

[原著論文]

2013から2017年度の山口県山陽小野田市における大気環境 －PM_{2.5}の推移を中心として－

浅野 比¹⁾, 栗原 遼²⁾, 光永 晴美³⁾, 後河内 将士³⁾, 山下 貢治³⁾, 白石 幸英²⁾

1) 山陽小野田市立山口東京理科大学 共通教育センター

2) 山陽小野田市立山口東京理科大学 工学部 応用化学科

3) 山陽小野田市市民部 環境課 環境調査センター

Atmospheric Environment in Sanyo Onoda, Yamaguchi, Japan, from FY2013 to FY2017 － With a Focus on Variation of PM_{2.5} －

Hitoshi ASANO¹⁾, Ryo KURIHARA²⁾, Harumi MITSUNAGA³⁾,
Masashi USHIROGOCHI³⁾, Koji YAMASHITA³⁾, and Yukihide SHIRAISHI²⁾

1) Center for Liberal Arts and Sciences, Sanyo-Onoda City University

2) Department of Applied Chemistry, Faculty of Engineering, Sanyo-Onoda City University

3) Center for Environmental Research, Environment Section, Civic Department, Sanyo Onoda City

Abstract

This paper describes the atmospheric environment of Sanyo Onoda, Yamaguchi, Japan, in terms of the dust variation, particulate matter with an aerodynamic diameter of 2.5 μm or less (PM_{2.5}), suspended particulate matter (SPM), inorganic ion components in the particulate matter, sulfur dioxide (SO₂), and nitrogen dioxide (NO₂) for the FY2013–2017 period. The yearly mean amount of dust in the southern area was slightly higher than that in the northern area of Sanyo Onoda. The yearly mean PM_{2.5} concentration exceeded the annual environmental quality standard (15 $\mu\text{g m}^{-3}$) in each fiscal year; although the mean PM_{2.5} concentration tended to decrease over the years. For example, the yearly mean PM_{2.5} concentration in FY2017 (16.1 $\mu\text{g m}^{-3}$) decreased by 24.2% compared to the 2013 (21.2 $\mu\text{g m}^{-3}$). A similar trend was observed for SPM, SO₂, and NO₂. The yearly mean concentrations of SPM, SO₂, and NO₂ in 2017, were 19.4 $\mu\text{g m}^{-3}$ (14.7 %), 1.7 ppb (15.2 %), and 10.2 ppb (13.5 %), respectively (values in parentheses indicate the reduction rate based on the yearly mean concentration of each substance in FY2013). From 2013 to 2017, the environmental quality standards for each substance were achieved except for PM_{2.5}. Based on our analysis, it is expected that the annual environmental quality standard for PM_{2.5} will be achieved in FY2018.

KEY WORDS : Sanyo Onoda, PM_{2.5}, SPM, Sulfur dioxide, Nitrogen dioxide, Dust,
Ion components, Transboundary pollution

キーワード : 山陽小野田市, PM_{2.5}, SPM, 二酸化硫黄, 二酸化窒素, 降下ばいじん, イオン成分, 越境汚染

1. はじめに

山口県山陽小野田市（旧小野田市）は、1881年に日本初の民間セメント会社となるセメント製造会社¹⁾（のちの小野田セメント、現太平洋セメント）や日本舎密製造会社²⁾（現日産化学）が設立され、19世紀末より工場による大気汚染が始まった。戦前の記録はないが、同市では1959年に定例市議会において煙害対策特別委員会が発足し、翌年、1960年から降下ばいじん量及び二酸化鉛（ PbO_2 ）法（現在ではアルカリろ紙法³⁾）による硫黄酸化物（ SO_x ）濃度の測定が開始された。1962年には煙害対策委員会条例が制定され、地域の自主的な規制による大気汚染防止対策の推進が図られた。1967年から溶液導電率法（現在では紫外線蛍光法）による二酸化硫黄（ SO_2 ）濃度の連続測定が開始され、翌年1968年には工場等からのばい煙の排出量規制及び自動車排出ガスの許容限度を定めた大気汚染防止法が成立した。1972年より浮遊粒子状物質（Suspended Particulate Matter, SPM）、1974年には二酸化窒素（ NO_2 ）の測定が始められた。また、微小粒子状物質（ $\text{PM}_{2.5}$ ）は2011年より測定が開始され、現在まで連続的な観測が行われている。

高度経済成長の時期にあたる1960年から1973年におけるばいじん量は $10 \sim 20 \text{ t km}^{-2} \text{ month}^{-1}$ で、中程度からやや高度の汚染⁴⁾であり、 SO_x 濃度も $0.4 \sim 0.7 \text{ SO}_3 \text{ mg} \cdot \text{d}^{-1} \cdot 100 \text{ cm}^{-2}$ と軽微な汚染⁵⁾の状態であった。その後は行政及び企業の努力もあり、ばいじん量及び SO_x 濃度は減少し、大気環境の改善がみられ、大気環境が問題視されることはなくなってきた。しかしながら、2013年1月に中国の広域で $\text{PM}_{2.5}$ をはじめとした汚染物質が高濃度となる深刻な大気汚染が発生し⁶⁾⁷⁾、同時期に西日本でも高濃度の $\text{PM}_{2.5}$ が観測されたことから大気環境への関心が高まった。筆者らは2013年3月より山陽小野田市において大気中粒子状物質の成分分析を行い、天候、風向、気温、越境汚染などの影響について報告してきた^{8)~10)}。ここでは、大気汚染への関心が高まった近年、2013から2017年度の期間での同市における、降下ばいじん、 $\text{PM}_{2.5}$ 、SPM及び大気粒子状物質中の無機イオン成分に加え、ガス成分である SO_2 及び NO_2 の変化から、山陽小野田市における最近の大気環境について考察する。

2. 実験

2.1 降下ばいじん量測定及び大気中粒子状物質分析方法

降下ばいじん量の測定は、Fig. 1に示した（須恵健康公園及び山陽小野田市立山口東京理科大学（SOCU）を除く）19地点において、屋根や櫓の上に設置したデポジットゲージに降下ばいじんを降水とともに捕集し、捕集物の乾燥重量を測定後、1か月間の単位面積当たりの捕集量（ $\text{t km}^{-2} \text{ month}^{-1}$ ）として算出した。また、粒子中のイオン成分は以前に報告した手法⁸⁾¹⁰⁾と同様に測定した。以下に簡単に手順を示す。SOCU 5号館屋上（ 33.96° N , 131.19° E 、地表から約12 m）にて、真空ポンプを用い、石英フィルターに粒子を分級することなく採取した。粒子採取後の石英フィルターを半分にカットし、さらに4分の1にカットしたものを純水により超音波抽出を行った。抽出液をシリンジフィルターでろ過したものをイオンクロマトグラフィーに供し、無機イオン成分を分析した。2013年3月から2018年2月まで各季節、約30試料（3分の1）以上を採取し、5年間で858試料を得た。



Fig. 1 Location of the observation site. Open circles: north area. Gray circles and square: south area.

2.2 PM_{2.5}, SPM, SO₂及びNO₂データに関して

PM_{2.5}, SPM, ガス成分であるSO₂及びNO₂については、山口県が須恵健康公園 (33.97°N, 131.18°E) に設置している自動測定装置のデータを用いた。PM_{2.5}及びSPMはβ線吸収法、SO₂は紫外線蛍光法、NO₂についてはザルツマン法により分析している。

なお本稿では3月から翌年2月までを1年度とし、四季の分類に関しては気象庁の「気象観測統計指針」^[11]に従い、3～5月を春季、6～8月を夏季、9～11月を秋季、12月～翌年2月を冬季とした。

2.3 PM_{2.5}, SPM, SO₂及びNO₂の環境基準について

Table 1に本稿で取り上げた汚染物質であるPM_{2.5}, SPM, SO₂及びNO₂の環境基準^[12]を示す。なお、降下ばいじんについては環境基準がない。国は、「人の健康を保全する上で維持することが望ましい基準」としてTable 1に示す環境基準を定めている。また、PM_{2.5}に関しては、国が注意喚起のための暫定的な指針^[13]を定め、さらに山口県でも国の指針をもとに県の測定局設置状況を踏まえ、注意喚起等に係る対応方針^[14]を定めている。山陽小野田市では西部の区域での値が85 µg m⁻³を超えると防災メールにより注意喚起を行っている。またSO₂についても緊急時の発令基準がある。詳細については、本稿著者である光永らが作成した「平成28年度版山陽小野田市の環境」^[15]を参照されたい。

Table 1 Atmospheric environmental quality standard

Substance	Averaging time	Level
PM _{2.5} (µg m ⁻³)	1 day	35
	1 year	15
SPM (µg m ⁻³)	1 hour	200
	1 day	100
SO ₂ (ppb)	1 hour	100
	1 day	40
NO ₂ (ppb)	1 day	40-60

3. 結果と考察

3.1 降下ばいじんについて

降下ばいじんは自己の重量または雨によって沈降するばい煙、粉じんその他の不純物を表すものであり、化石燃料の燃焼などから生じる人為的なものや、土壌や海塩の巻き上げなどから生じる自然由来のものに分けられる^[16]。札幌市^[17]や川崎市^[18]など、測定を終了した自治体もあるなか、山陽小野田市では測定を開始し

た1960年以来、継続した測定を行っている。Fig. 2に2013から2017年度におけるばいじん量の年平均値の推移を示す。なお、平均値は市役所から北側に位置する測定点を北部（8地点）、市役所よりも南を南部（11地点）として、南部・北部に位置する測定点における平均値として算出した。これより、北部及び南部ともに2013及び2014年度は同程度のばいじん量で推移しているが、2015及び2016年度は増加し、2017年度に再び減少する傾向を示した。北部及び南部でのばいじん量の年度平均値の推移傾向は類似していたが、北部に比べ南部の方が年平均値で0.7 t km⁻² month⁻¹程度高値を示した。南部がやや北部より高値を示した原因として、南部には事業所が多いことと海洋に近いこと、海塩粒子などの飛散が考えられるが、明確な原因は不明である。ばいじん量測定が開始された1960年頃は大気汚染が深刻であり、ばいじん量も多く、測定法も比較的簡便であったため、多くの地点で長期にわたり測定が行われてきた。以前は北部と南部の差異も大きかったが、近年では人為起源由来の成分が減少しており、地域間の差はなくなりつつある。

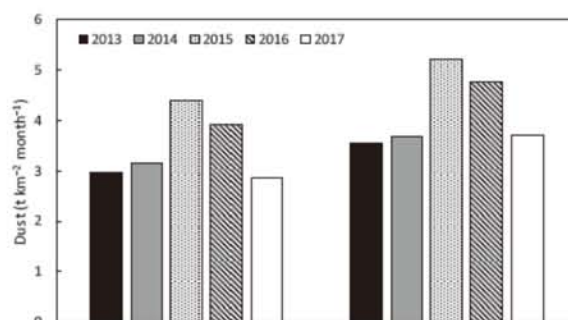


Fig. 2 Comparison of yearly mean observed dust concentration between north area and south area at Sanyo Onoda from FY2013 to FY2017.

3.2 PM_{2.5}について

PM_{2.5}は大気中に浮遊する粒径2.5 µm以下の粒子で、燃焼によって直接排出される1次粒子とSO₂やNO₂などの大気中のガス成分から生成する2次粒子がある。固定排出源として、ボイラー、焼却炉、コークス炉などがあり、移動発生源として自動車、船舶、航空機などがある。一方、先の人為発生源に対し、自然発生源としては土壌、海洋、火山などがある。PM_{2.5}は粒径が小さいため肺の深部まで入りやすく、呼吸器系疾患や循環器系への影響も懸念されている^[19]。

Fig. 3に山陽小野田市須恵健康公園におけるPM_{2.5}の年度平均及び1日環境基準値である35 µg m⁻³を超過し

た日数を示す。2013及び2014年度の平均値はおよそ21 $\mu\text{g m}^{-3}$ であったが、2015年度には17.8 $\mu\text{g m}^{-3}$ に減少し、2016年度17.0 $\mu\text{g m}^{-3}$ 、2017年度16.1 $\mu\text{g m}^{-3}$ とわずかながら減少傾向が続いている。いずれの年度も1年平均環境基準値の15 $\mu\text{g m}^{-3}$ は達成されていないものの、2013年度を基準とした2014から2017年度の減少率は、それぞれ0.7 %、16.3 %、20.1 %及び24.2 %となっており、2014から2015年度に激減し、その後も約4 %の割合で年々減少している (Fig.4)。2018年3月から測定データが報告されている2018年10月までの8か月のPM_{2.5}の月平均値は11.6 $\mu\text{g m}^{-3}$ であり、冬季はやや増加が予想されるものの、2018年度には測定開始後初めて環境基準を達成できると予想される。同様なPM_{2.5}の減少傾向は山口県内でも見られ、ローカルな汚染のほとんどない萩市 (萩健康福祉センター) 及び山陽小野田市のように事業所の多い周南市 (宮の前児童公園) におけるPM_{2.5}の年度平均濃度はそれぞれ、萩市:14.9 $\mu\text{g m}^{-3}$ (2013年度)、14.3 $\mu\text{g m}^{-3}$ (2014年度)、

12.1 $\mu\text{g m}^{-3}$ (2015年度)、11.9 $\mu\text{g m}^{-3}$ (2016年度)、9.5 $\mu\text{g m}^{-3}$ (2017年度)、周南市:18.5 $\mu\text{g m}^{-3}$ (2013年度)、17.3 $\mu\text{g m}^{-3}$ (2014年度)、15.8 $\mu\text{g m}^{-3}$ (2015年度)、15.5 $\mu\text{g m}^{-3}$ (2016年度)、14.8 $\mu\text{g m}^{-3}$ (2017年度)であった。山陽小野田市のPM_{2.5}濃度は県内の他市と比較し、2~6 $\mu\text{g m}^{-3}$ 程度高値を示した。一方、2013及び2014年度における1日環境基準値 (35 $\mu\text{g m}^{-3}$) を超過した日数は、それぞれ35及び33日であったのに対し、2015年以降はPM_{2.5}の年平均濃度の減少にともない、14日以下に減少している。山陽小野田市は大陸と近いとため、粒子濃度が高くなる一因として、越境汚染^{8~10)}が考えられる。PM_{2.5}の最近の減少傾向は全国的にも見られ⁷⁾、著者ら¹⁰⁾が以前報告したように、中国の大気環境の改善が影響しているものと考えられる。Fig. 5に山陽小野田市須恵健康公園におけるPM_{2.5}の月平均値の推移を示す。各年度において、概ね春季に高値、夏季及び秋季は低値を示し、冬季に再び高くなる傾向を示している。ここで、粒子中の成分からその発

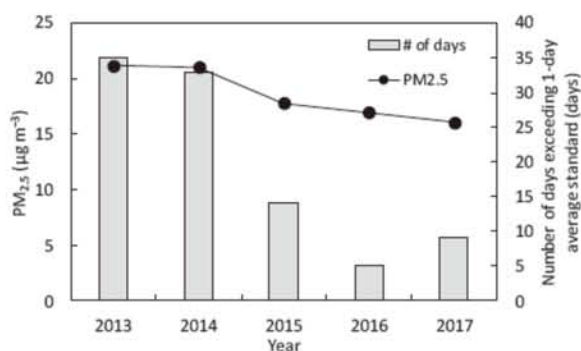


Fig. 3 Yearly mean observed PM_{2.5} concentration for Sanyo Onoda and the number of days exceeding the daily mean PM_{2.5} standard (> 35 $\mu\text{g m}^{-3}$) between March 2013 and February 2018.

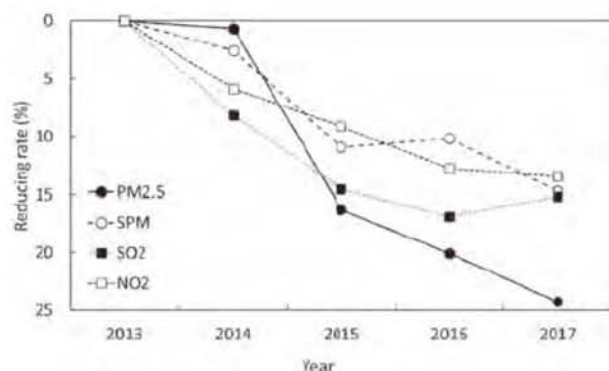


Fig. 4 Yearly reducing rate of PM_{2.5}, SPM, SO₂, and NO₂ concentration for Sanyo Onoda between March 2013 and February 2018 based on FY2013 data for each substance.

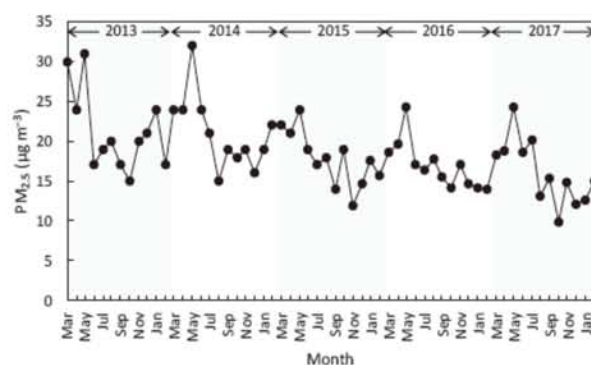


Fig. 5 Monthly mean observed PM_{2.5} concentration for Sanyo Onoda between March 2013 and February 2018.

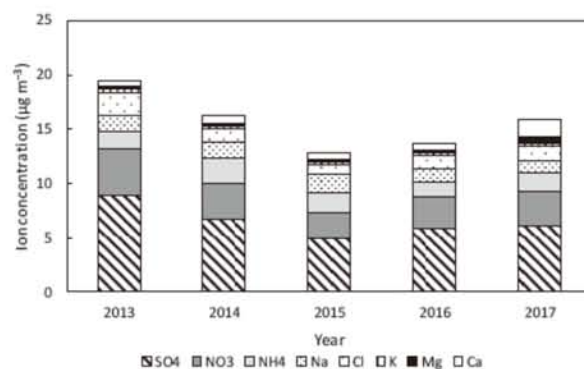


Fig. 6 Yearly mean variation of the components of atmospheric particulate matter in Sanyo Onoda between March 2013 and February 2018.

生起源を推測するため、粒子中のイオン成分について調べた結果を Fig. 6 に示す。ここに示すように、硫酸イオン (SO_4^{2-})、硝酸イオン (NO_3^-) 及びアンモニウムイオン (NH_4^+) が測定成分の70~76 % を占めており、主成分であることがわかった。これらは主に化石燃料の燃焼等から発生する人為由来成分³⁰⁾と考えられる。2015年度以降におけるこれら3成分は2013及び2014年度と比較して少ないが、2016及び2017年度はやや増加している。2016年度はカルシウムイオン及びマグネシウムイオンが増加しており、特に2017年度は顕著である。これは本学薬学部の建設に伴い、建設現場での掘削、セメントの使用、土壌の巻き上げ等の工事に起因するものと考えられる。 SO_4^{2-} 及び NO_3^- の増加は建設現場の重機の影響も考えられるが、推測の域を出ない。 SO_4^{2-} 及び NO_3^- は SO_2 及び NO_2 を前駆体としているため、市内の SO_2 及び NO_2 濃度の推移について3.4及び3.5で述べる。

3.3 SPM について

SPM は粒径10 μm 以下の大気中に浮遊する粒子で、人為起源由来成分が多い $\text{PM}_{2.5}$ と比較して粒径が大きいため、発生源は海洋や土壌など自然発生源の成分が多い²¹⁾。喘息やアレルギー疾患などとの関連性が指摘され、 $\text{PM}_{2.5}$ よりも早い時期 (1970年代) に測定が開始され、大気汚染の指標となっていた。

Fig. 7 に山陽小野田市須恵健康公園における SPM の月平均値の推移を示す。各年度において、概ね春季から初夏に高値を示し、秋季及び冬季は低くなる傾向を示している。Fig. 8 (a) に示す SPM の年度平均値は20 $\mu\text{g m}^{-3}$ 程度で推移しており、1年環境基準値である100 $\mu\text{g m}^{-3}$ を大きく下回っている。SPM の年

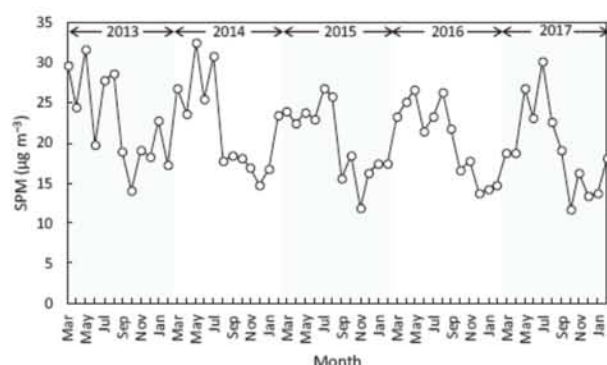


Fig. 7 Monthly mean observed SPM concentration for Sanyo Onoda between March 2013 and February 2018.

度平均値及び2013年度を基準とした2014から2017年度の減少率 (Fig. 4) は $\text{PM}_{2.5}$ と概ね同様の傾向を示し、年々減少傾向であることがわかる。SPM は2017年5月8日のみ1日平均値が101 $\mu\text{g m}^{-3}$ となり、環境基準値を超過した。

3.4 SO_2 について

硫黄を含む化石燃料の燃焼や火山活動などから発生する SO_2 は主に SO_2 , SO_3 であるが、約80 % が SO_2 である²²⁾。ガス状物質である SO_2 は、水に溶けやすいため、気管、気管支などで吸収され、慢性気管支炎や気管支喘息を誘発する。また、 SO_2 の水への親和性により、雨粒へ取り込まれ、酸性雨の原因となるだけでなく、酸化や不均一反応を経て、粒子化するため、粒子状物質の前駆体でもある。山陽小野田市では、このように人体や環境へ影響を及ぼす SO_2 の測定を1960年から (紫外線蛍光法は1967年から) 継続して行っている。ここ最近 (2013から2017年度) は1時間値及び1日平均値が環境基準値 (それぞれ100 ppb 及び40 ppb) を超えることはなく、年平均値も1.6~2.0 ppb で推移している (Fig. 8 (b))。2013年度の SO_2 濃度をもとにした減少率は、 SO_2 濃度がシングル ppb と低いこともあるが、Fig. 4に示すように2016年度までは17 % の減少を示し、2017年度には減少率が15 % に若干低下していた。このように SO_2 濃度が年々減少する傾向は、以前に報告した中国 (北京) における SO_2 鉛直カラム濃度の減少傾向¹⁰⁾ と類似しており、中国大気環境の改善によるものと推測される。Fig. 9に示す SO_2 の月平均値の推移から分かるように、概ね春季及び夏季に増加し、秋季及び冬季に減少するような傾向であった。Fig. 6に示した粒子中の SO_4^{2-} 成分と SO_2 には良い相関

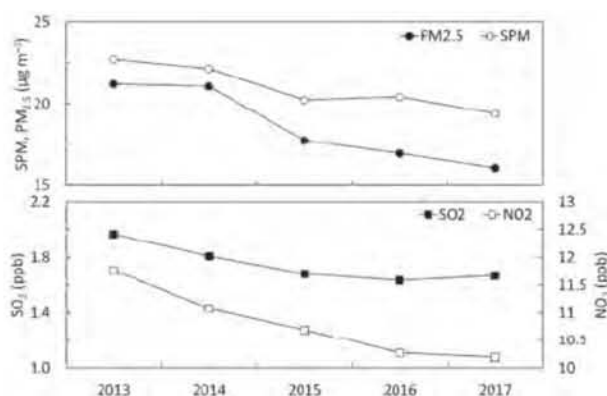


Fig. 8 Yearly mean of $\text{PM}_{2.5}$, SPM, SO_2 , and NO_2 concentration for Sanyo Onoda between March 2013 and February 2018.

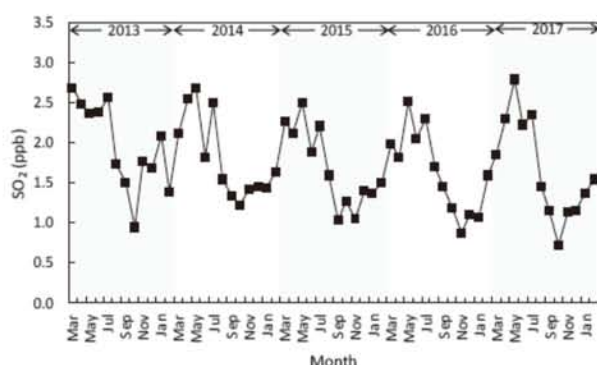


Fig. 9 Monthly mean observed SO₂ concentration for Sanyo Onoda March 2013 and February 2018.

があり ($r = 0.929$, $p < 0.05$), 2017年度における粒子中の SO₄²⁻の増加には, 工事に伴う重機等の影響よりも, 大気中の SO₂濃度の増加によるものと示唆された。

3.5 NO₂について

NO₂は SO₂と同様に化石燃料の燃焼に伴い発生し, ヒトの鼻粘膜への刺激症状, 気管支炎, 肺気腫などの呼吸器疾患の原因となる²³⁾。また NO₂は上述の健康被害に加え, 酸性雨の原因や粒子状物質の前駆体²⁴⁾でもある。近年問題となっている光化学オキシダント (主にオゾン) の生成に直接関与する前駆体¹⁹⁾であるため, 観測が必要な物質の一つである。

Fig. 10に NO₂の月平均値の推移を示す。これより, いずれの年度においても NO₂濃度は春季に高く, 概ね夏季, 秋季に低くなり冬季に高くなる傾向を示している。Table 2に各成分の月平均濃度の相関係数を示す。これより, PM_{2.5}, SPM 及び SO₂はそれぞれ0.8程度の相関係数を持ち, 良い相関を示しているが, NO₂のみ他成分との相関が良くない。明確な理由については不明であるが, NO₂は粒子状物質 (NO₃⁻) との平衡

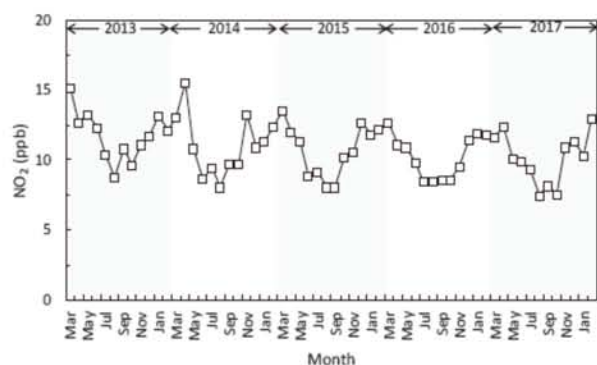


Fig. 10 Monthly mean observed NO₂ concentration for Sanyo Onoda between March 2013 and February 2018.

や, 他の酸化窒素との平衡, オゾン生成など反応が多岐にわたっているため, 他の成分とやや挙動が異なると考えられる。また, 2015年度以降は NO₂濃度も1年を通じて減少しており (Fig. 4), Fig. 8の年度平均に示した他成分の結果と同様に, 年々減少傾向であることが明らかとなった。以前報告した中国 (北京) における NO₂鉛直カラム濃度は緩やかではあるが年々減少傾向¹⁰⁾を示しており, 山陽小野田市における NO₂濃度の低下は, SO₂と同様に中国の大気環境の改善が一因であると考えられる。Fig. 6に示した粒子中の NO₃⁻成分と NO₂には相関がみられたものの ($r = 0.721$), 相関の有意性は認められなかった。Table 3に各成分の平均濃度及び環境基準値 (1年または1日基準値) をまとめて示す。

結論

本稿では2013から2017年度の期間における山陽小野田市での降下ばいじん量, PM_{2.5}, SPM, SO₂及び NO₂濃度の推移から, 本市の大気環境に関して論じた。降下ばいじん量は市内の北部よりも南部がやや高値を示していた。また, 微小な粒子である PM_{2.5}は, 1年環境基準は達成されていないものの, 年々減少傾向にあることが明らかとなった。この一因として, 粒子中の人為由来成分が減少していることから, 中国の大気環境の改善が影響していることが示唆された。このまま PM_{2.5}の減少傾向が継続すれば, 2018年度は環境基準を達成できるものと期待できる。大きな粒子である

Table 2 Correlation coefficient between the substances in the atmosphere

	PM _{2.5}	SPM	SO ₂
SPM	0.778		
SO ₂	0.752	0.806	
NO ₂	0.440	0.047	0.344

Table 3 Yearly mean substances in the atmosphere and environmental quality standard

	2013	2014	2015	2016	2017	Std
PM _{2.5} (μg m ⁻³)	21.2	21.1	17.8	17.0	16.1	15 (1year)
SPM (μg m ⁻³)	22.7	22.1	20.2	20.4	19.4	100 (24h)
SO ₂ (ppb)	2.0	1.8	1.7	1.6	1.7	40 (24h)
NO ₂ (ppb)	11.8	11.1	10.7	10.3	10.2	40-60 (24h)

SPM も PM_{2.5}の推移と類似して減少傾向にあり、1 年環境基準値を大幅に下回っていた。2013年度を基準とした2017年度の PM_{2.5}及び SPM の減少率はそれぞれ 24 % 及び 15 % であった。一方、大気汚染物質の代表的なガス成分である SO₂及び NO₂の過去 5 年の平均値はそれぞれ 1.8 ppb 及び 11 ppb であったが、ガス成分も粒子と同様に年々減少傾向にあった。また、2013年度を基準とした2017年度の SO₂及び NO₂の減少率はそれぞれ 15 % 及び 13 % であった。今後も、大気改善が進むと予想されるが、継続した観測が必要である。

謝 辞

本研究は山陽小野田市立山口東京理科大学地域卒業研究費の助成を受けたものです。ここに記して、関係者各位に深く謝意を表します。また、SPM, PM_{2.5}, SO₂及び NO₂のデータは山口県が設置している自動測定装置により測定したものを用いました。重ねてお礼申し上げます。

引用文献

- 1) 台信富寿：化学と工業，**65**, 547 (2012)。
- 2) 北嶋 昭，新井和孝：化学と工業，**63**, 562 (2010)。
- 3) H. Mitsunaga, K. Yamashita, Y. Shiraishi, H. Asano: *Bunseki Kagaku*, **67**, 743 (2018)。
- 4) 岩手県大船渡市：“環境基準等一覧 巻末資料”，available from <<https://www.city.ofunato.iwate.jp/www/contents/1329297722326/html/common/other/4f3b79a2028.pdf>>, (accessed 2018-11-18)。
- 5) 寺部本次：“大気汚染測定法の実際”，p.83 (1969)，(技報堂)。
- 6) 米持真一，陈 炫，缪 萍萍，吕 森林，王 効挙，梅沢夏実：大気環境学会誌，**48**, 140 (2013)。
- 7) 鷗野伊津志，弓本桂也，原 由香里，板橋秀一，金谷有剛，杉本伸夫，大原利真：大気環境学会誌，**48**, 274 (2013)。
- 8) H. Asano, T. Hasegawa, Y. Shiraishi: *Bunseki Kagaku*, **64**, 775 (2015)。
- 9) H. Asano, T. Aoyama, Y. Mizuno, Y. Shiraishi: *ACS Earth and Space Chem.*, **1**, 580 (2017)。
- 10) H. Asano, Y. Shiraishi: *Bunseki Kagaku*, **67**, 355 (2018)。
- 11) 気象庁：気象観測統計指針，p.2 (2013)。
- 12) 環境省：“大気に係る環境基準”，<<http://www.env.go.jp/kijun/taiki.html>>, (accessed 2018-11-18)。
- 13) 環境省：“微小粒子状物質 (PM2.5) に関する情報，注意喚起のための暫定的な指針”，<<https://www.env.go.jp/air/osen/pm/info.html#GUIDELINE>>, (accessed 2018-11-18)。
- 14) 山口県：“PM2.5の注意喚起等に係る対応方針”，<<http://www.pref.yamaguchi.lg.jp/cmsdata/f/5/9/f5918c859e42660be3d6175870a7ed3d.pdf>>, (accessed 2018-11-18)。
- 15) 山陽小野田市：“平成28年度版山陽小野田市の環境”，(2016)。
- 16) T. Okubo, M. Ohsawa, F. Kano, H. Seki, K. Yaguchi: *Ann. Rep. Tokyo Metr. Inst. Pub. Health*, **59**, 295 (2008)。
- 17) 札幌市：“降下ばいじん”，<http://www.city.sapporo.jp/kankyo/taiki_osen/kekka/dustfall/index.html>, (accessed 2018-11-18)。
- 18) 川崎市：“降下ばいじん調査”，<<http://www.city.kawasaki.jp/300/page/0000053772.html>>, (accessed 2018-11-18)。
- 19) Y. F. Xing, Y. H. Xu, M. H. Shi, Y. X. Lian: *J. Thorac. Dis.*, **8**, E69 (2016)。
- 20) Z. Wu, Y. Wang, T. Tan, Y. Zhu, M. Li, D. Shang, H. Wang, K. Lu, S. Guo, L. Zeng, Y. Zhang: *Environ. Sci. Technol. Lett.*, **5**, 160 (2018)。
- 21) T. Aoyama, J. Kambe, U. Nagashima, E. Nakayama: *J. Comput. Chem. Jpn.*, **8**, 13 (2009)。
- 22) 田中 茂，橋本芳一：日本化学会誌，**5**, 712 (1977)。
- 23) D. L. Jarvis, B. P. Leaderer, S. Chinn, P. G. Burney: *Thorax*, **60**, 474 (2005)。
- 24) H. Simon, A. Reff, B. Wells, J. Xing, N. Frank: *Environ. Sci. Technol.*, **49**, 186 (2015)。