度の再現性に課題のあった大気質シミュレーション改善を行った。VOCはオゾンやPM<sub>2.5</sub>の前駆物質として重要である。環境省は、VOCの排出量を削減するため、自主的取組などの政策を導入し、その進捗状況を確認するため、VOC排出インベントリを整備している。本研究で使用した排出インベントリも、環境省のVOC排出インベントリが基になっている。その排出インベントリを使用した大気質シミュレーションを実行してVOC濃度の再現性を検証することにより、VOC排出インベントリの検証を行うことが可能になる。同様に、有害大気汚染物質については、PRTR制度により、一定規模以上の事業所からの排出量データが収集されており、それ以外の発生源からの排出量についても推計されている。本研究においてPRTRの排出量を新たに組み込み、その検証が可能となった。成分毎に異なる再現性が明らかとなり、環境省のVOC排出インベントリやPRTRの問題点を抽出することができた。その知見は、排出インベントリやPRTRの精度向上にも貢献するものである。これまで、オゾンやPM<sub>2.5</sub>などの大気汚染物質に対しては大気質シミュレーションが広く活用されている一方、有害大気汚染物質についてはシミュレーションの活用例がほとんど見られない。本研究において有害大気汚染物質についても濃度再現性を検証し活用の可能性を示せたことは、学術的にも他に類を見ない貴重な成果であると言える。

#### <環境政策等へ既に貢献した研究成果>

特に記載する事項はない

#### <環境政策等へ貢献することが見込まれる研究成果>

本研究のサブテーマ1において多数のBG濃度を同時に継続的に観測したことによって、関東都市域での排出や削減効果を評価する上で必要な測定頻度や有用なBG地点を見出すことができた。これは今後、国や地方自治体でのVOCや有害大気汚染物質の排出削減対策の策定、削減効果の検証に必要となるデータを提示し、モニタリング計画を策定するための重要な知見となる。また、パッシブサンプリングの適用性についても検証、整理し、安価で簡易なモニタリング手法をBG観測でも利用できることを示したことは自治体等のBGモニタリングの幅を広げることに貢献すると考える。さらに、酸化エチレンについては、既存のパッシブサンプラーを改良し、BG等の低濃度地域のサンプリングにも適用できることを示した。これによって今後の酸化エチレン対策の策定に有用なツールを提供できたと考える。

VOCや有害大気汚染物質の観測データは限られているため、大気質シミュレーションの検証にもこれまで限界があった。既往研究では東京都内における再現性の検証が行われているが、他の地域における状況は不明であった。本研究において、サブテーマ1がバックグラウンド地点における観測を行い、その観測データを利用してサブテーマ2において大気質シミュレーションを改良することにより、濃度再現性を向上させ、VOCや有害大気汚染物質濃度に対する地域別の寄与を明らかにすることことができた。国内の発生源に対する有効な対策を立案するためには、大気濃度に対する発生源の影響を精度よく把握することが必要であり、本研究で確立した大気質シミュレーションは有用な手段になり得る。

今後、本研究で確立した大気質シミュレーションを活用し、排出インベントリやPRTRの精度向上に活用すると共に、有効な対策立案のための知見の導出に貢献することが期待される。

## 1. 5. 2. 研究成果に基づく研究目標の達成状況及び自己評価

<全体達成状況の自己評価> · · · · · 2. 目標を上回る成果をあげた<サブテーマ1 達成状況の自己評価> · · · · · 2. 目標を上回る成果をあげた<サブテーマ2 達成状況の自己評価> · · · · · 2. 目標を上回る成果をあげた

## 1. 6. 研究成果発表状況の概要

## 1. 6. 1. 研究成果発表の件数

成果発表の種別	件数
産業財産権	0
査読付き論文	4
査読無し論文	3
著書	0
「国民との科学・技術対話」の実施	5
口頭発表・ポスター発表	21
マスコミ等への公表・報道等	0
成果による受賞	0
その他の成果発表	2

## 1. 6. 2. 主要な研究成果発表

成果番号	主要な研究成果発表 (「研究成果発表の一覧」から10件まで抜粋)
1	長田和雄, 小山慎一, 大塚克弘, 星純也, 櫻島智恵子, 2023, VOCパッシブサンプラーのバッテリ一駆動による自動切替装置の開発, 大気環境学会誌, No. 58(3), p67-72, <a href="https://doi.org/10.11298/taiki.58.67">https://doi.org/10.11298/taiki.58.67</a>
2	Satoru Chatani, Kyo Kitayama, Syuichi Itahashi, Hitoshi Irie, Hikari Shimadera, 2023, Effectiveness of emission controls implemented since 2000 on ambient ozone concentrations in multiple timescales in Japan: An emission inventory development and simulation study, Science of the Total Environment, No. 894, 165058, <a href="http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.165058">http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.165058</a>
5	Shin Araki, Hikari Shimadera, Satoru Chatani, Kyo Kitayama, Masayuki Shima, 2024, Long-term spatiotemporal variation of benzo[a]pyrene in Japan: Significant

	decrease in ambient concentrations, human exposure, and health risk, Environmental Pollution, Volume 360, 124650, <a href="http://dx.doi.org/10.1016/j.envpol.2024.124650">http://dx.doi.org/10.1016/j.envpol.2024.124650</a>
7	星純也, 櫻島智恵子, 永妻はな子, 加藤みか, 齊藤伸治, 長田和雄, 熊谷貴美代, 亀屋隆志, 2025, 誘導体化固相捕集法を用いた大気中の酸化エチレンと酸化プロピレン濃度の測定-1週間連続採取法の評価とパッシブサンプラーの感度向上-, 大気環境学会誌, No. 60(6), p145-153, <a href="https://doi.org/10.11298/taiki.60.145">https://doi.org/10.11298/taiki.60.145</a>
22	櫻島智恵子, 星純也, 2024, 小笠原父島における大気中VOCのトレンド解析, 第65回大気環境学会年会
25	齊藤伸治, 2025, 大気中酸化エチレンの現状と今後の研究展望, 第4回環境化学物質合同大会
27	星純也, 櫻島智恵子, 長田和雄, 熊谷貴美代, 齊藤伸治, 鶴丸央, 永妻はな子, 岡田めぐみ, 舟久保千景, 小池有理子, 田子博, 茶谷聰, 2025, 日本列島及び関東地方のバックグラウンド地点における大気中 VOC の多地点同時観測, 第4回環境化学物質合同大会
28	茶谷聰, 星純也, 櫻島智恵子, 齊藤伸治, 鶴丸央, 熊谷貴美代, 田子博, 長田和雄, バックグラウンド地域での観測に基づく大気中 VOC・有害大気汚染物質濃度シミュレーションの構築, 第66回大気環境学会年会
29	星純也, 2024年1月12日, 都市域および都市のバックグラウンド地点における大気中VOC濃度について, 東京都環境科学研究所第29回公開研究発表会, 都民ホール（東京都新宿区）, 対面・Webハイブリッド開催, 参加者198名
33	熊谷貴美代, 2025年3月17日, 都市域およびバックグラウンド地点における大気中揮発性有機化合物の実態調査, 令和6年度群馬県衛生環境研究所・食品安全検査センター業績発表会, Web開催, 参加者110名

注：この欄の成果番号は「研究成果発表の一覧」と共通です。

### 1. 6. 3. 主要な研究成果普及活動

本研究課題での成果普及活動は学会等での発表も含め、合計で35件行った。特に、「国民との科学・技術対話」として、2024年1月に東京都環境科学研究所第29回公開研究発表会、2024年10月に日本環境化学会大気環境部会講演会、2025年3月に令和6年度群馬県衛生環境研究所・食品安全検査センター業績発表会など一般公開とした発表会を計5回開催し、合計585名の参加があり、本研究成果を広く伝えることができた。

### 1. 7. 國際共同研究等の状況

<国際共同研究の概要>

国際共同研究を実施していない。

### 1. 8. 研究者略歴

<研究者（研究代表者及びサブテーマリーダー）略歴>

研究者氏名	略歴（学歴、学位、経歴、現職、研究テーマ等）
星純也	研究代表者及びサブテーマ1リーダー 東京都立大学大学院理学研究科修了 博士（理学） 東京都環境局環境科学研究所研究員を経て、 現在、（公財）東京都環境公社東京都環境科学研究所気候変動・環境エネルギー研究担当科長 専門は大気環境科学、研究テーマは大気中VOCやPM2.5中の有機指標成分の測定、環境動態
茶谷聰	サブテーマ2リーダー 名古屋大学環境学研究科地球環境科学専攻博士課程（後期課程）修了 博士（理学） 豊田中央研究所研究員を経て、 現在、国立環境研究所主幹研究員 主に排出インベントリと大気質シミュレーションを研究

## 2. 研究成果発表の一覧

注：この項目の成果番号は通し番号です。

## (1) 産業財産権

成果番号	出願年月日	発明者	出願者	名称	出願以降の番号
	特に記載する事項はない。				

## (2) 論文

## &lt;論文&gt;

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ	査読の有無
1	2023	長田和雄, 小山慎一, 大塚克弘, 星純也, 櫻島智恵子, 2023, VOCパッシブサンプラーのバッテリー駆動による自動切替装置の開発, 大気環境学会誌, No. 58(3), p67-72, <a href="https://doi.org/10.11298/taiki.58.67">https://doi.org/10.11298/taiki.58.67</a>	1	有
2	2023	Satoru Chatani, Kyo Kitayama, Syuichi Itahashi, Hitoshi Irie, Hikari Shimadera, 2023, Effectiveness of emission controls implemented since 2000 on ambient ozone concentrations in multiple timescales in Japan: An emission inventory development and simulation study, Science of the Total Environment, No. 894, 165058, <a href="http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.165058">http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.165058</a>	2	有
3	2023	櫻島智恵子, 星純也, 永妻はな子, 長田和雄, 熊谷貴美代, 坂本祥一, 2023, パッシブサンプラーを用いたホルムアルデヒド等含酸素VOCの大気環境調査手法の検討, 東京都環境科学研究所年報2023, p46-47	1	無
4	2023	星純也, 櫻島智恵子, 永妻はな子, 長田和雄, 熊谷貴美代, 坂本祥一, 2023, バックグラウンド地域の大気中VOC観測におけるパッシブサンプラーの適用性の検討, 東京都環境科学研究所年報2023, p48-49	1	無
5	2024	Shin Araki, Hikari Shimadera, Satoru Chatani, Kyo Kitayama, Masayuki Shima, 2024, Long-term spatiotemporal variation of benzo[a]pyrene in Japan: Significant decrease in ambient concentrations, human exposure, and health risk, Environmental Pollution, Volume 360, 124650, <a href="http://dx.doi.org/10.1016/j.envpol.2024.124650">http://dx.doi.org/10.1016/j.envpol.2024.124650</a>	2	有
6	2024	星純也, 櫻島智恵子, 長田和雄, 齋藤伸治, 鶴丸央, 永妻はな子, 熊谷貴美代, 齋藤由倫, 2024, 日本列島のバックグラウンド地点における大気中VOCの年平均濃度および季節変化, 東京都環境科学研究所年報2024, p54-55	1	無
7	2025	星純也, 櫻島智恵子, 永妻はな子, 加藤みか, 齋藤伸治, 長田和雄, 熊谷貴美代, 亀屋隆志, 2025, 誘導体化固相捕集法を用いた大気中の酸化エチレンと酸化プロピレン濃度の測定-1週間連続採取法の評価とパッシブサンプラーの感度向上-, 大気環境学会誌, No. 60(6), p145-153, <a href="https://doi.org/10.11298/taiki.60.145">https://doi.org/10.11298/taiki.60.145</a>	1	有

(3) 著書  
 <著書>

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ
		特に記載する事項はない。	

## (4) 口頭発表・ポスター発表

## &lt;口頭発表・ポスター発表&gt;

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ	査読の有無
8	2022	星純也, 橋島智恵子, 齊藤伸治, 2022, 常時監視データを用いた関東地域のバックグラウンド地点の検討と伊豆大島におけるバックグラウンドVOC濃度の観測, 第63回大気環境学会年会	1	無
9	2022	茶谷聰, 北山響, 2022, VOC排出量の経年変化の要因解析とモデル入力データの構築, 第63回大気環境学会年会	2	無
10	2022	茶谷聰, 國分優孝, 高橋和清, 星純也, 2022, VOC濃度と個別成分割合の再現性によるオゾン濃度計算値への影響, 第63回大気環境学会年会	2	無
11	2023	星純也, 橋島智恵子, 長田和雄, 熊谷貴美代, 坂本祥一, 2023, バックグラウンド地域の大気中VOC観測におけるパッシブサンプラーの適用性の検討, 第2回環境化学物質3学会合同大会	1	無
12	2023	橋島智恵子, 星純也, 長田和雄, 熊谷貴美代, 坂本祥一, 2023, パッシブサンプラーを用いたホルムアルデヒド等含酸素VOCの大気環境調査手法の検討, 第2回環境化学物質3学会合同大会	1	無
13	2023	荒木真, 嶋寺光, 茶谷聰, 北山響, 2023, 機械学習モデルによるベンゾ[a]ピレンの日本全国における長期濃度分布推計, 第64回大気環境学会年会	2	無
14	2023	茶谷聰, 熊谷貴美代, 星純也, 2023, 領域化学輸送モデルによる有害大気汚染物質の濃度計算の検証, 第64回大気環境学会年会	2	無
15	2023	茶谷聰, 北山響, 板橋秀一, 入江仁士, 嶋寺光, 2023, 6種類の異なるタイムスケールによるオゾン濃度低減対策効果の評価, 第64回大気環境学会年会	2	無
16	2023	星純也, 橋島智恵子, 齊藤伸治, 鶴丸央, 熊谷貴美代, 坂本祥一, 長田和雄, 2023, バックグラウンド地域におけるVOC成分の濃度変動、第64回大気環境学会年会	1	無
17	2024	星純也, 橋島智恵子, 長田和雄, 齊藤伸治, 鶴丸央, 永妻はな子, 熊谷貴美代, 齊藤由倫, 2024, 日本列島のバックグラウンド地点における大気中VOCの年平均濃度および季節変化, 第3回環境化学物質合同大会	1	無
18	2024	熊谷貴美代, 星純也, 橋島智恵子, 齊藤伸治, 鶴丸央, 永妻はな子, 齊藤由倫, 友松瑛里, 小池有理子, 長田和雄, 2024, 関東平野およびそのバックグラウンド地点における大気VOC濃度の季節変動, 第3回環境化	1	無

		学物質合同大会		
19	2024	櫻島智恵子, 星純也, 齊藤伸治, 鶴丸央, 永妻はな子, 長田和雄, 熊谷貴美代, 齊藤由倫, 2024, バックグラウンド地域及び都市域におけるエタン等VOCの大気環境調査, 第3回環境化学物質合同大会	1	無
20	2024	熊谷貴美代, 星純也, 櫻島智恵子, 齊藤伸治, 鶴丸央, 齊藤由倫, 友松瑛里, 小池有理子, 田子博, 2024, 群馬県平野部および山間部における大気中VOCの通年観測, 第65回大気環境学会年会	1	無
21	2024	星純也, 櫻島智恵子, 齊藤伸治, 鶴丸央, 永妻はな子, 岡田めぐみ, 舟久保千景, 熊谷貴美代, 齊藤由倫, 長田和雄, 2024, 東京都における大気中酸化エチレン濃度のトレンド解析及びバックグラウンド濃度との比較, 第65回大気環境学会年会	1	無
22	2024	櫻島智恵子, 星純也, 2024, 小笠原父島における大気中VOCのトレンド解析, 第65回大気環境学会年会	1	無
23	2024	長田和雄, 星純也, 櫻島智恵子, 齊藤伸治, 鶴丸央, 熊谷貴美代, 齊藤由倫, 茶谷聰, 2024, VOCの越境汚染と日本のバックグラウンド濃度, 第65回大気環境学会年会	1	無
24	2024	茶谷聰, 星純也, 櫻島智恵子, 齊藤伸治, 鶴丸央, 熊谷貴美代, 齊藤由倫, 長田和雄, 2024, 領域化学輸送モデルによるVOC・有害大気汚染物質バックグラウンド濃度の再現性検証, 第65回大気環境学会年会	2	無
25	2025	齊藤伸治, 2025, 大気中酸化エチレンの現状と今後の研究展望, 第4回環境化学物質合同大会	1	無
26	2025	茶谷聰, 2025, 領域化学輸送モデルによる大気中VOC濃度予測, 第4回環境化学物質合同大会	2	無
27	2025	星純也, 櫻島智恵子, 長田和雄, 熊谷貴美代, 齊藤伸治, 鶴丸央, 永妻はな子, 岡田めぐみ, 舟久保千景, 小池有理子, 田子博, 茶谷聰, 2025, 日本列島及び関東地方のバックグラウンド地点における大気中VOCの多地点同時観測, 第4回環境化学物質合同大会	1	無
28	2025	茶谷聰, 星純也, 櫻島智恵子, 齊藤伸治, 鶴丸央, 熊谷貴美代, 田子博, 長田和雄, バックグラウンド地域での観測に基づく大気中VOC・有害大気汚染物質濃度シミュレーションの構築, 第66回大気環境学会年会	2	無

## (5) 「国民との科学・技術対話」の実施

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ
29	2023	星純也, 2024年1月12日, 都市域および都市のバックグラウンド地点における大気中VOC濃度について, 東京都環境科学研究所第29回公開研究発表会, 都民ホール(東京都新宿区), 対面・Webハイブリッド開催, 参加者198名	1
30	2024	星純也, 2024年5月24日, 光化学オキシダント低減に向けた大気中VOCの観測, 大気環境学会関東支部講演会における講演, 日本環境衛生センター東京事務所(東京都港区), 対面・Webハイブリッド開催, 参加者83名	1
31	2024	櫻島智恵子, 2024年10月25日, バックグラウンド地域及び都市域における大気中のVOC観測, 日本環境化学会大気環境部会講演会(推進費)	1

		3課題合同講演会), 早稲田大学西早稲田キャンパス(東京都新宿区), 対面・Webハイブリッド開催, 参加者179名	
32	2024	星純也, 2024年11月5日, 小笠原の大気中化学物質観測データから都市の大気汚染を評価する, 環境研究総合推進費研究報告会(研究成果の地元還元), 小笠原ビジターセンター新館ホール(東京都小笠原村), 対面開催, 参加者15名	1
33	2024	熊谷貴美代, 2025年3月17日, 都市域およびバックグラウンド地点における大気中揮発性有機化合物の実態調査, 令和6年度群馬県衛生環境研究所・食品安全検査センター業績発表会, Web開催, 参加者110名	1

## (6) マスメディア等への公表・報道等

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ
		特に記載する事項はない。	

## (7) 研究成果による受賞

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ
		特に記載する事項はない。	

## (8) その他の成果発表

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ
34	2022	東京都環境科学研究所NEWS No.40, 2022年6月, 環境研究総合推進費に採択されました, <a href="https://www.tokyokankyo.jp/kankyoken/wp-content/uploads/sites/5/2022/07/afc0e8fe226394ela61f9a2eda25690b.pdf">https://www.tokyokankyo.jp/kankyoken/wp-content/uploads/sites/5/2022/07/afc0e8fe226394ela61f9a2eda25690b.pdf</a>	1、 2
35	2023	東京都環境科学研究所NEWS No43, 2023年3月, 大気中化学物質のバックグラウンド調査, <a href="https://www.tokyokankyo.jp/kankyoken/wp-content/uploads/sites/5/2023/03/8b3defe4cdd33812d20e23b220d402ed.pdf">https://www.tokyokankyo.jp/kankyoken/wp-content/uploads/sites/5/2023/03/8b3defe4cdd33812d20e23b220d402ed.pdf</a>	1

## 権利表示・義務記載

特に記載する事項はない。

この研究成果報告書の文責は、研究課題に代表者又は分担者として参画した研究者にあります。  
 この研究成果報告書の著作権は、引用部分及び独立行政法人環境再生保全機構（ERCA）のロゴマークを除いて、原則的に著作者に属します。  
 ERCAは、この文書の複製及び公衆送信について許諾されています。

**Abstract****[Project Information]**

Project Title :	Improvement of Prediction Accuracy of VOCs and Related Pollutants by Identifying Background Concentrations and Advancement of Health Risk Assessment
Project Number :	JPMEERF20225M03
Project Period (FY) :	2022-2024
Principal Investigator :	Hoshi Junya
(PI ORCID) :	
Principal Institution :	Tokyo Metropolitan Research Institute for Environmental Protection Koto-Ku, Tokyo, JAPAN Tel: +81336991342 E-mail: hoshi-j@tokyokankyo.jp
Cooperated by :	National Institute of Environmental Studies, Nagoya University, Gunma Prefectural Institute of Public Health and Environmental Sciences
Keywords :	Background concentration, Air quality simulation , VOC , Hazardous air pollutants , Passive Sampler

**[Abstract]**

Atmospheric concentrations of chemicals in urban areas are influenced by emissions from anthropogenic activities within the urban area and by background (BG) concentrations, such as the advection of pollutants emitted outside the area and persistent substances. Therefore, BG concentrations are essential for accurately assessing regional pollution in urban areas. The study aimed to estimate accurate BG concentrations in the Kanto urban area, develop methods and conditions for monitoring BG concentrations, and improve the accuracy of model simulations using BG concentrations.

In Subtheme 1, atmospheric observations were conducted at nine Kanto BG sites to determine concentrations inflowing from outside the Kanto region and at six Japan BG sites to determine concentrations that are constantly present in the Northern Hemisphere or advected from outside the country. A maximum of 150 substances were studied per site, including volatile organic compounds (VOCs), ethylene oxide, and heavy metals. By comparing the observed data between the Kanto BG sites and the Kanto urban area, we found that some substances, such as long-lived hydrocarbons, had higher BG concentrations than expected. In addition, we identified substances whose BG concentrations fluctuated seasonally and locations affected by wind direction from urban areas and abroad. Based on these findings, we proposed the frequency and locations necessary for monitoring BG concentrations. We also investigated the conditions for using passive samplers—devices that collect air samples without a power supply—at low concentration levels in BG areas and developed sampling rates for 51 substances, including ethylene oxide.

In Subtheme 2, the data from the BG site observations in Subtheme 1 were used to improve the reproducibility of VOC concentrations, including hazardous air pollutants, through air quality simulation. The simulation was refined by incorporating new emissions reported in the Pollutant Release and Transfer Register (PRTR) and by using BG concentrations to correct the boundary conditions and emissions within the calculation area. As a result, the calculated concentration values, which were significantly underestimated prior to the improvements, aligned with the observed values after the modifications, thereby enhancing concentration reproducibility. Although the improved simulation did not significantly impact the calculated ozone concentrations, it enabled more accurate calculation of the concentrations of each VOC component, including hazardous air pollutants, and clarified the impact of their sources.

This study was supported by the Environment Research and Technology Development Fund of the ERCA ({JPMEERF}) funded by the Ministry of the Environment.