

道路近傍大気中における超微小粒子の挙動

The behavior of ultra-fine particles in the roadside atmosphere

関口 和彦*, 安原 正博*, 王 青躍*, 坂本 和彦*

Kazuhiko SEKIGUCHI, Masahiro YASUHARA,
Qingyue WANG and Kazuhiko SAKAMOTO

Field measurements of size-resolved particle number concentrations of PM_{2.5} and ultra-fine particles (UFPs) (< 0.3 μm) were performed using an ultra-fine particle counter (UFPC) at roadside and indoor/outdoor of a building located about 50 m away from the roadside. Similar behavior of both UFP and PM_{2.5} were found for number concentrations at all measuring sites, and it was made clear that the wind speed influences UFP concentration more significantly than rainfall. In addition, high correlations between UFP concentration and nitrogen monoxide (NO) and elemental carbon (EC) concentrations indicated that the particles emitted from motor vehicles, particularly diesel emission particles, are transported near the building and penetrated into the indoor space of the building. Furthermore, since the indoor/outdoor ratios (I/O ratios) of UFP and PM_{2.5} increased when a fan ventilator was used, it was thought that UFP and PM_{2.5} come into the building through the gaps between windows and doors with the walls.

Keywords: Ultra-fine particles (UFPs), PM_{2.5}, Diesel emission particles, I/O ratio, Ventilation

1. はじめに

大気中に存在する粒子状物質は、直径数十μm から数 nm まで連続的に分布しており、一般に超微小粒子 (Ultra-Fine Particle; UFP) と称される粒径 0.1 μm 以下の粒子は、質量濃度としての寄与は小さいが、個数あるいは表面積濃度では大気中粒子の大部分を占める[1]。UFP の発生源は、燃焼などの一次排出に加え、光化学反応などによる二次生成も存在するが、身近な健康影響の観点[2] から、自動車排気、特にディーゼル排気中に含まれる UFP が、注目されるようになってきた。これは、UFP が呼吸の際に肺胞上皮を通過して肺間質に入り、リンパ管や血管内に運び込まれて循環器障害を引き起こす[3]、あるいは、

生殖系および脳神経系といった生体維持において最も重要な高次機能にディーゼル排気中 UFP が影響を与える[4, 5]などの報告によるものである。

その一方で、先進国の人々は、室内空間において生活の 80% 以上の時間を費やすとの報告もあり[6]、実際の健康影響を考えていく場合には、一般大気だけでなく、室内も含めた形での UFP に対する濃度評価、成分分析、リスク評価が緊急な課題となっている。

最近では、UFP の数濃度から大気挙動を調査する試みとして、道路近傍における動態や長期変動の観測[7-9]、道路からの距離別にみたバックグラウンド濃度の観測[10-13]などが行われるようになってきたが、UFP と PM_{2.5} の数濃度変化を粒径別に同時に連続測定した結果や道路近傍における UFP の挙動調査を室内外にわたって行った結果の報告例は少ない。

そこで、本研究では、これまで筆者らが開発してきた、UFP および PM_{2.5} の数濃度を粒径別に連続観測できる超

*埼玉大学 大学院理工学研究科 環境制御工学専攻
Department of Environmental Science and Human Engineering, Graduate School of Science and Engineering, Saitama University, 255 Shimo-Okubo, Sakura-ku, Saitama, 338-8570, Japan

微小粒子測定装置 (Ultra-fine particle counter; UFPC)[14]を用い、フィールドでの装置性能評価の一環として、都市部郊外の道路近傍およびそこから 50 m 離れた建物室内外において UFP と PM_{2.5} の数濃度測定、ならびに PM_{2.5} のフィルタ捕集を行い、UFP と PM_{2.5} の大気挙動を、気象影響ならびに車種別交通量も考慮した形で室内外同時に評価した。その際、UFP 数濃度と PM_{2.5} 中成分 (イオン成分、炭素成分) との関係についても調査した。

なお、本研究成果報告は、掲載予定論文 (関口ら, エアロゾル研究, 21(2), 2006) の内容を抜粋、編集したものである。

2. 実験方法

2.1 超微小粒子測定装置(UFPC)

本研究で用いた新規開発の UFPC は、道路沿道等に設置して使用可能な安価で操作性の高い装置であり、UFP と同時に PM_{2.5} 数濃度の測定も可能な機能を備えるとともに、将来の広域モニタリング等に利用可能なリアルタイムのデータ通信システムも組み込んだものである。その概要を Fig. 1 に示す。

試料導入部から導入された粒子(PM_{2.5})は、1 段目の希釈後、レーザー光を用いた光散乱方式による粒子検出部で光学的に分級され、粒径別に数濃度が計測される。粒径 0.3 μm 以下の超微小粒子は通常のレーザー光による光散乱方式ではほとんど感度が得られないため、測定粒径範囲は、0.3-0.5 μm、0.5-1.0 μm、1.0-2.0 μm、2.0-2.5 μm の 4 段階となる。

その後、導入粒子を凝縮核粒子測定装置(CNC)に導入し、プロピレングリコールの過飽和雰囲気にて 0.3 μm 以下の超微小粒子を凝縮成長させた後、レーザー光を用いた光散乱法により再度粒子数を測定する。この測定値には 0.3 μm 以上の粒子も含まれるが、数濃度として影響を与えるほどではないため、CNC での測定値は、0.01-0.3 μm の粒子数として計測される。本研究では、装置の性能上、この 0.01 ~ 0.3 μm の粒子を超微小粒子(UFP)と称する。

2.2 観測地点と項目

観測地点の概略地図を Fig. 2 に示す。測定地点は、さいたま市内の国道 463 号沿いにある埼玉大学キャンパス

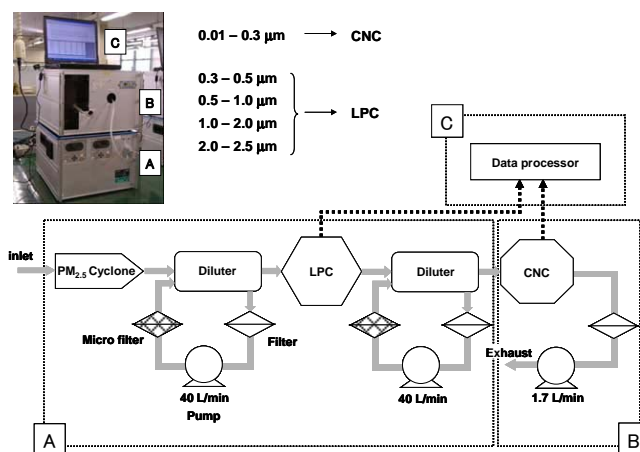


Fig. 1. Structure of the UFPC system.

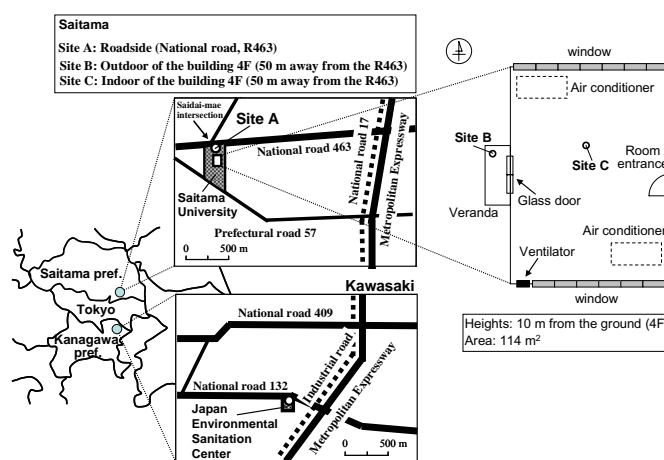


Fig. 2. Map of the monitoring locations, Saitama and Kawasaki (left) and the room layout in the building 4F (right).

内 (以下の 3 ヶ所の測定サイト) である。

Site A : 国道 463 号沿い (埼玉大前交差点付近)

Site B : Site A の南東 50 m、総合研究機構棟 4 階、429 号室 (空室) のベランダ

Site C : 同 429 号室 (空室) の室内中央

以下に各観測地点における観測項目 (測定装置) 期間をまとめる。なお、PM_{2.5} のフィルタ捕集は、粒径 2.5 μm 用 50 % cut-offサイクロンのついたフィルタパックを用い、900 °C で 2 時間前処理した 47φ の石英フィルタ上に流速 16.7 L/min にて、6:00 ~ 17:30、18:00 ~ 翌 5:30 の 11.5 時間ずつ捕集した。捕集後は、ペトリスライドおよびラミジップに入れ、-40 °C で分析まで保管した。また、自動測定装置として、大気中窒素酸化物(NO_x)計 (GLN-32, DKK 製) を用いた。

<さいたま、Site A-C>

観測項目：粒子数濃度(UFPC)、PM_{2.5}中硝酸塩濃度(フィルタ捕集)、PM_{2.5}中硫酸塩濃度(フィルタ捕集)、PM_{2.5}中炭素成分濃度(フィルタ捕集)、一酸化窒素(NO)濃度(Site B, Cのみ)

観測期間：2004年12月1日から12月15日(冬期)

2.3 交通量の調査

さいたま市の Site A において録画した映像より、観測期間中に Site A を通過した交通量の調査を行った。自動車は、乗用車(二輪、ワゴンを含む)と大型車(トラック、バス)の2種に分類した。

調査方法としては、1時から1時10分までの10分間に通過した自動車の台数をカウントし、その値を6倍した値を、1時から2時の間に通過した自動車の台数とし、データ整理の際には、これを、2時の台数として用いた。以降、各時間帯は同様の方法によりカウントした。

2.4 フィルタ分析

PM_{2.5}を捕集した石英繊維フィルタについて、イオンクロマトグラフ(DX-100, DIONEX製)によるイオン成分(硝酸塩、硫酸塩)の分析、および熱光学式炭素分析装置(Thermal-Optical Carbon Analyzer (TOCA), Model-2001, DRI製)による炭素成分(有機炭素(OC)および元素状炭素(EC))の分析を行った。

イオン成分は、石英繊維フィルタを13mmφにくり抜き、それをバイアル瓶に入れ、5mLもしくは10mLの超純水で20分間超音波抽出した後、抽出液をイオンクロマトグラフに導入し分析した。炭素成分は、石英繊維フィルタを8mmφにくり抜き、TOCAに導入し分析した。分析条件は、IMPROVE法[15]を用いた。

3. 結果と考察

3.1 粒子数濃度の推移と距離影響

2004年12月1日から12月15日(冬期)の観測期間中における大気中粒子数濃度の10分間値、および風速、降水量の1時間値の推移をFig. 3に示す。なお、前述した

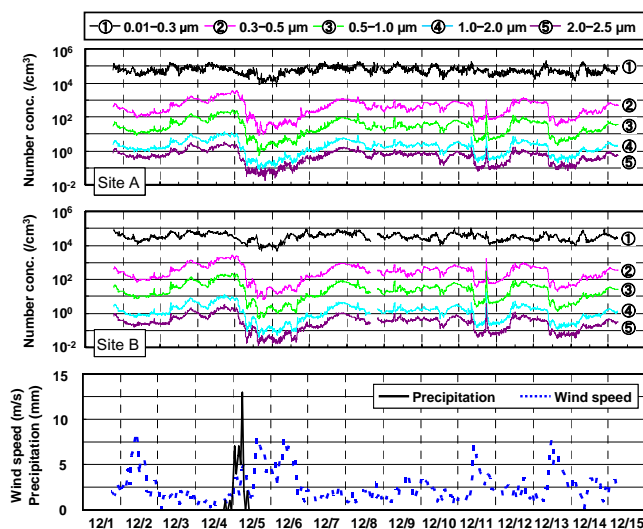


Fig. 3. Behavior of particle number concentrations at the two sites, A and B, and meteorological parameters during the measurement period.

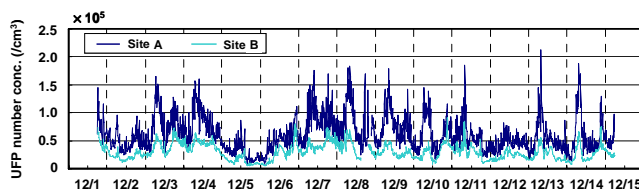


Fig. 4. Comparison of UFP number concentrations between Site A and Site B.

ように、粒径 0.1 μm 以下の粒子を一般的に超微小粒子(UFP)と呼ぶが、本研究では、便宜上 0.3 μm 以下の粒子を UFP と称する。

Fig. 3 において、粒径 0.01 ~ 0.3 μm の粒子(以降 UFP と記す)の数濃度に注目すると、短時間での細かい濃度変動は見られるものの、観測期間を通して 10⁴ ~ 10⁵ (cm⁻³) の数濃度レベルで比較的安定に推移していた。それに対し、粒径 0.3 μm 以上の 4 粒径範囲の粒子は、UFP とは異なった濃度変動を示し、4 粒径範囲間では同様の濃度推移であった。粒径 0.3 ~ 0.5 μm の粒子の数濃度でさえも、平均で UFP の数濃度の約 100 分の 1 程度の寄与割合であり、UFP が数濃度として大気中粒子状物質の大部分を占めるということが再確認[1]された。

ここで、Site A と Site B の UFP 数濃度の推移を比較するため、両地点における観測期間中の UFP 数濃度の推移を Fig. 4 にまとめた。

道路緑色から 5 m に位置する Site A の UFP 数濃度は、Site A の南東 50 m に位置する Site B の UFP 数濃度よりも、平均して 2 倍程度大きな値で推移していた。また、Site A

の UFP 数濃度には、短時間での激しい変動が見られた。国道 463 号は一週間を通して交通量が多い道路であり、Site A は、信号機のある埼大前交差点の南東側、手前車線から見れば交差点のやや上流側に位置しており、自動車が減速や発進、アイドリング等を繰り返す地点である。これより、Site A の UFP 濃度が、Site B よりも高く、短時間で激しく変動したのは、自動車排気が UFP の主な発生源であることを示している。本研究では、その詳しい粒径分布は測定していないが、自動車から排出される粒子状物質の数濃度や粒径分布は、エンジンの稼働条件の違いにより、大きく異なることが報告されており、この影響が顕著に出たものと推察される[16]。

一方で、観測期間中の粒子数濃度の推移の傾向は、Site A と Site B とで似通ったものであった。観測期間中の風向別出現率を調査した結果、主として北西の風が支配的であり、Site A、Site B とともに国道 463 号の風下となっていた。これより、両地点が自動車排気という同一の発生源の影響を受けていたために、似通った濃度推移を示したものと推察した。

3.2 粒子数濃度への気象条件の影響

Fig. 3 において、粒子数濃度の推移に注目すると、12月5日早朝から12月6日正午にかけて、12月11日10時頃、12月13日正午頃に、粒径 $0.3 \mu\text{m}$ 以上の粒子の数濃度が大幅に減少している。それらの期間には、共通して風速 $7 \sim 8 \text{ m/s}$ のやや強い風が観測されており、12月5日1時から6時には、 $5 \sim 13 \text{ mm}$ 程度の降雨が観測されている。したがって、粒径 $0.3 \mu\text{m}$ 以上の粒子の大幅な濃度減少は、強風による希釈・沈着効果や降雨によるウォッシュアウト等の湿性沈着の影響を受けたものと考えられる。

その一方で UFP の数濃度は、強風や降雨が観測された期間においても、粒径 $0.3 \mu\text{m}$ 以上の粒子ほど大幅な濃度減少を示していないが、強風よりは降雨の影響を若干受ける傾向が確認できた。UFP は、短時間の強風や降雨では粒子数の減少を示さず、さらに、降雨時とその後には、むしろ粒子数が増加する傾向を示すとの報告もあり[17]、 $0.01 \sim 0.3 \mu\text{m}$ の範囲を UFP として観測している本研究においては、降雨による影響が粒子数増加と減少の双方に働いた可能性があり、結果として、若干の減少傾向を示

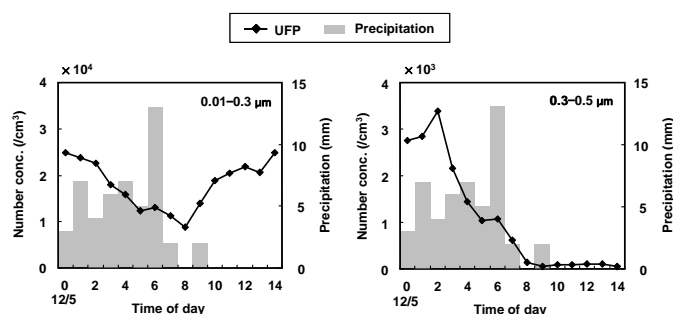


Fig. 5. Variation of particle number concentrations at Site B and precipitation in December 5, 2004.

したものと推察した。

ここで、降雨が観測された12月5日のSite BにおけるUFPおよび粒径 $0.3 \sim 0.5 \mu\text{m}$ の粒子数濃度の1時間値の推移を、降水量とともに Fig. 5 に示す。降雨後の粒子数濃度の推移に注目すると、両粒径範囲の粒子数濃度に明確な違いが確認された。粒径 $0.3 \sim 0.5 \mu\text{m}$ の粒子は、最低濃度を示した後も低濃度が継続したのに対し、UFP の数濃度は、最低濃度を示した時間の6時間後には降雨前の濃度まで回復した。粒径 $0.5 \mu\text{m}$ 以上の粒子数濃度についても、粒径 $0.3 \sim 0.5 \mu\text{m}$ の粒子数濃度と同様の傾向を示した。

このUFPの急速な増加は、自動車排気等からの直接的な一次排出と、ガス状物質の凝縮（均一核形成）による二次生成が考えられるが、後述するUFP数濃度と $\text{PM}_{2.5}$ 中成分との相関から、Site B においては顕著な二次粒子生成は確認されておらず、また、交通量の多い時間帯であったことから、UFP は主として道路近傍にて自動車排気（一次粒子）として排出されたものと推察された。

3.3 超微小粒子数濃度と交通量との関係

観測期間中のUFP数濃度と交通量との関係を確認するため、気温の変化が小さく、かつ、朝のラッシュ時を含む観測期間平日の0時から8時（朝方に強風が観測された12月6日を除く）のSite A におけるUFP数濃度と乗用車および大型車交通量との関係を Fig. 6 に示す。

UFP 数濃度と大型車交通量との間に良い相関が得られており、走行条件により排出粒子の粒径や個数などに違いはあるものの、UFP 排出への寄与は、乗用車よりもトラックやバスなどの大型車のほうが大きいことが示唆された。これは一般に大型車のディーゼルエンジンが UFP の主要な発生源とする報告に矛盾しない結果であった[11]。

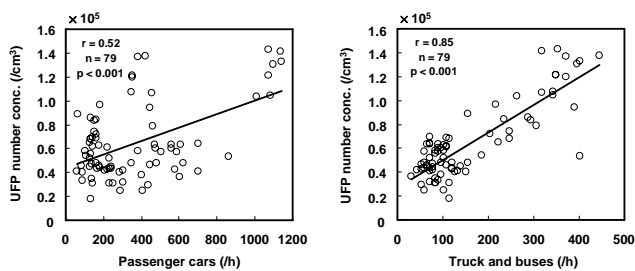


Fig. 6 Relationship between UFP number concentrations and the traffic at Site A from 0 a.m. to 8 a.m. during measurement period (except August 6).

3.4 超微小粒子数濃度とPM_{2.5}中成分との関係

観測期間中の Site A および Site B における UFP 数濃度と各種 PM_{2.5} 中成分濃度との相関係数を Table 1 に示す。UFP 数濃度は、両地点ともに PM_{2.5} 中 EC 濃度と最も良い相関を示した。OC は生物起源の発生や大気中で光化学二次生成されるのに対し、EC は人為起源発生であり、自動車からの一次排出の指標と考えることができる。この結果からも、前述したように、Site A と Site B は、ともに自動車排出の影響を受けていたと考えられる。

その一方で、両地点とも OC は EC の 2 倍近い平均濃度 (μg/m³) (Site A: OC 12.0, EC 7.3; Site B: OC 10.6, EC 4.6) が観測されているが、これは UFP 数濃度と OC の相関が低いことから考えても、主としてバックグラウンドにて二次的に生成した粒子が Site A に移流してきた結果であると考えられる。

3.5 室内外における粒子数、NO 濃度の推移と粒子状物質の室内への侵入

室内外における粒子数濃度の推移を確認するため、Site A, B, C において UFPC による粒子数濃度ならびに自動車排気の指標となる NO 濃度の連続測定を行った。その結果を Fig. 7 に、また、Fig. 7 のデータをもとに得られた各地点間の平均粒子濃度比および相関関係について Table 2 に示す。

3 地点の粒子数濃度の推移は、UFP とそれ以上の粒径の PM_{2.5} とで挙動が異なっていた。また、室内外における粒子数濃度の挙動は、換気の有無にかかわらず概ね同様の傾向であり、エアコンが室内循環式のものであることから、基本的な微小粒子の侵入経路は部屋のわずかな隙間である可能性が高かった。隙間から最も透過しやすい

Table 1. Correlation coefficients between UFP number concentration and OC, EC, nitrate, sulfate concentrations at Site A and Site B

	OC	EC	Nitrate	Sulfate
Site A (n = 26)	0.49 (p < 0.05)	0.77 (p < 0.001)	0.49 (p < 0.05)	0.51 (p < 0.01)
Site B (n = 25)	0.59 (p < 0.01)	0.82 (p < 0.001)	0.50 (p < 0.05)	0.44 (p < 0.05)

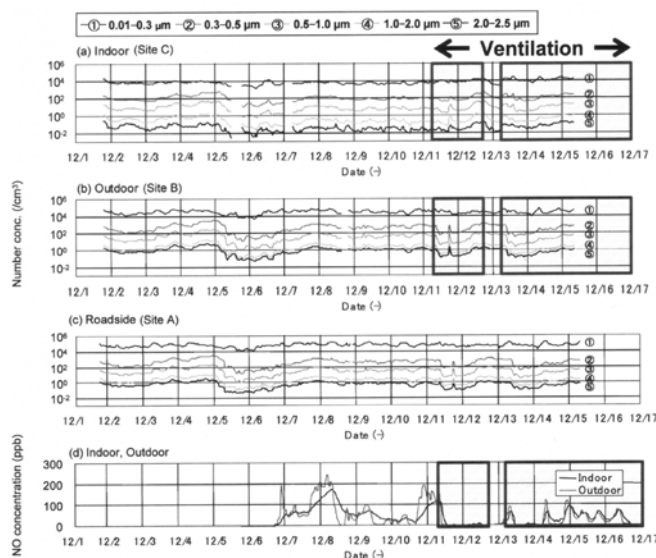


Fig. 7. Behavior of particle number concentrations at the sites of (a) indoor (Site C), (b) outdoor (Site B) and (c) roadside (Site A), and (d) NO concentrations at the two sites, indoor (Site C) and outdoor (Site B).

Table 2. Average of the particle number concentration ratios and correlation coefficients (r) between sampling sites

Particle size (μm)	O/R*	r _{O/R} (n=1884)	I/O (1)**	r _{I/O (1)} (n=1802)	I/O (2)**	r _{I/O (2)} (n=439)	I/O (2) / I/O (1)***
0.01-0.3	0.509	0.78	0.216	0.56	0.465	0.76	2.16
0.3-0.5	1.06	0.99	0.297	0.92	0.730	0.87	2.46
0.5-1.0	1.16	0.99	0.251	0.90	0.632	0.91	2.52
1.0-2.0	1.14	0.97	0.153	0.85	0.409	0.90	2.68
2.0-2.5	1.64	0.95	0.059	0.56	0.159	0.72	2.69

* O/R: Outdoor (Site B) / roadside (Site A).

** I/O: Indoor (Site C) / outdoor (Site B), (1) without ventilation, (2) with ventilation.

*** I/O (2) / I/O (1): Increased rate of I/O ratio by ventilation.

粒径は 0.1-1.0 μm であるとの報告があり[18]、本測定でも粒径 0.3-1.0 μm において、換気の有無に関係なく I/O 比 (移流の強度) と相関係数 (r : 濃度変化の時間的な一致性) が最も大きくなったことから同様の結果であったと言える。さらに I/O 比は、換気により増加しており、換気による I/O 比の増加割合は粒径の大きい粒子ほど大きく、換気により特に粒径の大きい粒子が取り込まれた可能性が示唆された。

一方 NO 濃度は、換気により Site B と C でまったく同じ濃度推移を示し、室内に燃焼等の NO 発生源はなく外

気からの侵入が NO 濃度を決定しており、換気時には NO との相関を取ることで室内外の比較を行うことが可能であることが分かった。

3.6 粒子数と PM_{2.5} 中炭素成分の室内外相関からみた自動車排気の室内への影響

PM_{2.5} をフィルタ捕集し、炭素成分分析した際の濃度変動の結果を Fig. 8 に、また、Site B, C において、各粒径における室内外の粒子数と NO、OC、EC との相関関係を調査した結果を Table 3 に示す。

Fig. 8 からわかるように、Site A と Site B において、OC の変動傾向および濃度はほぼ同様であったが、EC については、Site A において全体的に高濃度を示した。また、Table 3 において、UFP と NO、EC との間に高い相関が見られた。これらは前述したように、UFP はそれ以上の粒径の PM_{2.5} と比較して、自動車からの排ガス影響を強く受けていると考えられる。その一方で、UFP より大きい 0.3 μm 以上の粒子において OC との高い相関が見られたことは、これら粒径の粒子が、凝縮や光化学反応などの二次生成により生じたものであることを示唆している。

さらに Fig. 8 において、Site A と Site B では、OC および EC の変動の傾向は概ね同様であるが、室内(Site C)は室外(Site A, B)ほど濃度の変化が急激ではなかった。気象影響などにより、室外の OC 濃度が急速に減少するような場合、一時的に室内の方が高濃度になることもあり、室内は同質の空気塊が長く滞留する傾向にあることが確認された。

これより、3.2, 3.4 で前述した結果とあわせて考察すると、本研究で観測対象とされた道路近傍における UFP は、自動車排気出口付近での局所的な二次生成粒子が含まれる可能性はあるが、主として直接的に一次粒子として排出され、その後、徐々に後背地に拡散していく過程で濃度減少があることから、一部は乾性沈着等により消失し、一部は、凝縮等の不均一核形成を受け、より大きな PM_{2.5} 粒子へと成長していくものと推察された。これは、Table 3 において、各粒径における数濃度と EC との相関は大きく変化しないが、OC との相関が粒径が大きくなるにつれて高くなる傾向からも示唆される結果である。

また、Site C の室内においては、UFP と EC または UFP

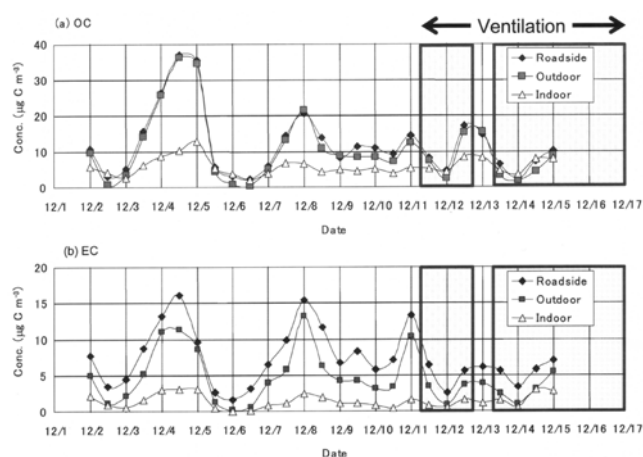


Fig. 8. Daily variations of (a) OC and (b) EC at the sites of roadside (Site A), outdoor (Site B), and indoor (Site C).

Table 3. Correlation coefficients of particle number concentration at each particle size with NO, and PM_{2.5} EC and OC fractions

Particle size (μm)	NO		EC		OC	
	Outdoor* (n=171)	Indoor** (n=174)	Outdoor* (n=25)	Indoor** (n=24)	Outdoor* (n=25)	Indoor** (n=24)
0.01-0.3	0.78	<0.05	0.82	0.55	0.59	0.46
0.3-0.5	0.56	<0.05	0.59	0.64	0.79	0.83
0.5-1.0	0.50	<0.05	0.61	0.62	0.81	0.82
1.0-2.0	0.49	<0.05	0.65	0.63	0.84	0.78
2.0-2.5	0.51	<0.05	0.67	0.54	0.84	0.52

*Outdoor: Site B, **Indoor: Site C

と OC との間に相関は見られるがそれほど高いものではなかった。その一方で、最も室内への侵入が高いとされる 0.3 ~ 0.5 μm の粒径範囲において EC、OC とともに最も高い相関を示したことから、自動車から排出された UFP が粒子成長し、最も侵入しやすい粒径に達した時点で、室内に取り込まれ、長時間室内に滞留する可能性が示唆された。

また UFP と NO に関しては全く相関が見られなかったが、これについては、NO がガス成分であるために粒子状物質より拡散速度が速く、エアコンの吹き出し風による移流や物理拡散の影響も顕著に受け、室内外の濃度均一化が粒子状物質よりもより速く起こったために、相関関係がばらついてしまったものと考えられた。

4. まとめ

本研究では、新規に開発した UFP および PM_{2.5} の数濃度を粒径別に連続モニター可能な UFPC を用い、交通量の多い都市部郊外(さいたま)の国道 463 号近傍ならびに 50 m 離れた建物屋内外において、UFP を含む粒径別粒

子数濃度の連続測定と PM_{2.5} 捕集による粒子成分分析と粒径別濃度相関の比較をおこない、UFP の発生から粒子成長、室内までの移流についてを、交通量、気象条件も含めて観測結果をもとに考察し、以下のことを明らかにした。

- 1) 新規に開発した UFPC は、フィールドにおける UFP および PM_{2.5} の数濃度連続測定において、十分な性能と操作性を示した。
- 2) 道路近傍大気では、気温が低く、交通量の多い朝の交通ラッシュ時に UFP 数濃度が高くなる傾向があり、気温の変化が小さい時間帯においては、UFP 数濃度と大型車交通量との間に高い相関関係が得られた。
- 3) 都市部郊外道路近傍において、UFP 数濃度と一次排出の指標となる PM_{2.5} 中 EC 成分との間に高い相関が見られた。
- 4) 道路近傍における UFP は、排気出口付近での局所的な二次生成粒子を含んでいる可能性はあるが、主としては自動車排気から直接的に一次粒子として排出され、乾性沈着等による減少と凝縮等の不均一核形成による成長を受けながら、徐々に後背地に拡散していく大気挙動が観測された。
- 5) 微小粒子の室内への侵入経路は基本的に部屋のわずかな隙間であり、UFP よりもより大きな粒径 0.3-1.0 μm において最も高い侵入割合を示した。これは、自動車から排出された UFP が粒子成長し、最も侵入しやすい粒径に達した時点で、室内に取り込まれ、長時間室内に滞留する可能性を示唆するものであった。

謝 辞

本研究は、平成 15-16 年度環境省環境技術開発等推進事業（実用化研究課題）補助金、ならびに、平成 16 年度埼玉大学総合研究機構研究プロジェクトにより実施されたものである。ここに記して、感謝の意を表す。

参考文献

- 1) Kittelson, D. B.: Engines and nanoparticles: A review, *J. Aerosol Sci.*, 29, 575-588 (1998)
- 2) Oberdörster, G.: Pulmonary effects of inhaled ultrafine

- particles, *Int Arch Occup Environ Health*, 74, 1-8 (2001)
- 3) Iwai, K.: Biological effect of ultrafine (nano) particles in comparison with fine particles, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, 35, 321-331 (2000) (in Japanese)
- 4) Tsukue, N., Yoshida, S., Sugawara, I. and Takeda, K.: Effect of diesel exhaust on development of fetal reproductive function in ICR female mice, *J. Health Sci.*, 50, 174-180 (2004)
- 5) Yoshida, S. and Takeda, K.: The effects of diesel exhaust on murine male reproductive function, *J. Health Sci.*, 50, 210-214 (2004)
- 6) Jenkins, P. L., Philips, T. J., Mulberg, J. M. and Hui, S. P.: Activity patterns of Californians: Use of and proximity to indoor pollutant sources, *Atmos. Environ.*, 26, 2141-2148 (1992)
- 7) Kittelson, D. B., Watts, W. F. and Johnson, J. P.: Nanoparticle emission on Minnesota highways, *Atmos. Environ.*, 38, 9-19 (2004)
- 8) Hasegawa, S., Hirabayashi, M., Kobayashi, S., Moriguchi, Y., Kondo, Y., Tanabe, K. and Wakamatsu, S.: Size distribution and characterization of ultrafine particles in roadside atmosphere, *J. Environ. Sci. Health, Part A*, 39, 2671-2690 (2004)
- 9) Charron, A. and Harrison, R. M.: Primary particle formation from vehicle emissions during exhaust dilution in the roadside atmosphere, *Atmos. Environ.*, 37, 4109-4119 (2003)
- 10) Hitchins, J., Morawska, L., Wolff, R. and Gilbert, D.: Concentrations of submicrometre particles from vehicle emissions near a major road, *Atmos. Environ.*, 34, 51-59 (2000)
- 11) Zhu, Y., Hinds, W. C., Kim, S., Shen, S. and Sioutas, C.: Study of ultrafine particles near a major highway with heavy-duty diesel traffic, *Atmos. Environ.*, 36, 4323-4335 (2002)
- 12) Shi J. P., Evans, D. E., Khan, A. A. and Harrison, R.

- M.: Sources and concentration of nanoparticles (<10 nm diameter) in the urban atmosphere, *Atmos. Environ.*, 35, 1193-1202 (2001)
- 13) Wehner, B., Birmili, W., Gnauk, T. and Wiedensohler, A.: Particle number size distributions in a street canyon and their transformation into the urban-air background: measurements and a simple model study, *Atmos. Environ.*, 36, 2215-2223 (2002)
- 14) Sekiguchi, K., Suzuki, H., Nezu, T., Hirano, M., Yoshimura, Y., Koyama, H., Fukushima, N., Otake, T. and Sakamoto, K: Field evaluation of a newly developed condensation nuclei/optical particle counter for size dividing monitoring of PM_{2.5} and ultra-fine particles in atmosphere, *Proc. the 16th International Conference on Nucleation and Atmospheric Aerosols*, 560-563 (2004)
- 15) Birch, M. E. and Cray, R. A.: Elemental carbon-based method for monitoring occupational exposures to particulate diesel exhaust, *Aerosol Sci. Technol.*, 25, 221-241 (1996)
- 16) Harris, S. J. and Maricq, M. M.: Signature size distributions for diesel and gasoline engine exhaust particulate matter, *J. Aerosol Sci.*, 32, 749-764 (2001)
- 17) Charron, A. and Harrison, R. M.: Primary particle formation from vehicle emissions during exhaust dilution in the roadside atmosphere, *Atmos. Environ.*, 37, 4109-4119 (2003)
- 18) Liu, D. L. and Nazaroff, W. W., Modeling pollutant penetration across building envelopes, *Atmos. Environ.*, 35 4451-4462 (2001)