

大気中微小粒子(PM_{2.5})と粗大粒子の有害元素濃度に関する順位化法による測定地点評価

栗田 雅行¹, 大橋 則雄², 上原 眞一¹

Assessment of Sampling Sites using a Ranking Method for Toxic Element Concentrations of Fine Particles (PM_{2.5}) and Coarse Particles in Ambient Air

Masayuki KURITA¹, Norio OHASHI² and Shin-ichi UEHARA¹

Urban ambient particulate matter is divided into two groups according to particle size distribution: fine particles (FP), called PM_{2.5}, less than 2.5 μm in aerodynamic diameter, and coarse particles (CP) between 2.5 and 10 μm in aerodynamic diameter. The aim of this study was to estimate concentrations of toxic elements in FP and CP, and to assess sampling sites by a ranking method for the toxic levels. In FP and CP samples collected at seven sites in Tokyo between May 2002 and March 2003, sixteen toxic elements were determined. The toxic element concentrations ranged from values less than 0.01 ng/m³ in cadmium concentrations of FP to about 1,200 ng/m³ in aluminium and iron concentrations of CP. In view of the wide range of concentrations, a method for ranking the concentrations of toxic elements without assumption of normality was useful to assess toxic levels of sites. Using the ranking method for all the sixteen element concentrations in FP or CP sampled during the period, we obtained a rank order of each element for each site. To integrate toxicity information, reranking among the ranks and summing of the sixteen toxic elements of each site, provided simple and clear standings for these sites. This ranking method for toxic element concentrations of ambient particles will be a good tool for evaluating a series of sampling sites in the light of integrated information on the health hazard.

Keywords : 有害元素 toxic element, 微小粒子 fine particles (PM_{2.5}), 粗大粒子 coarse particles, 順位化法 ranking method, 評価 assessment, 都市大気中粒子状物質 urban ambient particulate matter

緒 言

わが国では大気汚染物質のひとつである浮遊粒子状物質 (SPM) は, 空気力学的粒径 (以下, 粒径とする) が 10 μm 以下の粒子として環境基準が制定されているが, 依然としてその基準達成率は改善されない状況が続いている¹⁾. 一方, 米国では, 粒径が 10 μm 以下の大気中粒子状物質は, 粒径が 2.5 μm 以下の微小粒子 (PM_{2.5}) と, 粒径が 2.5-10 μm の範囲にある粒子 (以下, 粗大粒子とする) に区分され, 主な発生源や構成元素が異なることが報告されている²⁾. 加えて, 微小粒子による健康影響の問題³⁻⁵⁾ がここ十年近く米国を中心に話題となっており, それに応じて, 粒子状物質の構成元素に関心が集まりつつある^{6,7)}. しかし, 日本においては, 微小粒子と粗大粒子を区分し, それらに含まれる有害元素について季節変動や地域差を検討した報告は少ない. また, その報告をみても濃度の提示だけに終わっている場合が多く, CMB 法 (Chemical Mass Balance) のリセプターモデルに代表される発生源寄与解析手法⁸⁾ を除け

ば, 有効な評価法がないのが現状である.

著者らは, 既報⁹⁾において, 都内 6 地点における大気微小粒子中の 12 元素について, その季節変動と地点間変動を報告した. 今回は, 微小粒子に加えて粗大粒子にも注目し, 採取地点と分析対象元素を増加して, より詳細に検討した. すなわち, 都内 7 地点において約一年間にわたり毎月採取した微小粒子と粗大粒子に含まれる 16 の有害元素を分析し, その特性を比較検討した. さらに, これらの結果を踏まえ, 大気汚染による健康影響調査への応用を意図して, 地点間における有害情報を総合的に把握するための方法として順位化法を考案し, それを用いて地点の評価を試みた.

材料及び方法

1. 試料採取地点

大気中の粗大粒子と微小粒子を採取した地点は, 大島町, 青梅市, 小平市, 町田市, 大田区及び足立区内にある小学

* 東京都健康安全研究センター環境保健部環境衛生研究科 169-0073 東京都新宿区百人町 3-24-1

* Tokyo Metropolitan Institute of Public Health

3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073 Japan

校各1校,並びに新宿区にある東京都健康安全研究センターの計7地点とした(以下,それぞれ,大島,青梅,小平,町田,大田,足立,及び新宿とする).このうち新宿を除く6地点は,既報⁹⁾と同地点である.

2. 試料採取期間

試料は,2002年5月から2003年3月までの11ヶ月間に毎月1回,第3月曜日午前9時から同木曜日の同時刻までの72時間にわたり,7地点同時に採取した.

3. 試料採取方法

カット特性が100%の粗大粒子と同50%の微小粒子を選別するためのインパクターが組み込まれたフィルターホルダー(柴田科学社製NWPS-35HS)と,定流量装置と積算流量計を内蔵した吸引ポンプ(柴田科学社製MP-500)をシリコンチューブにより最短距離で接続した試料採取装置を全天候型のシェルターに入れ,毎分2.5Lの流量で吸引して試料を採取した.試料採取に用いたフィルターは,テフロン材質で孔径 $2\mu\text{m}$ のZefluor(Pall社製)であり,粗大粒子には直径25mm,そして微小粒子には直径35mmのものを使用した.

4. 分析項目

アルミニウム(Al),チタン(Ti),バナジウム(V),クロム(Cr),マンガン(Mn),鉄(Fe),コバルト(Co),ニッケル(Ni),銅(Cu),亜鉛(Zn),ヒ素(As),モリブデン(Mo),銀(Ag),カドミウム(Cd),アンチモン(Sb)及び鉛(Pb)の計16元素濃度(ng/m^3)と,採取した粒子状物質の質量濃度($\mu\text{g}/\text{m}^3$)を粗大粒子と微小粒子の両方について定量した.

5. 試薬

濃硝酸:関東化学製ウルトラピュア

金属標準液:関東化学製ICP-MS用混合標準液(分析項目に示した16元素)及び和光純薬製原子吸光用標準液(内標準元素として用いたイットリウムとインジウム).

高純度水:器具や容器の洗浄,及び試薬の希釈には,蒸留水を脱イオン化した高純度水(Milli-Q)を用いた.

6. 分析装置

ウルトラマイクロ上皿電子天びん:Sartorius社製SC2-F.
誘導結合型プラズマ発光分析装置(ICP-AES):日本Jarrell-Ash社製IRIS 1000(対象元素:Al, Fe, Zn).

誘導結合型プラズマ質量分析計(ICP-MS):HP社製4500(対象元素:Ti, V, Cr, Co, Mn, Ni, Cu, As, Mo, Ag, Cd, Sb, Pb).

7. 質量濃度の測定

採取用のフィルターは1枚ずつペトリスライド(MILLIPORE社製PD15047)に入れて保管し,試料採取する前と後に,20の恒温室内に2日間以上置いてから

上皿電子天びんで秤量した.この秤量値の差を採取時の総吸引量で除して,質量濃度($\mu\text{g}/\text{m}^3$)とした.

8. 試料の調製及び分析

試料採取したフィルターを小片に裁断し,濃硝酸5mLを加えて,マイクロ波反応加速装置(CEM社製MARS5)により180で15分間分解した.3日間室温で放置した後,分解液をディスクフィルター(ADVANTEC社製25HP020AN)によりメスフラスコ内にろ過し,さらに高純度水を加えて50mLに調整し,ICP-AES及びICP-MS分析用の試料とした.併せて,未使用のフィルターを同条件で処理し,ブランクとした.なお,フラスコなど試料調製に用いた器具類は,清浄なものを事前に15%硝酸溶液に3日間以上浸潤させ,高純度水で洗浄してから使用した.

内標準元素として,ICP-AESでは $10\mu\text{g}/\text{L}$ のイットリウムを,またICP-MSでは各 $1\mu\text{g}/\text{L}$ のイットリウムとインジウムを含む5%硝酸溶液の一定量を,ペリスタルポンプの回転と同期して試料に添加する内標準法により,対象元素を定量分析した.この分析値から総量を換算し,ブランク値を差引きさらに総吸引量で除して,有害元素濃度(ng/m^3)とした.

9. 順位化法の手順

元素濃度の明らかな違いと元素種の相違を乗り越える評価法のひとつとして,データの分布に依存しない次の順位化法を考案した.ただし,季節と元素の違いに優劣をつける情報がないため,前提条件として,各濃度には重みのない均一な数値として濃度をそのまま使用した.

順位化法の手順として,まず16元素のうちから任意の元素*i*($i=1,2,\dots,16$)に注目し,ある月*j*($j=1,2,\dots,11$)の7地点の元素濃度 C_{ijk} ($k=1,2,\dots,7$)を小さい順に並べ,1から7までの順位 n_{ijk} ($1 \leq n_{ijk} \leq 7$)をつけた(同じ濃度の場合は平均

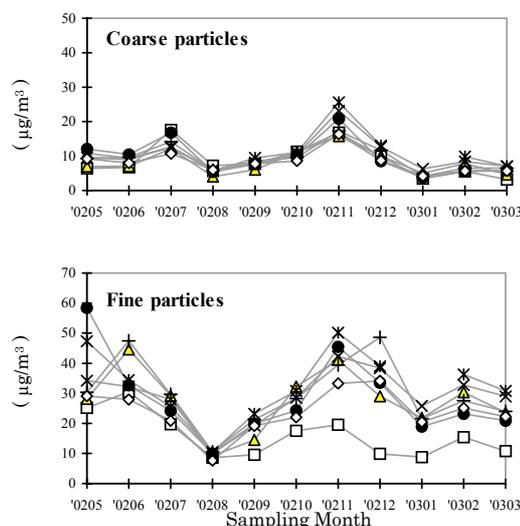


Fig. 1. Variation of Mass Concentrations for Coarse and Fine Particles at Seven Sites in Tokyo from May 2002 to March 2003. Data at Machida site January 2003 are not shown for pump trouble.

□—Ohshima △—Ome ×—Kodaira *—Machida
●—Ota +—Adachi ◇—Shinjuku

順位とする)。そして、すべての月において同様の順位をつけてから、これら順位の和 n_{ijk} ($j=1,2,\dots,11$ についての和) を求めた。ここで、この順位和の値そのもので比較してもよいが、結果が平易になるように、さらにこの順位和の値を小さい順にならべて再度順位 (ここでは元素 i の全期間順位 S_{ijk} とする) をつけた ($n_{ijk} S_{ijk}, 1 \leq S_{ijk} \leq 7$)。同様に、その他の 15 元素についてもこれらの手順を繰返した。

さらに、汚染レベルを地点間で比較することは、疫学調査など健康指標との対応をみる上で必要である。したがって、前述した地点ごとの順位をより明確にし、分析した元素全体を有害元素の汚染レベルとして総合評価するため、全元素について順位和 S_{ijk} ($i=1,2,\dots,16$ についての和) をとり、再度順位化して総合順位とした。

結果及び考察

1. 質量濃度の比較

大島、青梅、小平、町田、大田、足立及び新宿の 7 地点において毎月採取した粗大粒子と微小粒子の質量濃度を、時系列として並べ比較した (Fig.1)。粗大粒子の質量濃度は、最低値 $3.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (2003 年 1 月の大島) から最高値 $26 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (2002 年 11 月の町田) を示した。粗大粒子濃度は時期により大きな変化がみられたが、同じ時期の地点間の差はそれほど小さくなく、時系列の変動パターンの特徴は地点によらずほぼ同様であった。このことから、粗大粒子

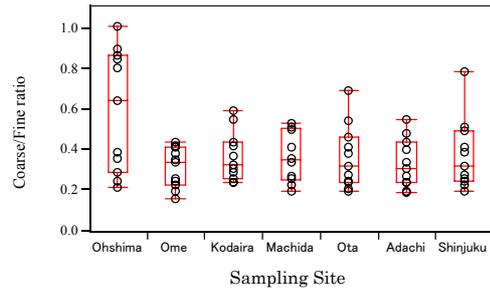


Fig. 2. Box Plots for Ratio of Coarse Particles Mass to Fine Particles Mass at Seven Sites. Boxes, 25th-75th percentiles; whiskers, 10th-90th percentiles; solid lines, medians.

濃度は都内全域でこのような季節変動を示していると推定される。

一方、微小粒子の質量濃度は、最低値 $8.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (2002 年 8 月の大島) から最高値 $58 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (2002 年 5 月の大田) を示した。微小粒子濃度は、全体的に大島がそれ以外の 6 地点の濃度に比べて明らかに低い。この 6 地点の質量濃度は、いくつかの月ではばらつきがみられ、地点間でやや類似した変動パターンを示している。2002 年 8 月における微小粒子の質量濃度が、全地点において $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 近辺に集中している。その理由は、試料採取期間中に南西方向から東京都を台風が通過したため、全域的に質量濃度が低下してほぼ一定値を示したと推測される。加えて、大島の地点が大島しよであり、東京都において自然環境が良好である地理

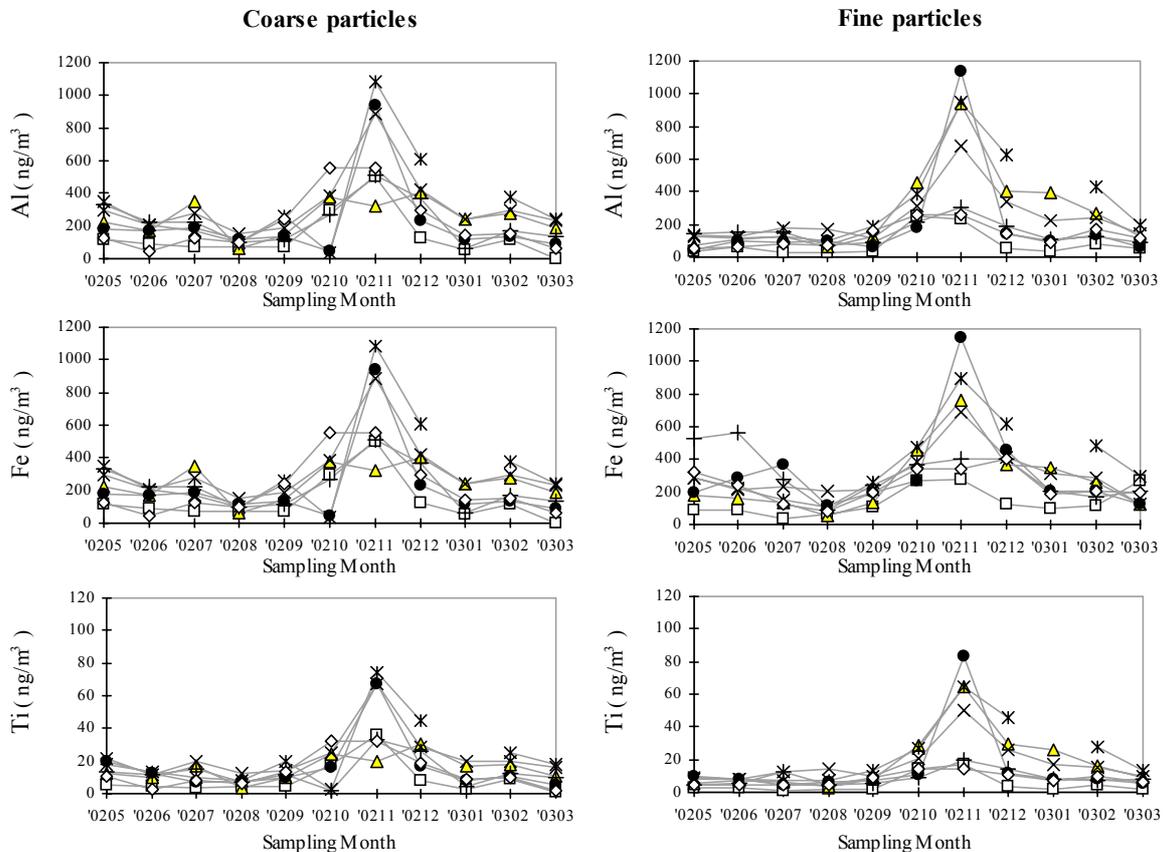


Fig. 3. Variation of Al, Fe, and Ti Concentrations in Coarse and Fine Particles collected at Seven Sites in Tokyo from May 2002 to March 2003. Left column, in coarse particles; right column, in fine particles. Data at Machida site January 2003 are not shown for pump trouble. —□— Ohshima; —△— Ome; —×— Kodaira; —*— Machida; —●— Ota; —+— Adachi; —◇— Shinjuku.

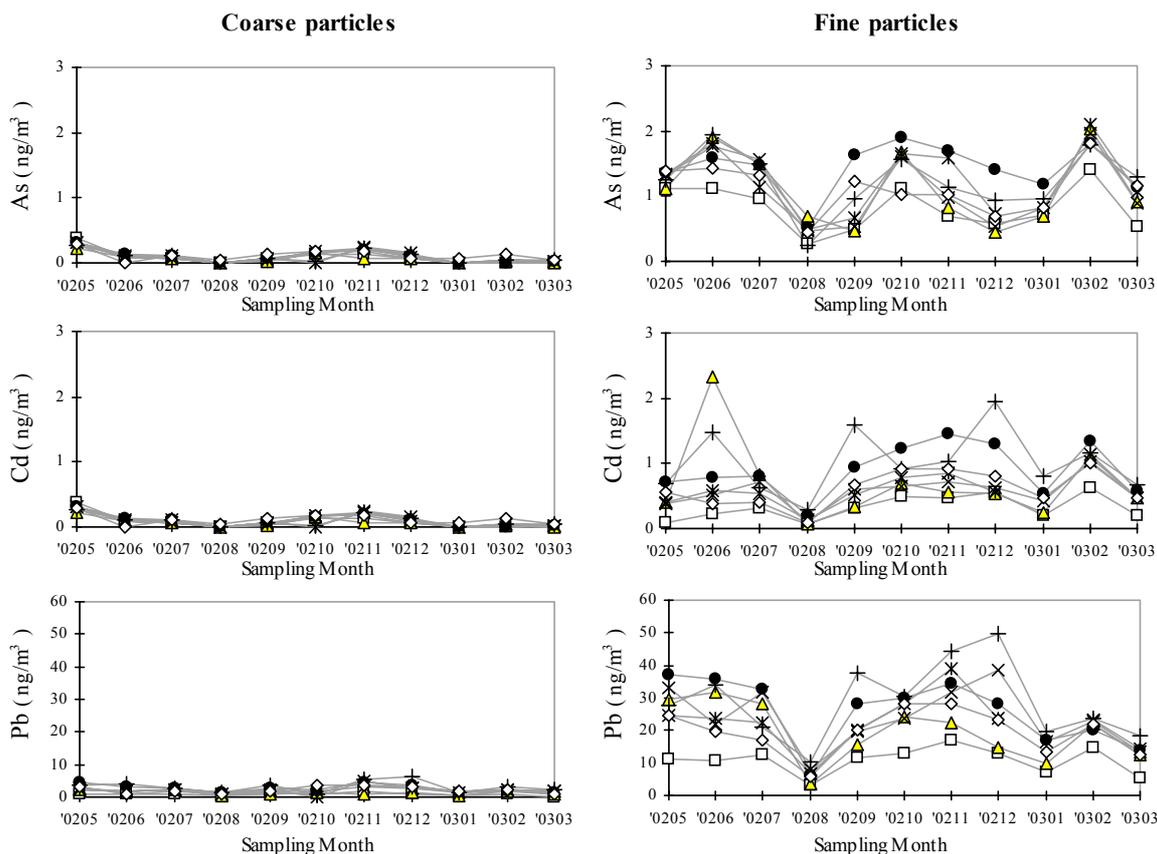


Fig. 4. Variation of As, Cd, and Pb Concentrations in Coarse and Fine Particles collected at Seven Sites in Tokyo from May 2002 to March 2003. Left column, in coarse particles; right column, in fine particles. Data at Machida site January 2003 are not shown for pump trouble. —□— Ohshima; —△— Ome; —×— Kodaira; —*— Machida; —●— Ota; —+— Adachi; —◇— Shinjuku.

的狀況を考慮すると、微小粒子の質量濃度が最低値であった大島の $8.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ という数値は、東京都内の社会活動地域におけるバックグランド濃度に近いことが示唆される。

米国では、主に、微小粒子は人為的発生源由来、一方粗大粒子は自然由来とされている²⁾。したがって、微小粒子に対する粗大粒子の濃度比（以下、C/F比とする）を検討することにより、大気粒子の発生源構成をある程度推定できるものと考えられる。このC/F比を地点ごとに比較した箱ひげ図をFig.2に示す。大島におけるC/F比は0.22~1.00と変動幅が大きく、かつその中央値は0.6より大きいのにに対し、その他6地点における各C/F比の中央値はすべておよそ0.3と低かった。このことは、大島は自然由来と予想される粗大粒子の割合が他の地点より高く、前述した大島の地理的特徴を支持する。また、大島を除く6地点の結果から、都内は総じて自然発生源由来よりも優位である人為的発生源に起因した微小粒子によって、曝露されていることが示唆される。

2. 有害元素濃度の変動

粗大粒子と微小粒子に含まれるAlからPbまでの16元素濃度について、地点ごとにその時系列変化を比較検討した。このうち、元素濃度としては約 $1,200 \text{ ng}/\text{m}^3$ と最高であったAlとFe、これらに比べ10分の1以下の濃度であったTiでは、粗大粒子と微小粒子におけるそれぞれの元素濃度は同程度であり、その変動パターンはかなり類似して

いた (Fig.3)。

一方、微小粒子において $2.3 \text{ ng}/\text{m}^3$ 以下の濃度であったAsとCd、そして $50 \text{ ng}/\text{m}^3$ 未満であったPbでは、粗大粒子においてはさらにその10分の1以下の濃度であった。これら元素濃度の変動パターンは、粗大と微小粒子で異なり、微小粒子では2002年8月を除くと各元素濃度は地点間に差がみられた (Fig.4)。また、これら6元素以外の残り10元素においては、地点ごとの元素濃度の変動パターンに顕著な特徴を示すものではなく、加えて粗大粒子と微小粒子を比較しても一定した傾向は認められなかった。そして、都市大気中の微小粒子について報告されている米国¹⁰⁾、カナダ¹¹⁾、韓国¹²⁾のデータとの比較では、本報告の有害元素濃度はそれらとおおよそ一致するものであった。

質量濃度の場合と同様、元素濃度においてもC/F比を各元素ごとに求め、地点ごとに比較した (Fig.5-6)。粗大粒子と微小粒子の両方においてその元素濃度が同程度であり、かつ変動パターンが類似していたAl・Fe・Tiでは、全体としてC/F比がおおよそ1~2の間にあり (Fig.5)、一定の傾向が認められる。一方、As・Cd・Pbでは、C/F比はどの地点でもほとんどが0.2以下と低かった (Fig.6)。これは、As・Cd・Pbが廃棄物焼却など人為的発生源由来の特徴を有することから、微小粒子の汚染が少なからず全般的に及んでいることを示唆する。その他、MnにおけるC/F比の中央値はおおよそ0.4~0.6の範囲にあった以外、その他の元素においては明瞭な傾向が認められなかった。

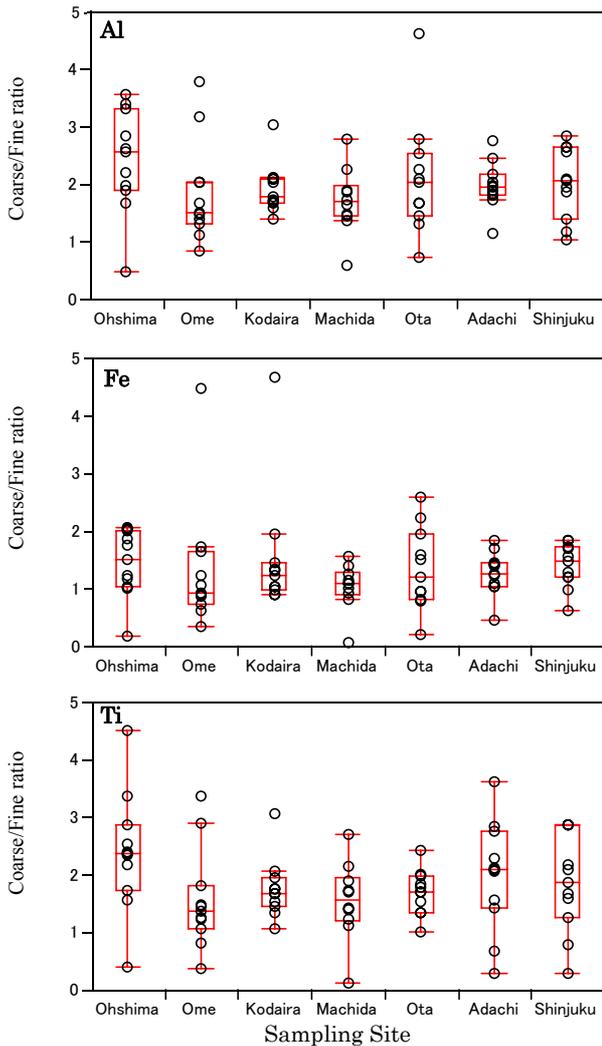


Fig. 5. Box Plots for Ratio of Al, Fe, and Ti Concentrations in Coarse Particles to the Concentrations in Fine Particles at Seven Sites. Boxes, 25th-75th percentiles; whiskers, 10th-90th percentiles; solid lines, medians.

3. 順位化法による地点評価

質量濃度に関して、粗大粒子では 3.4 ~ 26 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、微小粒子では 8.6 ~ 58 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあったため (Fig.1), 地点や時期による違いは 10 倍未満であった。しかし、質量濃度に比べ、有害元素の濃度範囲ははるかに広いものであった。例えば、微小粒子の Al では 24 ~ 1,200 ng/m^3 の範囲 (Fig.3) で約 50 倍、微小粒子の Cd では 0.01 未満 ~ 2.3 ng/m^3 の範囲 (Fig.4) で約 35 倍、それぞれ元素濃度が異なっている。したがって、これらを含めた 16 元素における濃度範囲は 0.01 未満 ~ 1,200 ng/m^3 の範囲となり、少なくとも 10 万倍以上異なる。そこで、データを統合して測定地点の汚染レベルを評価するため、季節間や元素間の違いによる大幅な濃度変動を考慮した手段として順位化法を考案し、得られたデータに適用した。

16 元素それぞれの全期間順位を粗大粒子と微小粒子とにおいて別々に求め、地点別に示した (Fig.7a,b)。大島は、粗大粒子でほとんどの元素が 2 以下と順位が低いのに対し、微小粒子の V は順位が 6 と大田に続いて 2 番目に高い特徴

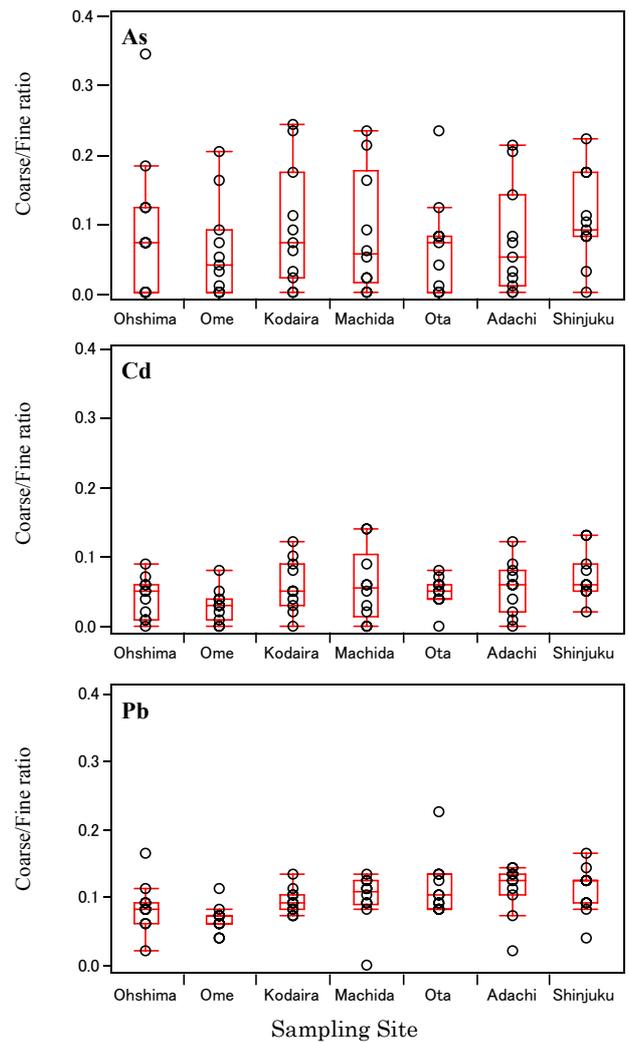


Fig. 6. Box Plots for Ratio of As, Cd, and Pb Concentrations in Coarse Particles to the Concentrations in Fine Particles at Seven Sites. Boxes, 25th-75th percentiles; whiskers, 10th-90th percentiles; solid lines, medians.

があった。これは、大島の V 濃度が高かった既報⁹⁾を別データで再確認したことになる。青梅は、Al・Ti・Ag の順位が中程度であり、粗大粒子よりも微小粒子でそれらの順位が上がっている。小平は、粗大粒子で Cr・Cd の順位が低い以外はその他の元素の順位が 5 以上と高いのに対し、微小粒子では Cr・Cd の他にも Al・Ti・Fe・Ag・Sb を除く元素の順位が粗大粒子に比べ低かった。町田は、各粒子とも Al・Ti・Fe・Ni の順位が 6 以上と高かった。大田は、むしろ町田とは対称的に、各粒子とも Al・Ti・Fe・Ag・Sb の順位が 4 以下と低く、それ以外は 6 以上と高かった。足立は、粗大粒子で Zn・Mo・Ag・Cd・Sb・Pb が最高順位の 7 であり、加えてそれ以外の元素も 4 から 6 の順位と全体的に高い順位であった。足立の微小粒子は、粗大粒子に比べ Mo・Ag・Cd・Sb で順位が 1 から 2 下がる以外は粗大粒子と同じ特徴を示した。新宿は、粗大粒子の Cr・As の順位が 6、Cd が 5 である以外の元素はほぼ 3 から 4 の中程度の順位であり、また微小粒子では Cr・Mn が 6、Zn・Cd が 5 である以外は粗大粒子と同様であった。

次に、粗大粒子と微小粒子との間でレーダーチャートの形状が類似していることから、粗大粒子と微小粒子の順位について Spearman の順位相関係数を求めると、町田・大田・足立において統計的有意となり、その係数はそれぞれ 0.52 ($p < 0.05$), 0.82 ($p < 0.001$), 0.62 ($p < 0.05$)であったことから、有害元素の順位に正の相関が確認できた。このことから、町田・大田・足立において、地点ごとに共通な汚染が粗大粒子と微小粒子の両方に及んでいることが示唆される。

全期間順位は、有害元素と同様に質量濃度にも当然適用できる。粒子状物質において最もよく測定される質量濃度とそれよりも測定頻度の少ない有害元素との関連を地点間

の順位の視点からみるため、質量濃度から求めた全期間順位と各元素の全期間順位と間における Spearman の順位相関を検討した。その結果、統計的有意になったのは、粗大粒子で Fe が 0.85 ($p < 0.05$) ,Ti が 0.78 ($p < 0.05$)であり、微小粒子で Fe が 0.88 ($p < 0.01$) ,Ti が 0.78 ($p < 0.05$) , Sb が 0.78 ($p < 0.05$)であった。このことから、全期間順位において粗大粒子と微小粒子のどちらも Fe と Ti が質量濃度と関連性があることがわかり、これらの元素における C/F 比がおよそ 1~2 の間にあったことを含め、今後検討していく必要がある。

さらに、地点間の順位をより明確にし、分析した有害元素全体として汚染レベルを総合評価するため、地点ごとに

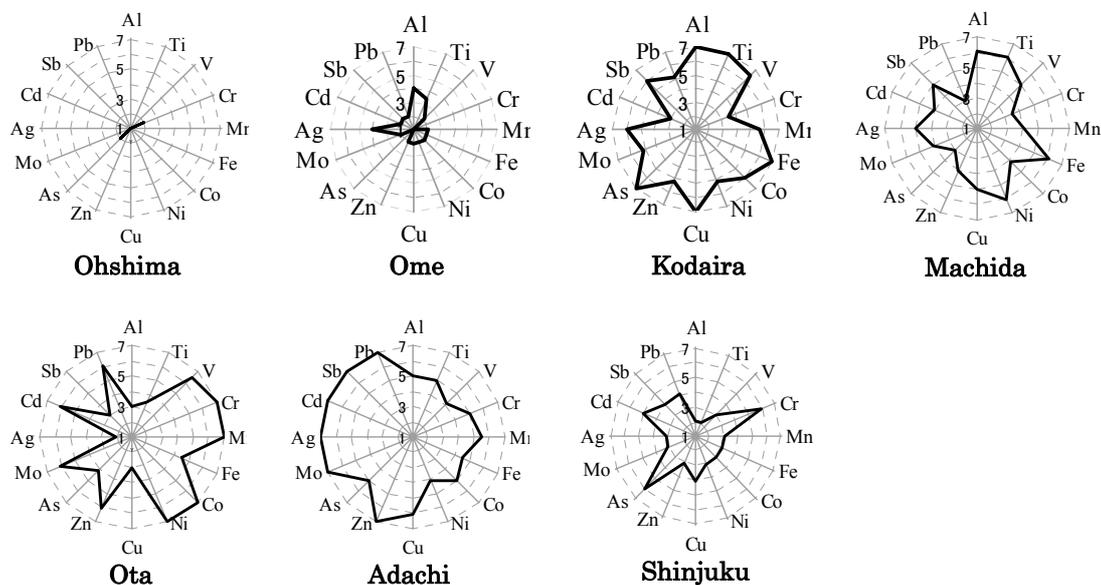


Fig. 7a. Comparing Ranks among Sampling Sites based on the Lowest Concentrations of Al to Pb in Coarse Particles collected between May 2002 and March 2003.

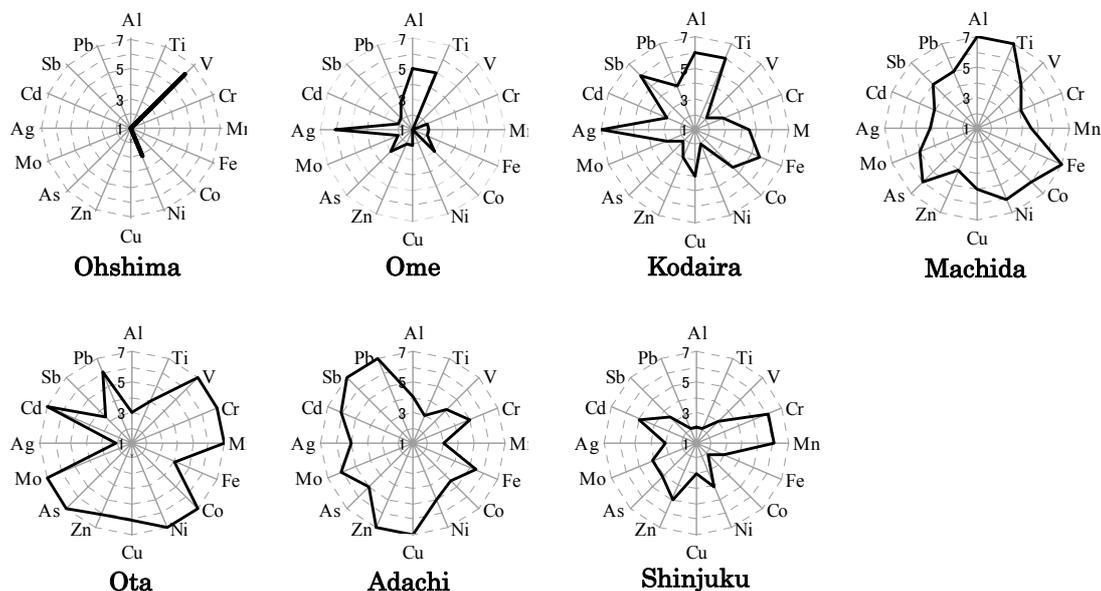


Fig. 7b. Comparing Ranks among Sampling Sites based on the Lowest Concentrations of Al to Pb in Fine Particles collected between May 2002 and March 2003.

Table 1. Reranking among Ranks summed up for Sixteen Elements in Coarse and Fine Particles collected at Seven Sites.

Site	Coarse	Fine
Ohshima	18 (1)	23 (1)
Ome	35.5 (2)	43 (2)
Kodaira	91.5 (7)	65.5 (4)
Machida	73.5 (4)	84.5 (6)
Ota	81.5 (5)	90.5 (7)
Adachi	91 (6)	84 (5)
Shinjuku	57 (3)	57.5 (3)

*Numbers in parentheses are ranks in a group.

16 元素それぞれの全期間順位を合計した総合順位を比較検討した(Table1)。全期間順位合計値は、粗大粒子で小平と足立、微小粒子では町田と足立との間で、0.5 の僅差であった。そのため、差をそのままにして総合順位として順位化することが Table1 のように方法としては可能であるが、この僅差を確実視できない可能性もある。したがって、全期間順位合計値から小さい順に並べ、粗大粒子で大島<青梅<新宿<町田 <大田<足立 小平、微小粒子で大島<青梅<新宿<小平<足立 町田<大田とすることの方が、僅差を有効とした再順位化の結果に比べ、今回の結果ではより適切と考える。

環境汚染情報を順位化して評価した報告は非常に少ない。そのひとつ¹³⁾は、ミネソタ州内に排出された 109 種の化学物質を急性と慢性毒性及び発癌性に区分した上で、本法とは異なる順位化によって評価しているものの、地点間の順位化という観点に至ってない。著者が用いた地点間の順位化法による評価は、測定地点の汚染度を総合的にかつ簡単明瞭に把握する上で有効であるばかりでなく、その他の地区情報を加味して、とくに健康指標や健康影響調査結果などと対応させて考察する上で貴重な手掛かりを与えるものと考えられる。

ま と め

大島、青梅、小平、町田、大田、足立及び新宿の 7 地点において毎月採取した大気中の粗大粒子と微小粒子について、次の 3 点が検討された。

- 1) 質量濃度は、粗大粒子が 3.4~26 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、微小粒子が 8.6~58 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、微小粒子での大島を除くと、ほぼ同様な時系列の変動パターンを示した。微小粒子の最低値 8.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (大島) は、社会活動がある都内でのバックグラウンド濃度を示唆する。
- 2) 16 有害元素濃度は、0.01 未満から 1,200 ng/m^3 までの非常に広範囲であった。このうち、Al・Fe・Ti では、C/F 比がおよそ 1~2 の間にあり、一定の傾向が認められた。一方、As・Cd・Pb では、C/F 比がどの地点でもほとんどが 0.2 以下と低く、微小粒子の汚染が少なからず全的に及んでいることを示唆する。
- 3) 広範囲な元素濃度と元素間を横断的に評価するため、濃

度を順位化する方法を考案した。この順位化によって、まず各地点の有害元素上の特徴が明瞭になった。都内では自然環境が良好な大島で、微小粒子の V 濃度が 2 番目に高いことが判明した。次に、地点ごとの 16 元素の順位を合計した値の順位は、粗大粒子で大島<青梅<新宿<町田 <大田<足立 小平、微小粒子で大島<青梅<新宿<小平<足立 町田<大田となり、地点の汚染レベルを総合的に比較できた。

大気中の微小粒子と粗大粒子における有害元素濃度を順位化する方法は、地点の汚染レベルを統合化することができ、健康影響調査結果などと対応させて利用するのに有効な手段のひとつとなり得る。

謝辞 本報告は、平成 15 年度において健康局地域保健部環境保健課によって実施された「大気中微小粒子等の健康影響調査」に関連して得たデータに基づいている。試料採取等にご協力いただいた環境保健課並びに保健所環境衛生監視員の方々に感謝します。

文 献

- 1) 東京都環境局:平成 14 年度大気汚染常時測定結果のまとめ、環境資料第 15058 号, 2003.
- 2) U.S. Environmental Protection Agency: *Air Quality Criteria for Particulate Matter Volume 1*, EPA/600/P-99/002aC, 2002.
- 3) Dockery, D.W., Pope, C.A., Xu, X. *et al.*: *New Engl. J. Med.*, **329**, 1753-1759, 1993.
- 4) Peters A., Dockery D.W., Muller J.E. *et al.*: *Circulation* **103**: 2810-2815, 2001.
- 5) Pope C.A. 3rd, Hansen M.L., Long R.W. *et al.*: *Environ. Health Perspect.*, **112**: 339-345, 2004.
- 6) Costa D.L., Dreher K.L.: *Environ. Health Perspect.*, **105** Suppl 5: 1053-1060, 1997.
- 7) Frampton M.W., Ghio A.J., Samet J.M. *et al.*: *Am. J. Physiol.*, **277**, L960-967, 1999.
- 8) 浮遊粒子状物質対策検討会:浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル, 267-284, 1997, 東洋館出版, 東京.
- 9) 栗田雅行, 大橋則雄, 上原真一:東京健安研七 年 報, **54**, 315-318, 2003.
- 10) Chow J.C., Watson J.G., Lu Z., Lowenthal D.H. *et al.*: *Atmos. Environ.*, **30**: 2079-2112, 1996.
- 11) Brook J.R., Lillyman C.D., Shepherd M.F. *et al.*: *J. Air Waste Manag. Assoc.*, **52**: 855-866, 2002.
- 12) Kang C., Sunwoo Y., Lee H.S. *et al.*: *J. Air & Waste Manage. Assoc.*, **54**: 432-439, 2004.
- 13) Wu, C.Y. and Pratt, G.C.: *J. Air & Waste Manage. Assoc.*, **51**, 1129-1141, 2001.