

2.2.7 無機化学物質分析・動態把握

(1) 研究開発領域の定義

本領域は、無機元素、微量元素、無機化学物質、およびヘテロ原子を含む低分子有機化合物の分析などを利用して、任意の元素や化学物質の環境動態把握や生態系の機構解明、あるいは物質循環機構解明などに取り組む分野の研究開発動向を含む領域である。必要に応じ、新規素材に係る無機、微量元素の分析、動態も対象に含まれる。環境化学の観点から特に関心の強い水銀、ヒ素など数元素の研究開発動向も記述する。その他、分析技術開発の動向、環境動態研究の動向、無機元素の動態において重要な役割を持つ微粒子分析などについて記述する。

(2) キーワード

物質循環、フラックス、微量元素多元素分析、重元素安定同位体比分析、個別粒子成分分析、粒子形成、化学的生物誘引作用、有害ガス状物質、微量ガス分析、水銀、ヒ素、大気粒子、発生源解析、多環芳香族炭化水素類、残留性有機汚染物質 (POPs)、誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS)、誘導結合プラズマ飛行時間型質量分析法 (ICP-TOFMS)、同位体、化学形態分析、加速器質量分析、PM_{2.5}、新型コロナウイルス

(3) 研究開発領域の概要

[本領域の意義]

無機元素と無機化学物質の物質動態研究は、生物の生存可能性を支えている現在の地球システムの理解、地球の歴史の解明、および人間活動が将来の環境へ及ぼす影響の評価に欠くことができない。これらの研究を発展させる鍵となるのは、新しい情報を与える分析技術の開発である。化学物質や元素の地球規模での循環や化学形態の変化は、環境中でのさまざまな化学反応や物質移動をともしなう。大気・水・土壌で新たに生成する化合物も多く、また環境中でその形態がさまざまに変化する。その状態によっては私たちの健康に影響を及ぼすものも少なくない。大気・水・土壌の間を循環する間に気象に大きな影響を与えたり生態系に関わったりもする。

環境中の化学物質や地球規模での物質循環の理解は、私たちの健康への影響や将来の地球環境を把握する上で意義が大きい。無機元素、微量元素の適切な活用と管理を進めるために、環境中での存在状況、ばく露量や蓄積量、生体や生態系への影響、また、環境中での輸送や動態を解明することに広範な社会・経済的および科学的意義がある。これらのため、環境に存在する化合物や元素の状態や形態、さらにはその変遷を把握するための分析技術が必要となる。また実験室での試料前処理・測定だけでなく、現場で逐次モニターすることも必要になる。

分析技術に関しては、特に近年は誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) を軸とする分析手法が発達し、過去には無かった高感度の分析が達成され微量元素の存在と動態が明らかになってきた。また、これを基礎として、複数手法を結合した分析がより実用的となり、例えば化学形態分析の知見の拡大に寄与してきた。安定同位体分析の高度化は水銀の分析をも可能とし、環境中の同位体組成から得られる多くの情報を基にして生物蓄積の機構などの理解を進展させた。粒子分析ではSingle Cell ICP-MS分析やエアロゾル質量分析法などにより細胞やナノ粒子の分析までが視野に入り、従来は得られなかった存在状況や動態の解明や、これらを基礎にした環境管理の進展が見られる。国・地域の観点では中国の技術的進歩が注目されている。

〔研究開発の動向〕

（研究開発の方向性）

依然として有害金属を中心とした微量元素の生体影響への関心が高い。一般的に、微量元素の生体影響メカニズムの研究が毒性学の分野で行われ、野生生物やヒト由来の試料（血液、尿、臓器、組織など）中の微量元素分析に基づくばく露量や蓄積量の研究が環境化学や分析化学の分野で行われる。それら生体内の量と各種影響指標との関連を探ることを通じて、実際の環境汚染がヒトや野生生物に影響を及ぼしているかを見極めることが行われる。したがってここでは生体試料の分析が主となるが、こうした目的で行われる生体分析は現在はICP-MSをベースとする分析法でほぼ占められている。

無機化合物の環境化学として古くから産業利用価値の高さと有害性のトレードオフで問題視されてきた水銀、ヒ素、鉛、カドミウムなどについては、継続的な研究報告がなされており、一部の新規有害元素（アンチモンなど）も研究が進んでいる。水銀に関しては水俣条約が地球規模の水銀の動態や影響に関する研究の強い背景となっている。国連環境計画の取組みと関連した新たな課題としては工業製品中の鉛やカドミウムが研究対象となっている。その他にはハイテク産業での使用量が多い希土類元素も研究対象となっている。更に福島第一原子力発電所事故以来、放射性物質の環境動態に関する研究報告が増加している。生体内の微量元素分析に関しては、多様な化合物に対応する分析手法の高度化が求められており、薬学分野などで大型のプロジェクトが進んでいる。ナノ粒子の研究なども手法開発が活発である。

無機元素の環境動態や生態系のメカニズムとの関係性に関しては、大気・水・土壌環境試料中の定量分析と同位体分析を組み合わせた観測的な研究の他、環境中あるいは生態系の中での元素の分配や形態変化速度、取込・排泄速度などに関する実験的研究が推進されている。またそうして得られた研究結果を考慮したモデル計算による現状再現および将来予測に関する研究も実施されている。これらに加えて、気候変動による無機元素の環境動態への影響や海底資源開発に伴う無機元素の動態変化、それらに伴う生物蓄積機構への影響を明らかにする研究も推進されている。

大気中の微小粒子状物質（PM_{2.5}）に関しては、まず大気汚染および気候影響の側面から問題視されていた硫酸エアロゾルに起因する大気粒子PM_{2.5}の発生量は、大気への硫黄放出量が制限されたことで減少傾向にある。その一方で、植物を起源とする揮発性有機化合物（BVOCs：Biogenic volatile organic compounds）が広大な森林から大量に発生していることが分かってきており、大雨や洪水など自然災害の頻度や規模の増大に間接的に寄与している可能性があることから、化石燃料の燃焼にともなう人為的な有機化合物に加えて注目されている。燃焼由来のPM_{2.5}に関しては、発がんなどに関わる有害物質が多く含有されることから、呼吸器系や循環器系の疾病との関連性を説明する原因物質や作用機序の特定が世界的な関心事項になっている。

一般的にウイルスはPM_{2.5}粒子よりも小さく、粒子状物質（PM）に吸着して大気中を輸送されやすくなることから、これらの複合体の大気内挙動と新型コロナウイルスの感染拡大との関連について、関心が高まっている。

（分析技術の概観）

分析技術に関しては、無機元素の分析技術の進歩により、微量元素化学量論、重元素安定同位体比、極微小領域情報という新しいパラメータが利用できるようになり、物質動態のより深い理解が進んでいる。重元素安定同位体研究は、地球環境科学の一大潮流となった¹⁾。この発展を導いたのは、2000年代に普及した多重検出型誘導結合プラズマ質量分析法（MC-ICP-MS）である。

従来、安定同位体比分析は、水素、炭素、窒素、硫黄などの軽元素に限られていた。しかし、MC-ICP-

2.2

俯瞰区分と研究開発領域 環境区分

MSによりほぼすべての元素のイオン化と同位体比精密測定が可能となった。安定同位体比は、その元素の起源により有意に異なる場合があり、また状態変化、化学反応、および生物代謝により有意に変動する場合がある。そのため濃度に加えて同位体比を測定すれば元素の動態をより詳しく調べることができる。微量元素の多元素分析もICP-MSなどの分析機器の進歩に基づいている。他方、多くの場合、主要成分が測定を妨害するため、目的成分の分離濃縮が必要となる。しかしその分離濃縮のための前処理技術も最近大きく進歩し、高選択的かつ簡便迅速となった。結果として多くの微量元素のビッグデータとそれに基づく化学量論的解析が利用可能となった。極微小領域の分析には、加速器-蛍光X線法、二次イオン質量分析法 (SIMS)、レーザーアブレーション (LA)-誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) などが可能な先端的な装置が用いられる。この分野の装置開発もめざましく、感度 (1 pptレベルまで) と空間分解能 (数nmまで) の向上、イメージングや時間変化の観測技術の進歩が進んでいる。さらにナノ粒子の分析と計数、個々の細胞の分析を可能とする普及型ICP-MS装置も現れた。

個別の分野ごとで見ると、ppt (10^{-12}) ~ ppq (10^{-15}) レベルの濃度で環境中に存在している無機元素の化学形態別の分析を可能にするための試料前処理技術の開発が進められている。例えば、スチルレンジビニルベンゼンポリマーを用いて、海水や排水などのマトリックスが複雑な試料から分析対象元素を選択的に濃縮したり、海水中に極微量でしか存在していない有機金属を濃縮したりする分析前処理技術がある。また、ゲル薄膜中の元素の拡散移動を利用した薄膜拡散勾配 (Diffusive Gradients in Thin-films) 法を用いることによって、水や底質中に存在する無機元素の中で、生物が利用可能な化学形態であったり、反応性が高い無機元素の化学形態だけを、現場で採取することが可能となっている。これまでの薄膜拡散勾配法は、亜鉛や銅、ニッケル、カドミウム、そして鉛の分析が中心であったが、近年、ヒ素やリンなどの半金属元素の現場サンプリングや、水銀の分析方法も確立されており、現在は海水中のほとんどの微量金属や希土類元素の同位体分析が可能となっている²⁾。またこうした分析により明らかとなった動態を考慮したモデルの開発も進んでいる。それによって局所スケールや地域スケールでの動態予測が可能になってきている。

生態系機構の把握・予測を目指す分野においては、軽元素安定同位体分析技術によって食物網を数値化することが可能になり、栄養段階を介した無機元素の蓄積動態を予測することが可能になってきた。現在は、生物蓄積の予測では排出速度などの考慮が必要との認識が高まっている。そこで生物による有害元素などの取込・排出の速度や成長速度を考慮して蓄積濃度を予測するような生物エネルギーモデルの開発が進められている。ただし生物エネルギーモデルの開発を進める上では生物種ごとの各種速度を実験や観測を通じて明らかにする必要があるため、分析技術の高度化とモデルの精緻化の両方の推進が必要とされている。

また複雑な化学反応や過渡的な状態を含めて環境動態を把握するには、時間的・空間的に連続した現場観測が必要であり、より高感度で小型高性能な分析デバイスや形態分析法の開発が進められている。広域での化合物の分布を調べるには、衛星観測機器の利用も進み、経年トレンドの把握に活用されている。

粒子分析装置の開発では可測下限粒径が下がってきており、ガスと粒子の境界に近い粒径1 nm以上からの粒径分布が計測可能な装置が近年市販された^{3), 4)}。今後、大気中の二次生成粒子や燃焼排気ガス中の超微小粒子の研究などに活用される見込みである。

近年、質量濃度基準に加えて個数濃度基準の規制が増えてきている。これは粒径100 nm以下の超微小粒子の健康リスクが懸念されていることが重要な背景となっている。欧州標準化委員会CENで大気環境中の個数濃度の測定標準法が制定されたことから、欧州においては、屋内・屋外の環境で、より小さい粒子も規制対象としていく趨勢である。

PMは多種多様な化学成分で構成されているが、個数、粒径などの物理計測に比べると化学成分測定に関

する科学的知見の蓄積は弱い。そのような中、エアロゾル質量分析法や、先駆的なPM捕集・導入部と化学イオン化質量分析法とを組み合わせた装置の開発などにより、高時間分解能化、高感度化を達成し、時間変化する現象に対しても技術的に追えるようになってきている。

なお粒子分析では、個数計測装置の開発における粒径の可測範囲の小粒径化は海外メーカにおよばないが、日本は装置の小型化を達成している⁵⁾。化学成分測定の実オンライン化に関しては主要なPM成分についてのセミアンライン装置の開発⁶⁾が進み、粒子を含んだ試料空気をアルゴンガスに置換するガス交換器の開発⁷⁾や、それとICP-MSあるいはICP-TOFMSを組み合わせた元素の実オンライン測定の実試み⁸⁾がされており、研究や行政調査で活用されている。海外メーカ製の市販の実オンライン測定装置は高価なため日本国内では他国と比べてユーザが増えていない。

(4) 注目動向

[新展開・技術トピックス]

・微小試料の分析

生成した原子蒸気を誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) に導入して元素濃度・同位体比を測定するレーザーアブレーション (LA) - 誘導結合プラズマ飛行時間型質量分析法 (ICP-TOFMS) は、レーザーアブレーションにともなって発生する原子発光や分子発光を同時に観測できる装置との併用により、その場の元素濃度や分子状態についての情報が得られるようになった。具体的にはレーザー径を絞って位置分解能を上げ、TOFMSを使用して微小試料からの過渡的信号を効率よく取り込むことで、個別細胞レベルの微量元素分析が可能となっている。193 nm ArF レーザーでビーム径 4μm に絞り、1 ~ 1.5 J/cm² のエネルギー照射により、細胞一つ一つから元素シグナルを得ることが行われている⁹⁾。微小領域の高分解能な微量元素マッピングも可能になっている。

Single Cell ICP-MS はナノ粒子など環境微粒子の分析法である Single Particle (sp) ICP-MS を生体試料に応用したものといえる。細胞一つ一つをネブライザー経由でアルゴンプラズマに順次導入し、得られる過渡的なシグナルを検出する。Single Cell として細菌や藻類などへの適用がある。

高分解能型マルチコレクター誘導結合プラズマ質量分析法 (MC-ICP-MS) は、質量分解能 5,000 以上において、感度を損なうことなく、フラットトップピークでの高精度同位体比測定を可能にしている。またナノスケール領域の成分分析が可能な二次イオン質量分析法 (Nano-SIMS) は、空間分解能 50 nm 以下かつ高感度 (ppb まで) で 2 次イオン像観察を実現している。安定同位体比測定は、数十 ppm の再現性で可能となっている。

・加速器質量分析 (AMS) によるトレーサー研究

AMS による放射性炭素同位体 (¹⁴C) 測定は、年代測定や環境汚染物質の起源推定だけでなく、¹⁴C でラベルしたさまざまな物質の体内動態の解明や毒性メカニズムの探索にも使用されてきた。液体クロマトグラフィー質量分析法 (LC-MS) と AMS を組み合わせた Parallel Accelerator and Molecular Mass Spectrometry (PAMMS) が提唱され、実験動物だけでなくヒトへの投与によって、がんの転移、薬物や有害化学物質の体内動態などの研究に使用されるようになってきている。一方、近年キャビティリングダウン分光法 (CRDS) が、AMS より安価で、より簡便な ¹⁴C 検出法として注目を浴びるようになり、生物の代謝研究に適用されるようになってきている。

• 低コスト粒子状物質（PM）センサとAIの活用

1,000ドル以下でPM濃度を測定できる低コストPMセンサが国際的に注目されており、各国で開発が行われている¹⁰⁾⁻¹²⁾。この低コストPMセンサを活用した市民参加型活動¹³⁾やICT活用による多地点・高時間分解能のビッグデータをAI技術と組み合わせることで、従来と全く異なる原理によってPM濃度予測ができる可能性があるとして、期待が高まりつつある。

• 化学形態別分析の進展（水銀、ヒ素）

水銀は化学形態で毒性や動態が変化するため、形態別分析法の開発が重要な課題である。クロマトグラフィーを用いた分離法や、大気・水のサンプリング技術で改良が進んでいる¹⁴⁾。X線を用いた非破壊分析も発展してきている。放射光X線を用いたX線吸収微細構造法（XAFS）は、環境中微量元素の強力な化学形態分析法として国内外で広く用いられてきたが、水銀への応用は限定的だった。近年、蛍光X線を検出する際のエネルギー分解能を高めることで、X線吸収端近傍（XANES）領域から従来よりも詳細な化学形態を得られる手法が開発された。現在この手法による分析はEUの放射光施設（ESRF）の独壇場だが、国内でも一部のグループが技術開発を進めている。

ヒ素については、自然由来の揮発性化学種が生成され、大気を介した地球化学的循環に寄与することが、2000年代終盤以降報告されてきた。その後も観測研究が進み、海洋生物において様々な有機ヒ素化合物が同定され、その動態や化学形態変換の機構などが明らかになってきている。

• 水銀の環境動態に係る研究

水銀の主要な蓄積者と考えられている外洋の回遊魚を対象とした、水銀濃度の規制要因に着目した研究が、地球化学者・海洋学者・生態学者の共同により進められている。Argo計画などで得られた大規模海洋観測データやバイオリギング技術の発展が、この分野の研究の進歩に寄与している¹⁵⁾。また、多媒体モデルの進化によって、気候変動によって海産物中の有害金属濃度がどの程度変動するか予測した結果¹⁶⁾や、全球の多媒体輸送を解析するモデル開発の成果¹⁷⁾が報告されている。その他、これまでヒトのメチル水銀の摂取源は主に魚介類の摂食だと考えられていたが、一部の地域においては水田米からも摂取していることが明らかになってきた。

光酸化反応によって引き起こされる偶数同位体の非質量依存同位体分別効果を用いて、大気由来水銀を起源とした生態系への水銀蓄積を明らかにする研究が進められている。なお鉄、銅、亜鉛などの生体にとっての必須微量元素については、生体内の代謝過程での分別に基づく同位体比の変動が見いだされており、栄養状態や疾患などによる代謝の変動を同位体比から把握する試みが続けられている。

• アンモニア（NH₃）の大気中濃度の増大

中国におけるNH₃とNO_xの発生量が年々増えていることが明らかになってきた¹⁸⁾。1980年以降の30年間で、NH₃は6kg N ha⁻¹ y⁻¹から12kg N ha⁻¹ y⁻¹になり、NO_xは1.5 kg N ha⁻¹ y⁻¹から5 kg N ha⁻¹ y⁻¹に増大した。米国でのNH₃の発生は30%が肥料、54%が畜産関係からとされているが、こちらも年々増大している¹⁹⁾。

NH₃の大気濃度の増大は農業が主たる原因とされているが、日本における大気中NH₃濃度の上昇の原因はよく分かっていない。一方、NO_xは燃焼由来である。日本における窒素の沈着量は上昇傾向にあり²⁰⁾、湖沼や閉鎖性海域の富栄養化にもつながると懸念されている。

pptオーダーのNH₃とHNO₃による新粒子形成が発見された²¹⁾。NH₃とともにアミン類も大気に放出され

るが、アミン類は NH_3 以上に粒子形成への寄与が大きいことがわかってきており²²⁾、これらの大気化学に関する研究や観測がさらに展開されると期待されている。

• 生物起源有機化合物 (BVOCs : Biogenic volatile organic compounds) の分析

BVOCsは、オゾンなどのオキシダントを増幅するとともに、後段で示すように大気化学反応により酸素官能基や窒素官能基を含む化合物となり、粒子形成やその二次粒子への変遷に寄与していることが理解されてきた。また温暖化と降水量の増加により、BVOCsのほか NH_3 や還元性硫黄化合物の発生量も増大している。これらBVOCsや揮発性無機化合物の発生量の増大が雲の発生を促し、大雨や洪水など自然災害の頻度や規模の増大に間接的に寄与している可能性があるとされている。こうした状況を受け、BVOCsのフラックスの分布の把握が進められつつある。またBVOCsや無機系気体成分から二次生成する極性低分子有機化合物の粒子形成能について、大気粒子を模したバルク液体を用いるフラスコ実験、および粒子と反応ガスを導入して生成物や粒子を計測するチャンバー実験などが行われている。計算化学による研究も進められている。しかし、このような模擬実験やシミュレーションに比べて、実際の大気の実態の報告は途上段階にある。大気中の濃度が極微量であることに加え、多くの物質が過渡的に生成する化学種であること、捕集濃縮が難しいことなど、克服すべき課題が複数存在する。

BVOCsから二次的に生成するホルムアルデヒド、グリオキザール、メチルグリオキザールなどのカルボニル類は吸湿性粒子に取り込まれてオリゴマー化する。また NH_3 などの窒素成分と反応してイミダゾール化合物となり、ブラウンカーボン大気粒子（光吸収性有機エアロゾル）の成分となる。これらO原子やN原子を含む有機化合物は二次生成粒子（ナノ粒子）の形成にも寄与している。

広葉樹から発生するBVOCsの代表といえるイソプレンは、大気化学反応によりIEPOXと呼ばれるエポキシジオール化合物になり、吸湿性大気粒子に取り込まれて有機二次生成粒子（SOA）の形成に寄与する。世界各地での観測から、IEPOXに基づくSOAは全SOAの30%を占めるといわれ、IEPOX関連化合物の化学とその影響が注目されている。

• 燃焼由来PM_{2.5}、人為起源有機化合物 (AVOCs) および凝縮性粒子の排出量推計、エイジング（変質）過程の解明および発生源解析法開発

PM_{2.5}の主要成分である有機エアロゾルなどに対応するオンライン測定法が開発されたことにより、燃焼発生源から排出されるVOCだけでなく凝縮性粒子（IVOC、SVOC）や粒子（LVOC、ELVOC）は、大気中から除去されるまでの間に、大気中のオキシダントなどと反応して変質することが明らかになった²³⁾。なかでも凝縮性粒子は、従来把握されていなかった一次粒子の発生源であるとともに、二次粒子の重要な前駆物質であることが明らかになった。この発見により、発生源におけるPM排出係数を変更することによる排出インベントリの改善、大気質モデルによる濃度予測の新たな考慮などの課題が新たに生じるようになった。また従来は大気中二次生成粒子を扱う実験は主に光化学チャンバを用いて行われてきたが、フロー式反応器が米国と欧州でそれぞれ開発され、それを用いた実験的研究やモデル研究が近年大きく進展している^{24), 25)}。

大気中の有害物質の発生源解析法としてレセプターモデルと呼ばれる手法が知られているが、施設毎に多くの無機・有機物質の発生情報（インベントリ）を必要とし、燃焼由来PM_{2.5}の情報も限られている。またPM_{2.5}に含まれる代表的発がん物質である多環芳香族炭化水素（PAH）類の発生源解析にはPAH組成の違いに基づく方法が汎用されているが精度は高くなく、寄与率も求めることができていない。そこで最近では、PAHとそのニトロ体（NPAH）の比が燃焼温度に基づいて大きく変化する原理に基づいて燃焼由来粒子

(煤)の発生源とその寄与率を求める方法が開発された。従来法よりも簡便で精度も高いことから注目されている²⁶⁾。またこの原理を燃料由来PM_{2.5}以外の発生源解析にも展開しようとする動きもある。

• PM_{2.5}と疾患との関連性解明

大気中PM_{2.5}濃度は死亡者数との関連性が明らかとなっており、多くの国の大気環境基準に含まれている。日本ではPM_{2.5}と呼吸器系疾患との関連性が早くから疫学研究で確認されていたが、最近は黄砂と循環器系疾患との関連について裏付けが報告され、大気粒子に含有される化学物質と咳症状との関連も報告されている。

現行の環境基準に定められているPM_{2.5}の測定は粒子の大きさ(直径2.5μm以下)のみに基づいて質量を計測しているため、有害性を発現する本体を計測していないという点が課題とされている。PM_{2.5}は自然由来粒子(黄砂は代表的)と人為由来粒子(主に燃焼粒子)に大別され、発がんなどに関わる有害物質の多くは後者に含有される。PM_{2.5}に含まれる代表的な発がん物質としては多環芳香族炭化水素(PAH)類とそのニトロ体(NPAH)が知られているが、PAHの水酸化体(OHPAH)やキノン体(QPAH)類にも内分泌かく乱性や活性酸素種産生作用などが見出されて以来、動物だけでなくヒトの健康に及ぼす影響についても研究が行われるようになってきた。

こうした大気中の有害有機化合物のうち、WHOが参考値を定め、いくつかの国も環境基準や参考値を定めているのはベンゾ[a]ピレン(BaP)のみである。発がん性が確認されている他のPAH類とその他の酸化誘導体については基準などが定められておらず、発生源規制や疾病対策の観点からは大きな課題と認識されている。我が国では以前からBaPが中央環境審議会の優先的に取り組むべき有害化学物質の一つに定められているものの大気環境基準/指針は定められていない。最近、BaPに加えて関連化合物をどこまで対象にするか、またその測定法の検討が開始された。これらの有害化学物質についてはどこからどれだけ出ているかを把握し発生源規制や疾病対策へ活用すること、またそのための手法開発も課題となっている。

• 硫黄化合物ジメチルスルフィド(DMS)による硫黄、鉄、炭素の循環への寄与

海洋で生成する硫黄化合物ジメチルスルフィド(DMS)は大気に放出され海洋上空での大気粒子形成や雲凝結核として海洋気象に大きく影響する。またDMSが誘引する海洋動物の捕食活動が、高緯度海洋での大気・表層水・深層水にまたがる「硫黄、鉄、炭素」の循環に寄与している可能性が指摘されている²⁷⁾。海洋生物がマイクロプラスチックを捕食するのはプラスチック表面を覆った藻がDMSを生じるためであるという指摘もあり^{28), 29)}、DMSの高感度なモニタリングに関心が向けられている。

• 粗大粒子の再注目(大気中マイクロプラスチック・タイヤ粉じん・ブレーキ粉じん)

大気中にもマイクロプラスチックが存在するという報告例^{30), 31)}が出始め、タイヤ・ブレーキ粉じんもマイクロプラスチックの文脈で議論されている³²⁾。大気中マイクロプラスチックは従来のPM研究対象からすると大きな粒子で呼吸器経路のばく露量は体内沈着効率を考慮するとそれほど多くないと考えられているが、マイクロプラスチックよりも小さな微小プラスチックも存在しうるため、動向が注目されている。

• 新型コロナウイルスの拡散と大気の関連性解明

2020年から世界的に流行した新型コロナウイルス感染症に関して、地域間での感染率の大きな差が注目されている。感染経路としては飛沫感染が中心と考えられているが、ウイルス自体あるいはその関連タンパク質はPM_{2.5}粒子よりはるかに小さく、これらが粒子に吸着して複合体となれば大気中を輸送され易くなる。実際

に大気中のエアロゾルには様々な微生物が存在しているが、大気環境と感染症との関連性には未解明な部分が多い。そのため大気中を運ばれた複合体の挙動や、それら複合体と感染との関連性に対する関心が、本研究開発領域でも高まっている。感染症学や疫学と大気環境学との融合が新たな展開として期待されている。

[注目すべき国内外のプロジェクト]

• GEOTRACES 計画

国際共同研究計画 GEOTRACES は 2000 年代後半に始動した。この計画は、世界中の研究者が協力して重要な微量元素・同位体 (TEIs: Trace Elements and Isotopes) (キーパラメータは Al、Mn、Fe、Cu、Zn、Cd) の全海洋における分布を明らかにし、TEIs の分布を支配する過程やフラックスを評価し、環境変化に対する TEIs の応答を解明することを目的としている。GEOTRACES 計画によって、外洋海水を用いる TEIs 分析法の国際相互較正が初めて実現し、世界の海洋で海盆規模の詳細な鉛直断面観測が始まった。2018 年には、これまでの成果をまとめた二つめの Intermediate Data Product (IDP2017) が公表された。現在、化学海洋学は一大変革期にあり、GEOTRACES 計画は今後 3 年ごとに 2 回 IDP を公表し、その 3 年後に最終とりまとめを行う予定としている。1970 年代に実施された国際共同研究計画 GEOSECS は、放射性核種や栄養塩元素などの全海洋における分布を明らかにし、地球の生存可能性を支えている海洋大循環と海洋生物地球化学サイクルの基本的理解を導いた。GEOTRACES 計画は残りの期間で重元素安定同位体比、微量元素化学量論などの新しいビッグデータを生みだし、地球システムの理解を飛躍的に深めると期待されている。

• EMEP (European Monitoring and Evaluation Programme)、AMAP (Arctic Monitoring & Assessment Programme)

国際越境大気汚染条約 (LRTAP 条約) また北極協議会 (Arctic Council) により実施されている研究、モニタリングプログラムであり、大気および極域の観測において重要な役割を果たしている。

• エアロゾル質量分析計などを利用したオンライン観測網 Chemical On-Line cOmpoSition and Source Apportionment of fine aerosol (COLOSSAL) プロジェクト

欧州科学技術研究協力機構 (COST) の支援で行われているプロジェクトの一つ。欧州全体のエアロゾル化学成分の空間的・時間的変動から発生源を一貫して評価することを目的としており、欧州をはじめ世界の多くの研究グループが、近年開発されたオンライン測定装置で大気観測を行っている。成果はモデル研究者や政策立案者に提供され大気中濃度予測の精緻化などに活用される。

• 欧州原子核研究機構 (CERN)

スイス・ジュネーブの欧州原子核研究機構 (CERN) では大型実験設備 (Cosmics Leaving Outdoor Droplets: CLOUD) でさまざまな実験が行われ、二次生成粒子や大気化学反応に関する物理的・化学的な研究が推進されている²¹⁾。

• 富士山測候所における継続的な観測

高層大気・自由対流圏における化学物質の推移をはかるために、年間延べ 400 名の研究者が標高 3,776 m にある気象庁の富士山測候所を利用し観測を行なっている。本観測に関連する論文や学会発表もデータベース化されている³³⁾。しかし 2020 年度は新型コロナウイルス感染症の影響で富士山自体が入山禁止となっ

て観測が滞り、施設の維持にも困窮している。

- 細胞外粒子に起因する生命現象の解明とその制御に向けた技術基盤の創出（CREST）（2017年度～）

JSTのCREST「細胞外粒子に起因する生命現象の解明とその制御に向けた技術基盤の創出」領域の採択課題の1つにおいてPM_{2.5}および含有PAHなどのばく露と疾病との関連に関する研究が進められている。なおNPAH、PAH酸化体に関しては別途研究が行われており、わが国の研究グループが世界をリードしている^{34), 35)}。

（5）科学技術的課題

- エアロゾル分析におけるオンライン測定のための課題

オンライン測定法的一种であるエアロゾル質量分析計では化学成分別の粒径分布の測定が可能だが、PMの導入口である空気力学レンズにおける粒子拡散の影響により粒径50 nm以下の粒子の測定は現状では困難となっている。また反対に粒径2.5 μm以上も臨界オリフィスのピンホールの制約上、通過しない。これらを克服するための可測粒径幅の広域化が課題となっている。また、フラグメンテーションが起こりにくい化学イオン化質量分析法によりPM測定をするためには前処理（捕集・イオン化）が必要であったため、セミオンライン止まりだったが、PMも1Hz程度の時間分解能で計測可能となる装置が2019年に開発された。ただし現状では、測定対象に合わせて溶媒を使い分け、溶解する成分に限った測定である。究極的には乾式でソフトイオン化して測定できるオンライン測定装置の開発が望まれている。

- PM_{2.5}の測定・分析技術

PM_{2.5}/エアロゾル抽出物についての遺伝子解析などから微生物の存在は確認されているが、由来を推定することはできていない。感染症原因微生物や関連タンパク質の存在とそれらの大気輸送との関連性が明らかになれば、PM_{2.5}/エアロゾル抽出物の迅速分析装置開発へのニーズが高まる可能性がある。

PM_{2.5}の捕集・計測とPAH、NPAH測定を結合した装置は発生源解析に有効であるものの、その開発は進んでいない。

- ナノ粒子やマイクロプラスチックなどの新たな課題

金属ナノ粒子やマイクロプラスチックの環境中での動態解明のためには、ピコからナノスケールの懸濁物質近傍の無機元素の環境動態を研究する必要性が認識されている。また大気中マイクロプラスチックを測定するためには、前処理が煩雑であるため、簡便な新手法の開発が急務と考えられている。更にPMのオンライン化学成分測定法が応用できれば有用と見られている。

- 水銀に関する課題

大気中水銀の形態別分析システムの精緻化が一つの重要な課題となっている。Tekran社やPS Analytical社製の連続自動分析装置が普及しているが、反応性の高いガス状水銀（RGM）の定量性については疑問が呈されている。RGMはガス状水銀の中ではマイナーな成分だが大気からの沈着フラックスを推定するうえで重要な成分とされている。

海洋では、海水中メチル水銀の高精度データを出すことのできる機関を増やしていくことが課題となっている。GEOTRACES計画のような信頼性の高いデータを取得する仕組みがさらに必要とされている。

X線吸収近傍構造 (High energy resolution (HER-) XANES) 分析については、他の分析では得られない貴重な知見が得られるという評価がある一方で、その定性性について疑問が呈されるケースもある^{36), 37)}。同手法の解析法について客観的な評価ができる専門家の育成を北米やアジアの研究者コミュニティで進めることが課題となっている。

水銀安定同位体比は、高度な分析技術を必要とすること、濃度情報と比較して直感的な解釈が困難であることから大規模なモニタリングの測定に組み込まれることは少ない。しかしばく露源解析、将来の気候変動の影響の予測、現在の環境動態や生態系機構の理解・モデル化などに有用である可能性があり、更なる実験的・観測的研究が必要とされている。

• ヒ素に関する課題

地下水のヒ素汚染は全世界的な課題であり、汚染地域の報告例も年々増加している。全容を把握するためには、その機構や空間分布についてのモデル化が必要となる。スイスETHのグループは2000年代後半以降に統計モデルを用いたりリスクマップの作成に取り組んでいるが、モニタリングデータの充実を受けて、より成熟したモデルが構築されつつある。ヒ素汚染地下水は分布の空間的不均質性が大きな特徴であり、ヒ素の統計モデルのエキスパートが文化圏ごとに育成されることが好ましいと考えられている³⁸⁾。

飲料基準値の低減に関する議論があるが、ヒ素の飲料基準はコストベネフィット分析に基づき設定されており、今後さらに1μg/Lレベルのヒ素の検出が求められた場合には簡易な計測法では困難であり、高感度分析法へのニーズが高まる可能性がある。

近年では、家畜の飼料として海藻の活用が進んでいるが、海藻が高濃度のヒ素を含むため、家畜への影響が懸念され、関連する研究が進められている³⁹⁾。日本が世界有数の海藻産国であることから、重要な研究動向として注視する必要がある。

• 大気中アンモニアの観測

大気中窒素の代表的化合物であるアンモニア (NH₃) の濃度増大傾向が世界的に指摘されている。人工衛星による赤外線吸収画像からNH₃濃度の地理的分布が得られ、以前のデータと比較が可能だが、その報告数は現在のところ極めて少ない。地上レベルでのNH₃の観測もほとんど行われていない。畜産場などNH₃が高濃度に存在する特殊な場所の空気の測定には光音響法やキャビティリングダウン分光法 (CRDS)、あるいはプロトン移動反応質量分析計 (PTR-MS) などの化学イオン化質量分析計が用いられる。しかし、大気レベルでの観測には、酸含侵フィルターへの捕集などの従来法によるバッチ測定が一部の研究者で行われている程度という状況にある。大気中の硫黄化合物のうちで最も高濃度で存在する硫化カルボニル (COS) は光合成のトレーサーとしても着目されているが、ほとんど観測されていない。NH₃やCOSの大気連続モニタリングを可能にする手法の開発が期待されている。

なお無機成分のガスを測定する際にPTR-MSなどの質量分析が用いられるようになりつつある。しかしPTRは水蒸気によるプロトン交換反応を利用するため、測定対象は水蒸気よりもプロトン化エネルギーが小さい化合物に限られる。Hg、Xe、Kr、I₂などをイオン化源とするソフトイオン化も普及しつつあるが、サブppbv (percentage per billion in volume) やpptv (percentage per trillion in volume) オーダーを測定するには感度が不十分であり、大気レベルの観測への応用は現在のところ限定的である。

• イソプレン由来エポキシジオール (IEPOX) 関連化合物の分析

生物起源有機化合物 (BVOCs) を起源とするエポキシ関連物質、特にイソプレンから生成する IEPOX と呼ばれるエポキシジオール化合物、および IEPOX がさらに酸化やスルホ化を経て得られる IEPOX テトラール類や IEPOX 硫酸エステル類が粒子形成物質として注目されている。これら IEPOX 関連化合物の分析には高効率液体クロマトグラフィー (HPLC) - 電子スプレー飛行時間型質量分析法 (ESI-TOFMS) が用いられつつあるが、標準物質がほとんど市販されておらず、普及していない。タンデム型質量分析法 (MS/MS) などにより高感度な分析も期待されているが、その開発においても必要な標準物質が無いことがボトルネックとなっている。

• 気体の有機化合物の分析

気体の無機化合物と同様に、気体の有機化合物、なかでも酸素官能基や窒素官能基を持つ低分子化合物は粒子形成能を有し、反応性も高く、大気粒子中にも存在する。これらの動態や粒子形成における働きを理解するには、大気中での気相と粒子相それぞれの濃度の把握が必要となる。特に二次生成粒子の形成に関わる化合物が新たにできた粒子にどれほど含まれているかを確認する手法は未だ確立されていない。

• 大気や海洋における微量無機化学物質の空間分布を把握するための分析手法・システム

動態解析を進めるための化学分析では、空間分布の把握や時間変動の追跡が必須となる。現在のところ無機化学物質、特に微量成分に対してこのような要件を満たす分析法はほとんど実用化されていない。

海洋や湖沼では、電気伝導度 (塩分)、温度、圧力 (深度) を測定する電気伝導度水温水深計用センサ (CTD センサ) が観測の基本装備となっている。通常研究船での測点では、停船中に CTD センサをアーマードケーブルに取り付けて海中を下降・上昇させて、一次元の観測を行う。このとき CTD センサと同時に動作する無機化学物質の現場自動分析機器はいくつか開発されている。これらの機器は、海底熱水活動起源のマンガンや鉄のように海水濃度より数桁高い濃度を検出できるが、外洋のバックグラウンド濃度の測定は難しい。ボートや自律型無人潜水機などに現場自動分析機器を搭載し、小回りの利いた観測が行われているが、この場合も分析対象に限られる。

現在進行中の Argo 計画では、全球の水温・塩分プロファイルを即時的に観測するために、水深 2,000 m から海面までの水温・塩分を約 10 日毎に観測するアルゴフロート 3,000 本を全世界の海洋に展開し、その観測データをリアルタイムに配信することを目指している。アルゴフロートは漂流深度 (通常 1000 m) で約 10 日間漂流した後、設定された最高圧力深度 (通常 2000 m) まで沈み、水温と塩分を観測しながら浮上する。フロートは海面でデータを人工衛星に送信し、再び漂流深度に沈む。このような観測を行える無機化学物質の現場自動分析機器は存在しない。大気ではドローンへの観測機器の搭載が実施されているが、現在のところ簡易なセンサに限られ、大気化学を司る成分への適用は未着手な状況にある。

(6) その他の課題

• 大規模データを集約、解析するツールや仕組みの整備

先端的な環境・生体分析の結果として算出されるマッピングや多元素データなどの大容量データを効率よく集約、解析するツールの普及や仕組みの整備が十分に進んでいない。結果として先端的な計測により得られたデータを生態毒性学やヒト臨床の課題解決に繋げることができていない。

• 標準物質の開発および供給体制の強化

レーザーによる固体分析や個別細胞分析など、さまざまなサンプル導入法ごとに適切な標準物質が必要になる。同位体比測定における同位体標準は、現在米国国立標準技術研究所（NIST）の供給する標準を基準にしているが、作成ロットの枯渇などで入手困難なものもある。またこうした純物質だけでなく、分析の信頼性評価のためのマトリックス標準物質も必要になる。わが国では産業技術総合研究所がこうした標準物質を開発・頒布しているが、多様なアプリケーションすべてをカバーすることはできていない。先端計測を支える基本的な標準物質の開発及び供給が、焦眉の課題となっている。

• 人材不足・人材育成

分析化学、地球化学、環境化学分野の基礎研究を指向する国内の研究室が減少している。そのような研究に進もうとする学生も減少しつつある。分析化学会、海洋学会、地球化学会などのさまざまな学会で学生の減少、特に次世代を担うべき博士課程学生の減少が大きな問題となっている。結果として標準物質の開発のような最もベーシックな分析化学を担う人材も不足している。

アジア規模でも大気化学について基礎的な観点から取り組んでいる研究者が少ない。アジアでは汚染物質の計測や追跡を主眼に置いた研究が主流で、基礎研究については欧米からの論文発表が多い。ただし中国では基礎研究の成果が増加しつつある。

日本においてこれからの研究や技術開発を推進するには、基礎的な部分を理解した上で俯瞰的に物事を捉え、考えることのできる人材を育成していく必要があると認識されている。無機元素の環境動態や生態系機構に関する分野では、モデル研究と観測研究を融合させた研究課題に継続的に取り組む研究者の育成が必要と考えられている。

• 先導的なプログラムの不在

日本は水俣病をはじめとする各種公害病や環境汚染を経験してきた中で生物モニタリングや血液などのヒト試料を用いた長期的なモニタリング（Human Biomonitoring）における基盤的ノウハウを有しているが、現状、それらを活かした先導的なプログラムは企画・遂行されていない。

• ヘリウムガスの不足

世界的に需要と供給のバランスが崩れているHeガスが入手困難となっており研究上のネックとなっている。

• 研究機器・設備に関する課題

海洋研究開発機構（JAMSTEC）の学術研究船・白鳳丸は日本の海洋学における基礎的研究を支えてきた基盤的研究船である。竣工後30年が経過し、研究船本体および採水システムなどの基本装備の更新が急務となっていた。ところが新船の建造は国の財政上困難な状況で、代わりに改修による延命が図られることとなった。また陸水や沿岸域の研究には各大学の臨湖・臨海研究施設とその研究船が大きな役割を果たしてきたが、大学の運営交付金の削減が続くなか、これらの施設や研究船の維持・更新も極めて困難な状況になっている。このようにして日本の海洋学の基盤が危うくなっており、地球科学・環境科学の発展のためにも、水圏観測技術の維持・拡充が必要とされている。

先端的な無機分析機器はほぼすべて欧米製である。欧米では、先端的な装置を大学や研究所と共同開発し、販売数は少なくとも、世界展開によって成功している企業がある。しかし、このような戦略は日本の企業では

ほとんど見られない。ある日本企業が開発した無機元素の自動濃縮装置は優れた性能をもち、価格も手ごろであったが、国内だけでは販売数が少なかったことから製造中止になった。

日本の大学では高価な最先端装置を維持するための経費および技術支援員を持続的に確保することが極めて難しい状況にあり、持続性の点で根本的な課題がある。

（7）国際比較

国・地域	フェーズ	現状	トレンド	各国の状況、評価の際に参考にした根拠など
日本	基礎研究	○	→	●PM_{2.5}とPAH類などの含有有害化学物質の動態と健康影響についての研究が世界のトップレベルにある。現在はCREST「細胞外微粒子により惹起される生体応答の機序解明と制御」領域において関連プロジェクトが採択され進められている。その他には科研費や環境省の環境研究総合推進費などで個別に研究が実施されている。 ●トリプル四重極 ICP-MSを用いた金属ナノ粒子分析手法開発が継続して実施されている。 ●ヒ素に関してイネを対象としたプロジェクトが農水省で継続されており、移行過程についての報告が多数出ている。水銀に関しては研究者数は欧米に比べるとまだ少ないが広域的な水銀動態研究に取り組む研究グループが出てきている。 ●若手人材の不足や基盤的研究機器・設備の衰退が深刻化している。
	応用研究・開発	○	→	●環境化学分野は分析機器関連企業にとってはニーズはあるがニッチな場合があり、開発費と売り上げ予想とのバランスから必ずしも積極的でないケースがある。一般的に、環境基準が設けられ公定法に取り上げられる可能性があるのと、開発は進みやすくなる。 ●全海洋の微量元素の挙動・動態解明を目指すGEOTRACES計画において、太平洋などでの観測を継続している。 ●オンライン測定装置の開発とその応用が進められているが、国際的な広がりはまだこれからという状況。 ●燃焼由来PM_{2.5}とPAH、NPAH類の発生源解析法を世界に先駆けて開発するなど先導的な研究を実施している。
米国	基礎研究	◎	→	●高度な分析機器を使用した論文が多数出ている。 ●水銀に関しては、大気・海洋・安定同位体の各分野に有力な科学者を有して基礎研究を牽引。 ●NSF、NASA、EPA STARプログラム、SBIRプログラム、エネルギー省Atmospheric System Research Programなどの予算の支援により、オンライン測定装置の開発、それを適用した二次生成に関する実験的研究やモデル研究が盛んにおこなわれている。これらにより国内研究機関や大学、民間企業（Aerodyne Researchなど）が、欧州の大学や企業とも連携して、世界の研究トレンドを生み出している。 ●NASAやNSFの火星探査や南極（海）調査のための資金の中で分析法の開発にかかるプロジェクトが含まれている。 ●トランプ政権の科学技術軽視はアメリカ地球物理学連合でも大きな問題と認識されていた⁴⁰⁾。環境関連研究、とりわけPM_{2.5}関連の基礎研究は停滞している。
	応用研究・開発	◎	→	●GEOTRACES計画、北極研究（ブラックカーボンなど）、地下水調査（USGSなど）、National Atmospheric Deposition Program（降水中元素、大気水銀、降水中水銀）などのプログラムやプロジェクトが継続して実施されている。

				●トップレベルの分析機器メーカーが北米に本拠地を持つなど、高い技術水準を有している。また大学研究室と密接な関わりを持つメーカ（例：TSI社）が世界的な市場を席巻している。ミネソタ大学などの研究成果を素早く製品に反映させており、個数計測などの物理的計測の最先端技術を持っている。
欧州	基礎研究	◎	→	【EU】 ●常にEU領域内の国間分析法の調和が図られている。各種モニタリングプログラムが走っており、GEOTRACESのような国際共同観測計画も堅実にリードしている。高度な分析機器を使用した論文が多数出ている。 ●欧州科学技術研究協力機構（COST）の支援でエアロゾル質量分析計などを利用したオンライン観測網プロジェクト（COLOSSAL）が推進されている。蓄積されるデータだけでなく、国際的な人的交流を促進させる場としても大きな意味合いがある。 【スイス】 ●Swiss National Science Foundationの支援などの下、スイス連邦工科大学（ETH）のチューリッヒ校やポール・シェラー研究所が中心的な役割を果たしている。ポール・シェラー研究所は研究機関であるのみならず、多くの企業との連携も行っている。なかでもTofwerkとの連携は飛行時間型質量分析計とイオン移動度分光計の開発で大きな成功を収めている。同研究所は、大気化学の分野におけるノウハウと、テストおよびパフォーマンス評価のためのインフラストラクチャを提供することで、メーカーとWin-Winの関係を保っている。 【その他】 ●水銀に関してはフランスの複数機関（ポー大学、トゥールーズ環境地球科学研究所、フランス海洋開発研究所）が世界トップレベルの研究を展開。ヒ素に関しては英国が歴史的に研究実績が豊富。特にクイーンズ大は揮発性ヒ素の動態研究で世界をリードしている。スイスの連邦水科学技術研究所はアジアのヒ素汚染研究についてベトナムを中心に幅広い研究を展開し分野をリードしている。
	応用研究・開発	◎	→	【EU】 ●トップレベルの分析機器メーカーが欧州に本拠地を持つなど、高い技術水準を有している。 ●英独仏を中心にGEOTRACESを継続している。またGlobal Observation System for Mercury（GOS4M）で地球規模大気水銀の観測を継続している。 【北欧諸国】 ●北極における水銀観測を継続的に行っている（AMAP）。
中国	基礎研究	○	↗	●論文の数が急増しており質も向上している。地球化学や海洋学分野では研究者数、発表数の増加は顕著であり、発表数についてはすでに日本を超えている。大規模な研究所や大学の学部・学科の整備、基盤的な機器・設備の導入・拡充が国の重要施策として進められていることを背景に、多くの研究が実施されている。ただし基礎的な考察やデータのち密さにおいては未だ改善余地のあるものが散見される。 ●北京米国大使館でモニタリングされたPM_{2.5}濃度のデータが公表されたことに端を発した2013年の騒動をきっかけに、PM排出低減対策とともに、モニタリングも重視され、欧米メーカの高価なオンライン測定装置が数多く導入された。 ●国際誌に発表されるPM_{2.5}とPAH類のモニタリング関連の論文数は、国内に題材が多いこともあり、今や中国が世界で最も多い状況となっている。こうした研究では、中国科学院（PM分野では地球環境研究所と大気物理研究所など）に在籍する研究者の活躍がめざましい。多くは欧米で学位を取得した若手研究者である。

2.2

俯瞰区分と研究開発領域
環境区分

(註1) フェーズ”

応用研究・開発：技術開発（プロトタイプの開発含む）の範囲

○：顕著な活動・成果が見えている

×：特筆すべき活動・成果が見えていない

↗：上昇傾向、→：現状維持、↘：下降傾向

関連する他の研究開発領域

- ・有機化学物質分析・毒性評価 (環境・エネ分野 2.2.6)
- ・ナノ・マイクロマテリアルのELSI/EHS、国際標準 (ナノテク・材料分野 2.7.1)

参考・引用文献

- 1) F-Z. Teng, J. M. Watkins and N. Dauphas, Non-Traditional Stable Isotopes, J. J. Rosso ed., *Reviews in Mineralogy and Geochemistry* 82 (Washington : Mineralog-ical Society of America, 2017), <http://www.minsocam.org/msa/RIM/Rim82.html> (2021年1月18日アクセス)
- 2) Y. Fujiwara et al., “Determination of the tungsten isotope composition in seawater : The first vertical profile from the western North Pacific Ocean”, *Chem. Geol.* 555 (2020) : 119835, doi : 10.1016/j.chemgeo.2020.119835
- 3) J. Kangasluoma et al., “Overview of measurements and current instrumentation for 1–10 nm aerosol particle number size distributions”, *Journal of Aerosol Science* 148 (2020) : 105584, doi : 10.1016/j.jaerosci.2020.105584
- 4) A. Tiwari et al., “Sub-10 nm Particle Emissions from Industrial 3D Printers”, 36th AAAR Annual Conference Abstracts (2017) : Session#5, <http://aaarabstracts.com/2017/AbstractBook.pdf> (2021年1月18日アクセス)
- 5) 日本カノマックス, 「ポータブルパーティクルカウンター Model 3910」『KANOMAX』, http://www.kanomax.co.jp/product/index_0042.html (2021年1月18日アクセス)
- 6) 紀本電子, 「大気エアロゾル化学成分連続自動分析装置」『KIMOTO』, <https://www.kimoto-electric.co.jp/product/air/ACSA14.html> (2021年1月18日アクセス)
- 7) K. Nishiguchi, K. Utani and E. Fukimori, “Real-time multielement monitoring of airborne particulate matter using ICP-MS instrument equipped with gas converter apparatus”, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry* 23 (2008) : 1125-1129, doi : 10.1039/b802302f
- 8) 萩野浩之, 「7. エアロゾルの無機成分分析」『エアロゾル研究』33巻1号 (2018) : 40-49, doi : 10.11203/jar.33.40
- 9) S. Theiner et al., “Laser Ablation-Inductively Coupled Plasma Time-of-Flight Mass Spectrometry Imaging of Trace Elements at the Single-Cell Level for Clinical Practice”, *Anal. Chem.* 91, no. 13 (2019) : 8207-8212, doi : 10.1021/acs.analchem.9b00698
- 10) T. Nakayama et al., “Development and evaluation of a palm-sized optical PM2.5 sensor”, *Aerosol Science and Technology* 52, no. 1 (2017) : 2-12, doi : 10.1080/02786826.2017.1375078
- 11) T. Zheng et al., “Field evaluation of low-cost particulate matter sensors in high- and low-concentration environments”, *Atmospheric Measurement Techniques* 11, no. 8 (2018) : 4823-4846, doi : 10.5194/amt-11-4823-2018
- 12) M. Levy Zamora et al., “Field and Laboratory Evaluations of the Low-Cost Plan-tower Particulate Matter Sensor”, *Environ. Sci. Technol.* 53, no. 2 (2019) : 838-849, doi : 10.1021/acs.est.8b05174
- 13) United States Environmental Protection Agency (EPA) , “Air Sensor Toolbox”, EPA, <https://>

www.epa.gov/air-sensor-toolbox (2021年1月18日アクセス)

- 14) 板井啓明, 「進歩総説 環境中の水銀分析に関する研究の動向」『ぶんせき』11巻 (2018) : 492-496, <https://ci.nii.ac.jp/naid/40021741363>
- 15) P. Houssard et al., "A Model of Mercury Distribution in Tuna from the Western and Central Pacific Ocean : Influence of Physiology, Ecology and Environmental Factors", *Environ. Sci. Technol.* 53, no. 3 (2019) : 1422-1431, doi : 10.1021/acs.est.8b06058
- 16) A. T. Schartup et al., "Climate change and overfishing increase neurotoxicant in marine predators", *Nature* 572 (2019) : 648-650, doi : 10.1038/s41586-019-1468-9
- 17) T. Kawai, T. Sakurai and N. Suzuki, "Application of a new dynamic 3-D model to investigate human impacts on the fate of mercury in the global ocean", *Environmental Modelling and Software* 124 (2020) : 104599, doi : 10.1016/j.envsoft.2019.104599
- 18) L. Liu et al., "Temporal characteristics of atmospheric ammonia and nitrogen di-oxide over China based on emission data, satellite observations and atmospheric transport modeling since 1980", *Atmos. Chem. Phys.* 17, no. 5 (2017) : 9365-9378, doi : 10.5194/acp-17-9365-2017
- 19) J. X. Warner et al., "Increased atmospheric ammonia over the world's major agricultural areas detected from space", *Geophysical Research Letters* 44, no. 6 (2017) : 2875-2884, doi : 10.1002/2016GL072305
- 20) M. Takahashi et al., "Air pollution monitoring and tree and forest decline in East Asia: A review", *Science of The Total Environment* 742 (2020) : 140288, doi : 10.1016/j.scitotenv.2020.140288
- 21) M. Wang et al., "Rapid growth of new atmospheric particles by nitric acid and ammonia condensation", *Nature* 581, no. 7807 (2020) : 184-189, doi : 10.1038/s41586-020-2270-4
- 22) M. Kumar et al., "Molecular insights into organic particulate formation", *Communications Chemistry* 2, no. 1 (2019) : 87, doi : 10.1038/s42004-019-0183-7
- 23) A. L. Robinson et al., "Rethinking Organic Aerosols: Semivolatile Emissions and Photochemical Aging", *Science* 315, no. 5816 (2007) : 1259-1262, doi : 10.1126/science.1133061
- 24) A. T. Lambe et al., "Nitrate radical generation via continuous generation of dinitrogen pentoxide in a laminar flow reactor coupled to an oxidation flow reactor", *Atmospheric Measurement Techniques* 13, no. 5 (2020) : 2397-2411, doi : 10.5194/amt-13-2397-2020
- 25) Z. Peng and J. L. Jimenez, "Radical chemistry in oxidation flow reactors for atmospheric chemistry research", *Chem. Soc. Rev.* 49, no. 9 (2020) : 2570-2616, doi : 10.1039/c9cs00766k
- 26) K. Hayakawa et al., "Calculating sources of combustion-derived particulates using 1-nitropyrene and pyrene as markers", *Environ. Pollut.* 265, Part B (2020) : 114730, doi : 10.1016/j.envpol.2020.114730
- 27) M. S. Savoca, "Chemoattraction to dimethyl sulfide links the sulfur, iron, and carbon cycles in high-latitude oceans", *Biogeochemistry* 138, no. 1 (2018) : 1-21, doi : 10.1007/s10533-018-0433-2
- 28) J. Procter et al., "Smells good enough to eat : Dimethyl sulfide (DMS) enhances copepod

2.2

俯瞰区分と研究開発領域 環境区分

- ingestion of microplastics”, *Marine Pollution Bulletin* 138 (2019) : 1-6, doi : 10.1016/j.marpolbul.2018.11.014
- 29) M. S. Savoca et al., “Marine plastic debris emits a keystone infochemical for olfactory foraging seabirds”, *Sci. Adv.* 2, no. 11 (2016) : e1600395, doi : 10.1126/sciadv.1600395
- 30) S. Allen et al., “Examination of the ocean as a source for atmospheric microplastics”, *PLoS One* 15, no. 5 (2020) : e0232746, doi : 10.1371/journal.pone.0232746
- 31) J. Brahney et al., “Plastic rain in protected areas of the United States”, *Science* 368, no. 6496 (2020) : 1257-1260, doi : 10.1126/science.aaz5819
- 32) N. Evangelidou et al., “Atmospheric transport is a major pathway of microplastics to remote regions”, *Nature Communications* 11 (2020) : 3381, doi : 10.1038/s41467-020-17201-9
- 33) 富士山測候所を活用する会, <https://npofuji3776.org> (2021年1月18日アクセス)
- 34) K. Hayakawa, ed., *Polycyclic aromatic hydrocarbons : Behavior and toxicity in East Asia* (Singapore : Springer Nature, 2018) , <https://www.springer.com/gp/book/9789811067747>
- 35) K. Hayakawa and N. Suzuki, eds., Special Issue “Recent Advances in polycyclic aromatic hydrocarbons research : Occurrence, fate, analysis and risk assessment” (Basel, Switzerland : Int. J. Environ. Public Health, 2020) , https://www.mdpi.com/journal/ijerph/special_issues/PAHs (2021年1月18日アクセス)
- 36) A. K. James et al., “Rethinking the Minamata Tragedy : What Mercury Species Was Really Responsible?”, *Environ. Sci. Technol.* 54, no. 5 (2020) : 2726-2733, doi : 10.1021/acs.est.9b06253
- 37) C. Tohyama, “Comment on “Rethinking the Minamata Tragedy : What Mercury Species Was Really Responsible?”, *Sci. Technol.* 54, no. 13 (2020) : 8486-8487, doi : 10.1021/acs.est.0c01971
- 38) J. Podgorski and M. Berg, “Global threat of arsenic in groundwater”, *Science* 368, no. 6493 (2020) : 845-850, doi : 10.1126/science.aba1510
- 39) M. Mac Monagail et al., “Quantification and feed to food transfer of total and inorganic arsenic from a commercial seaweed feed”, *Environ. Int.* 118 (2018) : 314-324, doi : 10.1016/j.envint.2018.05.032
- 40) R. Showstack, “Climate Research Funding Still Under Threat, Report Warns”, *Eos* 99 (2018) , doi : 10.1029/2018EO101407